



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 103213972 A

(43) 申请公布日 2013. 07. 24

(21) 申请号 201310093787. 6

(22) 申请日 2013. 03. 22

(71) 申请人 中国科学院山西煤炭化学研究所
地址 030001 山西省太原市桃园南路 27 号

(72) 发明人 陈成猛 孔庆强 张兴华 王茂章
蔡榕

(74) 专利代理机构 太原市科瑞达专利代理有限公司 14101

代理人 刘宝贤

(51) Int. Cl.

C01B 31/04 (2006. 01)

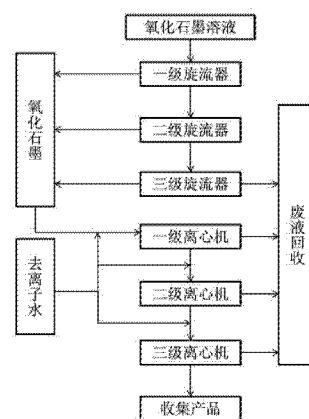
权利要求书1页 说明书3页 附图1页

(54) 发明名称

一种快速连续分离纯化氧化石墨的方法

(57) 摘要

一种快速连续分离纯化氧化石墨的方法是将氧化石墨溶液依次以 1-1.5MPa、2-3MPa、3.5-4.5MPa 的压力分别切向进入一级、二级、三级旋流器。按去离子水与氧化石墨的质量比为 $X = M_{\text{水}} / M_{\text{氧化石墨}}$, $5 \leq X \leq 10$, 向从所有旋流器底端排出的氧化石墨中加入去离子水, 然后进入一级离心机中, 以 3000-5000rpm 的转速离心分离。去离子水与氧化石墨的质量比同上, 向一级离心机底部排出的氧化石墨中加入去离子水, 进入二级离心机, 以 6000-9000rpm 的转速离心分离。去离子水与氧化石墨的质量比同上, 向二级离心机底部排出的氧化石墨中加入去离子水, 进入三级离心机, 以 10000-15000rpm 的转速离心分离, 氧化石墨从底端排出, 然后经过干燥处理。本发明具有简单易行, 能耗低, 生产效率高, 适于大规模生产制备的优点。



1. 一种快速连续分离纯化氧化石墨的方法，其特征在于包括如下步骤：

(1)、将氧化石墨溶液以 1-1.5 MPa 的压力切向进入一级旋流器，进行初步分离富集；较重的氧化石墨由一级旋流器底端排出，较轻的水由溢流口排出；

(2)、将一级旋流器溢流口排出的液体以 2-3 MPa 的压力进入二级旋流器，较重的氧化石墨由二级旋流器底端排出，较轻的水由溢流口排出；

(3)将二级旋流器溢流口排出的液体以 3.5-4.5 MPa 的压力进入三级旋流器，较重的氧化石墨由三级旋流器底端排出，较轻的水由溢流口排出；

(4)、按去离子水与氧化石墨的质量比为 $X=M_{\text{水}}/M_{\text{氧化石墨}}$ ， $5 \leq X \leq 10$ ，向从所有旋流器底端排出的氧化石墨中加入去离子水，然后进入一级离心机中，以 3000-5000 rpm 的转速离心分离，液体从一级离心机溢流口排出，氧化石墨从底端排出；

(5)、按去离子水与氧化石墨的质量比为 $X=M_{\text{水}}/M_{\text{氧化石墨}}$ ， $5 \leq X \leq 10$ ，向一级离心机底部排出的氧化石墨中加入去离子水，进入二级离心机，以 6000-9000 rpm 的转速离心分离；液体从二级离心机溢流口排出，氧化石墨从底端排出；

(6)、按去离子水与氧化石墨的质量比为 $X=M_{\text{水}}/M_{\text{氧化石墨}}$ ， $5 \leq X \leq 10$ ，向二级离心机底部排出的氧化石墨中加入去离子水，进入三级离心机，以 10000-15000 rpm 的转速离心分离，液体从三级离心机溢流口排出，氧化石墨从底端排出，然后经过干燥处理。

一种快速连续分离纯化氧化石墨的方法

技术领域

[0001] 本发明属于一种快速连续分离纯化氧化石墨的方法,具体涉及一种通过旋流器和离心机的组合快速连续分离氧化石墨的方法。

背景技术

[0002] 作为单原子厚度二维 sp^2 键合的碳原子晶体,石墨烯具有优异的力、热、光、电性能,在科研与产业界均已成为热点。石墨烯规模化可控制备是其商业化应用的前提与基础。目前,自由态石墨烯制备方法分物理路径和化学路径,其中,石墨烯的化学制备主要分两类,即“自上而下”对石墨炭进行解离和“自下而上”的气相合成或化学合成。胶带粘贴法和气相沉积法通常可获高品质大面积石墨烯样本,主要满足微电子等物理研究用途,但其缺点在于成本高、可控性差且产率低,难以实现规模化生产。石墨作为一种经严苛地质成矿作用形成的天然矿物,本质是由无数层石墨烯片堆叠而成,被认为是石墨烯规模化生产的可靠前驱材料。化学剥离法通过超声处理或热膨胀剥离层状氧化石墨,制得氧化石墨烯水溶液或功能化石墨烯单片,再经进一步化学还原或热处理,实现其向石墨烯的转化。该方法具有原料易得、成本低廉、工艺成熟等优点,已发展成石墨烯批量化生产与应用的战略起点。

[0003] 目前,在化学剥离法制备石墨烯工艺路线中,其前驱体氧化石墨的快速合成及有效分离纯化是其中的关键环节,将直接影响最终石墨烯产品的纯度和性能。现在所采用的氧化石墨分离纯化的方法主要有:过滤、透析和沉降三种。由于氧化石墨粒径较小,约在 100nm – $100\mu\text{m}$ 之间,普通的滤纸孔径太大,氧化石墨可直接穿过滤纸,收集率极低;透析可将氧化石墨溶液中的各种离子去除,但效率极低,成本高,无法满足大批量样品制备的需求;沉降法可大批量制备氧化石墨,随着氧化石墨溶液中残留的 H^+ 被不断洗掉,氧化石墨的沉降速度会大大降低,导致整体沉降效率降低,而且随着沉降过程的进行,许多粒径较小的氧化石墨随上清液被洗掉,使氧化石墨收率降低。

发明内容

[0004] 本发明的目的在于克服上述方法的不足之处,提供一种快速连续分离出纯化氧化石墨的方法。该方法简单易行,能耗低,生产效率高,适于大规模生产制备。

[0005] 本发明实现上述目的所采用的技术方案包括如下步骤:

(1)、将氧化石墨溶液以 $1\text{--}1.5\text{ MPa}$ 的压力切向进入一级旋流器,进行初步分离富集。较重的氧化石墨由一级旋流器底端排出,较轻的水由溢流口排出;

(2)、将一级旋流器溢流口排出的液体以 $2\text{--}3\text{ MPa}$ 的压力进入二级旋流器,较重的氧化石墨由二级旋流器底端排出,较轻的水由溢流口排出;

(3)将二级旋流器溢流口排出的液体以 $3.5\text{--}4.5\text{ MPa}$ 的压力进入三级旋流器,较重的氧化石墨由三级旋流器底端排出,较轻的水由溢流口排出;

(4)、按去离子水与氧化石墨的质量比为 $X=M_{\text{水}}/M_{\text{氧化石墨}}$, $5 \leq X \leq 10$,向从所有旋流器底端排出的氧化石墨中加入去离子水,然后进入一级离心机中,以 $3000\text{--}5000\text{ rpm}$ 的转速离心

分离,液体从一级离心机溢流口排出,氧化石墨从底端排出;

(5)、按去离子水与氧化石墨的质量比为 $X=M_{\text{水}}/M_{\text{氧化石墨}}$, $5 \leq X \leq 10$,向一级离心机底部排出的氧化石墨中加入去离子水,进入二级离心机,以 6000-9000 rpm 的转速离心分离。液体从二级离心机溢流口排出,氧化石墨从底端排出;

(6)、按去离子水与氧化石墨的质量比为 $X=M_{\text{水}}/M_{\text{氧化石墨}}$, $5 \leq X \leq 10$,向二级离心机底部排出的氧化石墨中加入去离子水,进入三级离心机,以 10000-15000 rpm 的转速离心分离,液体从三级离心机溢流口排出,氧化石墨从底端排出,然后经过干燥处理。

[0006] 与现有技术相比,本发明通过将旋流器与离心机结合,并分级串联布置,可实现氧化石墨的快速连续分离纯化,所得氧化石墨纯度高于 99%。另外,该方法简单易行,能耗低,生产效率高,适于大规模生产,具有广泛的应用前景,

附图说明

[0007] 图 1:本发明的工艺流程图。

具体实施方式

[0008] 实施例 1

(1)、将氧化石墨溶液以 1.5 MPa 压力切向进入一级旋流器,进行初步分离富集。较重的氧化石墨由一级旋流器底端排出,较轻的水由溢流口排出。

[0009] (2)、将一级旋流器溢流口排出的液体以 2.5 MPa 压力进入二级旋流器,较重的氧化石墨由二级旋流器底端排出,较轻的水由溢流口排出。

[0010] (3)将二级旋流器溢流口排出的液体以 3.5 MPa 压力进入三级旋流器,较重的氧化石墨由三级旋流器底端排出,较轻的水由溢流口排出。

[0011] (4)、按去离子水与氧化石墨的质量比为 $X=M_{\text{水}}/M_{\text{氧化石墨}}$, $X=5$,向从所有旋流器底端排出的氧化石墨中加入去离子水,然后进入一级离心机中,以 3000 rpm 转速离心分离。液体从一级离心机溢流口排出,氧化石墨从底端排出。

[0012] (5)、按去离子水与氧化石墨的质量比为 $X=M_{\text{水}}/M_{\text{氧化石墨}}$, $X=7$,向一级离心机底部排出的氧化石墨中加入去离子水,进入二级离心机,以 6000 rpm 转速离心分离。液体从二级离心机溢流口排出,氧化石墨从底端排出。

[0013] (6)、按去离子水与氧化石墨的质量比为 $X=M_{\text{水}}/M_{\text{氧化石墨}}$, $X=10$ 向二级离心机底部排出的氧化石墨中加入去离子水,进入三级离心机,以 15000 rpm 转速离心分离。液体从三级离心机溢流口排出,氧化石墨从底端排出,然后经过干燥处理。所得氧化石墨纯度为 99%。

[0014] 实施例 2

(1)、将氧化石墨溶液以 1 MPa 压力切向进入一级旋流器,进行初步分离富集。较重的氧化石墨由一级旋流器底端排出,较轻的水由溢流口排出。

[0015] (2)、将一级旋流器溢流口排出的液体以 3 MPa 压力进入二级旋流器,较重的氧化石墨由二级旋流器底端排出,较轻的水由溢流口排出。

[0016] (3)将二级旋流器溢流口排出的液体以 4 MPa 压力进入三级旋流器,较重的氧化石墨由三级旋流器底端排出,较轻的水由溢流口排出。

[0017] (4)、向从所有旋流器底端排出的氧化石墨中加入一定量去离子水($X=7$),然后进

入一级离心机中,以 4000 rpm 转速离心分离。液体从一级离心机溢流口排出,氧化石墨从底端排出。

[0018] (5)、向一级离心机底部排出的氧化石墨中加入一定量去离子水($X=10$),进入二级离心机,以 9000 rpm 转速离心分离。液体从二级离心机溢流口排出,氧化石墨从底端排出。

[0019] (6)、向二级离心机底部排出的氧化石墨中加入一定量去离子水($X=5$),进入三级离心机,以 12000 rpm 转速离心分离。液体从三级离心机溢流口排出,氧化石墨从底端排出,然后经过干燥处理。所得氧化石墨纯度为 99.9%。

[0020] 实施例 3

(1)、将氧化石墨溶液以 1.2 MPa 压力切向进入一级旋流器,进行初步分离富集。较重的氧化石墨由一级旋流器底端排出,较轻的水由溢流口排出。

[0021] (2)、将一级旋流器溢流口排出的液体以 2 MPa 压力进入二级旋流器,较重的氧化石墨由二级旋流器底端排出,较轻的水由溢流口排出。

[0022] (3)将二级旋流器溢流口排出的液体以 4.5 MPa 压力进入三级旋流器,较重的氧化石墨由三级旋流器底端排出,较轻的水由溢流口排出。

[0023] (4)、向从所有旋流器底端排出的氧化石墨中加入一定量去离子水($X=10$),然后进入一级离心机中,以 5000 rpm 转速离心分离。液体从一级离心机溢流口排出,氧化石墨从底端排出。

[0024] (5)、向一级离心机底部排出的氧化石墨中加入一定量去离子水($X=5$),进入二级离心机,以 7000 rpm 转速离心分离。以一定转速离心分离。液体从二级离心机溢流口排出,氧化石墨从底端排出。

[0025] (6)、向二级离心机底部排出的氧化石墨中加入一定量去离子水($X=7$),进入三级离心机,以 10000 rpm 转速离心分离。液体从三级离心机溢流口排出,氧化石墨从底端排出,然后经过干燥处理。所得氧化石墨纯度为 99.99%。

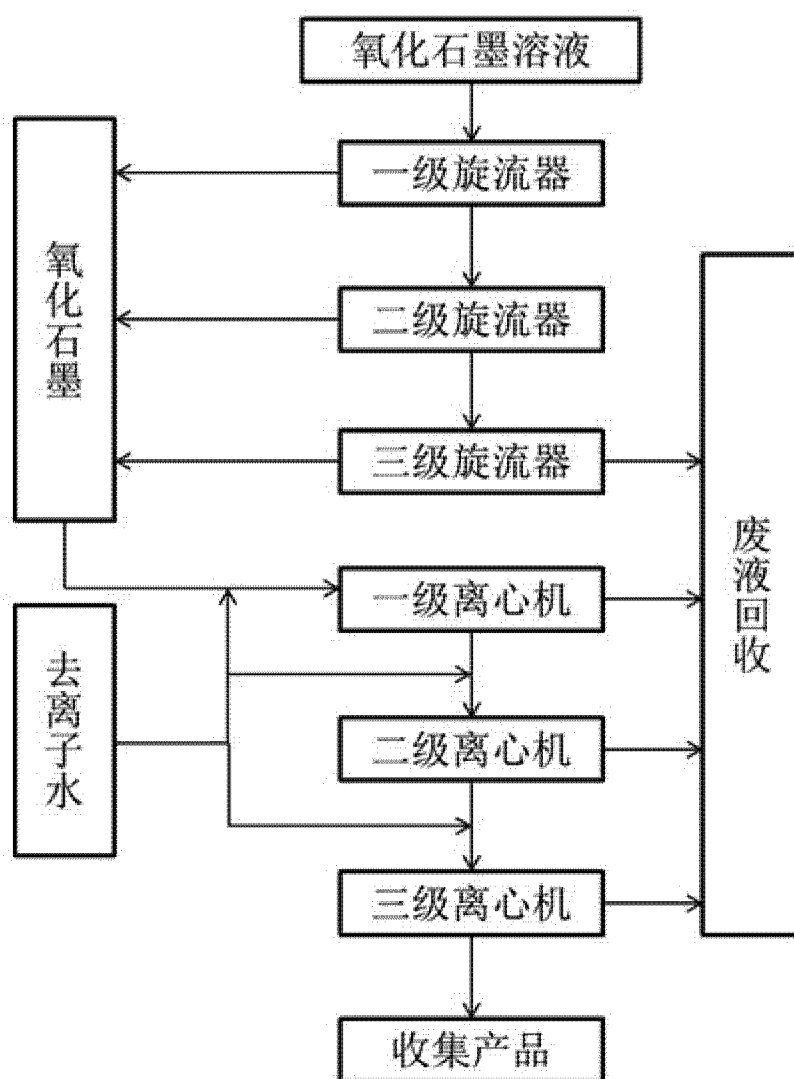


图 1