

## AZLAYLI QRAFEN OKSİDİN ALINMASI VƏ ANALİZİ

R.Q. ABASZADƏ<sup>1</sup>, S.A. MƏMMƏDOVA<sup>1</sup>, S.T. ƏZİZOV<sup>1</sup>, O.Ə. ƏLİYEV,  
E.M. ƏLİYEV<sup>2</sup>, A.M. NƏBİYEV<sup>3</sup>

<sup>1</sup>AMEA-nın H.M. Abdullayev adına Fizika İnstitutu, Az-1143, Bakı ş., H.Cavid pr. 131.

<sup>2</sup>Helmholts-Centrum Polimer araşdırmaçı İnstitutu,

Almaniya, Maks-Plank küç.1, 21502, Gestac şəhəri, Almaniya,

<sup>3</sup>Bakı Dövlət Universiteti, Z.Xəlilov küç., 23, Bakı, 1048, Azərbaycan.

e-mail: [Abaszada@gmail.com](mailto:Abaszada@gmail.com); [Samira-1984@inbox.ru](mailto:Samira-1984@inbox.ru)

Təqdim olunan məqalə azlaylı qrafen oksidin sintezi və alınmış məhsulun analizinə həsr olunmuşdur. Hammer metoduna əsasən alınmış azlaylı qrafen oksid rentgen-faza analizi və raman spektroskopiyaya metodu ilə tədqiq edilmişdir. D, G və 2D piklərinin təbiəti müəyyən edilmişdir. Raman spektrində müşahidə olunan 2D piki məhz qrafen laylarının sayına uyğun olub və azlaylı nümunə alındığını bir daha təsdiqləyir.

**Açar sözlər:** nanoquruluşlar, qrafen oksid, rentgen-faza analizi, raman səpilməsi.

**PACS:** 33.20.Ea, 61.05.C-

## 1. GİRİŞ.

Müasir dövrdə aparılan tədqiqat işlərinin əksəriyyəti aşağı ölçülü sistemlərə həsr olunur. Belə ki, bu sistemlər içərisində unikal xüsusiyyətlərə malik materiallardan biri də qrafit və onun modifikasiyaları hesab olunur. Bir sıra unikal xassələri sayəsində qrafen mühüm yer tutur. Belə ki, bu unikalıq onun kitetik və optik xassələri ilə bağlıdır.

Qrafen kvazi ikiölçülü karbon nanoquruluşu olub eyni zamanda kvazi birölçülü karbon nanoboruların və kvazi sıfırölçülü fullerenlərin əsasını da təşkil edir. O, ilk dəfə 2004-cü ildə A.K. Qeym və K.S. Novoselov tərəfindən sadə üsuldən istifadə edilərək qrafitdən alınmışdır [1-3]. Daha sonralar qrafenin alınması üçün müxtəlif metodlar [2-4] təklif olunmuşdur.

Qrafenin kütləvi şəkildə sintezi üçün əsas başlanğıc material qrafen oksiddir. Ona görə də, bu tədqiqat işi məhz qrafen oksidin sintezinə həsr olunmuşdur. Qrafen oksid kompozit materiallarda, günəş enerjisində, biotibbi tətbiqlərdə, sensorlarda, lazerlərdə və dərman daşınması kimi tətbiqlərdə geniş istifadə olunur [5-7]. Qrafen oksidin mühüm müsbət xüsusiyyəti odur ki, onun elektrik və optik xassələri idarə etmək mümkündür. Məsələn, oksidləşmə dərəcəsiəndən asılı olaraq qrafen oksidin elektrik xassələri dielektrikdən yarımkəçiriciyə kimi dəyişdirilə bilər [8].

## 2. NÜMUNƏNİN ALINMASI VƏ EKSPERİMENTİN METODİKASI.

Ədəbiyyatlarda qrafen oksidin bir sıra sintez metodları haqqında məlumat verilmişdir. Bu sintez metodlarından ən çox tədqiq olunanları Hammer [9], Brodi [10], Ştayenmauer [11], elektrokimyəvi oksidləşmə metodlarıdır.

Qrafen oksiddə layın qalınlığı təxminən 1 nm -ə qədərdir. Bu da adi qrafendə layların qalınlığından

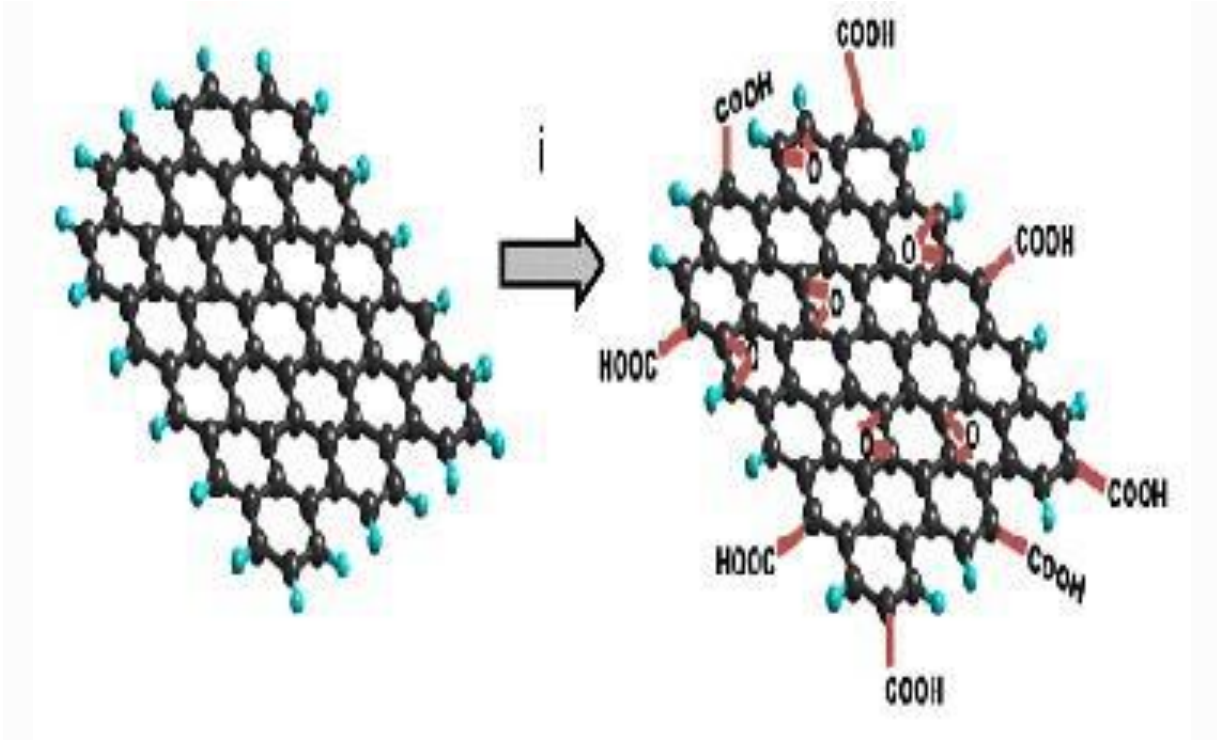
çoxdur. Buna əsas səbəb isə qrafitin oksidləşməsi sayəsində yaranan, hidrosil, karboksil və fenol qruplarının mövcudluğunu göstərmək olar.

Bu tədqiqat işində bizim qrup, azlaylı qrafen oksidin sintezini, Hammer metodundan istifadə edərək həyata keçirmişdir [12]. Sintez prosesini aşağıdakı kimi təsvir etmək olar:

10 ml mol 96%-li qatı sulfat turşusundan müəyyən miqdar kimyəvi stəkana əlavə edilir. 1 qr yüksək dispersli qrafit (99.9995% təmizlikdə) petri şüşəsində 0,5 qr natrium şorası ilə mexaniki olaraq yaxşı şəkildə və qatı sulfat turşusunun üzərinə tökülür. Qalan miqdar (13 qr), qatı sulfat turşusunu da əlavə etməklə, sistem maqnit qarışdırıcı ilə qarışdırılır. 2 saat ərzində sistemə hissə-hissə kalium-permanqanat (3 qr) əlavə olunur. Bu dövrdə qarışıq buz hamamı ilə təmasda olur və temperaturun 20 dərəcədə saxlanılmasına riayət olunur. Qarışdırılma dayandırıldıqdan sonra sistem isti su hamamı buxarı ilə təmasda olur. Bu zaman temperaturun 35 dərəcədə saxlanılmasına nəzarət edilir. Bununla da şabalıdımtıl boz rəngli pasta şəkildə qarışıq alınır.

46 ml distillə suyu qarışığa əlavə edilir. Dərhal qaynar su hamamında qaynadılmağa qoyulur. 1 saatdan sonra 250 ml distillə suyu əlavə edilməklə qarışdırılır. Bir az sonra isə 100 ml perhidrol əlavə edilir və qarışdırılır. Rəngdə dəyişilmə qeyd olunur. Belə ki, şabalıdıya çalan sarımtıl rəngli birləşmənin əmələ gəlməsi qrafen oksidin alınmasını əyani şəkildə sübut edir. Qarışıqın temperaturu aşağı düşəndən sonra süzülür. Filtr kağızında qalan maddə distillə suyu ilə yuyulur. Alınan maddə 50 dərəcə temperaturda 2 saat müddətində vakuum quruducu dolabda qurudulur. Sonda, tam quru halda toz şəkildə maddə əldə edilir. 1,8 qram maddə alınır ki, bu da 40% çıxıma uyğun gəlir.

Hammer metodu ilə sintez olunmuş azlaylı qrafen oksidin sxematik təsviri şəkil 1-də göstərilmişdir.



Şəkil 1. Hammer metodu ilə sintez olunmuş azlaylı qrafen oksidin sxematik təsviri verilmişdir.

Hammer metodu ilə sintez edilmiş yekun məhsul açıq qəhvəyi rəngdədir və qatı pəlcıq şəklindədir. Sintez olunmuş qrafen oksidin foto şəkli şəkil 2-də göstərilmişdir.



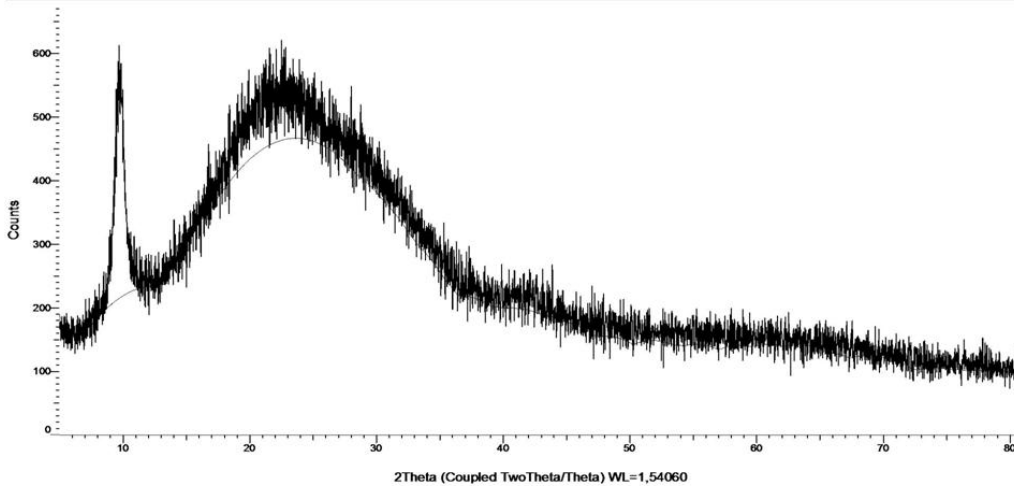
Şəkil 2. Hammer metodu ilə sintez edilmiş azlaylı qrafen oksidin fotosəkili göstərilmişdir.

### 3. NƏTİCƏLƏRİN MÜZAKİRƏSİ.

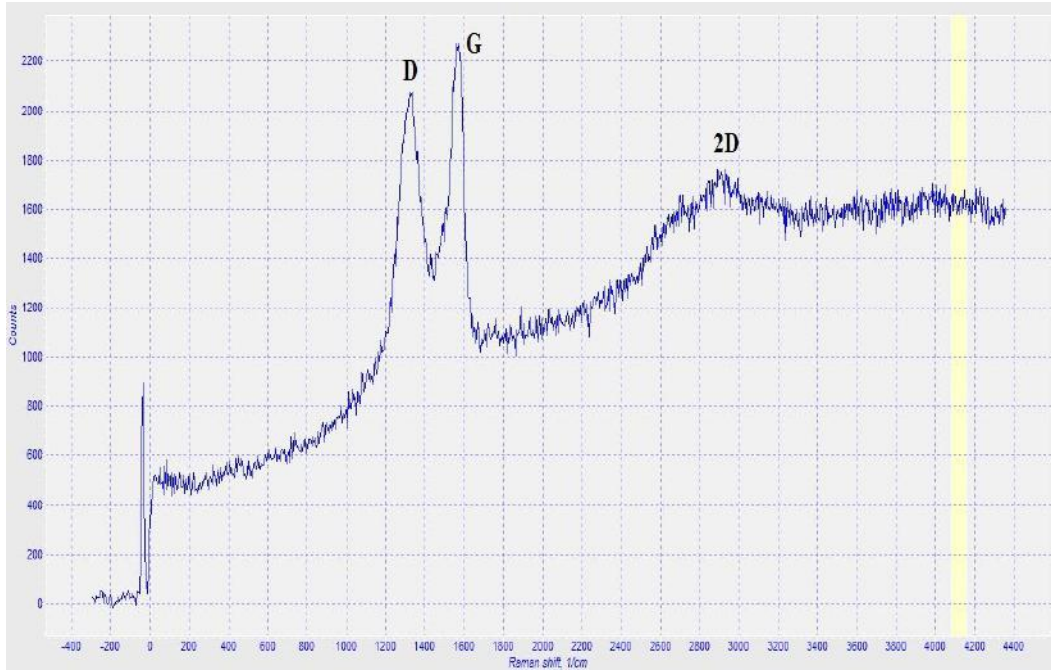
Hammer metoduna əsasən alınmış azlaylı qrafen oksidin quruluşu, keyfiyyəti və təmizliyi- rentgen-faza analizindən və raman spektroskopiyasından istifadə edilərək öyrənilmişdir.

Rentgen-faza analizi Almaniyanın “Bruker” firmasının istehsalı olan D2 Phaser diffraktometrində,  $\text{CuK}_\alpha$  – şüaları ilə ( $\lambda=1,5406\text{\AA}$ )  $2\theta=0,5^\circ-80^\circ$  bucaq intervalında aparılmışdır. Kristalloqrafik, quruluş tədqiqatları, hesablamalar EVA və TOPAZ proqramları əsasında yerinə yetirilmişdir. Qurğunun elektron yaddaşında, 2018-ci il daxil olmaqla, ASTM məlumatlarının olması alınan difraksiya məlumatlarının ədəbiyyatda olan məlumatlarla hərtərəfli müqayisə edilməsinə imkan yaradır.

(Coupled TwoTheta/Theta)



Şəkil 3. Azlaylı qrafen oksidin rentgen-faza analizi təsvir olunmuşdur.



Şəkil 4. Sintez olunmuş azlaylı qrafen oksidin Raman spektroskopik analizi çəkilmişdir.

Şəkil 3-də Rentgen-faza analizinin nəticələri göstərir ki, nümunənin spektrində 2 maksimum müşahidə olunur. Maksimumlardan biri  $2\theta=10$  kəskin pik, digəri isə  $2\theta=23$  geniş pikdir. Bu nəticələri ədəbiyyatdan olan nəticələrlə müqayisə etsək, onun həqiqətən də qrafen oksid olduğu aşkarlanır [13].  $23^\circ\text{C}$ -də müşahidə olunan pik qrafitin tam olaraq oksidləşmədiyini göstərir.

Sintez olunmuş nümunənin həqiqətən də azlaylı qrafen oksid olduğunu təsdiq etmək üçün digər bir ölçmə üsulundan da istifadə olunmuşdur. Digər istifadə etdiyimiz metod Raman spektroskopiyasıdır. Raman spektroskopiyası karbon nanomateriallarının quruluşu haqqında geniş informasiya verən mühüm bir metoddur.

Raman səpilməsi spektrlərinin ölçülməsi Nanfinder 30 (Tokyo Instr, Japan) konfokal raman mikrospektrometrində aparılmışdır. Həyəcanlandırıcı mənbə kimi  $532\text{ nm}$  dalğa uzunluğu və  $10\text{ mVt}$  olan maksimal gücə malik Nd:YAG lazerindən istifadə olunmuşdur. Bu zaman spektral ayırtma qabiliyyəti  $0,5\text{ cm}^{-1}$ -dir. Detektor kimi ( $-70^\circ\text{C}$ )-ə qədər soyudulan və fonon hesabi rejimdə işləyən CCD kamerasından istifadə edilmişdir.

Əyrinin forması azlaylı qrafen oksid üçün xarakterikdir [3]. Belə ki, şəkil 4-də Raman analizinə əsasən D piki uyğun olaraq  $1320\text{ cm}^{-1}$ -də, G piki uyğun olaraq  $1582\text{ cm}^{-1}$ , 2D piki isə  $2720\text{ cm}^{-1}$  kimi olması müəyyən edilmişdir. Belə ki, müşahidə olunan 2D piki qrafen laylarının sayını göstərir. Raman analizinin bu nəticələri göstərir ki, yüksək keyfiyyətli azlaylı qrafen oksid alınmışdır. Raman analizinin nəticələri rentgen-faza analizinin nəticələrini təsdiqləyir. Beləliklə, deyə bilərik ki, Hammer metodundan istifadə edərək yüksək keyfiyyətə malik azlaylı qrafen oksid almaq mümkün olmuşdur.

#### 4.NƏTİCƏ.

Hammer metodu ilə azlaylı qrafen oksid sintez edilmiş və iki müxtəlif üsulla analizi aparılmışdır. Rentgen-faza və Raman spektroskopiyası analizinin nəticələri göstərmişdir ki, yüksək keyfiyyətli azlaylı qrafen oksid sintez olunmuşdur. Raman spektrində müşahidə olunan 2D piki məhz qrafen laylarının sayına uyğundur və bu da laylı nümunə aldığımızı bir daha təsdiqləyir.

- [1] A.K. Geim. Graphene: status and prospects, Science, 2009, vol. 324, pp.1530-1534.
- [2] A.K. Geim, K.S. Novoselov. The rise of grapheme, Nat. Mater, 2007, vol. 6, pp.183-191.
- [3] K. C. Новоселов. Успехи физических наук, 2011. том.181, № 12, pp.1299-1311.
- [4] K.S. Novoselov. Two-dimensional atomic crystals, K. S. Novoselov, D. Jiang, F. Schedin, T. J. Booth, V. V. Khotkevich, S. V. Mo-

rozov, A. K. Geim. Proc. Nat. Acad. Sci., 2005, vol.102, No.30, pp.10451-10453.

- [5] R. Mahendran, D. Sridharan, K. Santhakumar et al.. Indian Journal of Materials Science, 2016, Article ID 4169409, 10 page.
- [6] S.H. Kang, T.H. Fang, Z. HanHong. Journal of Physics and Chemistry of Solids, 74, 2013, p.1783-1793.
- [7] E. Jaafar, M. Kashif, S.K. Sahari, Z. Ngaini. Study on Morphological, Optical and

- Electrical Properties of Graphene Oxide (GO) and Reduced Graphene Oxide (rGO), Materials Science Forum ISSN: 1662-9752, vol.917, pp.112-116.
- [8] *F. Li, X. Jiang, J. Zhao, Sh. Zhang.* Graphene oxide: A promising nanomaterial for energy and environmental applications, *Nano Energy*, 2015, 16, pp. 488-515.
- [9] *W.S. Hummers, R.E. Offeman.* *J. Am. Chem. Soc.*, 1958, vol. 80, pp. 1339.
- [10] *M.J. Hudson, F.R. Hunter-Fujita, J.W. Pekkett, P.M. Smith.* *J. Mater. Chem.*, 1997, vol.7, N.2, pp.301-305.
- [11] *L. Staudenmaier.* *Deutsch.Chem.Ges.*, 1898, vol.31, pp.1481-1487.
- [12] *E.M. Aliyev, M.M. Khan, A.M. Nabiyeu, R.M. Alosmanov, I.A. Bunyad-zadeh, S. Shishatskiy, V. Filiz.* Covalently Modified Graphene Oxide and Polymer of Intrinsic Microporosity (PIM- in Mixed Matrix Thin-Film Composite Membranes, *Nanoscale Research Letters*, 2018, 13:359.
- [13] *N.B. Thomas, D. Majumdar.* Characterization of x-ray irradiated graphene oxide coatings using x-ray diffraction, x-ray photoelectron spectroscopy, and atomic force microscopy, *Advances in X-ray Analysis*, 2013, vol.56, p.116.

**R.G. ABASZADA, S.A. MAMMADOVA, S.T. AZIZOV, O.A. ALIYEV, E.M. ALIYEV, A.M. NABIYEV**

### **SYNTHESIS AND ANALYSIS OF FEW-LAYERED GRAPHENE OXIDE**

The present article is devoted to the synthesis of few-layered graphene oxide and its analysis. Few-layered graphene oxide is synthesized by Hammer's method. The few-layered graphene oxide is analyzed by X-ray diffraction and Raman spectroscopy. The nature of the D, G and 2D peaks in Raman spectrum is determined. The number of layers of graphene oxide is determined by the 2D peak observed.

**Р.Г. АБАСЗАДЕ, С.А. МАМЕДОВА, С.Т. АЗИЗОВ, О.А. АЛИЕВ, Е.М. АЛИЕВ, А.М. НАБИЕВ**

### **СИНТЕЗИРОВАНИЕ И АНАЛИЗ НЕСКОЛКО СЛОЕВ ОКСИДА ГРАФЕНА**

Статья посвящена синтезу оксида графена с малым числом слоев и его анализу. Чешуйки оксида графена, состоящего из нескольких слоев, были синтезированы по методу Хаммерса. Оксид графена был проанализирован с помощью рентгенофазового анализа и спектроскопии комбинационного рассеяния. Была определена природа пиков D, G и 2D в спектре Рамана. По наблюдаемому 2D пику в спектроскопии комбинационного рассеяния определяется число графеновых слоев.

*Qəbul olunma tarixi: 18.06.2019*