

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公表特許公報(A)

(11)公表番号

特表2023-542069

(P2023-542069A)

(43)公表日 令和5年10月5日(2023.10.5)

(51)国際特許分類	F I	テーマコード (参考)
B 0 1 J 20/10 (2006.01)	B 0 1 J 20/10 C	4 D 0 1 2
B 0 1 J 20/22 (2006.01)	B 0 1 J 20/22 A	4 G 0 6 5
B 0 1 D 53/04 (2006.01)	B 0 1 D 53/04	4 G 0 6 6
B 0 1 D 53/047(2006.01)	B 0 1 D 53/04 2 3 0	4 G 0 7 2
B 0 1 J 20/34 (2006.01)	B 0 1 D 53/047	4 G 1 4 6
審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全88頁) 最終頁に続く		

(21)出願番号	特願2023-509473(P2023-509473)	(71)出願人	590003283
(86)(22)出願日	令和3年8月10日(2021.8.10)		コモンウェルス サイエнтиフィック
(85)翻訳文提出日	令和5年4月7日(2023.4.7)		アンド インダストリアル リサーチ オ
(86)国際出願番号	PCT/AU2021/050878		ーガナイゼーション
(87)国際公開番号	WO2022/032338		オーストラリア 2 6 0 1 オーストラリア
(87)国際公開日	令和4年2月17日(2022.2.17)		ン・キャピタル・テリトリー、アクトン
(31)優先権主張番号	2020902820		、クルーニーズ・ロス・ストリート
(32)優先日	令和2年8月10日(2020.8.10)	(74)代理人	100092783
(33)優先権主張国・地域又は機関	オーストラリア(AU)		弁理士 小林 浩
(81)指定国・地域	AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA	(74)代理人	100093676
	,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(		弁理士 小林 純子
	AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,A	(74)代理人	100120134
	T,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR		弁理士 大森 規雄
	,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,	(74)代理人	100158481
	最終頁に続く		弁理士 石原 俊秀
			最終頁に続く

(54)【発明の名称】 微多孔性エアロゲル

(57)【要約】

本開示は、一般に、微多孔性エアロゲル、微多孔性エアロゲルを調製するためのプロセス、及び微多孔性エアロゲルのための用途に関する。本開示はまた、一般に、ガス流から又は大気から二酸化炭素を捕捉するための装置であって、二酸化炭素を選択的に吸着及び脱着するための微多孔性エアロゲルを含む、装置に関する。

【選択図】なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

二酸化炭素（ CO_2 ）捕捉のためのシリカベースの微多孔性エアロゲルであって、前記微多孔性エアロゲルが、複数の孔を含み、前記孔のうちの少なくとも 50% が、約 2 nm 未満の直径を有する、微多孔性エアロゲル。

【請求項 2】

前記エアロゲルが、約 10 体積% 未満の CO_2 濃度を有する環境における空気から、 CO_2 を吸着する、請求項 1 に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 3】

前記エアロゲルが、約 2 体積% 未満の CO_2 濃度を有する閉鎖環境における空気から、 CO_2 を吸着する、請求項 1 又は 2 に記載の微多孔性エアロゲル。

10

【請求項 4】

前記エアロゲルが、約 0.04 体積% の CO_2 濃度を有する環境における空気から、 CO_2 を吸着する、請求項 1～3 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 5】

前記エアロゲルの前記 CO_2 吸着が、少なくとも 0.47 mmol/g である、請求項 4 に記載の微多孔性エアロゲル。

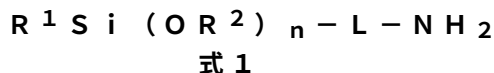
【請求項 6】

前記エアロゲルが、少なくとも 1 つのアミノ置換シラン、少なくとも 1 つのシリケート、及び任意選択的に、少なくとも 1 つのアルキル置換シランの反応生成物を含む、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

20

【請求項 7】

前記アミノ置換シランが、式 1 に従うものであり、



式中、

R^1 が、 $\text{C}_1 \sim 6$ アルキルであるか、又は不在であり、

R^2 が、 $\text{C}_1 \sim 6$ アルキルであり、

L が、ケイ素と窒素原子との間の $-\text{C}_1 \sim 6$ アルキル-リンカー基であり、

n が、2 又は 3 である、請求項 6 に記載の微多孔性エアロゲル。

30

【請求項 8】

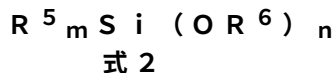
前記アミノ置換シランが、少なくとも約 40 mol% の充填% を有する、請求項 7 に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 9】

前記アミノ置換シランが、約 60 mol% 未満の充填% を有する、請求項 6～8 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 10】

前記アルキル置換シランが、式 2 に従うものであり、



40

式中、

R^5 及び R^6 が、各々独立して、 $\text{C}_1 \sim 6$ アルキルから選択され、

m が、1 であり、 n が、3 であるか、又は m 及び n が、各々 2 である、請求項 6 に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 11】

前記アルキル置換シランが、少なくとも約 10 mol% の充填% を有する、請求項 6～10 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 12】

前記アルキル置換シランが、約 40 mol% 未満の充填% を有する、請求項 6～11 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

50

【請求項 13】

式 3 に従う少なくとも 1 つのシリケートの前記反応生成物を更に含み、



式 3

式中、

R^7 が、 $\text{C}_{1\sim 6}$ アルキルである、請求項 6 に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 14】

前記シリケートが、少なくとも約 20 mol % の充填 % を有する、請求項 6 ～ 13 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 15】

前記シリケートが、約 40 mol % 未満の充填 % を有する、請求項 6 ～ 14 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 16】

アミノシラン基の含有量が、二酸化炭素 (CO_2) 捕捉を容易にするための遊離アミン基を提供するのに有効であり、遊離アミン含有量が、約 60 mol % 未満である、請求項 6 ～ 15 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 17】

前記アミノ置換シランが、約 40 ～ 約 60 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル (ジエトキシ) メチルシランである、請求項 16 に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 18】

前記アミノ置換シランが、約 40 ～ 約 60 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル (トリエトキシ) シランである、請求項 16 に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 19】

前記エアロゲルの密度が、約 0.02 g / cm^3 ～ 約 0.6 g / cm^3 の範囲にある、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 20】

前記エアロゲルの密度が、約 0.2 g / cm^3 ～ 約 0.6 g / cm^3 の範囲にある、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 21】

前記エアロゲルが、粒子、粉末、ビーズ、顆粒、シート / 層、キャストブロック、シリンドー、ディスク、多孔質膜又はモノリスの形態にある、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 22】

前記エアロゲルが、複数の粒子、粉末、ペレット、ビーズ、顆粒、コーティング、フィルム、又はシート / 層である、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 23】

前記エアロゲルが、自己支持性エアロゲルである、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 24】

前記エアロゲルが、基材上にコーティング組成物又はフィルムとして適用されるように適用されている、請求項 1 ～ 21 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 25】

前記エアロゲルが、約 0.1 m^2 / g ～ 約 500 m^2 / g の範囲にある表面積を有する、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 26】

前記エアロゲルが、約 2 m^2 / g ～ 約 200 m^2 / g の範囲の表面積を有する、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 27】

前記エアロゲルが、約 0.1 nm ～ 約 2 nm の範囲にある孔サイズを有する、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 28】

前記エアロゲルが、緩衝液、結合剤、任意選択的に金属有機構造体（MOF）、及びナノ粒子から選択される1つ以上の添加剤を含む、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 29】

前記アミノシラン基の含有量が、二酸化炭素（CO₂）捕捉を容易にするための遊離アミン基を提供するのに有効であり、前記遊離アミン含有量が、約50mol%未満である、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 30】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約40mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランであり、前記シリケートが、約20mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

10

【請求項 31】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、前記アルキル置換シランが、約40mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランであり、前記シリケートが、約20mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

20

【請求項 32】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約20mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランであり、前記シリケートが、約40mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 33】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、前記アルキル置換シランが、約20mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランであり、前記シリケートが、約40mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

30

【請求項 34】

アミノ置換シラン及びアルキル置換シランの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約60mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

40

【請求項 35】

アミノ置換シラン及びアルキル置換シランの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、前記アルキル置換シランが、約60mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 36】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約60mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、前記アルキル置換シランが、約20mol%の充填%を有するトリエト

50

キシメチルシランであり、前記シリケートが、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1 ～ 4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 37】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 40 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約 40 mol % の充填 % を有するトリエトキシ（エチル）シランであり、前記シリケートが、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1 ～ 4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

10

【請求項 38】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 40 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、前記アルキル置換シランが、約 40 mol % の充填 % を有するトリエトキシ（エチル）シランであり、前記シリケートが、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1 ～ 4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 39】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 40 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約 40 mol % の充填 % を有するジメチルジエトキシシランであり、前記シリケートが、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1 ～ 4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

20

【請求項 40】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 40 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約 20 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシランと、約 20 mol % の充填 % を有するジメチルジエトキシシランとの混合物であり、前記シリケートが、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1 ～ 4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

30

【請求項 41】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 60 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約 10 mol % の充填 % を有するジメチルジエトキシシランであり、前記シリケートが、約 30 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1 ～ 4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 42】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 40 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約 30 mol % の充填 % を有するジメチルジエトキシシランであり、前記シリケートが、約 30 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1 ～ 4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

40

【請求項 43】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 40 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、前記アルキル置換シランが、約 20 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシランと、約 20 mol % の充填 % を有するジメチルジエトキシシランとの混

50

合物であり、前記シリケートが、約20mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項44】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約20mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランと、約20mol%の充填%を有するトリエトキシ（エチル）シランとの混合物であり、前記シリケートが、約20mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項45】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約60mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約20mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランであり、前記シリケートが、約20mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項46】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約60mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、前記アルキル置換シランが、約20mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランであり、前記シリケートが、約20mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項47】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約60mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約10mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランと、約10mol%の充填%を有するトリエトキシ（エチル）シランとの混合物であり、前記シリケートが、約20mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項48】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約50mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約15mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランと、約15mol%の充填%を有するトリエトキシ（エチル）シランとの混合物であり、前記シリケートが、約20mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項49】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約50mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約25mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランであり、前記シリケートが、約25mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項50】

アミノ置換シラン及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約60mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記シリケートが、約40mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項51】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約60mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約20mol%の充填%を有するトリエトキシ（エチル）シランであり、前記シリケートが、約20mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項52】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、約40mol%の充填%を有する前記アミノ置換シラン3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシラン、前記アルキル置換シランが、約40mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシラン、及び約20mol%の充填%を有するトリエトキシ（エチル）シランである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

10

【請求項54】

前記反応生成物が、ワンポット合成を介して調製されている、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項55】

前記エアロゲルが、複合体の形態にあり、前記複合体が、1つ以上の添加剤、及び任意選択的に潤滑剤を更に含む、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項56】

前記1つ以上の添加剤が、結合剤、任意選択的に金属有機構造体（MOF）、及びナノ粒子から選択される、請求項55に記載の複合体。

20

【請求項57】

前記添加剤が、前記エアロゲルの総重量に基づいて約5～約35重量%の量にある、請求項55又は56に記載の複合体。

【請求項58】

前記複合体が、ペレット、ビーズ、シート、又は顆粒の形態で自己支持性である、請求項55～57のいずれか一項に記載の複合体。

【請求項59】

前記複合体が、基材上にコーティング組成物、ペースト、又はフィルムとして適用されている、請求項55～57のいずれか一項に記載の複合体。

30

【請求項60】

（i）請求項1～52のいずれか一項に記載のアミノ置換シラン、シリケート、及び任意選択的にアルキル置換シランの反応生成物、又はそれらの組み合わせを含む、微多孔性エアロゲルと、

（ii）1つ以上の添加剤であって、前記添加剤が約5～約35重量%の充填%を有する、添加剤と、

（iii）任意選択的に潤滑剤と、

（iv）任意選択的に溶媒と、からなる、エアロゲル複合体。

【請求項61】

前記1つ以上の添加剤が、結合剤、任意選択的に金属有機構造体（MOF）、及びナノ粒子から選択される、請求項60に記載のエアロゲル複合体。

40

【請求項62】

前記結合剤が、セルロース系ポリマー、シラン系ポリマー、セルロースーシロキサン系ポリマー、ポリグリコール系ポリマー、ポリビニルピロリドン、ポリビニルアルコール、ポリエチレンイミン、ベントナイト、黒鉛、又はそれらの組み合わせから選択される、請求項61に記載のエアロゲル複合体。

【請求項63】

前記溶媒が、水、非水性溶媒、又はそれらの組み合わせである、請求項60～62のいずれか一項に記載のエアロゲル複合体。

【請求項64】

50

二酸化炭素（ CO_2 ）捕捉のためのシリカベースの微多孔性エアロゲルを調製するためのプロセスであって、前記微多孔性エアロゲルが、複数の孔を含み、前記孔のうちの少なくとも50%が、約2nm未満の直径を有し、前記プロセスが、

（i）（a）少なくとも1つのアミノ置換シラン、少なくとも1つのシリケート、及び任意選択的に少なくとも1つのアルキル置換シラン、任意選択的に緩衝液、任意選択的に1つ以上の添加剤、及び溶媒系を含む、水性溶液を混合して、湿潤ゲルマトリックスを形成することと、

（ii）前記湿潤ゲルマトリックスを乾燥させて、乾燥したシリカベースのエアロゲルを提供することと、を含む、

ただし、前記湿潤ゲルマトリックスの乾燥が、超臨界 CO_2 を伴わない、プロセス。

10

【請求項65】

ステップ（i）が、ステップ（i）（b）前記湿潤ゲルマトリックスをすすぐことを更に含む、請求項64に記載のプロセス。

【請求項66】

前記プロセスが、ゾルゲルプロセスであり、ステップ（ii）が、

（a1）任意選択的に、前記湿潤ゲルマトリックスを加熱してゲルを得ることと、

（a2）溶媒蒸発及び／又は熱処理により前記ゲルを乾燥させて、乾燥したシリカベースのエアロゲルを提供することと、を含む、請求項64又は65に記載のプロセス。

【請求項67】

ステップ（ii）が、

20

（b1）前記湿潤ゲルマトリックスを基材に適用して、前記基材をコーティングする湿潤ゲルフィルムを形成することと、

（b2）溶媒蒸発及び／又は熱処理により前記湿潤ゲルフィルムを乾燥させて、乾燥したシリカベースのコーティング基材を提供することと、を更に含む、請求項64又は65に記載のプロセス。

【請求項68】

前記乾燥ステップ（ii）が、真空乾燥又は凍結乾燥である、請求項64～67のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項69】

前記アミノ置換シランが、請求項7に定義されるような式1のものである、請求項64～68のいずれか一項に記載のプロセス。

30

【請求項70】

前記アルキル置換シランが、請求項10に定義されるような式2のものである、請求項64～69のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項71】

前記シリケートが、請求項13に従って定義されるような式3のものである、請求項64～70のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項72】

前記プロセスが、

（c1）請求項1～52のいずれか一項に記載の、若しくはそれらの組み合わせによるエアロゲル、ペレットへの1つ以上の添加剤、及び任意選択的に潤滑剤からなる混合物を圧縮することであって、前記添加剤が、約5～約35重量%の充填%を有する、圧縮すること、又は

40

（c2）粘性ペーストを提供するための、請求項1～52のいずれか一項に記載の、若しくはそれらの組み合わせによるエアロゲル、1つ以上の添加剤、及び任意選択的に潤滑剤からなる混合物の液体押し出し成形であって、前記添加剤が、約5～約35重量%の充填%を有する、液体押し出し成形によって、エアロゲル複合体を調製することを更に含む、請求項68～70のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項72】

前記1つ以上の添加剤が、緩衝液、結合剤、任意選択的に金属有機構造体（MOF）、

50

及びナノ粒子から選択される、請求項 6 4～7 1 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 7 3】

前記エアロゲル又は複合体が、複数の粒子、粉末、ペレット、ビーズ、顆粒、コーティング、フィルム、又はシート／層として提供される、請求項 6 4～7 2 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 7 4】

前記エアロゲル又は複合体が、自己支持性シリカベースのエアロゲル又は複合体である、請求項 6 4～6 6 及び 6 8～7 3 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 7 5】

前記溶媒が、水、非水性溶媒、又はそれらの組み合わせである、請求項 6 4～7 4 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 7 6】

前記プロセスが、ステップ (i i i) 活性化ステップを更に含む、請求項 6 4～7 5 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 7 7】

アミノ置換シランの量が、総エアロゲルに基づいて約 1 0 %～約 8 0 % の範囲にある、請求項 6 4～7 6 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 7 8】

アルキル置換シランの量が、総エアロゲルに基づいて約 1 0 %～約 8 0 % の範囲にある、請求項 6 4～7 7 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 7 9】

シリケートの量が、総エアロゲルに基づいて約 1 0 %～約 5 0 % の範囲にある、請求項 6 4～7 8 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 8 0】

二酸化炭素 (CO_2) のためのシリカベースの微多孔性エアロゲルであって、前記微多孔性エアロゲルが、複数の孔を含み、前記孔のうちの少なくとも 5 0 % が、約 2 nm 未満の直径を有し、請求項 6 4～7 9 のいずれか一項に記載のプロセスによって調製される、微多孔性エアロゲル。

【請求項 8 1】

二酸化炭素 (CO_2) 捕捉のためのシリカベースの微多孔性エアロゲルであって、前記微多孔性エアロゲルが、複数の孔を含み、前記孔のうちの少なくとも 5 0 % が、約 2 nm 未満の直径を有し、請求項 3 0～5 2 のいずれか一項に記載の反応生成物を含み、請求項 6 4～7 9 のいずれか一項に記載のプロセスによって調製される、微多孔性エアロゲル。

【請求項 8 2】

CO_2 を含有するガス流又は大気から二酸化炭素 (CO_2) を捕捉するためのプロセスであって、

前記ガス流又は大気から少なくとも一部の CO_2 を捕捉するために、前記ガス流又は大気をエアロゲルと接触させることを含み、

前記エアロゲルが、請求項 1～5 2 のいずれか一項に記載されているか、又は請求項 6 4～7 9 のいずれか一項に記載のプロセスによって調製されるエアロゲルである、プロセス。

【請求項 8 3】

前記ガス流又は大気が、約 1 5 0 , 0 0 0 p p m 未満の CO_2 濃度を有する、請求項 8 2 に記載のプロセス。

【請求項 8 4】

前記ガス流又は大気が、約 3 , 0 0 0 p p m～約 1 5 0 , 0 0 0 p p m の範囲の CO_2 濃度を有し、前記プロセスが、外部発電所 (D A C e x) における直接空気捕捉である、請求項 8 2 又は 8 3 に記載のプロセス。

【請求項 8 5】

前記ガス流又は大気が、約 7 , 0 0 0 p p m 未満の CO_2 濃度を有する、請求項 8 2～

10

20

30

40

50

84のいずれか一項に記載のプロセス

【請求項86】

前記ガス流又は大気が、約5,000ppm未満のCO₂濃度を有する、請求項82～85のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項87】

前記ガス流又は大気が、約4,000ppm～約5,000ppmの範囲のCO₂濃度を有し、前記プロセスが、マスク又は個人用保護具(DACP)内の呼気の直接空気捕捉(DAC)である、請求項82～86のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項88】

前記ガス流又は大気が、約2,000ppm未満のCO₂濃度を有し、前記プロセスが、屋内密閉環境(DACi)における直接空気捕捉(DAC)である、請求項82～87のいずれか一項に記載のプロセス。

10

【請求項89】

前記ガス流又は大気が、周囲空気である、請求項82～88のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項90】

前記ガス流又は大気が、約500ppm未満であり、前記プロセスが、直接空気捕捉(DAC)である、請求項82～89のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項91】

前記ガス流又は大気を前記エアロゲルと前記接触させることが、前記エアロゲルを含むベッドに前記ガス流又は大気を通過させることを含む、請求項82～90のいずれか一項に記載のプロセス。

20

【請求項92】

CO₂のうちの少なくとも約50%～約99%が、前記ガス流又は大気から除去される、請求項82～91のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項93】

前記プロセスが、前記エアロゲルから吸収されたCO₂を脱着するための再生回収プロセスを更に含む、請求項82～92のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項94】

前記再生回収プロセスが、圧力を低減させることによって、低CO₂を有するガスの流れによって、又はそれらの組み合わせによって、前記エアロゲルを約60℃～約140℃の温度範囲に加熱して、前記吸収されたCO₂を前記エアロゲルから脱着することを含む、請求項93に記載のプロセス。

30

【請求項95】

前記エアロゲルが、前記エアロゲルを蒸気と接触させることによって加熱される、請求項94に記載のプロセス。

【請求項96】

CO₂を含有するガス流又は大気から二酸化炭素(CO₂)を捕捉するための吸着装置であって、請求項1～52に従って定義されるような、及び／又は請求項64～79に従って調製されるような、少なくとも1つのシリカベースのエアロゲルを囲むチャンバであって、ガス流が前記シリカベースのエアロゲルに流れることができる入口と、排出ガス流が前記シリカベースのエアロゲルから流れ出ることができる出口と、を備える、前記チャンバを備える、装置。

40

【請求項97】

前記チャンバの前記入口と出口との間に位置されている前記少なくとも1つのシリカベースのエアロゲル、並びに前記入口及び出口が、前記チャンバの反対側の端部にある、請求項96に記載の装置。

【請求項98】

前記チャンバが、ペレットの形態でシリカベースのエアロゲルを含む、請求項96又は97に記載の装置。

50

【請求項 99】

前記チャンバが、前記チャンバ内に位置するか、又はパッキングされた前記シリカベースのエアロゲルを用いてコーティングされた基材を含む、請求項 98 に記載の装置。

【請求項 100】

前記装置が、前記ガス流に平行に接続された、少なくとも 1 つのシリカベースのエアロゲルを囲む 2 つ以上のチャンバを備える、請求項 96 ～ 99 のいずれか一項に記載の装置。

【請求項 101】

前記装置が、各チャンバ内に少なくとも 1 つのシラン系エアロゲルを囲む少なくとも 3 つのチャンバを備え、各チャンバが、前記ガス流に平行に接続されている、請求項 95 ～ 100 のいずれか一項に記載の装置。

10

【請求項 102】

前記少なくとも 3 つのチャンバ内に囲まれた前記シリカベースエアロゲルが、吸着及び再生サイクルの異なるセクションにおいて動作して、前記排出ガス流の連続的な流れを生成する、請求項 95 ～ 101 のいずれか一項に記載の装置。

【請求項 103】

前記出口からの前記排出ガス流が、種々の二次プロセスに流れる、請求項 102 に記載の装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

20

【0001】

本開示は、一般に、微多孔性エアロゲル、微多孔性エアロゲルを調製するためのプロセス、及び微多孔性エアロゲルのための用途に関する。本開示はまた、一般に、ガス流から又は大気から二酸化炭素を捕捉するための装置であって、二酸化炭素を選択的に吸着及び脱着するための微多孔性エアロゲルを含む、装置に関する。

【背景技術】

【0002】

液体及び固体ベースの収着剤の使用を含む、CO₂ 捕捉のための様々なアプローチが使用されている。用いられる液体は、典型的には、CO₂ と化学的に反応するアルカリ性溶液を含む。しかしながら、取り込みの速度、及び材料を再生するためのエネルギー要件は課題である。加えて、高いアルカリ性の液体に起因する腐食及び蒸発を伴う問題がある。CO₂ の捕捉及び隔離に固体シャーベットを使用することは、その良好な吸着能力のために関心が高まっている。アミン官能化シリカ、酸化物、ゼオライト、炭素、ポリマー、及び金属有機構造体 (MOF) を含む、使用され得る多くの新興の固体材料がある。これらの材料はより低い再生エネルギーを提供するが、合成のコストは高くなり得、これらの材料のうちのいくつかは、高価な化学物質、有毒溶媒の使用を必要とし、複数ステップ操作 (抽出、濾過、洗浄、及び乾燥) を有し、熱的に不安定であり、かつ化学分解の影響を受けやすい。

30

【0003】

したがって、代替又は改良されたエアロゲル、及び代替又は改良されたエアロゲルを調製するためのプロセスを提供する必要がある。

40

【発明の概要】

【0004】

本開示は、代替の微多孔性エアロゲル、具体的には、二酸化炭素捕捉のためのシリカベースのエアロゲル、シリカベースのエアロゲルを調製するためのプロセス、シリカベースのエアロゲルを組み込む吸着装置、並びに関連する吸着及び脱着方法を提供する。本発明者らは、シリカベースのエアロゲルを使用してガス流から二酸化炭素 (CO₂) を捕捉するためのプロセスへの研究開発に着手している。シリカベースのエアロゲル組成物は、CO₂ 吸収効率に対する制御及び選択性を提供するように調整され得る。特に、シリカベースのエアロゲルは、エアロゲル内で CO₂ を吸収することによって、低 CO₂ 濃度のガス

50

流から CO_2 を捕捉することができ、それによってガス流から CO_2 を除去することができる。次いで、吸収された CO_2 は、シリカベースのエアロゲルから収集され得、再生されたシリカベースのエアロゲルは、より多くの CO_2 を吸収するために再利用され得る（例えば、リサイクルされ、連続的に循環される）。本明細書に記載される本開示はまた、工業用途のためにスケラブルであり得、特に CO_2 の直接空気捕捉における使用を見出され得る。シリカベースのエアロゲルの選択を使用する、本明細書に記載される本開示は、次の有利な特性：微多孔性、疎水性、 CO_2 選択性、有効捕捉のための周囲 CO_2 条件、二酸化炭素の吸着熱、及び／又は再生のための能力のうちの1つ以上を組み合わせることができる。

【0005】

一態様では、二酸化炭素捕捉のためのシリカベースのエアロゲルであって、微多孔性エアロゲルが、複数の孔を含み、孔のうちの少なくとも50%が、約2nm未満の直径を有する、エアロゲルが提供される。エアロゲルは、約10体積%未満の CO_2 濃度を有する環境における空気から、 CO_2 を吸着し得る。エアロゲルは、約2体積%未満の CO_2 濃度を有する閉鎖環境又は屋内環境（DACi）における空気から、 CO_2 を吸着し得る。エアロゲルは、約0.04体積%の CO_2 濃度を有する環境における空気から、 CO_2 を吸着し得、環境は、直接空気捕捉（DAC）である。

【0006】

ある実施形態又は実施例では、エアロゲルの CO_2 吸着は、少なくとも0.47mmol/gであり得る。

【0007】

いくつかの実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、少なくとも1つのアミノ置換シラン、少なくとも1つのシリケート、及び任意選択的に少なくとも1つのアルキル置換シランの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得る。

【0008】

ある実施形態又は実施例では、エアロゲルの密度は、約0.02g/cm³～約0.6g/cm³であり得る。ある実施形態又は実施例では、エアロゲルは、約0.1～500m²/gの表面積を有し得る。ある実施形態又は実施例では、エアロゲルは、約0.1～約2nmの孔サイズを有し得る。

【0009】

いくつかの実施形態又は実施例では、エアロゲルは、粒子、粉末、ビーズ、顆粒、シート／層、キャストブロック、シリンダー、ディスク、多孔質膜、又はモノリスの形態にあり得る。エアロゲルは、複数の粒子、粉末、ペレット、ビーズ、顆粒、コーティング、又はシート／層を含み得る。

【0010】

いくつかの実施形態又は実施例では、エアロゲルは、自己支持性エアロゲルであり得る。別の実施形態又は実施例では、エアロゲルは、基材上にコーティング組成物又はフィルムとして適用され得る。

【0011】

ある実施形態又は実施例では、反応生成物は、ワンポット合成を介して調製され得る。

【0012】

別の実施形態又は実施例では、エアロゲルは、複合体の形態にあり得、複合体は、エアロゲル、1つ以上の添加剤、任意選択的に潤滑剤、及び任意選択的に溶媒を含み得るか、又はそれらからなり得る。1つ以上の添加剤は、結合剤、任意選択的に金属有機構造体（MOF）、及びナノ粒子から選択され得る。添加剤は、エアロゲルの総重量に基づいて約5～約35重量%の量にあり得る。いくつかの実施形態又は実施例では、複合体は、ペレット、ビーズ、シート、又は顆粒の形態で自己支持性であり得る。他の実施形態では、複合体は、基材上にコーティング組成物、ペースト又はフィルムとして適用され得る。

【0013】

別の態様では、（i）本明細書に記載される実施形態若しくは実施例のいずれか1つに

10

20

30

40

50

よる、又はそれらの組み合わせによる、アミノ置換シラン、シリケート、及び任意選択的にアルキル置換シランの反応生成物を含む、微多孔性エアロゲルと、(ii) 1つ以上の添加剤であって、添加剤が約5～約35重量%の充填%を有する、添加剤と、(iii) 任意選択的に潤滑剤、及び任意選択的に溶媒と、からなる、エアロゲル複合体が提供される。1つ以上の添加剤は、結合剤、任意選択的に金属有機構造体(MOF)、及びナノ粒子から選択され得る。結合剤は、セルロース系ポリマー、シラン系ポリマー、セルロース-シロキサン系ポリマー、ポリグリコール系ポリマー、ポリビニルピロリドン、ポリビニルアルコール、ポリエチレンイミン、ベントナイト、黒鉛、又はそれらの組み合わせから選択され得る。

【0014】

別の態様では、二酸化炭素のためのシリカベースの微多孔性エアロゲルを調製するためのプロセスであって、微多孔性エアロゲルが、複数の孔を含み、孔のうちの少なくとも50%が、約2nm未満の直径を有し、プロセスが、(i) (a) 少なくとも1つのアミノ置換シラン、少なくとも1つのシリケート、及び任意選択的に少なくとも1つのアルキル置換シラン、任意選択的に緩衝液、任意選択的に1つ以上の添加剤、及び溶媒系を含む、水性溶液を混合して、湿潤ゲルマトリックスを形成することと、(ii) 湿潤ゲルマトリックスを乾燥させて、乾燥したシリカベースのエアロゲルを提供することと、を含み、ただし、湿潤ゲルマトリックスの乾燥が、超臨界CO₂を伴わない、プロセスが提供される。

【0015】

ある実施形態又は実施例では、プロセスは、ゾルゲルプロセスであり得、ステップ(i) (i) は、(a1) 任意選択的に、湿潤ゲルマトリックスを加熱してゲルを得ることと、(a2) 溶媒蒸発及び／又は熱処理によりゲルを乾燥させて、乾燥したシリカベースのエアロゲルを提供することと、を含む。

【0016】

別の実施形態又は実施例では、ステップ(ii) は、(b1) 湿潤ゲルマトリックスを基材に適用して、基材をコーティングする湿潤ゲルフィルムを形成し得、(b2) 溶媒蒸発及び／又は熱処理により湿潤ゲルフィルムを乾燥させて、乾燥したシリカベースのコーティング基材を提供することを更に含み得る。

【0017】

別の実施形態又は実施例では、プロセスは、(c1) 本明細書に記載されるような実施形態若しくは実施例のいずれか1つによる、又はそれらの組み合わせによるエアロゲル、1つ以上の添加剤、任意選択的に潤滑剤からなる混合物をペレットに圧縮することであって、添加剤が、約5～約35重量%の充填%を有する、圧縮すること、あるいは(c2) 粘性ペーストを提供するための、本明細書に記載されるような実施形態若しくは実施例のいずれか1つによる、又はそれらの組み合わせによるエアロゲル、1つ以上の添加剤、任意選択的に潤滑剤、及び任意選択的に溶媒からなる混合物の液体押し出し成形であって、添加剤が、約5～約35重量%の充填%を有する、液体押し出し成形によって、エアロゲル複合体を調製することを更に含み得るか、又はそれからなり得る。

【0018】

アミノ置換シランは、本明細書に記載される実施形態又は実施例のいずれか1つに定義されるような式1 $R^1Si(OR^2)_n-L-NH_2$ のものであり得る。

【0019】

アルキル置換シランは、本明細書に記載される実施形態又は実施例のいずれか1つに定義されるような式2 $R^5_mSi(OR^6)_n$ のものであり得る。

【0020】

シリケートは、本明細書に記載される実施形態又は実施例のいずれか1つに従って定義されるような式3 $Si(OR^7)_4$ のものであり得る。

【0021】

いくつかの実施形態又は実施例では、溶媒は、水、非水性溶媒、又はそれらの組み合わせ

10

20

30

40

50

せであり得る。

【0022】

ある実施形態又は実施例では、プロセスは、ステップ（iii）活性化ステップを更に含み得る。

【0023】

別の態様では、二酸化炭素（CO₂）のためのシリカベースの微多孔性エアロゲルであって、微多孔性エアロゲルが、複数の孔を含み、孔のうちの少なくとも50%が、約2nm未満の直径を有し、本明細書に記載される任意の1つ以上の実施形態又は実施例によるプロセスによって調製される、微多孔性エアロゲルが提供される。

【0024】

別の態様では、二酸化炭素（CO₂）捕捉のためのシリカベースの微多孔性エアロゲルであって、微多孔性エアロゲルが、複数の孔を含み、孔のうちの少なくとも50%が、約2nm未満の直径を有し、本明細書に記載される任意の1つ以上の実施形態又は実施例による反応生成物を含み、本明細書に記載される任意の1つ以上の実施形態又は実施例によるプロセスによって調製される、微多孔性エアロゲルが提供される。

【0025】

別の態様では、CO₂を含有するガス流又は大気から二酸化炭素（CO₂）を捕捉するためのプロセスであって、ガス流又は大気から少なくとも一部のCO₂を捕捉するために、ガス流又は大気をシリカベースのエアロゲルと接触させることを含み、シリカベースのエアロゲルが、本明細書に記載される実施形態若しくは実施例のいずれか1つによるものであるか、又は本明細書に記載される実施形態若しくは実施例のいずれか1つによるプロセスによって調製されたシリカベースのエアロゲルである、プロセスが提供される。

【0026】

ある実施形態では、ガス流又は大気は、約150,000ppm未満のCO₂濃度を有し得る。ガス流又は大気は、約3,000ppm～150,000ppmの範囲のCO₂濃度を有し得、プロセスは、外部発電所（Dacex）における直接空気捕捉であり得る。ガス流又は大気は、約40,000ppm未満のCO₂濃度を有し得る。ガス流又は大気は、約20,000ppm未満のCO₂濃度を有し得る。ガス流又は大気は、約10,000ppm未満のCO₂濃度を有し得る。ガス流又は大気は、約7,000ppm未満のCO₂濃度を有し得る。ガス流又は大気は、約5,000ppm未満のCO₂濃度を有し得る。ガス流又は大気は、約4,000ppm～5,000ppmの範囲のCO₂濃度を有し得、プロセスは、マスク又は個人用保護具（DACP）内の呼気の直接空気捕捉であり得る。ガス流又は大気は、約1,000ppm未満のCO₂濃度を有し得る。ガス流又は大気は、周囲空気であり得る。ガス流又は大気は、約500ppm未満であり得、プロセスは、直接空気捕捉（DAC）であり得る。本開示は、CO₂の濃度が大気レベル（DAC）であるか、又はより高い濃度が閉鎖周囲（DACi）に存在し得る、大気中のCO₂の捕捉に使用するのに好適である。

【0027】

いくつかの実施形態又は実施例では、ガス流又は大気をエアロゲルと接触させることは、エアロゲルを含むベッドにガス流又は大気を通過させることを含み得る。

【0028】

いくつかの実施形態又は実施例では、CO₂のうちの少なくとも約50%～約99%が、ガス流又は大気から除去され得る。好ましくは、CO₂のうちの少なくとも約90%が、ガス流から除去され得る。

【0029】

いくつかの実施形態又は実施例では、プロセスは、吸収されたCO₂をシリカベースのエアロゲルから脱着するための再生回収プロセスを更に含み得る。再生回収プロセスは、圧力を低減させることによって、低CO₂を有するガスの流れによって、又はそれらの組み合わせによって、シリカベースのエアロゲルを約60℃～約140℃の温度範囲に加熱して、吸収されたCO₂をシリカベースのエアロゲルから脱着することを含み得る。

【0030】

別の態様では、 CO_2 を含有するガス流又は大気から二酸化炭素（ CO_2 ）を捕捉するための吸着装置であって、本明細書に記載される実施形態若しくは実施例のいずれか1つに従って定義されるような、及び／又は本明細書に記載される実施形態若しくは実施例のいずれか1つに従って調製されるような、少なくとも1つのシリカベースのエアロゲルを囲むチャンバであって、ガス流がシリカベースのエアロゲルに流れることができる入口と、排出ガス流がシリカベースのエアロゲルから流れ出ることができる出口と、を備える、チャンバを備える、装置が提供される。

【0031】

いくつかの実施形態又は実施例では、装置は、ガス流に平行に接続された、少なくとも1つのシリカベースのエアロゲルを囲む2つ以上のチャンバを備え得る。装置は、各チャンバ内に少なくとも1つのシリカベースのエアロゲルを囲む少なくとも3つのチャンバを備え得、各チャンバは、ガス流に平行に接続され得る。少なくとも3つのチャンバ内に囲まれたシリカベースのエアロゲルは、吸着及び再生サイクルの異なるセクションにおいて動作して、排出ガス流の連続的な流れを生成し得る。

10

【0032】

いくつかの実施形態又は実施例では、出口からの排出ガス流は、種々の二次プロセスに流れ得る。

【0033】

本開示の好ましい実施形態は、例としてのみ、添付の図面を参照して更に記載及び例示される。

20

【図面の簡単な説明】

【0034】

【図1】（a）PALSを使用して決定された候補A、B、C、及びDの孔サイズ分布を示すグラフ、（b） N_2 ガスを使用して決定されたJ、P、M、及びLの孔サイズ分布を示すグラフ、（c）密度の関数としての様々な圧力での選択されたシリカベースのエアロゲルの CO_2 取り込みを示すグラフ、並びに（d）密度の関数としての様々な圧力での選択されたシリカベースのエアロゲルの CO_2 取り込みを示すグラフを示す。

【図2】シリカベースのエアロゲル候補Aについての298 Kにおける完全な CO_2 吸着等温線のグラフを示す。等温線の重要な属性は、低圧取り込み時（1 mbar未満）である。これは、直接空気捕捉が起こる箇所であり、等温線に提示されるステップ取り込みは、微多孔性材料の表示である。

30

【図3】2つの温度、313 K及び298 Kで作動するシリカベースのエアロゲル候補Aについての完全な CO_2 吸着等温線のグラフを示す。候補Aは、より高い温度で CO_2 を捕捉し、材料の作動条件を高めることができる。

【図4】シリカベースのエアロゲル候補Bについての298 Kにおける完全な CO_2 吸着等温線のグラフを示す。等温線の重要な属性は、低圧取り込み時（1 mbar未満）である。これは、直接空気捕捉が起こる箇所であり、等温線に提示されるステップ取り込みは、微多孔性材料の表示である。

【図5】2つの温度、313 K及び298 Kで作動するシリカベースのエアロゲル候補Bについての完全な CO_2 吸着等温線のグラフを示す。候補Bは、より高い温度で CO_2 を捕捉し、材料の作動条件を高めることができる。

40

【図6】シリカベースのエアロゲル候補Cについての298 Kにおける完全な CO_2 吸着等温線のグラフを示す。

【図7】2つの温度、313 K及び298 Kで作動するシリカベースのエアロゲル候補Cについての完全な CO_2 吸着等温線のグラフを示す。候補Cは、より高い温度で CO_2 を捕捉し、材料の作動条件を高めることができる。

【図8】シリカベースのエアロゲル候補Dについての298 Kにおける完全な CO_2 吸着等温線のグラフを示す。

【図9】シリカベースのエアロゲル候補Eについての298 Kにおける完全な CO_2 吸着

50

等温線のグラフを示す。

【図10】シリカベースのエアロゲル候補Jについての298 Kにおける完全なCO₂吸着等温線のグラフを示す。

【図11】シリカベースのエアロゲル候補Kについての298 Kにおける完全なCO₂吸着等温線のグラフを示す。

【図12】シリカベースのエアロゲル候補Lについての298 Kにおける完全なCO₂吸着等温線のグラフを示す。

【図13】シリカベースのエアロゲル候補Mについての298 Kにおける完全なCO₂吸着等温線のグラフを示す。

【図14】シリカベースのエアロゲル候補Nについての298 Kにおける完全なCO₂吸着等温線のグラフを示す。

【図15】シリカベースのエアロゲル候補Oについての298 Kにおける完全なCO₂吸着等温線のグラフを示す。

【図16】シリカベースのエアロゲル候補Pについての298 Kにおける完全なCO₂吸着等温線のグラフを示す。

【図17】シリカベースのエアロゲル候補Qについての298 Kにおける完全なCO₂吸着等温線のグラフを示す。

【図18】シリカベースのエアロゲル候補Rについての298 Kにおける完全なCO₂吸着等温線のグラフを示す。

【図19】TEMS及びAPEMSの含有量が増加するときの水取り込みの減少を示す、298 Kで収集されたH₂O吸着等温線のグラフを示す。候補Dは、20%のTEMSの充填のみを有し、APEMSを有さず、APEMS、TEMS、DMDES及び／又はTEESのいずれかの60～80%の様々な充填を有する他の候補材料と比較して、より高いH₂Oの取り込みを生じさせる。

【図20】乾燥及び多湿条件下（70～80%RH）で740 ppmで実施した候補A（GM86-01）、B（GM92-01）及びD（GM108-01）のCO₂ブレイクスルー曲線のグラフを示す。

【図21】乾燥及び多湿条件下（70～80%RH）で500 ppm及び740 ppmで実施した候補者BのCO₂ブレイクスルー曲線のグラフを示す。

【図22】乾燥及び多湿条件下（70～80%RH）で740 ppmで実施した候補A（GM86-01）、B（GM92-01）、D（GM108-01）及びゼオライト13XのCO₂ブレイクスルー曲線のグラフを示す。

【図23】候補Aの77 KにおけるN₂吸着等温線のグラフを示す。黒丸は吸着データポイントであり、白丸は脱着データポイントである。

【図24】候補Bの77 KにおけるN₂吸着等温線のグラフを示す。黒丸は吸着データポイントであり、白丸は脱着データポイントである。

【図25】候補Cの77 KにおけるN₂吸着等温線のグラフを示す。黒丸は吸着データポイントであり、白丸は脱着データポイントである。

【図26】候補Dの77 KにおけるN₂吸着等温線のグラフを示す。黒丸は吸着データポイントであり、白丸は脱着データポイントである。

【図27】候補Eの77 KにおけるN₂吸着等温線のグラフを示す。黒丸は吸着データポイントであり、白丸は脱着データポイントである。

【図28】候補Kの77 KにおけるN₂吸着等温線のグラフを示す。黒丸は吸着データポイントであり、白丸は脱着データポイントである。

【図29】候補Jの298 KにおけるCO₂吸着等温線のグラフを示す。この吸着等温線は、各実行間に吸着が活性化を連続的に実行させた後のエアロゲルの性能を示す。0.4 mbarでのエアロゲルの性能は、最初の吸着から10%の性能損失を伴い、同じままであった。

【図30】候補Kの298 KにおけるCO₂吸着等温線のグラフを示す。この吸着等温線は、各実行間に吸着が活性化を連続的に実行させた後のエアロゲルの性能を示す。0.4

10

20

30

40

50

m b a rでのエアロゲルの性能は、最初の吸着から1%の性能損失を伴い、同じままであった。

【図31】候補Kについての298Kにおける等温線のCO₂吸着インサートのグラフを示す。0.4m b a r圧力では、1%未満の性能損失が観察された。

【図32】乾燥条件における740ppmでの298Kのブレイクスルー実験におけるCO₂のグラフを示す。各実行の間にエアロゲルを100℃で12時間活性化させながら、5サイクルを実行した。候補Dについては、CO₂の性能損失は観察されなかった。

【図33】多湿条件における740ppmでの298Kのブレイクスルー実験におけるCO₂のグラフを示す。各実行の間にエアロゲルを100℃で12時間活性化させながら、5サイクル（実行6～10）を実行した。サイクリング実験中に20%の性能損失が観察された。このCO₂除去は、同じ条件下での市販のゼオライト13Xサンプルを上回っている。

【図34】ゼオライト13Xペレット及びTIF-SIXペレットとの比較を提供する、候補B、E及びKペレットの298KでのH₂O吸着のグラフを示す。

【発明を実施するための形態】

【0035】

本開示は、シリカベースのエアロゲルを使用して、ガス流（例えば、大気）から二酸化炭素（CO₂）を捕捉するためのプロセスを特定するために行われる調査に関連する、以下の様々な非限定的な実施形態を記載する。シリカベースのエアロゲルは、低CO₂濃度のガス流からCO₂を吸収するために使用することができることが見出された。シリカベースのエアロゲルは、CO₂を吸収及び保持することができる、少なくとも1つのアミノ置換シラン、及び少なくとも1つのアルキル置換シランの反応生成物を含む。捕捉されたCO₂は、シリカベースのエアロゲルから除去することができ、再生されたシリカベースのエアロゲルは、低CO₂濃度の環境からCO₂を捕捉するための吸着剤材料として再利用することができる。

【0036】

一般定義及び用語

以下の説明では、本明細書の一部を形成し、例示としていくつかの実施形態を示す添付の図面を参照する。他の実施形態を利用してもよく、本開示の範囲から逸脱することなく構造変更を行ってもよいことが理解される。

【0037】

本明細書で提供される定義に関して、別段の記載がない限り、又は文脈から暗黙的に示されない限り、定義される用語及び語句は、提供される意味を含む。明示的に別段の記載がない限り、又は文脈から明らかでない限り、以下の用語及び語句は、用語又は語句が当業者によって獲得されている意味を排除するものではない。本定義は、特定の実施形態を記載するのに役立つために提供され、本発明の範囲が特許請求の範囲によってのみ限定されるため、特許請求の範囲の発明を限定することを意図しない。更に、文脈によって別段の要求がない限り、単数形の用語は複数形を含み、複数形の用語は単数形を含むものとする。

【0038】

本明細書で議論され、及び／又は参照される全ての刊行物は、それらの全体が本明細書に組み込まれる。

【0039】

本明細書に含まれている文書、行為、材料、デバイス、物品などの任意の議論は、単に本開示のための文脈を提供する目的のためである。これらの事項のうちのいずれか又は全てが、先行技術の基礎の一部を形成するか、又は本出願の各特許請求の範囲の優先日より前に存在していたような、本開示に関連する分野における共通の一般的な知識であったと認めているものとして受け取られるべきではない。

【0040】

本開示を通して、別段の具体的な記載がない限り、又は文脈が別段の記載を必要としな

10

20

30

40

50

い限り、単一のステップ、物質の組成物、ステップの群、又は物質の組成物の群への言及は、それらのステップ、物質の組成物、ステップの群、又は物質の組成物の群のうちの1つ及び複数（すなわち、1つ以上）を包含するように受け取られるものとする。したがって、本明細書で使用される場合、単数形「a」、「an」、及び「the」は、文脈が明示的に別段に示さない限り、複数態様を含む。例えば、「a」への言及は、単一及び2つ以上を含み、「an」への言及は、単一及び2つ以上を含み、「the」への言及は、単一及び2つ以上を含むなどである。

【0041】

当業者は、本明細書の開示が、具体的に記載されるもの以外の変形及び変更を受けやすいことを理解するであろう。本開示は、そのような全ての変形及び変更を含むことを理解されたい。本開示はまた、本明細書において個別に又は集合的に言及又は示される、実施例、ステップ、特徴、方法、組成物、コーティング、プロセス、及びコーティング基材のうちの全て、並びに当該ステップ又は特徴のうちのいずれか及び全ての組み合わせ、又はいずれかの2つ以上を含む。

10

【0042】

「及び／又は」という用語、例えば、「X及び／又はY」は、「X及びY」又は「X又はY」のいずれかを意味することを理解されるものとし、両方の意味又はいずれかの意味のための明示的な支持を提供するように受け取られるものとする。

【0043】

別段の指示がない限り、「第1の」、「第2の」などという用語は、本明細書で単にラベルとして使用され、これらの用語が指す項目に順序的、位置的、又は階層的要件を課することを意図しない。更に、「第2の」項目への言及は、下位番号の項目（例えば、「第1の」項目）、及び／又は上位番号の項目（例えば、「第3の」項目）の存在を必要としないか、又は排除しない。

20

【0044】

本明細書で使用される場合、「のうちの少なくとも1つ」という語句は、項目のリストとともに使用されるとき、リストされた項目のうちの1つ以上の異なる組み合わせが使用され得、かつリスト内の項目のうちの1つのみが必要とされ得ることを意味する。項目は、特定のオブジェクト、物、又はカテゴリであり得る。換言すると、「のうちの少なくとも1つ」は、リストからの項目のいずれかの組み合わせ又は項目の数を使用され得るが、リスト内の項目のうちの全てが必要ではない場合があることを意味する。例えば、「項目A、項目B、及び項目Cのうちの少なくとも1つ」は、項目A；項目A及び項目B；項目B；項目A、項目B、及び項目C；又は項目B及び項目Cを意味し得る。場合によっては、「項目A、項目B、及び項目Cのうちの少なくとも1つ」は、例えば、限定されないが、項目Aのうちの2つ、項目Bのうちの1つ、及び項目Cのうちの10個、項目Bのうちの4つ及び項目Cのうちの7つ、又は他のいくつかの好適な組み合わせを意味し得る。

30

【0045】

本明細書で使用される場合、「約」という用語は、反対に記載されない限り、典型的には、指定された値の+／-10%、例えば、+／-5%を指す。

【0046】

別個の実施形態の文脈において、明瞭にするために本明細書に記載されるある特定の特徴が、単一の実施形態において組み合わせで提供され得ることも理解されたい。逆に、単一の実施形態の文脈において、簡潔にするために記載される様々な特徴は、別個に、又は任意のサブ組み合わせにおいても提供され得る。

40

【0047】

本明細書を通して、本発明の様々な態様及び構成成分は、範囲形式において提示され得る。範囲形式は便宜上含まれており、本発明の範囲に対する柔軟性のない限定として解釈されるべきではない。したがって、範囲の説明は、具体的に指示がない限り、その範囲内の全ての可能なサブ範囲及び個別の数値を具体的に開示しているとみなされるべきである。例えば、1～5などの範囲の説明は、サブ範囲、例えば、1～3、1～4、1～5、2

50

～4、2～5、3～5など、並びに整数が必要とされない限り、又は文脈から暗黙的でない限り、列挙された範囲内の個別の及び部分的な数、例えば、1、2、3、4、5、5.5及び6を具体的に開示しているとみなされるべきである。これは、開示される範囲の幅に関係なく適用される。特定の値が必要とされる場合、これらは本明細書内に示される。

【0048】

本明細書を通して、「comprise（含む）」という単語、又は「comprises（含む）」若しくは「comprising（含む）」などの変形は、記載された要素、整数若しくはステップ、又は要素、整数若しくはステップの群の包含を意味するが、任意の他の要素、整数若しくはステップ、又は要素、整数若しくはステップの群の排除を意味するものではないと理解されるであろう。

10

【0049】

本明細書を通して、「から本質的になる」という用語は、特許請求される組成物の特性に実質的に影響を与える要素を除外することを意図している。

【0050】

本明細書において「含む（comprising）」、「含む（comprise）」、及び「含む（comprises）」という用語は、それぞれ、あらゆる場合において、任意選択的に、「から本質的になる（consisting essentially of）」、「から本質的になる（consist essentially of）」、「から本質的になる（consists essentially of）」、「からなる（consisting of）」、「からなる（consist of）」、及び「からなる（consists of）」という用語により置換可能であることを意図している。

20

【0051】

本明細書において、「約」という用語は、用語に関連する任意の値（value）又は値（values）における10%の許容範囲を包含する。

【0052】

「実質的に含まれない」への言及は、一般に、存在し得る任意の微量又は不純物以外の、組成物中のその化合物又は構成成分の不在を指し、例えば、これは、約1%、0.1%、0.01%、0.001%、又は0.0001%未満の総組成物中の重量%による量であり得る。本明細書に記載されるような組成物はまた、例えば、約5%、4%、3%、2%、1%、0.5%、0.1%、0.01%、0.001%、又は0.0001%未満の総組成物中の重量%による量における不純物を含み得る。例えば、これは、約0.001%、又は0.0001%未満の全ガス流中の体積%による量であり得る。例えば、本明細書に記載されるようなガス流はまた、例えば、約0.01%、0.001%、又は0.0001%未満の全ガス流中の体積%による量における不純物を含み得る。そのような不純物の例は、0.0005体積%未満の量において存在している、空気中に存在し得るメタン（CH₄）の量である。

30

【0053】

本明細書において、「重量%（weight %）」は、「重量%（wt. %）」と略され得る。

40

【0054】

「アルキル」という用語は、直鎖状、分岐状、及び環状のアルキル基を含み、非置換アルキル基と、置換アルキル基との両方を含む。一実施例では、アルキル基は、直鎖状及び／又は分岐状であり、任意選択的に、1～3個の環状アルキル基によって中断される。別段の指示がない限り、アルキル基は、典型的には1～20個の炭素原子を含有する。アルキル基は、例えば、1～12、1～10、1～8、1～6、又は1～4の炭素原子を含有し得る。本明細書で使用される「アルキル」の例としては、メチル、エチル、n-プロピルが挙げられるが、これらに限定されない。n-ブチル、n-ペンチル、イソブチル、t-ブチル、イソプロピル、n-オクチル、n-ヘプチル、エチルヘキシル、シクロペンチル、シクロヘキシル、シクロヘプチル、アダマンチル、及びノルボルニルなど。別段の注

50

記がない限り、アルキル基は、一価又は多価であり得る。アルキル基は、1つ以上のヘテロ原子によって、任意選択的に置換され得、及び／又は任意選択的に中断され得る。アルキル基は、二価又は多価連結基としての使用に関して、「 —アルキル— 」と称され得る。

【0055】

「アルキルシリル」という用語は、ケイ素原子を介して分子の残部に連結されているアルキル基を表し、最大3つの独立して選択されたアルキル基（各アルキル基は、上記に定義されるとおりである）により置換され得る。

【0056】

シリカベースのエアロゲル

本開示は、広範囲の形態において提供され得るシリカベースの微多孔性エアロゲルに関する。好適な形態の例示的な例としては、粒子、粉末、ペレット、ビーズ、コーティング、シート／層、キャストブロック、シリンダー、ディスク、多孔質膜及びモノリスが挙げられ得る。例えば、シリカベースのエアロゲルは、複数のペレットとして提供され得る。例えば、シリカベースのエアロゲルは、フィルム／コーティング層、ガス流がその上又は層を通して流れることができるゲル層として提供され得る。そのような層は、ロール状シート又は3D基材として提供され得る。あるいは、シリカベースのエアロゲル層は、ガス流が通って流れる、複数の多孔質チャネルを含むモノリスとしても提供され得る。他の層又はコーティングの形態及び幾何学も適用可能である。

【0057】

一実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルは、複数の粒子を含み得る。「粒子」（「微粒子」とも称される）という用語は、個々の固体単位の形態を指す。単位は、フレーク、繊維、凝集体、顆粒、ペレット、粉末、ビーズ、球体、粉碎材料など、及びそれらの組み合わせの形態をとることができる。粒子は、立方体、ロッド様、多面体、球形又は半球形、丸形又は半丸形、角形、不規則などを含むが、これらに限定されない任意の所望の形状を有し得る。粒子形態は、光学顕微鏡などの任意の好適な手段によって決定され得る。

【0058】

いくつかの実施形態又は実施例では、エアロゲルは、複数の粒子、粉末、ペレット、ビーズ、顆粒、コーティング、又はシート／層であり得る。いくつかの実施形態又は実施例では、粒子、粉末、ペレット、ビーズ、顆粒、コーティング、又はシート／層は、金属有機構造体、ナノ粒子、ナノ磁性粒子、他の多孔質材料、結合剤、緩衝液、又はそれらの組み合わせを含む群から選択される任意選択的な添加剤を更に含む組成物であり得る。例えば、シリカベースのエアロゲルは、複数の粒子、粉末、ペレットとして提供され得る。一実施例では、シリカベースのエアロゲルは、複数のペレットとして提供され得る。ある実施形態では、シリカベースのエアロゲルは、少なくとも1つの添加剤（例えば、結合剤）、及び任意選択的に潤滑剤と一緒に圧縮されるか、又は一緒に押し出され、形状／ペレットを形成して、複合体を形成し得る。本発明者らは、結合剤の選択が、エアロゲル組成物が圧縮又は押し出され得るかどうかの決定要因となり得ることを見出し、更に、組成物に添加される結合剤の量が最終的な用途又は使用に依存することを見出した。エアロゲル複合体は、任意の好適なサイズ及び／又は形状であり得る。いくつかの実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲル複合体は、平均ペレットサイズを有し得る。

【0059】

金属有機構造体は、 TIF-SIX-3-Ni 、 TIF-SIX-3-Ni 、 CuBTC 、 Mg-MOF-74 、 Mg-MOF-74-ED 、 Nb-OFFIVE 、又はそれらの組み合わせを含む群から選択され得る。ナノ粒子は、炭素系ナノ粒子（例えば、フラーレン及びカーボンナノチューブ）、金属系ナノ粒子（例えば、アルカリ及び貴金属）、セラミックナノ粒子、ポリマーナノ粒子、脂質系ナノ粒子、量子ドット、シリカナノ粒子、グラフェン、又はそれらの組み合わせを含む群から選択され得る。ナノ磁性粒子は、酸化鉄、フェライト、又はそれらの組み合わせを含む群から選択され得る。結合剤は、セルロース系ポリマー、シラン系ポリマー、セルロースーシロキサン系ポリマー、ポリグリコー

10

20

30

40

50

ル系ポリマー、エポキシ系ポリマー、コロイドシリカ、ポリビニルピロリドン、ポリビニルアルコール、ポリエチレンイミン、又はそれらの組み合わせを含む群から選択され得る。結合剤は、市販の結合剤から選択され得る。他の構成成分が市販の結合剤の一部を形成し得ることが理解されよう。ある実施例では、結合剤は、潤滑剤などの他の構成成分を含み得る。必要に応じて潤滑剤を使用して、エアロゲル製剤の粘度を、例えば、押し出し成形可能な材料に調節してもよい。例えば、他の構成成分は、リン酸ニカルシウム、二酸化ケイ素、デキストロース水和物、及びステアリン酸マグネシウムを含み得る。緩衝液は、 $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$ 、 $\text{NH}_4\text{CH}_3\text{CO}_2$ 、 NH_3 、 NH_4HCO_3 、二酸化炭素を含む群から選択され得る。

【0060】

エアロゲル粒子は、任意の好適なサイズ及び／又は形状、及び／又は形態のものであり得る。いくつかの実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲル粒子は、平均粒子サイズを有し得る。球形シリカベースのエアロゲル粒子の場合、粒子サイズは粒子の直径である。非球形シリカベースのエアロゲル粒子の場合、粒子サイズは粒子の最長断面寸法である。いくつかの実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲル粒子は、約10 nm～約2000 nm、例えば、約10 nm～約1000 nmの範囲の平均粒子サイズを有し得る。シリカベースのエアロゲル粒子は、少なくとも約10、20、50、100、200、300、400、500、700、1000、1500、又は2000 nmの平均粒子サイズを有し得る。他の実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲル粒子は、約2000、1500、1000、700、500、400、300、200、100、50、20、又は10 nm未満の平均粒子サイズを有し得る。これらの粒子サイズ値を組み合わせることで様々な範囲を形成することも可能であり、例えば、シリカベースのエアロゲル粒子は、約30 nm～約70 nm、約30 nm～約80 nm、例えば、約20 nm～約100 nmの平均粒子サイズを有し得る。平均粒子サイズは、走査電子顕微鏡、動的光散乱、光学顕微鏡、又はサイズ排除方法（目盛り付きふるいなど）など、当業者に既知の任意の手段によって決定され得る。ある実施例では、平均粒子サイズを測定する方法は、走査電子顕微鏡であり得る。シリカベースのエアロゲル粒子は、制御された平均粒子サイズを有し得、異なる環境及びせん断条件の範囲において、例えば、ガス流及び／又は湿った若しくは乾燥した環境と接触している間、その形態を維持することができる。

【0061】

別の実施形態では、シリカベースのエアロゲルは、自己支持性であり得る。本明細書で使用される「自己支持性」という用語は、支持体材料（例えば、足場）の不在下で、シリカベースのエアロゲルがその形態を維持する能力を指す。例えば、シリカベースのエアロゲルは、複数の粒子を含み得、粒子は、足場支持体の不在下でその形態を維持する。シリカベースのエアロゲルの自己支持性の性質は、例えば、流動ベッド反応器を使用してエアロゲルの粒子をガス流と接触させることを可能にする、ある特定の利点を提供し得る。したがって、一実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルは、別個の多孔質支持体構造などの、別個の支持体構造を含まない。これは、エアロゲル自体が本質的に多孔質であることを排除するものではない。したがって、シリカベースのエアロゲルが「自己支持性」である場合、エアロゲルに外因性の支持体材料（例えば、足場）は存在しないことが理解されるであろう。

【0062】

なお別の実施形態では、シリカベースのエアロゲルは、カラム内の層として提供され得、ガス流は、カラムを通して流れ、シリカベースのエアロゲル層を通過し得る。層は、任意の特定のエアロゲル形態に限定され得ない。一実施例では、好適なカラムは、複数のシリカベースのエアロゲル粒子によりパッキングされて、隣接する粒子の間に十分な隙間空間を有するパッキングされたベッドを形成して、そこを通るガスの流れを可能にし得る。あるいは、シリカベースのエアロゲルは、ガス流（例えば、流動ベッド反応器）を伴う流れにおいて提供され得る。

【0063】

なお別の実施形態では、シリカベースのエアロゲルは、基材上のコーティング組成物として提供され得る。いくつかの実施形態又は実施例では、基材は、平面、例えば、平面シートであり得る。特定の例では、基材は、可撓性シートであり得る。平面基材は、シリカベースのエアロゲルコーティング組成物をその上に適用することができる両面要素を提供する。各基材は、2つの対向する側面上に、シリカベースのエアロゲルコーティング組成物によってコーティングされ得る。平面基材は、任意の構成を有し得る。いくつかの実施形態又は実施例では、平面基材は、平坦な固体表面を含み得る。他の実施形態又は実施例では、平面基材は、基材を通過する及び基材の周りを通るガスの流れを支援するように設計された、1つ以上の開口部を含み得る。特定の実施形態又は実施例では、基材は、メッシュ、例えば、マイクロワイヤメッシュを含み得る。メッシュの使用は、多数の開口部（例えば、マイクロサイズの開口部）を提供し、それによって、シリカベースのエアロゲルコーティング組成物をその上に適用することができる、高い表面積を提供する一方で、他の構成、例えば、パッキングされたベッドと比較して、基材全体にわたって（メッシュのサイズ及び構成に対して）適度に低い圧力降下を有する好適な流路も提供する。

10

20

30

40

50

【0064】

本開示は、微多孔性エアロゲルであるシリカベースのエアロゲルを提供する。エアロゲルは、好ましくは、優れた微多孔性（孔の直径 $<2\text{ nm}$ ）を維持しながら、低いメソ多孔性を有し得る。いくつかの実施形態では、微多孔性エアロゲルは、複数の孔を有し得、孔のうちの少なくとも50%は、約 2 nm 未満の直径を有する。好ましくは、孔のうちの少なくとも60%は、約 2 nm 未満の直径を有する。より好ましくは、孔のうちの少なくとも70%は、約 2 nm 未満の直径を有する。更により好ましくは、孔のうちの少なくとも80%は、約 2 nm 未満の直径を有する。いくつかの実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルの多孔度は、約 2 nm 未満であり得る。孔サイズは、約 1.8 nm 未満であり得る。微多孔性エアロゲルは、メソ多孔性エアロゲル及びマクロ多孔性エアロゲルとは異なることが理解されよう。メソ多孔性エアロゲルは、 $2\sim 50\text{ nm}$ の直径を有する孔を含有し、マクロ多孔性エアロゲルは、直径 50 nm を超える孔を含有する。いくつかの実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルは、約 $0.1\text{ nm}\sim 2\text{ nm}$ 、例えば、約 $0.2\text{ nm}\sim 2\text{ nm}$ の範囲の孔サイズを有し得る。シリカベースのエアロゲルは、少なくとも約 0.1 、 0.2 、 0.5 、 1 、 1.2 、 1.4 、 1.6 、 1.8 、又は2の孔サイズ（ nm ）を有し得る。他の実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルは、約 2 、 1.8 、 1.6 、 1.4 、 1.2 、 1 、 0.5 、 0.2 、又は 0.1 未満の孔サイズ（ nm ）を有し得る。これらの孔サイズ値を組み合わせて様々な範囲を形成することも可能であり、例えば、シリカベースのエアロゲルは、約 $0.1\text{ nm}\sim 1.8\text{ nm}$ 、約 $0.5\text{ nm}\sim 2\text{ nm}$ 、例えば、約 $1\text{ nm}\sim 2\text{ nm}$ の孔サイズを有し得る。孔サイズは、ガス吸着実験、水銀圧入、及びキャピラリーフローポロメトリなどの、当業者に既知の任意の手段によって決定し得る。ある実施例では、孔サイズを測定する方法は、Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy（PALS）を使用し得る。 2 nm 以下の孔を有する微多孔性エアロゲルが、本明細書に記載されるワンポット合成中に生成されることが見出されている。また、 2 nm 以下の孔を有するエアロゲルが、大気（DAC）からの二酸化炭素捕捉、及び閉鎖環境（DACi）における二酸化炭素に最も好適であることも見出されている。

【0065】

いくつかの実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルは、約 $0.1\text{ m}^2/\text{g}\sim 500\text{ m}^2/\text{g}$ 、例えば、約 $2\text{ m}^2/\text{g}\sim 200\text{ m}^2/\text{g}$ の範囲の表面積を有し得る。シリカベースのエアロゲルは、少なくとも約 0.1 、 0.2 、 0.5 、 1 、 2 、 3 、 4 、 5 、 10 、 20 、 50 、 100 、 200 、又は 500 の表面積（ m^2/g ）を有し得る。他の実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルは、約 500 、 200 、 100 、 50 、 20 、 10 、 5 、 4 、 3 、 2 、 1 、 0.5 、 0.2 又は 0.1 未満の表面積（ m^2/g ）を有し得る。これらの表面積値を組み合わせて様々な範囲を形成することも可能であり、例えば、シリカベースのエアロゲルは、約 $0.1\text{ m}^2/\text{g}\sim 500\text{ m}^2/\text{g}$

g、約 $2 \text{ m}^2 / \text{g}$ ～約 $200 \text{ m}^2 / \text{g}$ 、例えば、約 $3 \text{ m}^2 / \text{g}$ ～約 $150 \text{ m}^2 / \text{g}$ の表面積を有し得る。

【0066】

いくつかの実施形態又は実施例では、エアロゲルの密度は、約 $0.02 \text{ g} / \text{cm}^3$ ～約 $0.6 \text{ g} / \text{cm}^3$ 、例えば、約 $0.05 \text{ g} / \text{cm}^3$ ～約 $0.5 \text{ g} / \text{cm}^3$ の範囲にあり得る。シリカベースのエアロゲルの密度は、少なくとも約 0.02 、 0.05 、 0.1 、 0.15 、 0.2 、 0.25 、 0.3 、 0.35 、 0.4 、 0.45 、 0.5 、 0.55 又は $0.6 \text{ g} / \text{cm}^3$ であり得る。他の実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルの密度は、約 0.6 、 0.55 、 0.5 、 0.45 、 0.4 、 0.35 、 0.3 、 0.25 、 0.2 、 0.15 、 0.1 、 0.05 、又は $0.02 \text{ g} / \text{cm}^3$ 未満であり得る。これらの密度値を組み合わせることで様々な範囲を形成することも可能であり、例えば、シリカベースのエアロゲルは、約 $0.02 \text{ g} / \text{cm}^3$ ～約 $0.6 \text{ g} / \text{cm}^3$ 、約 $0.05 \text{ g} / \text{cm}^3$ ～約 $0.5 \text{ g} / \text{cm}^3$ 、約 $0.15 \text{ m}^2 / \text{g}$ ～約 $0.4 \text{ g} / \text{cm}^3$ 、例えば、約 $0.2 \text{ m}^2 / \text{g}$ ～約 $0.6 \text{ m}^2 / \text{g}$ 、又は約 $0.3 \text{ m}^2 / \text{g}$ ～約 $0.6 \text{ m}^2 / \text{g}$ の密度を有し得る。より高い密度のエアロゲルは、重量が考慮される用途に最も適している。高密度を有する製剤は、制限された空間又は環境に適合し得る CO_2 吸着-脱着デバイスに使用され得る。これらのタイプのデバイスは、典型的には、宇宙、航空宇宙、水中車両、又はプラットフォームにおいて使用され得る。例えば、エアロゲルを使用して大気中の空気から CO_2 を捕捉することができる航空宇宙又は宇宙用途における。低密度を有する製剤は、空間が問題ではない場合に好適であり得る。例えば、 CO_2 からメタンへの変換に参与する温室又は発電所に配置される DAC ユニット。

10

20

【0067】

いくつかの実施形態又は実施例では、アミノアルキルシラン単位からのアミノ基の含有量は、二酸化炭素 (CO_2) 捕捉を容易にするための遊離アミン基を提供するのに有効であり得、遊離アミン含有量は、約 $60 \text{ mol} \%$ 未満であり得る。いくつかの実施形態又は実施例では、アミノアルキルシラン基の含有量は、約 $10 \text{ mol} \%$ ～約 $60 \text{ mol} \%$ 、例えば、約 $20 \text{ mol} \%$ ～約 $40 \text{ mol} \%$ の範囲にあり得る。遊離アミン含有量は、少なくとも約 10 、 15 、 20 、 25 、 30 、 35 、 40 、 45 、 50 、 55 、又は $60 \text{ mol} \%$ であり得る。他の実施形態又は実施例では、遊離アミン含有量は、約 60 、 55 、 50 、 45 、 40 、 35 、 30 、 25 、 20 、 15 、又は $10 \text{ mol} \%$ 未満であり得る。これらの遊離アミン含有量値を組み合わせることで様々な範囲を形成することも可能であり、例えば、遊離アミン含有量は、約 $10 \text{ mol} \%$ ～約 $60 \text{ mol} \%$ 、約 $15 \text{ mol} \%$ ～約 $50 \text{ mol} \%$ 、例えば、約 $20 \text{ mol} \%$ ～約 $40 \text{ mol} \%$ の $\text{mol} \%$ 値を有し得る。アミノアルキルシラン単位からのアミノ基は、二酸化炭素 (CO_2) 捕捉を容易にするための遊離アミン基を提供するのに有効であるが、アミノアルキルシラン単位からのメチル基は、必要とされる疎水性を提供する。換言すると、本開示の利点のうちの1つは、シリカベースのエアロゲルが、空気から CO_2 を吸着するときにエアロゲルを水の吸着と競合しないようにすることが可能な疎水性のために、様々な相対湿度環境において動作し得ることである。ゼオライト 13X 又は TIF-SIX とは異なり、本発明者らは、驚くべきことに、本明細書に記載されるような微多孔性エアロゲルが良好な水吸着特性を提供せず、 CO_2 の選択的吸着にはるかに優れていることを見出した。

30

40

【0068】

いくつかの実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルを形成するための、少なくとも1つのアミノ置換シラン、少なくとも1つのシリケート、及び任意選択的に少なくとも1つのアルキル置換シランの反応生成物は、アミノアルキル基及びアルキル基から選択される複数のペンダント基を有するシロキサン骨格を含む。シロキサン骨格に存在する疎水性アミノアルキル基及びアルキル基、並びにケイ素原子ごとに利用可能な3つのシロキサン結合のみにより、本明細書に記載されるようなシリカベースのエアロゲルは、疎水性であり得、一般に、従来のテトラアルコキシシランに由来するものよりも低い架橋密度及び高い変形性を有し得ることが理解されよう。これらの有利な特徴は、更なる溶媒交

50

換及び表面修飾を使用することなく、乾燥プロセスによって低体積収縮を達成するために、シリカベースのエアロゲルの微細構造を更に操作するためのより大きな可能性を提供し得る。いくつかの実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルを形成するための、少なくとも1つのアミノ置換シラン、少なくとも1つのシリケート、及び任意選択的に少なくとも1つのアルキル置換シランの反応生成物は、ポリアルキルシロキサンネットワーク構造を形成するための加水分解及び縮合反応を受け得る。これらの加水分解及び縮合反応は、シリカベースのエアロゲルのマイクロ構造に関与し得る。ある実施形態又は実施例では、反応生成物は、アミノアルキル基及びアルキル基から選択される複数のペンダント基を有するシロキサン骨格を含み得、分子量基準でのシロキサン骨格に対するペンダント基のモル比は、少なくとも60%であり得る。分子量基準でのシロキサン骨格に対するペンダント基のモル比は、約60%～約160%、例えば、約80%～約140%の範囲にあり得る。分子量基準でのシロキサン骨格に対するペンダント基のモル比は、少なくとも約60、65、70、75、80、85、90、95、100、110、120、130、140、150、又は160%であり得る。他の実施形態又は実施例では、分子量基準でのシロキサン骨格に対するペンダント基のモル比は、約160、150、140、130、120、110、100、90、95、90、85、80、75、70、65、又は60%未満であり得る。これらのモル比値を組み合わせて様々な範囲を形成することも可能であり、例えば、分子量基準でのシロキサン骨格に対するペンダント基のモル比は、約60%～約160%、約65%～約150%、例えば、約70%～約140%の%値を有し得る。

10

20

【0069】

ある実施形態では、アミノ置換シランは、式1に従うものであり得、 $R^1Si(OR^2)_n-L-NH_2$ 、式中、 R^1 は、 $C_1\sim 6$ アルキルから選択され得るか、又は不在であり、 R^2 は、 $C_1\sim 6$ アルキルであり得、 L は、ケイ素と窒素原子との間の $-C_1\sim 6$ アルキル-リンカー基であり、 n は、2又は3であり得る。アミノ置換シランは、エアロゲル製剤の総重量に基づいて、少なくとも約40mol%の充填%を有し得る。アミノ置換シランは、エアロゲル製剤の総重量に基づいて、約60mol%未満の充填%を有し得る。

【0070】

ある実施形態では、アルキル置換シランは、式2に従うものであり得、 $R^5_mSi(OR^6)_n$ 、式中、 R^5 及び R^6 は、各々独立して、 $C_1\sim 6$ アルキルから選択され得、 m は1であり得、かつ n は3であり得るか、又は m 及び n は、各々2であり得る。アルキル置換シランは、エアロゲル製剤の総重量に基づいて、少なくとも約10mol%の充填%を有し得る。アルキル置換シランは、エアロゲル製剤の総重量に基づいて、約40mol%未満の充填%を有し得る。

30

【0071】

ある実施形態では、シリケートは、式3に従うものであり得、 $Si(OR^7)_4$ 、式中、 R^7 は、 $C_1\sim 6$ アルキルであり得る。シリケートは、エアロゲル製剤の総重量に基づいて、少なくとも約20mol%の充填%を有し得る。シリケートは、エアロゲル製剤の総重量に基づいて、約40mol%未満の充填%を有し得る。

40

【0072】

アミノシラン基の含有量は、二酸化炭素(CO_2)捕捉を容易にするための遊離アミン基を提供するのに有効であり得、遊離アミン含有量は、エアロゲル製剤の総重量に基づいて、約60mol%未満であり得る。一実施形態又は実施例では、アミノ置換シランは、総エアロゲル製剤に基づいて、約40～約60mol%の充填%を有する3-アミノプロピル(ジエトキシ)メチルシランであり得る。

【0073】

ある実施形態又は実施例では、エアロゲルは、少なくとも1つのアミノ置換シラン、少なくとも1つのシリケート、及び任意選択的に少なくとも1つのアルキル置換シランの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得る。

50

【0074】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、アルキル置換シランは、約40mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランであり、シリケートは、約20mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである。

【0075】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、アルキル置換シランは、約40mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランであり、シリケートは、約20mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである。

10

【0076】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、アルキル置換シランは、約20mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランであり、シリケートは、約40mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである。

20

【0077】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、アルキル置換シランは、約20mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランであり、シリケートは、約40mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである。

【0078】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン及びアルキル置換シランの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、アルキル置換シランは、約60mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランである。

30

【0079】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン及びアルキル置換シランの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、アルキル置換シランは、約60mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランである。

【0080】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約60mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、アルキル置換シランは、約20mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランであり、シリケートは、約20mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである。

40

【0081】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシ

50

ランであり、アルキル置換シランは、約 40 mol % の充填 % を有するトリエトキシ（エチル）シランであり、シリケートは、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである。

【0082】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約 40 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、アルキル置換シランは、約 40 mol % の充填 % を有するトリエトキシ（エチル）シランであり、シリケートは、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである。

10

【0083】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約 40 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、アルキル置換シランは、約 40 mol % の充填 % を有するジメチルジエトキシシランであり、シリケートは、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである。

【0084】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約 40 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、アルキル置換シランは、約 20 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシランと、約 20 mol % の充填 % を有するジメチルジエトキシシランとの混合物であり、シリケートは、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである。

20

【0085】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約 60 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、アルキル置換シランは、約 10 mol % の充填 % を有するジメチルジエトキシシランであり、シリケートは、約 30 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである。

30

【0086】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約 40 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、アルキル置換シランは、約 30 mol % の充填 % を有するジメチルジエトキシシランであり、シリケートは、約 30 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである。

【0087】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約 40 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、アルキル置換シランは、約 20 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシランと、約 20 mol % の充填 % を有するジメチルジエトキシシランとの混合物であり、シリケートは、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである。

40

【0088】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約 40 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシ

50

ランであり、アルキル置換シランは、約 20 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシランと、約 20 mol % の充填 % を有するトリエトキシ（エチル）シランとの混合物であり、シリケートは、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである。

【0089】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約 60 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、アルキル置換シランは、約 20 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシランであり、シリケートは、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである。

10

【0090】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約 60 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、アルキル置換シランは、約 20 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシランであり、シリケートは、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである。

【0091】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約 60 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、アルキル置換シランは、約 10 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシランと、約 10 mol % の充填 % を有するトリエトキシ（エチル）シランとの混合物であり、シリケートは、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである。

20

【0092】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約 50 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、アルキル置換シランは、約 15 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシランと、約 15 mol % の充填 % を有するトリエトキシ（エチル）シランとの混合物であり、シリケートは、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである。

30

【0093】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約 50 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、アルキル置換シランは、約 25 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシランであり、シリケートは、約 25 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである。

40

【0094】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約 60 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、シリケートは、約 40 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである。

【0095】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約 60 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシ

50

ランであり、アルキル置換シランは、約 20 mol % の充填 % を有するトリエトキシ（エチル）シランであり、シリケートは、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである。

【0096】

ある実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルは、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み得るか、又はそれからなり得、アミノ置換シランは、約 40 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、アルキル置換シランは、約 40 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシラン、及び約 20 mol % の充填 % を有するトリエトキシ（エチル）シランである。

【0097】

アミノ置換シラン

CO₂ は、シリカベースのエアロゲルに吸収されることによってガス流から捕捉され得る。例えば、CO₂ は、化学プロセス又は物理プロセスによってシリカベースのエアロゲルに吸収され得る。いくつかの実施形態では、アミノ置換シランは、結合及び CO₂ が可能な官能基を含み得る。例えば、その多孔質の性質のために、シリカベースのエアロゲルと接触すると、低 CO₂ 濃度ガスは、シリカベースのエアロゲル内の隙間の孔を通過し、アミノ置換シラン上の官能基に反応して結合することができる。いくつかの実施形態又は実施例では、アミノ置換シランは、低 CO₂ 濃度のガス流と接触したときに CO₂ を吸収することができる。CO₂ を吸収することができる好適なアミノ置換シランとしては、本明細書に記載されるアミノ置換シランのうちの 1 つ以上が挙げられる。いくつかの実施形態又は実施例では、アミノ置換シランは、化学プロセス又は物理プロセスによって CO₂ を吸収し得る。いくつかの実施形態又は実施例では、アミノ置換シランは、CO₂ に結合することができる官能基を含む。例えば、アミノ置換シランは、一級アミン（-NH₂）などの 1 つ以上のアミン基を含み得る。そのようなアミン基は、CO₂ 親和性（philic）であり、CO₂ と容易に反応し、結合する。いくつかの実施形態又は実施例では、アミノ置換シランは、例えば、3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランなどの 1 つ以上のアミン基を含む。

【0098】

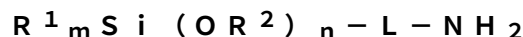
いくつかの実施形態又は実施例では、アミノ置換シランは、約 10 mol % ~ 50 mol % の一級アミン（-NH₂）基を含み得る（本明細書では「遊離アミン含有量」とも称される）。一級アミン（-NH₂）基の mol % は、少なくとも約 10、15、20、25、30、35、40、45、又は 50 であり得る。他の実施形態又は実施例では、一級アミン（-NH₂）基の mol % は、約 50、45、40、35、30、25、20、15、又は 10 未満であり得る。これらの mol % 値を組み合わせることで様々な範囲を形成することも可能であり、例えば、一級アミン（-NH₂）基の mol % は、約 10 mol % ~ 約 50 mol %、約 15 mol % ~ 約 45 mol %、例えば、約 20 mol % ~ 約 40 mol % の値を有し得る。

【0099】

いくつかの実施形態又は実施例では、アミノ置換シランは、少なくとも 1 つ以上の脂肪族アミン基（例えば、芳香族環基がアミンの窒素原子に直接結合していないアミン）を含み得る。

【0100】

いくつかの実施形態又は実施例では、アミノ置換シランは、式 1 に従うものであり、



式 1

式中、

R¹ は、C₁ ~ 6 アルキルであり得るか、又は不在であり得、

R² は、C₁ ~ 6 アルキルであり得、

L は、ケイ素と窒素原子との間の -C₁ ~ 12 アルキル-リンカー基であり、

n は、2 又は 3 であり得る。R¹ が存在する場合、n は 2 であり、R¹ が不在である場

10

20

30

40

50

合、 n は3であることが理解されよう。

【0101】

いくつかの実施形態又は実施例では、アミノ置換シランは、1～6個の原子鎖を有する上記のような、又は本明細書における任意のアルキルによって提供され得る、 $C_1 \sim 6$ アルキルを含み得る。

【0102】

いくつかの実施形態又は実施例では、アミノ置換シランは、1～4個の原子鎖を有する上記のような、又は本明細書における任意のアルキルによって提供され得る、 $C_1 \sim 4$ アルキルを含み得る。

【0103】

アミノ置換シランのアルキル基は、1～4個の炭素原子を含み得る。アルキル基は、メチル、エチル、プロピル、 n -ブチル、 t -ブチル、又は他の高級炭素アルキル基であり得る。いくつかの実施形態又は実施例では、アミノ置換シランは、3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシラン、3-アミノプロピルトリエトキシシラン、3-アミノプロピルトリメトキシシラン、 N -(2-アミノエチル)-3-アミノプロピルトリエトキシシラン、又はそれらの組み合わせを含むか、又はそれらの組み合わせからなる群から選択され得る。例えば、アミノ置換シランは、3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシラン又は3-アミノプロピルトリエトキシシランを含むか、又はそれらからなる群から選択され得る。

10

【0104】

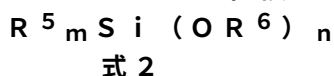
アルキル置換シラン

アルキルシラン基は、疎水性及び微多孔性の要素を可能にするのに有効である。換言すると、本開示の利点のうちの1つは、シリカベースのエアロゲルが、空気から CO_2 を吸着するときにエアロゲルを水の吸着と競合しないようにすることが可能な疎水性のために、様々な相対湿度環境において動作し得ることである。更に、シリカベースのエアロゲルは、シリカベースのエアロゲルの微多孔性が、上記のアミノ置換シラン上の反応性官能基に対する CO_2 のアクセス可能性を増加させ得る、マイクロサイズの孔を有するより開いた構造を有効に作成することを可能にする、アルキルシラン基を含み得る。

20

【0105】

いくつかの実施形態又は実施例では、アルキル置換シランは、式2に従うものであり、



30

式中、

R^5 及び R^6 は、各々独立して、 $C_1 \sim 6$ アルキルから選択され、

m は、1であり得、 n は、3であり得るか、又は m 及び n は、各々2であり得る。

【0106】

いくつかの実施形態又は実施例では、アルキル置換シランは、1～6個の原子鎖を有する上記のような、又は本明細書における任意のアルキルによって提供され得る、 $C_1 \sim 6$ アルキルを含み得る。

【0107】

アルキル置換シランのアルキル基は、1～6個の炭素原子を含み得る。アルキル置換シランはまた、追加の官能基を有し得る。アルキル基は、メチル、エチル、プロピル、 n -ブチル、 t -ブチル、又は他の高級炭素アルキル基であり得る。本開示のアルキル置換シランは、モノ、ジ、又はトリアルキル基を含有し得、メチルトリメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、エチルトリメトキシシラン、エチルトリエトキシシラン、プロピルトリメトキシシラン、プロピルトリエトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、ジメチルジエトキシシラン、ジエチルジエトキシシラン、ジエチルジメトキシシラン、トリメチルメトキシシラン、トリメチルエトキシシラン、トリエチルメトキシシラン、トリエチルエトキシシラン、トリプロピルメトキシシラン、トリプロピルエトキシシラン、(3, 3, 3-トリフルオロプロピル)トリメトキシシラン、(3, 3, 3-トリフルオロプロピ

40

50

ル) トリエトキシシラン、及びそれらの組み合わせからなる群から選択され得る。

【0108】

シリケート

シリケートは、シリカベースのエアロゲルマトリックスに含まれ得、CO₂捕捉に有効な得られるシリカベースのエアロゲルに関連する特有の特性を有する複雑な構造を生成し得る。シリケートは、式3に従うものであり、



式3

式中、

R⁷は、C₁～6アルキルである。

10

【0109】

いくつかの実施形態又は実施例では、シリケートは、1～6個の原子鎖を有する上記のような、又は本明細書における任意のアルキルによって提供され得る、C₁～6アルキルを含み得る。

【0110】

シリケートのアルキル基は、1～6個の炭素原子を含み得る。アルキル基は、メチル、エチル、プロピル、n-ブチル、t-ブチル、又は他の高級炭素アルキル基であり得る。本開示のシリケートは、テトラアルコキシシランから選択され得る。例えば、シリケートは、テトラメトキシシラン、テトラエトキシシリケート、又はそれらの組み合わせであり得る。

20

【0111】

シリカベースのエアロゲルを調製するためのプロセス

いくつかの実施形態又は実施例では、微多孔性エアロゲルを調製するためのプロセスが提供される。特に、本開示は、本明細書に記載されるように、少なくとも1つのアミノ置換シラン、少なくとも1つのシリケート、及び任意選択的に、少なくとも1つのアルキル置換シランの反応生成物から、シリカベースのエアロゲルを調製するための新規のプロセスを提供する。いくつかの実施形態では、微多孔性エアロゲルが、複数の孔を含み、孔のうちの少なくとも50%が、約2nm未満の直径を有する、シリカベースの微多孔性エアロゲルを調製するためのプロセスは、(i)(a)少なくとも1つのアミノ置換シラン、少なくとも1つのシリケート、及び任意選択的に少なくとも1つのアルキル置換シラン、任意選択的に緩衝液、任意選択的に1つ以上の添加剤、及び溶媒系を含む、水性溶液を混合して、湿潤ゲルマトリックスを形成することと、(ii)湿潤ゲルマトリックスを乾燥させて、乾燥したシリカベースのエアロゲルを提供することと、を含み得るか、又はそれらからなり得、ただし、湿潤ゲルマトリックスの乾燥は、超臨界CO₂を伴わない。いくつかの実施形態又は実施例では、ステップ(i)は、ステップ(i)(b)湿潤ゲルマトリックスをすすぐことを更に含む。湿潤ゲルをすすぐことにより、溶媒交換、及び材料の孔内の副産物の除去が可能になる。本明細書に記載されるような少なくともいくつかの実施形態又は実施例による本プロセスのうちの1つ以上の利点は、プロセスが、CO₂捕捉可能な微多孔性エアロゲルを調製するための短い反応時間(例えば、48時間以上と比較して、いくつかの製剤についてはおよそ6時間)及びゲル化時間(例えば、およそ5～30分間)を伴うスケラブルなワンポット合成であることである。合成及び洗浄ステップは、オープン、又は水浴及び初歩的な反応容器を必要とする。記載されるプロセスには、特殊なガス又は圧力容器は必要ではなく、好ましい候補の典型的な密度は、0.3～0.6g/mLの範囲にあり得、より小さい体積のエアロゲルを炭素捕捉装置の実用的な現象で使用することを可能にする。合成コストと機器コストの両方における財務上の利点は、非常に有利である。これは、メソ多孔性エアロゲル合成が長期にわたる複数ステップのプロセス及び超臨界乾燥を伴う、以前のプロセス、例えば、US9,931,612B2(Aspen)とはやや異なる。例えば、Aspenは、少なくとも2ステップのゾルゲルプロセスを伴うエアロゲル合成、及び超臨界CO₂抽出を使用する溶媒除去を記載している。例えば、(i)異なる温度及び時間において前駆体を含む2つの別個のゾルを調

30

40

50

製することと、ステップ (i i) 2つの別個のゾルを組み合わせることと、(i i i) 2日間以内にゲル化が発生することを可能にすることと、(i v) 液体CO₂を使用する超臨界乾燥。

【0112】

いくつかの実施形態又は実施例では、少なくとも1つのアミノ置換シラン及び少なくとも1つのアルキル置換シランは、ステップ (i i) の前に、酸性媒体 (例えば、塩酸又はリン酸などの有機酸) 中で加水分解され得る。

【0113】

例えば、ステップ (i) において、少なくとも1つのアミノ置換シラン、少なくとも1つのシリケート、及び任意選択的に少なくとも1つのアルキル置換シラン、任意選択的に緩衝液、任意選択的に1つ以上の添加剤、及び溶媒系を含む、水性溶液を混合して、湿潤ゲルマトリックスを形成することは、周囲温度で少なくとも24時間進行され得るか、又は約60℃～約80℃まで約6時間加熱され得る。ステップ (i) (b) において、溶媒 (例えば、エタノール) を水と交換するのに十分な量の水で湿潤ゲルマトリックスをすすぐことは、湿潤ゲルマトリックスを乾燥させること (ステップ (i i) における) を可能にし、開いた多孔質ゲル (例えば、乾燥したシリカベースのエアロゲル) を形成する。溶媒を除去することができないと、貧弱な性能を有する「硬い」ゲルがもたらされる可能性がある。溶媒を除去するのに十分な量の水ですすいだ湿潤ゲルマトリックスは、室温で乾燥させ、約80℃～100℃で加熱して、任意の残留水を除去することができる。

【0114】

いくつかの実施形態又は実施例では、プロセスは、ゾルゲルプロセスであり得、ステップ (i i) は、(a 1) 任意選択的に、湿潤ゲルマトリックスを加熱してゲルを得ることと、(a 2) 溶媒蒸発及び／又は熱処理によりゲルを乾燥させて、乾燥したシリカベースのエアロゲルを提供することと、を含み得るか、又はそれらからなり得る。

【0115】

他の実施形態又は実施例では、プロセスは、代替ステップ (i i) を含み得、これは、(b 1) 湿潤ゲルマトリックスを基材に適用して、基材をコーティングする湿潤ゲルフィルムを形成し得、(b 2) 溶媒蒸発及び／又は熱処理により湿潤ゲルフィルムを乾燥させて、乾燥したシリカベースのコーティング基材を提供することを含み得る。ある実施形態又は実施例では、乾燥ステップ (i i) は、真空乾燥又は凍結乾燥であり得る。好ましくは、乾燥ステップは、真空乾燥である。乾燥ステップ (i i) は、超臨界CO₂を伴わないことが理解されよう。

【0116】

ステップ (i) において、アルコゲル又はステップ (a 1) ゾルゲル (例えば、コロイド溶液) は、液相と固相との両方を含有するゲル状二相性系の形成に向かって徐々に展開するプロセスから形成され得、その形態は、離散粒子から連続的なポリマーネットワーク (エージングプロセス) までの範囲であり得る。いくつかの実施形態又は実施例では、粒子密度は、ゲル状特性を認識するために最初に液体の量を除去することを必要とし得るように、低くてもよい。別の実施形態又は実施例では、遠心分離を使用して、相分離及びゲル形成のプロセスを加速して、エージングさせたアルコゲル又はエージングさせたゾルゲルを形成し得る。残りの液体 (溶媒) 相の除去は、乾燥ステップ (例えば、ステップ (i i) 及びステップ (a 2)) を必要とし得る。

【0117】

孔サイズは、主に、アミノ置換シラン及びアルキル置換シランの濃度、並びにゲル化条件によって決定されることが理解されよう。アミノ置換シラン及びアルキル置換シランの濃度が高いほど、より高密度なアルコゲル又はゾルゲルは、より小さい孔サイズを有し得る。同じ濃度のアミノ置換シラン及びアルキル置換シランの下で、より高い温度でのより速いゲル化は、加速された化学反応及びクラスター凝集を伴い得、シリカベースのエアロゲル内の比較的大きな空隙 (又は孔) をもたらし、一方、より低い温度でのより遅いゲル化は、より小さい空隙 (又は孔) を生じ得る。他方では、ゲル化時に形成されたシロキ

サンネットワーク構造は、乾燥プロセス中に、ネットワーク構造がネットワークの完全性を維持することが可能であり得るように、更に開発及び強化する必要がある。この強化及び剛化効果は、未反応の $-OR$ 及び $-OH$ 基のうちの多くが縮合し続け、 $Si-O-Si$ 結合を形成するエージングプロセスによって実現され得る。

【0118】

シリケートの添加は、他の4個のシリコン原子に共有結合を形成させ得、それによってシロキサンネットワーク構造の剛性を増加させる。アミノ置換シラン及びアルキル置換シランは、柔軟性を可能にするシロキサンネットワーク構造内で2つ又は3つの共有結合のみを形成し得る。

【0119】

ステップ(a1)及び(b1)の前に、湿潤ゲルマトリックスを好適な温度に加熱し、その温度で維持してもよい(エージングプロセス)。いくつかの実施形態又は実施例では、湿潤ゲルマトリックスは、約 $20^{\circ}C$ ～約 $100^{\circ}C$ の範囲で加熱され得る。湿潤ゲルマトリックスの温度は、少なくとも約20、25、30、35、40、45、50、55、60、65、70、75、80、85、90、95、又は $100^{\circ}C$ であり得る。湿潤ゲルマトリックスの温度は、約100、95、90、85、80、75、70、65、60、55、50、45、40、35、30、25、又は $20^{\circ}C$ 未満であり得る。これらの加熱温度の組み合わせも可能であり、例えば、約 $20^{\circ}C$ ～約 $30^{\circ}C$ 、約 $25^{\circ}C$ ～約 $80^{\circ}C$ 、又は約 $75^{\circ}C$ ～約 $85^{\circ}C$ である。

【0120】

本明細書に記載されるような少なくともいくつかの実施形態又は実施例によれば、湿潤ゲルマトリックスは、反応容器を所望の温度においてオープンに浸漬し、溶液を所望の温度に到達させることによって、所望の温度に加熱され得る。

【0121】

本明細書に記載されるような少なくともいくつかの実施形態又は実施例によれば、湿潤ゲルマトリックスは、ステップ(a1)及び(b1)における温度で約3時間～約24時間維持され得る。湿潤ゲルマトリックスは、ステップ(a1)及び(b1)の温度で少なくとも約3、6、9、12、15、18、21、又は24時間維持され得る。湿潤ゲルマトリックスは、ステップ(a1)及び(b1)の温度で24、21、18、15、12、9、6、又は3時間未満維持され得る。これらの時間の組み合わせも可能であり、例えば、約6時間～約12時間である。

【0122】

いくつかの実施形態又は実施例では、湿潤ゲルマトリックスは、次いで、ステップ(a1)及び(b1)のために周囲温度に冷却され得る。ある実施形態又は実施例では、湿潤ゲルマトリックスは、周囲温度に冷却され得る。

【0123】

ある実施例では、湿潤ゲルの形成後、湿潤ゲルマトリックスを可塑化することを避けるために、残留溶媒及び有機反応生成物を除去し得ることがある。これらは、マトリックスを分解し、少なくとも10倍の過剰な水に1時間以上浸すことによって水と相互交換される。水相互交換は、湿潤ゲルマトリックスを崩壊から保護し得、また、任意の未反応シランが $Si-O-Si$ 結合を形成することを可能にし得る。水の相互交換が不十分であると、従来の方法を使用して乾燥させた典型的なエアロゲルに似ていないゲルが生じる可能性がある。溶媒(例えば、エタノール)の交換は、凍結乾燥方法又は他の減圧乾燥プロセスが使用されるときには、それほど重要ではなくなる。式1のものなどのアミノ置換シラン(例えば、3-アミノプロピル(ジエトキシ)メチルシラン)の組み込みは、溶媒和マトリックスが、全てのシリコン原子が他の3つ以上の酸素原子に共有結合される従来のエアロゲルとは異なり、依然として可塑性特性を有することを意味する。

【0124】

湿潤ゲルマトリックスの乾燥中に空気中の溶媒を蒸発させると、乾燥プロセス中の空気／液体界面での毛管力及び溶媒抽出率の差によって、湿潤ゲルマトリックスは収縮及び割

10

20

30

40

50

れが生じる可能性があり、これを抑制するために従来は超臨界乾燥プロセスが使用されている。しかしながら、超臨界乾燥は高圧で実施され、製造コストを増加させ、それによってエアロゲルの商業化に障害をもたらす。例えば、US 9,931,612 B2 (Aspen) は、最初に2つの異なるゾルを形成し、次いでゾルを混合してゲルを形成し、次いで超臨界CO₂乾燥を使用することによるメソ多孔性エアロゲルの形成のための2ステップのプロセスを開示している。超臨界CO₂乾燥は、一般に、メソ多孔性エアロゲルの孔内の任意の溶媒を除去するために使用され、ゲルを、液体CO₂に供し、続いて、液体が超臨界流体に変換されるまで、CO₂液体充填ゲルを加圧下で加熱する。これは、エアロゲルの目的が空気からCO₂を捕捉することであるとき、溶媒を置き換えるためにCO₂を孔内に導入することは環境に優しい解決策ではないため、Aspenプロセスについて
10
の大きな欠点であることが理解されよう。別の重要な違いは、2ステップのプロセスにより、孔サイズがはるかに大きいメソ多孔性ゲルが形成されることである。メソ多孔性ゲルは、CO₂の選択的吸着に対してより効率的ではなく、CO₂レベルが約12～14%である煙道ガス中のCO₂の捕捉のためのような、より高い濃度のCO₂が存在する場所での使用により好適であることが見出されている。

【0125】

本明細書に記載されるような少なくともいくつかの実施形態又は実施例による本プロセスのうちの1つ以上の利点は、湿潤ゲルマトリックスを乾燥させて、他の乾燥プロセスにより以前に観察された影響を最小限に抑えることによって乾燥したシリカベースのエアロゲルを得ることができることである。本開示によって記載される乾燥プロセスは、減圧乾燥、周囲圧力、若しくは真空乾燥、凍結乾燥、又はそれらの様々な組み合わせを含む様々な有利な方法において実施され得る。好ましくは、真空乾燥又は凍結乾燥。
20

【0126】

ステップ(i i)では、湿潤ゲルマトリックスは、乾燥したシリカベースのエアロゲルを生成するのに好適な温度で乾燥され得る。ある実施例では、減圧乾燥を使用して湿潤ゲルマトリックスを乾燥させる場合、乾燥機器は、約40～約60℃、又は約55℃で制御され得、初期乾燥圧力は周囲大気圧であり得、真空ポンプをオンにして、少なくとも約4時間、6時間、8時間、10時間、12時間、14時間、16時間、18時間、20時間、22時間、又は24時間真空乾燥(−80 kPa)を開始して、乾燥シリカベースのエアロゲルを生成し得る。別の実施例では、凍結乾燥プロセスを使用して湿潤ゲルマトリックスを乾燥させる場合、湿潤ゲルマトリックスを典型的な凍結乾燥条件下で少なくとも約4時間、6時間、8時間、10時間、12時間、14時間、16時間、18時間、20時間、22時間、又は24時間維持して、乾燥シリカベースのエアロゲルを生成する。なお別の実施例では、周囲圧力を使用して又はオープン内で湿潤ゲルマトリックスを乾燥させる場合、温度は、約40℃～約60℃、又は約50℃で制御され得、湿潤ゲルマトリックスを、周囲圧力下又は真空中で少なくとも約4時間、6時間、8時間、10時間、12時間、14時間、16時間、18時間、20時間、22時間、又は24時間維持して、乾燥シリカベースのエアロゲルを生成する。
30

【0127】

いくつかの実施形態又は実施例では、アミノ置換シランは、本明細書に記載されるような式1のものであり得る。いくつかの実施形態又は実施例では、アルキル置換シランは、本明細書に記載されるような式2のものであり得る。いくつかの実施形態又は実施例では、シリケートは、本明細書に記載されるような式3のものであり得る。
40

【0128】

いくつかの実施形態又は実施例では、溶媒は、水、非水性溶媒、又はそれらの組み合わせであり得る。プロセスのステップ(i)(a)及びステップ(i)(b)では、1～6個の炭素原子を含有するアルコールを含む、種々の非水性溶媒を使用し得る。ある実施形態又は実施例では、溶媒は、メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノール、イソブチルアルコール、セーブチルアルコール、ペンタノール、ヘキサノール、及びそれらの組み合わせから選択され得る。一実施形態又は実施例では、エタノールは、溶媒として使
50

用され得る。例えば、エタノールは、プロセスにおいて水と組み合わせて使用され得る。様々な比における水もまた、ゾルゲル反応を達成するために関与し得る。水はまた、これらの反応のうちのいくつかの生成物であり得る。比及び溶媒は、沈殿又は相分離を避けることができるように調節され得る。

【0129】

いくつかの実施形態又は実施例では、プロセスは、ステップ (iii) 活性化ステップを更に含み得る。プロセスによって調製されたシリカベースのエアロゲルは、範囲内の温度又は約 80℃～約 160℃で活性化され得る。活性化温度は、少なくとも約 80、90、100、110、120、130、140、150、又は 160℃であり得る。活性化温度は、約 160、150、140、130、120、110、100、90、又は 80℃未満であり得る。これらの活性化温度の組み合わせは可能であり、例えば、活性化温度は、約 80℃～約 160℃、約 90℃～約 150℃、又は約 100℃～約 140℃であり得る。

10

【0130】

いくつかの実施形態又は実施例では、1つ以上の添加剤は、緩衝液、結合剤、任意選択的に金属有機構造体 (MOF)、及びナノ粒子から選択され得る。存在する場合、添加剤の総量は、エアロゲル製剤の 50%未満であり得る。添加剤として存在する場合、MOF は、エアロゲル製剤の 10%未満、好ましくは 5%未満である。いくつかの実施形態又は実施例では、プロセスによって調製されたシリカベースのエアロゲルは、複数の粒子、粉末、ペレット、ビーズ、顆粒、コーティング、又はシート／層であり得る。いくつかの実施形態又は実施例では、粒子、粉末、ペレット、ビーズ、顆粒、コーティング、又はシート／層は、組成物であり得、金属有機構造体、ナノ粒子、ナノ磁性粒子、結合剤、緩衝液、又はそれらの組み合わせを含む群から選択される任意選択的な添加剤を更に含む。ある実施形態では、存在する場合、MOF は、ビーズ又はペレットを作製する目的のために、エアロゲル形成後の表面修飾剤として使用され、エアロゲルの表面を修飾する。別の実施形態又は実施例では、プロセスによって調製されたシリカベースのエアロゲルは、複数のペレットとして提供され得る。ペレットは、金属有機構造体、ナノ粒子、ナノ磁性粒子、結合剤、緩衝剤、又はそれらの組み合わせを含む群から選択される任意選択的な添加剤を更に含み得る。ある実施例では、ペレットは、結合剤及び任意選択的な潤滑剤と組み合わせて、プロセスによって調製されるシリカベースのエアロゲルを含み得るか、又はそれからなり得る。結合剤は、セルロース系ポリマー、シラン系ポリマー、セルロースーシロキサン系ポリマー、ポリグリコール系ポリマー、エポキシ系ポリマー、コロイドシリカ、ポリビニルピロリドン、ポリビニルアルコール、ポリエチレンイミン、又はそれらの組み合わせを含む群から選択され得る。結合剤は、市販の結合剤から選択され得る。他の構成成分が市販の結合剤の一部を形成し得ることが理解されよう。ある実施例では、結合剤は、潤滑剤などの他の構成成分を含み得る。必要に応じて潤滑剤を使用して、エアロゲル製剤の粘度を、例えば、押し出し成形可能な材料に調節してもよい。例えば、他の構成成分は、リン酸二カルシウム、二酸化ケイ素、デキストロースー水和物、及びステアリン酸マグネシウムを含み得る。

20

30

【0131】

いくつかの実施形態又は実施例では、添加剤の量は、総エアロゲル組成物に基づいて、約 1～約 50 重量%の範囲にあり得る。添加剤の量は、少なくとも約 1、5、10、15、20、25、30、35、40、45、又は 50 重量%であり得る。シリケートの量は、約 50、45、40、35、30、25、20、15、10、5、又は 1 重量%未満であり得る。これらの量の組み合わせは可能であり、例えば、添加剤の量は、約 10 重量%～約 50 重量%、約 15 重量%～約 45 重量%、又は約 20 重量%～約 40 重量%であり得る。例えば、結合剤の量は、総エアロゲル組成物に基づいて、約 10 重量%～約 50 重量%、約 15 重量%～約 45 重量%、又は約 20 重量%～約 40 重量%の範囲にあり得る。

40

【0132】

50

更なる実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルは、複合体の形態にあり得、複合体は、乾燥したシリカベースのエアロゲル、結合剤、及び任意選択的に潤滑剤からなる混合物をペレットに圧縮することによって調製され得る。更なる実施形態又は実施例では、エアロゲル複合体は、(i) 本明細書に記載される実施形態若しくは実施例のいずれか1つによる、又はそれらの組み合わせによる、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含む、エアロゲルと、(ii) 1つ以上の添加剤であって、添加剤が約5～約35重量%の充填%を有する、添加剤と、(iii) 任意選択的に潤滑剤、及び(iii) 任意選択的に溶媒と、を含み得るか、又はそれらからなり得る。なお更なる実施形態又は実施例では、エアロゲル複合体は、(i) 本明細書に記載される実施形態若しくは実施例のいずれか1つによる、又はそれらの組み合わせによる、アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含む、エアロゲルと、(ii) 1つ以上の添加剤であって、添加剤が約5～約35重量%の充填%を有する、添加剤と、(iii) 任意選択的に潤滑剤と、を含み得るか、又はそれらからなり得る。

10

【0133】

いくつかの実施形態では、複合体は、(c1) 本明細書に記載される実施形態若しくは実施例のうちのいずれか1つ以上によるエアロゲル、任意選択的に潤滑剤、及び1つ以上の添加剤からなる混合物をペレットに圧縮することであって、1つ以上の添加剤が、約5～約35重量%の充填%を有する、圧縮すること、又は(c2) 粘性ペーストを提供するための、本明細書に記載される実施形態若しくは実施例のうちのいずれか1つ以上によるエアロゲル、1つ以上の添加剤、任意選択的に潤滑剤、及び溶媒からなる混合物の液体押し出し成形であって、1つ以上の添加剤が、約5～約35重量%の充填%を有する、液体押し出し成形によって、調製され得る。1つ以上の添加剤は、結合剤、任意選択的に金属有機構造体(MOF)、及びナノ粒子から選択され得る。特定の実施形態では、1つ以上の添加剤は、結合剤であり得る。結合剤は、セルロース系ポリマー、シラン系ポリマー、セルロース-シロキサン系ポリマー、ポリグリコール系ポリマー、ポリビニルピロリドン、ポリビニルアルコール、ポリエチレンイミン、ベントナイト、黒鉛、又はそれらの組み合わせを含む群から選択され得る。本明細書に記載される実施形態又は実施例のうちのいずれか1つ以上による任意の2つ以上のエアロゲルの組み合わせが、複合体を調製するプロセスにおいて使用される場合、複合体は、混合エアロゲル複合体と称され得ることが理解されよう。

20

30

【0134】

別の実施例では、シリカベースのエアロゲルは、複合体の形態にあり得、複合体は、乾燥したシリカベースのエアロゲル、結合剤、及び任意選択的に潤滑剤からなる混合物の液体押し出し成形によって調製され得、粘性ペーストを提供する。なお別の実施例では、シリカベースのエアロゲルは、複合体の形態にあり得、複合体は、乾燥したシリカベースのエアロゲル、結合剤、任意選択的な潤滑剤、及び溶媒からなる混合物の液体押し出し成形によって調製され得、例えば、基材上のコーティングとして使用され得る粘性ペーストを提供する。

【0135】

いくつかの実施形態又は実施例では、1つ以上の添加剤は、結合剤、任意選択的に金属有機構造体(MOF)、界面活性剤、及びナノ粒子から選択され得る。存在する場合、添加剤は、エアロゲル製剤の35%未満、好ましくは10%未満であり得る。いくつかの実施形態又は実施例では、プロセスによって調製されたシリカベースのエアロゲルは、複数の粒子、粉末、ペレット、ビーズ、顆粒、コーティング、又はシート/層であり得る。いくつかの実施形態又は実施例では、粒子、粉末、ペレット、ビーズ、顆粒、コーティング、又はシート/層は、組成物であり得、金属有機構造体、ナノ粒子、ナノ磁性粒子、結合剤、又はそれらの組み合わせを含む群から選択される任意選択的な添加剤を更に含む。ある実施形態では、存在する場合、MOFは、ビーズ又はペレットを作製する目的のために、エアロゲル形成後の表面修飾剤として使用され、エアロゲルの表面を修飾する。

40

【0136】

50

いくつかの実施形態では、複合体ペレットは、本明細書に記載されるような乾燥したエアロゲルを、約5～約35重量%の添加剤（例えば、結合剤）及び任意選択的な潤滑剤と混合することによって調製することができる。別の実施形態では、複合体ペーストは、本明細書に記載されるような乾燥したエアロゲルを、約5～約35重量%の添加剤（例えば、結合剤）、任意選択的な潤滑剤、及び溶媒（例えば、エタノール及び水の水性溶液）と混合することによって調製することができる。得られる粘性ペーストは、液体押し出し成形によって複合体ペレットを形成するために使用することができるか、又は基材上のコーティングとして使用するために必要に応じて更に希釈することができる。

【0137】

添加剤（例えば、結合剤）の充填%は、少なくとも約5、10、15、20、25、30、又は35重量%であり得る。他の実施形態又は実施例では、添加剤（例えば、結合剤）の充填%は、約35、30、25、20、15、10、又は5重量%未満であり得る。これらの値を組み合わせる様々な範囲を形成することも可能であり、例えば、添加剤（例えば、結合剤）の充填%は、約5重量%～約30重量%、約8重量%～約25重量%、例えば、約10重量%～約20重量%であり得る。

【0138】

一実施形態又は実施例では、プロセスによって調製されたシリカベースのエアロゲルは、自己支持性であり得る。上述のように、本明細書で使用される「自己支持性」という用語は、支持体材料（例えば、足場）の不在下で、シリカベースのエアロゲルがその形態を維持する能力を指す。例えば、プロセスによって調製されたシリカベースのエアロゲルは、複数の粒子を含み得、粒子は、足場支持体の不在下でその形態を維持する。シリカベースのエアロゲルの自己支持性の性質は、例えば、流動ベッド反応器を使用してエアロゲルの粒子をガス流と接触させることを可能にする、ある特定の利点を提供し得る。したがって、一実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルは、別個の多孔質支持体構造などの、別個の支持体構造を含まない。したがって、シリカベースのエアロゲルが「自己支持性」である場合、エアロゲルに外因性の支持体材料（例えば、足場）は存在しないことが理解されるであろう。

【0139】

他の実施形態又は実施例では、プロセスによって調製されたシリカベースのエアロゲルは、カラム内の層として提供され得、ガス流は、カラムを通して流れ、シリカベースのエアロゲル層を通過する。層は、任意の特定のシリカベースのエアロゲル形態に限定されない。一実施例では、好適なカラムは、複数のシリカベースのエアロゲル粒子によりパッキングされて、隣接する粒子の間に十分な隙間空間を有するパッキングされたベッドを形成して、そこを通るガスの流れを可能にし得る。あるいは、シリカベースのエアロゲルは、ガス流（例えば、流動ベッド反応器）を伴う流れにおいて提供され得る。

【0140】

別の実施形態又は実施例では、プロセスによって調製されるシリカベースのエアロゲルは、基材上のコーティング組成物として提供され得る。いくつかの実施形態又は実施例では、基材は、平面、例えば、平面シートであり得る。特定の例では、基材は、可撓性シートであり得る。平面基材は、シリカベースのエアロゲルコーティング組成物をその上に適用することができる両面要素を提供する。各基材は、2つの対向する側面上に、シリカベースのエアロゲルコーティング組成物によってコーティングされ得る。平面基材は、任意の構成を有し得る。いくつかの実施形態又は実施例では、平面基材は、平坦な固体表面を含み得る。他の実施形態又は実施例では、平面基材は、基材を通過する及び基材の周りを通るガスの流れを支援するように設計された、1つ以上の開口部を含み得る。特定の実施形態又は実施例では、基材は、メッシュ、例えば、マイクロワイヤメッシュを含み得る。メッシュの使用は、多数の開口部（例えば、マイクロサイズの開口部）を提供し、それによって、シリカベースのエアロゲルコーティング組成物をその上に適用することができる、高い表面積を提供する一方で、他の構成、例えば、パッキングされたベッドと比較して、基材全体にわたって（当然ながらメッシュのサイズ及び構成に対して）適度に低い圧力

降下を有する好適な流路も提供する。

【0141】

いくつかの実施形態又は実施例では、アミノ置換シランの量は、総エアロゲルに基づいて、約10～約80重量%の範囲にあり得る。アミノ置換シランの量は、少なくとも約10、15、20、25、30、35、40、45、50、55、60、65、70、75、又は80重量%であり得る。アミノ置換シランの量は、約80、75、70、65、60、55、50、45、40、35、30、25、20、15、又は10重量%未満であり得る。これらの量の組み合わせは可能であり、例えば、アミノ置換シランの量は、約10重量%～約60重量%、約20重量%～約50重量%、約35重量%～約45重量%、又は約40重量%～約60重量%であり得る。

10

【0142】

いくつかの実施形態又は実施例では、アルキル置換シランの量は、総エアロゲルに基づいて、約10～約80重量%の範囲にあり得る。アルキル置換シランの量は、少なくとも約10、15、20、25、30、35、40、45、50、55、60、65、70、75、又は80重量%であり得る。アルキル置換シランの量は、約80、75、70、65、60、55、50、45、40、35、30、25、20、15、又は10重量%未満であり得る。これらの量の組み合わせは可能であり、例えば、アルキル置換シランの量は、約10重量%～約60重量%、約15重量%～約65重量%、又は約20重量%～約40重量%であり得る。

【0143】

いくつかの実施形態又は実施例では、シリケートの量は、総エアロゲルに基づいて、約10～約50重量%の範囲にあり得る。シリケートの量は、少なくとも約10、15、20、25、30、35、40、45、50、55、60、65、70、75、又は80重量%であり得る。シリケートの量は、約80、75、70、65、60、55、50、45、40、35、30、25、20、15、又は10重量%未満であり得る。これらの量の組み合わせは可能であり、例えば、シリケートの量は、約10重量%～約50重量%、約15重量%～約45重量%、又は約20重量%～約40重量%であり得る。

20

【0144】

低CO₂濃度のガス流

本開示のプロセスは、CO₂濃度のガス流からCO₂を捕捉することができる。例えば、プロセスは、低CO₂濃度の空気からCO₂を捕捉することができる。低濃度ガス流の例としては、空気（例えば、周囲空気）、換気された空気（例えば、空調ユニット及び建物の換気）、CO₂が特定の時間に吸着され、異なる時間に使用される温室型環境、及び呼吸する空気をリサイクルする部分的に閉じたシステム（例えば、潜水艦、宇宙船、航空機又はリブリーザー）が挙げられる。

30

【0145】

本明細書に記載されるような微多孔性エアロゲルは、低レベルのCO₂を含む空気からのCO₂の吸着に最も好適である。好ましくは、微多孔性エアロゲルは、直接CO₂捕捉用途に使用され得る。微多孔性エアロゲルは、10,000ppm（10%のCO₂）未満、好ましくは7,000ppmのCO₂（7%のCO₂）未満、より好ましくは5,000ppmのCO₂（5%のCO₂）未満、更により好ましくは500ppm（0.5%のCO₂）未満の空気からのCO₂の吸着に好適である。微多孔性エアロゲルは、50ppm（0.05%のCO₂）未満を含む空気からのCO₂の吸着にも好適である。例えば、微多孔性エアロゲルは、CO₂のおよそ0.04%を有する空気、又はCO₂レベルが約360ppm～約412ppmである空気からのCO₂の直接空気捕捉に使用するのに好適である。微多孔性エアロゲルを使用して、CO₂を吸着し、約2.5%未満でのCO₂レベルを有する閉鎖環境における、又は最大約7%以下のより高いCO₂レベルを有する閉鎖環境における空気を浄化することもできる。

40

【0146】

好ましくは、水を含むガス流からのCO₂に対する選択性は50%を超える。例えば、

50

微多孔性エアロゲルを使用して、500ppm未満のCO₂、及びH₂O濃度の少なくとも1000ppmを含む空気からCO₂を吸着することができ、CO₂に対する選択性はH₂Oよりも50%を超える。

【0147】

いくつかの実施形態又は実施例では、低CO₂濃度のガス流は、約200,000の百万分の一(ppm)未満のCO₂濃度を有し得る。一実施形態又は実施例では、低CO₂濃度のガス流は、150,000、100,000、75,000、50,000、25,000、20,000、10,000、7,000、5,000、4,000、1,000、900、800、700、600、500、400、300、200、又は100ppm未満のCO₂濃度を有し得る。別の実施形態又は実施例では、低CO₂濃度のガス流は、約100ppm～約100,000ppm、約400ppm～約20,000ppm、約3,000ppm～約150,000ppm、約4,000ppm～約5,000ppm、約100ppm～約10,000ppm、約100ppm～約1,000ppm、又は約100ppm～約500ppmのCO₂濃度を有し得る。一実施形態では、低CO₂濃度のガス流は、約200ppm～約500ppm、又は約400ppm～約500ppm、又は約400ppm～約450ppmのCO₂濃度を有し得る。

10

【0148】

1ppmは、0.0001体積%に等しいことが理解されるであろう。例えば、約100,000ppm未満のCO₂濃度を有するガス流は、ガス流中のCO₂の10.0体積%に等しい。したがって、いくつかの実施形態又は実施例では、低CO₂濃度のガス流は、約20、15、10、7.5、5、2.5、1、0.5、0.1、0.09、0.08、0.07、0.06、0.05、0.04、0.03、0.02、又は0.01体積%未満のCO₂濃度を有し得る。別の実施形態又は実施例では、低CO₂濃度のガス流は、約0.01体積%～約15体積%、約3体積%～約15体積%、約4体積%～約5体積%、0.1体積%～約2体積%、約0.01体積%～約1体積%、約0.01体積%～約0.1体積%、又は0.01体積%～約0.05体積%のCO₂濃度を有し得る。一実施形態又は実施例では、低CO₂濃度のガス流は、約0.02体積%～約0.05体積%、例えば約0.04体積%のCO₂濃度を有し得る。

20

【0149】

一実施形態又は実施例では、低CO₂濃度のガス流は、周囲空気（例えば、大気）中と同じCO₂濃度を有し得る。したがって、一実施形態では、低CO₂濃度のガス流は、世界中のほとんどの場所における周囲空気中のような、約400ppm～約450ppmのCO₂、例えば、約400ppm～415ppmのCO₂濃度を有し得る。したがって、一実施形態では、プロセスは、直接空気捕捉(DAC)のためのものである。

30

【0150】

一実施形態又は実施例では、プロセスは、屋内密閉環境(DACi)における直接空気捕捉のためのものである。したがって、CO₂濃度ガス流は、最大2,000ppmのCO₂濃度を有し得る。

【0151】

一実施形態又は実施例では、プロセスは、マスク又は個人用保護具(DACp)内の呼吸の直接空気捕捉のためのものである。したがって、CO₂濃度ガス流は、約4,000ppm～約5,000ppmのCO₂濃度を有し得る。

40

【0152】

一実施形態又は実施例では、プロセスは、外部発電所(DACex)における直接空気捕捉のためのものである。したがって、CO₂濃度ガス流は、約3,000ppm～約150,000ppmのCO₂濃度を有し得る。

【0153】

一実施形態又は実施例では、ガス流は、100ppm（すなわち、0.01体積%）未満の炭化水素ガスを含み得る。例えば、ガス流は、約100、75、50、25、20、15、10、5、4、3、又は2ppm未満の炭化水素ガスを含み得る。「炭化水素ガス

50

」という用語は、メタン、エタン、エチレン、プロパン、及び他の C_3+ 炭化水素を含むが、これらに限定されない、炭化水素化合物のガス混合物を指すと理解されるであろう。例えば、周囲空気は、メタンを微量の不純物（例えば、 $2\text{ ppm}/0.0002$ 体積％）として含み、したがって、周囲空気は、 3 ppm 未満の炭化水素ガスを含み得ることが、当業者によって理解されるであろう。低 CO_2 濃度のガス流は、主に窒素を含み得、ガス流中の主要な体積％の割合を占める。例えば、低 CO_2 濃度のガス流は、少なくとも約50体積％の窒素、例えば、少なくとも約70体積％の窒素を含み得る。一実施形態では、低 CO_2 濃度のガス流は、約78体積％の窒素（例えば、周囲空気）を含む。

【0154】

低 CO_2 濃度のガス流は、ある量の水を含み得る（例えば、ガス流は、湿気のある／湿った、例えば多湿ガス流である）。例えば、低 CO_2 濃度のガス流は、約1体積％～約10体積％の水を含み得る。あるいは、低 CO_2 濃度のガス流は、乾燥ガス流であり得る。

【0155】

代替の実施形態では、プロセスは、高 CO_2 濃度のガス流又は大気から CO_2 を捕捉することができる。例えば、高 CO_2 濃度のガス流又は大気は、 925 mbar （100体積％）の CO_2 濃度を有し得る。

【0156】

いくつかの実施形態又は実施例では、ガス流は、換気システム、例えば、建物の換気又は空調から生じる。他の実施形態又は実施例では、ガス流は、例えば、潜水艦、宇宙船、又は航空機内で、呼吸ガスをリサイクルするように設計された閉じた、又は少なくとも部分的に閉じたシステムから生じる。本開示のシリカベースのエアロゲルはまた、より高い CO_2 濃度を有するガス流から CO_2 を吸収することができ、広範囲の空気捕捉用途のためのシリカベースのエアロゲルの汎用性を強調することができることが理解されよう。ある実施例では、100体積％の CO_2 濃度（例えば、 925 mbar ）における高濃度での CO_2 を捕捉するためのシリカベースのエアロゲルの有効性は、本発明者らによって驚くべきものであることが見出されている。別の実施例では、15体積％の CO_2 濃度（例えば、 150 mbar ）を有する煙道ガス条件（例えば、外部発電所）に相当する濃度で CO_2 を捕捉するためのシリカベースのエアロゲルの有効性もまた、本発明者らによって驚くべきものであることが見出されている。別の実施例では、最大2体積％の CO_2 濃度（例えば、 $2,000\text{ ppm}$ ）を有する屋内密閉環境において CO_2 を捕捉するためのシリカベースのエアロゲルの有効性もまた、本発明者らによって驚くべきものであることが見出されている。屋内密閉環境における2体積％未満の CO_2 濃度は、例えば、部屋、潜水艦、宇宙船、航空機、又は任意の他の閉鎖環境を含み得ることが理解されよう。なお別の実施例では、約4～5体積％の CO_2 濃度（例えば、約 $4,000\text{ ppm}$ ～約 $5,000\text{ ppm}$ ）の濃度でのマスク／個人用保護具内の呼気から CO_2 を捕捉するためのシリカベースのエアロゲルの有効性もまた、本発明者らによって驚くべきものであることが見出されている。例えば、比較的低い濃度の0.04体積％（例えば、 400 ppm ）で CO_2 を捕捉するためのシリカベースのエアロゲルの有効性は、本発明者らによって特に驚くべきものであることが見出されている。0.04体積％又は 500 ppm 未満の CO_2 濃度は、大気からの直接空気捕捉（DAC）を指すことが理解されよう。

【0157】

低 CO_2 濃度のガス流又は大気は、シリカベースのエアロゲルと接触する。ガス流は、シリカベースのエアロゲルに接触する（例えば、通過する）のに好適な流量を有し得る。あるいは、ガス流は、いかなる背圧又は流量も加えることなく、シリカベースのエアロゲルと接触し得る（例えば、ガス流は、接触時にシリカベースのエアロゲル内に有機的に拡散し得る）。いくつかの実施形態又は実施例では、ガス流は、例えば、シリカゲルベースのエアロゲルが温室に構成されている場合などの、シリカベースのエアロゲルを取り囲む大気、例えば、低 CO_2 濃度の大气であり得る。いくつかの実施形態では、ガス流は、シリカベースのエアロゲルを通過する（例えば、シリカベースのエアロゲルの第1の側面又は面から入り、異なる側面又は面から出る）、又はガス流は、例えば、シリカベースのエ

10

20

30

40

50

アロゲルが周囲空気などの大気中に配置されている場合に、シリカベースのエアロゲル内に単に拡散し得る。したがって、いくつかの実施形態では、ガス流は、ガス流をシリカベースのエアロゲルに「通す」ことを本質的に強制するために背圧を加える必要はないが、いくつかの実施形態では、これは、例えば、シリカベースのエアロゲルが建物の換気システムに構成されている場合などに、望ましい場合があることが理解されるであろう。一実施形態では、ガス流（例えば、大気）は、シリカベースのエアロゲルと接触すると、シリカベースのエアロゲル内に拡散する。

【0158】

いくつかの実施形態又は実施例では、ガス流は、流量を有しない、例えば、 $0\text{ m}^3/\text{時}$ である。いくつかの実施形態又は実施例では、ガス流は、約 $0.01\text{ m}^3/\text{時}$ ～約 $1500\text{ m}^3/\text{時}$ の流量を有する。ガス流の流量（ $\text{m}^3/\text{時}$ ）は、少なくとも約 0.01 、 0.05 、 0.1 、 0.5 、 1 、 5 、 10 、 20 、 30 、 40 、 50 、 60 、 70 、 80 、 90 、 100 、 200 、 300 、 400 、 500 、 600 、 700 、 800 、 900 、 1000 、又は 1500 であり得る。ガス流の流量（ $\text{m}^3/\text{時}$ ）は、約 1500 、 1000 、 900 、 800 、 700 、 600 、 500 、 400 、 300 、 200 、 100 、 90 、 80 、 70 、 60 、 50 、 40 、 30 、 20 、 10 、 5 、 1 、 0.5 、 0.1 、 0.05 、又は 0.01 未満であり得る。これらの流量の組み合わせは可能であり、例えば、ガス流の流量は、約 $0.01\text{ m}^3/\text{時}$ ～約 $1500\text{ m}^3/\text{時}$ 、約 $5\text{ m}^3/\text{時}$ ～約 $1000\text{ m}^3/\text{時}$ 、約 $10\text{ m}^3/\text{時}$ ～約 $500\text{ m}^3/\text{時}$ 、約 $20\text{ m}^3/\text{時}$ ～約 $200\text{ m}^3/\text{時}$ 、又は約 $60\text{ m}^3/\text{時}$ ～約 $1000\text{ m}^3/\text{時}$ であり得る。いくつかの実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルに接触するときにガス流の流量を増加させることは、シリカベースのエアロゲルにおける CO_2 吸収及び捕捉のより速い速度をもたらし得る。工業スケールの用途のためには、ガス流の流量は、最大 $1000\text{ m}^3/\text{時}$ であり得る。いくつかの実施形態又は実施例では、ガス流は、流量を有しない（例えば、周囲大気）。

【0159】

低 CO_2 濃度のガス流は、シリカベースのエアロゲルと接触する前に、ガス流中に存在する水分（ H_2O ）のうちの少なくとも一部を除去するために、少なくとも部分的に乾燥され得る。例えば、ガス流は、 10% 、 8% 、 6% 、 4% 、 2% 、若しくは 1% 未満の湿度まで、又はこれらの値のうちの任意の2つの間、例えば、約 1% ～約 10% 、約 1% ～約 6% 、約 1% ～約 4% の湿度まで乾燥され得る。ガス流は、任意の従来の手段（例えば、吸湿性材料を通過させるか、又は熱源と接触させること）によって乾燥され得、その湿度は、本明細書に記載されるようなプロトコルを介して測定された。

【0160】

いくつかの実施形態又は実施例では、低 CO_2 濃度のガス流は、シリカベースのエアロゲルに接触する前に初期 CO_2 濃度を有し、シリカベースのエアロゲルに接触した後に最終的な CO_2 濃度（本明細書では、排出ガス流及び／又は排出 CO_2 濃度とも称される）を有する。 CO_2 がガス流からシリカベースのエアロゲルに吸収されると、排出流中の CO_2 の濃度は、シリカベースのエアロゲルと接触する（例えば、通過する）前のガス流の初期 CO_2 濃度よりも低くなることが理解されよう。

【0161】

ガス流中の CO_2 の濃度は、任意の好適な手段、例えば、ガスクロマトグラフィー質量分析、同位体分析装置（例えば、 $\text{G}2201-i\text{ Isotopic Analyzer}$ （ PICARRO ））、及び／又は赤外線分光計（例えば、インライン校正された空洞リングダウン IR 分光計）によって測定され得る。ガス流中の CO_2 の濃度は、任意の好適な手段、例えば、 $0\sim100\%$ の範囲をカバーする SprintIR （登録商標）-6S、及び $0\sim1\%$ の CO_2 の範囲を有するK30周囲センサによって監視され得る。

【0162】

吸着装置

いくつかの実施形態又は実施例では、ガス流又は大気から二酸化炭素を捕捉するための吸着装置であって、本明細書に記載されるような少なくとも1つのシリカベースのエアロ

ゲルを囲むチャンバであって、ガス流がシリカベースのエアロゲルに流れることができる入口と、排出ガス流がシリカベースのエアロゲルから流れ出ることができる出口と、を備える、チャンバを備える、装置が提供される。少なくとも1つのシリカベースのエアロゲルは、チャンバの入口と出口との間に位置され得る。

【0163】

流体の流れは、典型的には、ガス流を、チャンバの入口から、囲まれた少なくとも1つのシリカベースのエアロゲルを横切って、出口を通してチャンバから移動させることを必要とする。流体の流れは、吸着装置の入口から出口への流体の流れを駆動する、少なくとも1つの流体の流れデバイスによって駆動され得る。種々の異なる流体の流れデバイスが使用され得る。いくつかの実施形態又は実施例では、流体の流れデバイスは、少なくとも1つのファン又はポンプを含む。いくつかの実施形態又は実施例では、入口を通して入り、少なくとも1つのシリカベースのエアロゲルを横切る、ガス流の流量は、約0.01 m³/時～1500 m³/時であり得る。ガス流の流量 (m³/時) は、少なくとも約0.01、0.05、0.1、0.5、1、5、10、20、30、40、50、60、70、80、90、100、200、300、400、500、600、700、800、900、1000、又は1500であり得る。ガス流の流量 (m³/時) は、約1500、1000、900、800、700、600、500、400、300、200、100、90、80、70、60、50、40、30、20、10、5、1、0.5、0.1、0.05、又は0.01未満であり得る。これらの流量の組み合わせは可能であり、例えば、ガス流の流量は、約0.01 m³/時～約1500 m³/時、約5 m³/時～約500 m³/時、約10 m³/時～約200 m³/時、約20 m³/時～約600 m³/時、又は約60 m³/時～約1000 m³/時であり得る。チャンバを通して、少なくとも1つのシラン系エアロゲルを横切るガス流の流量は、シリカベースのエアロゲルを通る、又は横切る測定可能な背圧を実質的に伴わずに達成され得る。代替の実施形態又は実施例では、圧力分散又は吸引を使用して、デバイスを通るガス流の流体の流れを駆動し得る。工業スケールの用途のためには、ガス流の流量は、最大1000 m³/時であり得る。

【0164】

チャンバは、任意の好適な構成を有し得る。いくつかの実施形態又は実施例では、チャンバは、一方の端部に入口と、反対側の端部に出口と、を備える、チャンバを備える。ある実施形態又は実施例では、本明細書に記載されるような基材は、チャンバ内に、位置され得るか、さもなければその体積内の表面積を増加させるために圧密化様式でパッキングされ得る。

【0165】

装置は、本明細書に記載されるように、シリカベースのエアロゲルを囲む単一又は複数のチャンバを備え得る。いくつかの実施形態又は実施例では、装置は、ガス流に平行に接続された、少なくとも1つのシリカベースのエアロゲルを囲む2つ以上のチャンバを備え得る。別の実施形態又は実施例では、装置は、各チャンバ内に少なくとも1つのシリカベースのエアロゲルを囲む少なくとも3つのチャンバを備え得、各チャンバは、ガス流に平行に接続され得る。いくつかの実施形態又は実施例では、少なくとも3つのチャンバ内に囲まれたシリカベースのエアロゲルは、吸着及び再生サイクルの異なるセクションにおいて動作して、排出ガス流の連続的な流れを生成し得る。

【0166】

いくつかの実施形態又は実施例では、プロセスは、チャンバによって囲まれたシリカベースのエアロゲル内でCO₂を吸着し、排出ガス流を連続的に生成するように、繰り返しサイクルにおける少なくとも1つの脱着配置の操作によってCO₂を放出するステップである、循環方法であり得る。サイクル時間は、吸着装置の構成、チャンバの構成、脱着配置のタイプ、シリカベースのエアロゲルの組成、ブレイクスルー点、飽和点、及び特定のシリカベースのエアロゲルの特徴、温度、圧力、並びに他のプロセス条件に依存し得る。いくつかの実施形態又は実施例では、サイクル時間は、約10、15、20、30、45、60分間（1時間）、2、5、10、24、48、又は36時間であり得る。

【0167】

いくつかの実施形態又は実施例では、脱着配置は、熱及び／又は減圧が使用されているかどうかに応じて、任意の数の形態をとることができる。いくつかの実施形態又は実施例では、装置は、圧スイング吸着用に設計されており、脱着は、例えば、真空ポンプを使用して、シリカベースエアロゲルを囲むチャンバの周りからガスを排気するために圧力を低減させることによって達成される。他の実施形態又は実施例では、温度スイング吸着は、シリカベースのエアロゲルから CO_2 を収集するために行われる。これは、直接加熱方法を使用して、又は場合によっては磁気誘導スイング吸着を使用して達成することができる。

【0168】

いくつかの実施形態又は実施例では、脱着配置は、シリカベースのエアロゲルが加熱される温度スイング吸着配置を含み得る。例えば、少なくとも1つの脱着配置を操作することにより、シリカベースのエアロゲルを約 $60 \sim 140^\circ\text{C}$ の温度に加熱する。脱着のための温度は、少なくとも約 60 、 70 、 80 、 90 、 100 、 110 、 120 、 130 、又は 140°C であり得る。脱着のための温度は、約 140 、 130 、 120 、 110 、 100 、 90 、 80 、 70 、又は 60°C 未満であり得る。これらの温度の組み合わせは可能であり、例えば、脱着のための温度は、約 $60^\circ\text{C} \sim 140^\circ\text{C}$ 、約 $70^\circ\text{C} \sim 130^\circ\text{C}$ 、又は約 $80^\circ\text{C} \sim 120^\circ\text{C}$ であり得る。

【0169】

本開示は、本明細書に記載されるように、 CO_2 の濃度を含有するガス流をシリカベースのエアロゲルとの吸着接触に供給するプロセスを提供する。シリカベースのエアロゲルにある量の CO_2 を充填した後、脱着配置が活性化され、 CO_2 のうちの少なくとも一部分がシリカベースのエアロゲルから放出されるように強制する。脱着されたシリカベースのエアロゲルは、二次プロセスを使用して収集され得る。

【0170】

換言すると、出口からの排出ガス流は、種々の二次プロセスに流れ得る。例えば、二酸化炭素捕捉のために、本開示の吸着装置は、液化器及び／又はドライアイスペレタイザーと統合され、ドライアイスをオンデマンドで提供し得る。別の実施例では、本開示の吸着装置は、二酸化炭素(CO_2)をメタンに変換するために、水素化装置と統合され得る。なお別の実施例では、本開示の吸着装置を使用して、二酸化炭素(CO_2)を吸着し、それを異なる時間に使用するために貯蔵することができる。これは、 CO_2 が特定の時間に吸着され、異なる時間に使用される温室型環境に適用可能である。なお別の実施例では、本開示の吸着装置は、閉じ込められた空間内の CO_2 に特に適用可能であり得る。例えば、潜水艦、宇宙船、航空機、又は CO_2 を除去するために吸着装置が使用され、かつ CO_2 を連続サイクルで吸着及び脱着することができる装置の部屋のような他の閉じ込められた空間の内部。別の実施例では、本開示の吸着装置を使用して、 CO_2 を液体燃料に変換することができる。なお別の実施例では、本開示の吸着装置は、 pH を調節するためにスイミングプールに含まれ得るか、又はコンクリートに注入され得る(捕捉及び貯蔵)。なお別の実施例では、本開示の吸着装置を使用して、炭酸飲料及びスパークリング水などの飲料を通気し、醸造及び／又は瓶詰め工業における用途を見出し得る。なお別の実施例では、本開示の吸着装置は、果物及び野菜の熟成を制御するために使用され得る。

【0171】

任意の所与の用途のためのシリカベースのエアロゲル製剤は、エアロゲルの密度に基づいて選択され得ることが理解されよう。高密度を有するシリカベースのエアロゲル製剤は、任意のデバイスに好適であり得、好ましくは、より小さいデバイスに好適であり得る。例えば、高密度を有するエアロゲル製剤は、制限された空間又は環境に適合する CO_2 吸着-脱着デバイスを作製するために使用され得る。これらのタイプのデバイスは、典型的には、宇宙、航空宇宙、水中車両、又はプラットフォームにおいて使用され得る。一方、低密度を有するエアロゲル製剤は、空間が問題ではない場合により好適であり得る。例えば、 CO_2 からメタンへの変換に関与する温室又は発電所に配置されたDACユニット。

【0172】

本開示の吸着装置は、有利には、圧密であり、エンドユーザにはるかに近く位置され得、それによって、破壊的な供給機会及びより良好な顧客価値を可能にする。

【0173】

シリカベースのエアロゲルのCO₂捕捉／放出、及び再生のためのプロセス

CO₂は、シリカベースのエアロゲルに吸収されることによってガス流から捕捉され得る。いくつかの実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルは、シリカベースのエアロゲル (mg / g) の1 g 当たり約10 mg のCO₂ ~ 約300 mg / g のCO₂を吸収することができる。いくつかの実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルは、少なくとも約10、20、30、40、50、60、70、80、90、100、120、150、200、250、又は300 mg / g のCO₂を吸収することができる。他の実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルは、約300、250、200、150、120、100、90、80、70、60、50、40、30、20、又は10 mg / g 未満のCO₂を吸収することができる。これらの吸収値の組み合わせは可能であり、例えば、シリカベースのエアロゲルは、約10 mg / g ~ 約80 mg / g のCO₂、約20 mg / g ~ 約70 mg / g のCO₂、又は約100 mg / g ~ 約300 mg / g、又は約200 mg / g ~ 約300 mg / g を吸収することができる。例えば、シリカベースのエアロゲルは、0.02 mbar で約2 mg / g ~ 1110 mbar で約100 mg / g を吸収することができる (298 K における)。

【0174】

いくつかの実施形態では、CO₂のうちの少なくとも約50%は、ガス流から除去され得る (例えば、CO₂のうちの少なくとも約50%は、ガス流からシリカベースのエアロゲルに吸収される)。いくつかの実施形態又は実施例では、少なくとも約50%、85%、90%、95%、99%、又は99.9%のCO₂は、ガス流から除去される。いくつかの実施形態では、約50% ~ 約99%のCO₂は、ガス流から除去される。

【0175】

ガス流は、シリカベースのエアロゲルに接触し (例えば、シリカベースのエアロゲルを含むベッドを通過する)、シリカベースのエアロゲルとの接触後に排出ガス流をもたらす。上記のように、シリカベースのエアロゲルと接触する前に、ガス流は、初期CO₂濃度を有する。シリカベースのエアロゲルと接触した後に、排水ガス流は、排水CO₂濃度を有する。シリカベースのエアロゲルとの接触後の排出ガス流中のCO₂の濃度を測定して、ガス流中に残るCO₂の濃度を決定し得る。

【0176】

いくつかの実施形態又は実施例では、時間の経過とともに、シリカベースのエアロゲルとの接触後の排出ガス流中のCO₂の濃度は、ガス流がシリカベースのエアロゲルと接触すると、CO₂の吸収が低減したことを示すか、又はこれ以上起こらないことを示すが増える可能性がある (例えば、シリカベースのエアロゲルが「消費される」ことを示し、CO₂の吸収がほとんど生じないか、これ以上生じないことを示す)。これは、CO₂捕捉を継続するために、シリカベースのエアロゲルを交換及び／又は再生するための指標として機能し得る。排出ガス流中のCO₂の濃度は、例えば、インライン校正された空洞リングダウンIR分光計を使用して、任意の好適な手段によって測定され得る。

【0177】

いくつかの実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルは、好適なチャンバ内に囲まれ得、チャンバは、その中に囲まれたシリカベースのエアロゲルに接触するために、ガス流が流れることができる1つ以上の入口と、排出流がチャンバから流れ出ることができる1つ以上の出口と、を備える。あるいは、シリカベースのエアロゲルは、その中に囲まれたシリカベースのエアロゲルに接触するために、ガス流が通って (例えば、背圧／流量が不在で) 拡散することができる1つ以上の開放部を備える、好適なチャンバに囲まれ得る。チャンバは、ガス流がシリカベースのエアロゲルにアクセスすることができることを条件に、多くの形態をとることができることが理解されよう。一実施形態又は実施例

では、チャンバは、本明細書に記載されるようなパッキングされたベッドカラムであり得る。

【0178】

いくつかの実施形態では、シリカベースのエアロゲルは、ベッドとして提供され得、ガス流をシリカベースのエアロゲルと接触させることは、シリカベースのエアロゲルを含むベッドにガス流を通過させることを含む。一実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルは、パッキングされたベッド反応器として提供される。他の実施形態では、ガス流をシリカベースのエアロゲルと接触させることは、例えば、流動ベッド反応器を使用して、シリカベースのエアロゲルの流れをガス流に導入することを含む。

【0179】

シリカベースのエアロゲルは、例えば、シリカベースのエアロゲルが消費され、これ以上のCO₂吸収が起こらなくなるまで、任意の好適な期間、ガス流と接触させ得る。一実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルは、排出ガス流中のCO₂の濃度が、ガス流のCO₂の初期濃度と同じになるまで、ガス流と接触している。いくつかの実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルは、少なくとも約5、10、30、60秒間（1分間）、10、15、20、30、45、60分間（1時間）、2、5、10、24、48、又は36時間、ガス流と接触している。

【0180】

いくつかの実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルは、様々なCO₂吸収の速度を提供する。一実施形態又は実施例では、CO₂吸収の速度は、時間の経過とともに排出ガス流のCO₂濃度を監視することによって測定し得る。例えば、排出ガス流中のCO₂の濃度は、シリカベースのエアロゲルとの約2時間の接触後、初期CO₂濃度の約50%未満であり得る。いくつかの実施形態又は実施例では、排出ガス流中のCO₂の濃度は、シリカベースのエアロゲルとの約4時間の接触後、初期CO₂濃度の約5%未満であり得る（換言すると、CO₂のうちの少なくとも約95%が4時間後にガス流から除去される）。他のCO₂吸収の速度も可能である。

【0181】

いくつかの実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルの安定性は、時間の経過とともに元の組成物の性能を監視することによって測定し得る。例えば、3回の捕捉－再生サイクル後、シリカベースのエアロゲルは、高湿度及び740ppmのCO₂濃度下で、その元の組成物のうちの少なくとも80%まで、その元の組成物を保持することができる。別の実施例では、3回の捕捉－再生サイクル後、シリカベースのエアロゲルは、低湿度及び400ppmの低CO₂濃度下で、その元の組成物のうちの少なくとも99%まで、その元の組成物を保持することができる。なお別の実施例では、3回の捕捉－再生サイクル後、シリカベースのエアロゲルは、低湿度及び925mbarの高CO₂濃度下で、その元の組成物のうちの少なくとも99%まで、その元の組成物を保持することができる。いくつかの実施形態又は実施例では、シリカベースのエアロゲルは、低CO₂濃度において低湿度又は高湿度下で、その元の組成物のうちの少なくとも80%、85%、90%、95%、97%、又は99%まで、その元の組成物を保持することができる。シリカベースのエアロゲルは、少なくとも約2、3、5、10、15、20、50、100、150、200、250、500、1000、又は2000回の捕捉－再生サイクルに対して安定であり得る。シリカベースのエアロゲルは、50回超の捕捉－再生サイクルに対して安定であり得る。

【0182】

本発明者らは、本明細書で調製されるシリカベースのエアロゲルのH₂Oを超えるCO₂の選択性が、CO₂濃度が約400ppmである場合、ゼオライト（例えば、ゼオライト13X）及びMOF（例えば、WO2020/113281に記載されるようなTIF-SIX）よりも高いことを予想外に示している。シリカベースのエアロゲルのH₂Oを超えるCO₂の選択性は、CO₂濃度が約400ppmである場合、ゼオライト13X及びTIF-SIXよりも少なくとも2倍高くてもよい。シリカベースのエアロゲルのH₂

Oを超えるCO₂の選択性は、CO₂濃度が約400ppmである場合、ゼオライト13X及びTIF-SIXよりも少なくとも3倍高くてもよい。シリカベースのエアロゲルのH₂Oを超えるCO₂の選択性は、CO₂濃度が約400ppmである場合、ゼオライト13X及びTIF-SIXよりも少なくとも4倍高くてもよい。

【0183】

シリカベースのエアロゲルにおける吸収後のCO₂は、CO₂とアミン基との間の結合を切断することによって放出され得る。これは、（加熱による）温度、又は（真空による）圧力を使用することによって達成され得る。これは、シリカベースのエアロゲルを含有するカラムを加熱すること、又は熱いガス流（例えば、蒸気）若しくは熱い空気を通過することを伴い得る。そのような脱着は、シリカベースのエアロゲル内で吸収されたCO₂のうちの少なくとも一部を脱着することができる、シリカベースのエアロゲルと接触するか、又はそれを取り囲む、加熱環境（例えば、温度）若しくは（例えば、真空による）加圧環境、又はそれらの組み合わせを提供することができる任意の好適な環境によって提供され得る。そのような脱着環境は、「オン」又は「オフ」状態において動作することができる。例えば、シリカベースのエアロゲルとの接触後の排出ガス流中のCO₂の濃度が、CO₂の吸収が低減しているか、又はこれ以上起こらないことを示すレベルまで増加していると、脱着環境は、シリカベースのエアロゲルからCO₂を脱着するように「オン」に切り替えられ得る。

10

【0184】

本明細書に開示されるような吸着プロセスは、例えば約10～40℃の範囲の周囲温度で実行され得る。例えば、周囲温度は、15～30℃、又は20～25℃であり得る。プロセスは、一般に、およそ典型的な大気圧（例えば、約20～100kPa）、又は低圧（例えば、約0.01～0.05kPa）で実行され得る。

20

【0185】

本明細書に開示されるような脱着プロセスは、例えば、約80～180℃の範囲の温度で実行され得る。例えば、温度は、90～160℃、又は100～140℃であり得る。

【0186】

本明細書に記載されるようなシリカベースのエアロゲルを使用するプロセスは、低湿度又は高湿度を有する環境での使用にも好適である。この場合、低湿度は、約5mb未満の部分的な水蒸気圧を意味する。約21℃では、これは、およそ20%以下の相対湿度に相当する。この場合、高湿度は、約5mb超の部分的な水蒸気圧を意味する。約21℃では、これは、約20%超の相対湿度に相当する。相対湿度は、以下のとおりに定義される。

30

【数1】

$$\text{相対湿度} = \frac{\text{実際の蒸気圧}}{\text{飽和蒸気圧}} \times 100\%$$

40

【0187】

水についての飽和蒸気圧は周知であり、気温に応じて変化する（Donald Ahrens, 1994, Meteorology Today—an introduction to weather, climate and the environment Fifth Edition—West Publishing Co）。その結果、水蒸気圧は、所与の相対湿度についての温度とともに変化する。この例示を以下に提供する（2014年12月にダウンロードした、<http://ww2010.atmos.uiuc.edu/%28Gh%29/guides/mtr/cld/dvlp/rh.rxml>）。

50

【表 1】

温度 (°C)	20%の相対湿度の部分 的な水蒸気圧 (mb)	80%の相対湿度の部分 的な水蒸気圧 (mb)	100%の相対湿度の 飽和水蒸気圧 (mb)
10	2.5	9.8	12.3
15	3.4	13.6	17.1
20	4.7	18.7	23.4
25	6.3	25.4	31.7
30	8.5	34.0	42.5
35	11.3	45.0	56.3

10

【0188】

プロセスは、低湿度を有する環境での使用に有効であるが、他の処理が有効ではない可能性のある高湿度でも有効である。換言すると、本プロセス及びシリカベースのエアロゲルの利点のうちの1つは、それらが、比較的広い適用ウィンドウ（例えば、温度、圧力、及び湿度の広いパラメータの組み合わせ）にわたって、かつ更なる特定の利点が、より高い湿度でのその使用ではあるが、特に広い湿度範囲にわたって使用され得ることである。

20

【0189】

プロセスは、例えば、約90%、80%、70%、60%、50%、40%、30%、20%、18%、16%、14%、12%、10%、8%、6%、4%、又は2%未満の相対湿度で実施され得る。プロセスは、約1%、2%、4%、6%、8%、10%、12%、14%、16%、18%、20%、30%、40%、50%、60%、又は70%超の相対湿度で実施され得る。プロセスは、これらの値のうちの任意の2つの間、例えば、約1%～約90%、約2%～約50%、約70%～約80%、約1%～約30%、又は約2%～約5%の相対湿度で実施され得る。所与の部分的な水蒸気圧についての相対湿度は温度に依存することが理解されよう。部分的な水蒸気圧及び温度は独立変数であり、相対湿度（RH）は従属変数であるが、任意の特定の温度で相対湿度が100%を超えることはできないという制約がある。例えば、上記の相対湿度値のうちのいずれか1つ以上は、温度が約10～45℃、約15～40℃、又は約20～35℃である場合に提供され得る。上記の相対湿度値は、例えば、温度が約15℃、16℃、17℃、18℃、19℃、20℃、21℃、22℃、23℃、24℃、25℃、26℃、27℃、28℃、29℃、30℃、31℃、32℃、33℃、34℃、35℃、36℃、37℃、38℃、39℃、40℃、41℃、42℃、43℃、44℃、又は45℃の値にある場合であり得る。本開示のようなプロセスについての適用ウィンドウは、上記のRH及び温度範囲又は値の任意の組み合わせであり得る。例えば、適用ウィンドウは、RHが約1%～約80%であり、約15℃～約40℃の温度範囲であり得る。

30

【0190】

湿度は、約60、50、40、30、20、15、14、13、12、11、10、9、8、7、6、5、4、3、又は2未満の部分的な水蒸気圧（mbにおける）によって提供され得る。湿度は、約1、2、3、4、5、6、7、8、9、10、11、12、13、14、15、20、30、40、50、60超の部分的な水蒸気圧（mbにおける）によって提供され得る。湿度は、これらの値のうちの任意の2つの間、例えば、約1～約50、例えば、約2～約25、例えば、約3～約15、例えば、約4～約10の部分的な水蒸気圧（mbにおける）によって提供され得る。湿度は、上記のような温度値又は範囲に従って所与の温度によって提供され得るが、温度値は、湿度が100%の相対湿度を超えないようなものであるか、又はその部分的な蒸気圧がその飽和蒸気圧を超えないようなものであることが理解されよう。これらの部分的な水蒸気圧値のいずれかについての所与の

40

50

温度における相対湿度は、例えば、約 90%、80%、70%、60%、50%、40%、30%、又は 20% 未満であり得る。

【0191】

当業者は、本開示の広い一般的な範囲から逸脱することなく、上記の実施形態に対して多数の変形及び／又は変更が行われ得ることを理解されよう。したがって、本実施形態は、全ての点で例示的であり、制限的ではないとみなされるべきである。

【実施例】

【0192】

本開示をより明確に理解し得るために、本発明の特定の実施形態は、以下の非限定的な実験材料、方法論、及び実施例を参照することによって、以下で更に詳細に記載される。

【0193】

実施例 1 主要なシリカベースのエアロゲル及びそれらのゲル化特性の概要

本発明者らは、CO₂の直接空気捕捉(DAC)の目的のために、様々なシラン(SiO₂)及びそれらの様々な組み合わせ(表1)に基づく誘導された微多孔性エアロゲル、並びに0.5%、1%及び100%のCO₂濃度に対するそれらの性能を開発している。誘導された微多孔性エアロゲルは、周囲条件(298 K及び0.4 mbar)でのCO₂吸着に対して選択的である。微多孔性エアロゲルは、次の有利な特性：微多孔性、疎水性、CO₂選択性、捕捉のための周囲CO₂条件、及び再生のための能力の意図を伴い設計された。

10

20

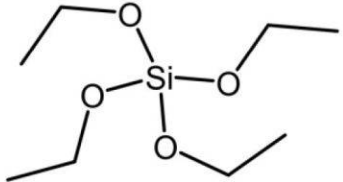
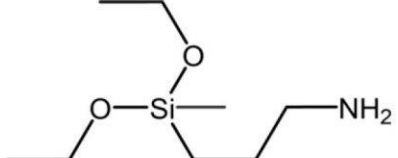
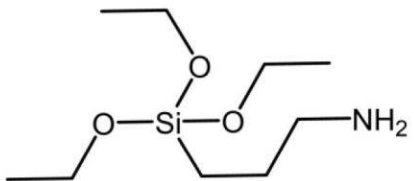
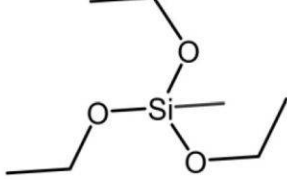
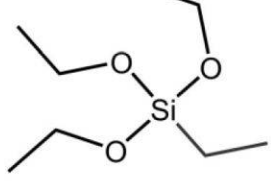
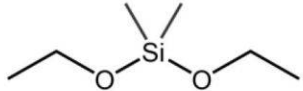
30

40

50

【表 2】

表 1 シリカベースのエアロゲルの調製に使用される様々なシラン (SiO₂) 基

略語	名称	構造
TEOS	テトラエチルオルトシリケート	
APEMS	3-アミノプロピル (ジエトキシ) メチルシラン	
APTES	3-アミノプロピル (トリエトキシ) シラン	
TEMS	トリエトキシメチルシラン	
TEES	トリエトキシ (エチル) シラン	
DMDES	ジメチルエトキシシラン	

10

20

30

40

50

【表 3】

表 2 : シリカベースのエアロゲル、並びに 0.04% (直接空気捕捉 0.4 mbar)、0.5%、1%、及び 100%の CO₂ 濃度に対する 298K でのそれらの CO₂ 取り込み性能のリスト

候補	組成物 SiO ₂ 単位(%)						CO ₂ 性能 (吸着) (mmol/g)			
	APEMS	APTES	TEOS	TEMS	DMDDES	TEES	DAC 0.04%	0.5%	1%	100%
A	40		20	40			0.75	1.31	1.41	2.04
B	40		40	20			0.73	1.32	1.44	2.17
C	40			60			0.47	0.75	0.83	1.35
D		60	20	20			0.47	0.71	0.79	1.47
E	40		20			40	0.62	1.34	1.46	2.16
F	40		20		40			0.88	0.91	1.40
G	40		20	20	20			1.24	1.37	1.91
H	60		30		10			1.39	1.49	1.72
I	40		30		30			0.98	1.16	1.78
J		40	20	20	20			0.69	0.78	1.26
K	40		20	20		20	0.67	1.05	1.14	1.78
L	60		20	20			0.63	1.31	1.42	2.02
M	60		20	10		10	0.62	1.44	1.56	2.15
N	50		20	15		15	0.84	1.24	1.39	2.02
O	50		25	25			0.54	0.97	1.07	1.60
P	60		40				0.51	0.87	0.96	1.39
Q	60		20			20	0.63	1.28	1.45	1.92
R	40			40		20		1.07	1.21	1.80
TIFSIX							0.555	1.057	1.142	1.58

*TIF-SIX (MOF) は、比較のためだけに含まれている

【表 4】

表 3 選択されたシリカベースのエアロゲルについてのゲル化特性

候補	ゲル化のレベル
A	高い
B	高い
C	低い／なしーゲル化を開始するために添加水を必要とした
D	中間ーゲル化を開始するために凍結乾燥を必要とした
E	高い
K	高い
L	中間／低い
M	中間
N	中間
O	中間
P	中間
Q	中間
R	低い／なし
S	非常に低い／なし
T	非常に低い／なし

10

20

30

【0194】

40

実施例 2 シリカベースのエアロゲルの調製のための一般的なプロセス

全ての試薬を、任意の精製なしに、受け取ったままの状態で使用した。シランの任意の加水分解を避けるために、残りの試薬を不活性環境（N₂充填グローブバッグ）に貯蔵した。

【0195】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートのうちのより多くのうちの任意の2つの組み合わせを、エタノール及び水の水性溶液に添加してもよい。シランを含む水性溶液を混合して、湿潤ゲルマトリックスを形成してもよい。緩衝液（例えば、NH₃、NH₄HCO₃）又は酸（例えば、HCl酸溶液）を、任意選択的に、湿潤ゲルマトリックスに添加し、続いて、任意選択的に、塩基性溶液（例えば、NaOH溶液）を添加し

50

てもよい。次いで、湿潤ゲルマトリックスを水によりすすぎ／浸し、任意選択的にわずかに高温で加熱してもよい。湿潤ゲルマトリックスを含む水性溶液は、乾燥方法を使用して乾燥させて、乾燥したシリカベースのエアロゲルを提供してもよい。

【0196】

実施例 2 a - 候補 A

(i) 3.6 mL の AR グレードのエタノールに、次の、8 ミリモル (1.672 mL、1.531 g) の 3-アミノプロピル (ジエトキシ) メチルシラン (APEMS)、8 ミリモル (1.594 mL、1.426 g) のトリエトキシメチルシラン (TEMS)、及び 4 ミリモル (0.892 mL、0.833 g) のトリエチルオルトシリケート (TEOS) を添加する。各添加時に、溶液を、1 秒間手動でかき混ぜて組み合わせた。組み合わせた溶液に、0.600 mL の水を添加し、溶液をかき混ぜて混合し、密閉コンテナをオープン内で 80 °C で 6 時間加熱してゲルを形成した。サンプルを室温まで一晩冷却させた。次いで、ゲルを 10 mL の水に分解し、多孔質フリットを通して濾過した。ゲルを、複数回の水すすぎ中に更に 2 時間浸した。次いで、ゲルを、真空オープン内で約 50 °C で一晩乾燥させた。

10

【0197】

(ii) 3.6 mL の AR グレードのエタノールに、次の、8 ミリモル (1.672、1.531 g) の 3-アミノプロピル (ジエトキシ) メチルシラン (APEMS)、8 ミリモル (1.594 mL、1.426 g) のトリエトキシメチルシラン (TEMS)、及び 4 ミリモル (0.892 mL、0.833 g) のトリエチルオルトシリケート (TEOS) を添加する。各添加時に、溶液を、1 秒間手動でかき混ぜて組み合わせた。組み合わせた溶液に、1.00 mL の 2 M HCl を添加し、溶液をかき混ぜて混合し、密閉コンテナを 60 °C で一晩加熱した。液体を室温まで冷却させ、1.00 mL の 2 M NaOH を添加し、溶液をかき混ぜて混合し、密閉コンテナを 60 °C で一晩加熱してゲルを形成した。次いで、ゲルを 10 mL の水に分解し、多孔質フリットを通して濾過した。ゲルを、複数回の水すすぎ中に更に 2 時間浸した。次いで、ゲルを、真空オープン内で約 50 °C で一晩乾燥させた。

20

【0198】

(iii) 3.6 mL の AR グレードのエタノールに、次の、8 ミリモル (1.672、1.531 g) の 3-アミノプロピル (ジエトキシ) メチルシラン (APEMS)、8 ミリモル (1.594 mL、1.426 g) のトリエトキシメチルシラン (TEMS)、及び 4 ミリモル (0.892 mL、0.833 g) のトリエチルオルトシリケート (TEOS) を添加する。各添加時に、溶液を、1 秒間手動でかき混ぜて組み合わせた。組み合わせた溶液に、0.600 mL の 2 M NH₃ (水溶液) を添加し、溶液をかき混ぜて混合し、密閉コンテナをオープン内で 80 °C で 6 時間加熱してゲルを形成した。サンプルを室温まで一晩冷却させた。次いで、ゲルを 10 mL の水に分解し、多孔質フリットを通して濾過した。ゲルを、複数回の水すすぎ中に更に 2 時間浸した。次いで、ゲルを、真空オープン内で約 50 °C で一晩乾燥させた。

30

【0199】

実施例 2 b - 候補 B

3.6 mL の AR グレードのエタノールに、次の、8 ミリモル (1.672 mL、1.531 g) の 3-アミノプロピル (ジエトキシ) メチルシラン (APEMS)、4 ミリモル (0.797 mL、0.713 g) のトリエトキシメチルシラン (TEMS)、及び 8 ミリモル (1.784 mL、1.667 g) のトリエチルオルトシリケート (TEOS) を添加する。各添加時に、溶液を、1 秒間手動でかき混ぜて組み合わせた。組み合わせた溶液に、0.600 mL の水を添加し、溶液をかき混ぜて混合し、密閉コンテナをオープン内で 80 °C で 6 時間加熱してゲルを形成した。サンプルを室温まで一晩冷却させた。次いで、ゲルを 10 mL の水に分解し、多孔質フリットを通して濾過した。ゲルを、複数回の水すすぎ中に更に 2 時間浸した。次いで、ゲルを、真空オープン内で約 50 °C で一晩乾燥させた。

40

50

【0200】

実施例2c-候補C

(i) 4.0 mLのARグレードのエタノールに、次の、8ミリモル (1.672 mL、1.531 g) の3-アミノプロピル (ジエトキシ) メチルシラン (APEMS)、12ミリモル (2.297 mL、2.139 g) のトリエトキシメチルシラン (TEMS) を添加する。1.5 mLの水及び0.80 mL (約8ミリモル) の32%塩酸を添加した。各添加時に、溶液を、1秒間手動でかき混ぜて組み合わせた。組み合わせた溶液を室温で一晩放置した。固体NaOH (0.425 g、10.6ミリモル) を添加し、翌日、溶液を曇らせ、1.0 mLの水を添加して透明な溶液を作製した。5日後、堆積物を遠心分離機 (5000 rpm) によって収集し、10 mLの水ですすぎ、5回繰り返した。次いで、ゲルを真空オープン内で約50℃で一晩乾燥させた。

10

【0201】

(ii) 3.6 mLのARグレードのエタノールに、次の、8ミリモル (1.672 mL、1.531 g) の3-アミノプロピル (ジエトキシ) メチルシラン (APEMS)、及び12ミリモル (2.403 mL、2.139 g) のトリエトキシメチルシラン (TEMS) を添加する。各添加時に、溶液を、1秒間手動でかき混ぜて組み合わせた。組み合わせた溶液に、0.600 mLの水を添加し、溶液をかき混ぜて混合し、密閉コンテナをオープン内で80℃で6時間加熱してエージングさせた。エージングさせた溶液を室温まで冷却させた。次いで、20 mLの水を添加し、ゲルを形成させた。この生成物を多孔質フリットを通して濾過した。ゲルを、複数回の水すすぎ中に更に2時間浸した。次いで、ゲルを、真空オープン内で約50℃で一晩乾燥させた。

20

【0202】

(iii) 4.5 mLのARグレードのエタノールに、次の、20ミリモル (4.178 mL、3.827 g) の3-アミノプロピル (ジエトキシ) メチルシラン (APEMS)、30ミリモル (5.977 mL、5.349 g) のトリエトキシメチルシラン (TEMS) を添加する。1.5 mLの水。各添加時に、溶液を、1秒間手動でかき混ぜて組み合わせた。組み合わせた溶液を60℃で一晩加熱した。溶液は透明のままであり、20 mLの水を添加して溶液を曇らせ、再び60℃で一晩加熱した。次いで、形成されたゲルを、過剰な水中で少なくとも10回洗浄し、3回繰り返した。次いで、ゲルを真空オープン内で約50℃で一晩乾燥させた。

30

【0203】

実施例2d-候補D

3.6 mLのARグレードのエタノールに、次の、12ミリモル (2.808 mL、2.656 g) の3-アミノプロピル (トリエトキシ) シラン (APTES)、4ミリモル (0.797 mL、0.713 g) のトリエトキシメチルシラン (TEMS)、及び4ミリモル (0.892 mL、0.833 g) のトリエチルオルトシリケート (TEOS) を添加する。各添加時に、溶液を、1秒間手動でかき混ぜて組み合わせた。0.600 mLの水を添加し、溶液をかき混ぜて混合し、密閉コンテナをオープン内で80℃で6時間加熱した。サンプルを室温まで一晩冷却させた。次いで、ゲルを10 mLの水に分解し、多孔質フリットを通して濾過した。ゲルを、複数回の水すすぎ中に更に2時間浸した。次いで、ゲルを、凍結乾燥機内で一晩乾燥させた。

40

【0204】

ゲルを10 mLの水に分解し、1時間浸した後、沈降させ、水をデカントした。これを5回繰り返した。最終的に約50 mLの水を添加することにより固体を回収し、総量を凍結乾燥させた。

【0205】

実施例2e-候補E

3.6 mLのARグレードのエタノールに、次の、8ミリモル (1.672 mL、1.5321 g) の3-アミノプロピル (ジエトキシ) メチルシラン (APEMS)、8ミリモル (1.720 mL) のトリエトキシ (エチル) シラン (TEES)、及び4ミリモル

50

(0.892 mL、0.833 g) のトリエチルオルトシリケート (TEOS) を添加する。各添加時に、溶液を、1 秒間手動でかき混ぜて、均質な溶液を形成した。この溶液に、0.6 mL の水を添加し、次いで、80 °C で 6 時間インキュベートする。形成されたゲルを分解し、過剰な水中ですすぎ、濾過により回収する。ゲルを減圧で、オープン内で 55 °C で乾燥させた。

【0206】

実施例 2 f - 候補 J

3.6 mL の AR グレードのエタノールに、次の、8 ミリモル (1.39 mL、1.43 g) の 3-アミノプロピル (トリエトキシ) シラン (APTES)、4 ミリモル (0.797 mL、0.713 g) のトリエトキシメチルシラン (TEMS)、4 ミリモル (0.892 mL、0.833 g) のトリエチルオルトシリケート (TEOS)、及び 4 ミリモル (0.593 g、0.685 mL) のジメチルジエトキシシランを添加する。各添加時に、溶液を、1 秒間手動でかき混ぜて組み合わせた。0.600 mL の水を添加し、溶液をかき混ぜて混合し、密閉コンテナをオープン内で 80 °C で 6 時間加熱した。サンプルを室温まで一晩冷却させた。次いで、ゲルを 10 mL の水に分解し、多孔質フリットを通して濾過した。ゲルを、複数回の水すすぎ中に更に 2 時間浸した。次いで、ゲルを、凍結乾燥機内で一晩乾燥させた。

10

【0207】

実施例 2 g - 候補 K

3.6 mL の AR グレードのエタノールに、次の、8 ミリモル (1.672 mL、1.5321 g) の 3-アミノプロピル (ジエトキシ) メチルシラン (APEMS)、4 ミリモル (0.797 mL、0.713 g) のトリエトキシメチルシラン (TEMS)、4 ミリモル (0.860 mL) の TEES、4 ミリモル (0.892 mL、0.833 g) のトリエチルオルトシリケート (TEOS) を添加する。各添加時に、溶液を、1 秒間手動でかき混ぜて、均質な溶液を形成した。これに 0.6 mL の水を添加し、次いで、80 °C で 6 時間インキュベートする。形成されたゲルを分解し、過剰な水中ですすぎ、濾過により回収する。ゲルを減圧で (-80 kPa)、オープン内で 55 °C で乾燥させた。

20

【0208】

実施例 2 h - 候補 L

3.6 mL の AR グレードのエタノールに、次の、12 ミリモル (2.507 mL、2.296 g) の 3-アミノプロピル (ジエトキシ) メチルシラン (APEMS)、4 ミリモル (0.801 mL、0.713 g) のトリエトキシメチルシラン (TEMS)、及び 4 ミリモル (0.887 mL、0.833 g) のトリエチルオルトシリケート (TEOS) を添加する。各添加時に、溶液を、1 秒間手動でかき混ぜて組み合わせた。組み合わせた溶液に、0.600 mL の水を添加し、溶液をかき混ぜて混合し、密閉コンテナをオープン内で 80 °C で 6 時間加熱してゲルを形成した。サンプルを室温まで一晩冷却させた。次いで、ゲルを 10 mL の水で分解し、次いで、80 rpm でおよそ 2 時間振盪した。その後、それを次いで、多孔質フリットを通して濾過した。ゲルを更に水により洗浄し、60 ppm でおよそ 2 時間振盪し、フリットを通して濾過した。これらの洗浄手順を 3 回繰り返す。次いで、ゲルを、完全に乾燥するまで、真空オープン内で約 50 °C で一晩、又は換気フード中で室温で乾燥させた。

30

【0209】

実施例 2 i - 候補 M

3.6 mL の AR グレードのエタノールに、次の、12 ミリモル (2.507 mL、2.296) の 3-アミノプロピル (ジエトキシ) メチルシラン (APEMS)、2 ミリモル (0.401 mL、0.356 g) のトリエトキシメチルシラン (TEMS)、2 ミリモル (0.430 mL、0.385 g) のトリエトキシ (エチル) シラン (TEES)、及び 4 ミリモル (0.887 mL、0.833 g) のトリエチルオルトシリケート (TEOS) を添加する。各添加時に、溶液を、1 秒間手動でかき混ぜて組み合わせた。組み合わせた溶液に、0.600 mL の水を添加し、溶液をかき混ぜて混合し、密閉コンテナを

50

オープン内で80℃で6時間加熱してゲルを形成した。サンプルを室温まで冷却させた。次いで、ゲルを10mLの水を使用して分解し、次いで、80rpmでおよそ2時間振盪した。その後、それを次いで、多孔質フリットを通して濾過した。ゲルを更に水により洗浄し、60ppmでおよそ2時間振盪し、フリットを通して濾過した。これらの洗浄手順を3回繰り返す。次いで、ゲルを、完全に乾燥するまで、真空オープン内で約50℃で一晩、又は換気フード中で室温で乾燥させた。

【0210】

実施例2j－候補N

3.6mLのARグレードのエタノールに、次の、10ミリモル(2.089mL、1.913)の3-アミノプロピル(ジエトキシ)メチルシラン(APEMS)、3ミリモル(0.601mL、0.535g)のトリエトキシメチルシラン(TEMS)、3ミリモル(0.645mL、0.577g)のトリエトキシ(エチル)シラン(TEES)、及び4ミリモル(0.887mL、0.833g)のトリエチルオルトシリケート(TEOS)を添加する。各添加時に、溶液を、1秒間手動でかき混ぜて組み合わせた。組み合わせた溶液に、0.600mLの水を添加し、溶液をかき混ぜて混合し、密閉コンテナをオープン内で80℃で6時間加熱してゲルを形成した。サンプルを室温まで冷却させた。ゲルを分解し、過剰な水中で3回すすぎ、濾過により回収する。次いで、ゲルを、真空オープン内で約50℃で一晩乾燥させた。

【0211】

実施例2k－候補O

3.6mLのARグレードのエタノールに、次の、10ミリモル(2.089mL、1.913)の3-アミノプロピル(ジエトキシ)メチルシラン(APEMS)、5ミリモル(1.001mL、0.891g)のトリエトキシメチルシラン(TEMS)、及び5ミリモル(1.108mL、1.042g)のトリエチルオルトシリケート(TEOS)を添加する。各添加時に、溶液を、1秒間手動でかき混ぜて組み合わせた。組み合わせた溶液に、0.600mLの水を添加し、溶液をかき混ぜて混合し、密閉コンテナをオープン内で80℃で6時間加熱してゲルを形成した。サンプルを室温まで冷却させた。ゲルを分解し、過剰な水中で3回すすぎ、濾過により回収する。次いで、ゲルを、真空オープン内で約50℃で一晩乾燥させた。

【0212】

実施例2l－候補P

3.6mLのARグレードのエタノールに、次の、12ミリモル(2.507mL、2.296)の3-アミノプロピル(ジエトキシ)メチルシラン(APEMS)、及び8ミリモル(1.773mL、1.667g)のトリエチルオルトシリケート(TEOS)を添加する。各添加時に、溶液を、1秒間手動でかき混ぜて組み合わせた。組み合わせた溶液に、0.600mLの水を添加し、溶液をかき混ぜて混合し、密閉コンテナをオープン内で80℃で6時間加熱してゲルを形成した。サンプルを室温まで一晩冷却させた。次いで、ゲルを10mLの水を使用して分解し、次いで、80rpmでおよそ2時間振盪した。その後、それを次いで、多孔質フリットを通して濾過した。ゲルを更に水により洗浄し、60ppmでおよそ2時間振盪し、フリットを通して濾過した。これらの洗浄手順を3回繰り返す。次いで、ゲルを、完全に乾燥するまで、真空オープン内で約50℃で一晩、又は換気フード中で室温で乾燥させた。

【0213】

実施例2m－候補Q

3.6mLのARグレードのエタノールに、次の、12ミリモル(2.507mL、2.296)の3-アミノプロピル(ジエトキシ)メチルシラン(APEMS)、4ミリモル(0.860mL、0.769g)のトリエトキシ(エチル)シラン(TEES)、及び4ミリモル(0.887mL、0.833g)のトリエチルオルトシリケート(TEOS)を添加する。各添加時に、溶液を、1秒間手動でかき混ぜて組み合わせた。組み合わせた溶液に、0.600mLの水を添加し、溶液をかき混ぜて混合し、密閉コンテナをオ

ーブン内で80℃で6時間加熱してゲルを形成した。サンプルを室温まで冷却させた。次いで、ゲルを10mLの水を使用して分解し、次いで、80rpmでおよそ2時間振盪した。その後、それを次いで、多孔質フリットを通して濾過した。ゲルを更に水により洗浄し、60ppmでおよそ2時間振盪し、フリットを通して濾過した。これらの洗浄手順を3回繰り返す。次いで、ゲルを、完全に乾燥するまで、真空オーブン内で約50℃で一晩、又は換気フード中で室温で乾燥させた。

【0214】

実施例3 性能及び特性評価データ

実施例2に定義されるようなシリカベースのエアロゲルの直接空気容量を決定するために、以下の性能測定が適用されている。

I. CO₂ガス吸着

II. H₂O蒸気吸着

III. CO₂ブレイクスルー試験

IV. 表面積を決定するためのN₂ガス吸着

V. 吸着及び脱着サイクル

【0215】

材料構造を理解するために、以下の特性評価方法が適用されている。

i. PALS (Positron Annihilation Lifetime Spectroscopy) – 候補A、B、C、及びDについて、PALSを使用して決定した孔サイズ分布を図1aに示す。J、P、M、及びLの孔サイズ分布を図1bに示し、N₂ガスを使用して決定する。

ii. 密度 – 様々な圧力での候補A、B、D、E、及びKの密度対CO₂取り込み関係を、図1c (粒子密度) 及び図1d (かさ密度) に示す。

iii. 熱安定性及び活性化プロファイリング

【0216】

実施例3a – 性能データ

I) CO₂ガス吸着

このセクションにおいて提示される情報は、CO₂の直接空気捕捉のための吸収剤として動作するシリカベースのエアロゲルの性能を強調している。表6は、BET表面積、固体材料の密度、及びCO₂捕捉の様々な性能容量を含む、上位候補エアロゲルの特性を要約している。以前に記載したように、直接空気捕捉のために、エアロゲルは、大気中のCO₂の400ppmに相当する0.4mbarでCO₂を吸着することが望ましい。エアロゲルは、298Kである周囲温度で実施し、CO₂性能単位は、mmol/g、mg/g、及びCO₂重量%で提供される。表面積BET (m²/g) は、候補エアロゲルの固体表面上のガス、例えば、N₂ガスの物理吸着の情報を提供することが理解されよう。N₂ガスを使用する表面積BETは、ガス分子がアクセス可能な孔にアクセスして、固有の表面積及び多孔度を決定することを必要とする。表面積BETは、これらのエアロゲルのCO₂容量のための性能指標ではなく、実際には、候補エアロゲルの微多孔性のレベルの一般的な指標であり得る。例えば、本発明者らは、驚くべきことに、表面積が、エアロゲルがCO₂をどれだけ良好に吸収するか の尺度ではないことを見出している。予想外に、小さい表面積を有するエアロゲルは、優れたCO₂吸着を提供する。

【0217】

性能ガイドとして、TIF-SIXはベンチマークであり、CO₂の直接空気捕捉を実施するために知られていた。本明細書に記載されるようなこれらの新規のシリカベースのエアロゲルは、驚くべきことに、直接空気捕捉のためのTIF-SIXの性能を向上させている (表2を参照)。

【0218】

CO₂吸着性能の詳細は、選択されたシリカベースのエアロゲルについて、表4において提供される。298Kにおける全ての候補材料のCO₂等温線プロットを、図2～18に提供する。

10

20

30

40

50

【表 5】

表 4 CO₂ ガス吸着等温線からの様々な圧力での BET 表面積、密度、及び CO₂ 取り込み重量%を含む、選択されたシリカベースのエアロゲル特性

候補	特性					mbar*での CO ₂ 重量%		
	BET 表面積 (m ² /g)	密度 (g/cm ³)	CO ₂ の取 り込み 0.4 mbar (mmol/g)	CO ₂ の取 り込み 0.4 mbar (mg/g)	CO ₂ の取 り込み 925 mbar (mmol/g)	0.4	150	925
A	48.13	0.191	0.747	31.95	2.026	3.29	7.52	8.91
B	16.99	0.242	0.780	27.30	2.166	3.43	8.77	9.53
C	36.25	0.416	0.472	20.778	1.560	2.07	5.47	8.86
D	140.72	0.056	0.467	20.57	1.181	0.78	2.22	2.27
E	11.16	0.1703	0.620	27.31	2.172	2.73	8.14	9.57
G		0.271			1.914	0.64	3.42	3.82
H		0.587			1.712	1.84	6.54	7.70
J	24.30				1.21	1.60	4.40	5.49
K	20.11	0.1626	0.665	29.28	1.781	2.93	6.52	7.86
L	92.96	0.44	0.634	27.90	2.022	2.79	7.88	8.89
M	46.95	0.36	0.634	27.90	2.02	2.71	8.52	9.50
N	36.25	0.224	0.838	36.88	2.02	3.69	7.91	8.91
O	138.39	0.295	0.543	23.89	1.60	2.39	6.29	7.06
P	98.99	0.503	0.508	22.37	1.38	2.23	5.64	6.10
Q		0.499	0.626	27.55	1.92	2.75	8.08	8.46
R	2.47	0.586			1.80	0.52	7.05	7.92

*0.4 mbar 圧力は、大気の大気中の CO₂ の 400 ppm に相当し、150 mbar は、15%の CO₂ 濃度を有する煙道ガス条件に相当し、925 mbar は、100%の CO₂ に相当する。

【 0 2 1 9 】

実施例 3 b 性能データ

I I) H₂O 蒸気吸着

直接空気捕捉には、エアロゲルが疎水性の要素を含むことが望ましい。これにより、空気から CO₂ を吸着するときに、材料が水の吸着と競合しないことが可能になる。これは、エアロゲルが様々な相対湿度環境において動作するための所望の特徴である。A P E M S、T E M S、T E E S、及び D M D E S の導入は、2つの主要な改善を可能にすることであった：1) 疎水性を増加させ、2) H₂O を超える CO₂ 選択性を可能にするために、2 nm 未満の直径を有する孔を形成するように微多孔性を誘導する。表 5 は、各シリカベースのエアロゲルで使用される SiO₂ 単位を提示する。H₂O 吸着性能等温線を、図 19 に提供する。

10

20

30

40

50

【表 6】

表 5 シリカベースのエアロゲルの SiO₂ 単位の組成物

候補	組成物 SiO ₂ 単位 (%)					
	APEMS	APTES	TEOS	TEMS	DMDDES	TEES
A	40		20	40		
B	40		40	20		
C	40			60		
D		60	20	20		
E	40		20			40
F	40		20		40	
G	40		20	20	20	
H	60		30		10	
I	40		30		30	
J		40	20	20	20	
K	40		20	20		20
L	60		20	20		
M	60		20	10		10
N	50		20	15		15
O	50		25	25		
P	60		40			
Q	60		20			20
R	40			40		20
S	70		15	15		
T	80		10	10		
TIFSIX						

10

20

30

40

【0220】

実施例 3 c 性能データ

I I I) CO₂ ブレークスルー試験

動的性能試験のために、CO₂ ブレークスルー実験を、乾燥及び多湿条件において実施した。図 20 は、乾燥及び多湿（70～80%RH）条件下の 740ppm の CO₂ 濃度における候補 A、B、及び D のブレークスルー曲線を提示する。図 21 は、20sccm の流量における、乾燥及び多湿（70～80%RH）条件下の 500ppm 及び 740ppm での候補 B についての、ブレークスルー曲線を提示する。740ppm での CO₂ の濃度の増加は、より速いブレークスルー時間を示すが、より高い CO₂ 容量を示す。表 6

50

は、400 ppm (DAC)、740 ppm、及び10,000 ppmで実施される乾燥及び多湿条件下のCO₂重量%の容量を提供する。図22は、標準DAC材料、ゼオライト13Xに対するブレイクスルー曲線を提示する。図22及び表6は、予想外に、微多孔性候補がゼオライト13Xよりも性能が優れ、より重要なことに、湿度の存在下でCO₂を捕捉し続けることができることを示す。

【表7】

表6 シリカベースのエアロゲルのブレイクスルーCO₂重量%の容量

候補	400 ppm (DAC 0.04%)		740 ppm		10,000 ppm (1%)	
	乾燥	多湿	乾燥	多湿	乾燥	多湿
	CO ₂ 重量%	CO ₂ 重量%	CO ₂ 重量%	CO ₂ 重量%	CO ₂ 重量%	CO ₂ 重量%
A	2.8	-	2.4	2.6		
B	3.5	3.7	3.6	4.0	4.6	4.6
D	1.7	1.6	3.1	3.0		
E	3.5	3.8	4.9	5.9	5.2	5.4
K	3.7	4.2	4.9	5.8	3.7	4.1
L			3.8	4.1		
M			3.7	4.1		
N			3.6	4.0		
ゼオライト (対照)	-	-	1.7	1.3	-	-
TIF-SIX	1.2	1.0				

10

20

30

【0221】

実施例3d 性能データ

IV) N₂ガス吸着

N₂吸着容量を77Kで測定し、このデータからBET表面積を決定することができた。N₂吸着等温線を図23～28に提供し、表7は、候補エアロゲルのBET表面積を提供する。表7から、小さいBET表面積の範囲があり、これは、N₂ガスが3.3 Åの直径を有するCO₂ガスと比較して3.64 Åのより大きな動力的直径を有するため、孔がN₂にアクセスできない結果であり得る。

40

50

【表 8】

表 7 77K の吸着等温線における N₂ から算出した、候補材料の BET 表面積範囲

候補	BET 表面積 (m ² /g)	候補	BET 表面積 (m ² /g)
A	48.13	E	11.16
B	16.99	J	24.30
C	36.25	K	20.11
D	140.72		

10

【0222】

実施例 3 e 性能データ

V) 吸着 CO₂ サイクル

図 29～31 は、驚くべきことに、各サイクル間の活性化を伴う連続的な吸着／脱着サイクル後の、様々な条件下での、候補エアロゲルについての予想外の優れた性能を示す。

【0223】

図 32 及び 33 は、候補エアロゲルのサイクル性能がゼオライト 13X よりも優れていることによる、ブレイクスルー実験に関する情報を提供する。これは、740 ppm の CO₂ 濃度レベルで動作する乾燥及び多湿条件において実施された。

20

【0224】

実施例 4 シリカベースのエアロゲルのペレット形成のための一般的なプロセス

(i) 圧縮されたペレットの調製：結合剤及び黒鉛を、乾燥したシリカベースのエアロゲルと混合し、全ての構成成分が均質に混合されていることを確認した。圧縮圧力及び充填深さを調節して、所望の厚さの固体ペレットを形成した。より低い圧力（すなわち設定 3）は、通常、固体の堅牢なペレットを生成するための小さな充填深さに関連していた。より高い圧力（すなわち設定 5）は、より大きな充填深さを必要とした。両方の組み合わせは、必要とされる厚さの範囲内のペレットを生成した。

30

【0225】

(ii) スラリーベースの押し出し成形のペレットの調製：スクリュキャップされたボトル内で、次の、50 mL の各エタノール及び水を 3 g のシロキサン溶液に組み合わせることにより、セルロース／シロキサン溶液ベースの結合剤を調製した。この混合物に、3 g のセルロースを 100 mg の一部分において添加した。各添加の後、セルロースが溶解するまでスラリーを連続的に攪拌した。残りの全てのセルロースを添加した後、粘性溶液の一貫性が得られるまでスラリーを混合した。シリカベースのエアロゲルをふるいにかかけ、200 mm 未満のサイズの粒子を得た。任意選択的に、潤滑薬剤（例えば、ステアリン酸マグネシウム）を必要に応じて使用して、押し出し成形可能な材料に対して粘度を調節することができる。

40

【0226】

液体押し出し成形のための一般的な方法は、2.0 mm のメス型ルアーロックバーブアタッチメントを備える 10 mL のプラスチックシリンジの使用を伴う。これにより、製剤化ペーストの 0.5～2 g のスケールにおける押し出し成形が可能になる。

【0227】

シリカベースのエアロゲル及び結合剤を組み合わせ、スパチュラを使用してペーストに加工した。溶媒を窒素ガスの穏やかな流れによりゆっくりと蒸発させ、これは約 2～3 分間の曝露後に生地のようなペーストを提供した。2.0 バーブを取り付けた 5 mL 10 mL のシリンジに生地を押し込んだ。ヌードル状の押し出し物を形成し、ペレットを個別

50

に約 3 ～ 4 mm の長さに切断した。ペレットを室温で乾燥させ、続いて、真空下（0.1 m b a r）で 80℃で 12 時間更に乾燥させた。

【0228】

実施例 4 a – 候補 B

全ての構成成分が均質に混合されるまで、11 g の結合剤及び 1.58 g の黒鉛を 66 g の候補 B と混合することにより、上記（i）に記載される方法に従ってペレットを形成した。圧縮圧力及び充填深さを調節して、候補 B の所望の厚さの固体ペレットを形成した。

【0229】

実施例 4 b – 候補 E

（i i）に従って結合剤溶液を調製することによる、上記（i i）に記載される方法に従ってペレットを形成し、0.62 g の候補 E（200 mm 未満でふるいにかけた）、2.92 g のセルロース／シロキサン結合剤、0.06 mg のステアリン酸マグネシウム（潤滑剤）を使用して、シリカベースのエアロゲル製剤を調製した。結合剤溶液及びシリカベースのエアロゲル製剤を組み合わせ、スパチュラを使用してペーストに加工した。溶媒を窒素ガスの穏やかな流れによりゆっくりと蒸発させ、これは 2 ～ 3 分間の曝露後に生地のようなペーストを提供した。2.0 バープを取り付けた 5 mL 10 mL のシリンジに生地を押し込んだ。ヌードル状の押し出し物を形成し、ペレットを個別に 3 ～ 4 mm の長さに切断した。ペレットを室温で乾燥させ、続いて、真空下（0.1 m b a r）で 80℃で 12 時間更に乾燥させた。

【0230】

実施例 4 c – 候補 K

全ての構成成分が均質に混合されるまで、15.38 g の結合剤及び 1.54 g の黒鉛を 60 g の候補 K と混合することにより、上記（i）に記載される方法に従ってペレットを形成した。圧縮圧力及び充填深さを調節して、候補 K の所望の厚さの固体ペレットを形成した。

【0231】

実施例 5 シリカベースのエアロゲルのペレット化特性

シリカベースのエアロゲルペレットの特性は、結合剤のタイプ及び量の選択によって決定された。本発明者らは、予想外に、結合剤のタイプ及び使用した量が、ペレットを圧縮することができるか、又は押し出すことができるかを決定し、特定の用途（例えば、ペレット形成が関係なく、代わりに製剤の粘度が重要になるコーティングに対して、DAC デバイスのためのペレット）に依存することを見出している。

【0232】

特定の用途に応じて、エアロゲル生成物は、ペレット形態において好ましい（例えば、DAC デバイス）。したがって、堅牢な強度及び優れた CO₂ 取り込み性能を目指して、結合剤のタイプ、候補のタイプ、結合剤含有量を研究した。

【0233】

表 8 は、様々な結合剤の所見、及び同じ候補のペレットに対する強度への影響を要約する。結果は、NH₂ シロキサン結合剤が最終的なペレットの強度に関して他の結合剤と比較して良好に機能したことを示唆している。

10

20

30

40

50

【表 9】

表 8 候補 A についてのシリカベースのエアロゲルペレットの結合剤のタイプ対強度

結合剤	結合剤量 (重量%)	形状形成	圧縮性／切断性
シリカ／ヒドロキシプロピルセルロース	29	なし	なし／なし
NH ₂ シロキサン	35	あり	あり／あり
ポリ（ビニルアルコール）	35	あり	あり／なし
低分子量ポリグリコール	25	あり	あり／あり
メチルセルロース／ポリ（プロピレム） グリコール	25	あり	あり／あり
ポリ（ビニルアルコール）	36	あり	あり／なし
ポリメチルヒドロシロキサン	36	あり	あり／なし
ポリジメチルシロキサン	30	あり	あり／なし
ポリビニルピロリドン	30	あり	あり／なし

10

20

【0234】

表 9 は、NH₂シロキサン結合剤と組み合わせて調製されたペレットの形態の異なるエアロゲル候補についてのペレット化特性を要約する。結果は、候補 L が、試験された候補の中で最強のペレットの組み合わせ及び優れた性能を提供することを実証している。

【表 10】

表 9 NH₂シロキサンについてのシリカベースのエアロゲルペレットの候補対強度

候補	結合剤	結合剤量 (重量%)	形状形成	圧縮性／切断性
A	NH ₂ シロキサン	35	あり	あり／なし
B	NH ₂ シロキサン	13	あり	あり／なし
B	NH ₂ シロキサン	24	あり	あり／あり
L	NH ₂ シロキサン	23	あり	あり／あり

30

40

【0235】

表 10 は、エアロゲルペレットの強度及び性能に対する結合剤の量への影響を要約する。結果は、結合剤の量が約 10 重量%未満であるときに、NH₂シロキサン結合剤との組み合わせにおける候補 L のエアロゲルペレット強度が貧弱になることを示唆している。

【表 1 1】

表 1 0 NH₂シロキサンを有する候補 L についてのシリカベースのエアロゲルペレットの結合剤量対強度

候補	結合剤	結合剤量 (重量%)	形状形成	圧縮性／切断性
L	NH ₂ シロキサン	10	あり	あり／なし
L	NH ₂ シロキサン	20	あり	あり／あり
L	NH ₂ シロキサン	30	あり	あり／あり
L	NH ₂ シロキサン	43	あり	あり／あり

10

【 0 2 3 6】

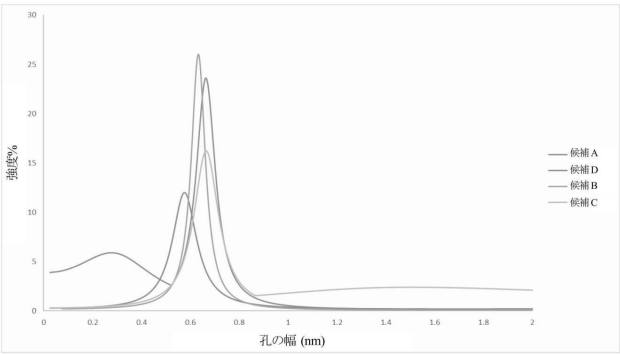
実施例 6 シリカベースのエアロゲルペレットの吸水特性

図 3 4 は、T I F－S I X ペレット及びゼオライト 1 3 X ペレットと比較した、候補エアロゲルペレットの水吸着に関する情報を提供する。これは、2 9 8 K で動作する乾燥及び多湿条件において実施された。結果は、ゼオライト 1 3 X 又は T I F－S I X ペレットとは異なり、候補エアロゲルペレットは良好な水吸着特性を提供せず、驚くべきことに、C O₂ の選択的吸着について、現在のシリカベースのエアロゲルペレットをはるかに優れたものにするを示す。

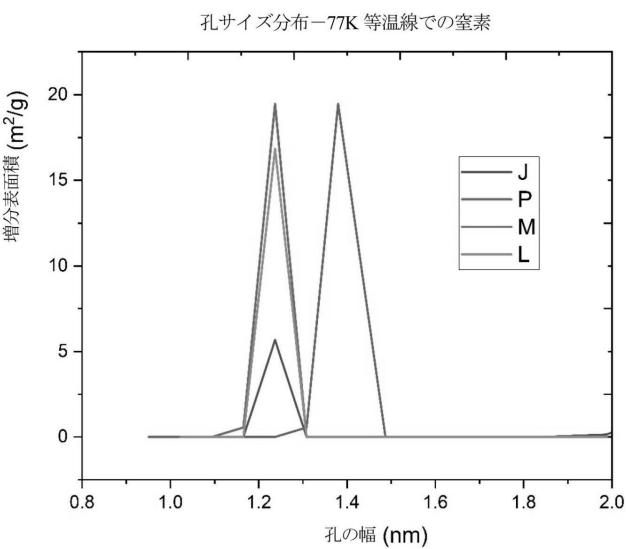
20

【図面】

【図 1 a】



【図 1 b】

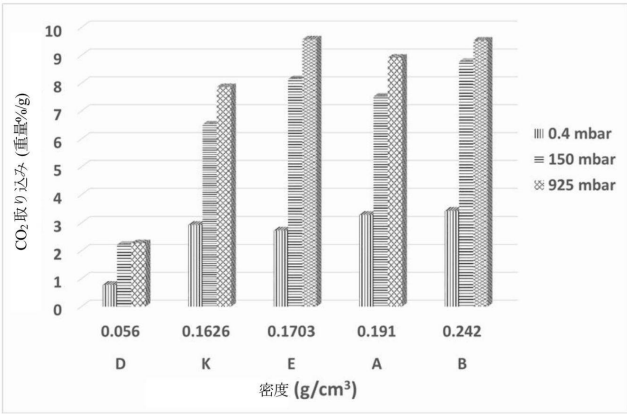


30

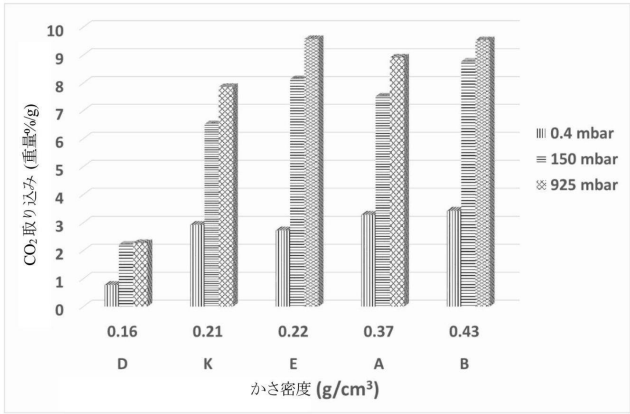
40

50

【図 1 c】

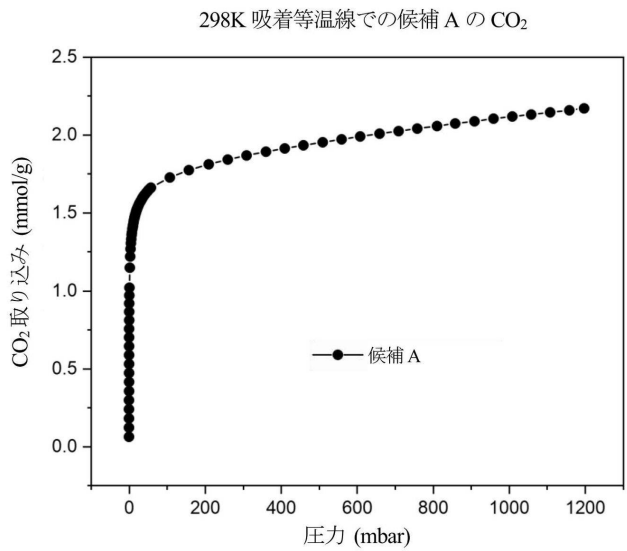


【図 1 d】

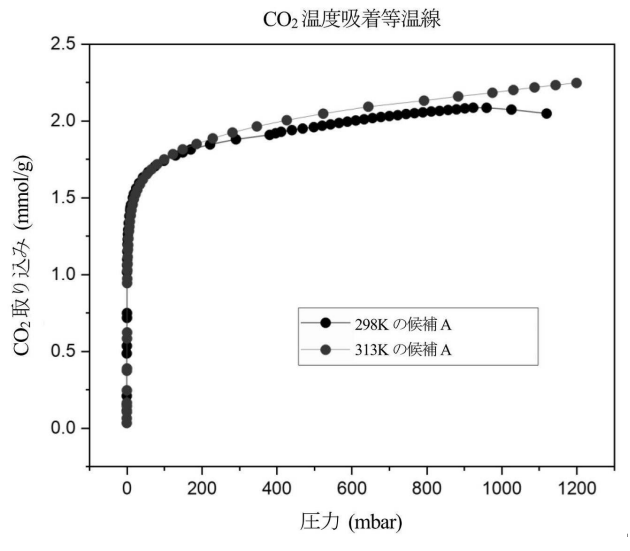


10

【図 2】



【図 3】



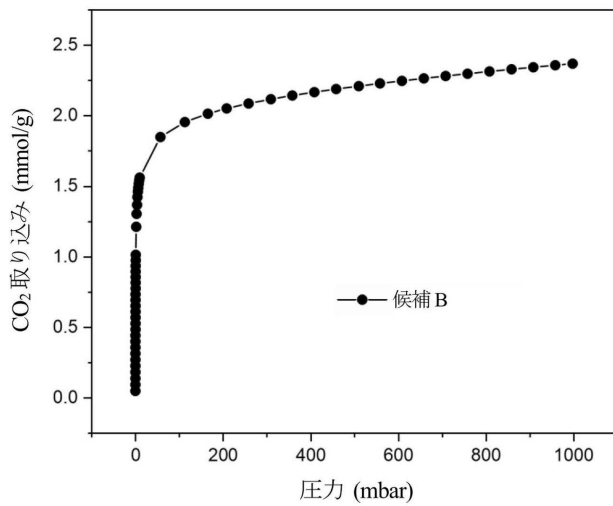
20

30

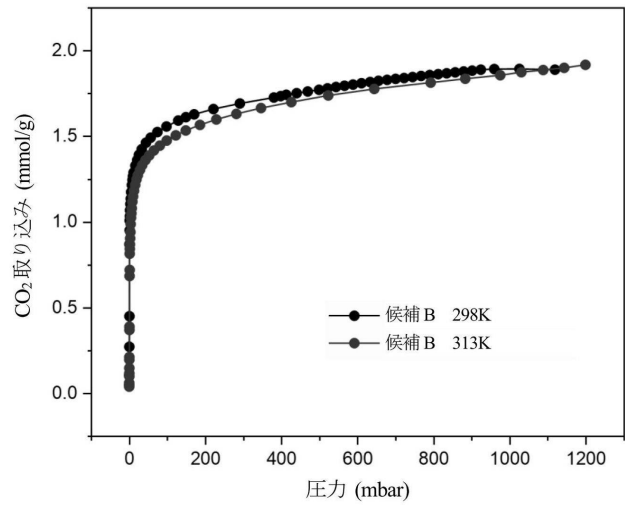
40

50

【図 4】

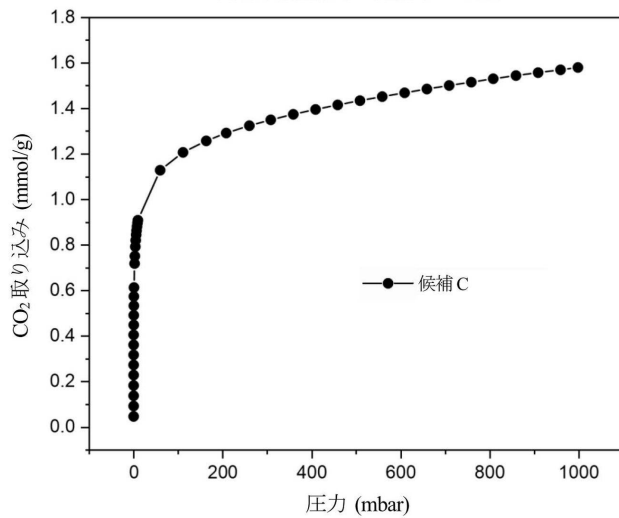
298K 等温線での候補 B の CO₂

【図 5】

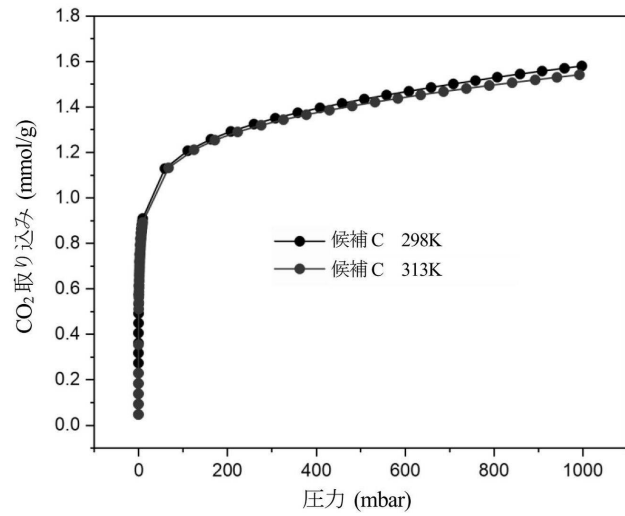
CO₂ 温度吸着等温線

10

【図 6】

298K 等温線での候補 C の CO₂

【図 7】

CO₂ 温度吸着等温線

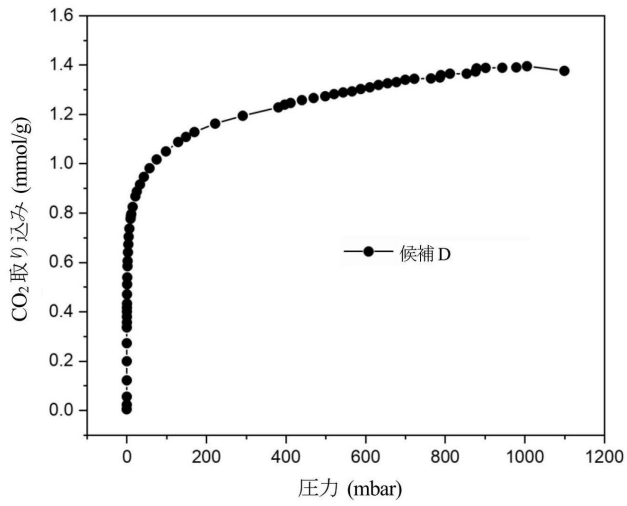
20

30

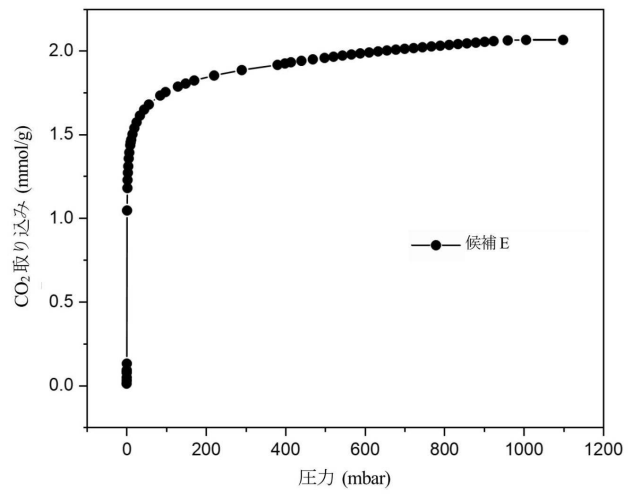
40

50

【図 8】

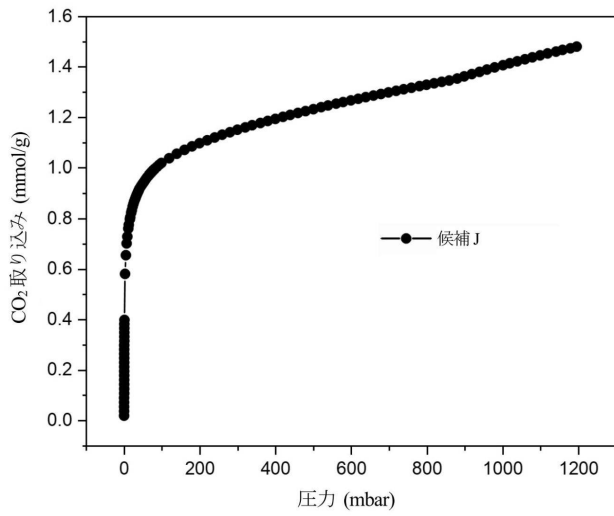
298K 等温線での候補 D の CO₂

【図 9】

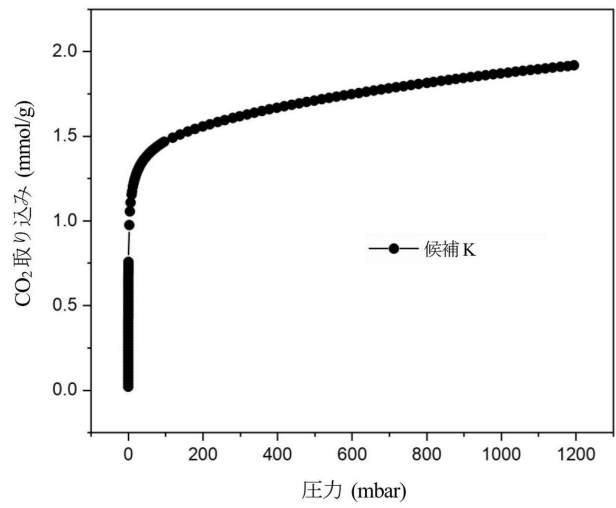
298K での候補 E の CO₂

10

【図 10】

298K での候補 J の CO₂

【図 11】

298K での候補 K の CO₂

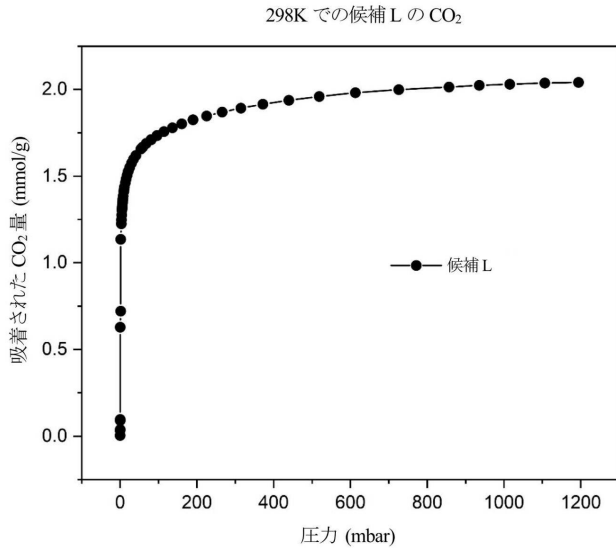
20

30

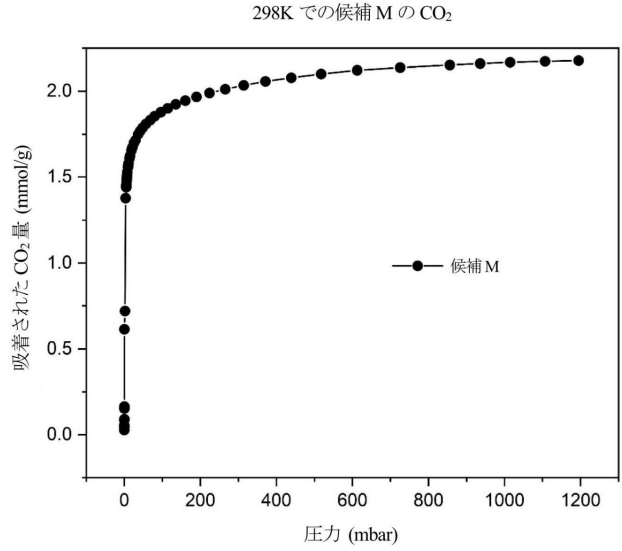
40

50

【図 1 2】

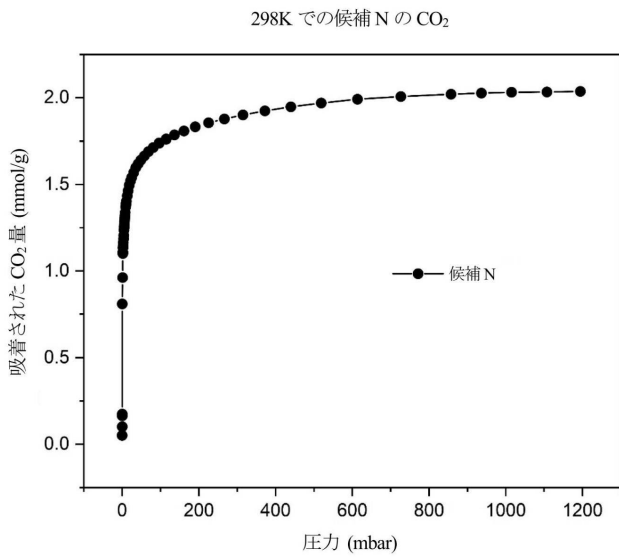


【図 1 3】

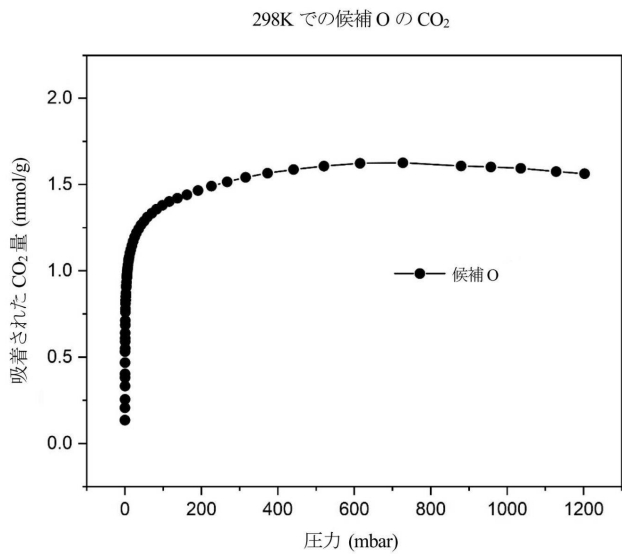


10

【図 1 4】



【図 1 5】



20

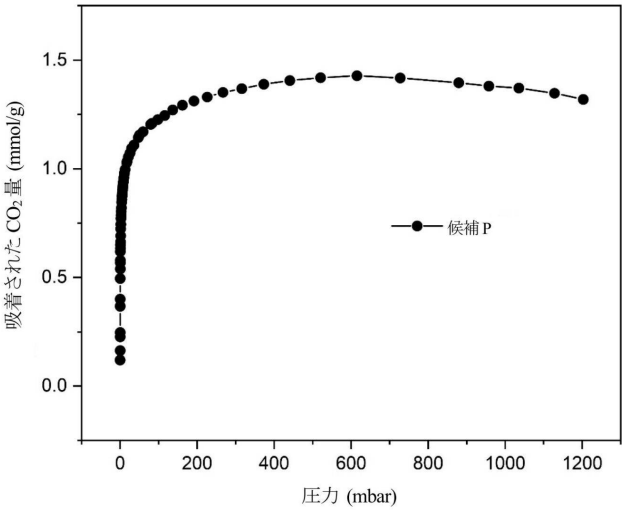
30

40

50

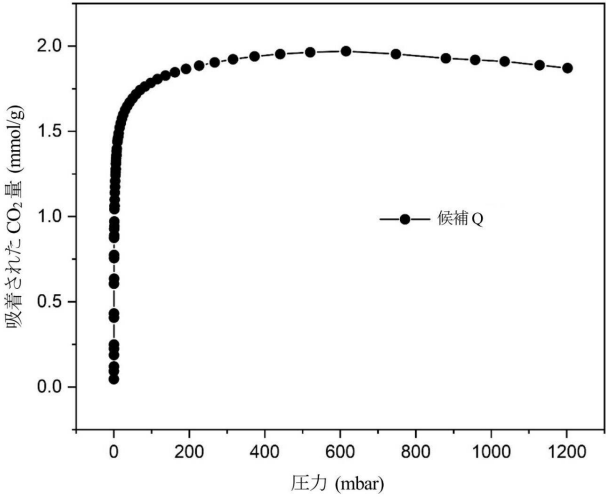
【図 1 6】

298K での候補 P の CO₂



【図 1 7】

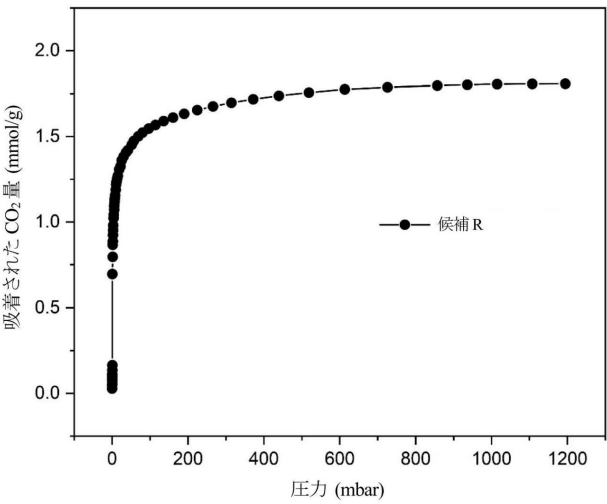
298K での候補 Q の CO₂



10

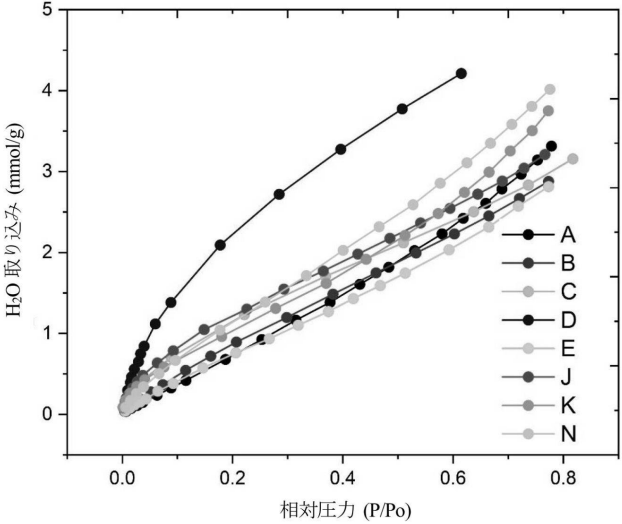
【図 1 8】

298K での候補 R の CO₂



【図 1 9】

298K 吸着等温線での H₂O



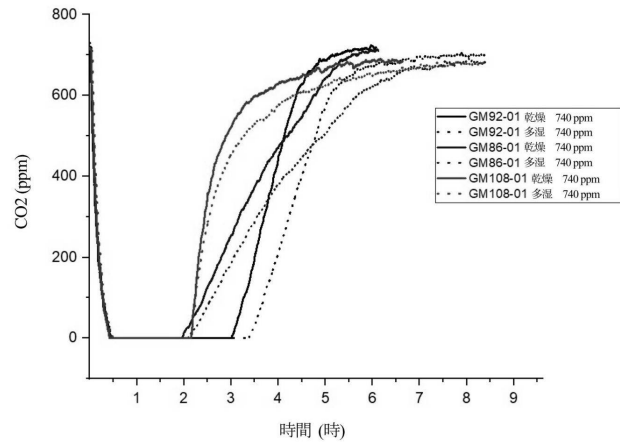
20

30

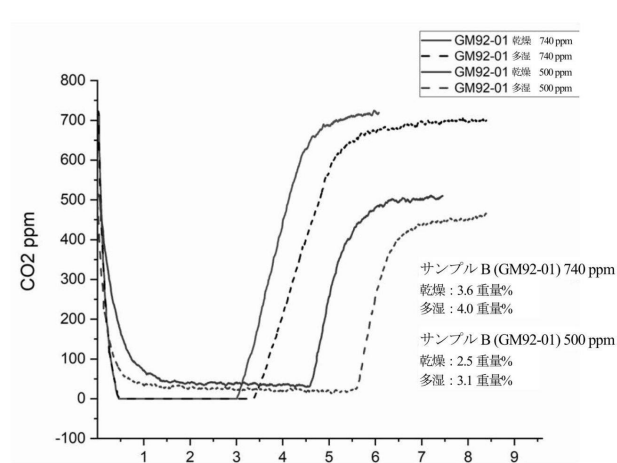
40

50

【図 2 0】

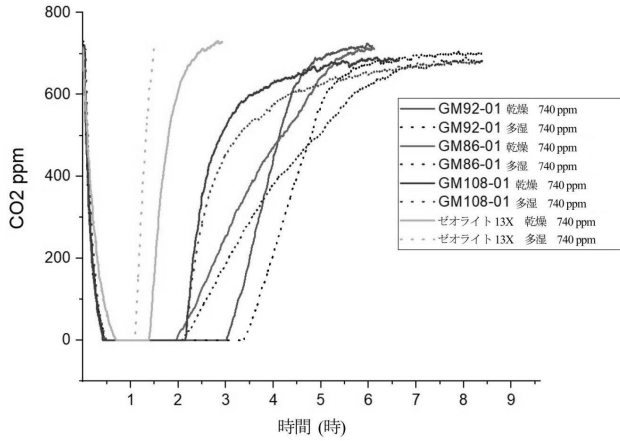


【図 2 1】

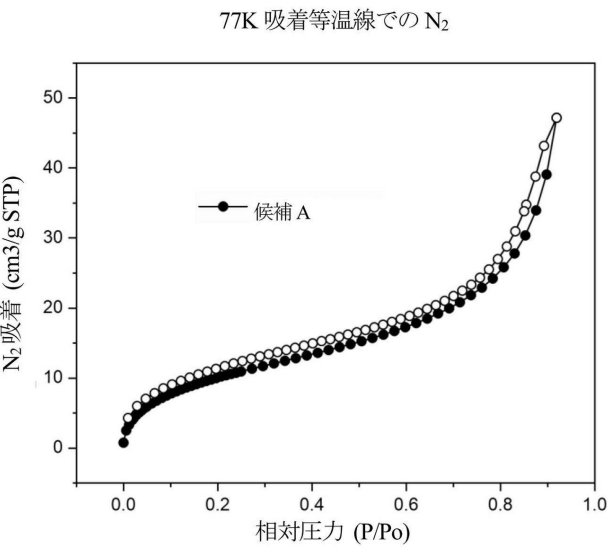


10

【図 2 2】



【図 2 3】



20

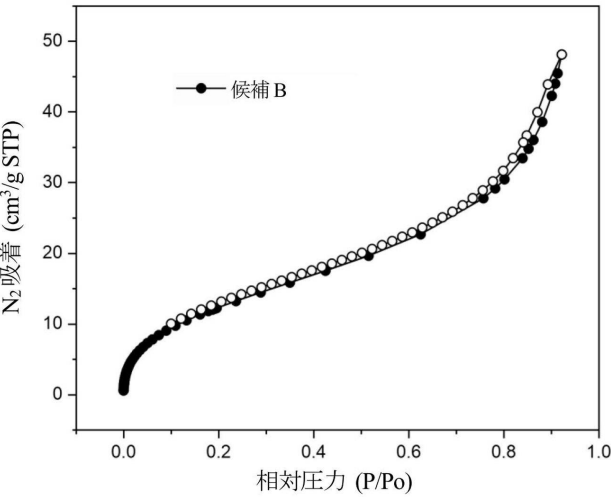
30

40

50

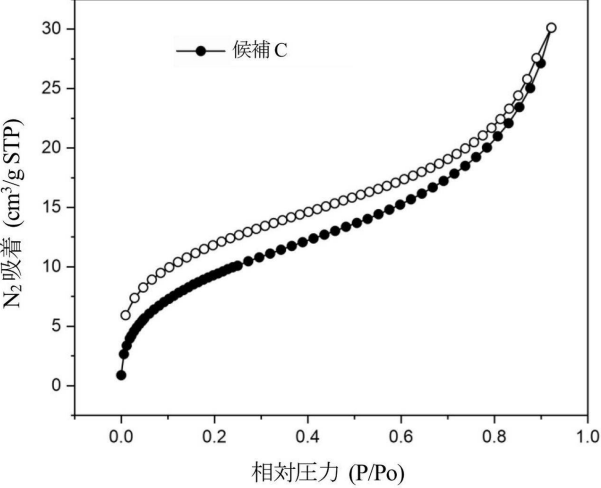
【図 2 4】

77K 吸着等温線での N₂



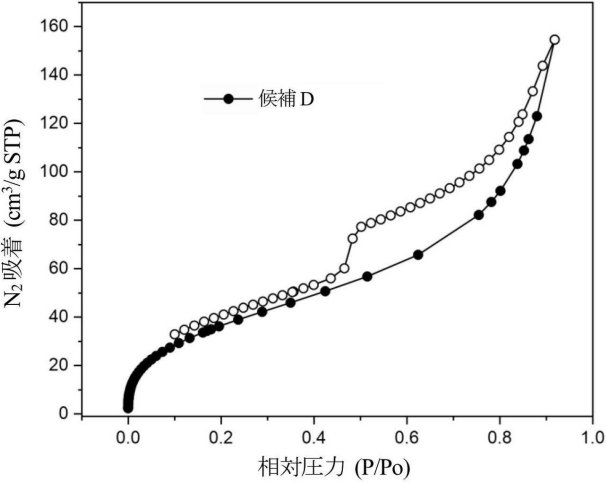
【図 2 5】

77K 吸着等温線での N₂



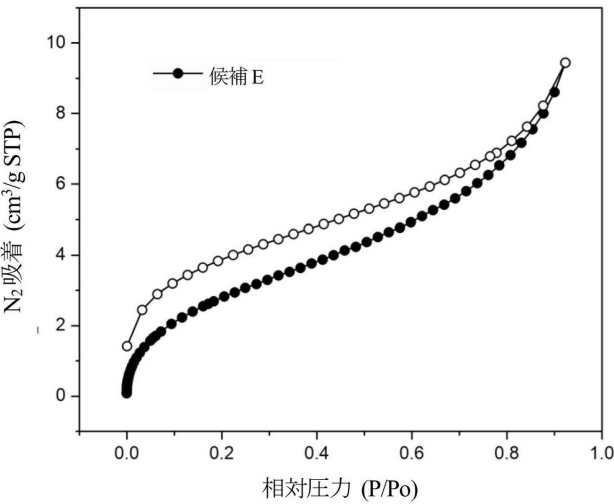
【図 2 6】

77K 吸着等温線での N₂



【図 2 7】

77K 吸着等温線での N₂



10

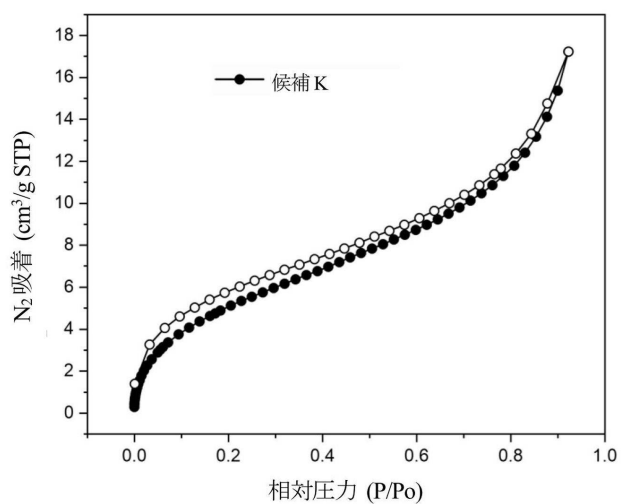
20

30

40

50

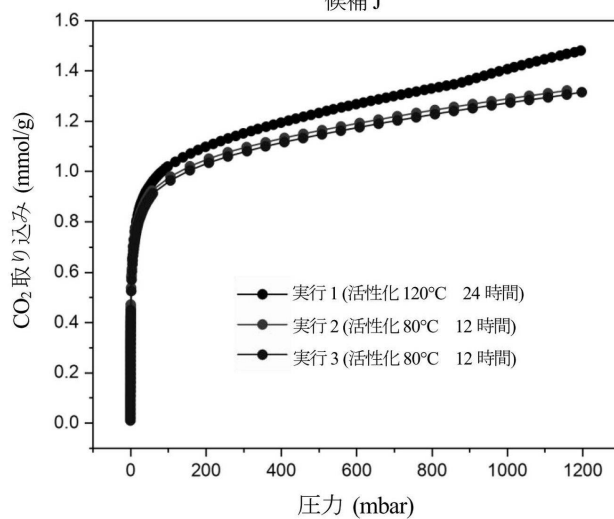
【図 28】

77K 吸着等温線での N_2 

【図 29】

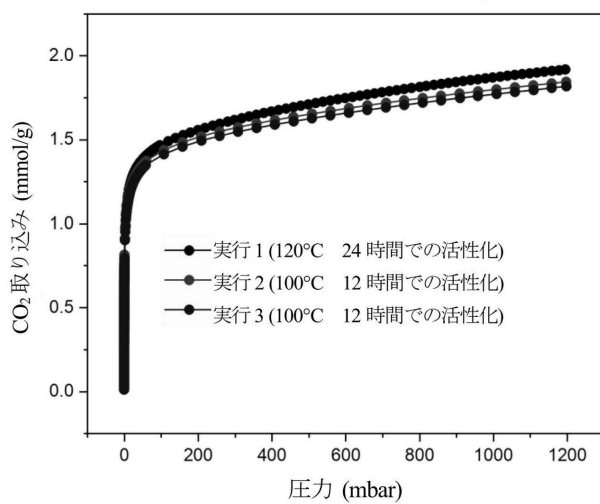
吸着及び脱着サイクル

候補 J

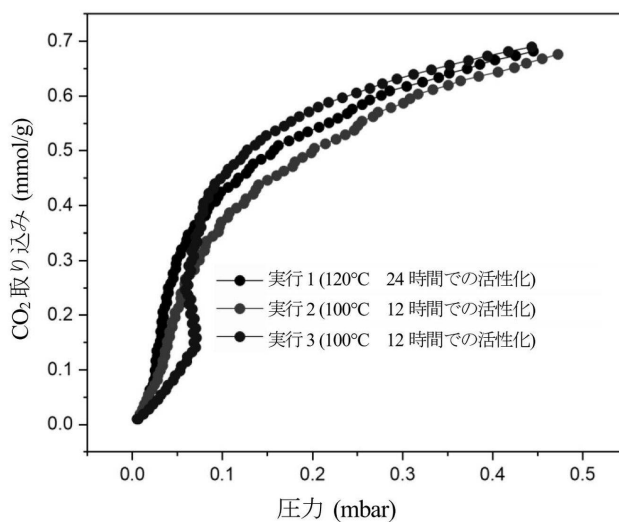


10

【図 30】

候補 K
298K サイクルワークでの CO_2 

【図 31】

298K サイクルでの候補 K の CO_2 (低圧での挿入)

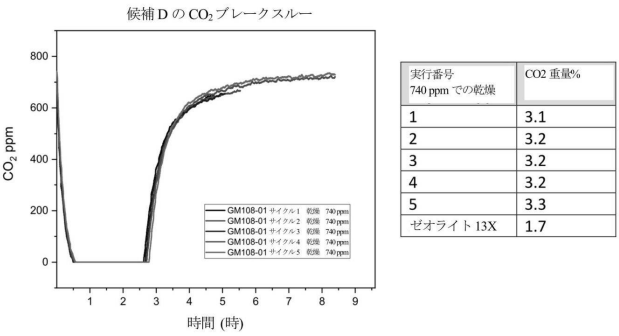
20

30

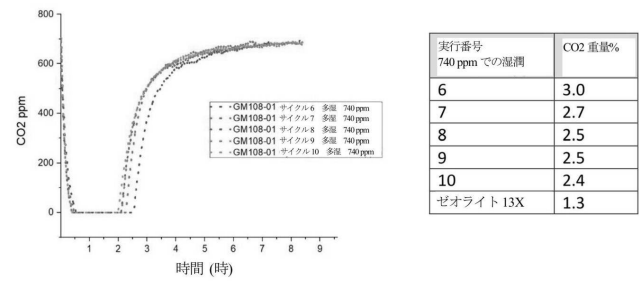
40

50

【図 3 2】

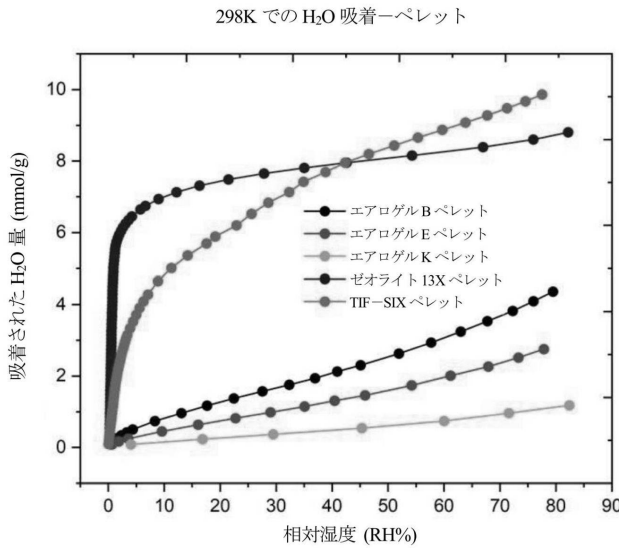


【図 3 3】



10

【図 3 4】



20

30

40

50

【手続補正書】

【提出日】令和4年6月7日(2022.6.7)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

二酸化炭素(CO₂)捕捉のためのシリカベースの微多孔性エアロゲルであって、前記微多孔性エアロゲルが、複数の孔であって、前記孔のうちの少なくとも50%が、約2nm未満の直径を有する、複数の孔と、CO₂捕捉を容易にするための遊離アミン基と、を含む、微多孔性エアロゲル。

10

【請求項2】

前記エアロゲルが、約10体積%未満のCO₂濃度を有する環境における空気から、CO₂を吸着する、請求項1に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項3】

前記エアロゲルが、約2体積%未満のCO₂濃度を有する閉鎖環境における空気から、CO₂を吸着する、請求項1又は2に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項4】

前記エアロゲルが、約0.04体積%のCO₂濃度を有する環境における空気から、CO₂を吸着する、請求項1～3のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

20

【請求項5】

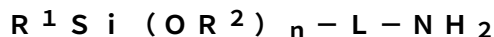
前記エアロゲルの前記CO₂吸着が、少なくとも0.47mmol/gである、請求項4に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項6】

前記エアロゲルが、少なくとも1つのアミノ置換シラン、少なくとも1つのシリケート、及び任意選択的に、少なくとも1つのアルキル置換シランの反応生成物を含む、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項7】

前記アミノ置換シランが、式1に従うものであり、



式1

式中、

R¹が、C₁～6アルキルであるか、又は不在であり、

R²が、C₁～6アルキルであり、

Lが、ケイ素と窒素原子との間の-C₁～6アルキル-リンカー基であり、

nが、2又は3である、請求項6に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項8】

前記アミノ置換シランが、少なくとも約40mol%の充填%を有する、請求項7に記載の微多孔性エアロゲル。

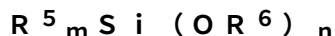
40

【請求項9】

前記アミノ置換シランが、約60mol%未満の充填%を有する、請求項6～8のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項10】

前記アルキル置換シランが、式2に従うものであり、



式2

式中、

R⁵及びR⁶が、各々独立して、C₁～6アルキルから選択され、

50

mが、1であり、nが、3であるか、又はm及びnが、各々2である、請求項6に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項11】

前記アルキル置換シランが、少なくとも約10mol%の充填%を有する、請求項6～10のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項12】

前記アルキル置換シランが、約40mol%未満の充填%を有する、請求項6～11のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項13】

式3に従う少なくとも1つのシリケートの前記反応生成物を更に含み、



式3

式中、

R⁷が、C₁～6アルキルである、請求項6に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項14】

前記シリケートが、少なくとも約20mol%の充填%を有する、請求項6～13のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項15】

前記シリケートが、約40mol%未満の充填%を有する、請求項6～14のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項16】

アミノシラン基の含有量が、二酸化炭素(CO₂)捕捉を容易にするための遊離アミン基を提供するのに有効であり、遊離アミン含有量が、約60mol%未満である、請求項6～15のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項17】

前記アミノ置換シランが、約40～約60mol%の充填%を有する3-アミノプロピル(ジエトキシ)メチルシランである、請求項16に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項18】

前記アミノ置換シランが、約40～約60mol%の充填%を有する3-アミノプロピル(トリエトキシ)シランである、請求項16に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項19】

前記エアロゲルの密度が、約0.02g/cm³～約0.6g/cm³の範囲にある、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項20】

前記エアロゲルの密度が、約0.2g/cm³～約0.6g/cm³の範囲にある、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項21】

前記エアロゲルが、粒子、粉末、ビーズ、顆粒、シート／層、キャストブロック、シリンダー、ディスク、多孔質膜又はモノリスの形態にある、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項22】

前記エアロゲルが、複数の粒子、粉末、ペレット、ビーズ、顆粒、コーティング、フィルム、又はシート／層である、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項23】

前記エアロゲルが、自己支持性エアロゲルである、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項24】

前記エアロゲルが、基材上にコーティング組成物又はフィルムとして適用されるように適用されている、請求項1～21のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項25】

10

20

30

40

50

前記エアロゲルが、約 $0.1 \text{ m}^2/\text{g}$ ～約 $500 \text{ m}^2/\text{g}$ の範囲にある表面積を有する、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 26】

前記エアロゲルが、約 $2 \text{ m}^2/\text{g}$ ～約 $200 \text{ m}^2/\text{g}$ の範囲の表面積を有する、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 27】

前記エアロゲルが、約 0.1 nm ～約 2 nm の範囲にある孔サイズを有する、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 28】

前記エアロゲルが、緩衝液、結合剤、任意選択的に金属有機構造体 (MOF)、及びナノ粒子から選択される 1 つ以上の添加剤を含む、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 29】

前記アミノシラン基の含有量が、二酸化炭素 (CO_2) 捕捉を容易にするための遊離アミン基を提供するのに有効であり、前記遊離アミン含有量が、約 $50 \text{ mol}\%$ 未満である、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 30】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 $40 \text{ mol}\%$ の充填%を有する 3-アミノプロピル (ジエトキシ) メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約 $40 \text{ mol}\%$ の充填%を有するトリエトキシメチルシランであり、前記シリケートが、約 $20 \text{ mol}\%$ の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1 ～ 4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 31】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 $40 \text{ mol}\%$ の充填%を有する 3-アミノプロピル (トリエトキシ) シランであり、前記アルキル置換シランが、約 $40 \text{ mol}\%$ の充填%を有するトリエトキシメチルシランであり、前記シリケートが、約 $20 \text{ mol}\%$ の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1 ～ 4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 32】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 $40 \text{ mol}\%$ の充填%を有する 3-アミノプロピル (ジエトキシ) メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約 $20 \text{ mol}\%$ の充填%を有するトリエトキシメチルシランであり、前記シリケートが、約 $40 \text{ mol}\%$ の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1 ～ 4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 33】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 $40 \text{ mol}\%$ の充填%を有する 3-アミノプロピル (トリエトキシ) シランであり、前記アルキル置換シランが、約 $20 \text{ mol}\%$ の充填%を有するトリエトキシメチルシランであり、前記シリケートが、約 $40 \text{ mol}\%$ の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1 ～ 4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 34】

アミノ置換シラン及びアルキル置換シランの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 $40 \text{ mol}\%$ の充填%を有する 3-アミノプロピル (ジエトキシ) メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約 $60 \text{ mol}\%$ の充填%を有するトリエトキシメチルシランである、請求項 1 ～ 4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 35】

アミノ置換シラン及びアルキル置換シランの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、前記アルキル置換シランが、約60mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項36】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約60mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、前記アルキル置換シランが、約20mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランであり、前記シリケートが、約20mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

10

【請求項37】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約40mol%の充填%を有するトリエトキシ（エチル）シランであり、前記シリケートが、約20mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項38】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、前記アルキル置換シランが、約40mol%の充填%を有するトリエトキシ（エチル）シランであり、前記シリケートが、約20mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

20

【請求項39】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約40mol%の充填%を有するジメチルジエトキシシランであり、前記シリケートが、約20mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

30

【請求項40】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約20mol%の充填%を有するトリエトキシメチルシランと、約20mol%の充填%を有するジメチルジエトキシシランとの混合物であり、前記シリケートが、約20mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項41】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約60mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約10mol%の充填%を有するジメチルジエトキシシランであり、前記シリケートが、約30mol%の充填%を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項1～4のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

40

【請求項42】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約40mol%の充填%を有する3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約30mol%の充填%を有するジメ

50

チルジエトキシシランであり、前記シリケートが、約 30 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1～4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 43】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 40 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、前記アルキル置換シランが、約 20 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシランと、約 20 mol % の充填 % を有するジメチルジエトキシシランとの混合物であり、前記シリケートが、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1～4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

10

【請求項 44】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 40 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約 20 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシランと、約 20 mol % の充填 % を有するトリエトキシ（エチル）シランとの混合物であり、前記シリケートが、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1～4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 45】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 60 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約 20 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシランであり、前記シリケートが、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1～4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

20

【請求項 46】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 60 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（トリエトキシ）シランであり、前記アルキル置換シランが、約 20 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシランであり、前記シリケートが、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1～4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

30

【請求項 47】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 60 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約 10 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシランと、約 10 mol % の充填 % を有するトリエトキシ（エチル）シランとの混合物であり、前記シリケートが、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1～4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 48】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 50 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約 15 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシランと、約 15 mol % の充填 % を有するトリエトキシ（エチル）シランとの混合物であり、前記シリケートが、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1～4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

40

【請求項 49】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 50 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約 25 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシランであり、前記シリケートが、約 25 mol % の充填 % を有するテ

50

ラエチルオルトシリケートである、請求項 1～4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 5 0】

アミノ置換シラン及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 60 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記シリケートが、約 40 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1～4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 5 1】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、前記アミノ置換シランが、約 60 mol % の充填 % を有する 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシランであり、前記アルキル置換シランが、約 20 mol % の充填 % を有するトリエトキシ（エチル）シランであり、前記シリケートが、約 20 mol % の充填 % を有するテトラエチルオルトシリケートである、請求項 1～4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 5 2】

アミノ置換シラン、アルキル置換シラン、及びシリケートの反応生成物を含み、約 40 mol % の充填 % を有する前記アミノ置換シラン 3-アミノプロピル（ジエトキシ）メチルシラン、前記アルキル置換シランが、約 40 mol % の充填 % を有するトリエトキシメチルシラン、及び約 20 mol % の充填 % を有するトリエトキシ（エチル）シランである、請求項 1～4 のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 5 3】

前記反応生成物が、ワンポット合成を介して調製されている、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 5 4】

前記エアロゲルが、複合体の形態にあり、前記複合体が、1つ以上の添加剤、及び任意選択的に潤滑剤を更に含む、先行請求項のいずれか一項に記載の微多孔性エアロゲル。

【請求項 5 5】

前記 1つ以上の添加剤が、結合剤、任意選択的に金属有機構造体（MOF）、及びナノ粒子から選択される、請求項 5 4 に記載の複合体。

【請求項 5 6】

前記添加剤が、前記エアロゲルの総重量に基づいて約 5～約 35 重量 % の量にある、請求項 5 4 又は 5 5 に記載の複合体。

【請求項 5 7】

前記複合体が、ペレット、ビーズ、シート、又は顆粒の形態で自己支持性である、請求項 5 4～5 6 のいずれか一項に記載の複合体。

【請求項 5 8】

前記複合体が、基材上にコーティング組成物、ペースト、又はフィルムとして適用されている、請求項 5 4～5 6 のいずれか一項に記載の複合体。

【請求項 5 9】

（i）請求項 1～5 2 のいずれか一項に記載のアミノ置換シラン、シリケート、及び任意選択的にアルキル置換シランの反応生成物、又はそれらの組み合わせを含む、微多孔性エアロゲルと、

（ii）1つ以上の添加剤であって、前記添加剤が約 5～約 35 重量 % の充填 % を有する、添加剤と、

（iii）任意選択的に潤滑剤と、

（iv）任意選択的に溶媒と、からなる、エアロゲル複合体。

【請求項 6 0】

前記 1つ以上の添加剤が、結合剤、任意選択的に金属有機構造体（MOF）、及びナノ粒子から選択される、請求項 5 9 に記載のエアロゲル複合体。

【請求項 6 1】

前記結合剤が、セルロース系ポリマー、シラン系ポリマー、セルロースーシロキサン系ポリマー、ポリグリコール系ポリマー、ポリビニルピロリドン、ポリビニルアルコール、ポリエチレンイミン、ベントナイト、黒鉛、又はそれらの組み合わせから選択される、請求項 60 に記載のエアロゲル複合体。

【請求項 62】

前記溶媒が、水、非水性溶媒、又はそれらの組み合わせである、請求項 59～61 のいずれか一項に記載のエアロゲル複合体。

【請求項 63】

二酸化炭素 (CO_2) 捕捉のためのシリカベースの微多孔性エアロゲルを調製するためのプロセスであって、前記微多孔性エアロゲルが、複数の孔であって、前記孔のうちの少なくとも 50% が、約 2 nm 未満の直径を有する、複数の孔と、 CO_2 捕捉を容易にするための遊離アミン基と、を含み、前記プロセスが、

(i) (a) 少なくとも 1 つのアミノ置換シラン、少なくとも 1 つのシリケート、及び任意選択的に少なくとも 1 つのアルキル置換シラン、任意選択的に緩衝液、任意選択的に 1 つ以上の添加剤、及び溶媒系を含む、水性溶液を混合して、湿潤ゲルマトリックスを形成することと、

(ii) 前記湿潤ゲルマトリックスを乾燥させて、乾燥したシリカベースのエアロゲルを提供することと、を含み、

ただし、前記湿潤ゲルマトリックスの乾燥が、超臨界 CO_2 を伴わない、プロセス。

【請求項 64】

ステップ (i) が、ステップ (i) (b) 前記湿潤ゲルマトリックスをすすぐことを更に含む、請求項 63 に記載のプロセス。

【請求項 65】

前記プロセスが、ゾルゲルプロセスであり、ステップ (ii) が、

(a1) 任意選択的に、前記湿潤ゲルマトリックスを加熱してゲルを得ることと、

(a2) 溶媒蒸発及び／又は熱処理により前記ゲルを乾燥させて、乾燥したシリカベースのエアロゲルを提供することと、を含む、請求項 63 又は 64 に記載のプロセス。

【請求項 66】

ステップ (ii) が、

(b1) 前記湿潤ゲルマトリックスを基材に適用して、前記基材をコーティングする湿潤ゲルフィルムを形成することと、

(b2) 溶媒蒸発及び／又は熱処理により前記湿潤ゲルフィルムを乾燥させて、乾燥したシリカベースのコーティング基材を提供することと、を更に含む、請求項 63 又は 64 に記載のプロセス。

【請求項 67】

前記乾燥ステップ (ii) が、真空乾燥又は凍結乾燥である、請求項 63～66 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 68】

前記アミノ置換シランが、請求項 7 に定義されるような式 1 のものである、請求項 63～67 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 69】

前記アルキル置換シランが、請求項 10 に定義されるような式 2 のものである、請求項 63～68 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 70】

前記シリケートが、請求項 13 に従って定義されるような式 3 のものである、請求項 63～69 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 71】

前記プロセスが、

(c1) 請求項 1～52 のいずれか一項に記載の、若しくはそれらの組み合わせによるエアロゲル、ペレットへの 1 つ以上の添加剤、及び任意選択的に潤滑剤からなる混合物を

10

20

30

40

50

圧縮することであって、前記添加剤が、約 5 ～ 約 35 重量 % の充填 % を有する、圧縮すること、又は

(c2) 粘性ペーストを提供するための、請求項 1 ～ 52 のいずれか一項に記載の、若しくはそれらの組み合わせによるエアロゲル、1 つ以上の添加剤、及び任意選択的に潤滑剤からなる混合物の液体押し出し成形であって、前記添加剤が、約 5 ～ 約 35 重量 % の充填 % を有する、液体押し出し成形によって、エアロゲル複合体を調製することを更に含む、請求項 67 ～ 70 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 72】

前記 1 つ以上の添加剤が、緩衝液、結合剤、任意選択的に金属有機構造体 (MOF)、及びナノ粒子から選択される、請求項 63 ～ 71 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 73】

前記エアロゲル又は複合体が、複数の粒子、粉末、ペレット、ビーズ、顆粒、コーティング、フィルム、又はシート／層として提供される、請求項 63 ～ 72 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 74】

前記エアロゲル又は複合体が、自己支持性シリカベースのエアロゲル又は複合体である、請求項 63 ～ 65 及び 67 ～ 73 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 75】

前記溶媒が、水、非水性溶媒、又はそれらの組み合わせである、請求項 63 ～ 74 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 76】

前記プロセスが、ステップ (iii) 活性化ステップを更に含む、請求項 63 ～ 75 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 77】

アミノ置換シランの量が、総エアロゲルに基づいて約 10 % ～ 約 80 % の範囲にある、請求項 63 ～ 76 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 78】

アルキル置換シランの量が、総エアロゲルに基づいて約 10 % ～ 約 80 % の範囲にある、請求項 63 ～ 77 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 79】

シリケートの量が、総エアロゲルに基づいて約 10 % ～ 約 50 % の範囲にある、請求項 63 ～ 78 のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項 80】

二酸化炭素 (CO_2) のためのシリカベースの微多孔性エアロゲルであって、前記微多孔性エアロゲルが、複数の孔であって、前記孔のうちの少なくとも 50 % が、約 2 nm 未満の直径を有する、複数の孔と、 CO_2 捕捉を容易にするための遊離アミン基と、を含み、請求項 63 ～ 79 のいずれか一項に記載のプロセスによって調製される、微多孔性エアロゲル。

【請求項 81】

二酸化炭素 (CO_2) 捕捉のためのシリカベースの微多孔性エアロゲルであって、前記微多孔性エアロゲルが、複数の孔であって、前記孔のうちの少なくとも 50 % が、約 2 nm 未満の直径を有する、複数の孔と、 CO_2 捕捉を容易にするための遊離アミン基と、を含み、請求項 30 ～ 52 のいずれか一項に記載の反応生成物を含み、請求項 63 ～ 79 のいずれか一項に記載のプロセスによって調製される、微多孔性エアロゲル。

【請求項 82】

CO_2 を含有するガス流又は大気から二酸化炭素 (CO_2) を捕捉するためのプロセスであって、

前記ガス流又は大気から少なくとも一部の CO_2 を捕捉するために、前記ガス流又は大気をエアロゲルと接触させることを含み、

前記エアロゲルが、請求項 1 ～ 52 のいずれか一項に記載されているか、又は請求項 6

10

20

30

40

50

3～79のいずれか一項に記載のプロセスによって調製されるエアロゲルである、プロセス。

【請求項83】

前記ガス流又は大気が、約150,000ppm未満のCO₂濃度を有する、請求項82に記載のプロセス。

【請求項84】

前記ガス流又は大気が、約3,000ppm～約150,000ppmの範囲のCO₂濃度を有し、前記プロセスが、外部発電所(DACex)における直接空気捕捉である、請求項82又は83に記載のプロセス。

【請求項85】

前記ガス流又は大気が、約7,000ppm未満のCO₂濃度を有する、請求項82～84のいずれか一項に記載のプロセス

【請求項86】

前記ガス流又は大気が、約5,000ppm未満のCO₂濃度を有する、請求項82～85のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項87】

前記ガス流又は大気が、約4,000ppm～約5,000ppmの範囲のCO₂濃度を有し、前記プロセスが、マスク又は個人用保護具(DACP)内の呼気の直接空気捕捉(DAC)である、請求項82～86のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項88】

前記ガス流又は大気が、約2,000ppm未満のCO₂濃度を有し、前記プロセスが、屋内密閉環境(DACi)における直接空気捕捉(DAC)である、請求項82～87のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項89】

前記ガス流又は大気が、周囲空気である、請求項82～88のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項90】

前記ガス流又は大気が、約500ppm未満であり、前記プロセスが、直接空気捕捉(DAC)である、請求項82～89のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項91】

前記ガス流又は大気を前記エアロゲルと前記接触させることが、前記エアロゲルを含むベッドに前記ガス流又は大気を通過させることを含む、請求項82～90のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項92】

CO₂のうちの少なくとも約50%～約99%が、前記ガス流又は大気から除去される、請求項82～91のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項93】

前記プロセスが、前記エアロゲルから吸収されたCO₂を脱着するための再生回収プロセスを更に含む、請求項82～92のいずれか一項に記載のプロセス。

【請求項94】

前記再生回収プロセスが、圧力を低減させることによって、低CO₂を有するガスの流れによって、又はそれらの組み合わせによって、前記エアロゲルを約60℃～約140℃の温度範囲に加熱して、前記吸収されたCO₂を前記エアロゲルから脱着することを含む、請求項93に記載のプロセス。

【請求項95】

前記エアロゲルが、前記エアロゲルを蒸気と接触させることによって加熱される、請求項94に記載のプロセス。

【請求項96】

CO₂を含有するガス流又は大気から二酸化炭素(CO₂)を捕捉するための吸着装置であって、請求項1～52に従って定義されるような、及び／又は請求項64～79に従

10

20

30

40

50

って調製されるような、少なくとも1つのシリカベースのエアロゲルを囲むチャンバであって、ガス流が前記シリカベースのエアロゲルに流れることができる入口と、排出ガス流が前記シリカベースのエアロゲルから流れ出ることができる出口と、を備える、前記チャンバを備える、装置。

【請求項97】

前記チャンバの前記入口と出口との間に位置されている前記少なくとも1つのシリカベースのエアロゲル、並びに前記入口及び出口が、前記チャンバの反対側の端部にある、請求項96に記載の装置。

【請求項98】

前記チャンバが、ペレットの形態でシリカベースのエアロゲルを含む、請求項96又は97に記載の装置。

【請求項99】

前記チャンバが、前記チャンバ内に位置するか、又はパッキングされた前記シリカベースのエアロゲルを用いてコーティングされた基材を含む、請求項98に記載の装置。

【請求項100】

前記装置が、前記ガス流に平行に接続された、少なくとも1つのシリカベースのエアロゲルを囲む2つ以上のチャンバを備える、請求項96～99のいずれか一項に記載の装置。

【請求項101】

前記装置が、各チャンバ内に少なくとも1つのシラン系エアロゲルを囲む少なくとも3つのチャンバを備え、各チャンバが、前記ガス流に平行に接続されている、請求項95～100のいずれか一項に記載の装置。

【請求項102】

前記少なくとも3つのチャンバ内に囲まれた前記シリカベースエアロゲルが、吸着及び再生サイクルの異なるセクションにおいて動作して、前記排出ガス流の連続的な流れを生成する、請求項95～101のいずれか一項に記載の装置。

【請求項103】

前記出口からの前記排出ガス流が、種々の二次プロセスに流れる、請求項102に記載の装置。

10

20

30

40

50

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/AU2021/050878
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C01B 33/148 (2006.01) C01B 33/158 (2006.01) C08J 9/28 (2006.01) B01D 53/62 (2006.01) B01D 53/02 (2006.01) B01D 53/18 (2006.01) B01J 20/10 (2006.01) B01J 20/26 (2006.01) B01J 20/28 (2006.01) B01J 20/281 (2006.01) B01J 20/285 (2006.01) B01J 20/291 (2006.01) B01J 20/30 (2006.01) B01J 20/34 (2006.01) C08G 77/26 (2006.01)		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
Database: CAPLUS, PATENW, ESPACENET, AUPATFULL, CANPATFULL, CEABA, CNFULL, DEFULL, EPFULL, FRFULL, GBFULL, INFULL, JPFULL, KRFULL, PCTFULL, PQSCITECH, RAPRA, TEMA, USPATFULL, USPAT2, WPIDS, WPIX. Keywords: Aerogel, xerogel, amine, silane, siloxane, akyl, methoxy, ethoxy, carbon dioxide, direct air capture, pore and similar. IPC/CPC: B01D53, C01B33/16, B01J20 and lower marks. Applicant/Inventor search in Espacenet & IPA internal database.		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
	Documents are listed in the continuation of Box C	
☒ Further documents are listed in the continuation of Box C ☒ See patent family annex		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "D" document cited by the applicant in the international application "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 27 September 2021		Date of mailing of the international search report 27 September 2021
Name and mailing address of the ISA/AU AUSTRALIAN PATENT OFFICE PO BOX 200, WODEN ACT 2606, AUSTRALIA Email address: pct@ipaustalia.gov.au		Authorised officer Sunilkumar Edamula AUSTRALIAN PATENT OFFICE (ISO 9001 Quality Certified Service) Telephone No. +61262832927

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No.
C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		PCT/AU2021/050878
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2020/146901 A1 (THE RESEARCH FOUNDATION FOR THE STATE UNIVERSITY OF NEW YORK) 16 July 2020 Para 0061-0068, 0073, 0075-0077, 0132-0133	1-6, 10-16, 19-29, 54-69, 70-81
X	CN 103816857 A (UNIV ZHEJIANG) 28 May 2014 Abstract; Para 0029-0030, 0032, 0138-0155; Example 1	1-5, 10-16, 19-29, 54-59, 69, 80-92
X	US 9931612 B2 (ASPEN AEROGELS, INC.) 03 April 2018 Abstract; Col 3, line 5-10, 30-60; Col 4, line 30-50; Col 6, line 16; Col 7, line 20-25; Col 8, line 25-30, 59-65; Col 14, Table 1; Col 15-16; Col 17, line 25-45; Tables 2-3; Examples 1-10; Figure 6,8.	1-52, 54-103
A	CN 108993412 A (UNIV NANJING TECH) 14 December 2018 Abstract; Examples 1-5; claims 2,5; Fig. 2.	1-52, 54-103
A	CN 108238602 A (TIANJIN XINBIN ENGINEERING TECH TESTING CO LTD) 03 July 2018 Abstract; Para 0046-0047	1-52, 54-103
A	CN 103754886 A (UNIV TONGJI) 30 April 2014 Figure 1, Example 1; Claims 1-5	1-52, 54-103
A	CN 101973558 A (UNIV NANJING) 16 February 2011 Abstract	13-15, 30-52, 82-95
A	CN 103706342 A (UNIV NANJING) 09 April 2014 Abstract	13-15, 30-52, 82-95
A	CN 107199023 A (UNIV NANJING TECH) 26 September 2017 Abstract	13-15, 30-52, 82-95
A	WO 2015185434 A1 (CLIMEWORKS AG) 10 December 2015 Abstract	96-103
A	WO 2019/161420 A1 (EISENBERGER, PETER AND CHICHILNISKY, GRACIELA, JOINTLY) 22 August 2019 Abstract	96-103
A	WO 2007/114991 A2 (GLOBAL RES TECHNOLOGIES LLC) 11 October 2007 Abstract	96-103
Form PCT/ISA/210 (5th sheet) (July 2019)		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No.	
Information on patent family members		PCT/AU2021/050878	
This Annex lists known patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report. The Australian Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.			
Patent Document/s Cited in Search Report		Patent Family Member/s	
Publication Number	Publication Date	Publication Number	Publication Date
WO 2020/146901 A1	16 July 2020	WO 2020146901 A1	16 Jul 2020
		CA 3126542 A1	16 Jul 2020
CN 103816857 A	28 May 2014	CN 103816857 A	28 May 2014
		CN 103816857 B	13 Jan 2016
US 9931612 B2	03 April 2018	US 2016074831 A1	17 Mar 2016
		US 9931612 B2	03 Apr 2018
		US 2013287661 A1	31 Oct 2013
		US 9302247 B2	05 Apr 2016
CN 108993412 A	14 December 2018	CN 108993412 A	14 Dec 2018
		CN 108993412 B	22 Jun 2021
CN 108238602 A	03 July 2018	CN 108238602 A	03 Jul 2018
CN 103754886 A	30 April 2014	CN 103754886 A	30 Apr 2014
CN 101973558 A	16 February 2011	CN 101973558 A	16 Feb 2011
		CN 101973558 B	29 Feb 2012
CN 103706342 A	09 April 2014	CN 103706342 A	09 Apr 2014
		CN 103706342 B	10 Feb 2016
CN 107199023 A	26 September 2017	CN 107199023 A	26 Sep 2017
WO 2015185434 A1	10 December 2015	WO 2015185434 A1	10 Dec 2015
		CN 106488795 A	08 Mar 2017
		CN 106488795 B	13 Mar 2020
		EP 3151947 A1	12 Apr 2017
		EP 3151947 B1	04 Nov 2020
		US 2017106330 A1	20 Apr 2017
		US 10232305 B2	19 Mar 2019
WO 2019/161420 A1	22 August 2019	WO 2019161420 A1	22 Aug 2019
		AU 2014373727 A1	07 Jul 2016
		AU 2014373727 B2	11 Apr 2019
		BR 112014027575 A2	27 Jun 2017
		BR 112016015436 A2	22 May 2018
		CA 2798045 A1	03 Nov 2011
		CA 2872627 A1	07 Nov 2013
Due to data integration issues this family listing may not include 10 digit Australian applications filed since May 2001.			
Form PCT/ISA/210 (Family Annex)(July 2019)			

10

20

30

40

50

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No.	
Information on patent family members		PCT/AU2021/050878	
This Annex lists known patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report. The Australian Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.			
Patent Document/s Cited in Search Report		Patent Family Member/s	
Publication Number	Publication Date	Publication Number	Publication Date
		CA 2933093 A1	09 Jul 2015
		CA 3061094 A1	03 Nov 2011
		CN 103079671 A	01 May 2013
		CN 103079671 B	12 Oct 2016
		CN 104380021 A	25 Feb 2015
		CN 106163636 A	23 Nov 2016
		CN 106163636 B	10 Jan 2020
		EA 201691356 A1	30 Nov 2016
		EP 2563495 A1	06 Mar 2013
		EP 2563495 B1	25 Sep 2019
		EP 2867600 A1	06 May 2015
		EP 2867600 B1	27 Feb 2019
		EP 3089809 A1	09 Nov 2016
		EP 3653282 A1	20 May 2020
		JP 2013525105 A	20 Jun 2013
		JP 5932771 B2	08 Jun 2016
		JP 2015515925 A	04 Jun 2015
		JP 6236065 B2	22 Nov 2017
		JP 2017502833 A	26 Jan 2017
		JP 6613237 B2	27 Nov 2019
		MX 2016008743 A	28 Feb 2017
		SA 3364 B1	14 Apr 2014
		SG 11201604934Q A	28 Jul 2016
		US 2011296872 A1	08 Dec 2011
		US 8500855 B2	06 Aug 2013
		US 2013312606 A1	28 Nov 2013
		US 9028592 B2	12 May 2015
		US 2015283501 A1	08 Oct 2015
		US 9433896 B2	06 Sep 2016
		US 2015209718 A1	30 Jul 2015
		US 9616378 B2	11 Apr 2017
		US 2015273432 A1	01 Oct 2015
		US 9630143 B2	25 Apr 2017
		US 2017239617 A1	24 Aug 2017
		US 9776131 B2	03 Oct 2017
		US 2017113184 A1	27 Apr 2017
Due to data integration issues this family listing may not include 10 digit Australian applications filed since May 2001.			
Form PCT/ISA/210 (Family Annex)(July 2019)			

10

20

30

40

50

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No.	
Information on patent family members		PCT/AU2021/050878	
This Annex lists known patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report. The Australian Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.			
Patent Document/s Cited in Search Report		Patent Family Member/s	
Publication Number	Publication Date	Publication Number	Publication Date
		US 9878286 B2	30 Jan 2018
		US 2015273385 A1	01 Oct 2015
		US 9925488 B2	27 Mar 2018
		US 2017225115 A1	10 Aug 2017
		US 9937461 B2	10 Apr 2018
		US 2017209832 A1	27 Jul 2017
		US 9975087 B2	22 May 2018
		US 2018214822 A1	02 Aug 2018
		US 10239017 B2	26 Mar 2019
		US 2017361271 A1	21 Dec 2017
		US 10413866 B2	17 Sep 2019
		US 2018169568 A1	21 Jun 2018
		US 10512880 B2	24 Dec 2019
		US 2014010719 A1	09 Jan 2014
		US 2014145110 A1	29 May 2014
		US 2020009504 A1	09 Jan 2020
		US 2020047116 A1	13 Feb 2020
		US 2021146303 A1	20 May 2021
		WO 2011137398 A1	03 Nov 2011
		WO 2013166432 A1	07 Nov 2013
		WO 2015103401 A1	09 Jul 2015
Due to data integration issues this family listing may not include 10 digit Australian applications filed since May 2001.			
Form PCT/ISA/210 (Family Annex)(July 2019)			

10

20

30

40

50

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No.	
Information on patent family members		PCT/AU2021/050878	
This Annex lists known patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report. The Australian Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.			
Patent Document/s Cited in Search Report		Patent Family Member/s	
Publication Number	Publication Date	Publication Number	Publication Date
WO 2007/114991 A2	11 October 2007	WO 2007114991 A2	11 Oct 2007
		AU 2007233275 A1	11 Oct 2007
		AU 2007233275 B2	26 Jul 2012
		CA 2644676 A1	11 Oct 2007
		CN 101495213 A	29 Jul 2009
		CN 102441319 A	09 May 2012
		EP 1998871 A2	10 Dec 2008
		EP 2668992 A2	04 Dec 2013
		KR 20090003206 A	09 Jan 2009
		MX 2008011464 A	24 Sep 2008
		RU 2008139902 A	20 Apr 2010
		US 2007217982 A1	20 Sep 2007
		US 7993432 B2	09 Aug 2011
		US 8221527 B1	17 Jul 2012
		US 2011209614 A1	01 Sep 2011
		US 8246723 B2	21 Aug 2012
		US 2012279397 A1	08 Nov 2012
		US 9205372 B2	08 Dec 2015
		US 2017043333 A1	16 Feb 2017
		US 10150112 B2	11 Dec 2018
End of Annex			

10

20

30

40

50

フロントページの続き

(51)国際特許分類 F I テーマコード (参考)

C O 1 B 32/50 (2017.01)

B O 1 J 20/34

F

C O 1 B 33/148 (2006.01)

B O 1 J 20/34

Z

B O 1 J 13/00 (2006.01)

C O 1 B 32/50

C O 1 B 33/148

B O 1 J 13/00

D

MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,N
E,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,
CZ,DE,DJ,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IR,IS,IT,JO,JP,K
E,KG,KH,KN,KP,KR,KW,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,N
G,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SA,SC,SD,SE,SG,SK,SL,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,
TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,WS,ZA,ZM,ZW

(72)発明者 コンスタス, クリスティーナ

オーストラリア国 オーストラリアン キャピタル テリトリー 2 6 0 1, アクトン, クルーニーズ
ロス ストリート, コモンウェルス サイエнтиフィック アンド インダストリアル リサーチ
オーガナイゼーション内

(72)発明者 マウルデヴ, ジョージ

オーストラリア国 オーストラリアン キャピタル テリトリー 2 6 0 1, アクトン, クルーニーズ
ロス ストリート, コモンウェルス サイエнтиフィック アンド インダストリアル リサーチ
オーガナイゼーション内

(72)発明者 ワン, シンドン

オーストラリア国 オーストラリアン キャピタル テリトリー 2 6 0 1, アクトン, クルーニーズ
ロス ストリート, コモンウェルス サイエнтиフィック アンド インダストリアル リサーチ
オーガナイゼーション内

F ターム (参考) 4D012 BA01 CA03 CB03 CB15 CD02 CD07 CE03 CF05 CF08 CG01
CG02 CG05

4G065 AB28X BB08 CA14 DA10 EA01 EA10

4G066 AA22B AA64C AB13B AB18B AB24B AC02C AC11B AC12C AC28C BA02
BA07 BA09 BA20 BA23 BA25 BA26 BA36 CA35 DA03 FA37 GA06
GA14

4G072 AA25 BB05 BB09 BB15 CC07 DD07 DD08 HH30 MM33 MM34
TT04 TT06 UU11

4G146 JA02 JB09 JB10 JC26 JC28 JC30