



新規二酸化炭素吸収液が示す相分離現象に関わる 微視的な構造学的特徴の同定

柳瀬慶一¹, 山口毅², 町田洋¹

名古屋大学大学院工学研究科¹化学システム工学専攻,²物質プロセス工学専攻

キーワード：二酸化炭素吸収液, 相分離, 小角・広角 X 線散乱

1. 背景と研究目的

町田らによって提案された新規二酸化炭素吸収液は、アミン/エーテル/水で構成される三成分系均一液体(常温常圧条件下)であり、二酸化炭素の吸収に伴って相分離を起こす。^[1]この現象を利用することで、従来の化学吸収法と比較して、二酸化炭素の分離・回収に必要なエネルギーを大幅に削減することが可能となる。^[2]本研究では、二酸化炭素の吸収によって誘起される相分離現象のメカニズム-特に相分離に至る過程での分子の会合状態を表す微視的な構造学的特徴-を同定することを目的として、小角・広角 X 線散乱実験を行った。

2. 実験内容

二酸化炭素吸収液[2-ethylaminoethanol(EAE)/diethyleneglycoldiethylether(DEGDEE)/H₂O = 30/60/10 (重量基準)]に、二酸化炭素と窒素の混合ガスを 40°C で吹き込み、異なる CO₂ loading ($\alpha \equiv [\text{mol-CO}_2]/[\text{mol-amine}]$)の溶液を調製した。小角・広角 X 線散乱実験はあいち SR の BL8S3 にて行った。マイカ製の窓材で挟んだ試料(厚さ約 1 mm, 温度約 40°C)に波長 1.5 Å の X 線を 8 分間照射した。小角領域および広角領域の散乱強度の検出にはそれぞれ PILATUS(カメラ長: 3920.4 mm)と Flat Panel(51.0 mm) 検出器を用いた。二次元の散乱像は FIT2D を用いて一次元の散乱曲線に変換し、電離箱を用いた透過率の補正及びセルから生じるバックグラウンドの差し引きを行うことで試料の散乱強度を求めた。

3. 結果および考察

小角領域における吸収液の散乱強度 $I(q)$ を Fig.1 に示す。CO₂ loading α の増加に伴って前方散乱強度が上昇し、肩の位置は小角側にシフトする。 $\alpha > 0.04$ の散乱曲線は、Ornstein-Zernike 型の散乱関数でよく記述された。これらのことは二酸化炭素がアミンに吸収されることで系内に濃度または密度揺らぎが新たに生じ、その大きさと空間スケールが増大していることを示している。特に、浸透圧縮率に関係した前方散乱強度 $I(0)$ と相関長 ξ が相境界近傍で発散様に増大することが明らかになった。

広角領域の散乱曲線を Fig.2 に示す。小角領域で観測された挙動とは対照的に、散乱曲線の形は二酸化炭素の吸収量にほとんど依存しないことが確認できる。また、吸収液の散乱曲線は EAE と DEGDEE の散乱曲線の線形結合と類似していることが分かった。すなわち、系内の原子間距離分布に関係した微視的な構造は測定濃度領域において大きく変化しないことが考えられる。

4. 謝辞・参考文献

本実験を行うにあたりビームライン管理者である杉山信之氏、山元博子氏の補助を受けた。深く感謝申し上げます。

1. H. Machida et al., *J. Chem. Thermodyn.* **113**, 64 (2017). 2. H. Machida et al., *Int. J. Greenh. Gas Con.* **75**, 1 (2018).

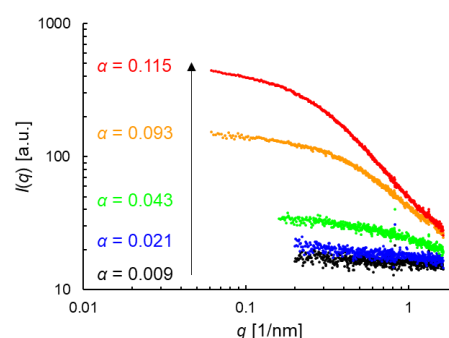


Fig.1. Small-angle scattering intensities $I(q)$ of the absorbent at different CO₂ loading α .

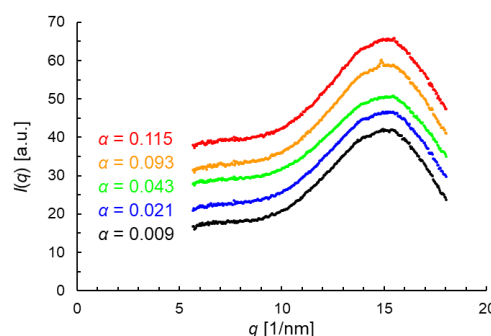


Fig.2. Effect of CO₂ loading α on wide-angle scattering intensities $I(q)$ of the absorbent.