

ӘОЖ 661.183.2
ҒТАХР 81.09.03

<https://doi.org/10.55452/1998-6688-2024-21-2-217-228>

^{1*}**Жасасынов Е.**,
студент, ORCID ID: 0000-0003-4149-3879, *e-mail: ezasasynov@gmail.com
¹**Қуанышбеков Т.**,
PhD, ORCID ID: 0000-0002-2336-3678, e-mail: kuanyshebekov_17@mail.ru
¹**Сағдоллин Ж.**,
ORCID ID: 0000-0001-6389-6826, e-mail: zhandossagdollin@gmail.com
¹**Ақатан Қ.**,
PhD, ORCID ID: 0000-0002-3172-623X, e-mail: ahnur.hj@mail.ru
²**Түлегенова М.**,
PhD, ORCID ID: 0000-0002-6413-4302, e-mail: malika.tulegenova@bk.ru
²**Төлепов Ж.**,
PhD, ORCID ID: 0000-0001-7895-0434, e-mail: mr.tolepov@mail.ru

¹С. Аманжолов атындағы Шығыс Қазақстан университет, ҰҚ ҰҒЗ,
070020, Өскемен қ., Қазақстан
²әл-Фараби атындағы Қазақ ұлттық университеті,
050040, Алматы қ., Қазақстан

БЕЛСЕНДІРІЛГЕН КӨМІРДЕН ХАММЕРС ӘДІСІ АРҚЫЛЫ ГРАФЕН ОКСИДІН (ГО) АЛУ ЖӘНЕ ОНЫ ЗЕРТТЕУ

Андатпа

Көміртекті материалдар электроникада, медицинада, сорбциялық материалдар дайындауда жиі қолданылады. Бұндай материалдарға графит, графен, графиттен алынған графен оксиді (ГО) және белсендірілген көмірден синтезделген графен оксиді (БК-ГО) тәрізді материалдар кең қолданысқа түсуде. Бұл мақалада белсендірілген көмірден синтезделген графен оксидінің (БК-ГО) графиттен алынған ГО-дан айырмашылығы, кемшілігі, артықшылығы аталып өтеді. Зерттеу барысында белсендірілген көмірді Хаммерс әдісімен тотықтырып, биополимер карбоксиметилцеллюлозамен (КМЦ) 1/1, 1/3, 3/1 қатынастарында алынған композитті материалдар инфра қызыл, ультракүлгін-спектроскопия және оптикалық әдістер арқылы зерттелді. Зерттеу нәтижелері негізінде алынған композитті материалдардың инфра қызыл спектрі 724 см⁻¹ жұтылу аймағында -СО-ОН топтары және 944 см⁻¹ аймағында С-Н топтары анықталды. Физикалық және механикалық қасиеттеріне байланысты оптималды қатынас алынды. Ультракүлгін спектріне сәйкес С=О эфирлік байланысы 226 нм толық ұзындықтағы жұтылуын көрсетті. Синтезделген материалдардың (БК, БК-ГО, БК-ГО/КМЦ) беттік морфологиясы оптикалық және сканерлеуші электронды микроскоптар (СЭМ) көмегімен зерттелді. Нәтижесінде БК-ГО материалының шашыраңқы орналасқан тастар тәрізді екені анықталды. Сканерлеуші электронды микроскопта зерттелетін материалдардың хаосты структураға ие екені және байланыстырғыш КМЦ-ны БК-ГО қосу барысында оптималды БК-ГО/КМЦ 1/1 қатынасында алынған материал бойындағы кеуектердің оттекті функционалды топтармен қапталғаны байқалды. Зерттеу нәтижелері бойынша БК-ГО материалының қасиеттері жағынан графиттен алынған ГО ұқсас екені анықталды. Экономикалық жағынан бұл материалдардың басқа көміртекті композиттерден артықшылығы синтез қарапайымдылығы және шикізат көзінің қолжетімділігінде.

Тірек сөздер: белсендірілген көмір (БК), белсендірілген көмірден синтезделген графен оксиді (БК-ГО), графен оксиді (ГО), Хаммерс әдісі.

Кіріспе

Қазіргі уақытта көміртегі негізінде алынған материалдар ерекше қасиеттеріне, атап айтқанда электр және жылу өткізгіштік, механикалық беріктігімен, сондай-ақ сорбциялық

және физико-химиялық ерекшеліктеріне байланысты өзекті ғылыми бағыттарды және өндіріс орындарын қамти бастады. Графен оксиді (ГО) негізінен көміртегі ұяшықтарына орналасқан оттекті функционалды топтардан тұратын, екі өлшемді материал [1]. Көміртекті материалдардың, әсіресе белсендірілген көмір материалдары ауадағы әртүрлі газдарды және су тазартуда өзінің сорбциялық ерекше қасиетін көрсетеді [2, 3].

Графиттен алынған графен оксиді (Г-ГО) және белсендірілген көмірден синтезделген графен оксиді (БК-ГО) тәріздес материалдарды электроникада [4], су тазартатын фильтр және адсорбент ретінде [5], энергия сақтау құрылғыларын және биосенсорлар жасауда, биомедицина саласында, композитті және қағаз тәріздес [6] және адсорбциялық материалдар [7] алуға, сонымен қатар сорбциялық және каталитикалық қасиеттеріне байланысты катализ үшін әмбебап материал [8].

Белсендірілген көмірден (БК) алынған ГО өзінің физикалық және химиялық қасиеттеріне, құрылымдық формасына байланысты, графиттен алынған ГО салыстырғанда өздігінен мембрана түзе алмайды. Сол себептен белсендірілген көмірден алынған ГО байланыстырушы биополимерлермен қосу арқылы мембрана түзілетіні анықталды. ГО және биополимерлердің құрамында оттекті функционалды топтардың болуына байланысты композиттік материалдар түзілуіне әсер етеді. ГО және биополимер композиттік материалдар алу үшін целлюлоза, наноцеллюлоза, гидрогель және карбоксиметилцеллюлоза (КМЦ) қолданылады [9, 10]. Нәтижесінде беттік қабаты тегіс, қатпарлы мембрана тәрізді материал түзілетіндігі зерттеуші ғалымдардың жұмыстарымен анықталды [11]. Жоғарыда ұсынылған ерекше физико-химиялық, беттік құрылымдық қасиеттеріне байланысты бұл жұмыстың өзектілігі, ГО/КМЦ биокомпозитін электроникада, сезімтал сенсорларда, ауылшаруашылық саласында, су тазартқыш фильтр ретінде қолдану өрісін кеңейтуге әсерін тигізеді.

ГО алуға шикізат көзі ретінде қолданылатын белсендірілген көмірдің жоғарыда аталып өткен өзіндік кемшіліктерімен артықшылықтарына байланысты графитпен салыстырғанда экономикалық тиімді, себебі қайың ағашының қалдығы және әртүрлі органикалық қалдықтар сияқты қолжетімді материалдардан алынады.

Негізгі ережелер. Материалдар мен әдістер

Қолданылған реактивтер мен құралдар:

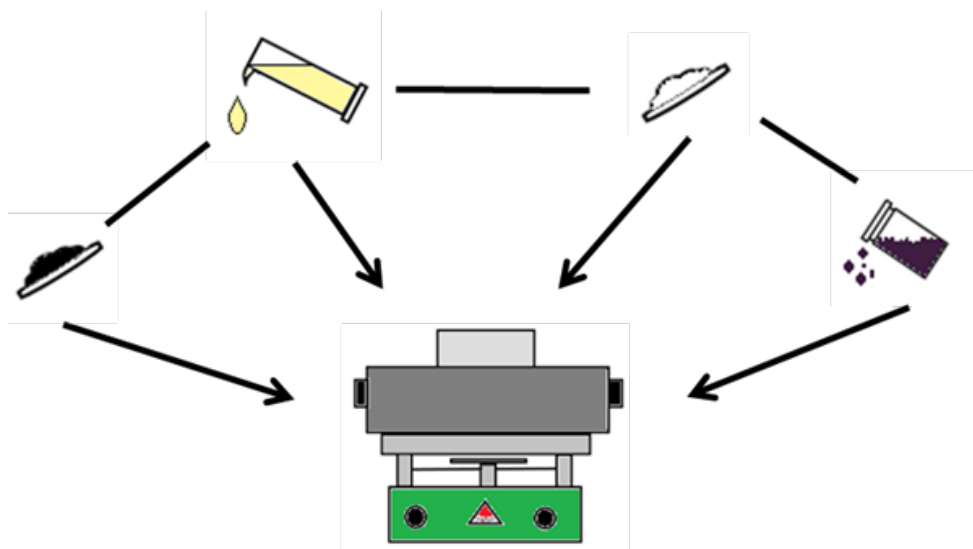
Зерттеу жұмысына белсендірілген көмір БАУ-А бренді (ГОСТ 6217-74), күкірт қышқылы (H_2SO_4) (ГОСТ 4204-77), азот қышқылы (HNO_3) 75% (ГОСТ 11125-84), натрий нитраты ($NaNO_3$) (ГОСТ 4168-79), калий перманганаты ($KMnO_4$) (ГОСТ 5777-84), сутегінің асқын тотығы (H_2O_2) (ГОСТ 50632-93), тұз қышқылы (HCl) (ГОСТ 3118-77), карбоксиметилцеллюлоза (КМЦ) (ТЖ2231-002-50277563-00), деионизацияланған су (ГОСТ 52501-2005), химиялық стакан 250 мл (ГОСТ 25336-82), магнитті араластырғыш (ТЖ 25-11-834), ультрадыбыстық ванна (ГОСТ 15150-69), кептіргіш шкаф (ТЖ 92-00243346-01-92), таразы (ГОСТ 24104), өлшегіш цилиндр (ГОСТ 1770-74), өлшегіш колба (ГОСТ 1770-74), петри табақшасы (ГОСТ 23932-90) қолданылды.

Синтездеу және зерттеу әдістерінің сипаттамасы:

Белсендірілген көмірден ГО синтездеу.

Графен оксидін (ГО) белсендірілген көмірден алу барысында Хаммерс әдісі қолданылды. 1-суретте ұсынылғандай бұл әдістің синтез барысында 250 мл химиялық стаканға 1 г белсендірілген көмір (БАУ-А) өлшеніп, мұз ваннасына орналастырылды. Өлшендіге 23 мл 94% күкірт қышқылы (H_2SO_4) қосылып, 15 мин. бойы $0^\circ C$ -та магниттік араластырғышта үздіксіз араластырылды. 15 мин. өткеннен кейін алынған ерітіндіге 0,5 г натрий нитратын ($NaNO_3$) қосып, тағы 15 мин. араластырдық. Араласып болған соң 3 г калий перманганаты ($KMnO_4$) біртіндеп салынып, $20^\circ C$ -тан төмен температурада 2 сағат бойы араластырылды. Берілген уақыт өткеннен кейін $35^\circ C$ -та 30 мин. араластыру арқылы сақталды. Одан кейін

температураны 90°C-қа дейін көтеру үшін деионизацияланған су құйылып, 30 мин. араластыру үрдісінде, температураны бақылауда ұстадық. Кейіннен араласып болған соң 30%-дық H_2O_2 сутегінің асқын тотығын қостық. Алынған ерітінді суып, газ бөліну аяқталған соң, дайын болған ерітіндіні металл иондарынан тазарту үшін 5%-дық тұз қышқылының HCl ерітіндісімен жуылды.



Сурет 1 – Графен оксидін (ГО) алу схемасы.

Бейтараптау кезінде белсендірілген көмірден алынған қышқыл графен оксиді (ГО) ерітіндісіне 1000 мл деионсызданған су құйылды. 15–20 минут ультрадыбыстық ваннада өңделінді, кейін магниттік араластырғышта 4–5 сағат араластырылды. Белгіленген уақыт аяқталған соң, тыныштық күйге қойылды. Өзінің массасына байланысты графен оксиді (ГО) ыдыс түбіне шөгеді. Бейтараптау мақсатында, ерітіндідегі қышқыл сұйықтығын $pH \sim 7$ болғанға дейін бөліп алып отырып, үрдіс бірнеше рет қайталанылады.



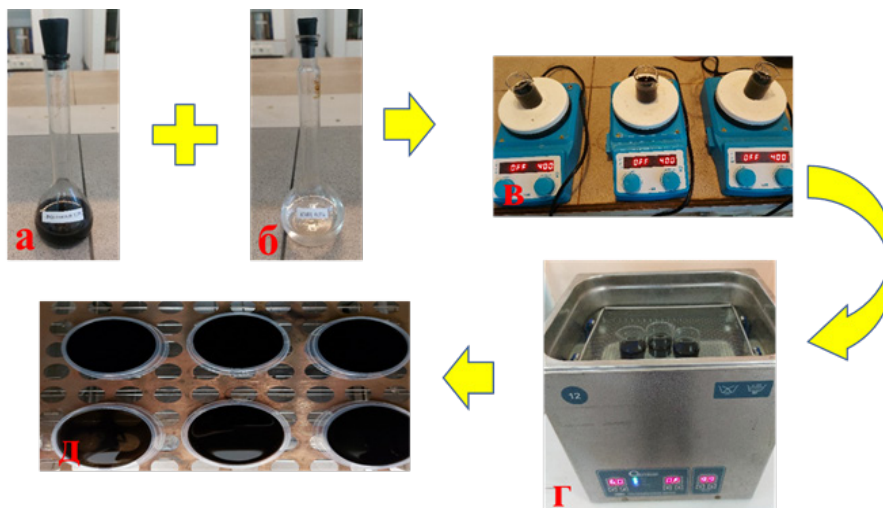
Сурет 2 – Графен оксидін (ГО) бейтараптау реті:
а) деионсызданған су құю; б) ультрадыбыстық ваннаға салу;
в) магниттік араластырғышқа қою;

Бейтарапталған графен оксиді (ГО) петри табақшасына құйылып, кептіргіш шкафта 50°C-та кептірілді. Кепкен графен оксидінің массасын техникалық таразыда өлшеп алып, 0,5%-дық ерітінді дайындалды (сурет 3 (а)).

ГО-ны КМЦ мен әрекеттестіру арқылы композитті материал алу.

Белсендірілген көмірден синтезделген ГО өзінің морфологиялық қасиеттеріне байланысты өздігінен мембрана түзе алмайды. Сондықтан композитті мембрана алу мақсатында байланыс түздіруші материалдардың бірі ретінде КМЦ (карбоксиметилцеллюлоза) қолданылды.

Композитті материал алу барысында келесідегідей 3 түрлі қатынас алынды: 1/1; 3/1; 1/3. Аталған әр қатынастардың жалпы көлемі 40 мл тең ерітінді әзірленді. 100 мл өлшегіш колбаға 0,5%-дық КМЦ (карбоксиметилцеллюлоза) ерітіндісі алдын-ала әзірленді (сурет 3).



Сурет 3 – Белсендірілген көмірден алынған ГО мен КМЦ (карбоксиметилцеллюлоза) арқылы композитті материал алу барысы

ИҚ-спектроскопиялық талдау.

1 см⁻¹ ажыратымдылықпен FT-801 спектрометрінде (Simex, Ресей) БК алынған ГО және ГО/КМЦ мембраналарының химиялық құрылымына ИҚ-спектроскопиялық талдау жүргізілді. Өлшемдер стандартты әдіске сәйкес 450–4700 см⁻¹ диапазонында модельдің жоғарғы позициясында, 25°C температурада толық ішкі және айна шашыраңқы шағылыстыратын бір реттік әмбебап құрылғыны қолдану арқылы жүргізілді.

УК-спектроскопиялық талдау.

БК-ден алынған ГО және КМЦ-мен әр түрлі қатынаста синтезделген композитті материалдарды спектрофотометр ПЭ-5400УФ қондырғысында 1 см⁻¹ ажыратымдылықпен жүргізілді. Өлшеу стандартты әдістемеге сәйкес 190–1000 см⁻¹ спектралды диапазонында, дейтерий және гологенді лампа қатысында жүргізілді.

Беттік морфологиялық талдау.

БК-ден синтезделген ГО беттік морфологиясы XSZ-146T маркалы оптикалық микроскопта зерттелді. Зерттеу жұмысы қалыпты бөлме температурасында, алдын-ала заттық шыныға үлгіні дайындау арқылы жүргізілді.

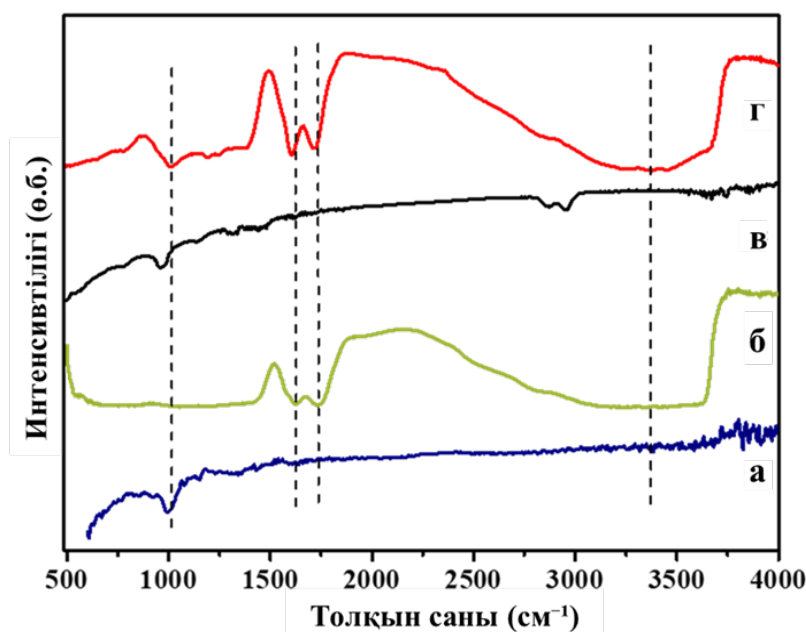
СЭМ.

БК-ден алынған ГО және ГО/КМЦ мембраналарының беттік морфологиясы JSM-6390LV (Джеол, Жапония) сканерлеуші электронды микроскоптың көмегімен зерттелді. Өлшемдер жоғары вакуум режимінде 15 кВ үдеткіш кернеуде екіншілік электронды детекторды қолдану арқылы жүргізілді.

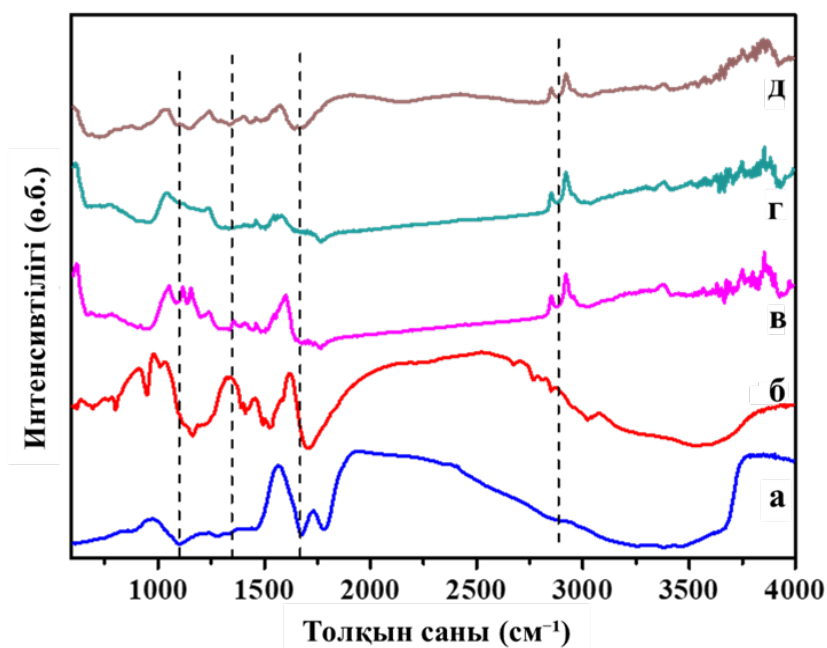
Нәтижелер және талқылау

ИҚ-спектроскопиялық талдау.

Хаммерс әдісі арқылы БК алынған ГО тәріздес және графиттен синтезделген ГО материалдардың химиялық құрылымдары ИҚ-спектроскопиялық әдіс арқылы зерттелді. Зерттеу барысында алынған нәтижелер төменде 4-суретте (221 б.) ұсынылған.



Сурет 4 – а) графит ИҚ-спектрі; б) графиттен Хаммерс әдісі арқылы алынған ГО ИҚ-спектрі;
в) белсендірілген көмір ИҚ-спектрі; г) белсендірілген көмірден Хаммерс әдісі арқылы
синтезделген ГО ИҚ-спектрі



Сурет 5 – а) белсендірілген көмірден Хаммерс әдісі арқылы синтезделген ГО;
б) карбоксиметилцеллюлоза (КМЦ); в) белсендірілген көмірден алынған ГО мен КМЦ 1/1;
г) 3/1; д) 1/3 қатынаста алынған композитті материалдардың ИҚ-спектрі

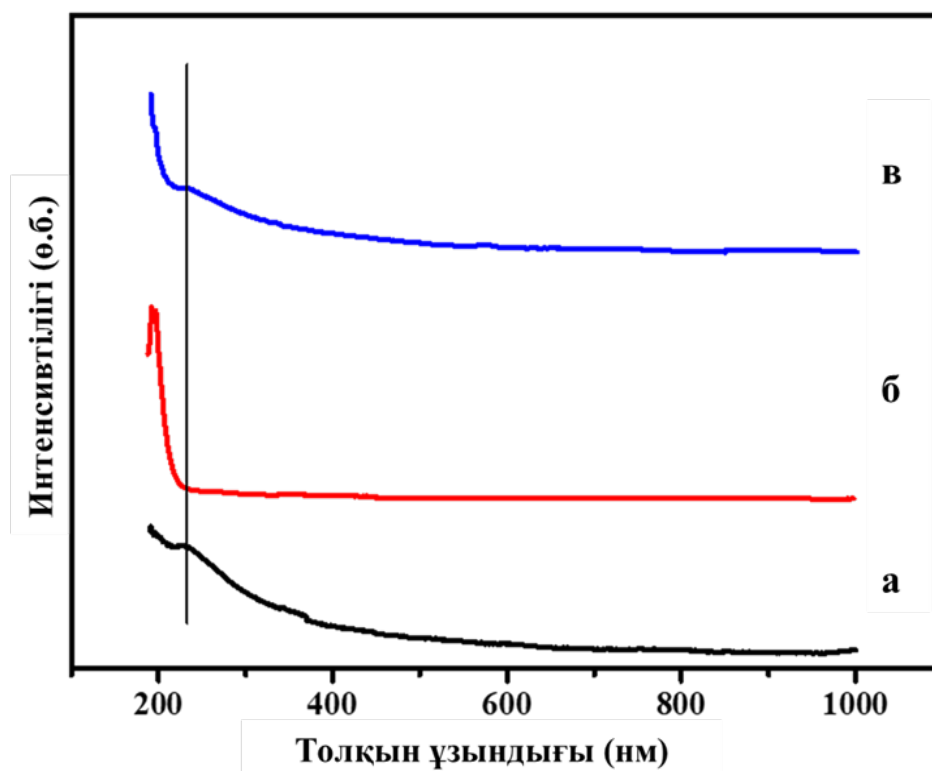
Жоғарыда аталғандай графиттен алынған ГО мен белсендірілген көмірден Хаммерс әдісі арқылы синтезделген ГО-ның ұқсастығы ИҚ-спектрметрлік зерттеу әдісі арқылы зерттелді. Нәтижесінде бастапқы өнім графитпен белсендірілген көмірді күшті тотықтырғыштар көмегімен синтездеу барысында ГО және ГО тәріздес материалдар алынды. Құрамында оттекті

функционалды топтардың ұқсас толқын ұзындықтарында орналасқаны ИҚ-спектрларында (сурет 4) бейнеленген. ГО алудағы негізгі шикізаты графитті ИҚ-спектрометрлік (сурет 4 (а)) анализдеу барысында 1528 см^{-1} жұтылу аймағында жоғары ковалентті байланыс пен кристалды қабаттардың болуы $\text{C}=\text{C}$ топтарының бар екендігін көрсетеді [12]. Графитті тотықтыру нәтижесінде алынған ГО зерттеуде (сурет 4 (б)) 1075 см^{-1} жұтылу аймағында $\text{C}-\text{O}$ карбоксилді топтар, 1443 см^{-1} $\text{C}-\text{C}$ ароматты топтар, 1732 см^{-1} $\text{C}=\text{O}$ карбонилді топтар, 3336 см^{-1} OH гидроксо топтары анықталды [13]. Графитті күшті тотықтырғыштармен Хаммерс әдісі арқылы синтезделгеннен кейін алынған ГО бастапқы өнім графитпен салыстырғанда оттекті функционалды топтар, атап айтқанда карбоксилді $\text{C}-\text{O}$, карбонилді $\text{C}=\text{O}$, гидроксо топтардың OH пайда болуын байқауға болады (сурет 4 (а, б)). ГО тәрізді материал алуда шикізат көзі ретінде белсендірілген көмір қолданылды. Белсендірілген көмірді ИҚ-спектроскопиялық зерттеу барысында (сурет 4 (в)) 1518 см^{-1} жұтылу аймағында ароматты $\text{C}=\text{C}$ топтары, 1054 см^{-1} аймағында карбоксилді $\text{C}-\text{O}$ топтары, 2902 және 2986 см^{-1} жұтылу аймағында димерлі гидроксо топтары OH анықталды [14]. Белсендірілген көмірден (БК) синтезделген ГО (сурет 4 (г)) зерттеуде $\text{C}-\text{O}$ карбоксилді топтар 1097 см^{-1} жұтылу аймағында, $\text{C}-\text{C}$ ароматты топтар 1470 см^{-1} , $\text{C}=\text{O}$ карбонилді топтар 1782 см^{-1} , OH гидроксо топтар 3325 см^{-1} жұтылу аймақтарында байқалды [15]. БК-ні Хаммерс әдісімен синтездеу нәтижесінде алынған ГО-ның бастапқы үлгіден айырмашылығы материал құрамында ароматты $\text{C}=\text{C}$ және карбоксилді $\text{C}-\text{O}$ топтарынан басқа ароматты $\text{C}-\text{C}$, карбонилді $\text{C}=\text{O}$ сондай ақ гидроксо топтарының OH пайда болуымен ерекшеленеді. Сараптау кезінде графиттен алынған ГО және БК-ден синтезделген ГО тәріздес материалдың құрамында анықталған оттекті функционалды топтарында ұқсастық бары анықталды.

БК-ден синтезделген ГО-ның өзіндік физикалық қасиетіне байланысты өздігінен мембрана түзе алмайтындықтан, байланыс түздіруші биополимер КМЦ мен $1/1$, $1/3$, $3/1$ қатынастарында композитті материалдар ИҚ-спектроскопия әдісімен зерттелді. БК-ден синтезделген ГО-ға қосылатын биополимерді (КМЦ) (сурет 5 (б)) сараптау барысында 800 см^{-1} $\text{C}-\text{H}$ ароматты, 948 см^{-1} $-\text{CO}-\text{OH}$ карбоксил, 1164 см^{-1} $\text{C}-\text{O}$ карбоксилді, 1412 , 1496 см^{-1} $\text{C}-\text{C}$ ароматты, 1704 см^{-1} $\text{C}=\text{O}$ альдегид, 3024 см^{-1} жұтылу аймағында OH ароматты функционалды топтар анықталды. Ал БК-ден синтезделген ГО-ның (сурет 5 (а)) ИҚ анализі жоғарыда жазылып өткендей (сурет 4 (г)) сипатталды. Бастапқы БК-ден алынған ОГ материалдарын $1/1$, $1/3$, $3/1$ қатынастарында КМЦ мен қосу барысында: $1/1$ қатынаста (сурет 5 (в)) анализінде 740 см^{-1} жұтылу аймағында ароматты $\text{C}-\text{H}$ топтары анықталды, 941 см^{-1} аймағында $-\text{CO}-\text{OH}$ карбоксил топтары, 1552 см^{-1} аймағында $\text{C}-\text{O}$ карбоксил топтары, 1444 см^{-1} $\text{C}-\text{C}$ ароматты топтар, 1696 , 1728 см^{-1} аймақтарында $\text{C}=\text{O}$ альдегид топтары, 3032 см^{-1} жұтылу аймағында карбоксилді топтары OH байқалды. $3/1$ қатынаста (сурет 5 (г)) алынған материалды анализдеу нәтижесінде, 736 см^{-1} жұтылу аймағында ароматты $\text{C}-\text{H}$ топтары, 944 см^{-1} аймағында $-\text{CO}-\text{OH}$ карбоксил тобы, 1484 см^{-1} аймағында $\text{C}-\text{C}$ ароматты топтар, 1552 см^{-1} аймағында $\text{C}-\text{O}$ карбоксил топтары, 1680 , 1696 см^{-1} аймақтарында $\text{C}=\text{O}$ альдегид топтары, 3036 см^{-1} жұтылу аймағында карбоксилді OH топтары анықталды. Ал $1/3$ қатынаста (сурет 5 (д)) алынған материалда 724 см^{-1} жұтылу аймағында ароматты $\text{C}-\text{H}$ тобы, 920 см^{-1} аймағында $-\text{CO}-\text{OH}$ карбоксил топтары, 1444 см^{-1} $\text{C}-\text{C}$ ароматты топтар, 1552 см^{-1} аймағында $\text{C}-\text{O}$ карбоксил топтары, 1686 , 1692 см^{-1} аймақтарында $\text{C}=\text{O}$ альдегид топтары, 3032 см^{-1} жұтылу аймағында карбоксилді OH топтары анықталды. БК-ден синтезделген ГО-ны биополимер КМЦ қосу нәтижесінде алынған материалдарда $724\text{--}740\text{ см}^{-1}$ аралығында ароматты $\text{C}-\text{H}$ топтары, $920\text{--}944\text{ см}^{-1}$ аралығында карбоксилді $-\text{CO}-\text{OH}$ топтар анықталды. Сонымен қатар ГО-ға тән карбонилді $\text{C}=\text{O}$ 1782 см^{-1} аралығынан альдегидті топтарына яғни $1686\text{--}1728\text{ см}^{-1}$ аралығына дейін жылжуы байқалды. БК-ден синтезделген ОГ мен КМЦ композитті материалдардың ішінде ең тиімдісі ретінде $1/1$ қатынаста алынған үлгі анықталды. $3/1$ және $1/3$ қатынастарында алынған материалдардың физикалық ерекшеліктеріне қарағанда $1/1$ қатынасы иілгіш және берік материал екендігі және мембрана түзетін ерекшелігі анықталып, оптималды қатынас болып алынды.

УК-спектроскопиялық талдау.

Белсендірілген көмірден Хаммерс әдісі арқылы синтезделген ГО тәріздес материалдың, карбоксиметилцеллюлозаның (КМЦ) және ГО мен КМЦ оптималды 1/1 қатынаста алынған композиттің УК-спектроскопиялық зерттеу нәтижесі төменде көрсетілген (сурет 6).

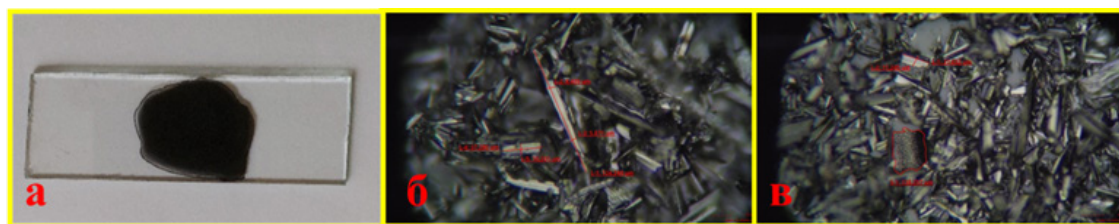


Сурет 6 – а) белсендірілген көмірден алынған ГО; б) карбоксиметилцеллюлоза (КМЦ); в) белсендірілген көмірден алынған ГО мен КМЦ оптималды 1/1 қатынаста алынған композитті материалдың УК-спектрі

Белсендірілген көмірден алынған ГО-ның УК-спектроскопиясын талдау барысында (сурет 6 (а)) химиялық құрылымындағы ароматты сақиналардың π - π^* байланыс әсерінен 223 нм жұтылу аймағы пайда болды. Келесі спектрде (сурет 6 (б)) КМЦ-ның өзіндік физико-химиялық құрылымына байланысты УК сараптамасында жұтылу аймағы байқалмады [16]. Белсендірілген көмірден алынған ГО мен КМЦ-ны оптималды 1/1 қатынаста (сурет 6 (в)) қосу арқылы алынған композитті материалдың УК зерттеу нәтижесінде 226 нм аралығында жұтылу байқалды. Бастапқы белсендірілген көмірден алынған ГО-мен ГО/КМЦ комозиттік материалмен салыстырғанда УК спектрінде 223 нм–226 нм дейін жылжу байқалды. Бұл материалдың құрамында функционалды оттектері (C-O, C-O-H, C=O) топтардың π - π^* байланыс әсерінен түзілуімен түсіндіріледі. Бастапқы материалды тотықтырғаннан кейінгі оттектері функционалды топтардың қонуын ИҚ-спектроскопиялық зерттеу нәтижесінен дәлел ретінде көруге болады.

Оптикалық микроскоптағы зерттеулер.

Белсендірілген көмірден алынған ГО-ны металлургиялық микроскопта зерттелді. Заттық шыныға ГО тамызылып (сурет 6 (а)), бөлме температурасында кептірілгеннен кейін оптикалық микроскопта беттік морфологиясы сарапталынды. Нәтижесінде белсендірілген көмірден синтезделген ГО-ның беттік морфологиясы қатпарлы екені байқалды (сурет 6 (б)).

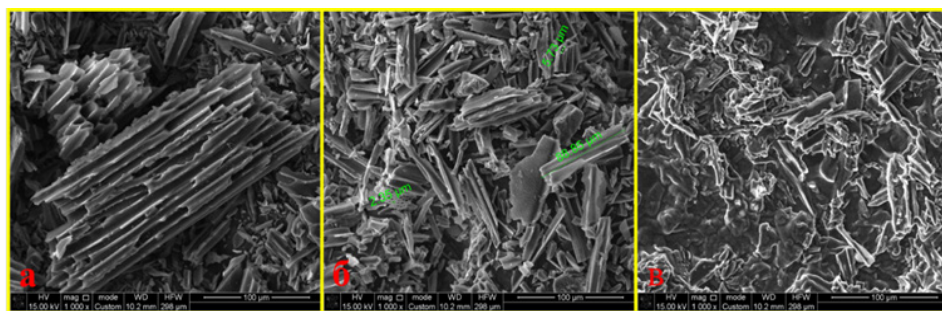


Сурет 7 – а) заттық шыныға тамызылған белсендірілген көмірден синтезделген ГО;
б) үлгіні 50 есе ұлғайтқандағы көрінісі және ұзындығы мен ені; в) үлгіні 25 есе
ұлғайтқандағы көрінісі және ауданы

Өлшем барысында белсендірілген көмірден синтезделген ГО тәріздес материалдың ұзындығы $124,249 \mu\text{m}$, ені шамамен $7,1845 \mu\text{m}$ (Сурет 7 (б)) құрады, ал ауданы $138,257 \mu\text{m}^2$ (Сурет 7 (в)) тең болды. Сонымен қатар материалдың ретсіз, хаосты орналасуы анықталды.

СЭМ

Бастапқы үлгіні яғни белсендірілген көмір, белсендірілген көмірден синтезделген ГО және ГО мен КМЦ оптималды 1/1 қатынаста алынған композитті материалдың беттік морфологиясы сканерлеуші электрондық микроскоппен (СЭМ) зерттелді. Нәтижелері төменде ұсынылған суреттерде көрсетілген (сурет 8).



Сурет 8 – а) белсендірілген көмір; б) белсендірілген көмірден Хаммерс әдісі арқылы синтезделген ГО; в) белсендірілген көмірден синтезделген ГО мен КМЦ оптималды 1/1 қатынаста алынған композитті материалдың СЭМ кескіні

Белсендірілген көмірден Хаммерс әдісі арқылы синтезделген графен оксиді және оны КМЦ мен оптималды 1/1 қатынаста қосу арқылы алынған композитті материалдардың СЭМ кескіндері (сурет 8) бейнеленген. Бастапқы үлгінің (сурет 8 (а)) яғни белсендірілген көмірдің беттік морфологиялық сараптауы бойынша хаосты кеуекті, ұяшықты құрылымға ие екені көрінеді. Ал белсендірілген көмірді Хаммерс әдісі арқылы синтездеу нәтижесінде алынған ГО-ның беттік құрылымы (сурет 8 (б)) хаосты және күшті тотықтырғыштар көмегімен тотықтыру нәтижесінде белсендірілген көмір кеуектерінде оттекті функционалды топтардың енуінің әсерінен кеук қуыстарының оттекті функционалды топтармен жабын тәрізді қапталғанын байқауға болады. Сараптау барысында материалдардың ұзындығы және кеуектердің қуыс өлшемдері анықталды. Белсендірілген көмірден синтезделген ГО-ның орташа ұзындығы $88,85 \mu\text{m}$, ал кеук саңылауының орташа өлшемі $\sim 4,04 \mu\text{m}$ шамасын құрайды. Белсендірілген көмірден синтезделген ГО мен КМЦ оптималды 1/1 қатынаста қосу арқылы алынған композитті материалдың (сурет 8 (в)) беттік морфологиясын зерттеу барысында ГО биополимермен әрекеттестіру нәтижесінде кедір-бұдырлы жерлердің, ұяшықтардың азайып біркелкі тегістеу беттік қыртыстардың пайда болғаны байқалды. СЭМ кескінінде көрсетілгендей белсендірілген көмірден алынған ГО байланыстырушы материал КМЦ қосу нәтижесінде бір-бірімен жабысқан композитті материал алынды. Сондай-ақ, белсендірілген көмірден синтезделген ГО-ға биополимер КМЦ қосу нәтижесінде ГО бетіндегі кеуекті саңылаулар оттекті

функционалды топтармен жабылғанын байқауға болады. Оттекті функционалды топтардың отырғанының дәлелі ретінде және ГО сәтті синтезделуі ИҚ және УК спектроскопиялық талдау нәтижелерімен анықталды.

Қорытынды

Белсендірілген көмірді күшті тотықтырғыштармен Хаммерс әдісі арқылы тотықтыру нәтижесінде синтезделген графен оксиді (ГО) тәрізді материалдың алынғаны зерттеу жұмыстарының талдау нәтижелері арқылы дәлелденді. Талдау нәтижелері бойынша ИҚ-спектроскопиялық анализдеу барысында белсендірілген көмірден синтезделген ГО графиттен Хаммерс әдісі арқылы алынған ГО оның құрамында анықталған карбоксилді С-О, ароматты С-С, карбонилді С=О және гидроксо ОН топтарының жұтылу аймақтары бір-біріне ұқсастығы анықталды. Белсендірілген көмірден синтезделген ГО өзіндік физикалық қасиеттеріне байланысты өздігінен мембрана түзе алмайтындығы анықталды, осы кемшілігінен арылу үшін ГО 1/1; 1/3; 3/1 қатынастарында биополимер КМЦ мен қосу арқылы композитті материал алынды. ИҚ-спектроскопиялық талдауға сәйкес ГО-ны биополимер КМЦ қосу нәтижесінде ГО-да карбоксилді -СО-ОН және ароматты С-Н топтары түзілгені және алынған материалдардың өзіндік физикалық, механикалық қасиеттеріне байланысты 1/1 қатынаста қосылып алынған композитті материал оптималды екені анықталды. УК-спектроскопиялық талдау нәтижесінде π - π^* байланыстың болуы алынған композитті материалдың құрамында оттекті функционалды топтардың түзілуін көрсетті. Белсендірілген көмірден синтезделген ГО беткі бөлігін оптикалық микроскопта зерттеу нәтижесінде алынған ГО тәрізді материалдың кеуекті екені анықталды. Беттік морфологиясын СЭМ талдау нәтижесінде бастапқы материал БК тотықтыру нәтижесінде оттекті функционалды топтардың кеуек қуыстарына енуі және БК синтезделген ГО тәріздес материалды биополимер КМЦ мен оптималды 1/1 қатынаста алынған композитті материалды зерттеу барысында кеуек саңылаулары жабылғаны байқалды. Осы алынған нәтижелерді қорытындылай келе белсендірілген көмірден синтезделген ГО тәріздес материалды және ГО/КМЦ-ны электроникада, газға және ылғалға сезімтал датчиктер жасауда және сорбциялық қасиетін ескере отырып су тазалаушы фильтр ретінде қолдануға болады.

ӘДЕБИЕТТЕР

- 1 Syakir N., Saragi N., Fitrilawati F., Maryati Y., Widayiswari U., Puspitasari D., Risdiana R. (2021) Magnetic Characteristics of Graphene Oxide and Reduced Graphene Oxide. *Materials Science Forum*, 1028:296–301. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/MSF.1028.296>.
- 2 Bilal M., Li J., Landskron K. (2022) Activated Carbon Electrodes Improved Sorption Capacity for Supercapacitive Swing Adsorption of Carbon Dioxide. <https://doi.org/10.26434/chemrxiv-2022-26fbs-v2>.
- 3 Kuanyshbekov T., Sagdollin Z., Zhasasynov E., Kaiyrbekov N., Akatan K., Kabdrakhmanova S., Kantay N., Tolepov Z., Tulegenova M., Beisebekov M. (2022) SYNTHESIS OF COMPOSITE MEMBRANE BASED ON GRAPHENE OXIDE AND NANOSTARCH, *NNC RK Bulletin*. <https://doi.org/10.52676/1729-7885-2022-3-94-99>.
- 4 Wang R., Ma Q., Zhang H., Ma Z., Yang R., Zhu J.Y. (2019) Producing Conductive Graphene – Nanocellulose Paper in One – pot, *Journal of Polymers and the Environment*, no. 27, pp. 148–157. <https://doi.org/10.1007/s10924-018-1330-4>.
- 5 Nayak J., Vashishtha A. (2018) Synthesis, Characterization and Preparation of Nanocellulose and different Cellulose/Nanocellulose/Graphene Composites from Cassava root and it's Potential Application for Pesticide Adsorption from water, vol. 5, Issue 4. <https://doi.org/10.1729/Journal.18989>.
- 6 Ray S. (2015) Application and Uses of Graphene Oxide and Reduced Graphene Oxide. *Applications of Graphene and Graphene-Oxide Based Nanomaterials*, pp. 39–55. <https://doi.org/10.1016/B978-0-323-37521-4.00002-9>.
- 7 Yang Z., Ju X., Liao H., Meng Z., Ning H., Li Y., Chen Z., Long J. (2021) Preparation of Activated Carbon Doped with Graphene Oxide Porous Materials and Their High Gas Adsorption Performance. <https://doi.org/10.1021/acsomega.1c02416>.

8 Matos I., Bernardo M., Fonseca I. (2017) Porous carbon: a versatile material for catalysis. *Catal Today*, no. 285, pp. 194–203. <https://doi.org/10.1016/j.cattod.2017.01.039>.

9 Nayak J., Vashishtha A. (2018) Synthesis, Characterization and Preparation of Nanocellulose and different Cellulose/Nanocellulose/Graphene Composites from Cassava root and its Potential Application for Pesticide Adsorption from water. <https://doi.org/10.1729/Journal.18989>.

10 Kuanyshbekov T., Sagdollin Z., Zhasasynov E., Akatan K., Kurbanova B., Guseinov N., Tolepov Z., Kantay N., Beisebekov M. (2023) Composite Membrane Based on Graphene Oxide and Carboxymethylcellulose from Local Kazakh Raw Materials for Possible Applications in Electronic Devices. *J. Compos. Sci.*, no. 7, 342. <https://doi.org/10.3390/jcs7080342> Academic Editor: Jian Zhang Chen Received: 3 August 2023 Revised: 11 August 2023 Accepted: 15 August 2023 Published: 21 August 2023.

11 Sahu K., Dhonde M., Murty V. (2021) Preparation of copper/TiO₂/ graphene oxide ternary nanocomposites and their structural, surface morphology, and optical properties. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* <https://doi.org/10.1007/s10854-021-06148-2>.

12 Shivananda C.S., Madhu S., Poojitha G., Sudarshan A.R., Jeethendra S., Reddy K.N. (2023) Structural, chemical and morphological properties of graphite powder, graphene oxide and reduced graphene oxide. *Materials Today Proceedings*, 89(9). <https://doi.org/10.1016/j.matpr.2023.04.608>.

13 Kuanyshbekov T., Guseinov N., Tolepov Z., Kurbanova B., Tulegenova M., Akatan K., Kantay N., Zhasasynov E. (2023) Thermally Reduced Graphene Oxide Membranes From Local Kazakhstan Graphite “Ognevsky”. *ChemistrySelect*, 8(42). <https://doi.org/10.1002/slct.202301746>.

14 Wang Z., Nie E., Li J., Yang M., Zhao Y., Luo X., Zheng Z. (2012) Equilibrium and kinetics of adsorption of phosphate onto iron-doped activated carbon *Environ Sci Pollut Res*, 19:2908–2917. <https://doi.org/10.1007/s11356-012-0799-y>.

15 Chafidz A., Astuti W., Augustia V., Novira D.T., Rofiah N. (2018) Removal of methyl violet dye via adsorption using activated carbon prepared from Randu sawdust (Ceiba pentandra). *IOP Conference Series Earth and Environmental Science*, 167(1):012013. <https://doi.org/10.1088/1755-1315/167/1/012013>.

16 Mansouri L., Benganem S., Elkolli M., Mahmoud B. (2020) Chemical and biological behaviours of hydrogels based on oxidized carboxymethylcellulose coupled to chitosan. *Polymer Bulletin*, 77(1). <https://doi.org/10.1007/s00289-019-02712-3>.

^{1*}**Zhasasynov E.,**

student, ORCID ID: 0000-0003-4149-3879, *e-mail: ezasasynov@gmail.com

¹**Kuanyshbekov T.,**

PhD, ORCID ID: 0000-0002-2336-3678, e-mail: kuanyshbekov_17@mail.ru,

¹**Sagdollin Zh.,**

ORCID ID: 0000-0001-6389-6826, e-mail: zhandossagdollin@gmail.com

¹**Akatan K.,**

PhD, ORCID ID: 0000-0002-3172-623X, e-mail: ahnur.hj@mail.ru,

²**Tulegenova M.,**

PhD, ORCID ID: 0000-0002-6413-4302, e-mail: malika.tulegenova@bk.ru

²**Zhandos T.,**

PhD, ORCID ID: 0000-0001-7895-0434, e-mail: mr.tolepov@mail.ru

¹S. Amanzholov East Kazakhstan State University, 070020, Ust-Kamenogorsk, Kazakhstan

²Al-Farabi Kazakh National University, 050040, Almaty, Kazakhstan

PRODUCTION OF GRAPHENE OXIDE (GO) FROM ACTIVATED CARBON BY THE HAMMERS METHOD AND ITS STUDY

Abstract

Carbon materials are frequently utilized in electronics, medicine, and the production of sorption materials. Such materials, including graphite, graphene, graphene oxide (GO) derived from graphite, and graphene oxide synthesized from activated carbon (GO-AC), are widely employed. This article delineates the differences, disadvantages, and

advantages of graphene oxide synthesized from activated carbon (GO-AC) in comparison to GO obtained from graphite. During the research, composite materials obtained by oxidizing activated carbon using the Hammers method and biopolymer carboxymethyl cellulose (CMC) in ratios of 1/1, 1/3, and 3/1 were studied using infrared, ultraviolet spectroscopy, and optical methods. Based on the research results, the infrared spectrum of the obtained composite materials revealed absorption peaks of -CO-OH groups at 724 cm^{-1} and C-H groups at 944 cm^{-1} . The 1/1 optimal ratio was obtained due to the unique surface morphology and physical-chemical and mechanical properties of the synthesized composite materials. According to the UV spectrum of the GO-AC/KMC, the C=O ether bond exhibited complete absorption at 226 nm. The surface morphology of the synthesized materials (AC, GO-AC, GO-AC/CMC) was studied using optical and scanning electron microscopes (SEM). As a result, it was observed that the BK-GO material exhibited a scattered stone-like shape. It was observed that the materials studied by SEM exhibited a chaotic structure, and the pores along the material, resulting from adding the binder CMC to GO-AC in the optimal GO-AC/CMC ratio of 1/1, were covered with oxygen functional groups. Based on the research findings, it was determined that the properties of the GO-AC material are similar to those of graphene oxide (GO) obtained from graphite. According to the study results, it was discovered that the GO-AC material exhibits similar properties to graphene oxide (GO) obtained from graphite. The advantage of these materials over other carbon composites in terms of economic efficiency lies in the simplicity of synthesis and the availability of raw material sources.

Key words: activated carbon (AC), graphene oxide synthesized from activated carbon (GO-AC), graphene oxide (GO), the Hammers method.

^{1*}**Жасасынов Е.,**

студент, ORCID ID: 0000-0003-4149-3879, *e-mail: ezasasynov@gmail.com

¹**Қуанышбеков Т.,**

PhD, ORCID ID: 0000-0002-2336-3678, e-mail: kuanyshebekov_17@mail.ru

¹**Сағдоллин Ж.,**

ORCID ID: 0000-0001-6389-6826, e-mail: zhandossagdollin@gmail.com

¹**Ақатан Қ.,**

PhD, ORCID ID: 0000-0002-3172-623X, e-mail: ahnur.hj@mail.ru,

²**Түлегенова М.,**

PhD, ORCID ID: 0000-0002-6413-4302, e-mail: malika.tulegenova@bk.ru

²**Төлепов Ж.,**

PhD, ORCID ID: 0000-0001-7895-0434, e-mail: mr.tolepov@mail.ru

¹Восточно-Казахстанский университет им. С. Аманжолова, ННЛКП,
070020, г. Усть-Каменогорск, Казахстан

²Казахский национальный университет им. аль-Фараби,
050040, г. Алматы, Казахстан

ПОЛУЧЕНИЕ ОКСИДА ГРАФЕНА (ГО) ИЗ АКТИВИРОВАННОГО УГЛЯ МЕТОДОМ ХАММЕРСА И ЕГО ИЗУЧЕНИЕ

Аннотация

Углеродные материалы часто используются в электронике, медицине, производстве сорбционных материалов. Такие материалы, в том числе графит, графен, оксид графена (ОГ) полученный из графита, и оксид графена, синтезированный из активированного угля (ОГ-АУ), широко используются. В данной статье рассмотрены различия, недостатки и преимущества оксида графена, синтезированного из активированного угля (ОГ-АУ), по сравнению с ОГ, полученным из графита. В ходе исследований с помощью инфракрасной, ультрафиолетовой спектроскопии и оптических методов были изучены композиционные материалы, полученные окислением активированного угля методом Хаммерса и биополимера карбоксиметилцеллюлозы (КМЦ) в соотношениях 1/1, 1/3 и 3/1. По результатам исследований в инфракрасном спектре полученных композиционных материалов обнаружены пики поглощения групп -CO-OH при 724 cm^{-1} и групп C-H при 944 cm^{-1} . Оптимальное соотношение 1/1 получено благодаря уникальной морфологии поверхности и физи-

ко-химическим и механическим свойствам синтезированных композиционных материалов. По данным УФ-спектра ОГ-АУ/КМЦ 1/1 эфирная связь C=O имела полное поглощение при 226 нм. Морфологию поверхности синтезированных материалов (АУ, ОГ-АУ, ОГ-АУ/КМЦ) изучали с помощью оптического и сканирующего электронного микроскопов (СЭМ). В результате было замечено, что материал БК-ГО имел форму рассеянного камня. Было замечено, что исследованные методом СЭМ материалы имели хаотичную структуру, а поры вдоль материала, образовавшиеся в результате добавления связующего КМЦ к ОГ-АУ в оптимальном соотношении ОГ-АУ/КМЦ 1/1, были покрыты кислородно-функциональными группами. По результатам исследований установлено, что свойства материала ОГ-АУ аналогичны свойствам оксида графена (ОГ), полученного из графита. Преимущество этих материалов перед другими углеродными композитами с точки зрения экономической эффективности заключается в простоте синтеза и доступности источников сырья.

Ключевые слова: активированный уголь (АУ), оксид графена синтезированный из активированного угля (ОГ-АУ), оксид графена (ОГ), метод Хаммерса.