



## Письма по химической физике

домашняя страница журнала: [www.elsevier.com/locate/cplett](http://www.elsevier.com/locate/cplett)



Исследовательская работа

# Роль кислородной функциональности в эволюции зонной структуры и проводимости восстановленного оксида графена



Раджарши Рой а, ум. 2, Ранджит Тапа б, 2, Субхик Чакрабарти с, Арунава Джха d, 1, Приянка Р. Мидья d, Э. Матан Кумар С, Кальян К. Чаттопадхъяй а, д,\*

лаборатория тонких пленок и нанонауки физического факультета Джадавпурского университета, Калькутта 700032, Индия  
b Исследовательский институт SRM и факультет физики и нанотехнологий, Университет SRM, Каттанкулатур  
603203, Тамилнад, Индия с Департамент материаловедения Индийской ассоциации развития науки, Джадавпур, Калькутта  
700032, Индия Школа материаловедения и нанотехнологий d, Университет Джадавпур, Калькутта 700032, Индия

### АРТИКЛЕИНФО

История статьи:  
Получено 30 декабря 2016 г. В окончательной  
форме 28 марта 2017 г.  
Доступно онлайн 29 марта 2017 г.

Ключевые слова:  
Оксид графена  
Зонная структура  
DFT

Перенос

### АБСТРАКТ

Здесь мы сообщаем о структурных и электротранспортных свойствах восстановленного оксида графена в зависимости от конфигурации кислородных связей. Мы обнаружили, что в основном функциональные эпоксидные ( $\text{C}-\text{O}-\text{C}$ ) и карбонильные ( $\text{C}=\text{O}$ ) группы остаются в качестве основных остаточных компонентов после восстановления с использованием трех различных восстановителей. Мы рассчитайте зонную структуру в присутствии эпоксидных и карбонильных групп и дефектов. Наконец, рассчитаем теоретическую подвижность зон и обнаружим, что она меньше для системы карбонил с эпоксидной смолой. Мы соотносим искажение линейной дисперсии и открытие запрещенной зоны в точке K с проводимостью для различных графеновых систем в присутствии кислородных фрагментов.

© 2017 Опубликовано Elsevier B.V.

### 1. Введение

Графен находится в центре внимания в области материаловедения наука и нанотехнологии с момента его открытия в 2004 году [1]. Он имеет зарекомендовал себя как материал мечты для нанотехнологов на протяжении многие годы демонстрировал все виды квантовой электроники, оптической и механические свойства, заключенные в одном материале [1-3]. На протяжении многих лет основной проблемой была настройка уникального электронных свойств графена в индивидуальной конфигурации для конкретных применений устройств. Однако его низкий выход препятствовал тем применением, для которых требовался объем материала, и поэтому химический аналог графена, широко известный как "Восстановленный гра-оксид фенола (RGO)", стал популярным в последние годы [4]. Он предназначен для следующего отметить, что механизм массового химического синтеза RGO выдает некоторые важные квантово-релятивистские электронные свойства, которые являются синонимами монослоистого графена [1]. Следовательно, это один из материалов, проводимость которого может сильно варьироваться в зависимости от различных типов синтеза и восстановительных механизмов задействованные механизмы [5-11]. Структурные свойства, присущие RGO, регулируют его электрическое, тепловое или механическое поведение. Для

относительно бездефектный RGO, он может обладать высокой проводимостью на основе межчастичных взаимодействий и, как известно, проявляется в основном проводимость p-типа или неполярная при подходящих условиях [5,10]. С этой целью было проведено надлежащее восстановление оксида графена в течение многих лет проводилось много полевых исследований, чтобы понять какой процент от  $s^{p^2}$  характер восстановления может быть получен и как будет выглядеть возможная восстановленная структура для достижения высокой электропроводности, но без ущерба для массового выхода. Хотя в последнее время появилось много сообщений, экспериментально подтверждающих определение степени извлечения RGO из GO и прогнозирование их структуры с помощью известных экспериментальных инструментов и электропроводности измерения [5-13], но мало что известно об их теории эволюция зонной структуры в присутствии дефектов и оксигенации генерируемые группы.

В этой работе мы сообщаем о прототипах известных методов восстановления [5-9] перехода к RGO в трех дискретных условиях восстановления [Гидразингидрат и аммиак обозначаются как (НН), Боро-Гидрид натрия ( $\text{NaBH}_4$ ) с конц. Серная кислота, обозначаемая как (SBH-SA) и двойное соединение. Серная кислота (SA-DC)]. Далее следует номер измерения температуры, тока и напряжения восстановленного RGO образцы для анализа того, как влияние остаточного кислорода функционирует связи и дефекты влияют на проводимость. Наши анализы также основаны на ранее известных экспериментальных инструментах для мониторинга структуры и состава образцов с использованием полевой эмиссионной сканирующей электронной микроскопии (FESEM), Просвечивающая электронная микроскопия высокого разрешения (HRTEM),

\* Автора-корреспондента по адресу: Лаборатория тонких пленок и нанонауки, кафедра Физика, Джадавпурский университет, Калькутта 700032, Индия.

Адрес электронной почты: [kalyan\\_chattopadhyay@yahoo.com](mailto:kalyan_chattopadhyay@yahoo.com) (K.K. Чаттопадхъяй).

1 Настоящий адрес: Инженерно-технологический колледж Святого Фомы, Даймонд, 4 Харбор-роуд, Калькутта 700023, Индия.

2 Эти авторы внесли равный вклад в работу.

Рентгеновская фотоэлектронная спектроскопия после восстановления. Наконец, мы наносим на карту эволюцию зонной структуры в RGO при различных функциональных возможностях (содержание кислорода и дефекты), используя информацию из наших экспериментальный анализ и сравнение их с первичным графеном.

## 2. Процедура эксперимента

### 2.1. Получение оксида графита методом Хаммера

Оксид графита (GO) был синтезирован методом Хаммера [14,15]. Исходными материалами являются коммерчески доступный графит порошок (приобретается у Sigma-Aldrich) (1 г), нитрат натрия (1 г) и перманганат калия (6 г). Чистый графит и нитрат натрия смешивали с конс. серная кислота (46 мл) (98%) надлежащим образом при комнатной температуре и перемешивали в течение 10-15 мин. Затем перманганат калия ( $\text{KMnO}_4$ ) медленно добавляли к предварительно обрабатывают раствор при интенсивном перемешивании в течение 1 ч 20 мин на ледяной бане. Температуру поддерживали около  $0^\circ\text{C}$  при добавлении  $\text{KMnO}_4$  к смеси. Смесь перемешивали еще в течение 1 часа, чтобы все компоненты перемешались должным образом предшественники. Затем раствор снимали с ледяной бани и нагревали до  $50\text{-}60^\circ\text{C}$  в течение 1 ч 20 мин без перемешивания

с последующим разбавлением обычной водой (80 мл). Поскольку добавление воды в концентрированную кислоту приводит к выделению большого количества тепла, процесс проводили, пока из смеси не исчезло все шипение. отсеивают. Смесь снова перемешивают в течение 1 часа и дополнительно разбавляют 200 мл питьевой воды. После этого добавляют,  $\text{H}_2\text{O}_2$  (30%, 6 мл) в смесь. При добавлении смесь приобрела желтый цвет. После охлаждения смесь отфильтровывали и собирали, а затем промывали обычной водой (200 мл) для удаления ионов металлов. Процедуру продолжали, повторяя несколько раз до достижения pH раствора становился нейтральным по мере того, как раствор приобретал коричневую текстуру. Наконец, раствор отшелушивали в течение 1 часа с помощью рупорного зонда мощностью 250 Вт iicator с последующим центрифугированием в течение 10 мин при 5000 об/мин для надлежащего отшелушивания и сбор надосадочной жидкости.

### 2.2. Восстановление оксида графена гидразингидратом и аммиаком (НН)

При этой типичной процедуре сначала вносят 5 мл отшелущенного раствора GO с дозировкой 1 мг/мл добавляли к 5 мл питьевой воды в ванне soni- катор (40 Вт) до тех пор, пока раствор не перемешается должным образом. Затем аммоний гидроксид ( $\text{NH}_4\text{OH}$ ) (35 мкл) и гидразингидрат  $\text{N}_2\text{H}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  (5 мкл) (80%) добавляли к предварительно обработанным 10 мл раствора GO &

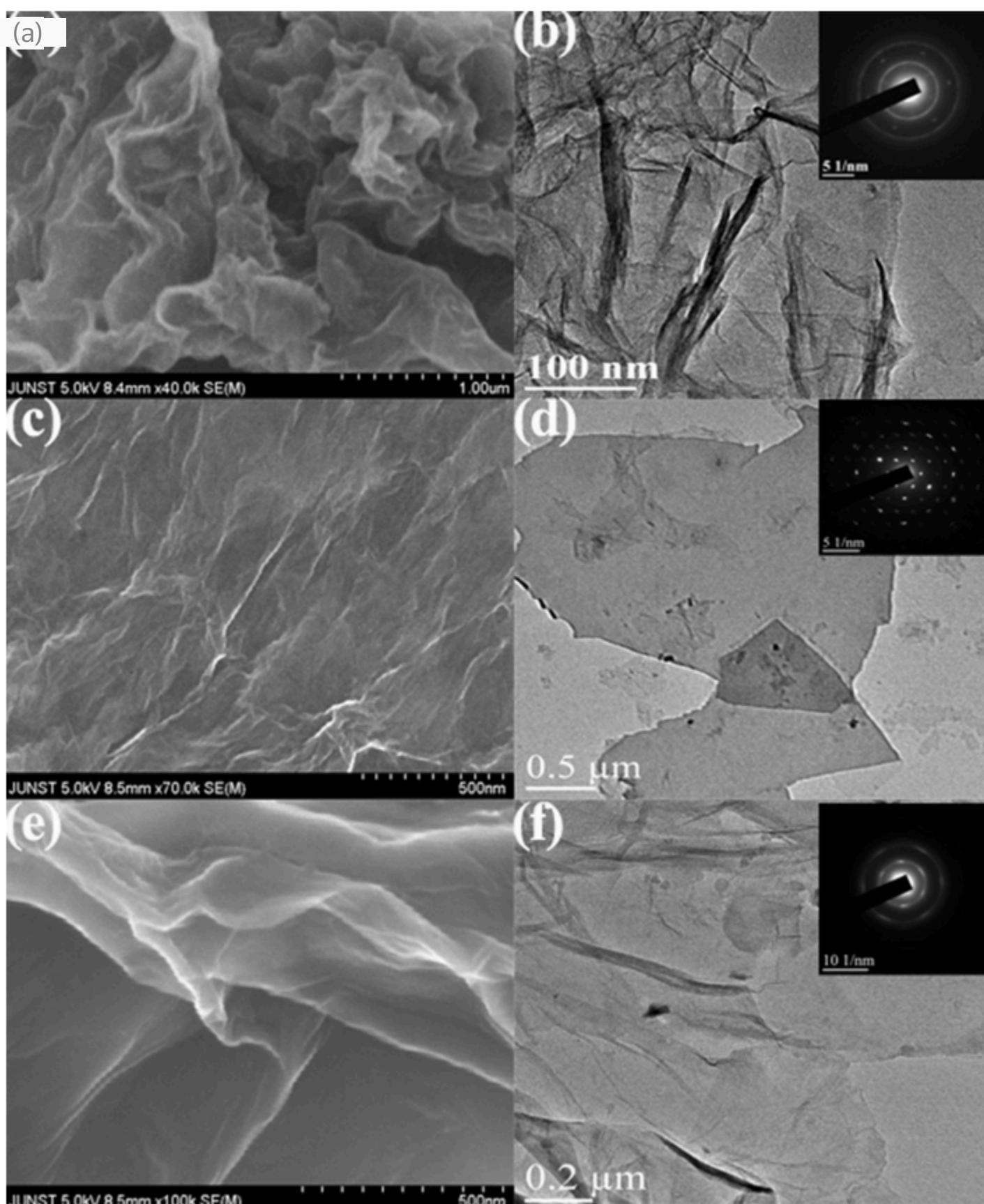


Рис. 1. Изображения FESEM и HRTEM образцов RGO, восстановленных (а и б) борогидратом натрия и конц. Серной кислотой (SBH-SA). (с и д) гидразингидрат и аммиак (НН). (е и ф) Двойное соединение. серная кислота (SA-DC). На вставке (б, д и ф) показан шестиугольный рисунок SAED на образцах RGO, подготовленных аз.

щательно перемешивают в течение 10-15 минут при комнатной температуре. Затем смесь нагревали до 90°C на водяной бане в течение 45 минут при постоянном перемешивании. В конце концов. Растворная смесь стала темной что указывает на завершение восстановления. Был собран окончательный образец и использован для последующей характеристики [5,8,9].

### 2.3. Восстановление оксида графена боргидридом натрия и др. серная кислота (SBH-SA)

Этот метод состоит из двух этапов. Сначала восстанавливают боргидридом натрия ( $\text{NaBH}_4$ ) с помощью conc (21 мМ) с последующим дегидратацией с помощью conc. серная кислота ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) [6,9]. Сначала (100 мг) тщательно смешивали со 100 мл воды и перемешивали при комнатной температуре в течение 10-15 мин. Затем медленно добавляли  $\text{NaBH}_4$  к предварительно обработанному раствору и перемешивали еще 20 мин, пока смесь выдерживали при температуре 80°C в течение 1 часа при постоянном перемешивании. В конце продукт фильтровали и промывали обычной водой несколько раз, пока pH не достигнет 8-9. Затем раствор высушивали до получения частично восстановленного GO. После этого концентрировали  $\text{H}_2\text{SO}_4$  (100 мл) добавляли к собранному частично восстановленному GO и перемешивали в течение 1 ч для надлежащего перемешивания, затем кипятили в течение 12 ч при 120°C. Наконец, продукт собирали и промывали холодной водой для нескольких раз для удаления избытка кислот, пока pH раствора не станет нейтральным.

### 2.4. Восстановление оксида графена двойной концентрацией. серная кислота (SA-DC)

В этом случае для восстановления была использована водная серная кислота GO для реакции раскрытия кольца. Оксид графена (GO) (100 мг) добавляли в воду (80 мл) и помещали смесь в ванночку ультразвуковой аппарат на 10-15 минут, пока смесь не будет должным образом перемешана.

Затем концентрированную серную кислоту [6] (98%) (5,56 мл) добавляли к воде достаточно, чтобы приготовить 1 М (100 мл) раствора  $\text{H}_2\text{SO}_4$ . Смесь смесь перемешивали при комнатной температуре в течение 1 дня. Продукт был собрали. Продукт частично восстановили. Затем черноватый продукт отфильтровали и промыли питьевой водой. pH проверили 6-7 на частично восстановленный GO. Процесс обезвоживания заключается в следующем. Высушенный продукт диспергирували в концентрированном  $\text{H}_2\text{SO}_4$  (100 мл) с использованием ультразвуковой ванны в течение 1 часа с последующим кипячением с обратным кипячением в течение 12 часов при 120°C. Конечный продукт высушивали и промывали с помощью Несколько раз опустите воду, пока pH не станет нейтральным.

### 3. Результаты и обсуждение

Из изображений FESEM, показанных на рис. 1, было обнаружено, что наш as подготовленные образцы состояли в основном из тонких и сморщеных листов, которые лежали друг на друге. На рис. 1 (а и в) показано изображение в образце было больше слоев, чем в образцах на рис. 1 (б). Это может быть связано с различиями в разной степени отслаивания увеличение и уменьшение среди образцов различных синтезированных RGO. На рис. 1 (d-f) изображения HRTEM вместе с SAED в показаны вставки для синтезированных RGO. В синтезированных материалах видны заметные морщины и складчатые области. SAED (дифракция электронов в выбранной области), показанная на вставке на каждом рисунке показана кольцевидная шестикратная гексагональная симметрия соответствует химическому графену [13]. Четкая дифракционная картина для всех образцов указывает на присутствие кристаллических графитовых доменов.

На рис. 2(а) показаны спектры комбинационного рассеяния различных RGO в подготовленном виде и образец GO. Все спектры для полос комбинационного рассеяния (D, G) представляют отличительные особенности, встречающиеся для  $s^{p2}$  углеродных наноструктур. Полоса G обычно относится к  $E_{2g}$

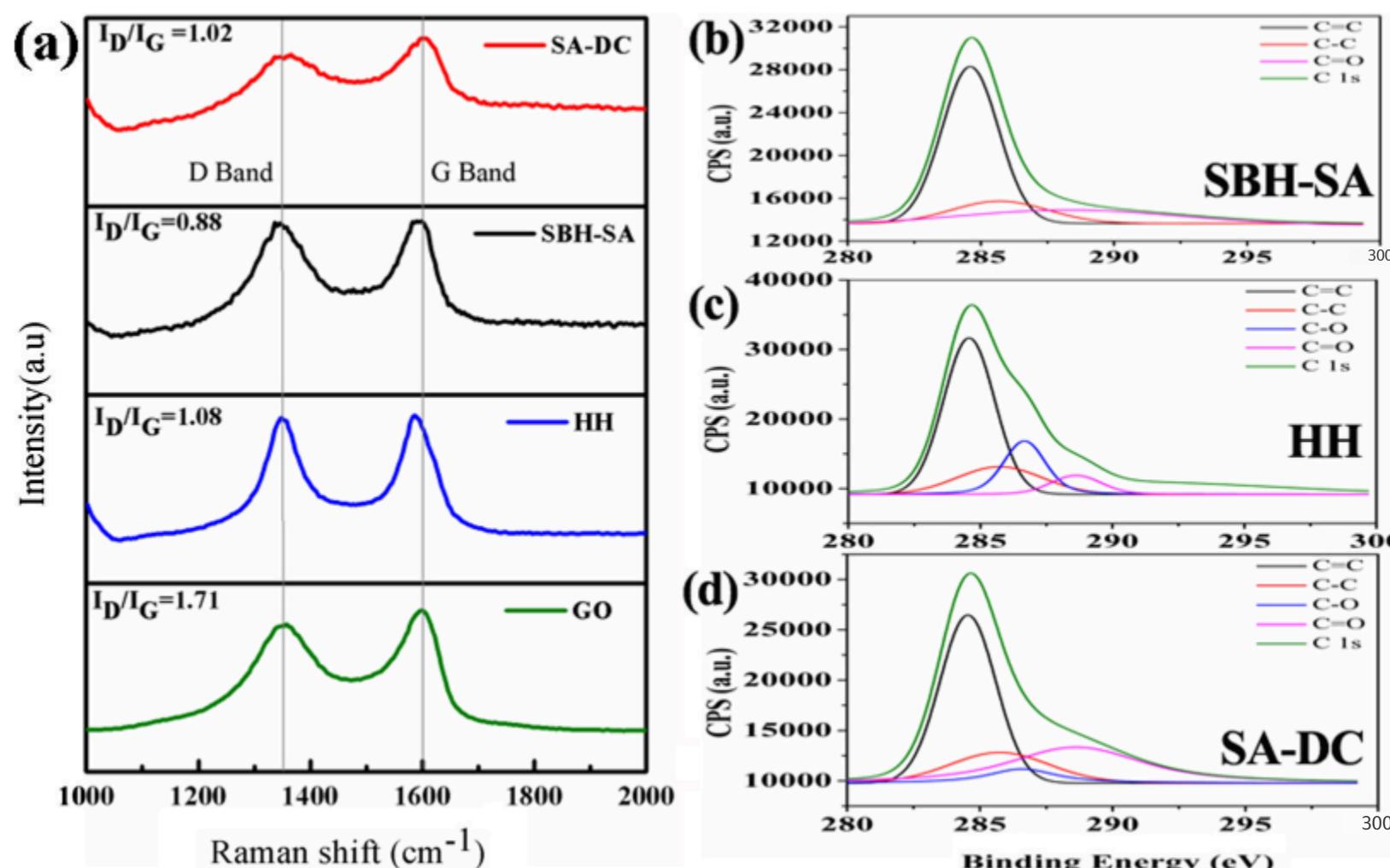


Рис. 2. (а) спектры комбинационного рассеяния света различных образцов GO и RGOs, подготовленных as. (б)-(д) Рентгеновские деконволютированные спектры C1s для RGO, уменьшенные с помощью HH, SA-DC и SBH-SA соответственно.

Таблица 1

Параметры, определяющие перенос различных образцов RGO, установлены на основе экспериментальных наблюдений.

Нет.	Образец	Сопротивление листа (МК/кв.м)	Ожидаемое. ширина запрещенной зоны (eV)
1...	SBH-SA	0.0015	2.14
2...	ЧЧ...	2.74	2.73
3...	SA-DC	1.5	2.52

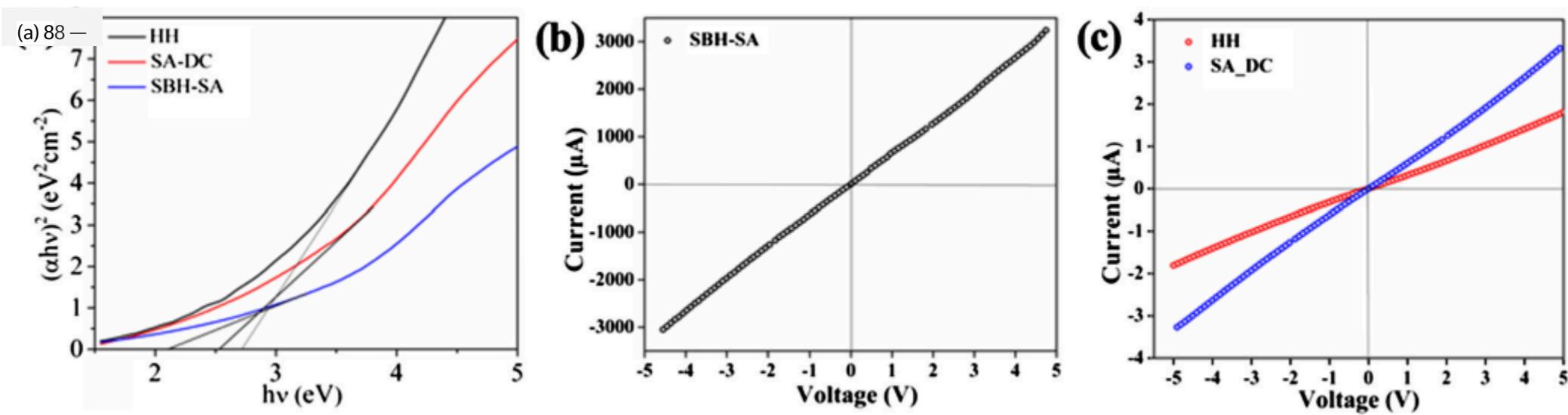


Рис. 3. (а) Рассчитанная экспериментальная ширина запрещенной зоны для всех образцов RGO. Вольт-амперные характеристики образцов RGO снижены в SBH-SA (б) HH и (в) SA-DC.

фонон атомов C ( $sp^2$ ), в то время как полоса D возникает из фонона с k-точкой дыхания с  $A_{1g}$  симметрия, которая связана с локальными дефектами. Структура может быть оценена с помощью [13]. Наблюдение три бортистых областей  $I_D / I_G$  дает оценку ароматичности и восстановления графитовых доменов из GO. Небольшое изменение отношения  $I_D / I_G$  может указывать на степень 'графитизации' [13]. Интенсивность отношения  $I_D / I_G$  было обнаружено, что RGO, уменьшенные с помощью SBH-SA, SA-DC и HH, составляют 0,88, 1,02 и 1,08 соответственно. Исходя из рамановского сдвига, это может быть сделано вывод, что уровень снижения варьировался для трех образцов RGO- по мере подготовки. Установлено, что  $I_D / I_G$  коэффициент для начального ПЕРЕХОДА составляет около 1,71. В настоящее время действительно наблюдается, что в некоторых случаях RGO сокращение приводит к увеличению коэффициента  $I_D / I_G$ , о чем сообщают многие в основных исследовательские группы [16,17]. Однако также видно, что  $I_D / I_G$  соотношение осталось неизменным или уменьшилось из-за различных механизмов сокращения [18,19]. Как уже упоминалось, мы наблюдали уменьшение  $I_D / I_G$  соотношения. Здесь стоит упомянуть, что мы рассмотрели соотношение площадей пиков D и G полос соответственно вместо амплитуды соотношение, поскольку мы наблюдаем, что в нашем случае изменение FWHM больше, чем изменение высоты пика в некоторых образцах [20,21]. Кроме того, мы рассчитываем

$$\text{ПЛОТНОСТЬ ДЕФЕКТОВ} \quad n_D = 1.13 \times 10^{11} \frac{I_D}{I_G} \quad \text{для всех выборок, как}$$

показано в таблице 1, и найдите, что это наименьшее значение соответствует SBH выборка и наибольшее значение для GO, поскольку рассеяние в D-полосе пропорционально числу плотности точечного дефекта и тесно связано с соотношением  $I_D / I_G$  [22]. Мы также рассчитываем размер домена нанокристалл-литов  $L_a$  учитывая точечные дефекты, разупорядоченность связей  $sp^2 / sp^3$  коэффициент и так далее в графен по формулировке, приведенной Кансадо и др.

$L_a = 2.4 \times 10^{-10} \lambda^{4/I_D}$  отношение площадей пиков вместо отношения амплитуд в качестве отношения площадей дает разницу- лор-результаты, поскольку FWHM (D) увеличивается намного больше, чем FWHM (G) для уменьшения  $L_a$  [20]. При расчете размера кристаллитов он составляет обнаружено, что она наименьшая для GO при 11,24 нм и наибольшая для RGO уменьшена SBH-SA при 21,84 нм, как показано в таблице 1. Это наблюдение уменьшение размера домена от RGO к GO также наблюдается Гангули и др. [23]. Относительное значение  $I_D / I_G$  обратно пропорционально к среднему размеру домена в кластерах  $sp^2$ . По мере увеличения при уменьшении это подтверждает, что образуются новые (или более) графитовые домены и количество кластеров увеличивается после уменьшения во всех выборках [17]. Основная важность размер домена и плотность дефектов таковы, что оба имеют прямую связь- зависят от электропроводности этих материалов и их изменений подвижности носителей [18]. Более того, мы видим, что пик G в GO слегка синий, смешанный в сторону более высокого волнового числа и более широкий, чем его уменьшенные аналоги, что указывает на значительное окисление. Красный смещение полосы G относительно GO, которое мы отчетливо наблюдаем в образцах HH и SA-DC, означает восстановление  $sp^2$  углеродной сетки в этих образцах [23].

На рис. 2 (а-с) показаны множественные деконволютированные области спектров C1s для RGO, уменьшенных на SBH-SA, HH и SA-DC соответственно. Для сам-

деконволюцией (Рис. 1а). Пик при 284,6 эВ и 285,7 эВ соответствует C=C и C—C, в то время как пик 288,6 эВ соответствует C=O (карбонил). В наших результатах нет заметного присутствия C—O—C для этого образца . Однако после декомпозиции наблюдаются четыре характерных пика объемность наблюдается для образца RGO, уменьшенного на HH, как показано на Рис. 1б. Пик при 284,7 эВ и 285,7 эВ возникает из-за наличия связей C=C и C—C, как и ожидалось, и дальнейшего вклада функциональных групп кислорода соответствует максимуму ~286,6 эВ для C—O—C (эпоксидная смола) и C=O (карбонил) ~288,6 эВ соответственно [5,9–10,24,25]. Для SA-DC мы наблюдаем наличие C=C и C—C связывается при (284,5 эВ) и (285,5 эВ) соответственно с дополнительным оксигенированные фрагменты из C—O—C (эпоксидной смолы) (286,6 эВ) и C=O (карбонил) ~ (288,6 эВ) аналогичен образцу, восстановленному HH. В этом контексте следует упомянуть, что все образцы были хорошо восстановлены соответствующими восстановителями, как это сделали мы из нашей предыдущей работы [24] было замечено, что, если GO не уменьшен что ж, C1s показывает заметный дублетный пик, состоящий из C=C / C—C, которые не наблюдались здесь ни в одном из образцов после восстановления. Затем мы рассчитываем соотношение C:O путем использования C=C и C—C как единый коэффициент в числите деленный на общее количество содержащих кислород соединений. Мы находим, что для HH соотношение равно (1,65), а для RGO (1,99) уменьшено на SA-DC. Но для SBH это соотношение довольно велико и составляет (2,79) по сравнению с другими образцами из-за значительно меньшего присутствия кислородсодержащих связей. Следовательно, можно сделать вывод, что среди всех SBH действовал как восстанавливающий агент для rGO.

На рис. 3 показана ширина запрещенной зоны и вольт-амперные характеристики всех образцы RGO приготовлены при комнатной температуре. Рассчитанное прямое значение запрещенной зоны для SBH-SA, SA-DC и HH и, как оказалось, составляет 2,14 эВ, 2,52 эВ и 2,73 эВ. Установлено, что вольт-амперные характеристики для всех образцов имеют омическую природу. Номинальный ток для RGO уменьшенный на HH и SA-DC оказался очень низким (1-10 нА). Как- всегда в случае образца RGO, уменьшенного на SBH-SA, наблюдается значительное увеличение тока порядка  $10^3$  по сравнению с другими образцами. Мы объясняем это значительное увеличение тока тем, что высокое соотношение C/O, как упоминалось ранее, означает в целом хорошее снижение RGO с использованием SBH-SA в качестве восстановителя.

В следующем разделе мы предприняли попытку понять свойство проводимости RGO, используя ab initio, рассчитанное зонные структуры в присутствии того же типа остаточных кислородных функций характеристики, полученные из наших экспериментальных результатов [26-28]. Оптимизированные структуры 5 × 5 суперячейки из графена и сор-зонные структуры, отвечающие требованиям, оцениваются с использованием обобщенного градиентного приближения (GGA), реализованного ab initio подход, показаны на рис. 3. Влияние на зонные структуры, обусловленное адсорбированными эпоксидной (C—O—C) и карбонильной (C=O) группами, аналогично анализировали в различных комбинациях. Чтобы увидеть влияние группы C=O на зонную структуру графена, был введен трехвакуантный дефект.-

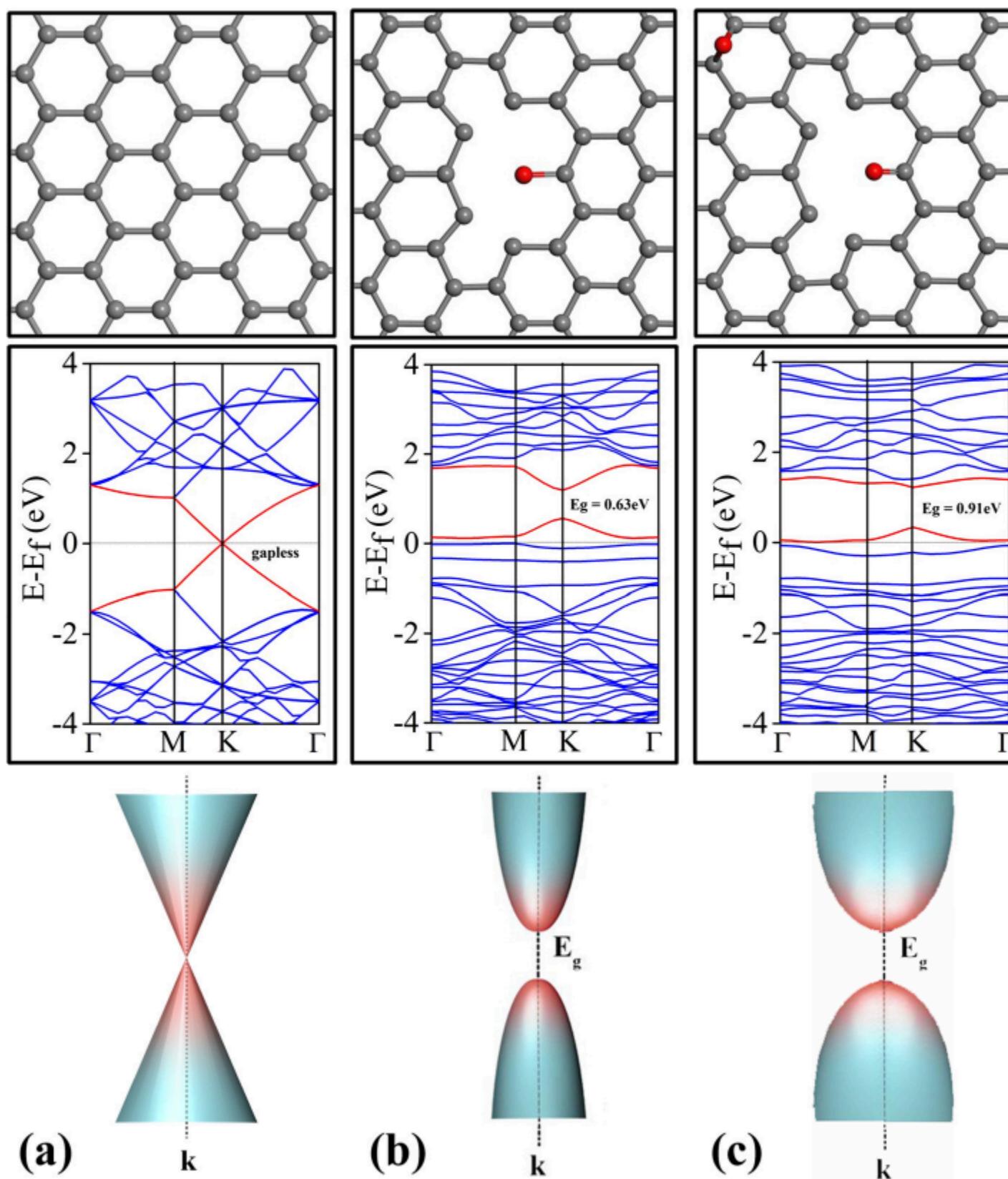


Рис. 4. Модель, рассчитанная зонная структура и схематическая визуализация дисперсий зон вокруг точки К (а) ( $5 \times 5$ ) суперячейки из чистого графена (б) С=О над трехвакансационной графен (RGO-1) и (с) С=О над трехвакансационным участком с адсорбированной эпоксидной смолой на поверхности (RGO-2).

получен путем удаления трех атомов С из основного  $sp^2$  связанный углеродный лист графена, и вводится атом кислорода для образования связи с одним из атомов углерода в области дефекта. Для Конфигурация С—О—С, атом кислорода был размещен на мостике сайт двух атомов углерода (положение подрешетки А и В) в гра- феновый слой. Расчетная энергия связи атома кислорода в конфигурации С—О—С и С=О составляют -2,3 эВ и -3,1 эВ соответственно . Заряд Малликена у атомов О с двойной связью (0,54 е) выше, чем у атома О с одинарной связью (0,44 е), что соответствует основная причина более высокого связывания С=О.

На рис. 4(а) показана зонная структура первичного графена. Как и ожидалось, для графена наблюдается типичная полуметаллическая природа следуя линейной зависимости энергии от импульса в точке К-. Однако ситуация становится более интересной, когда мы вводим в систему различные типы адсорбатов кислорода (С—О—С, С=О) в качестве дополнительных возмущений. Природа рассеяния полосы распространение вблизи точки К раскрывает полезную информацию о проводимости подвижность и концентрация носителей для графитовой системы. Сначала мы взяли примеры односвязанных адсорбатов кислорода на поверхности гра- фенола и выполнили расчеты зонной структуры. Мы рассмотрели три разные модели с 2, 3 и 8 одинарными связями атомы кислорода, адсорбируемые на мостиковом участке графенового листа. В

в каждом из случаев мы наблюдаем, что положение уровня Ферми находится внутри или чуть выше валентной зоны, что доказывает природу р-типа с небольшим расширением запрещенной зоны. Ширина запрещенной зоны немного увеличивается с увеличением числа одиночных связанных атомов кислорода с 2-3 до 8 (см. Дополнительную информацию, рис. S1). Однако наиболее аспект, на который следует обратить внимание, заключается в том, как дисперсии этих полос эволюционируют вокруг симметрии К-точки. Видно, что даже после открытия ширина запрещенной зоны, линейный характер СВМ (максимумы зоны проводимости) и ВВМ (минимумы валентной зоны) в точке К сохраняются, за исключением для системы из 8 односвязанных атомов кислорода, где полосы в К-точка почти плоская и линейное дисперсионное соотношение нарушено. Мы утверждаем, что это сохранение линейной дисперсии полосы в точке К напрямую связано с концентрацией носителей заряда и подвижностью материала и, таким образом, влияет на проводимость. Для дефектного листа (только с тремя вакансиями) мы обнаруживаем, что природа линейной дисперсии предопределенена в точке К, однако природа становится намного шире с увеличением запрещенной зоны при нанесении одной эпоксидной смолы (см. Дополнение Дополнительная информация, рис. S1). Только для С=О (карбонильной) разновидности прикрепленный поверх графенового листа с дефектом в виде трех вакансий, мы обнаруживаем, что линейная дисперсионная зависимость вокруг точки К нарушена, как показано на рис. 4 (б). Здесь полосы СВМ и ВВМ становятся шире и параболическими по своей природе с большим расширением запрещенной зоны.

На рис. 4 (c) мы рассмотрим более сложную модель и построим суперячейку — содержащую один C—O—C и один C = O над а дефектный лист графена для расчета зонной структуры. Отмечено, что ширина запрещенной зоны немного увеличилась с 0,63 эВ до 0,81 эВ с однократным добавлением эпоксидной смолы по сравнению с предыдущей системой (рис. 4b) со значительно более плоским параболическим распределением полосы персиция и расширение вокруг точки K, которые могут проявляться в дальнейшем уменьшении проводимости. Мы утверждаем, что проводимость- величина может заметно изменяться при незначительном увеличении запрещенной зоны, и характер рассеивания полосы вокруг точки K играет жизненно важную роль. В таких случаях подвижность и концентрация носителей могут быть низкими в графеноподобной системе, если нарушена симметрия линейной дисперсии полосы метрия вокруг точки K.

Чтобы подтвердить наши выводы *ab initio*, мы оцениваем теоретическую подвижность для двух структур (i) C = O (карбонильного) вида (SBH-SA аналог) присутствует, скрепленный поверх дефектного гра- типа с тремя вакансиями феновый лист, обозначенный как RGO-1, и (ii) один C—O—C (эпоксидный) и один C = O (аналог HH/SA-DC) поверх дефектного графена лист, обозначенный как RGO-2, см. рис. 4b и с для полной оптимизации структура с использованием полуклассического параболического приближения подход (Дополнительная информация) [28-31]. Получаем носитель мобильность RGO-2, примерно  $4.1 \times 10^4 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ S}^{-1}$  и  $1.08 \times 10^5 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ S}^{-1}$  для числа  $\pi$  и  $\pi^*$  диапазон соответственно. Носитель мобильность RGO-1, примерно  $4.4 \times 10^4 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ S}^{-1}$  и  $1.42 \times 10^5 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ S}^{-1}$  для полос  $\pi$  и  $\pi^*$  соответственно. Результаты инди- предположим, что как для  $\pi$ , так и для  $\pi^*$  диапазона подвижность носителей RGO-1 выше, чем у RGO-2. Это, в свою очередь, также подразумевает, что проводимость плотность ( $\sigma$ ) будет выше в RGO-1 (аналог SBH-SA), поскольку она напрямую пропорциональна подвижности и согласуется с нашими экспериментальными данными.

Таким образом, мы провели структурную характеристику и измерили перенос электрического напряжения при комнатной температуре для двух образцов RGO, синтезированных ас, с использованием двух отдельных восстановителей реагенты (боргидрид натрия с серной кислотой, двойная концентрация серы- гидразингидрат фуровой кислоты). В дальнейшем мы проводили измерения комнатной температуры IV и сопоставили электропроводность с присутствием остаточного кислорода в образцах. Кроме того, мы теоретически нанесли на карту эволюция структуры полос из-за присутствия различных остаточных функций кислорода с использованием анализа *ab initio*. Линейная полоса наблюдается сохранение дисперсности при однократном нанесении эпоксидной смолой- улучшение с небольшим открытием запрещенной зоны при изменении дисперсии полосы изменение от линейного к параболическому наблюдается по количеству эпоксидной смолы количество насадок увеличилось с более чем одного с увеличением расстояния между ними зазор. Наблюдается дисперсия от параболической к более параболической плоской полосе с увеличением запрещенной зоны при изменении функциональности поверхности от единственной карбонильной группы на дефектном графеновом листе к смешанной функциональной системе с присутствием как карбонильной, так и эпоксидной группы в соответствии с результатами эксперимента. Это также повлияло на теоретическую подвижность полосы. Мы утверждаем, что природа полосы дисперсия вокруг точки K играет ключевую роль в регулировании кон- пластичность RGO из-за изменений подвижности  $\pi$ - $\pi^*$  полос в присутствии различных остаточных компонентов кислорода и дефектов с незначительными изменениями запрещенной зоны.

#### Подтверждение

Один из авторов RR хотел бы поблагодарить Совет по научным и промышленным исследованиям (CSIR), Правительство министерство Индии за присуждение ему стипендии SRF во время выполнения этой работы. Авторы также хотели бы поблагодарить UGC за "Программу повышения квалификации университетов (UPEII)" и DST, правительство Индии, за финансовую поддержку. RT благодарим SRM University за предоставление суперкомпьютерного оборудования и финансовую поддержку.

#### Приложение А. Дополнительный материал

Сведения о характеристиках, первичные полосовые структуры с одиночным и наличие нескольких эпоксидных групп на поверхности графена и детали теоретических расчетов подвижности. Дополнительные данные связанные с этой статьей, можно найти в онлайн-версии по адресу <http://dx.doi.org/10.1016/j.cplett.2017.03.079>.

#### Список литературы

- [1] А.К. Гейм, Графен: состояние и перспективы, Наука 19 (2009) 1530-1534.
- [2] А.К. Гейм, К.С. Новоселов, Появление графена, Nat. Mater. 6 (2007) 183-191.
- [3] Ф. Швиц, Графеновые транзисторы, Нац. Нанотехнол. 5 (2010) 487-496.
- [4] О.К. Комpton, С.Б.Т. Нгуен, оксид графена, сильно восстановленный оксид графена, и графен: универсальные строительные блоки для материалов на основе углерода, небольшие 6 (2010) 711-723.
- [5] С. Станкович, Д.А. Дикин, Р. Пинер, К.М. Колхас, А. Кляйнхаммес, Ю. Цзя, Ю. Ву, С.Т. Нгуен, Р.С. Руфф, Синтез нанолистовых материалов на основе графена химическим путем восстановление расслоенного оксида графита, Углерод 45 (2007) 1558-1565.
- [6] Д. Ким, С.Дж. Янг, Ю.С. Ким, Х. Юнг, К.Р. Парк, Простой и экономичный восстановление оксида графита серной кислотой, Углерод 50 (2012) 3229-3232.
- [7] С. Парк, Дж. Ан, Дж.Р. Поттс, А. Веламаканни, С. Мурали, Р.С. Руфф, Гидразин- восстановление графита и оксида графена, Углерод 49 (2011) 3019-3023.
- [8] Д. Ли, М.Б. Мюллер, С. Гилье, Р.Б. Канер, Г.Г. Уоллес, Обрабатываемые водные дисперсии графеновых нанолистов, Нац. Нанотехнология. 3 (2008) 101-105.
- [9] Х.Дж. Шин, К.К. Ким, А. Бенаянд, С.М. Юн, Х.К. Пак, И.С. Юнг, М.Х. Джин, Х.К. Чжон, Дж.М. Ким, Дж.Я. Чой, Ю.Х. Ли, Эффективное восстановление оксида графита боргидрид натрия и его влияние на электропроводность, Совет. Функция. Матер. 19 (19) (2009) 1987-1992.
- [10] П.Г. Рен, Д.Х. Янь, Х.Джи, Т.Чен, З.М. Ли, Нанотехнологии 22 (2011) 055705. [11] С. Соме, Ю.Ким, Ю.Юн, Х.Ю, С.Ли, Ю.Пак, Х.Ли, Высококачественный восстановленный оксид графена с помощью двойного процесса химического восстановления и заживления, Научная статья 3 (2013) 1929.
- [12] К. Гомес-Наварро, Р.Т. Вейц, А.М. Биттнер, М. Сколари, А. Мьюз, М. Бургхард, К. Керн, Электронно-транспортные свойства отдельных химически восстановленных листов листы оксида графена, Nano Lett. 9 (2009) 2206.
- [13] К. Маттеви, Г. Эда, С. Аньоли, С. Миллер, К. Андре Мхоян, О. Челик, Д. Мастроджованни, Г. Граноцци, Э. Гарфункель, М. Човалла, Эволюция электрические, химические и структурные свойства прозрачных и проводящих материалов тонкие пленки графена, полученные химическим путем. Функция. Матер. 19 (2009) 2577-2583.
- [14] Л.Дж. Кот, Ф. Ким, Дж. Хуанг, сборка Ленгмюра-Бледжетта из одиночного оксида графита слои, Дж. Ам. Химический журнал. 131 (2009) 1043-1049.
- [15] У.С. Хаммерс, Р.Э. Оффеман, Получение оксида графита, J. Am. Chem. Soc. 80 (1958) 1339.
- [16] А.А. Дубайл, В.-Н. Су, А.Г. Тамират, К.-Дж. Пан, Б.А. Арагау, Х.-М. Чен, Б.-Дж. Хван, Синергетический эффект графена на массивах нанопроволок Cu2O в качестве высокоеффективного фотокатода с выделением водорода при расщеплении воды, J. Mater. Chem. A 2 (2014) 18383-18397; А. Амбрози, А. Бонанни, З. Софер, Дж.С. Кросс, М. Пумера, Электрохимия в химически модифицированные графены, Chem. Eur. J. 17 (2011) 10763-10770.
- [17] Г. Собон, Дж. Сотор, Дж. Ягелло, Р. Козински, М. Здроек, М. Холдински, П. Палетко, Дж. Богуславский, Л. Липинская, К.М. Абрамски, Оксид графена против восстановленного графена оксид в качестве насыщаемых поглотителей для волоконного лазера с пассивной синхронизацией мод, легированного Er, Вариант. Express 20 (2012) 19463-19473.
- [18] Гоки Эда, Маниш Чховалла, Химически полученный оксид графена: на пути ктонкопленочной электронике и оптоэлектронике большой площади, адв. матер. 22 (2010) 2392-2415.
- [19] В. Ли, Л. Уиттакер, К. Джей, К. Баруди, Д.А. Фишер, С. Банерджи, Крупномасштабный химически модифицированные графеновые пленки: электрофоретическое осаждение и определение характеристик методом мягкой рентгеновской спектроскопии поглощения, хим. Матер. 21 (2009) 3905-3916.
- [20] Андреа К. Феррари, рамановская спектроскопия графена: беспорядок, электрон-фононная связь, лагирующие и неадиабатические эффекты, твердотельное тело CommPhys. 143 (2007) 47-57.
- [21] Л.Г. Кансадо, К. Такаи, Т. Эноки, М. Эндо, Ю.А. Ким и др., Общее уравнение для определение размера кристаллитов La нанографита методом комбинационного рассеяния спектроскопия, Приложение. Физика. Lett. 88 (2006) 163106.
- [22] С. Гулпа, Э. Хайнцман, Дж. Ясински, Наноуглеродные гибриды на основе графена материалы и ультрадисперсный алмаз: исследование структуры и эволюция иерархических дефектов при электронно-лучевом облучении, Дж. Раман Спектроскопия. 46 (2015) 509-523.
- [23] Абхиджит Гангули, Сурбхи Шарма, Пагона Папаконстантину, Джереми Гамильтон, Исследование термического раскисления оксида графена с использованием Рентгеновская спектроскопия *in situ* с высоким разрешением, J. Phys. Химический состав C 115 (2011) 17009-17019.
- [24] У.Н. Майти, С. Майти, Т.П. Маджумдер, К.К. Чаттопадхьяй, Ультратонкий графен края на концах нанопроволоки: каскадный холодный катод с двухступенчатым возбуждением, нанотехнологии 22 (2011) 505703.
- [25] Р. Рой, А. Дж. Д. Сен, Д. Банерджи, К.К. Чаттопадхьяй, Уникальная квазивертикальная выравнивание листов RGO в приложенном неоднородном электрическом поле постоянного тока для улучшенная полевая эмиссия, J. Mater. Chem. C 36 (2014) 7608-7613.

- [26] М.Д. Сигалл, П.Дж.Д. Линдан, М.Дж. Проберт, К.Дж. Пикард, П.Дж. Хаснап, С.Дж. Кларк, М.С. Пейн, Моделирование на основе первых принципов: идеи, иллюстрации и кодекс CASTEP, J. Физика.: Обобщения. Вопрос 14 (2012) 2717-2744.
- [27] Д. Вандербильт, Мягкие самосогласованные псевдопотенциалы в обобщенном формализм собственных значений, физика. Rev. B 41 (1990) 7892-7895.
- [28] Дж.П. Пердью, К. Берк, М. Эрнзерхоф. Сделано обобщенное градиентное приближение простое, физика. Rev. Lett. 77 (1996) 3865-3868.
- [29] С. Брузzone, Г. Фиори, Ab-initio моделирование деформационных потенциалов и подвижность электронов в химически модифицированном графене и двумерных гексагональный нитрид бора, приложение. Физика. Lett. 99 (2011) 2108.
- [30] С. Такаги, А. Ториуми, М. Ивасе, Х. Танго Об универсальности инверсионного слоя подвижность в МОП-транзисторах Si: часть I-влияние концентрации примесей в подложке, Перевод IEEE. Электрон. Устройства 41 (1994) 2357-2362.
- [31] Дж. Бардин, У. Шокли, Деформационные потенциалы и подвижности в неполярных кристаллы, физика. Rev. 80 (1950) 72-80.