

(12) 按照专利合作条约所公布的国际申请

(19) 世界知识产权组织
国际局

(43) 国际公布日
2018 年 2 月 15 日 (15.02.2018)



(10) 国际公布号
WO 2018/028004 A1

(51) 国际专利分类号:

C01B 32/192 (2017.01) **C25B 9/12** (2006.01)
C25B 1/00 (2006.01) **C25B 11/12** (2006.01)

201610653390.1 2016年8月10日 (10.08.2016) CN

(21) 国际申请号: PCT/CN2016/096157

(22) 国际申请日: 2016 年 8 月 22 日 (22.08.2016)

(25) 申请语言: 中文

(26) 公布语言: 中文

(30) 优先权:

201610654182.3	2016年8月10日 (10.08.2016)	CN
201610653441.0	2016年8月10日 (10.08.2016)	CN
201610653442.5	2016年8月10日 (10.08.2016)	CN
201610652205.7	2016年8月10日 (10.08.2016)	CN
201610652204.2	2016年8月10日 (10.08.2016)	CN
201610654183.8	2016年8月10日 (10.08.2016)	CN
201610654264.8	2016年8月10日 (10.08.2016)	CN

(71) 申请人: 玉灵华科技有限公司 (YULINGHUA TECHNOLOGY CO. LTD) [CN/CN]; 中国湖北省武汉市东湖新技术开发区高新五路与光谷二路交汇处光谷新动力产业园 16 栋 1~2 层, Hubei 430000 (CN)。

(72) 发明人: 朱 光 华 (ZHU, Guanghua); 中国北京市海淀区稻香园 10 号楼 2 门 3 层 102 号, Beijing 100080 (CN)。

(74) 代理人: 北京天奇智新知识产权代理有限公司 (BEIJING TIAN QI ZHI XIN INTELLECTUAL PROPERTY AGENCY CO., LTD); 中国北京市海淀区蓟门里小区 1 幢 316 室 (政法大厦), Beijing 100088 (CN)。

(54) Title: QUANTUM CARBON AND METHOD AND DEVICE FOR PRODUCING SAME

(54) 发明名称: 一种量子碳素及制备该量子碳素的方法及装置

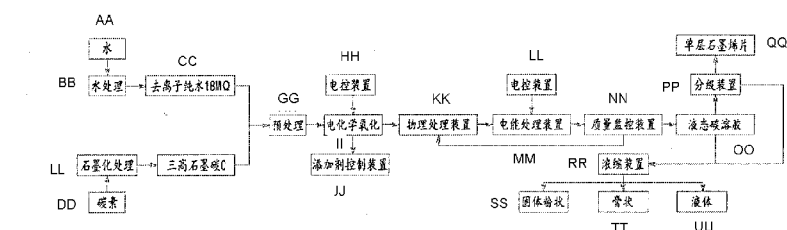


图 1

AA WATER;
BB WATER TREATMENT;
CC DEIONIZED PURE WATER 18MQ;
DD CARBON;
EE GRAPHITIZATION TREATMENT;
FF THREE HIGH GRAPHITE CARBON C;
GG PRETREATMENT;
HH ELECTRIC CONTROL DEVICE;
II ELECTROCHEMICAL OXIDATION;
JJ ADDITIVE CONTROL DEVICE;
KK PHYSICAL PROCESSING DEVICE;

LL ELECTRIC CONTROL DEVICE;
MM POWER PROCESSING DEVICE;
NN QUALITY MONITORING DEVICE;
OO LIQUID CARBON SOL;
PP CLASSIFICATION DEVICE;
QQ SINGLE-LAYER GRAPHENE SHEET;
RR CONCENTRATION DEVICE;
SS SOLID POWDER;
TT PASTE;
UU LIQUID.

(57) Abstract: Provided are a quantum carbon, a method and an apparatus for producing the same. The quantum carbon is a nanostructured crystal, including single- or multi-layer graphene, the surface layer thereof contains a compound of carbon, hydrogen, oxygen and nitrogen, the compound includes one or a mixture of several selected from aromatic hydrocarbon with condensed ring, compound containing carbon-oxygen single bond, carbon-oxygen double bond, and carbon-hydrogen bond, and the proportions of the elements in the mixture are as follows: 45-55% of carbon, 0.2-2.0% of hydrogen, 0.1-0.3% of nitrogen and 45-65% of oxygen. The production method comprises introducing deionized water and hydrogen peroxide into an electrochemical oxidation generator having a carbon anode to obtain a primary carbon sol liquid, intercalating hydrogen and oxygen ions between graphite layers via an ion intercalating device, and then by means of a stripping and dispersing device, obtaining a quantum carbon mixture liquid having a pH of 1.2-2.2, an

(81) 指定国(除另有指明, 要求每一种可提供的国家保护): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW。

(84) 指定国(除另有指明, 要求每一种可提供的地区保护): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 欧亚 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 欧洲 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG)。

本国际公布:

— 包括国际检索报告(条约第21条(3))。

electromotive force of ORP of 280-380mv, a conductivity of 1.5-5.0ms / cm, a solid content of 0.4-0.6% and a temperature of 40-70 ° C, and a quantum carbon particle size and particle size frequency distribution of 0.6-1.0nm, and then performing a centrifugal classification process. The device comprises an electrochemical oxidation generator (1), an ion intercalating device (3), a graphite interlaminar stripping and dispersing device (2), a separation and concentration device, and an electric control part for controlling the above parts. Large-scale production is achieved.

(57) 摘要: 提供一种量子碳素、其生产方法和装置。该量子碳素是纳米结构的结晶体, 包括单层或多层石墨烯, 其表层含有碳、氢、氧、氮元素的化合物, 该化合物包括稠环芳烃、含碳氧单键、含碳氧双键以及含碳氢键的化合物的一种或几种的混合物, 混合物中各元素比例为: 碳45-55%, 氢0.2-2.0%, 氮0.1-0.3%, 氧45-65%。该生产方法包括将去离子水和过氧化氢引入具有碳阳极的电化学氧化发生器, 制得初级碳溶胶液体, 经离子嵌入装置在石墨层间嵌入氢、氧离子, 再经剥离和分散装置得到量子碳素混合液, 其pH值为1.2-2.2, 电动势ORP为280-380mv, 导电率为1.5-5.0ms/cm, 固含量值为0.4-0.6%, 温度为40-70 ° C, 量子碳素的粒径和粒径频度分布在0.6-1.0nm之间, 而后进行离心分级处理。该装置包括依次首尾连通的电化学氧化发生器(1)、离子嵌入装置(3)、石墨层间剥离、分散装置(2)、分离和浓缩装置, 以及用于控制上述各部分的电控部分。实现了规模化生产。

一种量子碳素及制备该量子碳素的方法及装置

技术领域

本发明涉及一种方法及装置,尤其是涉及一种量子碳素及制备该量子碳素的方法及装置。

背景技术

众所周知,碳元素是自然界中存在的与人类最密切相关、最重要的元素之一。它具有 SP、SP²、SP³ 杂化的多样电子轨道特性,尤其是碳碳双键 sp² 杂化的异向性导致晶体的各向异性,使得以碳元素为唯一构成元素的碳素结构材料具有各式各样的性质,而且,新碳素材料还在不断被发现和人工制得。可以说,没有任何元素能像碳这样作为单一元素可形成像三维金刚石晶体、二维石墨层片、一维卡宾和碳纳米管、零维富勒烯分子等如此之多的结构与性质完全不同的物质。譬如碳素结构体中的石墨烯片材料就有太多优越性,而且在太阳能电池、传感器方面、纳米电子学、高性能纳电子器件、复合材料、场发射材料、气体传感器及能量存储等领域具有广泛的应用。近年来,科学家和致力于探索制备单层石墨烯的途径,尤其是要制备高质量、产率高、成本低、结构稳定的石墨烯的方法。目前公知比较成熟的制备石墨烯的方法主要有以下几种:①剥离法,包括微机械剥离法和溶剂剥离法等;②生长法,包括晶体外延生长、取向附生法、化学气相沉积等;③氧化还原石墨法,包括常用的 Hummers 法、Standenmaier 法、Brodie 法等;④其它方法,主要有电弧放电法、石墨层间化学物途径法、目前非常新颖的高温淬火法与碳纳米管剥开法等。其中氧化还原石墨法具有简单且多元化的工艺,是常用的制备石墨烯的方法,但只适合于实验室少量制备用于研究,大量制备容易产生大量废酸、废水等引起环境污染。

同样,碳素结构体这些具有优秀性质的材料,到目前为止,其各种制备方法在成本和环保等方面还没有根本性的突破。

规模化制备高质量、低成本、环保型的碳素晶体材料是所有应用的基础,发展低成本可控的制备方法是当下最急需解决的问题。

量子碳素包括了粒径为 0.3-100nm 的碳素粒子的单层石墨烯、多层石墨烯、纳米碳结构体,在所述碳素粒子的表层具有含有碳、氢、氧、氮的化合物,所述含有碳、氢、氧、氮的化合物包括稠环芳烃、含有碳氧单键的化合物、含有碳氧双键的化合物、含有碳氢键的化合物。

量子碳素是碳元素的一种热力学不稳定但动力学较稳定的亚稳定物质。构成量子碳素的基材是单分散碳原子或碳原子簇。以石墨烯为例，当石墨烯片层产生一定的弯曲结构时，则使处于平衡状态的碳原子具有一定的应力能并处于较高能量状态。不同碳同素异性体中碳元素所具有的能量各不相同，石墨中碳原子的能量为零为最稳定状态，富勒烯球 C60 中碳原子的能量最高达 0.45eV，C240 约为 0.15eV，纳米碳管和金刚石中碳原子能量在 0.02~0.03eV，要克服石墨烯弯曲结构的应力能，不同的碳同素异体的生成热有差别。最稳定的石墨其生成热 $H_f(g \cdot c)$ 为零；金刚石为 1.67KJ/mol；C60 为 42.51KJ/mol；C70 为 40.38 KJ/mol 碳，要使石墨变成弯曲结构形成不同碳同素异体，必须从外部施加更高能量使之在受激状态下形成能量更高的单分散碳原子或碳原子簇。这些可控式激态能量的供给，可以通过本发明的特殊加工方法实现，并可以选择性的制备出不同碳结构体。

发明内容

本发明的上述技术问题主要是通过下述技术方案得以解决的：

一种量子碳素，其特征在于，为一种量子碳素液的结晶体，该结晶体是纳米碳结构体，包括单层石墨烯或多层石墨烯，结晶体表层为含有碳、氢、氧、氮的化合物，所述含有碳、氢、氧、氮的化合物包括稠环芳烃、含有碳氧单键的化合物、含有碳氧双键的化合物、含有碳氢键的化合物的一种或几种的混合物，混合物中各元素比例为：C 为 45%-55%，H 为 0.2%-2.0%，N 为 0.1%-0.3%，O 为 45%-65%。

所述结晶体表层是指晶体粒子表层的化合物元素，即指量子碳素液中的整个混合物的元素含量。（采用美国 EAI 公司 CE-440 型快速元素分析仪经过三次测量平均结果为：C:50.19% H:0.42% N:0.22% O:49.17% 分析精度：0.15%；分析准确度：0.15%。表明碳纳米粒子整体上含氧基团的数目很高）。

所述量子碳素液是含有量子碳素的水溶液，所述量子碳素的水溶液包括碳素粒子： $0.6 \leq$ 粒径 $\leq 50\text{nm}$ 单层石墨烯， $0.6 \leq$ 粒径 ≤ 100 多层石墨烯， $0.6\text{nm} \leq$ 粒径 $\leq 200\text{nm}$ 的碳素结构粒子， $0.6 <$ 粒径 $< 200\text{nm}$ 的量子碳素；

优选地，所述量子碳素液的 ORP 为 280mv-500mv、电导率 σ 为 1-10ms/cm、电动势为 280mv-380mv、pH 值为 1.2-3.2、浓度为 0.1%-0.45%。

优选地，包括依次首尾连通的电化学氧化发生器部分、离子嵌入装置部分、石墨层间剥离部分、分散装置部分、分离装置部分和浓缩装置部分；电控部分用于控制电化学氧化发生器部分、离子嵌入装置部分、石墨层间剥离部分、分散装置部分、分离装置部分和浓缩装置部分的运行。

优选地，所述电化学氧化发生器部分包括₂壳体和设置于壳体内腔中的至少一组正负极板

发生组件，壳体左侧壁上设有进液口 a 和进气口 b，壳体右侧壁上设有出料口 c；壳体底部设有一个 U 形托架托架上架有一中心轴，正负极板发生组件设置在中心轴上。

优选地，所述正负极板发生组件包括正极板和负极板，垂直设置，所述正极板为石墨化三高（高密度：比重 >1.80 、高纯度：石墨 $>99.9\%$ 、高强度：抗拉强度 $>30.00\text{MPa}$ ）；负极板为表面镀有 Pt 或 Ni 的 314# 不锈钢或 314# 不锈钢制成的金属极板，所述负极板上均匀地分布直径为 $1\sim 2\text{mm}\times (50\sim 300)$ 个的通孔。中心轴上设有一个弹性调节间隙装置，用于调节正极板和负极板之间的间隙，调节范围为 $0.5\text{mm}\sim 10\text{mm}$ ；

所述弹性调节间隙装置包括垂直设置在中心轴上的滑动片以及固定在滑动片上的调节螺栓，调节弹簧的一端与正负极板发生组件接触，另一端与滑动片接触，正极板和负极板之间设有绝缘弹簧。

优选地，所述离子嵌入装置部分包括泵体，以及通过若干水平管道和 L 形以及法兰组成的管道系统，L 形管道的转角处设置有激振棒；管道系统的一端与泵体 (3-4) 输出端连接，另一端的管道端头配接有至少一组离子嵌入器，所述离子嵌入器为可调式大功率聚焦式超声波换能器。

优选地，所石墨层间剥离部分包括壳体、设置在壳体内的剥离组件，壳体两端设有进口和出口并通过端盖封闭；剥离组件包括垂直设置的金属片 A、金属片 B、以及金属片 C 以及金属片 D；所述金属片 A、金属片 B、金属片 C 以及金属片 D 对应结构为金属片结构 A1、金属片结构 A2、金属片结构 B1 以及金属片结构 B2。其组合有金属片 A-金属片 C、或金属片 B-金属片 D、或金属片 A-金属片、或金属片 D-金属片 A-金属片 B-金属片 C-金属片 D；

其中金属片结构 A1 为均匀分布六角形通孔圆盘，圆盘中心为中心孔的中心。金属片结构 B1 和金属片结构 A1 的孔型尺寸相同，为均匀分布六角形通孔圆盘，但圆盘中心为金属片结构 A1 横向移动两孔中心直线距离的 $1/2$ 处。其中金属片结构 A2 为均匀分布圆形通孔圆盘，圆盘中心为中心孔的中心。金属片结构 B2 和金属片结构 A2 的孔型尺寸相同，为均匀分布圆形通孔圆盘，但圆盘中心为金属片结构 A2 横向移动两孔中心直线距离的 $1/2$ 处。其中金属片结构 C 片为圆盘周边有半圆通孔和盘中均匀分布至少四个限位螺孔。其中金属片结构 D 片为中心有一通孔。其组合有 A1-B1、A2-B2、A-B 和 DABCD。

所述分散装置部分 (2-2) 包括壳体、设置在壳体内依次连接的两个分散腔，分别是分散腔一和分散腔二，所述分散腔二的输出端与壳体外部的输出腔连接；所述分散腔一和分散腔二为两个矩形腔，且分散腔一输出端与分散腔二的输入端连接，所述分散腔二的输出端楔形，倾斜角度为 α ；输出腔为梯形，且两边的倾斜角度为 β ，所述分散腔二的输出端至输入端的距离为 L，宽度为 D1，分散腔二的输出端的口径为 D2，所述壳体上部还开有一个垂直流道至

分散腔一和分散腔二的连接处，该流道为一个倒 T 形流道，流道的底部为矩形，且与分散腔一和分散腔二的连接处连通，其中， $0.01 \leq (D_1 - D_2) / L \leq 0.1$ ； $35^\circ \leq \alpha \leq 75^\circ$ ； $45^\circ \leq \beta \leq 85^\circ$ 。

一种制备量子碳素的方法，其特征在于：包括如下步骤：

步骤 1、采用多层反渗透膜制得的 pH 值为 6.5-7.2、电阻值为 180 兆欧的去离子水。通过电化学氧化发生器部分壳体左侧壁上设有进液口 a 进入发生器中。

步骤 2、采用 H₂O₂ 剂（浓度为 30%）为发生器中水体的 0.15% 的添加量，通过进液口 a 进入发生器中。

步骤 3、通过步骤 1、2，水和剂进入电化学氧化发生器部分内，静置不少于 24 小时时间。之后经控制柜启动制备程序。控制柜提供高频脉冲直流电源，输出端直流电源为 0-150V、0-100A 供电化学氧化发生器部分(1)调节应用；同时提供输出端功率为 1-5KVA、20KHz-120KHz 多波频段交互发射波，供离子嵌入装置的可调式大功率聚焦式超声波换能器调节应用。

步骤 4、电化学氧化发生器部分制备的初级碳溶胶液体经过泵提供的 3kg/cm³-10kg/cm³ 压强，输送碳溶胶液体进入离子嵌入装置部分中，进行石墨层间氢、氧离子的嵌入制备。再经由石墨层间剥离部分、分散装置部分的石墨层间剥离部分装置、分散装置部分的制备后，碳溶胶液体在石墨层间剥离部分、分散装置部分装置中进行各种参数的检测。当碳溶胶液体的各项指标达到预定值的范围时，作为量子碳素的基础液态体进行后续提纯、浓缩等方法手段的分离制备出各形态的量子碳素制品。如果碳溶胶液体的各项指标未达到预定值的范围时，系统将开启泵 4 使碳溶胶液体重新返回电化学氧化发生器部分循环制备。

所述碳溶胶液体的各项指标是指：量子碳素混合液的 pH 值为 1.2-2.2、电动势 ORP 值为 280mv-380mv、电导率值为 1.5ms/cm-5.0ms/cm，固液浓度依据电导率-固含量、电动势-固含量、pH-固含量的归一趋势，固含量值为 0.4%-0.6%；碳溶胶液体的温度为 40℃-70℃。

所述碳溶胶液体的各项指标包括对量子碳素粒子的粒径和粒径频度分布的检测。量子碳素的粒径和粒径频度分布的范围在 0.6nm-1.0nm 之间。

经过各参数达标后得到量子碳素液。量子碳素液经分级装置中设有转速为 15000 转/分钟-30000 转/分钟的高速离心机，对量子碳素混合液进行离心分级处理。

优选地，对所述量子碳素混合液离心处理后，向处理后的溶液中加入添加 0.001%-0.010% 质量比的苯六甲酸作为结晶种子，并高速搅拌 2 小时同时加温到 70℃-80℃，静置 >20 小时，缓慢降温到室温，得到高纯度苯六甲酸结晶体的碳氢氧化合物。

优选地，对所述量子碳素混合液离心处理后，向处理后的溶液中加入添加 0.1%-1.0% 的烷烃，或添加 0.1%-1.0% 的碳醇，或添加烷烃和₄碳醇任一比例混合物。所述烷烃是碳素为

C1-C12 的烷烃，其中一种或多种混合烃。所述碳醇是碳素为 C1-C12 的碳醇，其中一种或多种混合醇。并高速搅拌 1 小时，静置 12 小时，得到高纯度辛烷 C₈H₁₈ 碳氢化合物。

因此，本发明具有如下优点：本发明工艺简单、成本低、易于控制，容易实现规模化生产，且无三废产生，生产的单层石墨烯、多层石墨烯、以及碳结构粒子颗粒度均匀，纯度高、产品质量稳定。

附图说明

图 1 为量子碳素制备工艺方法图。

图 2 为量子碳素制备构成图。

图 3a 为电化学氧化发生器部分（1）结构示意图。

图 3b 为电化学氧化发生器部分（1）中沿 K-K 线剖视结构示意图。

图 3c 为电化学氧化发生器部分（1）中负极板的结构示意图。

图 3d 为电化学氧化发生器部分（1）中正极板的结构示意图。

图 4 为离子嵌入装置部分（3）结构示意图。

图 5 为石墨层间剥离分散装置部分（2）中的结构示意图。

图 6a 为剥离部件（2-1）中的 A1 的剥离片图。

图 6b 为剥离部件（2-1）中的 B1 的剥离片图。

图 6c 为剥离部件（2-1）中的 C 的剥离片图。

图 6d 为剥离部件（2-1）中的 A2 的剥离片图。

图 6e 为剥离部件（2-1）中的 B2 的剥离片图。

图 6f 为剥离部件（2-1）中的 D 的剥离片图。

图 7a 为剥离部件（2-1）中 A1-B1 组合示意图。

图 7b 为剥离部件（2-1）中 A2-B2 组合示意图。

图 7c 为剥离部件（2-1）中的 A、B 片组合示意图。

图 8 为剥离部件（2-1）中的 A、B、C、D 片组合示意图。

图 9 为分散装置部分示意图。

图 10 为量子碳素固含量与电导率关系曲线。

图 11 为量子碳素固含量与电动势关系曲线。

图 12 为量子碳素固含量与 pH 关系曲线。

图 13 为量子碳素制备初期各参数曲线。

图 14 为量子碳素制备达标各参数曲线。

图 15 为量子碳素氧化原理图。

图 16 为本发明氧化石墨烯形态图。

图 17 为量子碳素一种电镜观测图

图 18 为量子碳素另一种电镜观测图。

图 19 为量子碳素 STM 平面观测图。

图 20 为量子碳素 STM 三维观测图。

图 21 为量子碳素 STM 粒径检测图。

图 22 为量子碳素红外图谱。

图 23 为量子碳素红外标准图谱。

图 24 为量子碳素制备苯六甲酸质谱图。

图 25 为量子碳素制备苯六甲酸 C13 图谱。

图 26 为量子碳素制备苯六甲酸 XRD 衍射仪分析。

图 27 为量子碳素气相色谱与质谱联用检测（检测结果为：正辛烷 C₈H₁₈）。

具体实施方式

下面通过实施例，并结合附图，对本发明的技术方案作进一步具体的说明。

实施例 1：

本发明涉及的量子碳素包括了粒径为 0.3-100nm 的碳素粒子的单层石墨烯、多层石墨烯、纳米碳结构体，在所述碳素粒子的表层具有含有碳、氢、氧、氮的化合物，所述含有碳、氢、氧、氮的化合物包括稠环芳烃、含有碳氧单键的化合物、含有碳氧双键的化合物、含有碳氢键的化合物。

该量子碳素包括量子碳素液，所述量子碳素液为含有量子碳素的水溶液，所述量子碳素液的 ORP 为 280mv-500mv、电导率 σ 为 1-10ms/cm、电动势为 280mv-380mv、pH 值为 1.2-3.2、浓度为 0.1%-0.45%。

量子碳素由如下质量百分比的碳素粒子构成：0.6≤粒径≤50nm 单层石墨烯，0.6≤粒径≤100 多层石墨烯，0.6nm≤粒径≤200nm 的碳素结构粒子，0.6<粒径<200nm 的量子碳素；所述含有碳、氢、氧、氮的化合物为稠环芳烃、含有碳氧单键的化合物、含有碳氧双键的化合物、含有碳氢键的化合物的一种或几种的混合物，其中各元素比例为：C 45%-55%，H 0.2%-2.0%，O 45%-65%。

实施例 2、

本发明涉及的量子碳素的制备方法的装备，包括电控部分、电化学氧化发生器部分（1）、离子嵌入装置部分（3）、石墨层间剥离、分散₆装置部分（2）、分离装置部分和浓缩装置部分

组成。其特征在于：电化学氧化发生器部分（1）、离子嵌入装置部分（3）、石墨层间剥离、分散装置部分（2）、分离装置部分和浓缩装置部分依次首尾连通构成。

电化学氧化发生器部分（1）包括壳体和设置于壳体内腔中的至少一组正负极板发生组件（1-1；1-2），壳体左侧壁上设有进液口 a 和进气口 b，壳体右侧壁上设有出料口 c。正极板 1-2 为石墨化三高（高密度：比重 >1.80 、高纯度：石墨 $>99.9\%$ 、高强度：抗拉强度 $>30.00\text{MPa}$ ）；负极板 1-1 为 314# 不锈钢或 314# 不锈钢表面镀有 Pt 或 Ni 的金属极板，并均匀地分布直径为 $2\text{mm} \times 50\text{--}300$ 个的通孔。1-3 为聚四氟乙烯材质的托架；1-4 为聚四氟乙烯材质的中心轴；1-5 为弹性调节间隙装置，调节 1-1 和 1-2 之间的间隙，调节范围为 $0.5\text{mm} \sim 10\text{mm}$ ；。

离子嵌入装置部分（3）包括泵体 3-4、管道 3-1、法兰管接头、以及设置于管道 3-1 端头的至少一组离子嵌入装置组成。所述离子嵌入装置为可调式大功率聚焦式超声波换能器（频率 $20\text{KHz} \sim 120\text{KHz}$ ，功率 $1\text{KW} \sim 5\text{KW}$ ）。

石墨层间剥离部分 2-1 包括 A、B、C、D 四片不同结构圆形金属片和限位螺栓 2-1.1、壳体、两个端盖组成。所述 A、B、C、D 四片不同结构金属片包括 A1、A2、B1、B2。其中 A1 为均匀分布六角形通孔圆盘，圆盘中心为中心孔的中心。B1 和 A1 的孔型尺寸相同，为均匀分布六角形通孔圆盘，但圆盘中心为 A1 横向移动两孔中心直线距离的 $1/2$ 处。其中 A2 为均匀分布圆形通孔圆盘，圆盘中心为中心孔的中心。B2 和 A2 的孔型尺寸相同，为均匀分布圆形通孔圆盘，但圆盘中心为 A2 横向移动两孔中心直线距离的 $1/2$ 处。其中 C 片为圆盘周边有半圆通孔和盘中均匀分布至少四个限位螺孔。其中 D 片为中心有一通孔。其组合有 A1-B1、A2-B2、A-B 和 DABCD。

分散装置部分（2-2）包括壳体、设置在壳体内依次连接的两个分散腔，分别是分散腔一和分散腔二，所述分散腔二的输出端与壳体外部的输出腔连接；所述分散腔一和分散腔二为两个矩形腔，且分散腔一输出端与分散腔二的输入端连接，所述分散腔二的输出端楔形，倾斜角度为 α ；输出腔为梯形，且两边的倾斜角度为 β ，所述分散腔二的输出端至输入端的距离为 L，宽度为 D1，分散腔二的输出端的口径为 D2，所述壳体上部还开有一个垂直流道至分散腔一和分散腔二的连接处，该流道为一个倒 T 形矩形流道，且流道的底部将分散腔一和分散腔二的连接处包裹住，如图 9，

流体经流不同的管径和一定的几何尺寸空间中，在各个局部和质点处产生不同的流体压强和质点的运动速度。从 A 进口进入的液流体，液体压力变换为动压。在局部负压区，是由于管径突变，液体流速增加，压力释放而产生局部负压区 E。负压区 E 具有从 B 入口吸入特定气体或流体介质功能。

本发明特定气体为空气。加入量为 0.01%~1% (液体体积比), 优选 0.1%~0.5%。加压区是特定几何尺寸空间, 将吸入的气体形成气液混合相状态, 由于管径扩大, 液体流速下降, 液体从动压变换为静压进行气缩加压溶解。经过充分气体的加压溶解后, 液体已成为过饱和状态。C 出口按一定角度突变扩展通向大气压的压力时, 液体产生大量的微泡析出。在大气压界面 C 出口处, 融入液体中的气体微泡从生成、生长到爆炸式溃灭在瞬间完成, 局部产生异常高温高压, 使水分子结合键断裂产出大量的羟自由基 ($\cdot\text{OH}$) 和氢自由基 ($\cdot\text{H}$)。羟自由基 ($\cdot\text{OH}$) 具有超强的氧化能力, 对单层石墨烯、多层石墨烯、以及碳结构粒子进行氧化修饰。

其中, $0.01 \leq (D_1 - D_2) / L \leq 0.1$, 优选 $(D_1 - D_2) / L = 0.05$; $35^\circ \leq \alpha \leq 75^\circ$, 优选 $\alpha = 45^\circ$; $45^\circ \leq \beta \leq 85^\circ$, 优选 $\beta = 65^\circ$

实施例 3

本发明涉及的一种制备量子碳素的方法, 包括如下步骤:

(1) 采用多层反渗透膜制得的 pH 值为 6.5-7.2、电阻值为 180 兆欧的去离子水。通过电化学氧化发生器部分 (1) 壳体左侧壁上设有进液口 a 进入发生器中。

(2) 采用 H₂O₂ 剂 (浓度为 30%) 为发生器中水体的 0.15% 的添加量, 通过进液口 a 进入发生器中。

(3) 电化学氧化发生器部分 1 中包括壳体和设置于壳体内腔中的至少一组正负极板发生组件 (1-1; 1-2), 正极板 1-2 为石墨化的三高石墨板 (高密度: 比重 > 1.80、高纯度: 石墨 > 99.9%、高强度: 抗拉强度 > 30.00MPa); 负极板 1-1 为 314# 不锈钢或 314# 不锈钢表面镀有 Pt 或 Ni 的金属极板, 并均匀地分布直径为 2mm × 50-300 个的通孔。1-3 为聚四氟乙烯材质的托架; 1-4 为聚四氟乙烯材质的中心轴; 1-5 为弹性调节间隙装置, 调节 1-1 和 1-2 之间的间隙, 调节范围为 0.5mm~10mm;。

(4) 通过 (1) (2) 步骤, 水和剂进入电化学阳极氧化装置 1 内, 静置不少于 24 小时时间。之后经控制柜启动制备程序。控制柜提供高频脉冲直流电源, 输出端直流电源为 0-150V、0-100A 供电化学阳极氧化装置调节应用; 同时提供输出端功率为 1-5KVA、20KHz-120KHz 多波段交互发射波, 供离子嵌入装置的可调式大功率聚焦式超声波换能器调节应用。

(5) 电化学氧化发生器部分 (1) 制备的初级碳溶胶液体经过泵 3-4 提供的 3kg/cm³-10kg/cm³ 压强, 输送碳溶胶液体进入离子嵌入装置部分 (3) 中, 进行石墨层间氢、氧离子的嵌入制备。再经由石墨层间剥离、分散装置部分 (2) 的石墨层间剥离装置 2-1、分散装置部分 (2-2) 的制备后, 碳溶胶液体在石墨层间剥离、分散装置部分 (2) 装置中进行各种参数的检测。当碳溶胶液体的各项指标达_g到预定值的范围时, 作为量子碳素的基础液态

体进行后续提纯、浓缩等方法手段的分离制备出各形态的量子碳素制品（即通过本发明的浓缩装置和分离装置进行浓缩或分离，由于浓缩和分离装置均采用传统的分离和浓缩技术，在此不再赘述）。如果碳溶胶液体的各项指标未达到预定值的范围时，系统将开启泵 4 使碳溶胶液体重新返回电化学氧化发生器部分（1）循环制备。

（6）在（5）中所述碳溶胶液体的各项指标是指：量子碳素混合液的 pH 值为 1.2-2.2、电动势 ORP 值为 280mv-380mv、电导率值为 1.5ms/cm-5.0ms/cm，并符合图 13 和图 14 趋势；固液浓度依据图 10 电导率-固含量、图 11 电动势-固含量、图 12pH-固含量的归一趋势，固含量值为 0.4%-0.6%；碳溶胶液体的温度为 40℃-70℃，其中，纯净的碳粒子表面应该是碱性的，因为其的微晶表面是由芳香稠环结构组成的，这是路易斯碱，在水中易吸收氢离子而使周围液体呈碱性，酸性是在表面键合氧到一定程度抵消路易斯碱性后出现的，pH 值就是量子碳素粒子表面含氧量的标志，pH 值的高低主要取决于量子碳素粒子表面含氧基团的数目。

电导率为基准，电导率与固含量关系线性回归的结果

	Intercept		Slope		Statistics
	Value	Standard Error	Value	Standard Error	Adj. R-Square
电 导 率	346.77842	47.15029	583.85738	13.89943	0.99268
电 动 势	268.06348	3.63494	8.47968	1.07154	0.82579
ph 值	2.73299	0.02768	-0.10313	0.00816	0.92431

在（5）中所述碳溶胶液体的各项指标包括对量子碳素粒子的粒径和粒径频度分布的检测（图 17、图 18、图 19、图 20、图 21）。量子碳素的粒径和粒径频度分布的范围在 0.6nm-1.0nm 之间。已经超出纳米尺度（1nm-100nm）范畴。

经过各参数达标后得到量子碳素液。量子碳素液经分级装置中设有转速为 15000 转/分钟-30000 转/分钟的高速离心机，对量子碳素混合液进行离心分级处理。

（7）7-1、对所述量子碳素混合液离心处理后，向处理后的溶液中加入添加（0.001%-0.010%质量比）的苯六甲酸作为结晶种子，并高速搅拌 2 小时同时加温到 70℃-80℃，静置>20 小时，缓慢降温到室温，得到高纯度苯六甲酸结晶体的碳氢氧化合物（图 22、图 23、图 24、图 25、图 26）。

7-2、对所述量子碳素混合液离心处理后，向处理后的溶液中加入添加 0.1%-1.0%的烷烃，或添加 0.1%-1.0%的碳醇，或添加烷烃₉和碳醇任一比例混合物。所述烷烃是碳素为

C1-C12 的烷烃，其中一种或多种混合烃。所述碳醇是碳素为 C1-C12 的碳醇，其中一种或多种混合醇。并高速搅拌 1 小时，静置 12 小时，得到高纯度辛烷 C₈H₁₈ 碳氢氧化合物（图 27）。

本文中所描述的具体实施例仅仅是对本发明精神作举例说明。本发明所属技术领域的技术人员可以对所描述的具体实施例做各种各样的修改或补充或采用类似的方式替代，但并不会偏离本发明的精神或者超越所附权利要求书所定义的范围。

权 利 要 求 书

1. 一种量子碳素，其特征在于，为一种量子碳素液的结晶体，该结晶体是纳米碳结构体，包括单层石墨烯或多层石墨烯，结晶体表层为选自含有碳、氢、氧元素的化合物，所述选自含有碳、氢、氧元素的化合物包括含有碳氧单键的化合物、含有碳氧双键的化合物、含有碳氢化合物的混合物，混合物中各元素比例为：C 为 45%-60%，H 为 0.2%-5.0%，O 为 35%-54%；

所述量子碳素液是含有量子碳素的水溶液，所述量子碳素的水溶液包括碳素粒子： $0.6 \leq \text{粒径} \leq 50\text{nm}$ 单层石墨烯， $0.6 \leq \text{粒径} \leq 100$ 多层石墨烯， $0.6 < \text{粒径} < 200\text{nm}$ 的量子碳素。

2. 根据权利要求 1 所述的一种量子碳素，其特征在于，所述量子碳素液的 ORP 为 280mv-500mv、电导率 σ 为 1-10ms/cm、电动势为 280mv-380mv、pH 值为 1.2-3.2、浓度为 0.1%-0.45%。

3. 一种权利要求 1 所述的量子碳素的制备方法的装置，其特征在于，包括依次首尾连通的电化学氧化发生器部分（1）、离子嵌入装置部分（3）、石墨层间剥离部分、分散装置部分（2）、分离装置部分和浓缩装置部分；电控部分用于控制电化学氧化发生器部分（1）、离子嵌入装置部分（3）、石墨层间剥离部分、分散装置部分（2）、分离装置部分和浓缩装置部分的运行。

4. 按照权利要求 3 所述的量子碳素的制备方法的装置，其特征在于：所述电化学氧化发生器部分（1）包括壳体和设置于壳体内腔中的至少一组正负极板发生组件，壳体左侧壁上设有进液口 a 和进气口 b，壳体右侧壁上设有出料口 c；壳体底部设有一个 U 形托架（1-3），托架（1-3）上架有一中心轴（1-4），正负极板发生组件设置在中心轴（1-4）上。

5. 按照权利要求 4 所述的量子碳素的制备方法的装置，其特征在于：所述正负极板发生组件包括正极板（1-2）和负极板（1-1），垂直设置，所述正极板（1-2）为石墨化三高；负极板（1-2）为表面镀有 Pt 或 Ni 的 314# 不锈钢或 314# 不锈钢制成的金属极板，所述负极板（1-2）上均匀地分布直径为 1~2mm×（50~300）个的通孔；中心轴（1-4）上设有一个弹性调节间隙装置（1-5），用于调节正极板（1-2）和负极板（1-1）之间的间隙，调节范围为 0.5mm~10mm；

所述弹性调节间隙装置（1-5）包括垂直设置在中心轴（1-4）上的滑动片以及固定在滑动片上的调节螺栓，调节弹簧的一端与正负极板发生组件接触，另一端与滑动片接触，正极板（1-2）和负极板（1-1）之间设有绝缘弹簧。

6. 按照权利要求 4 所述的量子碳素的制备方法的装置，其特征在于：所述离子嵌入装置部分（3）包括泵体（3-4），以及通过若干水平管道和 L 形以及法兰（3-2）组成的管道系统，

L形管道的转角处设置有激振棒(3-3)；管道系统的一端与泵体(3-4)输出端连接，另一端的管道(3-1)端头配接有至少一组离子嵌入器，所述离子嵌入器为可调式大功率聚焦式超声波换能器。

7. 按照权利要求4所述的量子碳素的制备方法的装置，其特征在于：所述石墨层间剥离部分(2-1)包括壳体、设置在壳体内的剥离组件，壳体两端设有进口和出口并通过端盖封闭；剥离组件包括垂直设置的金属片A、金属片B、以及金属片C以及金属片D；所述金属片A、金属片B、金属片C以及金属片D对应结构为金属片结构A1、金属片结构A2、金属片结构B1以及金属片结构B2；其组合有金属片A-金属片C、或金属片B-金属片D、或金属片A-金属片D、或金属片A-金属片B-金属片C-金属片D；

其中金属片结构A1为均匀分布六角形通孔圆盘，圆盘中心为中心孔的中心；金属片结构B1和金属片结构A1的孔型尺寸相同，为均匀分布六角形通孔圆盘，但圆盘中心为金属片结构A1横向移动两孔中心直线距离的1/2处；其中金属片结构A2为均匀分布圆形通孔圆盘，圆盘中心为中心孔的中心；金属片结构B2和金属片结构A2的孔型尺寸相同，为均匀分布圆形通孔圆盘，但圆盘中心为金属片结构A2横向移动两孔中心直线距离的1/2处；其中金属片结构C片为圆盘周边有半圆通孔和盘中均匀分布至少四个限位螺孔；其中金属片结构D片为中心有一通孔；其组合有A1-B1、A2-B2、A-B和DABCD；

所述分散装置部分(2-2)包括壳体、设置在壳体内依次连接的两个分散腔，分别是分散腔一和分散腔二，所述分散腔二的输出端与壳体外部的输出腔连接；所述分散腔一和分散腔二为两个矩形腔，且分散腔一输出端与分散腔二的输入端连接，所述分散腔二的输出端楔形，倾斜角度为 α ；输出腔为梯形，且两边的倾斜角度为 β ，所述分散腔二的输出端至输入端的距离为L，宽度为D1，分散腔二的输出端的口径为D2，所述壳体上部还开有一个垂直流道至分散腔一和分散腔二的连接处，该流道为一个倒T形流道，流道的底部为矩形，且与分散腔一和分散腔二的连接处连通；其中， $0.01 \leq (D_1 - D_2) / L \leq 0.1$ ， $35^\circ \leq \alpha \leq 75^\circ$ ； $45^\circ \leq \beta \leq 85^\circ$ 。

8. 一种制备量子碳素的方法，其特征在于：包括如下步骤：

步骤1、采用多层反渗透膜制得的pH值为6.5-7.2、电阻值为180兆欧的去离子水；通过电化学氧化发生器部分(1)壳体左侧壁上设有进液口a进入发生器中；

步骤2、采用H2O2剂(浓度为30%)为发生器中水体的0.15%的添加量，通过进液口a进入发生器中；

步骤3、通过步骤1、2，水和剂进入电化学氧化发生器部分(1)内，静置不少于24小时时间；之后经控制柜启动制备程序；控制柜提供高频脉冲直流电源，输出端直流电源为

0-150V、0-100A 供电化学氧化发生器部分（1）调节应用；同时提供输出端功率为 1-5KVA、20KHz-120KHz 多波频段交互发射波，供离子嵌入装置的可调式大功率聚焦式超声波换能器调节应用；

步骤 4、电化学氧化发生器部分（1）制备的初级碳溶胶液体经过泵 3-4 提供的 $3\text{kg}/\text{cm}^3$ - $10\text{kg}/\text{cm}^3$ 压强，输送碳溶胶液体进入离子嵌入装置部分（3）中，进行石墨层间氢、氧离子的嵌入制备；再经由石墨层间剥离部分、分散装置部分（2）的石墨层间剥离部分装置（2-1）、分散装置部分（2-2）的制备后，碳溶胶液体在石墨层间剥离部分、分散装置部分（2）装置中进行各种参数的检测；当碳溶胶液体的各项指标达到预定值的范围时，作为量子碳素的基础液态体进行后续提纯、浓缩后分离制备出各形态的量子碳素制品；如果碳溶胶液体的各项指标未达到预定值的范围时，系统将开启泵 4 使碳溶胶液体重新返回电化学氧化发生器部分（1）循环制备；

所述碳溶胶液体的各项指标是指：量子碳素混合液的 pH 值为 1.2-2.2、电动势 ORP 值为 280mv-380mv、电导率值为 $1.5\text{ms}/\text{cm}$ - $5.0\text{ms}/\text{cm}$ ；固液浓度依据电导率-固含量、电动势-固含量、pH-固含量的归一趋势，固含量值为 0.4%-0.6%；碳溶胶液体的温度为 40°C - 70°C ；

所述碳溶胶液体的各项指标包括对量子碳素粒子的粒径和粒径频度分布的检测；量子碳素的粒径和粒径频度分布的范围在 0.6nm-1.0nm 之间；

经过各参数达标后得到量子碳素液；量子碳素液经分级装置中设有转速为 15000 转/分钟-30000 转/分钟的高速离心机，对量子碳素混合液进行离心分级处理。

9. 按照权利要求 8 所述的制备量子碳素的方法，其特征在于：对所述量子碳素混合液离心处理后，向处理后的溶液中加入添加 0.001%-0.010%质量比的苯六甲酸作为结晶种子，并高速搅拌 2 小时同时加温到 70°C - 80°C ，静置 >20 小时，缓慢降温到室温，得到高纯度苯六甲酸结晶体的碳氢氧化合物。

10. 按照权利要求 8 所述的制备量子碳素的方法，其特征在于：对所述量子碳素混合液离心处理后，向处理后的溶液中加入 0.1%-1.0%的烷烃，或 0.1%-1.0%的碳醇，或烷烃和碳醇任一比例混合物；所述烷烃是碳原子为 C1-C12 的烷烃，其中一种或多种混合烃；所述碳醇是碳原子为 C1-C12 的碳醇，其中一种或多种混合醇；并高速剪切搅拌 1 小时，同时对混合液体施加五个波段频率超声分散，由低到高依次施加五个波段频率并且每个波段频率施加时间为 1 分钟，五个波段频率依次施加完毕后为一个施加组，连续循环进行若干施加组，直至超声分散的时间达到 1 小时后结束，然后静置 12 小时，得到上清液为浅黄色液体；采用气相色谱和质谱的共同联用分析方法，得到所述浅黄色液体成分是正辛烷 C_8H_{18} 碳氢化合物；所述五个波段频率依次为 20KHz、45KHz、65KHz、100KHz、120KHz。

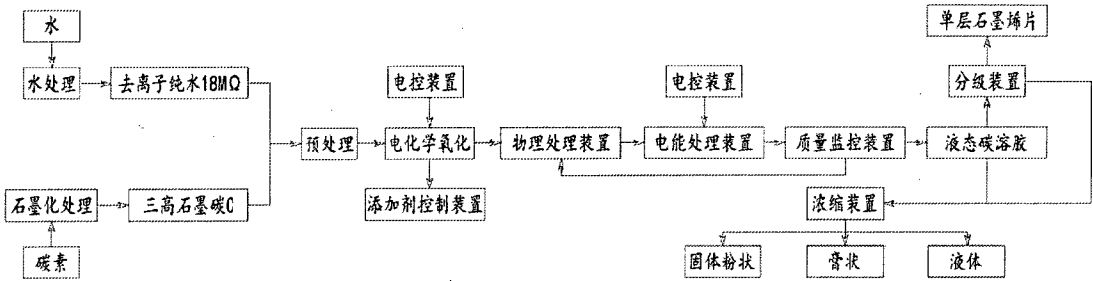


图 1

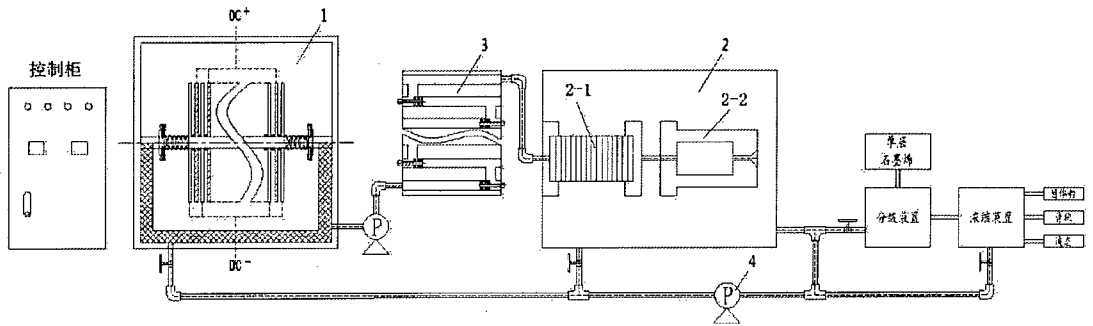
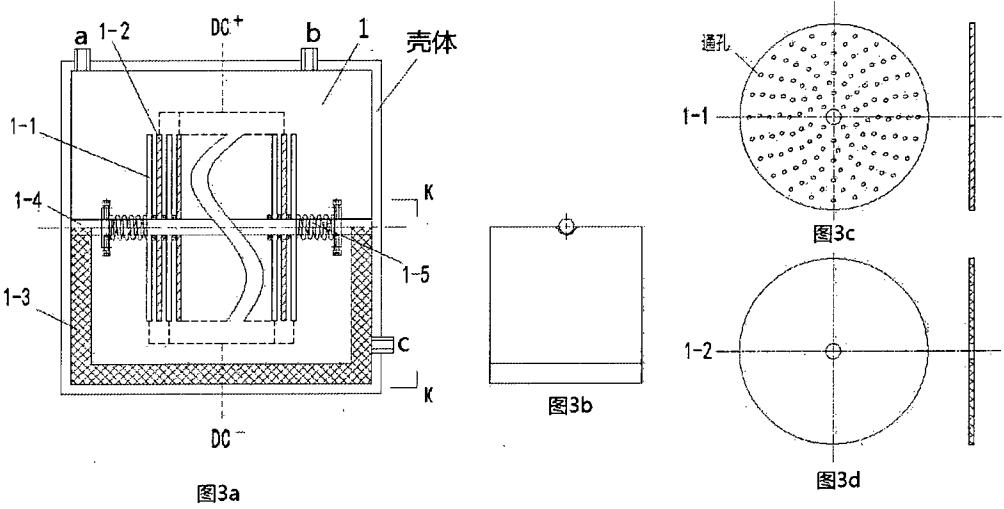


图 2



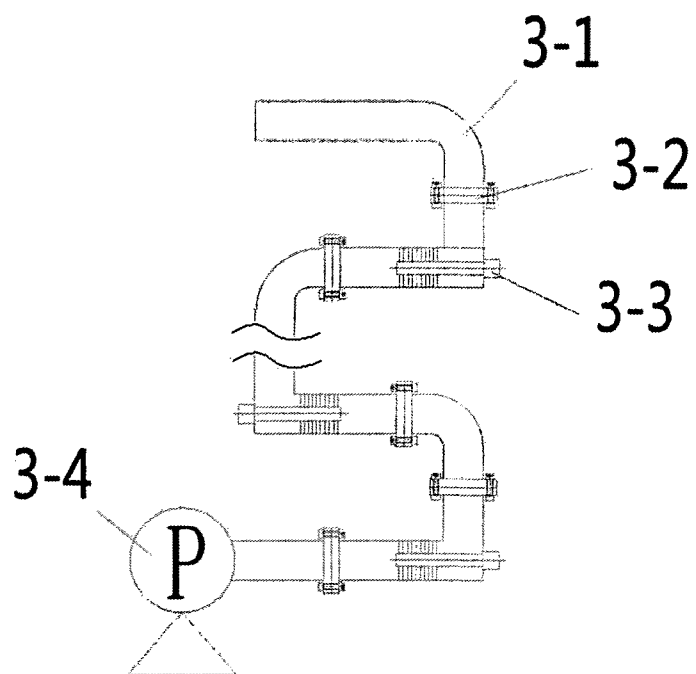


图 4

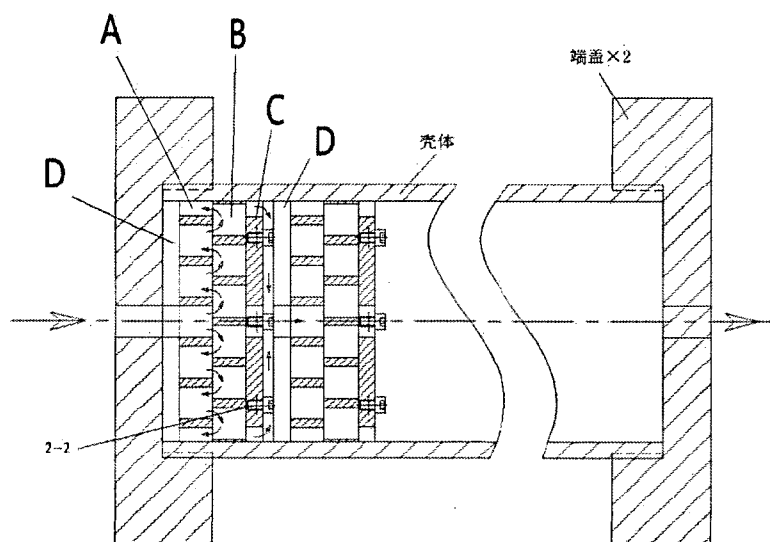
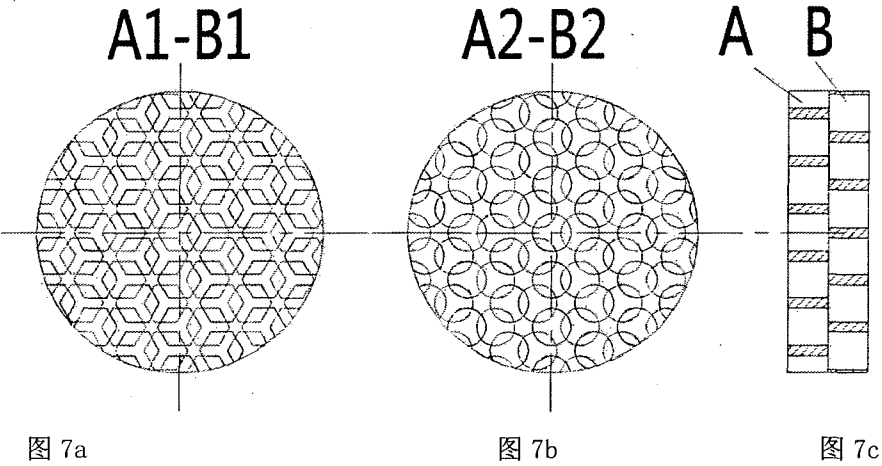
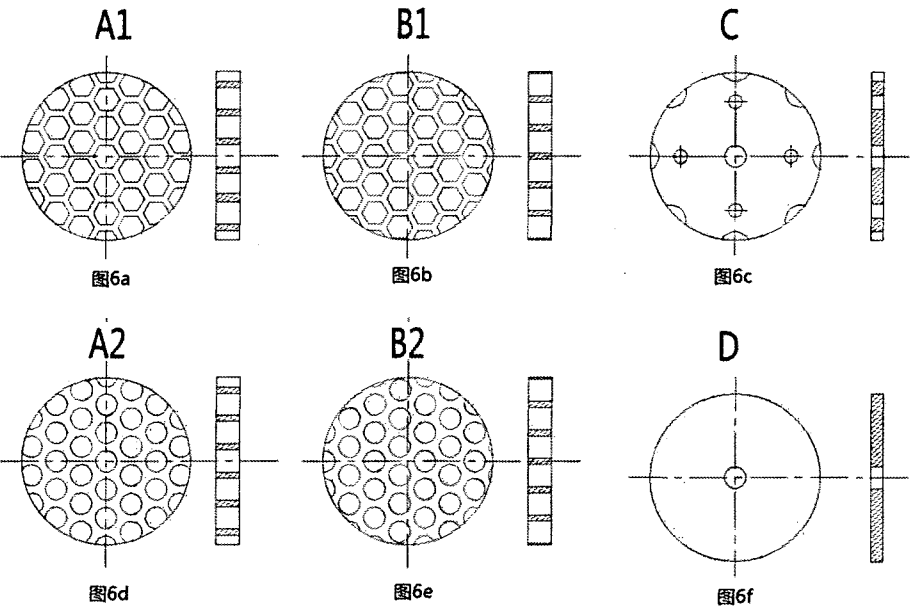


图 5



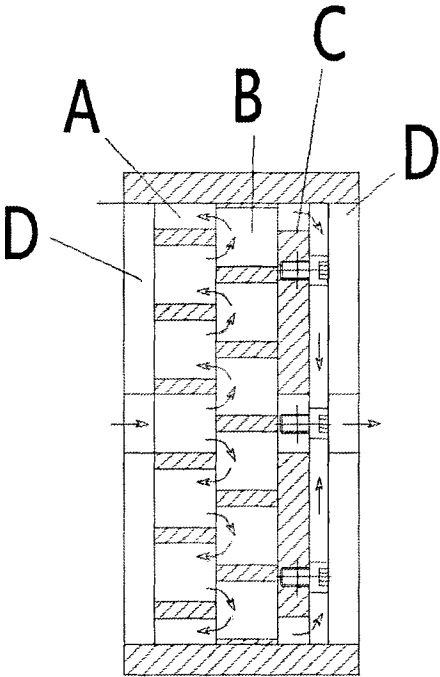


图 8

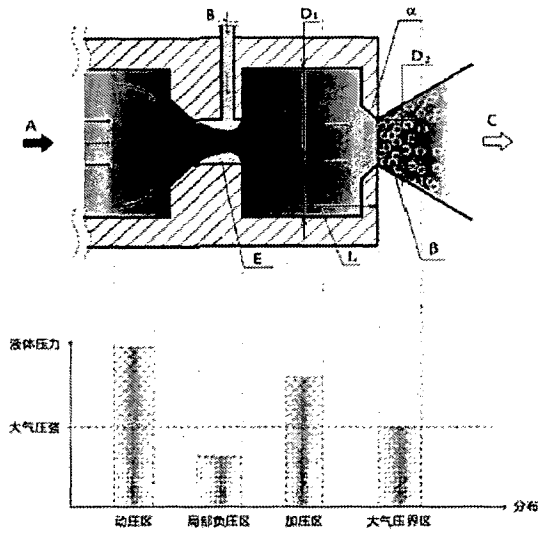


图 9

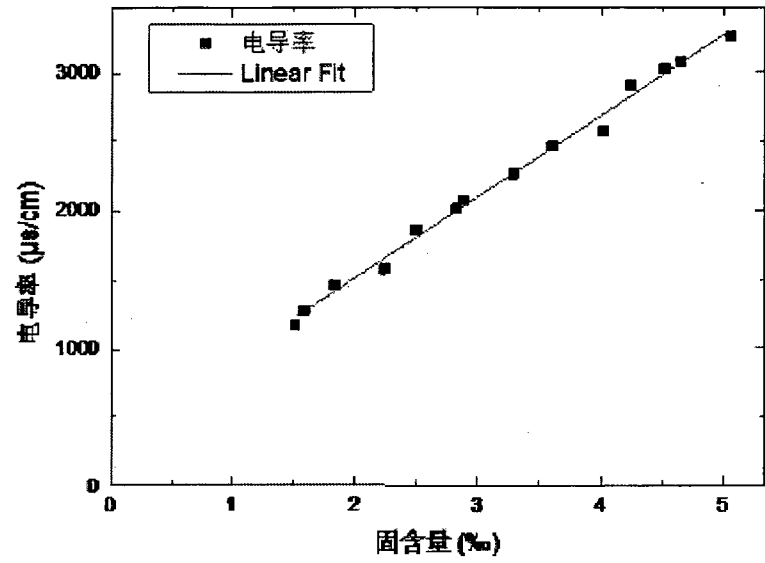


图 10

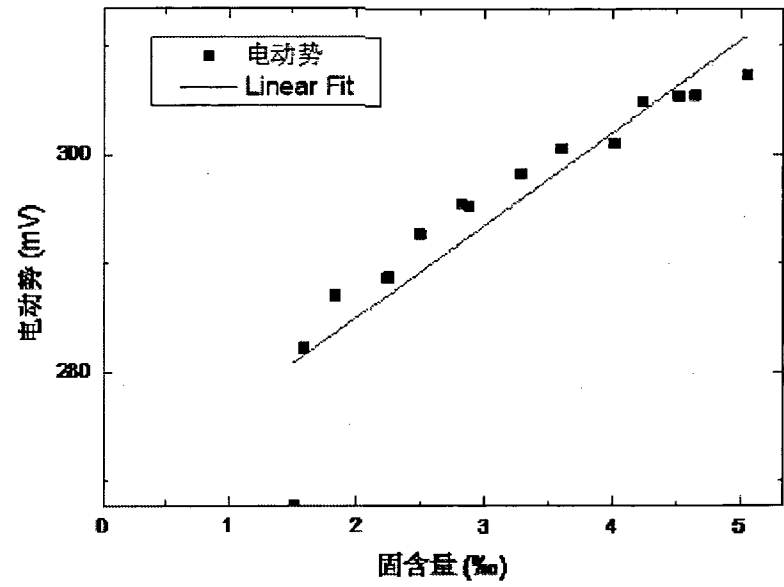


图 11

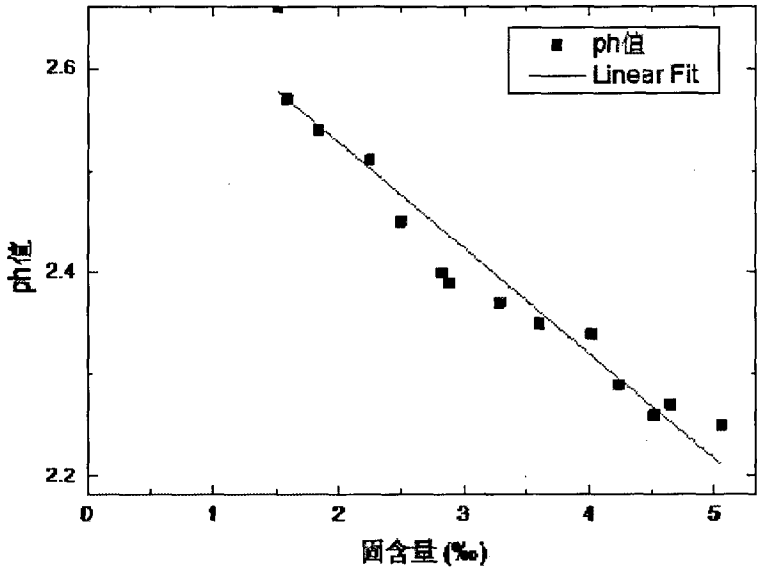


图 12

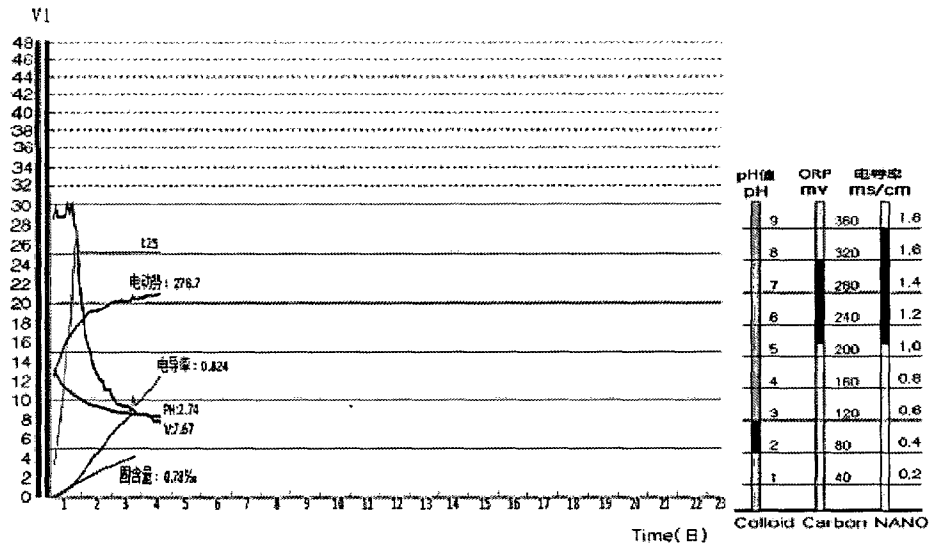


图 13

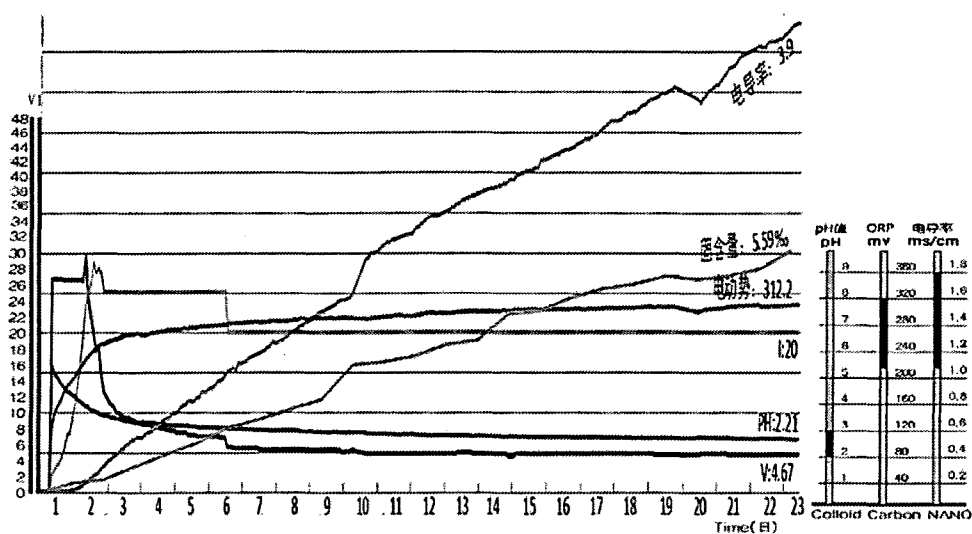


图 14

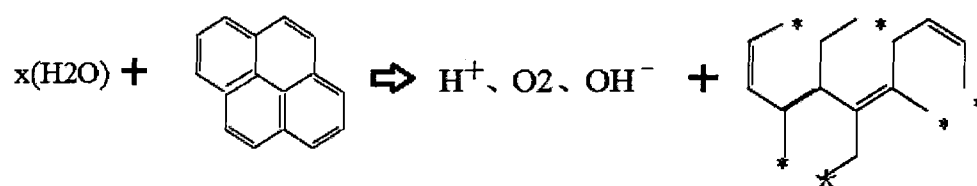


图 15

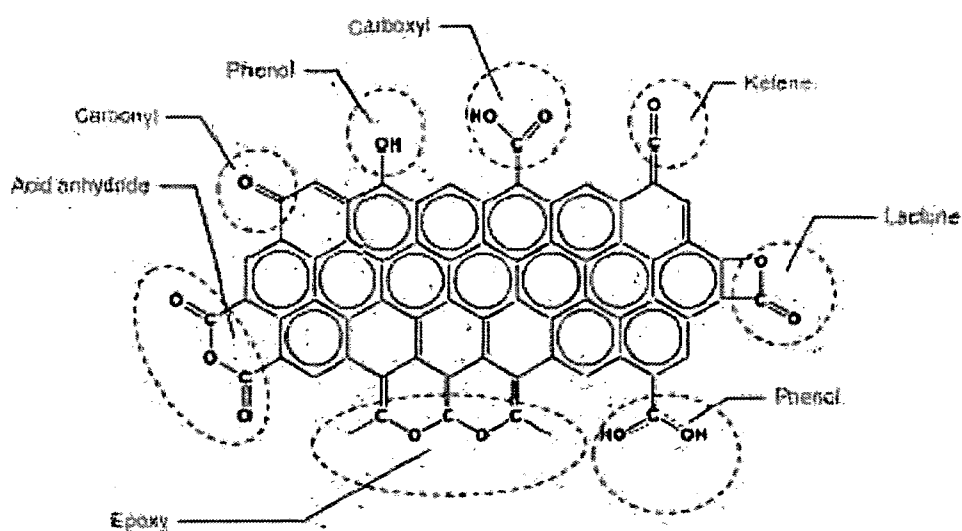


图 16

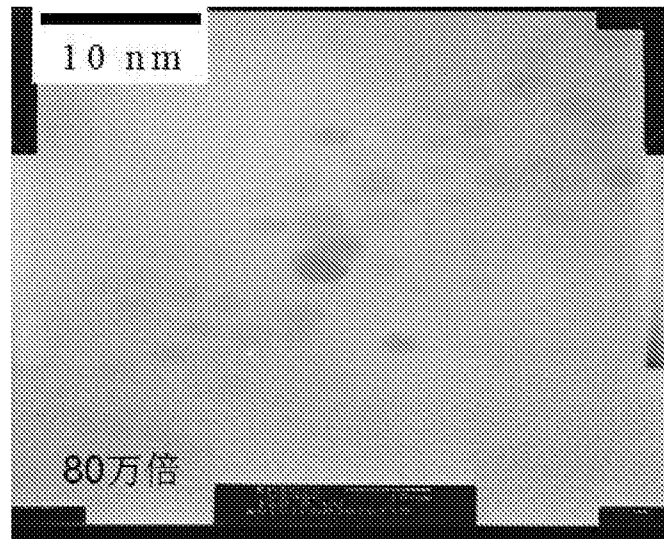


图 17

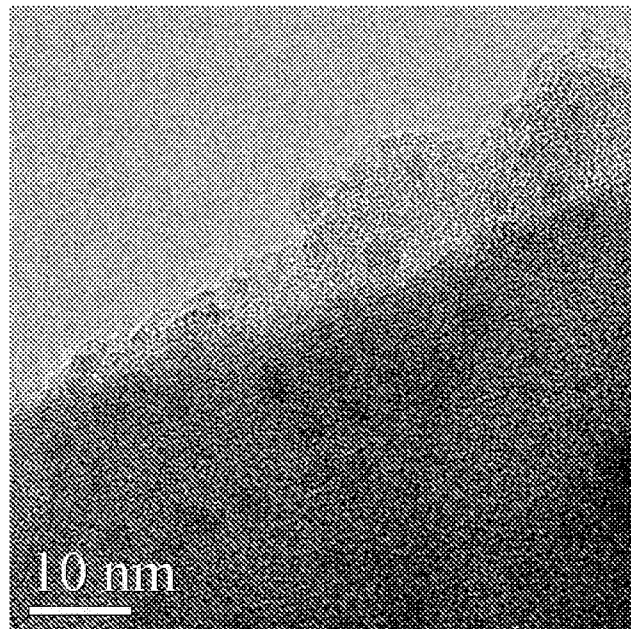


图 18

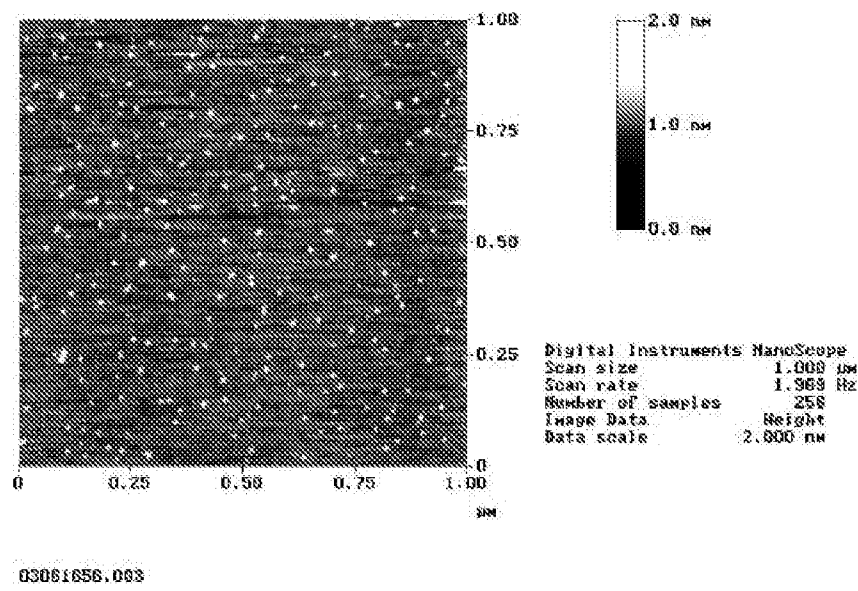


图 19

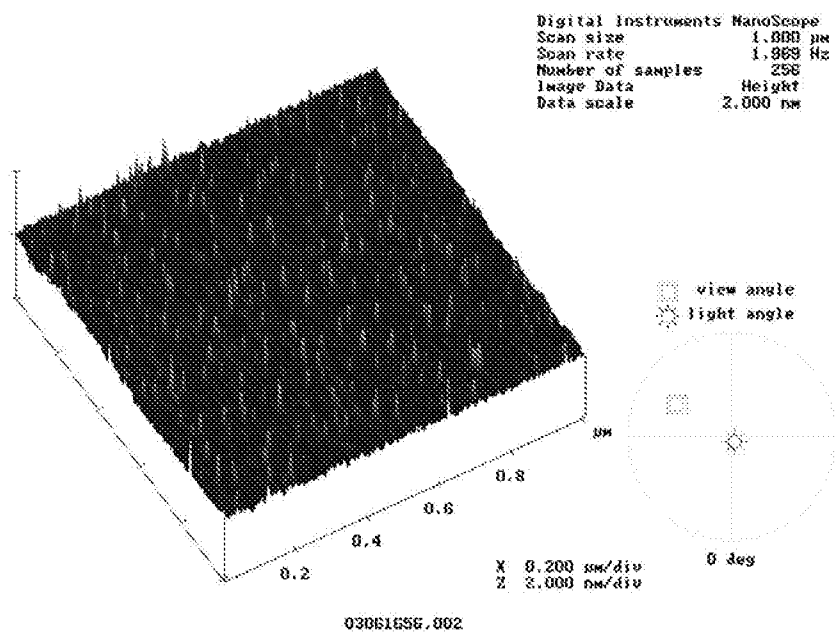


图 20

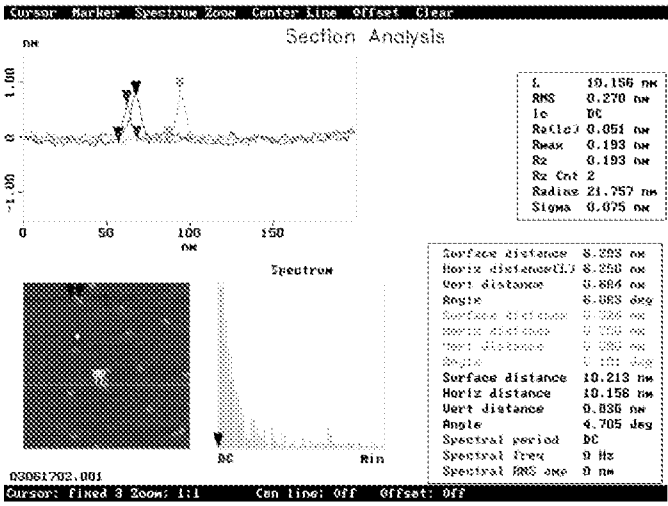


图 21

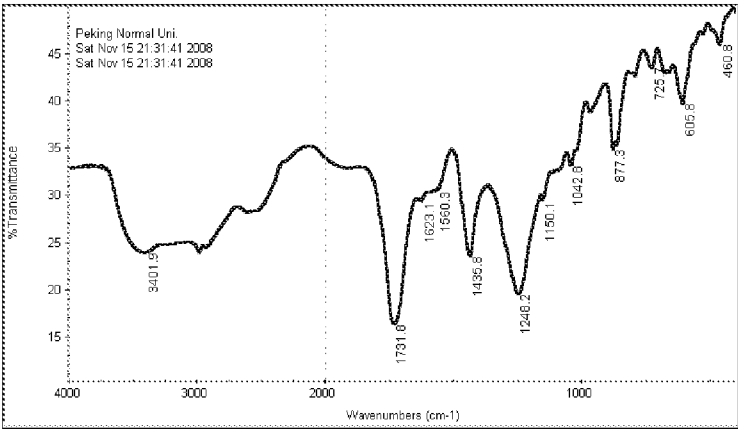


图 22

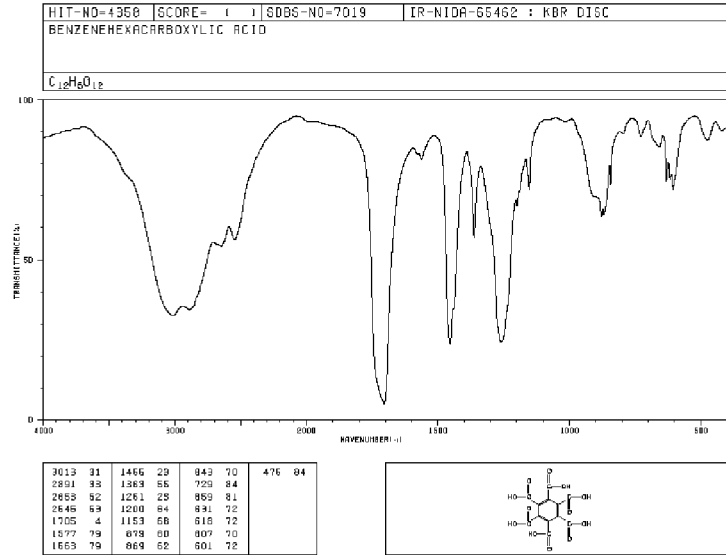


图 23

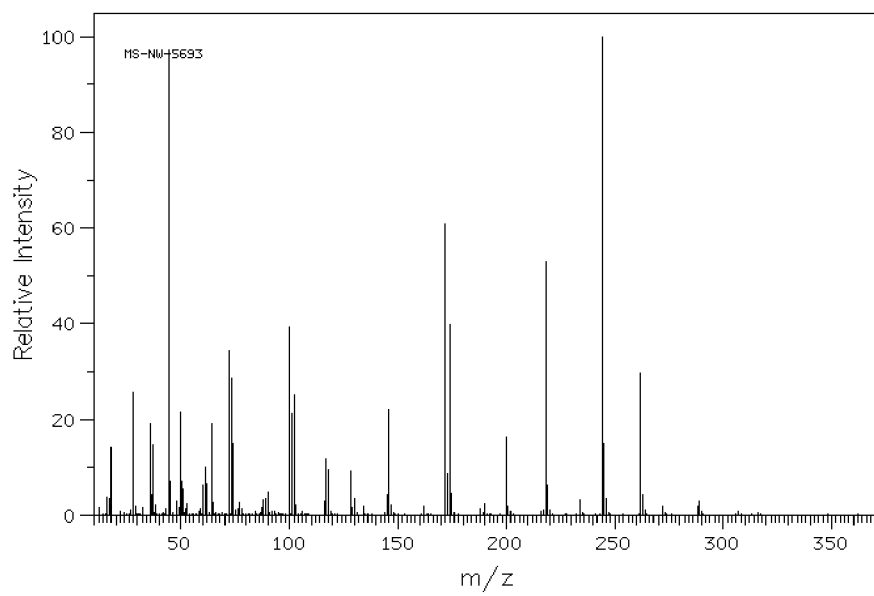


图 24

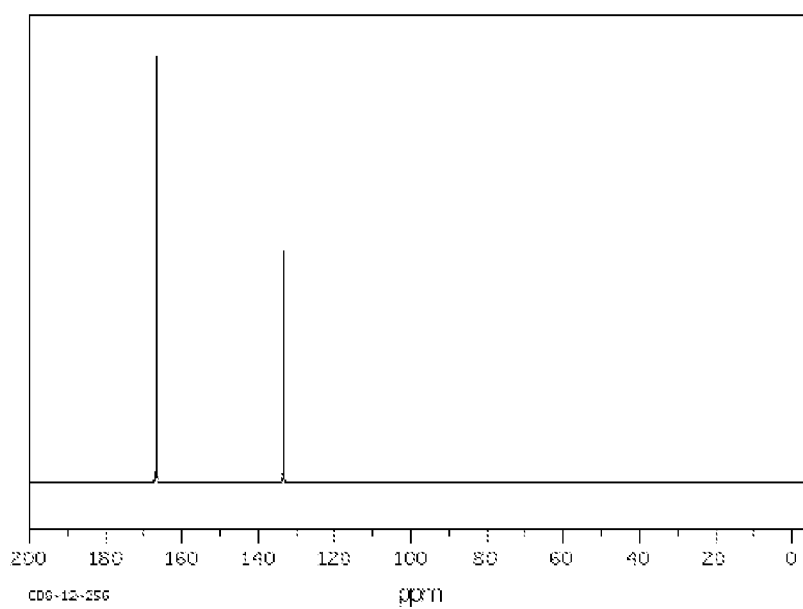


图 25

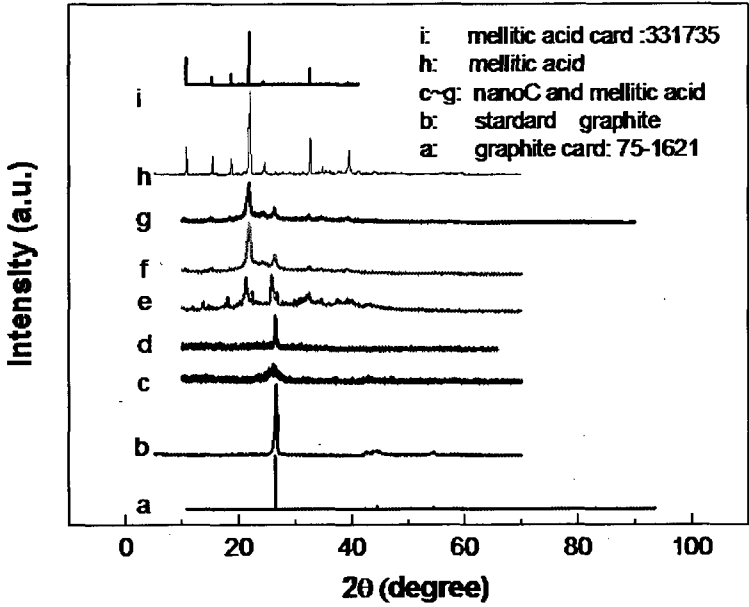


图 26

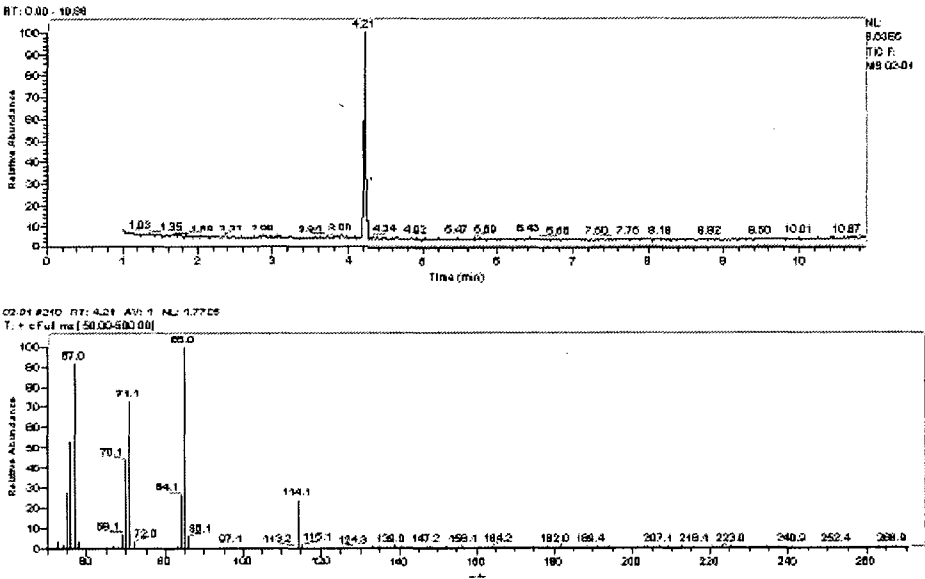


图 27

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/CN2016/096157

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C01B 32/192 (2017.01) i; C25B 1/00 (2006.01) i; C25B 9/12 (2006.01) i; C25B 11/12 (2006.01) i
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C01B 32/-; 31/-, C25B 1/-; 9/-; 11/-

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CNXTX, VEN, CNKI, WEB OF KNOWLEDGE: 量子, 碳, 碳素, 电化学, 氧化, 石墨烯; quantum, dot, carbon, electrochemical, oxidation, graphene

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	CN 104261383 A (ZHU, Guanghua et al.) 07 January 2015 (07.01.2015), claims 1-19, description, paragraphs [0133], [0134] and [0146]-[0166], embodiments 1-5, and figure 1	1-3
A	CN 104261383 A (ZHU, Guanghua et al.) 07 January 2015 (07.01.2015), entire document	4-10
A	CN 101468796 A (BEIJING SAMCHANG YUHENG TECHNOLOGY CO., LTD.) 01 July 2009 (01.07.2009), entire document	1-10
A	CN 105565297 A (XU, Haibo) 11 May 2016 (11.05.2016), entire document	1-10
A	US 2016017502 A1 (SANTHANAM KALATHUR S V et al.) 21 January 2016 (21.01.2016), entire document	1-10

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☒ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date	“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	“&” document member of the same patent family
“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search 20 April 2017	Date of mailing of the international search report 04 May 2017
Name and mailing address of the ISA State Intellectual Property Office of the P. R. China No. 6, Xitucheng Road, Jimenqiao Haidian District, Beijing 100088, China Facsimile No. (86-10) 62019451	Authorized officer ZHOU, Quan Telephone No. (86-10) 62084698

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/CN2016/096157

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
CN 104261383 A	07 January 2015	CN 104261383 B	17 August 2016
CN 101468796 A	01 July 2009	CN 101468796 B	13 April 2011
CN 105565297 A	11 May 2016	None	
US 2016017502 A1	21 January 2016	WO 2016011180 A1	21 January 2016

A. 主题的分类 C01B 32/192(2017.01)i; C25B 1/00(2006.01)i; C25B 9/12(2006.01)i; C25B 11/12(2006.01)i 按照国际专利分类(IPC)或者同时按照国家分类和IPC两种分类																				
B. 检索领域 检索的最低限度文献(标明分类系统和分类号) C01B 32/-; 31/-, C25B 1/-; 9/-; 11/- 包含在检索领域中的除最低限度文献以外的检索文献 在国际检索时查阅的电子数据库(数据库的名称, 和使用的检索词(如使用)) CNTXT, VEN, CNKI, WEB OF KNOWLEDGE:量子, 碳, 碳素, 电化学, 氧化, 石墨烯; quantum, dot, carbon, electrochemical, oxidation, graphene																				
C. 相关文件 <table border="1"> <thead> <tr> <th>类 型*</th> <th>引用文件, 必要时, 指明相关段落</th> <th>相关的权利要求</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>CN 104261383 A (朱光华 等) 2015年 1月 7日 (2015 - 01 - 07) 权利要求1-19, 说明书第[133]、[134]、[146]-[166]段, 实施例1-5, 图1</td> <td>1-3</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>CN 104261383 A (朱光华 等) 2015年 1月 7日 (2015 - 01 - 07) 全文</td> <td>4-10</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>CN 101468796 A (北京三昌宇恒科技发展有限公司) 2009年 7月 1日 (2009 - 07 - 01) 全文</td> <td>1-10</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>CN 105565297 A (徐海波) 2016年 5月 11日 (2016 - 05 - 11) 全文</td> <td>1-10</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>US 2016017502 A1 (SANTHANAM KALATHUR S V 等) 2016年 1月 21日 (2016 - 01 - 21) 全文</td> <td>1-10</td> </tr> </tbody> </table>			类 型*	引用文件, 必要时, 指明相关段落	相关的权利要求	X	CN 104261383 A (朱光华 等) 2015年 1月 7日 (2015 - 01 - 07) 权利要求1-19, 说明书第[133]、[134]、[146]-[166]段, 实施例1-5, 图1	1-3	A	CN 104261383 A (朱光华 等) 2015年 1月 7日 (2015 - 01 - 07) 全文	4-10	A	CN 101468796 A (北京三昌宇恒科技发展有限公司) 2009年 7月 1日 (2009 - 07 - 01) 全文	1-10	A	CN 105565297 A (徐海波) 2016年 5月 11日 (2016 - 05 - 11) 全文	1-10	A	US 2016017502 A1 (SANTHANAM KALATHUR S V 等) 2016年 1月 21日 (2016 - 01 - 21) 全文	1-10
类 型*	引用文件, 必要时, 指明相关段落	相关的权利要求																		
X	CN 104261383 A (朱光华 等) 2015年 1月 7日 (2015 - 01 - 07) 权利要求1-19, 说明书第[133]、[134]、[146]-[166]段, 实施例1-5, 图1	1-3																		
A	CN 104261383 A (朱光华 等) 2015年 1月 7日 (2015 - 01 - 07) 全文	4-10																		
A	CN 101468796 A (北京三昌宇恒科技发展有限公司) 2009年 7月 1日 (2009 - 07 - 01) 全文	1-10																		
A	CN 105565297 A (徐海波) 2016年 5月 11日 (2016 - 05 - 11) 全文	1-10																		
A	US 2016017502 A1 (SANTHANAM KALATHUR S V 等) 2016年 1月 21日 (2016 - 01 - 21) 全文	1-10																		
☐ 其余文件在C栏的续页中列出。 ☒ 见同族专利附件。																				
* 引用文件的具体类型: “A” 认为不特别相关的表示了现有技术一般状态的文件 “E” 在国际申请日的当天或之后公布的在先申请或专利 “L” 可能对优先权要求构成怀疑的文件, 或为确定另一篇引用文件的公布日而引用的或者因其他特殊理由而引用的文件(如具体说明的) “O” 涉及口头公开、使用、展览或其他方式公开的文件 “P” 公布日先于国际申请日但迟于所要求的优先权日的文件 “T” 在申请日或优先权日之后公布, 与申请不相抵触, 但为了理解发明之理论或原理的在后文件 “X” 特别相关的文件, 单独考虑该文件, 认定要求保护的发明不是新颖的或不具有创造性 “Y” 特别相关的文件, 当该文件与另一篇或者多篇该类文件结合并且这种结合对于本领域技术人员为显而易见时, 要求保护的发明不具有创造性 “&” 同族专利的文件																				
国际检索实际完成的日期 2017年 4月 20日		国际检索报告邮寄日期 2017年 5月 4日																		
ISA/CN的名称和邮寄地址 中华人民共和国国家知识产权局(ISA/CN) 中国北京市海淀区蓟门桥西土城路6号 100088 传真号 (86-10)62019451		受权官员 周荃 电话号码 (86-10)62084698																		

国际检索报告
关于同族专利的信息

国际申请号

PCT/CN2016/096157

检索报告引用的专利文件			公布日 (年/月/日)	同族专利	公布日 (年/月/日)
CN	104261383	A	2015年 1月 7日	CN 104261383 B	2016年 8月 17日
CN	101468796	A	2009年 7月 1日	CN 101468796 B	2011年 4月 13日
CN	105565297	A	2016年 5月 11日	无	
US	2016017502	A1	2016年 1月 21日	WO 2016011180 A1	2016年 1月 21日