



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 201508092 A

(43)公開日：中華民國 104 (2015) 年 03 月 01 日

(21)申請案號：102131304

(22)申請日：中華民國 102 (2013) 年 08 月 30 日

(51)Int. Cl.：

C25B1/00 (2006.01)

C01B31/00 (2006.01)

C01B31/04 (2006.01)

(71)申請人：國立交通大學(中華民國) NATIONAL CHIAO TUNG UNIVERSITY (TW)

新竹市大學路 1001 號

(72)發明人：韋光華 WEI, KUNG HWA (TW)；鄧文成 DANG, VAN-THANH (VN)

(74)代理人：蔡朝安

申請實體審查：有 申請專利範圍項數：12 項 圖式數：7 共 20 頁

(54)名稱

石墨氧化物及石墨烯製備方法

GRAPHITE OXIDE AND GRAPHENE PREPARATION METHOD

(57)摘要

一種石墨氧化物及/或石墨烯之製備方法，包含提供一電漿電解裝置，其中電漿電解裝置具有一電解液，以及電漿電解裝置之一陰極為一石墨電極；以及提供一陰極電流於石墨電極，使石墨電極進行一電漿電解反應以得到石墨氧化物及/或石墨烯。本發明藉由電漿電解程序，可在相對低溫、一般壓力及非常短的時間內，且不需濃縮酸及強氧化劑的條件下，即可製備石墨氧化物及/或石墨烯。本發明利用電漿電解程序將石墨直接製備為石墨氧化物及/或石墨烯，而不需任何事先純化。本發明之電漿電解程序相當具潛力，具有低成本、易製備、高效率及環保之優勢。

A graphite oxide and/or graphene preparation method includes providing a plasma electrolytic apparatus, where an electrolyte solution is provided and a graphite electrode is configured as a cathode of the plasma electrolytic apparatus; and providing a cathodic current so as to initiate a plasma electrolytic process at the graphite electrode to obtain graphite oxide and/or graphene. The graphite oxide and/or graphene can be synthesized through plasma electrolytic processing at relatively low temperature under atmospheric pressure within a very short period of time, without the need for concentrated acids or strong oxidizing agents. The present invention may prepare graphite oxide and/or graphene with plasma electrolytic process directly from graphite, without requiring any prior purification. This plasma electrolytic process of the present invention is quite promising and provided with advantages such as low cost, simple setup, high efficiency, and environmental friendliness.

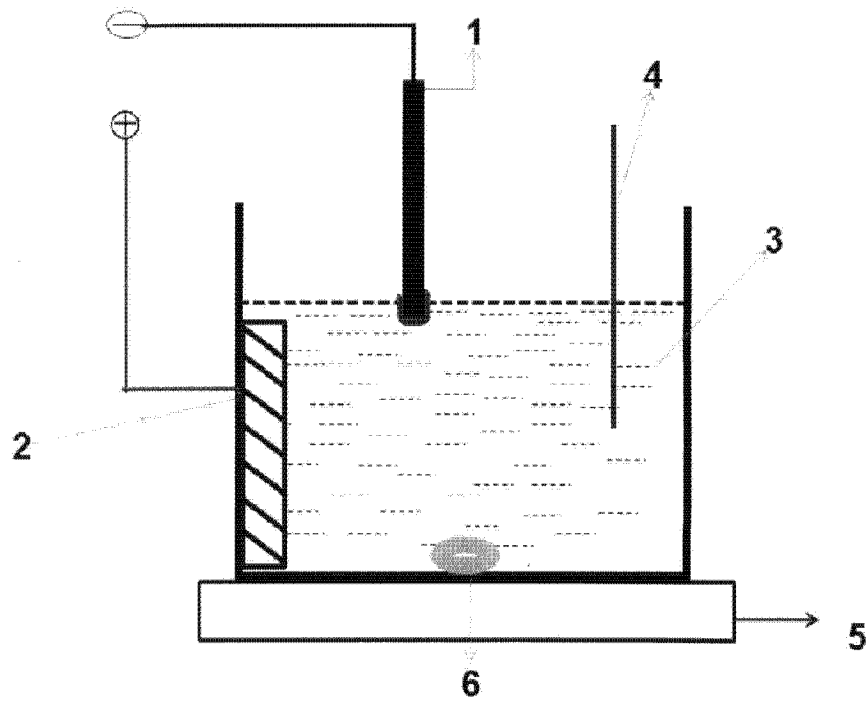


圖1

- 1 . . . 陰極
- 2 . . . 陽極
- 3 . . . 電解液
- 4 . . . 熱電偶溫度計
- 5 . . . 加熱板
- 6 . . . 攪拌器

201508092

發明摘要

※ 申請案號：

※ 申請日：

102171704

102. 8. 30

※IPC 分類：

C>5B^{1/00} 31/64
C01B^{3/00} 31/64

【發明名稱】(中文/英文)

石墨氧化物及石墨烯製備方法/GRAPHITE OXIDE AND GRAPHENE PREPARATION METHOD

【中文】

一種石墨氧化物及/或石墨烯之製備方法，包含提供一電漿電解裝置，其中電漿電解裝置具有一電解液，以及電漿電解裝置之一陰極為一石墨電極；以及提供一陰極電流於石墨電極，使石墨電極進行一電漿電解反應以得到石墨氧化物及/或石墨烯。本發明藉由電漿電解程序，可在相對低溫、一般壓力及非常短的時間內，且不需濃縮酸及強氧化劑的條件下，即可製備石墨氧化物及/或石墨烯。本發明利用電漿電解程序將石墨直接製備為石墨氧化物及/或石墨烯，而不需任何事先純化。本發明之電漿電解程序相當具潛力，具有低成本、易製備、高效率及環保之優勢。

【英文】

A graphite oxide and/or graphene preparation method includes providing a plasma electrolytic apparatus, where an electrolyte solution is provided and a graphite electrode is configured as a cathode of the plasma electrolytic apparatus; and providing a cathodic current so as to initiate a plasma electrolytic process at the graphite electrode to obtain graphite oxide and/or graphene. The graphite oxide and/or graphene can be synthesized through plasma electrolytic processing at relatively low temperature under atmospheric pressure within a very short period of time, without the need for concentrated acids or strong oxidizing agents. The present invention may prepare graphite oxide and/or

graphene with plasma electrolytic process directly from graphite, without requiring any prior purification. This plasma electrolytic process of the present invention is quite promising and provided with advantages such as low cost, simple setup, high efficiency, and environmental friendliness.

【代表圖】

【本案指定代表圖】：第（1）圖。

【本代表圖之符號簡單說明】：

1	陰極
2	陽極
3	電解液
4	熱電偶溫度計
5	加熱板
6	攪拌器

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：

無

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

【發明名稱】(中文/英文)

石墨氧化物及石墨烯製備方法/GRAPHITE OXIDE AND GRAPHENE PREPARATION METHOD

【技術領域】

【0001】 本發明係關於石墨氧化物/石墨烯製備方法，特別是關於利用電漿電解程序之石墨氧化物/石墨烯製備方法。

【先前技術】

【0002】 石墨烯是最新被發現的奈米碳材料，石墨烯具有許多優良特性，例如線性光譜、高電子遷移率、獨特光學性質、高延展性、堅韌，及只有單原子厚度，被視為能在光電、能源、化學材料等領域帶來突破性發展的奈米材料。

【0003】 由於石墨氧化物可被運用於製造石墨烯，因此亦相當受矚目。以石墨氧化物進行化學還原被廣泛認為是大規模生產石墨烯的最有潛力方法。此一製程包含(I)將石墨氧化為石墨氧化物(II)藉由超音波處理或熱處理剝離並得到石墨烯氧化物，以及(III)石墨氧化物化學還原為 sp^2 雜化碳原子的石墨網絡。

【0004】 然而，習知技術中製備石墨氧化物/石墨烯需要使用強氧化劑及濃酸混合物，而強酸性質為危險、不穩定，因此需要額外的安全預防措施。此外，大量排放酸性廢物會造成環境風險。因此石墨氧化物的製備方法仍具改善空間。

【0005】 Paulmier 等人(Thin Solid Films 515(5):pp. 2926-2934)揭示一種陰極電漿電解法以沈積奈米結晶石墨薄膜。Paulmier 雖然教示於陰極沈積碳薄膜，但其作法為將石墨置於陽極。Richenderfer 等人(http://www.phys.cwru.edu/undergrad/Senior%20Projects/papers/papers2012/Richenderfer_Gao.pdf)則教示了於陰極沈積碳薄膜，並利用電流通過電解液以

促進石墨剝落，但其作法為將石墨置於陽極，並利用微電漿做為電極以增強電場。並且 Richenderfer 所揭示的電解液為酸性(包含 HCl)，其使用的是一種電化學方法，因此需使用濃縮酸進行反應。由於 Richenderfer 的方法仍需處理酸性溶液問題，因此仍有改善空間。

【0006】 綜合上述，發展一種高效率及環境友善的石墨氧化物/石墨烯製備方法，是目前需要努力的目標。

【發明內容】

【0007】 本發明之目的之一是發展一種高效率及環境友善的石墨氧化物及/或石墨烯製備方法，其具有低成本、易製備、高效率及環境友善之優勢。

【0008】 依據本發明之一實施例，一種石墨氧化物及/或石墨烯之製備方法，包含下列步驟：提供一電漿電解裝置，其中電漿電解裝置具有一電解液，以及電漿電解裝置之一陰極為一石墨電極；以及提供一陰極電流於石墨電極，使與電解液接觸的石墨電極之表面進行一電漿電解反應以得到石墨氧化物及/或石墨烯，其中電漿電解裝置的輸出電壓為40 V 至80V，以及電漿電解裝置的輸出電流為0.5 A 至1.75A。

【0009】 在一實施例中，本發明之石墨氧化物及/或石墨烯具有低比例氧化物，其 C=C 以及 C-C 之總量大於 C-O 之量。

【0010】 以下藉由具體實施例配合所附的圖式詳加說明，當更容易瞭解本發明之目的、技術內容、特點及其所達成之功效。

【圖式簡單說明】

【0011】

圖 1 為一示意圖顯示本發明之電漿電解裝置。

圖 2 顯示在執行電漿輔助的電化學剝離程序前後的照片，圖 2a 顯示電漿輔助的電化學剝離程序前之電解液照片；圖 2b 顯示電漿輔助的電化學剝離程序後之電解液照片；圖 2c 顯示經由電漿輔助的電化學剝離程序及真空過濾電解液後所得的 PEEG 石墨烯；圖 2d 顯示 PEEG 散佈於 NMP 溶液。

圖 3 顯示本發明實施例 HG 及 PEEG 之 X 射線衍射(X-ray diffraction, XRD)圖形。

圖 4 顯示本發明實施例 HG 及 PEEG 之 Raman 光譜。

圖 5 顯示 HG(圖 5a)及 PEEG(圖 5b)的 C1 訊號的 X 光電子顯微影像。

圖 6 顯示 HG(圖 6a 及 6b)及 PEEG(圖 6c 及 6d)的 SEM 及 TEM 影像。

圖 7 顯示本發明實施例 PEEG 沈積於 Si/SiO₂ 基板的原子力顯微鏡影像及其高度分佈。

【實施方式】

【0012】 請參照圖 1，其為一示意圖顯示本發明之電漿電解裝置。本發明之一種石墨氧化物及/或石墨烯之製備方法，包含下列步驟：提供一電漿電解裝置，其中電漿電解裝置具有一電解液 3，電漿電解裝置之一陰極 1 為一石墨電極；以及提供一陰極電流於石墨電極，使石墨電極進行電漿電解反應而得到石墨氧化物及/或石墨烯。

【0013】 傳統的電漿電解氧化反應又稱微弧氧化（Micro-arc Oxidation； MAO）技術，又可稱為及陽極火花沉積（Anodic Spark Deposition），通常應用在鋁、鎂、鈦合金上。傳統的電漿電解氧化係以正極試片、負極電極的情況下，通電流以後在基材的表面會形成一層氧化膜絕緣層，有了這層氧化膜基層之後，再持續的通以電壓。當基材上的電壓值超過了臨界值以後，在絕緣膜上較脆弱的地方就會被擊穿，產生微弧放電現象，使氧化物的結構產生變化，進而金屬陽極處理。因此，電漿電解反應使用的電壓較一般電化學反應為高。

【0014】 本發明之電漿電解裝置之陽極 2 原則上並無限制，僅是導電材料即可，舉例但不限於石墨電極、不鏽鋼。然而，應注意的是本發明之電漿電解氧化方法與習知的陽極火花沉積反應不同，因此，在一實施例中本發明之電漿電解裝置之陽極 2 的材料為不含鋁、鎂或鈦的導電材料。

【0015】 在實施例中，電漿電解裝置的輸出電壓為 40 V 至 80V，輸出電流為 0.5 A 至 1.75A，此在一較佳實施例中，輸出電壓為 40 V 至 60V，輸出電流為 0.5 A 至 1.2A。本發明之電壓及電流之調整係用以使電漿電解

裝置產生電漿輔助電化學剝離程序(plasma-assisted electrochemical exfoliation process)，但避免過高的電流以使石墨氧化物過度產生。電流強度之調整方式包含但不限於輸出功率、電解質濃度、以及陰極與陽極的相對大小及位置等。

【0016】 其中本發明之電漿電解裝置之一陽極 2 之浸入電解液面積面積係大於陰極 1 之浸入電解液面積面積，較佳者為大於陰極 11 倍。

【0017】 如圖 1 所示，當進行製備石墨氧化物時，電漿電解裝置之一陽極 2 係完全沒入電解液 3。而陰極 1 之石墨電極之一頂端係高於電解液 3 之表面，而電漿電解反應係發生於石墨電極之表面或附近。

【0018】 本發明之石墨電極並不需事先純化，因此本發明之石墨電極之來源可包含但不限於天然石墨、壓縮石墨、部分氧化石墨、或回收石墨。其中回收的石墨電極例如為回收電池之石墨電池。其中在一實施例中，為得到較高比例的石墨烯，石墨電極較佳者為高純度石墨。

【0019】 本發明之電解液 3 之 pH 為界於 11 至 17。較佳者，電解液 3 之 pH 為界於 11 至 14。鹼性提供者包含但不限於氫氧化物、碳酸根等。

【0020】 本發明之電解液 3 可包含適當電解質以控制電解液 3 之導電值。其中在一較佳實施例中，本發明之電解液 3 可包含銨離子，藉以控制及維持電解液 3 之 pH 值。由於銨離子反應可產生並釋放 NH_3 ，藉以驅使並提供石墨膨脹。銨離子的提供者舉例但不限於 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 NH_4NO_3 或 NH_4Cl 。此外亦可於包含碳酸根及氨的電解液 3 反應以控制及維持電解液 3 之 pH 值，並促進石墨電極的反應。

【0021】 在一實施例中，以石墨電極進行電漿電解反應時，可以加熱板 5(如圖 1 所示)將電解液 3 加熱，並以熱電偶溫度計 4 測量溫度，其中較佳的起始溫度為 70°C ，但本發明之反應溫度並不以此為限。

【0022】 在一實施例中，為了提高剝離和反應的均勻性，在燒杯中使用磁攪拌器 6 攪拌，磁攪拌器 6 可由具磁性功能的加熱板 5 驅動。

【0023】 經由上述的電漿電解反應後，可得到石墨氧化物，並進行後續純化步驟。純化步驟包含但不限於過濾或離心等。

【0024】 應註明的是經由上述的電漿電解反應後，可得到為石墨氧化

物及石墨烯混合物。在一較佳實施例中，本發明之石墨氧化物及/或石墨烯具有低比例氧化物，其 C=C 以及 C-C 之總量大於 C-O 之量，其代表石墨烯高於石墨氧化物。其中在一較佳實施例中，C-O 之量小於 10%。

【0025】 以下通過具體實施例配合附圖詳加說明，可更容易瞭解本發明的目的、技術內容、特點及所達成的功效，並據以實施，但不能以此限定本發明的保護範圍。

PEEG 製備

【0026】 電解液包含氫氧化鉀(5%，200ml)和硫酸銨(2.5%，40mL)中，pH 值約為 12，預熱至初始溫度為 70°C，圓柱形的高純度石墨棒(high purity graphite, HG)，做為陰極並連接到一個電壓供應器(負電壓輸出)，陰極的直徑和長度分別為 6 和 100 毫米。另一個 HG 桿，其直徑和長度分別為 6 和 150 毫米，用作電漿輔助的電化學剝離程序(plasma-assisted electrochemical exfoliation, PAEEP)電化學系統的陽極。HG 的尖端表面的陰極被放置於電解液的表面約 1 毫米以上的，而陽極則浸沒在電解液中。兩個電極連接到一個直流電源及偏置電壓，並逐漸升高到 60 V，使得在接近 HG 尖端表面的陰極及電解液的區域產生放電電漿。在此程序之中，使用傳統的水銀溫度計測量燒杯內的溶液溫度保持在約 70-80°C。為了提高剝離和反應的均勻性，在燒杯中使用磁攪拌器攪拌，並保持在每分鐘 200 轉的速度。當在兩個電極之間施加足夠高的電壓 60V 的時候，啟動電化學氧化反應，並同時在陽極表面產生氣體以及在 HG 尖端表面的陰極產生電漿，結果使得石墨電極的表面慢慢分解成微米尺寸的片狀物，並分散於電解質中。需要注意的是，在陰極的尖端位置可被降低，以維持電流範圍為約 0.65 至 1.25A。樣本所經歷的同時處理時間長度為 5 分鐘。圖 1 提供設備設置的示意圖。冷卻至室溫後，通過真空過濾，使溶液通過多孔玻璃架所支撐的 PVDF 薄膜(平均孔徑：0.2 微米)，收集得到膨脹石墨薄片。所製備的產品以 DI 水洗滌，並在 50°C 下真空中乾燥 24 小時。在從 PVDF 膜剝離之後，由上述 PAEEP 所製備的粉末以下稱為 PEEG，並儲存在 50°C 乾燥箱等待備用。

製備 PEEG 分散液

【0027】 將所得的 PEEG(15 毫克)加入到 N-甲基-2-吡咯烷酮(N-methyl-2-pyrrolidone, NMP, 15mL)之中，以得到 PEEG 分散液(1 毫克/毫升)，並使用超音波清洗槽，工作條件為 20 千赫，功率 130W，10 分鐘。

定性實驗

【0028】 使由設置有 Cu-K α 管及鎳過濾器($\lambda = 0.1542$ nm)的 D2 X 射線衍射儀檢查 HG 及 PEEG 粉末的結構。使用 XPS(Phi V6000)測定 HG 和 PEEG 的表面化學成分。使用高解度的共焦拉曼顯微鏡(HORIBA JOBIN YVON Laboratory RAM HR 800)和 514.5nm 的氬雷射光源對這些樣本進行記錄拉曼光譜。利用 JEOL 2100F 裝置以在 200 千伏的操作條件進行高解析度透射電子顯微鏡(High resolution transmission electron microscopy, HRTEM)的圖像記錄。幾滴 HG，PEEG 分散液被放置於銅網格呈現超薄多孔薄膜。利用 JEOL JSM-6500F 掃描電子顯微鏡，操作條件為 15 千伏進行掃描電子顯微鏡(SEM)。為定性 SEM 樣本，PEEG 以陽極氧化鋁膜(Anodisc，直徑：47 毫米，標稱孔徑：0.02 微米)過濾，然後將固體滴入到無水乙醇中，除去殘餘的 NMP，將漂浮於 EtOH 表面的薄片收集置於 Si 基板上，以進行 SEM 測量。

【0029】 圖 2 顯示電漿輔助的電化學剝離程序(PAEEP)中在不同的時間的電解液照片，在僅僅 5 分鐘內顯示明顯的顏色變化，從透明到深色，這表示本發明具有高剝離速率。藉由透過由多孔玻璃架所支撐的 PVDF 薄膜(平均孔徑：0.2 μm)以對電解液真空過濾，而收集所產生的膨脹石墨薄片。製備的產品以去離子水(DI water)洗滌，並在 50°C 真空下乾燥 24 小時。在從聚偏二氟乙烯(PVDF)膜剝離之後，由上述 PAEEP 所製備的粉末以下稱為 PEEG，並儲存在 50°C 乾燥箱等待備用。圖 2d 顯示 PEEG 靜置於 NMP 溶液內 6 小時後之圖片，其表現出良好的分散性和均一性，並可維持至少 72 小時穩定，這正是處理程序所希望得到的。需要注意的是，以 PAEEP 製備經由真空過濾電解質所產生的 PEEG 石墨烯薄膜經由使用手持萬用表測量可以顯示良好的導電性能($130\Omega\cdot\text{SQ}^{-1}$)(圖 2c)，這表示在各個領域都具有潛在

應用。

【0030】 圖 3 顯示 HG，PEEG 的 X-射線衍射圖譜(XRD)。其中 HG 的衍射曲線顯示 2θ 值為 26.6° 具有尖銳而高強度的特徵峰(002)，並且在 2θ 為 42.8° ， 44.6° ， 54.6° 具有三個小峰，分別對應為 100，101，和 004 反射(ICDD PDF # 411487)。在 HG 經歷 PAEEP 之後，HG 之 2θ 值在 26.6° 的特徵峰(002)顯著減少，這表示在剝離成片狀的石墨片之後，HG 的石墨晶格改變了他們在 z 方向上的週期性排列。

【0031】 圖 4 顯示 HG 和 PEEG 的拉曼光譜。比較兩個光譜可以顯示在 PAEEP 程序之後，由 HG 轉為 PEEG 的結構變化。HG 的拉曼光譜的顯示弱 D(缺陷)，一個突出的 G(石墨)和廣闊的 2D(雙重產生的 G)帶，分別在 1353 ， 1579 ， 2706 cm^{-1} 處，分別被分配到石墨的特徵帶。然而，在 PEEG 的 Raman 光譜中，G 譜帶為更寬廣並轉移到較低的頻率，而 PEEG 的 D 譜帶相較於 HG 是更加明顯，這意味著在經過 PAEEP 之後 PEEG 的石墨晶格的缺陷/結構較為紊亂。值得注意的是，相較於 HG，PEEG 的 2D 譜帶位移到較低的頻率，並產生明顯的強度變化，這代表 PEEG 在 PAEEP 程序後形成石墨烯結構。

【0032】 圖 5 顯示 HG 的 C 1s XPS 光譜。HG 樣本的 C 1s XPS 可以拆解成(deconvoluted)一個由 $\text{C}=\text{C}(\text{sp}^2)$ 混成的碳原子數所造成的在 284.4 eV 主要峰值)以及由 $\text{C}-\text{C}(\text{sp}^3)$ 混成碳原子所造成的 285.5 eV 的次要峰值。圖 2D 顯示 PEEG 的 C 1s XPS 光譜。PEEG 樣本的 C 1s XPS 可以拆解成三個峰值。PEEG 在 284.4 和 285.5 eV 的結合能量峰值分別歸因於 $\text{C}=\text{C}(\text{sp}^2)$ 混成的碳原子)和 $\text{C}-\text{C}(\text{sp}^3)$ 混成的碳原子)，而其他的峰值被分配到含氧成份： $\text{C}-\text{O}(\sim 286.4\text{ eV}$ ，羥基和環氧基)。顯然地，相較於 HG 樣本，石墨的 $\text{C}=\text{C}/\text{C}-\text{C}$ 訊號的強度和銳利度顯著降低並加寬，這意味著含氧官能團的攻擊 $\text{C}=\text{C}$ 雙鍵，導致石墨生成 $\text{C}-\text{O}$ 鍵，並造成它們的部分氧化，進而促進 PEEG 和 NMP 溶液之間的相互作用，而導致 PEEG 的良好分散性(如圖 2d)。另外，應用於剝離程序的 $+60\text{ V}$ 電壓可以將石墨氧化，而將含氧基團引入石墨晶格的石墨烯層。表 1 列出 HG 和 PEEG 中的各種含氧基團的總量，其係基於這些 XPS 峰下的面積。由此可以看出，PEEG 的氧與碳原子的原子百分比率大約

是 1:22.8，這是顯著低於化學還原的石墨烯氧化物(graphene oxide)，這表示在我們的程序中產生很輕微的氧化，這可由少量的 C-O 鍵(~4.2%)作為證據。

表 1、基於 C 1s 峰下的面積估計 HG 和 PEEG 的各種官能團的相對原子百分比。

C=C (%)		C-C (%)	C-O (%)
HG	84	16	
PEEG	68	27.8	4.2

【0033】 圖 6 顯示 HG 和 PEEG 樣本的 SEM 和 TEM 照片，代表製備樣本產生顯著的形態變化。顯然地，HG 是由厚散片狀石墨所組成的，並且在 PAEEP 程序後轉化成較薄的奈米平板。基於 20-50 個膨脹石墨片的圖像分析計算結果顯示平均片直徑為約 2.5 微米，約 10~30 nm 的厚度，於一般的奈米平板的大小相當。圖 7 顯示進一步研究的 AFM 圖像，其顯示橫向尺寸約 0.5 到 2.5 微米，而厚度為約 2.5 nm，基於層間距為 0.34 nm 的基礎上，相對應於約 7 層石墨烯，因此確認形成石墨烯片。考慮到使用者友好性、對環境無害、省時省力，簡單的設置，成本低(石墨烯片可來自於低成本的市售石墨來源)，本發明之方法顯然是一種非常有效的生產石墨烯片方法。

【0034】 綜合上述，本發明藉由電漿電解程序，可在相對低溫、一般壓力及非常短的時間內，且不需濃縮酸及強氧化劑，即可產生石墨氧化物及/或石墨烯，因此具有低成本、易製備、高效率及環境友善等優勢。此外，本發明可藉由控制電流及電壓，使電漿電解程序中產生很輕微的氧化，因此可得到低比例氧化物的石墨烯。

【0035】 以上所述之實施例僅係為說明本發明之技術思想及特點，其目的在使熟習此項技藝之人士能夠瞭解本發明之內容並據以實施，當不能

以之限定本發明之專利範圍，即大凡依本發明所揭示之精神所作之均等變化或修飾，仍應涵蓋在本發明之專利範圍內。

【符號說明】

1	陰極
2	陽極
3	電解液
4	熱電偶溫度計
5	加熱板
6	攪拌器

【生物材料寄存】

國內寄存資訊【請依寄存機構、日期、號碼順序註記】

無

國外寄存資訊【請依寄存國家、機構、日期、號碼順序註記】

無

【序列表】(請換頁單獨記載)

無

申請專利範圍

1. 一種石墨氧化物及石墨烯之製備方法，包含下列步驟：

提供一電漿電解裝置，其中該電漿電解裝置具有一電解液，以及該電漿電解裝置之一陰極為一石墨電極；以及

提供一陰極電流於該石墨電極，使與該電解液接觸的該石墨電極之表面進行一電漿電解反應以得到該石墨氧化物及該石墨烯，其中該電漿電解裝置的輸出電壓為40 V 至80V，以及該電漿電解裝置的輸出電流為0.5 A 至1.75A。

2. 如請求項1所述之石墨氧化物及石墨烯之製備方法，其中該石墨氧化物或該石墨烯之C=C以及C-C之總量大於C-O之量。

3. 如請求項1所述之石墨氧化物及石墨烯之製備方法，其中該電漿電解裝置的輸出電流為0.5 A 至1.2A。

4. 如請求項1所述之石墨氧化物及石墨烯之製備方法，其中該電漿電解裝置的輸出電壓為40 V 至60V。

5. 如請求項1所述之石墨氧化物及石墨烯之製備方法，其中該石墨電極之一端幾乎高於該電解液。

6. 如請求項1所述之石墨氧化物及石墨烯之製備方法，其中該電漿電解反應發生於該石墨電極之表面或是附近。

7. 如請求項1所述之石墨氧化物及石墨烯之製備方法，其中該電漿電解裝置之一陽極之浸入電解液面積係大於該陰極11倍。

8. 如請求項1所述之石墨氧化物及石墨烯之製備方法，其中該電漿電解裝置之一陽極之材料為不含鋁、鎂或鈦的導電材料。
9. 如請求項1所述之石墨氧化物及石墨烯之製備方法，其中該電漿電解裝置之一陽極係完全沉浸於該電解液。
10. 如請求項1所述之石墨氧化物及石墨烯之製備方法，其中該電解液包含銨離子及氫氧根。
11. 如請求項1所述之石墨氧化物及石墨烯之製備方法，其中該電解液之pH為介於11與14之間。
12. 如請求項1所述之石墨氧化物及石墨烯之製備方法，其中該石墨電極為一高純度石墨電極。

圖式

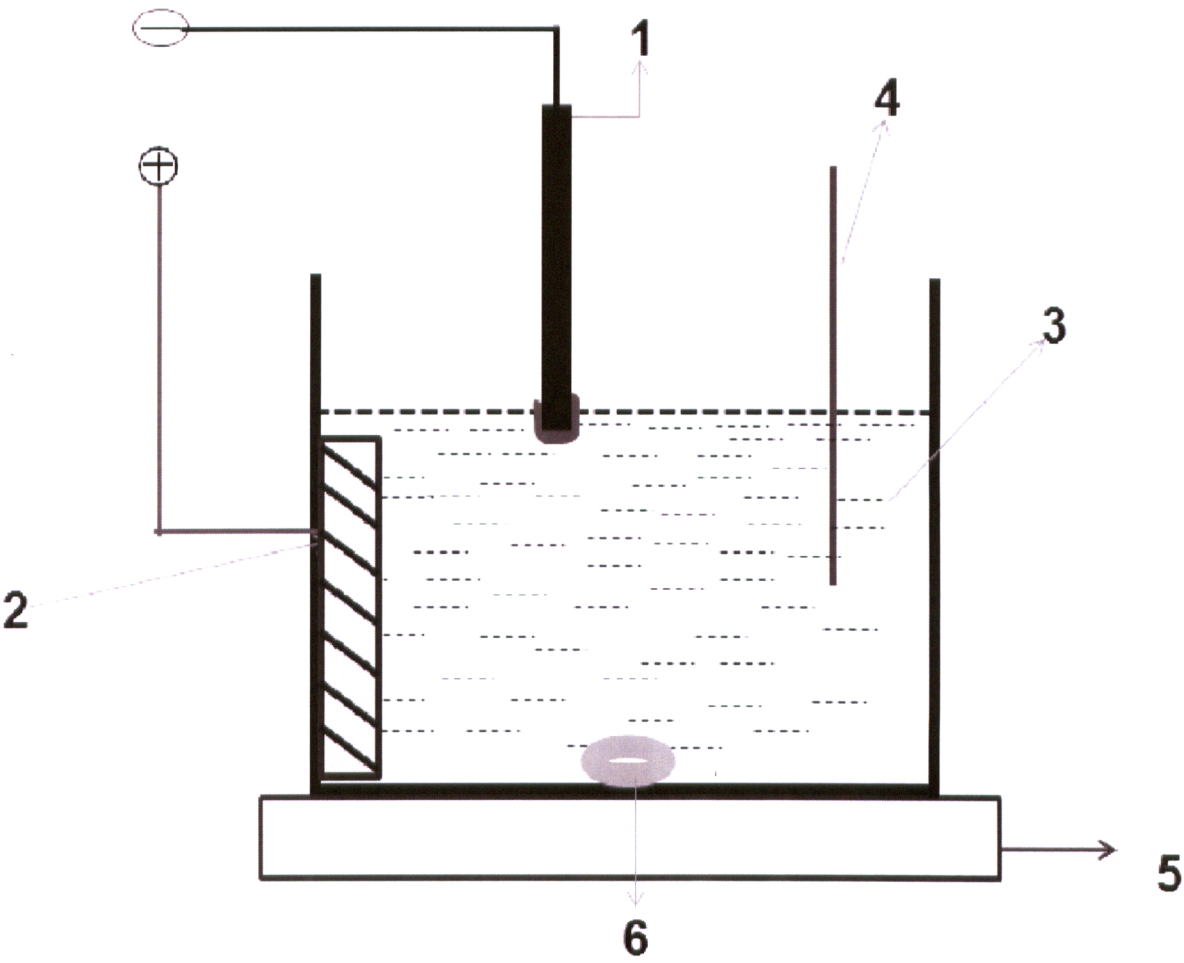


圖1

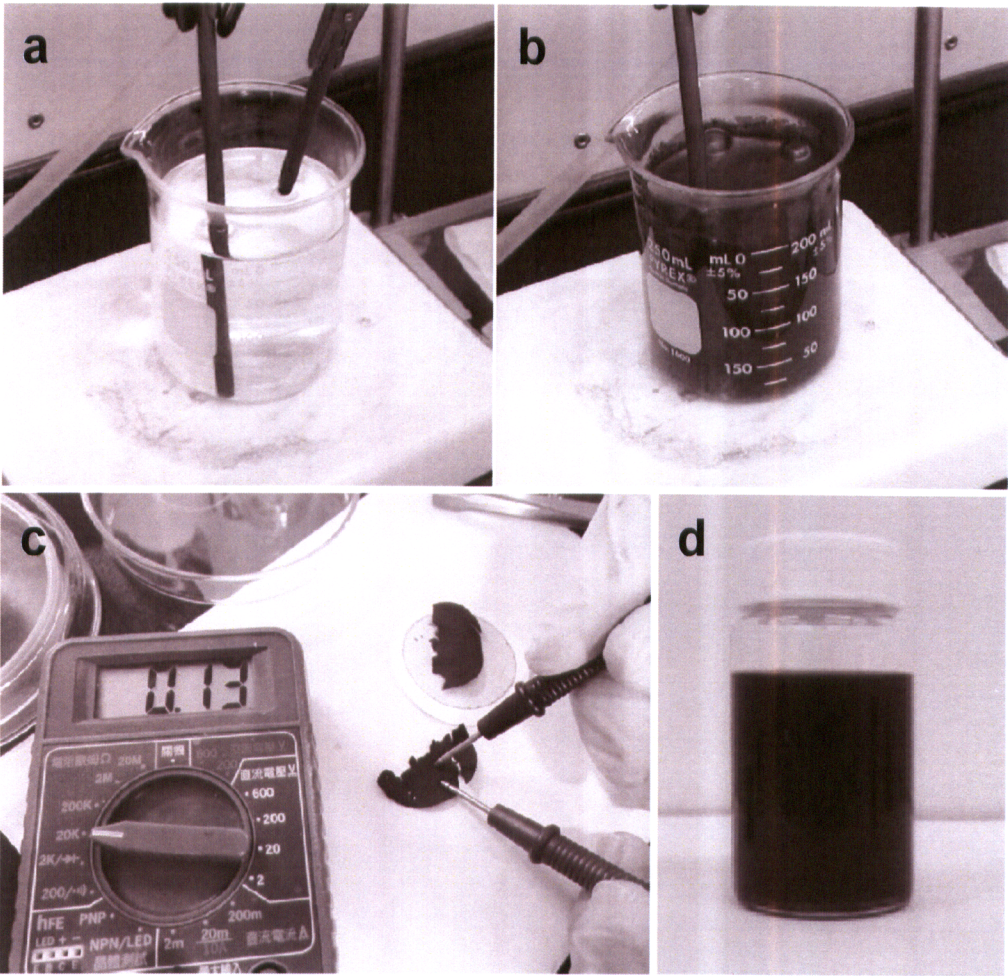


圖2

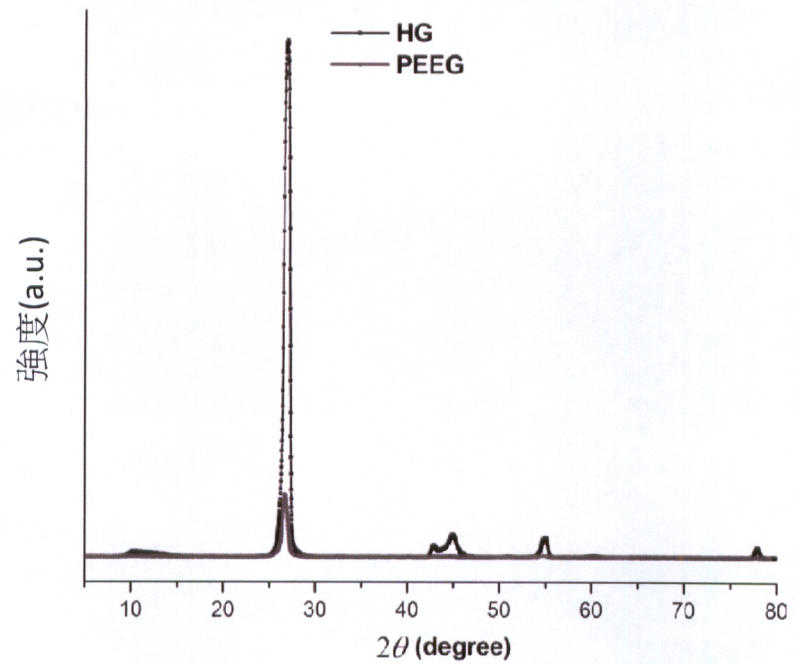


圖3

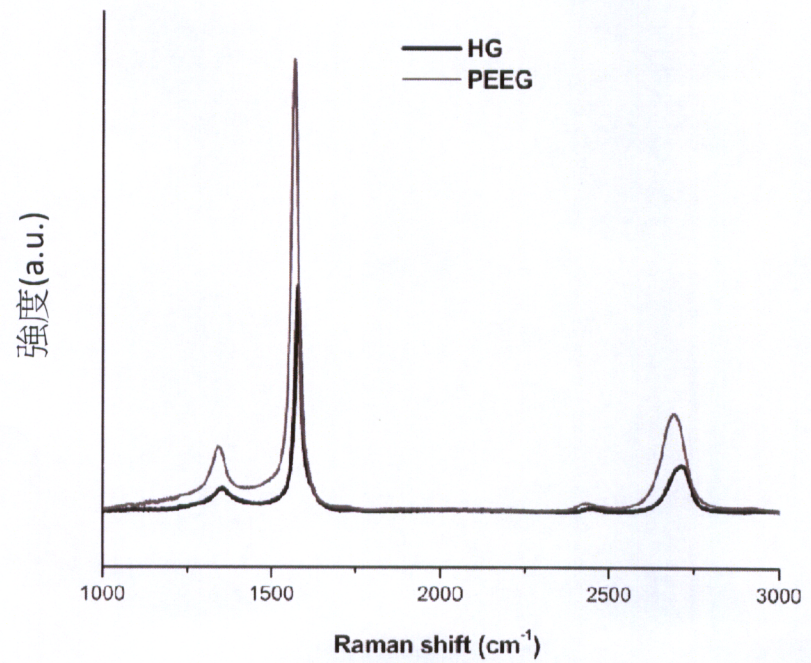


圖4

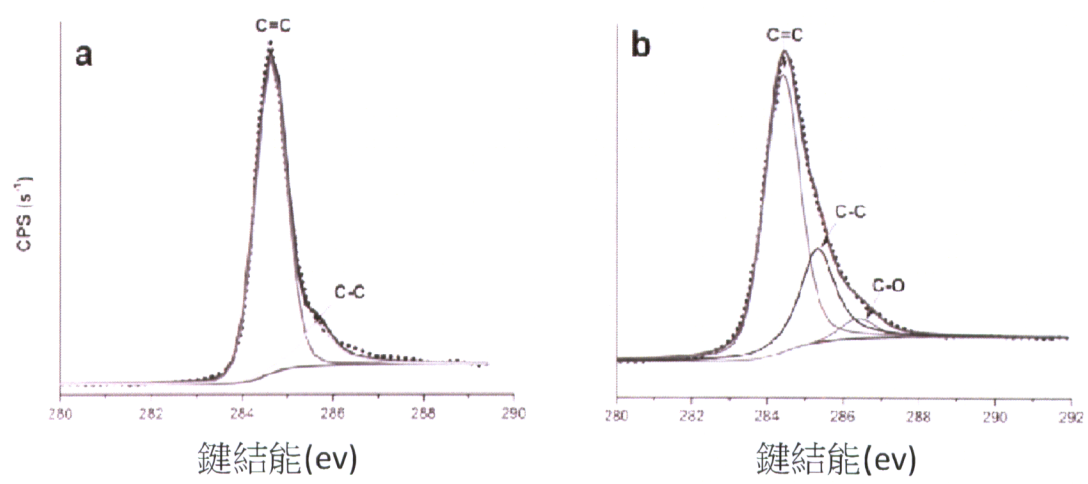


圖5

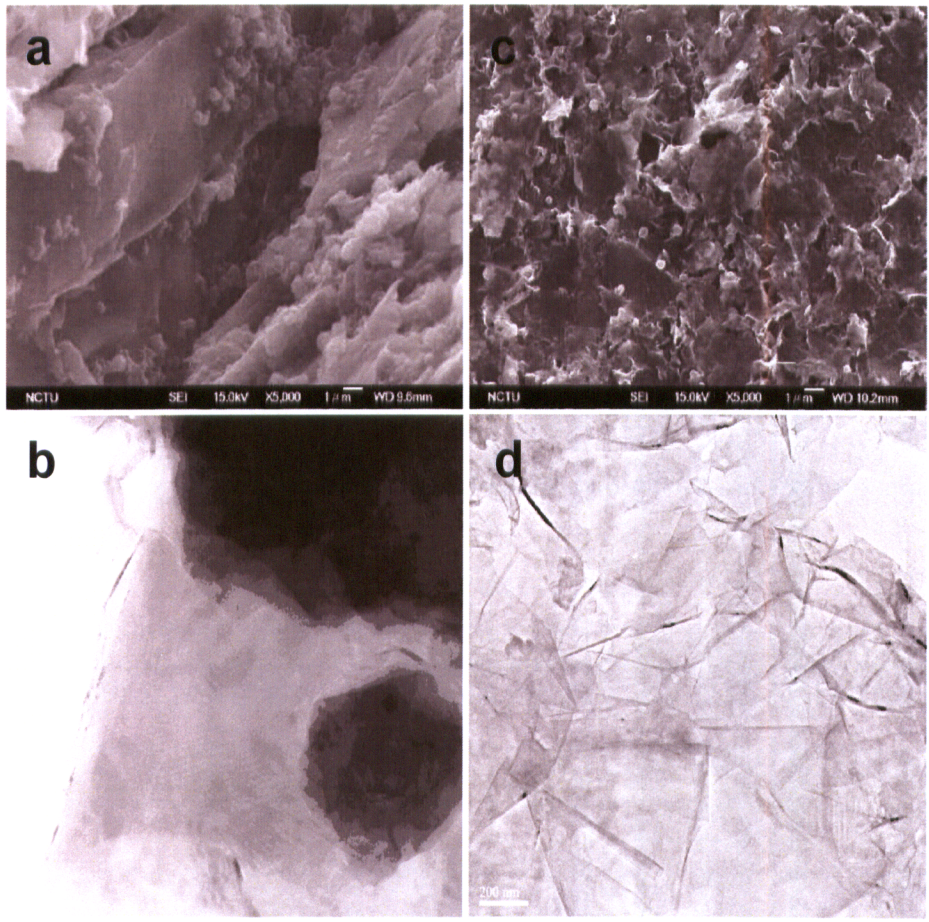


圖6

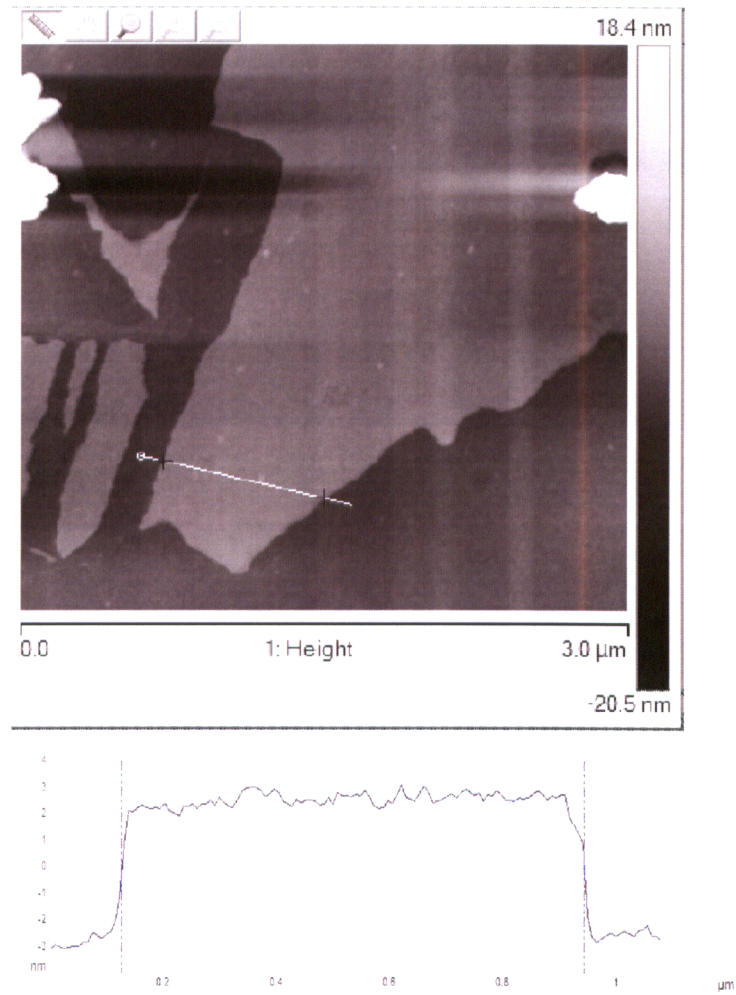


圖7