



(12)发明专利

(10)授权公告号 CN 103771403 B

(45)授权公告日 2018.10.30

(21)申请号 201410009752.4

CN 102992313 A, 2013.03.27, 全文.

(22)申请日 2014.01.09

CN 103288076 A, 2013.09.11, 说明书第6

段.

(65)同一申请的已公布的文献号

申请公布号 CN 103771403 A

审查员 顾明杰

(43)申请公布日 2014.05.07

(73)专利权人 新疆出入境检验检疫局

地址 830063 新疆维吾尔自治区乌鲁木齐
市南湖北路116号新疆出入境检验检疫局

(72)发明人 杨忠 刘俊

(51)Int.Cl.

C01B 32/184(2017.01)

(56)对比文件

CN 101850960 A, 2010.10.06, 全文.

CN 102612490 A, 2012.07.25, 全文.

权利要求书1页 说明书2页 附图3页

(54)发明名称

一种用褐煤渣制备多层石墨烯的方法

(57)摘要

本发明公开了一种利用褐煤渣为原料通过微波加热直接制备多层石墨烯粉体的方法。该制备方法将褐煤渣与强碱混合,采用微波快速加热的方式大量、快速制备多层石墨烯,制备过程中通过高温热解将褐煤渣在强碱的作用下得到多层石墨烯,后续使用水洗、酸洗去除杂质。本发明的效果和优势在于所制得的多层石墨烯收率和含量较高,可在锂离子电池负极材料、吸附材料和催化剂载体等诸多领域取得应用;同时原料廉价易得、工艺简单、产品性能优良等特点,适用于多层石墨烯的大规模生产。

1. 一种用褐煤渣制备多层石墨烯的方法,其特征在于将褐煤渣原料和强碱按一定质量比混合均匀后,微波加热5-50分钟制备得到多层石墨烯;

使用强碱辅助制备,强碱为氢氧化钾、氢氧化钠、氢氧化钙;褐煤渣与强碱的质量比在1:0.1-1:10之间。

2. 根据权利要求1所述的方法,其特征在于微波热解制备多层石墨烯后,使用水洗、酸洗去除无机杂质,提纯得到多层石墨烯产物。

3. 根据权利要求2所述的方法,其特征在于酸洗使用硝酸、盐酸、硫酸或氢氟酸。

一种用褐煤渣制备多层石墨烯的方法

技术领域

[0001] 本发明属于碳材料制备技术领域,涉及一种用褐煤制备多层石墨烯的方法。

背景技术

[0002] 石墨烯(Graphene)是一种新型二维结构的碳材料,由 sp^2 碳原子紧密排列形成蜂巢状结构。石墨烯是目前所知的最薄、强度最大的材料,具有优良的导电、导热能力和光学性能。石墨烯的这些优良性能使其在众多领域都有潜在的应用前景,成为近期材料研究的热点。

[0003] 石墨烯的研究和应用对其制备方法提出了迫切要求。目前石墨烯的制备方法主要有微机械剥离法、热膨胀石墨法、氧化石墨还原法和气相化学沉积法等方法。其中,微机械剥离法和热膨胀石墨法效率低、产量小,只能限于实验室小规模实验;氧化石墨还原法虽然可大批量制备,但氧化还原过程引入大量缺陷,严重影响其物理及化学性能,特别是导电性能;气相化学沉积法工艺复杂,制备条件苛刻,不适于大批量地成本生产。因此,目前低成本获得大批量的石墨烯产品还存在一定困难。

[0004] 我国褐煤资源丰富、价格低廉,但由于褐煤的煤化程度低、含水量高,限制了其大规模开发利用。开发褐煤的高附加值研究具有显著的社会效益和经济效益。而目前以褐煤为原料制备石墨烯的国内外公开报道和文献尚没有发现。

发明内容

[0005] 本发明的目的是提供一种操作简单、环境友好、原料易得、转化率高的可用于大规模工业生产制备多层石墨烯的方法。

[0006] 本发明所提供的多层石墨烯制备方法是將褐煤原料与强碱混合微波加热直接制备多层石墨烯粉体,包括以下步骤:

[0007] (1) 将褐煤原料和强碱按照质量量比1:0.1至1:10研磨混合均匀;

[0008] (2) 强碱可选择氢氧化钾、氢氧化钠、氢氧化钙等氢氧化物;

[0009] (3) 将褐煤和强碱混合均匀后,放入吸收微波材料制备的容器中;

[0010] (4) 将装有原料的容器放入微波反应器中,微波加热5-50分钟得到多层石墨烯产物;

[0011] (5) 将产物使用水洗、酸洗,去除产物中的无机杂质,最后得到高纯度的多层石墨烯产物。

[0012] 本发明使用褐煤原料制备多层石墨烯,通过Raman、XRD等分析方法,对产物进行了表征,证明了通过本方法可以制备多层石墨烯粉体。

[0013] 本发明提供了一种制备多层石墨烯的方法,与常规方法相比,此制备方法具有以下优点:

[0014] (1) 步骤简单,易于操作,适合大规模工业化生产;

[0015] (2) 原料来源广泛,价格低廉;

[0016] (3)微波加热反应速度快,无需惰性气体保护,能耗低。

附图说明

[0017] 图1为本发明实施例制备的多层石墨烯的微波反应器示意图。

[0018] 图2为本发明实施例制备的多层石墨烯产物的拉曼光谱图。

[0019] 图3为本发明实施例制备的多层石墨烯产物的XRD谱图。

具体实施方式

[0020] 下面通过具体实施例对本发明做进一步说明。

[0021] 将1.0克褐煤和2.0克氢氧化钾研磨混合均匀后,装入小坩埚,再将小坩埚放入装有石墨粉的大坩埚中,再将其放入微波炉中。

[0022] 使用900瓦微波炉加热反应30分钟,通过石墨粉吸收微波快速将坩埚及原料加热,反应结束后自然降温至室温,坩埚中收集产物。

[0023] 使用多次去离子水洗将产物中可溶性无机盐去除,再依次使用1M盐酸和0.5M氢氟酸依次清洗去除难溶无机盐杂质。

[0024] 在上述条件下,多层石墨烯的产量为0.4克。图1为微波反应器示意图;拉曼光谱图(见图2)显示该样品具有石墨烯材料特有的G峰、D峰和2D峰;氮气吸附分析显示其比表面积为 $1800\text{m}^2/\text{g}$,说明产物有加大的比表面积;从产物的XRD图(见图3)可知,产物具有石墨烯特有的宽化的衍射峰。

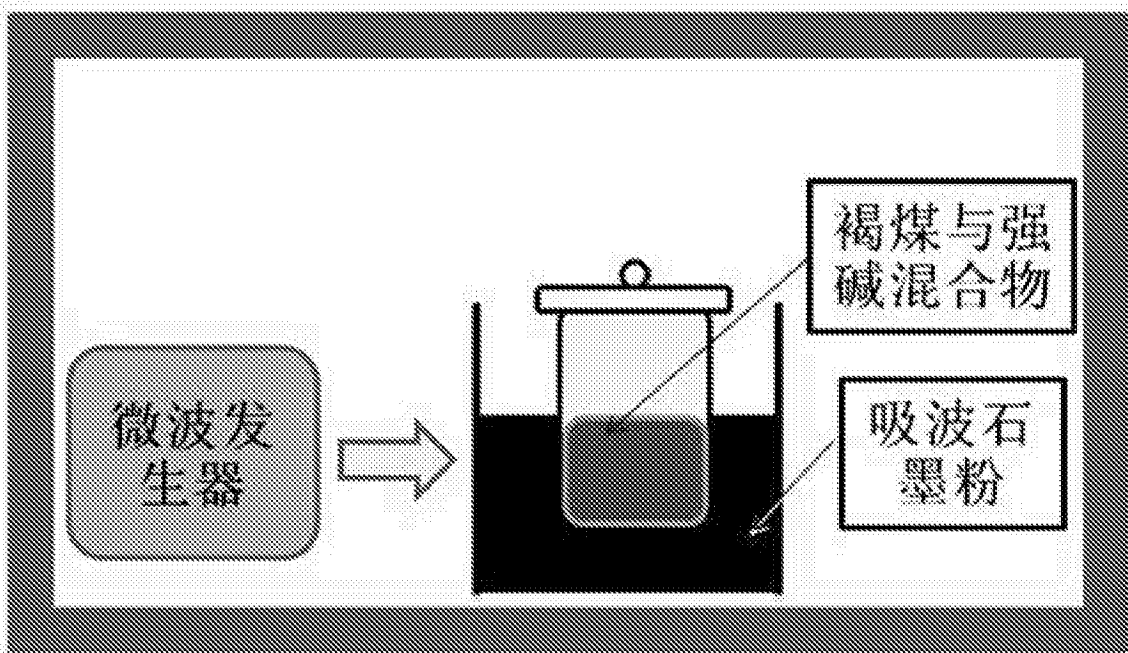


图 1

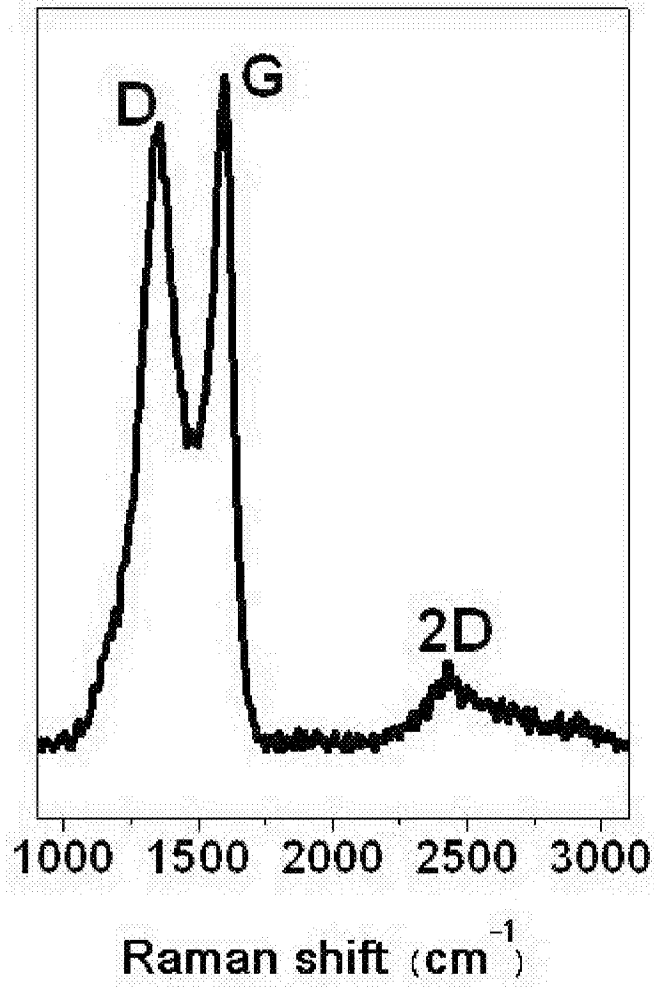


图 2

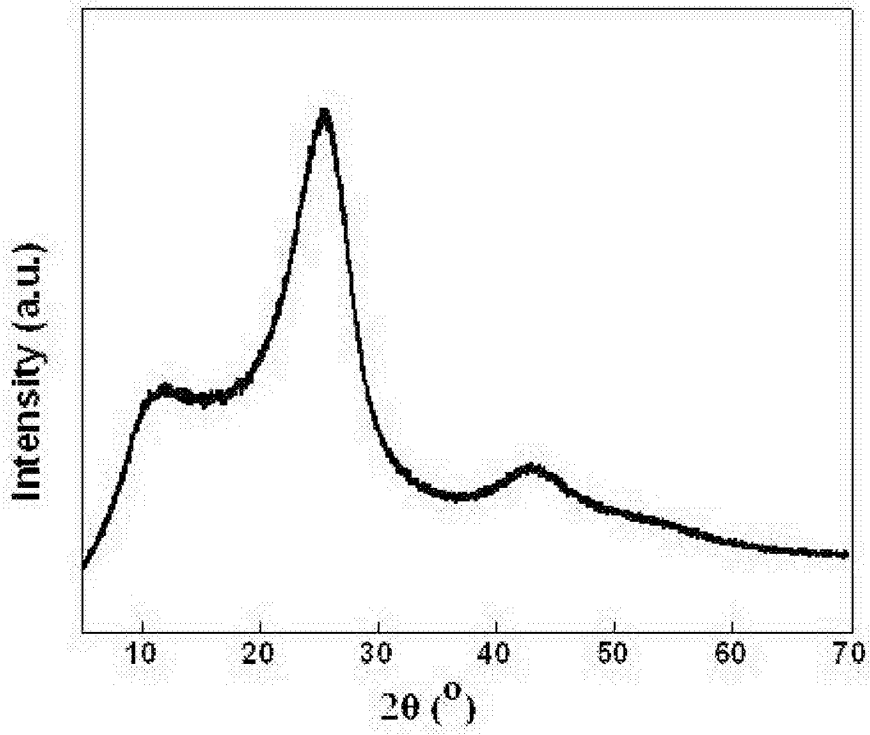


图 3