مجلة الدراسات التربوية والعلمية - كلية التربية - الجامعة العراقية
العدد الرابع والعشرون - المجلد الرابع - علوم الكيمياء - تشرين ثاني 2024 م
doi.org/10.52866/esj.2023.04.24.10

تحضير وتشخيص أوكسيد الكرافين عالي الاختزال ثلاثي الطبقات النانوي ومشتقات أوكسيد الكرافين المزينة اروماتياً

حسين جمال الدين محمود ، أ.د. غزوان حسن عبد الوهاب الصميدعي ، أ.م.د. أنس قحطان حمدي
جامعة تكريت / كلية التربية للعلوم الصرفة - قسم الكيمياء

مستخلص:

تم في هذا البحث تحضير أوكسيد الكرافين عالي الاختزال ثلاثي الطبقات النانوي من خلال عملية تفاعل اوكسيد الكرافين مع الكلوكوز والهيدرازين والكلايسين من خلال استخدام جهاز التبريد تحت ضغط وكذلك حضر أوكسيد الكرافين عالي الاختزال و المزين اروماتياً من خلال المعاملة مع البولي امين وبأستخدام الخلية الكهربائية.

الكلمات المفتاحية : متراكبات الكاربون نانوية ، الكرافين المختزل ، كاربون نانوي.

Preparation and diagnosis of nano-three-layer highly reductive graphene oxide and aromatically decorated graphene oxide derivatives

Hussein Gamal Aldin Mahmood,
Prof. Dr. Ghazwan Hassan Abdul-Wahhab Al-Sumaida'i,
Mr. Dr. Anas Qahtan Hamdi
Tikrit University / College of Education for Pure Sciences,
Department of Chemistry
E-mail: hussein.j.aldeen@st.tu.edu.iq

Abstract :

In this research, three-layer nano-high-reduction graphene oxide was prepared through the reaction of graphene oxide with glucose, hydrazine and claysin through the use of a cooling device under pressure, as well as highly reduced and aromatically decorated graphene oxide was prepared through treatment with polyamine and using an electric cell.

1-1 : المقدمة Introduction

الكاربون يشكل العديد من المتآصلات والمتشكلات و المركبات المعقده، وهو أمر ضروري لوجود الحياة على الارض، لذلك ليس من الغريب ان مركبات الكاربون هي الاكثر دراسة وبحثاً في العالم، حيث تعتبر قدرة ذرات الكاربون على تكوين شبكات معقدة مهمة في الكيمياء العضوية[1]، حيث يضهر الكاربون الأولي ترابطا معقداً والذي يشكل عدداً من الهياكل المتآصلة. ومن أشكال الكاربون النقي الموجود في الطبيعة هي الماس والكرافيت، والتي لها خصائص مختلفة للغاية[2]. أن الكرافين ثنائي الابعاد يعد لبنة البناء الاساسي لمواد الكرافين الاخرى، والتي لها أبعاد مختلفة، يمكن رؤية الفولورينات على أنها كرافين ملفوف ذو أبعاد صفرية، والانابيب النانوية ثنائياً البعد، والكرافين المكدس ثلاثي البعد [3].

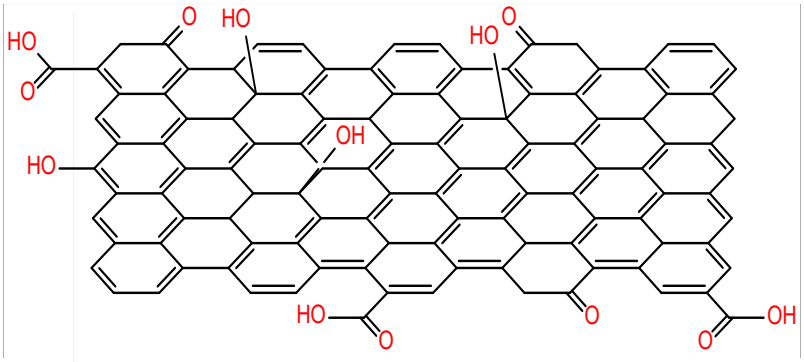
1-2 : أوكسيد الكرافين المختزل
Reduction of Graphene Oxide

أن RGO يتكون من طبقة واحدة رقيقة من GO، وتكون منزوعة الاوكسجين Deoxygenated جزئيا حيث يعتبر جيد الاستخدام في الاجهزة الالكترونية[4]، وأن الاختزال الكيميائي Chemical reduction هو أكثر الطرق أستخداماً، وذلك عن طريق استخدام عوامل أختزال قوية مثل الامونيا والهيدروكوينين، وايضاً هيدرازين هيدريت[5]، بالأضافة الى حامض هيدرويوديك،الذي يعد من المواد التي تستخدم في اختزال اوكسيد الكرافين، حيث له عدة مميزات منها انخفاض مستوى الشوائب وكذلك يكون ذات تكلفة قليلة، والاهم منها هو عدم الاضرار بالبيئة[6].

2 - 1 : طريقة العمل The Method of Work

2-2 : تحضير اوكسيد الكرافين المختزل ثلاثي الابعاد Preparation of 3 Dimensions reduced graphene oxide

وُضع 0.5 غم من اوكسيد الكرافين ومن ثم نضيفها الى 750 مل ماء لا ايوني ، شتت الخليط عبر الصوتنة لمدة 30 دقيقة حتى يصبح المحلول رائقاً، أضيف 30 مل من الخليط ومزجه مع 60 مجم من الجلوكوز لمدة 10 دقائق عن طريق الصوتنة، ثم ينقل الخليط الى جهاز الاوتوكليف لكي يتم معالجته بالحرارة المائية، عند 120 درجة مئوية لمدة 12 ساعة، بعد ذلك برد المزيج بشكل طبيعي بدرجة حرارة الغرفة ، تم جمع وغسل الناتج بجهاز الطرد المركزي ولحين الوصول الى دالة حامضية pH =7 ، ان PRGO الجاف يتم الحصول عليه عن طريق التجفيد لمدة 12 ساعة تحت درجة حرارة 55- [7]، ثم اختزل PRGO بواسطه الهيد رازين، بعدها تم تحضير هيكل الهيدروجل للكرافين وذلك من خلال التصعيد مع حامض اميني كلايسين بنسبة 1:1 عند 90 درجة مئوية لمدة 3 ساعات، بعدها جفدة المادة وجمعت عند درجة حرارة (55- °م)[8].



الشكل (1) أوكسيد الكرافين المختزل ثلاثي الأبعاد

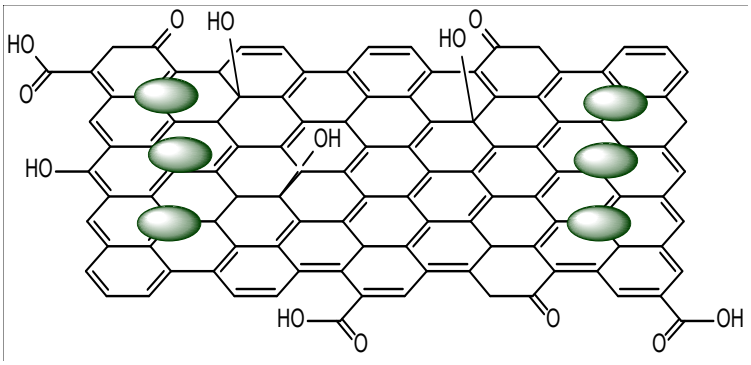
2-3 : تحضير اوكسيد الكرافين المختزل ثلاثي الابعاد والمزين ارومانياً

Preparation of Three-dimensional reduced aromatizing graphene oxide

عادةً ما يحتوي الإعداد الكهروكيميائي المستعمل لتقشير الكرافيت على العناصر التالية: قضيب البلاتين كأنود وكاثود وإلكتروليت ومصدر طاقة 1.6 فولت لمدة 24 ساعة، يتم تزيين أوكسيد الكرافين المختزل ثلاثي الطبقات وتحضير المركب بخطوتين:

الخطوة الأولى: تحضير ملح الدايازونيوم، أضف 0.001 مول، 0.3 غم من البوليمر الاميني الى دورق يحتوي على 10 مل من محلول حامضي (1:1) ماء: حامض الهيدروكلوريك المركز 37٪ مع تثبيت درجة الحرارة (0-5) °م، وفي دورق ثاني اذيب 0.07 غم، 0.001 مول من نتريت الصوديوم في كمية مناسبة (3 قطرات) من الماء المقطر، واضيف محلول الدورق الثاني الى محلول الدورق الأول بصورة تدريجية مع ابقاء درجة الحرارة ضمن المدى (0-5) °م والتحريك المستمر لمدة (20-30) دقيقة في جو معتم، واستعمل مباشرة في الخطوة الثانية.

الخطوة الثانية: وضع 0.1 غم من اوكسيد الكرافين المختزل ثلاثي الطبقات في 25 مل من الماء المقطر في جهاز الموجات الصوتية (Ultrason-ic) بتردد 50 هيرتز ولمدة 60 دقيقة أصبح المحلول رائقاً، ثم اضيف هذا المحلول الى الخلية الكهربائية التي تحتوي على اقطاب البلاتين مع فولتية 1.6 فولت مع التحريك، ثم بعد ذلك اضيف محلول الخطوة الأولى بشكل قطرات خلال 30 دقيقة مع التحريك لمدة 24 ساعة متواصلة[9].



الشكل (2) اوكسيد الكرافين المختزل ثلاثي الابعاد والمزين ارومانيا

1-3 : النتائج والمناقشة Results and Discussion

الجدول (1) نتائج قياس الاشعة السينية للمركبات (H1,H2)

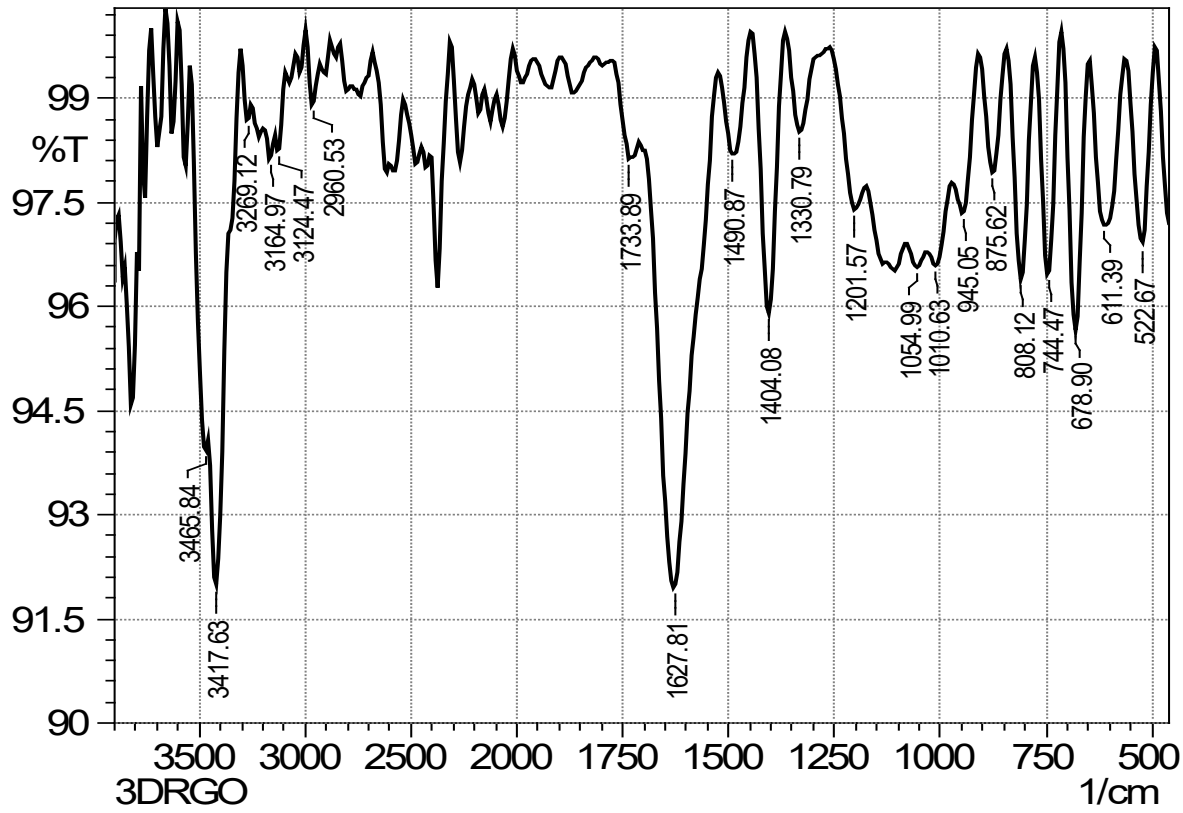
Compd No.	2Θ	المسافة بين الطبقات d[A◦]	Δdobs (A◦)	الحجم الحبيبي D	عدد الطبقات n	ΔDcal nm	nΔ
H_1	25.7309	3.46236	-4.06514	28.85	8.33247	18.9391	7.01587
H_2	25.5362	3.48831	0.02595	57.68	16.5352	28.83	8.20273

الجدول (2) معاملات السطح للصفيحة للمركبات(H1,H2)

Compd No.	جذر مربع متوسط الارتفاع	متوسط الارتفاع الحسابي	أقصى ارتفاع ذروة	أقصى عمق حفرة	أقصى ارتفاع	انحراف الخشونة	التقوس	المساحة السطحية m2 g-1
	Sq(nm)	Sa(nm)	Sp(nm)	Sv(nm)	Sz(nm)	Ssk	Sku	BET
H1	119.806	99.815	370.968	264.326	635.294	0.233431	-0.635532	31.695
H2	122.541	97.305	472.731	264.524	737.255	0.566987	-0.009973	11.534

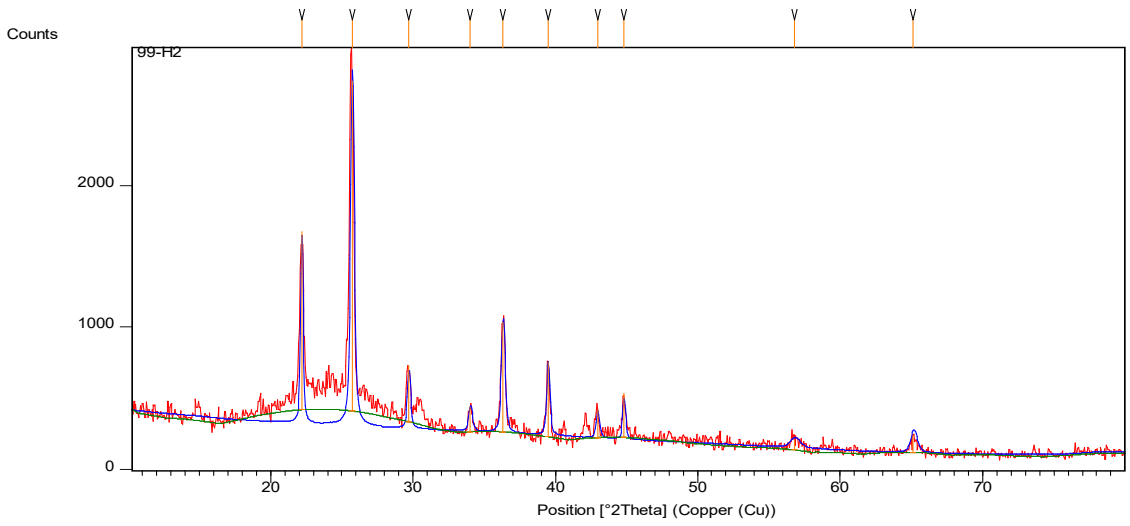
3-2 : مناقشة المركب H1

اظهر طيف الأشعة تحت الحمراء للمركب أعلاه في الشكل (3) حزمة مميزة وعريضة تعود لمجاميع OH الكحولية و الكاربوكسيلية المتداخلة عند (3465) سم$^{-1}$ ، وأظهر القياس حزمتين متتالين عند المدى (1627-1733) سم$^{-1}$ تعود لمجاميع الكاربونيل الكاربوكسيلية C=O (المشتقة الثانية للمنحني توضح عدد الحزم المتداخلة)، وتظهر حزمة عند (1490)سم$^{-1}$ تعود للأصرة المزدوجة C=C ، وكذلك ظهر حزمة عند (3124) سم$^{-1}$ تعود لمجموعة C-H الأروماتية ، وظهر حزمة عند (2960)سم$^{-1}$ لمجموعة C-H الأليفاتية.



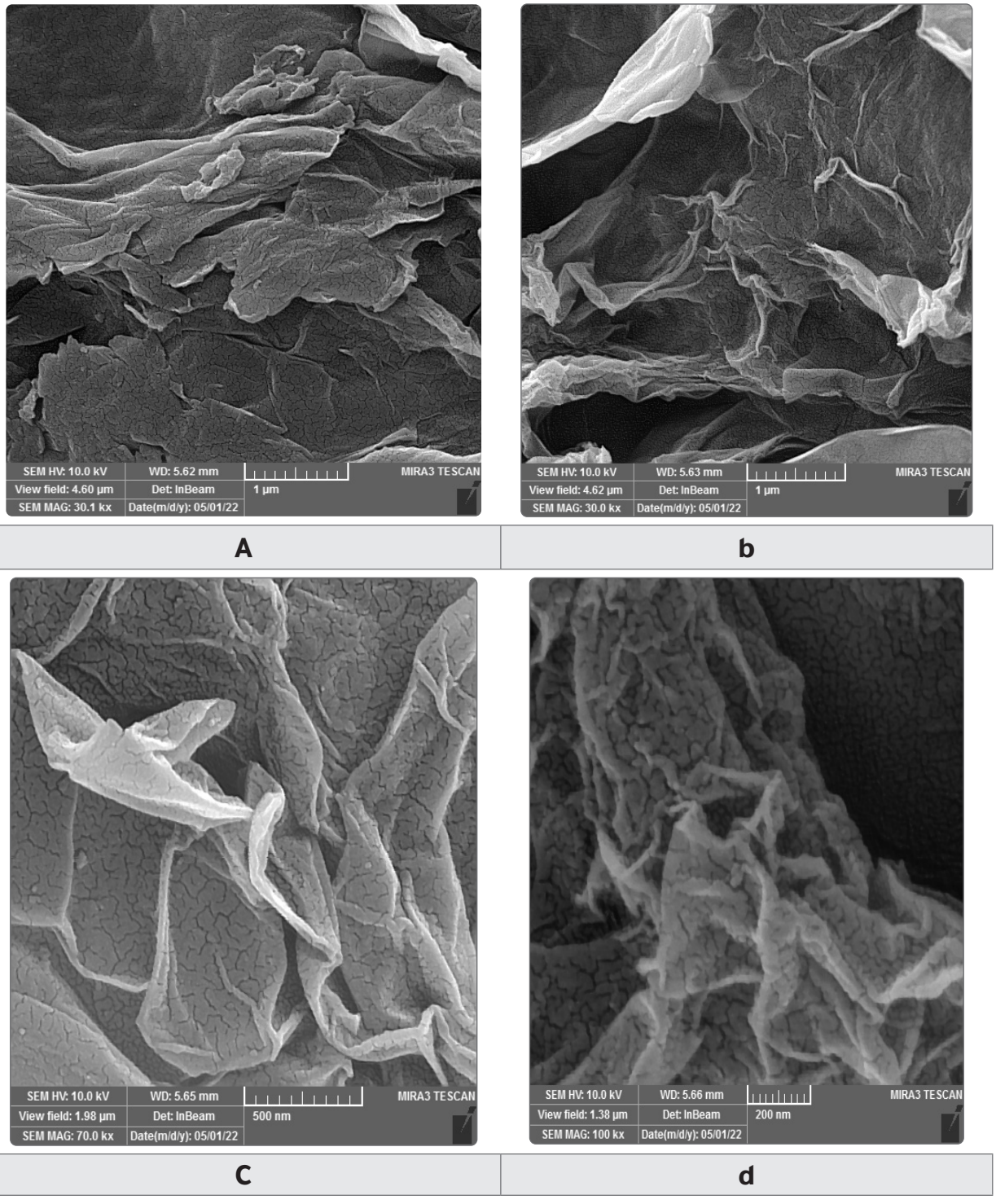
الشكل (3) طيف FT-IR للمركب H1

أظهر طيف الأشعة السينية للمركب H1 قيمة زأوية 2θ عند 25.7309 نم ولمسافات بين الطبقات d=3.46236 وبحجم حبيبي D=28.85 وعدد طبقات n=8.33247 وقد لوحظ أن هذه القيم متقاربة مع الأدبيات في الشكل(4).



الشكل (4) طيف الأشعة السينية XRD للمركب H1

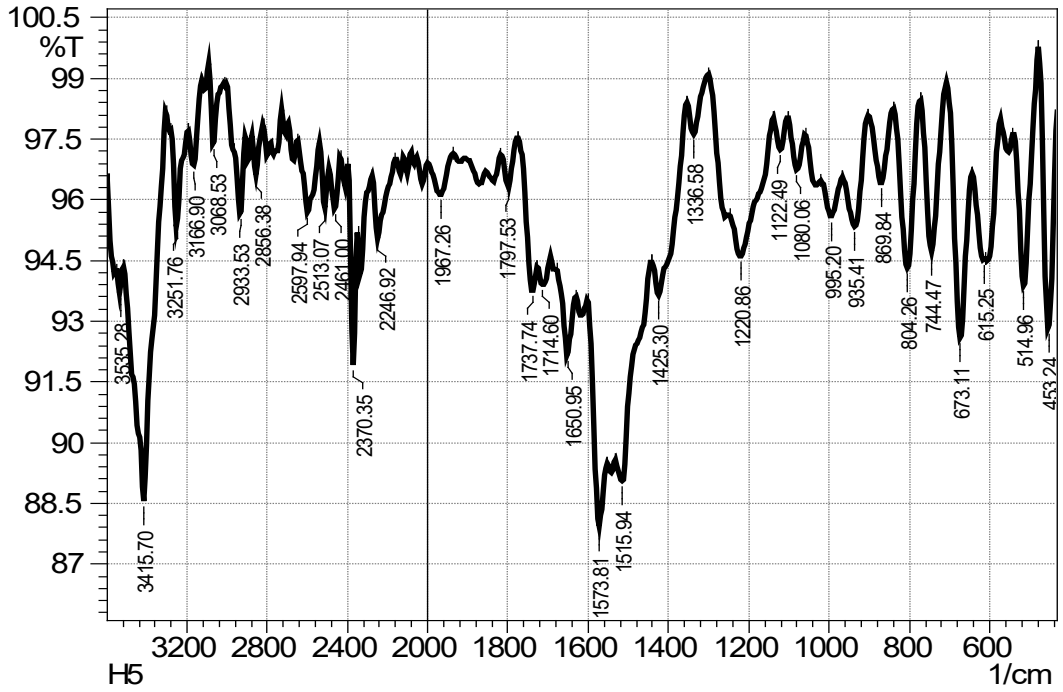
اظهـرت صـور المورفولوجيـة للعينـة H1 تقـشر واضـح جـدا للصفائـح a حيـث يظهـر التباعـد بـين الصفائـح بفجـوات كبـيره b مـع نمـط تشـققات داخـل الصفائـح بنمـط اوكسـيد الكرافـين المختـزل [10] c مـع تثخنـات نانويـة عـلى حافـات الصفائـح d يلاحـظ الشـكل (5).



الشكل (5) a, b, c, d تمثل صور FESEM للمركب H1

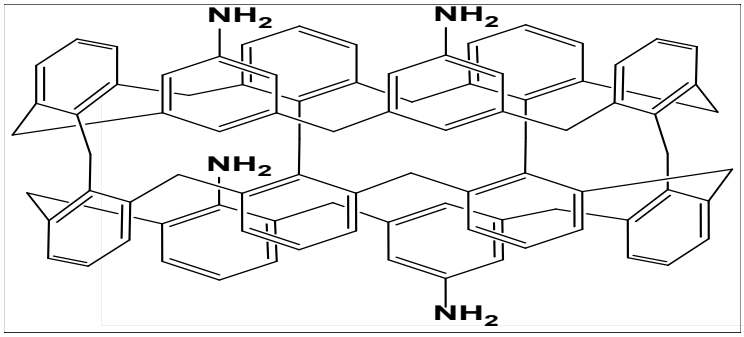
3-2 : مناقشة المركب H2

أظهر طيف الأشعة تحت الحمراء للمركب في الشكل (6) حزمة مميزة وعريضة تعود لمجاميع OH الكحولية و الكاربوكسيلية المتداخلة عند (3415) سم$^{-1}$ ، وأظهر القياس حزمتين متتالين عند المدى (1650-1220) سم$^{-1}$ تعود لمجاميع الكاربونيل الكاربوكسيلية C=O ، وتظهر حزمتين عند المدى (1573- 1515)سم$^{-1}$ تعود للاصرة المزدوجة C=C ، وكذلك ظهرت حزمة عند (3088) سم$^{-1}$ تعود لمجموعة C-H الأروماتية وحزمة عند (2933) سم$^{-1}$ تعود لأصرة C-H الأليفاتية، كما ظهر حزمة عند (3251)سم$^{-1}$ تعود لأصرة N-H وحزمة عند (1336)سم$^{-1}$ تعود إلى مط أصرة N-C .

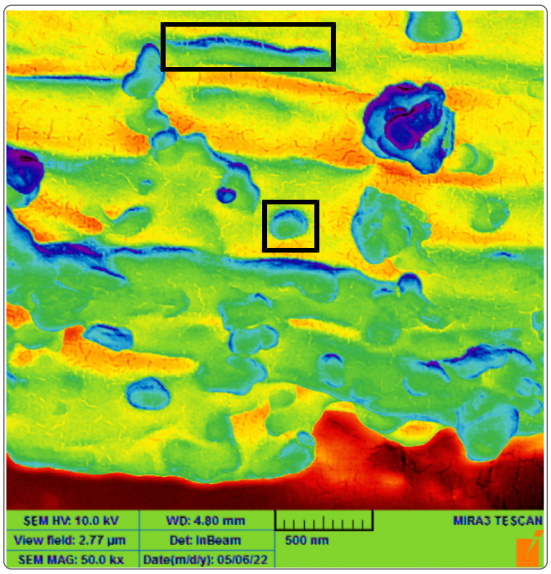


الشكل (6) طيف الاشعة تحت الحمراء FT-IR للمركب H2

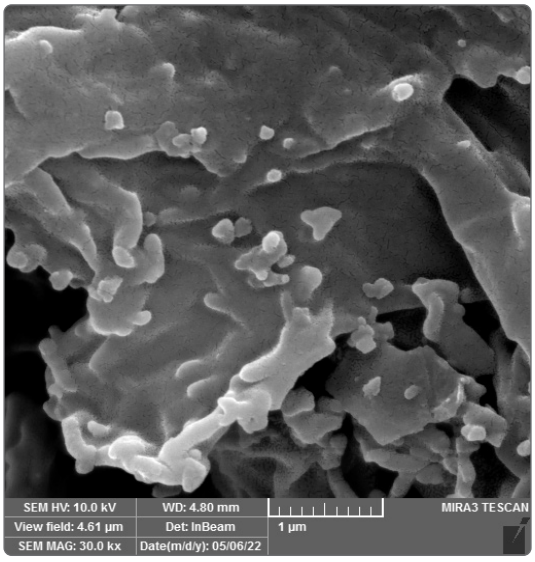
من ملاحظة الصور السطحية للمركب H2 اظهر البوليمر قابلية جيدة على الالتفاف وتكوين دقائق اروماتية مميزه a وتتركز عند الحافات b ويلاحظ ايضا ان نمط التشقق السطحي المميز لاوكسيد الكرافين المختزل مازال واضحا c وهذا قد يعزى الى قلة الانتشار للبوليمر واستهلاك اكثر كتلته في تكوين الكريات البوليمرية، كما ظهرت مناطق تختفي فيها العيوب بشكل افضل وتقل فيها ظاهرة الكرات البوليمرية d وهذا يعزى الى ان عملية التزيين في المناطق التي تمتلك مجاميع ذات ذرات غير متجانسة تصبح بمسلك طاقي اكثر صعوبة بسبب التنافر بين الازواج الالكترونية غير المشاركة على الذرات وبين الالكترونات المنتقلة من القطب، وهذا ممكن استعماله كمؤشر للمناطق الاكثر اختزالا من غيرها على السطوح باستخدام هذا البوليمر.



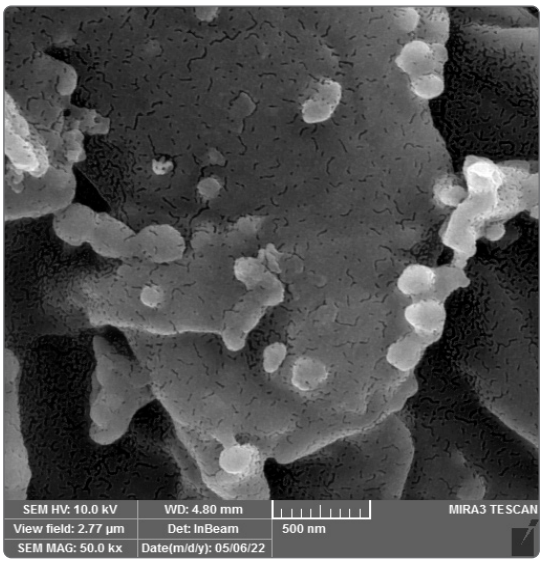
الشكل (7) توضيح للللاتفاف البوليمري



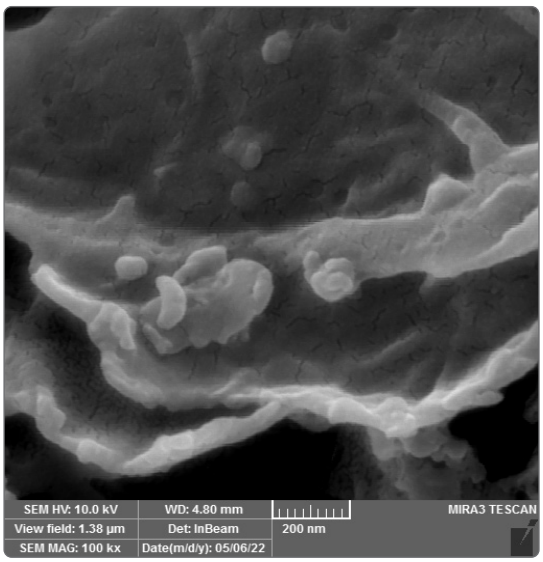
A



b



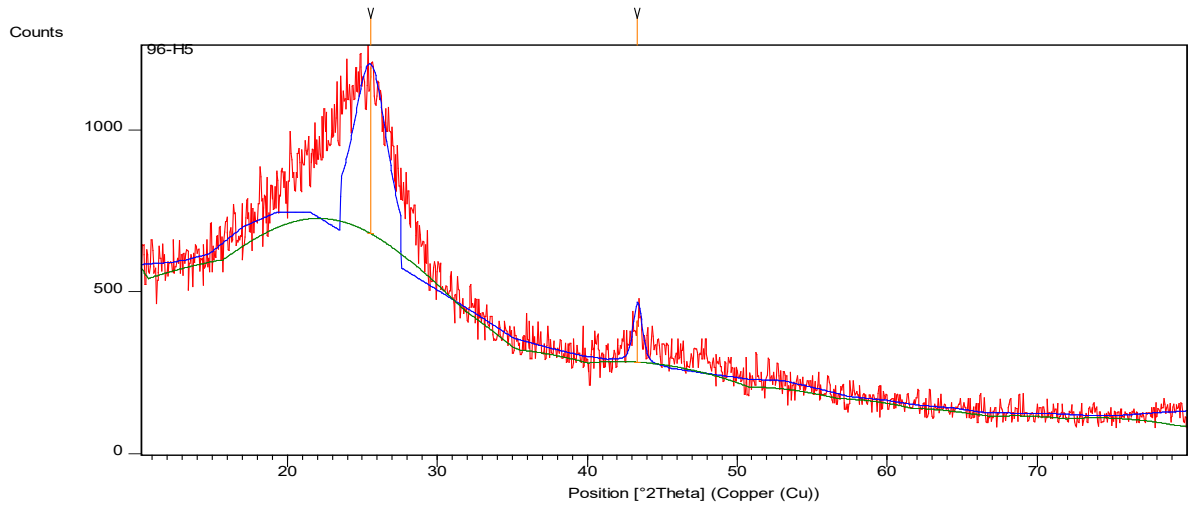
C



d

الشكل (8) a, b, c, d صور FESEM للمركب H2

اظهر طيف الأشعة السينية للمركب H2 قيمة زاوية (2θ)= 25.5362 مع وجود مسافات بين الطبقات d = 3.48831 Å وان الحجم الحبيبي D = 57.68نم وعدد الطبقات n = 16.5352 ومن المنحنيات نلاحظ ان المركب يمتلك حجم حبيبي وعدد طبقات عالي وهذا قد يعزى الى وجود الاستقطابية وقابلية البوليمر على التشكل حسب طبيعة تركيب السطح، يلاحظ الشكل(9).



شكل (9): طيف الأشعة السينية للمركب H2

4- الاستنتاجات Conclusions

تم الحصول على أوكسيدالكرافين عالي الاختزال ثلاثي الطبقات النانوي من خلال الكرافيت بناتج و بمساحة سطحية جيدة وكذلك تم الحصول على مشتقات الكرافين المزينة اروماتياً عن طريق أوكسيد الكرافين عالي الاختزال ثلاثي الطبقات.

5- المصادر References

Tiwari, Santosh K., et al. "Magical allotropes of carbon: prospects and applications." Critical Reviews in Solid State and Materials Sciences 41.4 257-317.2016)).

Hirsch, Andreas. "The era of carbon allotropes." Nature materials 9.11: 868-871. 2010)).

Kiew, Siaw Fui, et al. "Assessing biocompatibility of graphene oxide-based nanocarriers: A review." Journal of Controlled Release 226: 217-228.2016)).

Shin, Hyeon-Jin, et al. "Efficient reduction of graphite oxide by sodium borohydride and its effect on electrical conductance." Advanced Functional Materials 19.12: 1987-1992.2009)).

Shao, Guilin, et al. "Graphene oxide: the mechanisms of oxidation and exfoliation." Journal of materials science 47.10: 4400-4409.2012)).

Chua, Chun Kiang, and Martin Pumera. "Chemical reduction of graphene oxide: a synthetic chemistry viewpoint." Chemical Society Reviews 43.1: 291-312..(2014)

Tang, Li, et al. “Fabrication of graphene sheets/polyaniline nanofibers composite for enhanced supercapacitor properties.” Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects 520: 184-192.2017)).

Joshi, Shubhi, et al. “Green synthesis of peptide functionalized reduced graphene oxide (rGO) nano bioconjugate with enhanced antibacterial activity.” *Scientific Reports* 10.1: 1-11..(2020)

Ikram, Muhammad, et al. “Hydrothermal synthesis of silver decorated reduced graphene oxide (rGO) nanoflakes with effective photocatalytic activity for wastewater treatment.” Nanoscale Research Letters 15.1: 1-11..(2020)

غزوان حسن عبدالوهاب، زهراء زكريا سلمان، تحضير بعض أغشية الكرافين النانوية من كربنة الكتلة الحيوية ودراسة بعض خواصها التطبيقية ضد التأكل الحامضي (2022).