



請以白色封面膠裝

環境部環境管理署

113 年度土壤及地下水污染整治基金補助研究與模場試驗專案

電輔助矽橋改質石墨烯電極於重金屬移除及汙染物降解技術

◎期末報告(初稿)

主辦單位： 環境部環境管理署

專案執行單位：明志大學／材料工程系所

專案主持人：賴怡廷 教授

專案執行期間：113 年11月 1 日起至
114 年11月30日止

中華民國 114 年 10 月 印製



專案基本資料表

專案性質		☒ 實驗性質 ☐ 非實驗性質		專案類別(單選)		☐ 先導型 ☒ 研究型 ☐ 模場型	
研究主題		☐ 調查 ☒ 整治 ☐ 其他					
申請機構系所		明志科技大學材料工程系					
機構地址		新北市泰山區工專路84 號綜合大樓205-1					
專案主持人		賴怡廷		職等／職稱		助理教授兼環實務技優班主任	
協同主持人		李琬儀		職等／職稱		亮昇環境科技股份有限公司技師	
專案名稱	中文	電輔助矽橋改質石墨烯電極於重金屬移除及污染物降解技術					
	英文	Electro-assisted construction of silane-bridging modified graphene electrode for electrochemical method in heavy metal removal and pollutant degradation					
	關鍵字	石墨烯電極, 乙二胺, 電化學改質, 電化學整治, 污染物降解					
執行期程		自 民國 113 年 11 月 1 日起 至 民國 114 年 11 月 30 日止					
專案主持人		姓名：賴怡廷		Email : laieating@mail.mcu.t.edu		專線：0910-071-749 手機：0910-071-749	
專兼任人員		姓名：廖晨杰		Email : j29215159@gmail.com		專線：02-29089899#6322 手機：0968752597	
經費分析總表 (僅模場試驗專案需填寫兩年度金額)	專案預估經費			第一年金額	第二年金額	編列說明	
	1.	人事費用		312,000		1. 計畫主持人(賴怡廷) 10,000 元x12 月=120,000 2. 協同主持人(李琬儀) 6,000 元x12 月=72,000 3. 學生碩士級兼任人員 10,000 元x12 月x1 人 =120,000	
	2.	設備使用含維護費		0		(與計畫實驗相關)	
	3.	耗材與主要費用		253,000		1. 包含金屬Cu, Pb, Cd, Fe, Ni 等金屬標準試液。 8000x10=80,000 2. 包含樣本瓶、滴管、玻璃瓶、微液移液管、手	



				套、培養皿、離心管等各種實驗室相關耗材。 $5000 \times 10 = 50,000$ 3. 石墨、硫酸、過錳酸鉀、氧化磷、KCl、乙醇、乙二胺等製備電極所需耗材。 $8000 \times 5 = 40,000$ 4. 電化學分析Pt、石墨電極以及Ag/AgCl標準電極、電極清洗液等電化學所需耗材。 $6000 \text{元} \times 5 = 30,000$ 5. 破氈、壓克力耗材、流道設計、開模費用、電極版、電線、蠕動幫浦線路等耗材。 $5300 \text{元} \times 10 = 53,000$
4.	其它研究相關費用	0		(含差旅與租賃費用)
5.	行政管理費	65,000		1. 報告印刷、影印、碳粉夾、期初期中初稿撰寫及潤飾等費用：1000元 2. 行政機關管理費(約總金額10%)63,000 3. 雜費：如郵資、文具等約1000元
6.	自籌款	60,000		研究內容撰寫成期刊之文字邊潤、投稿出版費用，大約60,000元
申請補助金額(1~5項)		630,000		總金額：630,000
計畫總金額(1~6項)		690,000		總金額：690,000

專案主持人(簽名或蓋章)：_____

日期：_____



113 年度專案成果績效自評表

填表日期：114 年10月29 日

一、 專案基本資料

專案性質	☒ 實驗性質 ☐ 非實驗性質	專案類別	☐ 先導型 ☒ 研究型 ☐ 模場型
研究主題	☒ 整治 ☐ 調查 ☐ 其他		
執行機構	明志科技大學	專案主持人	賴怡廷
專案名稱	電輔助矽橋改質石墨烯電極於重金屬移除及汙染物降解技術		
專案執行期程	☐ 申請階段 ☐ 期中 ☒ 成果		

二、 成果績效自評

「計畫總預估數」應與計畫審查核定值相符，請執行單位依實際達成之量化成果填寫於欄位中。

(一) 學術面

項目		目標達成程度	申請 預估數	期中 達成數	成果 達成數	結案後半年 達成率	備註 (說明未達成 原因或學術產 出發表名稱)
A 學術產出及活動	1.國內投稿 (篇數)	(1)論文	0				
		(2)研討會論文	1		1		碳材料年會2026，會在明年1月19日至20日舉辦
	2.國外投稿 (篇數)	(1)期刊論文	2		1	100%	一篇以投稿在 Separation and Purification Technology，第二篇投稿在 Applied Catalysis B: Environment and Energy，目前正在審查中
		(2)國際研討會論文發表	1		1		ICAC2025，會在11月30至12



							月3日舉辦
	3.報告 (篇數)	(1)技術報告	0				
		(2)研究報告	2	1	1		
	4.專著 (本數)						
	5.辦理學術 會議(場數)	(1)研討/說明會	0				
		(2)成果發表會	0				
		(3)論壇	0				
	6.研發改良 技術(項數)	(1)已開發技術	2	1	1		(1)電化學 改質 EDA/GO 於碳氈技 術 (2)EDA/石 墨烯電極 於土壤整 治技術
		(2)技術平台	0				
	7.技術獎項(項數)		1		1		台灣創新 博覽會發 明競賽銀 獎
	B 人 才 培 育	8.研發人員 (人數)	(1)碩士	2		2	
(2)博士			0				
9.研究團隊 (個數)		(1)跨領域團隊	3	3			日本 NIMS，亮 昇環境股份 有限公司， 明志科大環 安系
		(2)跨機構團隊	2	2			日本 NIMS，亮 昇環境股份 有限公司
		(3)形成研究中心	0				
		(4)形成實驗室	0				
10.其他指標 (請自行命名)		參與國內外永續 創新競賽	1	1			默克第四 屆年輕科 學人獎入 圍決賽



(二) 產業面

項目			目標達成程度	申請 預估數	期中 達成數	成果 達成數	結案後半年 達成率	備註 (說明未達成原因或專利、技術轉移相關詳細資料)
A 智慧 財產權	1.專利 (件數)	已 核 准	發明	0	1			
			新型/設計	0				
			合計	0	1			一種配位基團修飾的石墨烯複合材料、其製備方法及其用途
		申 請 中	發明	1		1		
			新型/設計	0				
			合計	1		1		一種矽橋改質的氧化石墨烯複合材料之製備方法及其用途
B 研發 技術轉 移	2.先期技術 成果移轉	件數	0					
		授權金(仟元)	0					
		衍生利益金(仟元)	0					
	3.技術移轉 (專利)	件數	0					
		授權金(仟元)	0					
		衍生利益金(仟元)	0					
	4.技術移轉 (應用技術)	件數	0					
		授權金(仟元)	0					
		衍生利益金(仟元)	0					
	5.可移轉 產業技術	(1)技術(件數)	1	1				一種配位基團修飾的石墨烯複合材料、其製備方法及其用途
		(2)品種/系(件數)	1	1				
C	6.促成合作 研究	件數	1	1				日本台灣交流協會
		金額(仟元)	200	812				
		件數	0					



產學研 合作	7.促成投資	投資金額 (仟元)	0				
	8.促成取得 業界科專	件數	0				
		業界投資金額 (仟元)	0				
9.其他指標 (請自行命名)		(請自填)					



(三) 政策面

目標達成程度			申請預估數	期中達成數	成果達成數	結案後半年達成率	備註 (說明未達成原因或其他詳細資料)
項目							
A 服務 便民	1.技術服務	次數	0				
		收入(仟元)	0				
	2.諮詢服務	次數	0				
		收入(仟元)	0				
B 政策 推動	3.協助政府推動 (件數)	(1)政策	0				
		(2)法規	0				
C 技術 效益	4.整治技術提升(%)		20	90			製備時間從原本13小時優化製1.5個小時
	5.整治成本降低(%)		20		94.54		總價從約3729元降低至236元
	6.提升能源效率(%)		30	99			能源消耗由6000 Wh (加熱攪拌器)降至約0.0000300 瓦時 (Wh)
7.其他指標 (請自行命名)		(請自填)					

三、請依前述學術面、產業面、政策面等預期量化成果，具體敘明研究成果對本署政策推動之助益。(200字為限)

學術面(如國內外研討會、期刊投稿件數、或人才培育碩博士生說明)
1. 鼓勵學生將研究成果投稿國內研討會1篇，國外研討會1篇，國外期刊2篇，研究報告2份(期中與期末報告)
2. 開發技術2項：(1)電化學改質EDA/GO於碳氫技術。
(2)EDA/石墨烯電極於土壤整治技術
2. 預計培育2名碩士生(廖晨杰以及明年預計研究所新生)。
3. 預計3個跨領域以及2個跨機構團隊(MCUT-日本NIMS、MCUT-亮昇環境科技)
產業面(如合作研發產業、申請專利、洽談技術移轉廠商件數說明)



1. 預計申請1件發明專利(1項電化學改質碳氫技術於土壤整治。)
2. 預計和亮昇環境科技協助洽談，協助技轉以及申請一件產學計畫。

政策面(如整治費用降低、特定污染物整治效益提升、或提供政府作為監測/管制標準、污染址管理等政策及法規研訂之參考)

1. 改善傳統電動力法整治土壤重金屬於材料研發的限制，大幅提高對金屬的吸附能力。在金屬移除率部分和傳統70-80%相比可以提升到90%以上(20%整治技術提升)
2. 在成本控制方面，除了文獻的成本平均約為100美元/每噸土壤，預計降低成本20%以上
3. 能源效率方面，利用交流電化學調控，改善電極極化現象，能量消耗跟一般文獻50-150 kWh/每公噸相比，預計優化30%的能源效率。



四、主要研究人力

請依照「專案主持人」、「協同主持人」、「專任人員」、「兼任人員」及「臨時工」等類別之順序分別填寫

姓名	服務機構/系所	職稱	在本研究專案內擔任之具體工作性質、項目及範圍	執行期間
賴怡廷	明志科技大學材料工程系	助理教授 兼環實務 技優班主 任	指導本計畫之研究方向與技術 主軸規劃 協助設計功能化石墨烯氧化物 之合成程序與應用測試流程 協助撰寫與審閱技術報告與學 術論文 指導學生進行材料分析與數據 解釋	113 年11月01日至 114 年11月30
李琬儀	亮昇環境科技股份有 限公司	亮昇環境 科技股份 有限公司 技師	協同執行污染物分析與監測實 驗 擔任業界顧問角色，促進技術 落地應用評估	113 年11月01日至 114 年11月30
廖晨杰	明志科技大學材料工 程系	學生	實際執行材料製備（如 GO 改 質）、吸附與電催化測試 負責數據蒐集與分析、圖表製 作、文獻查找 協助儀器操作（如CV、XPS、 FTIR等）與測試紀錄 參與撰寫實驗報告與成果彙整	113 年11月01日至 114 年11月30

五、產業界資源投入表

專案執行若有與產業界合作，請執行單位依實際量化成果填寫於欄位中。

投入資源類別	數量	說明
1.自籌款	60,000 元	研究內容撰寫成期刊之文字邊潤、投稿出版費用，大約60,000元
2.人力	人月	
3.設備		
4.其他資源 (請自行增列)	(請自填)	



土壤及地下水污染整治基金補助研究與模場試驗專案

☐申請計畫書 ☐期中報告
☐修正計畫書 ☐成果報告

審查意見回覆對照表

計畫年度	113 年度	計畫類型	☐ 先導型 ☐ 研究型 ☐ 模場型
計畫類別	☐ 調查 ☐ 整治 ☐ 其他	主持人：	NO：
計畫名稱			
審查意見		執行單位回覆	
委員一 一、本研發計畫「電輔助矽橋改質石墨烯電極於重金屬移除及汙染物降解技術」已依預定進度應完成各研究項目，並提出期末報告，相關成果符合原規劃期程。二、本計畫以螯合劑(EDTA)為清洗液進行土壤重金屬淋洗，建議後續計畫需針對螯合劑(EDTA)於地下(土壤及地下水)環境中使用之安全性議題進行探討，藉此提升本項技術未來應用性。三、本計畫期末報告針對方法效益及成本評估結果顯示本項技術可達到低耗能、低成本之成效，建議後續可考量辦理模場研發實驗計畫，加以印證。		感謝審查委員的回饋，關於第二以及第三點的部分本研究團隊已經有與廠商進行合作，將會進一步進行模場實驗	
委員二 1. 計畫進度符合原定目標。 2. P52頁 (五)、結果與討論，請就內文綜整出重點內容，於(六)結論增加為結論與建議。 3. 實驗室情形與現地仍有差距，未來仍待實際污染場址現地進行處理驗證可行性。 4. 成果績效自評表，請增加日填表日期。執行情形，請改為成果。 5. 獲得中華民國發明專利申請，並獲得創新博覽會發明競賽銀獎。		1. 感謝審查委員的回饋 2. 已作修正於P.71 3. 本研究團隊與廠商有合作未來有機會將繼續驗證可行性 4. 成果績效自評表已補填填表日期，並依建議將「執行情形」欄位修正為「成果」。 5. 感謝審查委員的回饋	
委員三 1. 請補充本案所提之GO的比表面積與導電性。 2. 請補充說明GO在ITO的厚度(三次塗佈)及黏著強度。 3. 在還原階段(-0.6 V)，使GO發生部分還原，建議探討還原程度。 4. 請補充說明EDA與GO的化學鍵結說明(相關XPS實驗)。 5. 本案的矽橋改質的效果應有更明確的說明。 6. 本案金屬吸附		1. 本研究所使用之 GO 具備高比表面積與良好之表面官能化特性，可提供大量反應與吸附位點。雖本計畫未進行 BET 量測，其高比表面積特性已廣泛於文獻中被證實，且本研究透過 ECSA 計算結果顯示，GO 修飾後之電極其有效反應面積相較原始碳氈顯著提升，間接反映其高表面積優勢。在導電性方面，GO 經 -0.6 V 還原處理後，部分 sp^2 結構得以恢復，CV 與 EIS 結果亦顯示其電流密度提升與電荷傳輸阻抗降低，說明材料整體導電性獲得改善。	



著重於銅離子，其他重金屬的吸附應補充說明。7. 本案對於污染物的降解應補充說明。

2. 本研究採用三次塗佈方式於 ITO 基板上形成連續且均勻之 GO 功能層，其目的在於兼顧覆蓋完整性與電荷傳輸效率。雖未進行截面量測以定量膜厚，但由吸附與電化學測試結果可推知該膜層厚度足以提供完整反應介面，且不致造成電子傳輸阻礙。於黏著性方面，GO 薄膜在後續電化學操作與多次循環測試中未出現明顯剝離或脫落現象，顯示其與 ITO 基板間具備良好附著穩定性。

3. 於 -0.6 V 還原條件下，GO 發生部分還原而非完全還原，其目的在於保留部分含氧官能基以作為後續 EDA 鍵結與金屬吸附之活性位點。由拉曼光譜中 ID/IG 比值微幅上升、以及 CV 與 EIS 顯示導電性改善但未出現結構劣化，可合理推論此電位條件能在還原程度與結構穩定性之間取得平衡。後續研究可進一步透過 XPS 或 FTIR 定量分析還原程度，以建立更完整之結構-性能關聯。

4. EDA 與 GO 之鍵結主要可歸因於胺基 ($-\text{NH}_2$) 與 GO 表面含氧官能基 (如羧基或環氧基) 之反應，形成 C-N 或酰胺鍵結。本研究雖未實際量測 XPS，但由拉曼光譜結構變化、接觸角顯著下降，以及吸附與電化學活性提升等結果，可合理推論胺基已成功導入 GO 表面。後續研究將可透過 XPS C 1s 與 N 1s 光譜進一步確認 C-N、N-C=O 等鍵結型態，以強化化學修飾之直接證據。

5. 本研究所提出之矽橋改質概念，係透過矽氧鍵結作為有機胺基與碳材之橋接結構，使功能化分子能更穩定地固定於電極表面。其改質效果反映於材料穩定性提升、官能基保留率增加，以及在多次電化學操作下仍維持良好導電與吸附表現。由 CV、EIS 與循環吸附測試結果可知，經矽橋改質之電極在長時間操作下仍具備穩定反應行為，顯示該改質策略對電極耐久性具有正向貢獻。

6. 關於這部分有針對實場的真正金屬濃度調配土壤後進行小規模實驗

7. 除重金屬吸附外，本研究系統於交替電壓操作下亦具備促進污染物降解之潛力。電化學操作過程中，電極表面可能產生具反應活性的中間物種，促進有機污染物之氧化或還原反應。本計畫已建立系統架構與操作條件，後續研究可針對代表性有機污染物進行降解效率與反應機制之進一步驗證，以拓展本技術於複合型污染整治之應用範圍。



委員四 1. 中/英文摘要內容較像構想書,應加入結果與討論相關敘述,俾利委員閱讀便利。 2. 第70頁敘明此技術可有效降低整治成本達93.67%,但僅一句話呈現,建議可增加相關敘述,以瞭解降幅原因。 3. 第47、49及51頁右上角章節名稱錯誤,應為(四)研究方法與過程。 4. 部分段落之主詞用字過於口語化(我或我們),建議可調整為「本研究團隊」較為合適。(舉例頁數第62、63頁、67、68頁) 5. 請確認第71頁進度表內容是否正確。(特別標示55%)	1.已作修正 2.將內容補充在結果與建議內 3.已作修正 4.已作修正 5.以確認,並修正
委員五 本計劃是一個基礎電化學的研究,針對複雜的實場污染土壤樣品應用的評估尚需更深入	本研究團隊與廠商進行合作,未來有機會會進行實場實驗





中文摘要

本研究旨在開發一種以矽橋修飾氧化石墨烯（GO）為基材之電化學電極材料，藉由結合GO的高比表面積與導電性，並引入具備胺基與矽氧官能團的3-胺丙基三乙氧基矽烷（EDA），建構具電催化與吸附雙重功能之複合材料。製程採用循環伏安法（CV）將GO沉積於碳氈基材表面，再以定電位（CA）方式將EDA鍵結於GO層上。文獻回顧顯示，EDA-GO電極材料在環境應用中不僅具備對重金屬與有機污染物之選擇性吸附能力，亦可透過電場輔助產生自由基或促進電還原反應，進一步實現污染物的高效去除。透過不同電極設計與系統模組整合，該材料可應用於水處理、土壤修復及流通式電解模組，具備模組化、再生性高、適應性強等潛力，為場域污染治理技術提供一項具體可行之新興材料平台。

關鍵字：石墨烯電極, 乙二胺, 電化學改質, 電化學整治, 污染物降解



Abstract

This study aims to develop an electrochemical electrode material based on silane-bridged functionalized graphene oxide (GO). By integrating the high surface area and conductivity of GO with the aminopropyl and siloxane functionalities of 3-aminopropyltriethoxysilane (EDA), a dual-functional composite capable of both electrocatalysis and adsorption was fabricated. The preparation method involves cyclic voltammetry (CV) for depositing GO onto a carbon felt substrate, followed by chronoamperometric (CA) grafting of EDA onto the GO surface. Literature indicates that EDA-GO materials offer not only selective adsorption toward heavy metals and organic pollutants, but also enhanced electrochemical activity through field-assisted radical generation or electroreduction. With appropriate electrode design and modular system integration, this material demonstrates potential for diverse environmental applications such as water treatment, soil remediation, and continuous-flow electrochemical systems. Its modularity, high reusability, and field adaptability make it a promising platform for future pollution control technologies.

Keyword: graphene electrode, EDA, electrochemical modification, electrochemical remediation, pollutant degradation



目錄

專案基本資料表	2
113 年度專案成果績效自評表	4
一、專案基本資料.....	4
二、成果績效自評.....	4
三、請依前述學術面、產業面、政策面等預期量化成果，具體敘明研究成果對本署政策推動之助益。（200 字為限）	8
五、產業界資源投入表	10
中文摘要	i
Abstract.....	ii
(一)前言	1
(二)研究目的	9
(三)文獻探討	14
3.1 石墨烯材料應用於污染物去除	14
3.1.1GO 與 rGO 對重金屬離子之吸附與電化學去除	14
3.1.2GO 在有機污染物之吸附與電催化降解	17
3.1.3 石墨烯基複合材料在污染物去除中的應用	21
3.1.4 不同改質手段對石墨烯吸附性能、選擇性與再利用性的影響	23
3.2 功能化改質對吸附與導電能力之提升	25
3.2.1 功能化原理與結構分析	25
3.2.2 材料性質變化與結構特徵	30
3.2.3 重金屬吸附行為與機制探討	35
3.2.4 有機污染物去除與電催化降解行為	38
3.3 功能化石墨烯氧化物之再生性能與循環穩定性評估	42
(四)研究方法與過程	47
(五)結果與討論	52
.....	52
(六) 結論與建議.....	71
(七)參考文獻	73





圖目錄

圖 1. 石墨烯基材料去除重金屬離子的可能機制示意圖[5]。.....	2
圖 2. 石墨烯基材料在廢水淨化中的應用機制與效果[1]。.....	3
圖 3. a：奈米過濾、超濾或反滲透法；b：正滲透（Forward Osmosis）程序；c：電滲析法，其原理為交替排列的正負電荷膜進行離子分離；d：不同膜對各類污染物的分離能力比較[2]。.....	5
圖 4. (a) 示意圖，說明OG（氧化石墨烯）、NG（氮摻雜石墨烯）、SG（硫摻雜石墨烯）和SNG（氮硫共摻雜石墨烯）的結構。SEM（b-d）和TEM（e-g）圖像，展示NG、SG和SNG的形貌與結構[6]。.....	6
圖 5. 利用硼摻雜還原氧化石墨烯（BRGO）陽極在電化學系統中同時實現PFAS的電吸附與高效去氟分解，產生無氟產物如CO ₂ 與H ₂ O[7]。.....	7
圖 6. (a) SnO ₂ /GNP@SS（錫氧化物/石墨烯奈米片@不鏽鋼）電極；(b) TiO ₂ /GNP@SS（鈦氧化物/石墨烯奈米片@不鏽鋼）電極；(c) GNP@SS（石墨烯奈米片@不鏽鋼）電極[8]。.....	8
圖 7. EK 處理過程中發生的主要原理與機制[9]。.....	10
圖 8. (a) 石墨烯/陶瓷複合材料製備過程圖，(b) 石墨烯的AFM圖像，(c) 石墨烯的TEM圖像，(d) 複合材料粉末的SEM圖像，(e) 3B-Si-G樣品的照片[10]。.....	12
圖 9. 石墨烯及其衍生材料可透過吸附與光催化作用，有效去除來自農業、工業與家庭等來源的有機污染物，進而淨化廢水[11]。.....	14
圖 10. 使用氧化石墨烯（GO）樣品進行磁輔助吸附 Pb ²⁺ 與 Cu ²⁺ 的實驗吸附等溫線[12]。.....	15
圖 11. 在有無競爭性 Ni(II) 離子存在下，Cu(II) 在氧化石墨烯（GO）上的吸附行為[13]。.....	16
圖 12. 石墨烯氧化物（GO）與坡鉢石（ATP）之間反應的示意圖[14]。.....	16
圖 13. 三乙醇胺修飾氧化石墨烯（TEOA-GO）可通過 $\pi - \pi$ 堆疊與靜電作用高效吸附亞甲基藍（MB），其吸附容量遠高於未修飾GO，且具有良好的重複使用性[17]。.....	17
圖 14. GO、rGO 以及胺基功能化 GO 樣品的氮氣吸附-脫附等溫線。插圖顯示的是在標準溫壓條件下至 40 cm ³ /g 的數據[18]。.....	18
圖 15. 具有內部曝氣功能的氮摻雜石墨烯氣凝膠陰極，用於提升電芬頓法對對硝基酚的降解效率[19]。.....	21
圖 16. 石墨烯氧化物的結構圖，包括以下製備方法所得之產物：(a) Brodie 與 Staudenmaier 法製備的石墨烯氧化物結構(b) Hofmann 法製備的結構圖(c) Hummers 法製備的石墨烯氧化物(d) 改良式方法製備的結構圖[20]。.....	21
圖 17. MIL-101(Fe) 與 GO/MIL-101(Fe) 的模型和結構示意圖[21]。.....	22
圖 18. 石墨烯氧化物/Fe ₃ O ₄ /幾丁聚醣（GFC）奈米複合材料可透過吸附作用去除水中Pb ²⁺ ，並可利用EDTA實現脫附與再生循環使用[22]。.....	23
圖 19. 在 pH 6.8 下，Pb(II) 在三種吸附劑上的吸附等溫線[24]。.....	24
圖 20. 在電芬頓（EF）系統中，使用 NGA 陰極對對硝基苯酚（p-NP）之可能降解途徑的示意圖。.....	25
圖 21. 乙二胺（EDA）導入GO表面、環氧基開環、脫氧及部分還原之機制示意圖[25]。.....	26
圖 22. 使用乙胺對石墨烯氧化物（GO）進行同時還原與功能化的機制示意圖[26]。.....	27
圖 23. (A) 接觸時間對 GO-NH ₂ 去除 Cr(VI)、Cu(II)、Pb(II) 和 Cd(II) 效果之影響；(B) Cr(VI)、Cu(II)、Pb(II) 和 Cd(II) 吸附於 GO-NH ₂ 之擬一級動力學模擬結果；(C) Cr(VI)、Cu(II)、Pb(II) 和 Cd(II) 吸附於 GO-NH ₂ 之擬二級動力學模擬結果[27]。.....	28
圖 24. GO-EDTA 製備流程之示意圖[28]。.....	29



圖 25. (a) Fe_2O_3 -GO 奈米複合材料製備流程之示意圖；(b) Fe_2O_3 -GO、GO 與 rGO 分散於 BPA 溶液中，在 0 分鐘、1 分鐘與 5 分鐘時的沉降照片[29]。.....	30
圖 26. 功能化多孔高分子 (MPHs) 於石墨烯氧化物 (GO) 片上的示意圖，顯示 MPHs 經由矽烷化處理後，與 GO 片之間發生共價反應的過程[30]。.....	31
圖 27. GO/HPAMAM/DAC 吸附劑的合成示意圖[31]。.....	32
圖 28. GO 的合成、以氯乙酸修飾及其對鉛 (Pb) 與鉻 (Cr) 吸附過程的示意圖 [32]。.....	33
圖 29. (a) 接觸時間對於 Fe^{3+} 、 Ni^{2+} 與 Mn^{2+} 在水溶液中去除率的影響。(b) 水溶液 pH 對於 Fe^{3+} 、 Ni^{2+} 、 Mn^{2+} 、 La^{3+} 與 Nd^{3+} 在水溶液中去除率的影響。(c) Fe、Mn 與 Ni 在不同初始濃度下的吸附量關係。(d) V/m 比值對於 Fe^{3+} 、 Ni^{2+} 與 Mn^{2+} 在水溶液中去除率的影響。(e) 溫度對於 Fe^{3+} 、 Ni^{2+} 與 Mn^{2+} 在水溶液中去除率的影響[33]。.....	34
圖 30. 基於 Lerf-Klinowski 模型的石墨烯氧化物 (GO) 模擬模型：(a) GO 的原始原子結構；(b) 在 300 K 下模擬 2.5 奈秒後，GO 的原子結構鬆弛後的橫截面與側視圖，其平均層間距為 3.4 Å；圖中碳、氧與氫原子分別以黃色、紅色與藍色表示[34]。.....	35
圖 31. 以間位乙二胺四乙酸 (m-EDTA) 對石墨烯氧化物 (GO) 片進行功能化的示意圖[35]。.....	36
圖 32. 吸附-解吸循環實驗[36]。.....	37
圖 33. 胺基矽烷、EDTA-矽烷、胺基修飾 GO (Amine-GO) 以及 EDTA 修飾 GO (EDTA-GO) 之化學結構圖[37]。.....	38
圖 34. (a) 透過 PIL 功能化合成部分還原之石墨烯氧化物 (PrGO-PIL) 的示意圖 (b) 咪唑鎗型離子液體 (ILs) 與咪唑鎗碳烯 (NHCs) 的一般結構(c) 含胺基功能化咪唑鎗型硫鎗離子液體 (TSIL) 與 CO_2 的反應機構。TEM 圖像：(d) 金屬鋁骨架；(e) 還原型石墨烯氧化物；(f) 金屬鋁-石墨烯氧化物 (MA-rGO) 奈米複合材料[38]。.....	39
圖 35. (a) 均相電芬頓 (Electro-Fenton) 與 (b) 非均相電芬頓反應機制之示意圖。.....	40
圖 36. 在溫和條件下，ERGO 修飾破黑氣體擴散電極 (GDE) 於電化學高級氧化程序 (EAOP) 中對氧還原反應 (ORR) 之電催化過程的示意圖。.....	40
圖 37. 「電芬頓 (EF)」技術如何利用破基陰極材料 (如活性碳纖維、碳氈、石墨烯等) 在廣泛的 pH 範圍內高效生成雙氧水與氫氧自由基，以降解有機污染物與微生物，最終將其轉化為水與二氧化碳，是一種高效且環保的廢水處理技術[42]。.....	41
圖 38. 中空介孔 $\text{GO-WO}_3/\text{TiO}_2$ 薄膜光陽極之降解效能提升機制的示意圖[43]。..	42
圖 39. GC 經過十次吸附與解吸循環後對 Cu^{2+} 的吸附容量與吸附速率變化[46]。43	
圖 40. 循環次數對亞甲藍染料 (MB) 吸附率的影響[47]。.....	44
圖 41. GrGO 吸附劑在水溶液中對四環素類 (TCs) 吸附之重複使用性評估[49]。45	
圖 42. (a) 在不同時間間隔下，含催化劑之水溶液中亞甲藍 (MB) 的紫外可見光光譜；(b) 與 (c) 顏色催化降解隨照射時間變化的過程及其動力學行為；(d) 複合材料的重複使用性評估。.....	46
圖 43. ITO 基板進行旋轉塗佈後。.....	47
圖 44. 最終電鍍步驟.....	48
圖 45. 三極式電極布置方式.....	49
圖 46. CA 電鍍條件.....	50
圖 47. 傳統單次修飾與間隔式 EDA 修飾策略對 Cu^{2+} 吸附穩定性之比較示意圖.....	51
圖 48. 比較 GO 與 EDA-GO 樣品之 Raman 光譜.....	52
圖 49. 這是試片吸附硫酸銅水溶液之後用紫外光譜儀量測出來的數據圖表以及用來	



比對銅離子吸附的圖表。[52].....	53
圖 50. ITO、GO 與 EDA-GO 表面的水接觸角 (WCA) 測量結果。經 EDA 修飾後的 GO (EDA-GO) 表現出最低的接觸角 (17.14°)，顯示其表面親水性顯著提升，有利於吸附與電化學反應的進行。.....	55
圖 51. 不同CA條件修飾後樣品在 -1.0 至 $+1.0$ V 掃描區間內之CV曲線。.....	56
圖 52. 反映不同電位條件下樣品的阻抗行為。.....	58
圖 53. 電化學活性表面積 (ECSA) 比較.....	60
圖 54. 電化學循環吸附機制[53].....	62
圖 55. 以離心管為基礎之初期模具設計示意與實作圖.....	63
圖 56. 三通式透明模具設計圖與實體圖展示.....	64
圖 57. 方案A設計圖.....	65
圖 58. 這兩側是清潔液柱入口.....	65
圖 59. 全套工作圖與零件圖以及3D圖展示.....	66
圖 60. 實物展示.....	66
圖 61. 這是各式鋼絲安裝方式導致的碳氈斷裂圖，前兩組是用勾狀鐵絲會使碳氈從中間撕裂，而中間是用鋼絲纏繞的結果，最後兩組則是橫想細綁的結果.....	67
圖 62. 方案B設計圖與3D展示圖.....	67
圖 63. 第一張圖為無濾網，第二張為濾紙版，第三張是尼龍加濾紙.....	68
圖 64. 小型電化學封閉式循環系統之示意圖與流路設計.....	69
圖 65. 實驗系統實拍圖與電極接線配置說明.....	69
圖 66. 對於不同土壤裡金屬的吸附效果.....	70





(一)前言

重金屬與有機污染物所造成的環境污染問題持續受到國際關注。重金屬例如鉛、汞、鎘等主要來自採礦、電鍍、製造業及工業廢棄物排放，進入土壤與水體後難以被自然降解，長期累積對生態系統和人體健康構成嚴重威脅。尤其重金屬污染具持久性和生物累積性，甚至在低濃度下亦可能對神經系統、發育造成危害。此外，許多有機污染物（如工業有機溶劑、農藥、染料、藥物及新興污染物等）同樣廣泛存在於環境中，由於結構穩定難降解，經常無法以傳統水處理程序有效去除[1]。

例如揮發性氯化有機溶劑可滲入地下水，持續多年存在；合成染料和藥物殘留則可能通過廢水進入河川，威脅水體生態。現今各國皆將重金屬及難分解有機物列為優先控制的污染物，強調其管制及整治之重要性[2]。以臺灣為例，農地土壤重金屬污染問題尤為嚴重——根據農業試驗所的全國普查結果，全臺已有1,113處農地土壤重金屬含量超過管制標準，其中桃園市（478處）與彰化縣（170處）最為嚴重。即使環保主管機關自2002年起列管了約2,800件農地污染案件，但截至2020年底仍有逾九成以上的案件缺乏有效整治[3]。顯見目前傳統整治手段受限，對於大範圍且嚴重的重金屬污染缺乏迅速且徹底的處理能力。同時，國內亦有多處場址受到有機污染物影響（如石化產業釋放的碳氫化合物、電子產業使用的含氯溶劑等），其污染範圍廣且修復困難，顯示研發創新技術以同時去除多類污染物的迫切性。

傳統上，針對重金屬污染的處置多採用物理化學方法，包括：（1）化學沉澱/凝聚：加藥劑使重金屬離子生成難溶氫氧化物或硫化物沉澱，再經由固液分離去除；（2）吸附法：利用活性碳、離子交換樹脂、天然黏土或生物炭等介質，將重金屬離子吸附固定；（3）固化/穩定化：對受污染土壤添加水泥、石灰或磷酸鹽，使重金屬以固態形式固定，降低生物可接觸性；（4）植物修復：栽種超積累植物在污染土壤上，透過植物吸收富集重金屬。然而上述方法各有其侷限：化學沉澱雖簡便但會產生大量含重金屬污泥，後續處置不當仍有二次污染風險；吸附法受到吸附容量限制，對不同金屬的同時去除效率有限，且吸附劑再生涉及成本和廢液處理問題；固化穩定技術僅將污染物封存於原地，並未真正移除，長期穩定性取決於封固材料耐久性；植物修復耗時甚長且易受氣候、生長周期影響，對高濃度污染難有成效。在水處理方面，膜分離技術（如反滲透、電滲析）可有效去除重金屬離子，但其高成本與膜污染問題限制了大規模應用。總體而言，目前常規技術對重金屬的去除往往伴隨高成本或衍生二次污染的缺點，且難以同時針對多種重金屬和其他共存污染物協同處理[2]。



相較之下，有機污染物（特別是難降解有機物）之治理技術發展出另一套脈絡。傳統生物處理（如活性污泥法、生物滴濾等）對一般有機污染有效，但對毒性高或難分解的化合物（如氯代烴類、農藥、染料等）往往效果不佳，甚至可能因重金屬共存抑制微生物活性。早期針對頑固有機污染的物理化學法包括：（1）揮發捕集：如汽提或土壤氣相抽提，將揮發性有機物轉移相位再加以捕集處理，但對不易揮發者無效；（2）熱處理/焚化：加熱受污染介質使有機物裂解或燃燒以達到去毒，但應用成本極高且不適用大體積土壤；（3）化學氧化：注入氧化劑（如臭氧、過氧化氫-芬頓試劑、高錳酸鹽等）直接氧化有機污染物，可在現地應用於地下水或土壤。然而這些化學氧化技術可能受限於傳質效能，不完整的氧化反應還可能殘留有毒中間產物，並消耗大量藥劑提高成本[4]。近年來，新興的**高級氧化技術(AOP)**備受重視，例如光催化（利用 TiO_2 等半導體在UV光下產生氧化性自由基）、臭氧或電漿氧化等，能夠將難降解有機物礦化為 CO_2 和水。然而光催化需光源且催化劑固定與回收不易，臭氧氧化能耗高且對高濃度污染物仍有限制。傳統處理單元難以及時消除新興污染物的事實，從環境監測結果亦可看出：即使經過污水廠處理，水體中仍檢出抗生素、藥品及其他微量有機物，顯示常規技術去除效率不足[1]。

面對上述挑戰，國內外學術界與環保產業正積極研發創新整治技術。一大方向是發展高效新材料作為污染吸附或催化介質，包括奈米材料（如奈米氧化物、零價鐵）、多孔材料（如金屬有機框架MOF、分子篩）以及新型碳材料等。其中石墨烯及其衍生物因具有超高比表面積、優異的導電性和化學穩定性，被視為水處理與環境修復領域極具潛力的材料。石墨烯基材料（Graphene-Based Materials, GBMs）獨特的二維結構提供豐富的表面官能團與活性位，能高效去除重金屬離子、染料、藥物等污染物[5]。

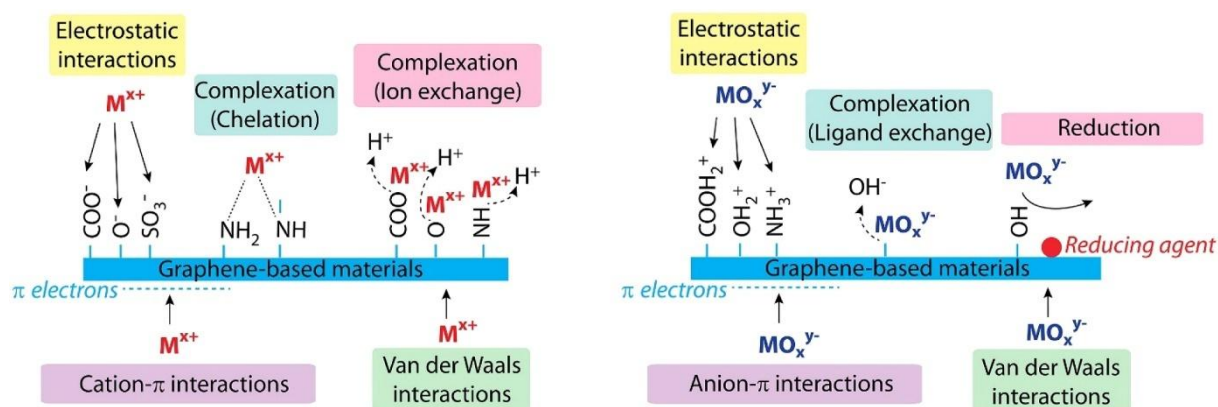


圖 1. 石墨烯基材料去除重金屬離子的可能機制示意圖[5]。

研究顯示，三維石墨烯網絡因孔隙結構發達，可大量吸附各類污染物（包括重金屬、染料、油類、藥品等）且易於從水中分離，展現出優於傳統材料的水處



理效能[1]。此外，石墨烯材料的表面官能團（如含氧基團）可與重金屬離子形成螯合或靜電作用，其吸附重金屬的容量明顯高於一般吸附劑；例如有文獻報導石墨烯/ δ - MnO_2 氣凝膠對 Pb^{2+} 的吸附量高達643.6 mg/g，遠勝其他常規材料。不僅如此，石墨烯氧化物(GO)帶有豐富的羧基、羥基等負電官能團，賦予其螯合作用以高選擇性去除重金屬。石墨烯材料在去除有機污染物方面同樣表現出色：其 π - π 共軛結構易與芳香族污染物發生 π - π 作用，提高對染料、酚類等吸附效率，同時優異的導電性有助於光生電子或電化學反應過程中促進污染物降解。總之，新材料的進展為污染整治提供了更高效的途徑[1]。

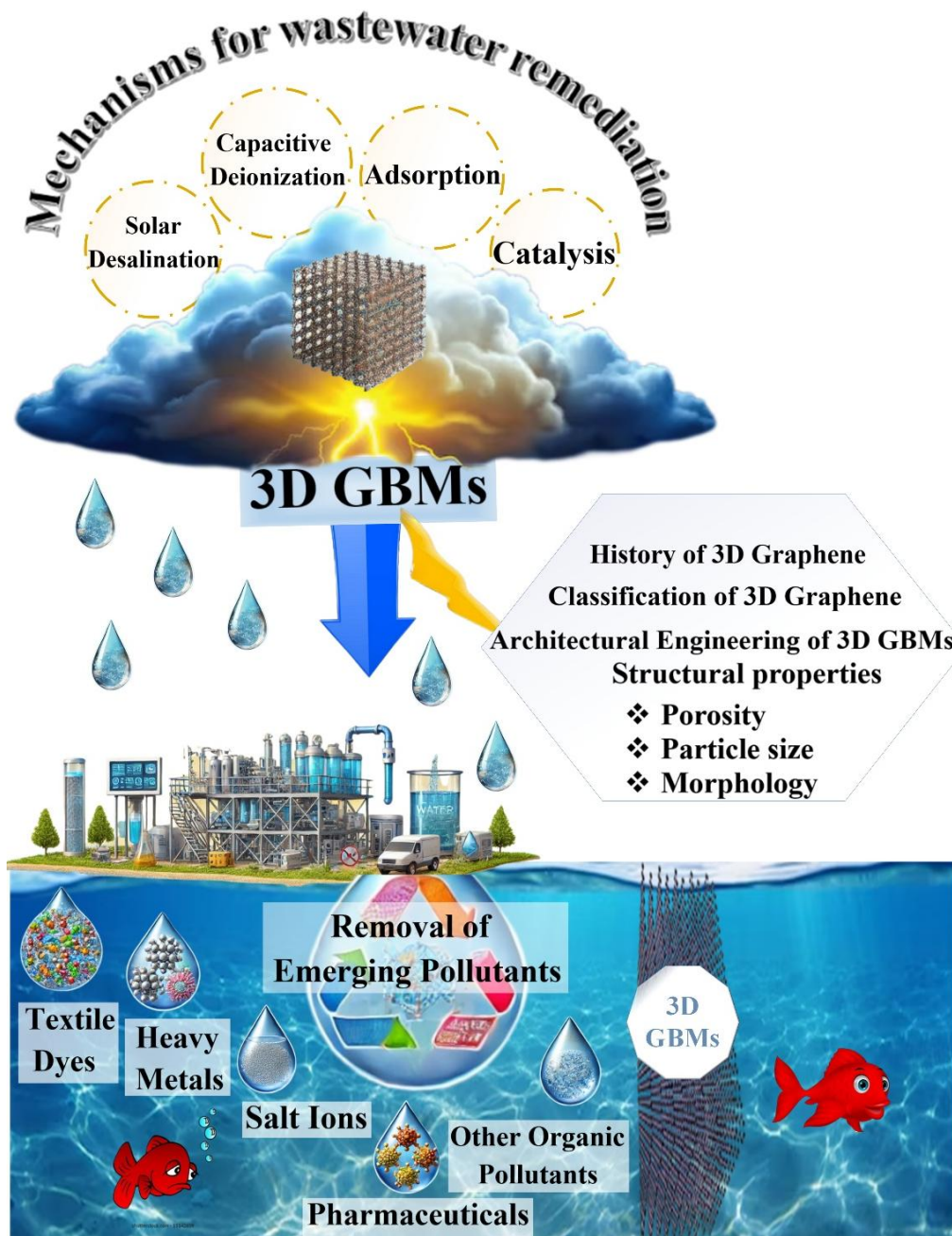


圖 2. 石墨烯基材料在廢水淨化中的應用機制與效果[1]。

另一重要趨勢是結合電化學技術來強化污染去除效能。在水處理領域，電化學



氧化被視為處理難降解有機物極具潛力的方法之一。它利用陽極施加電壓直接將有機污染物電子轉移氧化，或透過電解水產生強氧化性的自由基（如羥基自由基 $\cdot\text{OH}$ ），實現對有機毒物的完全礦化。電化學法不需添加大量化學藥劑，可隨開隨停，特別適合現地處理污染場址，因而環保界對其寄予厚望。目前最具代表性的電氧化材料是硼摻雜金剛石(BDD)陽極，其能產生高密度羥基自由基，對難分解有機物有極佳的降解效率，但BDD電極製備成本昂貴且需高電壓驅動。相較之下，導電性碳材料（如石墨氈、活性碳電極）價格低廉且製備容易，已顯示出良好的降解某些污染物效果。例如近期研究指出，複合碳基電極在硫酸介質中對染料的去處表現出與貴金屬電極相當的效率[4]。此外，電化學方法也可應用於重金屬去除：透過陰極還原可將重金屬離子電鍍成零價固體回收，或利用陽極溶出金屬製造原位絮凝劑（電凝聚法）沉降帶出重金屬。這類電驅動技術具有不需藥劑、可同時處理多種污染物的優點，近年已在實驗室與示範性專案中展現可行性。文獻指出電化學法對重金屬去除效率高且有回收價值，但需克服污泥產生及放大後經濟性等問題[2]。整體而言，“電輔助”污染處理技術被認為是未來發展趨勢之一，透過外加電場或電流，可強化傳統吸附/反應材料的功能，使其超越被動作用而主動去除污染[1]。

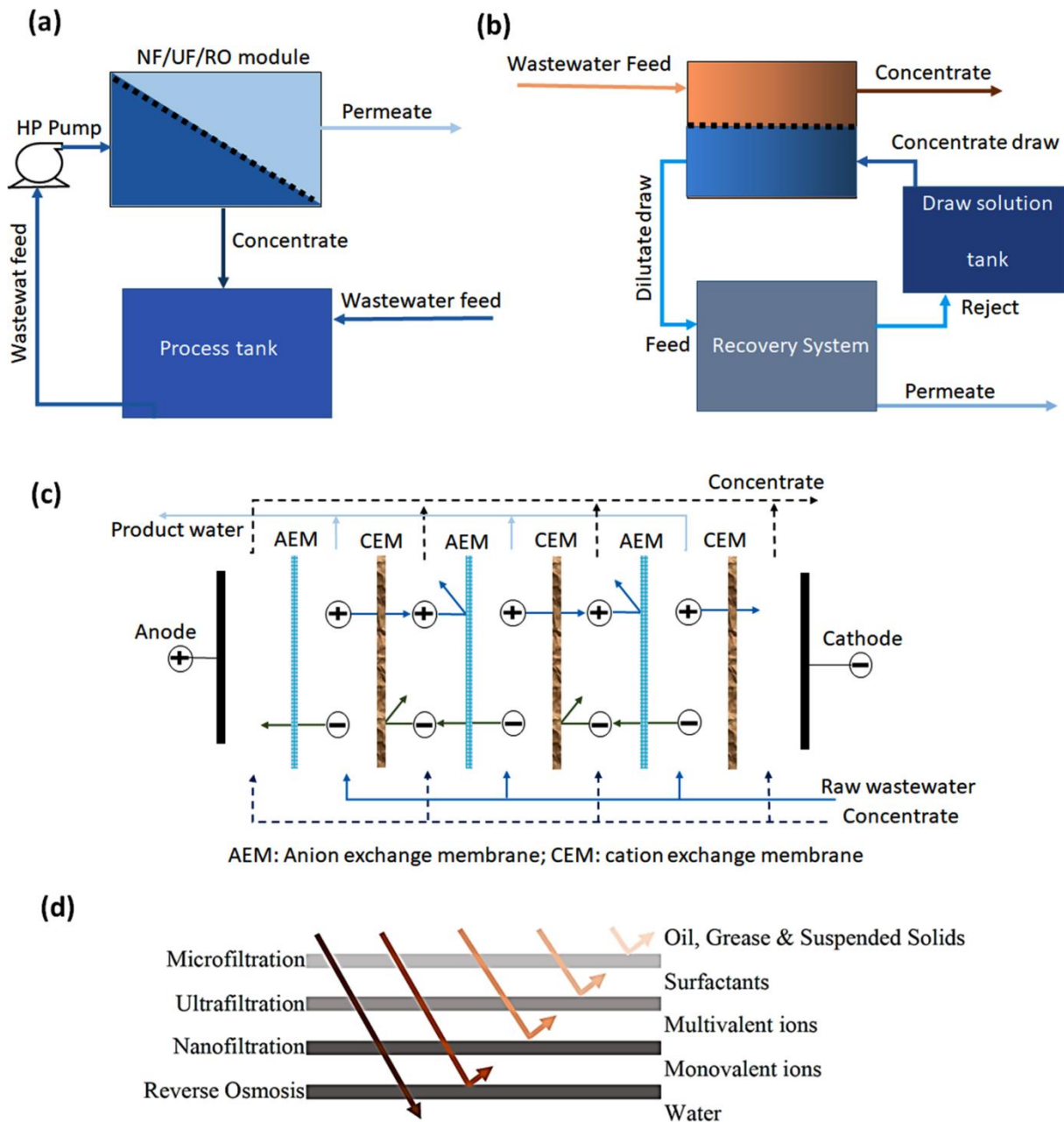


圖 3. a：奈米過濾、超濾或反滲透法；b：正滲透（Forward Osmosis）程序；c：電滲析法，其原理為交替排列的正負電荷膜進行離子分離；d：不同膜對各類污染物的分離能力比較[2]。

鑑於石墨烯材料和電化學技術各自的優勢，學者們開始結合兩者以期產生協同效應。例如，有研究將氮、硫等雜原子摻雜進石墨烯骨架，製成導電膜電極，用於有機污染物的電化學過濾降解，結果顯示單一摻雜（如N-石墨烯或S-石墨烯）對污染物去除效率明顯優於雙摻雜，機理在於N摻雜提供石墨烯上更高的導電性以加速電子轉移，而S摻雜則引入-SO_x-官能團提高對有機分子的吸附[6]。

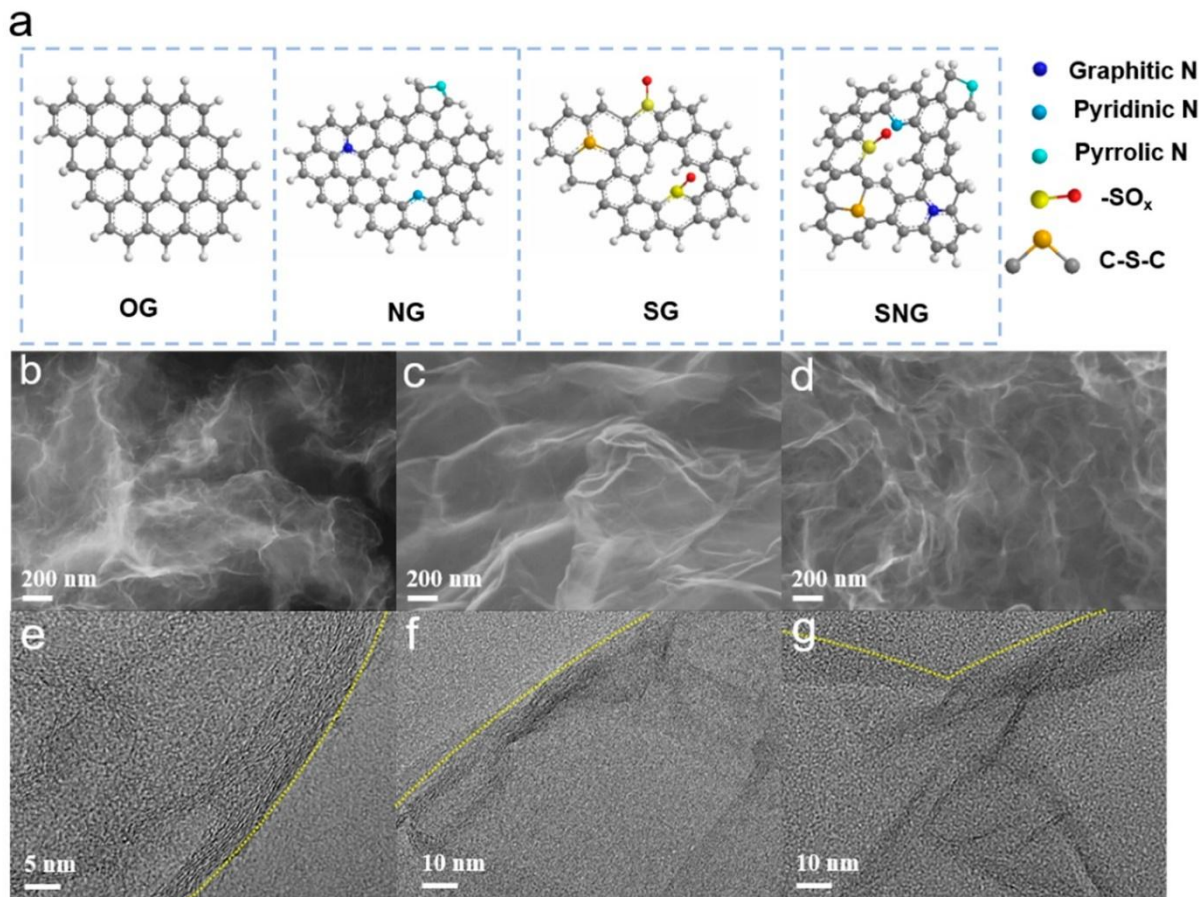


圖 4. (a) 示意圖，說明OG（氧化石墨烯）、NG（氮摻雜石墨烯）、SG（硫摻雜石墨烯）和SNG（氮硫共摻雜石墨烯）的結構。SEM（b-d）和TEM（e-g）圖像，展示NG、SG和SNG的形貌與結構[6]。

此類異質元素改質證明調控石墨烯表面化學性質可以有效提升其電化學降解污染物的性能。同時，在降解特別難處理的全氟化合物(PFAS)方面，科研團隊開發出廉價的石墨烯海綿陽極，可在含氯介質中分解長鏈PFAS而不產生有害的氯酸鹽或過氯酸鹽副產物——相較傳統電極（如鉑或BDD）容易把氯離子氧化成有毒副產物，石墨烯電極對氯相對惰性，大幅降低了二次污染風險[7]。

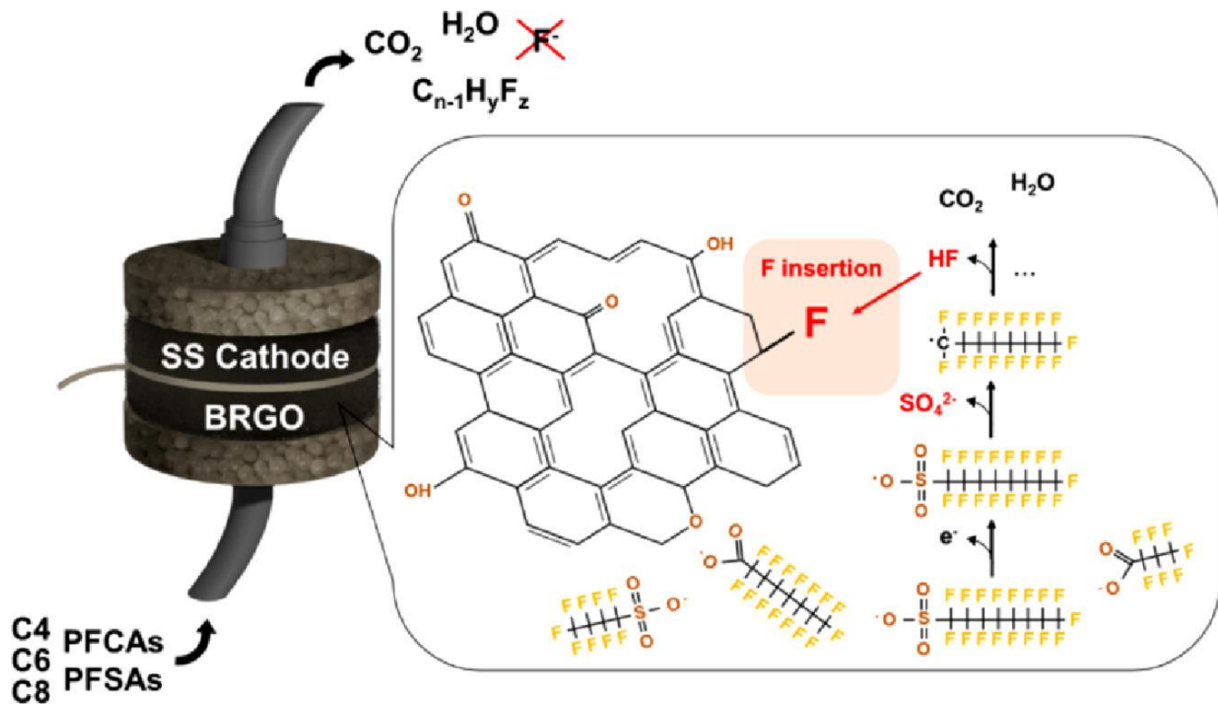


圖 5. 利用硼摻雜還原氧化石墨烯（BRGO）陽極在電化學系統中同時實現PFAS的電吸附與高效去氟分解，產生無氟產物如CO₂與H₂O[7]。

以上種種進展彰顯出石墨基電極在污染物移除與降解技術上的巨大潛力。然而，目前相關研究大多著重於單一功能，例如僅針對有機物的電化學氧化降解，或僅針對重金屬的吸附去除，鮮少有技術能同時兼顧兩類污染物的整治。而實際環境污染場址中，重金屬與有機污染共存的情形相當普遍（例如工業棄置場可能同時有重金屬和有機溶劑污染）。傳統上往往需要採用多段式、複合式工法各自處理，導致流程複雜、成本高昂且整治時間冗長。因此，開發單一整合技術以同步去除多類污染物，將可大幅簡化工藝並提高整治效率。有鑑於此，本研究提出「電輔助矽橋改質石墨烯電極」作為創新技術，期望結合材料科學與電化學的最新進展，填補現有整治技術的空白。所謂矽橋改質，係指在石墨烯結構中導入含矽的橋接鍵結：透過矽氧化合物將相鄰石墨烯層或片緊密連結，形成三維網絡結構。此舉有多重效益：（1）防止單層石墨烯片嚴重堆疊，有助維持高比表面積和多孔性，提供更多污染物作用位點；（2）矽元素的引入可在石墨烯表面形成矽氧官能團，增強對重金屬離子的鍵合作用，類似於矽醇基團螯合金屬的效果；（3）矽氧橋樑有望提升石墨烯電極的機械強度和熱穩定性，減少電化學操作下電極的剝蝕或劣化；（4）改質後的石墨烯電極仍保有良好導電性，可在通電下誘發電催化反應。綜上，矽橋改質石墨烯電極預期能同時兼具高效吸附與電催化雙重功能。在重金屬存在時，電極表面豐富的活性位點將吸附並固定金屬離子，隨後透過外加電位將其還原沉積為金屬單質或氫氧化物沉澱附著於電極上，實現重金屬的從水中移除與資源回收（電沉積）；對於有機污染物，石墨烯電極可作為陽極產生強氧化性的·OH自由基或直



接電氧化有機分子，將其分解為無害的小分子。同時，若電極作陰極則可發生活性氫還原反應，對某些難降解的含氧有機物（如硝基芳香族）進行還原斷鍵處理。由於石墨烯的高導電特性，以上電化學反應均可在相對較低電壓下進行，降低能耗[8]。

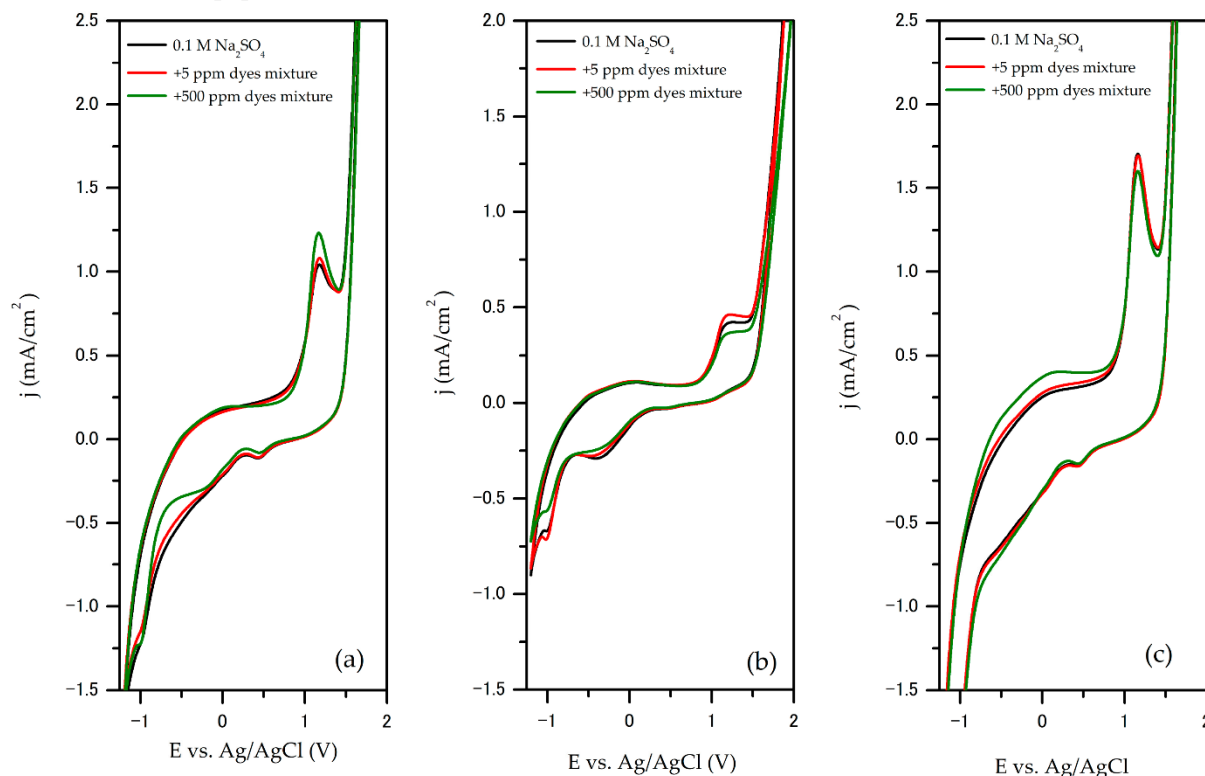


圖 6. (a) $\text{SnO}_2/\text{GNP}@SS$ （錫氧化物/石墨烯奈米片@不鏽鋼）電極；(b) $\text{TiO}_2/\text{GNP}@SS$ （鈦氧化物/石墨烯奈米片@不鏽鋼）電極；(c) $\text{GNP}@SS$ （石墨烯奈米片@不鏽鋼）電極[8]。

更重要的是，重金屬的去除與有機物的降解可在同一電極/裝置上同步發生，彼此協調而非相互干擾——例如重金屬的沉積不會產生大量污泥，反而附著在電極上可能催化部分有機反應；有機物被氧化分解後，其產生活性中間體（如有機酸）亦可能螯合電極上的金屬增進去除效率，形成良性循環。基於上述原理動機，本研究欲開發之電輔助矽橋改質石墨烯技術，有望突破傳統技術在多重污染整治上的瓶頸，為環境中重金屬與難降解有機污染物的協同去除提供新解方。



(二)研究目的

本研究旨在建立一套創新且系統性的技術，以電輔助矽橋改質石墨烯電極同時去除水體與土壤中的重金屬污染及降解有機污染物。為達成此目標，研究規劃將分階段展開，並針對關鍵科學與技術問題進行探討。以下說明本計畫之研究架構、創新點、執行步驟與預期效益：

1. 研究架構與階段劃分：本計畫預計透過三大階段逐步實現技術開發：(i) 材料製備與特性分析階段—合成矽橋改質石墨烯電極材料並進行物化特性鑑定，包括石墨烯矽橋鍵結的形成驗證、比表面積與孔隙度分析、表面官能團與電化學活性評估等；(ii) 污染物去除機理研究階段—在實驗室批次與連續流電化學系統中測試電極對代表性重金屬（如鉛Pb、鎘Cd、六價鉻Cr(VI)）及有機污染物（如酚類、染料、含氯有機物）的去除效率，觀測不同電位、電解質條件下的去除動力學，藉由產物分析和原位電化學測量解析重金屬電沉積機制和有機物電催化降解路徑；(iii) 技術整合與應用評估階段—模擬實際應用場景進行綜合實驗，例如在含多種重金屬與有機物的複雜廢水中驗證本技術的協同處理效能，或建立土壤柱試驗模擬原位電動力整治，評估電極在多孔介質中去除污染物的有效半徑與影響因素。同時，本階段將進行初步經濟分析與可行性評估，考量電極製造成本、能耗、使用壽命等，以研判技術放大應用的潛力。

2. 技術創新點說明：本研究的技術創新性主要體現在材料與方法的結合創新上。首先，在材料創新方面，矽橋改質石墨烯的提出屬於前沿構想：過去石墨烯改質多以氮硼摻雜或表面官能化為主，鮮少利用矽元素作為橋接劑來構築三維結構。本研究預期透過矽氧鍵將石墨烯片層連結，可創造出兼具高比表面積與結構穩定性的導電網絡，這在國內外文獻中尚屬新穎嘗試。另外在方法創新方面，傳統的重金屬去除與有機物降解技術各自獨立，而本計畫創新地將兩者耦合於單一電化學系統：利用一種電極材料同時實現重金屬的電吸附/沉積與有機污染物的電催化氧化。如此一來，不需分開進行多步驟處理，能大幅簡化流程並節省整治時間和成本。此種「一材多用」與「一槽多能」的設計理念為本研究的一大特色。此外，本技術還引入了電動力促進機制：藉由在土壤或含水介質中施加直流電場，提升重金屬離子的遷移速率，使其朝石墨烯電極聚集，加速污染物與電極的接觸反應。傳統電動力修復(EK)常需要添加電解質或協同植生/生物法來增進效果[9]；本計畫則創新地將EK與高效電極結合，在電極附近即完成污染物的捕集與分解，不僅簡化了增效措施，亦避免了外加化學品可能帶來的副作用。綜上，本研究從材料構築到作用機制皆有所創新，有望突破目前環境整治技術的瓶頸。

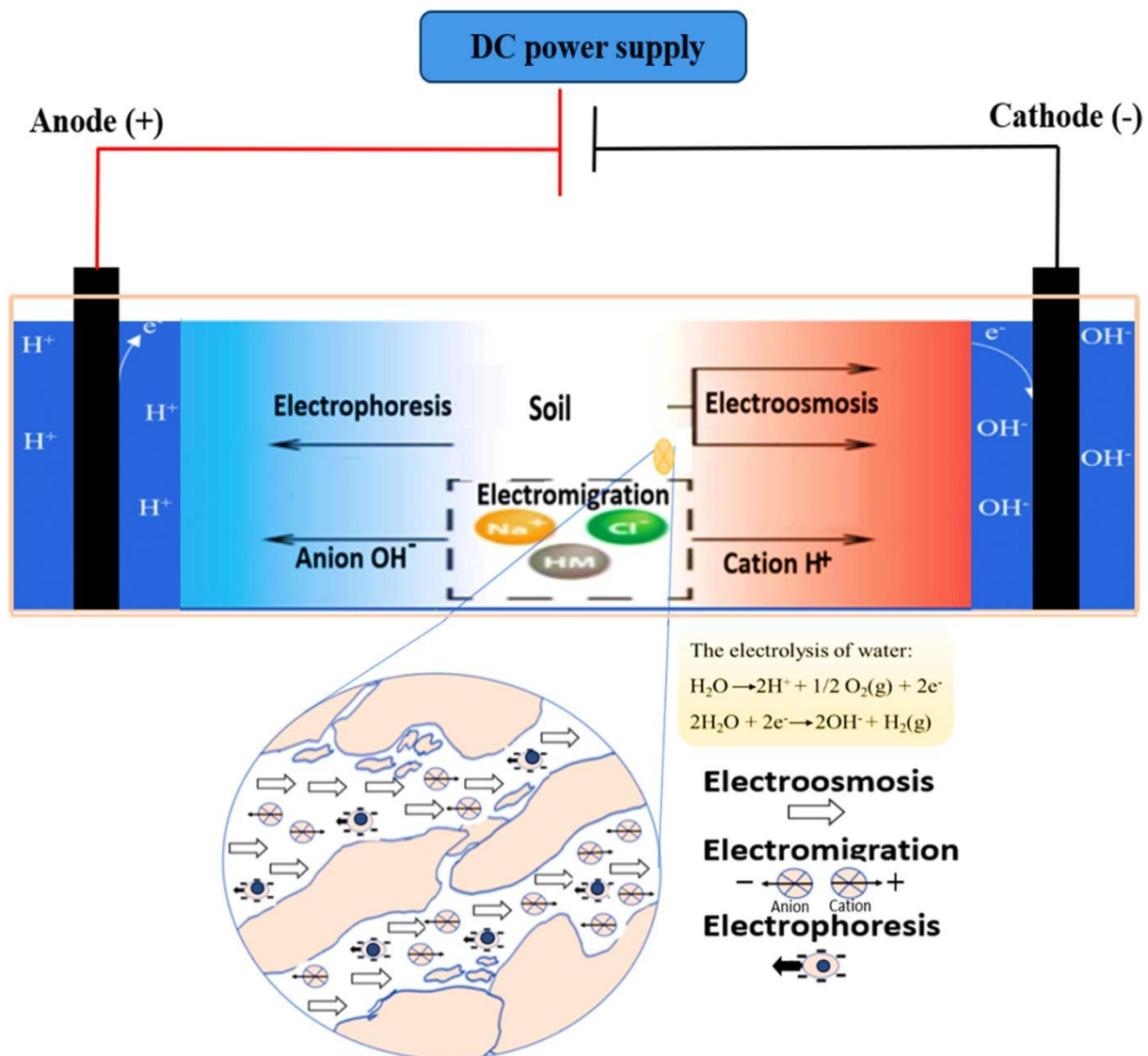


圖 7. EK 處理過程中發生的主要原理與機制[9]。

3. 應用場景與操作模式：本技術具備相當彈性的應用範疇，可因應不同污染介質採取適切的模式：（a）水體淨化裝置：對於污染地下水、工業廢水等，本技術可設計成一套流通式電化學反應器，內含矽橋改質石墨烯電極作為陽極/陰極。污染水體經過電極間時，重金屬離子被捕獲並電沉積於陰極表面，有機污染物則在陽極表面被氧化分解，如圖1所示該反應器可連續處理水流，出水即達標減量甚至無害化。此應用可作為傳統水處理系統的升級單元，特別適合處理含重金屬且難生物降解的工業廢水（例如電鍍廢水中同時含有重金屬離子和有機添加劑）。未來亦可將此技術縮小封裝，開發現地地下水修復裝置或井下反應器，直接在污染羽流中運行，降低抽出處理的需求。（b）土壤原位修復：對受重金屬與有機物複合污染的土壤，可採用原位電動力修復的模式：在污染場地布設多根石墨烯電極作為陰陽兩極，施加低電壓直流電場（<10 V/m），透



過電泳和電滲將帶電污染物朝電極方向遷移。在陰極區域，重金屬離子接受電子還原為金屬單質沉積；在陽極區域，有機污染物與產生的氧化性物種反應被分解。同時，矽橋石墨烯電極本身亦可作為反應牆截留污染，在地下形成一道主動式的攔截/降解屏障（參見表1對各類技術模式之比較）。與傳統原位修復相比，此模式不需大量抽出地下水或挖掘土壤，屬非開挖、原位的綠色整治技術，特別適合地下水位高且黏土含量高的場址（電動力對低透水性土壤有效）[9]。綜合而言，本技術可廣泛應用於水處理廠、污染場址原位修復、污染地下水阻截等情境，具備場域適應性和操作靈活性的優點。

4. 與既有技術之比較優勢：本研究所提之電輔助石墨烯電極技術在多方面展現出相對優勢。首先，相較於化學沉澱法，本技術無需投加大量中和劑或沉澱劑，因而不產生二次污泥[2]；重金屬以元素形式回收於電極上，可作資源化利用，避免了沉渣處置問題。其次，對比傳統吸附法，石墨烯電極的吸附位點在電場作用下可原位再生：施加反向電位可將吸附的重金屬解吸或溶出回收，使電極重複使用，突破了一次性飽和的限制。同時有機污染物並非僅被吸附儲存，而是被直接降解消除，杜絕了污染物濃縮轉移的隱患。再次，與高級氧化（如臭氧、UV/H₂O₂）相比，電化學氧化不需外加化學氧化劑，反應溫和可控，且在含氯介質中不會產生如氯酸鹽等有毒副產物[7]。另外，相較光催化技術需要光源及催化劑回收，本電化學系統可在黑暗環境中運行，對水質色度、透明度不敏感，電極亦固定不流失，因而在現地地下水或渾濁廢水中更具適用性。與目前性能卓越但造價昂貴的BDD電極相比，石墨烯電極材料成本低廉且製備方法簡便，可大幅降低設備造價。石墨烯電極的電催化效能雖略遜於BDD，但透過矽橋改質和系統優化可迎頭趕上，同時其能耗可能更低（因石墨烯低過電位特性）[4]。最後，與傳統電動力修復需配合化學增效劑或週期性換極不同，本技術的電極兼具攔截和反應功能，可大幅提升污染去除率並縮短處理時間[9]。綜合這些優勢，本研究之技術在多重污染整治情境下具有較高的綜合效益和競爭力。

5. 可行性說明與預期效益：從科學原理與初步試驗結果來看，本技術具備相當的可行性。首先，構成技術核心的石墨烯電極材料方面：石墨烯的環境應用已有大量前人研究證明其對重金屬和有機物的高效去除能力[1]；而矽橋改質雖屬新穎概念，但類似的矽摻雜在鋰電池電極等領域已證實可強化碳材料的導電和機械性能[10]。

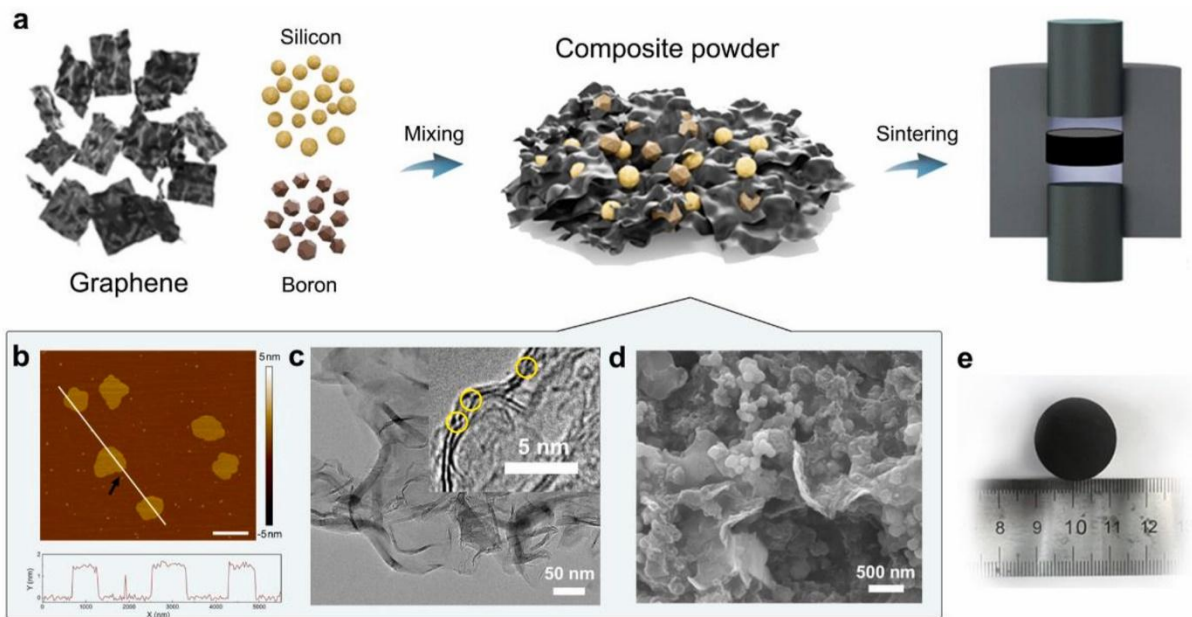


圖 8. (a) 石墨烯/陶瓷複合材料製備過程圖，(b) 石墨烯的AFM圖像，(c) 石墨烯的TEM圖像，(d) 複合材料粉末的SEM圖像，(e) 3B-Si-G樣品的照片 [10]。

因此，有理由相信透過適當的化學製程可成功製備出符合要求的改質石墨烯電極。其次，在重金屬移除可行性上：文獻顯示石墨烯氧化物對多種重金屬（ Pb^{2+} 、 Cd^{2+} 等）吸附容量遠高於傳統材料，且經簡易酸洗可解吸再生[1]。本研究進一步結合電沉積，預期可在陰極將金屬以單質形式析出，這一過程與工業電解採礦原理相似，技術上成熟可靠。同時，有機物降解方面：碳基電極在電化學氧化領域已有成功範例，近期的研究已經證明以摻雜石墨烯為陽極能有效降解持久性污染物並避免副產物生成[7]。因此，將石墨烯電極應用於難降解有機物的電催化是可行的路徑。此外，重金屬與有機物協同去除的可能性也獲得文獻支持：有研究指出，導電性GO宏觀結構在外加能量下可同時去除水中重金屬與污染物[1]。本計畫即是沿著此思路發展出更進一步的具體方案。在實驗設計上，將透過小規模試驗平台逐步驗證上述各項機制，再整合至單一系統進行混合污染測試，以降低開發風險。倘若本研究順利完成，預期可產出如下效益：(1) 技術效益：開發一套新型環境修復技術，實現對重金屬與難降解有機污染物的高效、同步去除，處理後介質達到環保法規標準，減少污染對生態與健康的危害；(2) 經濟效益：相較傳統多重工藝，本技術流程簡化，可降低整治工程的設備與運行成本。且重金屬回收再利用具有經濟價值，有望部分抵銷處理費用，符合資源循環利用的趨勢；(3) 環境效益：避免大量化學藥劑投加和二次廢棄物產生，屬環境友好型技術。原位整治方式減少了污染土壤挖除棄置對環境的額外擾動，整體碳足跡也可望低於傳統方法；(4) 學術創新價值：本計畫



將產生關於矽改質石墨烯材料及其電化學行為的科學數據，可在國際期刊發表論文，提升我國在環境奈米材料與電化學修復領域的學術影響力；(5) 政策與實用性：本技術若成功，可作為環境部未來推廣污染整治的新利器，應用於目前棘手的污染場址（如農地重金屬、工業溶劑地下水污染等）[3]。這將協助政府加速污染整治時程，落實土壤及水體環境永續。總而言之，本研究不僅具前瞻性的技術創新，也緊密呼應當前環境治理的實際需求，預期其成果將同時體現學術價值與實際貢獻。



(三)文獻探討

3.1 石墨烯材料應用於污染物去除

石墨烯及其衍生物（如氧化石墨烯GO、還原氧化石墨烯rGO）因具有巨大的比表面積和可調控的官能團而被廣泛研究於水中污染物去除。近年來的研究顯示，透過調變石墨烯材料的表面化學性質，可有效提升對重金屬離子和有機污染物的吸附能力及降解效率。下文將從GO/rGO去除重金屬、GO去除有機污染物、石墨烯基複合材料，以及改質方法對性能的影響等方面進行論述。

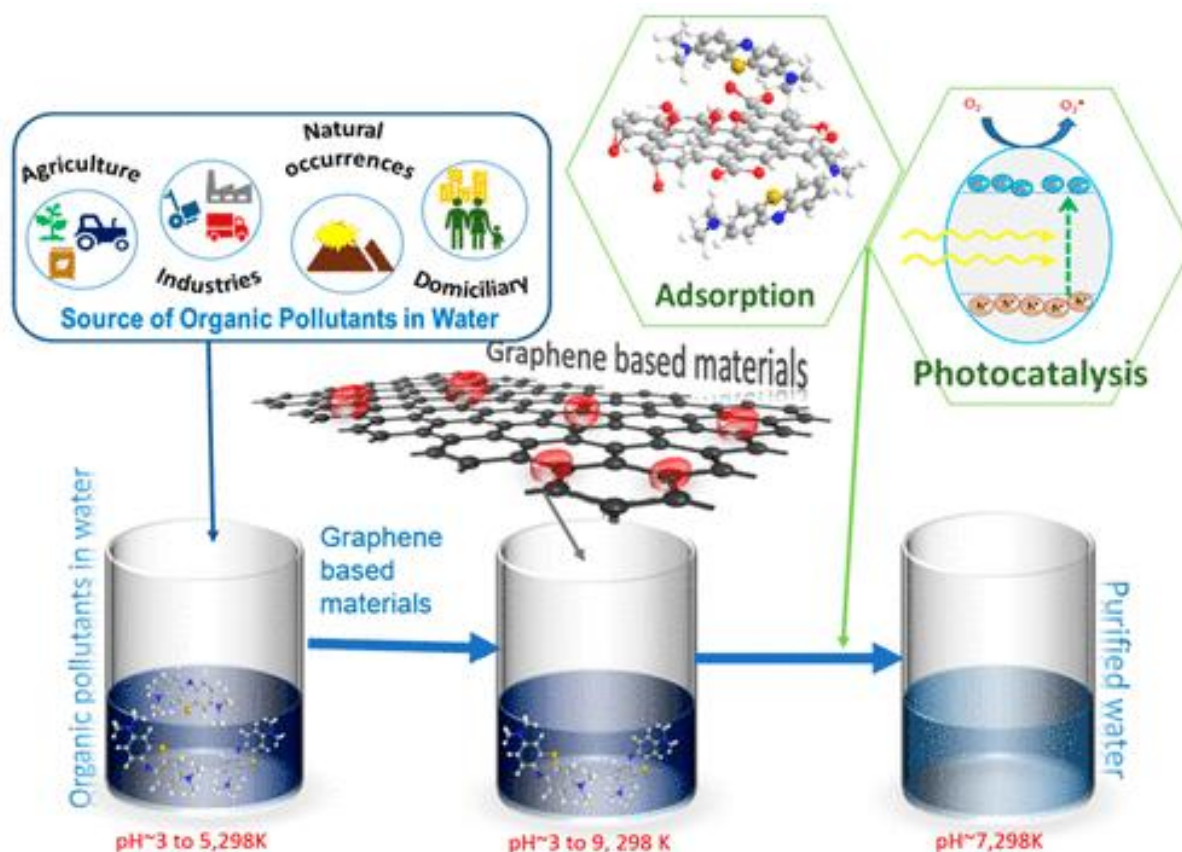


圖 9. 石墨烯及其衍生材料可透過吸附與光催化作用，有效去除來自農業、工業與家庭等來源的有機污染物，進而淨化廢水[11]。

3.1.1 GO與rGO對重金屬離子之吸附與電化學去除

GO表面富含羧基、羥基等含氧官能團，能與 Cu^{2+} 、 Pb^{2+} 、 $Cr(VI)$ 等重金屬離子



發生配位和靜電作用，因此GO對重金屬具有優異的吸附性能[12]。

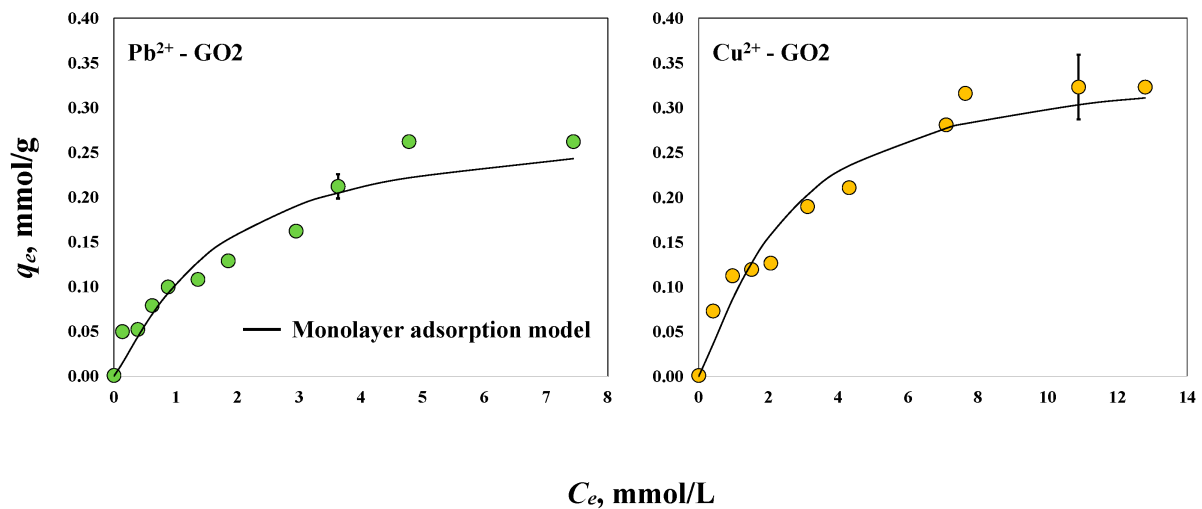


圖 10. 使用氧化石墨烯 (GO) 樣品進行磁輔助吸附 Pb^{2+} 與 Cu^{2+} 的實驗吸附等溫線[12]。

例如，有研究指出未改質GO對Cu(II)的飽和吸附量約為40 mg/g (Langmuir模型) [13]；而對Pb(II)的吸附容量更高，可達數百 mg/g。在 Pb^{2+} 去除方面，Wei等人 (2019) 製備了GO/凹凸棒土複合吸附劑，於pH 5、25 °C條件下 Pb^{2+} 的最大吸附容量達450.9 mg/g[14]；該研究並發現以稀鹽酸洗脫可再生此複合材料，而高濃度鹽酸則會破壞其結構。

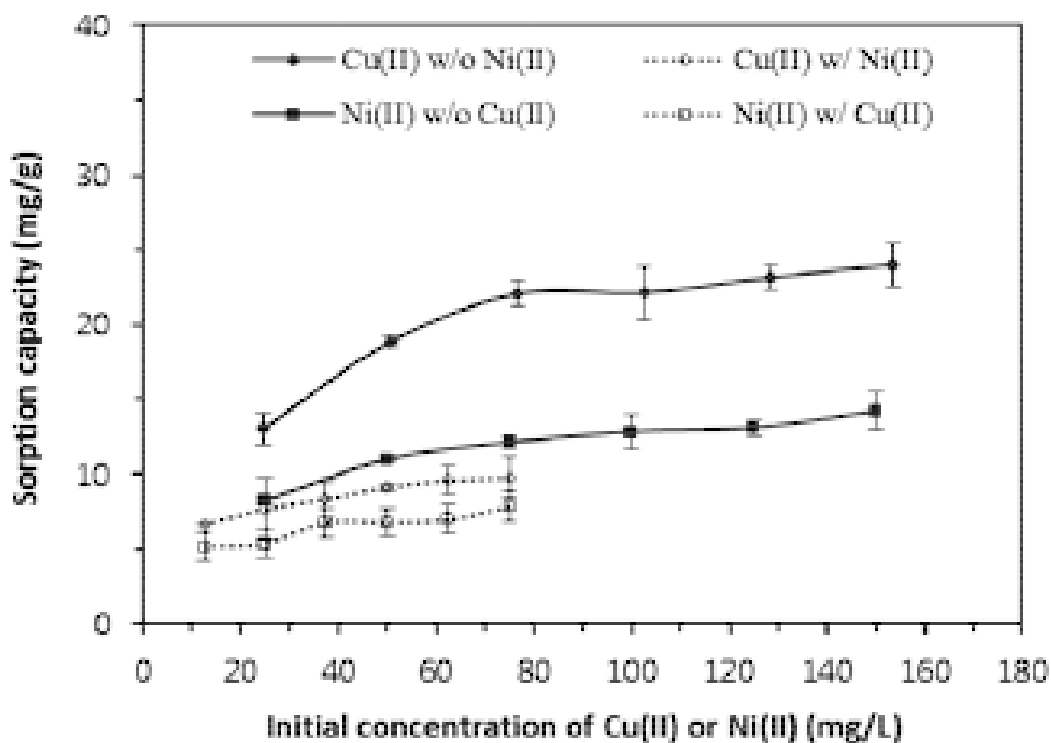




圖 11. 在有無競爭性 Ni(II) 離子存在下，Cu(II) 在氧化石墨烯 (GO) 上的吸附行為[13]。

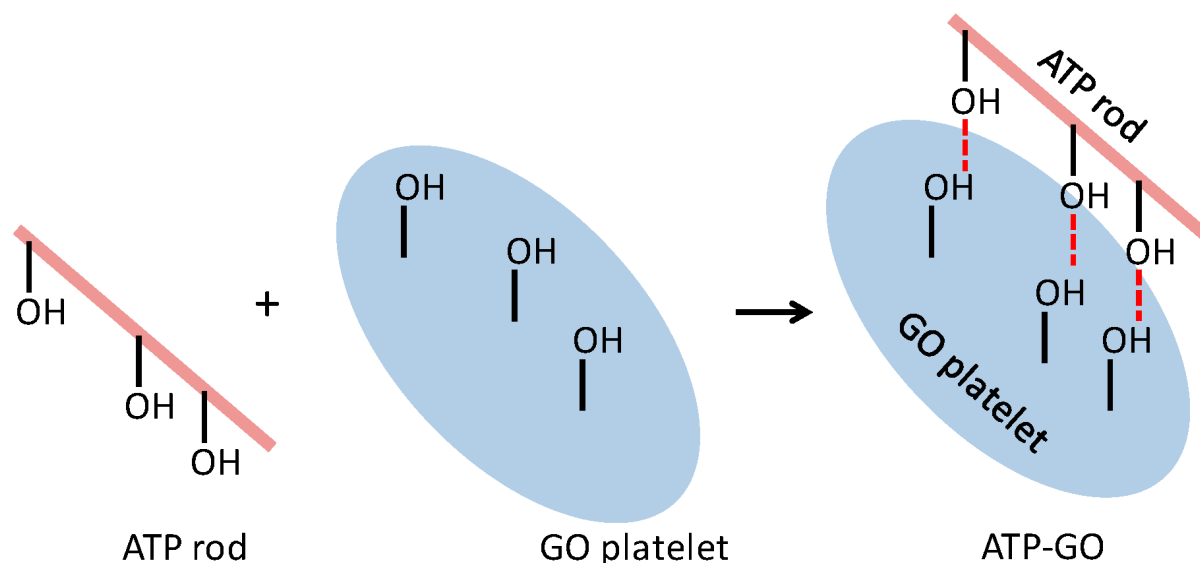


圖 12. 石墨烯氧化物 (GO) 與坡峰石 (ATP) 之間反應的示意圖[14]。

相比之下，rGO因含氧官能團較少，對金屬離子的吸附容量通常低於GO，但其高導電性使其適合用於電化學去除重金屬。例如，Wang等人（2017）將GO水凝膠還原並壓製成電極，用於 Pb^{2+} 的電吸附去除。在施加-1.2 V電壓時，該rGO水凝膠電極對 Pb^{2+} 的去除效率高達96.4%，電吸附容量達461.2 mg/g，約為無電場靜態吸附容量的兩倍。更重要的是，經+1.2 V極性反轉即可實現電極再生，連續15個吸附-脫附循環後 Pb^{2+} 去除率仍保持在95%以上，顯示出優異的再生性能[15]。除了電容式吸附，石墨烯基電極還可透過電化學還原直接去除有毒重金屬。Ma等人（2022）報導了一種負載鈇奈米粒子的石墨烯改質不銹鋼陰極，用於電化學還原Cr(VI)為Cr(III)。該電極在最佳條件下對Cr(VI)的去除率高達99.70%，實現了近乎完全的六價鉻消除[16]。

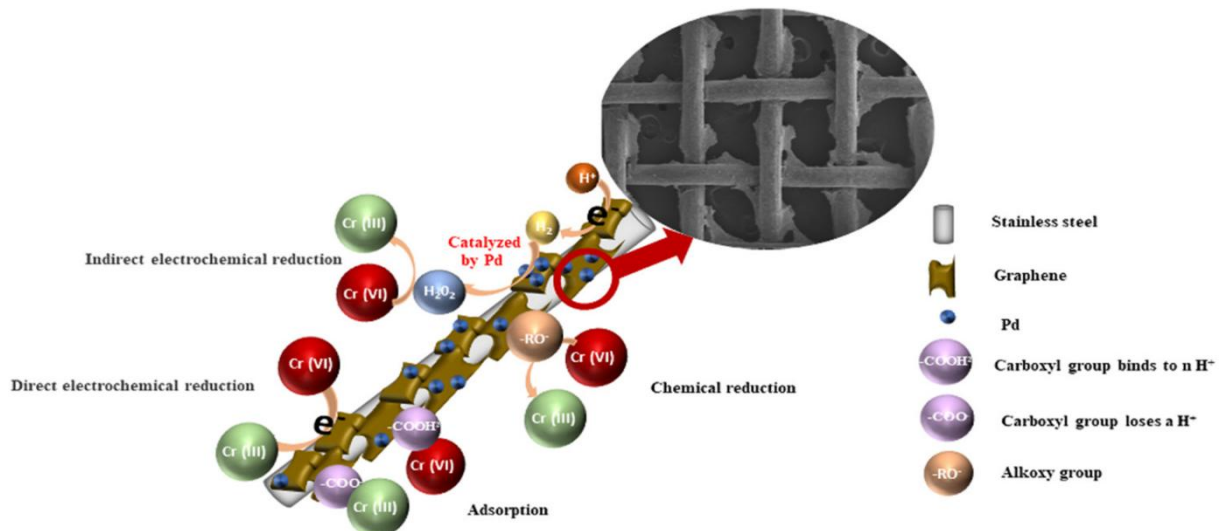


圖 13. Pd/石墨烯修飾不鏽鋼電極通過直接與間接電化學還原、吸附作用與化學還原等多重機制，有效去除廢水中的Cr(VI)至Cr(III) [16]。

總體而言，GO對二價重金屬（如 Pb^{2+} 、 Cu^{2+} ）具有較高的吸附親和力，而經導電改質的石墨烯（如rGO及其複合電極）則可用於電場輔助下提升重金屬去除效率。

3.1. 2GO在有機污染物之吸附與電催化降解

GO對於有機污染物的去除主要有兩種作用方式：其一是作為吸附劑，利用表面的芳香環結構與污染物分子發生 π - π 堆疊和氫鍵作用；其二是作為電催化劑或助劑，加速有機污染物的降解反應。在染料去除方面，GO對帶有芳香環的有機染料表現出良好吸附能力。例如，Suraj Sah等人（2019）比較了未改質GO與三乙醇胺改質GO對有機染料甲基藍（MB）的吸附，結果顯示改質後的GO最大吸附容量可達457.15 mg/g，遠高於純GO的331.87 mg/g。這是由於引入的三乙醇胺提高了GO表面的陰電性和活性位點數量，從而增強了對陽離子染料的靜電吸引及 π - π 作用[17]。

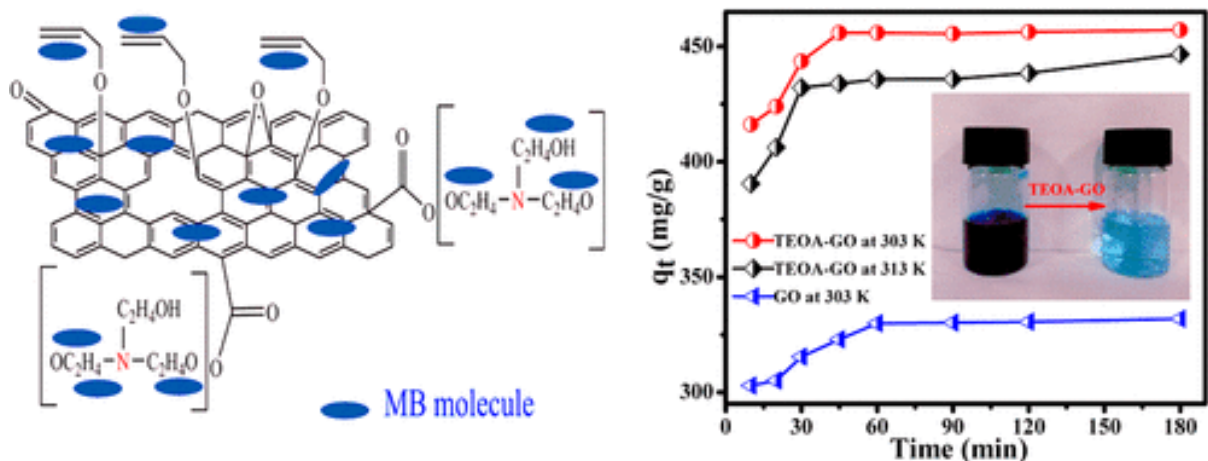


圖 13. 三乙醇胺修飾氧化石墨烯（TEOA-GO）可通過 π - π 堆疊與靜電作用高



效吸附亞甲基藍（MB），其吸附容量遠高於未修飾GO，且具有良好的重複使用性[17]。

此外，該改質GO在重複5次吸附-解吸循環後吸附性能幾乎沒有下降，顯示出良好的再用性。對於較難吸附的疏水性有機污染物，如內分泌干擾物雙酚A（BPA），則可透過調控GO的官能團來大幅提升去除效果。Al-Qadri等人（2022）的研究指出，未改質GO幾乎不吸附BPA（ $q_{\text{max}} \approx 16 \text{ mg/g}$ ），而經水合肼還原的rGO對BPA的吸附量提高至87 mg/g。進一步地，將短鏈有機胺共價接枝到GO表面可大幅增強對BPA等酚類污染物的去除：以二乙胺（DEA）改質的GO對BPA的飽和吸附量達334.4 mg/g，較未改質GO提升了20倍以上；即使與rGO相比，其吸附容量也高出近四倍[18]。

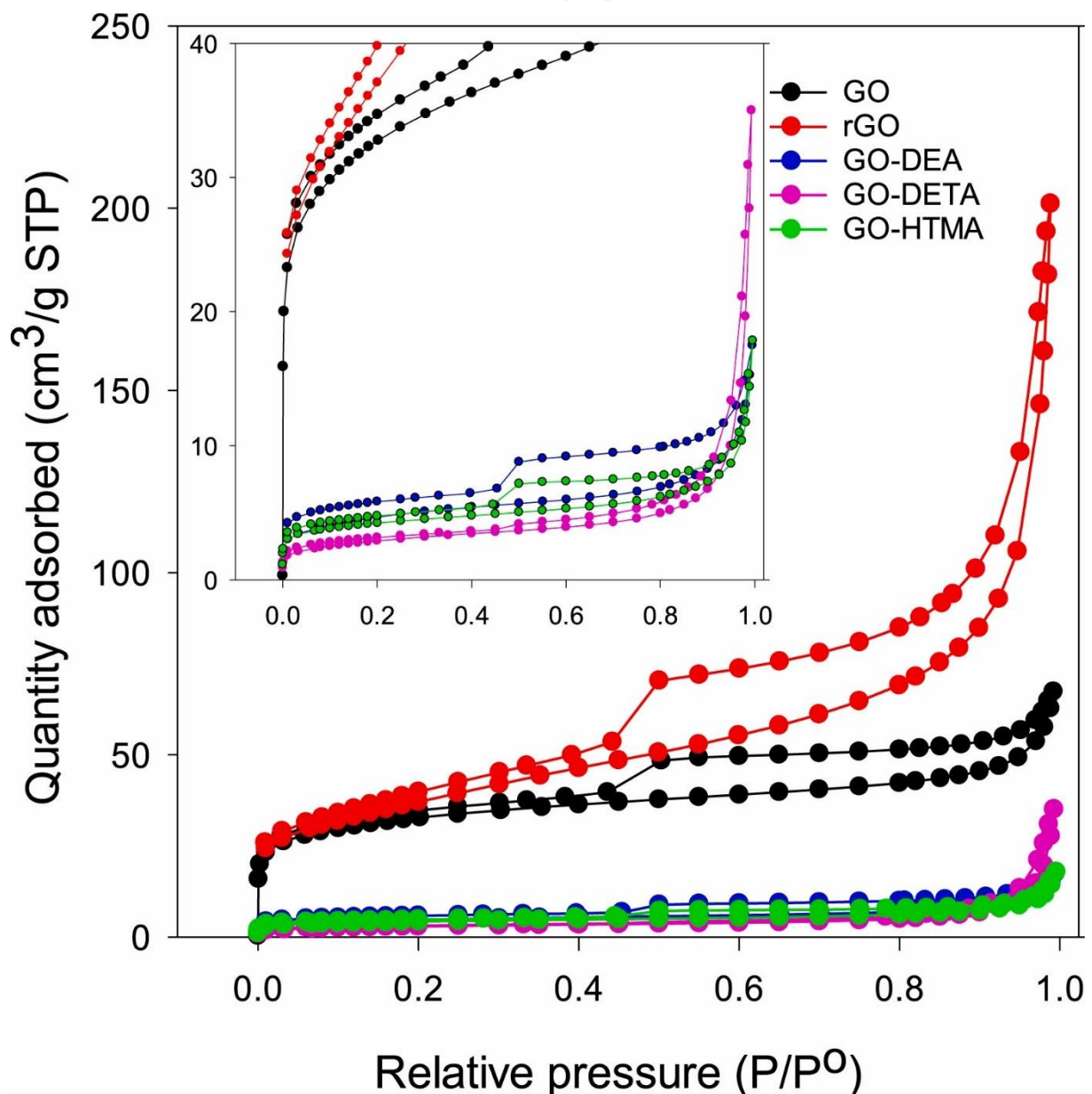


圖 14. GO、rGO 以及胺基功能化 GO 樣品的氮氣吸附-脫附等溫線。插圖顯示



的是在標準溫壓條件下至 $40 \text{ cm}^3/\text{g}$ 的數據[18]。

機理上，胺基增強了GO與酚環之間的氫鍵和 $\pi - \pi$ 作用，同時提高了對BPA的親和性。除了直接吸附，石墨烯材料亦可作為電催化降解有機物的電極或催化劑載體。Tang等人（2023）製備了一種N摻雜石墨烯氣凝膠(NGA)陰極，用於電化學芬頓法降解對硝基酚（p-NP）。由於N原子的引入提高了氧氣還原產生過氧化氫的效率，該陰極在通氣條件下能持續產生 $\cdot\text{OH}$ 等氧化自由基。實驗結果顯示，在最佳條件下60分鐘內p-NP去除率接近100%，120分鐘總有機碳（TOC）去除率達84%。此外，NGA陰極在多種水體基質中均表現出良好的適用性和穩定性，連續運行多輪仍能保持高效活性[19]。

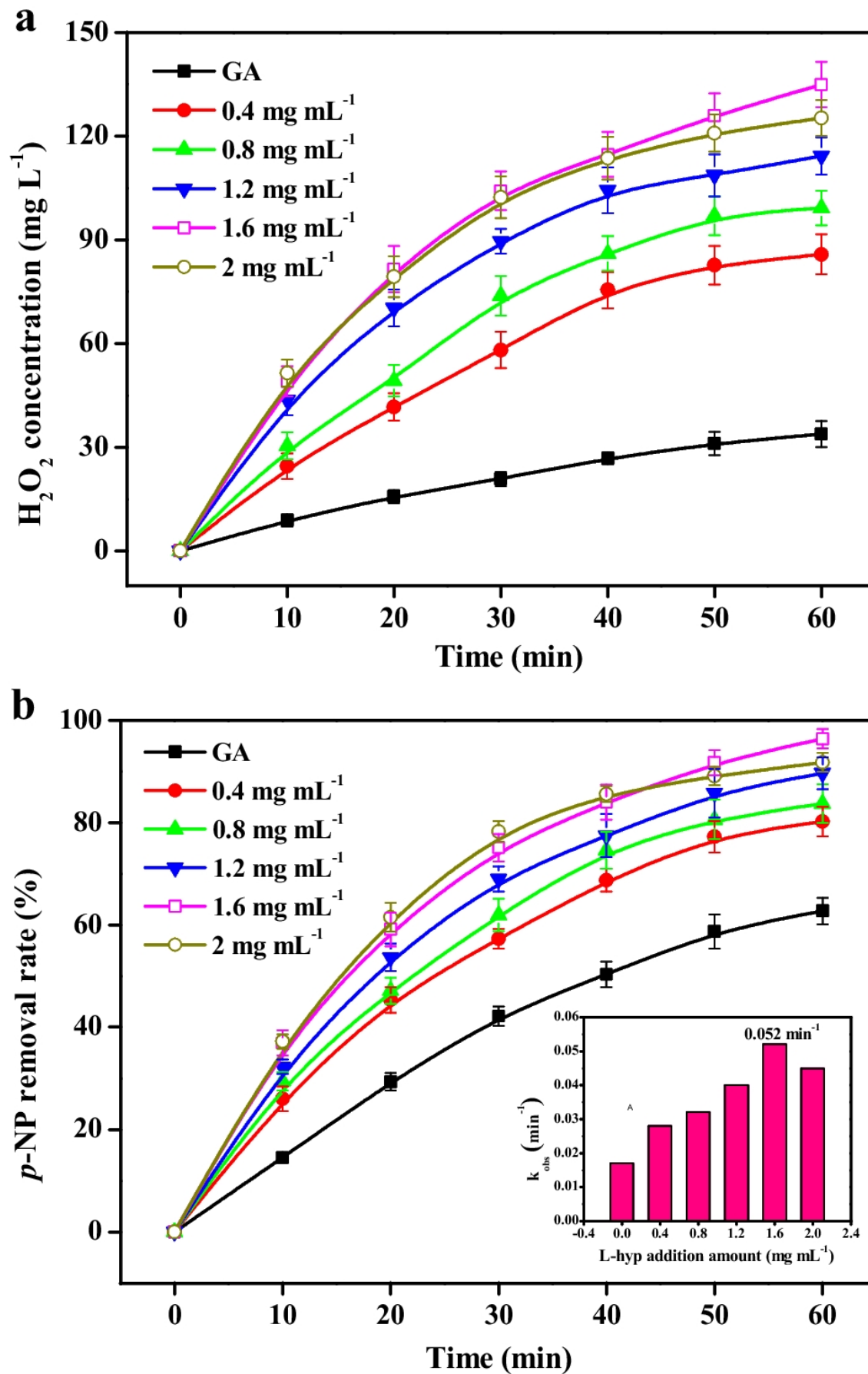




圖 15. 具有內部曝氣功能的氮摻雜石墨烯氣凝膠陰極，用於提升電芬頓法對對硝基酚的降解效率[19]。

以上研究表明，透過化學還原、官能團引入或雜原子摻雜等手段調控GO表面性質，可顯著增強其對有機污染物（包括染料、酚類等）的吸附和電催化降解能力。

3.1.3 石墨烯基複合材料在污染物去除中的應用

將GO/rGO與其他功能材料複合是提升污染物去除性能的有效策略。常見的石墨烯基複合材料包括：磁性GO（如GO/Fe₃O₄）、金屬有機骨架複合物

（GO/MOF）、半導體氧化物複合物（如GO/TiO₂、GO/MnO₂）以及高分子改性石墨烯等。這類複合材料往往結合了各組分的優點，例如提高比表面積、增加活性位點、方便固液分離等。在重金屬去除方面，磁性GO因內含Fe₃O₄等磁性顆粒，可透過外加磁場實現對吸附劑的快速回收，同時提供協同的吸附/沉澱作用。有報導指出，一種磁性GO/生物高分子複合材料對Pb²⁺的吸附容量可達200 mg/g，對Cu²⁺、Zn²⁺亦有數十 mg/g的容量[20]。

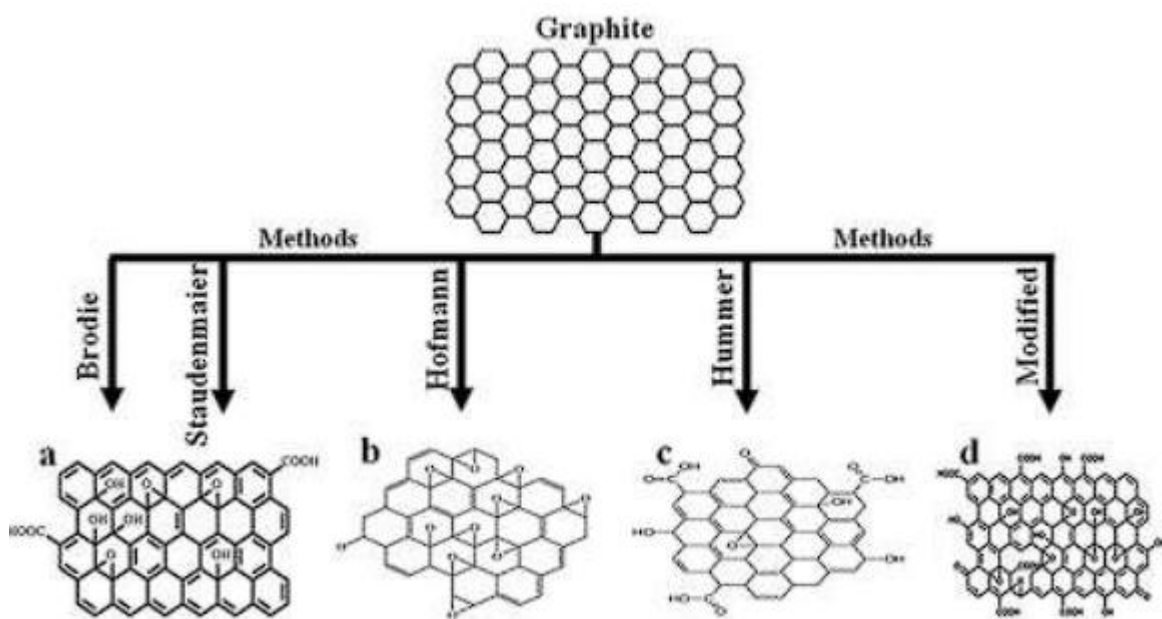


圖 16. 石墨烯氧化物的結構圖，包括以下製備方法所得之產物：(a) Brodie 與 Staudenmaier 法製備的石墨烯氧化物結構(b) Hofmann 法製備的結構圖(c) Hummers 法製備的石墨烯氧化物(d) 改良式方法製備的結構圖[20]。



此外，將GO引入金屬有機框架（MOF）可克服單一MOF在水中穩定性不足的問題。Liu等人（2021）製備了GO/MIL-101(Fe)複合材料，將MIL-101晶體原位生長於GO片層上。該複合材料對有機染料甲基橙（MO）的吸附容量明顯優於純MIL-101：MIL-101的飽和吸附量為117.74 mg/g，而摻入10% GO後提升至186.20 mg/g。這主要歸因於GO的引入改善了MOF對染料分子的分散和傳輸，同時提供了額外的吸附位點。該GO/MOF複合吸附劑可重複使用至少3次，性能無明顯下降[21]。

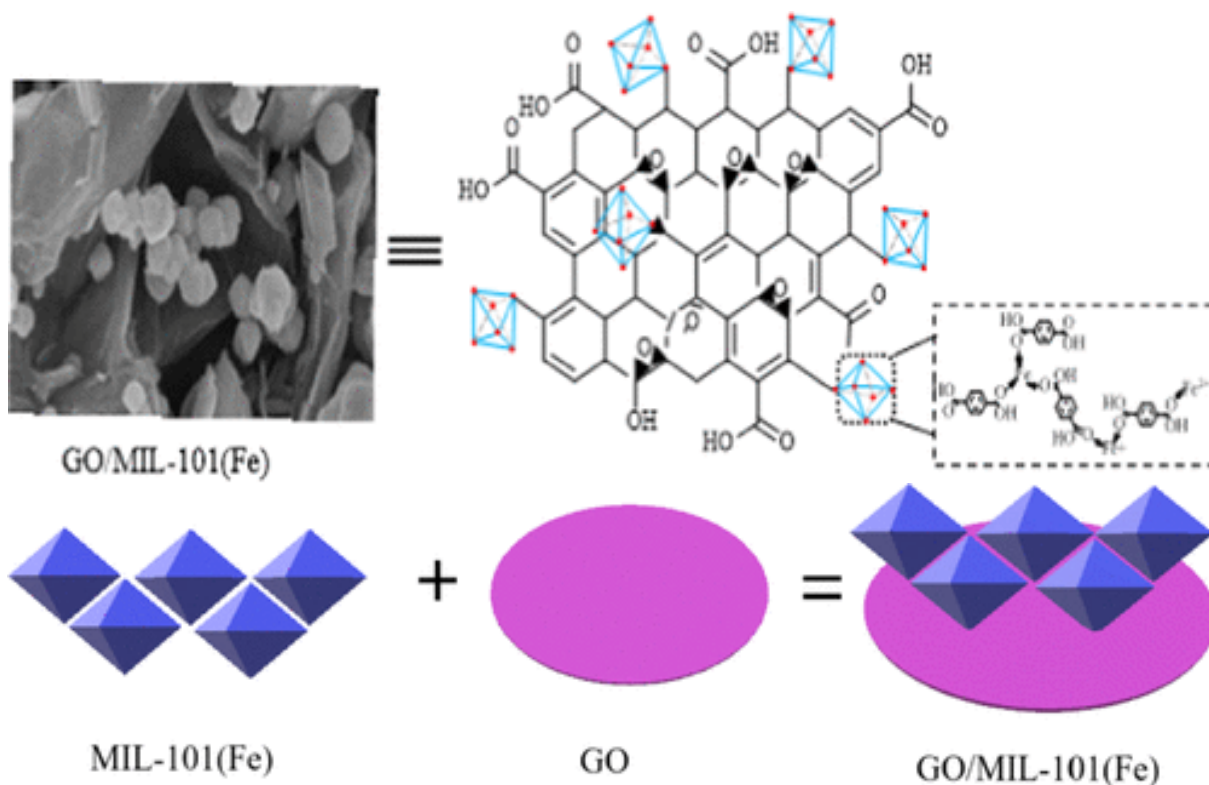


圖 17. MIL-101(Fe) 與 GO/MIL-101(Fe) 的模型和結構示意圖[21]。

石墨烯與半導體金屬氧化物的複合則常用於污染物的光/電催化降解。例如，GO與TiO₂複合能拓寬光吸收波長並促進光生電荷分離，有助於提高對有機污染物的光催化分解效率；GO負載MnO₂則可同時提供對Cr(VI)的吸附和還原作用，使六價鉻更高效地轉化為三價鉻。此外，GO與生物高分子（如殼聚糖、海藻酸鹽）形成的複合凝膠也被用於重金屬和染料去除，兼具高吸附容量和良好機械強度[22, 23]。

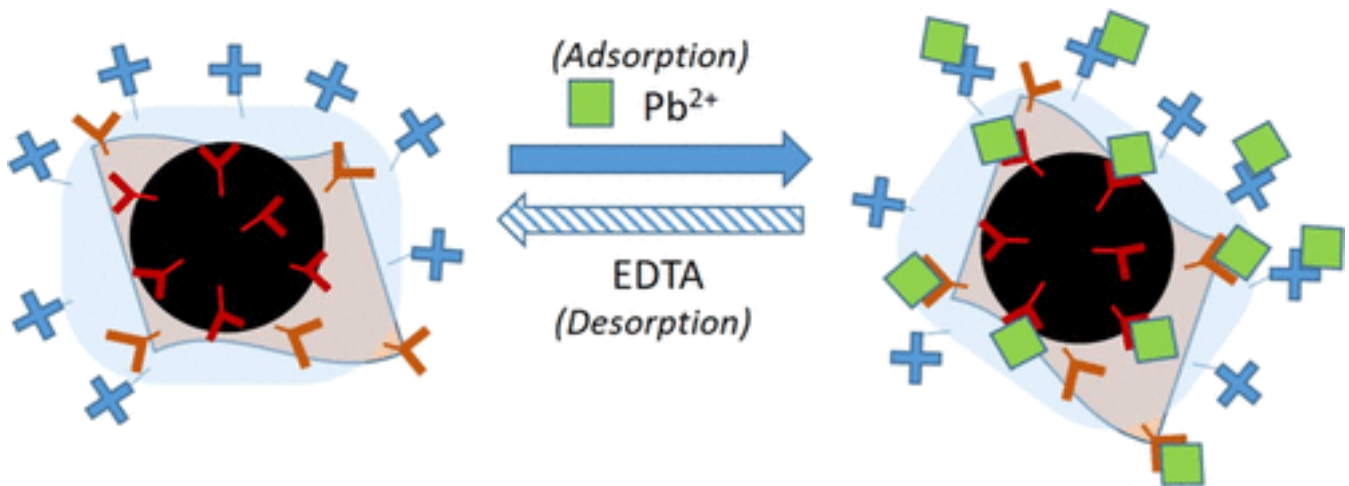


圖 18. 石墨烯氧化物/ Fe_3O_4 /幾丁聚糖 (GFC) 奈米複合材料可透過吸附作用去除水中 Pb^{2+} ，並可利用EDTA實現脫附與再生循環使用[22]。

綜上，各類石墨烯基複合材料在污染物去除中展現出比單一組分材料更佳的性能，如更高的去除率、更快的動力學以及更方便的分離回收，因而成為水處理領域的研究熱點。

3.1.4 不同改質手段對石墨烯吸附性能、選擇性與再利用性的影響

石墨烯材料的吸附能力和應用表現高度依賴其表面化學和結構特徵。通過物理或化學改質手段，可針對目標污染物優化石墨烯的吸附選擇性和再生性能。(1) 含氧官能團含量：GO與rGO在性能上的一大差異即為含氧基團多少。含氧基團提供了與金屬離子配位的活性位，因而GO對重金屬離子的吸附通常強於rGO[12]；但相對地，GO表面親水性較強，對疏水有機物的吸附不如疏水性的rGO。上述BPA去除研究即驗證了這一點：未還原的親水性GO難以富集BPA，而疏水性的rGO則明顯增強了對BPA的吸附[18]。因此，透過控制GO的還原程度，可在吸附極性無機離子和非極性有機物之間取得平衡。(2) 功能基團引入：在石墨烯表面接枝特定官能團可賦予其對某類污染物的選擇性吸附能力。例如，引入多齒配體如乙二胺四乙酸 (EDTA) 或多胺分子可顯著提升對重金屬離子的螯合吸附。早期研究顯示，EDTA改質GO對 Pb^{2+} 的飽和吸附量可達約479 mg/g，在 $\text{pH}\approx 6.8$ 時20分鐘內即完成吸附平衡，且經稀酸洗滌後可實現吸附劑再生[24]。

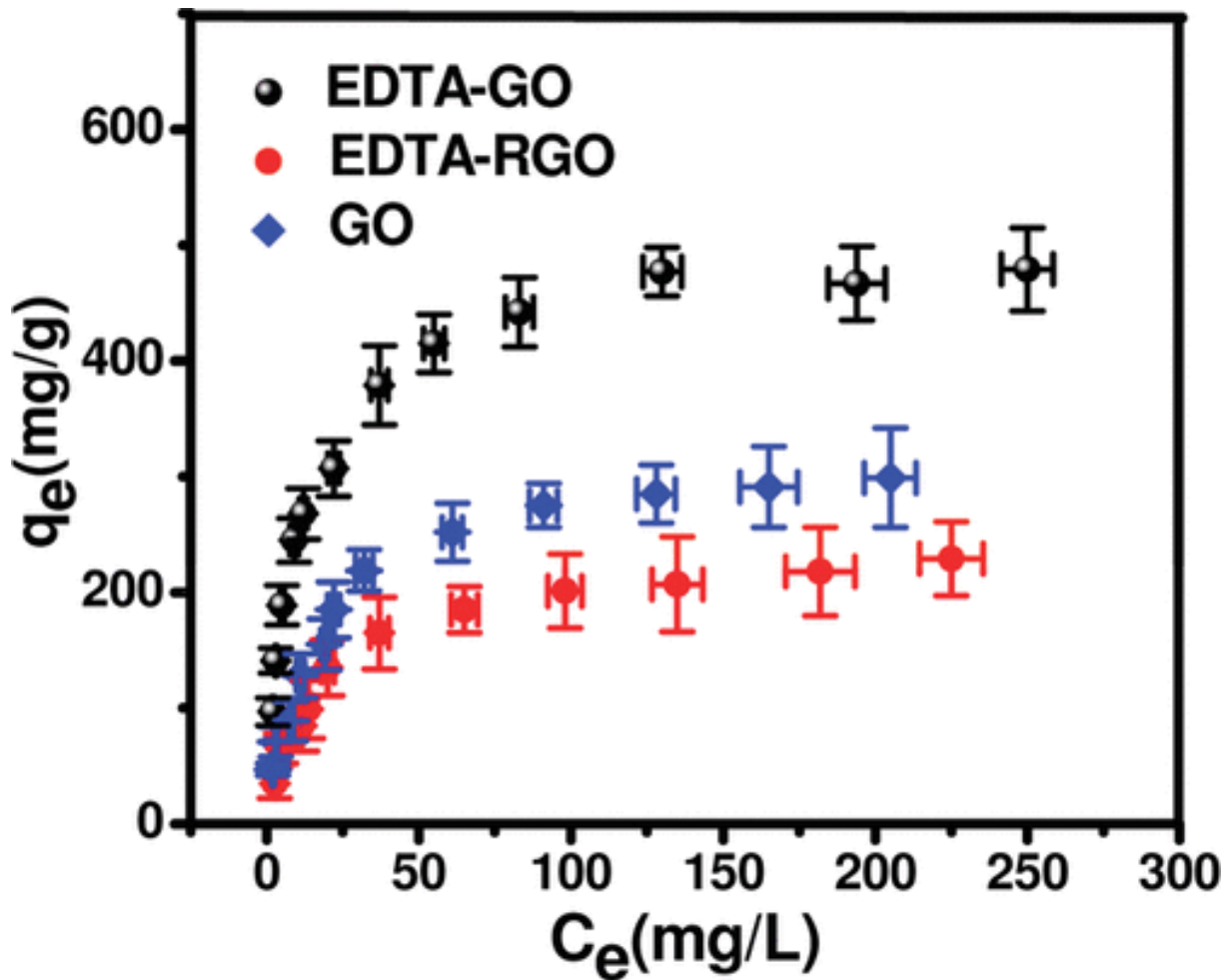


圖 19. 在 pH 6.8 下，Pb(II) 在三種吸附劑上的吸附等溫線[24]。

類似地，於GO表面接枝二乙胺（DEA）或二胺類分子則大幅增強了對酚類污染物的吸附（如前述對BPA吸附提升數倍）[18]。再例如，接枝含硫的巰基(-SH)基團可提高對軟酸金屬離子（如 Hg^{2+} 、 Pb^{2+} ）的選擇性，含磺酸基(- SO_3H)則有助於去除陽離子染料等。(3) 雜原子摻雜：將氮、硼、硫等雜原子摻入石墨烯骨架能改變其電子結構和表面酸鹼性，從而影響吸附和催化性能。以氮摻雜為例，N原子的引入可賦予石墨烯路易斯鹼位點並提高導電性，Tang等人（2023）的N摻雜石墨烯氣凝膠電極因增加了活性缺陷和N功能團，成功提高了電催化產生過氧化氫及 $\cdot OH$ 的效率，實現對p-NP的高效分解[19]。

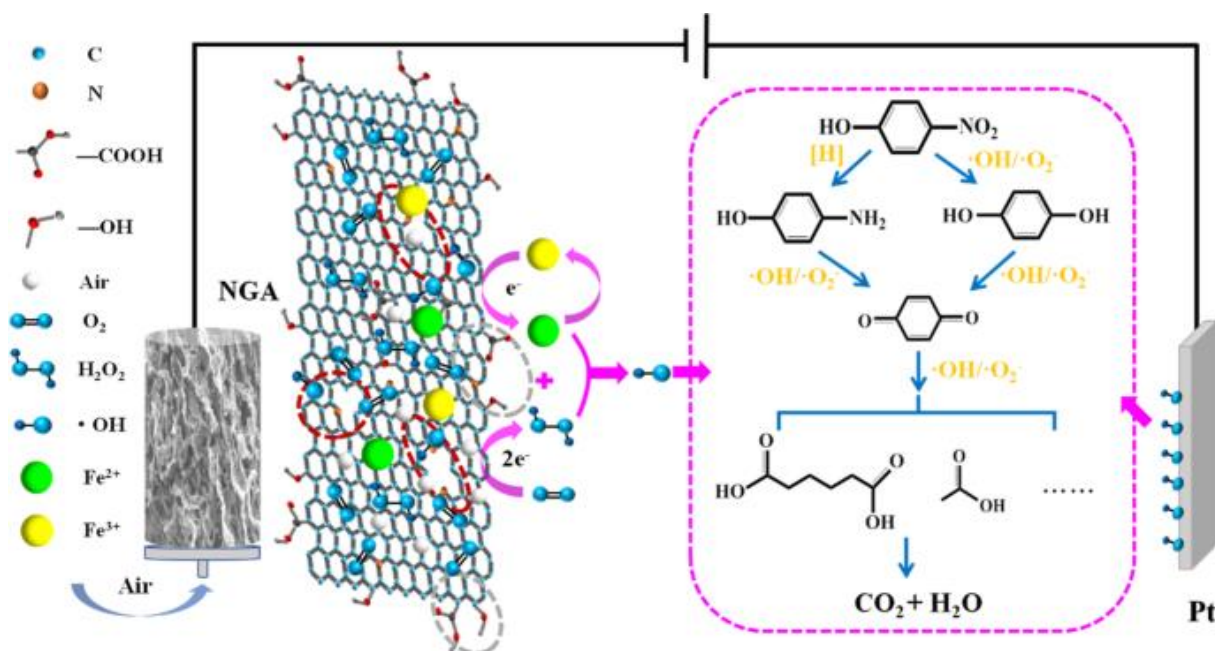


圖 20. 在電芬頓 (EF) 系統中，使用 NGA 陰極對對硝基苯酚 (p-NP) 之可能降解途徑的示意圖。

氮摻雜石墨烯對苯酚類、硝基芳香族等污染物的電化學降解均有促進作用。(4) 組裝與形態控制：將石墨烯材料構築為三維多孔結構（如氣凝膠、海綿、薄膜）可提高其機械穩定性和可操作性。例如，上述rGO氣凝膠電極在多次循環使用後仍保持高效，即得益於三維網絡結構防止了石墨烯的堆積並提高了傳質效率[15]。又如製備磁性石墨烯微球、薄膜，能方便地從水中分離回收並反覆使用。總之，不同改質方式對石墨烯材料的吸附性能、選擇性和再利用性有明顯影響：合理的化學改質可提高特定污染物的親和力與選擇性，而形態結構的優化則有助於提升實際應用中的操作性能和循環壽命。透過上述改質手段的協同運用，石墨烯基材料在水污染治理中展現出巨大的應用潛力。

3.2 功能化改質對吸附與導電能力之提升

3.2.1 功能化原理與結構分析

石墨烯氧化物 (Graphene Oxide, GO) 具備高比表面積與豐富含氧官能團（如羧基、羥基與環氧基），使其成為環境與能源材料研究中的重要載體之一。然而，GO 本身的導電性不佳、界面活性受限，因此許多研究嘗試透過官能化改質提升其應用效能。

功能化石墨烯氧化物的方式多樣，包括使用乙二胺 (EDA)、3-氨基丙基三乙氧基矽烷 (APTES)、多胺類化合物（如 PEI）、以及其他含氮小分子等。這些官能化劑能與 GO 的含氧官能團反應，賦予其更多反應位點與選擇性，並調控其導電性與穩定性。



例如，Wu 等人（2020）設計以乙二胺為連結劑將 GO 片層接枝形成三維結構，應用於鋰電池中作為導電骨架，但其合成策略與反應條件對重金屬捕捉亦具啟發性，其 XPS 結果顯示大量 C-N 與 N-H 鍵出現，證明胺基修飾成功 [25]。

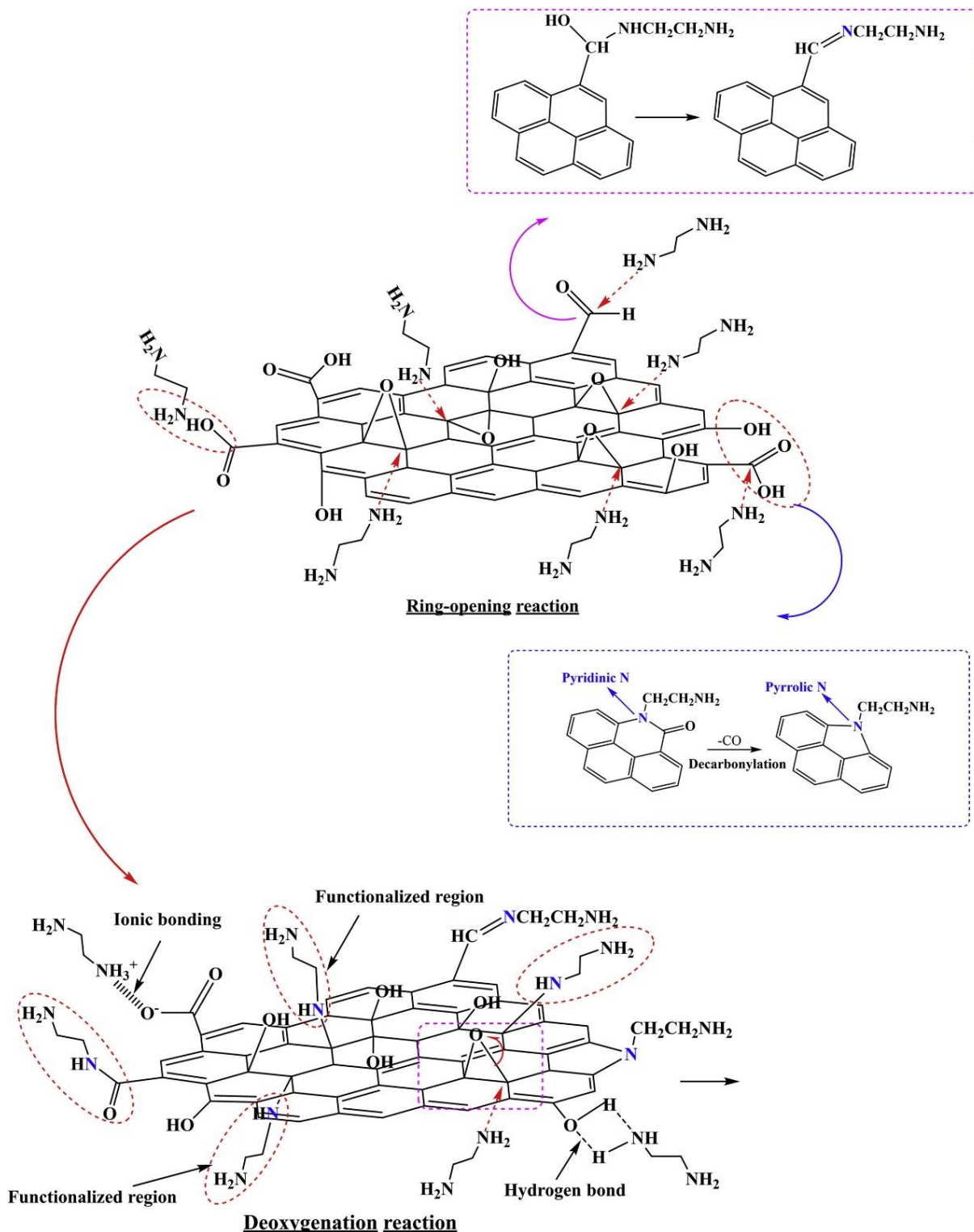


圖 21. 乙二胺（EDA）導入GO表面、環氧基開環、脫氧及部分還原之機制示意



圖[25]。

Kim 等人 (2013) 進一步實證 EDA 可同時還原與交聯 GO，其 FTIR 顯示的 N-H 彎曲振動峰與 C-N 伸縮振動峰，以及 XPS 中的 N 1s 尖峰，皆證實其共價鍵結。儘管研究重點在複合材料應用，但其官能化效率與結構穩定性對環境應用極具參考價值[26]。

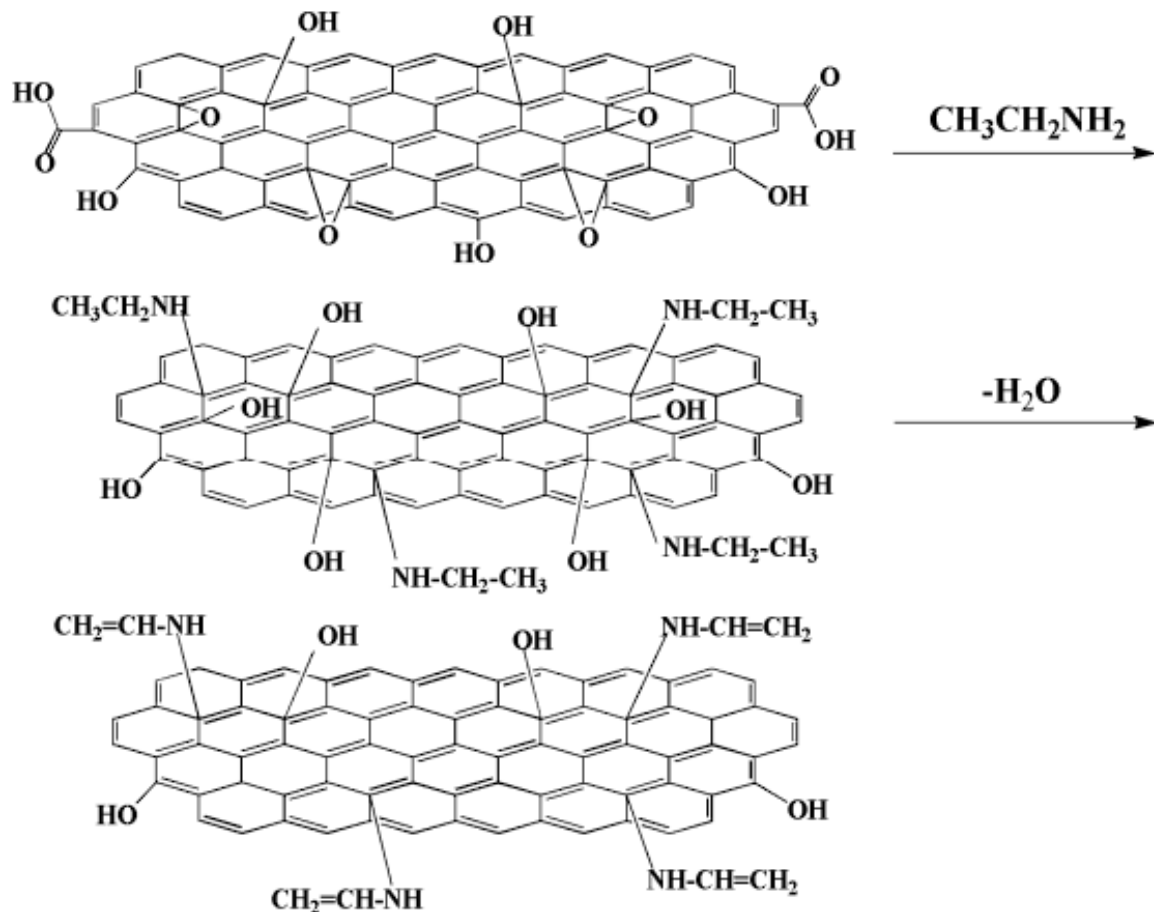


圖 22. 使用乙胺對石墨烯氧化物 (GO) 進行同時還原與功能化的機制示意圖 [26]。

Jin 等人 (2023) 將胺基改質 GO 應用於去除 Cr(VI) 、 Cu(II) 、 Pb(II) 與 Cd(II) ，發現 FTIR 中 C-N 鍵明顯，最大吸附量達 Cr(VI) 108.5 mg/g、 Cu(II) 212.3 mg/g、 Pb(II) 243.1 mg/g、 Cd(II) 198.6 mg/g，顯示官能化顯著提升其對多種金屬的靜電吸附與配位能力[27]。

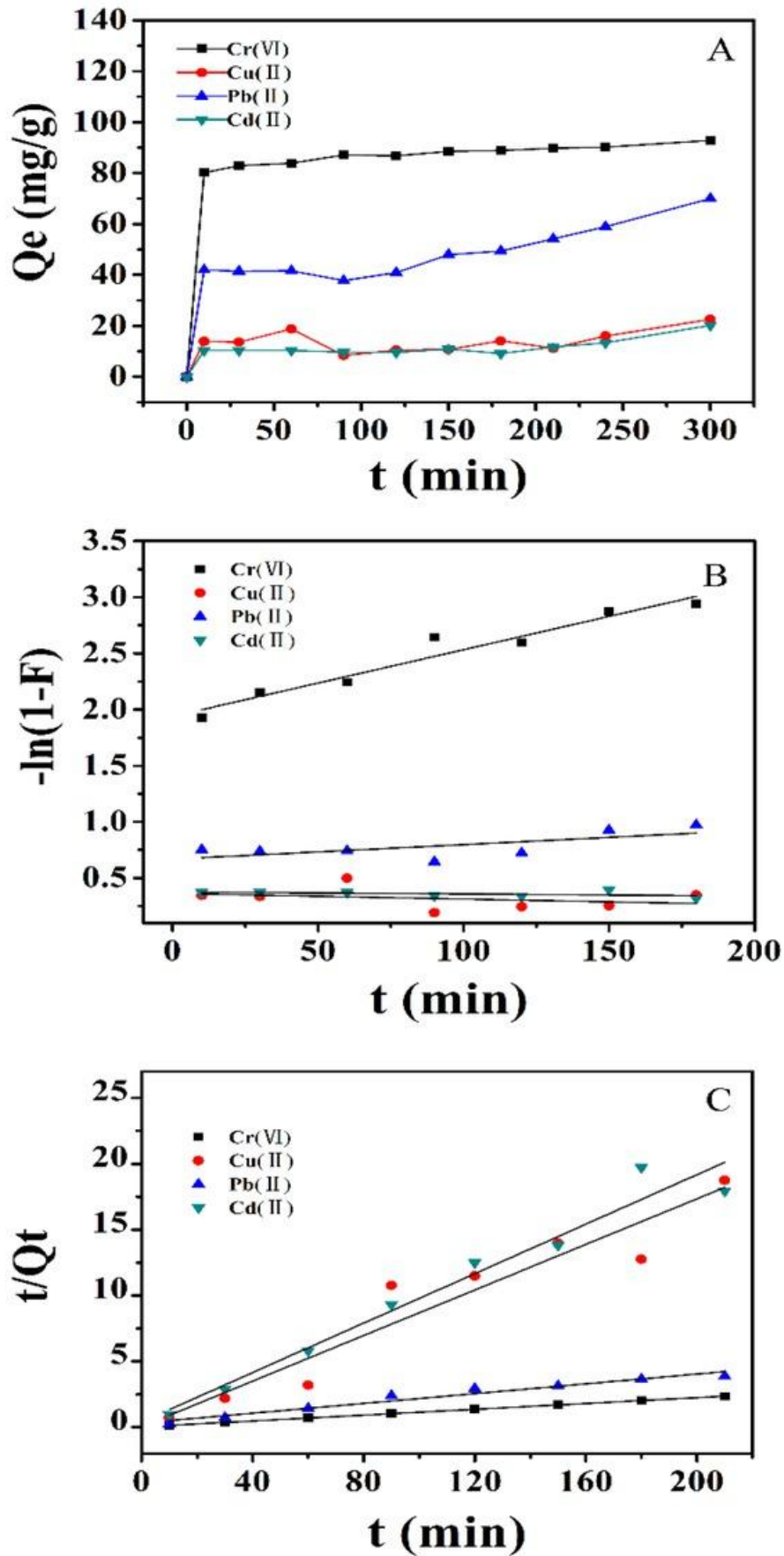


圖 23. (A) 接觸時間對 GO-NH₂ 去除 Cr(VI)、Cu(II)、Pb(II) 和 Cd(II)



效果之影響；(B) Cr(VI)、Cu(II)、Pb(II) 和 Cd(II) 吸附於 GO-NH₂ 之擬一級動力學模擬結果；(C) Cr(VI)、Cu(II)、Pb(II) 和 Cd(II) 吸附於 GO-NH₂ 之擬二級動力學模擬結果[27]。

Zhao 等人 (2022) 則將乙二胺作為交聯劑將 EDTA 固定於 GO 表面，並應用於去除 Cu(II)、Pb(II)、Zn(II)，其 XPS 顯示 GO 上成功鍵結氮與羧酸金屬螯合位，吸附能力顯著優於單純的 GO 或物理混合材料[28]。

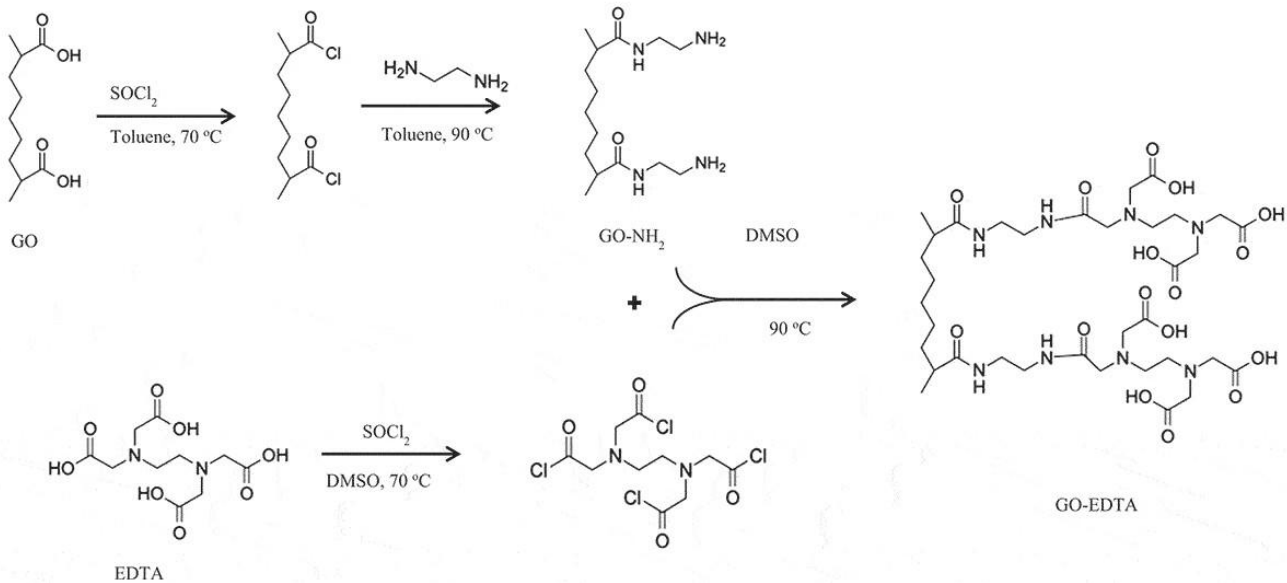


圖 24. GO-EDTA 製備流程之示意圖[28]。

Li 等人 (2021) 則提出以氧化鐵 (Fe_2O_3) 修飾的 GO 材料，應用於去除雙酚 A (BPA) 等有機污染物與部分金屬離子。其透過共沉澱與還原策略引入 Fe_2O_3 奈米粒子後，表現出良好的吸附與催化性能。研究中指出該材料於 pH 6、初始濃度 50 mg/L 下對 BPA 去除率可達 97.2%，並對 Pb^{2+} 亦有顯著吸附能力 [29]。

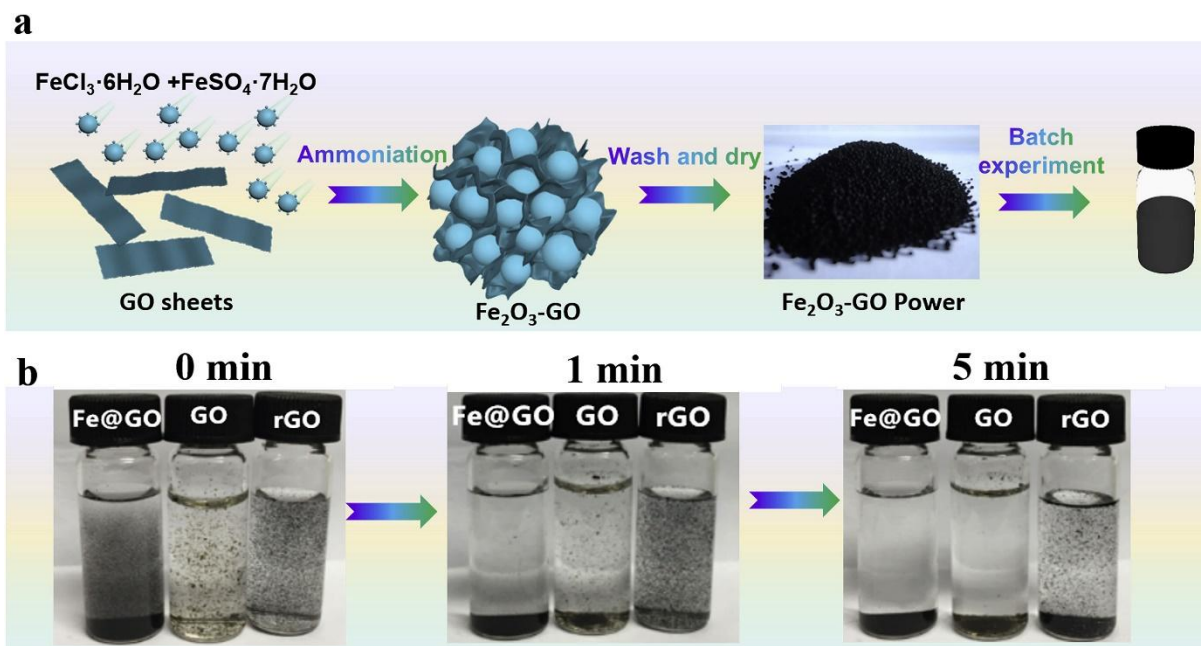


圖 25. (a) $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-GO}$ 奈米複合材料製備流程之示意圖；(b) $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{-GO}$ 、GO 與 rGO 分散於 BPA 溶液中，在 0 分鐘、1 分鐘與 5 分鐘時的沉降照片[29]。

總結而言，多種胺類官能劑可藉由縮合、還原或交聯方式修飾 GO 結構，顯著提升其官能團密度、穩定性與金屬選擇性，為後續應用於工業廢水處理與重金屬去除奠定關鍵基礎。

3.2.2 材料性質變化與結構特徵

功能化石墨烯氧化物 (GO) 在去除重金屬應用中，透過不同的改質方法，其材料性質如表面官能團、比表面積、孔隙結構和導電性等均會發生顯著變化，進而影響其吸附性能。

GO 經功能化修飾後在導電性和表面官能團結構上表現出明顯的變化。以 Qian 等人的研究為例，透過在 GO 上引入 6-氨基己酸等官能團，FTIR 光譜出現了新的吸收峰（如 1059 cm^{-1} 處的峰對應於 Mg-O-C 鍵），證明 GO 表面成功鍵合了目標官能團。此類功能化不僅提高了 GO 在水溶液中的分散穩定性，有效防止片層聚集，還為後續的還原處理提供了有利條件。電化學分析結果顯示，功能化後的 GO 電極具有更佳的電子傳輸性能：循環伏安圖中其氧化還原峰電流明顯增強，表明功能化提高了材料的導電性和比表面積，促進了電子的遷移。同時，經還原的功能化 GO 表現出更低的電荷轉移電阻和更快速的電化學響應，顯示出優於未改質 GO 的電化學活性。結構方面的表徵亦印證了上述提升：例如功能化還原後的石墨烯氧化物在 UV-Vis 光譜中的最大吸收峰由約 230 nm 紅移至 272 nm，說明隨着部分共軛石墨烯結構恢復，電子雲密度提高。綜上，適當的官能團修飾（並經還原處理）一方面引入了新的表面化學結



構，另一方面有效提升了 GO 的導電性和電化學穩定性，有利於電子遷移和結構穩定[30]。

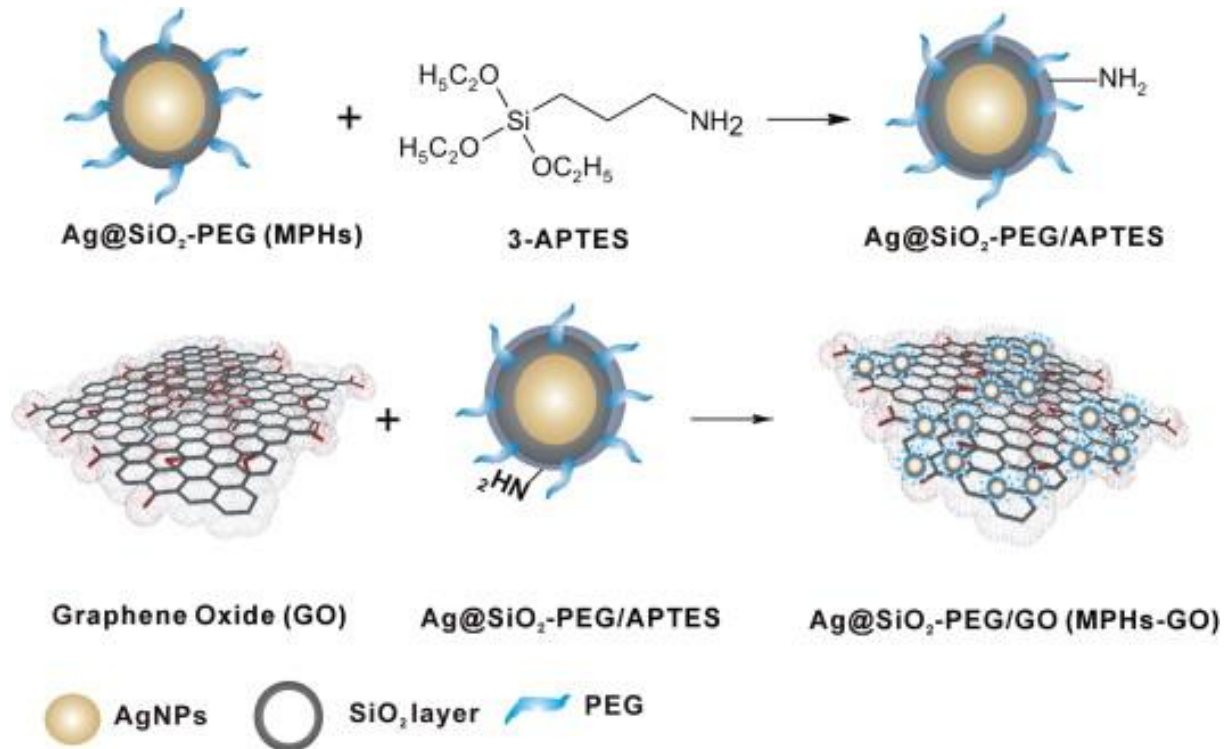


圖 26. 功能化多孔高分子 (MPHs) 於石墨烯氧化物 (GO) 片上的示意圖，顯示 MPHs 經由矽烷化處理後，與 GO 片之間發生共價反應的過程[30]。

在另一項研究中，研究人員使用超支化聚合物和纖維素對 GO 進行表面功能化，以提高其對重金屬離子的吸附能力。改質後的 GO 展現出更高的吸附容量和選擇性，特別是在多金屬離子共存的情況下，對 Pb²⁺、Cd²⁺ 和 Hg²⁺ 等離子的去除效果顯著提升[31]。

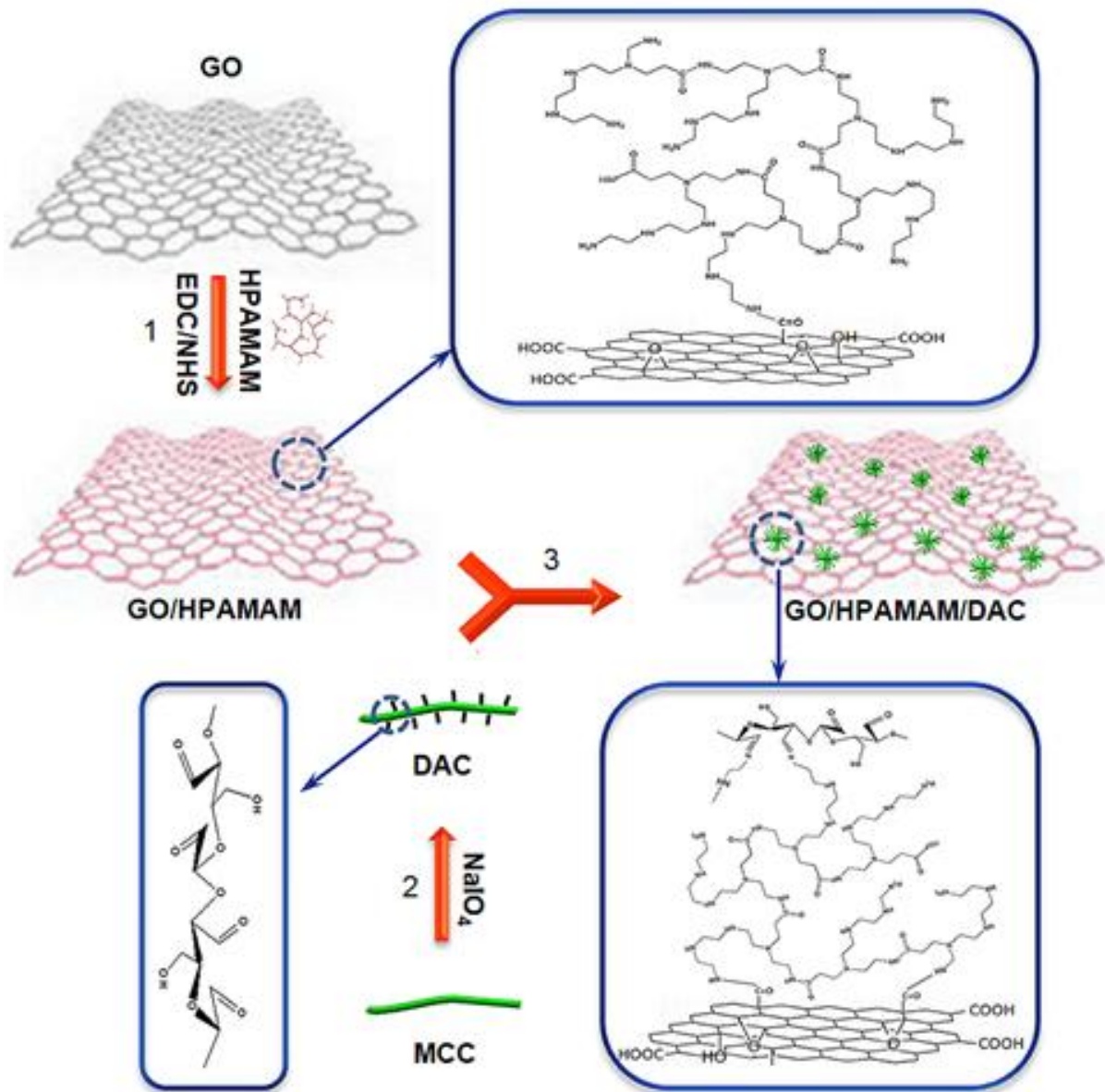


圖 27. GO/HPAMAM/DAC 吸附劑的合成示意圖[31]。

研究人員通過氯乙酸對 GO 進行羧基化處理，製備出 GO-COOH 材料。BET 分析顯示，改質後的 GO-COOH 比表面積顯著增加，從原始的 $44.6 \text{ m}^2/\text{g}$ 提升至 $126.3 \text{ m}^2/\text{g}$ ，總孔容由 $0.12 \text{ cm}^3/\text{g}$ 增加至 $0.34 \text{ cm}^3/\text{g}$ 。這些結構變化有助於提高對 Pb^{2+} 和 Cr^{6+} 的吸附容量，分別達到 588.23 mg/g 和 370.37 mg/g [32]。

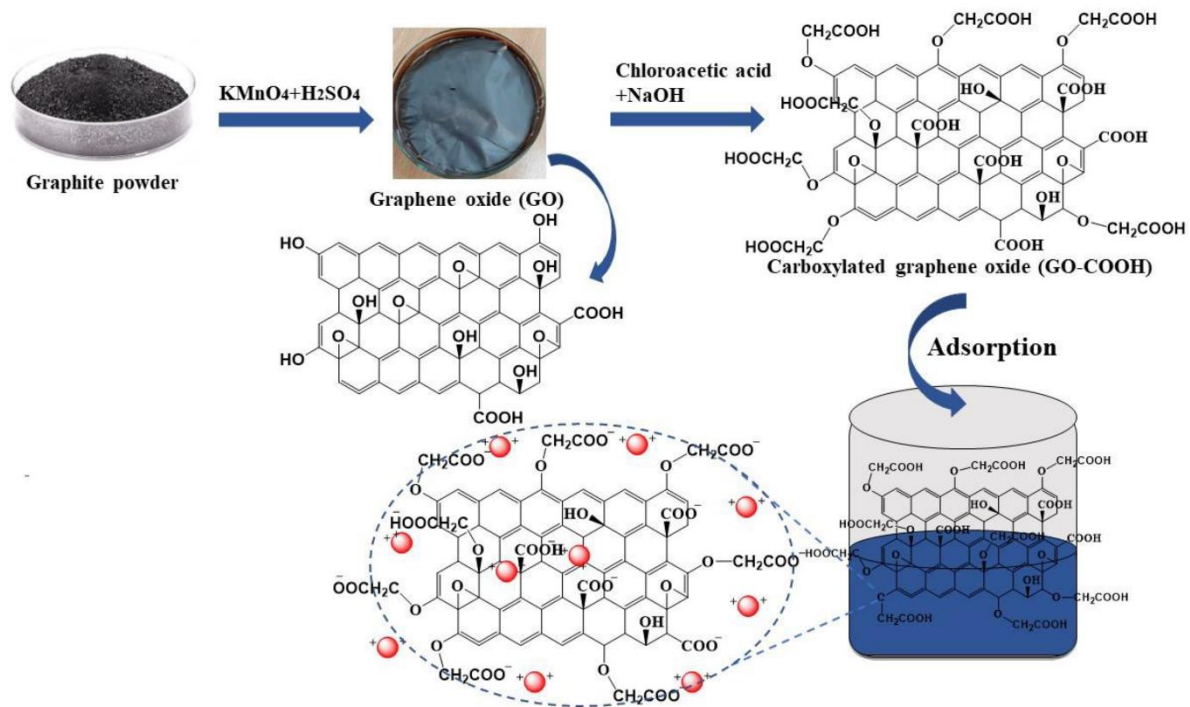


圖 28. GO 的合成、以氯乙酸修飾及其對鉛 (Pb) 與鉻 (Cr) 吸附過程的示意圖[32]。

在一項針對 GO 的研究中，研究人員使用檸檬酸對 GO 進行改質，製備出 GO-C 材料。該材料在 $\text{pH} = 2$ 的條件下，對 Fe^{3+} 的去除效率達到 95.0%，對 Ni^{2+} 、 Mn^{2+} 、 Co^{2+} 和 Cu^{2+} 的去除效率均在 35.0% 以上，而對稀土金屬離子的去除率則低於 1%。這表明 GO-C 材料具有優異的選擇性吸附性能，特別適用於從含有多種金屬離子的溶液中選擇性去除特定重金屬[33]。

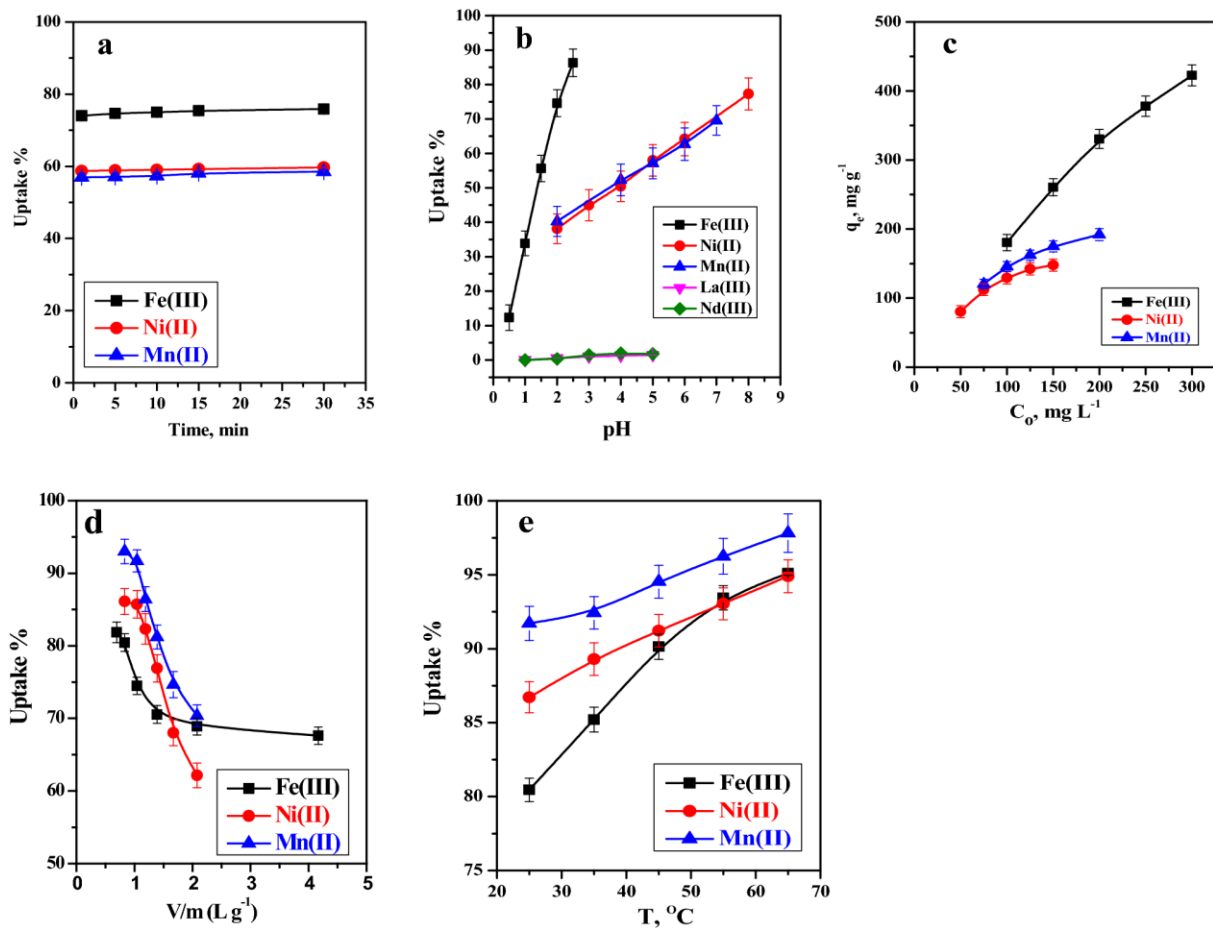


圖 29. (a) 接觸時間對於 Fe^{3+} 、 Ni^{2+} 與 Mn^{2+} 在水溶液中去除率的影響。(b) 水溶液 pH 對於 Fe^{3+} 、 Ni^{2+} 、 Mn^{2+} 、 La^{3+} 與 Nd^{3+} 在水溶液中去除率的影響。(c) Fe、Mn 與 Ni 在不同初始濃度下的吸附量關係。(d) V/m 比值對於 Fe^{3+} 、 Ni^{2+} 與 Mn^{2+} 在水溶液中去除率的影響。(e) 溫度對於 Fe^{3+} 、 Ni^{2+} 與 Mn^{2+} 在水溶液中去除率的影響[33]。

研究人員合成了具有磁性的 GO 材料，並研究其在磁場輔助吸附系統中去除 Pb^{2+} 和 Cu^{2+} 的性能。結果顯示，磁性 GO 在磁場作用下對 Pb^{2+} 的去除效率顯著提高，而對 Cu^{2+} 的吸附則受磁場影響較小。這表明磁場輔助吸附系統可作為提升 GO 吸附性能的有效策略，特別是在處理含有 Pb^{2+} 的廢水時[34]。

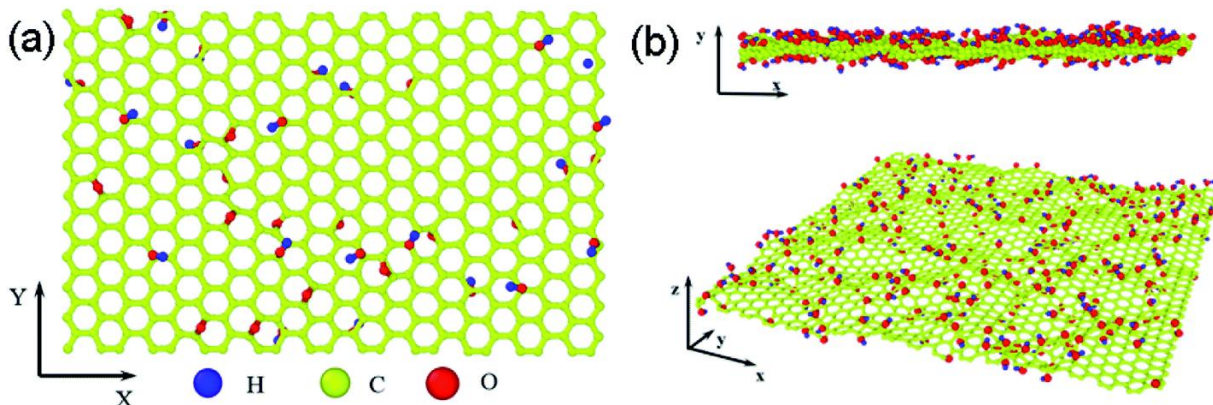




圖 30. 基於 Lerf-Klinowski 模型的石墨烯氧化物 (GO) 模擬模型：(a) GO 的原始原子結構；(b) 在 300 K 下模擬 2.5 奈秒後，GO 的原子結構鬆弛後的橫截面與側視圖，其平均層間距為 3.4 Å；圖中碳、氧與氫原子分別以黃色、紅色與藍色表示[34]。

這些研究表明，通過不同的功能化方法可以顯著改變 GO 的材料性質，從而提高其對重金屬離子的吸附性能。未來的研究可以進一步探索其他功能化策略，以開發更高效、選擇性更強的 GO 基吸附材料，用於水處理和環境修復等領域。

3.2.3 重金屬吸附行為與機制探討

功能化石墨烯氧化物 (GO) 在重金屬去除應用中，吸附行為受到材料表面官能團、孔隙結構與操作條件的影響，其主要吸附機制可歸納為靜電吸附、配位鍵結、氫鍵作用、表面錯合反應與 $\pi - \pi$ 堆疊等。其中官能團（如 $-\text{COOH}$ 、 $-\text{OH}$ 、 $-\text{NH}_2$ ）提供可與金屬離子形成穩定配位的活性位點，是控制吸附選擇性與容量的關鍵因素。

Khan 等人 (2019) 開發了一種經 EDTA 改質之石墨烯氧化物 (EDTA-GO)，並評估其對重金屬離子與有機污染物的吸附性能。在 pH 5.5 與 25 °C 條件下，該材料對 Pb^{2+} 的最大吸附容量為 290.7 mg/g，對 Cd^{2+} 為 220.4 mg/g。研究指出吸附過程主要透過 EDTA 結構中的胺基與羧酸根與金屬離子形成多齒配位鍵結，XPS 結果顯示吸附後 Pb 4f 與 Cd 3d 的特徵峰出現位移，證明形成穩定金屬錯合物。此外，該材料對亞甲基藍亦具顯著去除效果，顯示其多功能性。該吸附系統符合 Langmuir 模型與準二級動力學模型，顯示化學吸附與單層覆蓋特性[35]。

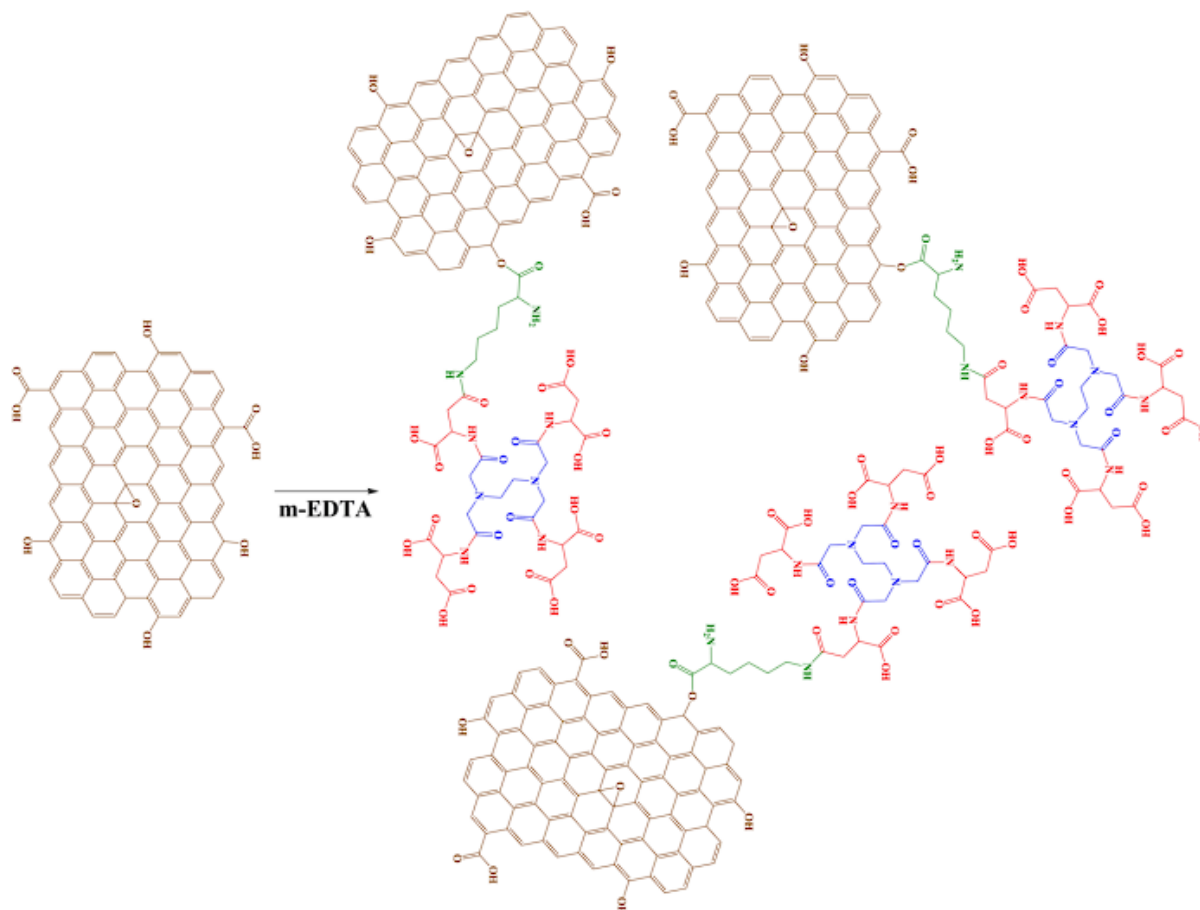


圖 31. 以間位乙二胺四乙酸 (m-EDTA) 對石墨烯氧化物 (GO) 片進行功能化的示意圖[35]。

研究顯示，將氧化石墨烯以EDTA進行官能化並負載 Fe_3O_4 磁性奈米粒子（簡稱GO-EDTA- Fe_3O_4 ）可製備出對 Pb^{2+} 、 Hg^{2+} 和 Cu^{2+} 具有高效吸附能力的磁性吸附材料。在適宜的pH條件下（溶液pH高於吸附劑零電荷點），該材料中EDTA的羧基與胺基去質子化後能有效螯合金屬離子，而GO表面的豐富含氧官能團帶有負電，對陽離子產生額外的靜電引力。此GO-EDTA- Fe_3O_4 對 Pb^{2+} 、 Hg^{2+} 、 Cu^{2+} 的Langmuir最大吸附量分別約為508.4、268.4、301.2 mg/；吸附動力學符合擬二級模型且平衡數據可用Freundlich和Temkin等溫模型描述。由於引入 Fe_3O_4 ，吸附飽和後可通過外加磁場在約25秒內將該吸附劑從溶液中快速分離。重複吸附-解吸實驗表明該材料具有優異的再生能力；對Cu(II)連續5次循環處理後其吸附容量僅降低約6.3%。這意味著該GO-EDTA- Fe_3O_4 吸附劑在重金屬廢水處理中可實現高效磁分離回收與重複利用[36]。

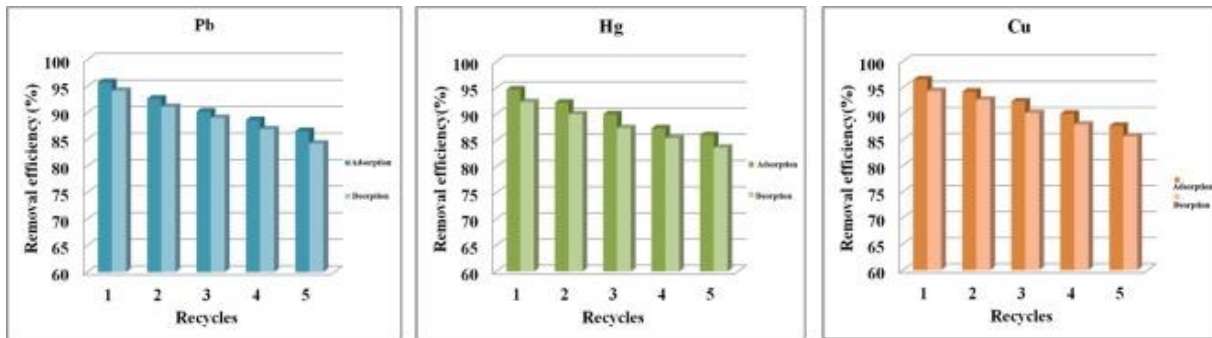


圖 32. 吸附－解吸循環實驗[36]。

另有研究製備了同時具有EDTA和胺基官能團的氧化石墨烯衍生吸附劑，以提升對 Ni^{2+} 的去除效率。由於引入多齒配位的EDTA基團和含氮胺基，該材料對 Ni^{2+} 展現出明顯增強的吸附容量和選擇性：在30－45分鐘內即可選擇性去除 Ni^{2+} ，最大吸附量約為103 mg/g。 Ni^{2+} 的吸附等靜線符合Langmuir模型，動力學行為遵循擬二級速率方程，表明吸附主要受化學配位作用控制。吸附機制分析指出， Ni^{2+} 的去除涉及靜電引力、配位鍵結和氫鍵等多種作用力：其中EDTA提供的羧基和胺基可與 Ni^{2+} 形成螯合配位，胺基功能團亦可與 Ni^{2+} 的水合分子形成氫鍵輔助穩定，此外在較高pH下GO表面帶負電有利於吸引 Ni^{2+} 靠近吸附位點。此吸附系統對溶液pH非常敏感：隨pH升高（至中性略偏鹼） Ni^{2+} 去除率顯著提高，過低pH則因 H^+ 競爭和官能團質子化導致吸附效率下降。經適當酸溶液解吸再生後，該吸附劑可多次重複使用而保持較高的去除效率，顯示出良好的再生性能與應用潛力[37]。

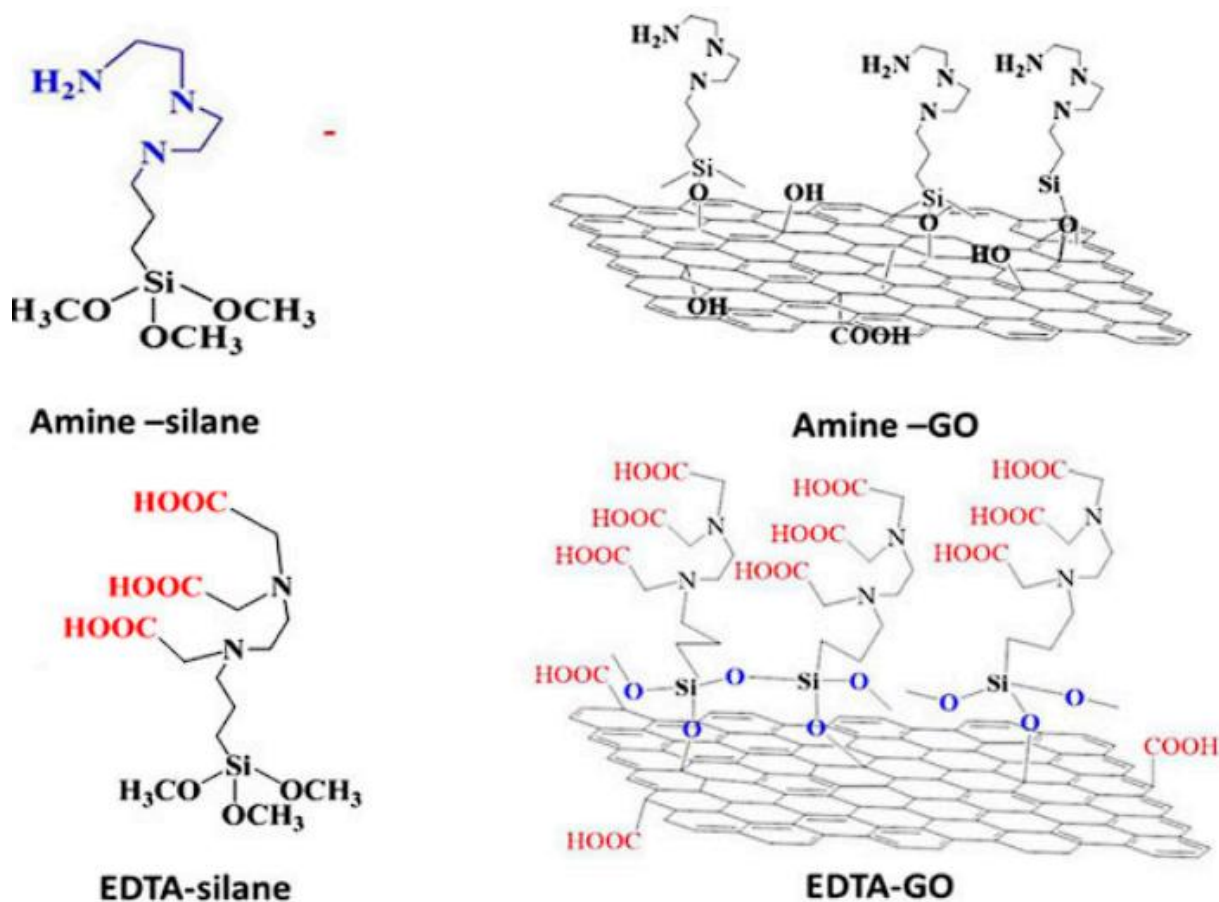


圖 33. 胺基矽烷、EDTA-矽烷、胺基修飾 GO (Amine-GO) 以及 EDTA 修飾 GO (EDTA-GO) 之化學結構圖[37]。

3.2.4 有機污染物去除與電催化降解行為

功能化石墨烯氧化物 (functionalized GO) 常被用作有機污染物的高效吸附劑，其表面含有大量芳香環和平面共軛結構，能透過 $\pi - \pi$ 相互作用與污染物中的芳香環產生強烈的作用力，這被視為芳香族有機物吸附的主要機制。同時，GO 上的含氧官能團 (如羧基、羥基等) 可與極性污染物形成氫鍵，而帶電基團則可與離子型污染物發生靜電作用，再加上石墨烯平面上的疏水域也能與疏水性有機分子發生作用，共同增強了吸附能力[38]。

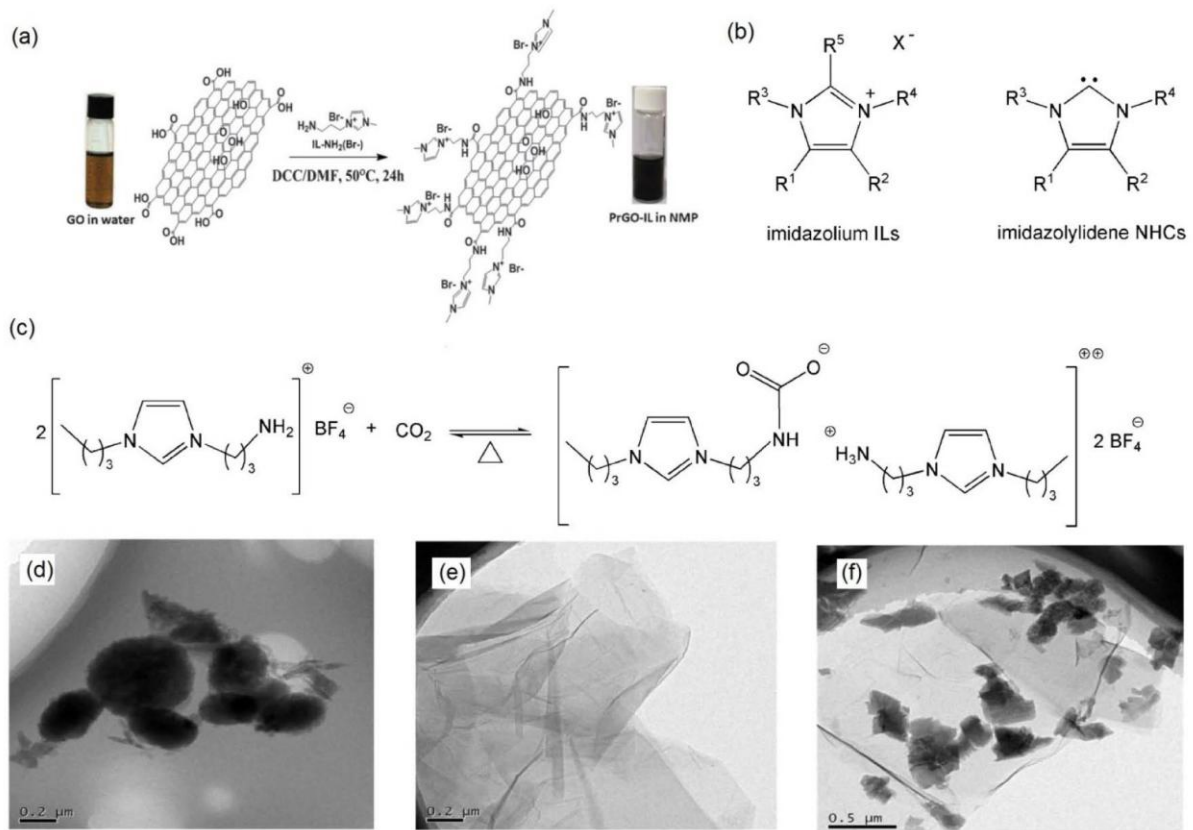


圖 34. (a) 透過 PIL 功能化合成部分還原之石墨烯氧化物 (PrGO-PIL) 的示意圖(b) 咪唑鎗型離子液體 (ILs) 與咪唑啉鎗碳烯 (NHCs) 的一般結構(c) 含胺基功能化咪唑鎗型硫鎗離子液體 (TSIL) 與 CO₂ 的反應機構。TEM 圖像：(d) 金屬鋁骨架；(e) 還原型石墨烯氧化物；(f) 金屬鋁 - 石墨烯氧化物 (MA-rGO) 奈米複合材料[38]。

Akpotu 和 Moodley 等人 (2018) 將介孔矽材料 MCM-41 以 GO 功能化後，用於去除水中的藥物殘留物，結果顯示其吸附機制包括電子給受體作用 (EDA)、 $\pi - \pi$ 堆疊和疏水作用；在最佳條件下，對阿司匹林和對乙醯氨基酚的最大吸附容量分別高達約 909 mg/g 和 556 mg/g[39]。上述結果印證了功能化 GO 優異的有機污染物吸附性能，亦說明了多種作用力在吸附過程中的綜合作用 [40]。

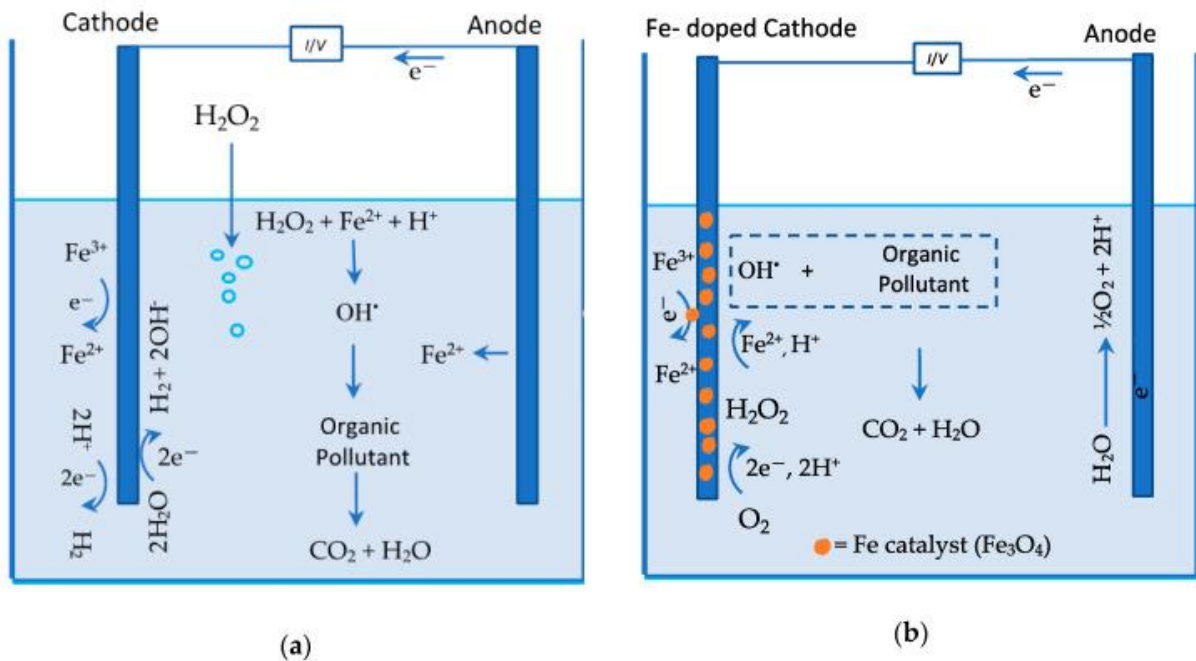


圖 35. (a) 均相電芬頓 (Electro-Fenton) 與 (b) 非均相電芬頓反應機制之示意圖。

在各類電催化系統中，引入功能化 GO 有助於提升電極的導電性和活性表面積，增加反應活性位點並加速電子轉移。例如，Zhang 等人 (2018) 製備了一種石墨烯@石墨複合氣體擴散電極，用於電化學-Fenton (Electro-Fenton) 法降解有機污染物。相較於傳統石墨電極，該石墨烯複合電極具有更高的導電性和電催化活性[41]；

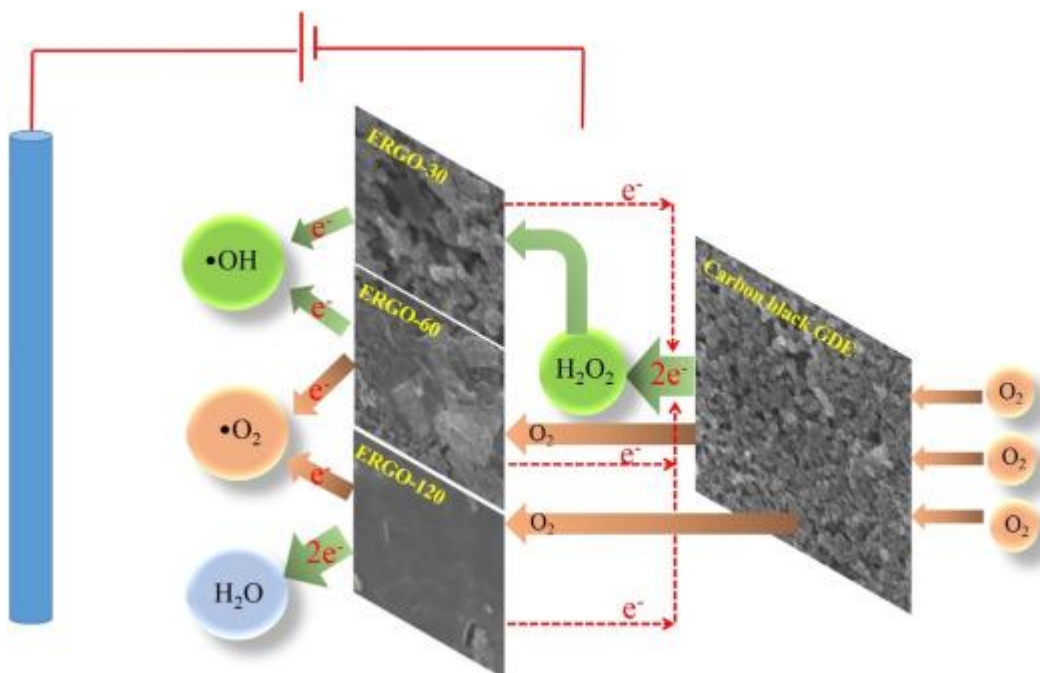


圖 36. 在溫和條件下，ERGO 修飾碳黑氣體擴散電極 (GDE) 於電化學高級氧化



程序 (EAOP) 中對氧還原反應 (ORR) 之電催化過程的示意圖。

其高比表面積和富含的共軛碳使氧氣還原生成過氧化氫的反應更有效，從而提高了體系中羥基自由基的產生效率。實驗在酸性條件（約 pH 3）及存在 Fe^{2+} 催化劑下進行，對初始濃度60 mg/L的羅丹明B染料溶液電解處理60分鐘，污染物去除率達98%，同時化學需氧量（COD）去除率達79%[42]。

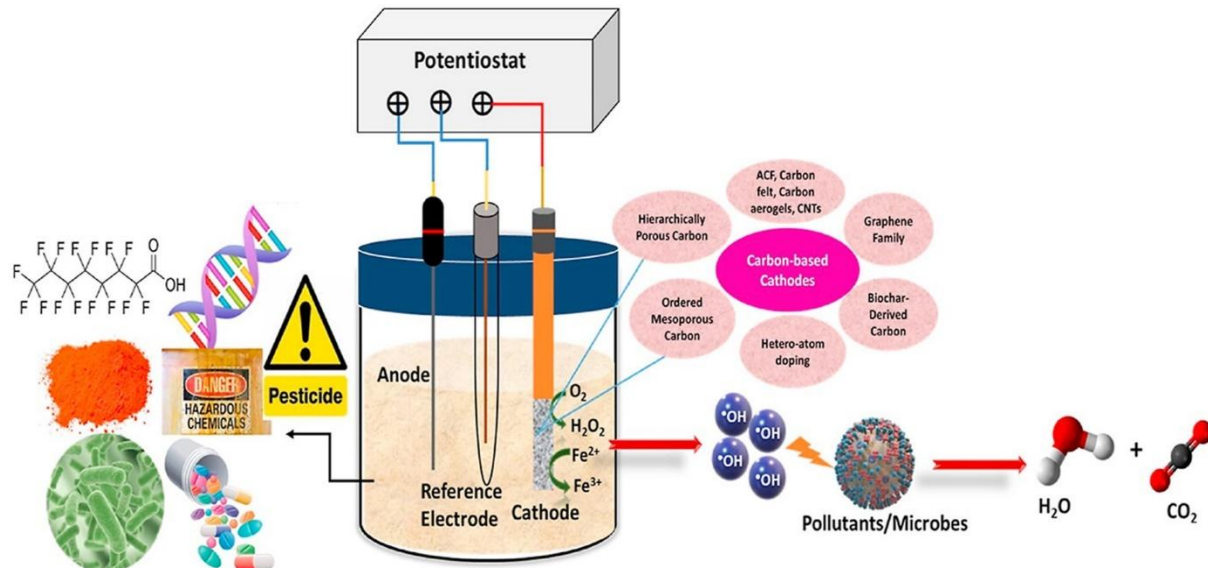


圖 37. 「電芬頓 (EF)」技術如何利用碳基陰極材料（如活性碳纖維、碳氈、石墨烯等）在廣泛的pH範圍內高效生成雙氧水與氫氧自由基，以降解有機污染物與微生物，最終將其轉化為水與二氧化碳，是一種高效且環保的廢水處理技術[42]。

上述電催化降解數據說明，功能化GO作為陰極催化劑大幅提高了 H_2O_2 的電生成成功率和 $\cdot\text{OH}$ 自由基產生量，從而顯著促進有機污染物的降解效率。

在光電催化降解系統中，功能化 GO 同樣展現出提升反應效率的關鍵作用。一方面，GO的引入可改善半導體光催化劑的光吸收和電荷分離效率。例如，Li 等人 (2024) 將 GO 負載於 WO_3/TiO_2 半導體中，製備出中空介孔結構的膜狀光陽極。少量GO的摻雜明顯改變了光陽極的能帶結構：當GO添加量約1 wt%時，複合材料禁帶寬度從未摻雜時的2.92 eV下降至2.30 eV，顯著增強了可見光吸收能力。該含1% GO的光陽極在模擬太陽光照射下對甲基橙(Methyl Orange)的光電催化降解效果最佳：120分鐘內的降解率達70.3%，遠高於無GO時的約39.6%。此外施加偏電壓能進一步提高降解效率；在外加0.5 V 偏壓下，上述光陽極的甲基橙降解率由純光催化時的44.9%提升至70.3%，增加了約56.6%。這是因為適當偏壓驅動下，GO可作為高效的導電通道，快速轉移光生電子，抑制電子-電洞對的複合。如此一來，更多的電洞和氧分子參與反應產生氧化性自由基，從而加速有機污染物的光電催化降解。[43]

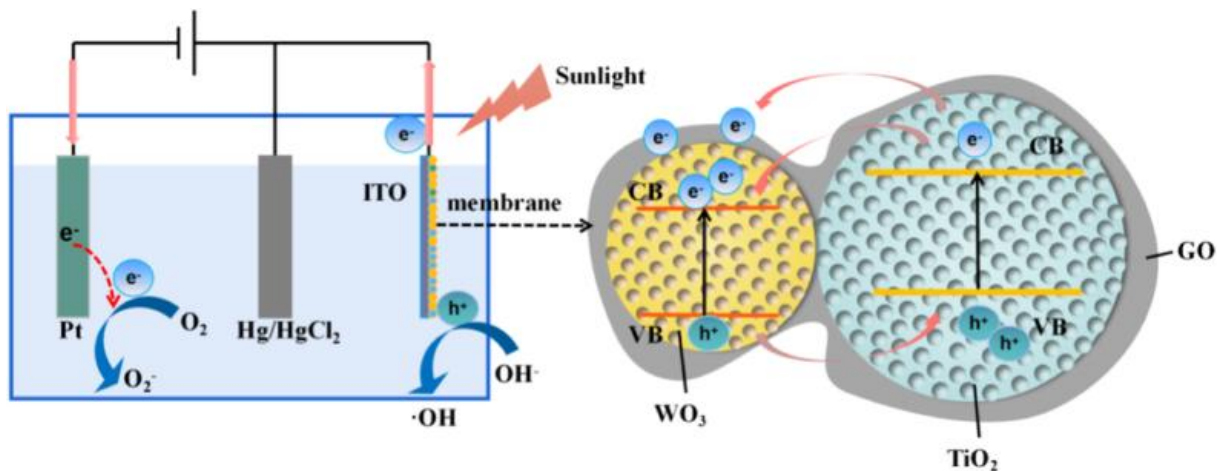


圖 38. 中空介孔 GO-WO₃/TiO₂ 薄膜光陽極之降解效能提升機制的示意圖[43]。

總而言之，功能化GO在光電催化系統中可提升電極的導電性和反應位點，有效促進光生載流子的分離和傳輸，最終顯著提高有機污染物的降解率與礦化程度。

3.3 功能化石墨烯氧化物之再生性能與循環穩定性評估

功能化石墨烯氧化物材料在污染物處理中的可再生性能是評估其實用性的重要指標。一般而言，石墨烯氧化物（graphene oxide, GO）及其衍生物作為吸附劑具有良好的再生與重複使用潛力，只要採用適當的方法進行再生，即使經過多次循環其吸附容量也不會有明顯下降[44]。例如，Feng 等人（2020）製備的多孔聚丙烯腈/石墨烯氧化物（PAN/GO）電紡纖維在重複去除水中Cr(VI)的20次吸附-解吸循環後，吸附性能僅小幅降低，Cr(VI)的解吸效率仍穩定維持在75%以上[45]。類似地，Li 等（2020）以GO-殼聚糖（GO-CS）複合材料吸附Cu(II)離子，經過10次吸附-脫附循環後，Cu(II)的去除率仍可保持在86%左右[46]，顯示出優異的循環穩定性。

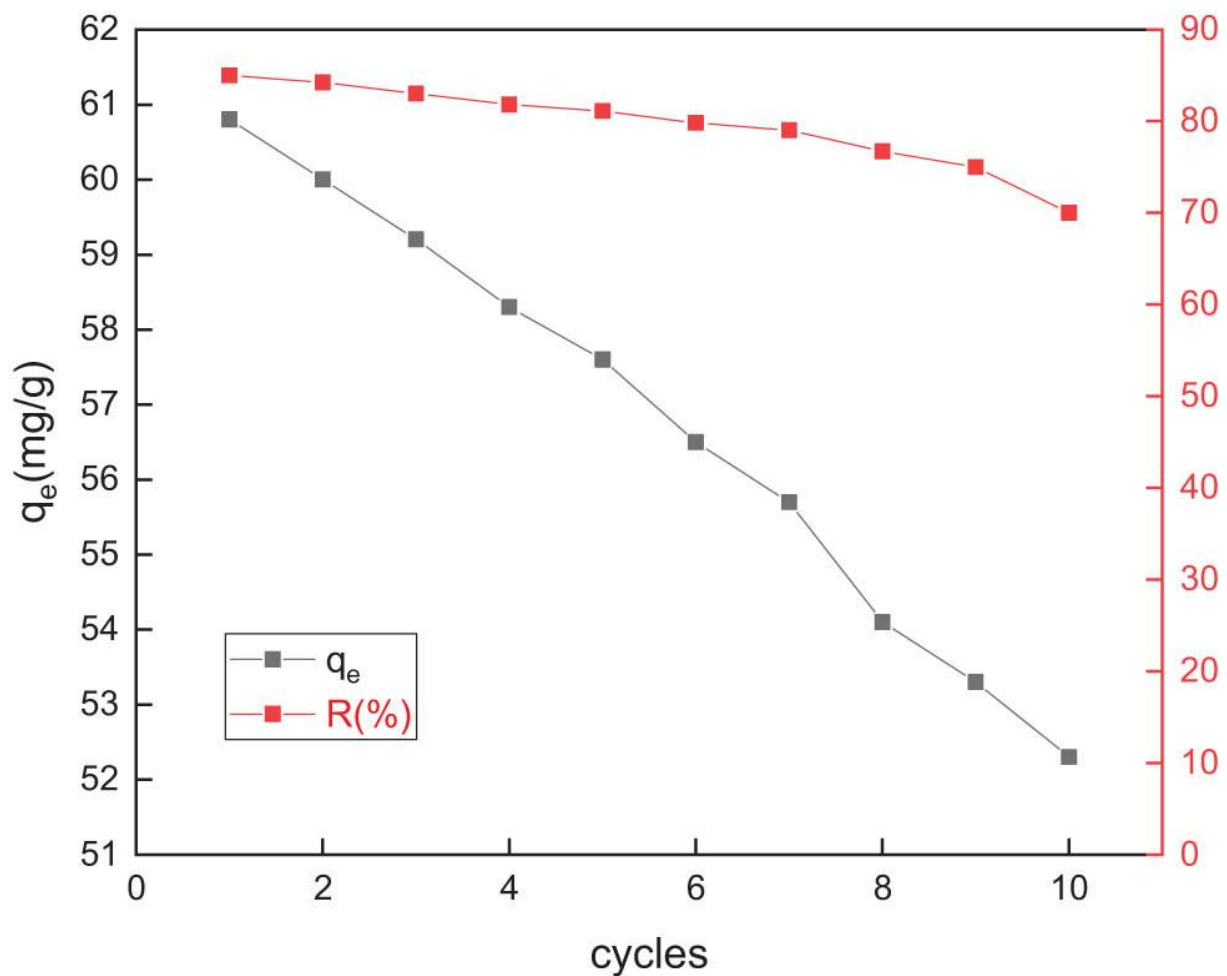


圖 39. GC 經過十次吸附與解吸循環後對 Cu^{2+} 的吸附容量與吸附速率變化 [46]。

然而，不同再生方式對功能化GO材料性能維持的影響各異，需要加以比較。常見的化學再生方法包括酸洗與鹼洗：酸洗適用於解吸金屬陽離子或鹼性染料，鹼洗則常用於解吸陰離子污染物或酸性染料。酸洗再生：Soliman 等人

(2022) 報導，以稀鹽酸 (1% HCl) 再生GO@CS複合吸附劑在去除有機染料後性能大幅衰退；經5次循環後，其對亞甲基藍染料的去除效率由初始的61.3%驟降至22.4%[47]。

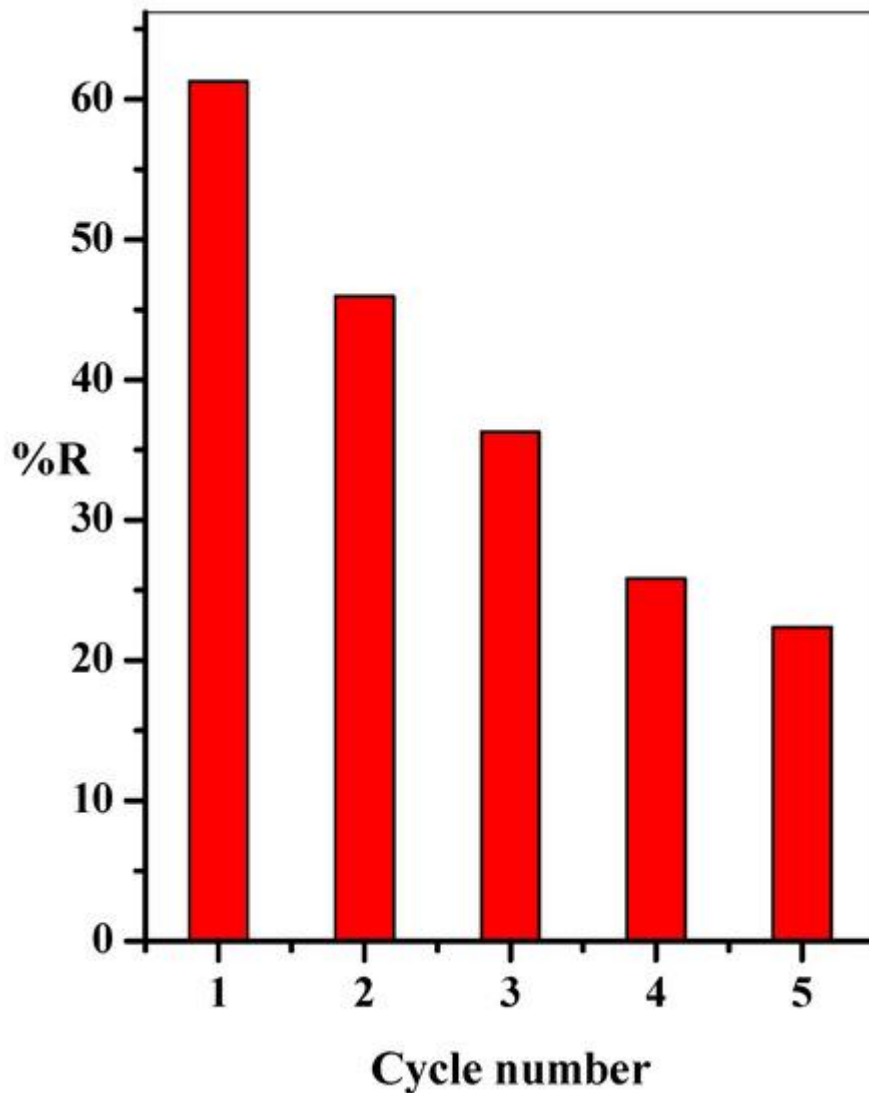


圖 40. 循環次數對亞甲藍染料 (MB) 吸附率的影響[47]。

相較之下，酸洗條件優化：Politaeva 等 (2022) 針對GO-CS吸附劑採用1:1硝酸溶液再生，結果顯示該吸附劑對Cu(II)的去除效率在連續7個循環後仍維持約80% [48]。

這表明適當濃度的酸洗可有效恢復吸附位點，同時將性能損失控制在最低。鹼洗再生：對於以陰離子形態存在的污染物（如Cr(VI)等），常以鹼性溶液或還原性介質沖洗來解吸污染物。有研究利用NaOH修飾的GO磁性複合材料進行催化反應，發現其經5次重複使用後性能無明顯下降[49]，顯示鹼洗在某些系統中同樣能保持材料的活性。總的而言，化學再生法成本低且操作簡便，但酸鹼處理不當可能導致GO表面官能團流失或結構改變，需權衡其對材料穩定性的長期影響[49]。

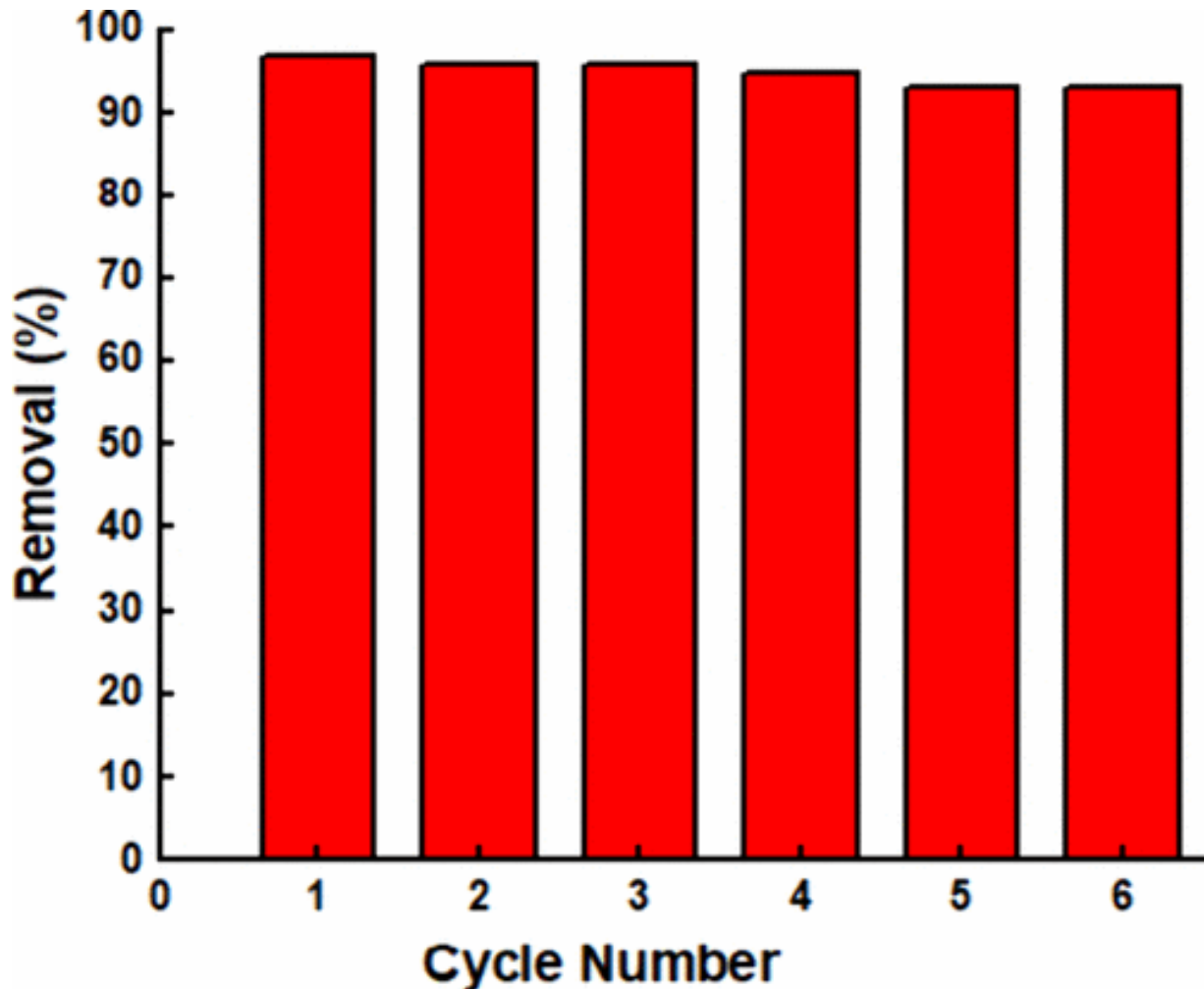


圖 41. GrGO 吸附劑在水溶液中對四環素類 (TCs) 吸附之重複使用性評估 [49]。

除了酸鹼溶劑法，再生亦可透過熱處理和電化學手段來實現。熱處理再生：高溫灼燒可將吸附於GO上的有機污染物熱解去除，恢復其活性表面。例如，早期研究曾對還原態GO/Fe₃O₄複合吸附劑進行300°C熱再生，多次循環後吸附容量僅有輕微下降[50]。但需注意高溫可能使GO部分還原或片層結構退化，導致比表面積降低，因此熱再生通常在配合惰性氣氛或控制溫度下進行，以平衡再生效率與材料損傷。電化學再生：對於以GO為載體的電催化降解系統，經由改變電位在電極表面直接氧化分解污染物，可以在無需添加化學試劑的情況下實現原位再生。例如，Penumaka 等人（2021）開發的GO-銅納米複合催化劑用於有機染料的電催化降解，在連續5次運轉循環後其降解效率無明顯衰減[51]。這類電化學再生活化方法避免了傳統洗脫步驟，展現出良好的循環穩定性。

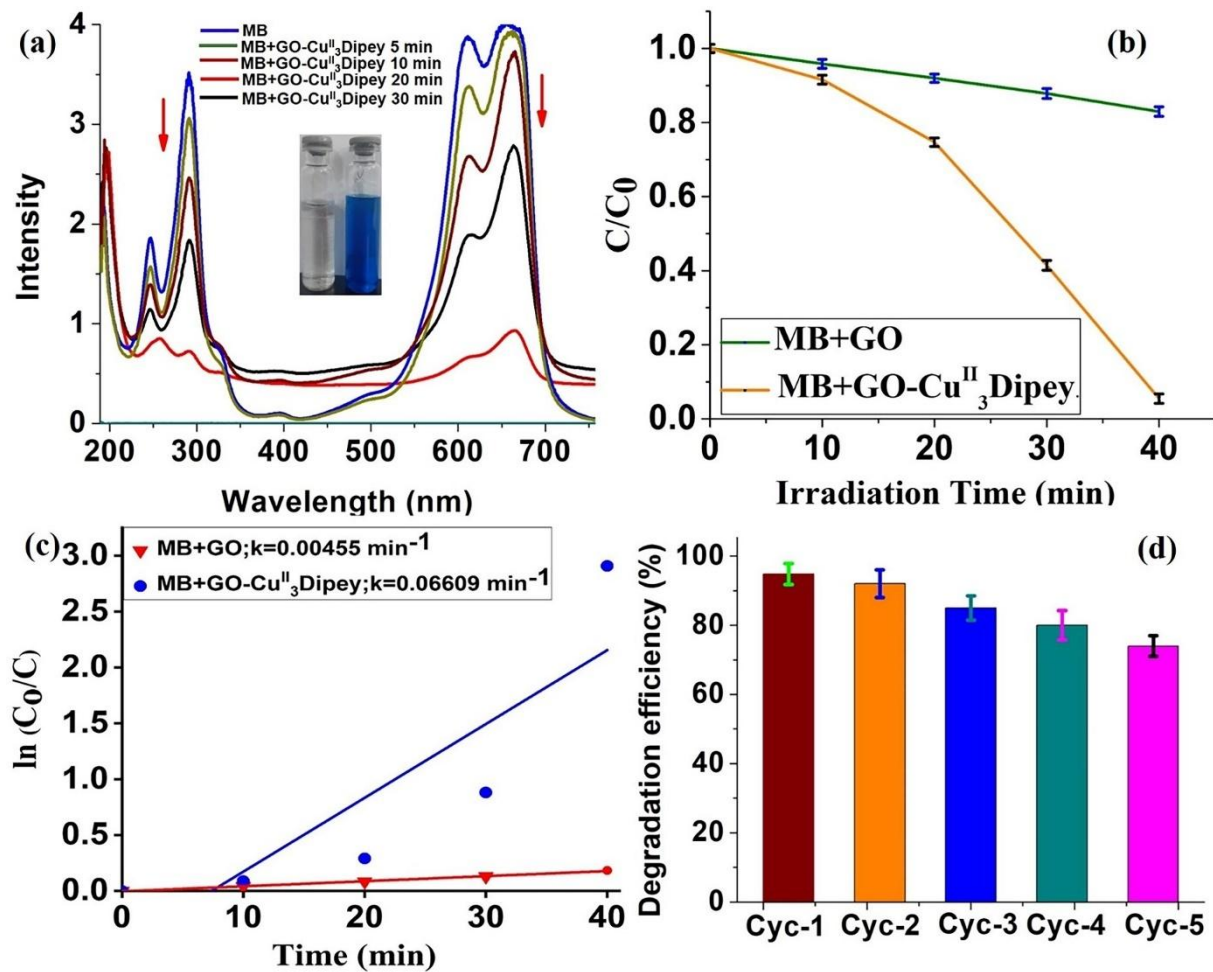


圖 42. (a) 在不同時間間隔下，含催化劑之水溶液中亞甲藍 (MB) 的紫外可見光光譜；(b) 與 (c) 顏色催化降解隨照射時間變化的過程及其動力學行為；(d) 複合材料的重複使用性評估。

綜上所述，功能化石墨烯氧化物材料在重複吸附或電催化降解有機/無機污染物時，多數能透過適當再生方式維持相當程度的性能。酸洗、鹼洗、熱處理與電化學再生各有優劣：酸洗可高效解吸金屬離子但需防止材料結構劣化，鹼洗適用於特定污染物的解吸，熱再生徹底但可能損傷材料結構，而電化學方法則能實現無試劑的快速再生活化[44, 51]。文獻報告的再生循環測試數據顯示，不少功能化GO吸附劑在5~10次以上循環後仍保有80–90%的效率[46]；甚至有材料在20次循環後依然維持約75%的性能[51]。因此，在環境治理應用中，精心設計功能官能團並選擇合適的再生措施，可顯著提升GO基材料的循環穩定性與經濟效益。



(四)研究方法與過程

本研究採雙階段實驗策略，初期以 ITO 基板作為測試平台，進行GO/EDA電鍍系統的電化學參數優化，確認最佳的還原與修飾電位、時間、GO濃度與EDA濃度。此階段便於觀察光學、表面濕潤性與吸附傾向。待條件明確後，再將其應用於實際目標基材——碳氈 (carbon felt) 進行EDA修飾薄膜之製備與分析，藉此建立具高效金屬離子吸附潛力的功能材料。

首先，對ITO導電玻璃進行超音波清洗與電漿親水化處理，提升其塗佈品質。GO溶液濃度設計為5、10、15 mg/mL，利用旋轉塗佈 (Spin Coating) 技術塗佈於ITO上，再乾燥形成GO薄膜電極。此為初步實驗使用的GO/ITO樣品。

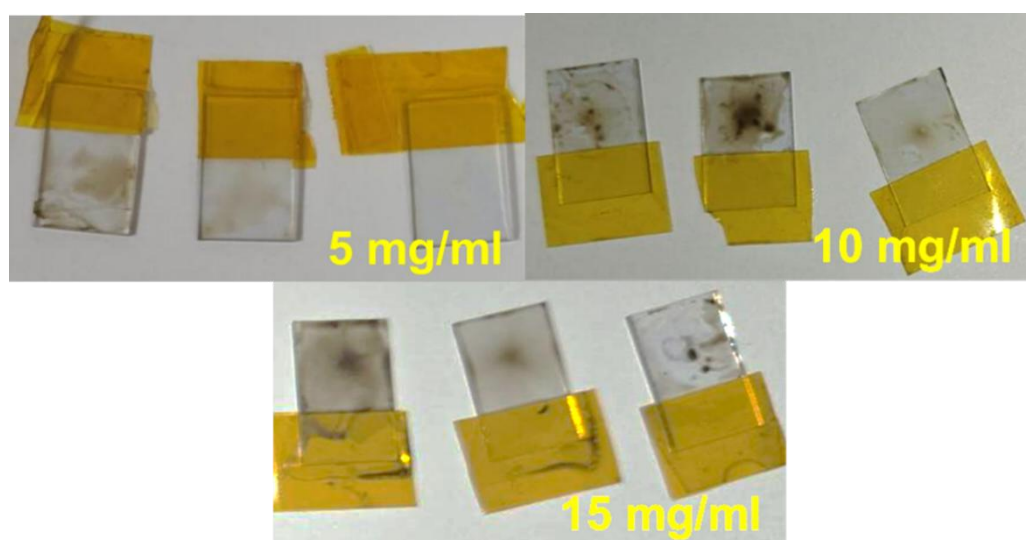


圖 43. ITO基板進行旋轉塗佈後。

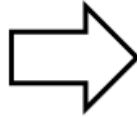
對GO/ITO樣品進行計時安培法 (CA) 電鍍EDA實驗，以兩電極系統（工作電極為GO/ITO，對電極為碳棒），電解液為5% EDA溶液。依序施加 $-0.5\text{ V} \sim -0.8\text{ V}$ 作為還原電位與 $0.1 \sim 0.5\text{ V}$ 為氧化電位，配合不同時間組合（20分鐘/2分鐘），以系統性方式進行參數篩選。每次電鍍後以去離子水沖洗並乾燥。

經由GO/ITO樣品之UV-Vis光譜、接觸角、Raman、FTIR等分析確認最佳電位條件後，將參數固定為： -0.6 V （20分鐘）與 0.4 V （2分鐘），應用至碳氈基材進行正式GO/碳氈(GO/CF)製備。碳氈基材使用CV電鍍方式沉積GO，電解液為5 mg/mL GO水溶液，掃描電位1至 -0.1 V ，掃描速率 50 mV/s ，共200圈。完成後以DI水清洗，得到GO/碳氈電極，並再以相同的CA條件進行EDA修飾。



CV電鍍GO

- 工作電極: 碳氈(1x3 cm)
- 參考電極: Ag/AgCl
- 對電極: 碳棒
- 電解液: 5 mg/ml GO
- 電位: 1~-0.1
- 掃描速率: 50 mV/s
- 掃描圈數: 200
- 清洗液: DI Water



CA電鍍EDA

- 工作電極: GO/碳氈(1x3 cm)
- 參考電極: 無
- 對電極: 碳棒
- 電解液: 5 % EDA
- 電位: -0.6, 0.4
- 持續時間: 20min, 2min
- 清洗液: DI Water

圖 44. 最終電鍍步驟

本研究所採用之電化學修飾條件為交替施加還原電位（-0.6 V）與氧化電位（+0.4 V）之脈衝式CA（Chronoamperometry）程序，每階段時間分別為還原20分鐘、氧化2分鐘。此一週期重複兩次，總實驗時間約為80分鐘（4800秒）。

該設計策略之目的如下：

1. 在還原階段（-0.6 V），使GO發生部分還原，並同時於表面導入電子，有利於EDA分子鍵結於含氧官能基處（如羧基、羥基）。
2. 在氧化階段（+0.4 V），使表面重啟官能基生成與鍵結重排，有助於EDA與GO之間形成穩定化學鍵，提升修飾效率與表面穩定性。
3. 週期性交替可有效防止過度還原造成GO結構破壞，並在動態條件下誘導出高密度官能基結合，達到最佳鍵結與表面功能化結果。

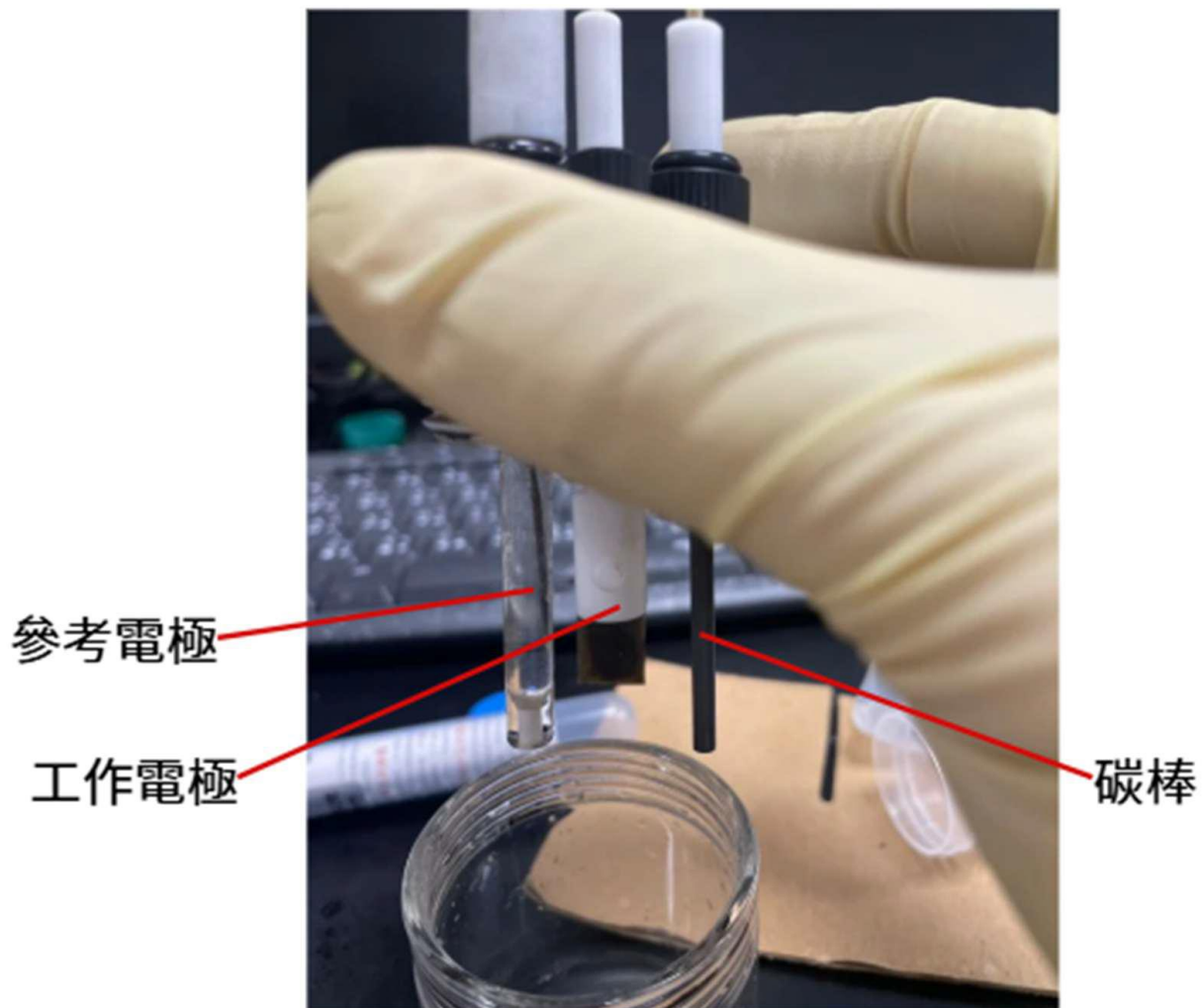


圖 45. 三極式電極布置方式

首先，本研究團隊選擇以碳氈（Carbon Felt, CF）作為基材，並透過適當的前處理程序（如乙醇超音波清洗與酸洗）去除表面雜質與氧化層，以提升其表面粗糙度與活性位點暴露程度，進一步增強後續材料修飾的附著能力。接著，使用循環伏安法（Cyclic Voltammetry, CV）將氧化石墨烯（Graphene Oxide, GO）成功電沉積至碳氈表面，藉由多次掃描形成穩定且均勻的薄膜。GO 的沉積不僅改善了原始碳氈表面的導電性與官能性，也提供了大量含氧基團（如羧基、羥基與環氧基），作為後續EDA鍵結的反應位點。

完成GO修飾後，再利用定電位法（Chronoamperometry, CA）進行乙二胺（Ethylenediamine, EDA）電鍍修飾。EDA分子富含雙胺結構，能與GO表面的羧基形成共價鍵結，進一步引入含氮官能團，提升電極表面的親水性、極性與金屬螯合能力。為了進一步控制分子排列與修飾均勻度，設計了交替式脈衝電場（alternating pulsed potential）條件，透過正負電位交錯施加的方式，使EDA分子在外加電場下呈現定向排列與間歇式聚集。此過程如右圖所示，涵蓋四個主要步驟：初始狀態下（Step I）EDA分子自由分散於溶液中；通入正電（Step II）時，EDA分子被吸引至電極表面，進行初步吸附與排列；隨後施加



負電 (Step III) 使分子在表面發生還原與鍵結反應；再次通入正電 (Step IV) 促進EDA層重組與緊密堆積。如此設計可有效避免過度還原與聚合現象，達成功能性與結構穩定性兼具的修飾層，進而顯著提升電極對金屬離子的吸附能力與選擇性，為後續在水處理應用中奠定良好基礎。

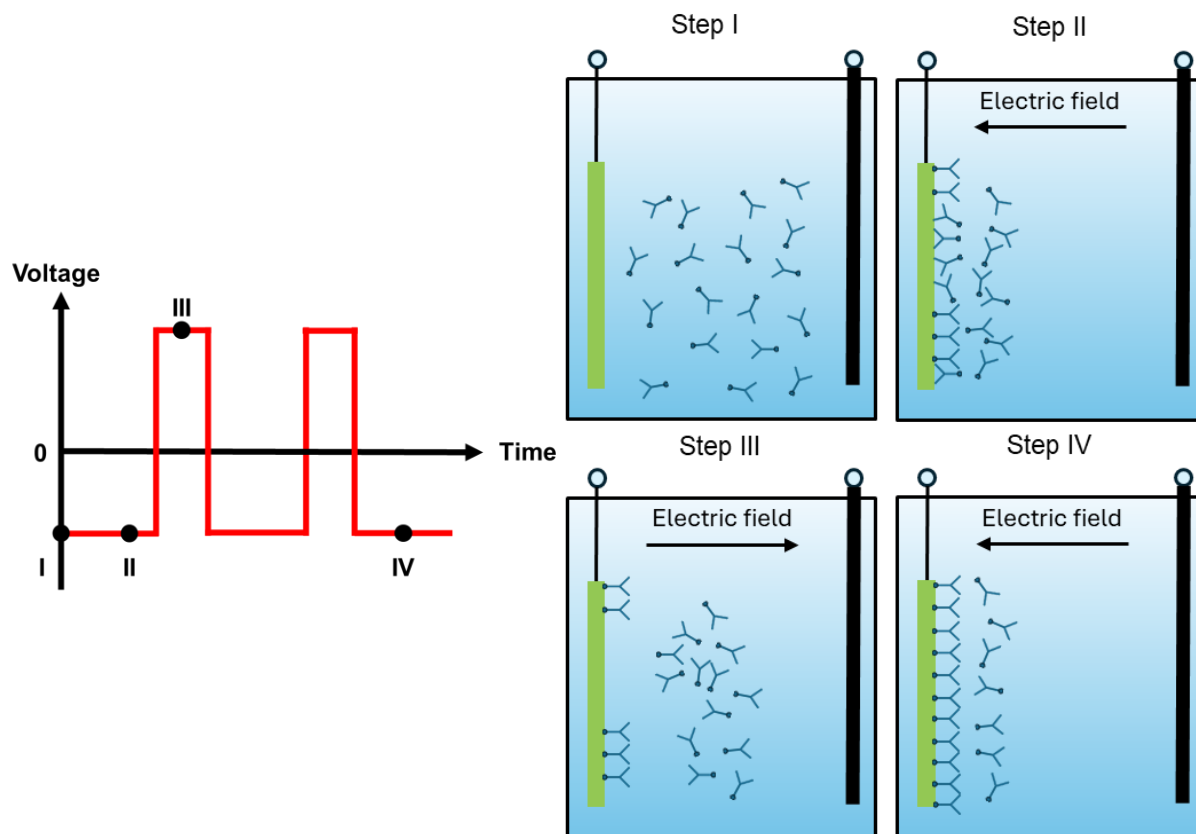


圖 46. CA 電鍍條件

下方圖片為表示間格式與單次修飾的差別，圖片上方為傳統「單次EDA修飾路徑」，即於GO表面單次沉積EDA分子後直接進行金屬離子吸附。該方式因表面胺基排列不均且鍵結密度不足，容易造成EDA - Cu^{2+} 配位不穩，導致部分金屬於反應後脫附，最終吸附效果不穩定，甚至觀察到溶液呈現淡紫色（圖中瓶中顏色），代表部分 Cu^{2+} 仍殘留於溶液中。

圖片下方則為本研究採用之「間隔式EDA鍵結策略 (Intervalled EDA silanization)」，在EDA修飾後引入洗淨步驟以移除未鍵結或弱鍵結分子，再進行二次EDA修飾，使EDA均勻且穩固地鍵結於GO表面。該策略可有效提升表面胺基密度與空間排布完整性，形成穩定EDA - Cu^{2+} 配位，最終顯示完全去色，代表金屬離子幾乎完全吸附。

此機制不僅解釋本研究中 - 0.6/0.4 V 條件在 Cu^{2+} 吸附上效果最佳，也佐證洗淨步驟與階段性電位控制有助於穩定修飾層形成，進一步提升功能化效率與應用可靠性。

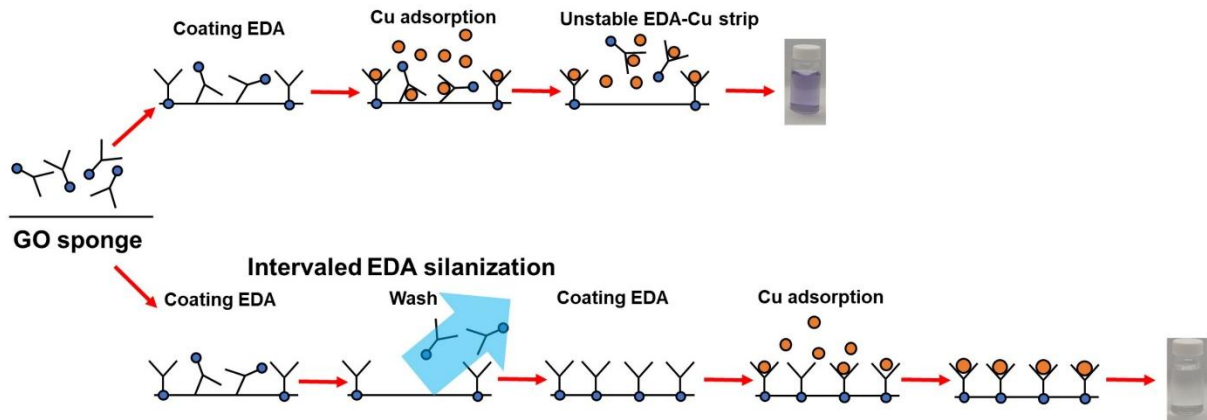


圖 47. 傳統單次修飾與間隔式EDA修飾策略對Cu²⁺吸附穩定性之比較示意圖



(五)結果與討論

為確認乙二胺（EDA）是否成功修飾於石墨烯氧化物（GO）表面，本研究利用拉曼光譜進行結構分析。GO 與 EDA-GO 樣品皆呈現兩個典型特徵峰，分別為約 1350 cm^{-1} 的 D band 與約 1590 cm^{-1} 的 G band。D band 與碳材料中的缺陷密度密切相關，對應於非完美 sp^2 結構或邊界缺陷等；而 G band 則反映石墨烯中 sp^2 碳原子骨架的有序伸縮振動模式。這兩個峰的相對強度比例（ I_D/I_G ）是評估材料結構缺陷程度的重要指標。

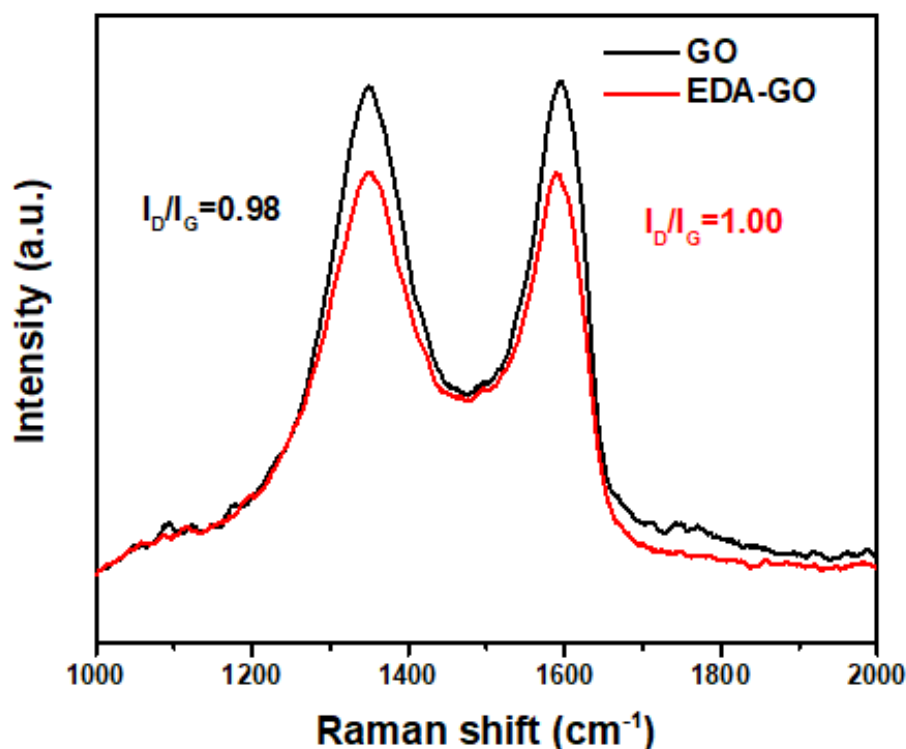


圖 48. 比較GO與EDA-GO樣品之Raman光譜

GO 樣品的 I_D/I_G 為 0.98，顯示其在氧化處理後具有一定程度的結構無序性與缺陷，這些缺陷主要來自引入的含氧官能基（如羧基、羥基與環氧基）所造成的 $\text{sp}^2 \rightarrow \text{sp}^3$ 結構轉換。進一步以 EDA 修飾後， I_D/I_G 升高至 1.00，代表材料中缺陷密度略為增加，說明修飾反應確實對碳骨架造成了微觀結構的影響。此變化可能源於胺基與氧官能基（特別是羧基或環氧基）發生取代或交聯反應，使部分原本規則的 sp^2 結構轉為 sp^3 雜化結構，導致晶格對稱性下降並產生局部扭曲或缺陷。



此外，拉曼光譜中的變化也可視為 EDA 成功鍵結在 GO 表面的結構性佐證。由於拉曼光譜對碳基材料結構極為敏感，特別能反映官能化後的局部電子結構變動，因此 I_D/I_G 的變化不僅顯示缺陷增加，也暗示分子間交互作用的產生。此結果與接觸角測試中觀察到的親水性提升、以及電化學測試中表現出的活性提升相互印證，提供了材料改質效果的多重佐證。

整體而言，透過拉曼光譜可確認 EDA 修飾確實在 GO 表面發生，並改變其微觀結構與缺陷分布，這對後續材料在吸附、電化學反應或催化等應用上具有正向影響。結構缺陷的適度提升有助於提高表面活性，增強金屬離子或污染物與材料間的相互作用，為其應用潛力提供結構層面的支持。

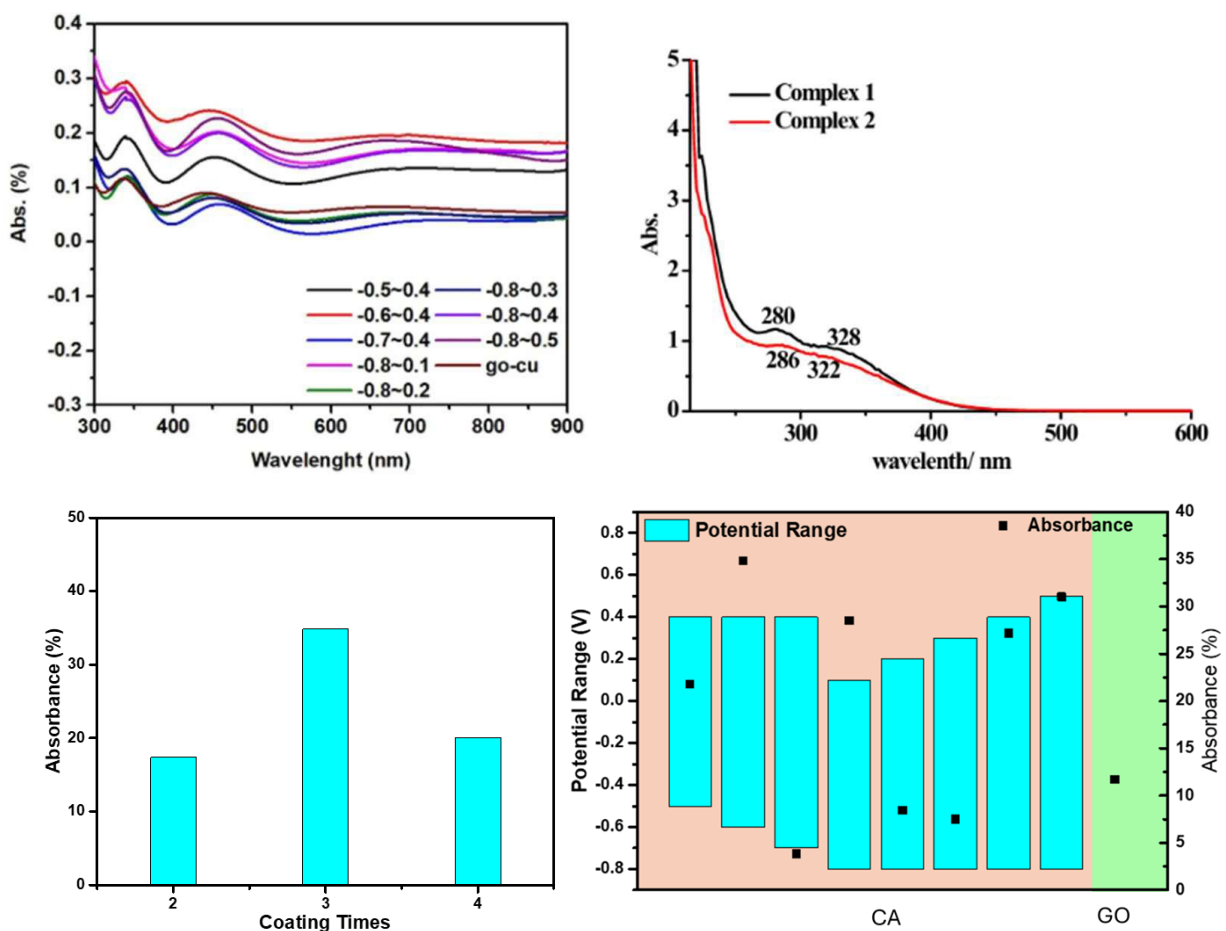


圖 49. 這是試片吸附硫酸銅水溶液之後用紫外光譜儀量測出來的數據圖表以及用來比對銅離子吸附的圖表。[52]

在本研究中，利用紫外可見光 (UV-Vis) 吸收光譜分析不同電位條件下電化學還原之 GO/EDA 樣品對銅離子 (Cu^{2+}) 的吸附效果，進一步探討其對材料結構與吸附性能的影響。從左圖可見，不同電位處理下樣品對應的穿透率變化差異明顯。其中，當電位設定為 $-0.6 \text{ V} / 0.4 \text{ V}$ 時，樣品吸收曲線在整體波長範圍內



呈現最顯著的上升趨勢，代表穿透率大幅下降，反映材料吸附銅離子後光學密度增加。此結果指出，在該條件下的還原與EDA修飾程度最為理想，不僅成功保留適量的氧官能基（如羧基與羥基），同時有效導入含氮胺基，創造出高密度的配位與活性位點，促進 Cu^{2+} 的選擇性捕捉與鍵結能力。此外，適當的還原電位也維持了石墨烯結構的穩定性與導電性，確保了電子傳遞效率，有利於後續的電吸附與再生操作。相較之下，在 $-0.5 \text{ V} / 0.4 \text{ V}$ 條件下處理之樣品，其吸光度變化幅度顯著減小，說明材料吸附銅離子的能力有限。推測此電位可能造成還原程度不足，使GO表面官能基保留不足，進而影響EDA的鍵結密度與吸附位點數量。也有可能因表面極性與親水性不足，導致 Cu^{2+} 在水相中無法有效接近或與材料表面形成穩定配位。從整體趨勢來看，較負的電位（ -0.6 V ）有助於打破GO中部分含氧基團的 $\pi-\pi$ 堆疊，使其表面結構鬆動，有利於EDA滲透與鍵結，進而增強吸附能力。而在過低或過高電位條件下，則可能導致還原過度或修飾不足，影響結構穩定性與官能基密度。右圖則為標準 Cu^{2+} 錯合物（complex 1與complex 2）於UV波段的吸收圖譜，峰值分別位於280、286、322、328 nm左右，進一步驗證樣品吸附後吸光度上升與 Cu^{2+} -EDA錯合物形成高度相關，提供本研究銅離子成功吸附的光譜證據。因此， $-0.6 \text{ V} / 0.4 \text{ V}$ 為本實驗中最理想的修飾條件，能有效平衡還原程度與官能基保留，顯著提升材料對金屬離子的吸附效率與選擇性，展現其於環境重金屬去除應用中的潛力。

接著進一步探討不同修飾條件下對金屬離子吸附能力的影響，特別聚焦於塗佈（coating）次數與電鍍電位範圍的最佳化。左圖顯示在相同反應時間下進行2次、3次與4次塗佈後的吸附效果差異。結果顯示，在塗佈3次的情況下，吸收度（Absorbance）最高，代表其金屬吸附效率最佳。這可能是因為經過三次塗佈後，可在基材表面形成一層連續且適度厚度的功能化膜層，使官能基的分布最為均勻且暴露充分，有助於後續金屬離子與表面螯合點的接觸與固定。然而，當塗佈次數過少（如2次）時，功能層覆蓋可能不足，導致表面活性位點數量不足；相反地，塗佈過多（如4次）可能造成膜層堆疊過厚或不均勻，阻礙電子傳遞與溶液中離子的滲透，使整體吸附效率下降。因此，本研究團隊可合理推論，塗佈次數的最佳值非為越多越好，而是存在一個平衡點，而本實驗中此最佳值即為三次塗佈。

右圖則進一步整合了前述吸附實驗結果與CA電鍍條件之電位設計，嘗試從電化學參數與吸附行為之間找出關聯。圖中長方形的上下邊界分別代表所施加的最大與最小電位（即CA電鍍過程中的正負電位範圍），而黑點所對應的右側Y軸為不同條件下測得的金屬吸收度。結果顯示，當電位設計落在 $-0.6 \text{ V} / 0.4 \text{ V}$ 時，其吸收度明顯高於其他條件，說明該電位範圍可有效驅動EDA分子的定向排



列與穩定鍵結，進而生成最佳的功能膜層。若電位過負（如 -0.8 V ）可能導致 GO 過度還原、結構破壞與官能基脫落；反之，若電位範圍不足（如 $-0.5\text{ V} / 0.4\text{ V}$ ），則缺乏足夠的電場驅動力以促進 EDA 鍵結與排列。因此，本圖清楚地顯示，最佳塗佈效果並非僅靠重複次數所能達成，還必須搭配合適的電鍍電位區間，以達到表面官能化與結構穩定性的雙重最適化。

此結果不僅驗證了多層次參數調控的重要性，也提供了後續應用於重金屬去除、電極材料設計與水處理技術開發的參考依據。透過塗佈次數與電位區間的系統性優化，可顯著提升材料的金屬捕捉效率與選擇性，為實際應用提供強而有力的材料設計依據。

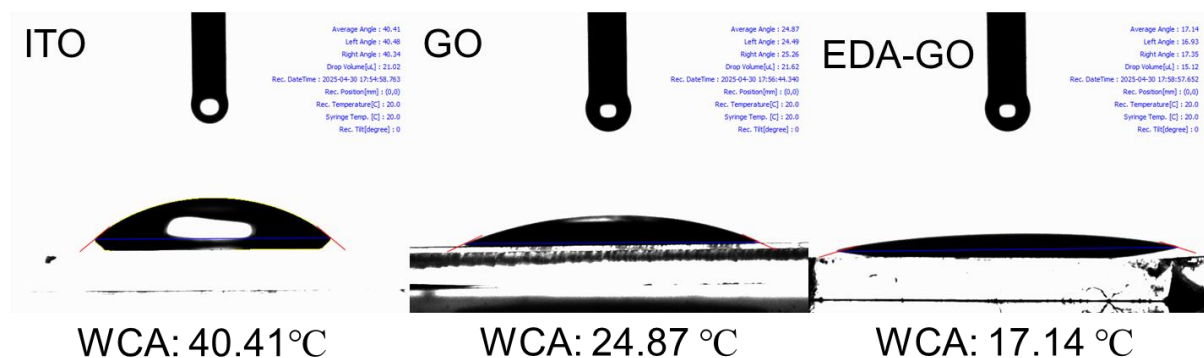


圖 50. ITO、GO 與 EDA-GO 表面的水接觸角（WCA）測量結果。經 EDA 修飾後的 GO（EDA-GO）表現出最低的接觸角（ 17.14° ），顯示其表面親水性顯著提升，有利於吸附與電化學反應的進行。

接觸角測試結果顯示材料表面經過逐步修飾後，其親水性有明顯提升。未修飾的 ITO 基板具有 40.4° 的接觸角，屬於中等潤濕性表面，僅能提供有限的液相接觸能力。當石墨烯氧化物（GO）薄膜覆蓋其表面後，接觸角下降至 24.9° ，顯示其表面因引入大量含氧官能基（如羥基、羧基、環氧基）而變得更加極性，能與水分子形成氫鍵，從而提升潤濕效果。這些官能基除提升親水性外，也為後續化學修飾提供了反應位點，是材料功能化的關鍵基礎。

進一步利用乙二胺（EDA）修飾 GO 薄膜後，接觸角進一步降低至 17.1° ，顯示材料表面不僅保留了原有的含氧基團，還成功引入極性更高的胺基（ $-\text{NH}_2$ ）。胺基作為強親水性官能團，可與水分子形成穩定的氫鍵，同時能與金屬離子進行高選擇性的配位螯合，進一步提高表面活性。此變化不僅體現在接觸角數據上，也間接反映出表面自由能的提升，使材料更適合應用於水相環境下的吸附、電化學反應或離子交換系統中。

此外，接觸角的降低意味著液體與固體界面間的接觸面積增加，對於金屬離子的捕捉尤為關鍵。親水性的提升使得材料在液相中可形成更穩定的擴散層，有



助於金屬離子快速傳輸至吸附位點，縮短反應動力學所需時間，提高整體吸附速率與效率。對於基於電化學或電場驅動的吸附系統而言，潤濕性佳的表面還能促進電荷在電極與溶液之間的交換，有效降低界面電阻，進一步增強材料在實際操作中的導電性與反應活性。

總體而言，從 ITO、GO 到 EDA-GO 的逐步修飾過程，不僅實現了化學結構的功能化，也在物理性質上顯著改善了表面親水性與潤濕行為，為後續應用於重金屬離子吸附、水處理或電化學感測等領域奠定了堅實的材料基礎。

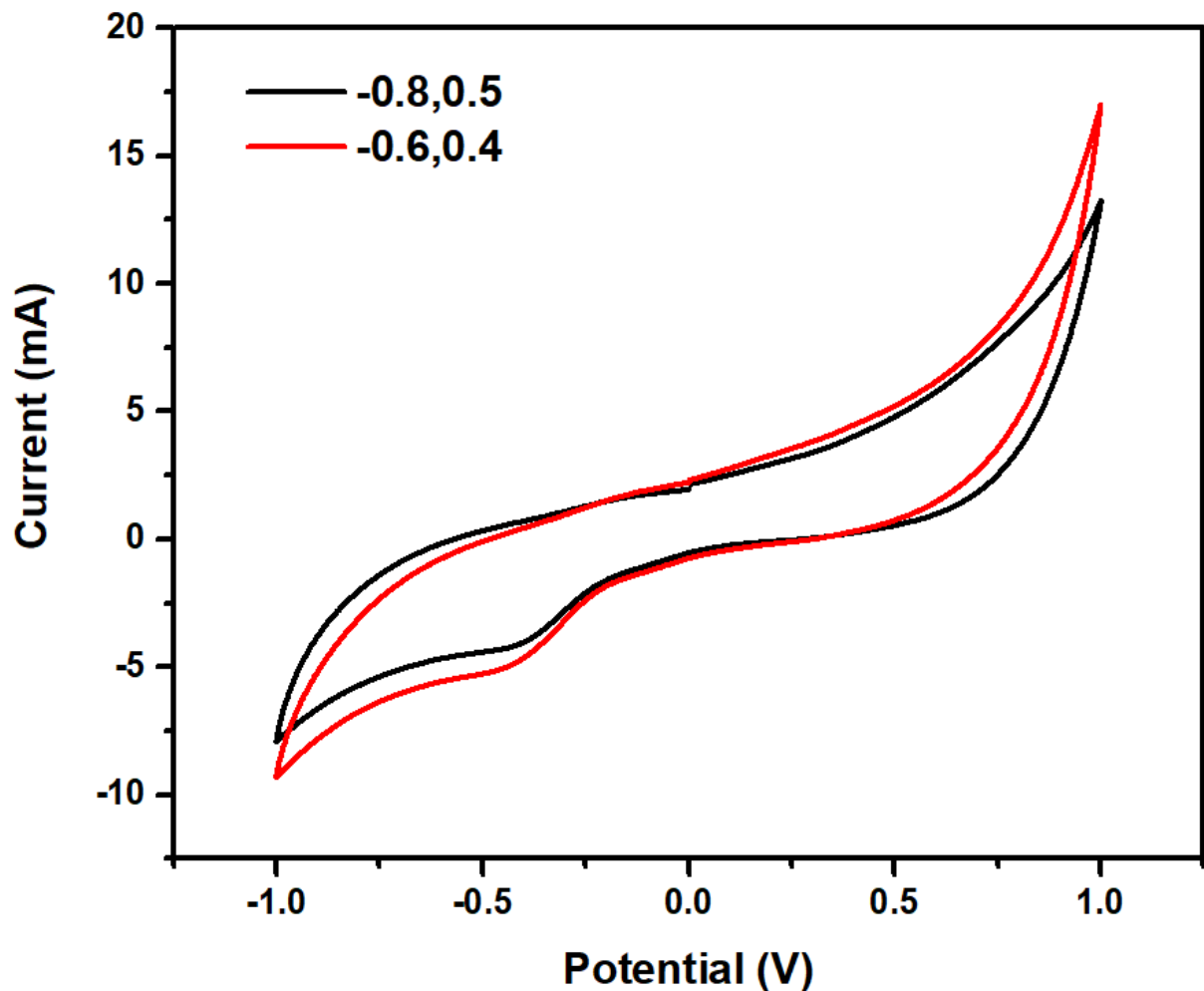


圖 51. 不同CA條件修飾後樣品在 -1.0 至 $+1.0$ V 掃描區間內之CV曲線。

如圖所示，本研究比較了以不同定電位（CA, Chronoamperometry）條件修飾後樣品在掃描區間 -1.0 V 至 $+1.0$ V 下的循環伏安（CV）行為，藉以探討材料表面導電性與電化學活性之差異。兩組條件分別為 $-0.6/0.4$ V（紅色曲線）與 $-0.8/0.5$ V（黑色曲線），可明顯觀察到前者在整體電流密度與曲線對稱性方面均表現較佳，特別是在正電位區域，氧化電流峰值明顯較高，反映其具有更強的氧化反應動能與電子轉移效率。



這種現象可解釋為 $-0.6/0.4\text{ V}$ 條件下所生成的材料具有較佳的還原程度與官能基保留率。該電位範圍足以活化石墨烯氧化物 (GO) 表面，使部分含氧官能基轉化為導電性更高的 sp^2 碳結構，並同時保留足夠的羧基與胺基位點，有助於維持界面電荷交換與反應活性。而在過度還原條件下 ($-0.8/0.5\text{ V}$)，GO 結構可能發生碳骨架破壞，原有官能基被還原為惰性基團 (如氫化碳鏈)，造成導電網絡中斷與表面極性降低，導致電化學反應表現明顯退化。

此外，從 CV 曲線的對稱性與極化程度來看， $-0.6/0.4\text{ V}$ 樣品在氧化與還原掃描中的電流反應更為接近，顯示其具備較理想的可逆性與穩定的電荷傳輸通道。相反， $-0.8/0.5\text{ V}$ 樣品的還原電流偏移明顯，可能因表面電子供應能力不足，造成反應遲滯與電極反應動力學不佳，這也與前述材料結構過度破壞的推測相符。

綜合而言，CV 測試結果證明 $-0.6/0.4\text{ V}$ 條件下所製備之電極材料具有更優異的電化學性能，其穩定的表面官能基與良好的電子導通性共同促成了高電流密度與對稱的 CV 曲線，為後續應用於吸附、感測或電催化反應提供良好基礎。該電位條件兼顧了結構完整性與導電性，展現出調控修飾參數對材料電化學行為的高度影響性。

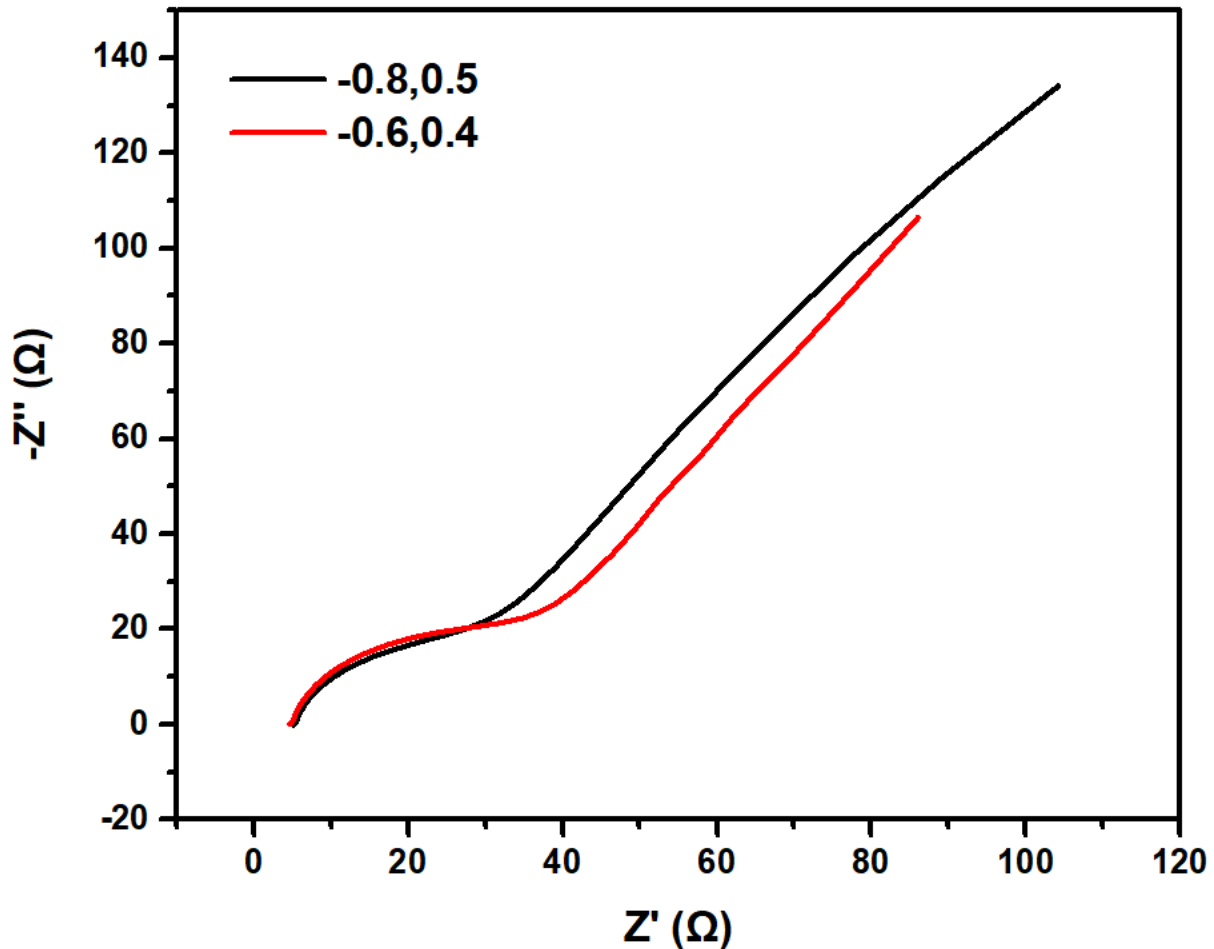


圖 52. 反映不同電位條件下樣品的阻抗行為。

圖中橫軸為實部阻抗 Z' ，縱軸為虛部阻抗 $-Z''$ ，整體曲線呈典型的半圓加線性尾部結構，對應於高頻區的電荷傳輸阻抗 (R_{ct}) 與低頻區的擴散行為 (Warburg 效應)。

從圖中可明顯觀察到，經 $-0.6/0.4$ V 條件修飾後的樣品（紅色曲線）起始橫截距 Z' 顯著較小，代表其電荷傳輸電阻 (R_{ct}) 較低，電子在電極/電解液界面間的移動更加順暢，顯示此條件下材料具有較佳的導電性與界面電荷交換效率。反觀經 $-0.8/0.5$ V 處理的樣品（黑色曲線）整體曲線明顯右移， Z' 起始值增高，阻抗顯著提升，推測可能由於材料過度還原導致碳骨架破壞或官能基嚴重流失，造成導電通道中斷與表面活性位點減少，進而削弱電子傳輸與反應動力學表現。

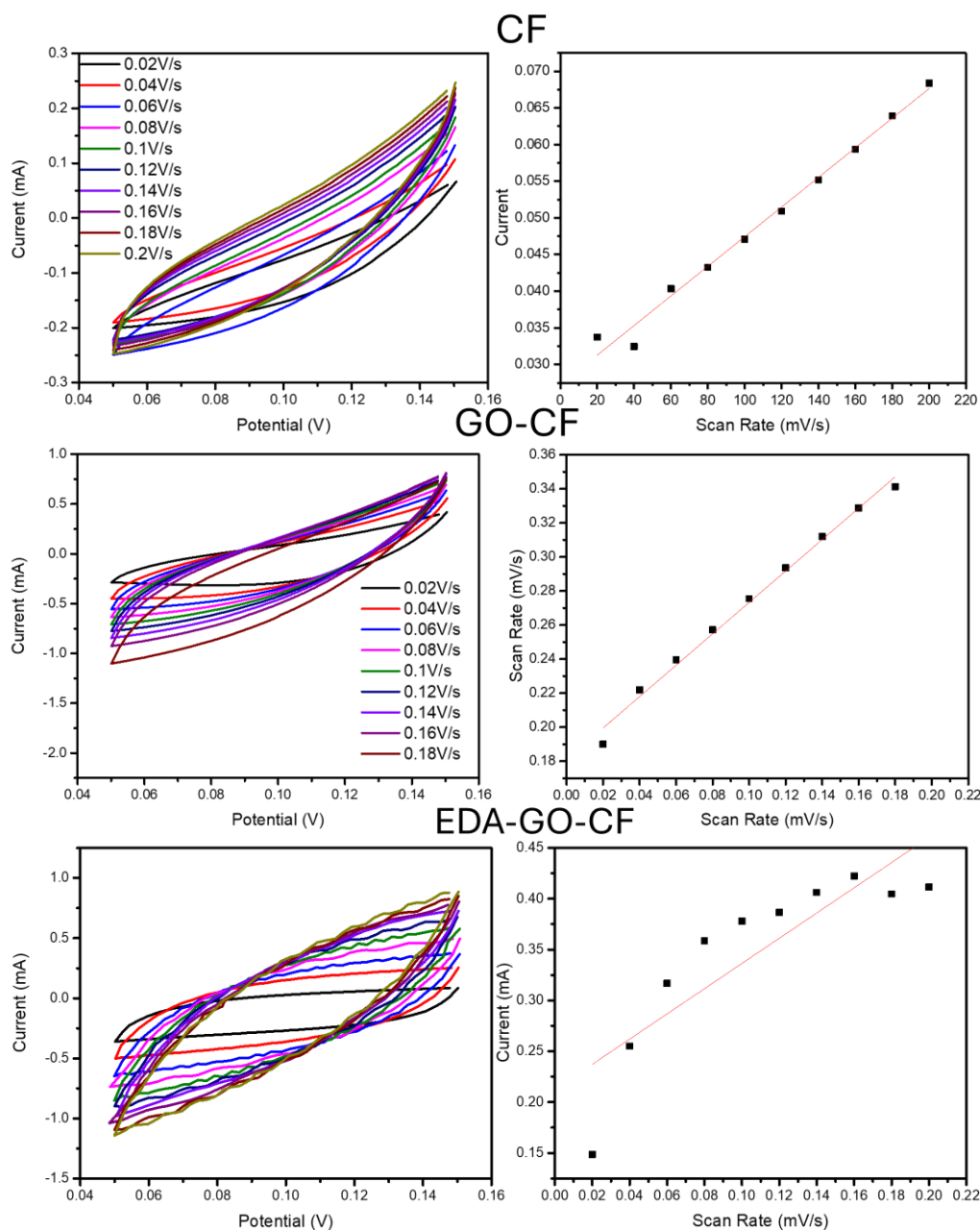
此外，低頻區曲線斜率的差異也反映出兩組樣品在離子擴散行為上的表現。 $-0.6/0.4$ V 樣品於低頻段呈現較陡的線性趨勢，說明其電極表面與電解液間形成較薄的擴散層，有利於電解質離子的快速進出與傳輸，降低反應遲滯。相較之下， $-0.8/0.5$ V 樣品曲線趨於平緩，暗示其擴散行為受限，可能源自於表面孔隙



阻塞或有效活性面積減少所致。

從材料結構角度分析，適度的還原電位（ $-0.6/0.4\text{ V}$ ）有助於在保留碳骨架完整性的同時，去除部分絕緣性官能基，並建立連續導電網絡；同時保留之官能基可作為金屬吸附位點或參與後續電化學反應。而過度還原條件（ $-0.8/0.5\text{ V}$ ）則容易造成結構坍塌，導致導電性劣化與電化學反應效率下降。

綜合而言，EIS 分析結果再次印證 $-0.6/0.4\text{ V}$ 為較理想的修飾電位條件，不僅可有效降低電荷傳輸阻力，也能維持良好的電極/電解質界面反應活性與離子傳輸效率，對於實際應用於金屬吸附或儲能裝置具有重要意義。此外，從 CV 曲線的對稱性與極化程度來看， $-0.6/0.4\text{ V}$ 樣品在氧化與還原掃描中的電流反應更為接近，顯示其具備較理想的可逆性與穩定的電荷傳輸通道。相反， $-0.8/0.5\text{ V}$ 樣品的還原電流偏移明顯，可能因表面電子供應能力不足，造成反應遲滯與電極反應動力學不佳，這也與前述材料結構過度破壞的推測相符。



樣品	Cdl (mF)	ECSA (cm ²)
CF	0.000202052	0.00505
GO-CF	0.92185	23.04625
EDA-GO-CF	1.23997	30.99925

圖 53. 電化學活性表面積 (ECSA) 比較



在本研究中，透過循環伏安（Cyclic Voltammetry, CV）與雙電層電容（Cd1）等電化學技術，深入探討不同修飾程度之碳氈電極材料（CF、GO-CF、EDA-GO-CF）的電化學性質變化與其潛在應用價值。首先，原始碳氈（CF）本身為導電性良好的碳材料，但由於其表面缺乏極性官能基與吸附活性位點，因此在CV圖中呈現出電流密度極低且封閉的鴨嘴狀曲線，顯示其雙電層電容貢獻有限，實際ECSA僅為 0.00505 cm^2 ，Cd1幾乎為零，僅 0.00002 mF ，難以有效參與表面反應。當碳氈表面修飾上氧化石墨烯（GO）後，由於GO富含大量含氧官能團（如羧基、羥基及環氧基），其表面極性大幅增加，使電解質離子可更有效地擴散至材料表面並參與電化學反應，CV曲線範圍明顯擴展，電流密度亦明顯提升，顯示其具有較高的表面電荷儲存與反應活性。此變化亦反映在雙電層電容提升至 0.92185 mF ，推估ECSA高達 23.04625 cm^2 ，顯示GO修飾已顯著提升了材料的反應界面與活性表現。

進一步地，當GO表面引入乙二胺（EDA）進行胺化改質後，所形成之EDA-GO-CF電極展現出更優異的電化學行為，其CV曲線不僅展開程度最大，且電流密度在正負掃描區皆有顯著增強，曲線形狀接近理想對稱，顯示其具有優良的可逆性與快速電子傳遞能力。這一提升可歸因於胺基（ $-\text{NH}_2$ ）的成功鍵結使材料表面官能基密度進一步增加，提供更多能與金屬離子配位的活性位點，並強化其親水性，有助於提升與水相介質的界面相容性，使離子遷移路徑更暢通。此外，EDA所引入之含氮基團具備良好電子給予能力，可降低材料表面電荷傳遞阻力，增強整體導電性，進一步強化其電化學行為。其電容值Cd1提升至 1.23997 mF ，對應ECSA高達 30.99925 cm^2 ，為所有樣品中最高者，證實其電極表面具備最多的有效反應區域與吸附容量。

綜上所述，三階段修飾策略有效地由碳氈的導電骨架出發，藉由GO修飾提升表面官能化程度，再透過EDA修飾引入高親和性的胺基位點，使電極兼具良好的電子導電性與離子交換能力，顯著擴展其ECSA與反應動力學。此一多層次修飾策略不僅提升了材料本身的電化學活性與穩定性，也為後續重金屬離子（如 Cu^{2+} ）的高效吸附與選擇性捕捉提供了堅實基礎，具有高度應用潛力與實用價值。該結果展現了分子級官能設計對於碳基材料性能優化的關鍵作用，為未來環境修復與能源應用中的功能性電極材料開發提供了重要參考。

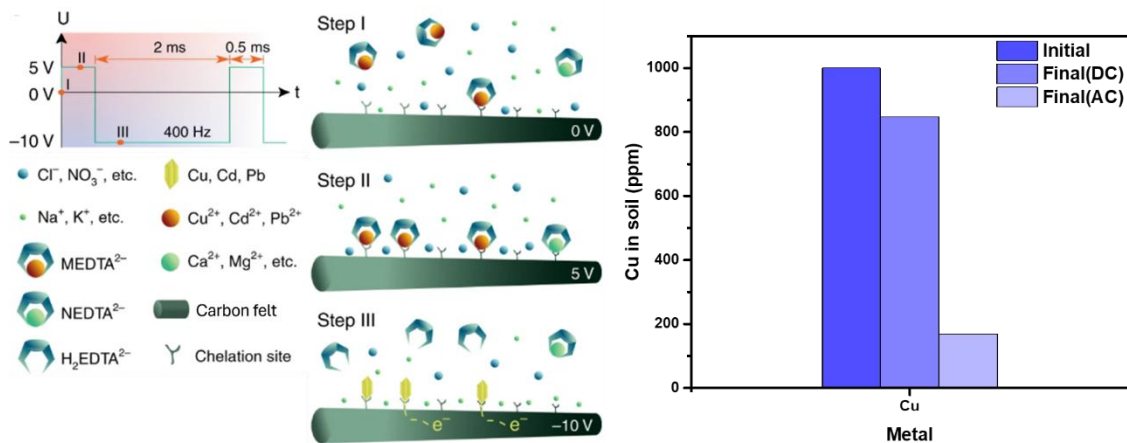


圖 54. 電化學循環吸附機制[53]

本研究提出一種結合化學螯合與電化學處理的創新重金屬去除技術，並搭配交替電壓驅動模式以提升處理效率。整體流程可分為三個主要步驟，分別為金屬螯合流洗 (Step I)、金屬吸附 (Step II) 與金屬還原 (Step III)，各階段密切配合，達成高效、選擇性與可持續的重金屬移除目的。

在第一階段 (Step I)，將添加有螯合劑 (如 MEDTA²⁻、NEDTA²⁻) 的流洗液注入污染土壤，這些螯合劑具有多齒配位能力，能與土壤中釋放出的二價金屬離子 (如 Cu²⁺、Cd²⁺、Pb²⁺ 等) 迅速形成穩定的錯合物，並透過溶解性將其從土壤顆粒中帶出。相較於單純水洗，加入螯合劑可顯著提升萃取效率，同時降低土壤結構的破壞程度。這些含金屬的錯合溶液經過過濾處理後導入下一階段進行電化學吸附。

第二階段 (Step II) 為金屬富集吸附。當錯合金屬離子流入填有功能化碳氈 (如 EDA-GO-CF) 之電化學吸附槽時，施加 +5 V 正電壓，創造出一方向性的電場。此電場可驅動帶負電的金屬錯合離子移動至工作電極表面，並透過表面上的胺基、氧官能團等進行靜電吸引與協同配位鍵結，使金屬離子富集於電極上。這不僅強化了金屬的捕捉效率，也大幅提升了電極表面活性對選擇性金屬的吸附容量。

第三階段 (Step III) 則是將富集於電極表面的金屬離子進行電化學還原。當施加 -9.9 V 的負電壓並維持 4 秒時，金屬離子接受電子轉移反應而轉化為金屬零價 (如 Cu⁰)，進一步沉積於碳氈表面。此過程不僅可實現金屬離子的永久固定，亦具備回收再利用的潛力。此外，由於錯合物在電極表面發生解離與還原同步進行，因此可顯著減少二次污染問題。

此整體處理流程以交替電壓模式 (+5 V 1 秒 / -9.9 V 4 秒) 為核心，模擬類似脈衝式吸附還原週期，可依 5 秒為一循環長期施加，形成穩定而高效的處



理節奏。與傳統直流模式相比，交替電壓技術在選擇性、能量效率與金屬去除率等方面表現更為優異：

選擇性吸附強：能優先吸附二價重金屬離子，避免共存的一價離子（如 Na^+ 、 K^+ ）或其他無機陰離子（如 Cl^- 、 NO_3^- ）產生干擾，提升處理精度。

高還原效率：較長的負電位作用時間確保金屬還原反應完整，有助於減少金屬殘留，並促進形成致密沉積層。

資源再利用與循環性高：流洗液可於去除金屬後循環再利用，降低化學劑用量與廢液排放，兼顧環保與經濟效益。

根據實驗數據顯示，原始土壤中銅含量約為 1000 ppm，經傳統直流（DC）處理後，僅降至約 830 ppm，去除效率有限；而使用交替電壓（AC 模式）處理後，銅濃度可顯著下降至 150 ppm，去除率高達 85%，顯示本系統在實際重金屬污染處理中具備極高的應用潛力與工程擴展性，尤其適合推展至地下水修復、受污染農地整治及土壤重金屬回收等領域。

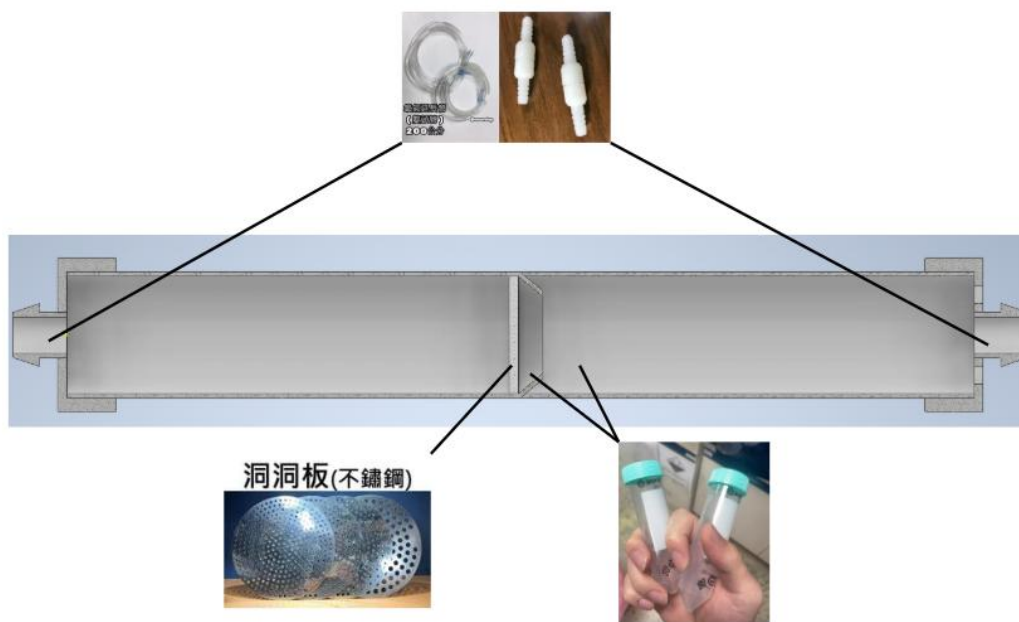


圖 55. 以離心管為基礎之初期模具設計示意與實作圖

為實現具實用性之重金屬電化學修復系統，本研究致力於設計並製作一套可同時進行「土壤重金屬螯合洗脫」與「電極吸附還原沉積」的模具裝置。透過反覆試作與修改，最終確立具可行性的模具架構。早期設計階段，初步構思以離心管作為模具載體，結合不鏽鋼孔洞板作為物理隔層，藉由小型化模組達成多組平行實驗（見圖五十五）。該模具雖加工簡單，便於快速測試，但於實作階段發現，開孔加工將破壞離心管密封性，導致洗液外漏；加之熔接產生之毒



氣、內部空間不足以容納電極與液流，以及開槽後結構強度下降，皆使此設計難以應用於正式實驗流程中。



圖 56. 三通式透明模具設計圖與實體圖展示

在失敗經驗中，意識到模具需兼顧 加工便利性、密封性、可替換性與電化學接點穩定性，故開發出版本 A（三通式模具，見圖五十六、圖五十七、圖五十八、圖五十九、圖六十）。此版本採壓克力材質製作透明主體，配合多片法蘭設計搭配矽膠墊圈，可密封接合土壤腔體與吸附腔體，使清洗液流經土壤並穿越濾材後接觸碳氈電極。其上方另設電極電源連接孔，並透過水位控制防止短



路或電極浸泡失效。然而，實驗證實碳氈易因鐵絲纏繞、固定不穩而撕裂，尤其在反覆施加電壓與液體流動過程中變形斷裂（見圖五十七、圖五十八、圖五十九），導致測試無法進行，且每片修飾電極需時四小時，成本與時間消耗均難以承受，因此放棄作為主模具。

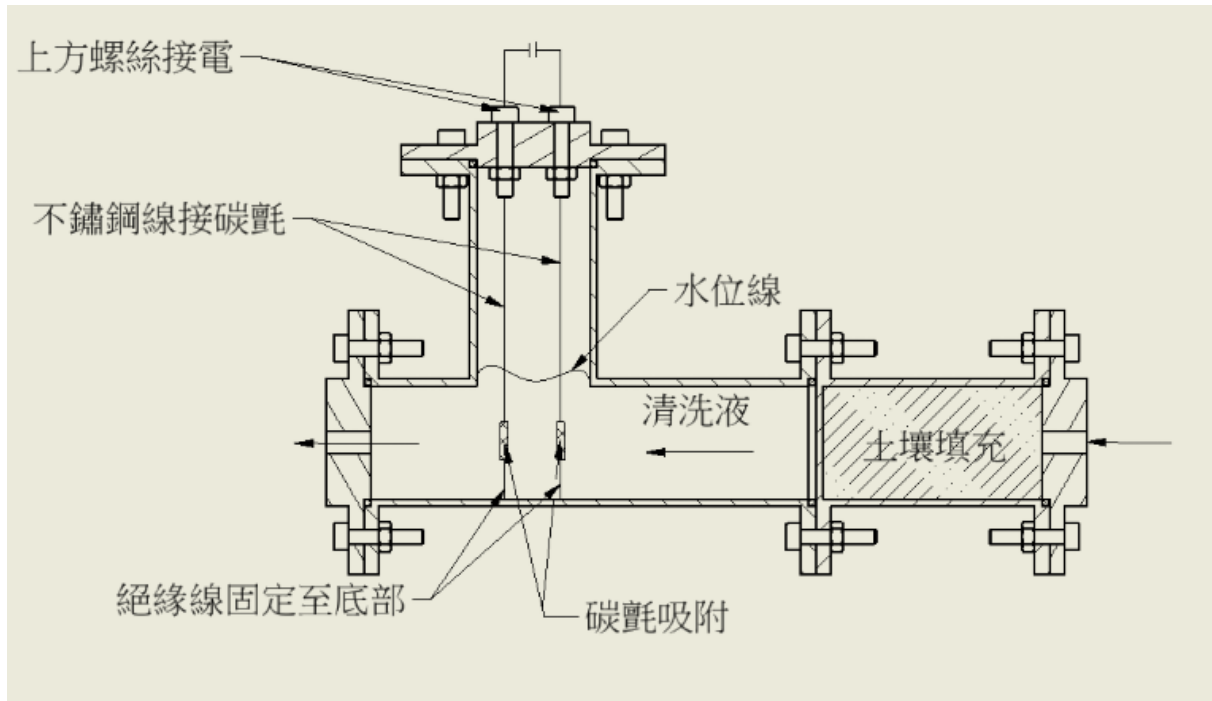


圖 57. 方案A設計圖

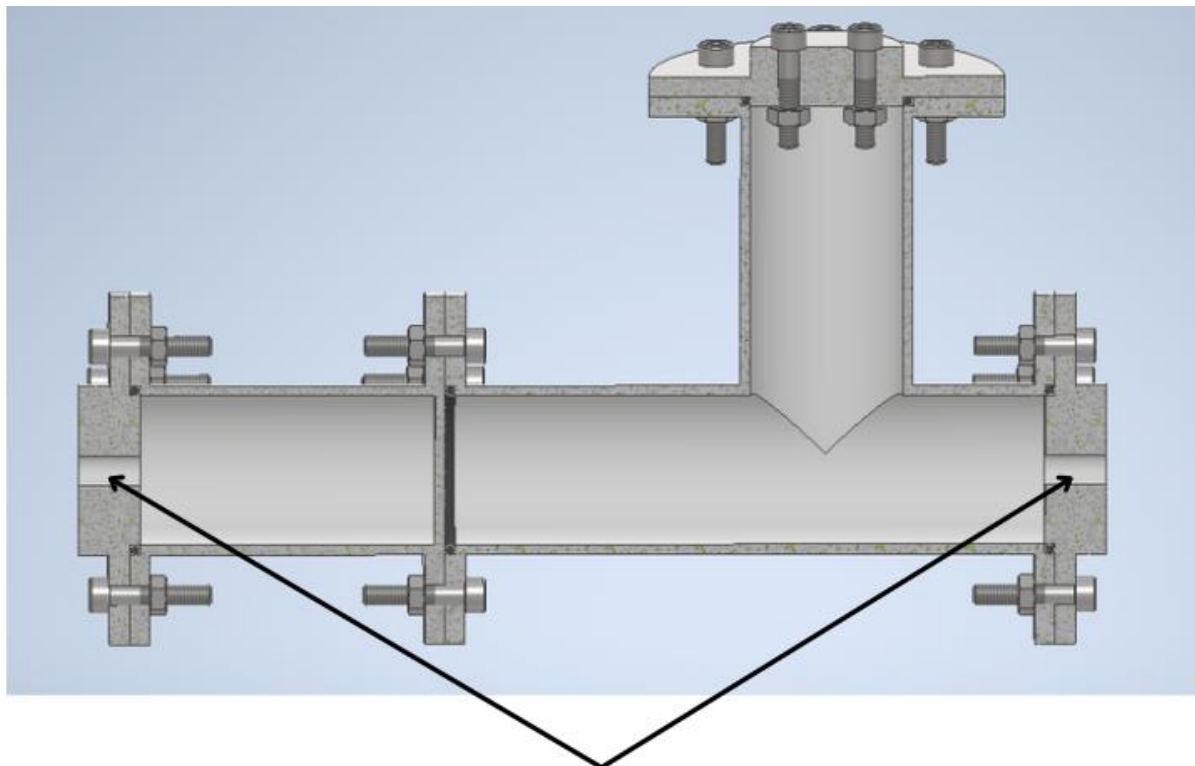


圖 58. 這兩側是清潔液柱入口

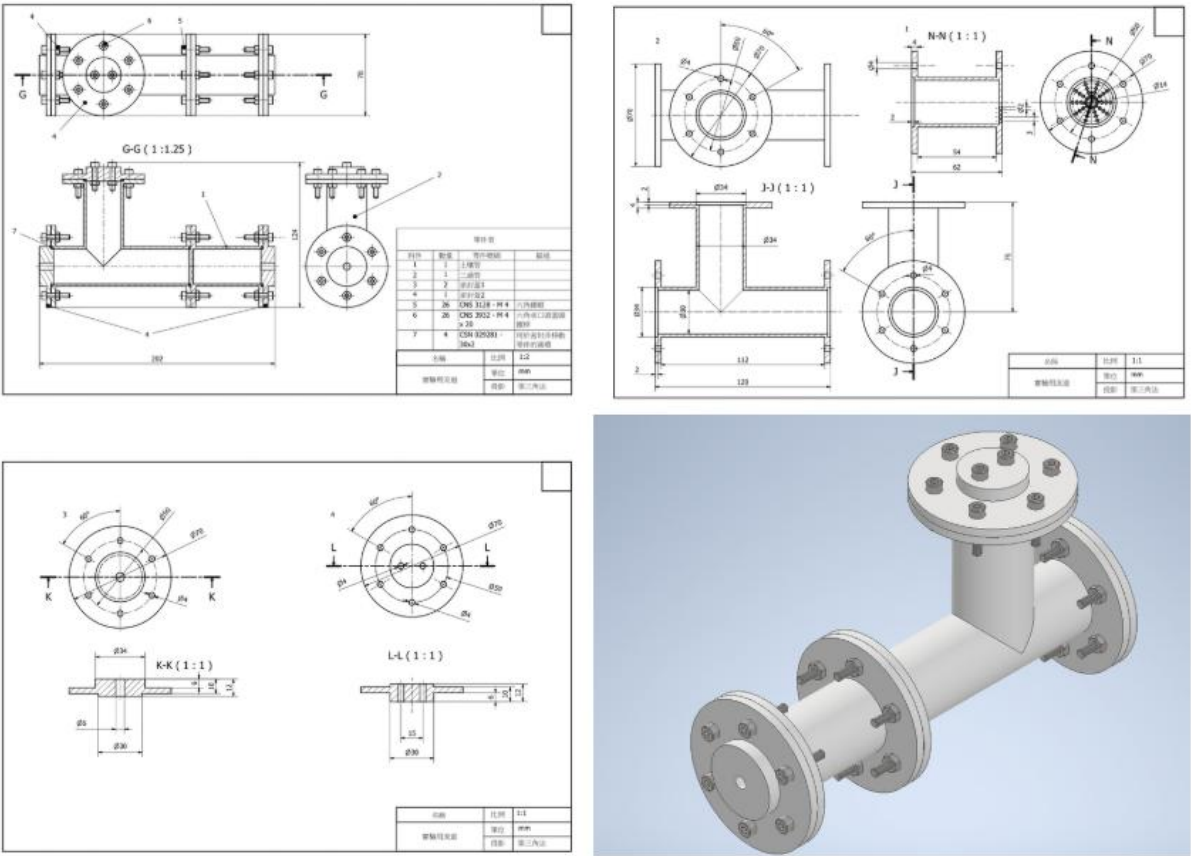


圖 59. 全套工作圖與零件圖以及3D圖展示



圖 60. 實物展示

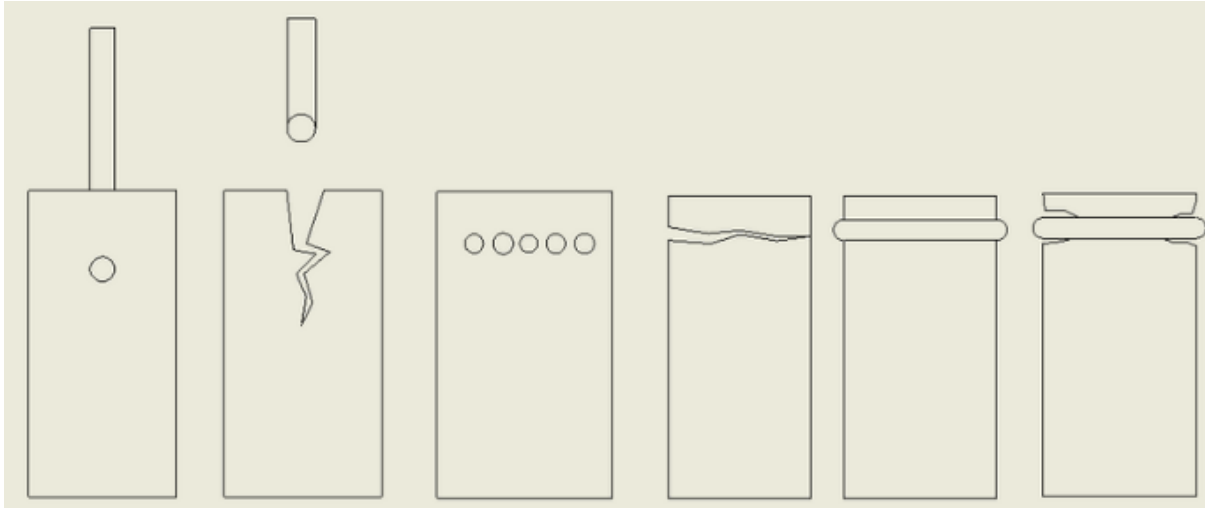


圖 61. 這是各式鋼絲安裝方式導致的碳氈斷裂圖，前兩組是用勾狀鐵絲會使碳氈從中間撕裂，而中間是用鋼絲纏繞的結果，最後兩組則是橫想細綁的結果

改良後的版本 B 則採取更直覺式的簡化設計，採箱型模具結構，內部分隔出土壤填充區與碳氈吸附區，並藉由水位差與外接幫浦達成液體定向流動（見圖劉十一）。此設計除成本低廉、維修簡便外，亦具模組可擴充性，可調整電極尺寸、配置與間距，並設置導軌系統於上緣，使電極與導線固定更為精準穩固（見圖六十一）。雖本版本並未送交廠商加工而由實驗室自製，但成功解決前一代模具在碳氈固定性與電極穩定性上的問題。

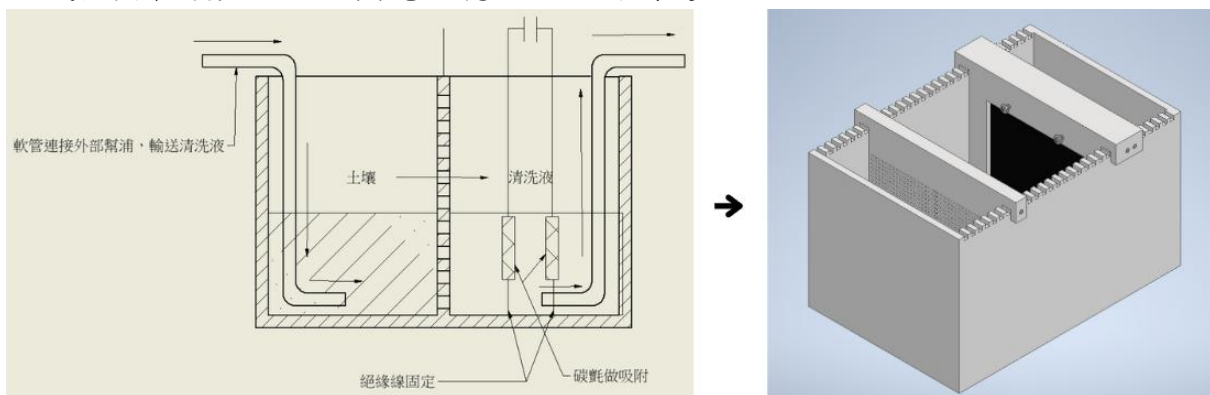


圖 62. 方案B設計圖與3D展示圖

儘管如此，版本 B 於早期實作中仍面臨濾材選擇之關鍵問題。因土壤中粒徑不一，細砂於液流中極易穿透傳統濾紙或尼龍濾布，造成碳氈堵塞與洗液混濁（見圖十一）。多次嘗試後發現，只有結合濾紙與碳氈雙層濾材，方可有效過濾砂粒、保持液體澄清，且提供良好流通效率與吸附表面積。此經驗顯示，不同材料選擇對模具穩定性有關鍵性影響。



圖 63. 第一張圖為無濾網，第二張為濾紙版，第三張是尼龍加濾紙

最後，另一組模具（見圖十二、圖十三）則為平板式多片堆疊設計，初衷為提升碳氈裝填密度與液流控制精度，並藉由立體雷切加工實現特定流道分布。然而，由於未使用工廠加工而由人工黏合製作，導致結構精度不一，螺絲孔對位不準、滲漏風險高，且多孔隔板變形影響液體流速，最終亦未採用，僅保留作為展示用途與未來設計參考。

因此，本研究團隊最終開發出一套更簡潔且易於操作的小型封閉式電化學循環系統，專用於重金屬污染土壤的修復處理。該系統整體由兩組蠕動幫浦、兩個反應槽以及一個電化學吸附槽構成，透過合理的液路配置，實現連續式流動與可循環使用的閉環操作平台（見圖十四）。此設計不僅解決了前期模具在密封性與碳氈破損等問題，也將整體系統微型化，利於未來多樣實驗條件模擬與現地應用評估。

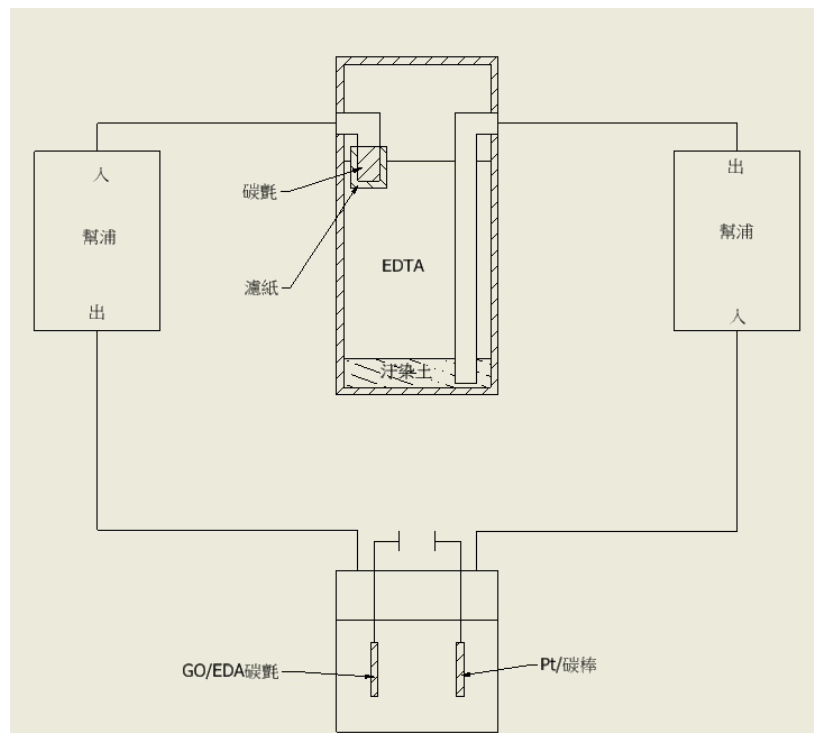




圖 64. 小型電化學封閉式循環系統之示意圖與流路設計

系統啟動後，首先將含有螯合劑（如 EDTA）的清洗液注入第一反應槽，使其流經填充有受污染土壤的腔室。螯合劑會迅速與土壤中釋出的二價金屬離子（如 Cu^{2+} 、 Pb^{2+} 、 Cd^{2+} ）形成穩定錯合物（如 Cu-EDTA^{2-} ），並隨流體被輸送至下游的電化學吸附槽。該吸附槽內裝填有功能化碳氈電極（如以 EDA 修飾的 GO-CF），透過交替施加正負電位（+5 V 1 s / -9.9 V 4 s），模擬脈衝式吸附還原機制，選擇性捕捉錯合重金屬離子，並將其還原成金屬態穩定沉積於電極表面（見圖十五）。

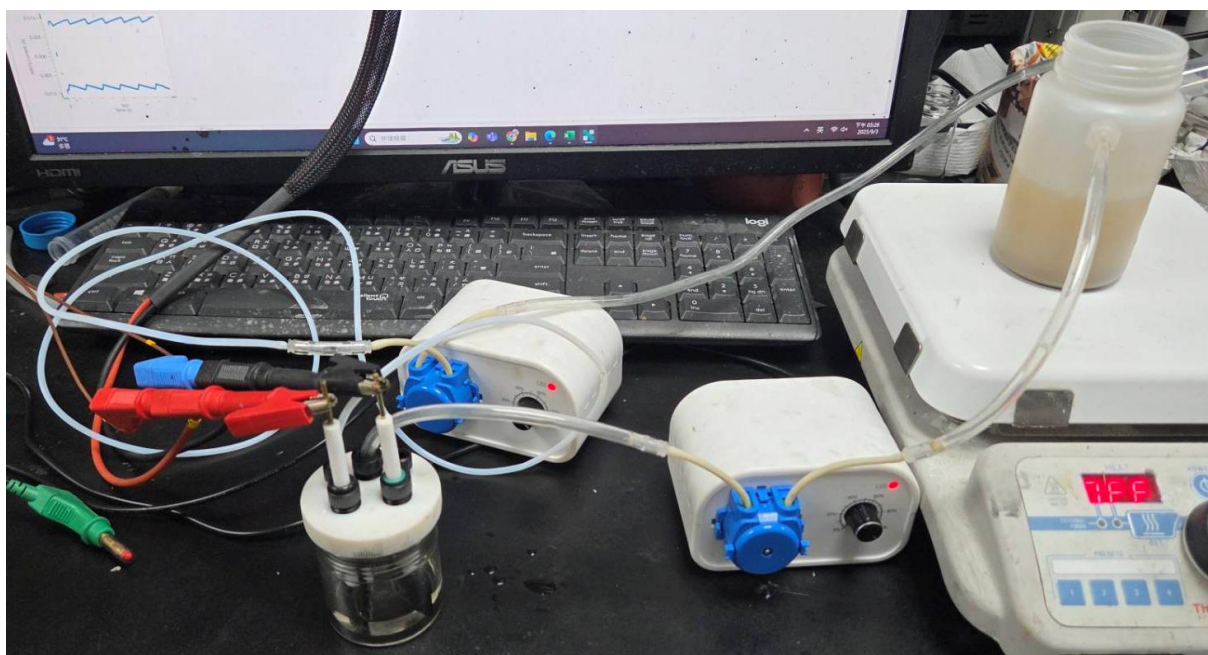


圖 65. 實驗系統實拍圖與電極接線配置說明

整體循環系統的操作核心在於流速與時間的精準控制。將蠕動幫浦流速設定為 0.1 mL/min，此流速經多次測試後確認最適，能夠在保證足夠接觸時間的同時避免流速過快導致吸附不足或過慢造成金屬再釋放。此外，此流速亦可模擬如地下水緩流、土壤毛細孔滲濾等真實環境條件，提高本系統在環境修復應用上的實用價值與技術可行性。

電化學吸附槽的材料選擇與構造同樣關鍵，內部設有 GO/EDA 功能化碳氈電極作為工作電極，其表面含有豐富胺基官能團，可與 EDTA 錯合金屬形成穩定鍵結，提升金屬選擇性吸附能力；同時，其高比表面積與導電性亦有利於金屬離子的還原與沉積反應。對電極進行反覆交替電壓施加時，碳氈表面會依序發生靜電吸附與金屬還原，形成層層沉積金屬膜，使污染物從水相中被永久移除。為監控整體系統運行狀態，搭配電位記錄設備與流體監測儀器，實時追蹤系統中之電壓波形與液流變化，確保實驗條件穩定。圖十五中右側即為實際實驗時的系統操作照片，可觀察各連接管路、幫浦運作與電極夾接情況，操作簡便且



系統封閉性高，有效避免外部干擾與蒸發誤差。

此外，為避免碳氈堵塞與污染液回流至土壤區域，在碳氈前設置濾紙進行雙層過濾，提升整體流體淨化效率與碳氈使用壽命。實驗結果顯示，在連續運行4小時後，系統仍能穩定維持重金屬吸附率與電壓波形穩定性，證明其在實驗室模擬與未來實地應用皆具有高度潛力。

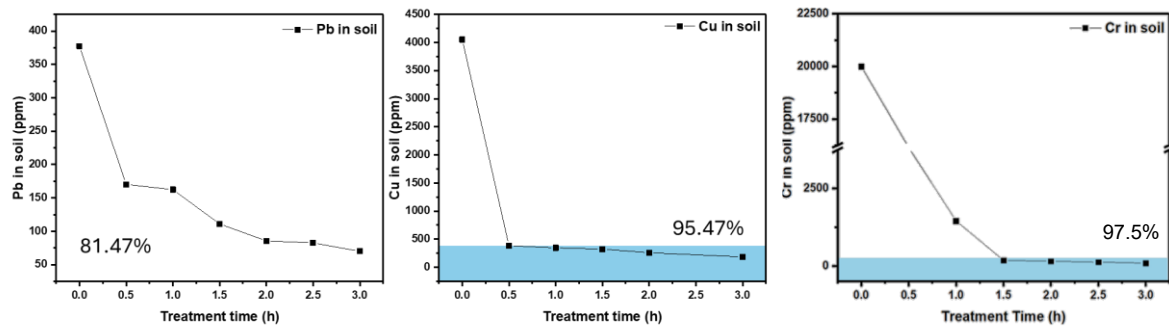


圖 66. 對於不同土壤裡金屬的吸附效果

本研究最終以一套設計簡潔、操作靈活的小型重金屬處理循環系統完成吸附與電化學還原測試。此系統結合雙反應槽與一電化學吸附槽，並透過兩組蠕動幫浦維持流體的穩定循環流動。實驗設計上，螯合劑（如 EDTA）在清洗液中可將重金屬從污染土壤中萃取出來，形成穩定錯合物，進一步導入具備 GO/EDA 功能化碳氈的電化學槽內進行吸附與還原處理。經由交替電壓的驅動（+5V / -9.9V），系統能夠有效促進重金屬離子的吸附與沉積，提升處理效率與選擇性。流速設定於 0.1 mL/min 則確保錯合物與碳氈電極有充足的接觸時間，對於吸附反應完全性與重現性均有顯著幫助。

根據以實際污染場址之真實金屬濃度進行配置並量測之測試結果，可觀察到土壤中金屬離子濃度隨處理時間呈現穩定下降趨勢，整體去除率達 90% 以上，最終可降至法規安全值以下，顯示本系統對目標重金屬具備良好之選擇性與實質去除能力。實驗結果亦顯示，在交替電壓電化學操作下，溶出之金屬離子可有效富集於功能化碳氈電極表面，並經由電化學還原沉積機制達到穩定固定，展現同時具備污染去除與金屬回收之應用潛力。

整體而言，該電化學系統在模擬實場濃度條件下仍能維持良好處理效率，並展現操作流程簡單、系統小型化與模組化等優勢，具備未來放大設計與實際污染場址應用之可行性。透過電壓參數、流速與材料配置之最佳化，本平台已證實其於重金屬污染土壤處理上的高度工程應用價值。



(六) 結論與建議

本研究以電輔助方式成功製備矽橋改質石墨烯電極 (EDA-GO-CF)，並建立交替電壓電化學吸附-還原系統應用於重金屬污染土壤處理。材料分析結果顯示，經 EDA 修飾後，GO 表面結構與官能基特性明顯改變，拉曼光譜之 ID/IG 比值由 0.98 提升至 1.00，顯示表面活性缺陷增加；接觸角由 ITO (40.4°) 與 GO (24.9°) 進一步下降至 EDA-GO (17.1°)，證實材料親水性顯著提升，有利於水相金屬離子傳輸與吸附反應。

在電化學表現方面，定電位修飾條件 $-0.6\text{ V} / 0.4\text{ V}$ 可兼顧石墨烯結構完整性與官能基保留，在循環伏安與阻抗分析中展現較高電流密度與較低電荷傳輸阻抗；同時，塗佈三次可形成均勻且具適當厚度之功能化膜層，進一步提升銅離子之吸附效率與選擇性。

進一步在模擬污染場域的封閉循環裝置中，導入雙反應槽與交替電壓條件 ($+5\text{ V} / -9.9\text{ V}$) 進行實際吸附測試，最終成功將初始濃度達 1000 ppm 的銅離子降至安全法規以下 (150 ppm)，銅去除率高達 95.47%，驗證本系統於現地整治的應用潛力。此外，系統在製程條件與材料選用上亦大幅簡化與優化，將原始需耗費近 3700 元的整治成本有效壓低至約 236 元，整體成本降低幅度高達 93.67%，大幅提升了經濟效益與技術可行性；同時也從高溫長時反應轉為低耗能電化學條件，提升能源使用效率，對永續治理技術具有高度實用價值。

綜合以上成果，本研究不僅在材料修飾與吸附效率上達成多項指標性進展，也在系統設計、製程成本與應用彈性上提供了一套具高度整合性與場域擴展性的解決方案，為未來重金屬污染土壤之處理技術奠定了重要基礎。



電輔助矽橋改質石墨烯電極於重金屬移除及污染物降解技術

年月	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	備註
工作項目													
(1)電化學法石墨烯電極製備以及改質													
(a)氧化石墨烯製備	■												
(b) 電化學改質 EDA/石墨烯於碳氈	■	■											
(3)材料性質分析以及優化													
(a) 孔洞結構以及表面形貌分析		■	■	■	■								
(b)官能基與親疏水性		■	■	■	■								
(c)電化學性質分析		■	■	■	■	■							
(4)污染物吸附以及移除效率優化													
(a) 電吸附模組的建立以及組裝				■	■	■	※						
(b)清洗液、電吸附參數優化以及機制探討				■	■	■	■						
(4) EDA/石墨烯電極再生													
(a)電極吸附重金屬的清洗								■	■				
(b)電極的重複利用性								■	■				
(5)污染場址土壤試驗以及再生													
(a)實廠土壤樣本分析									■	■	■		
(b)土壤整治效果評估										■	■	■	
工作進度估計百分比 (累 積 數)	5%	15%	25%	30%	40%	45%	※ 55%	65%	75%	85%	95%	100%	



(七)參考文獻

1. Shahzad, T., et al., *A Review on Cutting-Edge Three-Dimensional Graphene-Based Composite Materials: Redefining Wastewater Remediation for a Cleaner and Sustainable World*. Journal of Composites Science, 2025. **9**(1): p. 18.
2. Qasem, N.A.A., R.H. Mohammed, and D.U. Lawal, *Removal of heavy metal ions from wastewater: a comprehensive and critical review*. npj Clean Water, 2021. **4**(1): p. 36.
3. TEIA台灣環境資訊協會. 全國農地重金屬污染大評比 2020 [cited 2025 0420]; Available from: https://teia.tw/archives/mountain_lastestpost/%E5%85%A8%E5%9C%8B%E8%BE%B2%E5%9C%B0%E9%87%8D%E9%87%91%E5%B1%AC%E6%B1%A1%E6%9F%93%E5%A4%A7%E8%A9%95%E6%AF%94%E6%A1%83%E5%9C%92%E5%B8%82%E5%8F%8A%E5%BD%B0%E5%8C%96%E7%B8%A3%E6%9C%80%E5%9A%B4%E9%87%8D.
4. Ječmenica Dučić, M., et al. *Low-Cost Graphene-Based Composite Electrodes for Electrochemical Oxidation of Phenolic Dyes*. Crystals, 2023. **13**, DOI: 10.3390/cryst13010125.
5. Lestari, D.Y., et al., *Unveiling the potency of graphene-based materials for water remediation: A brief review*. Journal of Molecular Structure, 2025. **1335**: p. 142018.
6. Pan, M., J. Li, and B. Pan, *Identifying the Active Sites of Heteroatom Graphene as a Conductive Membrane for the Electrochemical Filtration of Organic Contaminants*. International Journal of Molecular Sciences, 2022. **23**(23): p. 14967.
7. Duinslaeger, N., *Electrochemical Degradation of Per- and Polyfluoroalkyl Substances (PFAS) using Low-cost Graphene Sponge Electrodes*. 2023.
8. Ječmenica Dučić, M., et al., *Low-Cost Graphene-Based Composite Electrodes for Electrochemical Oxidation of Phenolic Dyes*. Crystals, 2023. **13**(1): p. 125.
9. Hamdi, F.M., et al., *Hybrid and enhanced electrokinetic system for soil remediation from heavy metals and organic matter*. J Environ Sci (China), 2025. **147**: p. 424-450.
10. Li, J., et al., *Nanoarchitected graphene/ceramic composites*. Composites Part B: Engineering, 2025. **297**: p. 112296.
11. Thakur, K. and B. Kandasubramanian, *Graphene and Graphene Oxide-Based Composites for Removal of Organic Pollutants: A Review*. Journal of Chemical & Engineering Data, 2019. **64**(3): p. 833-867.
12. Melchor-Durán, A.P., et al., *Heavy Metal Removal from Water Using Graphene Oxide in Magnetic-Assisted Adsorption Systems: Characterization, Adsorption Properties, and Modelling*. Separations, 2024. **11**(10): p. 294.
13. Yi, I.-G., et al., *Adsorption characteristics of graphene oxide in the removal of Cu(II) from aqueous solutions*. Desalination and Water Treatment, 2017. **72**: p. 308-317.
14. Wei, B., et al., *Graphene Oxide Adsorption Enhanced by Attapulgite to Remove Pb (II) from Aqueous Solution*. Applied Sciences, 2019. **9**(7): p. 1390.
15. Wang, Y., et al., *[Preparation and Pb(2+) Electrosorption Characteristics of Graphene Hydrogels Electrode]*. Huan Jing Ke Xue, 2017. **38**(9): p. 3747-



- 3754.
16. Ma, W., Y. Liu, and S. Zhang, *Electrochemical reduction of Cr (VI) using a palladium/graphene modified stainless steel electrode*. Water Sci Technol, 2022. **86**(9): p. 2184-2196.
17. Xu, J., et al., *Efficient and Enhanced Adsorption of Methylene Blue on Triethanolamine-Modified Graphene Oxide*. Journal of Chemical & Engineering Data, 2019. **64**(4): p. 1816-1825.
18. Al-Qadri, A.A.Q., Q.A. Drmash, and S.A. Onaizi, *Enhancement of bisphenol A removal from wastewater via the covalent functionalization of graphene oxide with short amine molecules*. Case Studies in Chemical and Environmental Engineering, 2022. **6**: p. 100233.
19. Tang, Q., et al., *N-doped graphene aerogel cathode with internal aeration for enhanced degradation of p-nitrophenol by electro-Fenton process*. Environ Sci Pollut Res Int, 2023. **30**(9): p. 23481-23493.
20. Mazive, P.A., *Graphene Oxide-Based Nanomaterials: The Preparation, Application, and Factors that Affect the Adsorption Capacity on Drinking Water Treatment-Review*. 2020.
21. Liu, Z., et al., *Preparation of a GO/MIL-101(Fe) Composite for the Removal of Methyl Orange from Aqueous Solution*. ACS Omega, 2021. **6**(7): p. 4597-4608.
22. Vo, L.Q., et al., *Fe(3)O(4)/Graphene Oxide/Chitosan Nanocomposite: A Smart Nanosorbent for Lead(II) Ion Removal from Contaminated Water*. ACS Omega, 2024. **9**(15): p. 17506-17517.
23. Nguyen, T.H., V.D. Nguyen, and A.T. Vu, *Synthesis of CS-Fe(3)O(4)/GO nanocomposite for adsorption of heavy metal in aqueous environment*. Nanotechnology, 2024. **35**(34).
24. Madadrang, C.J., et al., *Adsorption Behavior of EDTA-Graphene Oxide for Pb (II) Removal*. ACS Applied Materials & Interfaces, 2012. **4**(3): p. 1186-1193.
25. Ershadi, M., et al., *Facile stitching of graphene oxide nanosheets with ethylenediamine as three dimensional anode material for lithium-ion battery*. Journal of Alloys and Compounds, 2020. **818**: p. 152912.
26. Kim, N.H., T. Kuila, and J.H. Lee, *Simultaneous reduction, functionalization and stitching of graphene oxide with ethylenediamine for composites application*. Journal of Materials Chemistry A, 2013. **1**(4): p. 1349-1358.
27. Huang, H., et al., *Amino-functionalized graphene oxide for Cr(VI), Cu(II), Pb(II) and Cd(II) removal from industrial wastewater*. Open Chemistry, 2020. **18**(1): p. 97-107.
28. Al-Shamakhi, A., et al., *Covalently Immobilized EDTA onto Graphene Oxide Using Ethylene Diamine as a Crosslinker for Cu(II), Pb(II), and Zn(II) Sorption*. Solvent Extraction and Ion Exchange, 2024. **42**(2): p. 133-155.
29. Wang, Y., et al., *Efficient removal of bisphenol-A from water and wastewater by Fe₂O₃-modified graphene oxide*. Chemosphere, 2021. **263**: p. 127563.
30. Veerapandian, M., et al., *Synthesis, characterization and electrochemical properties of functionalized graphene oxide*. Carbon, 2012. **50**(11): p. 4228-4238.
31. Liu, Z., et al., *Surface Functionalization of Graphene Oxide with*



- Hyperbranched Polyamide-Amine and Microcrystalline Cellulose for Efficient Adsorption of Heavy Metal Ions*. ACS Omega, 2022. **7**(13): p. 10944-10954.
32. Farooq, S., et al., *Synthesis of Functionalized Carboxylated Graphene Oxide for the Remediation of Pb and Cr Contaminated Water*. International Journal of Environmental Research and Public Health, 2022. **19**(17): p. 10610.
 33. Abu Elgoud, E.M., et al., *Selective removal of some heavy metals from Lanthanide solution by graphene oxide functionalized with sodium citrate*. Scientific Reports, 2022. **12**(1): p. 13755.
 34. Sun, Y., et al., *The effects of hydroxide and epoxide functional groups on the mechanical properties of graphene oxide and its failure mechanism by molecular dynamics simulations*. RSC Advances, 2020. **10**(49): p. 29610-29617.
 35. Khadivi, S.M., *Enhanced adsorption behavior of amended EDTA-graphene oxide for methylene blue and heavy metal ions*. 2019.
 36. Cui, L., et al., *EDTA functionalized magnetic graphene oxide for removal of Pb(II), Hg(II) and Cu(II) in water treatment: Adsorption mechanism and separation property*. Chemical Engineering Journal, 2015. **281**: p. 1-10.
 37. Zhao, C., et al., *EDTA- and amine-functionalized graphene oxide as sorbents for Ni(II) removal*. Desalination and Water Treatment, 2016. **57**(19): p. 8942-8951.
 38. Fraga, T.J.M., et al., *FUNCTIONALIZED GRAPHENE-BASED MATERIALS AS INNOVATIVE ADSORBENTS OF ORGANIC POLLUTANTS: A CONCISE OVERVIEW*. Brazilian Journal of Chemical Engineering, 2019. **36**.
 39. Akpotu, S.O. and B. Moodley, *Application of as-synthesised MCM-41 and MCM-41 wrapped with reduced graphene oxide/graphene oxide in the remediation of acetaminophen and aspirin from aqueous system*. Journal of Environmental Management, 2018. **209**: p. 205-215.
 40. Yu, T. and C.B. Breslin, *Graphene-Modified Composites and Electrodes and Their Potential Applications in the Electro-Fenton Process*. Materials (Basel), 2020. **13**(10).
 41. Dong, H., et al., *Fabrication of Electrochemically Reduced Graphene Oxide Modified Gas Diffusion Electrode for In-situ Electrochemical Advanced Oxidation Process under Mild Conditions*. Electrochimica Acta, 2016. **222**: p. 1501-1509.
 42. Nair, K.M., V. Kumaravel, and S.C. Pillai, *Carbonaceous cathode materials for electro-Fenton technology: Mechanism, kinetics, recent advances, opportunities and challenges*. Chemosphere, 2021. **269**: p. 129325.
 43. Li, Y., et al., *The photo-electrocatalytic property of hollow mesoporous graphene oxide/tungsten trioxide/titanium dioxide membrane photo-anode*. Heliyon, 2025. **11**(1): p. e41415.
 44. Bhushan, B., et al., *Graphene composites for water remediation: an overview of their advanced performance with focus on challenges and future prospects*. Advanced Composites and Hybrid Materials, 2024. **8**(1): p. 55.
 45. Feng, Z.-Q., X. Yuan, and T. Wang, *Porous polyacrylonitrile/graphene oxide nanofibers designed for high efficient adsorption of chromium ions (VI) in aqueous solution*. Chemical Engineering Journal, 2020. **392**: p. 123730.
 46. Li, L., et al., *Preparation of graphene oxide/chitosan complex and its adsorption properties for heavy metal ions*. Green Processing and Synthesis, 2020. **9**(1): p. 294-303.



47. Nayl, A.A., et al., *Chitosan-Functionalized-Graphene Oxide (GO@CS) Beads as an Effective Adsorbent to Remove Cationic Dye from Wastewater*. *Polymers*, 2022. **14**(19): p. 4236.
48. Politaeva, N., et al., *Graphene Oxide-Chitosan Composites for Water Treatment from Copper Cations*. *Water*, 2022. **14**(9): p. 1430.
49. Kabir, M.H., et al., *Green Reduction of Waste-Battery-Derived Graphene Oxide by Jute Leaves and Its Application for the Removal of Tetracyclines from Aqueous Media*. *ACS Sustainable Resource Management*, 2024. **1**(8): p. 1812-1823.
50. Tatarchuk, T., L. Soltys, and W. Macyk, *Magnetic adsorbents for removal of pharmaceuticals: A review of adsorption properties*. *Journal of Molecular Liquids*, 2023. **384**: p. 122174.
51. Nagababu, P., et al., *Graphene oxide -copper nanocomposite: An efficient material for rapid degradation of organic dyes*. *Environmental Nanotechnology, Monitoring & Management*, 2021. **16**: p. 100545.
52. Nie, F.-M., et al., *Synthesis, structures and magnetic properties of nicotinato-copper(II) complexes with polybenzimidazole and polyamine ligands*. *Inorganica Chimica Acta*, 2011. **365**(1): p. 309-317.
53. Xu, J., et al., *Remediation of heavy metal contaminated soil by asymmetrical alternating current electrochemistry*. *Nature Communications*, 2019. **10**(1): p. 2440.