



# (12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 106946241 A

(43)申请公布日 2017.07.14

(21)申请号 201710061799.9

(22)申请日 2017.01.26

(71)申请人 北京清烯科技有限公司

地址 100025 北京市朝阳区建国路77号24层2401内2498室

(72)发明人 张荣德 宋健民

(74)专利代理机构 北京国之大铭知识产权代理  
事务所(普通合伙) 11565

代理人 朱晓蕾

(51) Int. Cl.

C01B 32/184(2017.01)

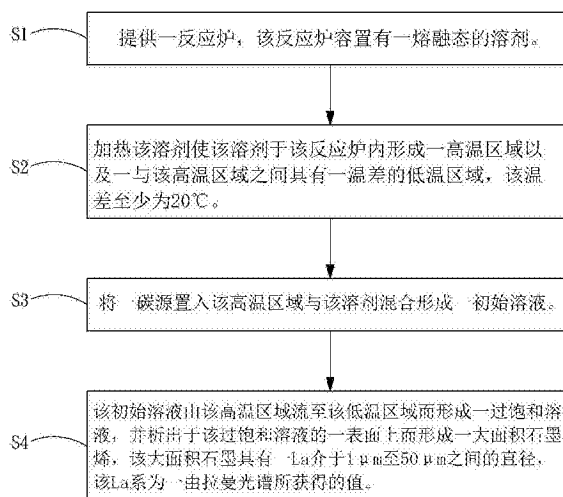
权利要求书1页 说明书3页 附图1页

## (54)发明名称

大面积石墨烯的制造方法

## (57)摘要

本发明公开了一种大面积石墨烯的制造方法,包含以下步骤:提供一反应炉,该反应炉容置有一熔融态的溶剂;加热该溶剂使该溶剂于该反应炉内形成一高温区域以及一与该高温区域之间具有一温差的低温区域,该温差至少为20℃;将一碳源置入该高温区域与该溶剂混合形成一初始溶液;以及该初始溶液由该高温区域流至该低温区域而形成一过饱和溶液,并析出于该过饱和溶液的一表面上而形成一大面积石墨烯,该大面积石墨烯的层数小于20层且具有一La介于1 μm至1000 μm之间的直径,该La系为一由拉曼光谱所获得的值。通过上述方法,可制造出具有较完美之石墨烯平面的大面积石墨烯。



1. 一种大面积石墨烯的制造方法,其特征在于,包含以下步骤:  
提供一反应炉,该反应炉容置有一熔融态的溶剂;  
加热该溶剂使该溶剂于该反应炉内形成一高温区域以及一与该高温区域之间具有一温差的低温区域,该温差至少为20℃;  
将一碳源置入该高温区域与该溶剂混合形成一初始溶液;以及  
该初始溶液由该高温区域流至该低温区域而形成一过饱和溶液,并析出于该过饱和溶液的一表面上而形成一大面积石墨烯,该大面积石墨烯的层数小于20层且具有一La介于1 $\mu$ m至1000 $\mu$ m之间的直径,该La系为一由拉曼光谱所获得的值。
2. 如权利要求1所述的大面积石墨烯的制造方法,其特征在于,该反应炉具有一间隔该高温区域以及该低温区域的间隔件。
3. 如权利要求1所述的大面积石墨烯的制造方法,其特征在于,该高温区域具有一介于450℃至1400℃之间的温度。
4. 如权利要求1所述的大面积石墨烯的制造方法,其特征在于,该温差不高于80℃。
5. 如权利要求1所述的大面积石墨烯的制造方法,其特征在于,该碳源先经一除氧装置去除一内含的氧成份,再透过一进料装置供给予该高温区域。
6. 如权利要求1所述的大面积石墨烯的制造方法,其特征在于,该溶剂为选自铁、钴、镍、钼、钨、铂、镧、铈、铀及其合金所组成之群组。
7. 如权利要求1所述的大面积石墨烯的制造方法,其特征在于,该溶剂与一降低活性的抑制剂混合,该抑制剂为选自金、银、铜、铅、锌及其合金所组成之群组。

## 大面积石墨烯的制造方法

### 技术领域

[0001] 本发明涉及一种石墨烯的制造方法,尤指一种可制造出具有较完美之石墨烯平面的大面积石墨烯制造方法。

### 背景技术

[0002] 石墨烯为一种由碳原子以SP<sup>2</sup>杂化轨道组成六角型蜂巢状晶格的平面薄膜,为目前世界上最薄也是最坚硬的奈米材料。由于石墨烯的电阻率低,且几乎是透明的,被期待用于发展更薄、导电速度更快的电子元件以应用在诸如半导体、面板、或是电池等领域中。

[0003] 即使有许多期待,国际大厂也已竞相投入石墨烯研究并积极布局,但现阶段石墨烯技术还未能被大量应用,显见目前还有许多技术上问题存在:无论是在石墨烯本身、或在配方上进行改良,以令石墨烯应用于复合材料时有更佳的效果。

### 发明内容

[0004] 本发明的主要目的,在于解决习知制造石墨烯的方式,不仅制作成本高、程序复杂,也不易大面积生产的问题。

[0005] 为了达成上述目的,本发明提供一种大面积石墨烯的制造方法,包含以下步骤:提供一反应炉,该反应炉容置有一熔融态的溶剂;加热该溶剂使该溶剂于该反应炉内形成一高温区域以及一与该高温区域之间具有一温差的低温区域,该温差至少为20℃;将一碳源置入该高温区域与该溶剂混合形成一初始溶液;以及该初始溶液由该高温区域流至该低温区域而形成一过饱和溶液,并析出于该过饱和溶液的一表面上而形成一大面积石墨烯,该大面积石墨烯的层数小于20层且具有一La介于1μm至1000μm之间的直径,该La系为一由拉曼光谱所获得的值。

[0006] 相较于习知以高温高压加工石墨来量产石墨烯的方法,该方法迫使石墨中的碳原子重新排列成平面状六角晶格结构,故石墨烯的六角晶格结构往往无法于石墨烯平面方向(La)获得较大的延伸距离,且六角环结构也往往残破不堪,故所制得的石墨烯的平面间距(d(0002))也比理论值大上许多,造成所制造的石墨烯的物性不如预期。本发明所提出的制造方法,藉由于该反应炉加热该熔融溶剂形成该高温区域以及该低温区域,令该初始溶液于该低温区域形成该过饱和溶液而析出该大面积石墨烯层,不仅降低制程难度、减少设备的支出成本,还可量产,不仅没有前述习知技术常产生的缺点,而可透过经济简单的方法制造出具有较完美的石墨烯平面的大面积石墨烯。

### 附图说明

[0007] 图1为本发明大面积石墨烯的制造方法流程图。

### 具体实施方式

[0008] 于下文中,将搭配图式详细说明本发明。

[0009] 请参考图1,为本发明大面积石墨烯的制造方法流程图,包括以下步骤S1至S4:

[0010] S1:提供一反应炉,该反应炉容置有一熔融态的溶剂。该熔融溶剂可为铁(Fe)、钴(Co)、镍(Ni)、锂(Li)、钽(Ta)、钯(Pd)、铂(Pt)、镧(La)、铈(Ce)或铕(Eu),或其合金,例如以铁、钴、镍或是其合金形成该熔融溶剂,再者,于S1中,还可于该熔融溶剂中加入一抑制剂以降低该熔融溶剂的活性,该抑制剂可依需求而选用,举例可选择金(Au)、银(Ag)、铜(Cu)、铅(Pb)、锌(Zn)、其合金、或上述的任意组合。

[0011] S2:加热该溶剂使该溶剂于该反应炉内形成一高温区域以及一与该高温区域之间具有一温差的低温区域,该温差至少为20℃。在本实施例中,该反应炉可透过一第一加热器对该熔融溶剂加热而形成该高温区域,并透过一第二加热器对该熔融溶剂加热而形成该低温区域,令该高温区域具有一介于450℃至1400℃之间的温度,而该低温区域具有一低于该高温区域10℃至100℃之间的温度、较佳为具有低于该高温区域20℃至80℃之间的温度,并且,该反应炉可选择性地具有一间隔该高温区域以及该低温区域的间隔件,该间隔件设置于该反应炉位于该高温区域与该低温区域之间远离该反应炉的一底部的位置,并令该高温区域与该低温区域于接近该反应炉的该底部的部分连通,而远离该底部的部分则隔开。

[0012] S3:将一碳源置入该高温区域与该溶剂混合形成一初始溶液,本实施例中,该反应炉可透过一进料装置供给该高温区域碳源,而该进料装置为设置在该反应炉的底部邻近该高温区域的位置,因而将该碳源直接导入该高温区域,带动该熔融溶剂的对流,促进该碳源与该熔融溶剂混合得更均匀,不过在本发明中,该进料装置并不以设置于该底部附近为限制,只要可以令该碳源导入该高温区域即可。于其他实施例中,亦可同时对该高温区域进行搅拌以促进该碳源的溶解。本发明中,该碳源可为一气体碳源或是一固体碳源,如使用该气体碳源,则可为石油裂解气、碳氧化合物、水煤气等,如使用该固体碳源,该固体碳源则可为塑胶、橡胶、糖类、沥青、汽油、碳黑、石墨、碳氧化合物等,然当选择含碳气体作为该碳源时,例如有机烃气体,包括甲烷、乙烷或其类似物等,由于在高温下,氧气容易与碳原子结合而形成二氧化碳,会使得熔融溶剂在该高温区域的含碳量减少,造成产率下降,因此,在此情况下,该进料装置更可包含一除氧装置,如此一来,该碳源先经该除氧装置去除一内含的氧成分,再由该进料装置供给予该高温区域,即可有效避免发生产率下降情况。

[0013] S4:该初始溶液由该高温区域流至该低温区域而形成一过饱和溶液,并析出于该过饱和溶液的一表面上而形成一大面积石墨烯,该大面积石墨烯的层数小于20层且具有一La介于1 $\mu\text{m}$ 至1000 $\mu\text{m}$ 之间的直径,该La系为一由拉曼光谱所获得的值。在本实施例中,该初始溶液由该高温区域经该温差的降温,而流至该低温区域,而于该低温区域形成该过饱和溶液,当该过饱和溶液中的该碳原子于该低温区域析出时,由于该碳原子相较该过饱和溶液的密度来得低,所析出的该碳原子会浮至该过饱和溶液的该表面,而形成该大面积石墨烯层。在其他实施例中,于形成该大面积石墨烯层的过程,尚可对该反应炉的该熔融溶剂施予一外加磁场,如此一来,将可控制该大面积石墨烯层的晶体结构,具有预期的取向。

[0014] 而于该大面积石墨烯层于该表面上形成之后,本实施例还可进一步包含步骤S5:令该反应炉以一收集装置于该低温区域收集该大面积石墨烯层,在此,该收集装置可为设置于邻近该反应炉的一顶部而靠近该低温区域的位置,而可依该大面积石墨烯层的一产出态样进行批次收集或是连续收集。

[0015] 尚需补充说明的是,为了使所产出的该大面积石墨烯层具有良好的晶格结构,该

高温区域的一温度范围、该低温区域的一温度范围以及该温差的范围,可依所使用的该熔融溶剂的种类进行适当的调整。但大致上来说,设置该高温区域具有一以该第一加热器为对齐基准的第一中心线,该低温区域具有一第二中心线,该熔融溶剂于该反应炉内,在该第一中心线具有一最高温度,并随着远离该第一中心线使得温度逐渐下降,而直至该第二中心线具有一相对低温,该高温区域与该低温区域之间,以所下降的该温差的变化,驱动该初始溶液形成该过饱和溶液而析出该碳原子以形成该大面积石墨烯层。其中,以本发明的方法所得到的该大面积石墨烯层,其层数小于20层且尺寸较佳地可具有一La介于1 $\mu$ m至1000 $\mu$ m之间的直径,该La系为一由拉曼光谱所获得的值。

[0016] 上述实施例仅为了方便说明而举例而已,本发明所主张的权利范围自应以申请专利范围所述为准,而非仅限于上述实施例。

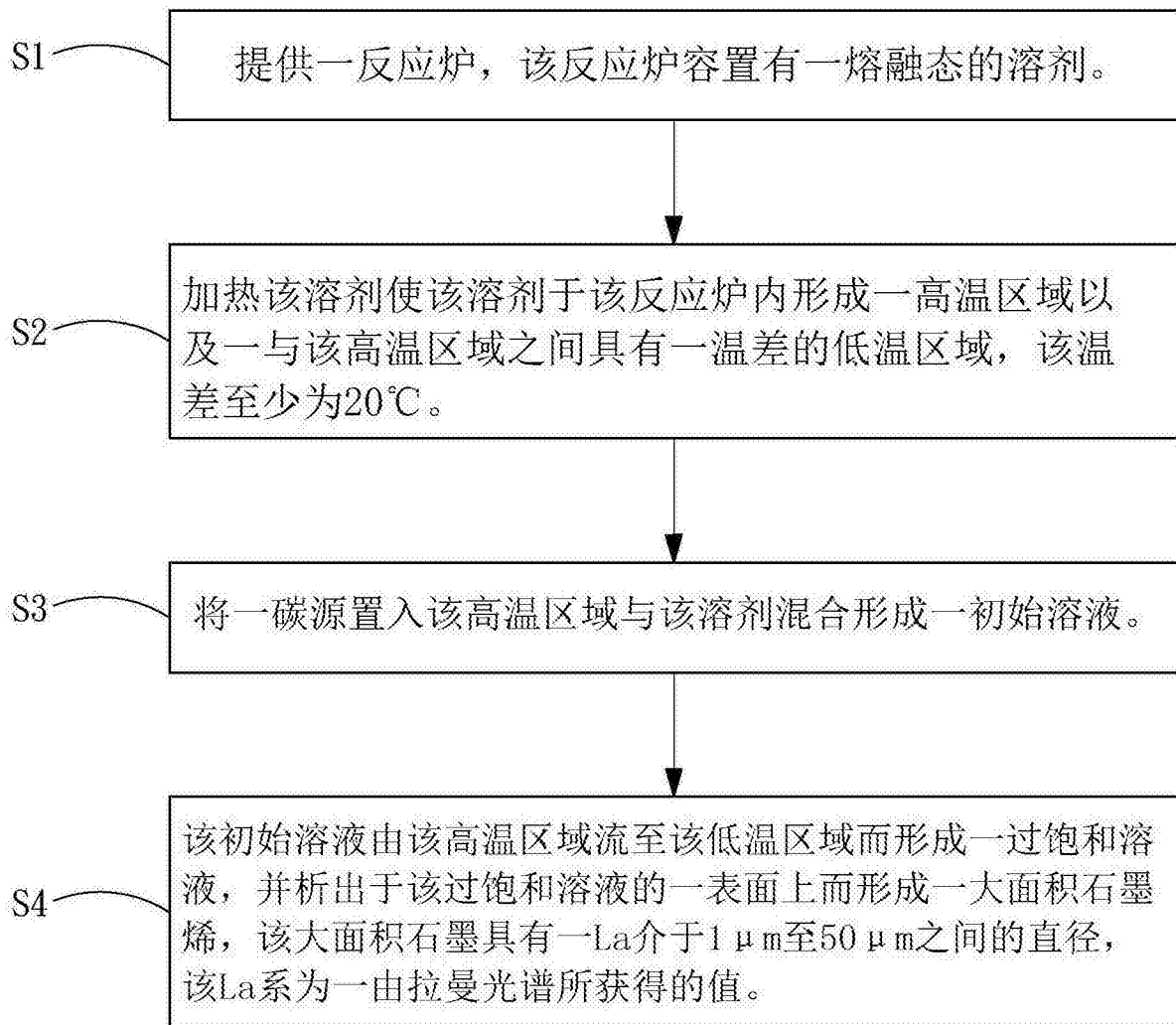


图1