



文章栏目：相关研究

DOI 10.12030/j.cjee.202201160 中图分类号 TQ172.9 文献标识码 A

郎子轩, 张亚朋, 刘艳芳, 等. 响应面曲线法优化含盐污水协同电石渣矿化封存 CO₂[J]. 环境工程学报, 2022, 16(10): 3478-3485. [LANG Zixuan, ZHANG Yapeng, LIU Yanfang, et al. Optimization of carbon dioxide sequestration by carbide slag mineralization with chemical salty wastewater by response surface methodology[J]. Chinese Journal of Environmental Engineering, 2022, 16(10): 3478-3485.]

响应面曲线法优化含盐污水协同电石渣矿化封存 CO₂

郎子轩¹, 张亚朋², 刘艳芳¹, 崔龙鹏^{1,✉}, 赵明明¹, 朱富霞¹

1. 中国石化石油化工科学研究院, 北京 100083; 2. 武汉三江航天远方科技有限公司, 武汉 430040

摘 要 针对电石渣湿法矿化消耗水资源较多的问题, 采用实际化工含盐污水作为反应介质, 开展电石渣湿法矿化封存 CO₂ 实验。探究温度、压力、液固比等单因素对电石渣矿化固碳封存率的影响, 并采取 Box-Behnken 响应面曲线法对工艺条件进行优化。结果表明, 污水和去离子水为介质的电石渣矿化封存 CO₂ 封存率分别为 59.59% 和 59.89%。温度和液固比对 CO₂ 封存率的影响较大, 压力影响较小, 且在温度 65 ℃、压力 1.0 MPa 和液固比 5 mL·g⁻¹ 的优化实验条件下的 CO₂ 封存率分别达到 47.56%、52.79% 和 63.47%。响应面曲线法实验结果表明, 温度和液固比之间的交互作用最为显著, 温度和压力、液固比和压力的交互作用不显著。同时确定, 在反应温度 85 ℃、初始反应压力 0.5 MPa、液固比 7.5 mL·g⁻¹ 的最优工艺条件下, 含盐污水协同电石渣矿化的 CO₂ 封存率为 66.1%。本研究结果可为研发“气 (CO₂) - 液 (含盐污水) - 固 (电石渣)”协同的二次资源循环利用技术提供参考。

关键词 含盐污水; 电石渣; 矿化反应; CO₂ 封存; 响应面曲线法

随着化石燃料中 CO₂、CH₄、N₂O 等温室气体排放量逐年增加^[1], 温室效应带来的影响也日益严重, 极端天气和自然灾害的出现也越来越频繁^[2]。其中, CO₂ 在大气中质量分数的增加对于温室效应的影响最大, 造成了 2/3 的温室效应^[3], CO₂ 减排势在必行。CO₂ 减排主要包括, 改善能源效率, 开发可再生能源, 以及 CO₂ 碳捕获利用与封存技术 (carbon dioxide capture utilization and storage, CCUS)^[4]。政府间气候变化专门委员会 (IPCC) 的一项评估指出, 为了在 2050 年前将全球平均气温上升控制在 2 ℃ 以内 CO₂ 排放量最低应减少 50%^[5]。国际能源署研究发现, 为了实现这一目标, 到 2050 年, CO₂ 碳捕获利用与封存 (CCUS) 至少贡献需要达到全球减碳量的 1/6^[6]。

目前规模化 CCUS 技术主要是矿地质封存、海洋封存、矿化封存等。其中, 地质封存可能改变原始地貌并且存在 CO₂ 泄漏的风险, 海洋封存可能会破坏海洋环境^[7], 而利用工业固体废物进行矿化封存具有生成物稳定^[8]、安全性高^[9-10]、原料成本低和距离排放源近等优势^[11], 是一种有发展潜力的规模化 CO₂ 捕集封存利用技术。武鸽等^[12]开展了典型工业固废矿化封存 CO₂ 的基础研究, 揭示了电石渣和钢渣矿化封存 CO₂ 能力强的机理。张亚朋等^[13]进一步开展了 CO₂ 矿化封存工艺 (包括干法和湿法) 路线实验研究, 对比结果表明, 电石渣和钢渣湿法矿化固碳性能一般优于干

收稿日期: 2022-01-26; 录用日期: 2022-05-15

基金项目: 中国石油化工股份有限公司科技项目 (417002-4, 418020-5, 321023, 321127)

第一作者: 郎子轩 (1996—), 男, 硕士研究生, langzixuan.ripp@sinopec.com; ✉通信作者: 崔龙鹏 (1964—), 男, 博士, 教授级高级工程师, cuilongpeng.ripp@sinopec.com

法,具有较强的应用潜力。然而,湿法矿化仍然存在能耗和成本较高等问题^[14];与此同时,石化和煤化工生产排放大量污水及高盐水需要处理^[15]。

多项研究使用化工含盐污水协同飞灰、钢渣、水泥窑粉尘等工业固体废物进行矿化反应^[16]。LI 等^[17]用高质量浓度盐水与碱性炉渣进行矿化实验,研究溶液 pH、Ca²⁺质量浓度和液固比等因素对矿化效率的影响,并且发现溶液中高质量浓度的 Ca²⁺会阻碍炉渣中 Ca²⁺的浸出。BANG 等^[18]用海水淡化厂中的浓缩海水作为反应介质替代去离子水矿化 CO₂,发现更高的 pH 有利于矿化反应的进行,Ca 与 Mg 共存时不利于 MgCO₃ 的析出。MIGNARDI 等^[19]研究发现 CO₂ 在富 Mg 溶液中停留时间更长。由此可见,海水、化工盐水等同碱性灰渣协同矿化固碳具有可行性,需要进一步研究不同固废、高浓盐水同 CO₂ 的最佳工艺条件。本研究用实际含盐污水与电石渣进行矿化实验,探究温度、压力、液固比对矿化反应中 CO₂ 封存率的影响,寻找电石渣矿化反应的最优工艺条件,以为研发含盐污水与电石渣协同处理的二次资源循环利用技术提供参考。

1 材料与方法

1.1 实验原料

本研究所用电石渣采样于宁夏某工业园区。实验前将样品在研钵中研磨至均匀粉末状,随后在 105 ℃ 下干燥至恒重状态,分别过 120 目和 200 目筛得到粒径为 75~120 μm 的样品干燥密封保存。实验所用 CO₂ 为 99.9% 高纯气体。化工含盐污水取自山西某化工园区。

1.2 实验装置

反应装置主要由高压釜 (KTFD06-20 型,烟台科立化工设备有限公司,可用体积为 0.6 L,最高温度 300 ℃,最高压力 20 MPa)、高纯 CO₂ 钢瓶和在线记录控制箱 3 部分组成。

1.3 实验方法

将溶液和处理后电石渣加入高压釜中,关闭出口阀门,在密闭条件下升温至设定温度。随后将高纯度 CO₂ 气体从钢瓶注入反应器中,使高压釜内的压力稳定在设定压力。开启机械搅拌装置,转速 200 r·min⁻¹,同时开始计时。反应 2 h 后停止加热,打开出气阀门释放压力,等高压釜内温度降低到室温。然后对反应釜内的悬浮液用 0.7 μm 滤纸进行过滤,将过滤后的反应物放入烘箱,在 105 ℃ 下烘干 12 h,并研磨均匀,后对反应产物进行分析表征。

1.4 实验设计

矿化反应受温度、压力、液固比的影响较大,分别考察反应温度 (25、45、65、85 ℃)、压力 (0.5、1.0、1.5、2.0、2.5 MPa)、液固比 (1、5、10、15 mL·g⁻¹) 对电石渣协同含盐污水湿法矿化封存 CO₂ 能力的影响。基于单因素的实验结果设计实验,采用响应面曲线法 (Response surface methodology, RSM) 进行工艺条件优化^[20-21],研究温度、压力、液固比之间的交互作用,确定矿化反应最佳工艺条件^[22]。

1.5 数据处理

CO₂ 封存率计算:取适量样品,在 N₂ 流量为 30 mL·min⁻¹ 的条件下进行热重分析,温度为 50~1 050 ℃,升温速率为 50 ℃·min⁻¹,通过测定样品在 550~950 ℃ 的失重,计算样品中的 CO₂ 质量分数 $w(\text{CO}_2)$ 和 CO₂ 封存量 K ,如式 (1)~式 (3) 所示。

$$w(\text{CO}_2) = \frac{\Delta m_{550 \sim 950^\circ\text{C}}}{m_{105^\circ\text{C}}} \times 100\% \quad (1)$$

$$K = \frac{w(\text{CO}_2)}{1 - w(\text{CO}_2)} \times 100\% \quad (2)$$

$$Q_{\text{CO}_2} = 1000 \times K \quad (3)$$

式中： $\Delta_{m550-950\text{ }^{\circ}\text{C}}$ 表示封存的 CO_2 质量，g； $w(\text{CO}_2)$ 为矿化后电石渣中的 CO_2 质量分数； K 为 CO_2 的封存率； Q_{CO_2} 为单位质量新鲜电石渣的 CO_2 封存量， $\text{g}\cdot\text{kg}^{-1}$ 。

1.6 分析与表征

采用 X 射线荧光光谱 (X-ray fluorescence, XRF) 分析电石渣化学组成；采用热重分析仪分析电石渣 CO_2 封存量；采用 Mettler Toledo-FE28 pH 测试计测定实验水样 pH；采用 Dionex-320 型离子色谱仪检测反应前后溶液中主要阴离子；采用电感耦合等离子体光谱仪 (ICP-AES) 测定阳离子。

2 结果与讨论

2.1 化工含盐污水协同电石渣矿化封存 CO_2 性能评价

分别使用实际化工含盐污水和去离子水作为反应介质进行矿化反应，图 1 是湿法矿化反应前后电石渣热重 (TG) 曲线。从图 1 中可以看出，反应前电石渣在 $100\sim 540\text{ }^{\circ}\text{C}$ 有明显质量损失，该质量损失对应 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 分解。这表明，电石渣原样中含有 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ，而矿化反应后的电石渣仅在 $550\sim 950\text{ }^{\circ}\text{C}$ 之间出现明显质量损失， $100\sim 540\text{ }^{\circ}\text{C}$ 之间的失重消失说明矿化反应后电石渣中的 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 转化为了其他物质。 $550\sim 950\text{ }^{\circ}\text{C}$ 的质量损失对应 CaCO_3 的分解，表明矿化反应后电石渣中的 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 转化成 CaCO_3 。根据计算结果可知，使用化工含盐污水和去离子水作为反应介质的电石渣 CO_2 封存率分别为 59.59% 和 59.89%，封存率基本持平。这说明，化工含盐污水对电石渣湿法矿化封存 CO_2 能力影响不大，可以使用化工含盐污水代替去离子水。

反应前后电石渣的 XRD 图谱如图 2 所示，反应前电石渣中主要矿物相为 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ，此外还有少量的 CaO 。反应后电石渣样品的 XRD 图谱中还存在少量 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 的衍射峰，使用化工含盐污水和去离子水作为反应介质的电石渣的矿物组成基本一致，这也与热重结果相符。随着反应的进行，生成的 CaCO_3 颗粒聚集、附着或覆盖在原样的表面，使内部的活性钙未能完全发生反应，因此反应后样品中存在 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 。经过矿化反应后的电石渣碱性降低，减少了环境风险，可以用作水泥、砂浆、混凝土或沥青的骨料^[23-24]，也可以通过过滤分离等手段获得高纯碳酸钙^[25-26]。

对湿法矿化反应前后的化工含盐污水进行离子分析，如表 1 所示。从表中可以看出，反应后阳离子中 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 和 Na^+ 质量浓度出现了较明显的下降，分别从 897、525、1 927 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 降至 556、221、617 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 。阴离子中 Cl^- 和 SO_4^{2-} 质量浓度也出现了较明显的下降，分别从

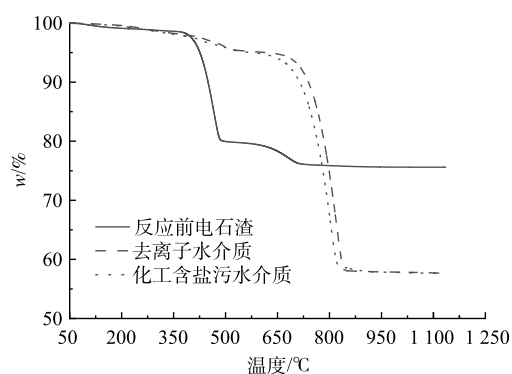


图 1 湿法矿化反应前后热重 (TG) 曲线

Fig. 1 Thermogravimetric (TG) curves before and after wet mineralization

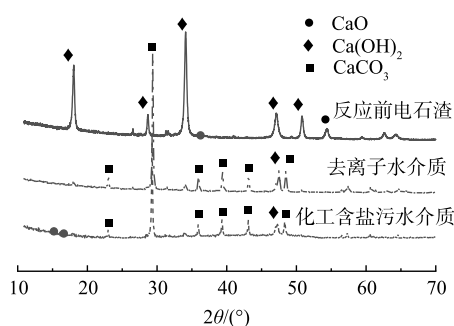


图 2 湿法矿化反应前后 XRD 图谱

Fig. 2 XRD before and after wet mineralization

表 1 反应前后溶液组分变化

Table 1 Change of solution composition before and after reaction

样品	mg·L ⁻¹						
	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	Ca ²⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Na ⁺
化工含盐污水	4 484	102	3 565	897	231	525	1 927
反应后滤液	4 087	93	617	556	171	221	617

4 484、3 565 mg·L⁻¹ 降至 4 087、617 mg·L⁻¹。湿法反应前后电石渣的 XRF 结果如表 2 所示，反应后电石渣中 Na、Cl、S 元素含量增加。Ca²⁺和 Mg²⁺质量浓度的降低可能的原因是反应过程中溶液中 Ca²⁺和 Mg²⁺与溶液中的 CO₃²⁻发生了反应，消耗了 Ca²⁺和 Mg²⁺，导致其质量浓度下降。Na⁺、Cl⁻和 SO₄²⁻不能与 CO₃²⁻反应生成沉淀，其质量浓度下降一方面可能是电石渣的加入使溶液 pH 增加 (如图 3 所示)，Ca²⁺与 SO₄²⁻生成 CaSO₄ 沉淀；另一方面，这些离子可能吸附在电石渣表面，造成溶液中离子质量浓度的下降^[27-28]。

表 2 反应前后电石渣化学组成

Table 2 Chemical composition of calcium carbide slag before and after reaction												%
样品	Na ₂ O	MgO	Al ₂ O ₃	SiO ₂	SO ₃	Cl	CaO	TiO ₂	Fe ₂ O ₃	SrO	K ₂ O	NiO
反应前电石渣	0.020	0.170	0.950	2.700	0.470	—	90.900	—	0.170	—	—	—
反应后电石渣	0.549	0.523	0.658	1.900	1.990	0.615	93.100	0.072	0.192	0.079	0.102	0.177

对矿化过程中不同阶段的 2 种水样进行 pH 测试，其 pH 变化如图 3 所示。可以看出，2 种水样 pH 不同，但是在反应过程中的 pH 变化趋势基本一致，反应前化工含盐污水 pH 为 5.18，去离子水 pH 为 7.03；加入电石渣、加热至实验温度并搅拌后，化工含盐污水滤液 pH 升至 12.02，去离子水滤液 pH 为 12.31，pH 的升高源于电石渣中碱性物质如 Ca(OH)₂ 发生电离，产生大量 OH⁻和 Ca²⁺；通入 CO₂ 后，由于 CO₂ 与溶液中 OH⁻和 Ca²⁺ (或 Mg²⁺) 发生矿化反应，OH⁻的消耗使溶液碱性降低，化工含盐污水滤液和去离子水滤液 pH 值分别下降至 7.40 和 7.15。

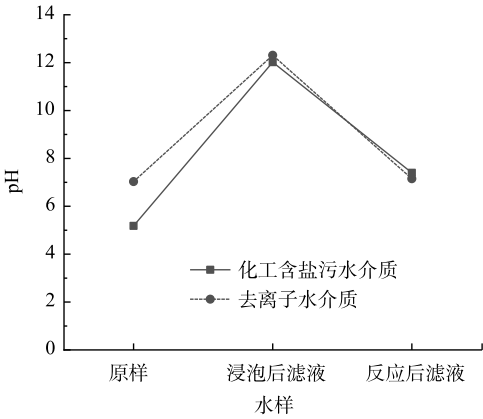


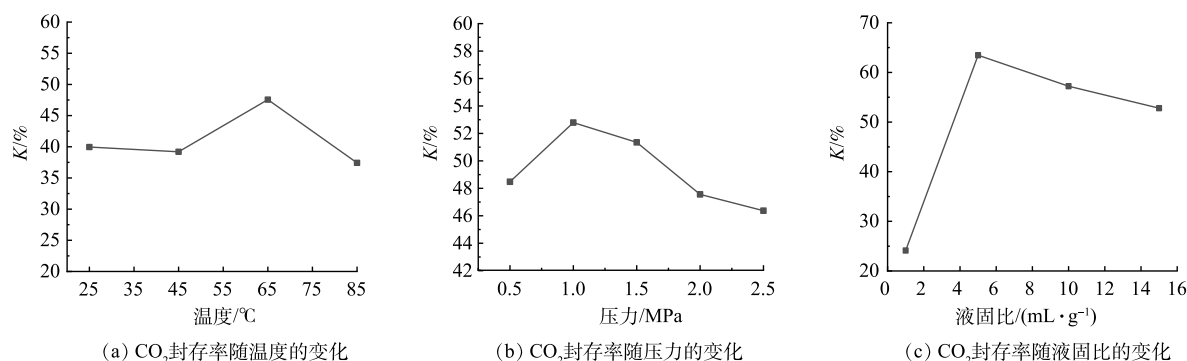
图 3 湿法矿化过程水样 pH 变化

Fig. 3 Change of pH value of water samples during wet mineralization

2.2 化工含盐污水协同电石渣矿化封存 CO₂ 反应特性

1) 温度对电石渣 CO₂ 封存率的影响。CO₂ 封存率随温度变化关系如图 4 (a) 所示。由图可见，随着温度的升高，CO₂ 封存率先增大后减小，在 65 ℃ 达到最大封存率 47.56%。随着温度升高，分子运动会随之变得剧烈，电石渣中钙更容易浸出形成 Ca²⁺溶解于液相中，但是温度的升高会降低 CO₂ 气体在溶液中的溶解度。在 65 ℃ 之前，Ca²⁺的浸出是反应控制步骤，温度升高，Ca²⁺的浸出量增大，CO₂ 封存率升高。在温度高于 65 ℃ 后，CO₂ 的溶解是反应控制步骤，随着温度升高，CO₂ 气体在溶液中的溶解度下降^[29]，导致封存率下降。矿化反应为放热反应，温度升高，反应平衡向左移动，也会导致封存率下降。

2) 压力对电石渣 CO₂ 封存率的影响。CO₂ 封存率随初始压力变化关系如图 4 (b) 所示。由图可见，CO₂ 封存率随初始压力的变化较小，随着初始压力的升高，CO₂ 封存率先增大后减小，在压力为 1.0 MPa 时 K 达到最大封存率 52.79%。压力主要对 CO₂ 在溶液中的溶解度产生影响。在一定的温度下，溶液中 CO₂ 的溶解量与压力成正比，压力差越大，推动力越大，CO₂ 在溶液中的溶解量越大^[30]。随着压力从 0.5 MPa 增大到 1.0 MPa，CO₂ 在溶液中的溶解量增大，产生的 CO₃²⁻离子增加，CO₂ 封存率增大。当压力从 1.0 MPa 增大到 2.5 MPa 时，溶液中的 CO₂ 质量浓度继续增加，与化工含盐污水中的 Ca²⁺快速反应，生成的 CaCO₃ 颗粒附着于电石渣表面，阻碍了电石渣中 Ca 的浸

图4 CO₂封存率随不同因素的变化关系Fig. 4 Variation of CO₂ sequestration rate K with different factors

出^[31],同时干扰CO₂气体在电石渣中的扩散,限制反应的进行^[32]。

3) 液固比对电石渣CO₂封存率的影响。CO₂封存率液固比变化关系如图4(c)所示。由图可见,随着液固比的升高,CO₂封存率先增大后减小,在液固比为5 mL·g⁻¹时 K 达到最大63.47%。溶液中的Ca²⁺、CO₃²⁻质量浓度对矿化反应过程有很大的影响,而液固比会影响电石渣中碱性物质和CO₂在水中的溶解程度,进而影响溶液中Ca²⁺、CO₃²⁻质量浓度及矿化封存CO₂性能^[33]。在液固比小于5 mL·g⁻¹时,虽然提供了电石渣中碱性物质与气体发生反应的液体介质,但是液固比太小,不足使电石渣中钙充分浸出,CO₂在水中的溶解量也较少。当液固比达到一定值时,电石渣中碱性物质溶解基本完全,继续增大液固比,碱性物质的溶解量不再增加,相反,液体的增加会使溶液中Ca²⁺质量浓度下降,进而矿化反应平衡向左移动,封存量降低。

2.3 化工含盐污水协同电石渣湿法矿化封存CO₂工艺条件优化

1) 模型建立与检验。根据单因素影响的实验结果设计响应面曲线工业条件优化实验,实验结果如表3所示。

根据实验结果拟合模型,由Design-Expert软件拟合出经验模型如式(4)所示。模型的 P 值为0.008 722<0.05,意味着预测模型是显著的。

$$K = 33.82 + 0.40A + 5.21B + 5.08C - 0.21AB + 0.12AC - 1.57BC - 0.01A^2 + 7.08B^2 - 0.96C^2 \quad (4)$$

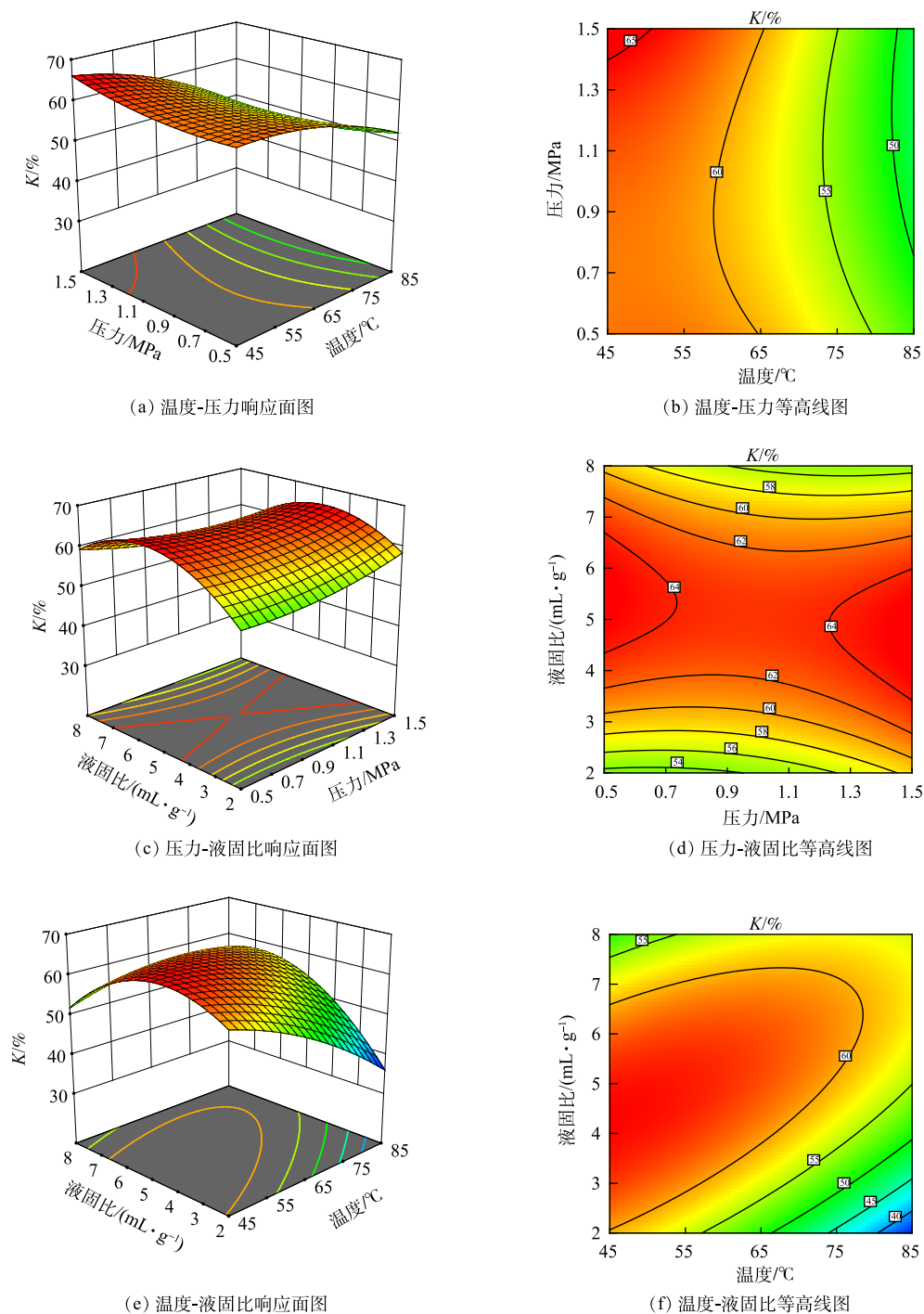
2) 因素交互作用。采用响应面曲线法研究3个变量之间的交互作用,图5为CO₂封存率的响应面图和等高线图。图5(a)、图5(b)表示,温度和压力之间的交互作用对CO₂封存率的影响,在液固比不变的情况下,温度与压力之间的交互作用较小,压力的改变对CO₂封存率的影响很微弱,这也与单因素试验的结果吻合。图5(c)、图5(d)为压力一定时温度与液固比的交互作用对CO₂封存率的影响,由于温度和液固比的影响,CO₂封存率增加,等高线的形状为椭圆形,说明温度和液固比的交互作用显著,是影响封存率最显著的参数之一。图5(e)、图5(f)为温度一定时压力与液固比的交互作用CO₂封存率的影响,三维图基本呈

表3 响应面实验结果

Table 3 Experimental results of response surface methodology

实验编号	A/°C	B/MPa	C/(mL·g ⁻¹)	K /%
1	45	0.5	5	62.6
2	85	0.5	5	63.1
3	45	1.5	5	63.9
4	85	1.5	5	56.0
5	45	1.0	2	59.8
6	85	1.0	2	36.0
7	45	1.0	8	51.9
8	85	1.0	8	56.4
9	65	0.5	2	47.5
10	65	1.5	2	51.1
11	65	0.5	8	64.9
12	65	1.5	8	59.2
13	65	1.0	5	62.4
14	65	1.0	5	63.6
15	65	1.0	5	61.7

注: A—温度; B—初始压力; C—液固比。

图 5 CO₂ 封存率响应面曲线和等高线图Fig. 5 Response surface plot and contour plot of CO₂ sequestration rate

拱形,说明液固比对于反应的影响更加明显,而2者的交互作用对于CO₂的封存来说并不显著。

3) 最佳工艺条件。基于响应面曲线拟合结果,确定CO₂封存率最大的反应条件为:85℃、0.5 MPa、液固比7.5 mL·g⁻¹,在此条件下,模型预测值为66.9%。同时,在上述条件下进行含盐污水协同电石渣湿法矿化封存CO₂实验,3次平行实验所得CO₂封存率的平均值为66.1%,电石渣实际固碳量为661 g·kg⁻¹,实验值与预测值的误差小于1.5%。因此,通过上述方法可高效准确获得矿

化封存 CO₂ 实验的最佳工艺条件。

3 结论

1) 化工含盐污水和去离子水为介质的电石渣矿化封存 CO₂ 封存率分别为 59.59% 和 59.89%，基本持平，可以使用化工含盐污水代替去离子水作为反应介质。

2) 温度和液固比对 CO₂ 封存率的影响较大，压力影响较小。单因素优化实验条件下，在温度 65 ℃、压力 1.0 MPa 和液固比 5 mL·g⁻¹ 时 CO₂ 封存率分别达到 47.56%、52.79% 和 63.47%。

3) 温度和液固比之间的交互作用最为显著，温度和压力、液固比和压力的交互作用不显著。同时确定在反应温度 85 ℃、初始反应压力 0.5 MPa、液固比 7.5 mL·g⁻¹ 的最优工艺条件下，含盐污水协同电石渣矿化的 CO₂ 封存率为 66.1%。

参考文献

- [1] KAPILA S, ONI A, GEMECHU E, et al. Development of net energy ratios and life cycle greenhouse gas emissions of large-scale mechanical energy storage systems[J]. *Energy*, 2019, 170: 592-603.
- [2] MYSIAK J, SURMINSKI S, THIEKEN A, et al. Brief communication: Sendai framework for disaster risk reduction – success or warning sign for Paris?[J]. *Natural Hazards and Earth System Sciences*, 2016, 16(10): 2189-2193.
- [3] NYAMBURA M G, MUGERA G W, FELICIA P L, et al. Carbonation of brine impacted fractionated coal fly ash: implications for CO₂ sequestration[J]. *Journal of environmental management*, 2011, 92(3): 655-664.
- [4] 王丹. 二氧化碳捕集、利用与封存技术全链分析与集成优化研究[D]. 北京: 中国科学院大学(中国科学院工程热物理研究所), 2020.
- [5] NORHASYIMA R S, MAHLIA T. Advances in CO₂ utilization technology: A patent landscape review[J]. *Journal of CO₂ Utilization*, 2018, 26: 323-335.
- [6] CUÉLLAR-FRANCA R, AZAPAGIC A. Carbon capture, storage and utilisation technologies: A critical analysis and comparison of their life cycle environmental impacts[J]. *Journal of CO₂ Utilization*, 2015, 9(1): 82-102.
- [7] 王建行, 赵颖颖, 李佳慧, 等. 二氧化碳的捕集、固定与利用的研究进展[J]. *无机盐工业*, 2020, 52(4): 6.
- [8] PANDEY S, SRIVASTAVA V C, KUMAR V. Comparative thermodynamic analysis of CO₂ based dimethyl carbonate synthesis routes[J]. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 2021, 99(2): 467-478.
- [9] WANG F, DREISINGER D, JARVIS M, et al. Quantifying kinetics of mineralization of carbon dioxide by olivine under moderate conditions[J]. *Chemical Engineering Journal*, 2019, 360: 452-463.
- [10] BOBICKI E R, LIU Q, XU Z, et al. Carbon capture and storage using alkaline industrial wastes[J]. *Progress in Energy and Combustion Science*, 2012, 38(2): 302-320.
- [11] ZHANG Z, PAN S Y, LI H, et al. Recent advances in carbon dioxide utilization[J]. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2020, 125: 109799.
- [12] 武鸽, 刘艳芳, 崔龙鹏, 等. 典型工业固体废物碳酸化反应性能的比较[J]. *石油学报(石油加工)*, 2020, 36(1): 169-178.
- [13] 张亚朋, 崔龙鹏, 刘艳芳, 等. 3种典型工业固废的CO₂矿化封存性能[J]. *环境工程学报*, 2021, 15(7): 2344-2355.
- [14] ROMANOV V, SOONG Y, CARNEY C, et al. Mineralization of Carbon Dioxide: A Literature Review[J]. *ChemBioEng Reviews*, 2015, 2(4): 231-256.
- [15] 刘展, 郭瑞亚, 李娜, 等. 高含盐废水资源化利用技术的研究进展[J]. *应用化工*, 2020, 49(10): 2657-2661.
- [16] MUSTAFA J, MOURAD A H I, AL-MARZOUQI A H, et al. Simultaneous treatment of reject brine and capture of carbon dioxide: A comprehensive review[J]. *Desalination*, 2020, 483: 114386.
- [17] LI Y, PEI S, PAN S Y, et al. Carbonation and utilization of basic oxygen furnace slag coupled with concentrated water from electrodeionization[J]. *Journal of CO₂ Utilization*, 2018, 25: 46-55.
- [18] BANG J H, YOO Y, LEE S W, et al. CO₂ mineralization using brine discharged from a seawater desalination plant[J]. *Minerals*, 2017, 7(11): 207.
- [19] MIGNARDI S, DE V C, FERRINI V, et al. The efficiency of CO₂ sequestration via carbonate mineralization with simulated wastewaters of high salinity[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2011, 191(1): 49-55.
- [20] BEHBAHANI M, MOGHADDAM M R A, ARAMI M. Techno-economical evaluation of fluoride removal by electrocoagulation process: Optimization through response surface methodology[J]. *Desalination*, 2011, 271(1-3): 209-218.
- [21] KHEDMATI M, KHODAII A, HAGHSHEENAS H F. A study on moisture susceptibility of stone matrix warm mix asphalt[J]. *Construction and Building Materials*, 2017, 144: 42-49.
- [22] ZHANG L, ZENG Y, CHENG Z. Removal of heavy metal ions using chitosan and modified chitosan: A review[J]. *Journal of Molecular Liquids*, 2016, 214: 175-191.
- [23] WANG B, PAN Z, CHENG H, et al. A review of carbon dioxide sequestration by mineral carbonation of industrial byproduct gypsum[J]. *Journal of Cleaner Production*, 2021, 302: 126930.
- [24] 任国宏, 廖洪强, 吴海滨, 等. 粉煤灰、电石渣及其配合物碳酸化特性

- [J]. 环境工程学报, 2018, 12(08): 2295-2300.
- [25] 颜鑫, 魏义兰. 含钙镁废渣综合利用的现状与展望[J]. 无机盐工业, 2022, 54(1): 7-11.
- [26] 赵立文, 朱干宇, 李少鹏, 等. 电石渣特性及综合利用研究进展[J]. 洁净煤技术, 2021, 27(3): 13-26.
- [27] PAN S, CHANG E, CHIANG P C. CO₂ capture by accelerated carbonation of alkaline wastes: a review on its principles and applications[J]. Aerosol Air Quality Research, 2012, 12(5): 770-791.
- [28] SOONG Y, FAUTH D L, HOWARD B H, et al. CO₂ sequestration with brine solution and fly ashes[J]. Energy conversion and Management, 2006, 47(13-14): 1676-1685.
- [29] NI P, XIONG Z, TIAN C, et al. Influence of carbonation under oxy-fuel combustion flue gas on the leachability of heavy metals in MSWI fly ash[J]. Waste Management, 2017, 67: 171-180.
- [30] 倪鹏. 垃圾焚烧飞灰矿化解毒一体化的研究[D]. 武汉: 华中科技大学, (责任编辑: 金曙光)
- 2018.
- [31] BACIOCCHI R, COSTA G, DI BARTOLOMEO E, et al. The effects of accelerated carbonation on CO₂ uptake and metal release from incineration APC residues[J]. Waste Management, 2009, 29(12): 2994-3003.
- [32] UKWATTAGE N L, RANJITH P, YELLISHETTY M, et al. A laboratory-scale study of the aqueous mineral carbonation of coal fly ash for CO₂ sequestration[J]. Journal of Cleaner Production, 2015, 103: 665-674.
- [33] HO H J, IIZUKA A, SHIBATA E. Utilization of low-calcium fly ash via direct aqueous carbonation with a low-energy input: Determination of carbonation reaction and evaluation of the potential for CO₂ sequestration and utilization[J]. Journal of Environmental Management, 2021, 288: 112411.

Optimization of carbon dioxide sequestration by carbide slag mineralization with chemical salty wastewater by response surface methodology

LANG Zixuan¹, ZHANG Yapeng², LIU Yanfang¹, CUI Longpeng^{1,*}, ZHAO Mingming¹, ZHU Fuxia¹

1. SINOPEC Research Institute of Petroleum Processing, Beijing 100083, China; 2. Wuhan Sanjiang Aerospace Distant Technology Co., Ltd., Wuhan 430040, China

*Corresponding author, E-mail: cuilongpeng.ripp@sinopec.com

Abstract In view of the problem that the wet mineralization of carbide slag consumes a lot of water resource, an experimental study on carbon dioxide sequestration by carbide slag wet mineralization was carried out using actual chemical salty wastewater as the reaction medium. The effect of temperature, pressure, liquid-solid ratio and other single factors on carbon sequestration rate of calcium carbide slag was studied, and then Box-Behnken response surface curve method was used to optimize the process conditions. The results showed that the CO₂ sequestration rates of calcium carbide slag mineralization with wastewater and deionized water as media were 59.59% and 59.89%, respectively, basically unchanged. The experiment revealed that temperature and liquid-solid ratio had a great influence on CO₂ sequestration rates, while pressure had a small influence. Under the optimized experimental conditions of temperature 65 °C, pressure 1.0 MPa and liquid-solid ratio 5 mL·g⁻¹, the CO₂ sequestration rate reached 47.56%, 52.79% and 63.47%, respectively. The results of response surface curve method showed that the interaction between temperature and liquid-solid was the most significant, while temperature and pressure, liquid-solid and pressure were not significantly interacted. At the same time, under the optimal conditions of reaction temperature 85 °C, initial reaction pressure 0.5 MPa and liquid-solid ratio 7.464 mL·g⁻¹, the CO₂ sequestration rate of salt wastewater coordinated calcium carbide slag mineralization reached 66.1%. This study can provide a reference for the further development of synergy technology of the secondary resource cycle of the industrial enterprise “three pollutants emissions”, for example CO₂, salty wastewater and calcium carbide slag.

Keywords chemical salty wastewater; carbide slag; mineralization reaction; CO₂ sequestration; response surface methodology