



(21)申請案號：101120705

(22)申請日：中華民國 101 (2012) 年 06 月 08 日

(51)Int. Cl. : C04B7/00 (2006.01) C04B12/00 (2006.01)

(30)優先權：2011/06/09 美國 61/495,152

(71)申請人：羅格斯新澤西州立大學(美國) RUTGERS, THE STATE UNIVERSITY OF NEW JERSEY (US)

美國

(72)發明人：萊曼理查 E RIMAN, RICHARD E. (US)；尼湯瑪士 E NYE, THOMAS E. (US)；阿特肯維希特 ATAKAN, VAHIT (TR)；維基法米特古魯西科達 VAKIFAHMETOGLU, CEKDAR (TR)；李慶華 LI, QINGHUA (CN)；湯玲 TANG, LING (CN)

(74)代理人：蔡坤財；李世章

(56)參考文獻：

TW 200922901A CN 102083764A

CN 102083771A

審查人員：馮俊璋

申請專利範圍項數：19 項 圖式數：4 共 58 頁

(54)名稱

合成配方及其製造與使用方法

SYNTHETIC FORMULATIONS AND METHODS OF MANUFACTURING AND USING THEREOF

(57)摘要

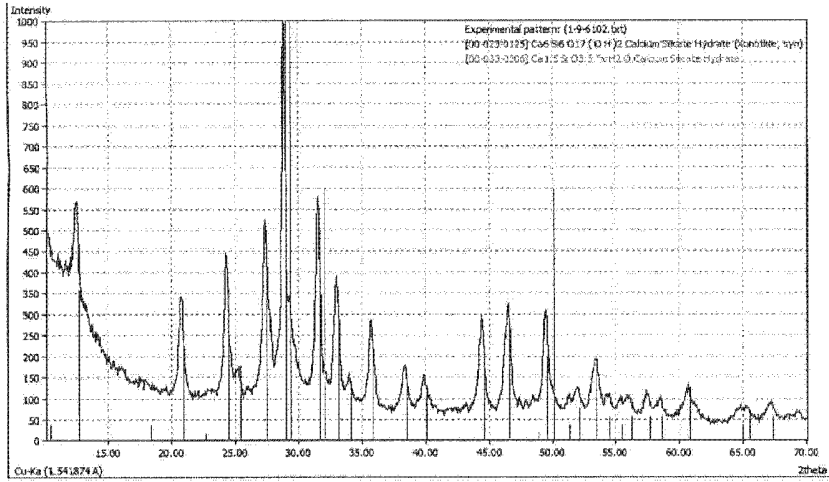
一種用於製造反應產物的方法，該反應產物包含至少一種充分碳酸化的合成配方，該方法包含：提供第一原物料，該第一原物料具有第一濃度的 M；提供第二原物料，該第二原物料具有第二濃度的 Me；以及混合第一原物料與第二原物料以製造反應產物，該反應產物包含至少一種合成配方，該合成配方的通式為 $M_aMe_bO_c$ 、 $M_aMe_b(OH)_d$ 、 $M_aMe_bO_c(OH)_d$ 或 $M_aMe_bO_c(OH)_d \cdot (H_2O)_e$ ，其中 M 包含至少一種可反應形成碳酸鹽的金屬，以及 Me 為至少一種在碳酸化反應期間可形成氧化物的元素，其中該至少一種合成配方能夠經歷碳酸化反應，且其中該至少一種合成配方能夠在碳酸化反應期間經歷體積變化。

A method for producing a reaction product including at least one synthetic formulation that carbonates sufficiently, said method comprising: providing a first raw material, having a first concentration of M; providing a second raw material, having a second concentration of Me; and mixing the first raw material and the second raw material to produce a reaction product that includes at least one synthetic formulation having the general formula $M_aMe_bO_c$, $M_aMe_b(OH)_d$, $M_aMe_bO_c(OH)_d$ or $M_aMe_bO_c(OH)_d \cdot (H_2O)_e$, wherein M comprises at least one metal that can react to form a carbonate and Me is at least one element that can form an oxide during the carbonation reaction, wherein the at least one synthetic formulation is capable of undergoing a carbonation reaction, and wherein the at least one synthetic formulation is capable of undergoing volume change during the carbonation reaction.

指定代表圖：

第 1 圖

Ca(OH)₂ : SiO₂ = 1 : 1、水/固體=20 : 1、pH=13(0.1M KOH)、溫度=225°C、時間=4小時



發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫；惟已有申請案號者請填寫)

※申請案號：101120705

※申請日期：2012年06月08日

※IPC分類：

一、發明名稱：(中文/英文)

合成配方及其製造與使用方法

SYNTHETIC FORMULATIONS AND METHODS OF
MANUFACTURING AND USING THEREOF

C04B 7/00 (2006.01)
C04B12/00 (2006.01)

二、中文發明摘要：

一種用於製造反應產物的方法，該反應產物包含至少一種充分碳酸化的合成配方，該方法包含：提供第一原物料，該第一原物料具有第一濃度的 M；提供第二原物料，該第二原物料具有第二濃度的 Me；以及混合第一原物料與第二原物料以製造反應產物，該反應產物包含至少一種合成配方，該合成配方的通式為 $M_aMe_bO_c$ 、 $M_aMe_b(OH)_d$ 、 $M_aMe_bO_c(OH)_d$ 或 $M_aMe_bO_c(OH)_d \cdot (H_2O)_e$ ，其中 M 包含至少一種可反應形成碳酸鹽的金屬，以及 Me 為至少一種在碳酸化反應期間可形成氧化物的元素，其中該至少一種合成配方能夠經歷碳酸化反應，且其中該至少一種合成配方能夠在碳酸化反應期間經歷體積變化。

三、英文發明摘要：

A method for producing a reaction product including at least one synthetic formulation that carbonates sufficiently, said method comprising: providing a first raw material, having a first concentration of M; providing a second raw

material, having a second concentration of Me; and mixing the first raw material and the second raw material to produce a reaction product that includes at least one synthetic formulation having the general formula $M_aMe_bO_c$, $M_aMe_b(OH)_d$, $M_aMe_bO_c(OH)_d$ or $M_aMe_bO_c(OH)_d \cdot (H_2O)_e$, wherein M comprises at least one metal that can react to form a carbonate and Me is at least one element that can form an oxide during the carbonation reaction, wherein the at least one synthetic formulation is capable of undergoing a carbonation reaction, and wherein the at least one synthetic formulation is capable of undergoing volume change during the carbonation reaction.

四、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第(1)圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

無

五、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

無

料可最小化溫室氣體與其他污染物的產生，例如，汞。

本發明的另一優點在於提供製造此材料的製程，該材料提供為高強度材料。

本發明的另一優點在於提供製造此材料的製程，該材料可使用廣泛可取得的原物料來合成。

本發明的額外特徵與優點將在以下的描述中說明，可由以下描述來理解並藉由實施本發明得知本發明的額外特徵與優點。可由說明書與申請專利範圍以及附圖所特別指出的結構來理解與獲得本發明的標的與其他優點。

為了達成該些與其他優點並符合本發明的目標，在此提供一種製造反應產物的方法，該反應產物包含至少一種碳酸化的合成配方，該方法包含：提供第一原物料，該第一原物料具有第一濃度的 M；提供第二原物料，該第二原物料具有第二濃度的 Me；以及混合第一原物料與第二原物料以製造反應產物，該反應產物包含至少一種合成配方，該合成配方的通式為 $M_aMe_bO_c$ 、 $M_aMe_b(OH)_d$ 、 $M_aMe_bO_c(OH)_d$ 或 $M_aMe_bO_c(OH)_d \cdot (H_2O)_e$ ，其中 M 包含至少一種可反應形成碳酸鹽的金屬，以及 Me 為至少一種在碳酸化反應期間可形成氧化物的元素，其中 a:b 的比例介於 0.167:1 至 2.5:1 之間，其中 c 為 3 或更大，其中 d 為 1 或更大，其中 e 為 0 或更大，其中該至少一種合成配方能夠經歷碳酸化反應，且其中該至少一種合成配方能夠在碳酸化反應期間經歷體積變化。

在本發明的另一態樣中，提供使用反應產物來製造複

合材料的方法，該反應產物是由具有第一濃度 M 的第一原物料與具有第二濃度 Me 的第二原物料之間的反應所製得，該製造複合材料的方法包含：將液態溶劑導入實心體的孔洞中，該實心體包含反應產物，其中該反應產物包含至少一種合成配方，該合成配方的通式為 $M_aMe_bO_c$ 、 $M_aMe_b(OH)$ 、 $M_aMe_bO_c(OH)_d$ 或 $M_aMe_bO_c(OH)_d \cdot (H_2O)_e$ ，其中 M 包含至少一種可反應形成碳酸鹽的金屬，以及 Me 為至少一種在碳酸化反應期間可形成氧化物的元素，其中 $a:b$ 的比例介於 $0.167:1$ 至 $2.5:1$ 之間，其中 c 為 3 或更大，其中 d 為 1 或更大，其中 e 為 0 或更大，其中該至少一種合成配方能夠經歷碳酸化反應，且其中該至少一種合成配方能夠在碳酸化反應期間經歷體積變化；以及將氣態反應物導入實心體的孔洞中，因此該至少一種合成配方中的多個粒子可轉變為多個鍵結元素，該些鍵結元素包含：核心，該核心具有包含一或多個化學元素的第一化學組成；第一層，該第一層至少部分覆蓋該核心的周圍部份，該第一層具有與第一化學組成不同的第二化學組成，該第二化學組成包含陽離子，該陽離子對應於該第一化學組成中其中一個化學元素；以及第二層，該第二層至少部分覆蓋該第一層的周圍部份，該第二層具有與第一以及第二化學組成不同的第三化學組成，該第三化學組成包含陽離子，該陽離子對應於該第一化學組成中其中一個化學元素。

應理解到前述內容與以下的實施方式均屬示例與解

釋，且欲提供所主張之本發明的進一步說明。

【實施方式】

現將詳細參閱本發明的實施例。

根據本發明的示例性實施例，將具有第一濃度 M 的第一原物料與具有第二濃度 Me 的第二原物料混合並反應形成反應產物，該反應產物包含至少一種合成配方，該合成配方的通式為 $M_aMe_bO_c$ 、 $M_aMe_b(OH)_d$ 、 $M_aMe_bO_c(OH)_d$ 或 $M_aMe_bO_c(OH)_d \cdot (H_2O)_e$ ，其中 M 為至少一種可反應形成碳酸鹽的金屬，以及 Me 為至少一種在碳酸化反應期間可形成氧化物的元素。

如上所述，當存在於通式為 $M_aMe_bO_c$ 、 $M_aMe_b(OH)_d$ 、 $M_aMe_bO_c(OH)_d$ 或 $M_aMe_bO_c(OH)_d \cdot (H_2O)_e$ 的合成配方中時，第一原物料中的 M 可包含任何可碳酸化的金屬。例如， M 可為任何鹼土元素，較佳為鈣及/或鎂。第一原物料可為任何具有第一濃度 M 的礦物及/或副產物。例如，第一原物料可包含表 1A 中所列出的任何一或多種礦物。該第一原物料另外可為或額外包含表 1B 中所列出的一或多種副產物。

表 1A

碳酸鹽 (Carbonates)
文石 (Aragonite)

方解石 (Calcite)
白雲石 (Dolomite)
菱鎂土 (Magnesite)
石膏 (Gypsum)
石灰泥 (Marls)
滑石 (Talc)
亞氯酸鹽 (Chlorites)
硫酸鹽 (Sulfates)
石灰石 (Limestones)
富含鈣的生物質 (Calcium-Rich Biomass)

表 1B

礦渣 (Slags)
再生水泥 (Recycled Cement)
石灰礦渣 (LKD)
水泥窯灰 (CKD)
輕質碳酸鈣
再生紙
排煙脫硫 (FGD) 之硫酸鈣
磷石膏 (Phosphogypsum)
富含矽的生物質

如上所述，當存在於通式為 $M_aMe_bO_c$ 、 $M_aMe_b(OH)_d$ 、 $M_aMe_bO_c(OH)_d$ 或 $M_aMe_bO_c(OH)_d \cdot (H_2O)_e$ 的合成配方中時，第二原物料中的 Me 可包含任何可由水熱不均化反應形成氧化物的元素。例如，Me 可為矽、鈦、鋁、磷、鈮、鎢、鉬、鎳、錳、銻、銻、銅、鈮、鈷、鉛、鐵、銻、砷、硫，及/或鉍。在較佳實施例中，Me 包含矽。第二原物料可為任何一或多種的礦物及/或副產物，該礦物及/或副產物具有第二濃度的 Me。例如，第二原物料可包含表 1C 所列出的任何一或多種礦物。第二原物料可包含表 1D 所列出的任何一或多種副產物。

表 1C

矽酸鹽 (Silicates)
沸石 (Zeolites)
頁岩 (Shales)
板岩 (Slates)
黏土 (Clays)
泥板岩 (Argillites)
砂岩 (Sandstones)
火山礫岩 (Conglomerates)
玄武岩 (Basalts)
正長石 (Feldspars)
雲母 (Micas)

花崗岩 (Granites)
花崗閃長岩 (Granodiorites)
閃長岩 (Diorites)
燧石岩 (Cherts)
砂 (Sands)
非晶形矽酸鹽 (Amorphous Silicates)

表 1D

粉煤灰 (Flyash)
焚化爐粉塵 (Incinerator Dust)
玻璃纖維碎片 (Fiberglass Cullet)
消費前與消費後之玻璃 (Post and Pre-Consumer Glass)
尾礦 (Mine Tailings)
稻殼
赤泥
淡水與鹽水處理廢棄物

根據本發明的示例性實施例，第一與第二原物料的第一與第二濃度高達該第一與第二原物料可以預定比例來混合，以形成通式為 $M_aMe_bO_c$ 、 $M_aMe_b(OH)_d$ 、 $M_aMe_bO_c(OH)_d$ 或 $M_aMe_bO_c(OH)_d \cdot (H_2O)_e$ 的期望合成配方，其中所產生的合成配方可經歷碳酸化反應。在一或

多個示例性實施例中，具有 a : b 的比例介於約 2.5 : 1 至約 0.167 : 1 的合成配方經歷碳酸化反應。該合成配方亦可具有 c 的氧濃度，其中 c 為 3 或更大。在另一實施例中，合成配方可具有 d 的 OH 濃度，其中 d 為 1 或更大。在另一實施例中，合成配方亦可具有 e 濃度的水，其中 e 為 0 或更大。在表 2A 與表 2B 中說明合成配方的該些實施例的一些非限制性的示例性實例。

根據本發明的示例性實施例，合成配方可進一步在碳酸化製程中反應。例如，可將合成配方的多個粒子曝露至反應性液體，其中與液體結合的反應物與 M 反應形成碳酸鹽相，且藉由水熱不均相反應與 Me 反應形成氧化物相。可能的碳酸化製程的更詳盡描述係於美國臨時申請案第 61/449,659 號，現為美國專利申請案第 13/411,218 號中說明，為了達到在此詳盡描述的目的，全文以引用的方式併入本文中。

在較佳實施例中，合成配方的體積膨脹發生於碳酸化製程期間。表 2A 與表 2B 列出計算過的示例性合成配方的體積變化值。

在表 2A 與表 2B 中，最後一欄 (V%) 說明當碳酸化該示例性合成配方 (例如，與二氧化碳反應) 時，計算過的體積變化。堅信碳酸化後較大的體積膨脹可產生較佳的鍵結，以固化包含合成配方的反應產物。

表 2A 矽酸鈣水合物

名稱	化學式	M/Me	V%
(a) 矽灰石組			
斜方矽鈣石	$\text{Ca}_4(\text{Si}_3\text{O}_9)(\text{OH})_2$	1.33	52.12%
水矽鈣石	$\text{Ca}_2(\text{SiO}_3)(\text{OH})_2$	2	45.98%
新水矽鈣石	$\text{Ca}_3\text{Si}_6\text{O}_{15}\cdot 7\text{H}_2\text{O}$	0.5	-3.58%
纖水矽鈣石	$\text{Ca}_3\text{Si}_6\text{O}_{15}\cdot 6\text{H}_2\text{O}$	0.5	2.95%
針鈉鈣石	$\text{Ca}_2\text{NaHSi}_3\text{O}_9$	1	14.57%
硬矽鈣石	$\text{Ca}_6\text{Si}_6\text{O}_{17}(\text{OH})_2$	1	49.39%
(b) 雪矽鈣石組			
斜雪矽鈣石 c	$\text{Ca}_5\text{Si}_6\text{O}_{17}\cdot 5\text{H}_2\text{O}$	0.83	28.36%
斜雪矽鈣石 d	$\text{Ca}_5\text{Si}_6\text{O}_{17}\cdot 5\text{H}_2\text{O}$	0.83	28.36%
斜雪矽鈣石 9Å c	$\text{Ca}_5\text{Si}_6\text{O}_{16}(\text{OH})_2$	0.83	56.20%
斜雪矽鈣石 9Å d	$\text{Ca}_5\text{Si}_6\text{O}_{16}(\text{OH})_2$	0.83	56.25%
水硼矽鈣石	$\text{Ca}_{10}\text{B}_2\text{Si}_8\text{O}_{29}\cdot 12.5\text{H}_2\text{O}$	1.25	19.66%
9Å 雪矽鈣石 (單矽鈣石) c	$\text{Ca}_5\text{Si}_6\text{O}_{16}(\text{OH})_2$	0.83	56.25%
9Å 雪矽鈣石 (單矽鈣石) d	$\text{Ca}_5\text{Si}_6\text{O}_{16}(\text{OH})_2$	0.83	56.04%
不規則的 11Å 雪矽鈣石 c	$\text{Ca}_4\text{Si}_6\text{O}_{15}(\text{OH})_2\cdot 5\text{H}_2\text{O}$	0.67	13.91%
不規則的 11Å 雪矽鈣石 d	$\text{Ca}_4\text{Si}_6\text{O}_{15}(\text{OH})_2\cdot 5\text{H}_2\text{O}$	0.67	13.91%
規則的	$\text{Ca}_{4.5}\text{Si}_6\text{O}_{16}(\text{OH})\cdot 5\text{H}_2\text{O}$	0.75	17.55%

11Å 雪矽鈣石 d			
14Å 雪矽鈣石 (多水矽鈣石) c	$\text{Ca}_5\text{Si}_6\text{O}_{16}(\text{OH})_2 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	0.83	4.28%
14Å 雪矽鈣石 (多水矽鈣石) d	$\text{Ca}_5\text{Si}_6\text{O}_{16}(\text{OH})_2 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	0.83	1.99%
(c) 六水矽鈣石組			
六水矽鈣石	$\text{Ca}_9\text{Si}_6\text{O}_{18}(\text{OH})_6 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$	1.5	10.72%
變六水矽鈣石	$\text{Ca}_9\text{Si}_6\text{O}_{18}(\text{OH})_6 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$	1.5	19.67%
(d) 白矽鈣石組			
矽鈉鈣石	$(\text{Na}, \text{K})_2(\text{Ca}, \text{Na})_7(\text{Si}, \text{Al})_{16}\text{O}_{38}$ $(\text{F}, \text{OH})_2 \cdot 3.5\text{H}_2\text{O}$	0.56	7.30%
白矽鈣石	$\text{NaCa}_{16}\text{Si}_{23}\text{AlO}_{60}(\text{OH})_8 \cdot 14\text{H}_2\text{O}$	0.67	13.30%
K-相	$\text{Ca}_7\text{Si}_{16}\text{O}_{38}(\text{OH})_2$	0.44	26.57%
水矽鈣鉀石	$\text{Na}_2\text{Ca}_{14}\text{Si}_{22}\text{Al}_2\text{O}_{58}(\text{OH})_8 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	0.67	18.44%
矽錳鈣石	$\text{Ca}_{14}\text{Si}_{24}\text{O}_{58}(\text{OH})_8 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	0.58	30.76%
Z-相	$\text{Ca}_9\text{Si}_{16}\text{O}_{40}(\text{OH})_2 \cdot 14\text{H}_2\text{O}$	0.56	7.06%
(e) γ-C2S 組			
鈣粒矽鎂石 g	$\text{Ca}_5[\text{SiO}_4]_2(\text{OH})_2$	2.5	63.78%
直矽鈣石	$\text{Ca}_6(\text{SiO}_4)(\text{Si}_3\text{O}_{10})$	1.5	75.76%
(f) 其他硫酸鈣相			
柱矽鈣石	$\text{Ca}_3(\text{SiO}_3\text{OH})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	1.5	30.42%
α -C ₂ SH	$\text{Ca}_2(\text{HSiO}_4)(\text{OH})$	2	47.12%
槍晶石 h	$\text{Ca}_4(\text{F}_{1.5}(\text{OH})_{0.5})\text{Si}_2\text{O}_7$	2	67.86%

水鈣矽石	$\text{Ca}_6(\text{Si}_2\text{O}_7)(\text{SiO}_4)(\text{OH})_2$	2	71.17%
六方水矽鈣石	$\text{Ca}_6[\text{Si}_2\text{O}_7](\text{OH})_6$	3	41.96%
斜水矽鈣石	$\text{Ca}_{6.4}(\text{H}_{0.6}\text{Si}_2\text{O}_7)_2(\text{OH})_2$	1.6	65.11%
矽錳鈣石 i	$\text{Ca}(\text{Ca}_{0.67}\text{Mn}_{0.33})(\text{HSiO}_4)(\text{OH})$	2	26.10%
多水矽鈣石	$\text{Ca}_3\text{Si}_3\text{O}_8(\text{OH})_2$	1	56.35%
直水矽鈣石	$\text{CaSiO}_{2.5}(\text{OH})\cdot 0.5\text{H}_2\text{O}$	1	33.02%
粒矽鈣石	$\text{Ca}_5\text{Si}_2\text{O}_7(\text{CO}_3)_2$	2.5	42.40%
(g)其他高溫水泥相			
水鈣黃長石	$\text{Ca}_2(\text{Al}_2\text{SiO}_6)(\text{OH})_2$	0.67	54.71%
氟碳矽鈣石	$\text{Ca}_4(\text{Si}_2\text{O}_6)(\text{CO}_3)(\text{OH})_2$	2	41.40%
水鈣鋁榴石 石榴石類 1	$\text{Ca}_{1.46}\text{AlSi}_{0.55}\text{O}_6\text{H}_{3.78}$	0.30	71.13%
氯複矽鈣石	$\text{Ca}_{10}(\text{Si}_2\text{O}_7)_2(\text{SiO}_4)\text{Cl}_2(\text{OH})_2$	2	60.83%
水碳矽鈉石	$\text{Ca}_7(\text{Si}_6\text{O}_{18})(\text{CO}_3)\cdot 2\text{H}_2\text{O}$	1.17	43.03%
水鋁黃長石	$\text{Ca}_2\text{Al}_2(\text{SiO}_2)(\text{OH})_{10}\cdot 2.25\text{H}_2\text{O}$	0.62	32.08%

表 2B 矽酸鈣

名稱	化學式	Ca/Si	V%
(a)島狀矽酸鹽子類(單四面體)			
矽酸鎂石	$\text{Mg}_2(\text{SiO}_4)$	2	99.85%
鈣鐵榴石	$\text{Ca}_3\text{Fe}^{3+}_2(\text{SiO}_4)_3$	0.6	51.80%
鈣鋁榴石	$\text{Ca}_3\text{Al}_2(\text{SiO}_4)_3$	0.6	56.76%
鎂鋁榴石	$\text{Mg}_3\text{Al}_2(\text{SiO}_4)_3$	0.6	60.05%

橄欖石	$(\text{Mg}, \text{Fe}^{2+})_2(\text{SiO}_4)$	2	86.25%
榭石 / 榭石 鈦鐵礦	CaTiSiO_5	1	16.02%
矽灰石	Ca_2SiO_4	2	80.36%
六方矽鈣 石(矽三鈣 石)	Ca_3SiO_5	3	84.91%
(b) 雙矽酸鹽子類(雙四面體)			
賽黃晶	$\text{CaB}_2(\text{SiO}_4)_2$	0.5	15.45%
(c) 無機矽酸鹽子類(單鏈與雙鏈)			
輝石	$(\text{Ca}, \text{Na})(\text{Mg}, \text{Fe}, \text{Al}, \text{Ti})(\text{Si}, \text{Al})_2\text{O}_6$	~0.5	36.56%
透輝石	$\text{CaMg}(\text{Si}_2\text{O}_6)$	1	49.05%
頑火輝石	$\text{Mg}_2\text{Si}_2\text{O}_6$	1	83.30%
鈣鐵輝石	$\text{CaFe}^{2+}\text{Si}_2\text{O}_6$	0.33	35.84%
紫蘇輝石	$\text{MgFe}^{2+}\text{Si}_2\text{O}_6$	1	32.18%
薔薇輝石	$(\text{Mn}^{2+}, \text{Fe}^{2+}, \text{Mg}, \text{Ca})\text{SiO}_3$	1	83.81%
矽灰石 1A	CaSiO_3	1	65.51%
(d) 環狀矽酸鹽子類(環狀)			
堇青石	$(\text{Mg}, \text{Fe})_2\text{Al}_4\text{Si}_5\text{O}_{18}$	~0.22	-8.48%
大隅石-鎂	$(\text{K}, \text{Na})(\text{Mg}, \text{Fe}^{2+})_2(\text{Al}, \text{Fe}^{3+})_3(\text{Si}, \text{Al})_{12}\text{O}_{30}$	~0.167	4.69%
大隅石-鐵	$(\text{K}, \text{Na})(\text{Mg}, \text{Fe}^{2+})_2(\text{Al}, \text{Fe}^{3+})_3(\text{Si}, \text{Al})_{12}\text{O}_{30}$	~0.167	1.92%
假矽灰石	$\text{Ca}_3\text{Si}_3\text{O}_9$	1	65.73%
(e) 網狀矽酸鹽子類(框架型)			

中鈉長石	$(\text{Na,Ca})(\text{Si,Al})_4\text{O}_8$	~0.25	52.01%
鈣鈉長石	$\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$	0.25	-6.58%
富鈣長石	$(\text{Na,Ca})(\text{Si,Al})_4\text{O}_8$	~0.25	50.70%
中鈣長石	$(\text{Na,Ca})(\text{Si,Al})_4\text{O}_8$	~0.25	51.35%
富鈉長石	$(\text{Na,Ca})(\text{Si,Al})_4\text{O}_8$	~0.25	52.69%

在一實例中，第一原物料的 M 包含高濃度的鈣，且第二原物料的 Me 包含高濃度的矽。因此，舉例來說，第一原物料可為或包含石灰石，具有第一濃度的鈣。第二原物料可為或包含頁岩，具有第二濃度的矽。接著，將第一原物料與第二原物料以預定比例混合並反應形成反應產物，該反應產物包含至少一種合成配方，該合成配方的通式為 $(\text{Ca}_w\text{M}_x)_a(\text{Si}_y,\text{Me}_z)_b\text{O}_c$ 、 $(\text{Ca}_w\text{M}_x)_a(\text{Si}_y,\text{Me}_z)_b(\text{OH})_d$ 、 $(\text{Ca}_w\text{M}_x)_a(\text{Si}_y,\text{Me}_z)_b\text{O}_c(\text{OH})_d$ ，或 $(\text{Ca}_w\text{M}_x)_a(\text{Si}_y,\text{Me}_z)_b\text{O}_c(\text{OH})_d \cdot (\text{H}_2\text{O})_e$ ，其中 M 可包含除了鈣以外可反應形成碳酸鹽的一或多種額外金屬，且 Me 可包含除了矽以外可在碳酸化反應期間形成氧化物的一或多種元素。在此實例中的石灰石與頁岩可以 a:b 的比例混合，使得所產生的合成配方可經歷如上所述的碳酸化反應。如表 2A 所示，所產生的合成配方可為，例如，具有 a:b 比例為 1:1 的矽灰石 (CaSiO_3)。然而，對於 M 大多為鈣且 Me 大多為矽的合成配方來說，相信 a:b 的比例介於約 2.5:1 至約 0.167:1 之間可經歷碳酸化反應，

這是由於超出此範圍，則無法減少溫室氣體的排放，且無法產生能量的消耗與足夠的碳酸化。例如，對於 a : b 的比例大於 2.5 : 1 來說，該混合物可為富含 M，需要更多的能量與釋放更多的二氧化碳。同時，對於 a : b 的比例小於 0.167 : 1 來說，該混合物可富含 Me，且無法產生充分的碳酸化。

在另一實例中，第一原物料的 M 包含高濃度的鈣與鎂。因此，舉例來說，第一原物料可為或包含白雲石，具有第一濃度的鈣，且該合成配方的通式為 $(Mg_uCa_vM_w)_a(Si_y,Me_z)_bO_c$ 或 $(Mg_uCa_vM_w)_a(Si_y,Me_z)_b(OH)_d$ ，其中 M 可包含除了鈣與鎂以外可反應形成碳酸鹽的一或多種額外金屬，且 Me 可包含除了矽以外可在碳酸化反應期間形成氧化物的一或多種元素。在另一實例中，第一原物料的 Me 包含高濃度的矽與鋁，且該合成配方的通式為 $(Ca_vM_w)_a(Al_xSi_y,Me_z)_bO_c$ 或 $(Ca_vM_w)_a(Al_xSi_y,Me_z)_b(OH)_d$ 、 $(Ca_vM_w)_a(Al_xSi_y,Me_z)_bO_c(OH)_d$ 或 $(Ca_vM_w)_a(Al_xSi_y,Me_z)_bO_c(OH)_d \cdot (H_2O)_e$ 。

在與卜特蘭水泥相較之下，該卜特蘭水泥具有 a : b 的比例約為 2.5 : 1，本發明的示例性合成配方減少二氧化碳的生成量且需要較少的能量來形成合成配方，以下將更詳細討論。二氧化碳生成量的減少與較少能量的需求是由幾個因素所達成。首先，相較於相同數量的卜特蘭水泥，使用較少的原物料，例如，石灰石，因此只有少量的 $CaCO_3$ 被轉換。且，由於使用較少原物料，因此降

低用於破壞原物料以經歷碳酸化反應的熱(亦即，能量)需求。且，在與經歷水合反應以填充多孔質體的多個孔洞的卜特蘭水泥相較之下，儘管仍會產生一些水合作用，但本發明的示例性合成配方係經歷碳酸化反應來填充多孔質體的多個孔洞。

將參閱以下段落來說明額外的實例以及特徵。

在一示例性實施例中，可藉由碳酸化合成配方而將包含至少一種合成配方的反應產物併入混凝土、陶瓷或組合材料中，因而形成黏著劑或水泥相或陶瓷鍵結相或上述各者之組合。合成配方的碳酸化是優於水合作用，其中水合作用是卜特蘭水泥所進行的硬化反應，這是因為碳酸化產生具膠結性材料，該具膠結性材料比卜特蘭水泥更堅固且更化學穩定，且該具膠結性材料相對於水合硬化具有更短的反應時段。且，碳酸化製程可使用包含低濃度鈣的起始原物料，這比水合製程更有效率。例如，包含矽灰石(a : b=1 : 1)的水合反應形成少量或未形成水合相，而包含矽灰石(a : b=1 : 1)的碳酸化反應產生大量的碳酸鹽相。亦相信鈣鋁酸鹽相可包含在一些矽灰石狀的合成配方中，且鈣鋁酸鹽相非常容易進行水合化而非碳酸化。因此，在碳酸化合成配方期間亦可產生水合作用，但較佳地是主要碳酸化該合成配方。

如前所述，碳酸化產生一些優異的性質。舉例來說，水合化產物具有較小或不具有機械強度，而碳酸化產物具有優越的機械性質，該等機械性質超越卜特蘭水泥所

能達成的性質。即使相對於卜特蘭水泥該合成配方缺少 M 時，仍可達成此些性質。卜特蘭水泥藉著 a : b 的比例為 3 : 1 與 2 : 1 的富含鈣相，例如，矽三鈣石 (Ca_3SiO_5) 或矽酸二鈣 (Ca_2SiO_4)，來達成大量的水合化與優異的機械性質。然而，即使具有這些富含鈣相，在使用液壓黏附的混凝土中的卜特蘭水泥的性質仍不及於碳酸化本發明合成配方所產生的混凝土的強度與其他相關性質。

可合成矽灰石合成配方或矽灰石狀合成配方(包含矽酸鈣的物種，例如，水合物、鋁酸鹽類等等)，其中 M 含量少於卜特蘭水泥。典型的卜特蘭水泥具有約 66 重量%的氧化鈣 (CaO)，且矽灰石具有 48 重量%的氧化鈣。

如前所述，本發明的示例性合成配方相對於卜特蘭水泥可減少二氧化碳的排放量且需要較少的能量。進一步說明之，由分解每噸卜特蘭水泥所需的 CaCO_3 所造成的二氧化碳排放約為 518 公斤，且在製造一噸卜特蘭水泥期間，由於鍛燒 CaCO_3 或石灰石所需的燃料所造成的二氧化碳釋放量約為 280 公斤。因此，在鍛燒卜特蘭水泥期間的二氧化碳總釋放量約為 798 公斤。相較之下，假如使用相同的原物料來形成本發明的矽灰石狀合成配方，在鍛燒期間，每一噸的二氧化碳總排放約為 580 公斤。二氧化碳節約為約 27%。估計的能量節約為約 26%。

在鍛燒步驟之後，製造卜特蘭水泥所需的額外能量為約 1.92 GJ(gigajoule)，且此能量相當於 168 公斤的二氧化碳排放。對於矽灰石狀合成配方來說，估計此能量約為

1.45 GJ，等於 127 公斤的二氧化碳排放。當比較整體製程時，每一噸卜特蘭水泥的二氧化碳釋放量約為 967 公斤，而矽灰石狀合成配方的二氧化碳釋放量約為 708 公斤。這相當於減少約 26%的二氧化碳排放。能量節約媲美於二氧化碳節約。一噸的卜特蘭水泥需要約 5.1GJ 的能量，而一噸的矽灰石狀合成配方將需要約 3.76GJ 的能量，這相當於約 26%的能量節約。相信本發明的其他合成配方亦能產生類似的二氧化碳與能量節約。

由於碳酸鈣的分解通常在形成矽酸鈣相之前發生，所以使用 a : b 比例小於 2.5 : 1(在本說明書中亦代表缺乏 M 的混合物)可降低原物料(例如，具有矽的石灰石)反應所需的吸熱能量。而由矽酸鈣形成所釋放的放熱能量無法抵銷此能量需求。在此情況下，因此具有缺乏 M 的混合物的合成配方需要實質較低的能量來進行處理，且該合成配方亦釋放較少的二氧化碳(由能量消耗(電力與燃料)與石灰石分解所產生)至大氣中。這使製造合成配方的製程成為較環保的製程，代表該製程可顯著降低製造每噸產物的能量需求且每噸產物釋放較少的二氧化碳。

藉由使用含 M 的副產物，例如，飛灰、鹼性氧氣爐 (BOF) 灰渣等，作為原物料，可進一步地顯著改良能量與二氧化碳節約。

可使用合成配方作為可幫助鈣與鎂碳酸化反應的反應物，因此當使用低溫固化 (LTS) 製程時，可幫助碳酸化機制而進行鍵結。合成配方可包含一或多個結晶相及/或非

晶相。合成配方可為單一相或多相。包含至少一種合成配方的反應產物亦可包含其他不進行碳酸化的成份，在此代表惰性成分。一些惰性成分可進行水合化而不進行碳酸化。

可由單一副產物或副產物的混合物之原物料來形成合成配方，以活化該單一副產物或副產物的混合物作為有效水泥或黏著劑的方式來處理該單一副產物或副產物的混合物。示例性的副產物包含飛灰、灰渣、礦渣、石灰窯粉塵與再生水泥。合成配方亦可包含含量豐富的礦物，例如，頁岩、石灰石(CaCO_3)、石英(SiO_2)、砂、黏土、菱鎂土(MgCO_3)與白雲石($(\text{Mg},\text{Ca})\text{CO}_3$)，以及其他礦物。此外，可合併副產物與礦物兩者以產生合成配方。

因此，可由含量豐富且容易取得的礦物及/或副產物來合成該合成配方，使得該製程可在世界各地利用。

可透過各種反應途徑來合成該合成配方，例如固態反應、機械化學活化作用、水熱反應及前述反應的組合，例如，機械化學-水熱製程或機械化學-固態製程、水熱-固態製程與機械化學-水熱-固態製程，以及其他製程。

大部分包含至少一種合成配方的反應產物可與二氧化碳反應以啟動碳酸化反應，用於擷取並隔離碳，並製造產物。可將包含至少一種合成配方的反應產物併入多孔介質中，該多孔介質廣泛用於水熱液相燒結(HLPS)製程，亦稱為低溫燒結(LTS)。

由物質組成的觀點來說，由碳酸化合成配方所形成的

碳酸化產物可具有微結構，該微結構包含鍵結元素、鍵結介質、連通性與層次性，如揭示在美國臨時申請案第 61/449,659 號，現為美國專利申請案第 13/411,218 號中，為了達到在此詳盡描述的目的，全文以引用的方式併入本文中，因而產生可廣泛應用的碳酸化產物的嶄新性質。示例性的應用包含結構、絕緣性、耐火材料、生醫裝置的應用，以及其他可能的應用。

固態反應之合成

製造卜特蘭水泥所需的能量大多取決於碳酸鹽解離反應的較大吸熱反應 ($\Delta H=2.7\text{GJ/每噸 CaCO}_3$)。在卜特蘭水泥的製造中，需要具有過量鈣的化合物來形成水合鍵，其中 a:b 的比例大於 2:1 且 CaO 的含量通常至少 66%。通常，形成矽酸三鈣 (Ca_3SiO_5) 與矽酸二鈣 (Ca_2SiO_4) 化合物。

相較之下，合成配方非常適合進行碳酸化，該合成配方例如為，矽灰石 (CaSiO_3)，其中 a:b 的比例小於 2.5:1，且 CaO 的含量通常約為 48%。因此，在本發明中現在可能使用具有 a:b 的比例小於 2.5:1 的合成配方。由平衡熱力學與動力學來界定合成配方中 a:b 比例的最終範圍，且可超過在此所指定的範圍。舉例來說，可改變粒子尺寸與混合均勻性，以獲得大範圍具有不同 a:b 比例的合成配方，該合成配方可缺乏 M。

在一實例中，可使用氫氧化鈣與石英的混合物作為原

物料，用於合成本發明的合成配方。在此情況中，用於鍛燒的溫度非常低。例如，氫氧化鈣通常在 512°C 下分解，該溫度比碳酸鈣的分解溫度 (840°C) 低的多。應注意，由於已知粒子尺寸是透過動力學而非熱力學的機制來控制分解溫度，所以該些分解溫度都是近似的。此外，分解氫氧化鈣所需的吸熱能量是較低的。因此，較低的鍛燒溫度與減少的吸熱程度均能減少能量需求。且，金屬氫氧化物的分解將不會產生二氧化碳。儘管在製造金屬氫氧化物的製程中可能會產生能量與二氧化碳，但假如該金屬氫氧化物是由副產物所衍生出來，那麼為了製造包含此金屬氫氧化物副產物的合成配方，則不會消耗額外能量且不會產生二氧化碳。

此外，氫氧化的矽酸鈣可分解形成氧化物合成配方，該氧化物合成配方可被碳酸化，例如，矽灰石以及其他。此原物料可為硬矽鈣石 ($\text{Ca}_6\text{Si}_6\text{O}_{17}(\text{OH})_2$)，硬矽鈣石的 a : b 比例與矽灰石相同。當硬矽鈣石被加熱至約 800°C 並持續 1 小時，硬矽鈣石可熱分解成為矽灰石。此外，其他氫氧化的矽酸鈣相亦適合，例如，表 2A 所彙整的該些氫氧化的矽酸鈣相。

其他適合的原物料可為副產物，例如先前所述，該些副產物已經具有精細混合為各種矽酸鈣相的鈣與矽。再次說明，由礦物 (例如，石灰石與石英) 的混合物以及其他可能的混合物中選擇副產物可避免能量與二氧化碳的排放。

具有適當的 a:b 比例的合成配方對二氧化碳具有不同程度的反應性。舉例來說，矽灰石在比透輝石 ($\text{CaMgSi}_2\text{O}_6$) 實質更低的溫度下反應。因此，相信可藉由影響碳酸化前的相轉移，而使原物料對二氧化碳更具反應性。數種相轉移對於此是有利的，以下將說明該些相轉移的實例。

在第一實例中，將原物料加熱至不一致反應溫度，在該溫度下，原物料分解成具有兩個或多個化合物的合成配方，且其中一或多個該些化合物可被碳酸化。例如，在 CaO-SiO_2 系統中，可將 $\text{Ca}_3\text{Si}_2\text{O}_7$ 加熱至形成液體與 Ca_2SiO_4 。在約 1470°C 的包晶溫度 (peritectic temperature) 下， $\text{Ca}_3\text{Si}_2\text{O}_7$ 分熔形成液體與 Ca_2SiO_4 。

在第二實例中，原物料可包含可輕易去玻化 (devitrify) 成為充分碳酸化的合成配方的成分。例如，富含石灰的玻璃 (例如，具有 12 至 14% 的鈣含量) 可包含輕易去玻化的成分。更特定而言之，去玻化鋁矽酸鈣而形成矽灰石、鈣長石 ($\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$) 與磷石英 (SiO_2)。其他實例，高爐熔渣 ($\text{CaO} : \text{SiO}_2 : \text{Al}_2\text{O}_3$ 的重量比例約為 3 : 3 : 1) 可去玻化形成矽灰石與鈣長石。或者，將再生玻璃與富含 CaO 的材料 (例如，石灰礦渣 (LKD)) 混合，亦製造富含鈣的玻璃。藉由在水或其他淬火液中急速淬火該些成分，而粉末化該些成分，由於避免了研磨步驟 (降低電力的使用)，因而節約能源並降低二氧化碳排放。亦可藉由在水性溶液或水蒸氣中處理玻璃而影響去玻作用。

亦可使用其他熔融方法，例如，基於熔鹽溶劑的方法，

由礦物或副產物中結晶矽酸鈣。

機械化學方法之合成

可使用機械化學方法，例如，乾式機械化學方法，由包含諸如灰渣與石膏的原物料的混合物來合成用於進行碳酸化的合成配方。在另一實例中，可透過乾式機械化學反應使用氫氧化鈣、硫酸鈣與氫氧化鋁來製備基於硫酸鹽的合成配方。

機械化學方法通常涉及使用高能量球磨來加熱並破壞前驅物材料，同時亦使前驅物材料彼此緊密地接觸，而啟動不同前驅物材料間的化學反應。

使用機械化學方法來製造合成配方的優點在於避免與加熱至高溫相關的能量。反之，較少能量作為機械能。例如，透過固態反應方法需要大約 1 至 6 GJ/噸的熱能來形成合成配方，而機械化學製程僅需要約 0.2 至 0.5 GJ/噸的熱能來形成合成配方。該機械化學製程需要電力，可假設在一般發電廠中會產生二氧化碳，假設燃煤發電廠的轉換效率為 35%，則 3.6 GJ 的能量會轉換成 1 噸的二氧化碳。

機械化學方法可與水熱反應結合透過混成方法來製備多成分氧化物，例如，矽酸鈣。在此混成方法中，可機械化學反應氫氧化鈣與矽酸鹽並接著進行水熱化處理。在另一混成方法中，可結合溶液與機械化學，例如，氫氧磷灰石的機械化學-水熱合成。

水熱法的合成

水熱法可包含在高壓反應器中所執行的製程，在高壓反應器中於自發 (autogeneous) 蒸氣壓下，所有的前驅物材料與熱水一起提供。

許多充分且快速碳酸化的合成配方將包含羥基。在鈣-矽系統中，大量的水合相提供此性能。表 2A 彙整大範圍的鈣-矽氫氧化物合成配方，可經由低溫固化 (LTS) 製程合成並碳酸化該些合成配方。

水熱反應方法為一種製造包含具有羥基與較小粒子尺寸的合成配方的反應產物的較佳方法，而不需要使用固態或機械化學製程。例如，可藉由使用二氧化矽、氧化鈣與氫氧化鈉作為原物料，在 220°C 下進行水熱反應法 24 小時來合成硬矽鈣石 ($\text{Ca}_6\text{Si}_6\text{O}_{17}(\text{OH})_2$)。亦可透過水熱反應法由副產物，例如，碳化物渣，來製造合成配方，其中使用 220°C 的水熱反應溫度並進行 20 小時。例如，可能在 200°C 下以原物料的混合物進行硬矽鈣石合成配方的水熱合成，該原物料例如為，石英與石灰。由於諸如包含 CaO 的石灰礦渣可與包含高濃度游離二氧化矽的混合物反應，因此相信任何包含游離二氧化矽與石灰的副產物可轉換為硬矽鈣石合成配方。

可利用更複雜的相混合物來製備水合化合成配方。例如，可水熱處理 $\text{CaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{SiO}_2-\text{H}_2\text{O}$ 混合物，形成氫氧化鈣石 ($\text{Ca}(\text{OH})_2$)、六方水矽鈣石 ($\text{Ca}_6(\text{Si}_2\text{O}_7(\text{OH})_6)$)、硬矽

鈣石、白矽鈣石 ($\text{NaCa}_{16}\text{Si}_{23}\text{AlO}_{60}(\text{OH})_8 \cdot 64\text{H}_2\text{O}$)、11Å 雪矽鈣石 ($\text{Ca}_5\text{Si}_6(\text{O},\text{OH})_{18} \cdot 5\text{H}_2\text{O}$)、矽錳鈣石 ($(\text{Ca},\text{Mn}^{++})_{14}\text{Si}_{24}\text{O}_{58}(\text{OH})_8 \cdot 2(\text{H}_2\text{O})$)、石榴石類 ($\text{Ca}_3\text{Al}_2(\text{SiO}_4)_{3-x}(\text{OH})_{4x}$) 與矽酸鈣鋁水合物 (例如, $\text{CaAl}_2\text{Si}_6\text{O}_{16} \cdot 5\text{H}_2\text{O}$)。相信這些合成配方可在單一製程步驟中被碳酸化。

相信副產物可進行反應以水熱轉換為包含一或多個水合相的相群聚。例如, 石灰礦渣 (LKD) 可提供 CaO , 且飛灰可提供二氧化矽與鋁, 以進行水熱反應。鹼性氧氣爐 (BOF) 灰渣為富含鈣, 且比石灰礦渣 (LKD) 或水泥窯灰 (CKD) 含量更豐富。

微波-水熱法的合成

水熱反應在高溫下以水做為催化劑。水可直接吸收微波, 且使用微波可產生比傳統加熱更快的加熱速率。因此, 當微波幅射與水熱反應一起進行時, 通常可顯著提高水熱反應速率。

與水熱法類似, 微波-水熱法通常在高壓反應器中進行。在微波-水熱法中, 藉由微波加熱而非傳統加熱來加熱前驅物材料。微波加熱將微波能量原位轉換為熱能, 可促進期望的反應。微波加熱與傳統加熱不同, 傳統加熱是由容器外側透過傳導來加熱固體或液體。

例如, 當使用傳統加熱來水熱處理鹼性氧氣爐 (BOF) 灰渣時, 在維持 48 小時之後, 於 200°C 下合成出雪矽鈣

石合成配方為主要相。相較之下，在微波-水熱反應中，在相同溫度下於 3 個小時內合成出雪矽鈣石合成配方。且，相較傳統加熱，可提高鹼性氧氣爐 (BOF) 灰渣的壓縮強度。因此，當使用水熱法來水合化或碳酸化材料時，可一同使用微波-水熱法。

混成方法的合成

以上段落說明使用諸如固態與玻璃熔融法的製程以及諸如機械化學與水熱法的方法來製備合成配方。且，可混成任何兩種或多種以上該些方法來建構額外的方法。例如，可使用水熱法來製造水合物，該水合物接著以固態法轉換為反應性氧化物。反之，固態反應產物可藉由水熱處理轉變為水合物。對於任何水熱反應來說，假如鈣的來源為 CaCO_3 ，則需要在水熱處理之前將 CaCO_3 鍛燒。

矽酸鈣系統結合其他氧化物的化學平衡提供大範圍適合碳酸化的第二相，該其他氧化物例如為，氧化鋁、氧化鈉、氧化鎂與其他，大約有 300 種已知的天然形成的碳酸鹽，且甚至可衍生合成出更多碳酸鹽。表 3 為多個相的代表性抽樣，該些相傾向碳酸化形成且適用於 LTS 製程。

表 3 適合 LTS 製程的代表相

單矽酸鹽	雙矽酸鹽	環矽酸鹽	鏈狀矽酸	頁矽酸	網矽酸鹽
------	------	------	------	-----	------

類	類	類	鹽類	鹽類	類
矽酸美石 (Mg ₂ SiO ₄)	異極礦 (Zn ₄ (Si ₂ O ₇)(OH) ₂ ·H ₂ O)	矽酸鋇鈦礦 (BaTi(Si ₃ O ₉))	頑火輝石 (MgSiO ₃)	葉蛇紋石 (Mg ₃ Si ₂ O ₅ (OH) ₄)	鈣長石 (CaAl ₂ Si ₂ O ₈)
鐵矽酸鹽 (Fe ₂ SiO ₄)	紅簾石 (Ca ₂ (Al,Fe) ₃ O(SiO ₄)(Si ₂ O ₇)(OH))	堇青石 ((Mg,Fe) ₂ Al ₃ (Si ₅ AlO ₁₈))	透輝石 (CaMgSi ₂ O ₆)	輝沸石 (NaCa ₂ Al ₅ Si ₁₃ O ₃₆ ·17H ₂ O)	輝沸石 (NaCa ₂ Al ₅ Si ₁₃ O ₃₆ ·17H ₂ O)
鈣鐵榴石 (Ca ₃ Fe ₂ (SiO ₄) ₃)				滑石 (Mg ₃ Si ₄ O ₁₀ (OH) ₂)	

無論是以固態反應、水熱法、機械化學路徑或其他方法來活化，所有的合成配方可在 LTS 製程期間快速碳酸化。對於應最小化孔隙率以及最大化機械強度的應用來說，碳酸化後由於孔隙率縮小所造成的體積膨脹可被最大化。表 2B 彙整大範圍的無水氧化物合成配方以及碳酸化後該些合成配方的體積膨脹，其中發現體積範圍在 15 至 100% 之間。表 2A 彙整水合物合成配方，在碳酸化後該些水合物合成配方的體積膨脹範圍在小於 0 至 100%。較佳是，碳酸化後合成配方的體積膨脹近似於或大於一般所預期的矽灰石體積膨脹。然而，根據應用的性質需求，較低的體積膨脹是較適合的。

合成配方的粒子型態可控制將被碳酸化的生坯的粒子堆積密度。該些粒子可為，例如，球形粒子、針狀粒子或片狀粒子。通常，不期望合成配方在碳酸化後具有非常小的體積膨脹，這是因為無法產生顯著的孔隙率下降

與強度增強。例如，單獨碳酸化水合石灰礦渣(HLDK)可產生具有強度為高強度混凝土等級的產物(約 50 MPa，直徑為 1 英吋圓桶)，這是因為 HLKD 在開始碳酸化之前已經大部分或完全水合化，因此由碳酸化所造成的體積膨脹較小。相較之下，無法輕易在周圍環境下水合化的合成配方(例如，矽灰石)可增加約 50%或更多的體積。據此，該些高體積膨脹的合成配方表現出超過高強度混凝土材料 3 或更多倍的強度值(約 170MPa，直徑為 1 英吋圓桶)。

基於線性迴歸模型，矽酸鈣水合物(CSH)合成配方(假設所有的反應物被完全反應)在碳酸化後的體積膨脹可根據合成配方中的原子數目來估計。

體積膨脹 $= (86 - 4 * N_{Si} - 7.8 * N_o - 12 * N_{OH} - 97 * N_{H_2O})$
%，其中 N_{Si} =矽超過鈣的數目，且 N_o =氧原子超過鈣的數目， N_{OH} =OH 超過鈣的數目，以及 N_{H_2O} = H_2O 超過鈣的數目。應注意體積膨脹值的計算是假設不具有雜質原子。

由此計算，發現增加合成配方中的鈣數量可增加碳酸化後的體積膨脹，且經鍵結的水可大幅降低碳酸化後的體積膨脹。

可使用副產物做為原物料以藉由實現碳酸化後較大的體積增加來製造合成配方，該合成配方接著進行碳酸化而形成高強度產物。例如，藉由將副產物(例如，石灰礦渣)與其他原物料(例如，再生鈉-鈣-矽玻璃)反應，可使用來自石灰礦渣的游離鈣去玻化該玻璃並形成無水矽酸

鈣相，例如，矽灰石，該無水矽酸鈣相可成為比碳酸化在石灰礦渣中的水合化石灰更有效的黏著劑。如此是因為碳酸化矽灰石不對稱成為碳酸鈣與二氧化矽後的體積變化可產生相對於矽灰石的起始體積較大的體積增加，而水合化石灰表現較小體積改變。

碳酸化無水石灰可能導致大的體積膨脹，但在碳酸化之前必須避免與水的所有接觸，這對於大多的陶瓷形成操作來說是無法實施的。亦應注意的是為了經歷低溫固化(LTS)以製造具有優異性質的碳酸化產物，在多孔質體中合成配方所需的體積變化量可藉由起始多孔介質(亦表示為粉末壓實物、生坯、多孔質體等等)特性的重要作用來改變。諸如百分比孔隙率、孔洞尺寸分布、孔洞形狀、抗折強度(網間連結類型)的特性係為一些重要的考慮因素，可影響所需的體積變化量。

且，由於再結晶化可導致晶體以建構加強網狀結構的方式來生長，因此碳酸化後的零體積變化或負體積變化亦可製造具有良好性質的產物。

此外，亦可考量多孔介質的其他成分的特性。例如，假如多孔介質包含其他成分粒子，則可考量諸如粒子形狀、粒子尺寸、粒子尺寸分布、聚集程度以及其他的特性。

合成配方可為單相或各種相的混合物，可被碳酸化至相當程度，較佳是大於 30%的體積膨脹，且被快速地碳酸化，較佳是 10 天或更短。可控制許多變量來確認碳酸

化進行地如何，例如，陽離子的選擇以及多孔介質的特性。藉由控制該些變量，亦可控制碳酸化的程度，以確認體積膨脹的增加，因而控制是否可製造具有優異性質的碳酸化產物。

可藉由合併大範圍的原物料來合成該合成配方，該原物料的含鈣豐富，可在許多區域中發現該原物料且價格便宜。只要該混合物可活化產生合成配方，該合成配方可被碳酸化至相當程度，以形成具有優異性質的產物，則可以無限多種的方式來合併原物料，該原物料包含工業化學物、礦物與副產物。因此，可在世界各地以大型製程規模且有效節省成本的方式來製造單相產物。

實例 1

表 4 列出四個示例性反應產物 1A 至 1D，該些反應產物包含至少一種以固態反應所製造的合成配方。為了形成合成配方，將所列出數量的富含鈣原物料(若表中有出現)與所列出數量的富含矽原物料混合，將該混合原物料置於回熱爐(muffle furnace)中並在空氣氛圍以及 1200°C 下持續 4 個小時，且接著進行分析以確認在每個反應產物中所形成的新相。

接著，在研鉢中以手將反應產物 1A 至 1D 壓碎，且以 2 噸的壓力濕壓為直徑 1/2 英吋的小球。接著，在壓力為 20 psi 的二氧化碳氛圍以及 90°C 下，將該些小球碳酸化 20 個小時，同時以水進行部分飽和化，接著進行分析以

確認在碳酸化期間目前的相以及重量增加。

在每個實例中，碳酸化反應造成碳酸鈣相的形成並減少鈣相關相與矽相關相的數量，且每個實例在碳酸化期間產生可測量的重量增加。反應產物 1A 與 1B 產生最大的重量增加，反應產物 1A 與 1B 具有由富含鈣原物料與富含矽原物料的混合物與反應所形成的合成配方。

表 4

實例 編號	富含鈣 原物料	數量 (g)	富含矽 原物料	數 量 (g)	溫度 (°C)	時間 (小時)	所形成的相	碳酸化 期間的 重量增 加
1A	CaO	30g	C 類 飛灰	70g	1200	4 小時	矽酸鈣、 鈣黃長石、 變矽灰石、 鎂黃長石	~11%
1B	CaO	30g	F 類 飛灰	70g	1200	4 小時	鈣黃長石、 矽酸鈣	9.30%
1C	n/a	n/a	C 類 飛灰	100g	1200	4 小時	鈣黃長石、 透輝石	~0.25%
1D	n/a	n/a	F 類 飛灰	100g	1200	4 小時	矽灰石、 鈣黃長石	3.49%

實例 2

表 5 列出兩個示例性反應產物 2A 與 2B，包含至少一種由固態反應所製造的合成配方。為了形成合成配方，將所列出數量的富含鈣原物料(若表中有出現)與所列出數量的富含矽原物料以 1 莫耳鈣比 1 莫耳矽的目標比例混合，將該混合原物料置於回熱爐(muffle furnace)中並在空氣氛圍以及 1200°C 下持續 4 個小時，且接著進行分析以確認在每個反應產物中所形成的新相。

接著，在研鉢中以手將反應產物 2A 與 2B 壓碎，且以 2 噸的壓力濕壓為直徑 1/2 英吋的小球。接著，在壓力為 20 psi 的二氧化碳氛圍以及 90°C 下，將該些小球碳酸化 20 個小時，同時以水進行部分飽和化，接著進行分析以確認在碳酸化期間目前的相以及重量增加。

在每個實例中，碳酸化反應造成碳酸鈣相的形成並減少鈣相關相與矽相關相的數量，且每個實例在碳酸化期間產生可測量的重量增加。

表 5

實例 編號	富含鈣 原物料	數量 (g)	富含矽 原物料	數 量 (g)	溫度 (°C)	時間 (小時)	所形成的相	碳酸化 期間的 重量增 加
2A	CaCO ₃	100g	發煙二 氧化矽	60g	1200	4 小時	矽酸鈣與殘 留的二氧化	12.89%

							矽	
2B	CaO	56g	發煙二 氧化矽	60g	1200	4 小時	矽灰石	16.73%

實例 3

表 6 列出四個示例性反應產物 3A 至 3D，包含至少一種由固態反應所製造的合成配方。為了形成合成配方，將所列出數量的富含鈣原物料(若表中有出現)與所列出數量的富含矽原物料混合，將該混合原物料置於回熱爐 (muffle furnace) 中並在空氣氛圍以及 1200°C 下持續 4 個小時，且接著進行分析以確認在碳酸化期間目前的相以及重量增加。

接著，在研鉢中以研棒將反應產物 3A 至 3C 壓碎，且以 2 噸的壓力濕壓為直徑 1/2 英吋的小球。接著，在壓力為 20 psi 的二氧化碳氛圍以及 90°C 下，將該些小球碳酸化 20 個小時，同時以水進行部分飽和化，接著進行分析以確認在碳酸化期間目前的相以及重量增加。

在每個實例中，碳酸化反應造成碳酸鈣相的形成並減少鈣相關相與矽相關相的數量，且每個實例在碳酸化期間產生可量測的重量增加。

表 6

實例 編號	富含鈣 原物料	數量 (g)	富含矽 原物料	數 量	溫度 (°C)	時間 (小時)	所形成的相	碳酸化 期間的
----------	------------	-----------	------------	--------	------------	------------	-------	------------

				(g)				重量增加
3A	CaCO ₃	30g	C 類 飛灰	70g	1200	4 小時	鈣黃長石、 矽酸鈣	~5.25%
3B	CaCO ₃	43g	C 類 飛灰	57g	1200	4 小時	鈣黃長石、 矽酸鈣	~7.5%
3C	CaCO ₃	30g	F 類 飛灰	70g	1200	4 小時	鈣黃長石 (Ca ₂ Al(AlSiO ₇)+ Ca ₂ SiO ₄ 以及一 些其他矽酸 鹽	~9.3%
3D	CaCO ₃	43g	F 類 飛灰	57g	1200	4 小時	矽酸鈣、 鈣黃長石、 CaO	

實例 4

表 7 列出五個示例性反應產物 4A 至 4E，包含至少一種由固態反應所製造的合成配方。為了形成合成配方，將所列出數量的富含鈣原物料(若表中有出現)與所列出數量的富含矽原物料混合，將該混合原物料置於回熱爐(muffle furnace)中並在空氣氛圍以及 1200°C 下持續 4 個小時，且接著進行分析以確認在碳酸化期間目前的相以及重量增加。

接著，在研鉢中以研棒將反應產物 4A、4B 與 4D 壓碎，且以 2 噸的壓力濕壓為直徑 1/2 英吋的小球。接著，在壓力為 20 psi 的二氧化碳氛圍以及 90°C 下，將該些小球碳酸化 20 個小時，同時以水進行部分飽和化，接著進行分析以確認目前的相以及重量增加。

在每個實例中，碳酸化反應造成碳酸鈣相的形成並減少鈣相關相與矽相關相的數量，且每個實例在碳酸化期間產生可量測的重量增加。

表 7

實例 編號	富含鈣 原物料	數量 (g)	富含矽 原物料	數量 (g)	溫度 (°C)	時間 (小時)	所形成的 相	碳酸化 期間的 重量增 加
4A	碳酸化水 合化石灰 礦渣	20g	C 類 飛灰	80g	1200	4 小時	鈣黃長石	1.44%
4B	碳酸化水 合化石灰 礦渣	50g	C 類 飛灰	50g	1200	4 小時	鈣黃長石 、矽酸鈣	11.32%
4C	碳酸化水 合化石灰 礦渣	80g	C 類 飛灰	20g	1200	4 小時	CaO、 矽酸鈣、 矽酸鈉鈣	

4D	碳酸化水 合化石灰 礦渣	20g	F類 飛灰	80g	1200	4小時	CaO、 矽灰石	12.37%
4E	碳酸化水 合化石灰 礦渣	50g	F類 飛灰	50g	1200	4小時	鈣黃長石 、矽酸鈣	

實例 5

表 8 列出六個示例性反應產物 5A 至 5F，包含至少一種由固態反應所製造的合成配方。為了形成合成配方，將所列出數量的富含鈣原物料(若表中有出現)與所列出數量的富含矽原物料混合，將該混合原物料置於回熱爐(muffle furnace)中並在空氣氛圍以及 800°C 下持續 2 個小時，且接著進行分析以確認在碳酸化期間目前的相以及重量增加。

在每個實例中，預期碳酸化造成碳酸鈣相的形成並減少鈣相關相與矽相關相的數量，且產生可測量的重量增加。

表 8

實例 編號	富含鈣 原物料	數量 (g)	富含矽 原物料	數量 (g)	溫度 (°C)	時間 (小時)	所形成的相
5A	C類	20g	再生	80g	800	2小時	二氧化矽、玻

	飛灰		玻璃				玻璃、矽灰石、 鈣黃長石
5B	C類 飛灰	30g	再生 玻璃	70g	800	2小時	二氧化矽、玻 璃、矽灰石、 鈣黃長石
5C	CaCO ₃	20g	再生 玻璃	80g	800	2小時	二氧化矽、氧 化鈣、玻璃、 矽灰石、鈉- 鈣-矽氧化物
5D	CaCO ₃	30g	再生 玻璃	70g	800	2小時	二氧化矽、氧 化鈣、玻璃、 矽灰石、鈉- 鈣-矽氧化物
5E	碳酸化水 合化石灰 礦渣	20g	再生 玻璃	80g	800	2小時	二氧化矽、氧 化鈣、玻璃、 矽酸鈣
5F	碳酸化水 合化石灰 礦渣	20g	再生 玻璃	70g	800	2小時	二氧化矽、氧 化鈣、玻璃、 矽酸鈣

實例 6

表 9 列出五個示例性反應產物 6A 至 6E，包含至少一種由固態反應所製造的合成配方。為了形成合成配方，

將所列出數量的富含鈣原物料(若表中有出現)與所列出數量的富含矽原物料混合，將該混合原物料置於回熱爐(muffle furnace)中並在空氣氛圍以及 1100°C 下持續 2 個小時，且接著進行分析以確認在碳酸化期間目前的相以及重量增加。

在每個實例中，預期碳酸化造成碳酸鈣相的形成並減少鈣相關相與矽相關相的數量，且產生可測量的重量增加。

表 9

實例 編號	富含鈣 原物料	數量 (g)	富含矽 原物料	數量 (g)	溫度 (°C)	時間 (小時)	所形成的 相
6A	C 類 飛灰	20g	再生 玻璃	80g	1100	2 小時	玻璃、 矽灰石
6B	CaCO ₃	20g	再生 玻璃	80g	1100	2 小時	矽灰石、 氧化鈣、 玻璃
6C	CaCO ₃	30g	再生 玻璃	70g	1100	2 小時	矽灰石、 氧化鈣、 玻璃
6D	碳酸化水 合化石灰 礦渣	20g	再生 玻璃	80g	1100	2 小時	氧化鈣、 玻璃、矽 灰石

6E	碳酸化水 合化石灰 礦渣	30g	再生 玻璃	70g	1100	2 小時	氧化鈣、 玻璃、矽 灰石
----	--------------------	-----	----------	-----	------	------	--------------------

實例 7

表 10 列出三個示例性反應產物 7A 至 7C，包含至少一種由固態反應所製造的合成配方。為了形成合成配方，將所列出數量的富含鈣原物料(若表中有出現)與所列出數量的富含矽原物料混合，將該混合原物料置於回熱爐(muffle furnace)中並在空氣氛圍以及 1000°C 下持續 2 個小時，且接著進行分析以確認在碳酸化期間目前的相以及重量增加。反應性產物 7A、7B 與 7C 各自具有 a : b 的目標比例為 1 : 1、2 : 1 與 1 : 2。

在每個實例中，預期碳酸化造成碳酸鈣相的形成並減少鈣相關相與矽相關相的數量，且產生可測量的重量增加。

表 10

實例 編號	富含鈣 原物料	數量 (g)	富含矽 原物料	數量 (g)	溫度 (°C)	時間 (小時)	所形成的 相
7A	CaCO ₃	110g	頁岩 (~70%二 氧化矽)	100g	1000	2 小時	石英 + >95%石灰

7B	CaCO ₃	110g	頁岩 (~70%二 氧化矽)	50g	1000	2 小時	石英 + >95%石灰
7C	CaCO ₃	110g	頁岩 (~70%二 氧化矽)	200g	1000	2 小時	石英 + >95%石灰

實例 8

表 11 列出三個示例性反應產物 8A 至 8C，包含至少一種由固態反應所製造的合成配方。為了形成合成配方，將所列出數量的富含鈣原物料(若表中有出現)與所列出數量的富含矽原物料混合，將該混合原物料置於回熱爐(muffle furnace)中並在空氣氛圍以及 1100°C 下持續 2 個小時，且接著進行分析以確認在碳酸化期間目前的相以及重量增加。反應性產物 8A、8B 與 8C 各自具有 a:b 的目標比例為 1:1、2:1 與 1:2。

在每個實例中，預期碳酸化造成碳酸鈣相的形成並減少鈣相關相與矽相關相的數量，且產生可測量的重量增加。

表 11

實例 編號	富含鈣 原物料	數量 (g)	富含矽 原物料	數量 (g)	溫度 (°C)	時間 (小時)	所形成的 相
----------	------------	-----------	------------	-----------	------------	------------	-----------

8A	CaCO ₃	110g	頁岩 (~70%二 氧化矽)	100g	1100	2 小時	石英 + >95% 石灰
8B	CaCO ₃	110g	頁岩 (~70%二 氧化矽)	50g	1100	2 小時	石英 + >95% 石灰
8C	CaCO ₃	110g	頁岩 (~70%二 氧化矽)	200g	1100	2 小時	石英 + >95% 石灰

實例 9

表 12 列出三個示例性反應產物 9A 至 9C，包含至少一種由固態反應所製造的合成配方。為了形成合成配方，將所列出數量的富含鈣原物料(若表中有出現)與所列出數量的富含矽原物料混合，將該混合原物料置於回熱爐(muffle furnace)中並在空氣氛圍以及 1200°C 下持續 2 個小時，且接著進行分析以確認在碳酸化期間目前的相以及重量增加。反應性產物 9A、9B 與 9C 各自具有 a : b 的目標比例為 1 : 1、2 : 1 與 1 : 2。

在每個實例中，預期碳酸化造成碳酸鈣相的形成並減少鈣相關相與矽相關相的數量，且產生可測量的重量增加。

表 12

實例 編號	富含鈣 原物料	數量 (g)	富含矽 原物料	數量 (g)	溫度 (°C)	時間 (小時)	所形成的相
9A	CaCO ₃	110g	頁岩 (~70%二 氧化矽)	100g	1200	2 小時	矽灰石、 鈣黃長石、 鈣長石、 易變輝石、 氧化鈣
9B	CaCO ₃	110g	頁岩 (~70%二 氧化矽)	50g	1200	2 小時	氧化鈣、 矽灰石、 鈣黃長石
9C	CaCO ₃	110g	頁岩 (~70%二 氧化矽)	200g	1200	2 小時	二氧化矽、 矽灰石、 鈣長石、 鈣黃長石

實例 9

將 3.7 克具有平均尺寸為 5 μ m 的氫氧化鈣(Ca(OH)₂)與 3 克具有平均尺寸為 25 μ m 的石英混合在 36 毫升的 0.1M 氫氧化鉀(KOH)水溶液中，在室溫下磁攪拌 10 分鐘，形成乳白色懸浮液。將 a : b 的目標比例控制在 1.0，且水 / 固體的目標莫耳比例維持在 20。接著，將懸浮液置於 120 毫升的聚四氟乙烯(PTFE)容器中並以聚四氟乙烯(PTFE)蓋罩覆蓋該容器。將具有懸浮液的經覆蓋容器裝入 TEFLON[®] 四氟乙烯框架中，並在 Milestones UltraClave

微波反應器中於 30 bar 的氮氣下微波加熱至 225°C，且維持此條件 4 小時，接著，自然冷卻至室溫。在 75°C 下於空氣中乾燥所產生的反應產物 12 個小時。

以粉末 X 光繞射 (XRD) 與掃描式電子顯微鏡 (SEM) 來確認乾燥的反應產物的特徵。XRD 相分析顯示該反應產物包含純硬矽鈣石相的合成配方 (參閱第 1 圖)。SEM 圖顯示該合成配方具有直徑為 30 至 100 nm 且長度為 1 至 4 μm 的奈米纖維形狀 (參閱第 2 圖)。

實例 10

將 8.63 克具有平均尺寸為 5 μm 的氫氧化鈣 (Ca(OH)₂) 與 7.0 克具有平均尺寸為 25 μm 的石英混合在 14.8 毫升的去離子水中，在室溫下磁攪拌 10 分鐘，形成乳白色懸浮液。將 a : b 的目標比例控制在 1.0，且水 / 固體的目標莫耳比例維持在 3.53。接著，將懸浮液置於 120 毫升的聚四氟乙烯 (PTFE) 容器中並以聚四氟乙烯 (PTFE) 蓋罩覆蓋該容器。將具有懸浮液的經覆蓋容器裝入 TEFLON[®] 四氟乙烯框架中，並在 Milestones UltraClave 微波反應器中於 30 bar 的氮氣下微波加熱至 225°C，且維持此條件 5 小時，接著，自然冷卻至室溫。在 75°C 下於空氣中乾燥所產生的反應產物 12 個小時。

以粉末 X 光繞射 (XRD) 來確認乾燥的反應產物的特徵。XRD 相分析顯示該反應產物包含未反應的石英相與硬矽鈣石合成配方 (參閱第 3 圖)。

子。製備由 12 公斤經研磨的石灰石粒子、4.8 公斤經研磨的黏土粒子與 5.6 公斤經研磨的砂粒子所組成的乾燥混合物。接著加入水至乾燥混合物中直到獲得黏土狀的稠度，而製備出濕混合物。將濕混合物手工捲成直徑約 6 mm 的個別顆粒。

表 13：石灰石、黏土與砂的組成(重量%)

	石灰石	黏土	砂
%LOI	43.01	5.93	0.21
%SiO ₂	1.91	63.20	96.28
%Al ₂ O ₃	0.30	14.64	1.88
%TiO	0.01	0.71	0.03
%Fe ₂ O ₃	0.41	5.77	0.09
%Mn ₂ O ₃	0.07	0.04	0.01
%CaO	52.51	1.17	0.08
%MgO	1.87	2.31	0.05
%P ₂ O ₅	0.03	0.11	0.01
%Na ₂ O	0.01	-	-
%K ₂ O	1.91	-	-
%Cl	0.30	-	-

將顆粒進料至預加熱的加熱爐中，並維持在 1200°C 下 45 分鐘。接著，將顆粒由加熱爐移出並冷卻至環境溫度，並將顆粒球磨至 -320 mesh 的粉末狀。以 X 光繞射 (XRD) 來分析粉末的相含量。XRD 的結果列於表 14 中。

表 14：以 XRD 測量的 -320 mesh 粉末的相含量

礦物名稱	組成	分率
矽灰石	CaSiO_3	44.6
假矽灰石	$\text{Ca}_3\text{Si}_3\text{O}_9$	22.2
蜜蠟石	Ca-Mg-Si-Al-O 複合體	3.9
矽斜鈣石	Ca_2SiO_4	8.3
$\gamma\text{-C}_2\text{S}$	Ca_2SiO_4	0.9
鈣斜長石	$\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$	6.7
石英	SiO_2	5.1
石灰	CaO	6.1
赤鐵礦	Fe_3O_2	2.2

實例 13

以下列方式製備混凝土樣本，使用實例 12 所描述的合成配方作為鍵結元素。

製備由 16.67 公斤 0.375 英吋的粒料、16.67 公斤 0.75

英吋的粒料、30.6 公斤的圬工砂(masonry sand)與 16.77 公斤的合成配方所組成的乾燥混合物。亦製備由 4.9 公斤去離子水、55 公斤的阻垢劑(Accumer)與 8 克的 Whalen 膠所組成的液體溶液。接著，在標準水泥混合器中將乾燥混合物與液體溶液合併，製備出濕混合物。在水泥混合器中將濕混合物混合 5 分鐘。

藉由以濕混合物填充直徑 4 英吋、高 8 英吋的圓桶型鋼製模具來製備混凝土測試樣本。振動填充後的模具以獲得一致的整體材料密度。定期加入額外的濕混合物以確保完全填充該模具。將經填充的模具風乾 16 個小時，並在 90°C 下烘乾 24 小時，以製造多孔未固化的混凝土樣本。接著將直徑 4 英吋、高 8 英吋未固化的混凝土樣本由模具中移出，並在 90°C 下額外烘乾 48 小時。

接著，在高壓反應器中於 90°C 以及由二氧化碳與水蒸氣所組成的 20 psi 氛圍中，將該未固化的混凝土樣本反應 72 個小時，以達到硬化狀態。在 90°C 下將經硬化的混凝土樣本烘乾 48 小時。

根據 ASTM C39 來測試硬化的混凝土樣本的壓縮強度，根據 ASTM C469 來測試硬化的混凝土樣本的分裂拉伸強度，且根據 ASTM C1202 來測試硬化的混凝土樣本的氯滲透性。硬化的混凝土樣本的壓縮強度、分裂拉伸強度與氯滲透性列於表 15 中，並與卜特蘭水泥混凝土的一般數值進行比較。在所有情況中，此實例的硬化的混凝土樣本優於卜特蘭水泥混凝土。

表 15 強度與滲透性性質的比較

	測試方法	卜特蘭水泥 混凝土	實例 13 的樣本
壓縮強度	ASTM C39	~3,000 至 6,000 psi	10,020 psi
分裂拉伸 強度	ASTM C469	~300 至 700 psi	625 psi
氯滲透性	ASTM C1202	~3,000 Coulombs	335 Coulombs

可實施本發明的各種修飾例與變化例，而不會偏離本發明的精神或範疇，這對於在此技術領域中具有通常知識者是顯而易見的。因此，本發明涵蓋該些修飾例與變化例，其落入後附申請專利範圍的範疇與其等效例中。

【圖式簡單說明】

附圖說明本發明的實施例且與說明書內容一起解釋本發明原理，該些附圖提供本發明的進一步理解且併入說明書中成為說明書的一部份。在該些附圖中：

第 1 圖為實例 9 的反應產物的 X 光繞射 (XRD) 相分析；

第 2 圖為由實例 9 所獲得的樣本的掃描式電子顯微鏡 (SEM) 圖；

第 3 圖為實例 10 的反應產物的 X 光繞射 (XRD) 相分析；

第 4 圖為實例 11 的反應產物的 X 光繞射 (XRD) 相分析。

【主要元件符號說明】

無

公告本

七、申請專利範圍：

1. 一種用於製造一反應產物的方法，該反應產物包含至少一種充分碳酸化的合成配方，該方法包含：

提供一第一原物料，該第一原物料具有一第一濃度的 M；

提供一第二原物料，該第二原物料具有一第二濃度的 Me；以及

混合該第一原物料與該第二原物料以製造一反應產物，該反應產物包含至少一種合成配方，該合成配方的通式為 $M_aMe_bO_c$ 、 $M_aMe_b(OH)_d$ 、 $M_aMe_bO_c(OH)_d$ 或 $M_aMe_bO_c(OH)_d \cdot (H_2O)_e$ ，其中 M 包含至少一種可反應形成一碳酸鹽的鹼土元素，以及 Me 為至少一種在該碳酸化反應期間可形成一氧化物的以下元素：矽、鈦、鋁、磷、鈮、鎢、鉬、鎳、錳、鋳、鋅、銅、鈳、鈷、鉛、鐵、銻、砷、硫、鈉、鉀、硼與鈹，其中 a : b 的比例介於 0.167 : 1 至 2.5 : 1 之間，其中 c 為 3 或更大，其中 d 為 1 或更大，其中 e 為 0 或更大，其中該至少一種合成配方能夠經歷一碳酸化反應，且其中該至少一種合成配方能夠在該碳酸化反應期間經歷體積變化。

2. 如請求項 1 所述之方法，其中該至少一種合成配方於該碳酸化反應期間經歷體積膨脹。

3. 如請求項 1 所述之方法，其中該鹼土元素為鈣。
4. 如請求項 1 所述之方法，其中該鹼土元素為鎂。
5. 如請求項 1 所述之方法，其中 Me 包含矽。
6. 如請求項 1 所述之方法，其中該第一原物料為一富含鈣的礦物，該富含鈣的礦物選自由以下礦物所組成的群組中：文石 (Aragonite)、方解石 (Calcite)、白雲石 (Dolomite)、石膏 (Gypsum)、石灰泥 (Marl)、亞氯酸鹽 (Chlorites)、硫酸鹽 (Sulfates) 與石灰石 (Limestone)。
7. 如請求項 1 所述之方法，其中該第一原物料為一富含鎂的礦物。
8. 如請求項 7 所述之方法，其中該富含鎂的礦物為菱鎂土 (Magnesite)。
9. 如請求項 7 所述之方法，其中該富含鎂的礦物為滑石 (Talc)。
10. 如請求項 1 所述之方法，其中該第二原物料為一富含矽的礦物，該富含矽的礦物選自由以下礦物所組成的群組中：矽酸鹽 (Silicate)、沸石 (Zeolite)、頁岩 (Shale)、

板岩 (Slate)、黏土 (Clay)、泥板岩 (Argillite)、砂岩 (Sandstone)、火山礫岩 (Conglomerate)、玄武岩 (Basalt)、正長石 (Feldspar)、雲母 (Mica)、花崗岩 (Granite)、花崗閃長岩 (Granodiorite)、閃長岩 (Diorite)、燧石岩 (Chert)、砂 (Sand) 與非晶形矽酸鹽 (Amorphous Silicate)。

11. 如請求項 1 所述之方法，其中該第一原物料為一富含鈣的副產物，該富含鈣的副產物選自由以下副產物所組成的群組中：礦渣 (slag)、再生水泥 (recycled cement)、石灰礦渣 (LKD)、水泥窯灰 (CKD)、輕質碳酸鈣、再生紙、排煙脫硫 (FGD) 之硫酸鈣、磷石膏 (Phosphogypsum) 與富含矽的生物質。

12. 如請求項 1 所述之方法，其中該第二原物料為一富含矽的副產物，該富含矽的副產物選自由以下副產物所組成的群組中：粉煤灰 (flyash)、焚化爐粉塵 (incinerator dust)、玻璃纖維碎片 (fiberglass cullet)、消費者玻璃、尾礦 (mine tailings)、富含矽的生物質、稻殼與赤泥。

13. 一種使用由請求項 1 之方法所製的一反應產物來製造一複合材料的方法，該製造一複合材料的方法包含：

將包含水的一液態溶劑導入一實心體的孔洞中，該實心體包含由請求項 1 之方法所製的該反應產物；以及

將包含 CO₂ 的一氣態反應物導入該實心體的該孔洞中，因此該至少一種合成配方中的粒子可轉變為鍵結元素。

14. 如請求項 13 所述之方法，該至少一種合成配方於該碳酸化反應期間經歷體積膨脹。

15. 如請求項 13 所述之方法，其中 M 包含一鹼土元素。

16. 如請求項 13 所述之方法，其中 Me 可選自由以下元素所組成的群組中：矽、鈦、鋁、磷、鈮、鎢、鉬、鎳、錳、銻、銻、銅、鈳、鈷、鉛、鐵、銻、砷、硫、鈉、鉀、硼與鉍。

17. 如請求項 13 所述之方法，其中該第一原物料為一富含鈣的礦物，該富含鈣的礦物選自由以下礦物所組成的群組中：文石 (Aragonite)、方解石 (Calcite)、白雲石 (Dolomite)、石膏 (Gypsum)、石灰泥 (Marl)、亞氯酸鹽 (Chlorites)、硫酸鹽 (Sulfates) 與石灰石 (Limestone)。

18. 如請求項 13 所述之方法，其中該第二原物料為一富含矽的礦物，該富含矽的礦物選自由以下礦物所組成的群組中：矽酸鹽 (Silicate)、沸石 (Zeolite)、頁岩 (Shale)、板岩 (Slate)、黏土 (Clay)、泥板岩 (Argillite)、砂岩

(Sandstone)、火山礫岩 (Conglomerate)、玄武岩 (Basalt)、正長石 (Feldspar)、雲母 (Mica)、花崗岩 (Granite)、花崗閃長岩 (Granodiorite)、閃長岩 (Diorite)、燧石岩 (Chert)、砂 (Sand) 與非晶形矽酸鹽 (Amorphous Silicate)。

19. 如請求項 13 所述之方法，其中該鍵結元素包含：

一核心；

一富含二氧化矽的第一層，至少部分覆蓋該核心的周圍部份；以及

一富含碳酸鈣及/或碳酸鎂的第二層，至少部分覆蓋該第一層的周圍部份。