



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I626214 B

(45)公告日：中華民國 107 (2018) 年 06 月 11 日

(21)申請案號：103142492

(22)申請日：中華民國 103 (2014) 年 12 月 05 日

(51)Int. Cl. : C01B32/50 (2017.01)

B01D53/047 (2006.01)

(30)優先權：2014/03/28 日本

2014-068984

(71)申請人：住友精化股份有限公司(日本) SUMITOMO SEIKA CHEMICALS CO., LTD. (JP)  
日本(72)發明人：福島真由美 FUKUSHIMA, MAYUMI (JP)；岸井充 KISHII, MITSURU (JP)；志摩  
康一 SHIMA, KOUICHI (JP)

(74)代理人：陳長文

(56)參考文獻：

CN 101285573A

CN 101721878A

US 4986835A

審查人員：黃敬皓

申請專利範圍項數：8 項 圖式數：7 共 40 頁

(54)名稱

二氧化碳之純化方法及純化系統

PURIFICATION METHOD AND PURIFICATION SYSTEM FOR CARBONIC ACID GAS

(57)摘要

本發明提供一種可於不降低回收率之情況下提高藉由變壓式吸附法進行純化之二氧化碳之純度的二氧化碳之純化方法與純化系統。

於吸附塔 2a、2b、2c 各者中，依序實施吸附步驟、減壓步驟、解吸步驟、升壓步驟，使原料二氧化碳中所含之二氧化碳於加壓下吸附至吸附劑，並且將未被吸附劑吸附之雜質氣體作為逸氣排出。實施氣體壓出步驟，其係藉由向處於解吸步驟後且升壓步驟前之狀態之吸附塔之任一者中，導入處於減壓步驟之吸附塔之另外任一者之內部氣體，而將滯留於該處於解吸步驟後且升壓步驟前之狀態之吸附塔之任一者之內部之二氧化碳壓出至外部。將自各吸附塔於解吸步驟中排出之二氧化碳、與於氣體壓出步驟中壓出之二氧化碳作為純化氣體加以回收。

指定代表圖：

符號簡單說明：

2a、2b、2c . . . 吸  
附塔

G1 . . . 原料二氧化  
碳

G2 . . . 逸氣

G3 . . . 純化氣體

G3' . . . 純化氣體

G4 . . . 內部氣體

G5 . . . 內部氣體

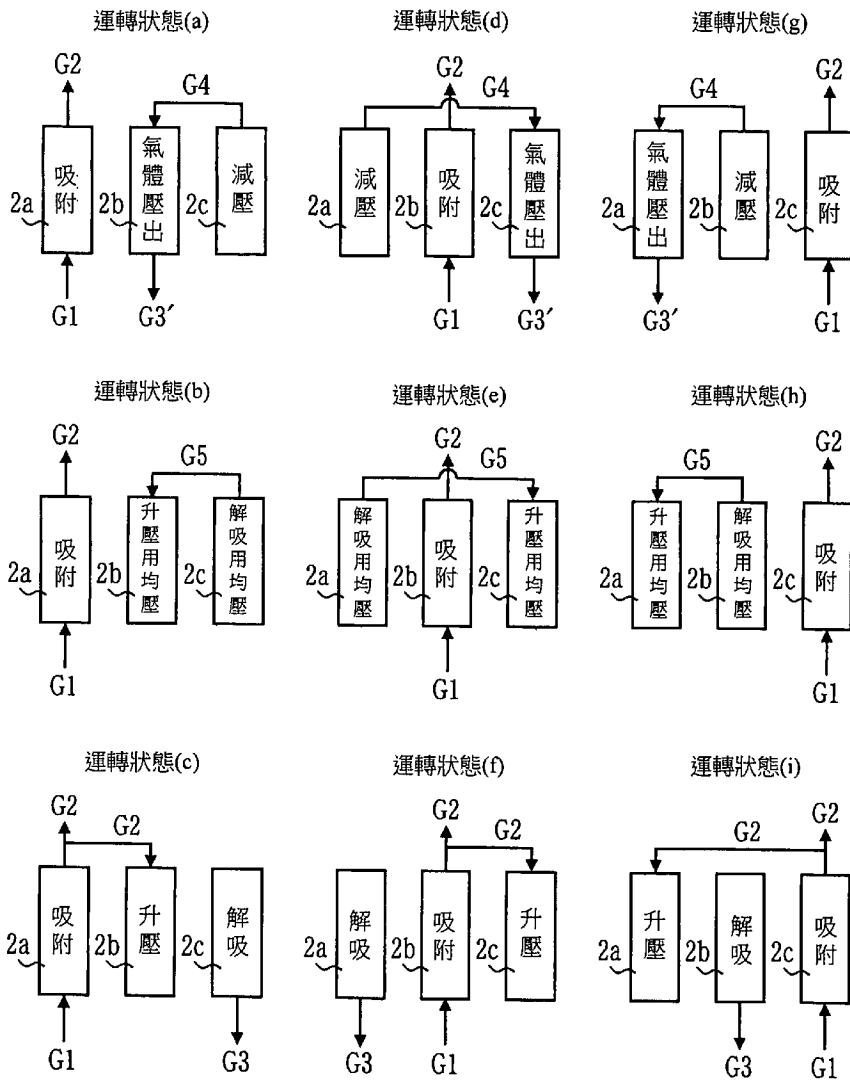


圖3

# 發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

## 【發明名稱】

二氧化碳之純化方法及純化系統

PURIFICATION METHOD AND PURIFICATION SYSTEM FOR  
CARBONIC ACID GAS

## 【技術領域】

本發明係關於一種藉由將包含雜質氣體之原料二氧化碳進行純化而以較高之回收率獲得高純度之二氧化碳之方法與系統。

## 【先前技術】

二氧化碳被用於廣泛之領域，例如用於食品等之低溫保存或低溫運輸、飲料之發泡、進行焊接之時，或用作滅火劑。於工業上，自石油純化設備、氨製造設備、製鐵設備、啤酒製造設備等中所排出之包含二氧化碳之氣體係用作二氧化碳之原料。此種原料二氧化碳由於包含氫氣、甲烷、氮氣、氧氣、一氧化碳等雜質氣體，故而進行純化以獲得高純度之二氧化碳。

作為原料二氧化碳之純化方法，已知有：藉由將二氧化碳進行壓縮冷卻使之液化而自雜質氣體中分離之低溫分離法、利用胺吸收液選擇性地吸收二氧化碳而自雜質氣體中分離之胺吸收法、使用分離膜將二氧化碳自雜質氣體中分離之方法、及變壓式吸附法(PSA, Pressure Swing Adsorption)等。於該等純化方法中，有考慮到原料二氧化碳之供給流量、成本、操作等方面，而使用變壓式吸附法之情形。

作為藉由變壓式吸附法而將原料二氧化碳進行純化之先前技術，已知有使用具有複數個吸附塔之變壓式吸附裝置的方法。於該純

化方法中，將相對於雜質氣體而優先吸附二氧化碳之吸附劑收納至各吸附塔中。於該各吸附塔中，實施如下步驟：吸附步驟，其係使所導入之原料二氧化碳中所含之二氧化碳於加壓下吸附至吸附劑，並且將未被吸附劑吸附之雜質氣體排出；及解吸步驟，其係於壓力減小時使二氧化碳自吸附劑解吸(參照專利文獻1)。將經該解吸步驟之二氧化碳作為純化氣體加以回收。

關於藉由在吸附塔之內部於大氣壓～數十kPa(錶壓)之加壓下進行吸附步驟，並使吸附塔之內部連通至常壓空間而進行解吸步驟之情形，與於真空處理後進行解吸步驟之情形相比，無需真空泵，因此可減輕電力成本及維護成本等。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

[專利文獻1]日本專利第4839114號

### 【發明內容】

[發明所欲解決之問題]

於上述專利文獻中記載之先前技術中，存在若提高所純化之二氧化碳之純度，則回收率降低、成本優勢小之問題。進而，存在所純化之二氧化碳之品質不穩定之問題。本發明之目的在於提供一種可解決使用變壓式吸附法之先前技術問題的二氧化碳之純化方法與純化系統。

[解決問題之技術手段]

本發明方法係使用具有複數個吸附塔之變壓式吸附裝置而將包含雜質氣體之原料二氧化碳進行純化時，將相對於雜質氣體而優先吸附二氧化碳之吸附劑收納至上述各吸附塔中，向上述各吸附塔中依序導入上述原料二氧化碳，於上述各吸附塔中，依序實施如下步驟而將於上述解吸步驟中自上述各吸附塔中排出之二氧化碳作為純化氣體加

以回收的二氧化碳之純化方法：吸附步驟，其係使所導入之上述原料二氧化碳中所含之二氧化碳於加壓下吸附至上述吸附劑，並且將未被上述吸附劑吸附之雜質氣體作為逸氣排出；減壓步驟，其係減少內部壓力；解吸步驟，其係將二氧化碳自上述吸附劑解吸並排出；及升壓步驟，其係使內部壓力上升；該方法之特徵在於：實施如下氣體壓出步驟，該氣體壓出步驟係藉由向處於上述解吸步驟後且上述升壓步驟前之狀態之上述吸附塔之任一者中，導入處於上述減壓步驟之上述吸附塔之另外任一者之內部氣體，而將滯留於處於上述解吸步驟後且上述升壓步驟前之狀態之上述吸附塔之任一者之內部之二氧化碳壓出至外部；將於上述氣體壓出步驟中壓出之二氧化碳作為純化氣體加以回收。

本發明係基於以下之見解。

於藉由變壓式吸附法將原料二氧化碳進行純化而獲得高純度之二氧化碳時，於解吸步驟後之吸附塔內部會滯留自吸附劑所解吸之高純度之二氧化碳。

於先前技術中，滯留於該吸附塔內部之高純度之二氧化碳雖然於其後之吸附步驟中一部分被吸附至吸附劑，但剩餘部分作為逸氣自吸附塔被排出，因而二氧化碳之回收率降低。

針對該情況，根據本發明，實施如下氣體壓出步驟，該氣體壓出步驟係藉由向處於解吸步驟後且升壓步驟前之狀態之吸附塔之任一者中，導入處於減壓步驟之吸附塔之另外任一者之內部氣體，而將該滯留之二氧化碳壓出至外部；將該壓出之二氧化碳作為純化氣體加以回收。即，可避免浪費而回收滯留於吸附塔內部之高純度之二氧化碳，從而提高二氧化碳之回收率。

本發明系統具備用以將包含雜質氣體之原料二氧化碳進行純化之變壓式吸附裝置，上述變壓式吸附裝置具有收納有相對於雜質氣體

而優先吸附二氧化碳之吸附劑的複數個吸附塔，且具備：導入流路，其係用以向上述各吸附塔中導入上述原料二氧化碳；逸氣流路，其係用以將逸氣自上述各吸附塔中排出；純化氣體流路，其係用以將二氧化碳自上述各吸附塔中排出；連通流路，其係用以將上述吸附塔之任一者與另外任一者相互連通；導入路開關閥，其係將上述各吸附塔與上述導入流路之間個別地開啟及關閉；逸氣路開關閥，其係將上述各吸附塔與上述逸氣流路之間個別地開啟及關閉；純化氣體路開關閥，其係將上述各吸附塔與上述純化氣體流路之間個別地開啟及關閉；及連通路開關閥，其係將上述各吸附塔與上述連通流路之間個別地開啟及關閉；上述各開關閥係作為以可個別地進行開關動作之方式具有開關用致動器之自動閥並且連接於控制裝置，於上述各吸附塔中，以依序實施如下步驟之方式，利用上述控制裝置而控制上述各開關閥：吸附步驟，其係使所導入之上述原料二氧化碳中所含之二氧化碳於加壓下吸附至上述吸附劑，並且將未被上述吸附劑吸附之雜質氣體作為逸氣排出；減壓步驟，其係減少內部壓力；解吸步驟，其係將二氧化碳自上述吸附劑解吸並排出；及升壓步驟，其係使內部壓力上升；該系統之特徵在於：以實施如下氣體壓出步驟之方式利用上述控制裝置控制上述各開關閥，該氣體壓出步驟係藉由向處於上述解吸步驟後且上述升壓步驟前之狀態之上述吸附塔之任一者中，導入處於上述減壓步驟之上述吸附塔之另外任一者之內部氣體，而將滯留於處於上述解吸步驟後且上述升壓步驟前之狀態之上述吸附塔之任一者之內部之二氧化碳壓出至外部。

根據本發明系統，可實施本發明方法。

於本發明方法中，較佳為於上述氣體壓出步驟中，根據上述原料二氧化碳中之二氧化碳濃度之變化而變更向上述吸附塔之任一者中自處於上述減壓步驟之上述吸附塔另外任一者所導入之氣體量。

處於減壓步驟之吸附塔之內部氣體不僅包含雜質氣體亦包含未被吸附劑吸附之二氧化碳，且該內部氣體之二氧化碳濃度根據原料二氧化碳中之二氧化碳濃度之變化而發生變化。因此，若原料二氧化碳中之二氧化碳濃度升高，則增多向處於氣體壓出步驟之吸附塔之任一者中自另外任一者所導入之氣體量，若原料二氧化碳中之二氧化碳濃度降低，則減少所導入之氣體量，藉此可抑制氣體壓出步驟中壓出之二氧化碳之純度變動，將所回收之二氧化碳之純度與回收率維持為較高。

於該情形時，本發明系統較佳為具備調節於上述連通流路中流動之氣體流量之流量控制閥，上述流量控制閥係作為以可進行流量調節動作之方式具有流量調節用致動器之自動閥並且連接至上述控制裝置，且具備檢測上述原料二氧化碳之二氧化碳濃度並且連接於上述控制裝置之感測器，上述氣體壓出步驟之預先確定之一定之實施時間係記憶於上述控制裝置，於上述氣體壓出步驟中，向上述吸附塔之任一者中導入處於上述減壓步驟之上述吸附塔之另外任一者之內部氣體時之於上述連通流路中流動之氣體流量、與上述原料二氧化碳中之二氧化碳濃度之間之預先確定之對應關係係記憶於上述控制裝置，以根據利用上述感測器所測得之二氧化碳濃度之變化而變更於上述氣體壓出步驟中向上述吸附塔之任一者中自處於上述減壓步驟之上述吸附塔之另外任一者所導入之氣體量之方式，為了以上述控制裝置所記憶之上述實施時間實施上述氣體壓出步驟，而控制上述開關閥，並且基於上述對應關係而變更上述流量控制閥之調節氣體流量。

或者，本發明系統較佳為具備檢測上述原料二氧化碳之二氧化碳濃度並且連接於上述控制裝置之感測器，上述氣體壓出步驟之實施時間、與上述原料二氧化碳中之二氧化碳濃度之間之預先確定之對應關係係記憶於上述控制裝置，以根據利用上述感測器所測得之二氧化

碳濃度之變化而變更於上述氣體壓出步驟中向上述吸附塔之任一者中自另外任一者所導入之氣體量之方式，利用上述控制裝置並基於上述對應關係而變更上述氣體壓出步驟之實施時間。

於本發明方法中，較佳為藉由使處於上述氣體壓出步驟後且上述升壓步驟前之狀態之上述吸附塔之任一者之內部、與處於上述減壓步驟後且上述解吸步驟前之狀態之上述吸附塔之另外任一者之內部以壓力相等之方式連通，而於處於上述氣體壓出步驟後且上述升壓步驟前之狀態之上述吸附塔之任一者中實施升壓用均壓步驟，並且於處於上述減壓步驟後且上述解吸步驟前之狀態之上述吸附塔之另外任一者中實施解吸用均壓步驟。

藉此，處於升壓用均壓步驟之吸附塔係藉由送入處於解吸用均壓步驟之吸附塔之內部氣體而升壓，該送入之氣體中所含之二氧化碳於其後之吸附步驟中被吸附至吸附劑。因此，可提高二氧化碳之回收率。

於本發明方法中，較佳為使用壓縮氣體作為上述原料二氧化碳，藉由上述原料二氧化碳之壓力而將上述吸附塔內部加壓至上述吸附步驟中所需之吸附壓力，藉由使上述吸附塔內部連通至常壓空間，而減壓至上述解吸步驟中所需之壓力。

因此，無需設置用以對吸附塔內部進行加壓或減壓之專用設備，而可降低電力成本或維護成本等，又，由於不進行真空操作，故而不會自外部混入空氣等，因此關係到品質之維持。

[發明之效果]

根據本發明，可於不降低回收率之情況下提高藉由變壓式吸附法進行純化之二氧化碳之純度，可獲得品質穩定之二氧化碳。

### 【圖式簡單說明】

圖1係本發明之實施形態之變壓式吸附裝置之構成說明圖。



圖2係本發明之實施形態之純化系統之控制裝置之說明圖。

圖3係表示本發明之實施形態之變壓式吸附裝置之運轉狀態(a)～(i)的圖。

圖4係表示本發明之實施形態之變壓式吸附裝置之運轉狀態、與各吸附塔中之純化處理步驟、與開關閥之狀態之對應關係的圖。

圖5係另一變壓式吸附裝置之構成說明圖。

圖6係表示比較例之變壓式吸附裝置之運轉狀態(a)'～(f)的圖。

圖7係表示比較例之變壓式吸附裝置之運轉狀態、與各吸附塔中之純化處理步驟、與開關閥之狀態之對應關係的圖。

### 【實施方式】

圖1所示之本發明之實施形態之二氧化碳之純化系統 $\alpha$ 具備用以將包含雜質氣體之原料二氧化碳G1進行純化之變壓式吸附裝置1。

變壓式吸附裝置1具有複數個吸附塔2a、2b、2c，於各吸附塔2a、2b、2c中收納相對於雜質氣體而優先吸附二氧化碳之吸附劑。於本實施形態中，設置有第1～第3吸附塔2a、2b、2c，於各吸附塔2a、2b、2c之一端及另一端形成有氣體通過口2a'、2b'、2c'、2a''、2b''、2c''。

收納於各吸附塔2a、2b、2c中之吸附劑只要為可相對於雜質氣體而優先吸附二氧化碳者，則無特別限定，可使用碳分子篩或沸石。尤其於將二氧化碳於加壓下加以吸附，並於常壓附近進行解吸之情形時，較佳為將碳分子篩作為吸附劑而填充至各吸附塔2a、2b、2c中。於使用碳分子篩之情形時，較佳為平均孔徑為1.5～2.0 nm、比表面積為1000 m<sup>2</sup>/g以上。又，較佳為吸附容量分離型。

於吸附塔2a、2b、2c各者上連接有導入配管3、逸氣配管4、及純化氣體配管5。

導入配管3之一端係連接於原料二氧化碳G1之供給源。導入配管

3之另一端係以朝向第1~第3吸附塔2a、2b、2c之方式分支為三條，且經由構成導入路開關閥之第1~第3開關閥6a、6b、6c而連接於吸附塔2a、2b、2c各者之一端之氣體通過口2a'、2b'、2c'。由此，導入配管3構成用以向吸附塔2a、2b、2c各者中導入原料二氧化碳G1之導入流路。又，藉由利用第1~第3開關閥6a、6b、6c，將吸附塔2a、2b、2c各者與導入流路之間個別地開啟及關閉，可將原料二氧化碳G1經由導入流路而個別地導入至吸附塔2a、2b、2c各者中。

原料二氧化碳G1例如係自石油純化設備、氨製造設備、製鐵設備、啤酒製造設備等供給源所供給，且係氫氣、甲烷、氮氣、氧氣、一氧化碳等雜質氣體與二氧化碳之混合氣體。自本實施形態之供給源所供給之原料二氧化碳G1係設為壓力約2 MPa(錶壓)之壓縮氣體。再者，於自供給源所供給之原料二氧化碳G1不為壓縮氣體之情形時，利用壓縮機等進行壓縮即可。

逸氣配管4之一端係以朝向第1~第3吸附塔2a、2b、2c之方式分支為三條，且經由構成逸氣路開關閥之第4~第6開關閥7a、7b、7c而連接於吸附塔2a、2b、2c各者之另一端之氣體通過口2a''、2b''、2c''。逸氣配管4之另一端係作為逸氣G2之出口，通向大氣壓下之常壓空間。因此，逸氣配管4係構成用以將逸氣G2自吸附塔2a、2b、2c各者中向常壓空間排出之逸氣流路。又，藉由利用第4~第6開關閥7a、7b、7c，將吸附塔2a、2b、2c各者與逸氣流路之間個別地開啟及關閉，可將逸氣G2自吸附塔2a、2b、2c各者中個別地排出。經由逸氣配管4所排出之逸氣G2係排出至吸附裝置1之外部。

可於逸氣配管4設置背壓調節用之第1壓力調節閥26a，將吸附塔2a、2b、2c各者中之內部壓力調節至吸附步驟中預先確定之吸附壓力。吸附壓力只要設為原料二氧化碳G1之壓力以下且超過大氣壓之適合於吸附之值即可。

純化氣體配管5之一端係以朝向第1～第3吸附塔2a、2b、2c之方式分支為三條，且經由構成純化氣體路開關閥之第7～第9開關閥8a、8b、8c而連接於吸附塔2a、2b、2c各者之一端之氣體通過口2a'、2b'、2c'。純化氣體配管5之另一端係作為純化氣體G3、G3'之出口，通向常壓空間。又，可於純化氣體配管5設置背壓調節用之第2壓力調節閥26b，以使解吸步驟中純化氣體G3、G3'具有預先確定之壓力之方式調節吸附塔2a、2b、2c各者中之內部壓力。由此，純化氣體配管5構成用以將純化氣體G3、G3'自吸附塔2a、2b、2c各者中排出之純化氣體流路。又，藉由利用第7～第9開關閥8a、8b、8c，將吸附塔2a、2b、2c各者與純化氣體流路之間個別地開啟及關閉，可將純化氣體G3、G3'自吸附塔2a、2b、2c各者中個別地排出並回收。所回收之純化氣體G3、G3'例如可貯存於特定容器中，亦可於液化裝置等後續步驟中自純化氣體流路直接供給，用途並無限定。

設置有連通配管9，該連通配管9構成用以將吸附塔2a、2b、2c之任一者與另外任一者相互連通之連通流路。連通配管9具有：第1連通部9a、第2連通部9b、及第3連通部9c。第1連通部9a之一端係以朝向第1～第3吸附塔2a、2b、2c之方式分支為三條，且經由構成連通路開關閥之第10～第12開關閥10a、10b、10c而連接於吸附塔2a、2b、2c各者之另一端之氣體通過口2a''、2b''、2c''。第2連通部9b之一端係以朝向第1～第3吸附塔2a、2b、2c之方式分支為三條，且經由構成連通路開關閥之第13～第15開關閥11a、11b、11c而連接於吸附塔2a、2b、2c各者之另一端之氣體通過口2a''、2b''、2c''。第1連通部9a之另一端與第2連通部9b之另一端係經由構成連通路開關閥之第16開關閥12、與構成調節於連通流路中流動之氣體流量之流量控制閥的第1流量控制閥13而相互連接。第3連通部9c之一端係經由構成連通路開關閥之第17開關閥14、與構成調節於連通流路中流動之氣體流量之流量

控制閥的第2流量控制閥15而連接於第1連通部9a與第2連通部9b。第3連通部9c之另一端係連接於逸氣配管4。由此，藉由將吸附塔2a、2b、2c各者與連通流路之間個別地開啟及關閉，可將吸附塔2a、2b、2c之任一者與另外任一者切換至相互之間打開而相互連通之狀態、與相互之間封閉而不連通之狀態。

第1～第17開關閥6a、6b、6c、7a、7b、7c、8a、8b、8c、10a、10b、10c、11a、11b、11c、12、14各者藉由包含公知之自動閥，而具有用以使閥作動之螺線管、馬達等開關用致動器。如圖2所示，各開關閥可藉由連接於構成純化系統 $\alpha$ 之控制裝置20，並利用控制裝置20進行控制而個別地進行開關動作。控制裝置20可包含電腦。

第1、第2流量控制閥13、15各者藉由包含公知之自動閥，而具有用以使閥作動之馬達等流量調節用致動器。如圖2所示，各流量控制閥可藉由連接於控制裝置20，並利用控制裝置20進行控制而個別地進行流量調節動作。第1、第2壓力調節閥26a、26b各者藉由包含公知之自動閥，而具有用以使閥作動之馬達等壓力調節用致動器。如圖2所示，各壓力調節閥26a、26b可藉由連接於控制裝置20，並利用控制裝置20進行控制而個別地進行壓力調節動作。

於導入配管3設置有：檢測自供給源所供給之原料二氧化碳G1之流量的流量感測器21、暫時貯存原料二氧化碳G1之緩衝箱22、緩衝箱22之內壓測定用壓力感測器23、檢測原料二氧化碳G1之二氧化碳濃度的濃度感測器24、及自導入配管3導入至各吸附塔2a、2b、2c之原料二氧化碳G1之流量調節用之第3流量控制閥25。第3流量控制閥25藉由包含公知之自動閥，而具有用以使閥作動之馬達等流量調節用致動器。如圖2所示，流量感測器21、壓力感測器23、濃度感測器24、及第3流量控制閥25係連接於控制裝置20。又，控制裝置20上連接有：檢測吸附塔2a、2b、2c各者之內部壓力的壓力感測器27a、

27b、27c、鍵盤等輸入裝置28、及顯示器等輸出裝置29。

藉由將原料二氧化碳G1暫時貯存於緩衝箱22，可緩和原料二氧化碳G1之組成變動。又，藉由利用來自控制裝置20之信號而控制第3流量控制閥25以進行流量調節動作，從而調節導入至各吸附塔2a、2b、2c之原料二氧化碳G1之流量。由此，導入至各吸附塔2a、2b、2c之原料二氧化碳G1之流量通常係以與流量感測器21之檢測流量一致之方式進行控制。於利用壓力感測器23所測得之緩衝箱22之內壓超過上限設定值時，為了使緩衝箱22之內壓降低，而將導入至各吸附塔2a、2b、2c之原料二氧化碳G1之流量設為多於流量感測器21之檢測流量。於利用壓力感測器23所測得之緩衝箱22之內壓未達下限設定值時，為了使緩衝箱22之內壓上升，將導入至各吸附塔2a、2b、2c之原料二氧化碳G1之流量設為少於流量感測器21之檢測流量。

為了利用上述純化系統 $\alpha$ 進行原料二氧化碳G1之純化，而向吸附塔2a、2b、2c各者中依序導入原料二氧化碳，於吸附塔2a、2b、2c各者中重複進行依序實施複數個純化處理步驟之純化處理循環。作為構成純化處理循環之一循環的複數個純化處理步驟，依序實施如下步驟：吸附步驟、減壓步驟、解吸用均壓步驟、解吸步驟、氣體壓出步驟、升壓用均壓步驟、及升壓步驟。各純化處理步驟之實施時間只要根據所需之純化氣體G3之純度或回收率預先藉由實驗求出並設定即可。吸附塔2a、2b、2c各者中之純化處理步驟之實施時序相互不同。由此，如圖3所示，於吸附裝置1中，依序實現吸附塔2a、2b、2c各者中之純化處理步驟相互不同之運轉狀態(a)~(i)，連續地將二氧化碳純化。圖3中之箭頭表示氣體之流動方向。

為了依序實施上述純化處理步驟，利用控制裝置20而控制第1~第17開關閥6a、6b、6c、7a、7b、7c、8a、8b、8c、10a、10b、10c、11a、11b、11c、12、14各者、與第1、第2流量控制閥13、15各者。

圖4係表示運轉狀態(a)~(i)、與吸附塔2a、2b、2c各者中所實施之純化處理步驟、與第1~第17開關閥各者之狀態之對應關係，○符號係表示開關閥打開之狀態，×符號係表示開關閥關閉之狀態。

於運轉狀態(a)下，打開第1、第4、第8、第11、第15、第16開關閥6a、7a、8b、10b、11c、12，關閉其餘開關閥。藉由打開第1、第4開關閥6a、7a，而於第1吸附塔2a中實施吸附步驟。藉由打開第8、第11、第15、第16開關閥8b、10b、11c、12，而於第2吸附塔2b中實施氣體壓出步驟，於第3吸附塔2c中實施減壓步驟。

於運轉狀態(b)下，打開第1、第4、第11、第15、第16開關閥6a、7a、10b、11c、12，關閉其餘開關閥。藉由打開第1、第4開關閥6a、7a，而於第1吸附塔2a中繼運轉狀態(a)之後繼續實施吸附步驟。藉由打開第11、第15、第16開關閥10b、11c、12，而於第2吸附塔2b中實施升壓用均壓步驟，於第3吸附塔2c中實施解吸用均壓步驟。

於運轉狀態(c)下，打開第1、第4、第9、第14、第17開關閥6a、7a、8c、11b、14，關閉其餘開關閥。藉由打開第1、第4、第14、第17開關閥6a、7a、11b、14，而於第1吸附塔2a中繼運轉狀態(b)之後繼續實施吸附步驟，於第2吸附塔2b中實施升壓步驟。藉由打開第9開關閥8c，而於第3吸附塔2c中實施解吸步驟。

於運轉狀態(d)下，打開第2、第5、第9、第12、第13、第16開關閥6b、7b、8c、10c、11a、12，關閉其餘開關閥。藉由打開第2、第5開關閥6b、7b，而於第2吸附塔2b中實施吸附步驟。藉由打開第9、第12、第13、第16開關閥8c、10c、11a、12，而於第1吸附塔2a中實施減壓步驟，於第3吸附塔2c中實施氣體壓出步驟。

於運轉狀態(e)下，打開第2、第5、第12、第13、第16開關閥6b、7b、10c、11a、12，關閉其餘開關閥。藉由打開第2、第5開關閥6b、7b，而於第2吸附塔2b中繼運轉狀態(d)之後繼續實施吸附步驟。

藉由打開第12、第13、第16開關閥10c、11a、12，而於第1吸附塔2a中實施解吸用均壓步驟，於第3吸附塔2c中實施升壓用均壓步驟。

於運轉狀態(f)下，打開第2、第5、第7、第15、第17開關閥6b、7b、8a、11c、14，關閉其餘開關閥。藉由打開第2、第5、第15、第17開關閥6b、7b、11c、14，而於第2吸附塔2b中繼運轉狀態(e)之後繼續實施吸附步驟，於第3吸附塔2c中實施升壓步驟。藉由打開第7開關閥8a，而於第1吸附塔2a中實施解吸步驟。

於運轉狀態(g)下，打開第3、第6、第7、第10、第14、第16開關閥6c、7c、8a、10a、11b、12，關閉其餘開關閥。藉由打開第3、第6開關閥6c、7c，而於第3吸附塔2c中實施吸附步驟。藉由打開第7、第10、第14、第16開關閥8a、10a、11b、12，而於第1吸附塔2a中實施氣體壓出步驟，於第2吸附塔2b中實施減壓步驟。

於運轉狀態(h)下，打開第3、第6、第10、第14、第16開關閥6c、7c、10a、11b、12，關閉其餘開關閥。藉由打開第3、第6開關閥6c、7c，而於第3吸附塔2c中繼運轉狀態(g)之後繼續實施吸附步驟。藉由打開第10、第14、第16開關閥10a、11b、12，而於第1吸附塔2a中實施升壓用均壓步驟，於第2吸附塔2b中實施解吸用均壓步驟。

於運轉狀態(i)下，打開第3、第6、第8、第13、第17開關閥6c、7c、8b、11a、14，關閉其餘開關閥。藉由打開第3、第6、第13、第17開關閥6c、7c、11a、14，而於第1吸附塔2a中實施升壓步驟，於第3吸附塔2c中繼運轉狀態(h)之後繼續實施吸附步驟。藉由打開第8開關閥8b，而於第2吸附塔2b中實施解吸步驟。

於在吸附塔2a、2b、2c之任一者中實施吸附步驟時，於該吸附塔內部經由導入流路而導入原料二氧化碳G1。吸附塔內部係藉由原料二氧化碳G1之壓力而加壓至吸附步驟中所需之吸附壓力。因此，所導入之原料二氧化碳G1中所含之二氧化碳於加壓下被吸附至吸附

劑。又，未被吸附劑吸附之雜質氣體作為逸氣G2自吸附塔內部經由逸氣流路排出。

於吸附塔2a、2b、2c之任一者中實施減壓步驟時，該吸附塔內部係經由連通流路、實施氣體壓出步驟之吸附塔2a、2b、2c之另外任一者之內部、純化氣體流路而通向常壓空間，壓力逐漸減小，成為吸附壓力與大氣壓間之第1中間壓力。此時，處於減壓步驟之吸附塔之內部氣體G4被導入至處於氣體壓出步驟之吸附塔中。減壓步驟中之吸附塔之內部壓力之減少幅度係與導入至處於氣體壓出步驟之吸附塔之氣體量對應。

於吸附塔2a、2b、2c之任一者中實施解吸用均壓步驟時，該吸附塔內部係經由連通流路而通向實施升壓用均壓步驟之吸附塔2a、2b、2c之另外任一者之內部，藉此減小壓力，成為第1中間壓力與大氣壓間之第2中間壓力。此時，處於解吸用均壓步驟之吸附塔之內部氣體G5被導入至處於升壓用均壓步驟之吸附塔中。使處於解吸用均壓步驟之吸附塔內部與處於升壓用均壓步驟之吸附塔內部成為均壓，因此處於升壓用均壓步驟之吸附塔之內部壓力上升至與第2中間壓力相等。換言之，可藉由使處於氣體壓出步驟後且升壓步驟前之狀態之吸附塔2a、2b、2c之任一者之內部、與處於減壓步驟後且解吸步驟前之狀態之吸附塔2a、2b、2c之另外任一者之內部以壓力相等之方式連通，而於處於氣體壓出步驟後且升壓步驟前之狀態之吸附塔2a、2b、2c之任一者中實施升壓用均壓步驟，並且於處於減壓步驟後且解吸步驟前之狀態之吸附塔2a、2b、2c之另外任一者中實施解吸用均壓步驟。

於吸附塔2a、2b、2c之任一者中實施解吸步驟時，該吸附塔內部係經由純化氣體流路而通向常壓空間，且利用第2壓力調節閥26b進行壓力調節，藉此與解吸用均壓步驟結束時相比壓力逐漸減小，減壓至



解吸步驟中所需之壓力，並將二氧化碳自吸附劑中解吸。所解吸之二氧化碳係作為純化氣體G3自吸附塔內部經由純化氣體流路被排出並回收。解吸步驟之末期之吸附塔內部之壓力係以於解吸步驟中純化氣體G3因自身之壓力而於純化氣體流路中流動並向常壓空間排出之方式，成為較大氣壓稍高之壓力。

於解吸步驟結束之時刻，即便吸附塔內部連通至常壓空間，亦存在純化氣體流路之流路阻力等，因而吸附塔之內部會滯留自吸附劑解吸之高純度之二氧化碳。

於吸附塔2a、2b、2c之任一者中實施升壓步驟時，該吸附塔內部係經由連通流路而通向實施吸附步驟之吸附塔2a、2b、2c之另外任一者之內部。此時，藉由使自實施吸附步驟之吸附塔所排出之逸氣G2之一部分導入至處於升壓步驟之吸附塔中，使處於升壓步驟之吸附塔之內部加壓而使壓力上升至吸附壓力或吸附壓力附近。

於吸附塔2a、2b、2c之任一者中實施氣體壓出步驟時，該任一吸附塔處於解吸步驟後且升壓步驟前之狀態。該處於解吸步驟後且升壓步驟前之狀態之吸附塔2a、2b、2c之任一者之內部係經由連通流路而通向處於減壓步驟之吸附塔2a、2b、2c之另外任一者之內部，又，經由純化氣體流路而通向常壓空間。由此，可藉由向處於解吸步驟後且升壓步驟前之狀態之吸附塔2a、2b、2c之任一者中，導入處於減壓步驟之吸附塔2a、2b、2c之另外任一者之內部氣體G4，而使滯留於處於該解吸步驟後且升壓步驟前之狀態之吸附塔2a、2b、2c之任一者之內部之二氧化碳經由純化氣體流路而向外部壓出之氣體壓出步驟，。將該氣體壓出步驟中壓出之二氧化碳作為純化氣體G3'加以回收。又，於實施氣體壓出步驟之過程中存在自吸附劑解吸之二氧化碳之情形時，亦可將該二氧化碳壓出並回收。

於氣體壓出步驟中，向吸附塔2a、2b、2c之任一者中自處於減壓

步驟之吸附塔2a、2b、2c之另外任一者所導入之氣體量係根據原料二氧化碳G1中之二氧化碳濃度之變化而變更。即，若原料二氧化碳G1之二氧化碳濃度升高，則增加該氣體量，若二氧化碳濃度降低，則減少該氣體量，藉此實現最佳化。因此，如下所述，將氣體壓出步驟之實施時間設為一定，並且利用第1流量控制閥13而調節於連通流路中流動之氣體流量。

於氣體壓出步驟中，為了向吸附塔2a、2b、2c之任一者中導入處於減壓步驟之吸附塔2a、2b、2c之另外任一者之內部氣體，而打開逸氣流路之開關閥之任一者。因此，於氣體壓出步驟中向吸附塔2a、2b、2c之任一者中導入之氣體量係與氣體壓出步驟之實施時間和於連通流路中流動之氣體流量之乘積對應。本實施形態之氣體壓出步驟之實施時間係設為預先確定之一定時間，且該一定之實施時間係記憶於控制裝置20。

又，於氣體壓出步驟中，導入至吸附塔2a、2b、2c之任一者中之氣體量可藉由利用第1流量控制閥13調節於連通流路中流動之氣體流量而變更。因此，於氣體壓出步驟中，向吸附塔2a、2b、2c之任一者中導入處於減壓步驟之吸附塔2a、2b、2c之另外任一者之內部氣體G4時之於連通流路中流動之氣體流量、與原料二氧化碳G1中之二氧化碳濃度之間之預先確定之對應關係係記憶於控制裝置20。

以根據利用濃度感測器24所測得之原料二氧化碳G1之二氧化碳濃度之變化而變更於氣體壓出步驟中向吸附塔2a、2b、2c之任一者中自處於減壓步驟之吸附塔2a、2b、2c之另外任一者導入之氣體量之方式，為了以利用控制裝置20所記憶之實施時間實施氣體壓出步驟，而控制開關閥，並且基於所記憶之對應關係而變更利用第1流量控制閥13之調節氣體流量。

於該情形時，於氣體壓出步驟中向吸附塔2a、2b、2c之任一者中

所導入之氣體量係與處於減壓步驟之吸附塔中之氣體壓出步驟開始時之內壓與氣體壓出步驟結束時之內壓之壓力差對應。只要藉由將該壓力差設為 $\delta$  MPa，將原料二氧化碳G1之二氧化碳濃度設為 $\epsilon$  vol%，將A及B設為常數，使處於減壓步驟之吸附塔之內壓減少根據 $\delta = A\epsilon^B$ 所求出之壓力差 $\delta$ ，而使於氣體壓出步驟中向吸附塔2a、2b、2c之任一者中自另外任一者所導入之氣體量最佳化即可。此處，常數A與常數B各者之值較佳為設為 $3.115 \times 10^{-5} \leq A \leq 7.115 \times 10^{-6}$ 及 $1.97 \leq B \leq 2.249$ 之範圍。即，以該壓力差於氣體壓出步驟之一定實施時間內成為 $\delta$  MPa之方式，藉由實驗而預先確定利用第1流量控制閥13進行調節之於連通流路中流動之氣體流量與原料二氧化碳G1之二氧化碳濃度之間之關係即可。利用第1流量控制閥13所進行之氣體流量之調節於純化處理步驟之一循環中進行一次即可，但若原料二氧化碳G1之濃度變動較小，則亦可於複數次循環中進行一次。

於根據原料二氧化碳G1中之二氧化碳濃度之變化而變更於氣體壓出步驟中向吸附塔2a、2b、2c之任一者中自處於減壓步驟之吸附塔2a、2b、2c之另外任一者所導入之氣體量之情形時，使處於升壓用均壓步驟之吸附塔內部與處於解吸用均壓步驟之吸附塔內部成為均壓之時點之壓力發生變化。因此，於將處於升壓步驟之吸附塔之內壓升壓至吸附壓力時，較佳為自處於吸附步驟之吸附塔導入至處於升壓步驟之吸附塔中之逸氣G2之量亦發生變化。於該情形時，於升壓步驟中，將升壓步驟之時間設為預先確定之一定值，利用第2流量控制閥15而調節於連通流路中流動之氣體流量即可。因此，藉由實驗預先確定利用第2流量控制閥15進行調節之於連通流路中流動之氣體流量與原料二氧化碳G1之二氧化碳濃度之間之關係即可。

作為用以根據原料二氧化碳G1之二氧化碳濃度之變化而變更於氣體壓出步驟中向吸附塔2a、2b、2c之任一者中自處於減壓步驟之吸

附塔2a、2b、2c之另外任一者所導入之氣體量之變化例，亦可調節氣體壓出步驟之實施時間。於該情形時，無需利用第1流量控制閥13所進行之流量控制。

即，於氣體壓出步驟中向吸附塔2a、2b、2c之任一者中自另外任一者所導入之氣體量係與氣體壓出步驟之實施時間和於連通流路中流動之氣體流量之積對應，因此可藉由調節氣體壓出步驟之實施時間而變更其氣體量。

因此，氣體壓出步驟之實施時間、與原料二氧化碳G1之二氧化碳濃度之間之預先確定之對應關係係記憶於控制裝置20。以根據利用濃度感測器24所測得之原料二氧化碳G1之二氧化碳濃度之變化而變更於氣體壓出步驟中向吸附塔2a、2b、2c之任一者中自另外任一者所導入之氣體量之方式，基於控制裝置20所記憶之對應關係而變更氣體壓出步驟之實施時間、即用於氣體壓出步驟之開關閥控制時間。再者，於變更氣體壓出步驟之實施時間之情形時，於不變更吸附步驟之時間時變更升壓、解吸步驟之實施時間。例如，於不變更運轉狀態(a)~(c)下之第1吸附塔2a中之吸附時間，而變更運轉狀態(a)下之氣體壓出步驟之實施時間之情形時，只要變更運轉狀態(c)下之升壓、解吸步驟之實施時間即可。其他只要與實施形態同樣地進行控制即可。

根據上述實施形態及變化例，藉由實施氣體壓出步驟，而向處於解吸步驟後且升壓步驟前之狀態之吸附塔2a、2b、2c之任一者中導入處於減壓步驟之吸附塔之另外任一者之內部氣體，藉此將解吸步驟後滯留於吸附塔內部之高純度之二氧化碳壓出至外部。因此，可避免浪費而回收該壓出之高純度之二氧化碳，而提高二氧化碳之回收率，從而變得可以90%以上之回收率獲得純度95 vol%以上之二氧化碳。

又，若原料二氧化碳G1之二氧化碳濃度升高，則增加向處於氣體壓出步驟之吸附塔2a、2b、2c之任一者中自另外任一者所導入之氣

體量，若原料二氧化碳G1中之二氧化碳濃度降低，則減少所導入之氣體量，藉此可抑制氣體壓出步驟中壓出之二氧化碳之純度變動，可穩定所回收之二氧化碳之純度，例如可以85%以上之較高之回收率獲得純度97 vol%以上之品質穩定之二氧化碳。純度97 vol%以上之二氧化碳可與向液化裝置供給之原料氣體混合而使用，而可減少對液化裝置之負載。

進而，處於升壓用均壓步驟之吸附塔係藉由送入處於解吸用均壓步驟之吸附塔之內部氣體而升壓，該被送入之氣體中所含之二氧化碳於其後之吸附步驟中被吸附至吸附劑。由此，可提高二氧化碳之回收率。

並且，由於藉由原料二氧化碳G1之壓力而將吸附塔內部加壓至吸附壓力，故而無需設置用於加壓或減壓之專用設備，可減輕電力成本或維護成本等，由於亦無真空操作，故而不會自外部混入空氣等，因此關係到品質之維持。即，利用原料二氧化碳之壓力具有實用性。

圖5係表示上述變壓式吸附裝置1不同之另一變壓式吸附裝置100。吸附裝置100之與上述吸附裝置1不同之處在於不具備第3連通部9c、第16開關閥12、第1流量控制閥13、第2流量控制閥15、濃度感測器24。吸附裝置100之其他構成係與上述吸附裝置1相同，並且相同部分係以符號表示，並省略相同部分之說明。

圖6、圖7係關於使用圖5所示之吸附裝置100的比較例之二氧化碳之純化方法，以下，說明與上述實施形態之不同點，省略相同部分之說明。

於比較例中，作為純化處理步驟，依序實施吸附步驟、解吸用均壓步驟、解吸步驟、升壓用均壓步驟、及升壓步驟，而不實施實施形態中之減壓步驟與氣體壓出步驟。因此，如圖6所示，依序實現吸

附塔2a、2b、2c各者中之純化處理步驟相互不同之運轉狀態(a)'～(f)'。

於比較例中，為了依序實施純化處理步驟，利用控制裝置20而控制第1～第15、第17開關閥6a、6b、6c、7a、7b、7c、8a、8b、8c、10a、10b、10c、11a、11b、11c、14各者。圖7係表示運轉狀態(a)'～(f)'、與吸附塔2a、2b、2c各者中所實施之純化處理步驟、與第1～第15、第17開關閥各者之狀態之對應關係，○符號表示開關閥打開之狀態，×符號表示開關閥關閉之狀態。

於運轉狀態(a)'下，打開第1、第4、第11、第12、開關閥6a、7a、10b、10c，關閉其餘開關閥。藉由打開第1、第4開關閥6a、7a，而於第1吸附塔2a中實施吸附步驟。藉由打開第11、第12開關閥10b、10c，而於第2吸附塔2b中實施升壓用均壓步驟，於第3吸附塔2c中實施解吸用均壓步驟。

於運轉狀態(b)'下，打開第1、第4、第9、第14、第17開關閥6a、7a、8c、11b、14，關閉其餘開關閥。藉由打開第1、第4、第15、第17開關閥6a、7a、11b、14，而於第1吸附塔2a中繼運轉狀態(a)'之後繼續實施吸附步驟，於第2吸附塔2b中實施升壓步驟。藉由打開第9開關閥8c，而於第3吸附塔2c中實施解吸步驟。

於運轉狀態(c)'下，打開第2、第5、第10、第12開關閥6b、7b、10a、10c，關閉其餘開關閥。藉由打開第2、第5開關閥6b、7b，而於第2吸附塔2b中實施吸附步驟。藉由打開第10、第12開關閥10a、10c，而於第1吸附塔2a中實施解吸用均壓步驟，於第3吸附塔2c中實施升壓用均壓步驟。

於運轉狀態(d)'下，打開第2、第5、第7、第15、第17開關閥6b、7b、8a、11c、14，關閉其餘開關閥。藉由打開第2、第5、第15、第17開關閥6b、7b、11c、14，而於第2吸附塔2b中繼運轉狀態(c)'之後

繼續實施吸附步驟，於第3吸附塔2c中實施升壓步驟。藉由打開第7開關閥8a，而於第1吸附塔2a中實施解吸步驟。

於運轉狀態(e)'下，打開第3、第6、第10、第11開關閥6c、7c、10a、10b，關閉其餘開關閥。藉由打開第3、第6開關閥6c、7c，而於第3吸附塔2c中實施吸附步驟。藉由打開第10、第11開關閥10a、10b，而於第1吸附塔2a中實施升壓用均壓步驟，於第2吸附塔2b中實施解吸用均壓步驟。

於運轉狀態(f)'下，打開第3、第6、第8、第13、第17開關閥6c、7c、8b、11a、14，關閉其餘開關閥。藉由打開第3、第6、第13、第17開關閥6c、7c、11a、14，而於第1吸附塔2a中在升壓步驟中實施升壓步驟，於第3吸附塔2c中繼運轉狀態(e)'之後繼續實施吸附步驟。藉由打開第8開關閥8b，而於第2吸附塔2b中實施解吸步驟。

於比較例中，吸附步驟、解吸用均壓步驟、解吸步驟、升壓用均壓步驟、升壓步驟係與上述實施形態同樣地進行。於吸附塔2a、2b、2c之任一者中實施解吸用均壓步驟時，該吸附塔內部係經由連通流路而通向實施升壓用均壓步驟之吸附塔2a、2b、2c之另外任一者之內部，藉此壓力減小，成為吸附壓力與大氣壓間之中間壓力。此時，將處於解吸用均壓步驟之吸附塔之內部氣體G5導入至處於升壓用均壓步驟之吸附塔中。由於使處於解吸用均壓步驟之吸附塔內部與處於升壓用均壓步驟之吸附塔內部成為均壓，故而處於升壓用均壓步驟之吸附塔之內部壓力上升至與中間壓力相等。

由於在上述比較例中未實施氣體壓出步驟，故而於處於解吸步驟後且升壓步驟前之狀態之吸附塔2a、2b、2c之任一者中，自吸附劑解吸之高純度之二氧化碳滯留於其內部。該滯留之高純度之二氧化碳於其後之吸附步驟中一部分被吸附至吸附劑，但其餘部分作為逸氣自吸附塔2a、2b、2c中被排出，因此二氧化碳之回收率降低。

## [實施例]

## [實施例1]

使用圖1所示之吸附裝置1並依據上述實施形態將原料二氧化碳G1進行純化。

原料二氧化碳G1包含二氧化碳75 vol%，分別包含作為雜質氣體之氫氣18.3 vol%、氮氣4.7 vol%、氬氣1.6 vol%、甲烷0.4 vol%。

原料二氧化碳G1向吸附裝置1中之供給流量係設為7.6 NL/min。

各吸附塔2a、2b、2c具有內徑37.1 mm、內部尺寸高度1000 mm之圓筒形狀。

向各吸附塔2a、2b、2c中，填充碳分子篩1.08升作為吸附劑。

作為純化處理步驟，依序實施：吸附步驟210秒、減壓步驟40秒、解吸用均壓步驟15秒、解吸步驟155秒、氣體壓出步驟40秒、升壓用均壓步驟15秒、升壓步驟155秒。

處於吸附步驟之吸附塔2a、2b、2c之內部壓力(吸附壓力)係設為0.8 MPa(錶壓)。處於減壓步驟之末期之吸附塔2a、2b、2c之內部壓力(第1中間壓力)係設為0.68 MPa(錶壓)。處於解吸用均壓步驟之末期之吸附塔2a、2b、2c之內部壓力(第2中間壓力)係設為0.32 MPa(錶壓)。處於解吸步驟之末期之吸附塔2a、2b、2c之內部壓力係設為0.05 MPa(錶壓)。

所獲得之純化氣體G3、G3'之二氧化碳濃度為95 vol%，回收率為91%。

## [實施例2]

使用圖1所示之吸附裝置1並依據上述實施形態而將原料二氧化碳G1進行純化。

原料二氧化碳G1包含二氧化碳82 vol%，分別包含作為雜質氣體之氫氣11.3 vol%、氮氣4.7 vol%、氬氣1.6 vol%、甲烷0.4 vol%。



為了進行純化，分別進行：吸附步驟180秒、減壓步驟40秒、解吸用均壓步驟15秒、解吸步驟125秒、氣體壓出步驟40秒、升壓用均壓步驟15秒、升壓步驟125秒。

處於吸附步驟之吸附塔2a、2b、2c之內部壓力(吸附壓力)係設為0.8 MPa(錶壓)。處於減壓步驟之末期之吸附塔2a、2b、2c之內部壓力(第1中間壓力)係設為0.65 MPa(錶壓)。處於解吸用均壓步驟之末期之吸附塔2a、2b、2c之內部壓力(第2中間壓力)係設為0.3 MPa(錶壓)。處於解吸步驟之末期之吸附塔2a、2b、2c之內部壓力係設為0.05 MPa(錶壓)。

其他條件係與實施例1相同。

所獲得之純化氣體G3、G3'之二氧化碳濃度為97.0 vol%，回收率為85%。

### [實施例3]

使用圖1所示之吸附裝置1並依據上述實施形態而將原料二氧化碳G1進行純化。

為了進行純化，分別進行：吸附步驟180秒、減壓步驟40秒、解吸用均壓步驟15秒、解吸步驟125秒、氣體壓出步驟40秒、升壓用均壓步驟15秒、升壓步驟125秒。

處於吸附步驟之吸附塔2a、2b、2c之內部壓力(吸附壓力)係設為0.8 MPa(錶壓)。處於減壓步驟之末期之吸附塔2a、2b、2c之內部壓力(第1中間壓力)係設為0.5 MPa(錶壓)。處於解吸用均壓步驟之末期之吸附塔2a、2b、2c之內部壓力(第2中間壓力)係設為0.22 MPa(錶壓)。處於解吸步驟之末期之吸附塔2a、2b、2c之內部壓力係設為0.05 MPa(錶壓)。

其他條件係與實施例1相同。

所獲得之純化氣體G3、G3'之二氧化碳濃度為92.0 vol%，回收率

為91%。

#### [實施例4]

為了進行純化，分別進行：吸附步驟180秒、減壓步驟40秒、解吸用均壓步驟15秒、解吸步驟125秒、氣體壓出步驟40秒、升壓用均壓步驟15秒、升壓步驟125秒。

處於吸附步驟之吸附塔2a、2b、2c之內部壓力(吸附壓力)係設為0.8 MPa(錶壓)。處於減壓步驟之末期之吸附塔2a、2b、2c之內部壓力(第1中間壓力)係設為0.75 MPa(錶壓)。處於解吸用均壓步驟之末期之吸附塔2a、2b、2c之內部壓力(第2中間壓力)係設為0.35 MPa(錶壓)。處於解吸步驟之末期之吸附塔2a、2b、2c之內部壓力係設為0.05 MPa(錶壓)。

其他條件係與實施例1相同。

所獲得之純化氣體G3、G3'之二氧化碳濃度為95.0 vol%，回收率為87%。

#### [比較例1]

使用圖5所示之吸附裝置100而將原料二氧化碳G1進行純化。

作為純化處理步驟，依序實施：吸附步驟、解吸用均壓步驟、解吸步驟、升壓用均壓步驟、及升壓步驟，不實施減壓步驟與氣體壓出步驟。

分別實施：吸附步驟170秒、解吸用均壓步驟15秒、解吸步驟155秒、升壓用均壓步驟15秒、升壓步驟155秒。

其他條件係與實施例1相同。

所獲得之純化氣體G3之二氧化碳濃度為89 vol%，回收率為84%。

如以下之表1所示，可確認與比較例相比，根據實施例可不降低回收率而獲得高純度之二氧化碳。

[表1]

		實施例1	實施例2	實施例3	實施例4	比較例1
原料CO <sub>2</sub> 濃度	vol%	75	82	75	75	75
純化氣體CO <sub>2</sub> 濃度	vol%	95	97	92	95	89
回收率	%	91	85	91	87	84

本發明並不限定於上述實施形態、實施例、變化例。例如，作為純化處理步驟，解吸用均壓步驟與升壓用均壓步驟並非必須，亦可於減壓步驟後實施解吸步驟，於氣體壓出步驟後實施升壓步驟。又，吸附裝置中之吸附塔之數量並不限定於3個，只要為複數個即可。

### 【符號說明】

- 1 變壓式吸附裝置
- 2a、2b、2c 吸附塔
- 2a'、2b'、2c'、2a''、2b''、  
2c'' 氣體通過口
- 3 導入配管(導入流路)
- 4 逸氣配管(逸氣流路)
- 5 純化氣體配管(純化氣體流路)
- 6a、6b、6c 第1～第3開關閥(導入路開關閥)
- 7a、7b、7c 第4～第6開關閥(逸氣路開關閥)
- 8a、8b、8c 第7～第9開關閥(純化氣體路開關閥)
- 9 連通配管(連通流路)
- 9a、9b、9c 第1～第3連通部
- 10a、10b、10c、11a、11b、11c、12、  
14 第10～第17開關閥(連通路開關閥)
- 13 第1流量控制閥
- 15 第2流量控制閥

20	控制裝置
21	流量感測器
22	緩衝箱
23	壓力感測器
24	濃度感測器
25	第3流量控制閥
26a	第1壓力調節閥
26b	第2壓力調節閥
27a、27b、27c	壓力感測器
28	輸入裝置
29	輸出裝置
100	變壓式吸附裝置
G1	原料二氧化碳
G2	逸氣
G3	純化氣體
G3'	純化氣體
G4	內部氣體
G5	內部氣體
$\alpha$	二氧化碳之純化系統

## 發明摘要

※ 申請案號：103142492

※ 申請日：103/12/05

※IPC 分類：C01B 32/50 (2017.01)  
B01D 53/047 (2006.01)

## 【發明名稱】

二氧化碳之純化方法及純化系統

PURIFICATION METHOD AND PURIFICATION SYSTEM FOR  
CARBONIC ACID GAS

## 【中文】

本發明提供一種可於不降低回收率之情況下提高藉由變壓式吸附法進行純化之二氧化碳之純度的二氧化碳之純化方法與純化系統。

於吸附塔2a、2b、2c各者中，依序實施吸附步驟、減壓步驟、解吸步驟、升壓步驟，使原料二氧化碳中所含之二氧化碳於加壓下吸附至吸附劑，並且將未被吸附劑吸附之雜質氣體作為逸氣排出。實施氣體壓出步驟，其係藉由向處於解吸步驟後且升壓步驟前之狀態之吸附塔之任一者中，導入處於減壓步驟之吸附塔之另外任一者之內部氣體，而將滯留於該處於解吸步驟後且升壓步驟前之狀態之吸附塔之任一者之內部之二氧化碳壓出至外部。將自各吸附塔於解吸步驟中排出之二氧化碳、與於氣體壓出步驟中壓出之二氧化碳作為純化氣體加以回收。

## 【英文】

無

## 申請專利範圍

1. 一種二氧化碳之純化方法，其係於使用具有複數個吸附塔之變壓式吸附裝置而將包含雜質氣體之原料二氧化碳進行純化時，  
將優先於雜質氣體吸附二氧化碳之吸附劑收納至上述各吸附塔中，  
向上述各吸附塔中依序導入上述原料二氧化碳，  
於上述各吸附塔中，依序實施如下步驟：吸附步驟，其係使所導入之上述原料二氧化碳中所含之二氧化碳於加壓下吸附至上述吸附劑，並且將未被上述吸附劑吸附之雜質氣體作為逸氣排出；減壓步驟，其係減少內部壓力；解吸步驟，其係將二氧化碳自上述吸附劑上解吸並排出；及升壓步驟，其係使內部壓力上升；  
將於上述解吸步驟中自上述各吸附塔中排出之二氧化碳作為純化氣體加以回收之方法，該二氧化碳之純化方法之特徵在於：  
實施氣體壓出步驟，其係藉由向處於上述解吸步驟後且上述升壓步驟前之狀態之上述吸附塔之任一者中，導入處於上述減壓步驟之上述吸附塔之另外任一者之內部氣體，而將滯留於處於上述解吸步驟後且上述升壓步驟前之狀態之上述吸附塔之任一者之內部之二氧化碳壓出至外部，並且  
將於上述氣體壓出步驟中壓出之二氧化碳作為純化氣體加以回收。
2. 如請求項1之二氧化碳之純化方法，其中根據上述原料二氧化碳中之二氧化碳濃度之變化，而變更於上述氣體壓出步驟中向上述吸附塔之任一者中自處於上述減壓步驟之上述吸附塔之另外

任一者所導入之氣體量。

3. 如請求項1之二氧化碳之純化方法，其中藉由使處於上述氣體壓出步驟後且上述升壓步驟前之狀態之上述吸附塔之任一者之內部、與處於上述減壓步驟後且上述解吸步驟前之狀態之上述吸附塔之另外任一者之內部以壓力相等之方式連通，而於處於上述氣體壓出步驟後且上述升壓步驟前之狀態之上述吸附塔之任一者中實施升壓用均壓步驟，並且於處於上述減壓步驟後且上述解吸步驟前之狀態之上述吸附塔之另外任一者中實施解吸用均壓步驟。
4. 如請求項2之二氧化碳之純化方法，其中藉由使處於上述氣體壓出步驟後且上述升壓步驟前之狀態之上述吸附塔之任一者之內部、與處於上述減壓步驟後且上述解吸步驟前之狀態之上述吸附塔之另外任一者之內部以壓力相等之方式連通，而於處於上述氣體壓出步驟後且上述升壓步驟前之狀態之上述吸附塔之任一者中實施升壓用均壓步驟，並且於處於上述減壓步驟後且上述解吸步驟前之狀態之上述吸附塔之另外任一者中實施解吸用均壓步驟。
5. 如請求項1至4中任一項之二氧化碳之純化方法，其中使用壓縮氣體作為上述原料二氧化碳，藉由上述原料二氧化碳之壓力而將上述吸附塔內部加壓至上述吸附步驟中所需之吸附壓力，藉由使上述吸附塔內部連通至常壓空間而減壓至上述解吸步驟中所需之壓力。
6. 一種二氧化碳之純化系統，其具備用以將包含雜質氣體之原料二氧化碳進行純化之變壓式吸附裝置，

上述變壓式吸附裝置具有收納有優先於雜質氣體吸附二氧化碳之吸附劑的複數個吸附塔，且具備：

導入流路，其係用以向上述各吸附塔中導入上述原料二氧化碳；

逸氣流路，其係用以將逸氣自上述各吸附塔中排出；

純化氣體流路，其係用以將二氧化碳自上述各吸附塔中排出；

連通流路，其係用以使上述吸附塔之任一者與另外任一者相互連通；

導入路開關閥，其係將上述各吸附塔與上述導入流路之間個別地開啟及關閉；

逸氣路開關閥，其係將上述各吸附塔與上述逸氣流路之間個別地開啟及關閉；

純化氣體路開關閥，其係將上述各吸附塔與上述純化氣體流路之間個別地開啟及關閉；及

連通路開關閥，其係將上述各吸附塔與上述連通流路之間個別地開啟及關閉；

上述各開關閥係作為以可個別地進行開關動作之方式具有開關用致動器之自動閥並且連接於控制裝置，

於上述各吸附塔中，以依序實施如下步驟之方式利用上述控制裝置而控制上述各開關閥：吸附步驟，其係使所導入之上述原料二氧化碳中所含之二氧化碳於加壓下吸附至上述吸附劑，並且將未被上述吸附劑吸附之雜質氣體作為逸氣排出；減壓步驟，其係減少內部壓力；解吸步驟，其係將二氧化碳自上述吸附劑上解吸並排出；及升壓步驟，其係使內部壓力上升；該二氧化碳之純化系統之特徵在於：

以實施如下氣體壓出步驟之方式利用上述控制裝置而控制上述各開關閥，該實施氣體壓出步驟係藉由向處於上述解吸步驟



後且上述升壓步驟前之狀態之上述吸附塔之任一者中，導入處於上述減壓步驟之上述吸附塔之另外任一者之內部氣體，而將滯留於處於上述解吸步驟後且上述升壓步驟前之狀態之上述吸附塔之任一者之內部之二氧化碳壓出至外部。

7. 如請求項6之二氧化碳之純化系統，其具備調節於上述連通流路中流動之氣體流量之流量控制閥，

上述流量控制閥係作為以可進行流量調節動作之方式具有流量調節用致動器之自動閥並且連接於上述控制裝置，

具備檢測上述原料二氧化碳中之二氧化碳濃度並且連接於上述控制裝置之感測器，

上述氣體壓出步驟之預先確定之一定之實施時間係記憶於上述控制裝置，

於上述氣體壓出步驟中，向上述吸附塔之任一者中導入處於上述減壓步驟之上述吸附塔之另外任一者之內部氣體時之於上述連通流路中流動之氣體流量、與上述原料二氧化碳中之二氧化碳濃度之間之預先確定之對應關係係記憶於上述控制裝置，

以根據利用上述感測器所檢測出之二氧化碳濃度之變化而變更於上述氣體壓出步驟中向上述吸附塔之任一者中自處於上述減壓步驟之上述吸附塔之另外任一者所導入之氣體量之方式，為了以上述控制裝置所記憶之上述實施時間實施上述氣體壓出步驟，而控制上述開關閥，並且基於上述對應關係而變更上述流量控制閥之調節氣體流量。

8. 如請求項6之二氧化碳之純化系統，其具備檢測上述原料二氧化碳之二氧化碳濃度並且連接於上述控制裝置之感測器，

上述氣體壓出步驟之實施時間、與上述原料二氧化碳中之二氧化碳濃度之間之預先確定之對應關係係記憶於上述控制裝

置，

以根據利用上述感測器所檢測出之二氧化碳濃度之變化而變更於上述氣體壓出步驟中向上述吸附塔之任一者中自另外任一者導入之氣體量之方式，利用上述控制裝置並基於上述對應關係而變更上述氣體壓出步驟之實施時間。

圖式

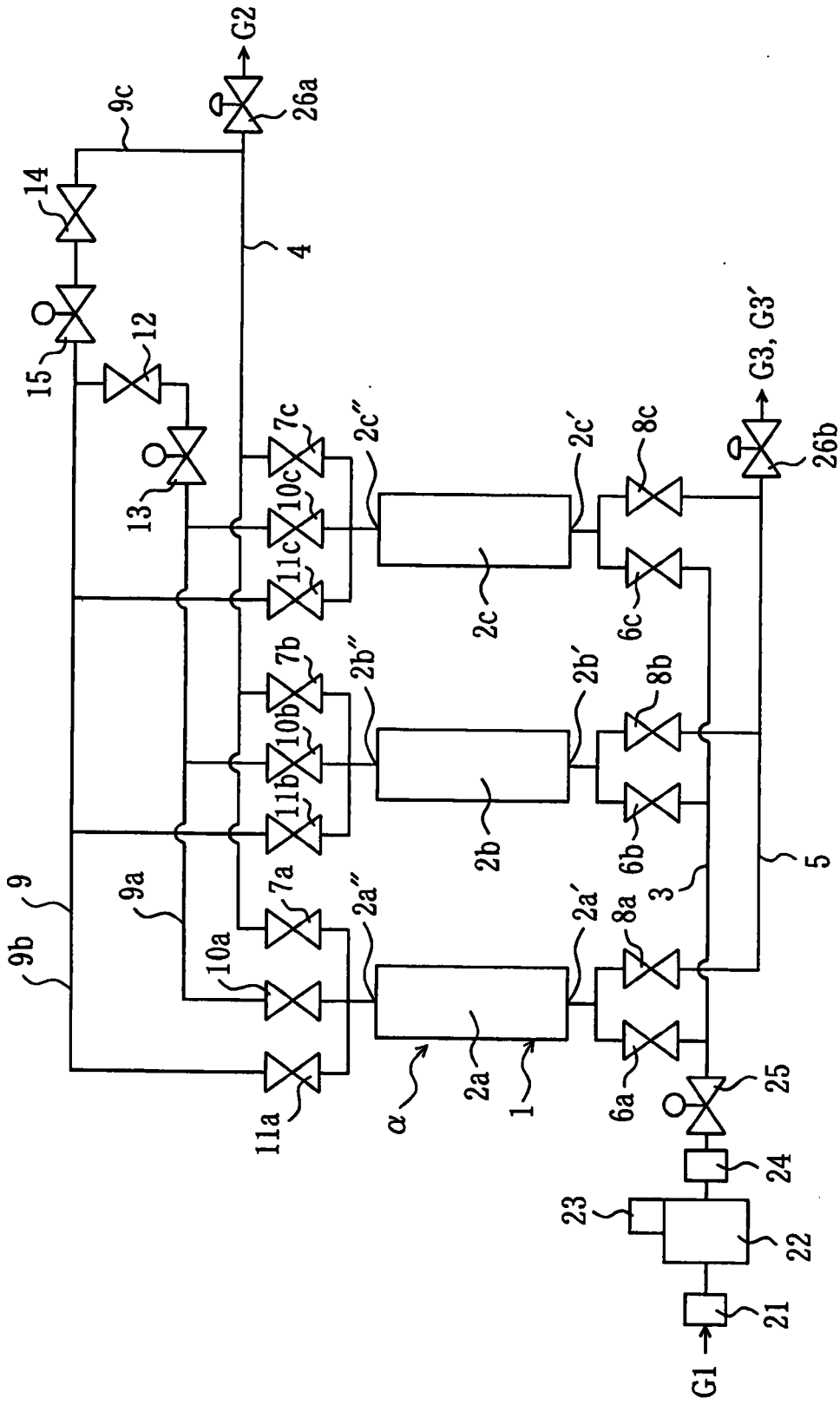


圖1

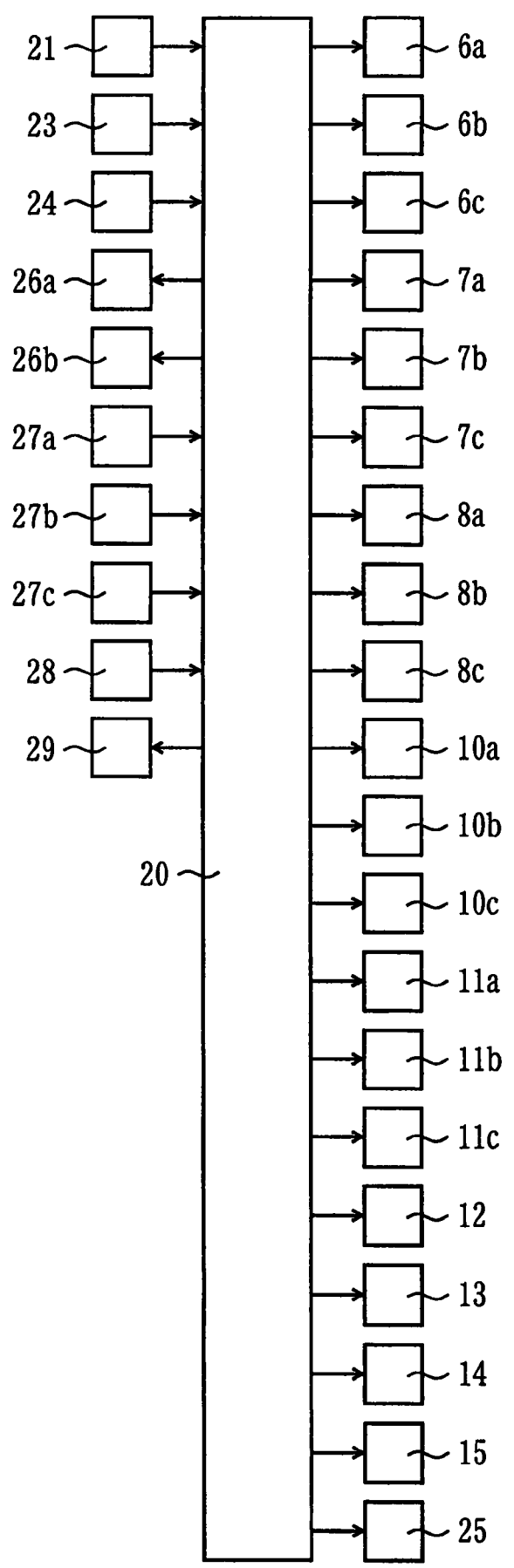


圖2



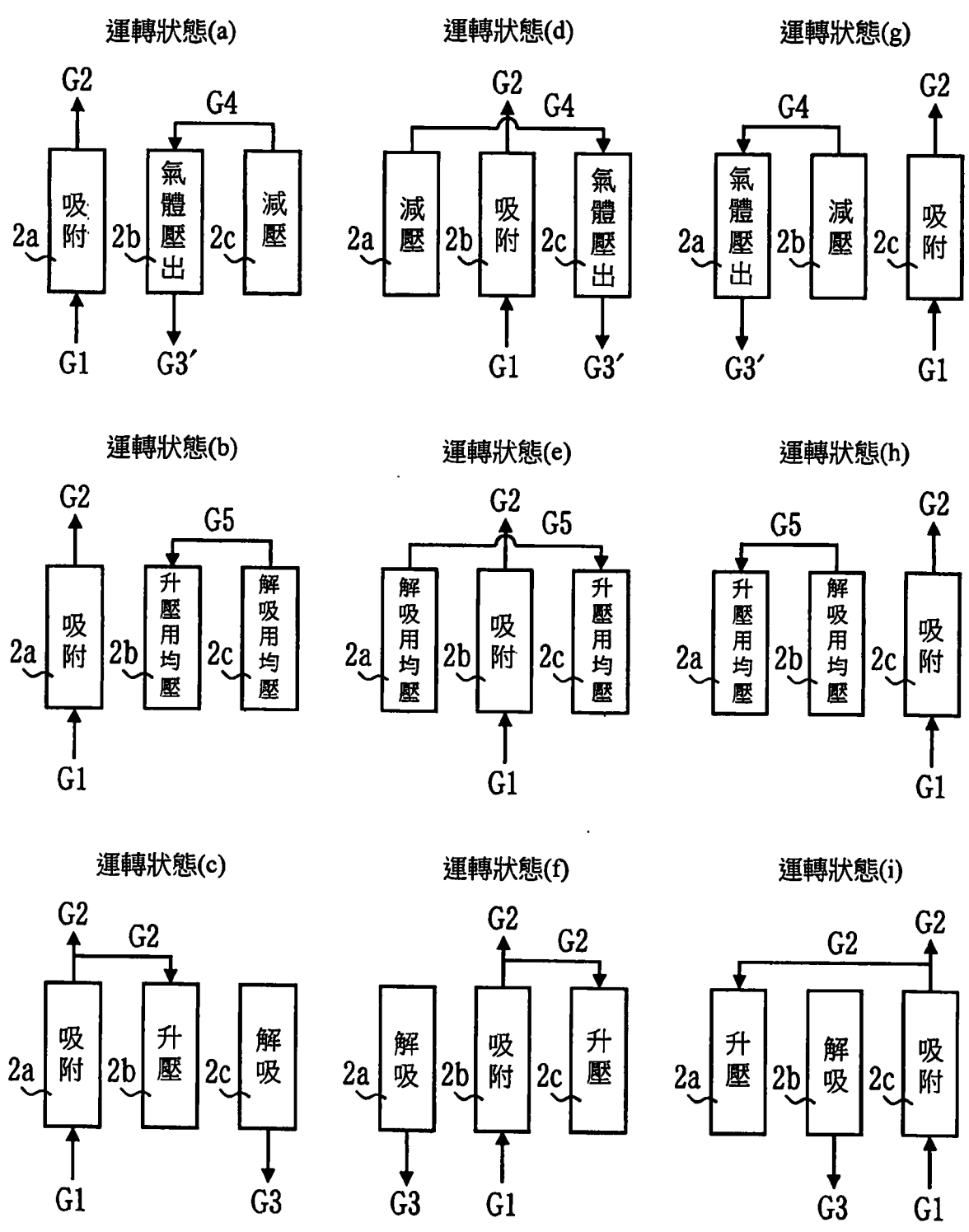


圖3

運轉狀態	(a)	(b)	(c)	(d)	(e)	(f)	(g)	(h)	(i)
	吸附 氣體壓出 減壓	吸附 升壓用均壓	吸附 升壓	減壓 吸附 氣體壓出	解吸用均壓 吸附 升壓用均壓	解吸 解吸 升壓	氣體壓出 減壓 吸附	升壓用均壓 解吸用均壓 吸附	升壓 解吸 吸附
吸附塔	2a	○	○	×	×	×	×	×	×
	2b	×	×	○	○	○	○	○	×
	2c	×	○	×	×	×	×	×	○
開關閥	6a	○	○	×	×	×	×	×	×
	6b	×	×	○	○	○	○	○	×
	6c	×	×	×	×	×	○	○	×
	7a	○	○	○	×	×	×	×	×
	7b	×	×	×	○	○	×	×	×
	7c	×	×	×	×	×	○	○	○
	8a	×	×	×	×	×	○	○	×
	8b	○	×	×	×	×	×	×	○
	8c	×	×	○	○	×	×	×	×
	10a	×	×	×	×	×	○	○	×
	10b	○	○	×	×	×	×	×	×
	10c	×	×	×	○	○	×	×	×
	11a	×	×	×	○	○	×	×	○
	11b	×	×	○	×	×	×	○	×
11c	○	○	×	×	×	○	×	×	
12	○	○	×	○	○	×	○	×	
14	×	×	○	×	×	○	×	○	

圖4

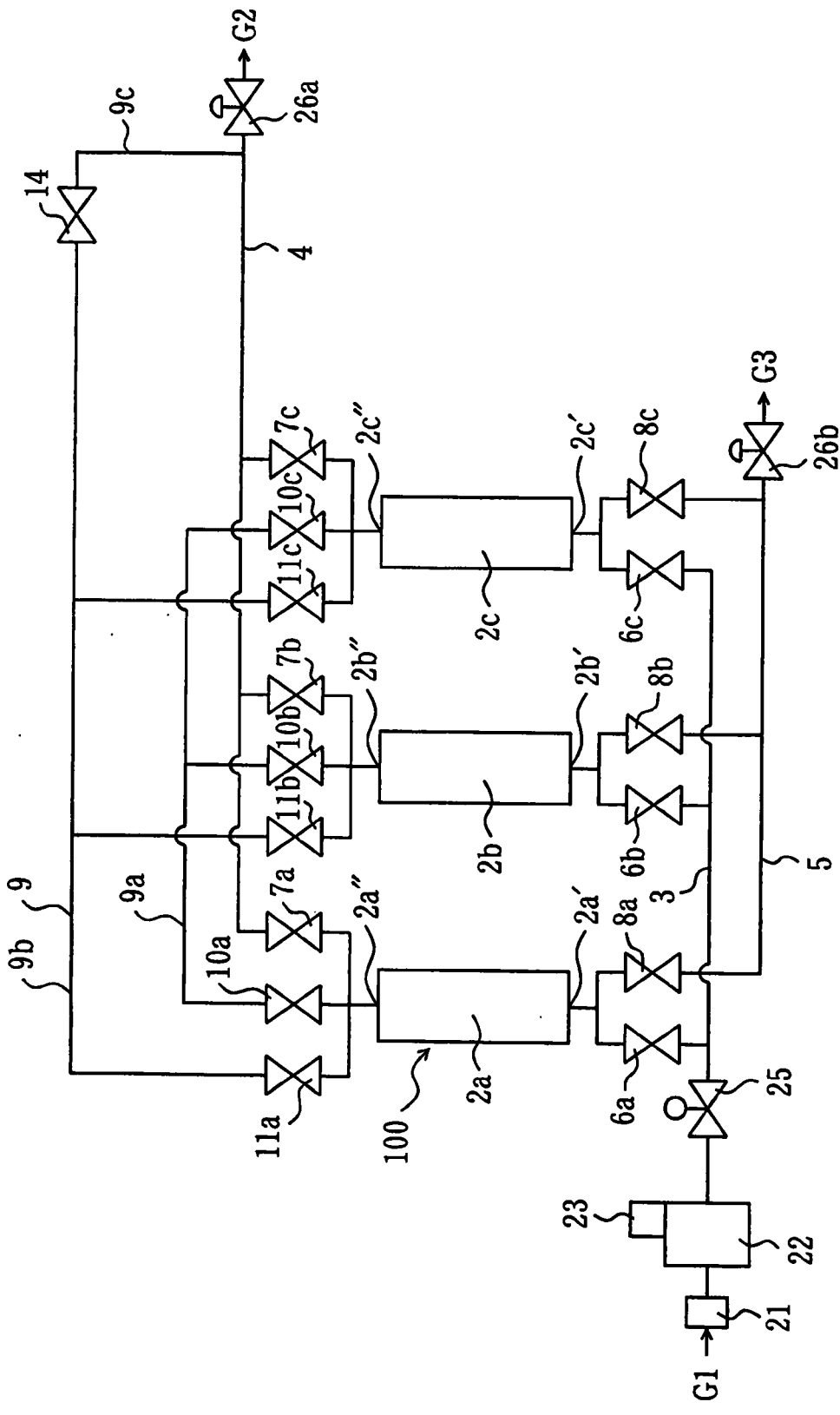


圖5

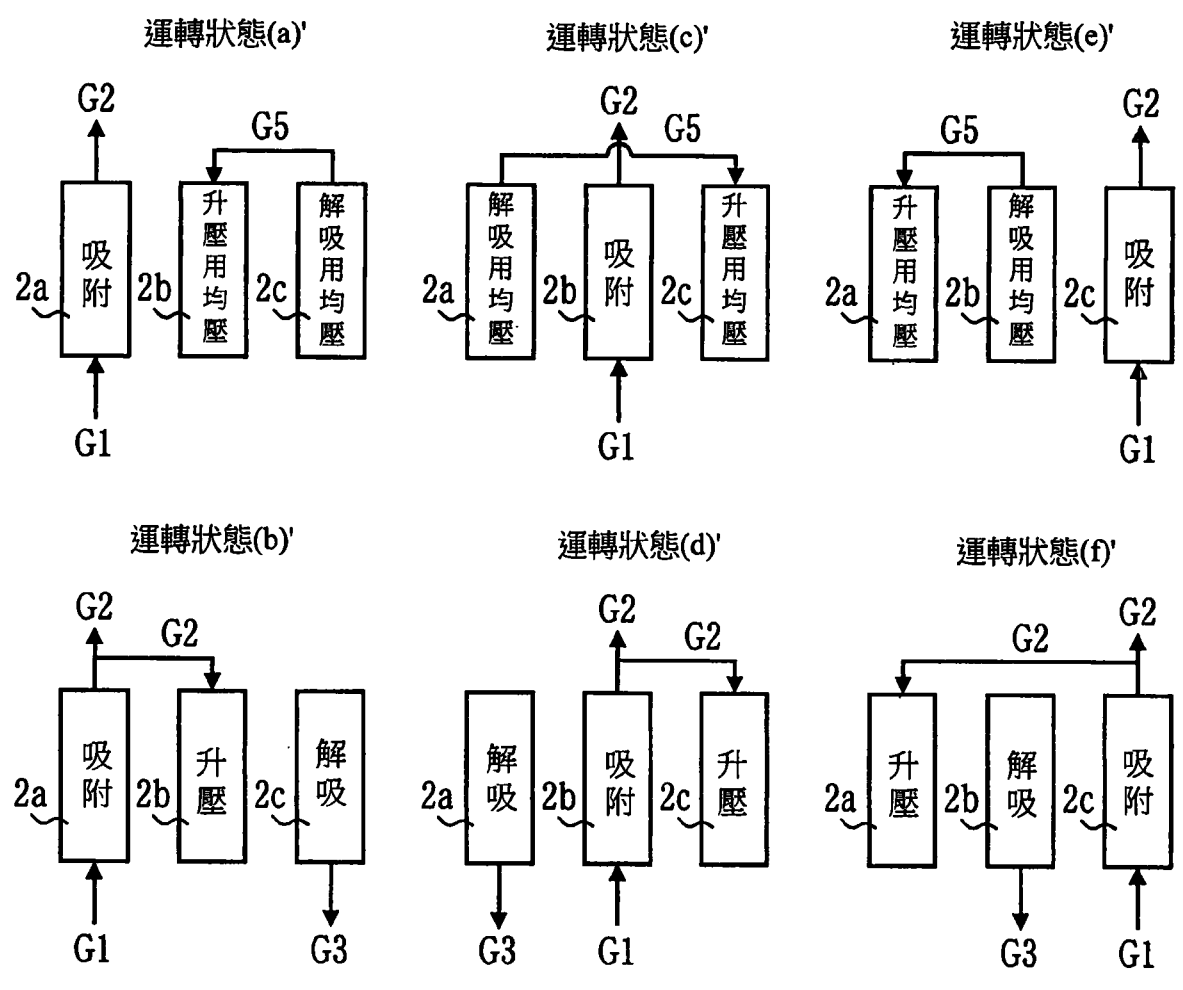


圖6



運轉狀態	(a)'	(b)'	(c)'	(d)'	(e)'	(f)'
	2a	吸附	吸附	解吸用均壓	解吸	升壓用均壓
2b	升壓用均壓	升壓	吸附	吸附	解吸用均壓	解吸
2c	解吸用均壓	解吸	升壓用均壓	升壓	吸附	吸附
6a	○	○	×	×	×	×
6b	×	×	○	○	×	×
6c	×	×	×	×	○	○
7a	○	○	×	×	×	×
7b	×	×	○	○	×	×
7c	×	×	×	×	○	○
8a	×	×	×	○	×	×
8b	×	×	×	×	×	○
8c	×	○	×	×	×	×
10a	×	×	○	×	○	×
10b	○	×	×	×	○	×
10c	○	×	○	×	×	×
11a	×	×	×	×	×	○
11b	×	○	×	×	×	×
11c	×	×	×	○	×	×
14	×	○	×	○	×	○

開關閥

圖7

**【代表圖】**

**【本案指定代表圖】**：第(3)圖。

**【本代表圖之符號簡單說明】**：

2a、2b、2c 吸附塔

G1 原料二氧化碳

G2 逸氣

G3 純化氣體

G3' 純化氣體

G4 內部氣體

G5 內部氣體

**【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】**：

無