

Особенности массопереноса молекул воды и этанола через наноканалы оксида графена

Гурьянов К.Е.¹, Чумаков А.П.², Елисеев А.А.¹

GurianovKE@yandex.ru

¹ МГУ им. М.В. Ломоносова, Москва, Россия

² ESRF - the European Synchrotron, Grenoble, France

В работе приведены результаты исследования эффективности разделения паров водно-спиртовых смесей в процессе мембранной дистилляции на оксиде графена (соотношение С:О ~ 1,9, размер нанолитов ~6 мкм, толщина мембран ~100 нм). Методом широкоугольной рентгеновской дифракции при скользящем падении пучка была исследована зависимость межплоскостного расстояния в процессе сорбции паров воды и этанола. Показано, что в процессе набухания мембран межплоскостное расстояние изменяется от ~0,75 до ~1,2 нм в случае молекул воды и до ~1,35 нм в случае этанола. Сканирование рентгеновским пучком мембран по глубине показало весьма узкое распределение межплоскостных расстояний по толщине мембраны. При этом размер нанощели в мембране не совпадает с таковым для равновесных условий при изменении активности паров воды ни со стороны потока, ни со стороны пермеата. Показано, что градиент активности, рассчитанный на основании дифракционных данных внутри мембраны, оказался существенно меньше реального (~10% от приложенного градиента). Увеличение размера нанощели соответствует поглощению ~0,045 моль/г(ОГ) для молекул воды и ~0,009 моль/г(ОГ) для молекул этанола, что соответствует 1,24 молекулам воды и 0,24 молекулам этанола на атом углерода. Мембраны обладают крайне низкой проницаемостью по парам этанола ($<8,5 \cdot 10^{-10}$ моль·м⁻²·Па⁻¹·с⁻¹), демонстрируя при этом высокую проницаемость по молекулам воды ($>1 \cdot 10^{-6}$ моль·м⁻²·Па⁻¹·с⁻¹). Огромная (>3 порядков величины) разница в проницаемостях молекул воды и этанола (активность компонента изменяется только со стороны потока) объясняется преимущественной сорбцией молекул воды и существенным различием в активационных барьерах диффузии для молекул воды и этанола в наноканалах оксида графена. Сорбционная селективность для пары H₂O/C₂H₅OH была рассчитана при помощи метода *in situ* ИК-спектроскопии. На основании модели сорбции-диффузии были определены коэффициенты диффузии молекул воды и этанола. Рассчитанная диффузионная селективность в паре H₂O/C₂H₅OH составила ~10, что было также подтверждено методом ЭПР со спиновым зондом. Преимущественная сорбция и диффузионная подвижность молекул воды по сравнению с молекулами спирта были подтверждены полуэмпирическим моделированием. Показано, что на величину энергетического барьера транспорта оказывает влияние плотность интеркалированной фазы между слоями оксида графена. При увеличении активности паров воды со стороны пермеата наблюдается экспоненциальное возрастание проницаемости по молекулам воды ($>3 \cdot 10^{-5}$ моль·м⁻²·Па⁻¹·с⁻¹). Предельная проницаемость мембран на основе оксида графена, оцененная на основании рассчитанного градиента активности, составила $>1,2 \cdot 10^{-4}$ моль·м⁻²·Па⁻¹·с⁻¹. Наблюдаемое падение проницаемости паров воды может быть объяснено скоростью теплопереноса между поверхностями мембраны. Рассчитанный перепад температуры на поверхности мембраны со стороны пермеата составил ~6 °С при максимально приложенном градиенте активности. Полученные результаты демонстрируют эффективность применения мембран на основе оксида графена для процесса дистилляционного разделения водно-спиртовых смесей.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ, грант № 23-13-00195-П.