

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2013-17993
(P2013-17993A)

(43) 公開日 平成25年1月31日(2013.1.31)

(51) Int.Cl.	F 1	テーマコード (参考)
B01D 53/14 (2006.01)	B01D 53/14	1 O 2 4 D002
B01D 53/62 (2006.01)	B01D 53/34	1 3 5 Z 4 D020
C07C 217/28 (2006.01)	C07C 217/28	C S P 4 G 1 4 6
C07C 311/09 (2006.01)	C07C 311/09	Z A B 4 H006
C07C 219/06 (2006.01)	C07C 219/06	

審査請求 未請求 請求項の数 13 O L (全 44 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2012-133199 (P2012-133199)	(71) 出願人	301021533 独立行政法人産業技術総合研究所 東京都千代田区霞が関1-3-1
(22) 出願日	平成24年6月12日 (2012.6.12)	(71) 出願人	000167646 広栄化学工業株式会社 大阪府大阪市城東区放出西二丁目12番1号
(31) 優先権主張番号	特願2011-131704 (P2011-131704)	(74) 代理人	100100734 弁理士 江幡 敏夫
(32) 優先日	平成23年6月13日 (2011.6.13)	(72) 発明者	牧野 貴至 宮城県仙台市宮城野区苦竹四丁目2番1号 独立行政法人産業技術総合研究所東北センター内
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】酸性ガス吸収液及び該酸性ガス吸収液を用いる酸性ガスの選択的分離回収法

(57) 【要約】

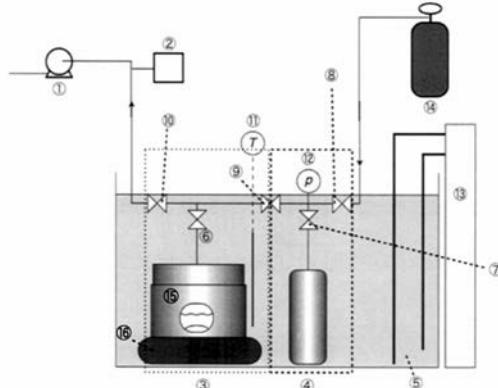
【課題】

酸性ガスの物理吸収能力の向上を達成できるイオン液体を提供すること。

【解決手段】

エーテル基及び又はエステル基を有するイオン液体において、カチオンが非環状若しくは環状のアンモニウム又は非環状若しくは環状のホスホニウムである、1種あるいは2種以上のカチオンであり、アニオンがアミド系アニオン又はカルボン酸系アニオンである、1種あるいは2種以上のアニオンであり、かつ、前記カチオンはエーテル基及び/又はエステル基を有することを特徴とする。

【選択図】 図2



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

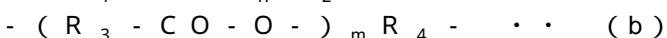
エーテル基及び/又はエステル基を有するイオン液体を少なくとも含むことを特徴とする酸性ガスの吸収量が向上した酸性ガス吸収液。

【請求項 2】

エーテル基及び/又はエステル基を有するイオン液体において、カチオンが非環状若しくは環状のアンモニウム又は非環状若しくは環状のホスホニウムである、1種あるいは2種以上のカチオンであり、アニオンがアミド系アニオン又はカルボン酸系アニオンである、1種あるいは2種以上のアニオンであり、かつ、前記カチオンはエーテル基及び/又はエステル基を有することを特徴とする請求項1記載の酸性ガス吸収液。 10

【請求項 3】

エーテル基及び/又はエステル基を有するイオン液体において、カチオンは下記式(a)及び/又は下記式(b)で表わされる有機基を有することを特徴とする請求項1又は2記載の酸性ガス吸収液。



(式中、R₁、R₂、R₃、R₄は同一又は異なっており、炭素数が1~5の2価の炭化水素基を示し、nは1、2、3のいずれかであり、mは1、又は2である。また、式(b)において、R₃-CO-O-はR₃-O-CO-でもよい)。

【請求項 4】

混合ガスから酸性ガスを選択的に分離回収するための吸収液であって、前記吸収液は請求項1~3のいずれかに記載のエーテル基及び/又はエステル基を有するイオン液体であることを特徴とする酸性ガスの吸収速度が向上した酸性ガス吸収液。 20

【請求項 5】

酸性ガスが二酸化炭素である請求項1から4のいずれかに記載の酸性ガス吸収液。

【請求項 6】

二酸化炭素の吸収量が、2.5、2MPaの雰囲気下において2.0 mol·dm⁻³以上であるか、または、2.5、4MPaの雰囲気下において4.0 mol·dm⁻³以上である請求項5に記載の酸性ガス吸収液。 30

【請求項 7】

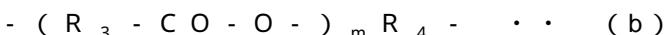
請求項1記載の酸性ガス吸収液を、酸性ガスを含有する混合ガスと接触させ、前記混合ガスから前記酸性ガスを選択的に分離回収することを特徴とする酸性ガス分離回収法。

【請求項 8】

酸性ガス吸収液のカチオンが非環状若しくは環状のアンモニウム又は非環状若しくは環状のホスホニウムである、1種あるいは2種以上のカチオンであり、酸性ガス吸収液のアニオンがアミド系アニオン又はカルボン酸系アニオンである、1種あるいは2種以上のアニオンであり、かつ、前記カチオンはエーテル基及び/又はエステル基を有することを特徴とする請求項7記載の酸性ガス分離回収法。 30

【請求項 9】

酸性ガス吸収液のカチオンが下記式(a)及び/又は下記式(b)で表わされる有機基を有することを特徴とする請求項7又は8記載の酸性ガス分離回収法。 40



(式中、R₁、R₂、R₃、R₄は同一又は異なっており、炭素数が1~5の2価の炭化水素基を示し、nは1、2、3のいずれかであり、mは1、又は2である。また、式(b)において、R₃-CO-O-はR₃-O-CO-でもよい)。

【請求項 10】

請求項4記載の酸性ガス吸収液を、酸性ガスを含有する混合ガスと接触させ、前記混合ガスから前記酸性ガスを選択的に分離回収することを特徴とする酸性ガス分離回収法。

【請求項 11】

10

20

30

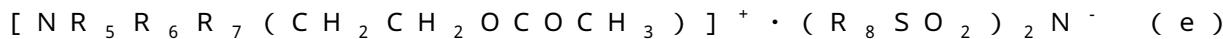
40

50

酸性ガスが二酸化炭素である請求項 7 から 10 のいずれかに記載の酸性ガス分離回収法。

【請求項 12】

下記式 (e) で表わされるイオン液体。



(式中、R₅、R₆、R₇ は同一又は異なっており、炭素数が 1 ~ 4 の炭化水素基を示し、互いに末端で結合して環を形成していてもよい。R₈ はフッ素原子又はトリフルオロメチル基を示す。)

【請求項 13】

ジメチルエチル(アセトキシエチル)アンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミド。

10

20

30

40

50

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、特定のイオン液体からなる酸性ガス吸収液及び該酸性ガス吸収液を用いる酸性ガスの選択的分離回収法に関し、詳しくは、酸性ガスの吸収量が向上した特定のイオン液体からなる酸性ガス吸収液及び該酸性ガス吸収液を用いる酸性ガスの選択的分離回収法に関する。

【背景技術】

【0002】

イオン液体は、一般的には、カチオンとアニオンとから構成される溶融塩であって、室温以下に融点をもち、蒸気圧が非常に低い液体である。イオン液体は、大気中に揮散されにくく、難燃性で、イオン伝導性がある、等の特性を有する。それら特性から、イオン液体は、例えは電解質、各種溶媒、潤滑剤等としての用途に応用できるとの考えがあり、多くの研究がなされている(特許文献 1 - 3)。

【0003】

一方、排気ガス中の二酸化炭素を分離、回収する技術は地球温暖化を回避する技術の一つとして盛んに研究され、数多くの報告がある。

また、イオン液体を用いて二酸化炭素を分離、回収する技術も知られている。例えば、一級アミノ基又は二級アミノ基を導入したイオン液体を利用する技術が報告されている(特許文献 4)。この技術は、二酸化炭素等の酸性ガスを含む混合ガスから二酸化炭素等の酸性ガスを化学反応により分離させ、次いで分解反応により酸性ガスを回収することを特徴とする技術であり、複雑な操作が求められるうえ、酸性ガスの回収等の点でコストも高く、効率的な酸性ガスの分離、回収技術とは言い難いとの問題点がある。

上記問題点を解消する技術として、化学反応によらず、物理的に二酸化炭素等の酸性ガスを含む混合ガスから二酸化炭素等の酸性ガスをイオン液体に吸収させる技術が知られている(特許文献 5、6)。この技術では、前記問題点は改善されているといえるが、イオン液体に吸収される二酸化炭素等の酸性ガスの量は多いとはいえないとの問題点が残されている。

また、カチオンに大きなアルキル鎖を導入して調製したイオン液体は、二酸化炭素等の酸性ガスの吸収量が改善されるとの報告があるが(非特許文献 1)、その吸収量は依然として満足できる程度ではなく、そのうえに、イオン液体の粘性率が高く二酸化炭素等の酸性ガスの吸収速度が遅いとの不都合さも指摘されており、さらに二酸化炭素等の酸性ガスの吸収量や粘性率の点が改善される技術の開発が待たれている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【特許文献 1】特開 2006-236829 号公報

【特許文献 2】特開 2002 - 275118 号公報
 【特許文献 3】特開 2008 - 274087 号公報
 【特許文献 4】特開 2006 - 36950 号公報
 【特許文献 5】特開 2006 - 305544 号公報
 【特許文献 6】特開 2009 - 106909 号公報
 【非特許文献】

【0005】

【非特許文献 1】Ind. Eng. Chem. Res., 47, 910-919, 2008

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

10

【0006】

以上のとおり、二酸化炭素等の酸性ガスの吸収量等が改善された技術の開発が求められているところ、本発明の解決しようとする課題は、従来から知られているイオン液体よりも酸性ガスの物理吸収能力の向上を達成できるイオン液体を提供することにある。また、大きなアルキル鎖を導入せずとも、酸性ガスの物理吸収能力の向上を達成できるイオン液体を提供することが本発明の解決しようとする課題である。さらに、イオン液体の粘性率も改善されたイオン液体を提供することが本発明の解決しようとする課題である。

【課題を解決するための手段】

【0007】

本発明者らは前記課題を解決するべく、各種カチオンとアニオンを工夫して数多くのイオン液体の製造を重ねる最中、エーテル基を導入したイオン液体を作製すると、当該イオン液体の溶液構造が変化され、酸性ガスの物理吸収能力が向上するとの仮説に到達し、その仮説に基づき実験を重ねたところ、エーテル基やエステル基を導入したカチオンとアニオンから構成されるイオン液体は、酸性ガスの物理吸収能力が向上したイオン液体であるとの知見を得た。この知見に基づきさらに研究を重ね遂に本発明を完成させた。

20

【0008】

すなわち、上記課題を解決することができた本発明は以下のとおりである。

請求項 1 の発明は、エーテル基及び/又はエステル基を有するイオン液体を少なくとも含むことを特徴とする酸性ガスの吸収量が向上した酸性ガス吸収液である。なお、エーテル基及び/又はエステル基を有するとは、エーテル基を有する、エステル基を有する、エーテル基及びエステル基を有するのいずれかをいう（以下、同様）。

30

ここで、酸性ガスの吸収量が向上したとは、代表的なイオン液体である $[N(C_6H_3)(CH_3)_2(C_3H_7)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ を基準としたときに酸性ガスの吸収量がほぼ 25 % 以上向上するということであり、さらに、好ましくは酸性ガスの吸収量がほぼ 30 % 以上向上するということである。また、ヘンリー定数は本発明でいうイオン液体の酸性ガスの吸収量の大小を表す指標であり、ヘンリー定数が小さいほど酸性ガスの吸収量は大きいので、酸性ガスの吸収量が向上したとは、上記代表的なイオン液体を基準としたときにヘンリー定数がほぼ 25 % 以上小さくなるということであり、さらに、好ましくはヘンリー定数がほぼ 30 % 以上小さくなるということである。

請求項 2 の発明は、前記請求項 1 の発明において、カチオンが非環状若しくは環状のアンモニウム又は非環状若しくは環状のホスホニウムである、1種あるいは2種以上のカチオンであり、アニオンがアミド系アニオン又はカルボン酸系アニオンである、1種あるいは2種以上のアニオンであり、かつ、前記カチオンはエーテル基及び/又はエステル基を有することを特徴とする。

40

請求項 3 の発明は、前記請求項 1 又は 2 の発明において、カチオンは下記式 (a) 及び/又は下記式 (b) で表わされる有機基を有することを特徴とする請求項 1 又は 2 記載の酸性ガス吸収液である。なお、下記式 (a) 及び/又は下記式 (b) で表わされる有機基を有するとは、 $- (R_1 - O -)_n R_2 -$ で表わされる有機基を有する、 $- (R_3 - CO - O -)_m R_4 -$ で表わされる有機基を有する、 $- (R_1 - O -)_n R_2 -$ で表わされる有機基を有すると共に $- (R_3 - CO - O -)_m R_4 -$ で表わされる有機基を有する、 $- (R$

50

$R_1 - O -)_n R_2 - (R_3 - CO - O -)_m R_4 -$ で表わされる有機基又は $- (R_3 - CO - O -)_m R_4 - (R_1 - O -)_n R_2 -$ で表わされる有機基を有する、のいずれかをいう（以下、同様）。

- $(R_1 - O -)_n R_2 - \cdots$ (a)

- $(R_3 - CO - O -)_m R_4 - \cdots$ (b)

（式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 は同一又は異なっており、炭素数が 1 ~ 5 の 2 倍の炭化水素基を示し、 n は 1、2、3 のいずれかであり、 m は 1、又は 2 である。また、式 (b) において、 $R_3 - CO - O -$ は $R_3 - O - CO -$ でもよい）。

【0009】

請求項 4 の発明は、混合ガスから酸性ガスを選択的に分離回収するための吸収液であつて、前記吸収液は請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載のエーテル基及び/又はエステル基を有するイオン液体であることを特徴とする酸性ガスの吸収速度が向上した酸性ガス吸収液である。10

ここで、酸性ガスの吸収速度が向上したとは、代表的なイオン液体である上記 $[N(C_6H_{13})(CH_3)_2(C_3H_7)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ を基準としたときに酸性ガスの吸収速度が向上するということである。また、本発明でいうイオン液体の酸性ガスの吸収速度はイオン液体の粘性率に依存するといえるし、イオン液体の粘性率が小さいほど酸性ガスの吸収速度は大きいので、酸性ガスの吸収速度が向上したとは、上記代表的なイオン液体を基準としたときにイオン液体の粘性率がほぼ 20 % 以上低下するということであり、さらに、好ましくは粘性率がほぼ 30 % 以上低下するということである。酸性ガスを吸収した上記酸性ガス吸収液の当該酸性ガスを放出する速度も向上するので、上記酸性ガス吸収液は酸性ガス吸放出速度が向上した吸収液である。20

請求項 1 から 4 のいずれかに記載の酸性ガス吸収液の発明において、酸性ガスが二酸化炭素である発明が請求項 5 の発明であり、請求項 5 に記載の酸性ガス吸収液の発明において、二酸化炭素の吸収量が体積濃度で、25、2 MPa の霧囲気下において $2.0 \text{ mol} \cdot \text{dm}^{-3}$ 以上であるか、または、25、4 MPa の霧囲気下において体積濃度が $4.0 \text{ mol} \cdot \text{dm}^{-3}$ 以上である発明が請求項 6 の発明である。ここで、請求項 6 の発明は、請求項 5 に記載の酸性ガス吸収液の発明において、二酸化炭素の吸収量が体積濃度で 25、2 MPa の霧囲気下において $2.0 \text{ mol} \cdot \text{dm}^{-3}$ 以上である発明であるといえるし、また、二酸化炭素の吸収量が体積濃度で 25、4 MPa の霧囲気下において、 $4.0 \text{ mol} \cdot \text{dm}^{-3}$ 以上である発明ともいえる。30

【0010】

請求項 7 の発明は、請求項 1 記載の発明の酸性ガス吸収液を、酸性ガスを含有する混合ガスと接触させ、前記混合ガスから前記酸性ガスを選択的に分離回収することを特徴とする酸性ガス分離回収法である。

前記酸性ガスの吸収量は、前記のとおりである。

請求項 8 の発明は、前記請求項 7 の発明において、カチオンが非環状若しくは環状のアンモニウム又は非環状若しくは環状のホスホニウムである、1種あるいは 2 種以上のカチオンであり、アニオンがアミド系アニオン又はカルボン酸系アニオンである、1種あるいは 2 種以上のアニオンであり、かつ、前記カチオンはエーテル基及び/又はエステル基を有することを特徴とし、請求項 9 の発明は、前記請求項 7 又は 8 の発明において、カチオンが下記式 (a) 及び/又は下記式 (b) で表わされる有機基を有することを特徴とする酸性ガス分離回収法である。40

- $(R_1 - O -)_n R_2 - \cdots$ (a)

- $(R_3 - CO - O -)_m R_4 - \cdots$ (b)

（式中、 R_1 、 R_2 、 R_3 、 R_4 は同一又は異なっており、炭素数が 1 ~ 5 の 2 倍の炭化水素基を示し、 n は 1、2、3 のいずれかであり、 m は 1、又は 2 である。また、式 (b) において、 $R_3 - CO - O -$ は $R_3 - O - CO -$ でもよい）。

請求項 10 の発明は、請求項 4 記載の発明の酸性ガス吸収液を、酸性ガスを含有する混合ガスと接触させ、前記混合ガスから前記酸性ガスを選択的に分離回収することを特徴と50

する酸性ガス分離回収法である。この発明は酸性ガスの吸収速度が向上するという特徴も有する。ここでいう酸性ガスの吸収速度は、前記のとおりである。

請求項 7 から 10 のいずれかに記載の酸性ガス分離回収法の発明において、酸性ガスが二酸化炭素である発明が請求項 11 の発明である。

請求項 12 の発明は、下記式 (e) で表わされる新規なイオン液体である。



(式中、R₅、R₆、R₇ は同一又は異なっており、炭素数が 1 ~ 4 の炭化水素基を示し、互いに末端で結合して環を形成してもよい。R₈ はフッ素原子又はトリフルオロメチル基を示す。)

請求項 12 の発明は、上記式 (e) で表わされる新規なイオン液体を少なくとも含むことと特徴とする酸性ガスの吸収量が向上した酸性ガス吸収液でもある。ここで、酸性ガスの吸収量が向上したとは、上記と同様である。

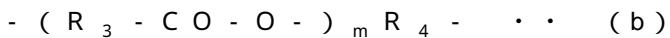
請求項 13 の発明は、新規なイオン液体であるジメチルエチル（アセトキシエチル）アンモニウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）アミドに関するものである。また、請求項 13 の発明は、ジメチルエチル（アセトキシエチル）アンモニウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）アミドからなるイオン液体の発明でもあり、また、このイオン液体を少なくとも含むことを特徴とする酸性ガスの吸収量が向上した酸性ガス吸収液でもある。ここで、酸性ガスの吸収量が向上したとは、上記と同様である。

【0011】

本発明ではエーテル基及び/又はエステル基を有するカチオンを用いる点が、一つの大きな特徴であり、さらには、エーテル基及び/又はエステル基を有し、かつ、非環状若しくは環状のアンモニウム又は非環状若しくは環状のホスホニウムから選ばれるカチオン単独あるいは 2 種以上を用いる点が、一つの大きな特徴である。

前記エーテル基及び/又はエステル基としては - C H₂ C H₂ - O - C H₂ - 、 - C H₂ - O - C H₂ - 、 - C H₂ C H₂ - C O - O - C H₂ - 、 - C H₂ C H₂ - O - C O - C H₂ - 、 - C H₂ C H₂ O C O C H₃ 等が好ましいが、それらに限定されない。

本発明は、下記式 (a) 及び/又は下記式 (b) で表わされる有機基を有するカチオンを用いる点が、一つの大きな特徴である。



(式中、R₁、R₂、R₃、R₄ は同一又は異なっており、炭素数が 1 ~ 5 の 2 倍の炭化水素基を示し、n は 1、2、3 のいずれかであり、m は 1、又は 2 である。また、式 (b) において、R₃ - C O - O - は R₃ - O - C O - でもよい)。

ここで、本発明は、上記式 (a) 又は上記式 (b) で表わされる有機基を一つ以上有し、上記式 (a) 及び/又は上記式 (b) で表わされる有機基を四つ以下有するカチオンを用いる点が特徴であるともいえる。

好ましい - (R₁ - O -)_n R₂ - としては、 - (R₁ - O -)₂ R₂ - 、 - (R₁ - O -)₃ R₂ - を例示でき、さらに好ましくは、 - (R₁_P - O -)₂ R₂_P 、 - (R₁_P - O -)₃ R₂_P を例示できる（上記式中、R₁_P はメチレン基、エチレン基、又はプロピレン基であり、R₂_P は炭素数が 1 ~ 4 の炭化水素基を意味する）。好ましい - (R₃ - C O - O -)_m R₄ - としては、 - (R₃ - C O - O -)₁ R₄ - 、 - (R₃ - C O - O -)₂ R₄ - 、 - (R₃ - C O - O -)₁ R₄_P - を例示でき、さらに好ましくは、 - (R₃_P - C O - O -)₁ R₄_P 又は - (R₃_P - O - C O -)₁ R₄_P を例示できる（上記式中、R₃_P はメチレン基、エチレン基、又はプロピレン基であり、R₄_P は炭素数が 1 ~ 4 の炭化水素基を意味する）。

本発明は、 - C H₂ C H₂ O C O C H₃ を有するカチオンを用いる点が、一つの大きな特徴である。

上記カチオンの中で、エーテル基を有するカチオンを用いることが好ましい。

【0012】

本発明でいうカチオンをより具体的に説明すると、例えば、イミダゾリウム系カチオン

10

20

30

40

50

、ピリジニウム系カチオン、第四級アンモニウム系カチオン、第四級ホスホニウム系カチオン等を挙げることができる。好ましくは、非環状若しくは環状のアルキルアンモニウム系カチオン、又は非環状若しくは環状のアルキルホスホニウム系カチオンであり、その中でも非環状のアルキルアンモニウム系カチオン、又は非環状のアルキルホスホニウム系カチオン等がとくに好ましい。これらのカチオンはエーテル基及び/又はエステル基を有する。

本発明では好ましいカチオンの具体例は下記カチオンである。

エーテル基を有するアルキルアンモニウム系カチオンとしては、例えば、
 $[N(C_2H_3)_3(C_2H_4OCH_3)]^+$ 、 $[N(C_2H_3)_3(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$ 、
 $[N(C_2H_3)_3(C_2H_4OC_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$ 、
 $[N(C_2H_5)_3(C_2H_4OCH_3)]^+$ 、 $[N(C_2H_5)_3(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$ 、
 $[N(C_2H_5)_3(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$ 、 $[N(C_2H_5)_3(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$
、
 $[N(C_3H_7)_3(C_2H_4OCH_3)]^+$ 、 $[N(C_3H_7)_3(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$ 、
、
 $[N(C_4H_9)_3(C_2H_4OCH_3)]^+$ 、 $[N(C_4H_9)_3(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$ 、
、
 $[N(C_2H_3)_2(C_2H_5)(C_2H_4OCH_3)]^+$ 、 $[N(C_2H_3)_2(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$ 、
 $[N(C_2H_3)_2(C_3H_7)(C_2H_4OCH_3)]^+$ 、 $[N(C_2H_3)_2(C_3H_7)(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$ 、
 $[N(C_2H_3)_2(C_4H_9)(C_2H_4OCH_3)]^+$ 、 $[N(C_2H_3)_2(C_4H_9)(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$ 、
 $[N(C_2H_5)_2(CH_3)(C_2H_4OCH_3)]^+$ 、 $[N(C_2H_5)_2(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$ 、
 $[N(C_2H_5)_2(C_3H_7)(C_2H_4OCH_3)]^+$ 、 $[N(C_2H_5)_2(C_3H_7)(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$ 、
 $[N(C_2H_5)_2(C_4H_9)(C_2H_4OCH_3)]^+$ 、 $[N(C_2H_5)_2(C_4H_9)(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$ 、
 $[N(C_3H_7)_2(CH_3)(C_2H_4OCH_3)]^+$ 、 $[N(C_3H_7)_2(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$ 、
 $[N(C_3H_7)_2(C_3H_7)(C_2H_4OCH_3)]^+$ 、 $[N(C_3H_7)_2(C_3H_7)(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$ 、
 $[N(C_3H_7)_2(C_4H_9)(C_2H_4OCH_3)]^+$ 、 $[N(C_3H_7)_2(C_4H_9)(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$ 、
 $[N(C_4H_9)_2(CH_3)(C_2H_4OCH_3)]^+$ 、 $[N(C_4H_9)_2(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$ 、
 $[N(C_4H_9)_2(C_3H_7)(C_2H_4OCH_3)]^+$ 、 $[N(C_4H_9)_2(C_3H_7)(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$ 、
 $[N(C_4H_9)_2(C_4H_9)(C_2H_4OCH_3)]^+$ 、 $[N(C_4H_9)_2(C_4H_9)(C_2H_4OC_2H_4OCH_3)]^+$

$[N(CH_3)_3(C_2H_4OCOCH_3)_3]^+$ 、 $[N(C_2H_5)_3(C_2H_4OCOCH_3)_3]^+$ 、 $[N(C_4H_9)(C_2H_4OCOCH_3)_3]^+$ 、 $[N(C_2H_4OCOCH_3)_4]^+$ 等が挙げられる。

【0016】

エステル基を有するアルキルホスホニウム系カチオンとしては、例えば、 $[P(C_2H_5)_3(C_2H_4OCOCH_3)]^+$ 、 $[P(C_4H_9)_3(C_2H_4OCOCH_3)]^+$ 、 $[P(C_6H_{13})_3(C_2H_4OCOCH_3)]^+$ 等が挙げられる。

【0017】

本発明でいうアニオンは、とくに限定されないが、例えば、アミド系アニオン、カルボン酸系アニオン、リン酸系アニオン、ホウ酸系アニオン、又は炭素酸系アニオン等が挙げられる。その中でもアミド系アニオン又はカルボン酸系アニオンが好ましく、それらアニオン単独あるいは2種以上であってもよい。

【0018】

本発明でいうアニオンを、より具体的に説明すると、アミド系アニオンとしては、例えば、 $(FSO_2)_2N^-$ 、 $(FSO_2)(CF_3SO_2)N^-$ 、 $(CF_3SO_2)_2N^-$ 、 $(CF_3SO_2)(C_2F_5SO_2)N^-$ 、 $(C_2F_5SO_2)_2N^-$ 、 $(C_4F_9SO_2)_2N^-$ 、 $(NC)_2N^-$ 等が挙げられ、より好ましくは $(FSO_2)_2N^-$ 、 $(CF_3SO_2)_2N^-$ である。

【0019】

カルボン酸系アニオンとしては、例えば、 CH_3COO^- 、 $C_2H_5COO^-$ 、 $C_3H_7COO^-$ 、 $C_4H_9COO^-$ 、 $C_5H_{11}COO^-$ 、 $C_6H_{13}COO^-$ 、 $C_7H_{15}COO^-$ 、 $C_8H_{17}COO^-$ 、 $C_9H_{19}COO^-$ 、 $C_{10}H_{21}COO^-$ 、 $C_{11}H_{23}COO^-$ 、 $(CH_3)_2CHCOO^-$ 、 $(CH_3)_3CCOO^-$ 、 $C_6H_5COO^-$ 、 CF_3COO^- 、 $C_2F_5COO^-$ 、 $C_3F_7COO^-$ 、 $C_4F_9COO^-$ 、 $C_5F_{11}COO^-$ 、 $C_6F_{13}COO^-$ 、 $C_7F_{15}COO^-$ 、 $C_8F_{17}COO^-$ 、 $C_9F_{19}COO^-$ 、 $C_{10}F_{21}COO^-$ 、 $C_{11}F_{23}COO^-$ 等が挙げられ、より好ましくは CH_3COO^- 、 $C_2H_5COO^-$ 、 $C_3H_7COO^-$ 、 $C_4H_9COO^-$ 、 $C_5H_{11}COO^-$ 、 $C_6H_{13}COO^-$ 、 $C_7H_{15}COO^-$ 、 CF_3COO^- である。

【0020】

リン酸系アニオンとしては、例えば、 PF_6^- 、 $PF_3(CF_3)_3^-$ 、 $PF_3(C_2F_5)_3^-$ 、 $PF_3(C_3F_7)_3^-$ 、 $PF_3(C_4F_9)_3^-$ 等が、ホウ酸系アニオンとしては、例えば、 BF_4^- 、 $BF_3(CF_3)_2^-$ 、 $BF_3(C_2F_5)_2^-$ 、 $BF_3(C_3F_7)_2^-$ 、 $BF_3(C_4F_9)_2^-$ 、 $BF_2(CF_3)_2^-$ 、 $BF_2(C_2F_5)_2^-$ 、 $BF_2(C_3F_7)_2^-$ 、 $BF_2(C_4F_9)_2^-$ 、 $B(CN)_4^-$ 等が、炭素酸系アニオンとしては、例えば、 $(CF_3SO_2)_3C^-$ 、 $(C_2F_5SO_2)_3C^-$ 等が挙げられる。これらから選択される単独あるいは2種以上を例示できる。

【0021】

本発明でいうエーテル基及び/又はエステル基を有するイオン液体とは、上記のカチオン及びアニオンから構成される。好ましいイオン液体の具体例としては、下記イオン液体が挙げられる。

$[N(CH_3)_3(C_2H_4OCCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(CH_3)_3(C_2H_4OC_2H_4OCCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(CH_3)_3(C_2H_4OC_2H_4OC_2H_4OCCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_2H_5)_3(C_2H_4OC_2H_4OCCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_2H_5)_3(C_2H_4OC_2H_4OC_2H_4OCCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_2H_5)_3(C_2H_4OC_2H_4OC_2H_4OC_2H_4OCCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_3H_7)_3(C_2H_4OCCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_3H_7)_3(C_2H_4OC_2H_4OCCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_3H_7)_3(C_2H_4OC_2H_4OC_2H_4OCCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_4H_9)_3(C_2H_4OCCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_4H_9)_3(C_2H_4OCCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$

10

20

30

40

50

【 0 0 2 2 】

$[N(C_3H_7)_2(C_4H_9)(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]$
 $[N(C_4H_9)_2(CH_3)(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]$
 $[N(C_4H_9)_2(C_2H_5)(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]$
 $[N(C_4H_9)_2(C_3H_7)(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]$
 $[N(CH_3)_2(C_2H_4OCOCH_3)_2]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_2H_5)_2(C_2H_4OCOCH_3)_2]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_3H_7)_2(C_2H_4OCOCH_3)_2]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_4H_9)_2(C_2H_4OCOCH_3)_2]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(CH_3)(C_2H_5)(C_2H_4OCOCH_3)_2]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(CH_3)(C_3H_7)(C_2H_4OCOCH_3)_2]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(CH_3)(C_4H_9)(C_2H_4OCOCH_3)_2]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_2H_5)(C_3H_7)(C_2H_4OCOCH_3)_2]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_2H_5)(C_4H_9)(C_2H_4OCOCH_3)_2]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_3H_7)(C_4H_9)(C_2H_4OCOCH_3)_2]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_3H_7)(C_4H_9)(C_2H_4OCOCH_3)_2]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_2H_4OCOCH_3)(C_2H_4OCOCH_3)_3]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_2H_5)(C_2H_4OCOCH_3)_3]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_3H_7)(C_2H_4OCOCH_3)_3]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_4H_9)(C_2H_4OCOCH_3)_3]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[P(C_2H_5)_3(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[P(C_4H_9)_3(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[P(C_6H_{13})_3(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$
【0024】
 $[N(CH_3)_3(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_2H_5)_3(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_3H_7)_3(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_4H_9)_3(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(CH_3)_2(C_2H_5)(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(CH_3)_2(C_3H_7)(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(CH_3)_2(C_4H_9)(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_2H_5)_2(CH_3)(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_2H_5)_2(C_3H_7)(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_2H_5)_2(C_4H_9)(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_3H_7)_2(CH_3)(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_3H_7)_2(C_2H_5)(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_3H_7)_2(C_4H_9)(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_4H_9)_2(CH_3)(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_4H_9)_2(C_2H_5)(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_4H_9)_2(C_3H_7)(C_2H_4OCOCH_3)]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(CH_3)_2(C_2H_4OCOCH_3)_2]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(CH_3)(C_2H_4OCOCH_3)_2]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_2H_5)(C_2H_4OCOCH_3)_2]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_3H_7)(C_2H_4OCOCH_3)_2]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$ 、 $[N(C_4H_9)(C_2H_4OCOCH_3)_2]^+ [N(SO_2CF_3)_2]^-$

[N(C₂H₅)₂(CH₃)(C₂H₄OOCOCH₃)]⁺[CH₃COO]⁻、[N(C₂H₅)₂(C₃H₇)(C₂H₄OOCOCH₃)]⁺[CH₃COO]⁻、[N(C₂H₅)₂(C₄H₉)(C₂H₄OOCOCH₃)]⁺[CH₃COO]⁻、
 [N(C₃H₇)₂(CH₃)(C₂H₄OOCOCH₃)]⁺[CH₃COO]⁻、[N(C₃H₇)₂(C₂H₅)(C₂H₄OOCOCH₃)]⁺[CH₃COO]⁻、[N(C₃H₇)₂(C₄H₉)(C₂H₄OOCOCH₃)]⁺[CH₃COO]⁻、
 [N(C₄H₉)₂(CH₃)(C₂H₄OOCOCH₃)]⁺[CH₃COO]⁻、[N(C₄H₉)₂(C₂H₅)(C₂H₄OOCOCH₃)]⁺[CH₃COO]⁻、[N(C₄H₉)₂(C₃H₇)(C₂H₄OOCOCH₃)]⁺[CH₃COO]⁻、
 [N(CH₃)₂(C₂H₄OOCOCH₃)₂]⁺[CH₃COO]⁻、[N(C₂H₅)₂(C₂H₄OOCOCH₃)₂]⁺[CH₃COO]⁻、[N(C₃H₇)₂(C₂H₄OOCOCH₃)₂]⁺[CH₃COO]⁻、[N(C₄H₉)₂(C₂H₄OOCOCH₃)₂]⁺[CH₃COO]⁻、
 [N(CH₃)(C₂H₅)(C₂H₄OOCOCH₃)₂]⁺[CH₃COO]⁻、[N(CH₃)(C₃H₇)(C₂H₄OOCOCH₃)₂]⁺[CH₃COO]⁻、[N(CH₃)(C₄H₉)(C₂H₄OOCOCH₃)₂]⁺[CH₃COO]⁻、[N(CH₃)(C₂H₅)(C₃H₇)(C₂H₄OOCOCH₃)₂]⁺[CH₃COO]⁻、
 [N(CH₃)(C₂H₅)(C₄H₉)(C₂H₄OOCOCH₃)₂]⁺[CH₃COO]⁻、[N(CH₃)(C₂H₅)(C₂H₄OOCOCH₃)₃]⁺[CH₃COO]⁻、[N(CH₃)(C₃H₇)(C₂H₄OOCOCH₃)₃]⁺[CH₃COO]⁻、[N(CH₃)(C₄H₉)(C₂H₄OOCOCH₃)₃]⁺[CH₃COO]⁻、[N(CH₃)(C₂H₄OOCOCH₃)₄]⁺[CH₃COO]⁻、
 [P(C₂H₅)₃(C₂H₄OOCOCH₃)]⁺[CH₃COO]⁻、[P(C₄H₉)₃(C₂H₄OOCOCH₃)]⁺[CH₃COO]⁻、[P(C₆H₁₃)₃(C₂H₄OOCOCH₃)]⁺[CH₃COO]⁻等が挙げられる。
 【0029】

上記イオン液体の製造は公知の方法を用いればよいのであって、出発物質に応じて最適な条件を採用すればよい。例えば、アニオン交換法、中和法、酸エステル法等の方法を用いることができるが、これらに限定されない。

好ましい具体的な条件は次のとおりである。

アニオンがアミド系アニオンである上記イオン液体を製造するには、カチオンが上記カチオンであり、アニオンが塩素イオン、臭素イオン又はヨウ素イオンであるハロゲン化オニウム塩（以下、ハロゲン化オニウム塩類という。）に、上記アニオンのアミド酸アルカリ金属塩を作用させればよい。ハロゲン化オニウム塩類に水又は／及び有機溶媒中、0～60、好ましくは10～40で、ハロゲン化オニウム塩類1モルに対して0.9～2.0モル、好ましくは0.95～1.1モルのアミド酸アルカリ金属塩を添加して反応させればよい。アミド系アニオンのイオン液体は有機溶媒に、未反応のハロゲン化オニウム塩類及びアミド酸アルカリ金属塩は水に分配されるので、反応終了後、分液、水洗し、有機層から有機溶媒を留去すれば、アミド系アニオンのイオン液体を得ることができる。

また、アミド系アニオンのイオン液体を製造するには、カチオンが上記カチオンであり、アニオンが水酸化物イオンである水酸化オニウム塩（以下、水酸化オニウム塩類という。）に、上記アニオンのアミド酸を作用させて製造することができる。水酸化オニウム塩類に水又は／及び有機溶媒中、0～40、好ましくは10～30で、水酸化オニウム塩類1モルに対して0.9～1.5モル、好ましくは0.95～1.1モルのアミド酸を添加すればよい。反応終了後、前記と同様の操作により、アミド系アニオンのイオン液体を得ることができる。

アニオンがカルボン酸系アニオンである上記イオン液体を製造するには、水酸化オニウム塩類に、上記アニオンのカルボン酸を作用させればよい。水酸化オニウム塩類に水又は／及び有機溶媒中、0～40、好ましくは10～30で、水酸化オニウム塩類1モル

10

20

30

40

50

に対して0.9~1.5モル、好ましくは0.95~1.1モル、より好ましくは0.98~1.02モルのカルボン酸を添加すればよい。反応液を濃縮、乾燥すれば、カルボン酸系アニオンのイオン液体を得ることができる。必要に応じて有機溶剤で抽出、洗浄等の操作を行えば精製することができる。尚、低級カルボン酸がアニオンになるイオン液体は水溶性が高いので、水の使用は極力控えた方がよい。

また、カルボン酸系アニオンのイオン液体を製造するには、カチオンが上記カチオンであり、アニオンが炭酸エステルイオンである炭酸エステルオニウム塩（以下、炭酸エステルオニウム塩類という。）に、上記アニオンのカルボン酸を作用させても製造することができる。炭酸エステルオニウム塩類に、有機溶媒中、0~40、好ましくは10~30で、炭酸エステルオニウム塩類1モルに対して0.9~1.5モル、好ましくは0.95~1.1モル、より好ましくは0.98~1.02モルのカルボン酸を添加すればよい。反応液を濃縮、乾燥すれば、カルボン酸系アニオンのイオン液体を得ることができる。必要に応じて有機溶剤で抽出、洗浄等の操作を行えば精製することができる。10

ハロゲン化オニウム塩類は、N-アルキルイミダゾール類、ピリジン類、三級アミン類、又はホスフィン類に、エーテル基及び/又はエステル基を有していてもよいハロゲン化アルキルを反応させれば製造することができる。

水酸化オニウム塩類は、前記ハロゲン化オニウム塩類に、水又はアルコール溶媒中、酸化銀（I）、水酸化アルカリ金属、又は強塩基性イオン交換樹脂を作用させれば製造することができる。

炭酸エステルオニウム塩類は、N-アルキルイミダゾール類、ピリジン類、三級アミン類、又はホスフィン類に、炭酸ジメチルや炭酸ジエチルなどの炭酸ジエステル類を反応させれば製造することができる。20

【0030】

かくして製造されたイオン液体は次のような特性を有する。

エーテル基及び/又はエステル基を導入したイオン液体において、二酸化炭素の吸収量は、例えば25、2MPaにおいてモル分率で0.38あるいは体積濃度で1.8mol·dm⁻³以上、同じく25、4MPaにおいてモル分率で0.56あるいは体積濃度で3.7mol·dm⁻³以上であり、好ましくは25、2MPaにおいてモル分率で0.40あるいは体積濃度で2.0mol·dm⁻³以上、同じく25、4MPaにおいてモル分率で0.60あるいは体積濃度で4.0mol·dm⁻³以上であり、さらに好ましくは25、2MPaにおいてモル分率で0.42あるいは体積濃度で2.1mol·dm⁻³以上、同じく25、4MPaにおいてモル分率で0.62あるいは体積濃度で4.2mol·dm⁻³以上である。また、常圧における粘性率（以下、粘度ということがある）は、例えば25で210mPas、40で90mPas、60で40で35mPas未満であり、好ましくは25で120mPas、40で70mPas、60で30mPas未満であり、より好ましくは25で60mPas、40で20mPas未満である。30

二酸化炭素の吸収量は、例えば、下記式（1）又は（2）に基づいて知ることができが、この方法に限定されるわけではない。

【0031】

（式（1））

$$x_{CO_2} = \frac{n_2}{n_{IL} + n_2}$$

上記式（1）は下記のように記載してもよい。

$$x_{CO_2} = n_2 / (n_{IL} + n_2) \quad \text{式 (1)}$$

上記式中、 x_{CO_2} は二酸化炭素を吸収したイオン液体における二酸化炭素のモル分率を意味し、 n_2 はイオン液体に吸収された二酸化炭素の物質量を意味し、 n_{IL} はイオン液体の物質量を意味する。50

【 0 0 3 2 】

(式(2))

$$C_{CO_2} = \frac{n_2}{V_{IL}(T) \times (1 + \Delta V(T, p))}$$

式(2)は下記のように記載してもよい。

$$C_{CO_2} = n_2 / [V_{IL}(T) \times (1 + V(T, p))] \quad \text{式(2)}$$

上記式中、 C_{CO_2} は二酸化炭素を吸収したイオン液体における二酸化炭素の体積濃度を意味し、 $V_{IL}(T)$ はガスを吸収する前のイオン液体の体積を意味し、 $V(T, p)$ はイオン液体の体積膨張率を意味し、 T は温度、 p は圧力を意味し、 n_2 は上記と同じである。
10

【 0 0 3 3 】

上記イオン液体を用いて酸性ガスを含む混合ガスから酸性ガスを吸収させる。ここで酸性ガスをイオン液体に物理吸収させる点が本発明の大きな特徴の一つである。すなわち、上記イオン液体を、酸性ガスを含有する混合ガスと所定時間接触させると、前記酸性ガスは前記イオン液体に吸収されるので、極めて有利である。すなわち、本発明は二酸化炭素を含む2成分又は3成分以上の混合ガスから二酸化炭素を選択的に物理吸収し、分離、回収する発明でもある。

前記イオン液体を混合ガスと接触する条件はとくに限定されないが、強いて記載すると、0 MPa以上で50 MPa以下、好ましくは常圧以上10 MPa以下の加圧条件下で、-30℃以上200℃以下、好ましくは0℃以上100℃以下の温度条件下で、30秒以上2時間以下、好ましくは1分以上1時間以下接触させ、前記混合ガスから前記酸性ガスをイオン液体に選択的に吸収することができる。
20

ガスの吸収液への溶解は「エンタルピー効果」と「エントロピー効果」に支配される。エンタルピー効果とは、ガスと吸収液の間に働く相互作用の強さを示す指標である。一般的にDHで表され、値が小さいほど、ガスと吸収液が強く相互作用し、ガスの溶解量が多くなる。エントロピー効果とは、ガスの溶解に伴い変化する吸収液の構造の乱雑さを示す指標である。一般的にDSで表され、値が大きいほど、吸収液の構造は乱雑になっており、ガスの溶解量が多くなる。

本発明のイオン液体が優れた酸性ガス吸収能を示す理由は、比較例2に示すように、カチオンがエーテル基及び/又はエステル基を有することで、エンタルピー効果もしくはエントロピー効果が改善されたためと推測される。
30

【 0 0 3 4 】

酸性ガスを含有する混合ガスとしては、二酸化炭素、硫化水素、硫黄酸化物、窒素酸化物等の酸性ガスを含有するガス混合物であればとくに制限されない。具体例としては、窒素、メタン等の気体から選ばれる1種又は2種以上と前記酸性ガスの少なくとも1種を含む混合ガスを例示できる。ここで、酸性ガスは広く知られているガスであり、酸性を示すガス、あるいは、水に溶解すると酸性を示すガスを意味する。

前記ガス中に含まれる酸性ガスの含有量もとくに限定されない。

酸性ガスとしては二酸化炭素が好ましい。

【 0 0 3 5 】

本発明でいうイオン液体を、酸性ガスを含有する混合ガスと接触させる手段は、イオン液体に混合ガス中の酸性ガスが物理吸収されるのであれば、とくに限定されない。イオン液体に、酸性ガスを含有する混合ガスを吹き付けてもよいし、単に接触させるだけでもよい。

【 0 0 3 6 】

上記酸性ガスを吸収したイオン液体から酸性ガスを回収することもできる。すなわち、前記イオン液体を、前記イオン液体を混合ガスと接触した条件よりも好ましくは5~100℃の高温条件、より好ましくは10~50℃の高温条件とすると、必要とするエネルギーを少なくすることができ、有利である。圧力は、前記イオン液体の混合ガスとの接
50

触時の圧力に対して、50 MPa以下の低圧条件、好ましくは5 MPa以下の低圧条件とすると、酸性ガスの分離・回収に必要とするエネルギーを少なくすることが実現でき、有利である。

本発明でいう酸性ガスを含有するイオン液体から酸性ガスを分離、回収させる手段はとくに限定されない。

【発明の効果】

【0037】

本発明により、二酸化炭素、硫化水素、硫黄酸化物、窒素酸化物等の酸性ガスの吸収量を向上した新規イオン液体を提供できる。また、イオン液体の粘性率が低いことから、ガス吸放出速度が向上した吸収液を提供できる。

上記吸収液を用いた、二酸化炭素等の酸性ガスを高効率で分離・回収する新規な方法を提供することができる。本発明が提供するイオン液体は化学的かつ熱的安定性に優れ、蒸気圧が極めて低く、ガス相に揮発しないため、低温はもとより高温領域でも利用でき、長期間に渡り吸収液の損失を抑えた、ランニングコストを低減したプロセスを達成可能である。さらに、所定の条件において、従来の吸収液より酸性ガスの吸収量に優れるため、それらのガスの分離回収に必要なエネルギーを大幅に削減し、プロセスの高効率化を図ることが可能である。また、吸収液の粘性率が低く、ガス吸放出速度を向上可能なため、吸収塔や放散塔のサイズをコンパクト化でき、ひいては初期設備費の軽減や駆動力の最小化によりエネルギーコストの低減が可能となる。

【図面の簡単な説明】

【0038】

【図1】図1は本発明で使用する酸性ガスの溶解に伴うイオン液体の体積膨張率を測定する装置を示す。

【図2】図2は本発明で使用するイオン液体への酸性ガスの溶解量を測定する装置を示す。

【図3】図3は本発明のイオン液体に溶解した二酸化炭素のモル分率を示すグラフである。

【発明を実施するための形態】

【0039】

以下、本発明を実施例に基づき説明するが、本発明はこれら実施例に限定されない。

【実施例1】

【0040】

(ア) イオン液体の合成 [N(C₂H₅)(CH₃)₂(C₂H₄OCH₂H₄OCH₃)]⁺[N(SO₂CF₃)₂]⁻(ジメチルエチル(メトキシエトキシエチル)アンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミド)の合成

1-ブロモ-2-(2-メトキシエトキシ)エタン128.1g(0.70モル)、N,N-ジメチルエチルアミン51.2g(0.70モル)及びアセトニトリル102gの混合物を、80°で24時間攪拌した。その後、得られた反応混合物を濃縮し、残渣を減圧下に乾燥してジメチルエチル(メトキシエトキシエチル)アンモニウムプロミド179.3g(0.70モル)を得た。

上記で得たジメチルエチル(メトキシエトキシエチル)アンモニウムプロミド179.3g(0.70モル)にイオン交換水359g及び活性炭2gを加えて室温で1時間攪拌し、濾過した。濾液にビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミド酸リチウム[(CF₃SO₂)₂NLi]203.83g(0.71モル)を加え室温で1時間攪拌し、得られた混合物に塩化メチレン359gを加えて混合した後、分液して得られた有機層をイオン交換水359gで3回洗浄した。その後、有機層から塩化メチレンを留去して油状のジメチルエチル(メトキシエトキシエチル)アンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミド264.7g(0.58モル、収率83%)を得た。

得られたジメチルエチル(メトキシエトキシエチル)アンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミドのNMRの分析結果を次に示す。なお、ジメチルエチル(メト

10

20

30

40

50

キシエトキシエチル)アンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミドを、以降、 $[N_{112A}][NTf_2]$ と表記する。

得られたイオン液体のNMRデータを下記する。なお、用いたNMRは日本ブルカーリミテッド社製「AVANCE 400」である(以下同様)。

【0041】

1H -NMR(CDC13) ppm: 3.90(bm, 2H)、3.66-3.64(m, 2H)、3.54-3.48(m, 6H)、3.34(s, 3H)、3.12(s, 6H)、1.39(t, 3H)

【0042】

(イ)(イオン液体の二酸化炭素吸収)

10

図2に示される装置の所定容器に実施例1のイオン液体を収容させ、所定圧力、所定温度下、気液平衡状態を確認できるまで二酸化炭素をイオン液体に接触させた。

【0043】

(ウ)(イオン液体の二酸化炭素吸収能の測定)

上記気液平衡確認後のイオン液体に吸収された二酸化炭素を、イオン液体における二酸化炭素のモル分率として評価した。前記二酸化炭素のモル分率(x_{CO_2})を上記式(1)から決定した。

測定結果を図3に示した。図3は40で測定したときの結果である。

【0044】

上記式(1)に基づいて二酸化炭素のモル分率を算出するために必要な、気液平衡確認後のイオン液体に吸収された二酸化炭素の物質量(n_2)を下記式(3)より決定した。

【0045】

(式(3))

$$n_2 = n_1 - \frac{V_3 - V_{IL}(T) \times (1 + \Delta V(T, p))}{v_2(T, p)}$$

式(3)は下記のように記載してもよい。

$$n_2 = n_1 - [V_3 - V_{IL}(T) \times (1 + V(T, p))] / v_2(T, p) \quad \text{式(3)}$$

上記式中、 n_1 はガスチャンバーに導入された二酸化炭素の物質量を意味し、 $v_2(T, p)$ は二酸化炭素のモル体積を意味し、 $V(T, p)$ はイオン液体の体積膨張率を意味し、 V_3 はガスチャンバー部と高圧セル部3(容積: V_2)の容積の合計であり、 n_1 は下式(4)から求めた。

【0046】

(式(4))

$$n_1 = \frac{V_1}{v_1(T, p)}$$

式(4)は下記のように記載してもよい。

$$n_1 = V_1 / v_1(T, p) \quad (\text{式4})$$

40

上記式中、 V_1 はガスチャンバーの容積、 $v_1(T, p)$ は二酸化炭素のモル体積。なお、モル体積はガスの種類、温度、圧力のみで決定される。Tは温度、pは圧力である。

【0047】

$V_{IL}(T)$ はガスを吸収する前のイオン液体の体積であり、以下の式(5)で求められる。

(式(5))

$$V_{IL}(T) = \frac{W_{IL}}{\rho(T)}$$

式(5)は下記のように記載してもよい。

50

$$V_{IL}(T) = w_{IL} / (T)$$

式 (5)

上記式中、 w_{IL} はイオン液体の仕込み量であり、下記操作 (1) (下記段落番号 0 0 5 0 の (1)) で決定したものであり、 (T) はイオン液体の密度であり、温度のみの関数であり、密度の測定結果から決定し、 T は温度、 p は圧力である。 $V(T,p)$ はイオン液体の体積膨張率であり、温度と圧力の関数であり、体積膨張率の測定結果から決定した。

【 0 0 4 8 】

以下、具体的な操作を説明する。

(二酸化炭素の溶解に伴うイオン液体の体積膨張率の測定)

体積膨張率 (V) は以下の式 (6) で定義される。

【 0 0 4 9 】

(式 (6))

$$\Delta V = \frac{V(p,T) - V(p^0,T)}{V(p^0,T)}$$

式 (6) は下記のように記載してもよい。

$$V = (V(p,T) - V(p^0,T)) / V(p^0,T) \quad \text{式 (6)}$$

上記式中、 $V(p,T)$ は平衡圧力 p 、測定温度 T における液相の体積、 $V(p^0,T)$ は大気圧 (0.1 MPa (すなわち、二酸化炭素が存在しない)) 、測定温度 T における液相の体積である。

【 0 0 5 0 】

二酸化炭素の溶解に伴うイオン液体の体積膨張率の測定を、図 1 に示す装置を用いて行った。

(平衡圧力における液相の体積の算出)

(1) 十分に露点が低いグローブボックス内で、サファイア製チューブセル 4 に、事前に十分に乾燥したイオン液体を所定量 (約 0.6 cc) 仕込み、セルのバルブ 8 を閉じた。仕込み量を電子天秤で正確に測定した。

(2) セルをガス導入ラインに接続し、恒温水槽 6 内部に設置し、バルブ 9 とバルブ 10 を開け、ガス導入ライン内を十分に脱気した。その後、バルブ 10 を閉じた。

(3) バルブ 9 を開けてガス導入ラインに 0.2 MPa 程度の二酸化炭素を導入し、バルブ 9 を閉じた。

(4) バルブ 8 を開けてセル内部に二酸化炭素を導入し、イオン液体を攪拌子 3 で 1 分攪拌した後、バルブ 10 を開けて 0.1 MPa 程度まで減圧した。

(5) バルブ 8 を閉じ、ガス導入ラインを再び脱気した後、バルブ 10 を閉じた。

(6) (2) から (5) の作業を 5 回繰り返した。

(7) バルブ 9 を開けて、ガス導入ラインに 1.0 MPa 程度の二酸化炭素を導入した。

(8) バルブ 9 を閉じ、バルブ 8 を開けて、セル 4 内に二酸化炭素を導入した。

(9) セル 4 外部の永久磁石 5 をモーター (図 1 に示していない) で上下に動かし、セル 4 内部の攪拌子 3 を上下振動させ、イオン液体相を攪拌した。

(10) この際、攪拌子 3 が液面から出ないよう、永久磁石 5 の位置を調整した。

(11) 恒温水槽 6 の温度を 40 (精度 0.01) に保ち、攪拌を継続しつつ、セル 4 内の圧力を圧力計 12 にて測定した。

(12) 気液平衡状態に到達したことは、圧力変化が 1 時間あたり 0.0001 MPa 以下になったことで判断した。

(13) 気液平衡状態に到達した後、カセットメーター 2 による目視で液相の高さ (H) を計測した。

液相の高さ (H) と液相の体積 (V) には直線関係があり、実験前に作成した検量線と液相の高さ (H) から液相の体積 (V) を求めた。

【 0 0 5 1 】

(体積膨張率 (V) の算出)

10

20

30

40

50

(14) 体積膨張率(V)は上記式(6)で定義される。体積膨張率(V)は温度と圧力に依存する関数であり、ガスとイオン液体の種類に依存するが、仕込んだイオン液体の量には全く影響されない。

上記体積(V)の値を基にし、上記式(6)から体積膨張率(V)を算出した。 $V(p^0, T)$ は予め決定されていた。

(15) 1時間ごとに(13)と(14)を、合計3回以上行い、その平均を体積膨張率(V)として採用した。

【0052】

(上記と異なる平衡条件下における液相の体積(V)の算出及び体積膨張率(V)の算出)

上記と異なる圧力又は温度の基に体積(V)の値を算出し、該体積(V)の値を基にし、上記式(6)から体積膨張率(V)を算出した。

(16) バルブ8を閉じ、バルブ9を開けて、2.0 MPa程度まで二酸化炭素で加圧した。

(17) バルブ9を閉じ、バルブ8を開けて、セル内に二酸化炭素を導入し、加圧した。

(18)(9)から(15)を行った。

(19) バルブ8を閉じ、バルブ9を開けて、3.0 MPa程度まで二酸化炭素で加圧した。

(20) バルブ9を開じ、バルブ8を開けて、セル内に二酸化炭素を導入し、加圧した。

(21)(9)から(15)を行った。

(22) バルブ8を閉じ、バルブ9を開けて、4.0 MPa程度まで二酸化炭素で加圧した。

(23) バルブ9を開じ、バルブ8を開けて、セル内に二酸化炭素を導入し、加圧した。

(24)(9)から(15)を行った。

(25) バルブ8を閉じ、バルブ9を開けて、5.0 MPa程度まで二酸化炭素で加圧した。

(26) バルブ9を開じ、バルブ8を開けて、セル内に二酸化炭素を導入し、加圧した。

(27)(9)から(15)を行った。

(28) バルブ8を閉じ、バルブ9を開けて、5.5 MPa程度まで二酸化炭素で加圧した。

(29) バルブ9を開じ、バルブ8を開けて、セル内に二酸化炭素を導入し、加圧した。

(30)(9)から(15)を行った。

(31) バルブ10を開け、ガス導入ラインおよびセル内を0.1 MPaまで徐々に減圧した。

(32) セルをガス導入ラインから取り外し、セルの洗浄と乾燥を十分に行った。

(33)(1)から(10)の作業を行った。

(34) 恒温水槽の温度を60 (精度 0.01)に保ち、攪拌を継続しつつ、セル内の圧力を圧力計にて測定した。

(35)(12)から(32)の作業を行った。

(36)(1)から(10)の作業を行った。

(37) 恒温水槽の温度を25 (精度 0.01)に保ち、攪拌を継続しつつ、セル内の圧力を圧力計にて測定した。

(38)(12)から(32)の作業を行った。

【0053】

イオン液体に対する二酸化炭素の溶解量の測定は、まず上記式(3)に基づき、イオン液体に吸収された二酸化炭素の物質量を決定した。

次いで、上記式(1)に基づき、イオン液体における二酸化炭素のモル分率として評価した。

【0054】

イオン液体に対する二酸化炭素の溶解量の測定を、図2に示す装置を用いて行った。

(イオン液体に吸収された二酸化炭素の物質量の決定)

(1) 十分に露点が低いグローブボックス内で、窓付き高圧セル15に、事前に十分に乾燥したイオン液体を所定量(約15cc)仕込み、セル15を閉じ、さらにバルブ6を閉じ、電子天秤でイオン液体の仕込み量を正確に測定した。

(2) セル15を装置に接続し、バルブ6、7、8、9、10を開け、真空ポンプ1で系

10

20

30

40

50

内を脱気した。系内の圧力は圧力計 1 2 と真空計 2 で計測し、圧力計の表示が0.0000 MPa、真空計の指示が2

Pa以下に到達した後、さらに6時間以上脱気操作を続けた。

(3) バルブ 8 と 1 0 を閉じ、12時間以上放置し、圧力計の表示値の変化が0.0001 MPa/12 h 以下であることを確認した。

(4) バルブ 6 と 9 を閉じ、バルブ 8 を開けて二酸化炭素を6.0 MPa程度導入した。

(5) バルブ 8 を閉じ、恒温水槽 5 の温度を40 (精度 0.01) に保ち、圧力を圧力計 1 2 で計測した。また、セル 1 5 内部を、攪拌子(図 2 に示していない)を回転させ、攪拌した。攪拌子の回転にはマグネチックスターラー 1 6 を使用した。以降、攪拌は測定終了まで継続した。

10

【 0 0 5 5 】

(6) 圧力変化が1時間あたり0.0001 MPa以下になった際、ガスチャンバー部 4 が熱平衡に到達したと見なし、圧力を圧力計 1 2 で測定した。ガスチャンバー部 4 とは、図 2 のバルブ 8 とバルブ 9 で仕切られた破線で囲まれた部分である。

(7) 温度と圧力から二酸化炭素のモル体積(v_1)を決定した。モル体積(v_1)の決定に NIST REFPROP

Ver. 9.0を利用した。

(8) ガスチャンバー部の容積(V_1)は事前に決定しており、上記式(4)に基づき、ガスチャンバー部の容積(V_1)をモル体積(v_1)で除することで、ガスチャンバー部に導入された二酸化炭素の物質量(n_1)を求めた。

20

(9) 1時間ごとに(7)と(8)を、合計3回以上繰り返し、その平均値を物質量(n_1)として採用した。

【 0 0 5 6 】

(1 0) バルブ 9 、バルブ 6 の順に開け、二酸化炭素をイオン液体に吸収させた。

(1 1) 圧力変化が1時間あたり0.0001MPa以下になった際、気液平衡状態に到達したと見なし、圧力を圧力計 1 2 で測定した。

(1 2) 温度と圧力から二酸化炭素のモル体積(v_2)を決定した。モル体積(v_2)の決定に NIST REFPROP

Ver. 9.0を利用した。モル体積はガスの種類、温度、圧力のみで決定される。

(1 3) イオン液体に吸収された二酸化炭素の物質量(n_2)は上記式(4)より決定した。

30

なお、 V_3 はガスチャンバー部 4 と高圧セル部 3 (容積： V_2) の容積の合計である。ここで、 $V(T,p)$ はイオン液体の体積膨張率であり、温度と圧力の関数であり、体積膨張率の測定結果から決定した。また、 $V_{IL}(T)$ はガスを吸収する前のイオン液体の体積であり、上記式(5)で求められる。

【 0 0 5 7 】

上記式(5)中の w_{IL} はイオン液体の仕込み量であり、操作(1)(段落番号 0 0 5 4 の(1))で決定したものである。

(1 4) 1時間ごとに(11)から(13)を、合計3回以上繰り返し、その平均値をイオン液体に吸収された二酸化炭素の物質量(n_2)として採用した。

40

【 0 0 5 8 】

すなわち、前記(9)(段落番号 0 0 5 5 の(9))で決定したチャンバー部 4 に導入された二酸化炭素の物質量(n_1)、上記式(6)から決定されたガスを吸収する前のイオン液体の体積($V_{IL}(T)$)、前記体積膨張率の測定結果から決定した $V(T,p)$ 、前記(12)(段落番号 0 0 5 6 の(12))で決定した二酸化炭素のモル体積(v_2)を基にして、イオン液体に吸収された二酸化炭素の物質量を決定した。なお、ガスチャンバー部の容積(V_1)は事前に決定していた。

【 0 0 5 9 】

(二酸化炭素を吸収したイオン液体における二酸化炭素のモル分率の算出)

(1 5) 二酸化炭素のモル分率(x_{CO_2})は上記式(1)から決定した。 x_{CO_2} は温度と圧力

50

のみの関数であり、イオン液体とガスの種類に依存する。

上記イオン液体に吸収された二酸化炭素の物質量 (n_2) 及び w_{IL}/M_{IL} から決定された n_2 から、二酸化炭素を吸収したイオン液体における二酸化炭素のモル分率を算出した。なお、 w_{IL} はイオン液体の仕込み量を意味し、 M_{IL} はイオン液体のモル質量である。

【0060】

(イオン液体中の二酸化炭素の濃度の算出)

(16) 以下、イオン液体相の密度の算出について具体的に説明する。イオン液体相中の二酸化炭素の濃度 (C_{CO_2}) は上記式(2)で表され、温度と圧力の関数であり、イオン液体とガスの種類に依存する。

【0061】

(イオン液体相の密度の算出)

(17) イオン液体相の密度 (ρ_{IL}) は温度と圧力のみの関数であり、イオン液体とガスの種類に依存し、下記式(7)から決定した。

式(7))

$$\rho_{IL} = \frac{w_{IL} + n_2 \times M_{CO_2}}{V_{IL}(T) \times (1 + \Delta V(T, p))}$$

前記式(7)は下式のように記載してもよい。

$$\rho_{IL} = [w_{IL} + n_2 \times M_{CO_2}] / [V_{IL}(T) \times (1 + \Delta V(T, p))] \quad \text{式(7)}$$

上記式中、 ρ_{IL} は温度と圧力のみの関数であり、イオン液体とガスの種類に依存する。
ここで、 M_{CO_2} は二酸化炭素のモル質量である。 w_{IL} 、 n_2 、 $V_{IL}(T)$ 、 $\Delta V(T, p)$ は上記と同じである。

【0062】

(異なる平衡圧力下でのモル分率、濃度、密度の測定)

(18) バルブ9を閉じ、バルブ10を徐々に開け、高圧セル部3の圧力を0.1 MPaまで徐々に減圧した。

(19) バルブ10を完全に開放し、真空ポンプにて高圧セル部3を脱気した。真空計2の指示値が2

Pa以下に到達した後、さらに3時間以上脱気を継続し、二酸化炭素を十分に取り除いた。

(20) バルブ6および10を閉じた。

【0063】

(21)(6)から(19)を4回繰り返し、各圧力にて二酸化炭素のモル分率 (x_{CO_2})、二酸化炭素の濃度 (C_{CO_2}) とイオン液体相の密度 (ρ_{IL}) を決定した。

(22) バルブ6、7、9、10を開け、真空ポンプ1にて高圧セル部3およびガスチャンバー部4を脱気した。真空計2の指示値が2

Pa以下に到達した後、さらに3時間以上脱気を継続し、二酸化炭素を十分に取り除いた。

(23) バルブ6、9、10を閉じ、バルブ8を開けて二酸化炭素を5.5 MPa程度導入した。

(24)(5)から(19)を4回繰り返し、各圧力にて二酸化炭素のモル分率 (x_{CO_2}) とイオン液体相の密度 (ρ_{IL}) を決定した。

【0064】

(ヘンリー定数の決定)

(25) ヘンリー定数は、下式(8)に基づいて決定される。

(式(8))

$$k_H = \lim_{p \rightarrow 0} \left(\frac{f(T, p)}{x_{CO_2}} \right)$$

式中、フガシティ ($f(T, p)$) は温度と圧力の関数であり、ガスの種類に依存する。二酸化炭素のフガシティ ($f(T, p)$) はNIST REFPROP Ver. 9.0により決定した。 x_{CO_2} は二酸化炭素のモル分率である。ヘンリー定数 (k_H) は温度のみの関数であり、イオン液体とガス

10

20

30

40

50

の種類に依存する。一定温度におけるヘンリー定数の大小でガス吸収能を比較でき、ガスの溶解量が多いほど値は小さい。

ヘンリー定数の具体的な決定法は以下のとおりである。

横軸を圧力(p)、縦軸を($f(T, p) / x_{CO_2}$)とするグラフを作成し、プロットを二次関数でフィッティングした際、二次関数曲線と縦軸の交点が k_H である。

【0065】

(異なる温度条件下でのモル分率、濃度、密度の測定)

(26)(2)から(4)の作業を行った。

(27)バルブ8を閉じ、恒温水槽5の温度を60 °C(精度0.01 °C)に保ち、圧力を圧力計12で計測した。また、セル15内部を、攪拌子を回転させ、攪拌した。攪拌子の回転にはマグネチックスターラー16を使用した。以降、攪拌は測定終了まで継続した。10

(28)(6)から(19)を5回繰り返し、各圧力にて二酸化炭素のモル分率(x_{CO_2})、二酸化炭素の濃度(C_{CO_2})とイオン液体相の密度(ρ_{IL})を決定した。

(29)(22)から(25)を行った。

60 °Cにおける[N_{112A}][NTf₂]の二酸化炭素に対するヘンリー定数は5.09 MPaであった。

【0066】

(異なる温度条件下でのモル分率、濃度、密度の測定2)

(30)(2)から(4)の作業を行った。

(31)バルブ8を閉じ、恒温水槽5の温度を25(精度0.01)に保ち、圧力を圧力計12で計測した。また、セル15内部を、攪拌子を回転させ、攪拌した。攪拌子の回転にはマグネチックスターラー16を使用した。以降、攪拌は測定終了まで継続した。20

(32)(6)から(19)を5回繰り返し、各圧力にて二酸化炭素のモル分率(x_{CO_2})、二酸化炭素の濃度(C_{CO_2})とイオン液体相の密度(ρ_{IL})を決定した。

(33)(22)から(25)を行った。

25 °Cにおける[N_{112A}][NTf₂]の二酸化炭素に対するヘンリー定数は2.90MPaであった。

(34)[N_{112A}][NTf₂]の二酸化炭素の吸収量(x_{CO_2})、二酸化炭素の濃度(C_{CO_2})、イオン液体相の密度(ρ_{IL})を表1に示す。

【0067】

(表1)

30

20

30

p/MPa	x_{CO_2}	$C_{\text{CO}_2}/\text{mol dm}^{-3}$	$\rho_{\text{IL}}/\text{g cm}^{-3}$
$T=298.15 \text{ K}$			
0	0	0	1.391
0.5468	0.162	0.577	1.389
0.9901	0.264	1.051	1.386
1.4159	0.342	1.501	1.383
1.7810	0.400	1.894	1.379
2.3687	0.477	2.522	1.373
2.9950	0.544	3.196	1.365
3.7019	0.605	3.959	1.355
4.0782	0.632	4.361	1.349
4.5914	0.666	4.925	1.342
$T=313.15 \text{ K}$			
0	0	0	1.377
0.6059	0.139	0.474	1.367
1.2777	0.262	1.020	1.359
1.5358	0.300	1.220	1.356
1.8785	0.345	1.485	1.352
2.4761	0.413	1.947	1.346
2.9536	0.460	2.312	1.342
3.5044	0.506	2.732	1.338
3.9952	0.541	3.098	1.334
4.9788	0.602	3.832	1.327
$T=333.15 \text{ K}$			
0	0	0	1.359
0.5203	0.094	0.302	1.347
1.1391	0.185	0.651	1.337
1.5443	0.236	0.877	1.332
1.8538	0.272	1.050	1.329
2.7432	0.358	1.532	1.320
2.9201	0.374	1.630	1.319
3.4710	0.417	1.925	1.315
3.9312	0.449	2.172	1.313

【 0 0 6 8 】
 (热力学パラメータの决定)

10

20

30

40

50

以下、熱力学パラメータの決定について具体的に説明する。

(35) 40、60、25 °Cで決定したヘンリー定数より、以下の式を用いて、熱力学パラメータを決定した。なお、ギブスエネルギー(G)、エンタルピー(H)、エントロピー(S)は、いずれも温度のみの関数であり、イオン液体とガスの種類に依存する。

【0069】

(式(9))

$$\Delta G = RT \ln(k_H(T)/p^0)$$

式(9)は下記のように記載してもよい。

$$G = RT \ln(k_H(T, p) / p^0) \quad \text{式(9)}$$

10

【0070】

(式(10))

$$\Delta H = -RT^2 \frac{\partial}{\partial T} [\ln(k_H(T)/p^0)]$$

式(10)は下記のように記載してもよい。

$$H = -RT^2 (-/T) [(\ln(k_H(T)/p^0))] \quad \text{式(10)}$$

20

【0071】

(式(11))

$$\Delta S = -RT \frac{\partial}{\partial T} [\ln(k_H(T)/p^0)] - R[\ln(k_H(T)/p^0)]$$

式(11)は下記のように記載してもよい。

$$S = -RT(-/T)[(\ln(k_H(T)/p^0))] - R[\ln(k_H(T, p) / p^0)] \quad \text{式(11)}$$

30

上記式(9)、(10)、(11)において、 p^0 は圧力、 $k_H(T)$ は各温度におけるヘンリー定数を意味する。また、縦軸に $\ln(k_H/p^0)$ を、横軸に T をとり、プロットを二次関数でフィッティングすることで $\ln(k_H(T)/p^0)$ を求める。さらに、二次関数を微分することで、 $(-/T)[\ln(k_H(T)/p^0)]$ を得る。Gが小さいほど、ガスの溶解量は大きくなる。なお、 p^0 は0.1 MPaである。

40 在において、 $[N_{112A}][NTf_2]$ の熱力学パラメータは次のとおりであった。 $G=9.48\text{kJ mol}^{-1}$, $H=-13.6\text{ kJ mol}^{-1}$, $S=-73.7\text{ Jmol}^{-1}\text{ K}^{-1}$

30

【0072】

(大気圧下の密度と粘性率の測定)

大気圧にて、イオン液体の密度()を、振動管式密度計(Anton Paar, DMA 5000M)を用いて測定した。試料の封入は十分に露点が低いグローブボックス内で行った。また、装置定数は乾燥空気と超純水(Millipore SimpliLab Purification Pack)で決定した。

40

【0073】

大気圧にて、イオン液体の粘性率()を、回転シリンダー式粘度計(Anton Paar, Stabinger SVM3000)で測定した。試料の封入は十分に露点が低いグローブボックス内で行った。粘度計の健全性は、標準試料(Cannon Instrument Company)で確認した。

$[N_{112A}][NTf_2]$ の密度、粘性率を表2に示す。

40

【0074】

(表2)

<i>t</i> / °C	[N _{112A}][NTf ₂]	
	<i>ρ/g cm⁻³</i>	<i>η/mPa s</i>
0.00	1.4141	243.50
5.00	1.4097	173.61
10.00	1.4050	127.50
15.00	1.4003	96.35
20.00	1.3957	74.27
25.00	1.3911	58.57
30.00	1.3865	47.19
40.00	1.3774	32.03
50.00	1.3684	22.89
60.00	1.3595	17.02
70.00	1.3506	13.14
80.00	1.3418	10.39
90.00	1.3330	8.43

10

20

30

40

50

【実施例 2】

【0075】

(ア) イオン液体の合成 [N(C₂H₅)(CH₃)₂(C₂H₄OOCCH₃)]⁺[N(SO₂CF₃)₂]⁻ (ジメチルエチル(アセトキシエチル)アンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミド) の合成

酢酸 2 - プロモエチル 133.6 g (0.80 モル)、N,N-ジメチルエチルアミン 70.2 g (0.96 モル) 及びアセトニトリル 401 g の混合物を、75°で 24 時間攪拌した。その後、得られた反応混合物を濃縮、乾燥し、残渣 184.0 g を得た。この残渣にイオン交換水 184 g 及びトルエン 364 g を加えて攪拌し、分液した。分液して得た水層をトルエン 364 g で洗浄し、ジメチルエチル(アセトキシエチル)アンモニウムプロミド水溶液 365.1 g を得た。

上記で得たジメチルエチル(アセトキシエチル)アンモニウムプロミド水溶液 365.1 g に、塩化メチレン 551 g 及び 73.4 % ビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミド酸リチウム [(CF₃SO₂)₂NLi] 水溶液 314.7 g (0.80 モル) を加え室温で 9 時間攪拌し、分液した。分液して得られた有機層をイオン交換水 185 g で 2 回洗浄した。その後、有機層から塩化メチレンを留去して油状のジメチルエチル(アセトキシエチル)アンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミド 328.7 g (0.75 モル、収率 93 %) を得た。得られたジメチルエチル(アセトキシエチル)アンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミドの NMR の分析結果を次に示す。なお、ジメチルエチル(アセトキシエチル)アンモニウムビス(トリフルオロメタンスル

ホニル)アミドを、以降、 $[N_{112B}][NTf_2]$ と表記する。

【0076】

1H -NMR (CD₃OD) ppm: 4.52 - 4.48 (m, 2H)、3.68 - 3.65 (m, 2H)、3.48 (q, 2H)、3.13 (s, 6H)、2.10 (s, 3H)、1.41 - 1.36 (m, 3H)

【0077】

(イ) (イオン液体の二酸化炭素吸収)

実施例1と同様に操作し、二酸化炭素を $[N_{112B}][NTf_2]$ に接触させた。

【0078】

(ウ) (イオン液体の二酸化炭素吸収能の測定)

10

実施例1と同様に操作を行い、 $[N_{112B}][NTf_2]$ の二酸化炭素のモル分率(x_{CO_2})、二酸化炭素の濃度(C_{CO_2})とイオン液体相の密度(r_{IL})を求めた。その結果を図3及び表3に示した。また、40、60、25における $[N_{112B}][NTf_2]$ の二酸化炭素に対するヘンリ－定数は、それぞれ、4.41MPa、6.01MPa、3.38MPaであった。

【0079】

(表3)

p/MPa	x_{CO_2}	$C_{\text{CO}_2}/\text{mol dm}^{-3}$	$\rho_{\text{IL}}/\text{g cm}^{-3}$
$T=298.15 \text{ K}$			
0	0	0	1.459
0.6580	0.166	0.643	1.447
1.1336	0.259	1.107	1.440
1.5074	0.320	1.468	1.435
1.9060	0.378	1.859	1.430
2.4829	0.446	2.403	1.422
3.0702	0.504	2.962	1.415
3.5528	0.545	3.419	1.410
4.0543	0.581	3.882	1.404
4.5757	0.614	4.358	1.399
$T=313.15 \text{ K}$			
0	0	0	1.445
0.5873	0.119	0.438	1.443
0.9752	0.184	0.722	1.440
1.5937	0.272	1.174	1.437
2.0664	0.328	1.515	1.434
2.5391	0.378	1.862	1.432
3.2247	0.438	2.342	1.427
3.8830	0.485	2.778	1.422
4.1389	0.501	2.940	1.420
4.8450	0.540	3.372	1.413
$T=333.15 \text{ K}$			
0	0	0	1.427
0.7517	0.112	0.403	1.427
1.1948	0.168	0.640	1.426
1.8763	0.240	0.991	1.424
2.3410	0.284	1.231	1.422
2.8855	0.328	1.499	1.420
3.5495	0.376	1.828	1.417
4.2997	0.422	2.181	1.412
5.1698	0.465	2.554	1.405

【 0 0 8 0 】

(热力学パラメータの决定)

10

20

30

40

50

実施例 1 と同様に操作を行い、 $[N_{112B}][NTf_2]$ の熱力学パラメータを決定した。
 その結果、40において、 $[N_{112B}][NTf_2]$ の熱力学パラメータは次のとおりであった。
 $G=9.86\text{kJmol}^{-1}$, $H=-13.7\text{kJmol}^{-1}$, $S=-75.3\text{Jmol}^{-1}\text{K}^{-1}$

【0081】

(大気圧下の密度と粘性率の測定)

実施例 1 と同様に操作を行い、 $[N_{112B}][NTf_2]$ の密度、粘性率を決定した。
 その結果を表 4 に示す。

(表 4)

$t / ^\circ\text{C}$	$[N_{112B}][NTf_2]$	
	$\rho/\text{g cm}^{-3}$	$\eta/\text{mPa s}$
0.00	1.4819	1539.04
5.00	1.4771	953.72
10.00	1.4722	617.28
15.00	1.4673	415.30
20.00	1.4632	289.12
25.00	1.4587	207.54
30.00	1.4541	152.98
40.00	1.4449	89.40
50.00	1.4359	56.56
60.00	1.4270	38.15
70.00	1.4181	27.10
80.00	1.4094	20.06
90.00	1.4006	15.37

【0082】

(比較例 1 ~ 2)

イオン液体として、1-ブチル-3-メチルイミダゾリウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミド、及びジメチルホルムアミドビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミドを選んだ。なお、前者を[bmim][NTf₂]、後者を[DMFH][NTf₂]と表記する。

[bmim][NTf₂]を、実施例 1 と同様に操作し、[bmim][NTf₂]の二酸化炭素のモル分率(x_{CO_2})を求めた。また、[DMFH][NTf₂]については、特許文献 6 に記載の情報より、[DMFH][NTf₂]の二酸化炭素のモル分率(x_{CO_2})を求めた。

その結果を図 3 に示した。

【0083】

図 3 から、実施例 1 及び 2 のイオン液体($[N_{112A}][NTf_2]$; 実施例 1、 $[N_{112B}][NTf_2]$; 実施例 2)は、比較例 2 のイオン液体([DMFH][NTf₂])と比較して、同圧力におけるCO₂

10

20

30

40

50

のモル分率が大きく、優れたCO₂吸収能を有することがわかる。また、[N_{112A}][NTf₂]は、一般的に優れた二酸化炭素吸収液とされる[bmim][NTf₂]よりも多く二酸化炭素を吸収することがわかる。

【0084】

表5に40においてギブスエネルギー(ΔG)、エンタルピー(ΔH)、エントロピー(ΔS)を示す。

[N_{112A}][NTf₂]と[N_{112B}][NTf₂]は、[DMFH][NTf₂]と比較して、エンタルピーが大きく、エントロピーが小さい。

すなわち、[DMFH][NTf₂]と比較して、エンタルピー効果に優れるため、優れたCO₂吸収能を示すと考えられる。また、[N_{112A}][NTf₂]のエンタルピーは[bmim][NTf₂]と同程度であるが、エントロピーは[bmim][NTf₂]よりも大きい。すなわち、エントロピー効果により、[bmim][NTf₂]と比較して、二酸化炭素吸収能が改善されていると考えられる。

【0085】

(表5)

		$\Delta G / \text{kJ mol}^{-1}$,	$\Delta H / \text{kJ mol}^{-1}$,	$\Delta S / \text{J mol}^{-1} \text{K}^{-1}$
313.15 K				
実施例 1	[N _{112A}][NTf ₂]	9.5	-13.6	-73.7
実施例 2	[N _{112B}][NTf ₂]	9.9	-13.7	-75.3
比較例 1	[bmim][NTf ₂]	9.8	-14.2	-76.6
比較例 2	[DMFH][NTf ₂]	10.3	-12.4	-72.6

【0086】

(比較例3~8)

比較例3~8として表6に記載のイオン液体のヘンリー定数及び粘性率は、表6のとおりである(非特許文献6)。[N_{WXYZ}]は炭素数がW、X、Y、Zの直鎖炭化水素基を有するアンモニウムカチオンを意味する。例えば、[N₁₁₃₆]はメチル基が2つ、プロピル基が1つ、ヘキシル基が1つの四級アンモニウムである。なお、分かりやすいように、実施例1の結果も表6に記載した。

【0087】

(表6)

番号	イオン液体	ヘンリー定数 (MPa)	粘性率 (mPas)	温度 (K)	
比較例 3	[N ₁₁₃₄][NTf ₂]	6.5	85	303.15	
比較例 4	[N ₁₁₃₆][NTf ₂]	5.5	126	303.15	40
比較例 5	[N ₁₁₃₍₁₀₎][NTf ₂]	4.4	183	303.15	
比較例 6	[N ₁₁₁₄][NTf ₂]	6.2	71	303.15	
比較例 7	[N ₁₁₁₍₁₀₎][NTf ₂]	4.5	173	303.15	
比較例 8	[N ₂₂₂₆][NTf ₂]	6.1	167	303.15	
実施例 1	[N _{112A}][NTf ₂]	3.22	47.2	303.15	50

【0088】

表6に示す通り、 $[N_{1136}][NTf_2]$ を基準にすると、アルキル鎖を伸長させた $[N_{113(10)}][NTf_2]$ ではヘンリー定数の低下が約20%に留まるのに対し、エステルを導入した $[N_{112B}][NTf_2]$ では約30%、エーテルを2つ導入した $[N_{112A}][NTf_2]$ は約40%の低下が認めらる。 $[N_{112B}][NTf_2]$ および $[N_{112A}][NTf_2]$ の鎖長は $[N_{113(10)}][NTf_2]$ よりも短く、エーテル基及び/又はエステル基を導入することで、非常に長いアルキル鎖を導入することなく、二酸化炭素吸収能を改善できた。

【0089】

表6の比較例に示す通り、ヘンリー定数が低下すると、粘性率が増加する。一方、エーテル基を導入した $[N_{112A}][NTf_2]$ は、ヘンリー定数と粘性率が共に低下している。 $[N_{1136}][NTf_2]$ を基準にすると、 $[N_{112A}][NTf_2]$ はヘンリー定数が約40%低下し、さらに、粘性率が37%まで低下する。

【0090】

(比較例9)

(ア)イオン液体の合成 $[N(C_2H_5)(CH_3)_2(C_7H_{15})]^{+}[N(SO_2CF_3)_2]^{-}$ (ジメチルエチルヘプチルアンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミド)の合成

1-ブロモヘプタン124.8g(0.70モル)及びアセトニトリル377gの混合物を60℃に加熱し、N,N-ジメチルエチルアミン65.7g(0.90モル)を1.5時間かけて滴下し、その後70℃で24時間攪拌した。その後、得られた反応混合物を濃縮、乾燥し、残渣173.9gを得た。この残渣にイオン交換水180g及びトルエン366gを加えて攪拌し、分液した。分液して得た水層をトルエン340gで洗浄し、ジメチルエチルヘプチルアンモニウムプロミド水溶液364.7gを得た。

上記で得たジメチルエチルヘプチルアンモニウムプロミド水溶液364.7gに、塩化メチレン527g及び74.9%ビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミド酸リチウム $[(CF_3SO_2)_2NLi]$ 水溶液278.0g(0.73モル)を加え室温で9時間攪拌し、分液した。分液して得られた有機層をイオン交換水175gで2回洗浄した。その後、有機層から塩化メチレンを留去して油状のジメチルエチルヘプチルアンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミド305.2g(0.67モル、収率96%)を得た。得られたジメチルエチルヘプチルアンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミドのNMRの分析結果を次に示す。なお、ジメチルエチルヘプチルアンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミドを、以降、 $[N_{1127}][NTf_2]$ と表記する。

【0091】

1H -NMR(CDC13)ppm:3.40(q,2H)、3.26-3.20(m,2H)、3.06(s,6H)、1.76-1.66(m,2H)、1.45-1.24(m,11H)、0.89(t,3H)

【0092】

(比較例10)

(ア)イオン液体の合成 $[N(C_2H_5)(CH_3)_2(C_5H_{11})]^{+}[N(SO_2CF_3)_2]^{-}$ (ジメチルエチルペンチルアンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミド)の合成

1-ブロモペンタン98.2g(0.65モル)及びアセトニトリル295gの混合物を60℃に加熱し、N,N-ジメチルエチルアミン58.2g(0.80モル)を2時間かけて滴下し、その後70℃で24時間攪拌した。その後、得られた反応混合物を濃縮、乾燥し、残渣144.6gを得た。この残渣にイオン交換水146g及びトルエン328

10

20

30

40

50

g を加えて攪拌し、分液した。分液して得た水層をトルエン 299 g で洗浄し、ジメチルエチルベンチルアンモニウムプロミド水溶液 287.9 g を得た。

上記で得たジメチルエチルベンチルアンモニウムプロミド水溶液 287.9 g に、塩化メチレン 446 g 及び 74.9 % ビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミド酸リチウム [(C₂F₅SO₂)₂NLi] 水溶液 261.3 g (0.68 モル) を加え室温で 9 時間攪拌し、分液した。分液して得られた有機層をイオン交換水 145 g で 2 回洗浄した。その後、有機層から塩化メチレンを留去して油状のジメチルエチルベンチルアンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミド 266.3 g (0.63 モル、収率 97 %) を得た。得られたジメチルエチルベンチルアンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミドの NMR の分析結果を次に示す。なお、ジメチルエチルベンチルアンモニウムビス(トリフルオロメタンスルホニル)アミドを、以降、[N₁₁₂₅][NTf₂] と表記する。
10

【0093】

¹H-NMR (CDCl₃) ppm: 3.40 (q, 2H)、3.26 - 3.20 (m, 2H)、3.07 (s, 6H)、1.76 - 1.66 (m, 2H)、1.45 - 1.32 (m, 7H)、0.94 (t, 3H)

【0094】

比較例 9 ~ 10 のイオン液体の二酸化炭素の体積濃度および粘性率を実施例 1 と同様な操作により測定した。その結果を表 7 に示した。なお、分かりやすいように、実施例 1 の結果も表 7 に記載した。
20

【0095】

(表 7)

番号	イオン液体	T/K	/mPa s	p/MPa	C _{CO₂} /mol dm ⁻³	
比較例 9	[N ₁₁₂₇][NTf ₂]	298.15	167.6	0.5468	0.522	30
				1.4159	1.359	
				2.3687	2.289	
				3.7019	3.619	
				4.5914	4.529	
比較例 10	[N ₁₁₂₅][NTf ₂]	298.15	127.6	0.5468	0.549	40
				1.4159	1.410	
				2.3687	2.347	
				3.7019	3.670	
				4.5914	4.575	
実施例 1	[N _{112A}][NTf ₂]	298.15	32.03	0.5468	0.577	50

	1.4159	1.501
	2.3687	2.522
	3.7019	3.959
	4.5914	4.925

【0096】

表7から、カチオンの側鎖がすべてアルキル基である[N₁₁₂₅][NTf₂]や[N₁₁₂₇][NTf₂]の二酸化炭素の体積濃度は同程度であり、本発明のイオン液体よりも約7～10%低く、粘性率は約4～5倍も高いことがわかる。この表7からも、エーテル基を有する本発明のイオン液体は、二酸化炭素の吸収量だけでなく、二酸化炭素の吸放出速度も向上していることがわかる。

10

【0097】

本発明を以下のように記載することができる。

(1) (i) エーテル基及び/又はエステル基を有するカチオン及び(ii) アニオンから構成されるイオン液体を含む酸性ガス吸収液であって、カチオンが下記一般式(c)又は(d)にて表わされるカチオンから選ばれる1種又は2種以上であることを特徴とする酸性ガス吸収液。

20



式中、R₁₁、R₁₂は同一又は異なってもよく、エーテル基及び/又はエステル基を有する炭素数が2～8の炭化水素基を示し、R₂₁、R₃₁、R₄₁、R₂₂、R₃₂、R₄₂は同一又は異なっており、水素原子又はエーテル基及び/又はエステル基を有してもよい炭素数が1～8の炭化水素基を意味する。なお、エーテル基及び/又はエステル基を有さないR₂₁、R₃₁、R₄₁から選ばれる二つが相互に結合して環状の化合物を形成してもよく、エーテル基及び/又はエステル基を有さないR₂₂、R₃₂、R₄₂から選ばれる二つが相互に結合して環状の化合物を形成してもよい。R₂₁、R₃₁、R₄₁、R₂₂、R₃₂、R₄₂は同一又は異なっており、エーテル基及び/又はエステル基を有してもよい炭素数が1～8の炭化水素基が好ましい。

30

(2) (1)記載のイオン液体又は酸性ガス吸収液を酸性ガスと接触させて、前記酸性ガスを前記イオン液体に吸収させることを特徴とする酸性ガス吸収方法。

【0098】

(3) (i) エーテル基及び/又はエステル基を有するカチオン及び(ii) アニオンから構成されるイオン液体と酸性ガスを含有する混合ガスと接触させ、前記混合ガスから前記酸性ガスを選択的に前記イオン液体に吸収させ、分離する前記混合ガスからの酸性ガス分離法であって、前記カチオンは、下記一般式(c)又は(d)にて表わされるカチオンから選ばれる1種又は2種以上でことを特徴とする酸性ガス分離法。

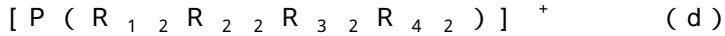
40



式中、R₁₁、R₁₂は同一又は異なってもよく、エーテル基及び/又はエステル基を有する炭素数が2～8の炭化水素基を示し、R₂₁、R₃₁、R₄₁、R₂₂、R₃₂、R₄₂は同一又は異なっており、水素原子又はエーテル基及び/又はエステル基を有してもよい炭素数が1～8の炭化水素基を意味する。なお、エーテル基及び/又はエステル基を有さないR₂₁、R₃₁、R₄₁から選ばれる二つが相互に結合して環状の化合物を形成してもよく、エーテル基及び/又はエステル基を有さないR₂₂、R₃₂、R₄₂から選ばれる二つが相互に結合して環状の化合物を形成してもよい。R₂₁、R₃₁、R₄₁、R₂₂、R₃₂、R₄₂は同一又は異なっており、エーテル基及び/又はエステル基を有してもよい炭素数が1～8の炭化水素基が好ましい。

50

(4)(i) エーテル基及び/又はエステル基を有するカチオン及び(ii) アニオンから構成されるイオン液体と酸性ガスを含有する混合ガスと接触させ、前記混合ガスから前記酸性ガスを選択的に前記イオン液体に吸収させ、分離回収する酸性ガス分離回収法であって、前記カチオンは、下記一般式(c)又は(d)にて表わされるカチオンから選ばれる1種又は2種以上でことを特徴とする酸性ガス分離回収法。



式中、 $R_{1\ 1}$ 、 $R_{1\ 2}$ は同一又は異なってもよく、エーテル基及び/又はエステル基を有する炭素数が2~8の炭化水素基を示し、 $R_{2\ 1}$ 、 $R_{3\ 1}$ 、 $R_{4\ 1}$ 、 $R_{2\ 2}$ 、 $R_{3\ 2}$ 、 $R_{4\ 2}$ は同一又は異なっており、水素原子又はエーテル基及び/又はエステル基を有してもよい炭素数が1~8の炭化水素基を意味する。なお、エーテル基及び/又はエステル基を有さない $R_{2\ 1}$ 、 $R_{3\ 1}$ 、 $R_{4\ 1}$ から選ばれる二つが相互に結合して環状の化合物を形成してもよく、エーテル基及び/又はエステル基を有さない $R_{2\ 2}$ 、 $R_{3\ 2}$ 、 $R_{4\ 2}$ から選ばれる二つが相互に結合して環状の化合物を形成してもよい。 $R_{2\ 1}$ 、 $R_{3\ 1}$ 、 $R_{4\ 1}$ 、 $R_{2\ 2}$ 、 $R_{3\ 2}$ 、 $R_{4\ 2}$ は同一又は異なっており、エーテル基及び/又はエステル基を有してもよい炭素数が1~8の炭化水素基が好ましい。

10

【産業上の利用可能性】

【0099】

本発明は、酸性ガスを含む混合ガスから酸性ガスを物理吸収できるので、酸性ガス分離を必要とする際に利用できる。例えば、地球温暖化の抑制、各種排気ガスの浄化等を挙げられるが、これら例示された分野に限定されることは当然である。

20

【符号の説明】

【0100】

図1で

- 1 真空ポンプ
- 2 カセットメーター
- 3 搅拌子
- 4 サファイヤ製チューブセル
- 5 永久磁石
- 6 恒温水槽
- 7 液相高さ(H)
- 8 バルブ
- 9 バルブ
- 10 バルブ
- 11 温度計
- 12 圧力計
- 13 恒温水槽温度制御器
- 14 ガスポンベ

30

図2で

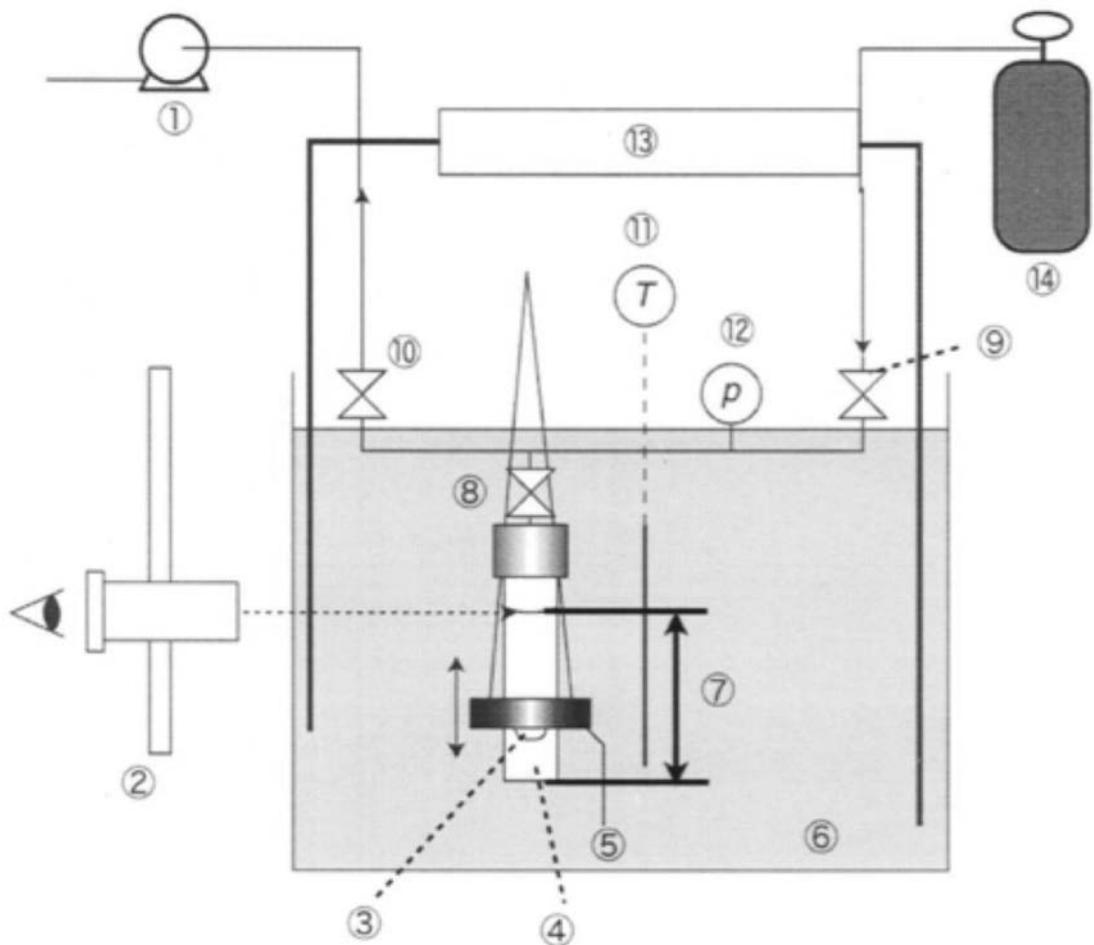
- 1 真空ポンプ
- 2 真空計
- 3 高圧セル部(容積 V_2)
- 4 ガスチャンバー部(容積 V_1)
- 5 恒温水槽
- 6 バルブ1
- 7 バルブ2
- 8 バルブ3
- 9 バルブ4
- 10 バルブ5
- 11 温度計

40

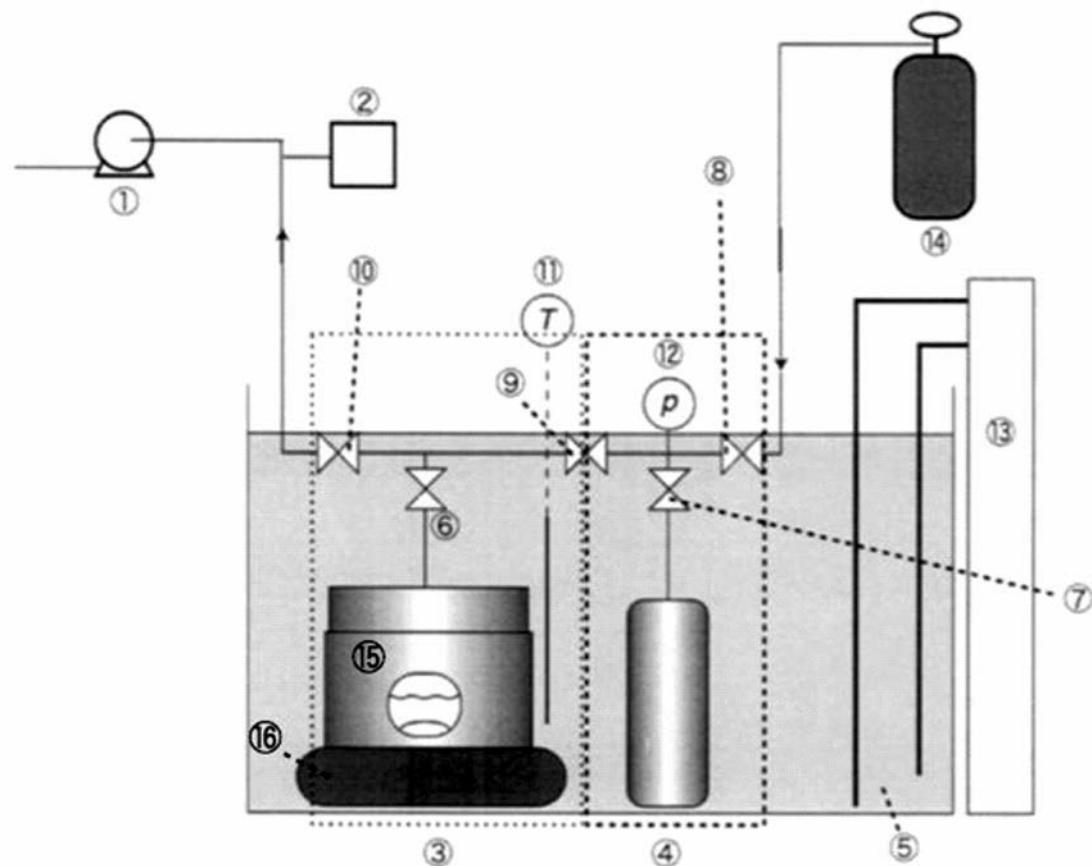
50

- 1 2 圧力計
- 1 3 恒温水槽温度制御器
- 1 4 ガスボンベ
- 1 5 高压セル
- 1 6 マグネットックスター

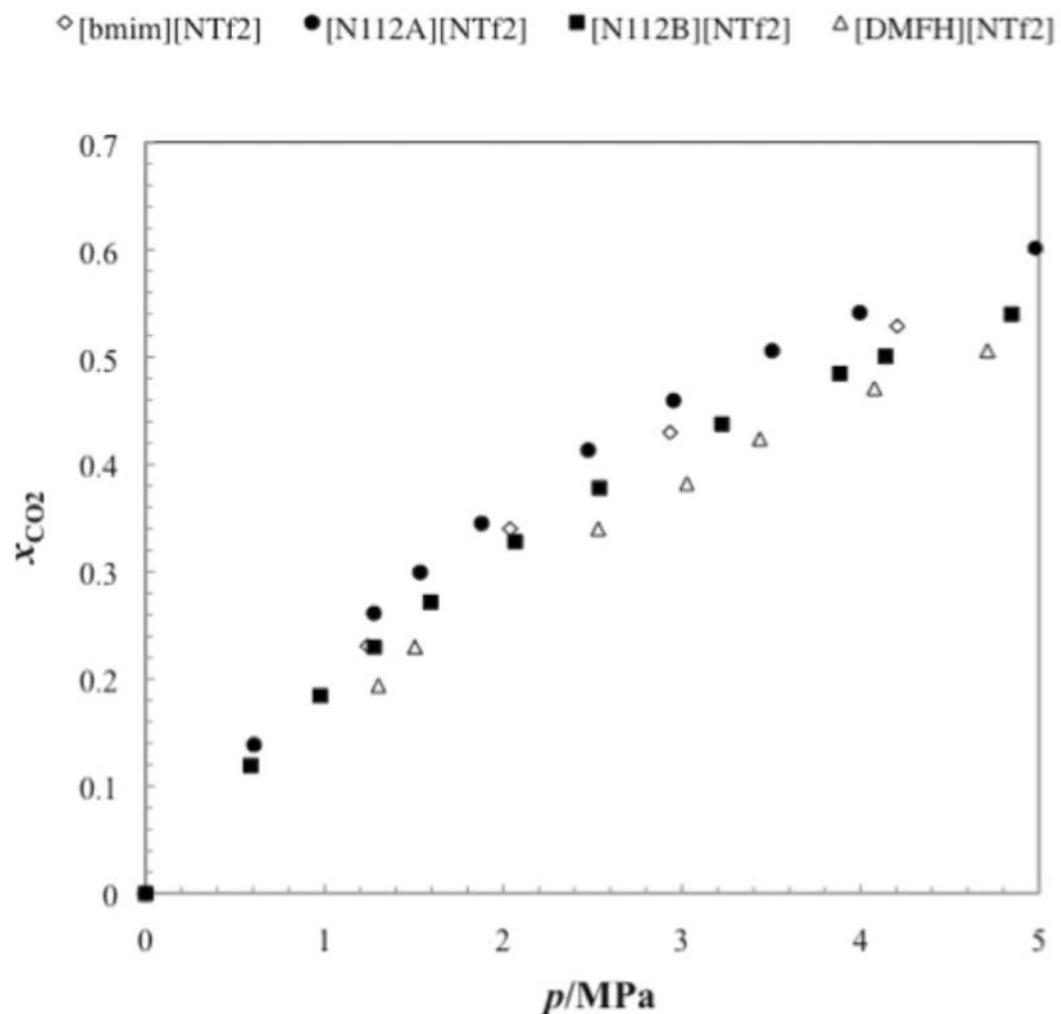
【図1】



【 図 2 】



【図3】



フロントページの続き

(51) Int.Cl. F I テーマコード(参考)
C 01B 31/20 (2006.01) C 01B 31/20 B

(72)発明者 金久保 光央
宮城県仙台市宮城野区苦竹四丁目 2 番 1 号独立行政法人産業技術総合研究所東北センター内

(72)発明者 梅木 辰也
宮城県仙台市宮城野区苦竹四丁目 2 番 1 号独立行政法人産業技術総合研究所東北センター内

(72)発明者 岩崎 克浩
千葉県袖ヶ浦市北袖 25 番 広栄化学工業株式会社内

F ターム(参考) 4D002 AA02 AA03 AA09 AA12 BA02 CA01 DA57 DA70 FA01 GA01

GB20

4D020 AA03 AA04 AA05 AA06 BA16 BA17 BA19 BB04 CB25 DA03

DB20

4G146 JA02 JB09 JC19 JC28

4H006 AA01 AA03 AB80 AB90 BM10 BP10 BT12 BU50