



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本 (11)證書號數：TW I614211 B

(45)公告日：中華民國 107 (2018) 年 02 月 11 日

(21)申請案號：102134210

(22)申請日：中華民國 102 (2013) 年 09 月 24 日

(51)Int. Cl. : C01B32/20 (2017.01) H01M4/131 (2010.01)

H01M4/133 (2010.01) H01B1/04 (2006.01)

(30)優先權：2012/09/24 中國大陸 201210359340.4

(71)申請人：東麗股份有限公司 (日本) TORAY INDUSTRIES, INC. (JP)

日本

(72)發明人：孫培育 SUN, PEIYU (CN)；吳禎琪 WU, ZHENQI (CN)；劉剛橋 LIU, GANGQIAO (CN)；吳剛 WU, GANG (CN)；玉木榮一郎 TAMAKI, EIICHIRO (JP)；久保田泰生 KUBOTA, YASUO (JP)

(74)代理人：王彥評；賴碧宏

(56)參考文獻：

CN 102142541A

CN 102226951A

審查人員：楊艾琪

申請專利範圍項數：5 項 圖式數：0 共 32 頁

(54)名稱

可高度分散之石墨烯組成物、其製備方法、及包含該可高度分散之石墨烯組成物的用於鋰離子二次電池之電極

HIGHLY DISPERSIBLE GRAPHENE COMPOSITION, THE PREPARATION METHOD THEREOF, AND ELECTRODE FOR LITHIUM ION SECONDARY BATTERY CONTAINING THE HIGHLY DISPERSIBLE GRAPHENE COMPOSITION

(57)摘要

為了製備高度導電及可高度分散的石墨烯並獲得具有好的輸出特徵及循環特徵之用於鋰離子電池的電極，本發明提供一種包含硫脲的石墨烯組成物，其硫對碳的元素比率以 X 射線光電子光譜測量係 0.04 或更大及 0.12 或較小。

In order to prepare highly conductive and highly dispersible graphene and obtain an electrode for a lithium ion battery with good output characteristics and cycle characteristics, there is provided a graphene composition containing thiourea, the element ratio of sulfur to carbon being 0.04 or more and 0.12 or less in X-ray photoelectron spectroscopy measurement.

發明專利說明書

【發明名稱】(中文/英文)

可高度分散之石墨烯組成物、其製備方法、及包含該可高度分散之石墨烯組成物的用於鋰離子二次電池之電極

HIGHLY DISPERSIBLE GRAPHENE COMPOSITION, THE PREPARATION METHOD THEREOF, AND ELECTRODE FOR LITHIUM ION SECONDARY BATTERY CONTAINING THE HIGHLY DISPERSIBLE GRAPHENE COMPOSITION

【技術領域】

【0001】 本發明係關於可高度分散及高度導電之石墨烯組成物、其製備方法、及包含其之鋰離子二次電池。更特別的是，本發明係關於一種石墨烯組成物，其分散性可藉由容許包含硫脲而提高；及一種用於鋰離子二次電池的電極，其藉由容許包含該石墨烯作為導電添加劑而被賦予高導電度。

【先前技術】

【0002】 與習知的鎳鎘電池及鎳金屬氫化物電池比較，鋰離子二次電池(於此之後，有時稱為鋰離子電池)係一種能達到較高電壓及較高能量密度的二次電池，因為其能夠讓電池的尺寸變小及重量較輕，其已經廣泛使用於資訊相關的行動通訊電子設備，諸如行動電話及膝上型個人電腦。關於鋰離子二次電池，已認為其使用於將該電池併入電動車輛、混合型電動車輛及其類似物中之機載(onboard)用途，或諸如使用於電能工具之工業用途的機會未來將進一步增加，且已經渴望想要達到進一

步高度提高容量及高度提高輸出。

【0003】 該鋰離子二次電池係由下列組成：正及負電極，其具有至少一種能可逆地釋放及吸收鋰離子的活性材料、分隔器，其設置在容器中及分隔該正電極與負電極，及且容器係充入非水性電解質溶液。

【0004】 該正電極係藉由將包含活性材料、導電添加劑及黏合劑的電極試劑塗布至由鋁及其類似物製得且讓其接受加壓成型之金屬箔電流收集器而製備。至於該電流正電極活性材料，已經相當頻繁地使用鋰與過渡金屬的複合氧化物(於此之後，有時稱為鋰金屬氧化物)粉末，諸如鈷酸鋰(LiCoO_2)、鎳酸鋰(LiNiO_2)、錳酸鋰(LiMnO_2)、或部分鈷經鎳及錳取代之三元系統材料($\text{LiMn}_x\text{Ni}_y\text{Co}_{1-x-y}\text{O}_2$)、及尖晶石型錳酸鋰(LiMn_2O_4)。因為這些材料包含所謂的稀土元素，就成本及穩定供應量來說會有問題。

【0005】 於最近幾年中，具有高安全程度的以橄欖石為基底材料(以磷酸鹽為基底的材料)已經引起注意，尤其是，已開始將包含鐵(其係豐富的資源之一且不貴)之磷酸鋰鐵(LiFePO_4)付諸實際應用。再者，具有高輸出能量程度的磷酸鋰錳(LiMnPO_4)亦已引起注意作為下一代活性材料。亦已分別地使用諸如 V_2O_5 之金屬氧化物、諸如 TiS_2 、 MoS_2 及 NbSe_2 之金屬化合物、及其類似物。

【0006】 此外，如在正電極的情況中般，該負電極係藉由將包含活性材料、導電添加劑及黏合劑的電極試劑塗布至由銅及其類似物製得且讓其接受加壓成型之金屬

箔電流收集器而製備。通常來說，該用於負電極的活性材料之實施例包括鋰金屬、鋰合金，諸如 Li-Al 合金及 Li-Sn；矽化合物，其中 SiO、SiC、SiOC 及其類似物係基本構成元素；導電聚合物，其係藉由將鋰摻入聚乙炔、聚吡咯及其類似物中而製備；夾層化合物，其係藉由容許將鋰離子併入結晶、碳材料（諸如天然石墨、人造石墨及硬碳）中而製備；及其類似物。

【0007】 在這些正及負電極的成份中，該導電添加劑在達到從活性材料至電流收集器的有效傳導路徑上扮演一定角色，及係用於鋰離子電池的電極之基本構成材料。

【0008】 但是，當導電添加劑的含量高時，每電極重量的電池容量降低。因此，較佳為該導電添加劑的量應該儘可能少，及對使用較少量具有高導電度且能穩固導電度的導電添加劑有所需求。再者，於最近幾年中，有許多雖然其高容量但因為其導電度低而尚未付諸實際應用的活性材料，例如，以橄欖石為基底的正電極活性材料、以固態溶液為基底的活性材料及其類似物。在此方面上，對具有高導電度的導電添加劑有需求。

【0009】 習知使用作為導電添加劑的材料之實施例包括乙炔黑、克特晏黑(ketjen black)及其類似物。因為這些不貴且具有合理的分散性，但是具有低結晶性，所以其導電性低於石墨或其類似物之導電性，且必需容許其以大量併入。

【0010】 另一方面，已認為石墨烯因為具有高導電度、高縱深比率之形狀及大量的每單位重量顆粒數，其

具有高潛力作為導電添加劑。

【0011】 石墨烯係由碳原子組成的二維結晶之一種，且自其在 2004 年被發現已經引起注意。石墨烯具有優良的電、熱、光學及機械性質，並在諸如電池材料、能量儲存材料、電子裝置及複合材料之領域中具有寬廣範圍的可能應用。若發揮出石墨烯的潛力，當使用石墨烯作為導電添加劑時，有可能可製備出具有高容量及高輸出的鋰離子電池電極。

【0012】 石墨烯的製備方法之實施例包括機械剝離方法、化學氣相沈積方法、磊晶生長方法及氧化還原方法。關於前三種方法(機械剝離方法、化學氣相沈積方法及磊晶生長方法)，其生產力低及大量製造困難。另一方面，因為氧化還原方法具有大量製造的潛力及進一步具有容易進行化學改質的優點，其已經引起注意。

【0013】 目前提出的氧化還原方法使用一種熱還原方法（一種使用胼類及其它有機化合物作為還原劑或其類似物的方法），並還原氧化石墨烯來製備石墨烯。

【0014】 石墨烯係一種奈米碳且通常較不易被分散。此外，為了有效地使用石墨烯作為用於鋰離子電池的導電添加劑，良好地分散石墨烯的技術係必需的。

【0015】 在非專利文件 1 中揭示將石墨烯使用在用於鋰離子電池的電極之實施例。在非專利文件 2 中揭示藉由將分散劑加入至石墨烯提高分散性的實施例。在非專利文件 3 及專利文件 1 中揭示藉由硫脲還原氧化石墨烯來製備石墨烯之實施例。

先述技藝文件

專利文件

【0016】 專利文件 1：中國專利第 20110072746.X 號。

非專利文件

【0017】 非專利文件 1：Wang H.等人，Angewandte Chemie International Edition，2011，50，7364；

【0018】 非專利文件 2：Su Q 等人，Advanced Materials，2009，21，3191；

【0019】 非專利文件 3：Liu Y 等人，Journal of Nanoscience and Nanotechnology Carbon，2011，11，10082。

【發明內容】

本發明欲解決的問題

【0020】 如上所述，石墨烯係一種奈米碳及由於其高比表面積而非常難以分散。

【0021】 在非專利文件 1 中，正電極的性能係藉由直接結合石墨烯與正電極活性材料而提高。但是，該性能無法利用作為導電添加劑的石墨烯之高縱深比率而充分地發揮，因為無法被賦予石墨烯分散性。

【0022】 在非專利文件 2 中，分散性係藉由將茈磺酸作為分散劑加入至石墨烯而提高。在此方法中，因為大量茈磺酸由於 π - π 堆積交互作用而覆蓋表面，使得導電度降低。

【0023】 在非專利文件 3 及專利文件 1 中，雖然石墨烯係藉由硫脲還原氧化石墨烯而製備，但其未專注在石

墨烯的分散性及在最後產物中幾乎無包含硫脲。

【0024】 如此一來，至現在尚無揭示出關於石墨被賦予烯高分散性且成功地使用作為用於鋰離子電池電極的導電添加劑之實施例。

【0025】 本發明的第一目標為製備高度導電及可高度分散的石墨烯。第二目標為藉由使用高度導電及可高度分散的石墨烯而獲得具有好的輸出特徵及循環特徵之用於鋰離子電池之電極。

問題的解決方案

【0026】 由於大量研究，本發明家已發現高度導電及可高度分散的石墨烯可藉由容許在石墨烯中適度地包含硫脲及賦予石墨烯具有分散性而獲得。

【0027】 也就是說，本發明係有關：

- (1)一種包含硫脲的石墨烯組成物，其硫對碳的元素比率以 X 射線光電子光譜測量度量係 0.04 或更大及 0.12 或較小；
- (2)一種用於鋰離子電池的電極，其包含(1)的石墨烯組成物、電極活性材料及黏合劑；
- (3)一種用以製造石墨烯組成物的方法，其包括於硫脲存在下，在 20℃或較高及 60℃或較低下還原氧化石墨烯的步驟；
- (4)該(3)之用以製造石墨烯組成物的方法，其中該氧化石墨烯係以 0.5 或更大及 4 或較小之硫脲對氧化石墨烯的重量比率還原；及
- (5)一種用於鋰離子電池的電極，其包含一藉由(3)或

(4)之方法製造的石墨烯組成物、一電極活性材料及一黏合劑。

本發明之效應

【0028】 根據本發明之石墨烯組成物可藉由容許硫脲適度地分布在石墨烯表面上而被賦予分散性，同時維持高導電度。再者，藉由將此可高度分散及高度導電的石墨烯與黏合劑及電極活性材料一起使用，可提供一種具有優良的放電性能之用於鋰離子電池之電極。

【圖式簡單說明】

無。

【實施方式】

<石墨烯組成物>

【0029】 在本發明中石墨烯具有由一起堆疊的單層石墨烯薄片組成之結構且具有片狀形式。雖然石墨烯的厚度無特別限制，其較佳為 100 奈米或較少，更佳為 50 奈米或較少及進一步較佳為 20 奈米或較少。關於石墨烯在縱深方向上的尺寸，下限較佳為 0.5 微米或更多，更佳為 0.7 微米或更多及進一步較佳為 1 微米或更多，及上限較佳為 50 微米或較少，更佳為 10 微米或較少及進一步較佳為 5 微米或較少。在此方面上，石墨烯在縱深方向上的尺寸指為石墨烯平面之主軸的最大長度及較小軸的最小長度之平均。

<硫脲>

【0030】 根據本發明之石墨烯組成物包括硫脲。硫脲係一種具有尿素之氧原子已經由硫原子置換的結構之分

子。也就是說，這樣一來該包含硫脲的石墨烯組成物在其表面上包括一定比例的硫元素。

【0031】 爲了將在石墨烯組成物表面上的硫脲量設定至適當量，需要容許在 X 射線光電子光譜中之硫對碳的元素比率爲 0.04 或更大及 0.12 或較小。再者，較佳爲硫對碳的元素比率係 0.06 或更大及 0.10 或較小。若是在表面上之硫脲比例太小，並無法賦予該石墨烯組成物分散性。另一方面，若是硫脲比例太大，該石墨烯組成物之導電度降低。在 X 射線光電子光譜中，以軟 X 光照射放進超高真空中的樣品表面及藉由分析器偵測從表面發射的光電子。在材料中的束縛電子之束縛能值係從寬光電子頻譜獲得，及關於在材料中的元素之資訊係從該束縛能值獲得。再者，可使用波峰面積比率來定量地決定元素比率。

【0032】 該容許包含硫脲的方法無特別限制。爲了製備該石墨烯組成物，可混合硫脲與石墨烯或可於硫脲存在下還原氧化石墨。

【0033】 在混合硫脲與石墨烯的方法上無特別限制，且可使用已知的混合器及揉捏器。特別是，其實施例包括使用自動操作研鉢、三輥研磨機、珠磨機、行星式球磨機、均化器、行星式混合器、雙軸揉捏器或其類似機器之方法。在這些當中，行星式球磨機係合適於混合二種不同粉末。

【0034】 之後將描述於硫脲存在下還原氧化石墨的特定方法。

【0035】 雖然 X 射線光電子光譜係使用於石墨烯組成物的表面分析，爲了測量在整個石墨烯組成物和表面中的硫脲含量，較佳爲使用熱脫附 GC-MS 及 TPD-MS 分析。這些方法能夠定性及定量地測量當對該組成物施加熱時所揮發的組分。在石墨烯組成物中的硫脲含量較佳爲 0.002 或更多及 0.04 或較少，相對於碳組分，進一步較佳爲 0.005 或更多及 0.02 或較少。

【0036】 在此方面上，亦可藉由 TOF-SIMS 方法來測量硫脲是否包含在石墨烯組成物中。在 TOF-SIMS 方法中，以脈衝離子(一級離子)照射放進超高真空中的樣品表面，及質量分析從樣品表面發射出的離子(二級離子)來分析在樣品表面上的物質。藉由此方法分析該包含硫脲的石墨烯組成物，可獲得來自硫脲分子量的波峰。

【0037】 根據本發明之石墨烯組成物可包含除了硫脲外之物質；及可包括例如，硫脲的變性物質及元素硫。該硫脲的變性物質及元素硫和硫脲可接受藉由諸如熱脫附 GC-MS 及 TPD-MS 之分析方法來定性及定量測量。因爲在該石墨烯組成物中係包含元素硫的情況中，離子導電度特別提高，容許包含元素硫係較佳。在該石墨烯組成物中的元素硫含量相對於碳組分較佳爲 0.01 或更多及 0.1 或較少，進一步較佳爲 0.02 或更多及 0.05 或較少。
<氧化石墨>

【0038】 在本發明中的氧化石墨指爲藉由容許石墨被氧化而獲得的材料，及其在 X 射線繞射測量中於 9 至 13.0° 處具有波峰，其係氧化石墨所特有。關於此氧化石

墨，因為該結構依諸如在溶液中的 pH 之條件而瓦解，並依氧化程度而形成一層至數層薄片，其有時亦指為氧化石墨烯。

【0039】 該氧化石墨可藉由已知方法製備。再者，可購買到商品化氧化石墨。

【0040】 雖然該作為氧化石墨原料的石墨可係人造石墨或天然石墨，以使用天然石墨為較佳。石墨原料的篩號(mesh number)較佳為 20000 或較少，進一步較佳為 5000 或較少。

【0041】 雖然氧化石墨的製備方法無特別限制及可使用已知的方法，但以 Hummers'方法及其類似方法為較佳。下列將提到 Hummers'方法的實施例。將濃硫酸、硝酸鈉及過錳酸鉀加入作為原料的石墨(例如天然石墨粉末及其類似物)，及容許在 25 至 50℃下進行反應伴隨著攪拌 0.2 至 5 小時。之後，將該反應混合物加入去離子水並以其稀釋以獲得懸浮液，且連續地容許在 80 至 100℃下進行反應 5 至 50 分鐘。最後，加入過氧化氫及去離子水及容許進行反應 1 至 30 分鐘以獲得氧化石墨分散液。過濾及清洗所產生的氧化石墨分散液以獲得氧化石墨凝膠。溶劑可藉由冷凍乾燥方法、噴灑乾燥方法或其類似方法從氧化石墨凝膠移除，以獲得氧化石墨粉末。

【0042】 舉例來說，對每種反應物所提供的規格為，相對於 10 克天然石墨粉末，150 至 300 毫升濃硫酸、2 至 8 克硝酸鈉、10 至 40 克過錳酸鉀及 40 至 80 克過氧化氫。當加入濃硫酸、硝酸鈉及過錳酸鉀時，溫度係藉

由冰浴控制。當加入過氧化氫及去離子水時，去離子水的質量係過氧化氫質量之 10 至 20 倍。關於濃硫酸，其質量濃度係 70% 或更濃，且以質量濃度 97% 或更濃來使用其為較佳。

【0043】雖然該氧化石墨具有高分散性，然因為其自身係絕緣體，其無法使用作為導電添加劑或其類似物。在氧化石墨的氧化程度太高之情況中，藉由還原所獲得的石墨烯粉末之導電度可能降低。就此而論，較佳為在氧化石墨中之碳原子對氧原子的比率係 0.5 或較小。再者，在石墨的內部未良好地氧化之情況中，獲得片狀石墨烯粉末變困難。因此，希望在該氧化石墨接受 X 射線繞射測量的時候不偵測到石墨特有的波峰。

<氧化石墨於硫脲存在下還原>

【0044】根據本發明之石墨烯組成物可藉由於硫脲存在下還原氧化石墨而製造。

【0045】為了於硫脲存在下還原氧化石墨，僅需要適度地混合硫脲與氧化石墨。例如，氧化石墨及硫脲可於分散在溶液中的狀態下混合。於此情況中，較佳為氧化石墨及硫脲二者完全溶解。若其部分可能仍不溶解，此亦係可接受的。至於溶劑，極性溶劑係較佳，但不限於下列。其實施例包括水、乙醇、甲醇、1-丙醇、2-丙醇、N-甲基吡咯啉酮、二甲基甲醯胺、二甲基乙醯胺、二甲亞砜、 γ -丁內酯及其類似物。為了於硫脲存在下還原氧化石墨，溶劑並非總是必需，只要氧化石墨及硫脲係適度地混合。呈固態的那些可藉由揉捏混合。氧化石墨及

硫脲可各別呈液體狀態及呈固態，或硫脲及氧化石墨可各別呈液體狀態及呈固態。

【0046】 該氧化石墨可使用硫脲作為還原劑來還原及可使用除了硫脲外的還原劑來還原。在使用硫脲作為還原劑的情況中，該氧化石墨及硫脲經溶解以製備水溶液，及在某些情況中，該氧化石墨係藉由加熱還原。若是以除了硫脲外的還原劑於硫脲存在下還原，該還原劑的實施例包括二亞硫磺酸鈉、二亞硫磺酸鉀、亞磷酸、硼氫化鈉、胼及其類似物。在該等還原劑當中，二亞硫磺酸鈉及二亞硫磺酸鉀特別佳，其能在周圍溫度 (ambient temperature) 下容易地還原氧化石墨。不使用該還原劑，可使用還原氣體諸如氫還原。在使用除了硫脲外的還原劑來還原之情況中，該還原劑的量不特別限制，且只要該還原反應可地進行，即無問題。在使用硫脲作為還原劑的情況中，因為會影響到遺留在石墨烯表面上的硫脲量，因此有適宜的硫脲量範圍。之後將描述該適宜的範圍。

【0047】 在根據本發明之石墨烯組成物的製造方法中之還原反應溫度係 20℃ 或較高及 60℃ 或較低。當該還原溫度係低於 20℃ 時，氧化石墨係難以還原，且在超過 60℃ 的較高溫度 (例如 95℃) 下還原的情況中，因為硫脲易於在溶液中消除，所以難以容許硫脲適度地存在於石墨烯表面上。

【0048】 硫脲可吸附在石墨烯表面上而沒有遭遇變性、反應或其類似狀況；或可參與氧化石墨的還原反應

及可受到變性。因為胺基係存在於硫脲中，其有與羧基反應的可能性，及例如，假設可能從在氧化石墨中的羧基與在硫脲中的胺基形成醯胺鍵。再者，當硫脲經氧化時產生元素硫，及此元素硫可餘留在石墨烯表面上。

【0049】 雖然硫脲對氧化石墨的重量比率不特別限制，但由於其會影響到遺留在石墨烯表面上之硫脲及硫脲變性物質的量，其較佳為 0.5 或更大及 4 或較小，進一步較佳為 1 或更大及 3 或較小。在使用硫脲作為還原劑的情況中，因為一部分的硫脲經分解，硫脲對氧化石墨的重量比率較佳為 0.7 或更大及 4 或較小，進一步較佳為 1.2 或更大及 3 或較小。藉由於硫脲存在下還原該氧化石墨，石墨烯的分散性藉由容許硫脲及/或其變性物質被吸附在石墨烯表面上或與其結合而提高。當硫脲對氧化石墨的重量比率係小於 0.5 時，分散性趨向於降低；及當大於 4 時，導電度趨向於降低，因為吸附在該石墨烯組成物的表面上之硫脲及其變性物質的量變得太多。

【0050】 如上所描述，包含硫脲的石墨烯組成物及藉由在 20℃ 或較高及 60℃ 或較低下於硫脲存在下還原該氧化石墨烯所製備之石墨烯組成物具有高分散性，及可以容許其合適地分散，特別係在極性溶劑中。合適於該分散的溶劑之例示有 N-甲基吡咯啉酮、 γ -丁內酯、二甲基甲醯胺、二甲基乙醯胺及其類似物。在這些溶劑中具有高分散性能夠讓其較佳地使用作為用於電池的材料。

<用於鋰離子電池的電極>

【0051】 導電添加劑通常係包含在用於鋰離子電池的

電極中。藉由一起使用根據本發明之包含硫脲的石墨烯組成物作為導電添加劑與電極活性材料及黏合劑，製備出具有優良的電池特徵之用於鋰離子電池的電極變可能。

【0052】 該導電添加劑可僅由根據本發明之石墨烯組成物組成或可加入其它材料。雖然欲加入的其它導電添加劑未特別限制，其實施例包括碳黑類，諸如爐黑 (furnace black)、克特晏黑及乙炔黑；石墨類，諸如天然石墨(鱗狀石墨及其類似物)及人造石墨；導電纖維，諸如碳纖維及金屬纖維；金屬粉末，諸如銅、鎳、鋁及銀粉末；及其類似物。

【0053】 該電極活性材料粗略地分類成正電極活性材料及負電極活性材料。在任一種情況中皆可使用本發明。

【0054】 該正電極活性材料不特別限制，其實施例包括鋰與過渡金屬的複合氧化物，諸如鈷酸鋰 (LiCoO_2)、鎳酸鋰 (LiNiO_2)、尖晶石型式錳酸鋰 (LiMn_2O_4) 或部分鈷經鎳及錳取代的三元系統材料 ($\text{LiMn}_x\text{Ni}_y\text{Co}_{1-x-y}\text{O}_2$) 及尖晶石型式錳酸鋰 (LiMn_2O_4)；以橄欖石為基底(以磷酸鹽為基底)的活性材料，諸如磷酸鋰鐵 (LiFePO_4) 及磷酸鋰鐵 (LiFePO_4)；金屬氧化物，諸如 V_2O_5 ；金屬化合物，諸如 TiS_2 、 MoS_2 及 NbSe_2 ；及其類似物。

【0055】 該負電極活性材料不特別限制，其實施例包括以碳為基底的材料，諸如天然石墨、人造石墨及硬碳；矽化合物，其中 SiO 、 SiC 、 SiOC 及其類似物係基本構成元素；金屬氧化物，諸如氧化錳 (MnO) 及氧化鈷

(CoO)，其能與鋰離子進行轉換反應；及其類似物。

【0056】 該黏合劑可選自於以氟為基礎的聚合物，諸如聚偏二氟乙烯(PVDF)及聚四氟乙烯(PTFE)；及橡膠，諸如苯乙烯-丁二烯橡膠(SBR)及天然橡膠。

【0057】 藉由混合該活性材料、黏合劑聚合物及導電添加劑與合適量的溶劑來製備電極糊，將該電極糊塗布至電流收集器及將其乾燥，可製備用於鋰離子電池的電極。該溶劑的實施例包括 N-甲基吡咯啉酮、 γ -丁內酯、二甲基乙醯胺及其類似物。及 N-甲基吡咯啉酮係特別頻繁地使用。

【0058】 因為根據本發明之石墨烯組成物係藉由於硫脲存在下的還原反應而製備，其在電極糊溶劑中具有好的分散性。就此而論，關於根據本發明之用於鋰離子電池的電極，藉由容許石墨烯組成物良好地分散在電極中，係可能提高在電極中的電子導電率及提供具有優良性能之用於鋰離子電池的電極。

實施例

(測量實施例 1：導電性)

【0059】 將樣品形成具有直徑約 20 毫米及密度 1 克/立方公分的盤形樣品，使用可從 Mitsubishi Chemical Corporation 購得之高電阻率計量器 MCP-HT450 及低電阻率計量器 MCP-T610 來測量樣品的導電性。

(測量實施例 2：X 射線光電子測量)

【0060】 使用 Quantera SXM(可從 ULVAC-PHI, Incorporated 購得)來進行每個樣品之 X 射線光電子測

量。激發的 X 射線係單色 $\text{Al K}\alpha_{1,2}$ (1486.6 電子伏特)，X 射線的直徑係 200 微米及光電子掠出角係 45 度。

(測量實施例 3：分散性能)

【0061】 以下列方式測量分散性能。將 1 重量份在下列實施例中的石墨烯組成物及 99 重量份 N-甲基吡咯啉酮放在樣品瓶中，及讓該瓶子接受超音波清洗機之超音波處理 30 分鐘，在此之後，觀察沈降狀態。

(測量實施例 4：放電容量)

【0062】 將在下列實施例中所製備的電極板切割成具有直徑 15.9 毫米的片以提供正電極；將鋰箔薄片切割成具有直徑 16.1 毫米及厚度 0.2 毫米的片以提供負電極；將 Celgard #2400 薄片(可從 Celgard KK 購得)切割成具有直徑 17 毫米的片以提供分隔器；使用碳酸伸乙酯：碳酸二乙酯=7：3 之 1M 的含 LiPF_6 溶劑作為電解溶液；及製備 2042 型式硬幣型電池來進行電化學評估。以 1C 的速率、上限電壓 4.0 伏特及下限電壓 2.5 伏特進行充電及放電測量 3 次，及在第三次放電時的容量定義為放電容量。

(合成實施例 1)

【0063】 氧化石墨之製備方法：使用 1500 篩孔的天然石墨粉末(Shang Hai Yi Fan Shi Mo Co., Ltd.)作為原料。在冰浴中，將 220 毫升 98%濃硫酸、3.5 克硝酸鈉及 21 克過錳酸鉀加入至 10 克天然石墨粉末，及機械攪拌該混合物 1 小時。將該液體混合物的溫度維持在 20℃或較低。將該液體混合物從冰浴中移出及使其在 35℃水浴中

進行反應伴隨著攪拌 4 小時，在此之後，藉由將 500 毫升離子交換水加入至該混合物獲得懸浮液，使其在 90℃ 下進行反應額外 15 分鐘。最後，將 600 毫升離子交換水及 50 毫升過氧化氫加入至該反應混合物，及進行反應 5 分鐘以獲得氧化石墨分散液。在分散液為熱的時候過濾，以稀鹽酸溶液洗出包含在其中的金屬離子，以離子交換水洗掉酸及重覆洗滌直到 pH 已經到達 7，以製備氧化石墨凝膠。在乾燥後，獲得氧化石墨。在上述製備的氧化石墨中之氧原子對碳原子的元素組成比率經測量係 0.45。

(實施例 1)

[氧化石墨烯分散液之製備]

【0064】 在合成實施例 1 中製備之氧化石墨凝膠以去離子水稀釋至濃度 5 毫克/毫升及接受超音波處理，以獲得均勻分散的赭色氧化石墨烯分散液。

[石墨烯組成物之製備]

【0065】 將 3 克硫脲加入至 200 毫升上述氧化石墨烯分散液。及使用機械攪拌器讓其在 40℃ 之還原反應溫度下進行反應一段 16 小時的還原反應時間，在此之後，過濾該反應混合物，以水清洗及乾燥以獲得石墨烯組成物。

[石墨烯組成物的物理性質及性能]

【0066】 根據測量實施例 1 測量石墨烯組成物在還原前及後之導電性。該氧化石墨烯在還原前之導電性經測量係 8.70×10^{-4} 西門子/公尺，及該石墨烯組成物在還原後之導電性經測量係 9.01×10^2 西門子/公尺。

【0067】 根據測量實施例 2 測量該石墨烯組成物的元素比率，據此，硫對碳的元素比率經測量係 0.104。

【0068】 根據測量實施例 3 測量石墨烯組成物的分散性能，據此，其使得甚至在 30 天後有安定的分散及無觀察到沈降。

[用於鋰離子電池的電極之製備]

【0069】 以下列方法製備包含石墨烯組成物之用於鋰離子電池的電極。使用行星式混合器，混合 1 重量份所製備的石墨烯組成物、90 重量份磷酸鋰鐵作為電極活性材料、4 重量份乙炔黑作為導電添加劑、5 重量份聚偏二氟乙烯作為黏合劑及 100 重量份 N-甲基吡咯啉酮作為溶劑，以獲得電極糊。使用刮刀(300 微米)將該電極糊塗布至鋁箔薄片(厚度 18 微米)及在 200℃下乾燥 15 分鐘，以獲得電極板。

【0070】 根據測量實施例 4 測量放電容量，據此，其經測量係 143 毫安培小時/克。

【0071】 結果顯示在表 1 中。

(實施例 2)

[氧化石墨烯分散液之製備]

【0072】 使用與在實施例 1 中相同的方式獲得氧化石墨烯分散液。

[石墨烯組成物之製備方法]

【0073】 將 1 克硫脲及 3 克二亞硫磺酸鈉加入至 200 毫升上述氧化石墨烯分散液。及使用機械攪拌器讓其在室溫 23℃作為還原反應溫度下進行反應 1 小時作為還原

反應時間，在此之後，過濾該反應混合物，以水清洗及乾燥以獲得石墨烯組成物。

[石墨烯組成物的物理性質及性能]

【0074】 根據測量實施例 1 測量該石墨烯組成物在還原前及後之導電性。該氧化石墨烯在還原前之導電性經測量係 8.70×10^{-4} 西門子/公尺，及該石墨烯組成物在還原後之導電性經測量係 3.85×10^3 西門子/公尺。

【0075】 根據測量實施例 2 測量該石墨烯組成物的元素比率，據此，硫對碳的元素比率經測量係 0.078。根據測量實施例 3 測量石墨烯組成物的分散性能，據此，其使得甚至在 30 天後有安定的分散及無觀察到沈降。

[用於鋰離子電池的電極之製備]

【0076】 使用所製備的石墨烯組成物，以與在實施例 1 中相同的方式製備電極及根據測量實施例 4 測量放電容量，據此，其經測量係 151 毫安培小時/克。

【0077】 結果顯示在表 1 中。

(實施例 3)

[氧化石墨烯分散液之製備]

【0078】 使用與在實施例 1 中相同的方式獲得氧化石墨烯分散液。

[石墨烯組成物之製備方法]

【0079】 將 1 克硫脲及 3 克二亞硫磺酸鉀加入至 200 毫升上述氧化石墨烯分散液。及使用機械攪拌器讓其在室溫 23°C 作為還原反應溫度下進行反應 1 小時作為還原反應時間，在此之後，過濾該反應混合物，以水清洗及

乾燥以獲得石墨烯組成物。

[石墨烯組成物的物理性質及性能]

【0080】 根據測量實施例 1 測量該石墨烯組成物在還原前及後之導電性。該氧化石墨烯在還原前之導電性經測量係 8.70×10^{-4} 西門子/公尺，及該石墨烯組成物在還原後之導電性經測量係 3.71×10^3 西門子/公尺。

【0081】 根據測量實施例 2 測量該石墨烯組成物之元素比率，據此，硫對碳的元素比率經測量係 0.076。

【0082】 根據測量實施例 3 測量石墨烯組成物的分散性能，據此，其使得甚至在 30 天後有安定的分散及無觀察到沈降。

[用於鋰離子電池的電極之製備]

【0083】 使用所製備的石墨烯組成物，以與在實施例 1 中相同的方式製備電極及根據測量實施例 4 測量放電容量，據此，其經測量係 150 毫安培小時/克。

【0084】 結果顯示在表 1 中。

(實施例 4)

[氧化石墨烯分散液之製備]

【0085】 使用與在實施例 1 中相同的方式獲得氧化石墨烯分散液。

[石墨烯組成物之製備方法]

【0086】 將 1 克硫脲及 3 克胼水合物加入至 200 毫升上述氧化石墨烯分散液。及使用機械攪拌器讓其在 60°C 作為還原反應溫度下進行反應 1 小時作為還原反應時間，在此之後，過濾該反應混合物，以水清洗及乾燥以

獲得石墨烯組成物。

[石墨烯組成物的物理性質及性能]

【0087】 根據測量實施例 1 測量該石墨烯組成物在還原前及後之導電性。該氧化石墨烯在還原前之導電性經測量係 8.70×10^{-4} 西門子/公尺及該石墨烯組成物在還原後之導電性經測量係 1.98×10^3 西門子/公尺。

【0088】 根據測量實施例 2 測量該石墨烯組成物的元素比率，據此，硫對碳的元素比率經測量係 0.053。

【0089】 根據測量實施例 3 測量石墨烯組成物的分散性能，據此，其使得甚至在 30 天後有安定的分散及無觀察到沈降。

[用於鋰離子電池的電極之製備]

【0090】 使用所製備的石墨烯組成物，以與在實施例 1 中相同的方式製備電極及根據測量實施例 4 測量放電容量，據此，其經測量係 141 毫安培小時/克。

【0091】 結果顯示在表 1 中。

(實施例 5)

[石墨烯與分散劑之混合]

【0092】 使用行星式球磨機混合 5 克石墨烯奈米片 (型號編號 M-5, XG Sciences, Inc.) 與 2 克硫脲，然後以水清洗該混合物及乾燥以獲得石墨烯組成物。

[石墨烯組成物的物理性質及性能]

【0093】 根據測量實施例 1 測量該石墨烯組成物的導電性，據此，該石墨烯組成物之導電性經測量係 3.56×10^3 西門子/公尺。

【0094】 根據測量實施例 2 測量該石墨烯組成物之元素比率，據此，硫對碳的元素比率經測量係 0.064。

【0095】 根據測量實施例 3 測量石墨烯組成物的分散性能，據此，其在 25 天後沈澱。

[用於鋰離子電池的電極之製備]

【0096】 使用所製備的石墨烯組成物，以與在實施例 1 中相同的方式製備電極及根據測量實施例 4 測量放電容量，據此，其經測量係 135 毫安培小時/克。

【0097】 結果顯示在表 1 中。
(比較例 1)

[氧化石墨烯分散液之製備]

【0098】 使用與在實施例 1 中相同的方式獲得氧化石墨烯分散液。

[石墨烯組成物的製備方法]

【0099】 將上述氧化石墨烯分散液稀釋至 1 毫克/毫升。混合 150 毫升經稀釋的氧化石墨烯分散液(1 毫克/毫升)與藉由將 0.8 克硫脲溶解在 60 毫升水中而製備的水性硫脲溶液，然後使該混合物在 95℃下進行反應 8 小時，在此之後，過濾該反應混合物，以水清洗及乾燥以獲得石墨烯組成物。

[石墨烯組成物的物理性質及性能]

【0100】 根據測量實施例 1 測量石墨烯組成物在還原前及後之導電性。該氧化石墨烯在還原前之導電性經測量係 8.70×10^{-4} 西門子/公尺，及該石墨烯組成物在還原後之導電性經測量係 1.25×10^3 西門子/公尺。

【0101】 根據測量實施例 2 測量石墨烯組成物的元素比率，據此，硫對碳的元素比率經測量係 0.021。

【0102】 根據測量實施例 3 測量石墨烯組成物的分散性能，據此，在 7 天後觀察到沈降。

[用於鋰離子電池的電極之製備]

【0103】 使用所製備的石墨烯組成物，以與在實施例 1 中相同的方式製備電極及根據測量實施例 4 測量放電容量，據此，其經測量係 91 毫安培小時/克。

【0104】 結果顯示在表 1 中。

(比較例 2)

[氧化石墨烯分散液之製備]

【0105】 使用與在實施例 1 中相同的方式獲得氧化石墨烯分散液。

[石墨烯組成物的製備方法]

【0106】 將上述氧化石墨烯分散液稀釋至 1.5 毫克/毫升。混合 100 毫升經稀釋的氧化石墨烯分散液(1.5 毫克/毫升)與藉由將 1.2 克硫脲溶解在 100 毫升水中而製備的水性硫脲溶液，然後使該混合物在 80℃下進行反應 10 小時，在此之後，過濾該反應混合物，以水清洗及乾燥以獲得石墨烯組成物。

[石墨烯組成物的物理性質及性能]

【0107】 根據測量實施例 1 測量石墨烯組成物在還原前及後之導電性。該氧化石墨烯在還原前之導電性經測量係 8.70×10^{-4} 西門子/公尺，及該石墨烯組成物在還原後之導電性經測量係 1.14×10^3 西門子/公尺。

【0108】 根據測量實施例 2 測量石墨烯組成物的元素比率，據此，硫對碳的元素比率經測量係 0.023。

【0109】 根據測量實施例 3 測量石墨烯組成物的分散性能，據此，在 6 天後觀察到沈降。

[用於鋰離子電池的電極之製備]

【0110】 使用所製備的石墨烯組成物，以與在實施例 1 中相同的方式製備電極及根據測量實施例 4 測量放電容量，據此，其經測量係 90 毫安培小時/克。

【0111】 結果顯示在表 1 中。

(比較例 3)

[氧化石墨烯分散液之製備]

【0112】 使用與在實施例 1 中相同的方式獲得氧化石墨烯分散液。

[石墨烯組成物的製備方法]

【0113】 將 3 克胼水合物加入至 200 毫升上述氧化石墨烯分散液。並使用機械攪拌器讓其在 60℃作為還原反應溫度下進行反應 10 小時作為還原反應時間，在此之後，過濾該反應混合物，以水清洗及乾燥以獲得石墨烯組成物。

[石墨烯組成物的物理性質及性能]

【0114】 根據測量實施例 1 測量石墨烯組成物在還原前及後之導電性。該氧化石墨烯在還原前之導電性經測量係 8.70×10^{-4} 西門子/公尺，及該石墨烯組成物在還原後之導電性經測量係 5.89×10^3 西門子/公尺。

【0115】 根據測量實施例 2 測量石墨烯組成物的元素

比率，據此，硫對碳的元素比率經測量係低於 0.01。

【0116】 根據測量實施例 3 測量石墨烯組成物的分散性能，據此，在 6 小時後觀察到沈降。

[用於鋰離子電池的電極之製備]

【0117】 使用所製備的石墨烯組成物，以與在實施例 1 中相同的方式製備電極及根據測量實施例 4 測量放電容量，據此，其經測量係 90 毫安培小時/克。

【0118】 結果顯示在表 1 中。

(比較例 4)

[氧化石墨烯分散液之製備]

【0119】 使用與在實施例 1 中相同的方式獲得氧化石墨烯分散液。

[石墨烯組成物的製備方法]

【0120】 將 3 克二亞硫磺酸鈉加入至 200 毫升上述氧化石墨烯分散液。並使用機械攪拌器讓其在室溫 23℃ 作為還原反應溫度下進行反應 1 小時作為還原反應時間，在此之後，過濾該反應混合物，以水清洗及乾燥以獲得石墨烯組成物。

[石墨烯組成物的物理性質及性能]

【0121】 根據測量實施例 1 測量石墨烯組成物在還原前及後之導電性。該氧化石墨烯在還原前之導電性經測量係 8.70×10^{-4} 西門子/公尺，及該石墨烯組成物在還原後之導電性經測量係 6.90×10^3 西門子/公尺。

【0122】 根據測量實施例 2 測量石墨烯組成物的元素比率，據此，硫對碳的元素比率經測量係 0.013。

【0123】 根據測量實施例 3 測量石墨烯組成物的分散性能，據此，在 1 天後觀察到沈降。

[用於鋰離子電池的電極之製備]

【0124】 使用所製備的石墨烯組成物，以與在實施例 1 中相同的方式製備電極及根據測量實施例 4 測量放電容量，據此，其經測量係 113 毫安培小時/克。

【0125】 結果顯示在表 1 中。
(比較例 5)

[石墨烯組成物的製備方法]

【0126】 藉由在氬氣環境中，將在合成實施例 1 中所製備之氧化石墨加熱至 1000℃，其經還原以獲得一石墨烯組成物。

[石墨烯組成物的物理性質及性能]

【0127】 根據測量實施例 1 測量石墨烯組成物在還原前及後之導電性。該氧化石墨在還原前之導電性經測量係 8.70×10^{-4} 西門子/公尺，及該石墨烯組成物在還原後之導電性經測量係 1.59×10^3 西門子/公尺。

【0128】 根據測量實施例 2 測量石墨烯組成物的元素比率，據此，硫對碳的元素比率測量係低於 0.01。

【0129】 根據測量實施例 3 測量石墨烯組成物的分散性能，據此，在 6 小時後觀察到沈降。

[用於鋰離子電池的電極之製備]

【0130】 使用所製備的石墨烯組成物，以與在實施例 1 中相同的方式製備電極及根據測量實施例 4 測量放電容量，據此，其經測量係 85 毫安培小時/克。

【0131】 結果顯示在表 1 中。

(比較例 6)

[石墨烯組成物的製備方法]

【0132】 使用石墨烯奈米片(型號編號 M-5, XG Sciences, Inc.)作為該石墨烯組成物。

[石墨烯組成物的物理性質及性能]

【0133】 根據測量實施例 1 測量石墨烯奈米片的導電性，據此，該導電性經測量係 1.43×10^4 西門子/公尺。

【0134】 根據測量實施例 2 測量石墨烯奈米片的元素比率，據此，硫對碳的元素比率測量係低於 0.01。

【0135】 根據測量實施例 3 測量石墨烯奈米片的分散性能，據此，在 2 小時後觀察到沈降。

[用於鋰離子電池的電極之製備]

【0136】 使用與在實施例 1 中相同的方式製備包含石墨烯奈米片之用於鋰離子電池的電極及根據測量實施例 4 測量放電容量，據此，其經測量係 78 毫安培小時/克。

【0137】 結果顯示在表 1 中。

(比較例 7)

[石墨烯組成物的製備方法]

【0138】 在使用行星式球磨機混合 5 克石墨烯奈米片(型號編號 M-5, XG Sciences, Inc.)與 5 克硫脲之後，以水清洗該混合物及乾燥以獲得石墨烯組成物。

[石墨烯組成物的物理性質及性能]

【0139】 根據測量實施例 1 測量石墨烯組成物的導電性，據此，該石墨烯組成物之導電性經測量係 4.23×10^2

西門子/公尺。

【0140】 根據測量實施例 2 測量石墨烯組成物的元素比率，據此，硫對碳的元素比率測量係 0.16。

【0141】 根據測量實施例 3 測量石墨烯組成物的分散性能，據此，其使得甚至在 30 天後有安定的分散及無觀察到沈降。

[用於鋰離子電池的電極之製備]

【0142】 使用所製備的石墨烯組成物，以與在實施例 1 中相同的方式製備電極及根據測量實施例 4 測量放電容量，據此，其經測量係 42 毫安培小時/克。

【0143】 結果顯示在表 1 中。

【0144】 [表 1]

	石墨烯導電度(西門子/公分)		硫/碳比率	分散性	放電容量 (毫安培小時/克)
	在還原前	在還原後			
實施例 1	8.70×10^{-4}	$9.01 \times 10^{+2}$	1.04×10^{-1}	>30 天	143
實施例 2	8.70×10^{-4}	$3.85 \times 10^{+3}$	7.80×10^{-2}	>30 天	151
實施例 3	8.70×10^{-4}	$3.71 \times 10^{+3}$	7.60×10^{-2}	>30 天	150
實施例 4	8.70×10^{-4}	$1.98 \times 10^{+3}$	5.30×10^{-2}	>30 天	141
實施例 5	-	$3.56 \times 10^{+3}$	6.40×10^{-2}	25 天	135
比較例 1	8.70×10^{-4}	$1.25 \times 10^{+3}$	2.10×10^{-2}	7 天	91
比較例 2	8.70×10^{-4}	$1.14 \times 10^{+3}$	2.30×10^{-2}	6 天	90
比較例 3	8.70×10^{-4}	$5.89 \times 10^{+3}$	<0.01	6 小時	90
比較例 4	8.70×10^{-4}	$6.90 \times 10^{+3}$	1.30×10^{-2}	1 天	113
比較例 5	-	$1.59 \times 10^{+3}$	<0.01	6 小時	85
比較例 6	-	$1.43 \times 10^{+4}$	<0.01	2 小時	78
比較例 7	-	$4.23 \times 10^{+2}$	1.60×10^{-1}	>30 天	42

【0145】 如上述所描述，因為根據本發明之石墨烯組成物具有好的分散性及高導電性，其闡明作為導電添加

劑的高性能及達到高放電容量。因為具有硫對碳的元素比率低於本發明之範圍的石墨烯組成物具有高導電性但是具有差的分散性，所以其放電容量低。因為具有硫對碳的元素比率高於本發明之範圍的石墨烯組成物具有好的分散性但是具有低導電性，所以其放電容量低。

【0146】 包含硫脲的石墨烯組成物具有比不包含硫脲的石墨烯組成物稍微較低的導電性。此係因為該導電性受到容許硫脲及其變性物質黏至石墨烯表面影響。但是，於硫脲存在下還原之石墨烯的導電性遠高於非晶碳的導電性，且其具有足夠作為導電添加劑的導電性。根據本發明的石墨烯組成物在分散性及導電性二者上顯示出好的性能。因此，可藉由使用其作為用於鋰離子電池電極的導電添加劑達到高電池性能。

【符號說明】

無。

發明摘要

※ 申請案號： 102134210

※ 申請日： 102/09/24

※IPC 分類：

C01B 32/20 (2017.01)
H01M 4/131 (2010.01)
H01M 4/133 (2010.01)
H01B 1/04 (2006.01)

【發明名稱】(中文/英文)

可高度分散之石墨烯組成物、其製備方法、及包含該可高度分散之石墨烯組成物的用於鋰離子二次電池之電極

HIGHLY DISPERSIBLE GRAPHENE COMPOSITION, THE PREPARATION METHOD THEREOF, AND ELECTRODE FOR LITHIUM ION SECONDARY BATTERY CONTAINING THE HIGHLY DISPERSIBLE GRAPHENE COMPOSITION

【中文】

爲了製備高度導電及可高度分散的石墨烯並獲得具有好的輸出特徵及循環特徵之用於鋰離子電池的電極，本發明提供一種包含硫脲的石墨烯組成物，其硫對碳的元素比率以 X 射線光電子光譜測量係 0.04 或更大及 0.12 或較小。

【英文】

In order to prepare highly conductive and highly dispersible graphene and obtain an electrode for a lithium ion battery with good output characteristics and cycle characteristics, there is provided a graphene composition containing thiourea, the element ratio of sulfur to carbon being 0.04 or more and 0.12 or less in X-ray photoelectron spectroscopy measurement.

【代表圖】

【本案指定代表圖】：無。

【本代表圖之符號簡單說明】：

無。

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：

無。

申請專利範圍

1. 一種包含硫脲的石墨烯組成物，其硫對碳的元素比率以 X 射線光電子光譜測量度量係 0.04 或更大及 0.12 或較小，在該石墨烯組成物中的元素硫含量相對於碳組分為 0.01 或更多及 0.1 或較少。
2. 一種用於鋰離子電池的電極，其包含如申請專利範圍第 1 項之石墨烯組成物、電極活性材料及黏合劑。
3. 一種用以製造如申請專利範圍第 1 項之石墨烯組成物的方法，其包括於硫脲存在下，在 20℃ 或較高及 60℃ 或較低下還原氧化石墨的步驟。
4. 如申請專利範圍第 3 項之用以製造石墨烯組成物的方法，其中該氧化石墨係以 0.5 或更大及 4 或較小之硫脲對氧化石墨的重量比率還原。
5. 一種用於鋰離子電池的電極，其包含藉由如申請專利範圍第 3 或 4 項之用以製造石墨烯組成物的方法所製造之石墨烯組成物、電極活性材料及黏合劑。