



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2024년03월11일
(11) 등록번호 10-2645762
(24) 등록일자 2024년03월05일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
B01D 53/32 (2006.01)
(52) CPC특허분류
B01D 53/326 (2013.01)
B01D 2257/504 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2018-7014800
(22) 출원일자(국제) 2016년10월26일
심사청구일자 2021년10월25일
(85) 번역문제출일자 2018년05월25일
(65) 공개번호 10-2018-0084820
(43) 공개일자 2018년07월25일
(86) 국제출원번호 PCT/US2016/058806
(87) 국제공개번호 WO 2017/075014
국제공개일자 2017년05월04일
(30) 우선권주장
62/246,640 2015년10월27일 미국(US)
(56) 선행기술조사문헌
US03540934 A1*
(뒷면에 계속)

(73) 특허권자
메사추세츠 인스티튜트 오브 테크놀로지
미국 02139 메사추세츠 캠퍼리지 메사추세츠 애브
뉴 77
(72) 발명자
보스키안, 사하그
미국 02142 매사추세츠주 캠퍼리지 아파트먼트
2-13 비 메모리얼 드라이브 100
해턴, 트레버, 알랜
미국 01776 매사추세츠주 서드버리 윌라드 그랜트
로드 20
(74) 대리인
양영준, 김영

전체 청구항 수 : 총 51 항

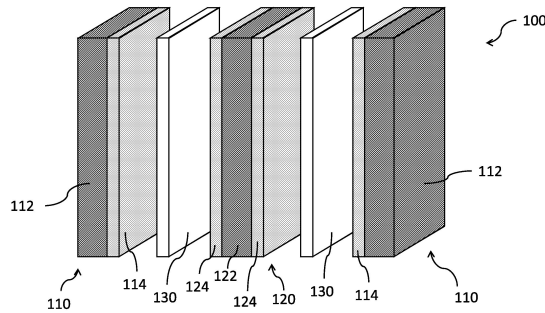
심사관 : 김훈석

(54) 발명의 명칭 전기화학적 기체 분리 방법

(57) 요약

본 개시내용은 일반적으로 전기화학적 방법을 통해 기체 혼합물 (예를 들어, 기체 스트림)로부터 표적 중 (예를 들어, CO₂)을 분리하기 위한 장치, 시스템, 및 방법에 관한 것이다.

대표도



(56) 선행기술조사문헌

KR1019920007383 B1*

KR1020020037262 A*

KR1020130048728 A*

JP2008528285 A

*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

명세서

청구범위

청구항 1

각각 기체 투과성 층 및 주요 전기활성 복합체 층을 포함하는 제1 음극 및 제2 음극으로서, 여기서 주요 전기활성 복합체 층은, 제1 산화 상태일 때에 표적 종과 결합할 수 있고 제2 산화 상태일 때에 표적 종을 방출할 수 있는 제1 전기활성 종을 포함하는 것인, 제1 음극 및 제2 음극;

제1 음극과 제2 음극 사이에 배치되고 제1 음극을 향하는 제1 상보적 전기활성 복합체 층 및 제2 음극을 향하는 제2 상보적 전기활성 복합체 층을 포함하는 양극;

제1 음극과 양극 사이에 배치된 제1 분리막(separator); 및

제2 음극과 양극 사이에 배치된 제2 분리막

을 포함하는 전기화학적 전지.

청구항 2

제1항 있어서, 제1 전기활성 종이 환원된 상태일 때에 표적 종과 결합할 수 있고 산화된 상태일 때에 표적 종을 방출할 수 있는 것인 전기화학적 전지.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, 제1 전기활성 종이 환원된 상태일 때에 이산화탄소 기체와 결합할 수 있고 산화된 상태일 때에 이산화탄소 기체를 방출할 수 있는 것인 전기화학적 전지.

청구항 4

제1항 또는 제2항에 있어서, 제1 전기활성 종이 환원된 상태에서 이산화탄소와의 결합 상수가 10^1 내지 10^3 M^{-1} 인 것인 전기화학적 전지.

청구항 5

제1항 또는 제2항에 있어서, 제1 전기활성 종이 폴리안트라퀴논을 포함하는 것인 전기화학적 전지.

청구항 6

제1항 또는 제2항에 있어서, 상보적 전기활성 복합체 층이, 폴리비닐 페로센을 포함하는 제2 전기활성 종을 포함하는 것인 전기화학적 전지.

청구항 7

제1항 또는 제2항에 있어서, 주요 전기활성 복합체 층이, 제1 전기활성 종과 제1 탄소질 물질의 제1 고정화된 중합체 복합체를 포함하는 것인 전기화학적 전지.

청구항 8

제7항에 있어서, 제1 탄소질 물질이 탄소 나노튜브, 그래핀, 및 카본 블랙으로 이루어진 군으로부터 선택된 것인 전기화학적 전지.

청구항 9

제7항에 있어서, 상보적 전기활성 복합체 층이, 제2 전기활성 종과 제2 탄소질 물질의 제2 고정화된 중합체 복합체를 포함하는 것인 전기화학적 전지.

청구항 10

제9항에 있어서, 제2 탄소질 물질이 탄소 나노튜브, 그래핀, 및 카본 블랙으로 이루어진 군으로부터 선택된 것인 전기화학적 전지.

청구항 11

제1항 또는 제2항에 있어서, 양극이, 제1 상보적 전기활성 복합체 층과 제2 상보적 전기활성 복합체 층 사이에 배치된 기체 층을 추가로 포함하는 것인 전기화학적 전지.

청구항 12

제11항에 있어서, 기체 층이, 탄소지, 탄소천, 및 부직 탄소 매트로 이루어진 군으로부터 선택된 물질을 포함하는 것인 전기화학적 전지.

청구항 13

제1항 또는 제2항에 있어서, 각각의 제1 및 제2 분리막이 셀룰로스 멤브레인, 중합체 물질, 또는 중합체-세라믹 복합체 물질 중 하나를 포함하는 것인 전기화학적 전지.

청구항 14

제1항 또는 제2항에 있어서, 각각의 제1 및 제2 분리막이 실온 이온성 액체로 포화된 것인 전기화학적 전지.

청구항 15

제1항 또는 제2항에 있어서, 실온 이온성 액체가 Bmim BF₄를 포함하는 것인 전기화학적 전지.

청구항 16

제1항 또는 제2항에 있어서, 기체 투과성 층이, 탄소지, 탄소천, 및 부직 탄소 매트로 이루어진 군으로부터 선택된 물질을 포함하는 것인 전기화학적 전지.

청구항 17

제1항 또는 제2항에 있어서, 기체 투과성 층이 70% 내지 90%의 다공도를 갖는 것인 전기화학적 전지.

청구항 18

제1항 또는 제2항에 있어서, 제1 및 제2 음극 및 양극을, 상기 제1 및 제2 음극 및 양극에 걸쳐 전위차를 인가하도록 구성된 전원에 접속시키는 외부 회로를 추가로 포함하는 전기화학적 전지.

청구항 19

기체 입구 및 기체 출구와 유체 소통하는 복수의 전기화학적 전지를 포함하는 기체 분리 시스템이며,

여기서 각각의 복수의 전기화학적 전지는,

각각 제1 전기활성 종을 포함하는 제1 다공성 음극 및 제2 다공성 음극으로서, 여기서 제1 전기활성 종은 제1 산화 상태일 때에 표적 종과 결합할 수 있고 제2 산화 상태일 때에 표적 종을 방출할 수 있는 것인, 제1 다공성 음극 및 제2 다공성 음극;

제2 전기활성 종을 포함하는 양극;

제1 다공성 음극과 양극 사이에 배치된 제1 분리막; 및

제2 다공성 음극과 양극 사이에 배치된 제2 분리막

을 포함하는 것인 기체 분리 시스템.

청구항 20

제19항에 있어서, 제1 전기활성 종이 환원된 상태일 때에 표적 종과 결합할 수 있고 산화된 상태일 때에 표적 종을 방출할 수 있는 것인 기체 분리 시스템.

청구항 21

제19항 또는 제20항에 있어서, 제1 전기활성 종이 제1 중합체 복합체에 고정화된 것인 기체 분리 시스템.

청구항 22

제21항에 있어서, 제2 전기활성 종이 제2 중합체 복합체에 고정화된 것인 기체 분리 시스템.

청구항 23

제19항 또는 제20항에 있어서, 제1 전기활성 종이 폴리안트라퀴논을 포함하는 것인 기체 분리 시스템.

청구항 24

제23항에 있어서, 제2 전기활성 종이 폴리비닐 페로센을 포함하는 것인 기체 분리 시스템.

청구항 25

제19항 또는 제20항에 있어서, 각각의 제1 및 제2 분리막이 실온 이온성 액체로 포화된 것인 기체 분리 시스템.

청구항 26

제25항에 있어서, 실온 이온성 액체가 Bmim BF₄를 포함하는 것인 기체 분리 시스템.

청구항 27

제19항 또는 제20항에 있어서, 각각의 제1 및 제2 다공성 음극이 70% 내지 90%의 다공도를 갖는 것인 기체 분리 시스템.

청구항 28

제19항 또는 제20항에 있어서, 각각의 전기화학적 전지의 제1 및 제2 다공성 음극 및 양극을, 상기 각각의 전기화학적 전지의 제1 및 제2 음극 및 양극에 걸쳐 전위차를 인가하도록 구성된 전원에 접속시키는 외부 회로를 추가로 포함하는 기체 분리 시스템.

청구항 29

전기화학적 전지에 걸쳐 제1 전위차를 인가하는 단계로서,

여기서 전기화학적 전지는,

제1 전기활성 종을 포함하는 적어도 하나의 다공성 음극;

제2 전기활성 종을 포함하는 양극; 및

적어도 하나의 다공성 음극과 양극 사이에 배치된 분리막을 포함하는 것이고, 여기서 제1 전위차를 인가하는 것은 환원 또는 산화 반응을 발생시켜 제1 전기활성 종의 적어도 일부가 활성화된 상태에 있도록 하는 것인 단계; 및

표적 종을 포함하는 기체 스트림을 전기화학적 전지에 도입하여 표적 종을 활성화된 상태에 있는 제1 전기활성 종에 결합시켜서, 처리된 기체 스트림을 생성시키는 단계

를 포함하는, 기체 스트림을 처리하는 방법.

청구항 30

제29항에 있어서, 활성화된 상태가 환원된 상태인 것인 방법.

청구항 31

제29항 또는 제30항에 있어서, 표적 종이 CO₂를 포함하는 것인 방법.

청구항 32

제29항 또는 제30항에 있어서, 제1 전위차가 0.5 V 내지 2.0 V인 방법.

청구항 33

제29항 또는 제30항에 있어서, 전기화학적 전지에 걸쳐 제2 전위차를 인가하여 표적 종을 제1 전기활성 종으로부터 방출시켜서, 표적 종-농후 기체 스트림을 생성시키는 것을 추가로 포함하는 방법.

청구항 34

제33항에 있어서, 제2 전위차가 -0.5 V 내지 -2.0 V인 방법.

청구항 35

제29항 또는 제30항에 있어서, 제1 전기활성 종이 폴리안트라퀴논을 포함하는 것인 방법.

청구항 36

제29항 또는 제30항에 있어서, 제2 전기활성 종이 폴리비닐 페로센을 포함하는 것인 방법.

청구항 37

제29항 또는 제30항에 있어서, 분리막이 전도성 액체로 포화된 것인 방법.

청구항 38

제37항에 있어서, 전도성 액체가 실온 이온성 액체를 포함하는 것인 방법.

청구항 39

제38항에 있어서, 실온 이온성 액체가 Bmim BF₄를 포함하는 것인 방법.

청구항 40

전기화학적 전지의 제1 세트 및 전기화학적 전지의 제2 세트를 포함하는 기체 분리 시스템을 작동시키는 방법이며,

상기 방법은,

표적 종을 포함하는 기체 스트림을 기체 분리 시스템에 도입하고;

전기화학적 전지의 제1 세트를 충전 모드에서 작동시켜 환원 또는 산화 반응을 발생시켜 전기화학적 전지의 제1 세트의 제1 전기활성 종의 적어도 일부가 활성화된 상태에 있도록 하고, 표적 종을 활성화된 상태에 있는 전기화학적 전지의 제1 세트의 제1 전기활성 종에 결합시켜서, 처리된 기체 스트림을 생성시키고;

이와 동시에 전기화학적 전지의 제2 세트를 방전 모드에서 작동시켜 환원 또는 산화 반응을 발생시켜 전기화학적 전지의 제2 세트의 제1 전기활성 종의 적어도 일부가 불활성화된 상태에 있도록 하고, 표적 종을 불활성화된 상태에 있는 전기화학적 전지의 제2 세트의 제1 전기활성 종으로부터 방출시켜서, 표적 종-농후 기체 스트림을 생성시키는 것

을 포함하고,

여기서 전기화학적 전지의 제1 및 제2 세트의 각각의 전기화학적 전지는,

제1 전기활성 종을 포함하는 적어도 하나의 다공성 음극;

제2 전기활성 종을 포함하는 양극; 및

적어도 하나의 다공성 음극과 양극 사이에 배치된 분리막

을 포함하는 것인,

전기화학적 전지의 제1 세트 및 전기화학적 전지의 제2 세트를 포함하는 기체 분리 시스템을 작동시키는 방법.

청구항 41

제40항에 있어서, 활성화된 상태가 환원된 상태이고, 불활성화된 상태가 산화된 상태인 것인 방법.

청구항 42

제40항 또는 제41항에 있어서, 표적 종이 CO₂를 포함하는 것인 방법.

청구항 43

제40항 또는 제41항에 있어서, 전기화학적 전지의 제1 세트를 충전 모드에서 작동시키는 것이, 제1 세트의 각각의 전기화학적 전지에 걸쳐 0.0 V 내지 2.0 V의 제1 전위차를 인가하는 것을 포함하는 것인 방법.

청구항 44

제43항에 있어서, 전기화학적 전지의 제2 세트를 방전 모드에서 작동시키는 것이, 제2 세트의 각각의 전기화학적 전지에 걸쳐 0.0 V 내지 -2.0 V의 제2 전위차를 인가하는 것을 포함하는 것인 방법.

청구항 45

제44항에 있어서, 제1 전위차를 역전시켜 전기화학적 전지의 제1 세트를 방전 모드에서 작동시키는 것을 추가로 포함하는 방법.

청구항 46

제45항에 있어서, 제2 전위차를 역전시켜 전기화학적 전지의 제2 세트를 충전 모드에서 작동시키는 것을 추가로 포함하는 방법.

청구항 47

제40항 또는 제41항에 있어서, 제1 전기활성 종이 폴리안트라퀴논을 포함하는 것인 방법.

청구항 48

제40항 또는 제41항에 있어서, 제2 전기활성 종이 폴리비닐 페로센을 포함하는 것인 방법.

청구항 49

제40항 또는 제41항에 있어서, 분리막이 전도성 액체로 포화된 것인 방법.

청구항 50

제49항에 있어서, 전도성 액체가 실온 이온성 액체를 포함하는 것인 방법.

청구항 51

제50항에 있어서, 실온 이온성 액체가 Bmim BF₄를 포함하는 것인 방법.

발명의 설명

기술 분야

[0001] <관련 출원>

[0002] 본 출원은 2015년 10월 27일에 출원된, "ELECTROCHEMICAL SWING PSEUDOCAPACITIVE PROCESS FOR GAS SEPARATION"을 발명의 명칭으로 하는 미국 가출원 제62/246,640호에 대해 우선권을 주장하며, 이는 그 전문이 모든 목적을 위해 본원에 참조로 포함된다.

[0003] 본 발명은 일반적으로 전기화학적 방법을 통해 기체 스트림으로부터 표적 종을 분리하기 위한 장치, 시스템, 및 방법에 관한 것이다.

배경 기술

[0004] 기체 혼합물로부터 표적 종을 제거하려는 노력이 이루어져 왔다. 예를 들어, 지난 20년에 걸쳐 인위적 이산화

탄소 (CO₂) 배출을 억제함으로써 지구 온난화를 줄이려는 꾸준한 노력이 이루어져 왔다. 탄소 포집 및 저장 (CCS)은 이를 위해 지금까지 제안된 가장 많이 연구된 해결책 중 하나이며, 이산화탄소를 그의 다양한 생성 단계에서 다루기 위한 다수의 접근법: 발전소에서 연소 후 포집하거나, 또는 이를 대기로부터 농축시키고, 그 후에 이를 가압하고 지질학적 형태로 저장하거나, 또는 이를 상업적으로 유용한 화학적 화합물로 전환시키는 것이 추구되어 왔다. 따라서, 다양한 성공도를 갖는 다수의 탄소 포집 방법이 고안되어 왔다. 그러나, 현재의 방법/시스템은 높은 에너지 요구량 및 폐기물을 비롯한 많은 단점을 갖는다. 더욱이, 이산화탄소를 포집하기 위한 종래의 열적 방법은 규제 기관에 의해 규정된 점점 더 엄격해지는 효율 및 용량 기준을 충족시키지 못한다. 따라서, 개선된 장치, 방법, 및/또는 시스템이 필요하다.

발명의 내용

- [0005] 본 개시내용은 일반적으로 전기화학적 방법을 통해 기체 혼합물 (예를 들어, 기체 스트림)로부터 표적 종 (예를 들어, CO₂)을 분리하기 위한 장치, 시스템, 및 방법에 관한 것이다.
- [0006] 일부 실시양태에서, 전기화학적 전지가 제공된다. 전기화학적 전지는 각각 기체 투과성 층 및 주요 전기활성 복합체 층을 포함하는 제1 음극 및 제2 음극; 제1 음극과 제2 음극 사이에 배치되고 제1 음극을 향하는 제1 상보적 전기활성 복합체 층 및 제2 음극을 향하는 제2 상보적 전기활성 복합체 층을 포함하는 양극; 제1 음극과 양극 사이에 배치된 제1 분리막(separator); 및 제2 음극과 양극 사이에 배치된 제2 분리막을 포함할 수 있고, 여기서 각각의 제1 및 제2 분리막은 이온성 액체로 포화될 수 있다.
- [0007] 일부 실시양태에서, 기체 분리 시스템이 제공된다. 기체 분리 시스템은 기체 입구 및 기체 출구와 유체 소통하는 복수의 전기화학적 전지를 포함할 수 있다. 각각의 복수의 전기화학적 전지는 각각 제1 전기활성 종을 포함하는 제1 다공성 음극 및 제2 다공성 음극; 제2 전기활성 종을 포함하는 양극; 제1 다공성 음극과 양극 사이에 배치된 제1 분리막; 및 제2 다공성 음극과 양극 사이에 배치된 제2 분리막을 포함하고, 여기서 각각의 제1 및 제2 분리막은 이온성 액체로 포화될 수 있다.
- [0008] 일부 실시양태에서 기체 스트림을 처리하는 방법이 제공된다. 상기 방법은 전기화학적 전지에 걸쳐 제1 전위차를 인가하는 것을 포함할 수 있다. 전기화학적 전지는 제1 전기활성 종을 포함하는 적어도 하나의 다공성 음극; 제2 전기활성 종을 포함하는 양극; 및 전도성 액체로 포화되고 적어도 하나의 다공성 음극과 양극 사이에 배치된 분리막을 포함할 수 있다. 상기 방법은 표적 종을 포함하는 기체 스트림을 전기화학적 전지에 도입하여 표적 종을 제1 전기활성 종에 결합시켜서, 처리된 기체 스트림을 생성시키는 것을 추가로 포함할 수 있다.
- [0009] 일부 실시양태에서, 기체 분리 시스템을 작동시키는 방법이 제공된다. 기체 분리 시스템은 전기화학적 전지의 제1 세트 및 전기화학적 전지의 제2 세트를 포함할 수 있다. 상기 방법은 표적 종을 포함하는 기체 스트림을 기체 분리 시스템에 도입하는 것을 포함할 수 있다. 그것은 전기화학적 전지의 제1 세트를 충전 모드에서 작동시켜 표적 종을 전기화학적 전지의 제1 세트의 제1 전기활성 종에 결합시켜서, 처리된 기체 스트림을 생성시키는 것을 추가로 포함할 수 있다. 그것은 이와 동시에 전기화학적 전지의 제2 세트를 방전 모드에서 작동시켜 표적 종을 전기화학적 전지의 제2 세트의 제1 전기활성 종으로부터 방출시켜서, 표적 종-농후 기체 스트림을 생성시키는 것을 추가로 포함할 수 있다. 전기화학적 전지의 제1 및 제2 세트의 각각의 전기화학적 전지는, 제1 전기활성 종을 포함하는 적어도 하나의 다공성 음극; 제2 전기활성 종을 포함하는 양극; 및 이온성 액체로 포화되고 적어도 하나의 다공성 음극과 양극 사이에 배치된 분리막을 포함할 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0010] 도 1은 하나 이상의 실시양태에 따른, 예시적인 전기화학적 전지의 분해도를 도시한다.
- 도 2a는 하나 이상의 실시양태에 따른, 충전 모드에서 작동하는 예시적인 전기화학적 전지의 분해도를 도시한다.
- 도 2b는 하나 이상의 실시양태에 따른, 방전 모드에서 작동하는 예시적인 전기화학적 전지의 분해도를 도시한다.
- 도 3은 하나 이상의 실시양태에 따른, 예시적인 전기화학적 전지의 개략도를 도시한다.
- 도 4는 하나 이상의 실시양태에 따른, 예시적인 기체 분리 시스템의 개략도를 도시한다.
- 도 5는 하나 이상의 실시양태에 따른, 기체 분리 방법을 수행하는 예시적인 시스템의 개략도를 도시한다.

도 6은 하나 이상의 실시양태에 따른, 예시적인 기체 분리 시스템의 개략도를 도시한다.

도 7a는 하나 이상의 실시양태에 따른, 기체 분리 방법을 수행하는 예시적인 시스템의 개략도를 도시한다.

도 7b는 하나 이상의 실시양태에 따른, 기체 분리 방법을 수행하는 예시적인 시스템의 개략도를 도시한다.

도 8a 내지 8c는 하나 이상의 실시양태에 따른, 기체 분리 방법에 의한 CO₂ 포집 및 방출의 실험 결과의 그래프 표현을 도시한다.

도 9는 하나 이상의 실시양태에 따른, 기체 분리 방법에 의한 CO₂ 포집 및 방출의 실험 결과의 그래프 표현을 도시한다.

도 10은 하나 이상의 실시양태에 따른, 기체 분리 방법에 의한 CO₂ 포집 및 방출의 실험 결과의 그래프 표현을 도시한다.

본 발명의 다른 측면, 실시양태, 및 특징은 첨부된 도면과 연계하여 고려될 때 하기 상세한 설명으로부터 명백해질 것이다. 첨부된 도면은 개략적이며 정확한 축척으로 그려지도록 의도되지 않는다. 분명히 하기 위해, 관련 기술분야의 통상의 기술자가 본 발명을 이해하게 하기 위해 도해가 반드시 필요하지는 않은 경우에, 모든 도면에서 모든 구성요소에 부호가 붙여지지 않고, 본 발명의 각각의 실시양태의 모든 구성요소가 도시되지 않는다. 본원에 참조로 포함된 모든 특허 출원 및 특허는 그 전문이 참조로 포함된다. 상충이 발생하는 경우에, 정의를 포함하는 본 명세서가 우선될 것이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

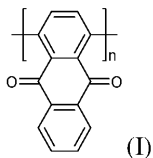
- [0011] 본 개시내용은 일반적으로 전기화학적 방법을 통해 기체 혼합물 (예를 들어, 기체 스트림)로부터 표적 종 (예를 들어, CO₂)을 분리하기 위한 장치, 시스템, 및 방법에 관한 것이다.
- [0012] 일부 실시양태에 따라, 전기화학적 스윙(swing) 방법이 기체 분리를 제공하기 위해 사용된다. 전기화학적 스윙 방법은 하나의 전위에서 하나의 방향으로 추진되고 상이한 전위에서 역방향으로 추진될 수 있는 방법이다. 이는 하나의 전위에서 활성화되고 상이한 전위에서 불활성화될 수 있는 산화-환원 종을 사용하여 수행될 수 있다. 전기화학적 스윙 분리에 있어서, 산화환원-활성 종은 불활성화된 상태에서보다는 활성화된 상태에서 엘레이트(elate) (또는 피흡착질(adsorbate)), 예컨대 표적 종에 대해 더 높은 친화도를 가질 수 있다. 이러한 실시양태에 따라, 에너지가 효율적으로 전달되어, 표적 종 (예를 들어, CO₂)의 포집을 유발하는 전기화학적 반응이 일어난다. 일부 실시양태에서, 적용된 전기화학적 스윙 방법은, 전극에서 반쪽 산화환원 반응이 일어나는 전기화학적 전지에 걸쳐 전위차를 인가함으로써 전기활성 종의 산화 상태를 조정하는 것에 의존한다. 전극에서의 전기분해 종의 산화 상태의 이러한 변화 및 전해질에서의 그의 후속 이동은, 외부 회로에서의 전자의 이동의 원인 또는 결과이다.
- [0013] 일부 실시양태에서, 분리 방법을 수행하기 위해 전기화학적 전지가 제공된다. 전기화학적 전지는, 환원된 형태에서 CO₂ 또는 또 다른 표적 종에 선택적으로 결합하는 전기활성 물질을 포함할 수 있다. 일부 실시양태에서, 전기화학적 전지의 구성요소는 기체에 노출되는 전기활성 표면을 최대화하는 방식으로 배열될 수 있다.
- [0014] 하나 이상의 실시양태에 따라, 전기화학적 전지를 사용하여 기체 혼합물 또는 기체 스트림으로부터 표적 종 (예를 들어, 이산화탄소)을 분리하는 방법이 기술된다. 표적 화학종에 대한 음극의 전기활성 종의 친화도는 그의 산화 상태를 바꿈으로써 변경될 수 있다. 이러한 방식으로, 전기활성 종은 표적 화학종을 포집 및 방출하기 위해 이용될 수 있다. 양극에서, 산화환원 화학종 또는 전기활성 종은, 각각 음극 전기활성 물질의 환원 및 산화를 위한 전자 공급원 및 싱크(sink)로서의 역할을 할 수 있다.
- [0015] 하나 이상의 실시양태에 따라, 이러한 방법에서 사용하기 위한 전기화학적 전지가 일반적으로 기술된다. 일부 실시양태에서, 전기화학적 전지는 음극 및 양극을 포함할 수 있다. 일부 실시양태에서, 전기화학적 전지는 제1 음극 및 제2 음극과 함께, 상기 음극들 사이에 배치된 양극을 포함할 수 있다.
- [0016] 일부 실시양태에 따라, 하나 이상의 음극은 기체 투과성 층 (기체 층이라고도 지칭됨) 및 전기활성 복합체 층 (본원에서 주요 전기활성 복합체 층이라고도 지칭됨)을 포함할 수 있다. 두 개의 음극을 포함하는 전기화학적 전지에 있어서, 각각의 전극의 물질 및 구성요소는 동일하거나 상이할 수 있다.
- [0017] 또한 양극은 제1 음극을 향하는 전기활성 복합체 층 및 제2 음극을 향하는 제2 전기활성 복합체 층을 포함할 수

있다. 양극의 전기활성 복합체 층은 상보적 전기활성 복합체 층이라고도 지칭될 수 있는데, 왜냐하면 그 안의 전기활성 층이 음극의 전기활성 물질에 대한 전자 싱크 또는 전자 공급원으로서의 역할을 하기 때문이다.

[0018] 전기화학적 전지는 각각의 음극과 양극 사이에 배치된 분리막을 추가로 포함할 수 있다. 각각의 제1 및 제2 분리막은 전도성 액체 (예를 들어, 이온성 액체)로 포화될 수 있으므로, 디바이스가 작동되고 있을 때 전도성 액체 (예를 들어, 이온성 액체)는 분리막 내에 존재할 것이다.

[0019] 주요 전기활성 복합체 층은, 환원된 상태일 때에 표적 종 기체 (예를 들어, CO₂)와 결합할 수 있고 산화된 상태일 때에 표적 종 기체를 방출할 수 있는 제1 전기활성 층을 포함한다. 전기활성 층은, 환원된 상태에서 의도된 특정한 용도를 위해 의도된 표적 종에 대해 강한 친화도를 갖도록 선택될 수 있다. 예를 들어, CO₂가 표적 종인 일부 실시양태에서, 선택된 전기활성 층은 이산화탄소와의 결합 상수가 10¹ 내지 10³ M⁻¹일 수 있다. 일부 실시양태에서, 선택된 전기활성 층은 상이한 표적 종과의 결합 상수가 10¹ 내지 10³ M⁻¹일 수 있다. 예를 들어 추후에 논의될 폴리안트라퀴논으로서 중합된 형태의 안트라퀴논이, 사용될 수 있는 전기활성 층이다. 일부 실시양태에서, CO₂의 존재 하에, 안트라퀴논은 단일 단계에서 그의 이음이온으로 환원되고, 이는 이어서 CO₂에 결합하여 착체를 형성한다. 환원 시 CO₂와 공유 결합을 형성하여 카르복실레이트 모이어티를 형성하는 다른 전기활성 층이 또한 사용될 수 있다. 이러한 전기활성 층의 추가의 예는 티올레이트 및 비피리딘을 포함한다.

[0020] 본원에서 사용되는 바와 같은 용어 폴리안트라퀴논은 일반적으로 폴리안트라퀴논의 임의의 이성질체를 지칭한다. 전기활성 층으로서 이용될 수 있는 폴리안트라퀴논의 이성질체의 예는 하기 화학식 (I)에 의해 나타내어진 바와 같은 폴리(1,4-안트라퀴논) (P14AQ)을 포함한다.



[0021] 다른 잠재적인 이성질체는 폴리(1,5-안트라퀴논) (P15AQ), 폴리(1,8-안트라퀴논) (P18AQ), 및 폴리(2,6-안트라퀴논) (P26AQ)을 포함한다. 다른 이성질체가 또한 가능하다.

[0023] 전기활성 층 이외에도, 음극의 전기활성 복합체 층은 또한 탄소질 물질을 포함할 수 있다. 적합한 물질의 예는 탄소 나노튜브 (예를 들어, 단일벽 탄소 나노튜브, 다중벽 탄소 나노튜브), 카본 블랙, 케첸블랙(KetjenBlack), 카본 블랙 수퍼(Super) P, 또는 그래핀을 포함한다.

[0024] 일부 실시양태에 따라, 이성질체 P14AQ는, 용액 중 탄소질 물질의 더 우수한 분산을 가능하게 하는 그의 클로로 폼 또는 다른 용매 중 용해도 때문에 복합체 층에 포함되도록 선택된다.

[0025] 일부 실시양태에서, 전기활성 화학종은 음극 상에 고정화될 수 있다. 이러한 실시양태는, 전기활성 화학종이 이류(advection)를 통해 하나의 전극으로부터 또 다른 전극으로 수송되는 것인 다른 시스템의 것과 구별될 수 있다. 일부 실시양태에서, 전기활성 복합체 층은 전기활성 물질 및 탄소질 물질로 이루어진 고정화된 중합체 복합체를 포함한다. 예를 들어, 일부 실시양태에서, 전기활성 복합체 층은 폴리안트라퀴논 (pAQ) - 탄소 나노튜브 (CNT) 복합체를 포함한다.

[0026] 하나 이상의 실시양태에 따라, 음극의 전기활성 복합체 층은 전기활성 물질 대 탄소질 물질의 특정한 중량비를 가질 수 있다. 중량비는 전기활성 물질의 질량 당 높은 전류를 가능하게 하는 것으로 선택될 수 있다. 일부 실시양태에서, 전기활성 물질의 질량 대 탄소질 물질의 질량의 중량비는 약 1 대 1 내지 약 1 대 10일 수 있다. 일부 실시양태에서, 그것은 약 1 대 3일 수 있다. 다른 비가 또한 가능하다.

[0027] 음극은 기체 투과성 층을 추가로 포함할 수 있다. 기체 투과성 층 (기체 층이라고도 지칭될 수 있음)은, 전기활성 복합체 층에 근접하게, 전기화학적 전지로부터 바깥쪽을 향하도록 배치될 수 있다. 기체 스트림은 기체 투과성 층을 통해 확산하여 전기활성 복합체 층과 접촉할 수 있다. 기체 투과성 층은 전도성 물질을 포함할 수 있고 전지 내에서 집전체로서의 역할을 할 수 있다.

[0028] 기체 투과성 층은 다공성 물질을 포함할 수 있다. 일부 실시양태에서, 상기 층은 예를 들어 약 70% 내지 90%의 다공도를 가질 수 있다. 다른 다공도가 또한 가능하다. 기체 투과성 층에 적합한 물질의 예는 비탄소지 (처리

된 것, 테플론(TEFLON)-처리된 것, 또는 처리되지 않은 것), 탄소천, 및 부직 탄소 매트를 포함하나, 이에 제한되지는 않는다. 다른 물질이 또한 사용될 수 있다.

[0029] 양극을 살펴보면, 일부 실시양태에서, 양극은 전기활성 층 (때로는 상보적 전기활성 층이라고 지칭됨)을 포함할 수 있다. 상보적 전기활성 층은 제2 전기활성 층을 포함할 수 있다. 작동 시, 이러한 제2 전기활성 층은 음극 내에 존재하는 제1 전기활성 층의 환원 동안 전자의 공급원으로서의 역할을 할 수 있다. 마찬가지로, 제2 전기활성 층은 제1 전기활성 층의 산화 동안 전자에 대한 싱크로서의 역할을 할 수 있다. 이러한 방식으로, 양극의 전기활성 층은 "상보적"이라고 기술될 수 있다. 제2 전기활성 층은, 예를 들어, 폴리비닐 페로센을 포함할 수 있다. 제2 전기활성 층은, 예를 들어, 폴리(3-(4-플루오로페닐)티오펜), 또는 제1 전기활성 층 (예를 들어, 안트라퀴논)의 제1 환원 전위보다 적어도 0.5 볼트 더 양성인 환원 전위를 갖는 다른 패러데이성 산화환원 층을 포함할 수 있다.

[0030] 음극의 주요 전기활성 복합체 층처럼, 양극의 상보적 전기활성 복합체 층은 전기활성 층과 탄소질 물질의 고정화된 중합체 복합체를 포함할 수 있다. 탄소질 물질의 예는 탄소 나노튜브 (예를 들어, 단일벽 탄소 나노튜브, 다중벽 탄소 나노튜브), 카본 블랙, 케첸블랙, 카본 블랙 수퍼 P, 또는 그래핀을 포함한다. 다른 물질이 또한 가능하다.

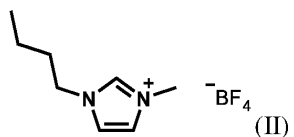
[0031] 하나 이상의 실시양태에 따라, 양극의 전기활성 복합체 층은 전기활성 물질 대 탄소질 물질의 특정한 중량비를 가질 수 있다. 중량비는 전기활성 물질의 질량 당 높은 전류를 가능하게 하는 것으로 선택될 수 있다. 일부 실시양태에서, 상보적 전기활성 복합체 층을 위한 전기활성 물질의 질량 대 탄소질 물질의 질량의 중량비는 약 1 대 2 내지 약 2 대 1일 수 있다. 일부 실시양태에서, 그것은 약 1 대 1일 수 있다. 다른 비가 또한 가능하다.

[0032] 양극이 양쪽에 음극을 갖는 것인 전기화학적 전지의 실시양태에서, 양극은 각각 음극들 중 하나를 향하는 두 개의 전기활성 복합체 층을 포함할 수 있다.

[0033] 양극은, 전기활성 복합체 층 또는 층들과 근접하게 또는 그들 사이에 배치된 기재 층을 추가로 포함할 수 있다. 양극의 기재 층은 음극의 기재 층의 물질과 동일하거나 상이한 물질을 포함할 수 있다. 예를 들어, 기재 층은 탄소지 (처리된 것, 테플론-처리된 것, 또는 처리되지 않은 것), 탄소천, 또는 부직 탄소 매트와 같은 물질을 포함할 수 있다. 다른 물질이 또한 가능하다. 양극의 기재 층은 전도성 물질을 포함할 수 있고 전지 내에서 집전체로서 작용할 수 있다.

[0034] 분리막이 양극과 각각의 음극 사이에 배치될 수 있다. 분리막은 전기화학적 전지 내에서 상이한 전극들을 서로 및/또는 다른 구성요소로부터 격리하는 보호 층으로서의 역할을 할 수 있다. 분리막은 다공성 구조를 가질 수 있다. 분리막을 위한 물질은 예를 들어, 셀룰로스 멤브레인, 중합체 물질, 또는 중합체-세라믹 복합체 물질을 포함할 수 있다. 분리막의 추가의 예는 PVDF 분리막, PVDF-알루미늄 분리막, 또는 셀가드(Celgard)를 포함한다.

[0035] 일부 실시양태에서, 전기화학적 전지는 전도성 액체 (예를 들어, 이온성 액체)로 포화된 하나 이상의 분리막을 구비할 수 있다. 일부 실시양태에서, 전기화학적 전지는 분리막 내에 존재하는 전도성 액체를 구비하지 않을 수 있지만, 그것이 기체 분리 방법을 수행하도록 작동하는 경우에는 전도성 액체로 포화될 수 있는 분리막을 구비할 수 있다. 일부 실시양태에서, 전도성 액체는 이온성 액체, 예를 들어, 실온 이온성 액체 ("RTIL")를 포함할 수 있다. RTIL 전해질은 낮은 휘발도 (즉, 10^{-5} Pa 미만, 예를 들어, 10^{-10} 내지 10^{-5} Pa의 실온 증기압)를 가질 수 있고, 그에 의해 전해질이 건조될 위험을 저감하고, 기체의 유동이 증발 또는 비발동반으로 인한 현저한 손실 없이 전극을 지나도록 할 수 있다. 실온 이온성 액체는, 예를 들어, 하기 화학식 (II)에 의해 나타내어진 1-부틸-3-메틸이미다졸륨 테트라플루오로보레이트 ("Bmim BF₄")를 포함할 수 있다.



[0036] 이온성 액체는 음이온 성분 및 양이온 성분을 포함할 수 있다. 이온성 액체의 음이온은 할라이드, 술페이트, 술포네이트, 카르보네이트, 비카르보네이트, 포스페이트, 니트레이트, 니트레이트, 아세테이트, PF₆⁻, BF₄⁻, 트리플레이트, 노나플레이트, 비스(트리플릴)아미드, 트리플루오로아세테이트, 헵타플루오로부타노에이트, 할로알

루미네이트, 트리아졸리드, 및 아미노산 유도체 (예를 들어 질소 상의 양성자가 제거된 프롤린)를 포함할 수 있으나, 이에 제한되지는 않는다. 이온성 액체의 양이온은 이미다졸륨, 피리디늄, 피롤리디늄, 포스포늄, 암모늄, 술포늄, 티아졸륨, 피라졸륨, 피페리디늄, 트리아졸륨, 피라졸륨, 옥사졸륨, 구아나디늄, 및 디알킬모르폴리늄을 포함할 수 있으나, 이에 제한되지는 않는다. 일부 실시양태에서, 전도성 액체는 낮은 휘발도의 전해질 용액을 포함할 수 있다.

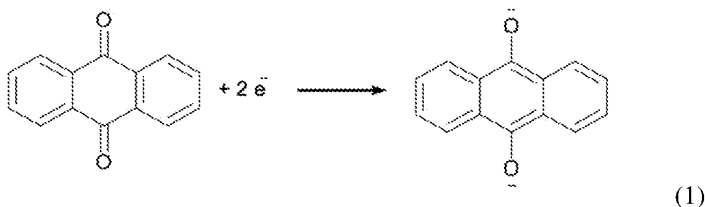
[0038] 하나 이상의 실시양태에 따른, 상기에 기술된 구성 요소들 중 하나 이상을 갖는 전기화학적 전지의 예가 도 1에 도시되어 있다. 전기화학적 전지(100)는 두 개의 음극들(110) 사이에 배치된 양극(120)을 포함한다. 분리막(130)은 양극 및 음극(120 및 110)을 분리한다. 각각의 음극(110)은 전지(100)의 중심으로부터 멀리 배치된 기체 투과성 층(112), 및 양극(120)을 향하는 주요 전기활성 복합체 층(114)을 포함한다. 양극(120)은 기체 층(122) 및 그 위에 침착된 두 개의 상보적 전기활성 복합체 층(124)을 포함한다. 전기화학적 전지(100)의 다양한 구성요소들은 본 개시내용 전체에 걸쳐 기술된 특정한 특성을 가질 수 있고, 예를 들어, 상기에 기술된 전극 물질을 포함할 수 있다. 예를 들어, 도 1에 도시된 바와 같은, 바깥쪽을 향하는 두 개의 음극(110)으로 이루어진 구성은 기체에 노출된 기체-흡착 면적역을 두 배로 만든다는 이점을 제공할 수 있다.

[0039] 하나 이상의 실시양태에 따라, 일반적으로 본원에 기술된 전기화학적 전지는 기체 분리 방법을 수행하도록 작동할 수 있다. 상기 방법은 전기화학적 전지에 걸쳐 전위차를 인가하고, 표적 종 (예를 들어 CO₂)을 포함하는 기체 스트림을 전기화학적 전지에 도입하여 표적 종을 제1 전기활성 종에 결합시켜서, 처리된 기체 스트림을 생성시키는 것을 포함할 수 있다.

[0040] 하나 이상의 실시양태에 따라, 표적 종은 친핵성 분자를 포함할 수 있다. 하나 이상의 실시양태에 따라, 표적 종은 비양성자성 산성 기체를 포함할 수 있다. 하나 이상의 실시양태에 따라, 표적 종은 pAq, 또는 음극의 다른 전기활성 물질과 착체를 형성할 수 있는 기체를 포함할 수 있다. 하나 이상의 실시양태에 따라, 표적 종은 이산화탄소 (CO₂)를 포함할 수 있다. 하나 이상의 실시양태에 따라, 표적 종은 이산화황 (SO₂)을 포함할 수 있다. 하나 이상의 실시양태에 따라 표적 종은 보란 (BR₃)을 포함할 수 있고, 여기서 각각의 R은 동일하거나 상이할 수 있고 적합한 치환기 (예를 들어, 수소, 각각 임의로 치환된, 알킬, 아릴 등)이다. 일부 실시양태에서, 표적 종은 하나의 종을 포함할 수 있다. 일부 실시양태에서, 표적 종은 하나 초과 종을 포함할 수 있다. 포집 및 방출이 일어나는 전위창(potential window)은 그러한 실시양태의 특정한 표적 종에 따라 달라질 수 있고, 따라서 표적 종의 농후화 및 스트립핑은 전기화학적 전지에 걸쳐 인가되는 적당한 전위차를 인가함으로써 제어될 수 있다.

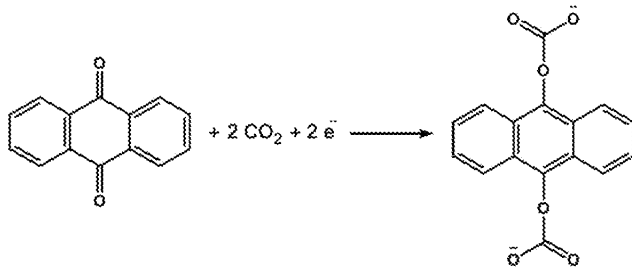
[0041] 일부 실시양태에 따라, 충전 모드 동안 전기화학적 전지에 양전압을 인가하면, 음극에서 전기활성 종이 환원되는 산화환원 반쪽 반응이 유발된다. 본원에서 논의되는 바와 같이, 음극의 전기활성 종이 환원된 상태일 때에 표적 종 (예를 들어, CO₂)에 대한 개선된 친화도를 갖는 특성을 갖도록 선택된다. 전기활성 종을 환원시키고 기체 스트림을 음극 면에 통과시킴으로써, 표적 종 (예를 들어, CO₂)을 전기활성 종에 결합시킬 수 있다. 이러한 방식으로, 표적 종을 기체 스트림으로부터 제거하여, 처리된 기체 스트림을 제공할 수 있다.

[0042] 음극의 전기활성 종이 안트라퀴논인 일부 실시양태에 따라, 전기활성 활성 종은 하기 반응 (1)에 따라 환원될 수 있다.



[0043]

[0044] 전기활성 종이 이산화탄소를 포함하는 표적 종의 존재 하에 환원되는 것인 일부 실시양태에 따라, 하기 반응 (2)가 일어날 수 있다.



(2)

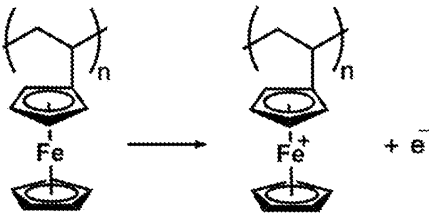
[0045]

[0046]

일부 실시양태에 따라, 음극에서 제1 전기활성 종 (예를 들어, 폴리안트라퀴논)이 환원되고 있는 동안에, 양극에서 제2 전기활성 종 (예를 들어, 폴리비닐 페로센)이 산화되고 있다. 충전 모드 동안, 제2 전기활성 종의 산화로 인해, 제1 전기활성 종의 환원을 추진하기 위한 전자의 공급원이 제공된다.

[0047]

양극의 전기활성 종이 폴리비닐 페로센을 포함하는 것인 일부 실시양태에 따라, 이러한 제2 전기활성 종은 하기 반응 (3)에 따라 산화될 수 있다.



(3)

[0048]

[0049]

각각의 반응 (1) 내지 (3)이 하나의 방향으로 일어나는 것으로 도시되어 있지만, 일부 가역성이 나타날 수 있다. 관련 기술분야의 통상의 기술자가 이해하는 바와 같이, 상이한 종을 사용해도 유사한 반응이 일어날 수 있다.

[0050]

하나 이상의 실시양태에 따라, 양극 및 음극에 걸쳐 전위차를 인가함으로써 전기화학적 전지를 충전할 때, 전자는 양극 상의 pVF-CNT 복합체 내의 페로센 (Fc) 단위체로부터 나와서 (이에 따라 페로센이 페로세늄 (Fc⁺)으로 산화됨 (반응 (3)에 도시된 바와 같음)) 외부 회로를 통해 음극으로 유동한다. 음극에서는, pAQ-CNT 복합체 내의 안트라퀴논 단위체가, CO₂의 존재 하에, 이음이온 형태인 p(AQ²⁻)로 환원되고, 이는 음극 내로 확산된다. 이 음이온은 식 (2)에 나타내어진 바와 같이 공유 결합을 통해 CO₂에 쉽게 결합하여 착체 p(AQ·[CO₂]²⁻)를 형성한다.

[0051]

충전 모드 동안, 전기화학적 전지에 걸친 전위차는 특정한 전압을 가질 수 있다. 예를 들어, 일부 실시양태에서, 전위차는 적어도 0 V, 적어도 0.5 V, 적어도 1.0 V, 또는 적어도 1.5 V일 수 있다. 일부 실시양태에서, 전위차는 2.0 V 이하, 1.5 V 이하, 1.0 V 이하, 또는 0.5 V 이하일 수 있다. 이러한 전압들의 조합, 예를 들어, 적어도 0.5 V과 2.0 V 이하의 조합이 또한 가능하다. 다른 값이 또한 가능하다.

[0052]

도 2a는 하나 이상의 실시양태에 따른, 충전 모드에서 작동하는 예시적인 전기화학적 전지(100a)의 분해도를 도시한다. 전기화학적 전지(100a)의 구성요소들은, 본원에서 도 1에 대해 기술된, 전기화학적 전지(100)에 대해 기술된 것과 같을 수 있다. 도 2a에 도시된 바와 같이, 전원(140a) 및 배선(150a)이, 전기화학적 전지(100a)에 걸쳐 전위차를 인가하기 위해 사용된다. 이는 외부 회로(150a)에서 전자를 각각의 음극(110a)의 주요 전기활성 복합체 층(114a)으로 인도하는 전자 유동(160a)을 유발한다. 전기활성 복합체 층(114a)에서 산화환원 반쪽-전지 반응이 일어나서 층(114a)에 고정화된 전기활성 종이 환원된다. 전기활성 종은 환원된 상태에서 기체 스트림 (도시되지 않음)의 표적 층에 대한 증가된 친화도를 나타낸다. 기체 스트림의 표적 층은 음극의 기체 투과성 층(112a)을 투과하여 복합체 층(114A)의 환원된 물질에 결합할 수 있다.

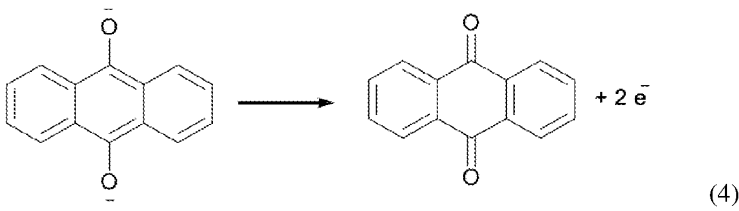
[0053]

한편, 양극(120a)은 충전 모드에서의 작동 동안 전자의 공급원으로서의 역할을 한다. 상응하는 산화환원 반쪽-전지 반응이 양극(120a)의 상보적 전기활성 복합체 층(124a)에서 일어나서 그의 전기활성 종이 산화된다. 산화 반응으로 인해, 상보적 전기활성 종으로부터 전자가 방출된다. 이어서 이러한 전자 반응 생성물은 기체 층(122a) 및/또는 외부 배선(150a)을 통해 이동하여 회로를 완성한다. 분리막(130a)은 양극 및 음극(120a) 및

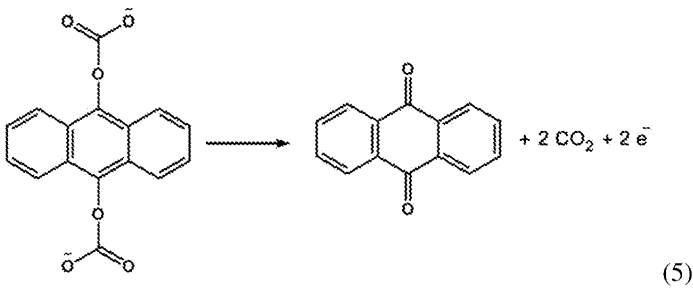
110a)을 분리한다.

[0054] 하나 이상의 실시양태에 따라, 전기화학적 전지의 작동은 전기화학적 전지에 걸쳐 제2 전위차를 인가하여 제1 전기활성 종으로부터 표적 종을 방출시켜서, 표적 종-농후 기체 스트림을 생성시키는 것을 추가로 포함할 수 있다. 일부 실시양태에 따라, 전기화학적 전지를 일정 시간 동안 충전 모드에서 작동시켜서, 그 동안 표적 종이 음극의 전기활성 물질에 결합되도록 한 후, 작동을 방전 모드로 전환시킬 수 있다. 방전 모드에서의 작동 동안, 인가된 전압은 충전 모드 동안의 전자 유동 방향과 반대 방향으로 전자 유동을 제공하도록 전환된다. 방전 모드에서의 작동 동안, 음전압이 전기화학적 전지에 걸쳐 인가될 수 있다. 방전 모드에서, 음극에서는 음극의 전기활성 종이 산화되는 것인 산화환원 반쪽 반응이 일어난다. 방전 모드에서의 작동 동안, 음극에서 결합되었던 물질로부터 표적 종이 방출될 수 있다.

[0055] 음극의 전기활성 종이 안트라퀴논인 일부 실시양태에 따라, 전기활성 종은 방전 모드 동안 하기 반응 (4)에 따라 산화될 수 있다.

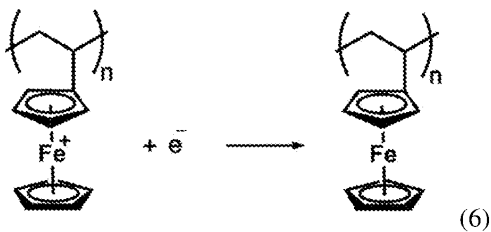


[0056] 전기활성 활성 종이 이산화탄소를 포함하는 표적 종에 결합된 후에 산화되는 것인 일부 실시양태에 따라, 하기 반응 (5)가 일어날 수 있다.



[0058] 일부 실시양태에 따라, 음극에서 제1 전기활성 종 (예를 들어, 폴리안트라퀴논)이 산화되고 있는 동안에, 양극에서 제2 전기활성 종 (예를 들어, 폴리비닐 페로센)이 환원되고 있다. 방전 모드 동안, 제2 전기활성 종의 환원은 전자 싱크로서의 역할을 한다.

[0060] 양극의 전기활성 종이 폴리비닐 페로센을 포함하는 것인 일부 실시양태에 따라, 이러한 제2 전기활성 종은 하기 반응 (6)에 따라 환원될 수 있다.



[0062] 각각의 반응 (4) 내지 (6)은 하나의 방향으로 일어나는 것으로 도시되어 있지만, 일부 가역성이 나타날 수 있다. 관련 기술분야의 통상의 기술자가 이해하고 있는 바와 같이, 상이한 종을 사용해도 유사한 반응이 일어날 수 있다.

[0063] 이러한 실시양태에 따라, 외부 회로의 분극이 역방향으로의 전자의 유동을 허용하도록 변경될 때, 음극의 전기활성 물질은 전기화학적 전지의 방전에 의해 산화된다. pAQ 분자와 CO₂ 분자 사이에 형성된 공유 결합이 파괴되어 (반응 (5)에 도시된 바와 같음), CO₂ 기체가 방출되어 음극으로부터 확산되어 나오고, 양극으로 유동하는

전자가 Fc^+ 단위체를 Fc 로 환원시킨다 (반응 (6)에 도시된 바와 같음). 이러한 실시양태에 따라, pVF는 p(AQ)의 환원을 위한 전자 공급원 또는 $p(AQ.[CO_2]_2^-)$ 의 산화를 위한 전자 싱크로서의 역할을 할 수 있다.

- [0064] 방전 모드 동안, 전기화학적 전지에 걸친 전위차는 특정한 전압을 가질 수 있다. 예를 들어, 일부 실시양태에서, 전위차는 0 V 미만, -0.5 V 이하, -1.0 이하 V, 또는 -1.5 V 이하일 수 있다. 일부 실시양태에서, 전위차는 적어도 -2.0 V, 적어도 -1.5 V, 적어도 -1.0 V 또는 적어도 -0.5 V일 수 있다. 이러한 전압의 조합, 예를 들어 적어도 -2.0 V와 -0.5 V 이하의 조합이 또한 가능하다. 다른 값이 또한 가능하다.
- [0065] 도 2b는 하나 이상의 실시양태에 따른, 방전 모드에서 작동하는 예시적인 전기화학적 전지(100b)의 분해도를 도시한다. 전기화학적 전지(100b)의 구성요소는 도 2a의 전지(100a)의 것과 동일하다. 그러나, 전원(140b)에 의해 인가된 전압은, 외부 배선(150b)을 통한 전자 유동(160b)의 방향을 역전시키는 전위차가 생성되도록 변경되었다. 방전 모드에서, 산화환원 반쪽-전지 반응이 음극(110b)의 전기활성 복합체 층(114b)에서 일어나서 층(114b)에 고정화된 전기활성 종이 산화된다. 전기활성 종은 산화된 상태에서 표적 종이 대한 감소된 친화도를 나타내어서, 표적 종이 전기활성 물질로부터 방출되도록 한다. 방출된 표적 종은 기체 투과성 층(112b)을 통해 빠져나가며, 추가의 가공, 격리 또는 다른 원하는 목적을 위해 인도될 수 있다.
- [0066] 한편, 양극(120b)은 방전 모드에서의 작동 동안 전자 싱크로서의 역할을 한다. 반쪽-전지 반응이 양극(120b)의 상보적 전기활성 복합체 층(124b)에서 일어나서 전기활성 종이 환원된다. 환원 반응 동안, 배선(150b) 및 기체 층(122b)을 통해 이동한 전자가 상보적 전기활성 종에 결합하여 회로가 완성되도록 한다. 분리막(130b)은 양극 및 음극(120b 및 110b)을 분리한다.
- [0067] 도 3은 하나 이상의 실시양태에 따른 예시적인 전기화학적 전지(300)의 개략도를 도시한다. 전기화학적 전지(300)는 음극(310), 양극(330), 및 그들 사이에 배치된 분리막(320)을 포함한다. 도 3에는 또한 임의적인 것으로서, 제1 음극(310)에 대해 대향 배치된 제2 음극 전극(310), 및 제2 분리막(320)이 도시되어 있다. 음극(310)은, 환원된 상태에서 표적 종 (예를 들어 CO_2)에 대해 상대적으로 증가된 친화도를 나타내고 산화된 상태에서 표적 종 (예를 들어, CO_2)에 대해 상대적으로 감소된 친화도를 나타내는 제1 전기활성 종을 포함한다. 양극(320)은 상이한 전기활성 종을 포함한다. 충전 또는 방전 모드에서의 작동 동안, 전기화학적 전지(300)에 걸쳐 전위차가, 본원의 다른 곳에 논의된 바와 같은 상보적 산화환원 반응이 각각의 전극(310 및 320)에서 일어나도록 인가된다.
- [0068] 하나 이상의 실시양태에 따라, 본원에 기술된 바와 같은 하나 이상의 전기화학적 전지는 기체 분리 시스템에 포함될 수 있다. 기체 분리 시스템은 기체 입구 및 기체 출구와 유체 소통하는, 본원에 기술된 임의의 실시양태에 따른 복수의 전기화학적 전지를 포함할 수 있다.
- [0069] 기체 분리 시스템은, 각각의 전기화학적 전지의 제1 및 제2 다공성 음극 및 양극을, 상기 각각의 전기화학적 전지의 제1 및 제2 음극 및 양극에 걸쳐 전위차를 인가하도록 구성된 전원에 접속시키는 외부 회로를 포함할 수 있다.
- [0070] 도 4는 하나 이상의 실시양태에 따른 예시적인 기체 분리 시스템(400)의 개략도를 도시한다. 시스템(400)은 입구(470) 및 출구(480)를 갖는 하우징(460)을 포함한다. 하우징 내에는 전기화학적 전지(405)가 존재한다. 분명히 하기 위해 단지 하나의 전지(405)가 도 4에 도시되어 있지만, 관련 기술분야의 통상의 기술자라면 복수의 전지(405)가 하우징(460) 내에 배치될 수 있다는 것을 쉽게 이해할 것이다. 하우징(460)의 내부 또는 외부에 배치될 수 있는 전원(440)이 전지(405)에 접속된다. 음극(들)(410)은 배선(450a)을 통해 전원(440)에 접속되며, 양극은 배선(450b)을 통해 접속된다. 전압이 본원의 다른 곳에 기술된 바와 같이 전지(들)가 충전 모드에서 작동하도록 인가되는 동안에, 처리될 기체 스트림이 입구(470)를 통해 전달된다. 기체 스트림은 시스템(400)의 의해 적어도 부분적으로 제거되도록 계획된 표적 종을 포함한다. 이어서 기체 스트림은 전지(405)에 근접하게, 특히 음극(들)(410)에 근접하게 통과한다. 음극(410)에서 환원된 전기음성 물질이 표적 종에 결합하여, 표적 스트림으로부터 표적 종이 제거된다. 임의적인 제2 음극(410), 제2 분리막(420), 및 상응하는 배선(450a)이 점선으로 도시되어 있다. 도 4 및 다른 도면에 도시된 실시양태는 임의적인 하우징을 포함하지만, 전기화학적 전지는 다양한 실시양태에서, 예를 들어, 도관 내에서 인-라인으로, 또는 달리 하우징 없이 배치될 수 있다는 것을 이해해야 한다.
- [0071] 도 5는 하나 이상의 실시양태에 따른, 충전 모드 동안 기체 분리 방법을 수행하는 예시적인 시스템의 개략도를 도시한다. 도 5에서, 각각의 전기화학적 전지에 걸쳐 전위차가, 각각이 충전 모드에서 작동하도록 인가된다.

충전 모드에서는, 음극(510) 내의 전기활성 중의 산화환원 반응 (예를 들어, 환원)으로 인해 전기활성 종과 표적 종(590) 사이의 친화도가 증가한다. 표적 종(590)을 포함하는 기체 스트림(575)이 시스템에 도입되고 음극(510)에 근접하게 통과한다. 증가된 친화도는 표적 종 (예를 들어, CO₂)이 전기활성 물질에 결합되도록 한다. 이러한 방식으로, 표적 종의 적어도 일부가 기체 스트림(575)으로부터 분리되어, 처리된 기체 스트림(585)이 생성된다.

[0072] 도 4에 도시된 시스템(400)은 또한, 전원(440)으로부터 인가된 전압을, 충전 모드에서의 전자 유동 방향과 반대 방향으로 전자 유동을 유발하도록 변경시킴으로써 방전 모드에서 작동될 수 있다. 이러한 변경으로 인해, 음극(410)에서 상이한 산화환원 반응, 예를 들어 음극의 전기활성 물질이 산화되는 반응이 일어난다. 전기활성 물질의 산화 상태의 이러한 변화로 인해, 표적 종이 전기활성 물질로부터 방출되어, 표적 종-농후 기체 스트림이 생성된다. 표적 종-농후 기체 스트림은 출구(480) 또는 대안적 출구 (도시되지 않음)를 통해 빠져나갈 수 있다.

[0073] 방전 모드에서의 작동으로 인해 표적 종 물질이 방출되기 때문에, 처리된 기체 스트림을 입구(470)를 통해 동시에 도입하는 것은 역효과가 날 수 있다. 그러므로, 방전 모드에서의 작동 동안, 입구(470)를 닫거나 상이한 스트림 (예를 들어, 폐 스트림)을 입구로 다시 인도한다.

[0074] 하나 이상의 실시양태에 따라, 기체 분리 시스템은 전기화학적 전지의 제1 세트 및 전기화학적 전지의 제2 세트를 포함할 수 있다. 각각의 제1 세트 및 제2 세트는 본 개시내용 전체에 걸쳐 기술된 바와 같은 하나 이상의 전기화학적 전지를 포함할 수 있다. 제1 및 제2 세트는, 전지의 하나의 세트가 충전 모드에서 작동하여 기체 혼합물로부터 표적 종 (예를 들어, CO₂)이 포집되며, 전지의 또 다른 세트가 방전 모드에서 작동하여 표적 종 (예를 들어, CO₂)이 방출되도록, 교번 방식으로 병렬로 놓일 수 있다. 시스템은 전기화학적 전지의 각각의 세트에 대한 개별 하우징을 포함할 수 있다. 시스템은 원하는 방식으로 유동을 인도하도록 배열된 도관 및 밸브를 추가로 포함할 수 있다. 기체 분리 시스템은 기체 스트림의 연속적 또는 반연속적 분리를 허용할 수 있으며, 여기서 기체 스트림은 정해진 순간에 충전/포집 모드에서 작동하는 전지의 세트로 인도되며, 개별 표적 종-농후 시스템은 방전/방출 모드에서 작동하는 전지의 다른 세트에 의해 생성된다. 더욱이, 전기화학적 전지의 추가의 세트가 용도에서의 필요성에 따라 병렬 또는 직렬로 첨가될 수 있다.

[0075] 도 6은 이러한 기체 분리 시스템의 실시양태의 한 예를 도시한다. 기체 분리 시스템(600)에서, 전기화학적 전지의 제1 세트(605a)는 제1 하우징(660a) 내에 배치되고, 전기화학적 전지의 제2 세트(605b)는 제2 하우징(660b) 내에 배치된다. 도관은 기체 입구(670)를 하우징 입구(672a 및 672b)에 접속시킨다. 밸브(684)는 세트(605a 및 605b) 중 어느 것이 현재 충전 모드에서 작동하고 있는지에 따라, 상기 세트 중 어느 하나로 유동을 인도하도록 배열될 수 있다.

[0076] 작동 시, 표적 종 (예를 들어, CO₂)을 포함하는 기체 스트림은 입구(670)를 통해 기체 분리 시스템(600)에 도입될 수 있다. 전지의 제1 세트(605a)가 충전/포집 모드에서 작동할 때, 밸브(684)는 스트림이 전지의 제1 세트(605a)에 근접하게 하기 위해 스트림을 인도하도록 배열될 수 있으며, 상기 전지에서 표적 종이 전지(605a) 내 전기활성 물질에 결합하여, 처리된 기체 스트림 (감소된 농도의 표적 종을 갖는 것)이 생성될 수 있고, 이어서 상기 스트림이 출구(673a)를 통해 하우징(660a)을 빠져나간다. 하우징 출구(673a)의 하류에 있는 추가의 밸브(686a)는 처리된 기체 출구(680)를 통해 처리된 기체 스트림을 인도하도록 배열될 수 있다.

[0077] 전지의 제1 세트(605a)가 충전 모드에서 작동하고 있는 동안에, 전지의 제2 세트(605b)가 방전 모드에서 작동할 수 있으며, 여기서 이전에 축적된 표적 종이 전지의 제2 세트(605b)의 전기활성 물질로부터 방출된다. 도시된 실시양태에서, 밸브(684)가 방전 모드에서 작동하는 전지의 세트(605b)로부터 기체 처리 스트림을 격리하도록 배열된다. 전지의 세트(605b)로부터 표적 종이 방출되어, 표적 종-농후 기체 스트림이 생성되고, 이어서 상기 스트림이 출구(673b)를 통해 하우징(660b)을 빠져나간다. 밸브(686b)는 처리된 스트림 출구(680)로부터 표적 종-농후 스트림을 격리하고 표적 종-농후 스트림을 폐기물 출구(682b)로 인도하도록 배열될 수 있으며, 그 대신에 여기서 표적 종-농후 스트림을 추가의 가공, 저장 등을 겪을 수 있다.

[0078] 상기 방식으로 일정 시간 동안의 작동 후에, 전지(605a 및 605b)의 모드를 역전시킬 수 있다. 이어서, 전지의 제1 세트(605b)는 방전 모드에서 작동하여 축적된 표적 종을 그의 전극으로부터 방출시킨다. 그 동안, 밸브(684)는 처리 스트림을 전지의 제1 세트(605a)로부터 격리하도록 재배열된다. 그 동안, 밸브(686a)는 표적 종-농후 스트림을 폐기물 출구(682a)를 향해 인도하도록 재배열된다.

- [0079] 한편, 전지의 제2 세트(605b)의 작동을 역전시켜서, 이들을 충전 모드에서 작동시켜 표적 종을 포집하고 처리된 스트림이 생성되도록 한다. 입구 밸브(684)는 도관을 통해 시스템 입구(670)로부터의 처리 스트림을, 제2 하우징 입구(672b)를 통해 전지의 제2 세트(605b)로 인도하도록 배열된다. 출구 밸브(686b)는 처리된 스트림을 출구(680)로 인도하도록 재배열된다.
- [0080] 이러한 방식으로, 전지의 상이한 세트들(605a 및 605b)은 함께 표적 종을 포함하는 기체 스트림의 연속적 또는 반연속적 처리를 제공하는 모드를 통해 순환될 수 있다. 도 6에 도시된 특정한 실시양태는 시스템 구성요소들(예를 들어, 밸브, 도관, 입구, 및 출구)의 하나의 특정한 배열을 도시하지만, 관련 기술분야의 통상의 기술자라면 분리된 처리된 스트림 및 표적 종-농후 스트림에 대한 연속적 작동을 제공하는 목표를 여전히 충족하는 다양한 구성이 제공될 수 있다는 것을 이해할 것이다.
- [0081] 도 7a는 하나 이상의 실시양태에 따른, 전지의 제1 세트(705a)가 충전 모드에서 작동하며 전지의 제2 세트(705b)가 방전 모드에서 작동하는 것인 기체 분리 방법을 수행하는, 도 6의 시스템과 유사한 예시적인 시스템의 개략도를 도시한다. 충전 모드에서, 인가된 전압은 전기활성 종과 표적 종(790) 사이의 친화도를 증가시키는, 음극(710a)에서의 전기활성 종의 산화환원 반응(예를 들어, 환원)을 유도한다. 표적 종(590)을 포함하는 기체 스트림(575)은 전지의 세트(705a)에 도입되고 음극(510a)에 근접하게 통과한다. 증가된 친화도는 표적 종(예를 들어, CO₂)(790)이 전기활성 물질에 결합되도록 한다. 이러한 방식으로, 표적 종의 적어도 일부가 기체 스트림(775)으로부터 분리되어, 처리된 기체 스트림(785)이 생성된다.
- [0082] 방전 모드에서, 인가된 제2 전압은 충전 모드 동안의 전자 유동 방향에 대해 반대 방향으로 전자 유동을 유발하여, 전기활성 종과 표적 종(790) 사이의 친화도를 감소시키는, 음극(710b)에서의 전기활성 종의 제2 산화환원 반응(예를 들어, 산화)을 유도한다. 방출된 표적 종(790)은 표적 종-농후 기체 스트림(787)에 들어간다.
- [0083] 도 7b는 도 7a에 대해 도시 및 기술된 작동 모드가 역전된 것인 기체 분리 방법을 수행하는, 도 6의 시스템과 유사한 예시적인 시스템의 개략도를 도시한다. 도 7b에서, 전지의 제1 세트(705a)에 걸쳐 인가된 전압이 변경되었으며, 전지(705a)가 방전 모드에서 작동하여, 저장된 표적 종(790)이 음극(710a)으로부터 방출되어, 표적 종-농후 기체 스트림이 생성된다. 한편, 전지의 제2 세트(705b)에 걸쳐 인가된 전압은 또한 이들이 충전 모드로 작동하도록 변경되었다. 처리 스트림(775)의 표적 종(790)이 음극(710b)에 결합하여, 처리된 스트림(785)이 생성된다.
- [0084] 본원에 기술된 전기화학적 전지, 시스템, 및 방법은 다양한 용도에서 실시될 수 있다. 전지 또는 전지 세트의 개수는 특정 용도의 요구에 따라 필요에 따라 조절될 수 있다. 일부 실시양태에서, 본원에 기술된 시스템 및 방법은, 산업적 연도 가스 뿐만 아니라, 환기를 위한 유입 공기의 가열 비용을 감소시키기 위해 밀폐된 공간, 예컨대 기밀 건물, 차량 객실 및 CO₂의 수준의 증가가 제약이 될 수 있는 것인 잠수함 및 우주 캡슐로부터 CO₂를 제거하기 위한 것일 수 있다. 전력 산업에 대한 실시양태에서, 그것은 다양한 농도의 연소 후 이산화탄소를 포집하기 위해 사용될 수 있다. 또한, 그것은 이산화황 및 다른 기체를 연도 가스로부터 포집하기 위해 사용될 수 있다. 오일 및 가스 산업에 대한 실시양태에서, 개시된 시스템 및 방법은 다양한 공정으로부터 유래된 이산화탄소 및 다른 기체를 포집하고 그것을 하류 압축 및/또는 가공에 보내기 위해 사용될 수 있다. 개시된 시스템 및 방법은 온난 및 한랭 기후에서 온실을 가열하기 위해 사용되는 연소용 천연 가스로부터 이산화탄소를 포집한 다음, 식물이 광합성에 사용하도록 포집된 이산화탄소를 온실에 보내기 위해, 즉 식물에 공급하기 위해 적용될 수 있다.
- [0085] 하나 이상의 실시양태에 따라, 기체 스트림 또는 처리 스트림은 특정한 유속으로 기체 분리 시스템에 도입될 수 있다. 일부 실시양태에서, 유속은 1 ml/min 내지 100 ml/min이다. 일부 실시양태에서, 유속은 1 ml/min 내지 20 ml/min이다. 시스템이 규모확장성(scalability)인 경우에는, 다른 유속이 또한 가능하다.
- [0086] 하나 이상의 실시양태에 따라, 도입된 기체 스트림 중 표적 종(예를 들어, CO₂)은 특정한 농도를 가질 수 있다. 일부 실시양태에서, 표적 종 농도는 10 ppm 내지 500 ppm일 수 있다. 일부 실시양태에서, 농도는 0.5 부피% 내지 15 부피%일 수 있다. 더 높은 농도가 또한 가능하다.
- [0087] 일부 실시양태에서, 전기화학적 전지는 한 번의 충전 모드 및 한 번의 방전 모드의 수행에 소요되는 시간인 특정한 사이클 시간을 가질 수 있다. 사이클 시간은 60초 내지 3600초, 또는 300초 내지 1800초일 수 있다. 다른 사이클 시간이 또한 가능하다.
- [0088] 일부 실시양태에서, 음극의 전기활성 복합체 층은 표적 종(예를 들어, CO₂)의 흡수에 대한 특정한 용량을 가질

수 있다. 예를 들어, 일부 실시양태에서, 전기활성 복합체 층은 m^2 당 0.01 내지 0.1 mol의 흡수 용량을 가질 수 있다. 일부 실시양태에서, 전기활성 복합체 층은 m^2 당 0.01 내지 0.03 mol의 흡수 용량을 가질 수 있다. 다른 흡수 용량이 또한 가능하다.

[0089] 일부 실시양태에서, 전기화학적 전지는, 음극의 전기활성 복합체 층이 표적 종 (예를 들어, CO_2)을 특정한 속도로 흡수할 수 있도록 작동될 수 있다. 예를 들어, 일부 실시양태에서, 전기활성 복합체 층은 초 당 m^2 당 0.0001 내지 0.001 mol의 흡수 용량 속도를 가질 수 있다. 일부 실시양태에서, 전기활성 복합체 층은 초 당 m^2 당 0.0001 내지 0.0005 mol의 흡수 용량 속도를 가질 수 있다. 다른 흡수 용량 속도가 또한 가능하다.

[0090] 일부 실시양태에서 음극의 전기활성 복합체 층은 기체 스트림에 노출되는 특정한 표면적, 예를 들어 5 내지 20 cm^2 의 표면적을 가질 수 있다. 다른 값이 또한 가능하다.

[0091] 일부 실시양태에서 음극의 기체 투과성 층 또는 양극의 기체 층은 특정한 다공도를 가질 수 있고, 예를 들어 다공도는 60% 내지 90%일 수 있다. 다른 값이 또한 가능하다.

[0092] 일부 실시양태에 따라, 전기화학적 전지 및 그의 구성요소는 특정한 두께를 가질 수 있다. 일부 실시양태에서, 전기화학적 전지는 200 μm 내지 750 μm 의 두께를 가질 수 있다. 일부 실시양태에서, 음극 또는 양극의 전기활성 복합체 층은 10 μm 내지 200 μm 의 두께를 가질 수 있다. 일부 실시양태에서, 음극 또는 양극은 50 μm 내지 200 μm 의 두께를 가질 수 있다. 다른 값이 또한 가능하다.

[0093] 본원에서 사용되는 바와 같은 용어 "전기화학적 전지"는 산화환원 반쪽 반응이 음극 및 양극에서 일어나는 것인 장치를 의미한다. 용어 "전기화학적 전지"는, 심지어 전지의 거동이 거의 틀림없이 패러데이성이기보다는 유사용량성(pseudocapacitive)인 것을 특징으로 하는 경우에도 이러한 기준을 충족하며, 따라서 다르게는 커패시터의 한 유형으로도 지칭될 수 있는 장치를 포함하도록 의도된다.

[0094] 본원에서 사용되는 바와 같이, 전기활성 층은 일반적으로 전기화학적 전지에서 전위에 노출 시 산화 또는 환원을 겪는 작용제 (예를 들어, 화학적 실체)를 지칭한다.

[0095] 일부 실시양태에서, 다공성 물질을 포함하는 전극이 이용된다. 다공성 전극은 임의의 적합한 물질로 만들어질 수 있고/거나, 임의의 적합한 형상 또는 크기를 가질 수 있다. 비제한적 실시양태에서, 전극은 다공성 탄소질 물질을 포함한다. 용어 탄소질 물질은 관련 기술분야에서 통상적인 의미를 갖고, 전기 전도성 탄소 또는 흑연을 포함하는 물질을 지칭한다. 탄소질 물질의 비제한적 예는 탄소 나노튜브, 탄소 섬유 (예를 들어, 탄소 나노 섬유), 및/또는 흑연을 포함한다. 이러한 실시양태에서, 전극은 탄소질 물질로부터 부분적으로 제작될 수 있거나 탄소질 물질이 하부 물질 상에 침착될 수 있다. 하부 물질은 일반적으로 전도성 물질, 예를 들어 금속을 포함한다. 전도성 물질의 다른 비제한적 예는 본원에 기술되어 있다.

[0096] 일부 실시양태에서, 전극은 다공성이다. 전극의 다공도는 전극 내 빈 공간의 백분율 또는 분율로서 측정될 수 있다. 전극의 퍼센트 다공도는 관련 기술분야의 통상의 기술자에게 공지된 기술을 사용하여, 예를 들어 부피/밀도 방법, 물 포화 방법, 물 증발 방법, 수은 압입 다공도 측정 방법, 및 질소 기체 흡착 방법을 사용하여 측정될 수 있다. 일부 실시양태에서, 전극은 적어도 약 10% 다공성, 적어도 약 20% 다공성, 적어도 약 30% 다공성, 적어도 약 40% 다공성, 적어도 약 50% 다공성, 적어도 약 60% 다공성, 적어도 약 70% 다공성 또는 그 초과이다. 기공은 개방 기공 (예를 들어, 상기 기공의 적어도 한 부분이 전극의 외부 표면 및/또는 또 다른 기공에 대해 개방됨)일 수 있다. 일부 경우에, 전극의 일부만이 실질적으로 다공성일 수 있다. 예를 들어, 일부 경우에, 전극의 단일 표면만이 실질적으로 다공성일 수 있다. 또 다른 예로서, 일부 경우에, 전극의 외부 표면은 실질적으로 다공성일 수 있고, 전극의 내부 코어는 실질적으로 비-다공성일 수 있다. 특정한 실시양태에서, 전체 전극은 실질적으로 다공성이다.

[0097] 시스템의 다양한 구성요소, 예컨대 전극, 전원, 전해질, 분리막, 용기, 회로, 절연 물질 등은 관련 기술분야의 통상의 기술자에 의해 임의의 다양한 성분 뿐만 아니라 본원에 기술된 임의의 특허출원에 기술된 것으로부터 제작될 수 있다. 구성요소는 미가공 상태 또는 소성된 상태에서 몰딩, 기계가공, 압출, 가압, 등압가압(isopress), 침투, 코팅될 수 있거나, 또는 임의의 다른 적합한 기술에 의해 형성될 수 있다. 관련 기술분야의 통상의 기술자라면 본원의 시스템의 구성요소를 형성하기 위한 기술을 쉽게 알 것이다.

[0098] 전극은 임의의 크기 또는 형상을 가질 수 있다. 형상의 비제한적 예는 시트, 정육면체, 원통, 중공 튜브, 구체 등을 포함한다. 전극은 임의의 크기를 가질 수 있다. 또한, 전극은 전극을 또 다른 전극, 전원 및/또는 또 다

른 전기적 디바이스에 접속시키기 위한 수단을 포함할 수 있다.

[0099] 시스템의 다양한 전기적 구성요소는 접속 수단에 의해 적어도 하나의 다른 전기적 구성요소와 전기적으로 소통할 수 있다. 접속 수단은 제1 구성요소와 제2 구성요소 사이에서 전기의 유동이 일어나는 것을 허용하는 임의의 물질일 수 있다. 두 개의 전기적 구성요소들을 접속시키기 위한 수단의 비제한적 예는 전도성 물질 (예를 들어, 구리, 은 등)을 포함하는 전선이다. 일부 경우에, 시스템은 또한 두 개 이상의 구성요소들 (예를 들어, 전선 및 전극) 사이에 전기 커넥터를 포함할 수 있다. 일부 경우에, 전선, 전기 커넥터, 또는 또 다른 접속 수단은 물질의 저항이 낮도록 하는 것으로 선택될 수 있다. 일부 경우에, 저항은 전극, 전해질, 및/또는 시스템의 다른 구성요소의 저항보다 훨씬 더 낮을 수 있다.

[0100] 일부 실시양태에서, 전원은 시스템에 DC 전압을 공급할 수 있다. 비제한적 예는 배터리, 전력망, 재생형 전원 (예를 들어, 풍력 발전기, 태양 전지, 조력 발전기), 발전기 등을 포함한다. 전원은 하나 이상의 이러한 전원 (예를 들어, 배터리 및 태양 전지)을 포함할 수 있다.

[0101] 일부 실시양태에서, 시스템은 달리 분리 멤브레인이라고도 지칭되는 분리막을 포함할 수 있다. 분리 멤브레인은 적합한 물질, 예를 들어, 플라스틱 필름으로 만들어질 수 있다. 포함된 플라스틱 물질의 비제한적 예는 폴리아미드, 폴리우레탄 수지, 폴리에스테르 수지, 폴리우레탄 수지, 또는 아크릴계 수지 및 그것에 분산되어 있는 탄산리튬, 또는 수산화칼륨, 또는 나트륨-칼륨 과산화물을 함유하는 것을 포함한다.

[0102] 하기 실시예는 본 발명의 특정한 실시양태를 예시하도록 의도되지만 본 발명의 전체 범위를 예시하는 것은 아니다.

[0103] <실시예>

[0104] 실시예 1

[0105] 본 실시예에서는 본원에 기술된 하나 이상의 실시양태에 따른, 전기화학적 전지의 음극에서 전기활성 물질로서 기능할 수 있는 폴리(1,4-안트라퀴논) (P14AQ)을 합성하기 위한 비제한적 절차가 기술된다. 디메틸포름아미드 (DMF) 20 ml 중 디클로로-1,4-안트라퀴논 1.510 g (5.45 mmol)의 용액을, 질소 하에 65°C에서의 교반을 병행하면서, DMF 50 ml 중 비스(1,5-시클로옥타디엔)니켈(0) 2.000 g (7.27 mmol), 2,2'-비피리딜 1.134 g (7.27 mmol) 및 1,5-시클로옥타디엔 0.7 ml (5.45 mmol)의 용액에 적가하였다. 혼합물을 65°C에서 72 h 동안 반응시켰다. 실온으로 냉각시킨 후에 1 M 염산 (HCl) 100 ml를 반응 혼합물에 첨가하고 실온에서 1 h 동안 교반하였다. 이어서 혼합물을 여과하고 1 M HCl 200 ml, 탈이온수 200 ml로 2회, DMF 100 ml로 2회, 이어서 물 100 ml 및 메탄올 100 ml 세척액으로 세척하였다. 잔류물을 진공 하에 24 h 동안 건조시켰다. 상기 절차를 통해 중합체 1.084 g (96% 수율)을 제조하였다.

[0106] 실시예 2

[0107] 본 실시예에서는 본원에 기술된 하나 이상의 실시양태에 따른, 전기화학적 전지의 주요 전기활성 복합체 층으로서 기능할 수 있는, 폴리(1,4-안트라퀴논) (P14AQ)을 포함하는 중합체-다중벽 탄소 나노튜브 (MWCNT) 복합체를 합성하기 위한 비제한적 절차가 기술된다. 클로로포름 40 ml 중 P14AQ (실시예 1에 기술된 방법에 따라 만들어진 바와 같음) 40 mg 및 MWCNT 120 mg의 현탁액을 15°C에서 40분 동안 초음파처리하여 충분히 분산된 잉크를 얻음으로써 복합체를 만들었다. P14AQ 대 CNT의 비는 최적화되었고 P14AQ 대 CNT 중량비가 1 대 3일 때 활성 물질 (중합체)의 질량 당 최고 전류가 수득되었다. 생성된 복합체는, 순수한 P14AQ에 비해, 전해질에 노출된 중합체의 표면적이 더 컸기 때문에 전류에 있어서 30배를 초과하게 개선되었고, 이때 CNT는 π - π 상호작용을 통해 대부분의 전도도를 제공하고, 전해질 침투를 위해 중합체 쉘에 의해 장식된 다공성 매트릭스를 형성한다. N_2 하에 P14AQ의 두 개의 환원 전위는 Ag|AgNO₃ 기준 전극에 대해 $E_1^0 = -1.15 V$ 및 $E_2^0 = -1.58 V$ 이고, 이는 CO₂ 하에 제1 환원 전위 $E_1^0 = -1.15 V$ 에서 단일 준가역성 산화환원쌍이 된다.

[0108] 실시예 3

[0109] 본 실시예에서는 본원에 기술된 하나 이상의 실시양태에 따른, 전기화학적 전지의 상보적 전기활성 복합체 층으로서 기능할 수 있는, 폴리비닐 페로센 (PVF)을 포함하는 중합체-다중벽 탄소 나노튜브 (MWCNT) 복합체를 합성하기 위한 비제한적 절차가 기술된다. 클로로포름 40 ml 중 PVF (폴리사이언센스, 잉크.(Polysciencens, Inc.)로부터 구입됨) 160 mg 및 MWCNT 160 mg의 현탁액을 15°C에서 60분 동안 초음파처리하여 충분히 분산된 잉크

를 생성함으로써 PVF-CNT 복합체를 만들었다. 이렇게 하여 CO₂ 하에 ~1.2V의 전기화학적 창, 즉 PVF의 환원 전위 (0.05 V vs Ag|AgNO₃) 및 P14AQ의 제1 환원 전위 (-1.15 V vs Ag|AgNO₃)가 유발되었다. 복합체의 최적의 비는 1 대 1의 PVF 대 CNT 중량비인 것으로 밝혀졌다. 중량 전하 보정을 통해, 음극 및 양극에서의 사용을 위한 전기활성 층 복합체 물질의 용량의 밸런싱(balancing)을 수행하였고 그것은 $m_{\text{애노드}}=1.12m_{\text{캐소드}}$ 인 것으로 밝혀졌다.

[0110] 실시예 4

[0111] 본 실시예에서는 본원에 기술된 하나 이상의 실시양태에 따른, 전기화학적 전지의 전극을 합성하기 위한 비제한적 절차가 기술된다.

[0112] 전극을 형성하기 위해, 음극을 위한 기체 투과성 층 또는 양극을 위한 기체 층으로서의 역할을 할 수 있는 기체 물질, 예컨대 테플론 처리된 토레이(Toray) 탄소지, 처리되지 않은 탄소지, 탄소천 (일렉트로켄 인크.(ElectroChem Inc.)로부터 구입됨), 부직 탄소 매트 (마크테크, 인크.(Marktek, Inc.)로부터 구입됨)을 중합체-CNT 잉크 (실시예 2 또는 실시예 3에 기술된 방법에 따라 만들어진 바와 같음)에 여러 번 침지-코팅함으로써 특정 질량의 복합체를 침착시켰다. 또 다르게는, 잉크를 전극 기재 (테플론 처리된 것) 상에 드롭캐스팅하였다.

[0113] 실시예 5

[0114] 본 실시예에서는 본원에 기술된 하나 이상의 실시양태에 따른 전기화학적 전지를 제작하기 위한 비제한적 절차가 기술된다. P14AQ-CNT로 코팅된 전극 기재, 전해질 분리막, PVF-CNT로 코팅된 전극 기재, 전해질 분리막, P14AQ-CNT로 코팅된 전극 기재를 적층함으로써 전기화학적 전지를 조립하였다. 전해질 분리막은 이온성 액체 전해질 1-부틸-3-메틸이미다졸륨 테트라플루오로보레이트 (Bmim BF₄)로 포화된 왓만(Whatman) 셀룰로스 여과지, 또는 이온성 액체 전해질로 포화된 셀가드 3501이었다. 구리 전선 및 전도성 구리 테이프를 집전체로서 사용하였다.

[0115] 실시예 6

[0116] 본 실시예는 상기 실시예에 기술된 방법에 따라 형성된 전기화학적 전지의 성공적인 작동을 보여준다. 전기화학적 전지를 대기압에서 CO₂로 채워진 밀봉된 챔버에서 대시간전류법(chronoamperometric) (일정 전위차) 실험을 사용하여 시험하였고 CO₂의 포집 및 방출로 인한 압력 변화를 모니터링하였다. 전지에 걸쳐 $E_2^0 < -1.5 \text{ V} < E_1^0$ 의 전위차를 인가함으로써 P14AQ-CNT의 환원을 달성하였고, PVF 애노드에 대해 $E_1^0 < +0.5 \text{ V}$ 에서 산화를 달성하였는데, 이는 안트라퀴논 단위체에의 CO₂의 환원적 첨가의 준가역적 속성을 고려하면, 반응을 반대로 되돌리는 큰 과전위였다.

[0117] 전지의 충전 시 (음전하)에는, 환원된 퀴논이 CO₂와 반응하여 전지 내 전체 압력이 감소되며, 방전 시 (양전하)에는, 카르보네이트 모이어티 내 공유 결합의 파괴로 인해 안트라퀴논-CO₂ 착체가 분해되고, CO₂ 분자 뿐만 아니라 안트라퀴논 단위체가 재생되어, 챔버 내 원래 압력이 복구된다. 패러데이성 효율을 포집된 CO₂의 몰수 및 인가된 전하로부터 계산하였다.

[0118]
$$\eta_{\text{패러데이}} = \frac{Fn_{\text{CO}_2}}{Q}$$

[0119] 이는, 밀봉된 챔버의 내부 부피가 60 cm³임을 고려하면, 72% (최고값)인 것으로 밝혀졌다. 또한 포집된 몰 당 에너지를 전하 및 전위차로부터 계산하였다.

[0120]
$$E = QV$$

[0121] 일부 실시양태에 따라, 최적 작동 조건 하에 에너지는 포집된 CO₂의 몰 당 30 내지 70 kJ일 수 있다.

[0122] 전기화학적 전지에 접속된 전력 피드-스루(power feed-through)에 걸쳐 전위차를 인가하고, 각각 포집 및 방출 시, 챔버 내 압력의 감소 및 증가를 압력 변환기를 사용하여 모니터링하였다. 각각 포집 및 방출 시, 챔버 내

압력의 감소 및 증가를 압력 변환기를 사용하여 모니터링하였다. 도 8a는 폐쇄 시스템에서 다양한 CO₂ 농도에서의 전기화학적 전지의 3회 충전 및 방전 사이클을 도시한다. 도 8b는 전지의 충전 및 방전으로부터 유발된, 다양한 농도에서의 CO₂의 포집 및 방출로 인해 유발된 압력 변동을 도시한다. 도 8c는 100% CO₂ 폐쇄 시스템에서 압력 변동을 동반하는 전기화학적 충전 및 방전을 도시한다. 폐쇄 시스템의 압력 변화에 의해 드러난, CO₂의 흡수 및 방출은 전기화학적 전지가 그의 의도된 용도를 위해 작동된다는 것을 보여준다.

- [0123] 실시예 7
- [0124] 본 실시예는 유동 시스템에서의 성공적인 작동을 보여준다. 밀봉된 시스템에서 수행된 대시간전류법 실험 (실시예 6)을 유동 시스템에서 반복하였는데, 여기서 조립된 전기화학적 전지의 적층체를 유동 챔버에 넣고, 다양한 CO₂ 농도의 N₂와 CO₂의 기체 혼합물이 적층체를 지나도록 유동시켰다.
- [0125] 두 개의 음극 (PAQ-CNT) 및 한 개의 양극 (PVF-CNT)을 사용하여 열 개의 전기화학적 전지를 조립하였다. 기체에 노출된 각각의 전기화학적 전지의 표면적은 45 cm²였고, 기체에 노출된 전체 적층체의 총 면적은 450 cm²였다. PAQ-CNT 전극은 500 mg의 활성 물질의 총 부하량을 가졌다 (CNT 375mg 및 PAQ 125 mg). PVF-CNT 전극은 600 mg의 총 부하량을 가졌다 (PVF 300 mg 및 CNT 300 mg). 2 mm만큼 분리된 이러한 전지의 적층체를 기체 유동 챔버 (실험 기구)에 넣고 기체가 그를 지나도록 유동시켰다. 10 ml/min의 질소와 이산화탄소의 혼합물 및 세 가지의 CO₂ 입구 농도를 연구하였다. 시스템의 총 부피는 270 cm³였다.
- [0126] PAQ-CNT 전극의 환원 시, 즉 전지의 충전 모드 작동 시, CO₂는 입구 스트림 (즉, 기체 처리 스트림)으로부터 제거 (포집)되었고, 출구 스트림에서 CO₂의 농도의 감소가 감지되었다. 약 30 층 부피의 기체 혼합물을 처리하였고, 층을 포화시켰고, 그 후에 CO₂가 방출되었다. 산화 시, 즉 전지의 방전 모드 작동 시, CO₂가 동일한 스트림에 방출되었고, 도 9에 도시된 바와 같이 출구 스트림에서 CO₂의 농도의 증가가 감지되었다. 포집 동안의 농도의 총 감소분의 합은 방출 동안의 농도의 총 증가분의 합과 동일하였으며, 이는 CO₂ 24 ml였다. 도 10은 도 9의 곡선의 포집 부분의 브레이크스루(breakthrough) 프로파일을 도시하는데, 입구 농도가 증가함에 따라, 더 작은 수의 층 부피에서 브레이크스루가 달성된다. 용도에 근거하여, 역치 출구 농도를 설정할 수 있고, 그것이 달성될 때, 산화 전위를 인가함으로써 전지 적층체를 재생한다. 실제로, 다수의 이러한 적층체가 병렬로 작동할 것이며, 여기서 하나 이상의 적층체는 CO₂-농후 스트림으로부터 CO₂를 포집하여 CO₂-희박 스트림을 생성하고, 다른 적층체는 CO₂를 퍼지(purge) 또는 스위프(sweep) 스트림에 방출시킴으로써 재생된다.
- [0127] 본 발명의 여러 실시양태가 본원에 기술되고 예시되었지만, 관련 기술분야의 통상의 기술자라면 본원에 기술된 기능을 수행하고/거나 결과 및/또는 이점들 중 하나 이상을 획득하기 위해 다양한 다른 수단 및/또는 구조를 쉽게 고안할 수 있을 것이며, 이러한 각각의 변형양태 및/또는 개질양태는 본 발명의 범주 내에 있는 것으로 여겨진다. 더 일반적으로, 관련 기술분야의 통상의 기술자라면 본원에 기술된 모든 파라미터, 치수, 물질, 및 구성이 예시적인 것이며 실제 파라미터, 치수, 물질, 및/또는 구성은 본 발명의 교시가 사용되는 구체적인 용도 또는 용도들에 따라 달라진다는 것을 쉽게 알 것이다. 관련 기술분야의 통상의 기술자라면, 단지 통상적인 실험을 수행하여 본원에 기술된 발명의 구체적인 실시양태에 대한 많은 등가물을 인식하거나 찾아낼 수 있을 것이다. 그러므로, 전술된 실시양태는 단지 예로서 제시된 것이며, 첨부된 청구범위 및 그것에 대한 등가물의 범주 내에서, 본 발명은 구체적으로 기술되고 청구된 것과 달리 실시될 수 있다는 것을 이해해야 한다. 본 발명은 본원에 기술된 각각의 개별적인 특징, 시스템, 물품, 물질, 키트, 및/또는 방법에 관한 것이다. 또한, 이러한 특징, 시스템, 물품, 물질, 키트, 및/또는 방법이 서로 모순되지 않는 한, 둘 이상의 이러한 특징, 시스템, 물품, 물질, 키트, 및/또는 방법의 임의의 조합은 본 발명의 범주 내에 포함된다.
- [0128] 본원에서 명세서 및 청구범위에서 사용된 바와 같은 부정관사 "하나의(a 및 an)"는 상반된 것으로 명확하게 기재되지 않는 한 "적어도 하나의"를 의미하는 것으로 이해되어야 한다.
- [0129] 본원에서 명세서 및 청구범위에서 사용된 바와 같은, 구 "및/또는"은 그렇게 접속된 요소 중 "하나 또는 둘 다", 즉, 일부 경우에 접속적으로(conjunctively) 존재하고 다른 경우에 이접적으로(disjunctively) 존재하는 요소를 의미하는 것으로 이해되어야 한다. "및/또는" 절에 의해 구체적으로 규정된 요소 이외의 다른 요소가, 구체적으로 규정된 그러한 요소와 관련되든 관련되지 않든, 상반된 것으로 명확하게 기재되지 않는 한, 임의로

존재할 수 있다. 따라서, 비제한적 예로서, "A 및/또는 B"에 대한 언급은, "포함하는"과 같이 개방형 표현 (open-ended language)과 함께 사용되는 경우에, 한 실시양태에서, B 없이 A를 (임의로 B 이외의 요소를 포함함), 또 다른 실시양태에서, A 없이 B를 (임의로 A 이외에 요소를 포함함); 또 다른 실시양태에서, A 및 B 둘 다 (임의로 다른 요소를 포함) 등을 가리킬 수 있다.

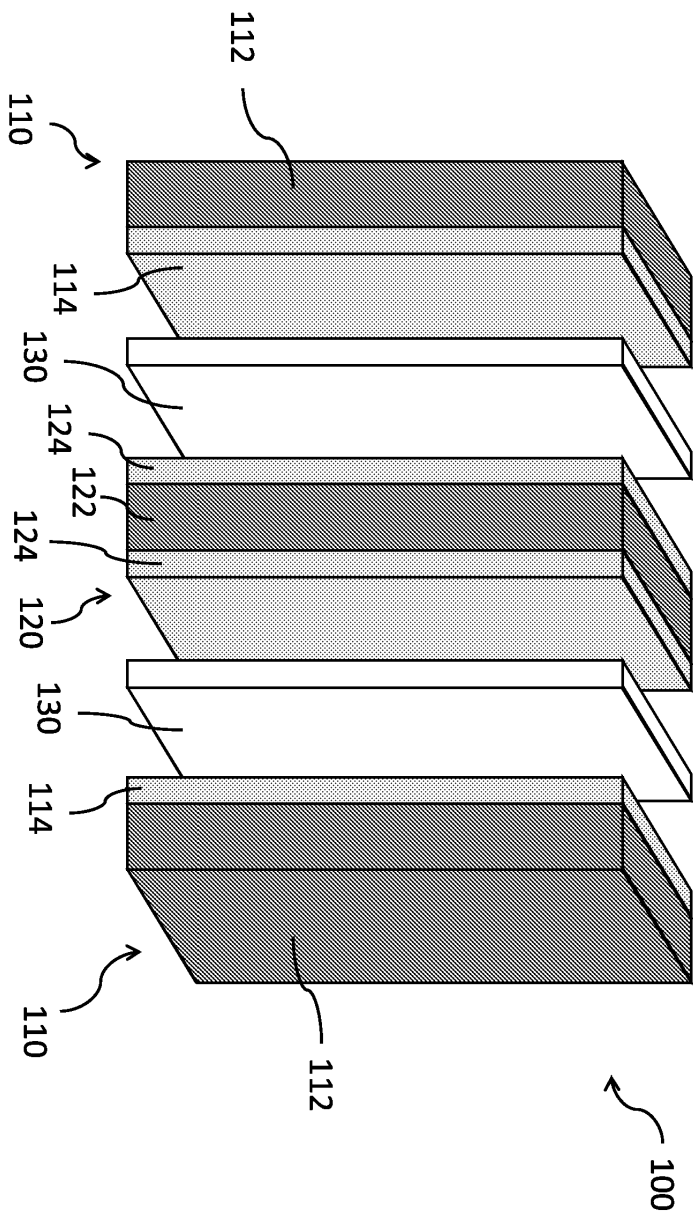
[0130] 본원에서 명세서 및 청구범위에서 사용된 바와 같은, "또는"은 상기에 정의된 바와 같은 "및/또는"과 동일한 의미를 갖는 것으로 이해되어야 한다. 예를 들어, 목록에서 항목을 분리하는 경우에, "또는" 또는 "및/또는"는 포괄적인 것, 즉, 다수의 또는 일련의 요소 중 적어도 하나를 포함하지만, 또한 하나 초과, 및 임의로, 추가의 열거되지 않는 항목을 포함하는 것으로 해석되어야 한다. 상반된 것으로 명확히 기재된 유일한 용어, 예컨대 "중 단지 하나" 또는 "중 정확히 하나" 또는, 청구범위에서 사용되는 경우에, "로 이루어진"만이 다수의 또는 일련의 요소 중 정확히 하나의 요소를 포함한다는 것을 가리킬 것이다. 일반적으로, 본원에서 사용된 바와 같은 용어 "또는"은, 배타성의 용어, 예컨대 "중 어느 하나", "중 하나", "중 단지 하나", 또는 "중 정확히 하나"가 선행되는 경우에 배타적 대안 (즉 "하나 또는 다른 하나이지만 둘 다는 아님")을 나타내는 것으로만 해석되어야 한다. "로 본질적으로 이루어진"은 청구범위에서 사용되는 경우에, 특허법 분야에서 사용되는 바와 같은 그의 통상의 의미를 가져야 한다.

[0131] 본원에서 명세서 및 청구범위에서 사용된 바와 같은, 구 "적어도 하나"는, 하나 이상의 요소의 목록과 관련하여, 요소의 목록에서 요소 중 임의의 하나 이상으로부터 선택된 적어도 하나의 요소를 의미하지만, 요소의 목록에 구체적으로 열거된 각각의 모든 요소 중 적어도 하나를 반드시 포함하는 것은 아니고 요소의 목록에서 요소의 임의의 조합을 배제하는 것은 아닌 것으로 이해되어야 한다. 이러한 정의는 또한 구 "적어도 하나"가 가리키는 요소의 목록에 구체적으로 규정된 요소 이외에 요소가, 구체적으로 규정된 그러한 요소와 관련되든 관련되지 않든, 임의로 존재할 수 있도록 한다. 따라서, 비제한적 예로서, "A 및 B 중 적어도 하나" (또는, 동등하게, "A 또는 B 중 적어도 하나", 또는, 동등하게 "A 및/또는 B 중 적어도 하나")는, 한 실시양태에서, 어떤 B도 존재하지 않고, 임의로 하나 초과를 포함하는, 적어도 하나의 A (및 임의로 B 이외에 요소를 포함)를; 또 다른 실시양태에서, 어떤 A도 존재하지 않고, 임의로 하나 초과를 포함하는, 적어도 하나의 B (및 임의로 A 이외에 요소를 포함)를; 또 다른 실시양태에서, 임의로 하나 초과를 포함하는, 적어도 하나의 A, 및 임의로 하나 초과를 포함하는, 적어도 하나의 B (및 임의로 다른 요소를 포함) 등을 가리킬 수 있다.

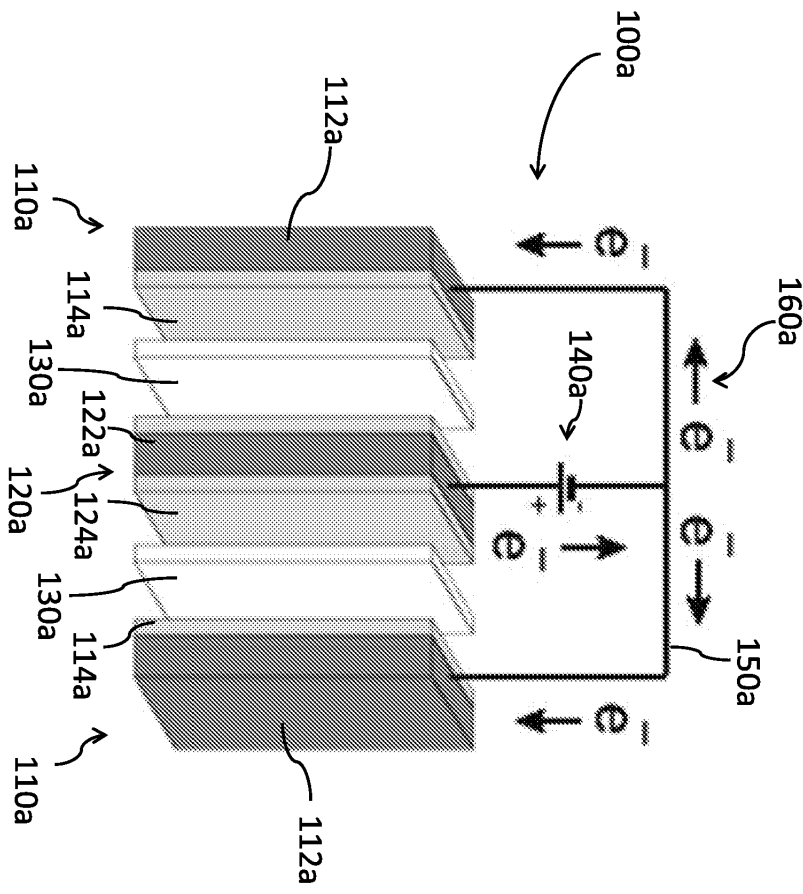
[0132] 청구범위 뿐만 아니라 상기 명세서에서, 모든 연결구, 예컨대 "포함하는(comprising)", "포함한(including)", "지닌", "갖는", "함유하는", "포함하는(involving)", "보유하는" 등은 개방형인 것, 즉, 포함하지만 그에 제한되지 않은 것을 의미하는 것으로 이해되어야 한다. 연결구 "로 이루어진" 및 "로 본질적으로 이루어진"만이 각각 미국 특허청의 특허 심사 절차의 매뉴얼 섹션 2111.03에 명기된 폐쇄형 또는 반폐쇄형 연결구여야 한다.

도면

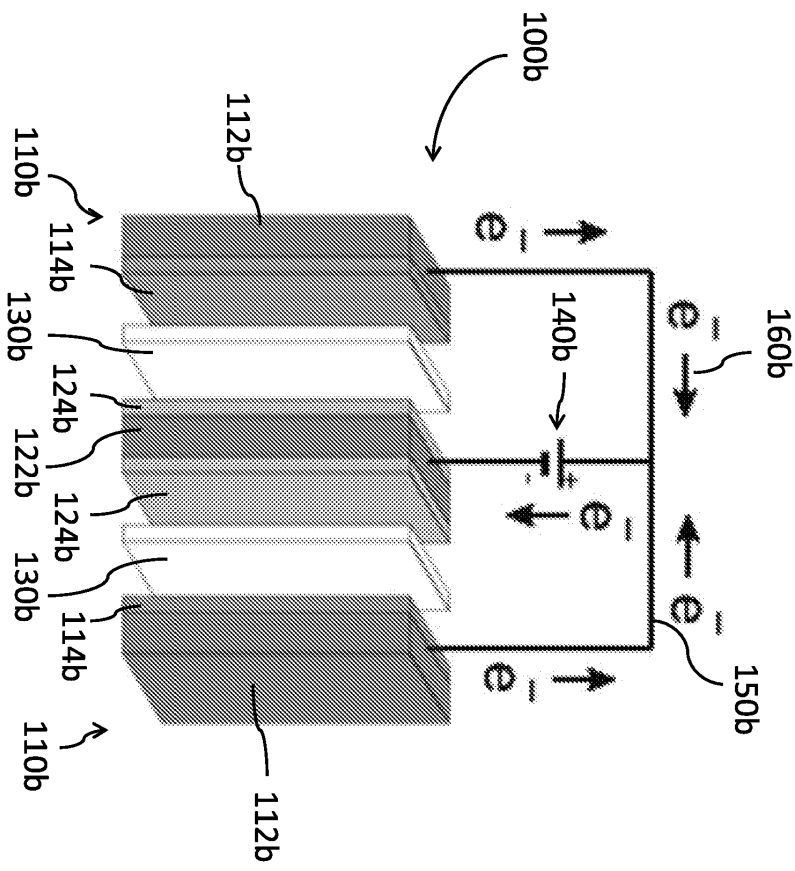
도면1



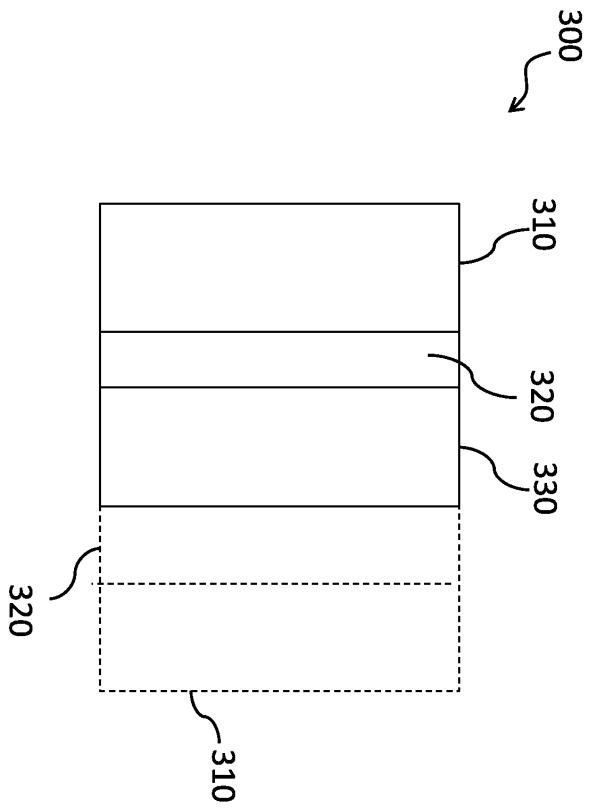
도면2a



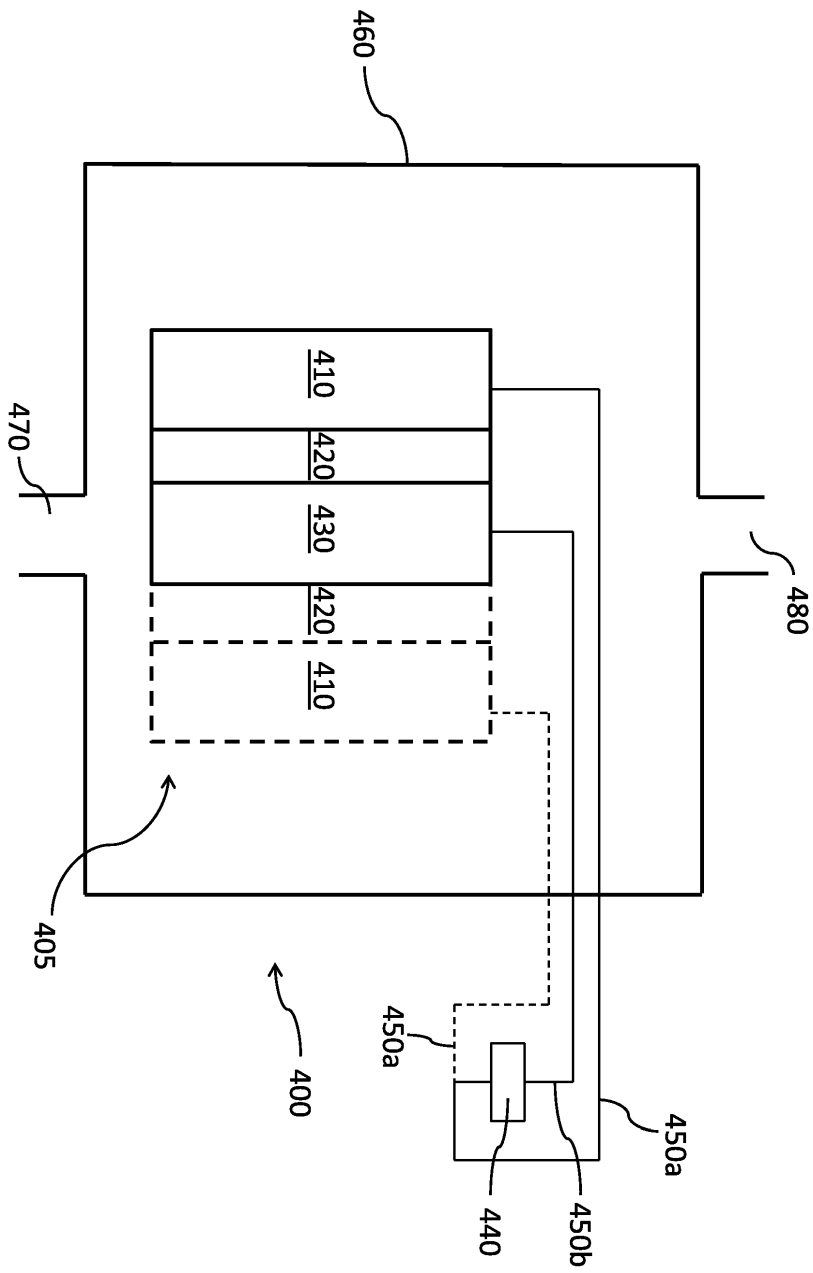
도면2b



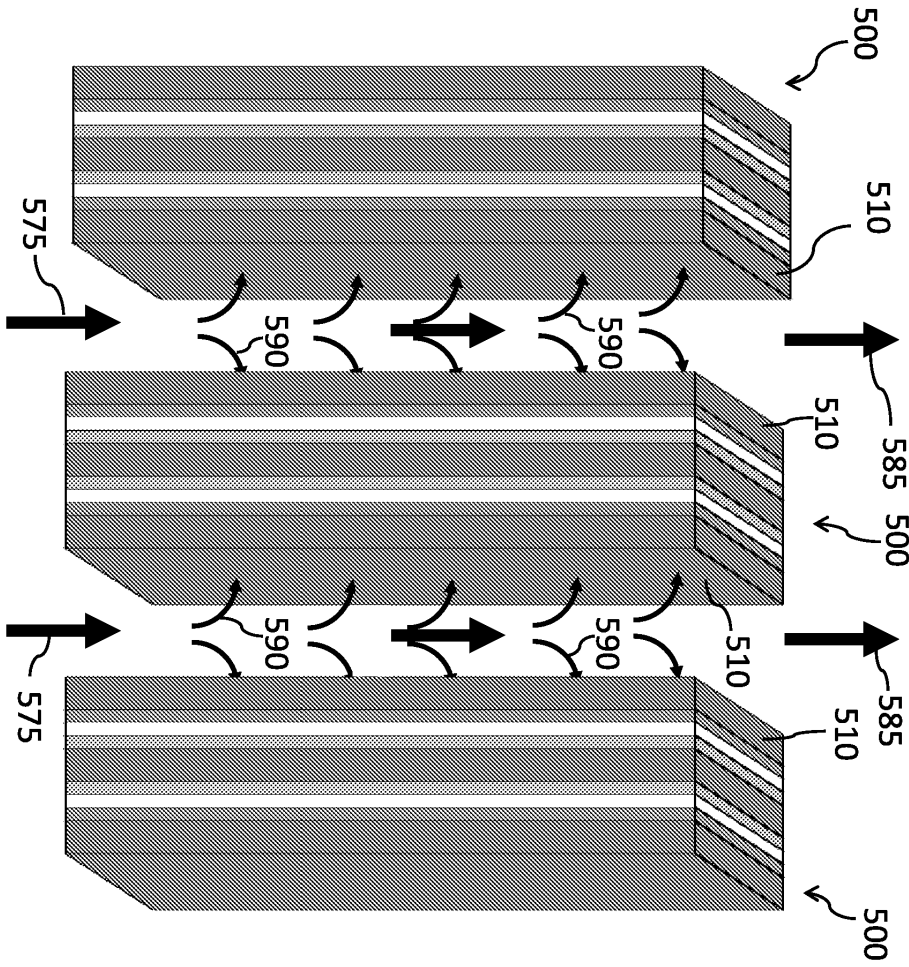
도면3



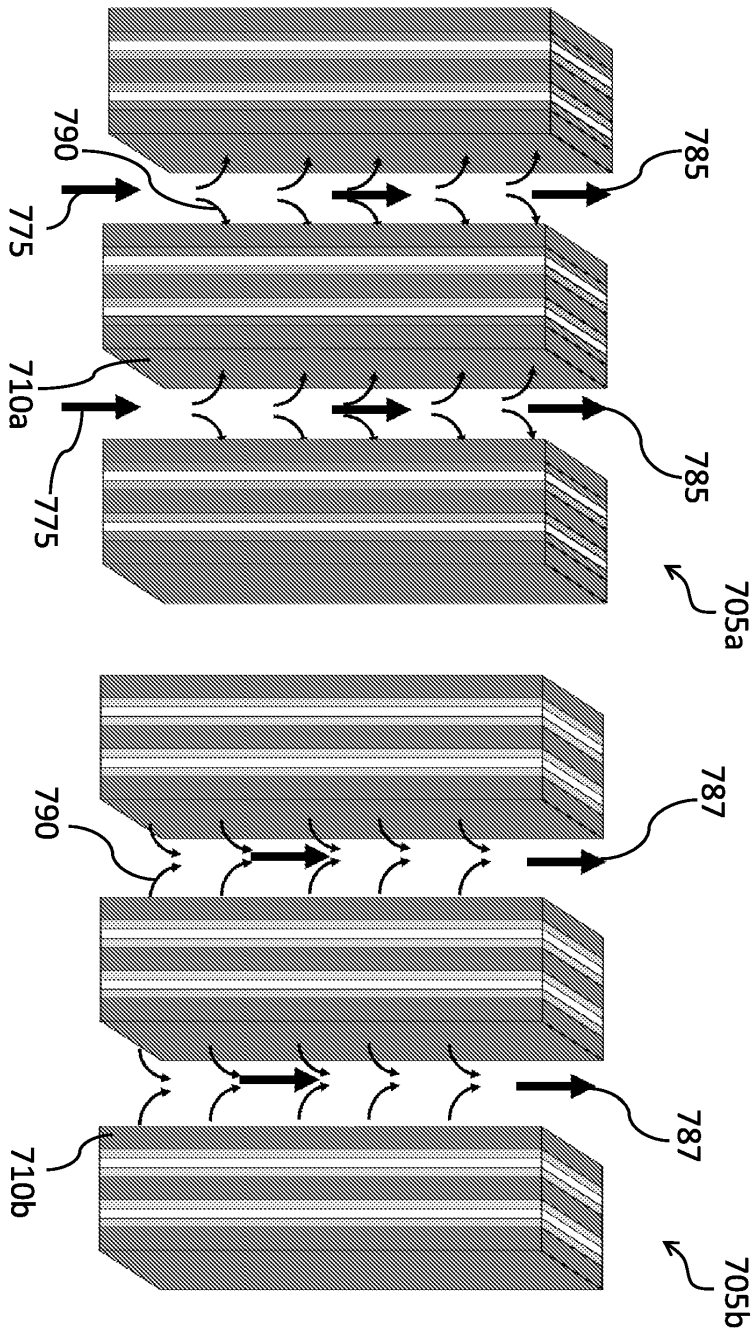
도면4



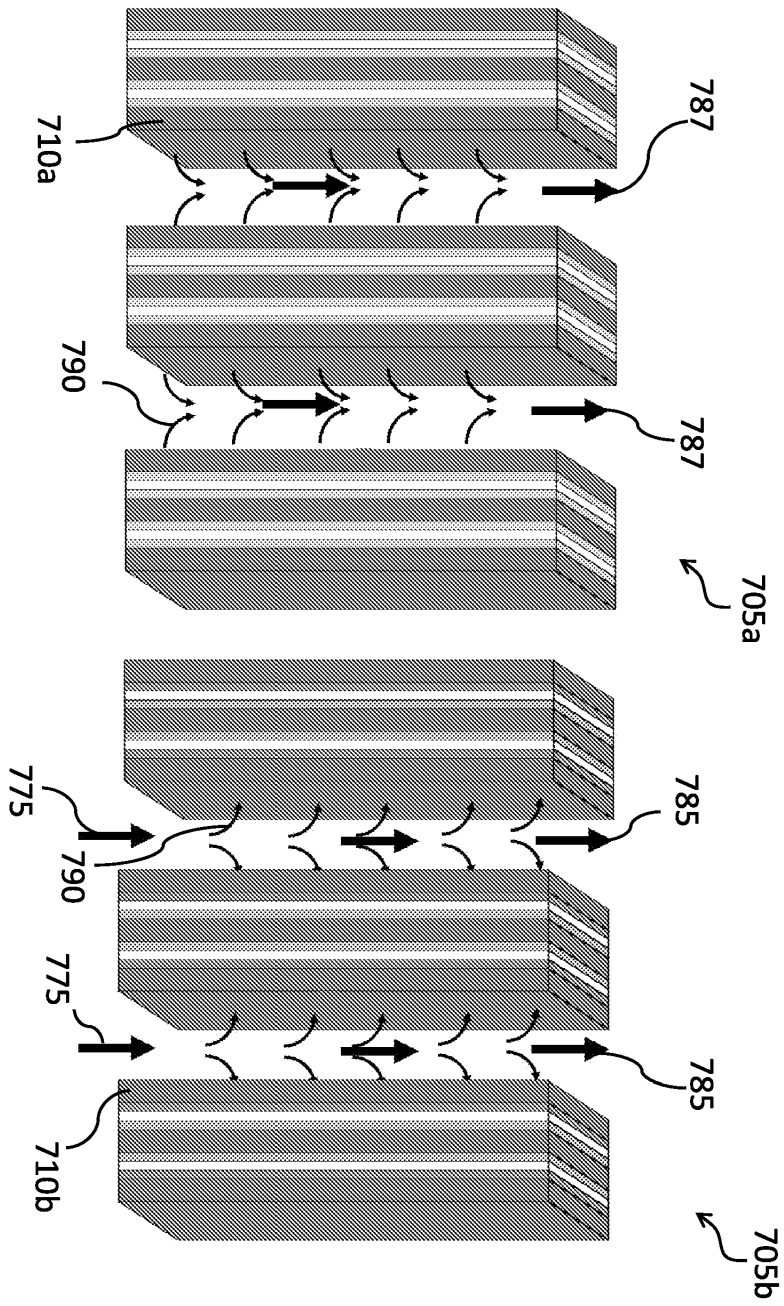
도면5



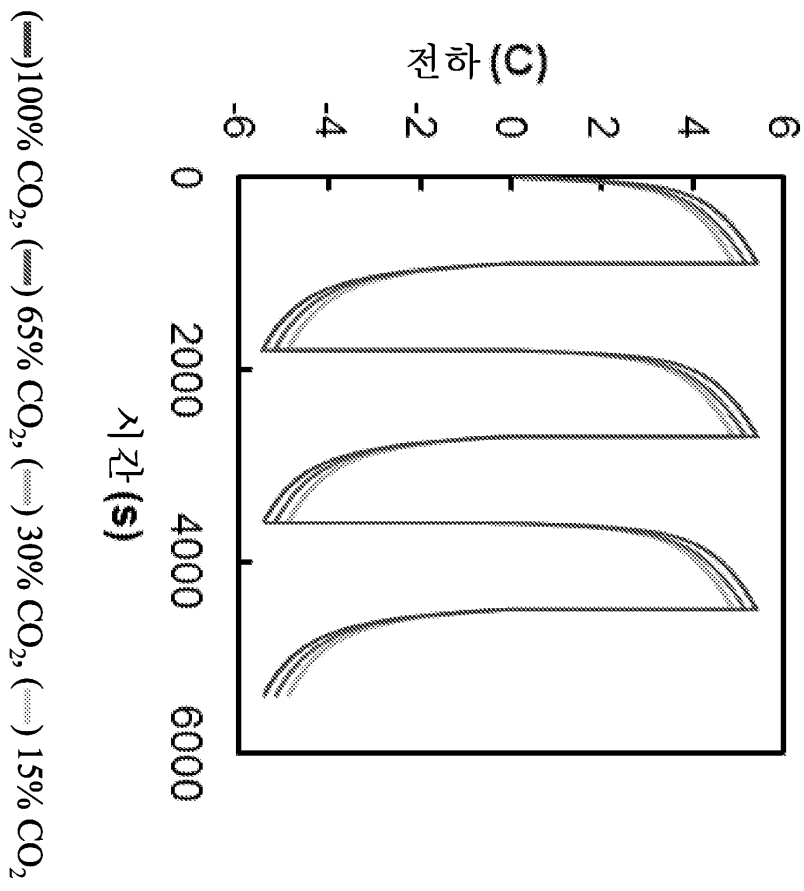
도면7a



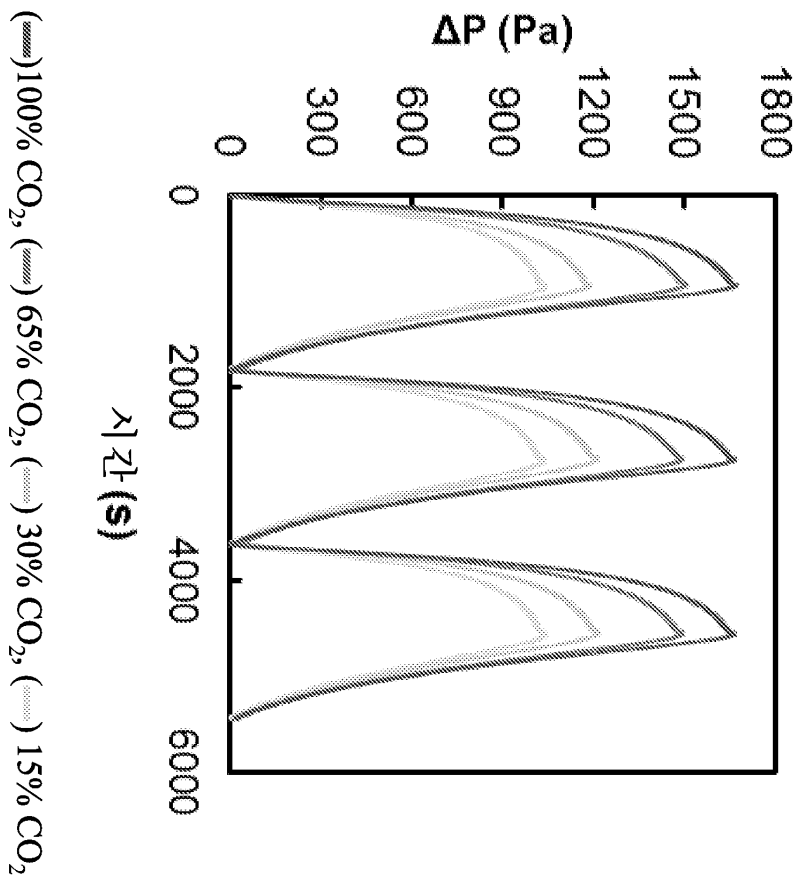
도면7b



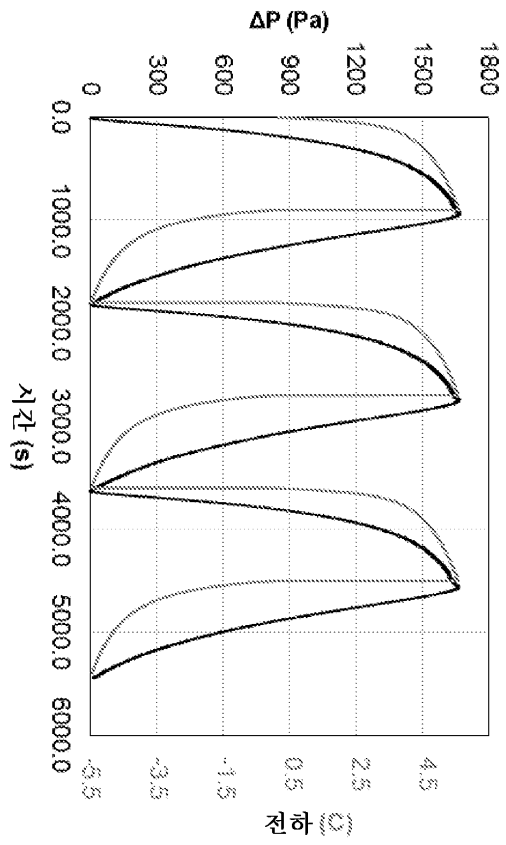
도면8a



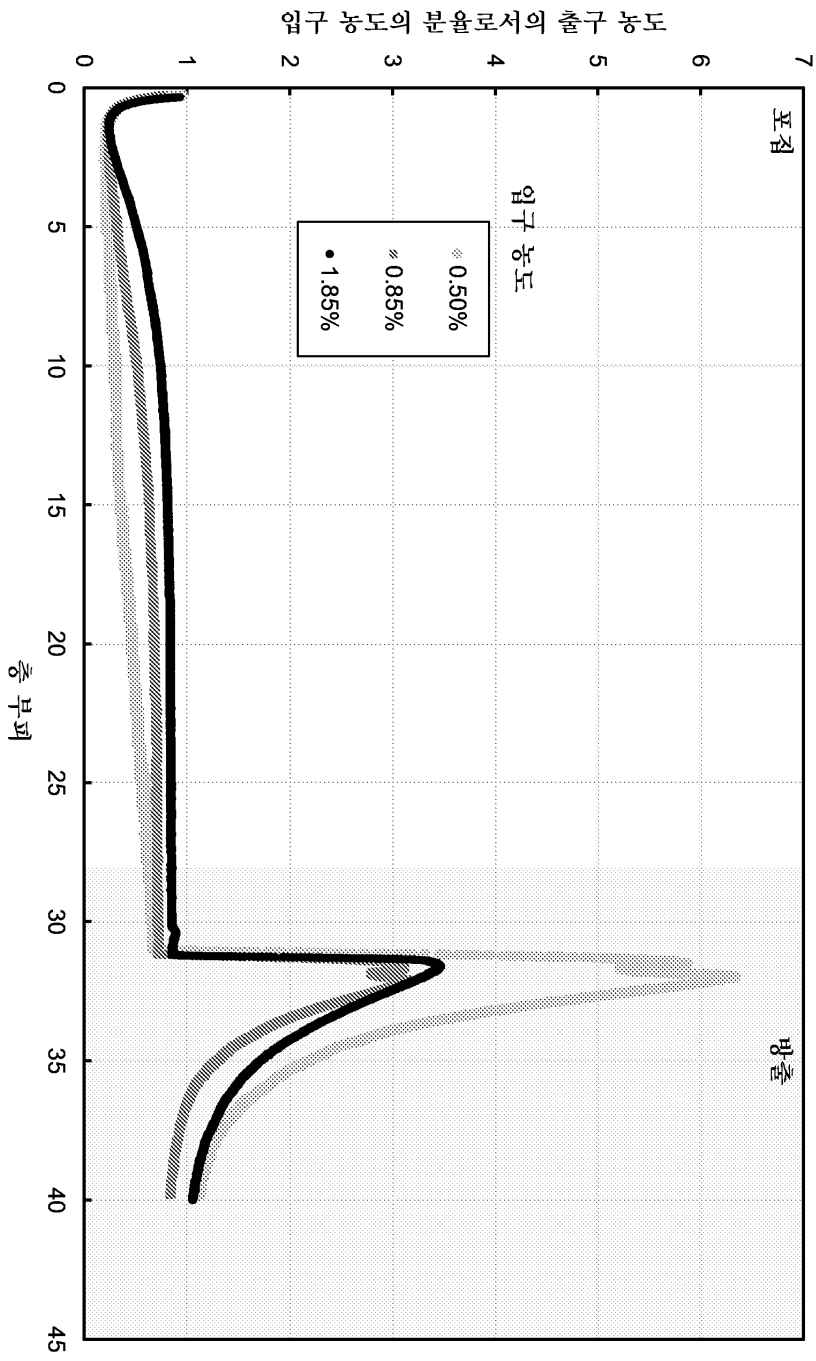
도면8b



도면8c



도면9



도면10

