

NGHIÊN CỨU KHẢO SÁT ĐẶC TRƯNG CỦA VẬT LIỆU GRAPHENE OXIT CHẾ TẠO BẰNG PHƯƠNG PHÁP ĐIỆN HÓA

CHARACTERISTIC OF GRAPHENE OXIDE SYNTHESIZED BY ELECTROCHEMICAL METHOD

Hoàng Văn Tuấn^{1*}, Nguyễn Lê Nhật Trang¹, Đào Thị Nguyệt Nga¹, Ngô Xuân Đình¹, Vũ Đình Lâm²,
Lê Anh Tuấn^{1*}

¹*Viện Nghiên cứu nano, Trường Đại học Phenikaa*

²*Học viện Khoa học và Công nghệ, Viện Hàn lâm Khoa học và Công nghệ Việt Nam*

Đến Tòa soạn ngày 10/08/2021, chấp nhận đăng ngày 30/08/2021

Tóm tắt: Graphene oxit (GO) là một vật liệu carbon 2 chiều, được biết đến như một loại vật liệu tương lai với nhiều đặc tính ưu việt. Trong nghiên cứu này, chúng tôi báo cáo một quy trình tổng hợp điện hóa xanh cho chế tạo GO sử dụng điện cực graphite và chất điện ly K_2CO_3 . Các đặc trưng của vật liệu GO được khảo sát sử dụng các phương pháp: phép đo nhiễu xạ tia X (XRD), hiển vi điện tử quét (SEM), phổ hồng ngoại biến đổi Fourier (FTIR), quang phổ Raman và quang phổ hấp thụ tử ngoại khả kiến (UV-vis). Kết quả thu được cho thấy, GO được chế tạo ở điều kiện nồng độ chất điện ly K_2CO_3 0,08 M, điện áp 12 V trong thời gian 120 phút ở nhiệt độ phòng cho chất lượng GO tốt nhất. Phổ UV-vis của GO xuất hiện 2 đỉnh hấp thụ đặc trưng ở tại 230 nm đặc trưng cho liên kết C=C và một bờ hấp thụ ở 280-320 nm đặc trưng cho liên kết C=O. Vật liệu GO chế tạo được có số lớp khoảng 5-6 lớp, khoảng cách giữa hai lớp liên kề khoảng 0,82 nm, kích thước tấm GO lên đến vài micromet. Các kết quả thu được cho thấy đây là một giải pháp công nghệ đơn giản, thân thiện với môi trường, chi phí thấp và dễ dàng nâng cấp quy mô sản xuất số lượng lớn.

Từ khóa: Graphene oxit, phương pháp điện hóa, vật liệu 2D, vật liệu nano carbon.

Abstract: Graphene oxide (GO) is a two-dimensional carbon material that is known as a future material due to its excellent properties. In this study, we report a green electrochemical synthesis for the production of GO using the graphite rod and potassium carbonate solution as electrolytes. The as-synthesized GO has been carefully characterized by X-ray diffraction (XRD), Scanning electron microscopy (SEM), Fourier-transform infrared spectroscopy (FTIR), Raman analysis techniques, and UV-visible spectroscopy (UV-vis). The obtained results show that GO synthesized using K_2CO_3 0.08 M, 12 V in 120 min at room temperature was the best quality. The UV-vis spectrum of GO includes two typical absorption peaks at 230 nm corresponding to C=C bonds and a band at 280-320 nm of C=O bond. GO sheets exhibit the number of layers about 5-6, interlayer distance was 0.82 nm. Hence, this work provides a simple method for the synthesis of GO with low cost, environmentally friendly, and advantageous in mass production.

Keywords: Graphene oxide, electrochemical method, 2D material, nanocarbon material.

1. ĐẶT VẤN ĐỀ

Trong số các vật liệu carbon, Graphene oxit

(GO) là một dạng vật liệu carbon có cấu trúc 2D tương tự như graphene với nhiều các nhóm chức chứa oxy như: hydroxyl (OH),

carboxyl (COOH) [1]. Do vậy, GO thể hiện được nhiều đặc tính ưu việt như diện tích bề mặt riêng lớn ($2360 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$), độ dẫn nhiệt tốt ($5000 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$), độ linh động điện tử cao ($2,5 \times 10^5 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$), độ dẫn điện ở nhiệt độ phòng cao ($>10^6$), khả năng phân tán tốt trong nước, tương tác dễ dàng với các phân tử hóa học, sinh học [2]. Với cấu trúc đặc biệt trên, GO được sử dụng khá phổ biến trong các ngành vật liệu điện tử, y sinh, nông nghiệp và môi trường [3].

Việc chế tạo GO được khám phá bởi Brodie vào năm 1859 với nghiên cứu tạo ra một tấm GO với bề dày chỉ một lớp nguyên tử. Tiếp sau đó, đã có nhiều cách tiếp cận khác nhau trong việc chế tạo vật liệu GO như phương pháp Staudenmaier, Hummers, và một số phương pháp khác [4]. Đặc điểm chung của các phương pháp này là đều sử dụng các chất oxy hóa và axit mạnh như KClO_3 , KMnO_4 , H_2SO_4 , HNO_3 nên đòi hỏi điều kiện chế tạo phải được kiểm soát nghiêm ngặt. Bên cạnh đó, quy trình chế tạo nhiều bước cũng, các phản ứng diễn ra trong thời gian dài, sản lượng thấp, là một trong những hạn chế trong việc chế tạo loại vật liệu này ở quy mô lớn.

Gần đây, phương pháp điện hóa đã được ứng dụng trong chế tạo nhiều loại vật liệu nano khác nhau như vật liệu nano kim loại, oxit kim loại, bán dẫn, 2D với nhiều ưu điểm như: thao tác đơn giản, sản lượng cao, chi phí thấp và đặc biệt là dễ dàng nâng cấp quy mô sản xuất. Tác giả Kumar và cộng sự [2] đã sử dụng phương pháp điện hóa để chế tạo thành công GO dạng tấm từ điện cực graphite với đường kính trung bình khoảng $10 \mu\text{m}$, khoảng cách giữa các tấm là $0,995 \text{ nm}$, tỷ lệ I_D/I_G đạt 1,24. Trong nghiên cứu này, các tác giả sử dụng hỗn hợp H_2SO_4 và H_3PO_4 làm chất điện ly và KMnO_4 làm tác nhân oxy hóa ở điều kiện 6h tại 60°C . Trong một công bố khác của

Gurzęda và cộng sự [5], hỗn hợp các axit mạnh gồm H_2SO_4 và HNO_3 đậm đặc cũng được các tác giả sử dụng cho việc tách lớp và oxy hóa các tấm graphene từ điện cực graphite. Chất lượng của GO được các tác giả công bố với chất lượng khá tốt, tỷ lệ C/O đạt được ở mức 2,09 khi so sánh với các phương pháp tổng hợp trước đó đã được công bố.

Mặc dù các nghiên cứu về chế tạo GO theo phương pháp tách lớp điện hóa như mô tả ở trên đã góp phần cải thiện đáng kể các vấn đề liên quan đến sản lượng, quy mô và khả năng áp dụng cho sản xuất GO công nghiệp. Tuy nhiên, các công bố vẫn sử dụng các chất oxy hóa khử mạnh truyền thống để chế tạo GO. Việc này sẽ tiềm ẩn các nguy cơ về mất an toàn trong thực nghiệm và các vấn đề liên quan đến ô nhiễm môi trường trong xử lý các hóa chất tồn dư sau quá trình chế tạo. Do vậy, nhu cầu về sử dụng các tác nhân oxy hóa thân thiện với môi trường, quy trình chế tạo xanh vẫn là một trong những vấn đề cần được quan tâm, nghiên cứu.

Trong nghiên cứu này, chúng tôi báo cáo một cách tiếp cận mới, an toàn và thân thiện với môi trường để chế tạo GO theo phương pháp tách lớp điện hóa sử dụng chất điện ly K_2CO_3 ở nhiệt độ phòng. Đây là một phương pháp tổng hợp xanh, đơn giản và dễ dàng nâng cấp quy mô

2. VẬT LIỆU VÀ PHƯƠNG PHÁP

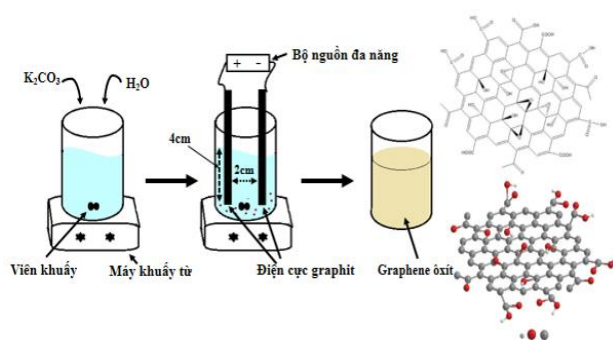
2.1. Vật liệu và hóa chất

Điện cực graphite (dạng thanh, chiều dài 8 cm, đường kính 5 mm, Trung Quốc), K_2CO_3 (dạng bột, 99,5%, Hàn Quốc). Bộ cấp nguồn đa năng (Model: ST8008-6K Lucas Nuelle/Đức), Máy khuấy từ gia nhiệt (Model: C-MAG HS7 IKA /Malaysia). Nước sử dụng cho tất cả các thí nghiệm là nước cất 1 lần.

2.2. Chế tạo vật liệu GO

Vật liệu GO được chế tạo theo phương pháp điện hóa sử dụng chất điện ly là K_2CO_3 như mô tả trong hình 1. Đầu tiên, hai điện cực graphite được làm sạch bằng nước cất để loại bỏ các oxit và tạp chất trên bề mặt. Dung dịch điện ly được chuẩn bị bằng cách hòa tan một lượng K_2CO_3 xác định (bảng 1) vào trong 400 ml nước cất và khuấy trong thời gian 15 phút. Sau đó, hai điện cực graphite đặt song song được nhúng vào dung dịch điện ly K_2CO_3 đựng trong cốc thủy tinh 500 mL đặt trên máy khuấy từ. Khoảng cách giữa cả hai điện cực là 2 cm, độ ngập điện cực là 4 cm. Hai điện cực được kết nối với bộ cấp nguồn đa năng. Quá trình chế tạo được tiến hành ở nhiệt độ phòng và trong điều kiện khuấy từ đối với tất cả các thí nghiệm.

Sự tạo thành GO có thể được quan sát thấy bằng sự thay đổi màu sắc của dung dịch từ trắng sang màu vàng cánh gián. Sau khi kết thúc quá trình điện hóa, dung dịch thu được sẽ được loại bỏ cặn lắng bằng máy quay ly tâm và bảo quản trong chai thủy tinh tối màu ở nhiệt độ phòng để sử dụng cho các thí nghiệm tiếp theo.



Hình 1. Sơ đồ quy trình chế tạo GO theo phương pháp điện hóa

Ảnh hưởng của các thông số chế tạo đầu vào gồm nồng độ chất điện ly K_2CO_3 (M), cường độ điện áp (V) và thời gian điện hóa (phút) đến đặc trưng của vật liệu GO được chúng tôi

khảo sát theo các tỷ lệ như trình bày trong bảng 1.

Bảng 1. Các thông số khảo sát chế tạo vật liệu GO

STT	Thông số thay đổi		
	Nồng độ K_2CO_3 (M)	Điện áp điện hóa (V)	Thời gian điện hóa (Phút)
1	0,02	3	30
2	0,04	6	60
3	0,06	9	90
4	0,08	12	120
5	0,10	15	150

2.3. Khảo sát đặc trưng tính chất của vật liệu GO

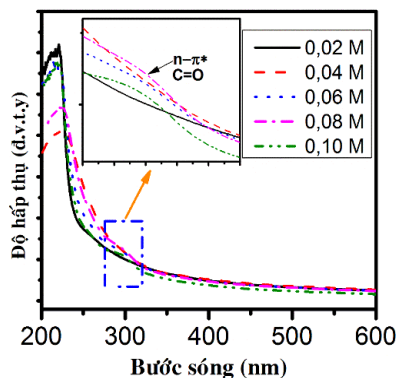
Đặc trưng tính chất của vật liệu GO được khảo sát sử dụng các phương pháp: phép đo nhiễu xạ tia X (XRD, Bruker D5005, sử dụng bức xạ Cu $K\alpha$ ($\lambda = 0,154$ nm)), phương pháp hiển vi điện tử quét (SEM, JEOL model 6500), phép đo phổ hồng ngoại biến đổi Fourier (FTIR, Shimadzu/FTIR Affinity - 1S), quang phổ Raman (MacroRAM Horiba/Mỹ) và quang phổ hấp thụ nguyên tử khả kiến (UV-vis, HP 8453).

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Ảnh hưởng của các thông số chế tạo

Sự tạo thành GO có thể được quan sát thông qua việc phân tích phổ UV-vis của mẫu thông qua xác định sự hình thành 2 vùng hấp thụ đặc trưng với đỉnh hấp thụ ở khoảng bước sóng 220-236 nm tương ứng với chuyển mức $\pi-\pi^*$ đặc trưng cho liên kết C=C và một bờ hấp thụ ở 290-300 nm tương ứng với chuyển mức $n-\pi^*$ đặc trưng cho liên kết C=O [6]. Hình 2 trình bày phổ UV-vis của các mẫu thay đổi nồng độ dung dịch chất điện ly K_2CO_3 (0,02 M, 0,04 M, 0,06 M, 0,08 M và 0,10 M) được đặt trong điện áp 9 V, thời gian điện hóa 90

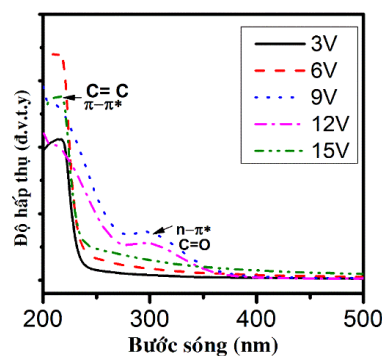
phút. Kết quả cho thấy, ở nồng độ chất điện ly thấp, có sự xuất hiện của đỉnh hấp thụ cực đại ở bước sóng 230 nm do chuyển mức $\pi-\pi^*$ của liên kết C=C trong cấu trúc vòng thơm. Chuyển mức $n-\pi^*$ đặc trưng cho liên kết C=O không quan sát thấy ở điều kiện này. Tuy nhiên, ở các dải nồng độ K_2CO_3 cao hơn (từ 0,06 M – 0,10 M), đã quan sát thấy sự xuất hiện của bờ hấp thụ trong khoảng ~280-320 nm, do sự tạo thành liên kết C=O. Điều này cho thấy đã có sự tạo thành và ra tăng nồng độ của GO trong dung dịch điện ly, mặc dù nồng độ GO tạo thành vẫn ở mức thấp. Các chuyển mức $\pi-\pi^*$ và $n-\pi^*$ quan sát tăng nhanh theo nồng độ K_2CO_3 và đạt cực đại ở nồng độ 0,08 M rồi giảm xuống khi nồng độ tiếp tục tăng lên 0,1 M.



Hình 2. Phổ UV-vis của các mẫu thay đổi nồng độ chất điện ly

Việc thay đổi cường độ điện áp như kết quả chỉ ra trong hình 3 cho thấy, cường độ điện áp có ảnh hưởng lớn đến việc thúc đẩy quá trình bóc tách các lớp graphene từ điện cực graphite và oxy hóa chúng để tạo thành GO. Với các giá trị điện áp khảo sát khác nhau (3 V, 6 V, 9 V, 12 V và 15 V), nồng độ K_2CO_3 là 0,08 M trong thời gian điện hóa 90 phút đã cho thấy sự hình thành sắc nét các đỉnh hấp thụ cực đại, đặc biệt là vùng hấp thụ ở 280-320 nm do chuyển mức $n-\pi^*$ đặc trưng cho liên kết C=O. Tuy nhiên, khi tăng cường độ điện áp, cường độ hấp thụ ở vùng 280-320 bị suy giảm ở 12

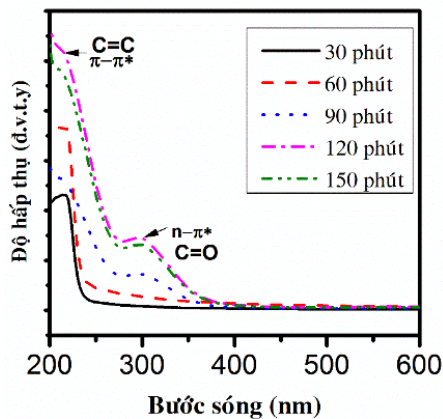
V và gần như biến mất ở 15 V. Điều này có thể là do các nhóm chức chứa oxy bị loại bỏ ở giá trị điện áp cao. Ngoài ra, điện áp cao cũng có thể là nguyên nhân làm cho quá trình bóc tách xảy ra nhanh hơn, đột ngột hơn dẫn đến hiệu suất của quá trình oxy hóa khử bị giảm [5][6]. Do đó, điện áp ở giá trị 9 V được lựa chọn làm giá trị thích hợp cho các nghiên cứu tiếp theo.



Hình 3. Phổ UV-vis của các mẫu eGO thay đổi điện áp

Bên cạnh các thông số đầu vào là nồng độ K_2CO_3 (0,08 M), điện áp (9 V), thời gian điện hóa cũng là một trong những yếu tố quan trọng giúp tối ưu sản lượng GO tạo thành hướng. Trong nghiên cứu này, chúng tôi sử dụng dải thời gian từ 30 phút đến 150 phút để khảo sát ảnh hưởng của thông số thời gian đến quá trình chế tạo GO. Như kết quả chỉ ra trong hình 4 cho thấy, chỉ sau 30 phút điện hoá, quan sát qua phổ UV-vis đã cho thấy sự xuất hiện rõ nét của đỉnh hấp thụ cực đại ở 230 nm do chuyển mức $\pi-\pi^*$ của liên kết C=C trong cấu trúc vòng thơm. Đỉnh hấp thụ này có cường độ và độ sắc nét được quan sát rõ hơn ở điều kiện điện hóa dài hơn. Tại vùng hấp thụ ở khoảng 280-320 nm do chuyển mức $n-\pi^*$ đặc trưng cho liên kết C=O, chỉ có thể quan sát rõ hơn với cường độ sắc nét hơn sau 90 phút điện hoá. Đồng thời, ở các giá trị thời gian điện hóa 120 phút và 150 phút, xuất hiện đỉnh hấp thụ cực đại ở giá trị 300 nm với cường độ lớn và giá trị gần tương đương nhau.

Điều này cho thấy, nồng độ của GO được tạo thành lớn và đạt cực đại sau khoảng thời gian từ 120-150 phút. So sánh và tối ưu các giá trị thu được, chúng tôi lựa chọn 120 phút là điều kiện thời gian điện hóa thích hợp cho chế tạo GO theo phương pháp điện hoá.



Hình 4. Phổ UV-vis của các mẫu GO thay đổi thời gian điện hóa

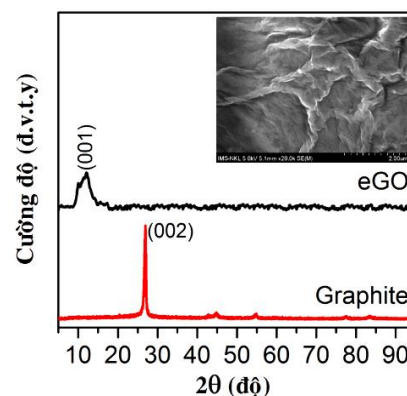
Tổng hợp các phân tích trên cho thấy, hiệu suất của quá trình bóc tách tạo thành GO từ điện cực graphite chịu ảnh hưởng lớn bởi các thông số công nghệ đầu vào. Việc kiểm soát tốt các yếu tố công nghệ đầu vào sẽ giúp kiểm soát tốt chất lượng cũng như sản lượng GO tạo thành.

3.2. Khảo sát đặc trưng của vật liệu GO

Đặc trưng cấu trúc của vật liệu GO chế tạo được được khảo sát bởi phép phân tích nhiễu xạ tia X. Hình 5 chỉ ra giản đồ nhiễu xạ tia X của vật liệu GO chế tạo theo phương pháp điện hóa và vật liệu graphite (tách từ điện cực graphite sử dụng cho nghiên cứu này). Kết quả cho thấy, mẫu graphite tách từ điện cực có đỉnh nhiễu xạ đặc trưng tại khoảng $2\theta=26^\circ$ tương ứng với mặt tinh thể (002) trong cấu trúc mạng tinh thể của graphite [6]. Cường độ của đỉnh nhiễu xạ tương đối lớn và sắc nét. Điều này cho thấy điện cực graphite có độ tinh khiết cao. Tính toán từ đỉnh nhiễu xạ (002) theo định luật Bragg ($n\lambda = 2d \cdot \sin$) ta được khoảng

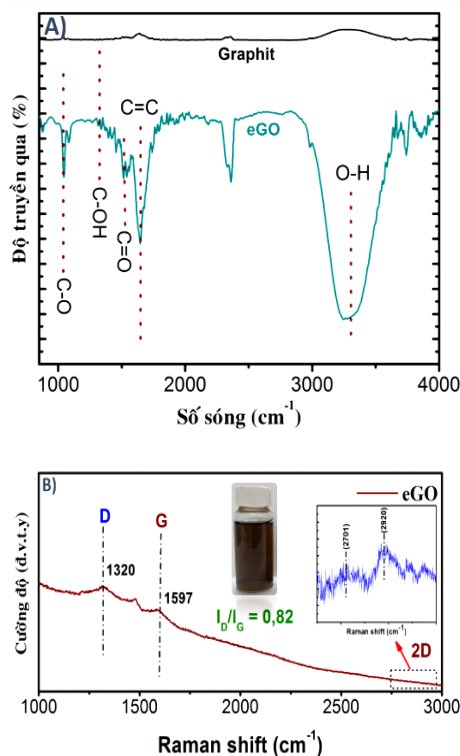
cách giữa hai mặt phẳng mạng liền kề của mẫu graphite là 0,334 nm. Quan sát phổ nhiễu xạ tia X của mẫu GO cho thấy, đỉnh nhiễu xạ đặc trưng của mẫu graphite đã bị biến mất và có sự xuất hiện của đỉnh nhiễu xạ mới tại vị trí $2\theta=10,8^\circ$ tương ứng với mặt phẳng (001) đặc trưng của GO do sự dịch đỉnh nhiễu xạ từ vị trí 26° . Tính toán từ đỉnh nhiễu xạ (001) theo định luật Bragg ($n\lambda = 2d \cdot \sin$) ta được khoảng cách giữa hai mặt phẳng mạng liền kề của mẫu GO là 0,82 nm lớn hơn khoảng 4,5 lần so với mẫu graphite (0,334 nm). Điều này cho thấy đã có sự hình thành các nhóm chức chứa oxy xen kẽ vào cấu trúc mạng nền của graphite dẫn đến làm tăng khoảng cách giữa các lớp [5][7]. Theo công thức Debye-Scherrer, kích thước tinh thể trung bình từ đỉnh nhiễu xạ này được tính toán vào khoảng 4,3 nm. Do đó, số lớp của GO tính được vào khoảng 5-6 lớp.

Bên cạnh đó, kết quả phân tích ảnh SEM của vật liệu GO (hình chèn nhỏ trong hình 5) đã chỉ ra hình thái bề mặt của vật liệu chế tạo được. Vật liệu GO có hình thái bề mặt dạng màng mỏng, cấu trúc thành từng lớp rõ rệt do quá trình tách lớp và oxy hóa trong quá trình điện hoá. Các kết quả này một lần nữa khẳng định đã chế tạo thành công vật liệu GO với cấu trúc tấm 2D. Quan sát từ ảnh SEM có thể thấy rằng kích thước các tấm GO thu được lên tới vài micromet.



Hình 5. Giản đồ nhiễu xạ tia X của vật liệu GO

Để xác nhận rõ hơn sự hình thành các nhóm chức đặc trưng cũng như đánh giá độ dày của các lớp GO, phép đo phổ hồng ngoại biến đổi Fourier (FTIR) và quang phổ Raman đã được sử dụng như kết quả đưa ra trong hình 6. Có thể thấy rằng, phổ FTIR của mẫu GO chế tạo được (hình 6(A)) so với mẫu graphite ban đầu cho thấy có sự xuất hiện của các dao động đặc trưng cho các liên kết của các nhóm chức. Tại 3300 cm^{-1} tương ứng với dao động của liên kết O-H của nhóm hydroxyl. Tại 1637 cm^{-1} tương ứng với dao động kéo giãn của liên kết C=C trong cấu trúc vòng thơm của mạng nền GO [5]. Tại vị trí 1571 cm^{-1} tương ứng với dao động của liên kết C=O. Dao động tại vị trí 1226 cm^{-1} được gán cho nhóm C-OH [2]. Tại 1089 cm^{-1} có liên quan đến dao động C-O [8]. Việc xuất hiện dao động của các liên kết đặc trưng đã cho thấy sự hình thành các nhóm chức chứa oxy trong cấu trúc của GO.



Hình 6. Phổ FTIR (A) và phổ Raman (B) của vật liệu GO

Hình 6(B) trình bày phổ raman của mẫu GO. Kết quả quan sát cho thấy có sự tồn tại của 3 đỉnh đặc trưng gồm đỉnh D, G và 2D tương ứng với cường độ 1320 cm^{-1} , 1597 cm^{-1} và 2701 cm^{-1} . Trong quang phổ Raman, đỉnh D đặc trưng cho khuyết tật của mạng tinh thể. Đỉnh G tương ứng với dao động E_{2g} của các nguyên tử carbon lai hóa sp². Khi quá trình oxy hóa từ graphite thành GO, xảy ra sự đứt gãy liên kết đôi C=C, dẫn đến việc tạo ra cacbon lai hóa sp³ [5]. Từ các phân tích trên, chúng tôi xác định được một số thông số đặc trưng của vật liệu eGO chế tạo được như sau: số lớp nguyên tử vào khoảng 5-6 lớp, khoảng cách giữa các lớp khoảng 0,82 nm, tỷ lệ $I_D/I_G = 0,82$. Tỷ lệ I_D/I_G thu được khá phù hợp với một số các công bố gần đây về chế tạo GO [2][5].

4. KẾT LUẬN

Trong nghiên cứu này, chúng tôi đã chế tạo thành công vật liệu GO theo phương pháp điện hóa từ điện cực graphite, sử dụng chất điện ly K₂CO₃. Việc thay đổi các thông số công nghệ đầu vào như nồng độ K₂CO₃, điện áp, thời gian điện hóa có ảnh hưởng lớn đến đặc trưng tính chất của vật liệu GO thu được. Tại các điều kiện nồng độ K₂CO₃ 0,08 M, điện áp 9 V trong thời gian 120 phút, các tấm GO được bóc tách có chất lượng tốt nhất, chứa nhiều nhóm chức oxy trên bề mặt, số lớp nguyên tử vào khoảng 5-6 lớp, khoảng cách giữa các lớp khoảng 0,82 nm, tỷ lệ $I_D/I_G = 0,82$ với kích thước các tấm lên tới vài micromét. Các kết quả thu được cho thấy một cách tiếp cận xanh trong tổng hợp vật liệu GO giúp làm chủ được nguồn nguyên liệu trong nước. Bên cạnh đó, công nghệ đề xuất là một phương pháp đơn giản, chi phí thấp, thân thiện với môi trường và dễ dàng nâng cấp quy mô sản xuất.

LỜI CẢM ƠN

Công trình được tài trợ bởi Bộ Khoa học và Công

nghệ thông qua Đề tài độc lập cấp quốc gia thuộc
Chương trình phát triển Vật lý Việt Nam giai đoạn
2015-2020 (mã số ĐTĐLCN.17/19).

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] F. Pendolino and N. Armata, *Graphene Oxide in Environmental Remediation Process*, vol. 7. 2017.
- [2] N. Kumar and V.C. Srivastava, "Simple Synthesis of Large Graphene Oxide Sheets via Electrochemical Method Coupled with Oxidation Process," *ACS Omega*, vol. 3, no. 8, pp. 10233–10242, Aug. 2018, doi: 10.1021/acsomega.8b01283.
- [3] A.T. Smith, A.M. LaChance, S. Zeng, B. Liu, and L. Sun, "Synthesis, properties, and applications of graphene oxide/reduced graphene oxide and their nanocomposites," *Nano Mater. Sci.*, vol. 1, no. 1, pp. 31–47, Mar. 2019, doi: 10.1016/j.nanoms.2019.02.004.
- [4] M. Sevilla, G. A. Ferrero, and A. B. Fuertes, "Aqueous Dispersions of Graphene from Electrochemically Exfoliated Graphite," *Chem.-A Eur. J.*, vol. 22, no. 48, pp. 17351–17358, 2016, doi: 10.1002/chem.201603321.
- [5] B. Gurzęda and P. Krawczyk, "Electrochemical formation of graphite oxide from the mixture composed of sulfuric and nitric acids," *Electrochim. Acta*, vol. 310, pp. 96–103, 2019, doi: 10.1016/j.electacta.2019.04.088.
- [6] K. Kakaei and K. Hasanpour, "Synthesis of graphene oxide nanosheets by electrochemical exfoliation of graphite in cetyltrimethylammonium bromide and its application for oxygen reduction," *J. Mater. Chem. A*, vol. 2, no. 37, p. 15428, Jul. 2014, doi: 10.1039/C4TA03026E.
- [7] X. Wang and L. Zhang, "Green and facile production of high-quality graphene from graphite by the combination of hydroxyl radicals and electrical exfoliation in different electrolyte systems," *RSC Adv.*, vol. 9, no. 7, pp. 3693–3703, 2019, doi: 10.1039/c8ra09752f.
- [8] M. Goodarzi, G. Pircheraghi, and H. A. Khonakdar, "Tailoring the graphene polarity through the facile and one-step electrochemical exfoliation in low concentration of exfoliation agents," *FlatChem*, vol. 22, p. 100181, 2020, doi: 10.1016/j.flatc.2020.100181.

Thông tin liên hệ: **Lê Anh Tuấn**

Điện thoại: 0916366088 - Email: tuan.leanh@phenikaa-uni.edu.vn
Viện nghiên cứu nano, Trường Đại học Phenikaa

Hoàng Văn Tuấn

Điện thoại: 0904567239 - Email: tuan.hoangvan@phenikaa-uni.edu.vn
Viện nghiên cứu nano, Trường Đại học Phenikaa.

