

THE SOLUBILITY OF CARBON DIOXIDE IN AQUEOUS SOLUTIONS OF *N*-METHYLDIETHANOLAMINE (MDEA) AND TRIETHYLENE TETRAMINE (TETA).

1. EXPERIMENTAL♦

LA SOLUBILITE DU CO₂ DANS DES SOLUTIONS AQUEUSES DE *N*-METHYLDIETHANOLAMINE (MDEA) ET TRIETHYLENE TETRAMINE (TETA).

1. PARTIE EXPERIMENTALE

Jean-Marc Amann, Chakib Bouallou*

Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, Centre Énergétique et Procédés, 60 Boulevard Saint Michel, 75006 Paris, France

*Corresponding author: chakib.bouallou@ensmp.fr

Received: 16/01/2008

Accepted after revision: 20/02/2008

Abstract: CO₂ solubility in a new solvent based on a blend of *N*-methyldiethanolamine (MDEA) and Triethylene Tetramine (TETA) was measured between 298 and 393 K for a MDEA concentration ranging from 1400 to 3400 mol·m⁻³ and a TETA concentration varying from 200 to 400 mol·m⁻³. At a given TETA concentration, a high increase in the MDEA concentration decreases the CO₂ solubility in the solvent. Indeed, an increase in the amine concentration decreases the solubility. However, at a

♦ Paper presented at the fifth edition of: “Colloque Franco-Roumain de Chimie Appliquée – COFrRoCA 2008”, 25 – 29 June 2008, Bacău, Romania.

given MDEA concentration, an increase in the TETA concentration leads to a greater CO₂ solubility. Affinity with CO₂ is dominating compared to the reduction in solubility due to the increase in the TETA concentration. The presence of the TETA increases the CO₂ solubility, particularly at low CO₂ loading. But, at very low CO₂ loadings, experimental uncertainties lead to lower CO₂ solubility in the solvents than that obtained for MDEA aqueous solutions, whereas the presence of a very reactive amine with CO₂ such as TETA should largely increase the solubility of this gas.

Keywords: CO₂ solubility, *N*-methyldiethanolamine (MDEA), triethylene tetramine (TETA)

INTRODUCTION

Le captage du CO₂ en post-combustion est une option envisageable à court terme. Un procédé de captage post-combustion peut être mis en application sur des centrales existantes sans modifications majeures du système de production électrique. Le lavage de gaz par un solvant chimique ou physique est utilisé depuis de nombreuses années pour la production d'ammoniaque et la purification du gaz naturel. Cependant, les solvants chimiques permettent, quant à eux, une bonne séparation du CO₂ même à faible pression partielle.

Avec l'utilisation d'un solvant chimique, il y a deux caractéristiques principales à prendre en compte :

- La cinétique de la réaction d'absorption du CO₂ : la vitesse d'absorption du CO₂ influera sur le dimensionnement de la colonne d'absorption et donc sur le coût d'investissement du procédé de captage.
- La solubilité du CO₂ dans le solvant : une amine réactive avec le CO₂ permettra d'avoir une très bonne solubilité du CO₂ mais sera plus difficilement régénérable. Choisir une amine plus facilement régénérable est tentant mais cela se fait au détriment de la vitesse de réaction et de la solubilité du CO₂. La taille de l'installation sera donc plus importante et donc plus coûteuse.

La connaissance de la solubilité du CO₂ dans les solvants est nécessaire pour le dimensionnement des colonnes ainsi que pour déterminer la chaleur de régénération du solvant. De nombreuses mesures ont été effectuées pour les amines les plus connues telles que la monoéthanolamine (MEA), la *N*-méthyldiéthanolamine (MDEA) et la pipérazine (PZ). Le Tableau 1 regroupe différentes mesures de solubilité du CO₂ dans de solutions aqueuses d'amine.

Une meilleure solubilité permet, d'une part, d'augmenter le taux de récupération maximal du CO₂ dans les fumées et, d'autre part, de diminuer le débit de solvant en augmentant la capacité d'absorption. Mais, en contrepartie, la chaleur à fournir pour régénérer l'amine est plus importante. Il faut donc trouver un compromis entre taux de captage, taille des installations et consommation énergétique.

Tableau 1. Etudes sur la solubilité du CO₂ dans des solvants aqueux à base d'amines

Auteurs	Amines	Température	Pression
Austgen et Rochelle [1]	MDEA/MEA MDEA/DEA	313 – 353 K	Jusqu'à 0,26 MPa
Jou et al. [2]	MDEA/MEA	298 – 393 K	0,1 – 20 MPa
Jou et al. [3]	MEA	273 – 423 K	Jusqu'à 20 MPa
Xu et al. [4]	MDEA/PZ	313 – 373 K	0,876 – 1013 kPa

Nous avons choisi d'étudier la solubilité du CO₂ dans une solution aqueuse basée sur un mélange d'amines : la MDEA qui est une amine tertiaire peu réactive avec le CO₂ mais ayant une faible chaleur de réaction avec le CO₂ et la triéthylène tétramine (TETA) qui est très réactive avec le CO₂ mais qui est plus difficilement régénérable. L'idée est donc d'activer la MDEA par la TETA afin de cumuler les avantages des deux amines et obtenir un solvant suffisant réactif avec le CO₂ et limitant la consommation énergétique lors de la régénération du solvant.

APPAREILLAGE ET PROTOCOLE EXPERIMENTAL

Un nouvel appareillage (Figure 1) a été développé pour mesurer le flux d'absorption du CO₂ dans des solvants. Il a aussi été utilisé pour les mesures de solubilité.

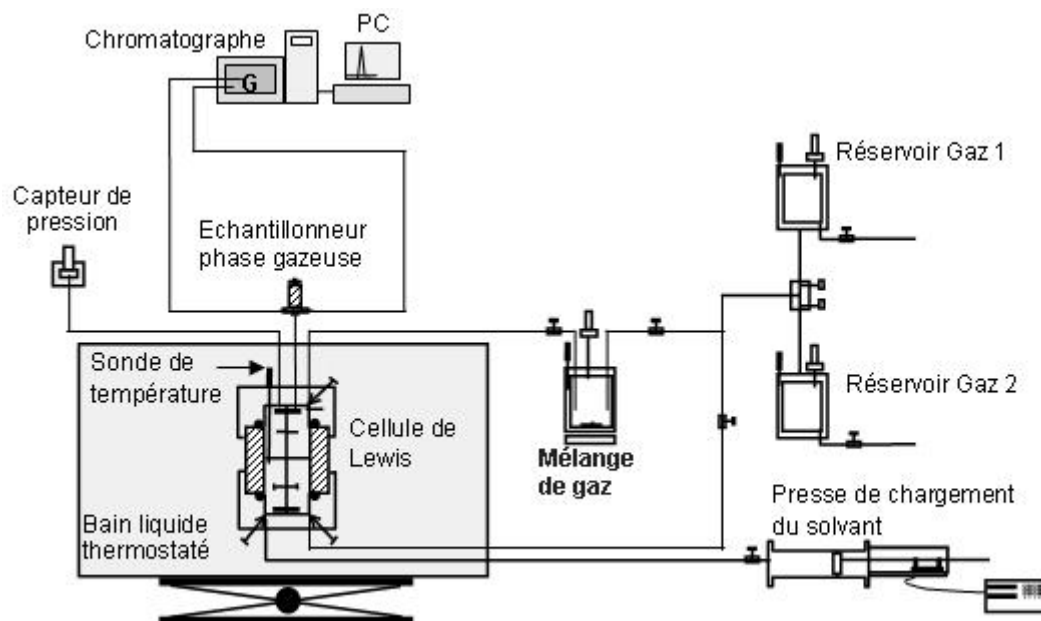


Figure 1. Schéma de principe de l'appareillage pour les mesures de solubilité du CO₂ dans les solutions aqueuses de MDEA-TETA

La cellule est un réacteur fermé du type cellule de Lewis de diamètre $6,00 \cdot 10^{-2}$ m. Elle est composée de trois éléments : une bride supérieure métallique, un tube en quartz dimensionné pour une pression maximale de 1,0 MPa et une bride inférieure métallique. La cellule est entièrement immergée dans un bain liquide d'eau ou d'huile synthétique

pour assurer une bonne régulation de la température. La température maximale est de 403 K. L'introduction du solvant se fait dans la cellule sous vide par une vanne à pointeau non tournant située sur la bride inférieure. Une presse en acier inoxydable est montée sur un support équipé d'une règle optoélectronique (capteur de déplacement) reliée à une électronique de visualisation. Le déplacement du piston lors du chargement permet de contrôler précisément le volume de solvant introduit dans la cellule. L'introduction du CO₂ est effectuée au moyen d'un réservoir régulé en température et instrumenté (capteurs de pression et température). Le volume du réservoir et du circuit jusqu'à la vanne d'entrée de la cellule étant connu, la connaissance de la pression et de la température du réservoir de gaz avant et après chargement suffit à déterminer la quantité de gaz introduite dans la cellule. Une sonde de platine 100 ohms permet de mesurer la température au sein du liquide. Des mobiles d'agitation assurent l'homogénéisation des phases liquide et gazeuse. Ils sont entraînés magnétiquement pour limiter les problèmes d'étanchéité et de dégagement de chaleur. Un capteur de pression 1,0 MPa mesure la pression dans la cellule. Ce capteur est régulé en température pour éviter les phénomènes de condensation. L'ensemble des capteurs de pression et de température est relié à une centrale d'acquisition Agilent 34970 munie d'une carte d'acquisition 20 voies. Le volume de la cellule de 303,4 ± 0,2 cm³.

Les données d'équilibre sont obtenues par ajouts successifs de CO₂, permettant d'augmenter graduellement le taux de charge en CO₂ ($\alpha(\text{CO}_2)$). Il faut attendre l'équilibre thermodynamique du système pour relever la pression partielle du CO₂ à l'équilibre. Elle est alors calculée en retranchant la tension de vapeur du solvant avant injection de CO₂ (P_{solv}) à la pression dans la cellule à l'équilibre ($P_{T,\text{eq}}$).

$$P_{\text{CO}_2,\text{eq}} = P_{T,\text{eq}} - P_{\text{solv}} \quad (1)$$

Le taux de charge en CO₂ est déterminé directement par un bilan de matière sur la quantité de CO₂ injectée dans la cellule.

RESULTATS ET DISCUSSIONS

Les différentes mesures de solubilité ont été effectuées entre 298 et 393 K dans des solutions aqueuses de MDEA activée par de la TETA. Pour chaque amine, deux valeurs de concentration ont été sélectionnées. Pour la MDEA, qui est l'élément de base du solvant, la concentration est approximativement de 1500 et 3400 mol·m⁻³. Pour la TETA, elle se situe aux alentours de 200 et 400 mol·m⁻³ (Tableau 2).

La Figure 2 représente les résultats obtenus pour un solvant contenant approximativement 3400 mol·m⁻³ MDEA et 200 mol·m⁻³ TETA. Cependant les données de solubilité manquent de fiabilité notamment aux faibles pressions partielles. L'incertitude vient d'une part de la précision du capteur de pression et d'autre part des conditions d'équilibre. En effet, de légères variations de température peuvent générer des variations de pression de quelques centaines de Pascal. Cela est dû au fait que la cellule est plongée dans un bain de régulation thermique de grande capacité (30 litres) où le profil de température à l'intérieur du bain, et donc autour de la cellule, dépend du régulateur thermique. Les barres d'erreur sur le graphique représentent une incertitude ± 200 Pa pour montrer la précision des mesures à 313 K. L'incertitude sur la solubilité du CO₂ aux faibles taux de charge peut être assez importante, notamment aux plus

faibles températures. Pour les températures les plus hautes, la pression partielle du CO_2 à l'équilibre augmente beaucoup plus rapidement avec le taux de charge en CO_2 , limitant l'influence de cette incertitude.

Tableau 2. Composition des différents solvants étudiés

Tableau 2: Composition des différents solvants étudiés				
	Composition 1		Composition 2	
T /K ^a	C _{MDEA} (mol.m ⁻³)	C _{TETA} (mol.m ⁻³)	C _{MDEA} (mol.m ⁻³)	C _{TETA} (mol.m ⁻³)
298	1474,7	217,5	1502,2	413,2
313	1466,6	216,3	1488,9	409,5
333	1474,0	225,9	1474,2	405,5
363	1445,1	221,5	1449,9	398,8
373	1424,3	212,0	1435,1	394,9
393	1397,9	208,0	1408,1	387,5
	Composition 3		Composition 4	
T /K ^a	C _{MDEA} (mol.m ⁻³)	C _{TETA} (mol.m ⁻³)	C _{MDEA} (mol.m ⁻³)	C _{TETA} (mol.m ⁻³)
298	3470,3	212,4	3474,5	425,3
313	3443,1	210,7	3447,4	422,0
333	3402,2	208,7	3402,9	416,4
363	3333,2	203,0	3328,2	407,3
373	3298,6	201,5	3297,5	403,6
393	3236,8	197,9		

^a Les températures sont données à titre indicatif, la température expérimentale pouvant être légèrement différente de la température recherchée.

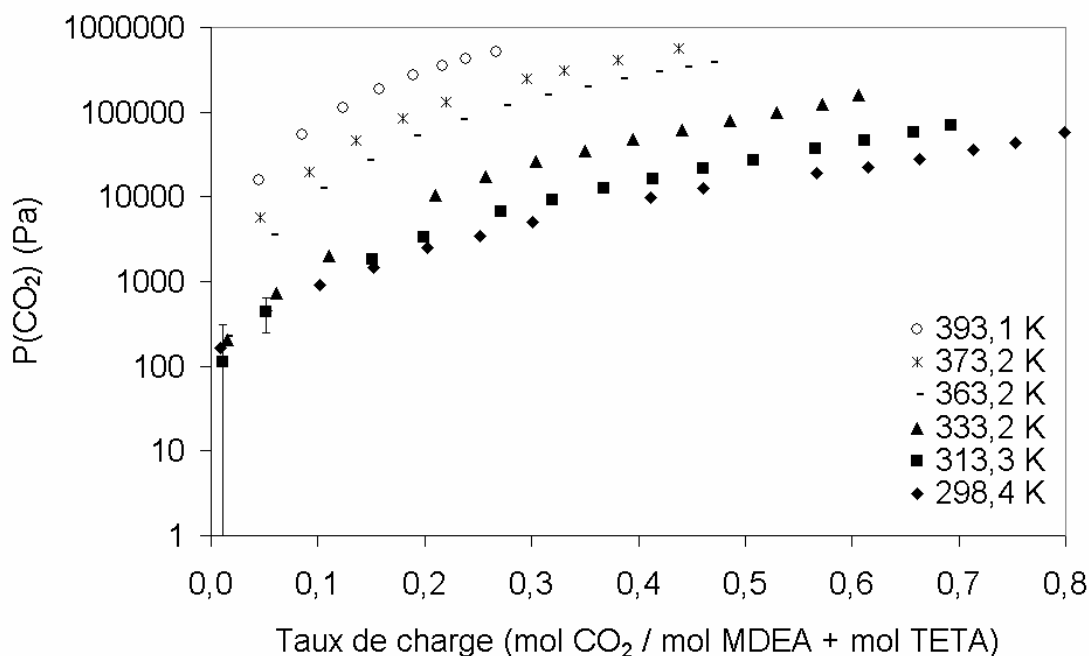


Figure 2. Solubilité du CO_2 – 3400 mol.m⁻³ MDEA + 200 mol.m⁻³ TETA

Les tableaux 3 à 6 rapportent la solubilité du CO_2 pour les différentes compositions du solvant et pour des températures variant entre 298 K et 393 K.

Comme attendu, la solubilité du CO₂ augmente avec la pression partielle en CO₂ et diminue avec la température. Pour une concentration en MDEA donnée, une augmentation de la concentration en TETA amène à une plus grande solubilité du CO₂ et ceci pour chaque température (Figure 3). C'est un résultat attendu car la TETA est une amine plus réactive avec le CO₂ que la MDEA. Ceci permet d'atteindre un taux de séparation plus important. Pour une pression partielle en CO₂ de 10000 Pa, la composition 2 permet d'atteindre un taux de charge de 0,65 mol CO₂ / mol amines à 313 K, suivi par la composition 1 avec un taux de charge de 0,51 mol CO₂ / mol amines. Avec la composition 4, le taux de charge se limite à 0,42 mol CO₂ / mol amines. Et la composition 3, dans laquelle le CO₂ est le moins soluble, affiche une valeur de 0,34 mol CO₂ / mol amines.

Tableau 3. Résultats des mesures d'équilibre – composition 1

298,9 K		313,4 K		335,3 K		364,5 K		373,4 K		393,4 K	
$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}} / \text{Pa}$	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}} / \text{Pa}$	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}} / \text{Pa}$	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}} / \text{Pa}$	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}} / \text{Pa}$	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}} / \text{Pa}$
0,038	243	0,026	379	0,011	232	0,075	1522	0,099	3717	0,093	10049
0,095	519	0,087	1262	0,063	987	0,152	6067	0,196	15790	0,178	41186
0,150	937	0,166	1889	0,154	2414	0,229	15610	0,292	43309	0,260	97992
0,200	1383	0,218	2332	0,231	5798	0,327	34522	0,545	236681	0,334	179390
0,264	2064	0,247	2664	0,316	10823	0,400	62153	0,616	330863	0,404	282265
0,297	2791	0,286	3240	0,394	17986	0,552	170188	0,674	437448	0,454	378297
0,334	3487	0,321	3767	0,474	29898	0,621	243617	0,716	526264	0,491	457915
0,392	4635	0,355	4622			0,678	327104				
0,426	5154	0,387	5490			0,754	389877				
0,469	5969	0,420	6351			0,770	487715				
0,516	6899	0,462	7922			0,792	536730				
0,603	9037	0,506	9887								
0,660	11128	0,551	12454								
0,763	16879										

Par contre, pour une concentration en TETA donnée, une augmentation de la concentration de MDEA diminue la solubilité du CO₂ dans le solvant. Là aussi, c'est un résultat attendu car il est connu qu'une augmentation de la concentration en amine diminue la solubilité [5]. Dans le cas de la TETA, l'augmentation de la concentration était trop faible pour que cet effet se fasse sentir. L'affinité avec le CO₂ est prépondérante par rapport à la diminution de solubilité.

Les résultats expérimentaux pour les compositions 2 et 4 ont été comparés à des données de la littérature sur des systèmes H₂O-MEA-CO₂, H₂O-MDEA-CO₂ et H₂O-MDEA-MEA-CO₂ [1, 3, 6]. Sur la Figure 4 sont représentées les différentes données à 313 K. Les lignes pointillées ne correspondent pas à des modélisations, elles ne sont là que pour faciliter la lecture des graphiques. Pour des taux de charge inférieurs à 0,6 mol CO₂ / mol amines, la solubilité du CO₂ est plus importante dans une solution aqueuse de MEA que dans une solution aqueuse de MDEA. Au-delà de cette valeur, toute la MEA présente a été consommée par la réaction avec le CO₂. Le carbamate formé se convertit alors en bicarbonate, lui-même à l'équilibre avec le CO₂. La pression partielle en CO₂

croît alors très rapidement [2]. Avec la MDEA, il faut une mole d'amine pour une mole de CO₂, ce qui explique l'augmentation moins brutale de la pression partielle en CO₂ pour les forts taux de charge. La solubilité du CO₂ dans les solvants utilisant la composition 2 et 4 se situe entre les deux. La présence de la TETA augmente la solubilité du CO₂, notamment à faible taux de charge.

Tableau 4. Résultats des mesures d'équilibre – composition 2

313,4 K		333,3 K		298,9 K		363,1 K		373,7 K		393,7 K	
$\alpha(\text{CO}_2)$	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa
0,016	0,006	47	56	0,014	138	0,019	130	0,043	487	0,053	1497
0,100	0,105	335	667	0,090	457	0,093	1030	0,212	8531	0,139	12117
0,198	0,205	831	1037	0,180	950	0,175	3099	0,298	21230	0,220	34345
0,295	0,315	1718	1741	0,270	1687	0,261	8686	0,380	42941	0,298	74480
0,393	0,414	2529	2786	0,362	3618	0,347	19442	0,528	123383	0,371	134703
0,491	0,621	3231	8571	0,452	7687	0,431	40450	0,598	198513	0,432	208230
0,588	0,714	4440	15246	0,544	15641	0,507	74594	0,663	281739	0,484	286157
0,686	0,805	6492	26664	0,634	28838	0,583	122512			0,525	362636
0,783	0,901	10756	50975	0,720	49488	0,652	183504			0,575	459810
0,878	0,992	18523	98998	0,804	83228						
0,970		35288									
0,527		5187									

Tableau 5. Résultats des mesures d'équilibre – composition 3

298,5 K		313,3 K		333,2 K		363,3 K		373,2 K		393,1 K	
$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa
0,009	163	0,010	111	0,015	205	0,014	225	0,046	5703	0,045	15562
0,052	458	0,051	445	0,061	733	0,057	3598	0,092	19968	0,085	53839
0,101	905	0,149	1847	0,110	2033	0,102	12435	0,136	45844	0,124	113158
0,151	1446	0,197	3383	0,211	10500	0,147	27196	0,179	84033	0,157	185033
0,202	2511	0,269	6785	0,257	17272	0,191	52524	0,220	131549	0,190	271596
0,251	3472	0,317	9084	0,304	25816	0,234	81313	0,296	245898	0,217	347522
0,300	4995	0,363	12619	0,350	35274	0,275	118273	0,331	311035	0,238	418434
0,411	9913	0,409	16214	0,395	47682	0,313	157657	0,380	414649	0,267	521696
0,459	12729	0,456	21357	0,441	61186	0,350	199104	0,438	562065		
0,565	19048	0,503	27181	0,485	78616	0,384	247788				
0,614	22510	0,560	36981	0,530	97981	0,417	295763				
0,662	27689	0,606	46100	0,572	123265	0,444	340746				
0,712	36028	0,657	58041	0,607	160019	0,469	388289				
0,751	43666	0,693	70745								
0,797	57799										

Tableau 6. Résultats des mesures d'équilibre – composition 4

313,3 K		333,1 K		298,3 K		363,0 K		373,2 K		298,3 K	
$\alpha(\text{CO}_2)$	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa	$\alpha(\text{CO}_2)$	$P_{\text{CO}_2,\text{eq}}$ /Pa
0,015	0,016	19	54	0,395	8803	0,013	97	0,107	5289	0,036	2331
0,063	0,064	182	212	0,443	12398	0,058	390	0,151	12566	0,080	6406
0,111	0,110	305	547	0,490	17481	0,105	973	0,197	24953	0,124	15601
0,207	0,121	872	640	0,539	22967	0,150	2300	0,284	73294	0,285	131103
0,295	0,133	1709	703	0,585	31200	0,241	8312	0,365	148469	0,357	238332
0,387	0,145	3560	801	0,632	39909	0,409	34890	0,402	191133	0,420	363946
0,483	0,158	6770	889	0,721	67131	0,495	63481	0,470	290935	0,466	480349
0,577	0,205	11672	1473			0,575	99234	0,529	407706		
0,670	0,253	21077	2556								
0,761	0,300	38477	4169								
0,837	0,347	61477	6013								

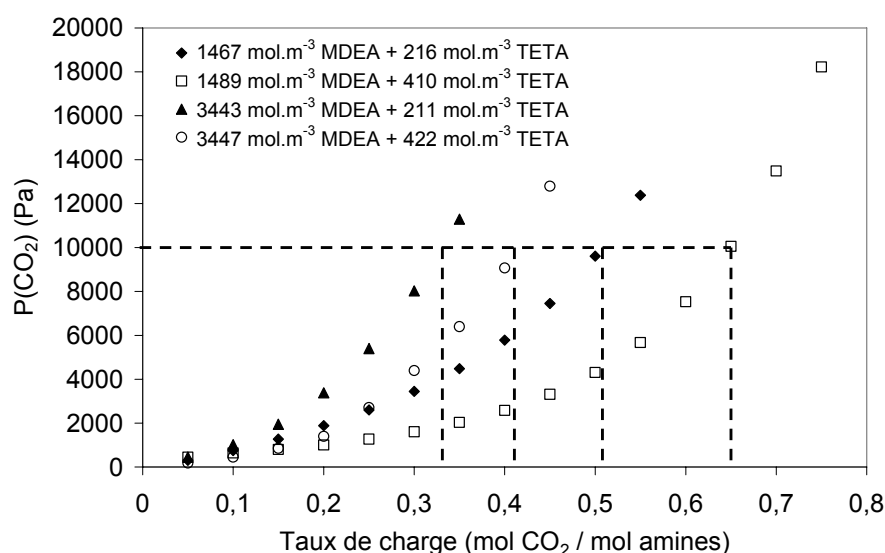


Figure 3. Capacité d'absorption des solvants à 313 K

Plus la concentration en TETA est grande plus la solubilité du CO_2 est importante. A très faible taux de charge, les points expérimentaux montrent que la solubilité du CO_2 dans les solvants étudiés est inférieure à celle obtenue pour une solution aqueuse de MDEA, alors que la présence d'une amine très réactive avec le CO_2 comme la TETA devrait largement augmenter la solubilité de ce composé gazeux. Cette erreur est due à l'incertitude expérimentale sur la pression partielle du CO_2 à l'équilibre. A titre d'exemple, la solubilité du CO_2 dans une solution aqueuse contenant 2000 mol.m^{-3} de MDEA et 2000 mol.m^{-3} de MEA a été ajoutée sur la Figure 4. On s'aperçoit immédiatement que la présence de MEA permet d'augmenter de manière significative la solubilité du CO_2 à faible taux de charge.

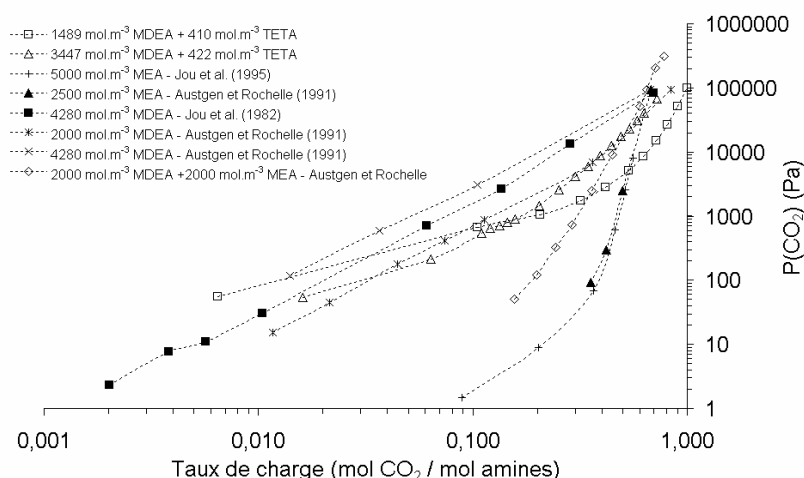


Figure 4. Comparaison des données d'équilibre à 313 K avec la littérature

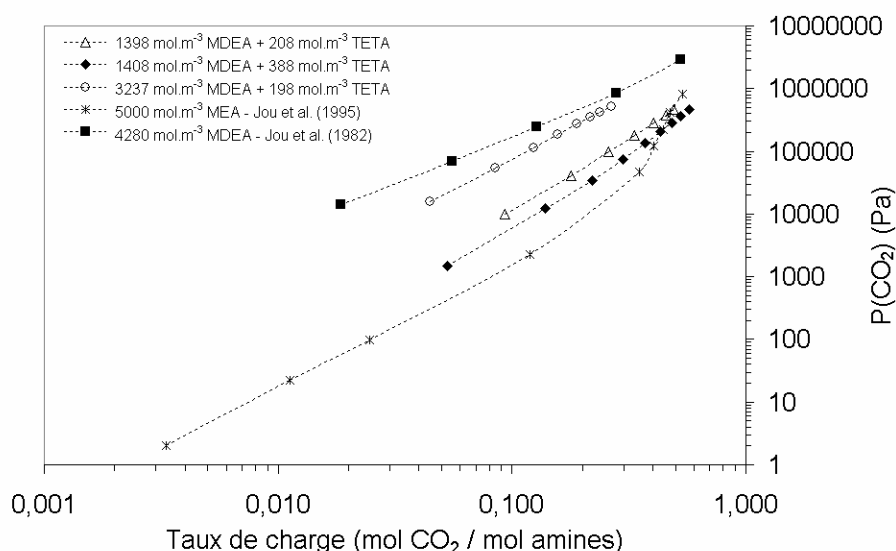


Figure 5. Comparaison des données d'équilibre à 393 K avec la littérature

La Figure 5 représente la solubilité du CO_2 à 393 K pour les solvants utilisant les compositions 1, 2 et 3 ainsi que celles obtenues par Jou et al. [3, 6] pour des solutions aqueuses de MEA et de MDEA. On constate immédiatement que la solubilité du CO_2 dans les solvants étudiés se situe entre celle obtenue pour la solution aqueuse de MDEA et celle mesurée pour la solution aqueuse de MEA. L'énergie nécessaire pour inverser la réaction chimique entre le CO_2 et les agents réactifs se situera donc entre les deux.

CONCLUSIONS

La présence de la TETA augmente la solubilité du CO_2 , notamment à faible taux de charge. Plus la concentration en TETA est grande plus la solubilité du CO_2 est importante. L'ajout de TETA permet donc d'améliorer le taux de récupération du CO_2

tout en accélérant la vitesse d'absorption. A très faible taux de charge, nos résultats montrent que la solubilité du CO₂ dans les solvants étudiés est inférieure à celle obtenue pour une solution aqueuse de MDEA, alors que la présence d'une amine très réactive avec le CO₂ comme la TETA devrait largement augmenter la solubilité de ce composé gazeux. Cela est dû à l'incertitude expérimentale sur la pression partielle du CO₂ à l'équilibre due à la difficulté de mesurer précisément les très faibles variations de pression avec notre appareillage.

REFERENCES

1. Austgen, D.M., Rochelle, G.T.: Model of vapor-liquid equilibria for aqueous acid gas-alkanamine systems. 2. Representation of hydrogen sulfide and carbon dioxide solubility in aqueous MDEA and carbon dioxide solubility in aqueous mixtures of MDEA with MEA or DEA, *Industrial and Engineering Chemistry Research*, **1991**, 30 (3), 543-555;
2. Jou, F.-Y., Otto, F., Mather, A.: Vapor-Liquid Equilibrium of carbon dioxide in aqueous mixtures of monoethanolamine and methyldiethanolamine, *Industrial and Engineering Chemistry Research*, **1994**, 33, 2002-2005;
3. Jou, F.-Y., Mather, A., Otto, F.: The solubility of CO₂ in a 30 mass percent monoethanolamine solution, *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, **1995**, 73, 140-147;
4. Xu, G.-W., Zhang, C.-F., Qin, S.-J., Gao, W.-H., Liu, H.-B.: Gas-liquid equilibrium in a CO₂-MDEA-H₂O system and the effect of piperazine on it, *Industrial and Engineering Chemistry Research*, **1998**, 74, 1473-1477;
5. Kohl, A., Nielsen, R.: *Gas purification*, 5th edition, Gulf Publishing Company, Houston, **1997**;
6. Jou, F.-Y., Mather, A., Otto, F.: Solubility of H₂S and CO₂ in aqueous methyldiethanolamine solutions, *Industrial and Engineering Chemistry Process Design and Development*, **1982**, 21, 539-544.