



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2023-0058414
(43) 공개일자 2023년05월03일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
B01J 20/28 (2006.01) B01D 53/14 (2006.01)
B01J 20/10 (2006.01) B01J 20/30 (2006.01)
C01B 33/158 (2006.01)
(52) CPC특허분류
B01J 20/28011 (2013.01)
B01D 53/1475 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2023-7007926
(22) 출원일자(국제) 2021년08월10일
심사청구일자 없음
(85) 번역문제출일자 2023년03월06일
(86) 국제출원번호 PCT/AU2021/050878
(87) 국제공개번호 WO 2022/032338
국제공개일자 2022년02월17일
(30) 우선권주장
2020902820 2020년08월10일 오스트레일리아(AU)

(71) 출원인
커먼웰쓰 사이언티픽 앤 인더스트리얼 리서치 오
거니제이션
오스트레일리아, 2601, 오스트레일리안 캐피탈 테
리토리, 액톤, 클루니즈 로스 스트리트
(72) 발명자
콘스타스 크리스티나
오스트레일리아, 오스트레일리안 캐피탈 테리토리
2601, 액톤, 클루니즈 로스 스트리트, 씨/- 커먼
웰쓰 사이언티픽 앤 인더스트리얼 리서치 오거니
제이션
마우어데브 조지
오스트레일리아, 오스트레일리안 캐피탈 테리토리
2601, 액톤, 클루니즈 로스 스트리트, 씨/- 커먼
웰쓰 사이언티픽 앤 인더스트리얼 리서치 오거니
제이션
왕 정동
오스트레일리아, 오스트레일리안 캐피탈 테리토리
2601, 액톤, 클루니즈 로스 스트리트, 씨/- 커먼
웰쓰 사이언티픽 앤 인더스트리얼 리서치 오거니
제이션
(74) 대리인
허용록

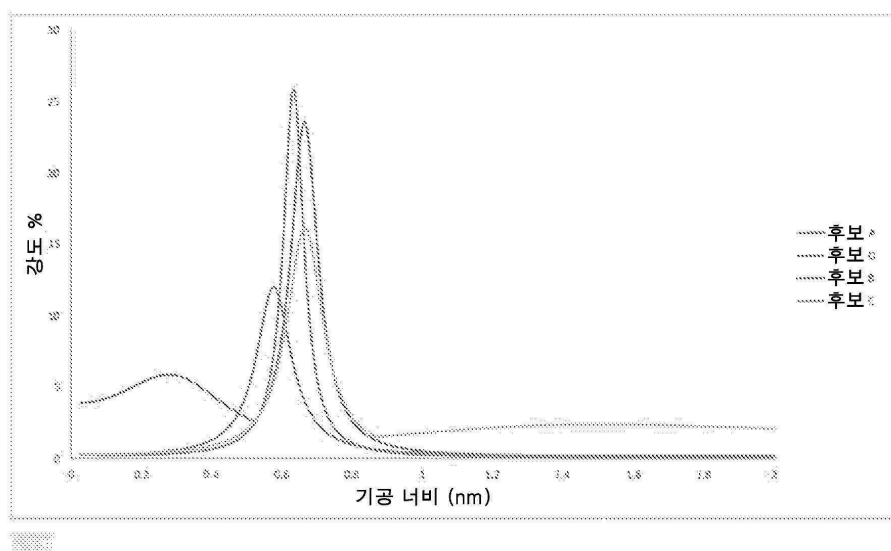
전체 청구항 수 : 총 103 항

(54) 발명의 명칭 미소기공 에어로겔

(57) 요약

본 개시내용은 일반적으로 미소기공 에어로겔, 미소기공 에어로겔을 제조하기 위한 공정, 및 미소기공 에어로겔의 적용에 관한 것이다. 본 개시내용은 또한 일반적으로 가스 스트림 또는 대기로부터 이산화탄소를 포집하기 위한 장치에 관한 것이며, 장치는 이산화탄소를 선택적으로 흡착 및 탈착시키기 위한 미소기공 에어로겔을 포함한다.

대표도 - 도1a



(52) CPC특허분류

B01J 20/103 (2013.01)

B01J 20/28047 (2013.01)

B01J 20/2808 (2013.01)

B01J 20/3071 (2013.01)

B01J 20/3078 (2013.01)

B01J 20/3085 (2013.01)

C01B 33/1585 (2013.01)

B01D 2257/504 (2013.01)

Y02C 20/40 (2020.08)

명세서

청구범위

청구항 1

이산화탄소(CO₂) 포집을 위한 실리카-기반 미소공성 에어로겔로서, 상기 미소공성 에어로겔은 복수의 기공을 포함하고, 적어도 50%의 기공은 약 2 nm 미만의 직경을 갖는, 미소공성 에어로겔.

청구항 2

제1항에 있어서, 약 10 부피% 미만의 CO₂ 농도를 갖는 환경에서의 공기로부터 CO₂를 흡착하는, 미소공성 에어로겔.

청구항 3

제1항 또는 제2항에 있어서, 약 2 부피% 미만의 CO₂ 농도를 갖는 폐쇄된 환경에서의 공기로부터 CO₂를 흡착하는, 미소공성 에어로겔.

청구항 4

제1항 내지 제3항 중 어느 한 항에 있어서, 약 0.04 부피%의 CO₂ 농도를 갖는 환경에서의 공기로부터 CO₂를 흡착하는, 미소공성 에어로겔.

청구항 5

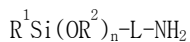
제4항에 있어서, 에어로겔의 CO₂ 흡착은 적어도 0.47 mmol/g인, 미소공성 에어로겔.

청구항 6

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서, 적어도 하나의 아미노 치환된 실란, 적어도 하나의 실리케이트, 및 선택적으로 적어도 하나의 알킬 치환된 실란의 반응 생성물을 포함하는, 미소공성 에어로겔.

청구항 7

제6항에 있어서, 아미노 치환된 실란은 화학식 1에 따르며:



화학식 1

상기 식에서,

R¹은 C₁₋₆알킬이거나, 부재하고;

R²는 C₁₋₆알킬이고;

L은 규소와 질소 원자 사이의 -C₁₋₆알킬-연결기이고;

n은 2 또는 3인, 미소공성 에어로겔.

청구항 8

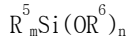
제7항에 있어서, 아미노 치환된 실란은 적어도 약 40 mol%의 로딩(loading)%를 갖는, 미소공성 에어로겔.

청구항 9

제6항 내지 제8항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란은 약 60 mol% 미만의 로딩%를 갖는, 미소공성 에어로겔.

청구항 10

제6항에 있어서, 알킬 치환된 실란은 화학식 2에 따르며:



화학식 2

상기 식에서,

R^5 및 R^6 은 각각 독립적으로 C_{1-6} 알킬로부터 선택되고;

m은 1이고, n은 3이거나, m 및 n은 각각 2인, 미소공성 에어로겔.

청구항 11

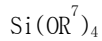
제6항 내지 제10항 중 어느 한 항에 있어서, 알킬 치환된 실란은 적어도 약 10 mol%의 로딩%를 갖는, 미소공성 에어로겔.

청구항 12

제6항 내지 제11항 중 어느 한 항에 있어서, 알킬 치환된 실란은 약 40 mol% 미만의 로딩%를 갖는, 미소공성 에어로겔.

청구항 13

제6항에 있어서, 화학식 3에 따른 적어도 하나의 실리케이트의 반응 생성물을 추가로 포함하며:



화학식 3

상기 식에서,

R^7 은 C_{1-6} 알킬인, 미소공성 에어로겔.

청구항 14

제6항 내지 제13항 중 어느 한 항에 있어서, 실리케이트는 적어도 약 20 mol%의 로딩%를 갖는, 미소공성 에어로겔.

청구항 15

제6항 내지 제14항 중 어느 한 항에 있어서, 실리케이트는 약 40 mol% 미만의 로딩%를 갖는, 미소공성 에어로겔.

청구항 16

제6항 내지 제15항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 실란기의 함량은 이산화탄소(CO_2) 포집을 촉진하기 위한 유리 아민기를 제공하기에 유효하며, 유리 아민 함량은 약 60 mol% 미만인, 미소공성 에어로겔.

청구항 17

제16항에 있어서, 아미노 치환된 실란은 약 40 내지 약 60 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필 (디에톡시) 메틸 실란인, 미소공성 에어로겔.

청구항 18

제16항에 있어서, 아미노 치환된 실란은 약 40 내지 약 60 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필 (트리에톡시) 실란인, 미소공성 에어로겔.

청구항 19

제1항 내지 제18항 중 어느 한 항에 있어서, 에어로겔의 밀도는 약 0.02 g/cm^3 내지 약 0.6 g/cm^3 범위인, 미소공성 에어로겔.

청구항 20

제1항 내지 제19항 중 어느 한 항에 있어서, 에어로겔의 밀도는 약 0.2 g/cm^3 내지 약 0.6 g/cm^3 범위인, 미소공성 에어로겔.

청구항 21

제1항 내지 제20항 중 어느 한 항에 있어서, 입자, 분말, 비드, 과립, 시트/층, 캐스트 블록, 원기둥, 디스크, 다공성 막, 또는 모놀리스의 형태인, 미소공성 에어로겔.

청구항 22

제1항 내지 제21항 중 어느 한 항에 있어서, 복수의 입자, 분말, 펠릿, 비드, 과립, 코팅, 필름, 또는 시트/층인, 미소공성 에어로겔.

청구항 23

제1항 내지 제22항 중 어느 한 항에 있어서, 자가 지지형 에어로겔인, 미소공성 에어로겔.

청구항 24

제1항 내지 제21항 중 어느 한 항에 있어서, 기재 상에 코팅 조성물 또는 필름으로서 적용되는, 미소공성 에어로겔.

청구항 25

제1항 내지 제24항 중 어느 한 항에 있어서, 약 $0.1 \text{ m}^2/\text{g}$ 내지 약 $500 \text{ m}^2/\text{g}$ 범위의 표면적을 갖는, 미소공성 에어로겔.

청구항 26

제1항 내지 제25항 중 어느 한 항에 있어서, 약 $2 \text{ m}^2/\text{g}$ 내지 약 $200 \text{ m}^2/\text{g}$ 범위의 표면적을 갖는, 미소공성 에어로겔.

청구항 27

제1항 내지 제26항 중 어느 한 항에 있어서, 약 0.1 nm 내지 약 2 nm 범위의 기공 크기를 갖는, 미소공성 에어로겔.

청구항 28

제1항 내지 제27항 중 어느 한 항에 있어서, 완충액, 결합제, 선택적으로 금속 유기 골격체(MOF), 또는 나노입자로부터 선택되는 하나 이상의 첨가제를 포함하는, 미소공성 에어로겔.

청구항 29

제1항 내지 제28항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 실란기의 함량은 이산화탄소(CO_2) 포집을 촉진하기 위한 유리 아민기를 제공하기에 유효하며, 유리 아민 함량은 약 50 mol% 미만인, 미소공성 에어로겔.

청구항 30

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(디에톡시)메틸실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시메틸실란이고, 실리케이트는 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 31

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(트리에톡시)실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시메틸실란이고, 실리케이트는 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 32

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(디에톡시)메틸실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시메틸실란이고, 실리케이트는 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 33

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(트리에톡시)실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시메틸실란이고, 실리케이트는 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 34

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란 및 알킬 치환된 실란의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(디에톡시)메틸실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 60 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시메틸실란인, 미소공성 에어로겔.

청구항 35

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란 및 알킬 치환된 실란의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(트리에톡시)실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 60 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시메틸실란인, 미소공성 에어로겔.

청구항 36

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 60 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(트리에톡시)실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시메틸실란이고, 실리케이트는 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 37

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(디에톡시)메틸실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시(에틸)실란이고, 실리케이트는 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 38

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(트리에톡시)실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시(에틸)실란이고, 실리케이트는 약 20 mol%의 로딩%를 갖는

테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 39

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(디에톡시)메틸실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 디메틸디에톡시실란이고, 실리케이트는 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 40

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(디에톡시)메틸실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시메틸실란과 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 디메틸디에톡시실란의 혼합물이고, 실리케이트는 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 41

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 60 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(디에톡시)메틸실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 10 mol%의 로딩%를 갖는 디메틸디에톡시실란이고, 실리케이트는 약 30 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 42

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(디에톡시)메틸실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 30 mol%의 로딩%를 갖는 디메틸디에톡시실란이고, 실리케이트는 약 30 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 43

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(트리에톡시)실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시메틸실란과 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 디메틸디에톡시실란의 혼합물이고, 실리케이트는 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 44

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(디에톡시)메틸실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시메틸실란과 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시(에틸)실란의 혼합물이고, 실리케이트는 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 45

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 60 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(디에톡시)메틸실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시메틸실란이고, 실리케이트는 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 46

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 60 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(트리에톡시)실란이고, 알킬

치환된 실란은 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시메틸실란이고, 실리케이트는 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 47

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 60 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(디에톡시)메틸실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 10 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시메틸실란과 약 10 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시(에틸)실란의 혼합물이고, 실리케이트는 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 48

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 50 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(디에톡시)메틸실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 15 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시메틸실란과 약 15 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시(에틸)실란의 혼합물이고, 실리케이트는 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 49

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 50 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(디에톡시)메틸실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 25 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시메틸실란이고, 실리케이트는 약 25 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 50

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 60 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(디에톡시)메틸실란이고, 실리케이트는 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 51

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 60 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(디에톡시)메틸실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시(에틸)실란이고, 실리케이트는 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트인, 미소공성 에어로겔.

청구항 52

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하며, 아미노 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필(디에톡시)메틸실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시메틸실란 및 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시(에틸)실란인, 미소공성 에어로겔.

청구항 53

제1항 내지 제52항 중 어느 한 항에 있어서, 반응 생성물은 원-포트 합성(one-pot synthesis)을 통해 제조되는, 미소공성 에어로겔.

청구항 54

제1항 내지 제53항 중 어느 한 항에 있어서, 에어로겔은 복합체의 형태이고, 상기 복합체는 하나 이상의 첨가제 및 선택적으로 윤활제를 추가로 포함하는, 미소공성 에어로겔.

청구항 55

제55항에 있어서, 하나 이상의 첨가제는 결합제, 선택적으로 금속 유기 골격체(MOF), 및 나노입자로부터 선택되

는, 복합재.

청구항 56

제55항 또는 제56항에 있어서, 첨가제는 에어로겔의 총 중량을 기준으로 약 5 내지 약 35 wt.%의 양으로 존재하는, 복합재.

청구항 57

제55항 내지 제57항 중 어느 한 항에 있어서, 펠릿, 비드, 시트, 또는 과립 형태의 자가 지지형인, 복합재.

청구항 58

제55항 내지 제57항 중 어느 한 항에 있어서, 기재 상에 코팅 조성물, 페이스트, 또는 필름으로서 적용되는, 복합재.

청구항 59

에어로겔 복합재로서,

- (i) 제1항 내지 제52항 중 어느 한 항에 따른 아미노 치환된 실란, 실리케이트, 및 선택적으로 알킬 치환된 실란의 반응 생성물을 포함하는 미소공성 에어로겔 또는 이의 조합;
- (ii) 약 5 내지 약 35 wt.%의 로딩%를 갖는 하나 이상의 첨가제;
- (iii) 선택적으로 윤활제; 및
- (iv) 선택적으로 용매로 구성된, 에어로겔 복합재.

청구항 60

제60항에 있어서, 하나 이상의 첨가제는 결합제, 선택적으로 금속 유기 골격체(MOF), 및 나노입자로부터 선택되는, 에어로겔 복합재.

청구항 61

제61항에 있어서, 결합제는 셀룰로스-기반 중합체, 실란-기반 중합체, 셀룰로스-실록산-기반 중합체, 폴리글리콜-기반 중합체, 폴리비닐 피롤리돈, 폴리비닐 알코올, 폴리에틸렌 이민, 벤토나이트, 흑연, 또는 이의 조합으로부터 선택되는, 에어로겔 복합재.

청구항 62

제60항 내지 제62항 중 어느 한 항에 있어서, 용매는 물, 비수성 용매, 또는 이의 조합인, 에어로겔 복합재.

청구항 63

이산화탄소(CO₂) 포집을 위한 실리카-기반 미소기공 에어로겔의 제조 공정으로서, 미소기공 에어로겔은 복수의 기공을 포함하고, 적어도 50%의 기공은 약 2 nm 미만의 직경을 가지며,

- (i)(a) 적어도 하나의 아미노 치환된 실란, 적어도 하나의 실리케이트, 및 선택적으로 적어도 하나의 알킬 치환된 실란을 포함하는 수용액, 선택적으로 완충액, 선택적으로 하나 이상의 첨가제, 및 용매 시스템을 혼합하여 습윤 겔 매트릭스를 형성하는 단계; 및
 - (ii) 습윤 겔 매트릭스를 건조하여 건조된 실리카-기반 에어로겔을 제공하는 단계를 포함하고,
- 단, 습윤 겔 매트릭스를 건조하는 단계는 초임계 CO₂를 수반하지 않는, 공정.

청구항 64

제64항에 있어서, 단계 (i)은 단계 (i)(b) 습윤 겔 매트릭스를 행구는 단계를 추가로 포함하는, 공정.

청구항 65

제64항 또는 제65항에 있어서, 상기 공정은 졸 겔 공정이고, 단계 (ii)는,

(a1) 선택적으로 습윤 겔 매트릭스를 가열하여 겔을 수득하는 단계; 및

(a2) 겔을 용매 증발 및/또는 열 처리에 의해 건조하여 건조된 실리카-기반 에어로겔을 제공하는 단계를 포함하는, 공정.

청구항 66

제64항 또는 제65항에 있어서, 단계 (ii)는,

(b1) 습윤 겔 매트릭스가 기재에 적용되어 기재를 코팅하는 습윤 겔 필름을 형성하는 단계; 및

(b2) 습윤 겔 필름을 용매 증발 및/또는 열 처리에 의해 건조하여 건조된 실리카-기반 코팅된 기재를 제공하는 단계를 추가로 포함하는, 공정.

청구항 67

제64항 내지 제67항 중 어느 한 항에 있어서, 건조 단계 (ii)는 진공 건조 또는 동결 건조인, 공정.

청구항 68

제64항 내지 제68항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란은 제7항에 정의된 화학식 1의 것인, 공정.

청구항 69

제64항 내지 제69항 중 어느 한 항에 있어서, 알킬 치환된 실란은 제10항에 정의된 화학식 2의 것인, 공정.

청구항 70

제64항 내지 제70항 중 어느 한 항에 있어서, 실리케이트는 제13항에 따라 정의된 화학식 3의 것인, 공정.

청구항 71

제68항 내지 제70항 중 어느 한 항에 있어서, 다음 단계에 의해 에어로겔 복합재를 제조하는 단계를 추가로 포함하는, 공정:

(c1) 제1항 내지 제52항 중 어느 한 항에 따른 에어로겔 또는 이의 조합, 하나 이상의 첨가제, 및 선택적으로 윤활제로 구성된 혼합물을 펠릿으로 압축하며, 첨가제는 약 5 내지 약 35 wt.%의 로딩%를 갖는 단계; 또는

(c2) 제1항 내지 제52항 중 어느 한 항에 따른 에어로겔 또는 이의 조합, 하나 이상의 첨가제, 및 선택적으로 윤활제로 구성된 혼합물을 액체 압출하여 점성질 페이스트를 제공하며, 첨가제는 약 5 내지 약 35 wt.%의 로딩%를 갖는 단계.

청구항 72

제64항 내지 제71항 중 어느 한 항에 있어서, 하나 이상의 첨가제는 완충액, 결합제, 선택적으로 금속 유기 골격체(MOF), 및 나노입자로부터 선택되는, 공정.

청구항 73

제64항 내지 제72항 중 어느 한 항에 있어서, 에어로겔 또는 복합재는 복수의 입자, 분말, 펠릿, 비드, 파립, 코팅, 필름, 또는 시트/층으로서 제공되는, 공정.

청구항 74

제64항 내지 제66항 및 제68항 내지 제73항 중 어느 한 항에 있어서, 에어로겔 또는 복합재는 자가 지지형 실리카-기반 에어로겔 또는 복합체인, 공정.

청구항 75

제64항 내지 제74항 중 어느 한 항에 있어서, 용매는 물, 비수성 용매, 또는 이의 조합인, 공정.

청구항 76

제64항 내지 제75항 중 어느 한 항에 있어서, 단계 (iii) 활성화 단계를 추가로 포함하는, 공정.

청구항 77

제64항 내지 제76항 중 어느 한 항에 있어서, 아미노 치환된 실란의 양은 총 에어로겔을 기준으로 약 10% 내지 약 80% 범위인, 공정.

청구항 78

제64항 내지 제77항 중 어느 한 항에 있어서, 알킬 치환된 실란의 양은 총 에어로겔을 기준으로 약 10% 내지 약 80% 범위인, 공정.

청구항 79

제64항 내지 제78항 중 어느 한 항에 있어서, 실리케이트의 양은 총 에어로겔을 기준으로 약 10% 내지 약 50% 범위인, 공정.

청구항 80

제64항 내지 제79항 중 어느 한 항에 따른 공정에 의해 제조되는, 이산화탄소(CO_2)를 위한 실리카-기반 미소기공 에어로겔로서, 미소기공 에어로겔은 복수의 기공을 포함하고, 적어도 50%의 기공은 약 2 nm 미만의 직경을 갖는, 미소기공 에어로겔.

청구항 81

제30항 내지 제52항 중 어느 한 항에 따른 반응 생성물을 포함하고, 제64항 내지 제79항 중 어느 한 항에 따른 공정에 의해 제조되는, 이산화탄소(CO_2) 포집을 위한 실리카-기반 미소기공 에어로겔로서, 미소기공 에어로겔은 복수의 기공을 포함하고, 적어도 50%의 기공은 약 2 nm 미만의 직경을 갖는, 미소기공 에어로겔.

청구항 82

CO_2 를 함유하는 가스 스트림 또는 대기로부터 이산화탄소(CO_2)를 포집하기 위한 공정으로서,

가스 스트림 또는 대기를 가스 스트림 또는 대기로부터 적어도 일부 CO_2 를 포집하기 위한 에어로겔과 접촉시키는 단계를 포함하며,

에어로겔은 제1항 내지 제52항 중 어느 한 항에 따르거나, 제64항 내지 제79항 중 어느 한 항에 따른 공정에 의해 제조되는 에어로겔인, 공정.

청구항 83

제82항에 있어서, 가스 스트림 또는 대기는 약 150,000 ppm 미만의 CO_2 농도를 갖는, 공정.

청구항 84

제82항 또는 제83항에 있어서, 가스 스트림 또는 대기는 약 3,000 ppm 내지 약 150,000 ppm 범위이고, 상기 공정은 외부 동력 발전소(DACex)에서의 직접적 공기 포집인, 공정.

청구항 85

제82항 내지 제84항 중 어느 한 항에 있어서, 가스 스트림 또는 대기는 약 7,000 ppm 미만의 CO_2 농도를 갖는, 공정.

청구항 86

제82항 내지 제85항 중 어느 한 항에 있어서, 가스 스트림 또는 대기는 약 5,000 ppm 미만의 CO_2 농도를 갖는, 공정.

청구항 87

제82항 내지 제86항 중 어느 한 항에 있어서, 가스 스트림 또는 대기는 약 4,000 ppm 내지 약 5,000 ppm 범위의 CO₂ 농도를 갖고, 상기 공정은 마스크 또는 개인용 보호 장비(DACp)에서 날숨의 직접적 공기 포집(DAC)인, 공정.

청구항 88

제82항 내지 제87항 중 어느 한 항에 있어서, 가스 스트림 또는 대기는 약 2,000 ppm 미만의 CO₂ 농도를 갖고, 상기 공정은 실내의 밀폐된 환경(DACi)에서의 직접적 공기 포집(DAC)인, 공정.

청구항 89

제82항 내지 제88항 중 어느 한 항에 있어서, 가스 스트림 또는 대기는 주위 공기인, 공정.

청구항 90

제82항 내지 제89항 중 어느 한 항에 있어서, 가스 스트림 또는 대기는 약 500 ppm 미만이고, 상기 공정은 직접적 공기 포집(DAC)인, 공정.

청구항 91

제82항 내지 제90항 중 어느 한 항에 있어서, 가스 스트림 또는 대기를 에어로겔과 접촉시키는 단계는 가스 스트림 또는 대기를 상기 에어로겔을 포함하는 층을 통해 통과시키는 단계를 포함하는, 공정.

청구항 92

제82항 내지 제91항 중 어느 한 항에 있어서, 적어도 약 50% 내지 약 99%의 CO₂가 가스 스트림 또는 대기로부터 제거되는, 공정.

청구항 93

제82항 내지 제92항 중 어느 한 항에 있어서, 에어로겔로부터 흡수된 CO₂를 탈착시키기 위한 재생 회수 공정을 추가로 포함하는, 공정.

청구항 94

제93항에 있어서, 재생 회수 공정은 에어로겔을 약 60℃ 내지 약 140℃의 온도 범위로 가열하여 압력을 감소시키거나, 낮은 CO₂를 갖는 가스 흐름에 의하거나, 또는 이의 조합에 의해 에어로겔로부터 흡수된 CO₂를 탈착시키는 단계를 포함하는, 공정.

청구항 95

제94항에 있어서, 에어로겔은 에어로겔을 스텝과 접촉시키는 것에 의해 가열되는, 공정.

청구항 96

CO₂를 함유하는 가스 스트림 또는 대기로부터 이산화탄소(CO₂)를 포집하기 위한 흡착 장치로서, 제1항 내지 제52항에 따라 정의되고/되거나 제64항 내지 제79항에 따라 제조된 적어도 하나의 실리카-기반 에어로겔을 포함하는 챔버를 포함하며, 상기 챔버는 가스 스트림이 실리카-기반 에어로겔로 흐를 수 있는 주입구 및 유출 가스 스트림이 실리카-기반 에어로겔로부터 흘러나올 수 있는 배출구를 포함하는, 장치.

청구항 97

제96항에 있어서, 적어도 하나의 실리카-기반 에어로겔은 챔버의 주입구와 배출구 사이에 배치되고, 주입구 및 배출구는 챔버의 대향 말단에 존재하는, 장치.

청구항 98

제96항 또는 제97항에 있어서, 챔버는 펠릿 형태의 실리카 기반 에어로겔을 포함하는, 장치.

청구항 99

제98항에 있어서, 챔버는 챔버 내에 배치되거나, 패키징된 실리카 기반 에어로겔로 코팅된 기재를 포함하는, 장치.

청구항 100

제96항 내지 제99항 중 어느 한 항에 있어서, 가스 스트림에 평행하게 연결된 적어도 하나의 실리카-기반 에어로겔을 포함하는 2개 이상의 챔버를 포함하는, 장치.

청구항 101

제95항 내지 제100항 중 어느 한 항에 있어서, 각각의 챔버 내에 적어도 하나의 실란-기반 에어로겔을 포함하는 적어도 3개의 챔버를 포함하며, 각각의 챔버는 가스 스트림과 평행하게 연결되는, 장치.

청구항 102

제95항 내지 제101항 중 어느 한 항에 있어서, 적어도 3개의 챔버 내에 포함된 실리카-기반 에어로겔은 흡착 및 재생 사이클의 상이한 섹션에서 작동되어 유출 가스 스트림의 연속적 흐름을 생성하는, 장치.

청구항 103

제102항에 있어서, 배출구로부터의 유출 가스 스트림은 다양한 2차 공정으로 흐르는, 장치.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 개시내용은 일반적으로 미소기공 에어로겔, 미소기공 에어로겔을 제조하기 위한 공정, 및 미소기공 에어로겔에 대한 적용에 관한 것이다. 본 개시내용은 또한 일반적으로 가스 스트림 또는 대기로부터 이산화탄소를 포집하기 위한 장치에 관한 것이며, 본 장치는 이산화탄소를 선택적으로 흡착 및 탈착시키기 위한 미소기공 에어로겔을 포함한다.

배경 기술

[0002] CO₂ 포집을 위한 다양한 접근법이 액체 및 고체-기반 흡수제의 사용을 포함하여 사용되어 왔다. 이용되는 액체는 전형적으로 CO₂와 화학적으로 반응하는 알칼리성 용액을 포함한다. 그러나, 상기 물질을 재생하기 위한 에너지 요건 및 흡수율은 난제이다. 또한, 고도의 알칼리성 액체에 의해 초래되는 부식 및 증발로 인한 이슈가 존재한다. CO₂ 포집 및 분리에서의 고체 흡수제의 사용은 이들의 양호한 흡수 능력으로 인해 늘어나는 관심을 받았다. 아민-기능화 실리카, 산화물, 제올라이트, 탄소, 중합체, 및 금속 유기 골격체(MOF)를 포함하여 사용될 수 있는 다수의 신형 고체 물질이 존재한다. 이들 물질은 더 낮은 재생 에너지를 제공하는 반면, 합성 비용이 높을 수 있으며, 이들 물질 중 일부는 고가의 화학물질, 유독성 용매의 사용이 필요하고, 다단계 작동(추출, 여과, 세척, 및 건조)을 가지며, 열적으로 불안정하고, 화학적으로 분해되기 쉽다.

[0003] 결과적으로, 대안적 또는 개선된 에어로겔 및 대안적 또는 개선된 에어로겔을 제조하기 위한 공정을 제공할 필요가 있다.

발명의 내용

[0004] 본 개시내용은 이산화탄소 포집을 위한 대안적 미소기공 에어로겔, 특히 실리카-기반 에어로겔, 실리카-기반 에어로겔을 제조하기 위한 공정, 실리카-기반 에어로겔을 혼입하는 흡착 장치, 및 연관된 흡착과 탈착 방법을 제공한다. 본 발명자들은 실리카-기반 에어로겔을 사용하여 가스 스트림으로부터 이산화탄소(CO₂)를 포집하기 위한 공정의 연구 및 개발에 착수하였다. 실리카-기반 에어로겔 조성물은 CO₂ 흡수 효율에 대한 제어 및 선택성을 제공하도록 조정될 수 있다. 특히, 실리카-기반 에어로겔은 에어로겔 내에 CO₂를 흡수하는 것에 의해 낮은 CO₂ 농

도의 가스 스트림으로부터 CO₂를 포집할 수 있으며, 이로 인해 가스 스트림으로부터 이를 제거한다. 이어서, 흡수된 CO₂는 실리카-기반 에어로겔로부터 수집될 수 있으며, 재생되는 실리카-기반 에어로겔은 더 많은 CO₂를 흡수하기 위해 재사용될 수 있다(예를 들어, 재순환, 연속적으로 순환됨). 본원에 기재된 본 개시내용은 또한 산업용 적용을 위해 확장될 수 있으며, 특히 CO₂의 직접적 공기 포집에서의 용도를 발견할 수 있다. 실리카-기반 에어로겔의 선택을 사용하는 본원에 기재된 본 개시내용은 다음의 이로인 특성 중 하나 이상을 조합할 수 있다: 미소공극도, 소수성, CO₂ 선택성, 효과적 포집을 위한 주위 CO₂ 조건, 이산화탄소 흡착열, 및/또는 재생을 위한 능력.

- [0005] 일 양태에서, 이산화탄소 포집을 위한 실리카-기반 에어로겔이 제공되며, 상기 미소기공 에어로겔은 복수의 기공을 포함하고, 적어도 50%의 기공은 약 2 nm 미만의 직경을 갖는다. 에어로겔은 약 10 부피% 미만의 CO₂ 농도를 갖는 환경에서의 공기로부터 CO₂를 흡착할 수 있다. 에어로겔은 약 2 부피% 미만의 CO₂ 농도를 갖는 폐쇄되거나, 실내 환경에서의 공기로부터 CO₂를 흡착할 수 있다(DACi). 에어로겔은 약 0.04 부피%의 CO₂ 농도를 갖는 환경에서의 공기로부터 CO₂를 흡착할 수 있으며, 상기 환경은 직접적 공기 포집(DAC)이다.
- [0006] 일 실시형태 또는 예에서, 에어로겔의 CO₂ 흡착은 적어도 0.47 mmol/g일 수 있다.
- [0007] 일부 실시형태 또는 예에서, 미소기공 에어로겔은 적어도 하나의 아미노 치환된 실란, 적어도 하나의 실리케이트, 및 선택적으로 적어도 하나의 알킬 치환된 실란의 반응 생성물을 포함하거나, 이로 구성될 수 있다.
- [0008] 일 실시형태 또는 예에서, 에어로겔의 밀도는 약 0.02 g/cm³ 내지 약 0.6 g/cm³일 수 있다. 일 실시형태 또는 예에서, 에어로겔은 약 0.1 내지 500 m²/g의 표면적을 가질 수 있다. 일 실시형태 또는 예에서, 에어로겔은 약 0.1 내지 약 2 nm의 기공 크기를 가질 수 있다.
- [0009] 일부 실시형태 또는 예에서, 에어로겔은 입자, 분말, 비드, 과립, 시트/층, 캐스트 블록, 원기둥, 디스크, 다공성 막, 또는 모놀리스의 형태일 수 있다. 에어로겔은 복수의 입자, 분말, 펠릿, 비드, 과립, 코팅, 또는 시트/층을 포함할 수 있다.
- [0010] 일부 실시형태 또는 예에서, 에어로겔은 자가 지지형일 수 있다. 다른 실시형태 또는 예에서, 에어로겔은 기재 상에 코팅 조성물 또는 필름으로서 적용될 수 있다.
- [0011] 일 실시형태 또는 예에서, 반응 생성물은 원-포트 합성(one-pot synthesis)을 통해 제조될 수 있다.
- [0012] 다른 실시형태 또는 예에서, 에어로겔은 복합체의 형태일 수 있으며, 상기 복합체는 에어로겔, 하나 이상의 첨가제, 선택적으로 윤활제, 및 선택적으로 용매를 포함하거나, 이로 구성될 수 있다. 하나 이상의 첨가제는 결합제, 선택적으로 금속 유기 골격체(MOF), 및 나노입자로부터 선택될 수 있다. 첨가제는 에어로겔의 총 중량을 기준으로 약 5 내지 약 35 wt.%의 양으로 존재할 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 복합체는 펠릿, 비드, 시트, 또는 과립 형태의 자가 지지형일 수 있다. 다른 실시형태에서, 복합체는 기재 상에 코팅 조성물, 페이스트, 또는 필름으로서 적용될 수 있다.
- [0013] 다른 양태에서, (i) 본원에 기재된 임의의 하나의 실시형태 또는 예에 따른 아미노 치환된 실란, 실리케이트, 및 선택적으로 알킬 치환된 실란의 반응 생성물을 포함하는 미소기공 에어로겔 또는 이의 조합; (ii) 하나 이상의 첨가제-첨가제는 약 5 내지 약 35 wt.%의 로딩(loading)%를 가짐-; (iii) 선택적으로 윤활제; 및 선택적으로 용매로 구성된 에어로겔 복합체가 제공된다. 하나 이상의 첨가제는 결합제, 선택적으로 금속 유기 골격체(MOF), 및 나노입자로부터 선택될 수 있다. 결합제는 셀룰로스-기반 중합체, 실란-기반 중합체, 셀룰로스-실록산-기반 중합체, 폴리글리콜-기반 중합체, 폴리비닐 피롤리돈, 폴리비닐 알코올, 폴리에틸렌 이민, 벤토나이트, 흑연, 또는 이의 조합으로부터 선택될 수 있다.
- [0014] 다른 양태에서, 이산화탄소를 위한 실리카-기반 미소기공 에어로겔의 제조 공정이 제공되며, 상기 미소기공 에어로겔은 복수의 기공을 포함하고, 적어도 50%의 기공은 약 2 nm 미만의 직경을 갖고, 본 공정은 (i)(a) 적어도 하나의 아미노 치환된 실란, 적어도 하나의 실리케이트, 및 선택적으로 적어도 하나의 알킬 치환된 실란을 포함하는 수용액, 선택적으로 완충액, 선택적으로 하나 이상의 첨가제, 및 용매 시스템을 혼합하여 습윤 겔 매트릭스를 형성하는 단계; 및 (ii) 습윤 겔 매트릭스를 건조하여 건조된 실리카-기반 에어로겔을 제공하는 단계를 포함하며, 단, 습윤 겔 매트릭스를 건조하는 단계는 초임계 CO₂를 수반하지 않는다.

- [0015] 일 실시형태 또는 예에서, 본 공정은 졸 겔 공정일 수 있으며, 단계 (ii)는 (a1) 선택적으로 습윤 겔 매트릭스를 가열하여 겔을 수득하는 단계 및 (a2) 겔을 용매 증발 및/또는 열 처리에 의해 건조하여 건조된 실리카-기반 에어로겔을 제공하는 단계를 포함한다.
- [0016] 다른 실시형태 또는 예에서, 단계 (ii)는 (b1) 습윤 겔 매트릭스가 기재에 적용되어 기재를 코팅하는 습윤 겔 필름을 형성할 수 있는 단계; 및 (b2) 습윤 겔 필름을 용매 증발 및/또는 열 처리에 의해 건조하여 건조된 실리카-기반 코팅된 기재를 제공하는 단계를 추가로 포함할 수 있다.
- [0017] 다른 실시형태 또는 예에서, 본 공정은 (c1) 본원에 기재된 임의의 하나의 실시형태 또는 예에 따른 에어로겔 또는 이의 조합, 하나 이상의 첨가제, 선택적으로 윤활제로 구성된 혼합물을 펠릿으로 압축하는 단계-첨가제는 약 5 내지 약 35 wt.%의 로딩%를 가짐-; 또는 (c2) 본원에 기재된 임의의 하나의 실시형태 또는 예에 따른 에어로겔 또는 이의 조합, 하나 이상의 첨가제, 선택적으로 윤활제, 및 선택적으로 용매로 구성된 혼합물을 액체 압출하여 점성질 페이스트를 제공하는 단계-첨가제는 약 5 내지 약 35 wt.%의 로딩%를 가짐;에 의해 에어로겔 복합재를 제조하는 단계를 추가로 포함하거나, 이로 구성될 수 있다.
- [0018] 아미노 치환된 실란은 본원에 기재된 임의의 하나의 실시형태 또는 예에 정의된 화학식 1 $R^1Si(OR_2)_n-L-NH_2$ 의 것일 수 있다.
- [0019] 알킬 치환된 실란은 본원에 기재된 임의의 하나의 실시형태 또는 예에 정의된 화학식 2 $R^5Si(OR^6)_n$ 의 것일 수 있다.
- [0020] 실리케이트는 본원에 기재된 임의의 하나의 실시형태 또는 예에 정의된 화학식 3 $Si(OR^7)_4$ 의 것일 수 있다.
- [0021] 일부 실시형태 또는 예에서, 용매는 물, 비수성 용매, 또는 이의 조합일 수 있다.
- [0022] 일 실시형태 또는 예에서, 본 공정은 단계 (iii) 활성화 단계를 추가로 포함할 수 있다.
- [0023] 다른 양태에서, 본원에 기재된 임의의 하나 이상의 실시형태 또는 예에 따라 공정에 의해 제조되는, 이산화탄소(CO_2)를 위한 실리카-기반 미소기공 에어로겔이 제공되며, 상기 미소기공 에어로겔은 복수의 기공을 포함하고, 적어도 50%의 기공은 약 2 nm 미만의 직경을 갖는다.
- [0024] 다른 양태에서, 본원에 기재된 임의의 하나 이상의 실시형태 또는 예에 따른 반응 생성물을 포함하고, 본원에 기재된 임의의 하나 이상의 실시형태 또는 예에 따른 공정에 의해 제조되는, 이산화탄소(CO_2) 포집을 위한 실리카-기반 미소기공 에어로겔이 제공되며, 상기 미소기공 에어로겔은 복수의 기공을 포함하고, 적어도 50%의 기공은 약 2 nm 미만의 직경을 갖는다.
- [0025] 다른 양태에서, 가스 스트림 또는 대기를 가스 스트림 또는 대기로부터 적어도 일부 CO_2 를 포집하기 위한 실리카-기반 에어로겔과 접촉시키는 단계를 포함하는, CO_2 를 함유하는 가스 스트림 또는 대기로부터 이산화탄소(CO_2)를 포집하기 위한 공정이 제공되며, 상기 실리카-기반 에어로겔은 본원에 기재된 임의의 하나의 실시형태 또는 예에 따르거나, 본원에 기재된 임의의 하나의 실시형태 또는 예에 따른 공정에 의해 제조된 실리카-기반 에어로겔이다.
- [0026] 일 실시형태에서, 가스 스트림 또는 대기는 약 150,000 ppm 미만의 CO_2 농도를 가질 수 있다. 가스 스트림 또는 대기는 약 3,000 ppm 내지 150,000 ppm 범위의 CO_2 농도를 가질 수 있으며, 본 공정은 외부 동력 발전소(DACex)에서의 직접적 공기 포집일 수 있다. 가스 스트림 또는 대기는 약 40,000 ppm 미만의 CO_2 농도를 가질 수 있다. 가스 스트림 또는 대기는 약 20,000 ppm 미만의 CO_2 농도를 가질 수 있다. 가스 스트림 또는 대기는 약 10,000 ppm 미만의 CO_2 농도를 가질 수 있다. 가스 스트림 또는 대기는 약 7,000 ppm 미만의 CO_2 농도를 가질 수 있다. 가스 스트림 또는 대기는 약 5,000 ppm 미만의 CO_2 농도를 가질 수 있다. 가스 스트림 또는 대기는 약 4,000 ppm 내지 5,000 ppm 범위의 CO_2 농도를 가질 수 있으며, 본 공정은 마스크 또는 개인용 보호 장비(DACp)에서의 날숨의 직접적 공기 포집일 수 있다. 가스 스트림 또는 대기는 약 1,000 ppm 미만의 CO_2 농도를 가질 수 있다. 가스 스트림 또는 대기는 주위 공기일 수 있다. 가스 스트림 또는 대기는 약 500 ppm 미만일 수 있으며, 본 공정은 직접적 공기 포집(DAC)일 수 있다. 본 개시내용은 대기에서 CO_2 를 포집하는 데 사용하기에 적합하며,

여기서, CO₂ 농도는 대기 수준이거나(DAC), 더 높은 농도가 폐쇄된 환경에서 존재할 수 있다(DACi).

- [0027] 일부 실시형태 또는 예에서, 가스 스트림 또는 대기를 에어로겔과 접촉시키는 단계는 가스 스트림 또는 대기를 에어로겔을 포함하는 층을 통해 통과시키는 단계를 포함할 수 있다.
- [0028] 일부 실시형태 또는 예에서, 적어도 약 50% 내지 약 99%의 CO₂가 가스 스트림 또는 대기로부터 제거될 수 있다. 바람직하게는, 적어도 약 90%의 CO₂가 가스 스트림으로부터 제거될 수 있다.
- [0029] 일부 실시형태 또는 예에서, 본 공정은 실리카-기반 에어로겔로부터 흡수된 CO₂를 탈착시키는 재생 회수 공정을 추가로 포함할 수 있다. 재생 회수 공정은 실리카-기반 에어로겔을 약 60℃ 내지 약 140℃의 온도 범위로 가열하여 압력을 감소시키는 것에 의해, 낮은 CO₂를 갖는 가스의 흐름에 의해, 또는 이의 조합으로 실리카-기반 에어로겔로부터 흡수된 CO₂를 탈착시키는 단계를 포함할 수 있다.
- [0030] 다른 양태에서, 본원에 기재된 임의의 하나의 실시형태 또는 예에 따라 정의되고/되거나 본원에 기재된 임의의 하나의 실시형태 또는 예에 따라 제조된 적어도 하나의 실리카-기반 에어로겔을 포함하는 챔버를 포함하는, CO₂를 함유하는 가스 스트림 또는 대기로부터 이산화탄소(CO₂)를 포집하기 위한 흡착 장치가 제공되며, 상기 챔버는 가스 스트림이 실리카-기반 에어로겔로 흐를 수 있는 주입구 및 유출 가스 스트림이 실리카-기반 에어로겔로부터 흘러나올 수 있는 배출구를 포함한다.
- [0031] 일부 실시형태 또는 예에서, 본 장치는 가스 스트림과 평행하게 연결된 적어도 하나의 실리카-기반 에어로겔을 포함하는 2개 이상의 챔버를 포함할 수 있다. 본 장치는 각각의 챔버에서 적어도 하나의 실리카-기반 에어로겔을 포함하는 적어도 3개의 챔버를 포함할 수 있으며, 각각의 챔버는 가스 스트림과 평행하게 연결될 수 있다. 적어도 3개의 챔버 내에 포함된 실리카-기반 에어로겔은 흡착 및 재생 사이클의 상이한 섹션에서 작동되어 유출 가스 스트림의 연속적 흐름을 생성할 수 있다.
- [0032] 일부 실시형태 또는 예에서, 배출구로부터의 유출 가스 스트림은 다양한 2차 공정으로 흐를 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0033] 본 개시내용의 바람직한 실시형태가 첨부된 도면과 관련하여 오직 예로서 추가로 설명되고, 예시될 것이다:

도 1은 (a) PALS를 사용하여 결정된 후보 A, B, C, 및 D의 기공 크기 분포를 나타내는 그래프; (b) N₂ 가스를 사용하여 결정된 J, P, M, 및 L의 기공 크기 분포를 나타내는 그래프; (c) 밀도의 함수로서 다양한 압력에서의 선별된 실리카-기반 에어로겔의 CO₂ 흡수를 나타내는 그래프; 및 (d) 밀도의 함수로서 다양한 압력에서의 선별된 실리카-기반 에어로겔의 CO₂ 흡수를 나타내는 그래프를 보여준다.

도 2는 실리카-기반 에어로겔 후보 A에 대한 298K에서의 전체 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다. 등온식의 중요한 속성은 저압 흡수이다(<1mbar). 이는 직접적 공기 포집이 발생할 곳이며, 등온식에서 제시된 흡수 단계는 미소기공 물질의 지표이다.

도 3은 두 온도, 313K 및 298K에서 작동되는 실리카-기반 에어로겔 후보 A에 대한 전체 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다. 후보 A는 더 높은 온도에서 CO₂를 흡착할 수 있으며, 이는 물질의 작동 조건을 증가시킨다.

도 4는 실리카-기반 에어로겔 후보 B에 대한 298K에서의 전체 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다. 등온식의 중요한 속성은 저압 흡수이다(<1mbar). 이는 직접적 공기 포집이 발생할 곳이며, 등온식에서 제시된 흡수 단계는 미소기공 물질의 지표이다.

도 5는 두 온도, 313K 및 298K에서 작동되는 실리카-기반 에어로겔 후보 B에 대한 전체 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다. 후보 B는 더 높은 온도에서 CO₂를 흡착할 수 있으며, 이는 물질의 작동 조건을 증가시킨다.

도 6은 실리카-기반 에어로겔 후보 C에 대한 298K에서의 전체 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다.

도 7은 두 온도, 313K 및 298K에서 작동되는 실리카-기반 에어로겔 후보 C에 대한 전체 CO₂ 흡착 등온식의 그래프

프를 보여준다. 후보 C는 더 높은 온도에서 CO₂를 흡착할 수 있으며, 이는 물질의 작동 조건을 증가시킨다.

도 8은 실리카-기반 에어로겔 후보 D에 대한 298K에서의 전체 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다.

도 9는 실리카-기반 에어로겔 후보 E에 대한 298K에서의 전체 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다.

도 10은 실리카-기반 에어로겔 후보 J에 대한 298K에서의 전체 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다.

도 11은 실리카-기반 에어로겔 후보 K에 대한 298K에서의 전체 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다.

도 12는 실리카-기반 에어로겔 후보 L에 대한 298K에서의 전체 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다.

도 13은 실리카-기반 에어로겔 후보 M에 대한 298K에서의 전체 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다.

도 14는 실리카-기반 에어로겔 후보 N에 대한 298K에서의 전체 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다.

도 15는 실리카-기반 에어로겔 후보 O에 대한 298K에서의 전체 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다.

도 16은 실리카-기반 에어로겔 후보 P에 대한 298K에서의 전체 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다.

도 17은 실리카-기반 에어로겔 후보 Q에 대한 298K에서의 전체 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다.

도 18은 실리카-기반 에어로겔 후보 R에 대한 298K에서의 전체 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다.

도 19는 298K에서 수집된 H₂O 흡착 등온식의 그래프를 보여주며, 이는 TEMS 및 APEM의 함량이 증가될 때, 물 흡수의 감소를 나타낸다. 오직 후보 D만이 20%의 TEMS 로딩을 갖고, APEMS를 갖지 않으며, 60 내지 80%의 APEMS, TEMS, DMDDES, 및/또는 TEES로부터의 다양한 로딩을 갖는 다른 후보 물질과 비교하여 더 높은 H₂O 흡수를 초래한다.

도 20은 건조 및 습윤 조건(70 내지 80% RH) 하의 740 ppm에서 수행된 후보 A(GM86-01), B(GM92-01), 및 D(GM108-01)의 CO₂ 파과 곡선 그래프를 보여준다.

도 21은 건조 및 습윤 조건(70 내지 80% RH) 하의 500 ppm 및 740 ppm에서 수행된 후보 B의 CO₂ 파과 곡선 그래프를 보여준다.

도 22는 건조 및 습윤 조건(70 내지 80% RH) 하의 740 ppm에서 수행된 A(GM86-01), B(GM92-01), D(GM108-01), 및 제올라이트 13X의 CO₂ 파과 곡선 그래프를 보여준다.

도 23은 후보 A의 77K에서의 N₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다. 폐쇄형 원은 흡착 데이터 지점이고, 개방형 원은 탈착 데이터 지점이다.

도 24는 후보 B의 77K에서의 N₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다. 폐쇄형 원은 흡착 데이터 지점이고, 개방형 원은 탈착 데이터 지점이다.

도 25는 후보 C의 77K에서의 N₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다. 폐쇄형 원은 흡착 데이터 지점이고, 개방형 원은 탈착 데이터 지점이다.

도 26은 후보 D의 77K에서의 N₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다. 폐쇄형 원은 흡착 데이터 지점이고, 개방형 원은 탈착 데이터 지점이다.

도 27은 후보 E의 77K에서의 N₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다. 폐쇄형 원은 흡착 데이터 지점이고, 개방형 원은 탈착 데이터 지점이다.

도 28은 후보 K의 77K에서의 N₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다. 폐쇄형 원은 흡착 데이터 지점이고, 개방형 원은 탈착 데이터 지점이다.

도 29는 후보 J의 298K에서의 N₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다. 이러한 흡착 등온식은 각각의 실행 사이에

활성화를 갖는 연속적인 흡착 실행 후의 에어로겔 성능을 도시한다. 0.4 mbar에서의 에어로겔 성능은 초기 흡착으로부터의 성능의 10% 손실로 동일하게 유지되었다.

도 30은 후보 K의 298K에서의 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다. 이러한 흡착 등온식은 각각의 실행 사이에 활성화를 갖는 연속적인 흡착 실행 후의 에어로겔 성능을 도시한다. 0.4 mbar에서의 에어로겔 성능은 초기 흡착으로부터의 성능의 1% 손실로 동일하게 유지되었다.

도 31은 후보 K의 298K에서의 CO₂ 흡착 등온식의 그래프를 보여준다. 0.4 mbar 압력에서, 1% 미만의 성능 손실이 관찰되었다.

도 32는 건조 조건에서 740 ppm에서의 298K 파과 실험의 CO₂ 그래프를 보여준다. 다섯 번의 사이클이 각각의 실행 사이에 100°C에서 12시간 동안 활성화된 에어로겔을 이용하여 실행되었다. CO₂ 성능 손실은 후보 D에 대해 관찰되지 않았다.

도 33은 습윤 조건에서 740 ppm에서의 298K 파과 실험의 CO₂ 그래프를 보여준다. 다섯 번의 사이클(실행 6 내지 10)은 각각의 실행 사이에 100°C에서 12시간 동안 활성화된 에어로겔을 이용하여 실행되었다. 순환 실험 동안 20%의 성능 손실이 관찰되었다. 이러한 CO₂ 제거는 동일한 조건 하에서 상업적 제올라이트 13X 샘플 초과로 유지된다.

도 34는 제올라이트 13X 펠릿 및 TIF-SIX 펠릿의 비교를 제공하는 후보 B, E, 및 K의 298K에서의 H₂O 흡착 그래프를 보여준다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0034] 본 개시내용은 실리카-기반 에어로겔을 사용하여 가스 스트림(예를 들어, 대기)으로부터 이산화탄소(CO₂)를 포집하기 위한 공정을 확인하기 위해 착수된 조사에 관한 다음의 다양한 비제한적 실시형태를 설명한다. 실리카-기반 에어로겔은 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림으로부터 CO₂를 흡착하는 데 사용될 수 있음을 발견하였다. 실리카-기반 에어로겔은 적어도 하나의 아미노 치환된 실란 및 적어도 하나의 알킬 치환된 실란의 반응 생성물을 포함하며, 이는 CO₂를 흡수 및 고정할 수 있다. 포집된 CO₂는 실리카-기반 에어로겔로부터 제거될 수 있으며, 재생된 실리카-기반 에어로겔은 낮은 CO₂ 농도 환경으로부터 CO₂를 포집하기 위한 흡착 물질로서 재사용될 수 있다.

[0035] **일반적 정의 및 용어**

[0036] 다음의 설명에서, 이의 일부를 형성하며, 예시로서 제시되는 첨부된 도면, 몇몇의 실시형태를 참조한다. 다른 실시형태가 이용될 수 있으며, 구조적 변경이 본 개시내용의 범주를 벗어나지 않고 이루어질 수 있음이 이해된다.

[0037] 본원에 제공된 정의와 관련하여, 달리 명시되거나, 문맥으로부터 암시되지 않는 한, 정의된 용어 및 문구는 제 공되는 의미를 포함한다. 달리 분명하게 명시되거나, 문맥으로부터 명백하지 않는 한, 하기 용어 및 문구는 해당 용어 또는 문구가 당업자에 의해 습득된 의미를 제외하지 않는다. 정의는 특정 실시형태를 설명하는 것을 돕기 위해 제공되며, 본 발명의 범주는 오직 청구범위에 의해서만 제한되기 때문에 청구된 발명을 제한하도록 의도되지 않는다. 또한, 문맥에 의해 달리 요구되지 않는 한, 단수 용어는 복수를 포함할 것이며, 복수 용어는 단수를 포함할 것이다.

[0038] 본원에 논의 및/또는 인용된 모든 간행물은 이들의 전체 내용이 본원에 포함된다.

[0039] 본 명세서에 포함되었던 문서, 법률, 물질, 장치, 물품 등의 임의의 논의는 오로지 본 개시내용에 대한 문맥을 제공하는 목적을 위한 것이다. 이들 내용 중 임의 또는 전부는 본 출원의 각각의 청구범위의 우선일 전에 존재했던 것처럼 종래 기술 베이스의 일부를 형성하거나, 본 개시내용과 관련된 분야의 통상적 일반 지식이었던 것임을 인정하는 것으로 여겨져서는 안 된다.

[0040] 본 개시내용 전반에 걸쳐, 달리 구체적으로 명시되거나, 문맥에서 달리 요구하지 않는 한, 단일 단계, 물질의 조성물, 단계의 그룹 또는 물질의 조성물의 그룹에 대한 언급은 이들 단계, 물질의 조성물, 단계의 그룹 또는 물질의 조성물의 그룹 중 하나 및 복수(즉, 하나 이상)를 포함하도록 여겨질 것이다. 따라서, 본원에 사용된 단

일 형태("a", "an", 및 "the")는 문맥이 달리 분명하게 지시하지 않는 한, 복수 양태를 포함한다. 예를 들어, 하나("a")에 대한 언급은 단일뿐만 아니라 둘 이상을 포함하고; 하나("an")에 대한 언급은 단일뿐만 아니라 둘 이상을 포함하고; 정관사("the")에 대한 언급은 단일뿐만 아니라 둘 이상을 포함하는 등이다.

- [0041] 당업자는 본원의 개시내용이 구체적으로 기재된 것들 외에 변형 및 변경을 허용하는 것으로 인식될 것이다. 본 개시내용은 이러한 모든 변형 및 변경을 포함하는 것으로 이해되어야 한다. 본 개시내용은 또한 본 명세서에 언급되거나, 명시된 모든 예, 단계, 특성, 방법, 조성물, 코팅, 공정, 및 코팅된 기재를 개별적으로 또는 집합적으로 포함하며, 상기 단계 또는 특성의 임의 및 모든 조합 또는 임의의 둘 이상을 포함한다.
- [0042] 용어 "및/또는", 예를 들어 "X 및/또는 Y"는 "X 및 Y" 또는 "X 또는 Y"를 의미하도록 이해될 것이며, 둘 모두의 의미 또는 각각의 의미를 위한 명시적 뒷받침을 제공하도록 취해질 것이다.
- [0043] 달리 명시되지 않는 한, 용어 "제1", "제2" 등은 단지 표지로서 본원에 사용되며, 이들 용어가 지칭하는 항목에 대한 서수, 위치, 또는 계층적 요건을 부여하도록 의도되지 않는다. 또한, "제2" 물품에 대한 언급은 더 낮은 번호의 항목(예를 들어, "제1" 항목) 및/또는 더 높은 번호의 항목(예를 들어, "제3" 항목)의 존재를 요구하거나, 배제하지 않는다.
- [0044] 본원에 사용된 문구 "~의 적어도 하나"는 항목의 열거와 함께 사용될 때, 열거된 항목 중 하나 이상의 상이한 조합이 사용될 수 있으며, 목록 내의 오직 하나의 항목이 요구될 수 있음을 의미한다. 항목은 특정 물체, 물건, 또는 카테고리일 수 있다. 바꾸어 말하면, "~의 적어도 하나"는 항목의 임의의 조합 또는 항목의 임의의 수가 목록으로부터 사용될 수 있지만, 목록 내의 모든 항목이 요구되지는 않을 수 있음을 의미한다. 예를 들어, "항목 A, 항목 B, 및 항목 C 중 적어도 하나"는 항목 A; 항목 A 및 항목 B; 항목 B; 항목 A, 항목 B, 및 항목 C; 또는 항목 B 및 항목 C를 의미할 수 있다. 일부 경우, "항목 A, 항목 B, 및 항목 C 중 적어도 하나"는 예를 들어 그리고 제한 없이 2개의 항목 A, 1개의 항목 B, 및 10개의 항목 C; 4개의 항목 B 및 7개의 항목 C; 또는 일부 다른 적합한 조합을 의미할 수 있다.
- [0045] 본원에 사용된 용어 "약"은 달리 명시되지 않는 한, 전형적으로 지정된 값의 +/- 10%, 예를 들어 +/- 5%를 지칭한다.
- [0046] 명확성을 위해 별개의 실시형태의 문맥에서 본원에 기재된 특정 특성은 또한 단일 실시형태로 조합하여 제공될 수 있는 것으로 인식되어야 한다. 대조적으로, 간결성을 위해 단일 실시형태의 문맥에서 기재된 다양한 특성은 또한 별도로 또는 임의의 하위 조합으로 제공될 수 있다.
- [0047] 본 명세서 전반에 걸쳐, 본 발명의 다양한 양태 및 구성요소가 범위 형식으로 제시될 수 있다. 범위 형식은 편의성을 위해 포함되며, 본 발명의 범주에 대한 변경되지 않는 제한으로서 해석되어서는 안 된다. 따라서, 범위의 기재는 구체적으로 명시되지 않는 한, 구체적으로 개시된 모든 가능한 하위 범위뿐만 아니라 그 범위 내의 개별적 수치값을 갖는 것으로 간주되어야 한다. 예를 들어, 범위의 기재, 예컨대 1 내지 5는 구체적으로 개시된 하위 범위, 예컨대 1 내지 3, 1 내지 4, 1 내지 5, 2 내지 4, 2 내지 5, 3 내지 5 등뿐만 아니라 정수가 요구되거나, 문맥으로부터 암시되지 않는 한, 열거된 범위 내의 개별적 및 부분적 수, 예를 들어 1, 2, 3, 4, 5, 5.5, 및 6을 갖는 것으로 간주되어야 한다. 이는 개시된 범위의 폭과 상관 없이 적용된다. 특정 값이 요구되는 경우, 이들은 본 명세서 내에 명시될 것이다.
- [0048] 본 명세서 전반에 걸쳐, 단어 "포함하다(comprise)", 또는 "포함하다(comprises)" 또는 "포함하는(comprising)"과 같은 변형은 명시된 요소, 정수, 또는 단계 또는 요소, 정수, 또는 단계의 그룹을 포함하되, 임의의 다른 요소, 정수, 또는 단계 또는 요소, 정수, 또는 단계의 그룹을 제외하지는 않는 것을 암시하는 것으로 이해될 것이다.
- [0049] 본 명세서 전반에 걸쳐, 용어 "~로 본질적으로 구성된"은 청구된 조성물의 특성에 실질적으로 영향을 미칠 요소를 제외하도록 의도된다.
- [0050] 본원의 용어 "포함하는(comprising)", "포함하다(comprise)", 및 "포함하다(comprises)"는 선택적으로 모든 예에서 용어 "~로 본질적으로 구성되는(consisting essentially of)", "~로 본질적으로 구성되다(consist essentially of)", "~로 본질적으로 구성되다(consists essentially of)", "~로 구성되는(consisting of)", "~로 구성되다(consist of)", 및 "~로 구성되다(consists of)"로 각각 치환 가능한 것으로 의도된다.
- [0051] 본원에서, 용어 "약"은 해당 용어에 연결된 임의의 값 또는 값들에서의 10%의 허용 오차를 포함한다.
- [0052] "실질적으로 없는"에 대한 언급은 일반적으로 존재할 수 있는 임의의 미량 또는 불순물 이외에 조성물 중에 그

화합물 또는 성분의 부재를 지칭하며, 예를 들어 이는 총 조성물 중의 중량% 기준으로 약 1%, 0.1%, 0.01%, 0.001%, 또는 0.0001% 미만의 양일 수 있다. 본원에 기재된 조성물은 또한 예를 들어 총 조성물 중의 중량% 기준으로 약 5%, 4%, 3%, 2%, 1%, 0.5%, 0.1%, 0.01%, 0.001%, 또는 0.0001% 미만의 양의 불순물을 포함할 수 있다. 예를 들어, 이는 총 가스 스트림 중의 부피% 기준으로 약 0.001%, 또는 0.0001% 미만의 양일 수 있다. 예를 들어, 본원에 기재된 가스 스트림은 또한 총 가스 스트림 중의 부피% 기준으로 약 0.01%, 0.001%, 또는 0.0001% 미만의 양의 불순물을 포함할 수 있다. 이러한 불순물의 일 예는 0.0005 부피% 미만의 양으로 존재하는, 공기 중에 존재할 수 있는 메탄(CH_4)의 양이다.

[0053] 본원에서, "중량%"는 "wt.%"로 축약될 수 있다.

[0054] 용어 "알킬"은 직쇄, 분지형, 및 고리형 알킬기를 포함하며, 비치환된 그리고 치환된 알킬기 둘 모두를 포함한다. 일 예에서, 알킬기는 직쇄형 및/또는 분지형이며, 선택적으로 1 내지 3개의 고리형 알킬기가 개재된다. 달리 명시되지 않는 한, 알킬기는 전형적으로 1 내지 20개의 탄소 원자를 함유한다. 알킬기는 예를 들어 1 내지 12, 1 내지 10, 1 내지 8, 1 내지 6, 또는 1 내지 4개의 탄소 원자를 함유한다. 본원에 사용된 "알킬"의 예는 메틸, 에틸, n-프로필, n-부틸, n-펜틸, 이소부틸, t-부틸, 이소프로필, n-옥틸, n-헵틸, 에틸헥실, 사이클로펜틸, 사이클로헥실, 사이클로 헵틸, 아다만틸, 및 노르보르닐 등을 포함하지만, 이로 제한되지는 않는다. 달리 언급되지 않는 한, 알킬기는 1가 또는 다가일 수 있다. 알킬기는 선택적으로 치환되고/되거나 선택적으로 하나 이상의 헤테로원자가 개재될 수 있다. 알킬기는 2가 또는 다가 연결기로서의 사용과 관련하여 "-알킬-"로서 지칭될 수 있다.

[0055] 용어 "알킬실릴"은 규소 원자를 통해 분자의 나머지 부분에 연결된 알킬기를 나타내며, 이는 최대 3개의 독립적으로 선택되는 알킬기로 치환될 수 있고, 각각의 알킬기는 상기 정의된 바와 같다.

[0056] **실리카-기반 에어로겔**

[0057] 본 개시내용은 광범위한 범위의 모폴로지로 제공될 수 있는 실리카-기반 미소공성 에어로겔에 관한 것이다. 적합한 모폴로지의 예시적 예는 입자, 분말, 펠릿, 비드, 코팅, 시트/층, 캐스트 블록, 원기둥, 디스크, 다공성 막, 및 모놀리스를 포함할 수 있다. 예를 들어, 실리카-기반 에어로겔은 복수의 펠릿으로서 제공될 수 있다. 예를 들어, 실리카-기반 에어로겔은 필름/코팅층, 겔층으로서 제공될 수 있으며, 여기서, 가스 스트림은 층을 통해 또는 그 상부에서 흐를 수 있다. 이러한 층은 롤링된 시트 또는 3D 기재로서 제공될 수 있다. 대안적으로, 실리카-기반 에어로겔층은 또한 복수의 다공성 채널을 포함하는 모놀리스로서 제공될 수 있으며, 여기서, 가스 스트림은 이를 통해 흐른다. 다른 층 또는 코팅 모폴로지 및 기하학 구조가 또한 적용 가능하다.

[0058] 일 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 복수의 입자를 포함할 수 있다. 용어 "입자"("미립자"로도 지칭됨)는 별개의 고체 단위 형태를 지칭한다. 상기 단위는 플레이크, 섬유, 응집체, 과립, 펠릿, 분말, 비드, 구, 미분 물질 등뿐만 아니라 이의 조합의 형태를 취할 수 있다. 입자는 정육면체, 막대 유형, 다면체, 구 또는 반구, 원형(rounded) 또는 반원형, 각형, 부정형 등을 포함하지만, 이로 제한되지는 않는 임의의 소기의 형상을 가질 수 있다. 입자 모폴로지는 광학 현미경검사와 같은 임의의 적합한 수단에 의해 결정될 수 있다.

[0059] 일부 실시형태 또는 예에서, 에어로겔은 복수의 입자, 분말, 펠릿, 비드, 과립, 코팅, 또는 시트/층일 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 입자, 분말, 펠릿, 비드, 과립, 코팅, 또는 시트/층은 금속-유기 골격체, 나노입자, 나노-자성 입자, 다른 다공성 물질, 결합제, 완충액, 또는 이의 조합을 포함하는 균으로부터 선택되는 선택적 첨가제를 추가로 포함하는 조성물일 수 있다. 예를 들어, 실리카-기반 에어로겔은 복수의 입자, 분말, 펠릿으로서 제공될 수 있다. 일 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 복수의 펠릿으로서 제공될 수 있다. 일 실시형태에서, 적어도 하나의 첨가제(예를 들어, 결합제) 및 선택적으로 윤활제와 함께 실리카-기반 에어로겔은 함께 압축 또는 압출되어 복합체를 형성하는 형상/펠릿을 형성할 수 있다. 본 발명자들은 결합제의 선택이 에어로겔 조성물이 압축 또는 압출될 수 있는지 여부에 대한 결정 인자일 수 있음을 발견하였으며, 조성물에 첨가되는 결합제의 양이 최종 적용 또는 용도에 따라 좌우될 것임을 추가로 더 발견하였다. 에어로겔 복합체는 임의의 적합한 크기 및/또는 형상의 것일 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔 복합체는 평균 펠릿 크기를 가질 수 있다.

[0060] 금속 유기 골격체는 TIF-SIX-3-Ni , TIF-SIX-3-Ni , CuBTC , Mg-MOF-74 , Mg-MOF-74-ED , Nb-OFFIVE , 또는 이의 조합을 포함하는 균으로부터 선택될 수 있다. 나노입자는 탄소-기반 나노입자(예를 들어, 풀러렌 및 탄소 나노튜브), 금속 기반 나노입자(예를 들어, 알칼리 금속 및 귀금속), 세라믹 나노입자, 중합체성 나노입자, 지질-기반 나노입자, 퀀텀닷, 실리카 나노입자, 그래핀, 또는 이의 조합을 포함하는 균으로부터 선택될 수 있다. 나노-자

성 입자는 산화철, 페라이트, 또는 이의 조합을 포함하는 군으로부터 선택될 수 있다. 결합제는 셀룰로스-기반 중합체, 실란-기반 중합체, 셀룰로스-실록산-기반 중합체, 폴리글리콜-기반 중합체, 에폭시-기반 중합체, 콜로이드성 실리카, 폴리비닐 피롤리돈, 폴리비닐 알코올, 폴리에틸렌 이민, 또는 이의 조합을 포함하는 군으로부터 선택될 수 있다. 결합제는 상업적 결합제로부터 선택될 수 있다. 다른 성분이 상업적 결합제의 일부를 형성할 수 있는 것으로 인식될 것이다. 일 예에서, 결합제는 윤활제와 같은 다른 성분을 포함할 수 있다. 윤활제는 에어로겔 제형의 점도를 예를 들어 압출 가능한 물질로 조절하기 위해 필요한 경우 사용될 수 있다. 예를 들어, 다른 성분은 인산이칼슘, 이산화규소, 텍스트로스 일수화물, 및 마그네슘 스테아레이트를 포함할 수 있다. 완충액은 $(\text{NH}_4)_2\text{CO}_3$, $\text{NH}_4\text{CH}_3\text{CO}_2$, NH_3 , NH_4HCO_3 , 및 이산화탄소를 포함하는 군으로부터 선택될 수 있다.

[0061] 에어로겔 입자는 임의의 적합한 크기 및/또는 형상 및/또는 모폴로지의 것일 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔 입자는 평균 입자 크기를 가질 수 있다. 구형 실리카-기반 에어로겔 입자의 경우, 입자 크기는 입자의 직경이다. 비-구형 실리카-기반 에어로겔 입자의 경우, 입자 크기는 입자의 최장 단면적 수치이다. 일부 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔 입자는 약 10 nm 내지 약 2000 nm, 예를 들어 약 10 nm 내지 약 1000 nm 범위의 평균 입자 크기를 가질 수 있다. 실리카-기반 에어로겔 입자는 적어도 약 10, 20, 50, 100, 200, 300, 400, 500, 700, 1000, 1500, 또는 2000 nm의 평균 입자 크기를 가질 수 있다. 다른 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔 입자는 약 2000, 1500, 1000, 700, 500, 400, 300, 200, 100, 50, 20, 또는 10 nm 미만의 평균 입자 크기를 가질 수 있다. 다양한 범위를 형성하는 이들 입자 크기 값의 조합이 또한 가능하며, 예를 들어 실리카-기반 에어로겔 입자는 약 30 nm 내지 약 70 nm, 약 30 nm 내지 약 80 nm, 예를 들어 약 20 nm 내지 약 100 nm의 평균 입자 크기를 가질 수 있다. 평균 입자 크기는 당업자에게 알려진 임의의 수단, 예컨대 주사 전자 현미경법, 동적 광산란, 광학적 현미경검사, 또는 크기 배제 방법(예컨대, 등급화 체)에 의해 결정될 수 있다. 일 예에서, 평균 입자 크기를 측정하는 방법은 주사 전자 현미경법일 수 있다. 실리카-기반 에어로겔 입자는 제어된 평균 입자 크기를 가질 수 있으며, 이들의 모폴로지를 예를 들어 가스 스트림 및/또는 습한 또는 건조 환경과 접촉하는 동안 상이한 환경 및 전단 조건의 범위에서 유지할 수 있다.

[0062] 다른 실시형태에서, 실리카-기반 에어로겔은 자가 지지형일 수 있다. 본원에 사용된 용어 "자가 지지형"은 실리카-기반 에어로겔이 지지체 물질(예를 들어, 스케폴드)의 부재 시에 이의 모폴로지를 유지하는 능력을 지칭한다. 예를 들어, 실리카-기반 에어로겔은 복수의 입자를 포함할 수 있으며, 입자는 스케폴드 지지체의 부재 시에 이들의 모폴로지를 유지한다. 실리카-기반 에어로겔의 자가 지지형 성질은 특정 이점을 제공할 수 있으며, 예를 들어 에어로겔 입자가 유동층 반응기를 사용하여 가스 스트림과 접촉되도록 한다. 따라서, 일 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 별도의 지지체 구조, 예컨대 별도의 다공성 지지체 구조를 포함하지 않는다. 이는 에어로겔 자체가 다공성 성질인 것을 배제하지는 않는다. 따라서, 실리카-기반 에어로겔이 "자가 지지형"인 경우, 에어로겔에 외인적 지지체 물질(예를 들어, 스케폴드)이 없는 것으로 이해될 것이다.

[0063] 또 다른 실시형태에서, 실리카-기반 에어로겔은 컬럼 내의 층으로서 제공될 수 있으며, 여기서, 가스 스트림은 컬럼을 통해 흐르고, 실리카-기반 에어로겔 층을 통해 통과할 수 있다. 층은 임의의 특정 에어로겔 모폴로지로서 제한되지 않을 수 있다. 일 예에서, 적합한 컬럼은 복수의 실리카-기반 에어로겔 입자로 패키징되어 인접한 입자들 사이에 충분한 개체 공간을 갖는 패킹층을 형성하여 가스가 이를 통해 흐르도록 할 수 있다. 대안적으로, 실리카-기반 에어로겔은 가스 스트림과 함께 흐름으로서 제공될 수 있다(예를 들어, 유동층 반응기).

[0064] 또 다른 실시형태에서, 실리카-기반 에어로겔은 기재 상의 코팅 조성물로서 제공될 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 기재는 평면형, 예를 들어 평면형 시트일 수 있다. 특정 예에서, 기재는 가요성 시트일 수 있다. 평면형 기재는 상부에 실리카-기반 에어로겔 코팅 조성물이 적용될 수 있는 2개의 측면형 요소(sided element)를 제공한다. 각각의 기재는 2개의 대향 측면에 실리카-기반 에어로겔 코팅 조성물로 코팅될 수 있다. 평면형 기재는 임의의 구성을 가질 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 평면형 기재는 평평한 고체 표면을 포함할 수 있다. 다른 실시형태 또는 예에서, 평면형 기재는 기재를 통한 그리고 그 주변의 가스 흐름을 보조하도록 설계된 하나 이상의 구멍을 포함할 수 있다. 특정 실시형태 또는 예에서, 기재는 메쉬, 예를 들어 마이크로 와이어 메쉬를 포함할 수 있다. 메쉬의 사용은 다수의 구멍(예를 들어, 마이크로 크기 구멍)을 제공하며, 이로 인해 상부에 실리카-기반 에어로겔 코팅 조성물이 적용될 수 있는 높은 표면적을 제공하는 한편, 다른 구성, 예를 들어 패킹층과 비교하여 (메쉬의 크기 및 구성 대비) 기재 전반에 걸친 상당히 낮은 압력 강하를 갖는 적합한 흐름 경로를 또한 제공한다.

[0065] 본 개시내용은 미소공성 에어로겔인 실리카-기반 에어로겔을 제공한다. 에어로겔은 바람직하게는 낮은 메조공극도(mesoporosity)를 가질 수 있는 한편, 탁월한 미소공극도(microporosity)(기공 직경 $\leq 2\text{nm}$)를 유지할 수 있다.

일부 실시형태에서, 미소공성 에어로겔은 복수의 기공을 가질 수 있으며, 적어도 50%의 기공은 약 2 nm 미만의 직경을 갖는다. 바람직하게는, 적어도 60%의 기공은 약 2 nm 미만의 직경을 갖는다. 보다 바람직하게는, 적어도 70%의 기공은 약 2 nm 미만의 직경을 갖는다. 보다 더 바람직하게는, 적어도 80%의 기공은 약 2 nm 미만의 직경을 갖는다. 일부 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔의 공극도는 약 2 nm 미만일 수 있다. 기공 크기는 약 1.8 nm 미만일 수 있다. 미소공성 에어로겔은 메조다공성 에어로겔 및 마크로다공성 에어로겔과 상이한 것으로 이해될 것이다. 메조다공성 에어로겔은 2 내지 50 nm의 직경을 갖는 기공을 함유하며, 마크로다공성 에어로겔은 직경이 50 nm보다 큰 기공을 함유한다. 일부 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 약 0.1 nm 내지 약 2 nm, 예를 들어 약 0.2 nm 내지 약 2 nm 범위의 기공 크기를 가질 수 있다. 실리카-기반 에어로겔은 적어도 약 0.1, 0.2, 0.5, 1, 1.2, 1.4, 1.6, 1.8, 또는 2의 기공 크기(nm)를 가질 수 있다. 다른 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 약 2, 1.8, 1.6, 1.4, 1.2, 1, 0.5, 0.2, 또는 0.1 미만의 기공 크기(nm)를 가질 수 있다. 다양한 범위를 형성하는 이들 기공 크기 값의 조합이 또한 가능하며, 예를 들어 실리카-기반 에어로겔은 약 0.1 nm 내지 약 1.8 nm, 약 0.5 nm 내지 약 2 nm, 예를 들어 약 1 nm 내지 약 2 nm의 기공 크기를 가질 수 있다. 기공 크기는 당업자에게 알려진 임의의 수단, 예컨대 가스 흡착 실험, 수은 침투, 및 모세관 흐름 기공측정법(capillary flow porometry)에 의해 결정될 수 있다. 일 예에서, 기공 크기를 측정하는 방법은 양전자 소멸시간 분광학(PALS: positron annihilation lifetime spectroscopy)을 사용할 수 있다. 2 nm 이하의 기공을 갖는 미소공성 에어로겔은 본원에 기재된 원-포트 합성 동안 제조되는 것이 발견되었다. 2 nm 이하의 기공을 갖는 에어로겔이 대기로부터의 이산화탄소 포집(DAC)뿐만 아니라 폐쇄된 환경에서의 이산화탄소(DACi)에 가장 적합한 것이 또한 발견되었다.

[0066] 일부 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 약 $0.1 \text{ m}^2/\text{g}$ 내지 약 $500 \text{ m}^2/\text{g}$, 예를 들어 약 $2 \text{ m}^2/\text{g}$ 내지 약 $200 \text{ m}^2/\text{g}$ 범위의 표면적을 가질 수 있다. 실리카-기반 에어로겔은 적어도 약 0.1, 0.2, 0.5, 1, 2, 3, 4, 5, 10, 20, 50, 100, 200, 또는 500의 표면적(m^2/g)을 가질 수 있다. 다른 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 약 500, 200, 100, 50, 20, 10, 5, 4, 3, 2, 1, 0.5, 0.2, 또는 0.1 미만의 표면적(m^2/g)을 가질 수 있다. 다양한 범위를 형성하는 이들 표면적 값의 조합이 또한 가능하며, 예를 들어 실리카-기반 에어로겔은 약 $0.1 \text{ m}^2/\text{g}$ 내지 약 $500 \text{ m}^2/\text{g}$, 약 $2 \text{ m}^2/\text{g}$ 내지 약 $200 \text{ m}^2/\text{g}$, 예를 들어 약 $3 \text{ m}^2/\text{g}$ 내지 약 $150 \text{ m}^2/\text{g}$ 의 표면적을 가질 수 있다.

[0067] 일부 실시형태 또는 예에서, 에어로겔의 밀도는 약 $0.02 \text{ g}/\text{cm}^3$ 내지 약 $0.6 \text{ g}/\text{cm}^3$, 예를 들어 약 $0.05 \text{ g}/\text{cm}^3$ 내지 약 $0.5 \text{ g}/\text{cm}^3$ 범위일 수 있다. 실리카-기반 에어로겔의 밀도는 적어도 약 0.02, 0.05, 0.1, 0.15, 0.2, 0.25, 0.3, 0.35, 0.4, 0.45, 0.5, 0.55, 또는 $0.6 \text{ g}/\text{cm}^3$ 일 수 있다. 다른 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔의 밀도는 약 0.6, 0.55, 0.5, 0.45, 0.4, 0.35, 0.3, 0.25, 0.2, 0.15, 0.1, 0.05, 또는 $0.02 \text{ g}/\text{cm}^3$ 미만일 수 있다. 다양한 범위를 형성하는 이들 밀도 값의 조합이 또한 가능하며, 예를 들어 실리카-기반 에어로겔은 약 $0.02 \text{ g}/\text{cm}^3$ 내지 약 $0.6 \text{ g}/\text{cm}^3$, 약 $0.05 \text{ g}/\text{cm}^3$ 내지 약 $0.5 \text{ g}/\text{cm}^3$, 약 $0.15 \text{ m}^2/\text{g}$ 내지 약 $0.4 \text{ g}/\text{cm}^3$, 예를 들어 약 $0.2 \text{ m}^2/\text{g}$ 내지 약 $0.6 \text{ m}^2/\text{g}$, 또는 약 $0.3 \text{ m}^2/\text{g}$ 내지 약 $0.6 \text{ m}^2/\text{g}$ 의 밀도를 가질 수 있다. 더 높은 밀도의 에어로겔은 중량이 고려 사항인 적용에 가장 적합할 것이다. 고밀도를 갖는 제형은 제한된 공간 또는 환경에 적합할 수 있는 CO_2 흡착-탈착 장치에 사용될 수 있다. 이들 유형의 장치는 전형적으로 공간, 항공우주, 잠수정 또는 수중 플랫폼에 사용될 수 있다. 예를 들어, 항공우주 또는 공간 적용에서 에어로겔은 대기 공기로부터 CO_2 를 포집하는 데 사용될 수 있다. 저밀도를 갖는 제형은 공간이 이슈가 아닐 때, 적합할 수 있다. 예를 들어, 온실 또는 동력 발전소에 배치되는 DAC 유닛은 CO_2 의 메탄으로의 전환에 관여하였다.

[0068] 일부 실시형태 또는 예에서, 아미노 알킬 실란 단위로부터의 아미노기의 함량은 이산화탄소(CO_2) 포집을 촉진하기 위한 유리 아민기를 제공하기에 유효할 수 있으며, 유리 아민 함량은 약 60 mol% 미만일 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 아미노 알킬 실란기의 함량은 약 10 mol% 내지 약 60 mol%, 예를 들어 약 20 mol% 내지 약 40 mol% 범위일 수 있다. 유리 아민 함량은 적어도 약 10, 15, 20, 25, 30, 35, 40, 45, 50, 55, 또는 60 mol%일 수 있다. 다른 실시형태 또는 예에서, 유리 아민 함량은 약 60, 55, 50, 45, 40, 35, 30, 25, 20, 15, 또는 10 mol% 미만일 수 있다. 다양한 범위를 형성하는 이들 유리 아민 함량 값의 조합이 또한 가능하며, 예를 들어 유리 아민 함량은 약 10 mol% 내지 약 60 mol%, 약 15 mol% 내지 약 50 mol%, 예를 들어 약 20 mol% 내지 약

40 mol%의 mol% 값을 가질 수 있다. 아미노 알킬 실란 단위로부터의 아미노기가 이산화탄소(CO₂) 포집을 촉진하기 위한 유리 아민기를 제공하기에 유효한 한편, 아미노 알킬 실란 단위로부터의 메틸기는 요구되는 소수성을 제공한다. 바꾸어 말하면, 본 개시내용의 한 가지 이점은 에어로겔이 공기로부터 CO₂를 흡착할 때 물 흡착과 경쟁하지 않도록 하는 소수성으로 인해 실리카-기반 에어로겔이 다양한 상대 습도 환경에서 작동될 수 있다는 것이다. 제올라이트 13X 또는 TIF-SIX와 달리, 본 발명자들은 놀랍게도 본원에 기재된 미소공성 에어로겔이 양호한 물 흡착 특성을 제공하지 않아서 이들을 CO₂의 선택적 흡착에 훨씬 우수하도록 만드는 것을 발견하였다.

[0069] 일부 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔을 형성하는 적어도 하나의 아미노 치환된 실란, 적어도 하나의 실리케이트, 및 선택적으로 적어도 하나의 알킬 치환된 실란의 반응 생성물은 아미노 알킬기 및 알킬기로부터 선택되는 복수의 펜던트 기(pendant group)를 갖는 실록산 골격을 포함한다. 실록산 골격에 존재하는 소수성 아미노 알킬기 및 알킬기 그리고 규소 원자당 이용 가능한 오직 3개의 실록산 결합으로 인해, 본원에 기재된 실리카-기반 에어로겔은 소수성일 수 있으며, 일반적으로 종래의 테트라알콕시실란으로부터 유래된 것들보다 더 낮은 가교 밀도 및 더 높은 변형성을 가질 수 있는 것으로 인식될 것이다. 이러한 이로운 특징은 추가의 용매 교환 및 표면 개질의 사용 없이 건조 공정에 의해 낮은 부피의 수축을 달성하기 위해 실리카-기반 에어로겔의 미세 구조를 추가로 엔지니어링하는 데 더 큰 잠재성을 제공할 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔을 형성하는 적어도 하나의 아미노 치환된 실란, 적어도 하나의 실리케이트, 및 선택적으로 적어도 하나의 알킬 치환된 실란의 반응 생성물은 가수분해 및 축합 반응을 겪어서 폴리알킬실록산 네트워크 구조를 형성할 수 있다. 이들 가수분해 및 축합 반응은 실리카-기반 에어로겔의 미소구조의 원인이 될 수 있다. 일 실시형태 또는 예에서, 반응 생성물은 아미노 알킬기 및 알킬기로부터 선택되는 복수의 펜던트 기를 갖는 실록산 골격을 포함할 수 있으며, 분자량 기준으로 실록산 골격에 대한 펜던트 기의 몰비는 적어도 60%일 수 있다. 분자량 기준으로 실록산 골격에 대한 펜던트 기의 몰비는 약 60% 내지 약 160%, 예를 들어 약 80% 내지 약 140% 범위일 수 있다. 분자량 기준으로 실록산 골격에 대한 펜던트 기의 몰비는 적어도 약 60, 65, 70, 75, 80, 85, 90, 95, 100, 110, 120, 130, 140, 150, 또는 160%일 수 있다. 다른 실시형태 또는 예에서, 분자량 기준으로 실록산 골격에 대한 펜던트 기의 몰비는 약 160, 150, 140, 130, 120, 110, 100, 90, 95, 90, 85, 80, 75, 70, 65, 또는 60% 미만일 수 있다. 다양한 범위를 형성하는 이들 몰비 값의 조합이 또한 가능하며, 예를 들어 분자량 기준으로 실록산 골격에 대한 펜던트 기의 몰비는 약 60% 내지 약 160%, 약 65% 내지 약 150%, 예를 들어 약 70% 내지 약 140%의 %값을 가질 수 있다.

[0070] 일 실시형태에서, 아미노 치환된 실란은 화학식 1에 따를 수 있으며: $R^1Si(OR^2)_n-L-NH_2$, 상기 식에서, R^1 은 C₁₋₆알킬로부터 선택될 수 있거나, 부재하고; R^2 는 C₁₋₆알킬이고; L은 규소와 질소 원자 사이의 -C₁₋₆알킬-연결기이고; n은 2 또는 3일 수 있다. 아미노 치환된 실란은 에어로겔 제형의 총 중량을 기준으로 적어도 약 40 mol%의 로딩%를 가질 수 있다. 아미노 치환된 실란은 에어로겔 제형의 총 중량을 기준으로 약 60 mol% 미만의 로딩%를 가질 수 있다.

[0071] 일 실시형태에서, 알킬 치환된 실란은 화학식 2에 따를 수 있으며: $R^5Si(OR^6)_n$, 상기 식에서, R^5 및 R^6 은 각각 독립적으로 C₁₋₆알킬로부터 선택될 수 있고; m은 1일 수 있고, n은 3일 수 있거나, m 및 n은 각각 2일 수 있다. 알킬 치환된 실란은 에어로겔 제형의 총 중량을 기준으로 적어도 약 10 mol%의 로딩%를 가질 수 있다. 알킬 치환된 실란은 에어로겔 제형의 총 중량을 기준으로 약 40 mol% 미만의 로딩%를 가질 수 있다.

[0072] 일 실시형태에서, 실리케이트는 화학식 3에 따를 수 있으며: $Si(OR^7)_4$, 상기 식에서, R^7 은 C₁₋₆알킬일 수 있다. 실리케이트는 에어로겔 제형의 총 중량을 기준으로 적어도 약 20 mol%의 로딩%를 갖는다. 실리케이트는 에어로겔 제형의 총 중량을 기준으로 약 40 mol% 미만의 로딩%를 가질 수 있다.

[0073] 아미노 실란기의 함량은 이산화탄소(CO₂) 포집을 촉진하기 위한 유리 아민기를 제공하기에 유효할 수 있으며, 유리 아민 함량은 에어로겔 제형의 총 중량을 기준으로 약 60 mol% 미만일 수 있다. 일 실시형태 또는 예에서, 아미노 치환된 실란은 총 에어로겔 제형을 기준으로 약 40 내지 약 60 mol%의 로딩%를 갖는 3-아미노프로필 (디에톡시) 메틸 실란일 수 있다.

[0074] 일 실시형태 또는 예에서, 에어로겔은 적어도 하나의 아미노 치환된 실란, 적어도 하나의 실리케이트, 및 선택적으로 적어도 하나의 알킬 치환된 실란의 반응 생성물을 포함하거나, 이로 구성될 수 있다.

- [illegible]

트는 약 30 mol%의 로딩%를 갖는 테트라에틸 오르소실리케이트이다.

- [illegible]

필(디에톡시)메틸실란이고, 알킬 치환된 실란은 약 40 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시메틸실란 및 약 20 mol%의 로딩%를 갖는 트리에톡시(에틸)실란이다.

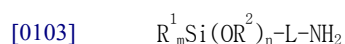
[0098] *아미노 치환된 실란*

[0099] CO₂는 실리카-기반 에어로겔 내로 흡수되는 것에 의해 가스 스트림으로부터 포집될 수 있다. 예를 들어, CO₂는 화학적 또는 물리적 공정에 의해 실리카-기반 에어로겔 내로 흡수될 수 있다. 일부 실시형태에서, 아미노 치환된 실란은 CO₂를 결합할 수 있는 작용기를 포함할 수 있다. 예를 들어, 실리카-기반 에어로겔과 접촉 시, 이의 다공성 성질로 인해, 낮은 CO₂ 농도 가스가 실리카-기반 에어로겔 내의 개재 기공을 통해 통과하고, 아미노 치환된 실란 상의 작용기와 반응 및 결합할 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 아미노 치환된 실란은 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림과 접촉할 때, CO₂를 흡수할 수 있다. CO₂를 흡수할 수 있는 적합한 아미노 치환된 실란은 본원에 기재된 하나 이상의 아미노 치환된 실란을 포함한다. 일부 실시형태 또는 예에서, 아미노 치환된 실란은 화학적 또는 물리적 공정에 의해 CO₂를 흡수할 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 아미노 치환된 실란은 CO₂에 결합할 수 있는 작용기를 포함한다. 예를 들어, 아미노 치환된 실란은 하나 이상의 아민기, 예컨대 1차 아민(-NH₂)을 포함할 수 있다. 이러한 아민기는 CO₂-친화성이며, CO₂와 용이하게 반응 및 결합할 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 아미노 치환된 실란은 예를 들어 3-아미노프로필 (디에톡시) 메틸 실란과 같이 하나 이상의 아민기를 포함한다.

[0100] 일부 실시형태 또는 예에서, 아민 치환된 실란은 약 10 mol% 내지 50 mol%의 1차 아민(-NH₂) 기("유리 아민 함량"으로도 본원에 지칭됨)를 포함할 수 있다. 1차 아민(-NH₂) 기의 mol%는 적어도 약 10, 15, 20, 25, 30, 35, 40, 45, 또는 50일 수 있다. 다른 실시형태 또는 예에서, 1차 아민(-NH₂) 기의 mol%는 약 50, 45, 40, 35, 30, 25, 20, 15, 또는 10 미만일 수 있다. 다양한 범위를 형성하는 이들 mol% 값의 조합이 또한 가능하며, 예를 들어, 1차 아민(-NH₂) 기의 mol%는 약 10 mol% 내지 50 mol%, 약 15 mol% 내지 약 45 mol%, 예를 들어 약 20 mol% 내지 약 40 mol%의 값을 가질 수 있다.

[0101] 일부 실시형태 또는 예에서, 아미노 치환된 실란은 적어도 하나 이상의 지방족 아민기(즉, 방향족 고리기가 아민의 질소 원자에 직접 결합되지 않은 아민)를 포함할 수 있다.

[0102] 일부 실시형태 또는 예에서, 아미노 치환된 실란은 화학식 1에 따르며:



[0104] **화학식 1**

[0105] 상기 식에서,

[0106] R¹은 C₁₋₆알킬이거나, 부재할 수 있고;

[0107] R²는 C₁₋₆알킬일 수 있고;

[0108] L은 규소와 질소 원자 사이의 -C₁₋₁₂알킬-연결기이고;

[0109] n은 2 또는 3일 수 있다. R¹이 존재할 때, n은 2이고, R¹이 부재할 때, n은 3인 것으로 인식될 것이다.

[0110] 일부 실시형태 또는 예에서, 아미노 치환된 실란은 1 내지 6개의 원자 사슬을 갖는 상기 또는 본원에 기재된 임의의 알킬로 제공될 수 있는 C₁₋₆알킬을 포함할 수 있다.

[0111] 일부 실시형태 또는 예에서, 아미노 치환된 실란은 1 내지 4개의 원자 사슬을 갖는 상기 또는 본원에 기재된 임의의 알킬로 제공될 수 있는 C₁₋₄알킬을 포함할 수 있다.

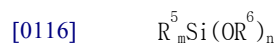
[0112] 아미노 치환된 실란의 알킬기는 1 내지 4개의 탄소 원자를 포함할 수 있다. 알킬기는 메틸, 에틸, 프로필, n-부틸, t-부틸, 또는 보다 높은 탄소의 알킬기일 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 아미노 치환된 실란은 3-아미노프로필 (디에톡시) 메틸 실란, 3-아미노프로필-트리에톡시실란, 3-아미노프로필-트리메톡시실란, N-(2-아미

노에틸)-3-아미노프로필트리에톡시실란, 또는 이의 조합을 포함하거나, 이로 구성되는 군으로부터 선택될 수 있다. 예를 들어, 아미노 치환된 실란은 3-아미노프로필 (디에톡시) 메틸 실란 또는 3-아미노프로필-트리에톡시실란을 포함하거나, 이로 구성된 군으로부터 선택될 수 있다.

[0113] 알킬 치환된 실란

[0114] 알킬 실란기는 소수성 및 미소공극도의 요소가 가능하도록 하는 데 유효하다. 바꾸어 말하면, 본 개시내용의 한 가지 이점은 에어로겔이 공기로부터 CO₂를 흡착할 때 물 흡착과 경쟁하지 않도록 하는 소수성으로 인해 실리카-기반 에어로겔이 다양한 상대 습도 환경에서 작동될 수 있다는 것이다. 또한, 실리카-기반 에어로겔은 상기 기재된 아미노 치환된 실란 상의 반응성 작용기에 대한 CO₂의 접근성을 증가시킬 수 있는 미소 크기의 기공을 갖는 보다 개방형 구조를 효과적으로 생성하는 실리카-기반 에어로겔의 미소공극도를 가능하도록 하는 알킬 실란기를 포함할 수 있다.

[0115] 일부 실시형태 또는 예에서, 알킬 치환된 실란은 화학식 2에 따르며:



[0117] **화학식 2**

[0118] 상기 식에서,

[0119] R⁵ 및 R⁶은 각각 독립적으로 C₁₋₆알킬로부터 선택되고;

[0120] m은 1일 수 있고, n은 3일 수 있거나, m 및 n은 각각 2일 수 있다.

[0121] 일부 실시형태 또는 예에서, 알킬 치환된 실란은 1 내지 6개의 원자 사슬을 갖는 상기 또는 본원에 기재된 임의의 알킬로 제공될 수 있는 C₁₋₆알킬을 포함할 수 있다.

[0122] 알킬 치환된 실란의 알킬기는 1 내지 6개의 탄소 원자를 포함할 수 있다. 알킬 치환된 실란은 또한 추가의 작용기를 가질 수 있다. 알킬기는 메틸, 에틸, 프로필, n-부틸, t-부틸, 또는 보다 높은 탄소의 다른 알킬기일 수 있다. 본 개시내용의 알킬 치환된 실란은 모노, 디, 또는 트리 알킬기를 함유할 수 있으며, 메틸트리메톡시실란, 메틸트리에톡시실란, 에틸트리메톡시실란, 에틸트리에톡시실란, 프로필트리메톡시실란, 프로필트리에톡시실란, 디메틸디메톡시실란, 디메틸디에톡시실란, 디에틸디메톡시실란, 디에틸디에톡시실란, 트리메틸메톡시실란, 트리메틸에톡시실란, 트리에틸메톡시실란, 트리에틸에톡시실란, 트리프로필메톡시실란, 트리프로필에톡시실란, (3,3,3-트리플루오로프로필)트리메톡시실란, (3,3,3-트리플루오로프로필)트리에톡시실란, 및 이의 조합으로 구성된 군으로부터 선택될 수 있다.

[0123] **실리케이트**

[0124] 실리케이트는 실리카-기반 에어로겔 매트릭스에 포함될 수 있으며, CO₂ 포집에 유효한, 수득되는 실리카-기반 에어로겔에 관한 고유한 특성을 갖는 복합체 구조를 생성할 수 있다. 실리케이트는 화학식 3에 따르며:



[0126] **화학식 3**

[0127] 상기 식에서,

[0128] R⁷은 C₁₋₆알킬이다.

[0129] 일부 실시형태 또는 예에서, 실리케이트는 1 내지 6개의 원자 사슬을 갖는 상기 또는 본원에 기재된 임의의 알킬로 제공될 수 있는 C₁₋₆알킬을 포함할 수 있다.

[0130] 실리케이트의 알킬기는 1 내지 6개의 탄소 원자를 포함할 수 있다. 알킬기는 메틸, 에틸, 프로필, n-부틸, t-부틸, 또는 보다 높은 탄소의 다른 알킬기일 수 있다. 본 개시내용의 실리케이트는 테트라알콕시실란으로부터 선택될 수 있다. 예를 들어, 실리케이트는 테트라메톡시실란, 테트라에톡시실리케이트, 또는 이의 조합일 수 있다.

[0131] 실리카-기반 에어로겔을 제조하기 위한 공정

[0132] 일부 실시형태 또는 예에서, 미소공성 에어로겔을 제조하기 위한 공정이 제공된다. 특히, 본 개시내용은 적어도 하나의 아미노 치환된 실란, 적어도 하나의 실리케이트, 및 선택적으로 적어도 하나의 알킬 치환된 실란의 반응 생성물로부터 본원에 기재된 실리카-기반 에어로겔을 제조하기 위한 신규 공정을 제공한다. 일부 실시형태에서, 실리카-기반 미소공성 에어로겔을 제조하기 위한 공정(여기서, 미소공성 에어로겔은 복수의 기공을 포함하고, 적어도 50%의 기공은 약 2 nm 미만의 직경을 가짐)은 (i)(a) 적어도 하나의 아미노 치환된 실란, 적어도 하나의 실리케이트, 및 선택적으로 적어도 하나의 알킬 치환된 실란을 포함하는 수용액, 선택적으로 완충액, 선택적으로 하나 이상의 첨가제, 및 용매 시스템을 혼합하여 습윤 겔 매트릭스를 형성하는 단계; 및 (ii) 습윤 겔 매트릭스를 건조하여 건조된 실리카-기반 에어로겔을 제공하는 단계를 포함하거나, 이로 구성될 수 있으며, 단, 습윤 겔 매트릭스를 건조하는 단계는 초임계 CO₂를 수반하지 않는다. 일부 실시형태 또는 예에서, 단계 (i)은 (i)(b) 습윤 겔 매트릭스를 행구는 단계를 추가로 포함한다. 습윤 겔을 행구는 것은 용매 교환 및 물질의 기공 내의 부산물의 제거를 가능하도록 한다. 본원에 기재된 적어도 일부 실시형태 또는 예에 따른 본 공정의 하나 이상의 이점은 본 공정이 CO₂를 포집할 수 있는 미소공성 에어로겔을 제조하는 데 짧은 반응 시간(예를 들어, 48시간 이상과 비교하여 일부 제형에 대해 대략 6시간) 및 겔화 시간(예를 들어, 대략 5 내지 30분)을 갖는 확장 가능한 원-포트 합성이라는 것이다. 합성 및 세척 단계는 오븐 또는 수조 및 가장 기본적인 반응 용기를 필요로 한다. 전문적 가스 또는 압력 용기가 기재된 공정에 필요하지 않으며, 바람직한 후보의 전형적 밀도는 0.3 내지 0.6 g/mL 범위일 수 있어서 더 적은 부피의 에어로겔이 탄소 포집 장치의 실질적 현실화에 사용되도록 한다. 합성 비용 및 설비 비용 둘 모두의 재정적 이점은 매우 이롭다. 이는 이전의 공정, 예를 들어 미국 특허 제 9,931,612 B2(Aspen)와 다소 상이하며, 여기서, 메조다공성 에어로겔 합성은 매우 긴, 다단계의 공정 및 초임계 건조를 수반한다. 예를 들어, Aspen은 적어도 2 단계의 졸 겔 공정 및 초임계 CO₂ 추출을 사용하는 용매 제거를 수반하는 에어로겔 합성을 기술한다. 예를 들어, (i) 전구체를 함유하는 2개의 별개의 졸을 상이한 온도 및 시간에서 제조하는 단계, (ii) 2개의 별개의 졸을 조합하는 단계, (iii) 겔화가 2일 내에 발생하도록 하는 단계, 및 (iv) 액체 CO₂를 사용하여 초임계 건조하는 단계.

[0133] 일부 실시형태 또는 예에서, 적어도 하나의 아미노 치환된 실란 및 적어도 하나의 알킬 치환된 실란은 단계 (ii) 전에 산성 매질(예를 들어, 유기산, 예컨대 염산 또는 인산) 중에서 가수 분해될 수 있다.

[0134] 예를 들어, (i) 적어도 하나의 아미노 치환된 실란, 적어도 하나의 실리케이트, 및 선택적으로 적어도 하나의 알킬 치환된 실란을 포함하는 수용액, 선택적으로 완충액, 선택적으로 하나 이상의 첨가제, 및 용매 시스템을 혼합하여 습윤 겔 매트릭스를 형성하는 단계는 주위 온도에서 적어도 24시간 동안 진행될 수 있거나 약 60°C 내지 약 80°C로 약 6시간 동안 가열될 수 있다. (i)(b) 습윤 겔 매트릭스를 충분한 양의 물로 행구어서 용매(예를 들어, 에탄올)를 물과 교환하는 단계는 습윤 겔 매트릭스가 건조되도록 하여(단계 (ii)에서), 개방형 다공성 겔(예를 들어, 건조된 실리카-기반 에어로겔)을 형성한다. 용매를 제거하는 데의 실패는 불량한 성능을 갖는 "경질" 겔을 초래할 수 있다. 용매를 제거하기 위해 충분한 양의 물로 행구어진 습윤 겔 매트릭스는 임의의 잔류 물을 제거하기 위해 실온에서 건조되고, 약 80°C 내지 100°C로 가열될 수 있다.

[0135] 일부 실시형태 또는 예에서, 본 공정은 졸 겔 공정일 수 있으며, 단계 (ii)는 (a1) 습윤 겔 매트릭스를 선택적으로 가열하여 겔을 수득하는 단계; 및 (a2) 겔을 용매 증발 및/또는 열 처리에 의해 건조하여 건조된 실리카-기반 에어로겔을 제공하는 단계를 포함하거나, 이로 구성될 수 있다.

[0136] 다른 실시형태 또는 예에서, 본 공정은 (b1) 습윤 겔 매트릭스가 기재에 적용되어 기재를 코팅하는 습윤 겔 코팅을 형성하는 단계; 및 (b2) 습윤 겔 필름을 용매 증발 및/또는 열 처리에 의해 건조하여 건조된 실리카-기반 코팅된 기재를 제공하는 단계를 포함할 수 있는 대안적 단계 (ii)를 포함할 수 있다. 일 실시형태 또는 예에서, 건조 단계 (ii)는 진공 건조 또는 동결 건조일 수 있다. 바람직하게는, 건조 단계는 진공 건조이다. 건조 단계 (ii)는 초임계 CO₂를 수반하지 않는 것으로 인식될 것이다.

[0137] 단계 (i)에서, 알코겔 또는 단계 (a1)에서, 졸 겔(예를 들어, 콜로이드성 용액)이 본 공정으로부터 형성될 수 있으며, 모폴로지가 별개의 입자에서 연속적 중합체 네트워크까지의 범위일 수 있는 액체상 및 고체상 둘 모두를 함유하는 겔-유사 2상 시스템의 형성을 향해 점진적으로 발달한다(에이징 공정). 일부 실시형태 또는 예에서, 입자 밀도가 낮을 수 있어서 겔-유사 특성이 인식되도록 상당한 양의 액체가 초기에 제거되는 것이 필요할 수 있도록 한다. 다른 실시형태 또는 예에서, 원심 분리가 사용되어 상 분리 공정 및 겔 형성을 가속화하여 에이징된 알코겔 또는 에이징된 졸 겔을 형성할 수 있다. 잔여 액체(용매)상의 제거는 건조 단계가 필요할

수 있다(예를 들어, 단계 (ii) 및 단계 (a2)).

- [0138] 기공 크기는 주로 아미노 치환된 실란과 알킬 치환된 실란의 농도 및 겔화 조건에 의해 결정될 수 있다. 아미노 치환된 실란과 알킬 치환된 실란의 농도가 높을수록, 더 적은 기공 크기를 갖는 알코겔 또는 졸 겔의 밀도가 높을 수 있다. 아미노 치환된 실란과 알킬 치환된 실란의 동일한 농도 하에, 더 높은 온도에서의 더 빠른 겔화는 가속화된 화학 반응 및 클러스터 응집을 수반하여 실리카-기반 에어로겔 내의 상대적으로 더 큰 공극(또는 기공)에 이르는 반면, 더 낮은 온도에서의 더 느린 겔화는 더 적은 공극(또는 기공)을 유발할 수 있다. 한편, 겔화 시 형성되는 실록산 네트워크 구조는 건조 공정 동안 네트워크 구조가 네트워크의 무결성을 유지할 수 있도록 추가로 성장 및 강화되는 것이 필요할 수 있다. 이러한 강화 및 보강 효과는 에이징 공정을 통해 달성될 수 있으며, 여기서, 미반응된 다수의 -OR 및 -OH 기는 지속적으로 응축되고, Si-O-Si 결합을 형성할 수 있다.
- [0139] 실리케이트의 첨가는 4개의 다른 규소 원자에 공유 결합을 형성하며, 이로 인해 실록산 네트워크 구조의 강성을 증가시킬 수 있다. 아미노 치환된 실란 및 알킬 치환된 실란은 실록산 네트워크 구조 내에 오직 2개 또는 3개의 공유 결합을 형성하여 유연성을 허용할 수 있다.
- [0140] 단계 (a1) 및 (b1) 전에, 습윤 겔 매트릭스는 적합한 온도로 가열되고, 그 온도에서 유지될 수 있다(에이징 공정). 일부 실시형태 또는 예에서, 습윤 겔 매트릭스는 약 20℃ 내지 약 100℃ 범위에서 가열될 수 있다. 습윤 겔 매트릭스의 온도는 적어도 약 20, 25, 30, 35, 40, 45, 50, 55, 60, 65, 70, 75, 80, 85, 90, 95, 또는 100℃일 수 있다. 습윤 겔 매트릭스의 온도는 약 100, 95, 90, 85, 80, 75, 70, 65, 60, 55, 50, 45, 40, 35, 30, 25, 또는 20℃ 미만일 수 있다. 이들 가열 온도의 조합, 예를 들어 약 20℃ 내지 약 30℃, 약 25℃ 내지 약 80℃, 또는 약 75℃ 내지 약 85℃가 또한 가능하다.
- [0141] 적어도 본원에 기재된 일부 실시형태 또는 예에 따라, 습윤 겔 매트릭스는 반응 용기를 요구된 온도에서 오븐 내에 침지시키는 것에 의해 소기의 온도로 가열될 수 있으며, 용액이 요구된 온도에 도달하도록 한다.
- [0142] 적어도 본원에 기재된 일부 실시형태 또는 예에 따라, 습윤 겔 매트릭스는 단계 (a1) 및 (b1)에서의 온도에서 약 3시간 내지 약 24시간 동안 유지될 수 있다. 습윤 겔 매트릭스는 단계 (a1) 및 (b1)의 온도에서 적어도 약 3, 6, 9, 12, 15, 18, 21, 또는 24시간 동안 유지될 수 있다. 습윤 겔 매트릭스는 단계 (a1) 및 (b1)의 온도에서 24, 21, 18, 15, 12, 9, 6, 또는 3시간 미만 동안 유지될 수 있다. 이들 시간의 조합, 예를 들어 6시간 내지 12시간이 또한 가능하다.
- [0143] 일부 실시형태 또는 예에서, 습윤 겔 매트릭스는 이어서 단계 (a1) 및 (b1) 동안 주위 온도로 냉각될 수 있다. 일 실시형태 또는 예에서, 습윤 겔 매트릭스는 주위 온도로 냉각될 수 있다.
- [0144] 일 예에서, 습윤 겔의 형성 후, 잔류 용매 및 유기 반응 생성물은 습윤 겔 매트릭스의 가소화를 방지하도록 제거될 수 있다. 이들은 매트릭스를 부수고, 적어도 10배의 과량의 물 중에 1시간 이상 동안 침지시키는 것에 의해 물과 교체된다. 물 교체는 습윤 겔 매트릭스가 붕괴되는 것으로부터 보호할 수 있으며, 또한 임의의 미반응된 실란이 Si-O-Si 결합을 형성하도록 할 수 있다. 불충분한 물 교체는 전통적 방법을 사용하여 건조되는 전형적 에어로겔과 유사하지 않는 겔을 초래할 수 있다. 용매(예를 들어, 에탄올) 교환은 동결 건조 방법 또는 다른 감압 건조 공정이 사용될 때, 덜 중요해진다. 아미노 치환된 실란, 예컨대 화학식 1의 것들(예를 들어, 3-아미노프로필 (디에톡시) 메틸 실란)의 혼입은 용매화 매트릭스가 모든 규소 원자가 3개 이상의 다른 산소 원자에 공유 결합되는 전통적 에어로겔과 달리 여전히 가소성 특성을 가짐을 의미한다.
- [0145] 습윤 겔 매트릭스의 건조 동안 용매를 공기 중에 증발시킬 때, 습윤 겔 매트릭스는 건조 공정 동안 공기/액체 계면에서 모세관힘 및 용매 추출 속도에서의 차이로 인해 초래되는 수축 및 균열을 겪을 가능성이 있으며, 초임계 건조 공정이 이를 억제하기 위해 통상적으로 사용된다. 그러나, 초임계 건조는 고온에서 수행되고, 제조 비용을 증가시키며, 이로 인해 에어로겔의 상업화에 장애물을 제공한다. 예를 들어, 미국 특허 제9,931,612 B2호 (Aspen)는 먼저 2개의 상이한 졸을 형성하는 단계 및 이어서 졸을 혼합하여 겔을 형성하는 단계 및 이후 초임계 CO₂ 건조를 사용하는 단계에 의한 메조다공성 에어로겔의 형성을 위한 2단계 공정을 개시한다. 초임계 CO₂ 건조는 일반적으로 메조다공성 에어로겔의 기공 내의 임의의 용매를 제거하는 데 사용되며, 겔이 액체 CO₂에 적용된 다음, 액체가 초임계 유체로 전환될 때까지 압력 하에 CO₂ 액체 충전된 겔을 가열한다. 에어로겔의 목적이 공기로부터 CO₂를 포집하기 위한 것일 때, CO₂를 기공 내로 도입하여 용매를 교환하는 것은 환경 친화적 방안이 아니기 때문에, 이는 Aspen 공정에 대한 주요 단점인 것으로 인식될 것이다. 또 다른 주요 차이점은 상기 2단계 공정이 기공 크기가 훨씬 더 큰 메조다공성 겔이 형성되도록 하는 것이다. 메조다공성 겔은 CO₂의 선택적 흡착에

덜 효과적이며, CO₂ 수준이 약 12 내지 14%인 연도 가스 중의 CO₂의 포집을 위한 것과 같이 보다 고농도의 CO₂가 존재하는 경우에 사용하기에 보다 적합한 것으로 발견되었다.

[0146] 본원에 기재된 적어도 일부 실시형태 또는 예에 따른 본 공정의 하나 이상의 이점은 습윤 겔 매트릭스가 다른 건조 공정에 의해 이전에 관찰된 영향을 최소화하는 것에 의해 건조되어 건조된 실리카-기반 에어로겔을 수득한다는 것이다. 본 개시내용에 의해 기재된 건조 공정은 감압 건조, 주위 압력 또는 진공 건조, 동결 건조, 또는 이의 다양한 조합을 포함하는 다양한 이로온 방식으로 수행될 수 있다. 바람직하게는, 진공 건조 또는 동결 건조.

[0147] 단계 (ii)의 경우, 습윤 겔 매트릭스는 건조된 실리카-기반 에어로겔을 제조하기에 적합한 온도에서 건조될 수 있다. 일 예에서, 습윤 겔 매트릭스가 감압 건조를 사용하여 건조될 때, 건조 장비는 약 40 내지 약 60℃, 또는 약 55℃에서 제어될 것이고, 초기 건조 압력은 주위 대기압일 것이고, 진공 펌프는 적어도 약 4시간, 6시간, 8시간, 10시간, 12시간, 14시간, 16시간, 18시간, 20시간, 22시간, 또는 24시간 동안 진공 건조(-80 kPa)를 시작하기 위해 켜져서 건조 실리카-기반 에어로겔을 제조할 수 있다. 다른 예에서, 습윤 겔 매트릭스가 동결 건조 공정을 사용하여 건조될 때, 습윤 겔 매트릭스는 적어도 약 4시간, 6시간, 8시간, 10시간, 12시간, 14시간, 16시간, 18시간, 20시간, 22시간, 또는 24시간 동안 전형적 동결 건조 조건 하에서 유지되어 건조 실리카-기반 에어로겔을 제조한다. 또 다른 예에서, 습윤 겔 매트릭스가 주위 압력을 사용하거나, 오븐 내에서 건조될 때, 온도는 약 40℃ 내지 약 60℃, 또는 약 50℃에서 제어될 수 있고, 습윤 겔 매트릭스는 주위 압력 하에서 또는 진공 내에서 적어도 약 4시간, 6시간, 8시간, 10시간, 12시간, 14시간, 16시간, 18시간, 20시간, 22시간, 또는 24시간 동안 유지되어 건조 실리카-기반 에어로겔을 제조한다.

[0148] 일부 실시형태 또는 예에서, 아미노 치환된 실란은 본원에 기재된 화학식 1의 것일 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 알킬 치환된 실란은 본원에 기재된 화학식 2의 것일 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 실리케이트는 본원에 기재된 화학식 3의 것일 수 있다.

[0149] 일부 실시형태 또는 예에서, 용매는 물, 비수성 용매, 또는 이의 조합일 수 있다. 1 내지 6개의 탄소 원자를 함유하는 알코올을 포함하는 다양한 비수성 용매가 본 공정의 단계 (i)(a) 및 단계 (i)(b)에서 사용될 수 있다. 일 실시형태 또는 예에서, 용매는 메탄올, 에탄올, 프로판올, 부탄올, 이소부틸 알코올, t-부틸 알코올, 펜탄올, 헥산올, 및 이의 조합으로부터 선택될 수 있다. 일 실시형태 또는 예에서, 에탄올이 용매로서 사용될 수 있다. 예를 들어, 에탄올은 본 공정에서 물과 조합하여 사용될 수 있다. 다양한 비율의 물이 또한 졸-겔 반응을 달성하기 위해 수반될 수 있다. 물은 또한 이들 반응 중 일부의 생성물일 수 있다. 비율 및 용매는 침전 또는 상 분리가 방지될 수 있도록 조절될 수 있다.

[0150] 일부 실시형태 또는 예에서, 본 공정은 단계 (iii) 활성화 단계를 추가로 포함할 수 있다. 본 공정에 의해 제조되는 실리카-기반 에어로겔은 약 80℃ 내지 약 160℃ 범위의 온도에서 활성화될 수 있다. 활성화 온도는 적어도 약 80, 90, 100, 110, 120, 130, 140, 150, 또는 160℃일 수 있다. 활성화 온도는 약 160, 150, 140, 130, 120, 110, 100, 90, 또는 80℃ 미만일 수 있다. 이들 활성화 온도의 조합이 가능하며, 예를 들어 활성화 온도는 약 80℃ 내지 약 160℃, 약 90℃ 내지 약 150℃, 또는 약 100℃ 내지 약 140℃일 수 있다.

[0151] 일부 실시형태 또는 예에서, 하나 이상의 첨가제는 완충액, 결합제, 선택적으로 금속 유기 골격체(MOF), 및 나노입자로부터 선택될 수 있다. 첨가제의 총량은, 존재할 때, 에어로겔 제형의 50% 미만일 수 있다. MOF는, 첨가제로서 존재할 때, 에어로겔 제형의 10% 미만, 바람직하게는 5% 미만일 것이다. 일부 실시형태 또는 예에서, 본 공정에 의해 제조되는 실리카-기반 에어로겔은 복수의 입자, 분말, 펠릿, 비드, 과립, 코팅, 또는 시트/층일 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 입자, 분말, 펠릿, 비드, 과립, 코팅, 또는 시트/층은 조성물일 수 있으며, 금속-유기 골격체, 나노입자, 나노-자성 입자, 결합제, 완충액, 또는 이의 조합을 포함하는 군으로부터 선택되는 선택적 첨가제를 추가로 포함할 수 있다. 일 실시형태에서, MOF는, 존재할 때, 에어로겔 형성 후에 표면 개질제로서 사용되어 비드 또는 펠릿을 제조할 목적을 위해 에어로겔 표면을 개질한다. 다른 실시형태 또는 예에서, 본 공정에 의해 제조되는 실리카-기반 에어로겔은 복수의 펠릿으로서 제공될 수 있다. 펠릿은 금속-유기 골격체, 나노입자, 나노-자성 입자, 결합제, 완충액, 또는 이의 조합을 포함하는 군으로부터 선택되는 선택적 첨가제를 추가로 포함할 수 있다. 일 예에서, 펠릿은 결합제 및 선택적 윤활제와 조합하여 본 공정에 의해 제조되는 실리카-기반 에어로겔을 포함하거나, 이로 구성될 수 있다. 결합제는 셀룰로스-기반 중합체, 실란-기반 중합체, 셀룰로스-실록산-기반 중합체, 폴리글리콜-기반 중합체, 에폭시-기반 중합체, 콜로이드성 실리카, 폴리비닐 피롤리돈, 폴리비닐 알코올, 폴리에틸렌 이민, 또는 이의 조합을 포함하는 군으로부터 선택될 수 있다. 결합제는 상업적 결합제로부터 선택될 수 있다. 다른 성분이 상업적 결합제의 일부를 형성할 수 있음이 인식될

것이다. 일 예에서, 결합제는 윤활제와 같은 다른 성분을 포함할 수 있다. 윤활제는 에어로겔 제형의 점도를 예를 들어 압출 가능한 물질로 조절하기 위해 필요한 경우 사용될 수 있다. 예를 들어, 다른 성분은 인산이칼슘, 이산화규소, 텍스트로스 일수화물, 및 마그네슘 스테아레이트를 포함할 수 있다.

[0152] 일부 실시형태 또는 예에서, 첨가제의 양은 총 에어로겔 조성물을 기준으로 약 1 내지 약 50 wt.% 범위일 수 있다. 첨가제의 양은 적어도 약 1, 5, 10, 15, 20, 25, 30, 35, 40, 45, 또는 50 wt.%일 수 있다. 실리케이트의 양은 약 50, 45, 40, 35, 30, 25, 20, 15, 10, 5, 또는 1 wt.% 미만일 수 있다. 이들 양의 조합이 가능하며, 예를 들어 첨가제의 양은 약 10 wt.% 내지 약 50 wt.%, 약 15 wt.% 내지 약 45 wt.%, 또는 약 20 wt.% 내지 약 40 wt.%일 수 있다. 예를 들어, 결합제의 양은 총 에어로겔 조성물을 기준으로 약 10 wt.% 내지 약 50 wt.%, 약 15 wt.% 내지 약 45 wt.%, 또는 약 20 wt.% 내지 약 40 wt.% 범위일 수 있다.

[0153] 추가의 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 복합제의 형태일 수 있으며, 상기 복합제는 건조된 실리카-기반 에어로겔, 결합제, 및 선택적으로 윤활제로 구성된 혼합물을 펠릿으로 압축하는 것에 의해 제조될 수 있다. 추가의 실시형태 또는 예에서, 에어로겔 복합제는 (i) 본원에 기재된 임의의 하나의 실시형태 또는 예에 따른 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하는 에어로겔 또는 이의 조합; (ii) 하나 이상의 첨가제-첨가제는 약 5 내지 35 wt.%의 로딩%를 가짐-; (iii) 선택적으로 윤활제; 및 (iii) 선택적으로 용매를 포함하거나, 이로 구성될 수 있다. 또 추가의 실시형태 또는 예에서, 에어로겔 복합제는 (i) 본원에 기재된 임의의 하나의 실시형태 또는 예에 따른 아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 반응 생성물을 포함하는 에어로겔 또는 이의 조합; (ii) 하나 이상의 첨가제-첨가제는 약 5 내지 35 wt.%의 로딩%를 가짐-; 및 (iii) 선택적으로 윤활제를 포함하거나, 이로 구성될 수 있다.

[0154] 일부 실시형태에서, 복합제는 (c1) 본원에 기재된 임의의 하나 이상의 실시형태 또는 예에 따른 에어로겔, 선택적으로 윤활제, 및 하나 이상의 첨가제로 구성된 혼합물을 펠릿으로 압축하는 단계-하나 이상의 첨가제는 약 5 내지 35 wt.%의 로딩%를 가짐-; 또는 (c2) 본원에 기재된 임의의 하나 이상의 실시형태 또는 예에 따른 에어로겔, 하나 이상의 첨가제, 선택적으로 윤활제, 및 용매로 구성된 혼합물을 액체 압출하여 점성질 페이스트를 제공하는 단계-하나 이상의 첨가제는 약 5 내지 35 wt.%의 로딩%를 가짐-;에 의해 제조될 수 있다. 하나 이상의 첨가제는 결합제, 선택적으로 금속 유기 골격체(MOF), 및 나노입자로부터 선택될 수 있다. 특정 실시형태에서, 하나 이상의 첨가제는 결합제일 수 있다. 결합제는 셀룰로스-기반 중합체, 실란-기반 중합체, 셀룰로스-실록산-기반 중합체, 폴리글리콜-기반 중합체, 폴리비닐 피롤리돈, 폴리비닐 알코올, 폴리에틸렌 이민, 벤토나이트, 흑연, 또는 이의 조합을 포함하는 군으로부터 선택될 수 있다. 본원에 기재된 임의의 하나 이상의 실시형태 또는 예에 따른 임의의 둘 이상의 에어로겔의 조합이 본 공정에 사용되어 복합제를 제조할 때, 복합제는 혼합된 에어로겔 복합제로 지칭될 수 있는 것으로 인식될 것이다.

[0155] 다른 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 복합제의 형태일 수 있으며, 상기 복합제는 건조된 실리카-기반 에어로겔, 결합제, 및 선택적으로 윤활제로 구성된 혼합물을 액체 압출하여 점성질 페이스트를 제공하는 것에 의해 제조될 수 있다. 또 다른 예에서 실리카-기반 에어로겔은 복합제의 형태일 수 있으며, 상기 복합제는 건조된 실리카-기반 에어로겔, 결합제, 선택적 윤활제, 및 용매로 구성된 혼합물을 액체 압출하여 점성질 페이스트를 제공하는 것에 의해 제조될 수 있으며, 이는 예를 들어 기재 상에 코팅으로서 사용될 수 있다.

[0156] 일부 실시형태 또는 예에서, 하나 이상의 첨가제는 결합제, 선택적으로 금속 유기 골격체(MOF), 계면활성제, 및 나노입자로부터 선택될 수 있다. 첨가제는, 존재할 때, 에어로겔 제형의 35% 미만, 바람직하게는 10% 미만일 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 본 공정에 의해 제조되는 실리카-기반 에어로겔은 복수의 입자, 분말, 펠릿, 비드, 과립, 코팅, 또는 시트/층일 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 입자, 분말, 펠릿, 비드, 과립, 코팅, 또는 시트/층은 조성물일 수 있으며, 금속-유기 골격체, 나노입자, 나노-자성 입자, 결합제, 또는 이의 조합을 포함하는 군으로부터 선택되는 선택적 첨가제를 추가로 포함할 수 있다. 일 실시형태에서, MOF는, 존재할 때, 에어로겔 형성 후에 표면 개질제로서 사용되어 비드 또는 펠릿을 제조할 목적을 위해 에어로겔의 표면을 개질한다.

[0157] 일부 실시형태에서, 복합제 펠릿은 본원에 기재된 건조된 에어로겔을 약 5 내지 약 35 wt.%의 첨가제(예를 들어, 결합제) 및 선택적 윤활제와 혼합하는 것에 의해 제조될 수 있다. 다른 실시형태에서, 복합제 페이스트가 본원에 기재된 건조된 에어로겔을 약 5 내지 약 35 wt.%의 첨가제(예를 들어, 결합제), 선택적 윤활제, 및 용매(예를 들어, 에탄올과 물의 수용액)와 혼합하는 것에 의해 제조될 수 있다. 수득되는 점성질 페이스트는 액체 압출에 의해 복합제 펠릿을 형성하는 데 사용될 수 있거나, 기재 상의 코팅으로서 사용하기 위해 필요한 경우, 추가로 희석될 수 있다.

- [0158] 첨가제(예를 들어, 결합제)의 로딩%는 적어도 약 5, 10, 15, 20, 25, 30, 또는 35 wt.%일 수 있다. 다른 실시 형태 또는 예에서, 첨가제(예를 들어, 결합제)의 로딩%는 약 35, 30, 25, 20, 15, 10, 또는 5 wt.% 미만일 수 있다. 다양한 범위를 형성하는 이들 값의 조합이 또한 가능하며, 예를 들어 첨가제(예를 들어, 결합제)의 로딩%는 약 5 wt.% 내지 약 30 wt.%, 약 8 wt.% 내지 약 25 wt.%, 예를 들어 약 10 wt.% 내지 약 20 wt.%일 수 있다.
- [0159] 일 실시형태 또는 예에서, 본 공정에 의해 제조되는 실리카-기반 에어로겔은 자가 지지형일 수 있다. 상기 언급된 바와 같이, 본원에 사용된 용어 "자가 지지형"은 실리카-기반 에어로겔이 지지체 물질(예를 들어, 스캐폴드)의 부재 시에 이의 모폴로지를 유지하는 능력을 지칭한다. 예를 들어, 본 공정에 의해 제조되는 실리카-기반 에어로겔은 복수의 입자를 포함할 수 있으며, 입자는 스캐폴드 지지체의 부재 시에 이들의 모폴로지를 유지한다. 실리카-기반 에어로겔의 자가 지지형 성질은 특정 이점을 제공할 수 있으며, 예를 들어 에어로겔 입자가 유동층 반응기를 사용하여 가스 스트림과 접촉되도록 한다. 따라서, 일 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 별도의 지지체 구조, 예컨대 별도의 다공성 지지체 구조를 포함하지 않는다. 따라서, 실리카-기반 에어로겔이 "자가 지지형"인 경우, 에어로겔에 외인적 지지체 물질(예를 들어, 스캐폴드)이 없는 것으로 이해될 것이다.
- [0160] 다른 실시형태 또는 예에서, 본 공정에 의해 제조되는 실리카-기반 에어로겔은 컬럼 내의 층으로서 제공될 수 있으며, 여기서, 가스 스트림은 컬럼을 통해 흐르고, 실리카-기반 에어로겔 층을 통해 통과한다. 층은 임의의 특정 실리카-기반 에어로겔 모폴로지로 제한되지 않는다. 일 예에서, 적합한 컬럼은 복수의 실리카-기반 에어로겔 입자로 패킹되어 인접 입자들 사이에 충분한 개재 공간을 패킹층을 형성하여 이를 통한 가스 흐름을 허용할 수 있다. 대안적으로, 실리카-기반 에어로겔은 가스 스트림과 함께 흐름으로 제공될 수 있다(예를 들어, 유동층 반응기).
- [0161] 다른 실시형태 또는 예에서, 본 공정에 의해 제조되는 실리카-기반 에어로겔은 기재 상의 코팅 조성물로서 제공될 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 기재는 평면형, 예를 들어 평면형 시트일 수 있다. 특정 예에서, 기재는 가요성 시트일 수 있다. 평면형 기재는 상부에 실리카-기반 에어로겔 코팅 조성물이 적용될 수 있는 2개의 측면형 요소를 제공한다. 각각의 기재는 2개의 대향 측면에 실리카-기반 에어로겔 코팅 조성물로 코팅될 수 있다. 평면형 기재는 임의의 구성을 가질 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 평면형 기재는 평평한 고체 표면을 포함할 수 있다. 다른 실시형태 또는 예에서, 평면형 기재는 기재를 통한 그리고 그 주변의 가스 흐름을 보조하도록 설계된 하나 이상의 구멍을 포함할 수 있다. 특정 실시형태 또는 예에서, 기재는 메쉬, 예를 들어 마이크로 와이어 메쉬를 포함할 수 있다. 메쉬의 사용은 다수의 구멍(예를 들어, 마이크로 크기 구멍)을 제공하며, 이로 인해 상부에 실리카-기반 에어로겔 코팅 조성물이 적용될 수 있는 높은 표면적을 제공하는 한편, 다른 구성, 예를 들어 패킹층과 비교하여 (물론 메쉬의 크기 및 구성 대비) 기재 전반에 걸친 상당히 낮은 압력 강하를 갖는 적합한 흐름 경로를 또한 제공한다.
- [0162] 일부 실시형태 또는 예에서, 아미노 치환된 실란의 양은 총 에어로겔을 기준으로 약 10 내지 약 80 wt.% 범위일 수 있다. 아미노 치환된 실란의 양은 적어도 약 10, 15, 20, 25, 30, 35, 40, 45, 50, 55, 60, 65, 70, 75, 또는 80 wt.%일 수 있다. 아미노 치환된 실란의 양은 약 80, 75, 70, 65, 60, 55, 50, 45, 40, 35, 30, 25, 20, 15, 또는 10 wt.% 미만일 수 있다. 이들 양의 조합이 가능하며, 예를 들어 아미노 치환된 실란의 양은 약 10 wt.% 내지 약 60 wt.%, 약 20 wt.% 내지 약 50 wt.%, 약 35 wt.% 내지 약 45 wt.%, 또는 약 40 wt.% 내지 약 60 wt.%일 수 있다.
- [0163] 일부 실시형태 또는 예에서, 알킬 치환된 실란의 양은 총 에어로겔을 기준으로 약 10 내지 약 80 wt.% 범위일 수 있다. 알킬 치환된 실란의 양은 적어도 약 10, 15, 20, 25, 30, 35, 40, 45, 50, 55, 60, 65, 70, 75, 또는 80 wt.%일 수 있다. 알킬 치환된 실란의 양은 약 80, 75, 70, 65, 60, 55, 50, 45, 40, 35, 30, 25, 20, 15, 또는 10 wt.% 미만일 수 있다. 이들 양의 조합이 가능하며, 예를 들어 알킬 치환된 실란의 양은 약 10 wt.% 내지 약 60 wt.%, 약 15 wt.% 내지 약 65 wt.%, 또는 약 20 wt.% 내지 약 40 wt.%일 수 있다.
- [0164] 일부 실시형태 또는 예에서, 실리케이트의 양은 총 에어로겔을 기준으로 약 10 내지 약 50 wt.% 범위일 수 있다. 실리케이트의 양은 적어도 약 10, 15, 20, 25, 30, 35, 40, 45, 50, 55, 60, 65, 70, 75, 또는 80 wt.%일 수 있다. 실리케이트의 양은 약 80, 75, 70, 65, 60, 55, 50, 45, 40, 35, 30, 25, 20, 15, 또는 10 wt.% 미만일 수 있다. 이들 양의 조합이 가능하며, 예를 들어 실리케이트의 양은 약 10 wt.% 내지 약 50 wt.%, 약 15 wt.% 내지 약 45 wt.%, 또는 약 20 wt.% 내지 약 40 wt.%일 수 있다.

[0165] 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림

[0166] 본 개시내용의 공정은 CO₂ 농도의 가스 스트림으로부터 CO₂를 포집할 수 있다. 예를 들어, 본 공정은 낮은 CO₂ 농도의 대기로부터 CO₂를 포집할 수 있다. 저농도의 가스 스트림의 예는 대기(예를 들어, 주위 공기), 환기된 공기(예를 들어, 공기 조화 유닛 및 빌딩 환기), 온실 유형 환경(여기서, CO₂는 특정 시간에서 흡착되고, 상이한 시간에서 사용됨), 및 호흡 공기(breathing air)를 재순환하는 일부 폐쇄된 시스템(예를 들어, 잠수함, 우주선, 항공기, 또는 수중 호흡기)을 포함한다.

[0167] 본원에 기재된 미소공성 에어로겔은 낮은 수준의 CO₂를 포함하는 공기로부터 CO₂를 흡착하기에 가장 적합하다. 바람직하게는, 미소공성 에어로겔은 직접적 CO₂ 포집 적용에 사용될 수 있다. 미소공성 에어로겔은 10,000 ppm 미만(10% CO₂), 바람직하게는 7,000 ppm 미만의 CO₂(7% CO₂), 보다 바람직하게는 500 ppm 미만의 CO₂(5% CO₂), 그리고 보다 더 바람직하게는 500 ppm 미만(0.5% CO₂)의 공기로부터 CO₂를 흡착하기에 적합하다. 미소공성 에어로겔은 또한 50 ppm 미만(0.05% CO₂)을 포함하는 공기로부터 CO₂를 흡착하기에 적합하다. 예를 들어, 미소공성 에어로겔은 대략 0.04%의 CO₂를 갖는 대기로부터 또는 CO₂ 수준이 약 360 ppm 내지 약 412 ppm인 경우, CO₂의 직접적 공기 포집에 사용하기에 적합하다. 미소공성 에어로겔은 또한 약 2.5% 미만의 CO₂ 수준을 갖는 폐쇄된 환경 또는 최대 약 7% 이하의 보다 높은 CO₂ 수준을 갖는 폐쇄된 환경에서 CO₂를 흡착하고, 공기를 정화하는 데 사용될 수 있다.

[0168] 바람직하게는, 물을 포함하는 가스 스트림으로부터 CO₂에 대한 선택성은 50% 초과이다. 예를 들어, 미소공성 에어로겔은 H₂O보다 CO₂에 대한 50% 초과 선택성으로 500 ppm 미만의 CO₂ 및 적어도 1000 ppm의 H₂O 농도를 포함하는 공기로부터 CO₂를 흡착하는 데 사용될 수 있다.

[0169] 일부 실시형태 또는 예에서, 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림은 약 200,000 백만부(ppm) 미만의 CO₂ 농도를 가질 수 있다. 일 실시형태 또는 예에서, 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림은 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, 또는 100 ppm 미만의 CO₂ 농도를 가질 수 있다. 다른 실시형태 또는 예에서, 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림은 약 100 ppm 내지 약 100,000 ppm, 약 400 ppm 내지 약 20,000 ppm, 약 3,000 ppm 내지 약 150,000 ppm, 약 4,000 ppm 내지 약 5,000 ppm, 약 100 ppm 내지 약 10,000 ppm, 약 100 ppm 내지 약 1,000 ppm, 또는 약 100 ppm 내지 약 500 ppm의 CO₂ 농도를 가질 수 있다. 일 실시형태에서, 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림은 약 200 ppm 내지 약 500 ppm, 또는 약 400 ppm 내지 약 500 ppm, 또는 약 400 ppm 내지 약 450 ppm의 CO₂ 농도를 가질 수 있다.

[0170] 1 ppm은 0.0001 부피%와 동일한 것으로 이해될 것이다. 예를 들어, 약 100,000 ppm 미만의 CO₂ 농도를 갖는 가스 스트림은 가스 스트림 중의 10.0 부피%의 CO₂ 농도와 동일하다. 따라서, 일부 실시형태 또는 예에서, 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림은 약 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, 또는 0.01 부피% 미만의 CO₂ 농도를 가질 수 있다. 다른 실시형태 또는 예에서, 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림은 약 0.01 부피% 내지 약 15 부피%, 약 3 부피% 내지 약 15 부피%, 약 4 부피% 내지 약 5 부피%, 0.1 부피% 내지 약 2 부피%, 약 0.01 부피% 내지 약 1 부피%, 약 0.01 부피% 내지 약 0.1 부피%, 또는 0.01 부피% 내지 약 0.05 부피%의 CO₂ 농도를 가질 수 있다. 일 실시형태 또는 예에서, 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림은 약 0.02 부피% 내지 약 0.05 부피%, 예컨대 약 0.04 부피%의 CO₂ 농도를 가질 수 있다.

[0171] 일 실시형태 또는 예에서, 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림은 주위 공기(예를 들어, 대기)에서와 동일한 CO₂ 농도를 가질 수 있다. 따라서, 일 예에서, 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림은 전세계의 대부분의 위치에서의 주위 공기와 같은 약 400 ppm 내지 약 450 ppm의 CO₂, 예를 들어 약 400 ppm 내지 415 ppm의 CO₂ 농도를 가질 수 있다. 따라서, 일 실시형태에서, 본 공정은 직접적 공기 포집(DAC)이다.

[0172] 일 실시형태 또는 예에서, 본 공정은 실내의 밀폐된 환경(DACi)에서의 직접적 공기 포집을 위한 것이다.

따라서, CO₂ 농도의 가스 스트림은 최대 2,000 ppm의 CO₂ 농도를 가질 수 있다.

[0173] 일 실시형태 또는 예에서, 본 공정은 마스크 또는 개인용 보호 장비(DACp)에서의 날숨의 직접적 공기 포집을 위한 것이다. 따라서, CO₂ 농도의 가스 스트림은 약 4,000 ppm 내지 약 5,000 ppm의 CO₂ 농도를 가질 수 있다.

[0174] 일 실시형태 또는 예에서, 본 공정은 외부 동력 발전소(DACex)에서의 직접적 공기 포집을 위한 것이다. 따라서, CO₂ 농도의 가스 스트림은 약 3,000 ppm 내지 약 150,000 ppm의 CO₂ 농도를 가질 수 있다.

[0175] 일 실시형태 또는 예에서, 가스 스트림은 100 ppm(즉, 0.01 부피%) 미만의 탄화수소 가스를 포함할 수 있다. 예를 들어, 가스 스트림은 약 100, 75, 50, 25, 20, 15, 10, 5, 4, 3, 또는 2 ppm 미만의 탄화수소 가스를 포함할 수 있다. 용어 '탄화수소 가스'는 메탄, 에탄, 에틸렌, 프로판, 및 다른 C₃+ 탄화수소를 포함하지만, 이로 제한되지는 않는 탄화수소 화합물의 가스 혼합물을 지칭하는 것으로 이해될 것이다. 예를 들어, 주위 공기는 소량의 불순물(예를 들어, 2 ppm/0.0002 부피%)로서 메탄을 포함하며, 따라서 주위 공기는 3 ppm 미만의 탄화수소 가스를 포함할 수 있는 것으로 당업자에 의해 이해될 것이다. 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림은 대개 가스 스트림 중의 주요 부피% 비율을 이루는 질소로 구성될 수 있다. 예를 들어, 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림은 적어도 약 50 부피%의 질소, 예를 들어 적어도 약 70 부피%의 질소를 포함할 수 있다. 일 실시형태에서, 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림은 약 78 부피%의 질소를 포함한다(예를 들어, 주위 공기).

[0176] 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림은 상당한 양의 물을 포함할 수 있다(예를 들어, 가스 스트림은 습기가 있고(damp)/습하고(moist), 예를 들어 습윤 가스 스트림임). 예를 들어, 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림은 약 1 부피% 내지 약 10 부피%의 물을 포함할 수 있다. 대안적으로, 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림은 건조 가스 스트림일 수 있다.

[0177] 대안적 실시형태에서, 본 공정은 높은 CO₂ 농도의 가스 스트림 또는 대기로부터 CO₂를 포집할 수 있다. 예를 들어, 높은 CO₂ 농도의 가스 스트림 또는 대기는 925 mbar의 CO₂ 농도(100 부피%)를 가질 수 있다.

[0178] 일부 실시형태 또는 예에서, 가스 스트림은 환기 시스템, 예를 들어 빌딩 환기 또는 공기 조화로부터 유래된다. 다른 실시형태 또는 예에서, 가스 스트림은 예를 들어 잠수함, 우주선, 또는 비행기에서의 호흡 가스를 재순환 하도록 설계된, 폐쇄된 또는 적어도 일부 폐쇄된 시스템으로부터 유래된다. 본 개시내용의 실리카-기반 에어로겔은 또한 더 높은 CO₂ 농도를 갖는 가스 스트림으로부터 CO₂를 흡수할 수 있는 것으로 인식될 것이며, 이는 광범위한 범위의 공기 포집 적용에 대한 실리카-기반 에어로겔의 다재다능함을 강조한다. 일 예에서, 100 부피%의 CO₂ 농도(예를 들어, 925 mbar)의 고농도에서 CO₂를 포집하는 실리카-기반 에어로겔의 유효성이 놀랍게도 본 발명자들에 의해 발견되었다. 다른 예에서, 15 부피%의 CO₂ 농도(예를 들어, 150 mbar)를 갖는 연도 가스 조건(예를 들어, 외부 동력 발전소)과 동일한 농도에서 CO₂를 포집하는 실리카-기반 에어로겔의 유효성이 또한 놀랍게도 본 발명자들에 의해 발견되었다. 다른 예에서, 최대 2 부피%의 CO₂ 농도(예를 들어, 2,000 ppm)를 갖는 실내의 밀폐된 환경에서 CO₂를 포집하는 실리카-기반 에어로겔의 유효성이 또한 놀랍게도 본 발명자들에 의해 발견되었다. 실내 밀폐된 환경에서의 2 부피% 미만의 CO₂ 농도는 예를 들어 방, 잠수함, 우주선, 비행기, 또는 임의의 다른 폐쇄된 환경을 포함할 수 있다. 또 다른 예에서, 약 4 내지 5 부피%의 CO₂ 농도(예를 들어, 약 4,000 ppm 내지 약 5,000 ppm)의 농도의 마스크/개인용 보호 장비에서의 날숨으로부터 CO₂를 포집하는 실리카-기반 에어로겔의 유효성이 또한 놀랍게도 본 발명자들에 의해 발견되었다. 예를 들어, 0.04 부피%(예를 들어, 400 ppm)의 상대적으로 저농도에서 CO₂를 포집하는 실리카-기반 에어로겔의 유효성이 특히 놀랍게도 본 발명자들에 의해 발견되었다. 0.04 부피% 또는 500 ppm 미만의 CO₂ 농도는 대기로부터의 직접적 공기 포집(DAC)을 지칭하는 것으로 인식될 것이다.

[0179] 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림 또는 대기는 실리카-기반 에어로겔과 접촉된다. 가스 스트림은 실리카-기반 에어로겔과 접촉(예를 들어, 이를 통해 통과)하기에 적합한 유량을 가질 수 있다. 대안적으로, 가스 스트림은 적용되는 임의의 배압 또는 유량 없이 실리카-기반 에어로겔과 접촉하게 될 수 있다(예를 들어, 가스 스트림은 접촉 시 유기적으로 실리카-기반 에어로겔 내로 확산될 수 있음). 일부 실시형태 또는 예에서, 가스 스트림은 예를 들어 실리카겔 기반 에어로겔이 온실에 구성될 때와 같이 실리카-기반 에어로겔 주위의 대기, 예를 들어 낮은

CO₂ 농도의 대기일 수 있다. 일부 실시형태에서, 가스 스트림은 실리카-기반 에어로겔을 통해 통과하거나(예를 들어, 실리카-기반 에어로겔 상의 제1 측면 또는 면으로부터 유입되고, 상이한 측면 또는 면으로부터 배출됨), 이는 예를 들어 실리카-기반 에어로겔이 대기, 예컨대 주위 공기 중에 배치될 때, 실리카-기반 에어로겔 내로 단순히 확산될 수 있다. 이와 같이, 일부 실시형태에서, 가스 스트림은 본질적으로 가스 스트림이 실리카-기반 에어로겔을 "관통"하도록 하는 배압이 적용될 필요가 없는 것으로 이해될 것이나, 일부 실시형태에서, 이는 예컨대 실리카-기반 에어로겔이 예를 들어 빌딩 환기 시스템을 구성할 때, 바람직할 수 있다. 일 실시형태에서, 가스 스트림(예를 들어, 대기)은 실리카-기반 에어로겔과 접촉 시 실리카-기반 에어로겔 내로 확산된다.

[0180] 일부 실시형태 또는 예에서, 가스 스트림은 유량을 갖지 않으며, 예를 들어 0 m³/시간이다. 일부 실시형태 또는 예에서, 가스 스트림은 약 0.01 m³/시간 내지 약 1500 m³/시간의 유량을 갖는다. 가스 스트림의 유량(m³/시간)은 적어도 약 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, 또는 1500일 수 있다. 가스 스트림의 유량(m³/시간)은 약 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, 또는 0.01 미만일 수 있다. 이들 유량의 조합이 가능하며, 예를 들어 가스 스트림의 유량은 약 0.01 m³/시간 내지 약 1500 m³/시간, 약 5 m³/시간 내지 약 1000 m³/시간, 약 10 m³/시간 내지 약 500 m³/시간, 약 20 m³/시간 내지 약 200 m³/시간, 또는 약 60 m³/시간 내지 약 1000 m³/시간일 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔과 접촉할 때 가스 스트림의 유량을 증가시키는 것은 실리카-기반 에어로겔에서의 더 빠른 속도의 CO₂ 흡수 및 포집에 이를 수 있다. 산업적 규모의 적용을 위해서는, 가스 스트림의 유량은 최대 1000 m³/시간일 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 가스 스트림은 유량을 갖지 않는다(예를 들어, 주위 대기).

[0181] 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림은 실리카-기반 에어로겔과 접촉하기 전에 가스 스트림 중에 존재하는 적어도 일부의 수분(H₂O)을 제거하도록 적어도 일부 건조될 수 있다. 예를 들어, 가스 스트림은 10%, 8%, 6%, 4%, 2%, 또는 1% 미만의 습도 또는 이들 값 중 임의의 둘 사이의 습도, 예를 들어 약 1% 내지 약 10%, 약 1% 내지 약 6%, 약 1% 내지 약 4%로 건조될 수 있다. 가스 스트림은 임의의 종래 수단(예를 들어, 흡습성 물질을 통해 통과시키거나, 열원과 접촉됨)에 의해 건조될 수 있으며, 이의 습도는 본원에 기재된 프로토콜을 통해 측정된다.

[0182] 일부 실시형태 또는 예에서, 낮은 CO₂ 농도의 가스 스트림은 실리카-기반 에어로겔과 접촉하기 전에 초기 CO₂ 농도를 갖고, 실리카-기반 에어로겔과 접촉한 후에 최종 CO₂ 농도(유출 가스 스트림 및/또는 유출 CO₂ 농도로도 본원에서 지칭됨)를 갖는다. CO₂는 가스 스트림으로부터 실리카-기반 에어로겔 내로 흡수되기 때문에, 유출 스트림 중의 CO₂ 농도는 실리카-기반 에어로겔과 접촉(예를 들어, 이를 통해 통과)하기 전의 가스 스트림의 초기 CO₂ 농도보다 더 낮을 것으로 인식될 것이다.

[0183] 가스 스트림 중의 CO₂ 농도는 임의의 적합한 수단, 예를 들어 가스 크로마토그래피-질량 분광법, 동위원소 분석기(예를 들어, G2201-i 동위원소 분석기(PICARRO) 및/또는 적외선 분광기(예를 들어, 인라인 보정된 공동 광자 감쇠 IR 분광기(in-line calibrated cavity ring-down IR spectrometer))에 의해 측정될 수 있다. 가스 스트림 중의 CO₂ 농도는 임의의 적합한 수단, 예를 들어 0 내지 100% 범위를 다루는 SprintIR®-6S 및 0 내지 1% 범위의 CO₂를 갖는 K30 주위 센서(ambient sensor)에 의해 모니터링될 수 있다.

[0184] 흡착 장치

[0185] 일부 실시형태 또는 예에서, 본원에 기재된 적어도 하나의 실리카-기반 에어로겔을 포함하는 챔버를 포함하는, 가스 스트림 또는 대기로부터 이산화탄소를 포집하기 위한 흡착 장치가 제공되며, 상기 챔버는 가스 스트림이 실리카-기반 에어로겔로 흐를 수 있는 주입구 및 유출 가스 스트림이 실리카-기반 에어로겔로부터 흘러나올 수 있는 배출구를 포함한다. 적어도 하나의 실리카-기반 에어로겔은 챔버의 주입구와 배출구 사이에 배치될 수 있다.

[0186] 유체 흐름은 전형적으로 챔버의 주입구로부터, 포함된 적어도 하나의 실리카-기반 에어로겔 전반에 걸쳐, 그리고 배출구를 통해 챔버 외부로 가스 스트림을 이동시키는 데 필요하다. 유체 흐름은 유체 흐름을 흡착 장치의 주입구로부터 배출구에 이르게 하는 적어도 하나의 유체 흐름 장치에 의해 움직일 수 있다. 다양한 여러 가지

유체 흐름 장치가 사용될 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 유체 흐름 장치는 적어도 하나의 팬 또는 펌프를 포함한다. 일부 실시형태 또는 예에서, 주입구를 통해 유입되는 가스 스트림의 유량은 적어도 하나의 실리카-기반 에어로겔 전반에 걸쳐 약 $0.01 \text{ m}^3/\text{시간}$ 내지 $1500 \text{ m}^3/\text{시간}$ 일 수 있다. 가스 스트림의 유량($\text{m}^3/\text{시간}$)은 적어도 약 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, 또는 1500일 수 있다. 가스 스트림의 유량($\text{m}^3/\text{시간}$)은 약 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, 또는 0.01 미만일 수 있다. 이들 유량의 조합이 가능하며, 예를 들어 가스 스트림의 유량은 약 $0.01 \text{ m}^3/\text{시간}$ 내지 약 $1500 \text{ m}^3/\text{시간}$, 약 $5 \text{ m}^3/\text{시간}$ 내지 약 $500 \text{ m}^3/\text{시간}$, 약 $10 \text{ m}^3/\text{시간}$ 내지 약 $200 \text{ m}^3/\text{시간}$, 약 $20 \text{ m}^3/\text{시간}$ 내지 약 $600 \text{ m}^3/\text{시간}$, 또는 $60 \text{ m}^3/\text{시간}$ 내지 약 $1000 \text{ m}^3/\text{시간}$ 일 수 있다. 챔버를 통한 그리고 적어도 하나의 실란-기반 에어로겔 전반에 걸친 가스 스트림의 유량은 실리카-기반 에어로겔을 통해 또는 전반에 걸쳐 실질적으로 측정 가능한 배압 없이 달성될 수 있다. 대안적 실시형태 또는 예에서, 압력 변화 또는 흡입이 사용되어 장치를 통해 가스 스트림의 유체 흐름을 움직일 수 있다. 산업적 규모 적용의 경우, 가스 스트림의 유량은 최대 $1000 \text{ m}^3/\text{시간}$ 일 수 있다.

[0187] 챔버는 임의의 적합한 구성을 가질 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 챔버는 일 말단에서의 주입구 및 대향 말단에서의 배출구를 포함하는 챔버를 포함한다. 일 실시형태 또는 예에서, 본원에 기재된 기체는 조밀한 방식으로 챔버 내에 배치되거나, 달리 패키징되어 그 용적 내의 표면적을 증가시킬 수 있다.

[0188] 본 장치는 본원에 기재된 실리카-기반 에어로겔을 포함하는 단일 또는 다수의 챔버를 포함할 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 본 장치는 가스 스트림과 평행하게 연결된 적어도 하나의 실리카-기반 에어로겔을 포함하는 2개 이상의 챔버를 포함할 수 있다. 다른 실시형태 또는 예에서, 본 장치는 각각의 챔버 내에 적어도 하나의 실리카-기반 에어로겔을 포함하는 적어도 3개의 챔버를 포함할 수 있으며, 각각의 챔버는 가스 스트림과 평행하게 연결될 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 적어도 3개의 챔버 내에 포함된 실리카-기반 에어로겔은 흡착 및 재생 사이클의 상이한 섹션에서 작동되어 유출 가스 스트림의 연속적 흐름을 생성할 수 있다.

[0189] 일부 실시형태 또는 예에서, 본 공정은 순환형 방법일 수 있으며, 반복적 사이클에서 챔버에 의해 포함된 실리카-기반 에어로겔 내에 CO_2 를 흡착하는 단계 및 적어도 하나의 탈착 설비의 작동을 통해 CO_2 를 방출하는 단계로 인해 연속적으로 유출 가스 스트림을 생성한다. 사이클 시간은 흡착 장치의 구성, 챔버(들)의 구성, 탈착 설비의 유형, 실리카-기반 에어로겔의 조성, 특정 실리카-기반 에어로겔의 파과 지점, 포화 지점, 및 특징, 온도, 압력, 및 다른 공정 조건에 따라 좌우될 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 사이클 시간은 약 10, 15, 20, 30, 45, 60분(1시간), 2, 5, 10, 24, 48, 또는 36시간일 수 있다.

[0190] 일부 실시형태 또는 예에서, 탈착 설비는 열 및/또는 감압이 사용되고 있는지 여부에 따라 임의의 수의 형태를 취할 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 본 장치는 압력 변동 흡착(pressure swing adsorption)을 위해 설계되며, 탈착은 예를 들어 진공 펌프를 사용하여 압력을 감소시켜서 실리카-기반 에어로겔을 포함하는 챔버 주변으로부터 가스를 진공 배기시키는 것에 의해 달성된다. 다른 실시형태 또는 예에서, 온도 변동 흡착은 실리카-기반 에어로겔로부터 CO_2 를 수집하기 위해 착수된다. 이는 직접적 가열 방법 또는 일부 경우, 자성 유도 변동 흡착을 사용하여 달성될 수 있다.

[0191] 일부 실시형태 또는 예에서, 탈착 설비는 실리카-기반 에어로겔이 가열되는 온도 변동 흡착 설비를 포함할 수 있다. 예를 들어, 적어도 하나의 탈착 설비를 작동하는 것은 실리카-기반 에어로겔을 약 60 내지 140°C 의 온도로 가열한다. 탈착을 위한 온도는 적어도 약 60, 70, 80, 90, 100, 110, 120, 130, 또는 140°C 일 수 있다. 탈착을 위한 온도는 약 140, 130, 120, 110, 100, 90, 80, 70, 또는 60°C 미만일 수 있다. 이들 온도의 조합이 가능하며, 예를 들어 탈착을 위한 온도는 약 60°C 내지 약 140°C , 약 70°C 내지 약 130°C , 또는 약 80°C 내지 약 120°C 일 수 있다.

[0192] 본 개시내용은 CO_2 농도를 함유하는 가스 스트림이 본원에 기재된 실리카-기반 에어로겔과 흡착식 접촉하도록 공급되는 공정을 제공한다. 실리카-기반 에어로겔이 상당한 양의 CO_2 로 충전된 후, 탈착 설비가 활성화되어 CO_2 중 적어도 일부가 실리카-기반 에어로겔로부터 방출되도록 한다. 탈착된 실리카-기반 에어로겔은 2차 공정을 사용하여 수집될 수 있다.

[0193] 바꾸어 말하면, 배출구로부터의 유출 가스 스트림은 다양한 2차 공정으로 흐를 수 있다. 예를 들어, 이산화탄소

포집을 위해, 본 개시내용의 흡착 장치는 액화기 및/또는 드라이 아이스 펠리타이저와 통합되어 필요 시 드라이 아이스를 제공할 수 있다. 다른 예에서, 본 개시내용의 흡착 장치는 수소화 장치와 통합되어 이산화탄소(CO₂)를 메탄으로 전환할 수 있다. 또 다른 예에서, 본 개시내용의 흡착 장치는 이산화탄소(CO₂)를 흡착하고, 이를 상이한 시간에서의 사용을 위해 저장하는 데 사용될 수 있다. 이는 CO₂가 특정 시간에서 흡착되고, 상이한 시간에서 사용되는 온실 유형 환경에서 적용 가능할 것이다. 또 다른 예에서, 본 개시내용의 흡착 장치는 특히 한정된 공간에서의 CO₂에 적용 가능할 수 있다. 예를 들어, 흡착 장치가 CO₂를 제거하는 데 사용될 잠수함, 우주선, 비행기, 또는 방과 같은 한정된 공간 내부에서, 본 장치는 연속적 사이클에서 CO₂를 흡착 및 탈착할 수 있다. 다른 예에서, 본 개시내용의 흡착 장치는 CO₂를 액체 연료로 전환하는 데 사용될 수 있다. 또 다른 예에서, 본 개시내용의 흡착 장치는 수영장 내에 포함되어 pH를 조정하거나, 콘크리트 내로 주입될 수 있다(포집 및 저장). 또 다른 예에서, 본 개시내용의 흡착 장치는 음료, 예컨대 탄산 음료 및 소다수에 가스를 첨가하는 데 사용될 수 있으며, 양조 및/또는 보틀링(bottling) 산업에서의 적용을 발견할 수 있다. 또 다른 예에서, 본 개시내용의 흡착 장치는 과일 및 야채 숙성을 제어하는 데 사용될 수 있다.

[0194] 임의의 정해진 적용을 위한 실리카-기반 에어로겔은 에어로겔의 밀도를 기반으로 선택될 수 있는 것으로 인식될 것이다. 고밀도를 갖는 실리카-기반 에어로겔 제형은 임의의 장치에 적합하며, 바람직하게는 소형 장치에 적합할 수 있다. 예를 들어, 고밀도를 갖는 에어로겔 제형은 제한된 공간 또는 환경에 적합한 CO₂ 흡착-탈착 장치를 제조하는 데 사용될 수 있다. 이들 유형의 장치는 전형적으로 공간, 항공 우주, 잠수정 또는 수중 플랫폼에 사용될 수 있다. 반면에, 저밀도를 갖는 에어로겔 제형은 공간이 이슈가 아닐 때, 더 적합할 수 있다. 예를 들어, 온실 또는 동력 발전소에 배치된 DAC 유닛은 CO₂의 메탄으로의 전환에 관여되었다.

[0195] 본 개시내용의 흡착 장치는 이롭게는 소형이고, 최종 사용자에게 훨씬 더 가깝게 배치될 수 있으며, 이로 인해 파괴적 공급 기회 및 더 양호한 소비자 가치를 허용한다.

[0196] **실리카-기반 에어로겔의 CO₂ 포집/방출 및 재생을 위한 공정**

[0197] CO₂는 실리카-기반 에어로겔 내로 흡수되는 것에 의해 가스 스트림으로부터 포집될 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 실리카-기반 에어로겔 g당 약 10 mg의 CO₂(mg/g) 내지 약 300 mg/g의 CO₂를 흡수할 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 적어도 약 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80, 90, 100, 120, 150, 200, 250, 또는 300 mg/g의 CO₂를 흡수할 수 있다. 다른 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 약 300, 250, 200, 150, 120, 100, 90, 80, 70, 60, 50, 40, 30, 20, 또는 10 mg/g 미만의 CO₂를 흡수할 수 있다. 이들 흡수 값의 조합이 가능하며, 예를 들어 실리카-기반 에어로겔은 약 10 mg/g 내지 약 80 mg/g CO₂, 약 20 mg/g 내지 약 70 mg/g CO₂, 또는 약 100 mg/g 내지 약 300 mg/g, 또는 약 200 mg/g 내지 약 300 mg/g을 흡수할 수 있다. 예를 들어, 실리카-기반 에어로겔은 0.02 mbar에서 약 2 mg/g 내지 1110 mbar에서 약 100 mg/g을 흡수할 수 있다(298K 에서).

[0198] 일부 실시형태에서, 적어도 약 50%의 CO₂가 가스 스트림으로부터 제거될 수 있다(예를 들어, 적어도 약 50%의 CO₂가 가스 스트림으로부터 실리카-기반 에어로겔 내로 흡수됨). 일부 실시형태 또는 예에서, 적어도 약 50%, 85%, 90%, 95%, 99%, 또는 99.9%의 CO₂가 가스 스트림으로부터 제거된다. 일부 실시형태에서, 약 50% 내지 약 99%의 CO₂가 가스 스트림으로부터 제거된다.

[0199] 가스 스트림은 실리카-기반 에어로겔과 접촉(예를 들어, 실리카-기반 에어로겔을 포함하는 층을 통해 통과)하여 실리카-기반 에어로겔과 접촉 이후 유출 가스 스트림을 수득한다. 상기 기재된 바와 같이, 실리카-기반 에어로겔과 접촉 전, 가스 스트림은 초기 CO₂ 농도를 갖는다. 실리카-기반 에어로겔과 접촉 후, 유출 가스 스트림은 유출 CO₂ 농도를 갖는다. 실리카-기반 에어로겔과 접촉 이후 유출 가스 스트림 중의 CO₂ 농도는 가스 스트림 중에 잔여하는 CO₂ 농도를 결정하기 위해 측정될 수 있다.

[0200] 일부 실시형태 또는 예에서, 경시적으로 실리카-기반 에어로겔과 접촉 이후 유출 가스 스트림 중의 CO₂ 농도는 증가할 수 있으며, 이는 가스 스트림의 실리카-기반 에어로겔과의 접촉 시 감소된 CO₂ 흡수가 일어나거나, 더 이

상의 CO₂ 흡수가 일어나지 않음을 나타낸다(예를 들어, 실리카-기반 에어로겔은 "소비"되고, CO₂ 흡수가 거의 발생하지 않거나, 더 이상의 CO₂ 흡수가 발생하지 않음을 나타냄). 이는 CO₂ 포집을 지속하기 위해 실리카-기반 에어로겔을 교체 및/또는 재생하기 위한 지표로서 작용할 수 있다. 유출 가스 스트림 중의 CO₂ 농도는 임의의 적합한 수단, 예를 들어 인라인 보정된 공동 광자 감쇠 IR 분광기를 사용하는 것에 의해 측정될 수 있다.

[0201] 일부 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 적합한 챔버 내에 포함될 수 있으며, 상기 챔버는 가스 스트림이 내부에 포함된 실리카-기반 에어로겔과 접촉하도록 흐를 수 있는 하나 이상의 주입구 및 유출 스트림이 챔버로부터 흘러나올 수 있는 하나 이상의 배출구를 포함한다. 대안적으로, 실리카-기반 에어로겔은 하나 이상의 구멍을 포함하는 적합한 챔버 내에 포함될 수 있으며, 가스 스트림은 이를 통해 확산되어(예를 들어, 배압/유량 부재) 내부에 포함된 실리카-기반 에어로겔과 접촉할 수 있다. 챔버는 가스 스트림이 실리카-기반 에어로겔에 접근할 수 있는 한, 다수의 형태를 취할 수 있는 것으로 인식될 것이다. 일 실시형태 또는 예에서, 챔버는 본원에 기재된 패키징 컬럼일 수 있다.

[0202] 일부 실시형태에서, 실리카-기반 에어로겔은 층으로서 제공될 수 있으며, 가스 스트림을 실리카-기반 에어로겔과 접촉시키는 것은 가스 스트림을 실리카-기반 에어로겔을 포함하는 층을 통해 통과시키는 것을 포함한다. 일 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 패키징 반응기로서 제공된다. 다른 실시형태에서, 가스 스트림을 실리카-기반 에어로겔과 접촉시키는 것은 예를 들어 유동층 반응기를 사용하여 실리카-기반 에어로겔의 흐름을 가스 스트림 내로 도입하는 것을 포함한다.

[0203] 실리카-기반 에어로겔은 예를 들어 실리카-기반 에어로겔이 소비되고, 더 이상의 CO₂ 흡수가 발생하지 않을 때까지, 임의의 적합한 기간 동안 가스 스트림과 접촉될 수 있다. 일 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 유출 가스 스트림 중의 CO₂ 농도가 가스 스트림 중의 초기 CO₂ 농도와 동일할 때까지, 가스 스트림과 접촉한다. 일부 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 적어도 약 5, 10, 30, 60초(1분), 10, 15, 20, 30, 45, 60분(1시간), 2, 5, 10, 24, 48, 또는 36시간 동안 가스 스트림과 접촉된다.

[0204] 일부 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 다양한 CO₂ 흡수 속도를 제공한다. 일 실시형태 또는 예에서, CO₂ 흡수 속도는 경시적으로 유출 가스 스트림의 CO₂ 농도를 모니터링하는 것에 의해 측정될 수 있다. 예를 들어, 유출 가스 스트림 중의 CO₂ 농도는 실리카-기반 에어로겔과 2시간 접촉 후에 초기 CO₂ 농도의 약 50% 미만일 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 유출 가스 스트림 중의 CO₂ 농도는 실리카-기반 에어로겔과 약 4시간 접촉 후에 초기 CO₂ 농도의 약 5% 미만일 수 있다(바꾸어 말하면, 적어도 약 95%의 CO₂가 4시간 후에 가스 스트림으로부터 제거됨). 다른 CO₂ 흡수 속도가 또한 가능하다.

[0205] 일부 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔의 안정성은 원래 조성물의 경시적 성능을 모니터링하는 것에 의해 측정될 수 있다. 예를 들어, 3회의 포집-재생 사이클 후, 실리카-기반 에어로겔은 고습도 및 740 ppm의 CO₂ 농도 하에서 이의 원래 조성물을 이의 원래 조성물의 적어도 80%로 유지할 수 있다. 다른 예에서, 3회의 포집-재생 사이클 후, 실리카-기반 에어로겔은 저습도 및 400 ppm의 낮은 CO₂ 농도 하에서 이의 원래 조성물을 이의 원래 조성물의 적어도 99%로 유지할 수 있다. 또 다른 예에서, 3회의 포집-재생 사이클 후, 실리카-기반 에어로겔은 저습도 및 925 ppm의 높은 CO₂ 농도 하에서 이의 원래 조성물을 이의 원래 조성물의 적어도 99%로 유지할 수 있다. 일부 실시형태 또는 예에서, 실리카-기반 에어로겔은 낮은 CO₂ 농도에서의 저습도 또는 고밀도 하에서 이의 원래 조성물을 이의 원래 조성물의 적어도 80%, 85%, 90%, 95%, 97%, 또는 99%로 유지할 수 있다. 실리카-기반 에어로겔은 적어도 약 2, 3, 5, 10, 15, 20, 50, 100, 150, 200, 250, 500, 1000, 또는 2000회의 포집-재생 사이클 동안 안정할 수 있다. 실리카-기반 에어로겔은 50회 초과 포집-재생 사이클 동안 안정할 수 있다.

[0206] 본 발명자들은 예상치 못하게 본원에서 제조되는 실리카-기반 에어로겔의 H₂O에 대한 CO₂의 선택성이 CO₂ 농도가 약 400 ppm일 때, 제올라이트(예를 들어, 제올라이트 13X) 및 MOF(예를 들어, WO 2020/113281호에 기재된 TIF-SIX)보다 더 높은 것을 발견하였다. 실리카-기반 에어로겔의 H₂O에 대한 CO₂의 선택성은 CO₂ 농도가 약 400 ppm일 때, 제올라이트 13X 및 TIF-SIX보다 적어도 2배일 수 있다. 실리카-기반 에어로겔의 H₂O에 대한 CO₂의 선택성은 CO₂ 농도가 약 400 ppm일 때, 제올라이트 13X 및 TIF-SIX보다 적어도 3배일 수 있다. 실리카-기반 에어로겔

의 H₂O에 대한 CO₂의 선택성은 CO₂ 농도가 약 400 ppm일 때, 제올라이트 13X 및 TIF-SIX보다 적어도 4배일 수 있다.

[0207] 실리카-기반 에어로겔 내의 흡수 후의 CO₂는 CO₂와 아민기 사이의 결합을 깨트려서 방출될 수 있다. 이는 온도(가열을 통해) 또는 압력(진공을 통해)을 사용하는 것을 통해 달성될 수 있다. 이는 실리카-기반 에어로겔을 보유하는 컬럼을 가열하거나, 고온 가스 스트림(예를 들어, 스팀) 또는 고온 공기를 통해 통과시키는 것을 수반할 수 있다. 이러한 탈착은 실리카-기반 에어로겔 내에 흡수된 적어도 일부의 CO₂를 탈착시킬 수 있는, 실리카-기반 에어로겔과 접촉하거나, 그 주위의 가열된 환경(예를 들어, 온도) 또는 가압 환경(예를 들어, 진공을 통해), 또는 이의 조합을 제공할 수 있는 임의의 적합한 환경에 의해 제공될 수 있다. 이러한 탈착 환경은 "온(on)" 또는 "오프(off)" 상태로 작동될 수 있다. 예를 들어, 실리카-기반 에어로겔과 접촉 이후 유출 가스 스트림 중의 CO₂ 농도가 감소된 CO₂ 흡수가 일어나거나, 더 이상 일어나지 않음을 나타내는 수준으로 증가되면, 탈착 환경은 "온"으로 전환되어 실리카-기반 에어로겔로부터 CO₂를 탈착시킬 수 있다.

[0208] 본원에 개시된 흡착 공정은 주위 온도, 예를 들어 약 10 내지 40℃ 범위에서 실시될 수 있다. 예를 들어, 주위 온도는 15 내지 30℃, 또는 20 내지 25℃일 수 있다. 본 공정은 일반적으로 전형적 대기압(예를 들어, 약 20 내지 100 kPa) 또는 저압(예를 들어, 약 0.01 내지 0.05 kPa) 주위에서 실시될 수 있다.

[0209] 본원에 개시된 탈착 공정은 예를 들어 약 80 내지 180℃ 범위의 온도에서 실시될 수 있다. 예를 들어, 온도는 90 내지 160℃, 또는 100 내지 140℃일 수 있다.

[0210] 본원에 기재된 실리카-기반 에어로겔을 사용하는 공정은 또한 저습도 또는 고습도를 갖는 환경에서 사용하기에 적합하다. 이러한 예에서의 저습도는 약 5 mb 미만의 부분 수증기압을 의미한다. 약 21℃에서, 이는 약 20% 이하의 상대 습도에 해당한다. 이러한 예에서의 고습도는 약 5 mb 초과인 부분 수증기압을 의미한다. 약 21℃에서, 이는 약 20% 초과인 상대 습도에 해당한다. 상대 습도는 다음과 같이 정의된다.

$$\text{상대 습도} = \frac{\text{실제 증기압}}{\text{포화 증기압}} \times 100\%$$

[0211]

[0212] 물에 대한 포화 증기압은 잘 알려져 있으며, 온도에 따라 변화된다(Donald Ahrens, 1994, *Meteorology Today - an introduction to weather, climate and the environment* Fifth Edition - West Publishing Co). 결과적으로, 수증기압은 정해진 상대 습도에 대해 온도와 함께 변화될 것이다. 이의 일 예시가 하기 제공된다(<http://ww2010.atmos.uiuc.edu/%28Gh%29/guides/mtr/cld/dvlp/rh.rxml>, downloaded December 2014).

온도(°C)	20% 상대 습도 부분 수증기압(mb)	80% 상대 습도 부분 수증기압(mb)	100% 상대 습도 부분 수증기압(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

[0213]

[0214] 본 공정은 저습도를 갖는 환경에서 사용하기에 유효한 한편, 이는 또한 다른 처리가 유효하지 않을 수 있는 더 높은 습도에서도 유효하다. 바꾸어 말하면, 본 공정 및 실리카-기반 에어로겔의 한 가지 이점은 이들이 상대적으로 광범위한 적용 윈도우(예를 들어, 온도, 압력, 및 습도의 광범위한 매개변수의 조합) 및 특히 광범위한 습도 범위에 걸쳐 사용될 수 있다는 것이나, 추가의 특정 이점은 더 높은 습도에서의 이의 사용이다.

[0215] 본 공정은 예를 들어 약 90%, 80%, 70%, 60%, 50%, 40%, 30%, 20%, 18%, 16%, 14%, 12%, 10%, 8%, 6%, 4%, 또는 2% 미만의 상대 습도에서 수행될 수 있다. 본 공정은 약 1%, 2%, 4%, 6%, 8%, 10%, 12%, 14%, 16%, 18%, 20%, 30%, 40%, 50%, 60%, 또는 70% 초과인 상대 습도에서 수행될 수 있다. 본 공정은 이들 값 중 임의의 둘 사

이의 상대 습도, 예를 들어 약 1% 내지 약 90%, 약 2% 내지 약 50%, 약 70% 내지 약 80%, 약 1% 내지 약 30%, 또는 약 2% 내지 약 5%에서 수행될 수 있다. 정해진 부분 수증기압에 대한 상대 습도는 온도에 따라 좌우되는 것으로 인식될 것이다. 부분 수증기압 및 온도는 독립 변수이며, 상대 습도(RH)는 종속 변수이나, 상대 습도는 임의의 특정 온도에서 100%를 초과할 수 없는 제약이 존재한다. 예를 들어, 상기 상대 습도 값 중 임의의 하나 이상은 온도가 약 10 내지 45℃, 약 15 내지 40℃, 또는 약 20 내지 35℃인 경우에 제공될 수 있다. 상기 상대 습도 값은 예를 들어 온도가 약 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℃, 또는 45℃의 값인 경우일 수 있다. 본원에 개시된 공정에 대한 적용 윈도우는 상기 RH와 온도 범위 또는 값의 임의의 조합일 수 있다. 예를 들어, 적용 윈도우는 RH가 약 1% 내지 약 80%이고, 온도가 약 15℃ 내지 약 40℃ 범위인 경우일 수 있다.

[0216] 습도는 약 60, 50, 40, 30, 20, 15, 14, 13, 12, 11, 10, 9, 8, 7, 6, 5, 4, 3, 또는 2 미만의 부분 수증기압(mb 단위)에 의해 제공될 수 있다. 습도는 약 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14, 15, 20, 30, 40, 50, 60 초과의 부분 수증기압(mb 단위)에 의해 제공될 수 있다. 습도는 예를 들어 약 1 내지 약 50, 예컨대, 약 2 내지 약 25, 예컨대 약 3 내지 약 15, 예컨대 약 4 내지 약 10의 이들 값 중 임의의 둘 사이의 부분 수증기압(mb 단위)에 의해 제공될 수 있다. 습도는 상기 기재된 온도 값 또는 범위에 따라 정해진 온도에 의해 제공될 수 있으나, 온도 값은 습도가 100%의 상대 습도를 초과하지 않거나, 이의 부분 수증기압이 이의 포화 수증기압을 초과하지 않도록 함이 인식될 것이다. 임의의 이들 부분 수증기압 값에 대한 정해진 온도에서의 상대 습도는 예를 들어 약 90%, 80%, 70%, 60%, 50%, 40%, 30%, 또는 20% 미만일 수 있다.

[0217] 수 많은 변형 및/또는 변경이 본 개시내용의 광범위한 일반 범주를 벗어나지 않고 상기 기재된 실시형태에 이루어질 수 있음이 당업자에 의해 인식될 것이다. 따라서, 본 실시형태는 모든 측면에서 예시적이며, 제한적이지 않는 것으로 간주되어야 한다.

[0218] 실시예

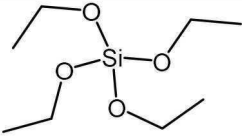
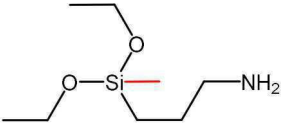
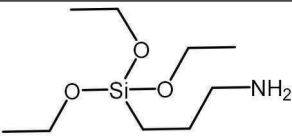
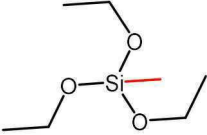
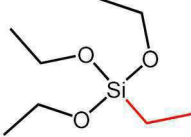
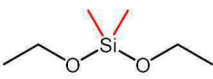
[0219] 본 개시내용이 보다 분명하게 이해될 수 있도록, 본 발명의 특정 실시형태가 다음의 비제한적 실험 재료, 방법론, 및 실시예를 참조하여 하기 추가로 상세하게 설명된다.

[0220] *실시예 1 대표적 실리카-기반 에어로겔 및 이들의 겔화 특성의 요약*

[0221] 본 발명자들은 CO₂의 직접적 공기 포집(DAC)뿐만 아니라 0.5%, 1%, 및 100%의 CO₂ 농도에 대한 이들의 성능을 위한 다양한 실란(SiO₂) 및 이의 다양한 조합(표 1)을 기반으로 하는 유도된 미소공성 에어로겔을 개발하였다. 유도된 미소공성 에어로겔은 주위 조건(298K 및 0.4 mbar)에서 CO₂ 흡착에 선택적이다. 미소공성 에어로겔은 다음의 이로운 특성의 목적을 위해 설계되었다: 미소공극도, 소수성, CO₂ 선택성, 포집을 위한 주위 CO₂ 조건, 및 재생을 위한 능력.

표 1

표 1 실리카-기반 에어로겔의 제조에 사용되는 다양한 실란(SiO_2) 기

약어	명칭	구조
TEOS	테트라에틸 오르소실리케이트	
APEMS	3-아미노프로필 (디에톡시) 메틸 실란	
APTES	3-아미노프로필 (트리에톡시) 실란	
TEMS	트리에톡시메틸실란	
TEES	트리에톡시(에틸)실란	
DMDES	디메틸디에톡시실란	

[0222]

표 2

표 2: 실리카-기반 에어로겔 및 0.04%(직접적 공기 포집 0.4 mbar), 0.5%, 1%, 및 100% CO₂ 농도에 대한 298K에서의 이들의 CO₂ 흡수 성능 목록

후보	조성물 SiO ₂ 단위(%)						CO ₂ 성능 (흡착)(mmol/g)			
	APEMS	APTES	TEOS	TEMS	DMDES	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)는 오직 비교를 위해 포함된다

[0223]

표 3

표 3 선별된 실리카-기반 에어로겔 대한 겔화 특성

후보	겔화 수준
A	고
B	고
C	저/무 - 겔화를 개시하기 위해 추가 물 필요
D	중 - 겔화를 개시하기 위해 동결 건조 필요
E	고
K	고
L	중/저
M	중
N	중
O	중
P	중
Q	중
R	저/무
S	극저(very low)/무
T	극저/무

[0224]

[0225]

실시예 2 실리카-기반 에어로겔의 제조를 위한 일반 공정

[0226]

모든 시약은 임의의 정제 없이 받은 그대로 사용하였다. 잔여 시약은 불활성 환경(N_2 충전된 글로브 박스)에 저장하여 실란의 임의의 가수 분해를 방지하였다.

[0227]

아미노 치환된 실란, 알킬 치환된 실란, 및 실리케이트의 임의의 둘 이상의 조합을 에탄올과 물의 수용액에 첨가할 수 있다. 실란을 포함하는 수용액을 혼합하여 습윤 겔 매트릭스를 형성할 수 있다. 완충액(예를 들어, NH_3 , NH_4HCO_3) 또는 산(예를 들어, HCl 산 용액)을 선택적으로 습윤 겔 매트릭스에 첨가한 다음, 선택적으로 염기성 용액(예를 들어, $NaOH$ 용액)을 첨가할 수 있다. 이어서, 습윤 겔 매트릭스를 물로 행구고/침지시키고, 선택적으로 약간의 승온에서 가열할 수 있다. 수용액을 포함하는 습윤 겔 매트릭스를 건조 방법을 사용하여 건조하여 건조된 실리카-기반 에어로겔을 제공할 수 있다.

[0228]

실시예 2a - 후보 A

[0229]

(i) 3.6 mL의 AR 등급 에탄올에 다음을 첨가한다: 8 mmol(1.672 mL, 1.531 g)의 3-아미노프로필(디에티옥시)메틸실란(APEMS), 8 mmol(1.594 mL, 1.426 g)의 트리에티옥시 메틸실란(TEMS), 및 4 mmol(0.89 mL, 0.833 g)의 트리에틸 오르토실리케이트(TEOS). 각각의 첨가 시, 용액을 1초 동안 수동으로 빠르게 돌려서 조합하였다. 합친 용액에, 0.600 mL의 물을 첨가하고, 용액을 빠르게 돌려서 혼합하고, 밀봉된 용기를 오픈 내에서 $80^\circ C$ 에서 6시간 동안 가열하여 겔을 형성하였다. 샘플을 밤새 실온으로 냉각되도록 하였다. 이어서, 겔을 10 mL의 물로 부수고, 다공성 프린트를 통해 여과하였다. 겔을 2시간 동안의 다수의 물 행균 동안 추가로 침지시켰다. 이후, 겔을 진공 오픈 내에서 약 $50^\circ C$ 에서 밤새 건조하였다.

[0230]

(ii) 3.6 mL의 AR 등급 에탄올에 다음을 첨가한다: 8 mmol(1.672 mL, 1.531 g)의 3-아미노프로필(디에티옥시)

메틸실란(APEMS), 8 mmol(1.594 mL, 1.426 g)의 트리에티옥시 메틸실란(TEMS), 및 4 mmol(0.892 mL, 0.833 g)의 트리에틸 오르소실리케이트(TEOS). 각각의 첨가 시, 용액을 1초 동안 수동으로 빠르게 돌려서 조합하였다. 합친 용액에, 1.00 mL의 2M HCl을 첨가하고, 용액을 빠르게 돌려서 혼합하고, 밀봉된 용기를 60℃에서 밤새 가열하였다. 샘플을 실온으로 냉각되도록 하고, 1.00 mL의 2M NaOH를 첨가하고, 용액을 빠르게 돌려서 혼합하고, 밀봉된 용기를 60℃에서 밤새 가열하여 겔을 형성하였다. 이어서, 겔을 10 mL의 물로 부수고, 다공성 프릿을 통해 여과하였다. 겔을 2시간 동안의 다수의 물 행균 동안 추가로 침지시켰다. 이후, 겔을 진공 오븐 내에서 약 50℃에서 밤새 건조하였다.

[0231] (iii) 3.6 mL의 AR 등급 에탄올에 다음을 첨가한다: 8 mmol(1.672 mL, 1.531 g)의 3-아미노프로필(디에티옥시)메틸실란(APEMS), 8 mmol(1.594 mL, 1.426 g)의 트리에티옥시 메틸실란(TEMS), 및 4 mmol(0.892 mL, 0.833 g)의 트리에틸 오르소실리케이트(TEOS). 각각의 첨가 시, 용액을 1초 동안 수동으로 빠르게 돌려서 조합하였다. 합친 용액에, 0.600 mL의 2M NH₃(수성)을 첨가하고, 용액을 빠르게 돌려서 혼합하고, 밀봉된 용기를 오븐 내에서 80℃에서 6시간 동안 가열하여 겔을 형성하였다. 샘플을 밤새 실온으로 냉각되도록 하였다. 이어서, 겔을 10 mL의 물로 부수고, 다공성 프릿을 통해 여과하였다. 겔을 2시간 동안의 다수의 물 행균 동안 추가로 침지시켰다. 이후, 겔을 진공 오븐 내에서 약 50℃에서 밤새 건조하였다.

[0232] 실시예 2b - 후보 B

[0233] 3.6 mL의 AR 등급 에탄올에 다음을 첨가한다: 8 mmol(1.672 mL, 1.531 g)의 3-아미노프로필(디에티옥시)메틸실란(APEMS), 4 mmol(0.797 mL, 0.713 g)의 트리에티옥시 메틸실란(TEMS), 및 8 mmol(1.784 mL, 1.667g)의 트리에틸 오르소실리케이트(TEOS). 각각의 첨가 시, 용액을 1초 동안 수동으로 빠르게 돌려서 조합하였다. 합친 용액에, 0.600 mL의 물을 첨가하고, 용액을 빠르게 돌려서 혼합하고, 밀봉된 용기를 오븐 내에서 80℃에서 6시간 동안 가열하여 겔을 형성하였다. 샘플을 밤새 실온으로 냉각되도록 하였다. 이어서, 겔을 10 mL의 물로 부수고, 다공성 프릿을 통해 여과하였다. 겔을 2시간 동안의 다수의 물 행균 동안 추가로 침지시켰다. 이후, 겔을 진공 오븐 내에서 약 50℃에서 밤새 건조하였다.

[0234] 실시예 2c - 후보 C

[0235] (i) 4.0 mL의 AR 등급 에탄올에 다음을 첨가한다: 8 mmol(1.672 mL, 1.531 g)의 3-아미노프로필(디에티옥시)메틸실란(APEMS), 12 mmol(2.297 mL, 2.139 g)의 트리에티옥시 메틸실란(TEMS). 1.5 mL의 물과 0.80 mL(약 8 mmol)의 32% 염산을 첨가하였다. 각각의 첨가 시, 용액을 1초 동안 수동으로 빠르게 돌려서 조합하였다. 합친 용액을 실온에서 밤새 유지하였다. 고체 NaOH(0.425 g, 10.6 mmol)를 첨가하여 다음 날 용액이 탁하게 변하였고, 1.0 mL의 물을 첨가하여 투명한 용액을 제조하였다. 5일 후, 침전물을 원심 분리(5000 rpm)에 의해 수집하고, 10 mL의 물로 행구고, 다섯 차례 반복하였다. 이어서, 겔을 진공 오븐 내에서 약 50℃에서 밤새 건조하였다.

[0236] (ii) 3.6 mL의 AR 등급 에탄올에 다음을 첨가한다: 8 mmol(1.672 mL, 1.531 g)의 3-아미노프로필(디에티옥시)메틸실란(APEMS) 및 12 mmol(2.403 mL, 2.139 g)의 트리에티옥시 메틸실란(TEMS). 각각의 첨가 시, 용액을 1초 동안 수동으로 빠르게 돌려서 조합하였다. 합친 용액에, 0.600 mL의 물을 첨가하고, 용액을 빠르게 돌려서 혼합하고, 밀봉된 용기를 오븐 내에서 80℃에서 6시간 동안 가열하여 에이징하였다. 에이징된 용액을 실온으로 냉각되도록 하였다. 이어서, 20 mL의 물 첨가하여 겔이 형성되도록 하였다. 이 생성물을 다공성 프릿을 통해 여과하였다. 겔을 2시간 동안의 다수의 물 행균 동안 추가로 침지시켰다. 이후, 겔을 진공 오븐 내에서 약 50℃에서 밤새 건조하였다.

[0237] (iii) 4.5 mL의 AR 등급 에탄올에 다음을 첨가한다: 20 mmol(4.178 mL, 3.827 g)의 3-아미노프로필(디에티옥시)메틸실란(APEMS), 30 mmol(5.977 mL, 5.349 g)의 트리에티옥시 메틸실란(TEMS). 1.5 mL의 물. 각각의 첨가 시, 용액을 1초 동안 수동으로 빠르게 돌려서 조합하였다. 합친 용액을 60℃에서 밤새 가열하였다. 용액은 투명하게 유지되었고, 20 mL의 물을 첨가하여 용액이 탁하게 변하였고, 다시 60℃에서 밤새 가열하였다. 이어서, 형성된 겔을 적어도 10배의 과량의 물로 세척하고, 세 차례 반복하였다. 이후, 겔을 진공 오븐 내에서 약 50℃에서 밤새 건조하였다.

[0238] 실시예 2d - 후보 D

[0239] 3.6 mL의 AR 등급 에탄올에 다음을 첨가한다: 12 mmol(2.808 mL, 2.656 g)의 3-아미노프로필(디에티옥시)메틸실란(APEMS), 4 mmol(0.797 mL, 0.713 g)의 트리에티옥시 메틸실란(TEMS), 및 4 mmol(0.892 mL, 0.833 g)의 트리에틸 오르소실리케이트(TEOS). 각각의 첨가 시, 용액을 1초 동안 수동으로 빠르게 돌려서 조합하였다. 0.600

mL의 물을 첨가하고, 용액을 빠르게 돌려서 혼합하고, 밀봉된 용기를 오븐 내에서 80℃에서 6시간 동안 가열하였다. 샘플을 밤새 실온으로 냉각되도록 하였다. 이어서, 겔을 10 mL의 물로 부수고, 다공성 프릿을 통해 여과하였다. 겔을 2시간 동안의 다수의 물 행균 동안 추가로 침지시켰다. 이후, 겔을 동결 건조기에서 밤새 건조하였다.

[0240] 겔을 10 mL의 물로 부수고, 1시간 동안 침지시킨 다음, 침전되도록 하고, 물을 디켄팅(decant)하였다. 이를 다섯 차례 반복하였다. 약 50 mL의 물을 첨가하여 고체를 최종적으로 수집하고, 총량을 동결 건조하였다.

[0241] 실시예 2e - 후보 E

[0242] 3.6 mL의 AR 등급 에탄올에 다음을 첨가한다: 8 mmol(1.672 mL, 1.5321 g)의 3-아미노프로필(디에티옥시)메틸실란(APEMS), 8 mmol(1.720mL)의 트리에티옥시(에틸)실란(TEES), 및 4 mmol(0.892 mL, 0.833 g)의 트리에틸 오르소실리케이트(TEOS). 각각의 첨가 시, 용액을 1초 동안 수동으로 빠르게 돌려서 균질한 용액을 형성하였다. 이 용액에, 0.6 mL의 물을 첨가하고, 이어서 80℃에서 6시간 동안 인큐베이션하였다. 형성된 겔을 부수고, 과량의 물로 행구고, 여과에 의해 수집하였다. 겔을 오븐 내에 감압에서 55℃에서 건조하였다.

[0243] 실시예 2f - 후보 J

[0244] 3.6 mL의 AR 등급 에탄올에 다음을 첨가한다: 8 mmol(1.39 mL, 1.43 g)의 3-아미노프로필(디에티옥시)메틸실란(APEMS), 4 mmol(0.797 mL, 0.713 g)의 트리에티옥시 메틸실란(TEMS), 4 mmol(0.892 mL, 0.833 g)의 트리에틸 오르소실리케이트(TEOS), 및 4 mmol(0.593 g, 0.685 mL)의 디메틸디에톡시실란. 각각의 첨가 시, 용액을 1초 동안 수동으로 빠르게 돌려서 조합하였다. 0.006 mL의 물을 첨가하고, 용액을 빠르게 돌려서 혼합하고, 밀봉된 용기를 오븐 내에서 80℃에서 6시간 동안 가열하였다. 샘플을 밤새 실온으로 냉각되도록 하였다. 이어서, 겔을 10 mL의 물로 부수고, 다공성 프릿을 통해 여과하였다. 겔을 2시간 동안의 다수의 물 행균 동안 추가로 침지시켰다. 이후, 겔을 동결 건조기 내에서 밤새 건조하였다.

[0245] 실시예 2g - 후보 K

[0246] 3.6 mL의 AR 등급 에탄올에 다음을 첨가한다: 8 mmol(1.672 mL, 1.5321 g)의 3-아미노프로필(디에티옥시)메틸실란(APEMS), 4 mmol(0.797 mL, 0.713 g)의 트리에티옥시 메틸실란(TEMS), 4 mmol(0.860mL)의 TEES, 및 4 mmol(0.892 mL, 0.833 g)의 트리에틸 오르소실리케이트(TEOS). 각각의 첨가 시, 용액을 1초 동안 수동으로 빠르게 돌려서 균질한 용액을 형성하였다. 이 용액에, 0.6 mL의 물을 첨가하고, 이어서 80℃에서 6시간 동안 인큐베이션하였다. 형성된 겔을 부수고, 과량의 물로 행구고, 여과에 의해 수집하였다. 겔을 오븐 내에 감압(약 80 kPa)에서 55℃에서 건조하였다.

[0247] 실시예 2h - 후보 L

[0248] 3.6 mL의 AR 등급 에탄올에 다음을 첨가한다: 12 mmol(2.507 mL, 2.296 g)의 3-아미노프로필(디에티옥시)메틸실란(APEMS), 4 mmol(0.801 mL, 0.71 3g)의 트리에티옥시 메틸실란(TEMS), 및 4 mmol(0.887 mL, 0.833 g)의 트리에틸 오르소실리케이트(TEOS). 각각의 첨가 시, 용액을 1초 동안 수동으로 빠르게 돌려서 조합하였다. 합친 용액에, 0.600 mL의 물을 첨가하고, 용액을 빠르게 돌려서 혼합하고, 밀봉된 용기를 오븐 내에서 80℃에서 6시간 동안 가열하여 겔을 형성하였다. 샘플을 밤새 실온으로 냉각되도록 하였다. 이어서, 겔을 10 mL의 물로 부수고, 80 rpm에서 약 2시간 동안 진탕시켰다. 나중에, 이를 이어서 다공성 프릿을 통해 여과하였다. 겔을 물로 추가로 세척하고, 60 rpm에서 약 2시간 동안 진탕시키고, 프릿을 통해 여과하였다. 이러한 세척 절차를 세 차례 반복하였다. 이어서, 겔을 진공 오븐 내에서 약 50℃에서 밤새 건조하거나, 흡후드(fumehood)에서 실온에서 완전히 건조될 때까지 건조하였다.

[0249] 실시예 2i - 후보 M

[0250] 3.6 mL의 AR 등급 에탄올에 다음을 첨가한다: 12 mmol(2.507 mL, 2.296 g)의 3-아미노프로필(디에티옥시)메틸실란(APEMS), 2 mmol(0.401 mL, 0.356 g)의 트리에티옥시 메틸실란(TEMS), 2 mmol(0.430 mL, 0.385 g)의 트리에톡시(에틸)실란(TEES), 및 4 mmol(0.887 mL, 0.833 g)의 트리에틸 오르소실리케이트(TEOS). 각각의 첨가 시, 용액을 1초 동안 수동으로 빠르게 돌려서 조합하였다. 합친 용액에, 0.600 mL의 물을 첨가하고, 용액을 빠르게 돌려서 혼합하고, 밀봉된 용기를 오븐 내에서 80℃에서 6시간 동안 가열하여 겔을 형성하였다. 샘플을 실온으로 냉각되도록 하였다. 이어서, 겔을 10 mL의 물을 사용하여 부수고, 이후 80 rpm에서 약 2시간 동안 진탕시켰다. 나중에, 이를 이어서 다공성 프릿을 통해 여과하였다. 겔을 물로 추가로 세척하고, 60 rpm에서 약 2시간 동안 진탕시키고, 프릿을 통해 여과하였다. 이러한 세척 절차를 세 차례 반복하였다. 이후, 겔을 진공 오븐 내에서

약 50℃에서 밤새 건조하거나, 흡후드에서 실온에서 완전히 건조될 때까지 건조하였다.

[0251] 실시예 2j - 후보 N

[0252] 3.6 mL의 AR 등급 에탄올에 다음을 첨가한다: 10 mmol(2.089 mL, 1.913)의 3-아미노프로필(디에티옥시)메틸실란(APEMS), 3 mmol(0.601 mL, 0.535 g)의 트리에티옥시 메틸실란(TEMS), 3 mmol(0.645 mL, 0.577 g)의 트리에틸 시(에틸)실란(TEES), 및 4 mmol(0.887 mL, 0.833 g)의 트리에틸 오르소실리케이트(TEOS). 각각의 첨가 시, 용액을 1초 동안 수동으로 빠르게 돌려서 조합하였다. 합친 용액에, 0.600 mL의 물을 첨가하고, 용액을 빠르게 돌려서 혼합하고, 밀봉된 용기를 오븐 내에서 80℃에서 6시간 동안 가열하여 겔을 형성하였다. 샘플을 실온으로 냉각되도록 하였다. 겔을 부수고, 과량의 물로 세 차례 행구고, 여과에 의해 수집하였다. 이어서, 겔을 진공 오븐 내에서 약 50℃에서 밤새 건조하였다.

[0253] 실시예 2k - 후보 O

[0254] 3.6 mL의 AR 등급 에탄올에 다음을 첨가한다: 10 mmol(2.089 mL, 1.913)의 3-아미노프로필(디에티옥시)메틸실란(APEMS), 5 mmol(1.001 mL, 0.891 g)의 트리에티옥시 메틸실란(TEMS), 및 5 mmol(1.108 mL, 1.042 g)의 트리에틸 오르소실리케이트(TEOS). 각각의 첨가 시, 용액을 1초 동안 수동으로 빠르게 돌려서 조합하였다. 합친 용액에, 0.600 mL의 물을 첨가하고, 용액을 빠르게 돌려서 혼합하고, 밀봉된 용기를 오븐 내에서 80℃에서 6시간 동안 가열하여 겔을 형성하였다. 샘플을 실온으로 냉각되도록 하였다. 겔을 부수고, 과량의 물로 세 차례 행구고, 여과에 의해 수집하였다. 이어서, 겔을 진공 오븐 내에서 약 50℃에서 밤새 건조하였다.

[0255] 실시예 2l - 후보 P

[0256] 3.6 mL의 AR 등급 에탄올에 다음을 첨가한다: 12 mmol(2.507 mL, 2.296)의 3-아미노프로필(디에티옥시)메틸실란(APEMS) 및 8 mmol(1.773 mL, 1.667 g)의 트리에틸 오르소실리케이트(TEOS). 각각의 첨가 시, 용액을 1초 동안 수동으로 빠르게 돌려서 조합하였다. 합친 용액에, 0.600 mL의 물을 첨가하고, 용액을 빠르게 돌려서 혼합하고, 밀봉된 용기를 오븐 내에서 80℃에서 6시간 동안 가열하여 겔을 형성하였다. 샘플을 밤새 실온으로 냉각되도록 하였다. 이어서, 겔을 10 mL의 물을 사용하여 부수고, 이후 80 rpm에서 약 2시간 동안 진탕시켰다. 나중에, 이를 이어서 다공성 프리트를 통해 여과하였다. 겔을 물로 추가로 세척하고, 60 rpm에서 약 2시간 동안 진탕시키고, 프리트를 통해 여과하였다. 이러한 세척 절차를 세 차례 반복하였다. 이어서, 겔을 진공 오븐 내에서 약 50℃에서 밤새 건조하거나, 흡후드에서 실온에서 완전히 건조될 때까지 건조하였다.

[0257] 실시예 2m - 후보 Q

[0258] 3.6 mL의 AR 등급 에탄올에 다음을 첨가한다: 12 mmol(2.507 mL, 2.296)의 3-아미노프로필(디에티옥시)메틸실란(APEMS), 4 mmol(0.860 mL, 0.769 g)의 트리에톡시(에틸)실란(TEEX), 및 4 mmol(0.887 mL, 0.833 g)의 트리에틸 오르소실리케이트(TEOS). 각각의 첨가 시, 용액을 1초 동안 수동으로 빠르게 돌려서 조합하였다. 합친 용액에, 0.600 mL의 물을 첨가하고, 용액을 빠르게 돌려서 혼합하고, 밀봉된 용기를 오븐 내에서 80℃에서 6시간 동안 가열하여 겔을 형성하였다. 샘플을 실온으로 냉각되도록 하였다. 이어서, 겔을 10 mL의 물을 사용하여 부수고, 이후 80 rpm에서 약 2시간 동안 진탕시켰다. 나중에, 이를 이어서 다공성 프리트를 통해 여과하였다. 겔을 물로 추가로 세척하고, 60 rpm에서 약 2시간 동안 진탕시키고, 프리트를 통해 여과하였다. 이러한 세척 절차를 세 차례 반복하였다. 이어서, 겔을 진공 오븐 내에서 약 50℃에서 밤새 건조하거나, 흡후드에서 실온에서 완전히 건조될 때까지 건조하였다.

[0259] 실시예 3 성능 및 특성화 데이터

[0260] 다음 성능 측정을 실시예 2에 정의된 실리카-기반 에어로겔에 적용하여 이들의 직접적 공기 용량을 결정하였다:

[0261] I. CO₂ 가스 흡착

[0262] II. H₂O 증기 흡착

[0263] III. CO₂ 파과 시험

[0264] IV. 표면적을 결정하는 N₂ 가스 흡착

[0265] V. 흡착 및 탈착 사이클

[0266] 다음 특성화 방법을 적용하여 물질 구조를 이해하였다:

- [0267] i. PALS(양전자 소멸시간 분광학) - 후보 A, B, C, 및 D에 대해 PALS를 사용하여 결정된 기공 크기 분포가 도 1a에 제시된다. J, P, M, 및 L의 기공 크기 분포는 도 1b에 제시되며, N₂ 가스를 사용하여 결정된다.
- [0268] ii. 밀도 - 다양한 압력에서의 후보 A, B, D, E, 및 K의 밀도 대 CO₂ 흡수 관계는 도 1c(입자 밀도) 및 도 1d(벌크 밀도)에서 제시된다.
- [0269] iii. 열 안정성 및 활성화 프로파일링
- [0270] 실시예 3a - 성능 데이터
- [0271] I) CO₂ 가스 흡착
- [0272] 이 섹션에서 제시되는 정보는 CO₂의 직접적 공기 포집을 위한 흡수제로서 작동하는 실리카-기반 에어로겔의 성능을 강조한다. 표 6은 최상위 후보 에어로겔의 특성을 요약하며, 이는 고체 물질의 BET 표면적, 밀도, 및 CO₂ 포집의 다양한 성능 용량을 포함한다. 이전에 명시된 바와 같이, 직접적 공기 포집의 경우, 에어로겔은 대기에서 400 ppm의 CO₂와 동일한 0.4 mbar에서의 CO₂를 흡착하는 것이 바람직하다. 에어로겔은 298K인 주위 온도에서 수행되며, CO₂ 성능 단위는 mmol/g, mg/g, 및 CO₂ wt%로 제공된다. 표면적 BET(m₂/g)는 후보 에어로겔의 고체 표면상의 가스, 예를 들어 N₂ 가스의 물리적 흡착 정보를 제공하는 것으로 인식될 것이다. N₂ 가스를 사용한 표면적 BET는 고유 표면적 및 공극도를 결정하기 위해 가스 분자가 접근 가능한 기공에 대해 접근하는 것이 필요하다. 표면적 BET는 이들 에어로겔의 CO₂ 용량에 대한 성능 지표가 아니며, 사실상 후보 에어로겔의 미소공극도 수준의 일반적 지표일 수 있다. 예를 들어, 본 발명자들은 놀랍게도 표면적이, 에어로겔이 CO₂를 잘 흡수할 것인지 정도의 척도가 아님을 발견하였다. 예상치 못하게, 낮은 표면적을 갖는 에어로겔이 탁월한 CO₂ 흡착을 제공한다.
- [0273] 성능 가이드로서, TIF-SIX는 벤치마크이며, CO₂의 직접적 공기 포집을 수행하는 것으로 알려져 있다. 본원에 기재된 이들 신규 실리카-기반 에어로겔은 놀랍게도 직접적 공기 포집을 위한 TIF-SIX의 성능(표 2 참조)에 대해 개선되었다.
- [0274] CO₂ 흡착 성능의 상세한 내용은 표 4에서 선별된 실리카-기반 에어로겔에 대해 제공된다. 298K에서의 모든 후보 물질의 CO₂ 등온식 도표가 도 2 내지 도 18에 제공된다.

표 4

표 4 BET 표면적, 밀도, 및 CO₂ 가스 흡착 등온식으로부터 다양한 압력에서의 CO₂ 흡수 wt.%를 포함하는 선별된 실리카-기반 에어로겔의 특성

후보	특성					CO ₂ Wt% @mbar*		
	BET 표면적 (m ² /g)	밀도 (g/cm ³)	CO ₂ 흡수 0.4 mbar (mmol/g)	CO ₂ 흡수 0.4 mbar (mg/g)	CO ₂ 흡수 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 압력은 공기 중의 대기 CO₂ 400 ppm 와 동일하고, 150 mbar 는 15%의 CO₂ 농도를 갖는 연도 가스 조건과 동일하고, 925 mbar 는 100% CO₂와 동일하다.

[0275]

[0276] 실시예 3b 성능 데이터

[0277] II) H₂O 증기 흡착

[0278] 에어로겔은 소수성 요소를 포함하는 것이 직접적 공기 포획에 바람직하다. 이는 물질이 공기로부터 CO₂를 흡착할 때 물 흡착과 경쟁하지 않도록 한다. 이는 다양한 상대 습도 환경에서 작동되는 에어로겔에 대한 소기의 특성이 다. APEMS, TEMS, TEES, 및 또는 DMDDES의 도입은 두 가지 주요 개선이 가능하도록 하였다: 1) 소수성 증가 및 2) 2 nm 미만의 갖는 기공을 형성하는 미소공극도를 유도하여 H₂O에 대한 CO₂ 선택성이 가능하도록 함. 표 5는 각각의 실리카-기반 에어로겔에 사용된 SiO₂ 단위를 제시한다. H₂O 흡착 성능 등온식은 도 19에 제공된다.

표 5

표 5 실리카-기반 에어로겔의 SiO₂ 단위의 조성

후보	조성물 SiO ₂ 단위(%)					
	APEMS	APTES	TEOS	TEMS	DMDES	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						

[0279]

[0280]

성능 3c 성능 데이터

[0281]

III) CO₂ 파과 시험

[0282]

동적 성능 시험의 경우, CO₂ 파과 실험을 건조 및 습윤 조건에서 수행하였다. 도 20은 건조 및 습윤(70 내지 80% RH) 조건 하에 740 ppm의 CO₂ 농도에서의 후보 A, B, 및 D의 파과 곡선을 제시한다. 도 21은 20 sccm 유량에서 건조 및 습윤(70 내지 80% RH) 조건 하에 500 ppm 및 740 ppm에서의 후보 B에 대한 파과 곡선을 제시한다. 740 ppm에서 증가된 CO₂ 농도는 더 빠른 파과 시간이되, 더 높은 CO₂ 용량을 보여준다. 표 6은 400 ppm(DAC), 740 ppm, 및 10,000 ppm에서 수행된 건조 및 습윤 조건 하의 CO₂ wt.% 용량을 제공한다. 도 22는 표준 DAC 물질, 제올라이트 13X에 대한 파과 곡선을 제시한다. 도 22 및 표 6은 미소공성 후보가 예상치 못하게 제올라이트

트 13X를 능가하며, 보다 중요하게는 습도의 존재 하에 CO₂를 지속적으로 포집할 수 있음을 보여준다.

표 6

표 6 실리카-기반 에어로겔의 파과 CO₂ wt.% 용량

후보	400 ppm (DAC 0.04%)		740 ppm		10,000 ppm (1%)	
	건조 CO ₂	습윤 CO ₂	건조 CO ₂	습윤 CO ₂	건조 CO ₂	습윤 CO ₂
	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%	wt%
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		
제올라이트 (대조군)	-	-	1.7	1.3	-	-
TIF-SIX	1.2	1.0				

[0283]

[0284] 실시예 3d 성능 데이터

[0285] IV) N₂ 가스 흡착

[0286] N₂ 흡착 용량을 77K에서 측정하고, 이 데이터로부터 BET 표면적을 결정할 수 있었다. N₂ 흡착 등온식은 도 23 내지 도 28에 제공되며, 표 7은 후보 에어로겔의 BET 표면적을 제공한다. 표 7로부터, 낮은 BET 표면적 범위가 존재하며, 이는 N₂ 가스가 3.3 Å 직경을 갖는 CO₂ 가스와 비교하여 3.64 Å의 보다 큰 동역학적 직경을 갖기 때문에, N₂에 접근 가능하지 않는 기공의 결과일 수 있다.

표 7

표 7 77K 흡착 등온식에서 N₂로부터 계산된 후보 물질의 BET 표면적

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

[0287]

- [0288] 실시예 3e 성능 데이터
- [0289] V) 흡착 CO₂ 사이클
- [0290] 도 29 내지 도 31은 다양한 조건 하에 후보 에어로겔에 대한 각각의 사이클 사이에 활성화를 갖는 연속적 흡착/탈착 사이클 후에 놀랍게도 예상치 못한 탁월한 성능을 보여준다.
- [0291] 도 32 및 도 33은 파과 실험에 대한 정보를 제공하여, 여기서, 후보 에어로겔의 순환성(cyclability)은 제올라이트 13X를 능가하였다. 이는 740 ppm의 CO₂ 농도 수준에서 작동되는 건조 및 습윤 조건에서 수행되었다.
- [0292] 실시예 4 실리카-기반 에어로겔의 펠릿 제형에 대한 일반 공정
- [0293] (i) 압축된 펠릿의 제조: 결합제 및 흑연을 건조된 실리카-기반 에어로겔과 혼합하고, 모든 성분이 균질하게 혼합되도록 하였다. 압축 압력 및 충전 깊이를 조절하여 소기의 두께의 고체 펠릿을 형성하였다. 보다 낮은 압력(즉, 설정 3)은 일반적으로 보다 적은 충전 깊이에 관련되어 탄탄한 고체 펠릿을 제조하였다. 보다 높은 압력(즉, 설정 5)은 더 큰 충전 깊이가 필요하였다. 둘 모두의 조합은 필요한 두께 범위의 펠릿을 제조하였다.
- [0294] (ii) 펠릿의 슬러리-기반 압출 제조: 나사 캡 용기 내에 다음, 50 mL의 각각의 에탄올과 물을 3 g의 실록산 용액에 조합하여 셀룰로스/실록산 용액-기반 결합제를 제조하였다. 이 혼합물에, 3 g의 셀룰로스를 100 mg씩 첨가하였다. 각각의 첨가 후, 셀룰로스가 용해될 때까지 슬러리를 지속적으로 교반하였다. 모든 잔여 셀룰로스를 첨가한 후, 점성질 용액의 점조도가 수득될 때까지 슬러리를 혼합하였다. 실리카-기반 에어로겔을 체질하여 <200 mm 크기의 입자를 수득하였다. 선택적으로, 윤활제(예를 들어, 마그네슘 스테아레이트)를 필요한 경우 사용하여 점도를 압출 가능한 물질로 조절하였다.
- [0295] 액체 압출의 일반 방법은 10 mL의 플라스틱 시린지와 2.0 mm의 암 루어락 바브 부속품(female Luer-lock barb attachment)의 사용을 수반한다. 이는 0.5 내지 2 g 규모의 제형화된 페이스트에 대한 압출이 가능하도록 한다.
- [0296] 실리카-기반 에어로겔 및 결합제를 조합하고, 스페툴라를 사용하여 페이스트로 만들었다. 질소 가스를 부드럽게 흘리면서 용매를 천천히 증발시켰고, 이는 약 2 내지 3분의 노출 후에 도우-유사 페이스트를 제공하였다. 도우를 2.0 바브에 들어맞는 5 mL, 10 mL 시린지를 통해 밀어넣었다. 누들 유사 압출물이 형성되었고, 펠릿을 개별적으로 약 3 내지 4 mm 길이로 절단하였다. 펠릿을 실온에서 건조한 다음, 진공(0.1 mbar) 하에 80℃에서 12시간 동안 추가로 건조하였다.
- [0297] 실시예 4a - 후보 B
- [0298] 11 g의 결합제 및 1.58 g의 흑연을 모든 성분이 균질하게 혼합될 때까지 66 g의 후보 B와 혼합하는 것에 의해 상기 (i)에 기재된 방법에 따라 펠릿을 형성하였다. 압축 압력 및 충전 깊이를 조절하여 후보 B의 소기의 두께의 고체 펠릿을 형성하였다.
- [0299] 실시예 4b - 후보 E
- [0300] (ii)에 따른 결합제 용액 및 0.62 g의 후보 E(<200mm에서 체질됨), 2.92 g의 셀룰로스/실록산 결합제, 0.06 mg의 마그네슘 스테아레이트(윤활제)를 사용하여 제조된 실리카-기반 에어로겔 제형을 제조하는 것에 의해 상기 (ii)에 기재된 방법에 따라 펠릿을 형성하였다. 결합제 용액 및 실리카-기반 에어로겔 제형을 조합하고, 스페툴라를 사용하여 페이스트로 만들었다. 질소 가스를 부드럽게 흘리면서 용매를 천천히 증발시키고, 이는 2 내지 3분의 노출 후에 도우-유사 페이스트를 제공하였다. 도우를 2.0 바브에 들어맞는 5 mL, 10 mL 시린지를 통해 밀어넣었다. 누들-유사 압출물이 형성되었고, 펠릿을 개별적으로 3 내지 4 mm 길이로 절단하였다. 펠릿을 실온에서 건조한 다음, 진공(0.1 mbar) 하에 80℃에서 12시간 동안 추가로 건조하였다.
- [0301] 실시예 4c - 후보 K
- [0302] 15.38 g의 결합제 및 1.54 g의 흑연을 모든 성분이 균질하게 혼합될 때까지 60 g의 후보 K와 혼합하는 것에 의해 상기 (i)에 기재된 방법에 따라 펠릿을 형성하였다. 압축 압력 및 충전 깊이를 조절하여 후보 K의 소기의 두께의 고체 펠릿을 형성하였다.
- [0303] 실시예 5 실리카-기반 에어로겔의 펠릿화 특성
- [0304] 실리카-기반 에어로겔 펠릿의 특성은 결합제 유형 및 양의 선택에 의해 결정되었다. 본 발명자들은 예상치 못하게 사용되는 결합제 유형 및 양이 펠릿이 압축되거나, 압출될 수 있는지 여부를 결정할 것이며, 특정 적용(예를

들어, DAC 장치를 위한 펠릿 대 코팅, 여기서, 펠릿 제형은 유의하지 않으며, 대신 제형의 점도가 중요하게 됨)에 따라 좌우될 것임을 발견하였다.

[0305] 특정 적용에 따라, 에어로겔 생성물은 펠릿 형태로 바람직하다(예를 들어, DAC 장치). 따라서, 결합제 유형, 후보 유형, 및 결합제 함량을 강력한 강도 및 탁월한 CO₂ 흡수 성능을 목표로 하여 연구하였다.

[0306] 표 8은 다양한 결합제의 발견 및 동일한 후보의 펠릿의 강도에 대한 영향을 요약하고 있다. 결과는 NH₂ 실록산 결합제가 최종 펠릿의 강도의 측면에서 다른 결합제와 비교하여 우수하게 수행되었음을 시사한다.

표 8

표 8 후보 A 에 대한 결합제 유형 대 실리카-기반 에어로겔의 강도

결합제	결합제 양 (wt.%)	형성되는 형상	압축성/절단성
실리카/하이드록시프로필 셀룰로스	29	아니오	아니오/아니오
NH ₂ 실록산	35	예	예/예
폴리(비닐 알코올)	35	예	예 / 아니오
저분자량 폴리글리콜	25	예	예/예
메틸 셀룰로스/폴리(프로필렌)글리콜	25	예	예/예
폴리(비닐 알코올)	36	예	예 / 아니오
폴리메틸하이드로실록산	36	예	예 / 아니오
폴리디메틸실록산	30	예	예 / 아니오
폴리비닐피롤리돈	30	예	예 / 아니오

[0307]

[0308] 표 9는 NH₂ 실록산 결합제와 결합되어 제조된 펠릿 형태의 여러 가지 에어로겔 후보에 대한 펠릿화 특성을 요약하고 있다. 결과는 후보 L이 시험된 후보 중에서 가장 강력한 펠릿 조합 및 탁월한 성능을 제공함을 입증한다.

표 9

표 9 NH₂ 실록산에 대한 실리카-기반 에어로겔의 후보 대 강도

후보	결합제	결합제 양(wt.%)	형성되는 형상	압축성/절단성
A	NH ₂ 실록산	35	예	예/아니오
B	NH ₂ 실록산	13	예	예/아니오
B	NH ₂ 실록산	24	예	예/예
L	NH ₂ 실록산	23	예	예/예

[0309]

[0310] 표 10은 에어로겔 펠릿 강도 및 성능에 대한 결합제의 양의 영향을 요약하고 있다. 결과는 NH₂ 실록산 결합제와 조합한 후보 L의 에어로겔 펠릿 강도가 결합제의 양이 약 10 wt.% 미만일 때, 불량하게 됨을 시사한다.

표 10

표 10 NH₂ 실록산을 갖는 후보 L에 대한 결합제 양 대 실리카-기반 에어로겔의 강도

후보	결합제	결합제 양(wt.%)	형성되는 형상	압축성/절단성
L	NH ₂ 실록산	10	예	예/아니오
L	NH ₂ 실록산	20	예	예/예
L	NH ₂ 실록산	30	예	예/예
L	NH ₂ 실록산	43	예	예/예

[0311]

[0312]

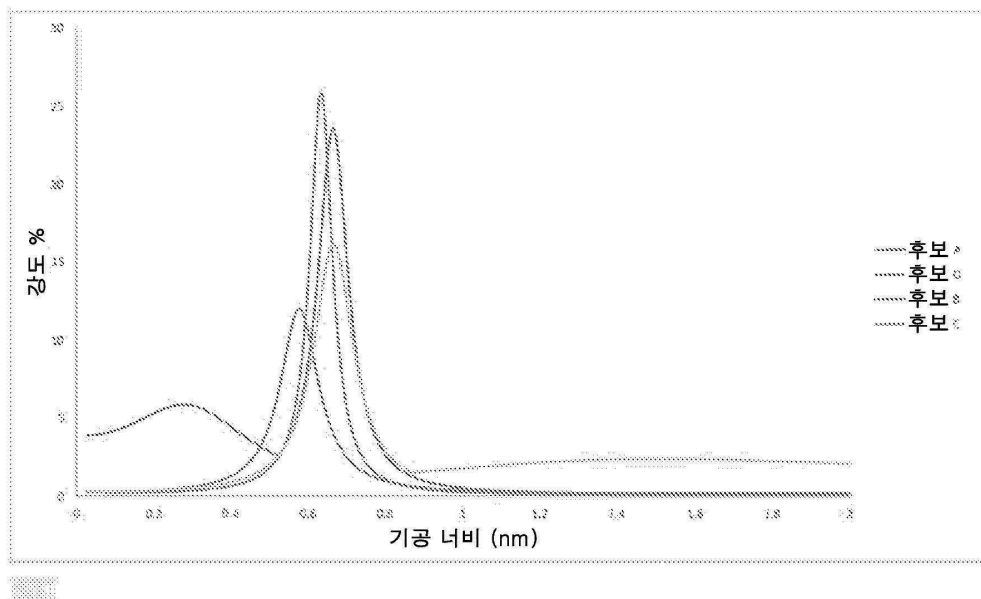
실시예 6 실리카-기반 에어로겔 펠릿의 물 흡수 특성

[0313]

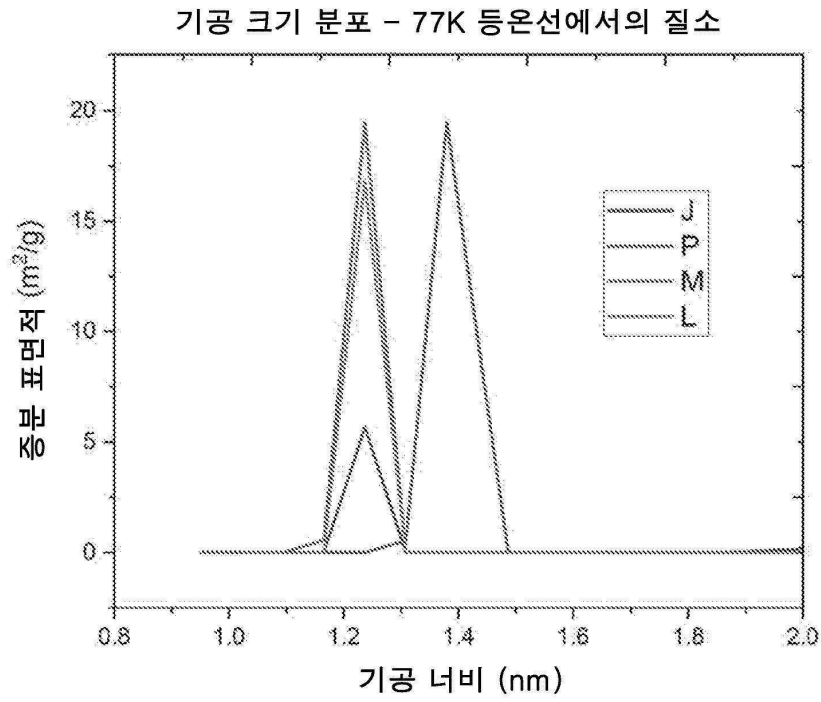
도 34는 TIF-SIX 펠릿 및 제올라이트 13X 펠릿과 비교하여 후보 에어로겔 펠릿의 물 흡착에 대한 정보를 제공한다. 이는 298K에서 작동되는 건조 및 습윤 조건에서 수행되었다. 결과는 제올라이트 13X 또는 TIF-SIX 펠릿과 달리, 후보 에어로겔 펠릿은 양호한 물 흡착 특성을 제공하지 않으며, 놀랍게도 본 실리카-기반 에어로겔 펠릿을 CO₂의 선택적 흡착에 대해 훨씬 우수하도록 만드는 것을 보여준다.

도면

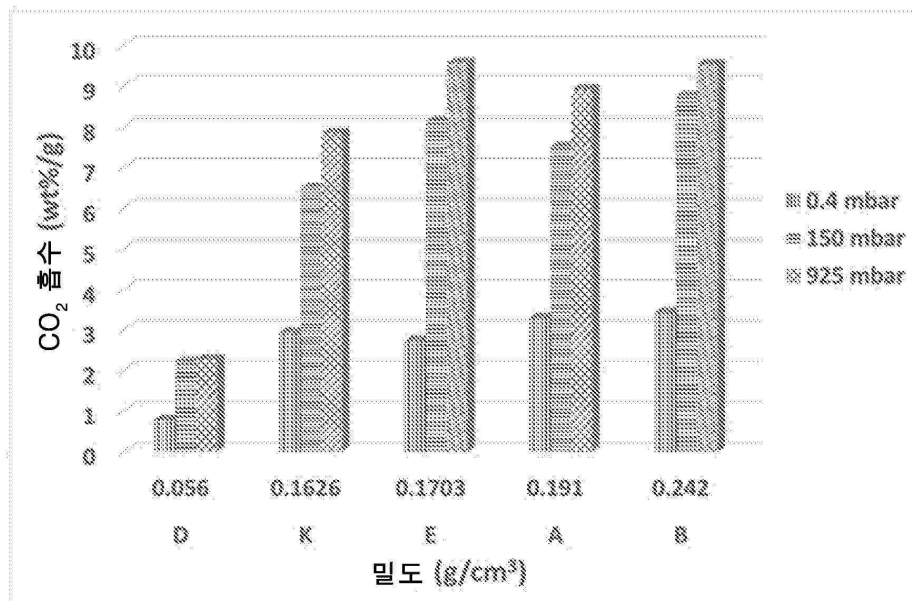
도면1a



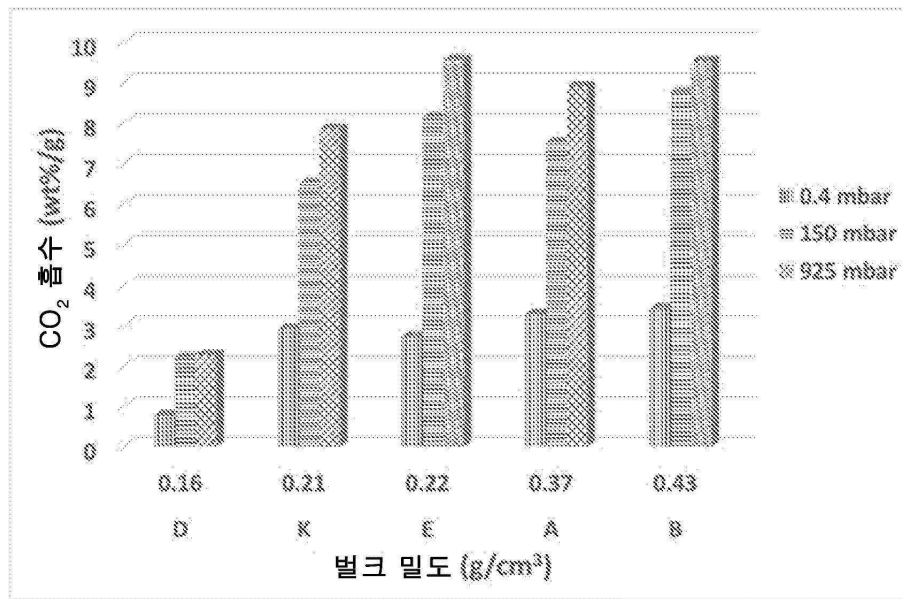
도면1b



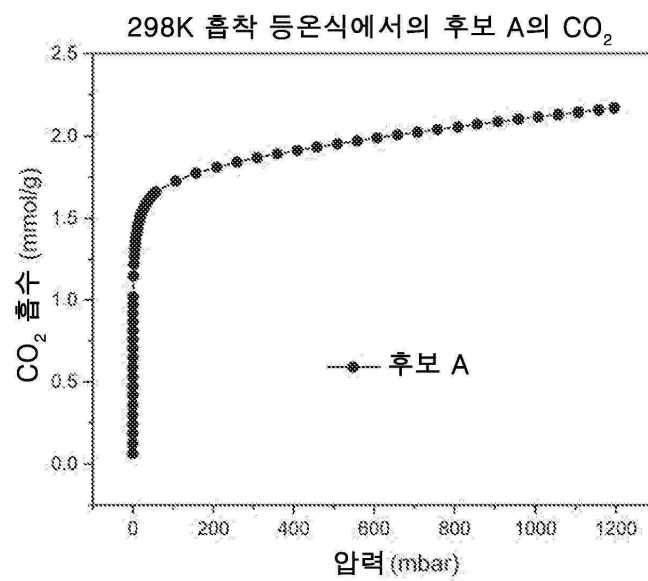
도면1c



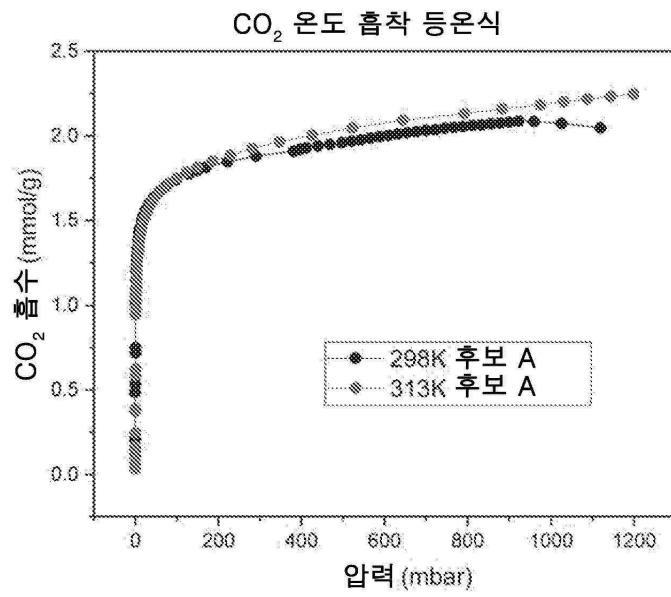
도면1d



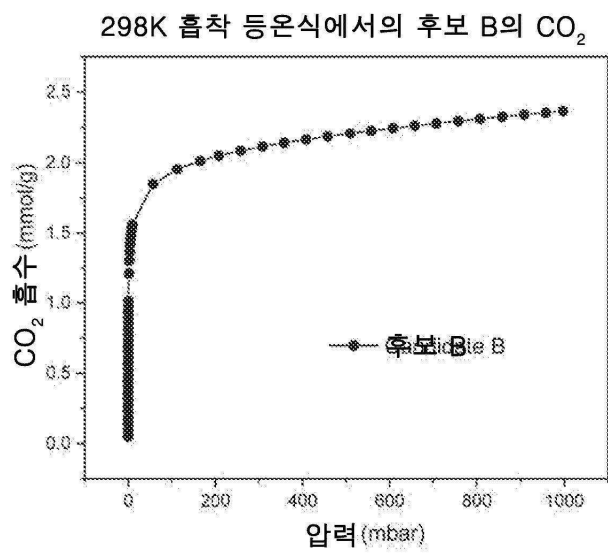
도면2



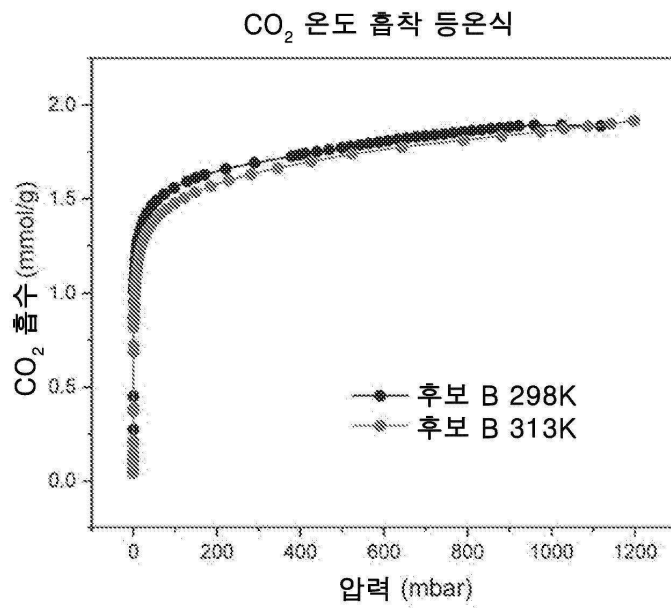
도면3



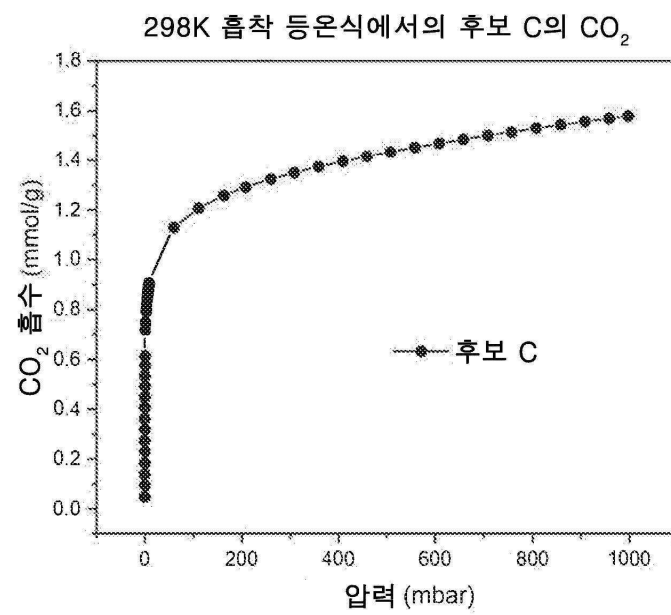
도면4



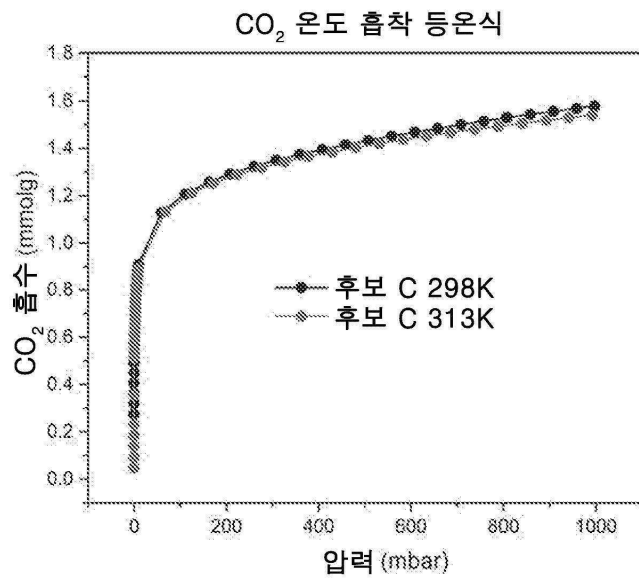
도면5



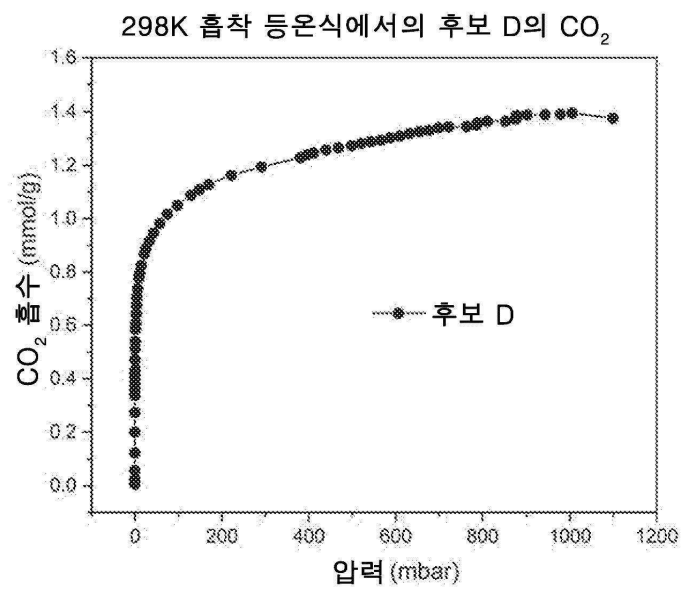
도면6



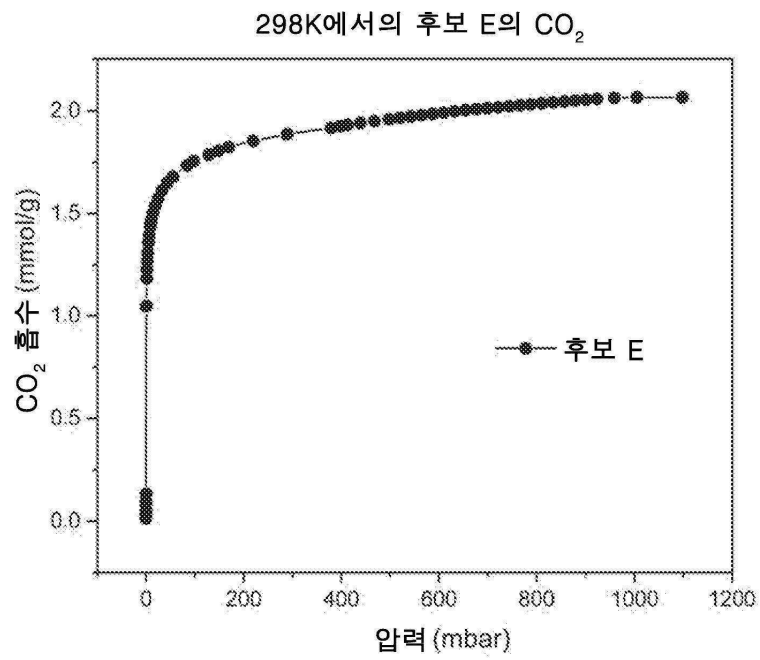
도면7



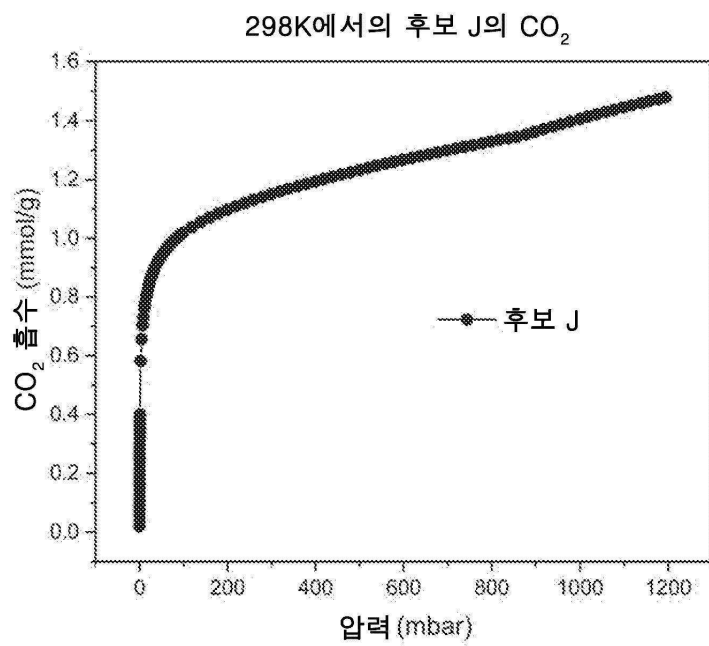
도면8



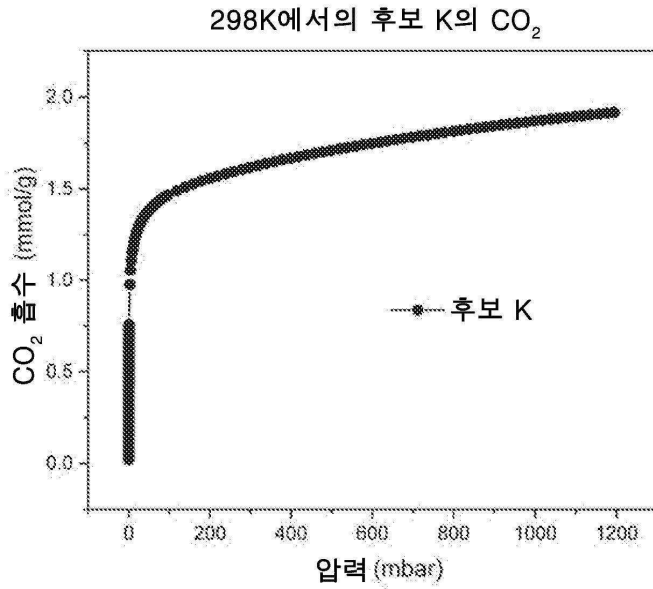
도면9



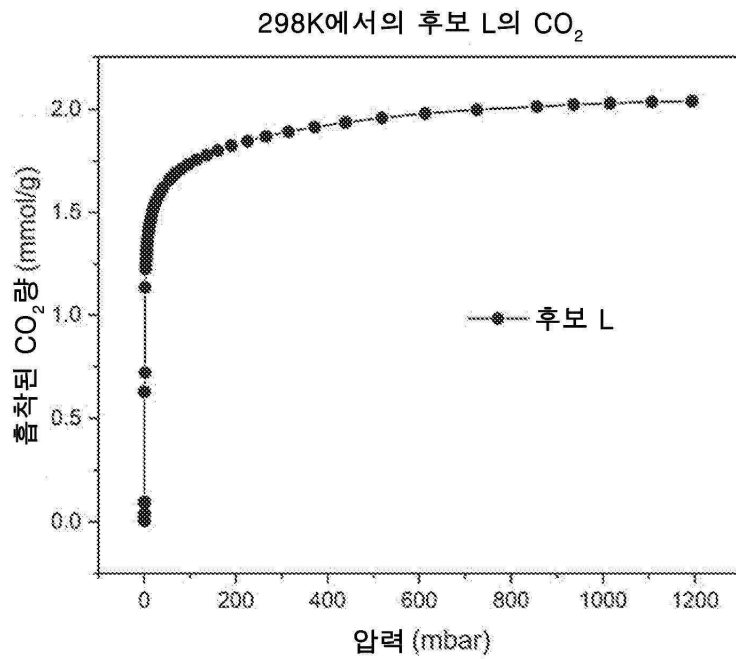
도면10



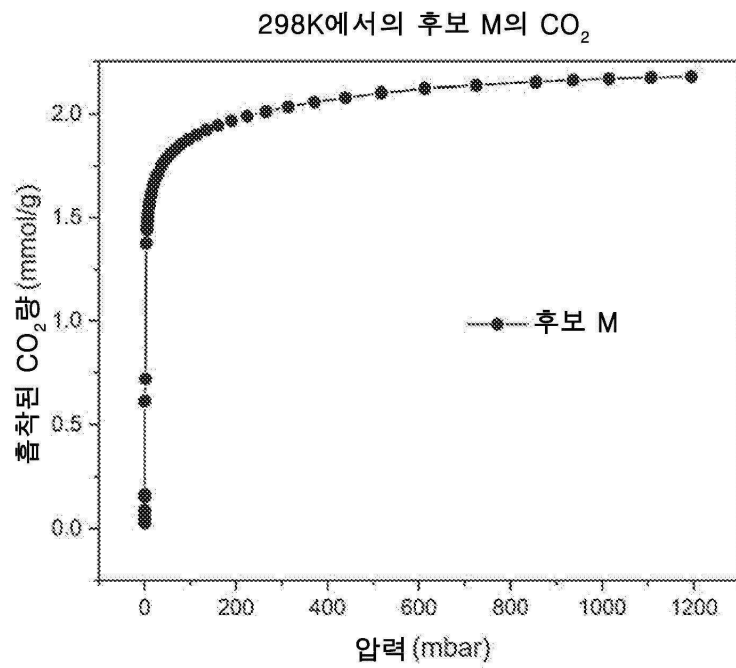
도면11



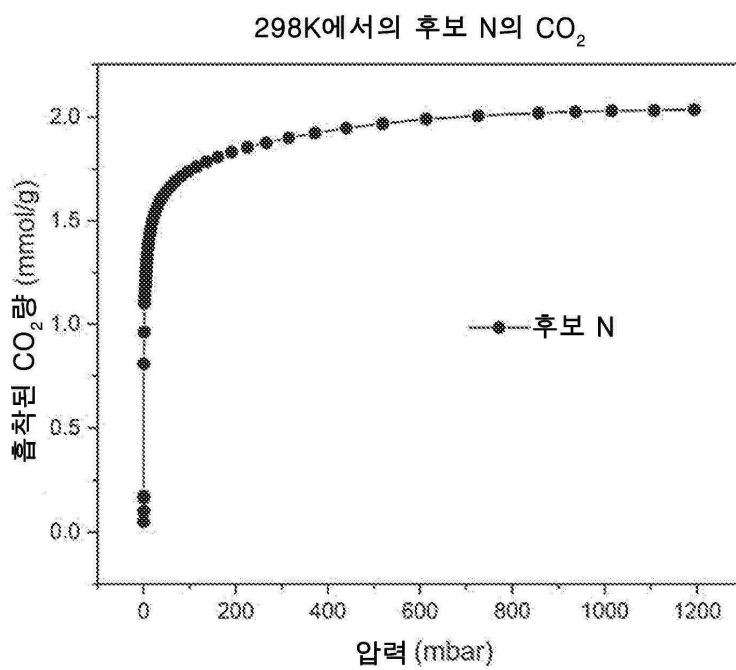
도면12



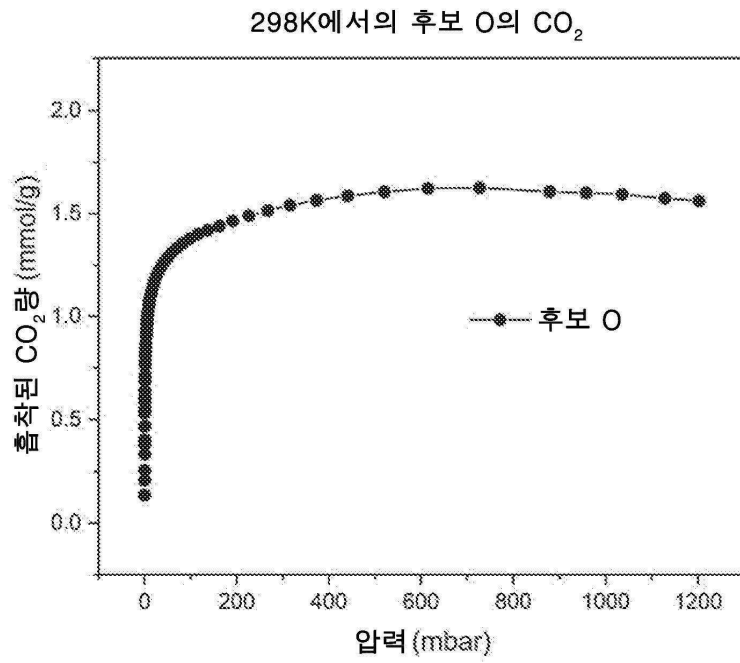
도면13



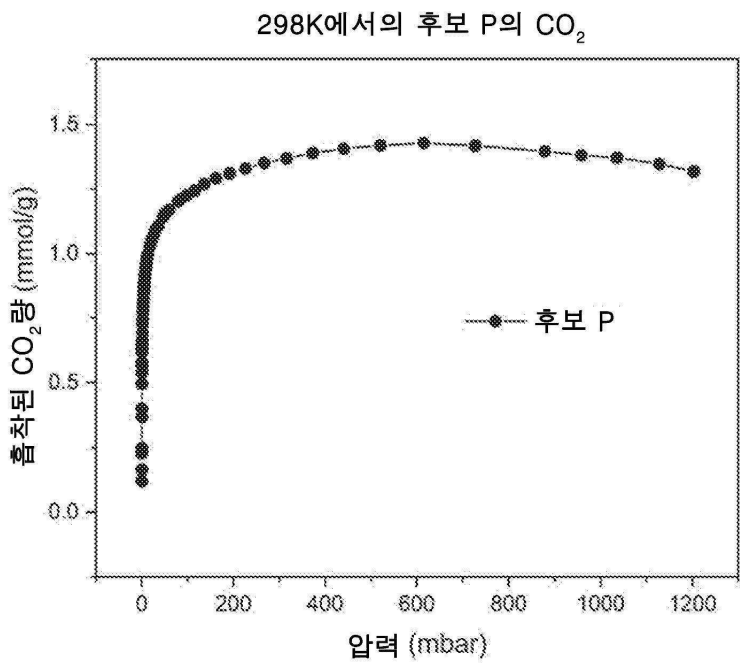
도면14



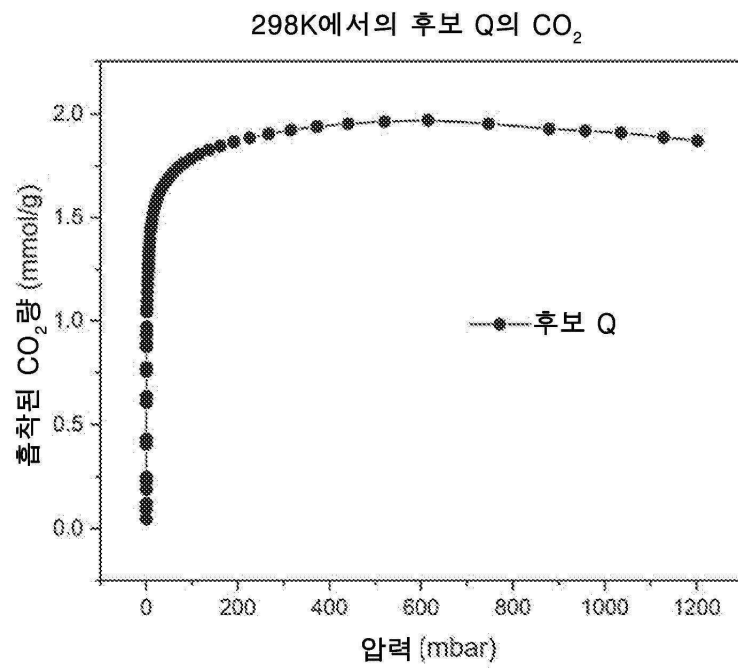
도면15



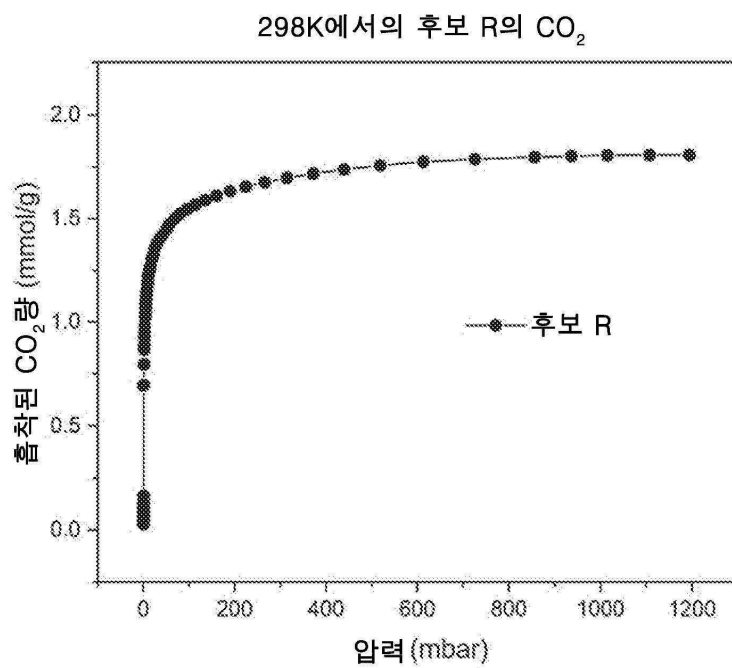
도면16



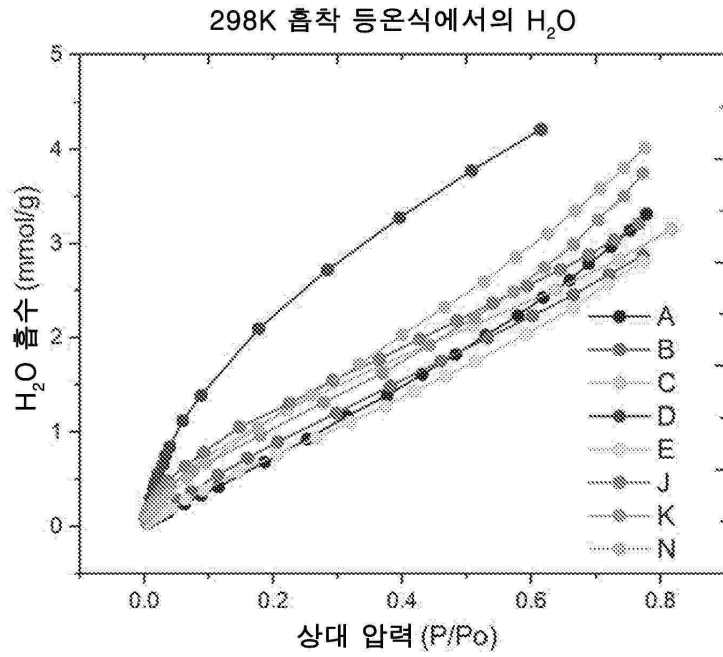
도면17



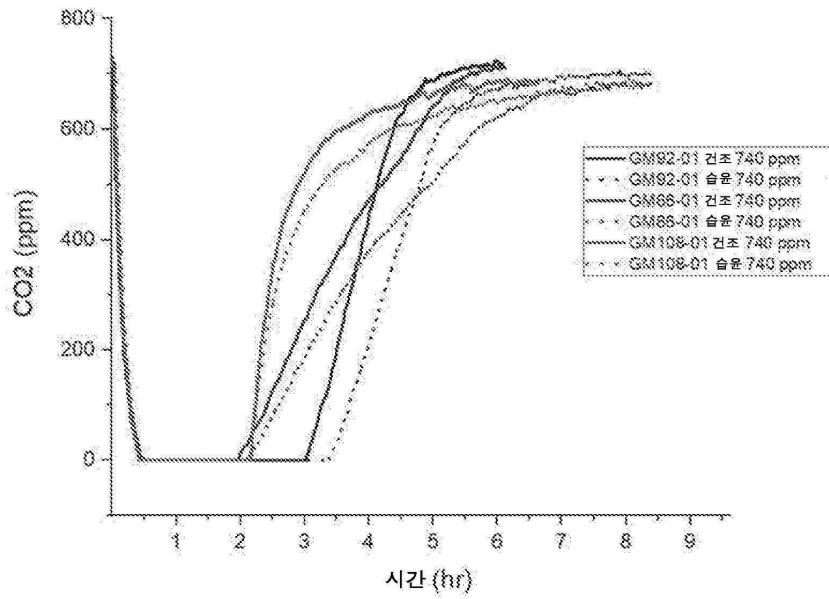
도면18



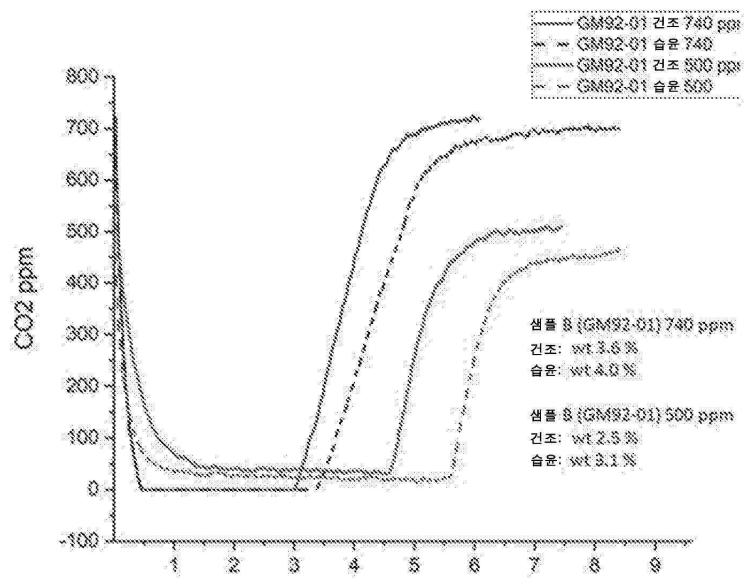
도면19



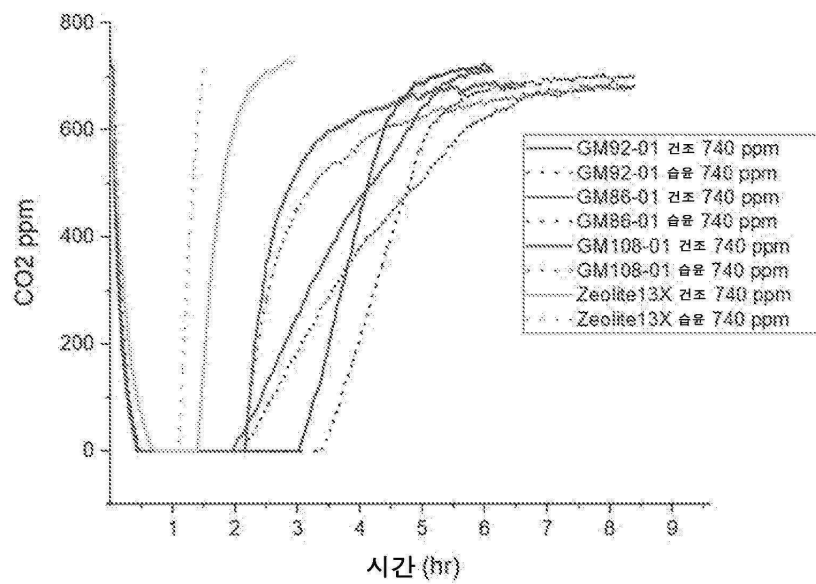
도면20



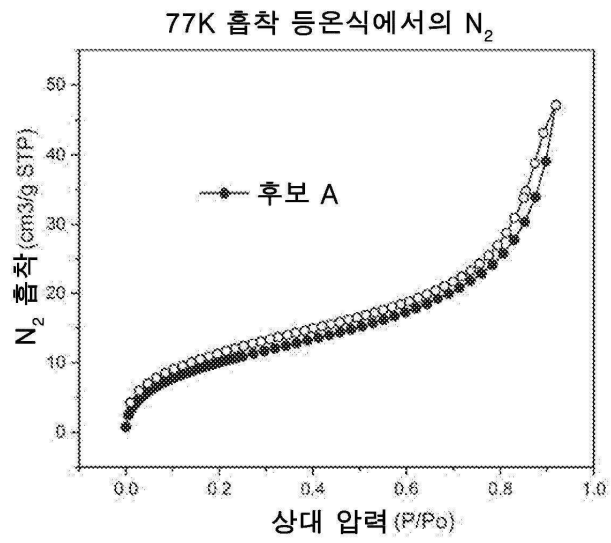
도면21



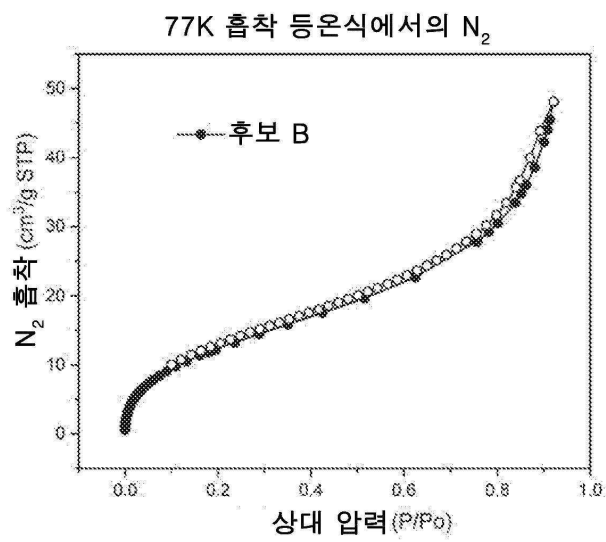
도면22



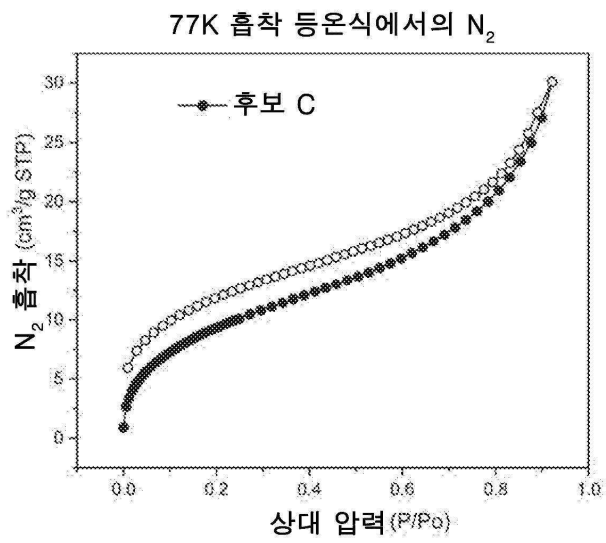
도면23



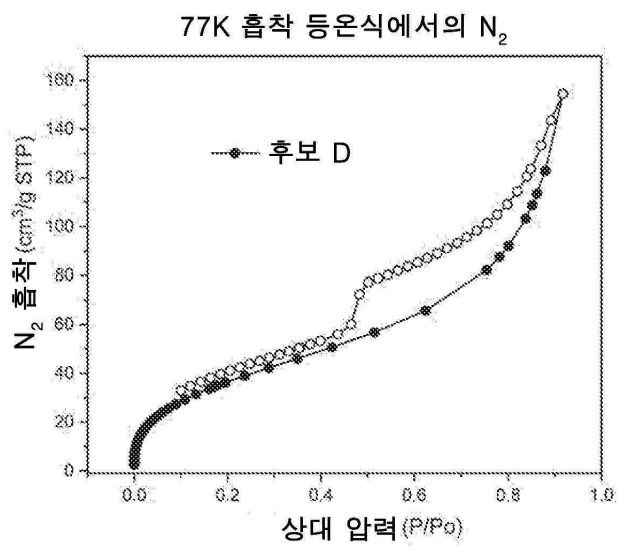
도면24



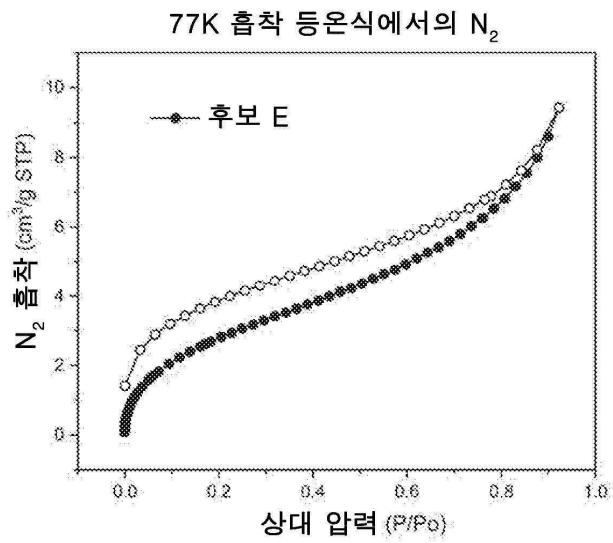
도면25



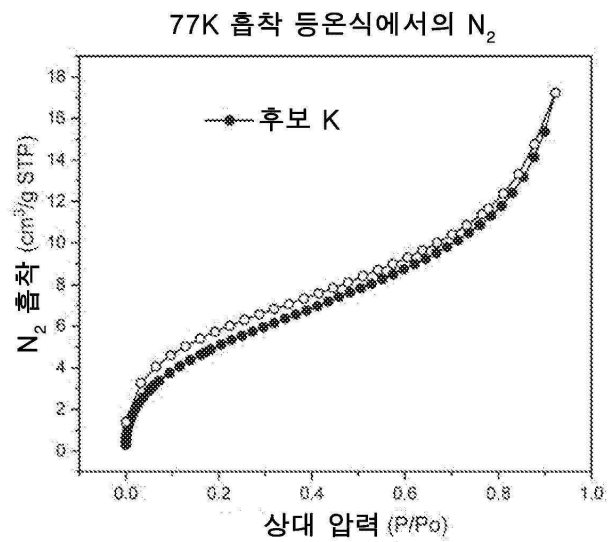
도면26



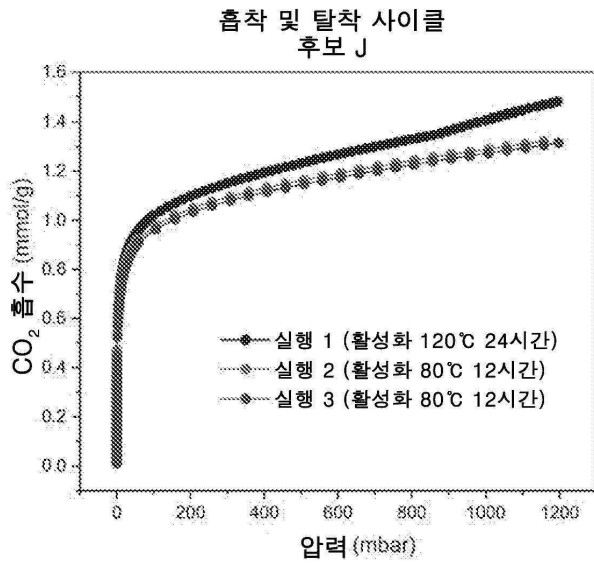
도면27



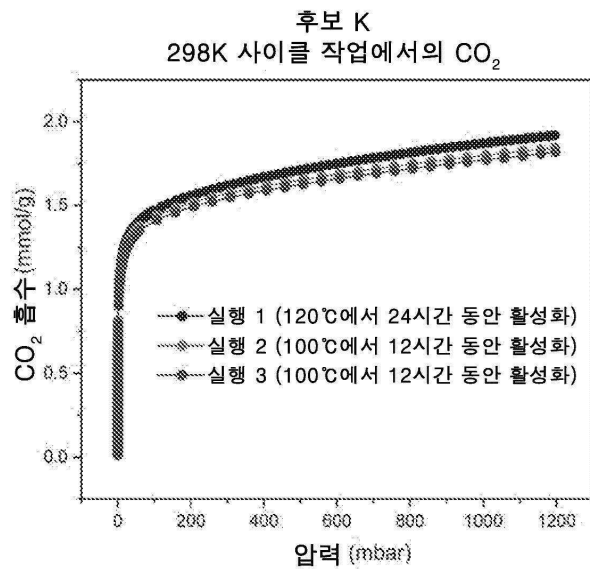
도면28



도면29

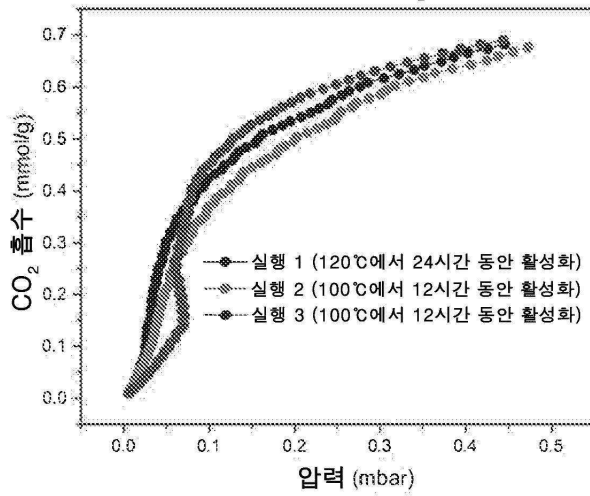


도면30



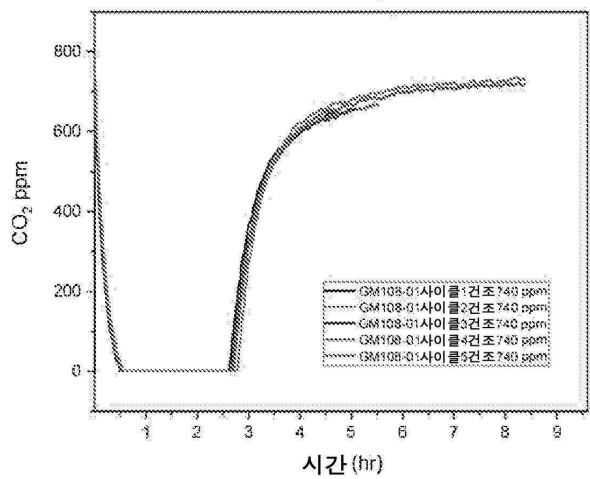
도면31

298K 사이클에서의 후보 K의 CO₂(저압에서의 흡입)



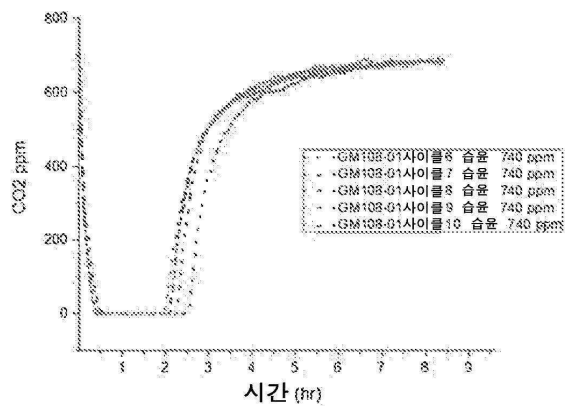
도면32

후보 D의 CO₂ 파피



실행#	CO2 wt%
740 ppm에서의 건조	
1	3.1
2	3.2
3	3.2
4	3.2
5	3.3
제올라이트 13X	1.7

도면33



실행#	CO2 wt%
740 ppm에서의 습윤	
6	3.0
7	2.7
8	2.5
9	2.5
10	2.4
제올라이트 13X	1.3

도면34

