



The Use of Modified Graphene Nano Plates to Increase the Thermal Properties of Epoxy Resin Adhesives

Rasoul Shemshadi^{1*}, Issa Mousazadeh Moghaddampour², Seyed Mohamad Reza Paran³

^{1,2}Assistant Professor, Department of Industrial Chemistry, Faculty of Chamran, Guilan Branch, Technical and Vocational University (TVU), Guilan, Iran.

³Assistant Professor, Polymer and Petrochemical Institute, Polymer Processing Department, Tehran, Iran.

ARTICLE INFO

Article Type:

Original Research

Received: 04.29.2023

Revised: 06.19.2023

Accepted: 08.13.2023

Keyword:

Adhesive
Epoxy Resin
Graphene Nano Plate
Resin Modification
Residual Carbon

*Corresponding Author:

Rasoul Shemshadi

Email: rshemshadi@tvu.ac.ir

ABSTRACT

Nowadays, with the expansion of industries, the need to use industrial adhesives that can create new properties in the final sample while solving problems is felt more and more. Epoxy resins have the ability to be compatible with all kinds of nano fillers due to their extraordinary properties, in addition to providing proper thermal and mechanical resistance. In the present project, after preparing graphene oxide (GO) using the Hammers method and modifying it with the 1,1'-(hexane-1,6-diyl)bis(3-(3-(trimethoxysilyl)propyl)urea) silane modifier (HDBTMSPU), FGO was obtained. After the preparation of FGO, graphene xerogel (GX) was prepared by sol-gel reaction of FGO nanosheets with tetraethyl orthosilica (TEOS) and HDBTMSPU. Epoxy resin was chemically modified by oligomer TEOS and (3-isocyanatopropyl) triethoxysilane (IPTEOS). GX/epoxy nanocomposite (EGX) and silica/graphene/epoxy nanohybrid were prepared using TEOS, FGO and two types of TE and IE resins (TEGX, IEGX) through sol-gel reaction and their thermal properties were evaluated with EGX nanocomposite. The results of the FTIR, XPS and TGA tests showed that graphene and epoxy resin were successfully chemically modified. The structure of GX was investigated by Raman, XRD, SEM and TEM tests. The results obtained from the thermal decomposition test of graphene samples and nanocomposite samples demonstrated that after each step of GO chemical modification, the stability and thermal resistance of nanosheets increased significantly and the thermal properties of prepared nanocomposites were improved compared to epoxy resin.



Results and discussion

Investigation of FT-IR spectrum

After the oxidation of graphene nanolayers, the stretching mode of the hydroxyl group at 3398 cm^{-1} , the stretching mode of the carbonyl group at 1716 cm^{-1} , and the stretching mode of the oxirane ether group at 853 cm^{-1} and 11051 cm^{-1} appeared. In the HDBTMSPU modifier spectrum, the peak appearing at 3338 cm^{-1} was related to the stretching of the second type amide group. In the second type of amide, a weaker band has appeared around 3129 cm^{-1} . This peak is attributed to the overtone resonance of the 1565 cm^{-1} band. The peaks appearing at 2936 and 2848 cm^{-1} were related to the asymmetric and symmetric stretching mode of CH_2 group, respectively. The carbonyl peak is located at 11621 cm^{-1} and the N-H bending mode is located at a wave number equal to 1571 cm^{-1} .

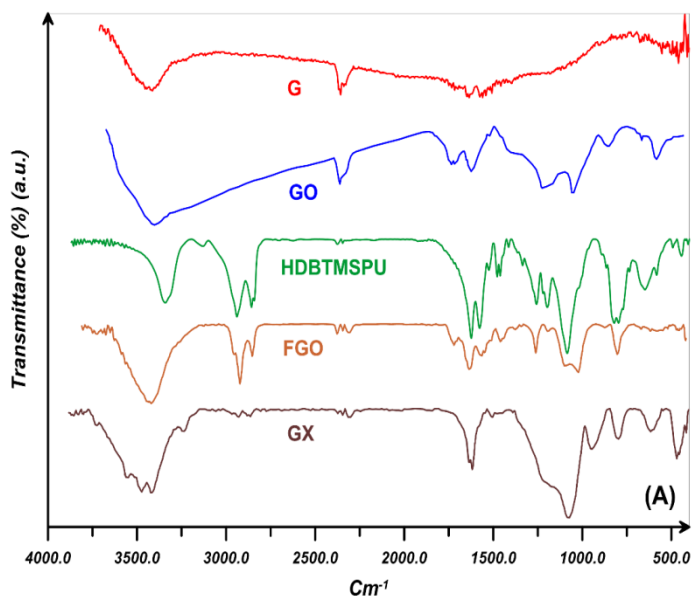


Figure 2. FT-IR spectroscopy result.

Investigation of TGA

The figure below shows the results of the thermal decomposition analysis of G, GO, FGO and GX samples. According to the results, G reached a residual amount of approximately 90.48% at a temperature of about $700\text{ }^{\circ}\text{C}$. The maximum weight loss of GO sample was near $150\text{-}220\text{ }^{\circ}\text{C}$.

Investigation of XPS

XPS spectroscopy was used to study the surface composition of GO and FGO. The difference of the general spectrum of GO compared to the spectrum of FGO was in the binding energies of 41.105 and 98.402 eV , which are related to silicon and nitrogen atoms in FGO. By comparing the percentage of oxygen and oxygen-containing carbon groups of GO

and FGO samples, the values of oxygen-containing carbon groups decreased in the case of the FGO sample, which was due to the covalent bonding of HDBTMSPU with the GO surface.

Investigation of XRD

By comparing the spectra of graphene samples, it was found that after each step of chemical modification, the diffraction peak of the samples became weaker and wider. This indicated that after each modification step, the graphite structure was broken and the layers were separated. The peak appearing in sample G at the divergence angle of 06.26° corresponded to the (002) planes, which was equivalent to the interlayer distance equal to 0.34 nm. The GO sample showed a broad and weak peak at the diffraction angle of 34.10° , which was equivalent to the interlayer distance of the GO sample equal to 0.85 nm. The increase in the distance between layers from 0.34 to 0.85 nm indicated the presence of oxygen groups on the surface of graphene as a result of reducing the size of sp² band crystals due to strong oxidation.

Investigation of SEM and TEM

Sample G had a smooth and uniform surface. After chemical modification and placing graphene in the network created by the sol-gel process, a rough surface was observed on the plates. Moreover, based on the TEM images of G, GO and GX samples shown in the diagram, sample G had a smooth surface. After applying strong oxidation on graphene nanosheets, the topology of the sheets wrinkled due to the presence of oxygen groups. The presence of the silicate network on the graphene sheets indicated the success of the sol-gel process.

Conclusion

The results of the FT-IR test clearly showed that the synthesis of graphene nanosheets and then their modification were carried out well and successfully, which once again proves the correctness of the selected materials and the applicability of the Hammers method. Furthermore, the thermal decomposition test of graphene samples and nanocomposite samples showed that after each stage of chemical modification of GO, the stability and thermal resistance of nanosheets increased significantly and the thermal properties of prepared nanocomposites were improved compared to epoxy resin. Finally, SEM and TEM results confirmed the successful grafting of silicate xerogel on the graphene surface.



استفاده از نانوصفحات گرافن اصلاح شده برای افزایش خواص حرارتی چسب‌های رزین اپوکسی

رسول شمشادی^{۱*}، عیسی موسی‌زاده مقدم‌پور^۲، سید محمدرضا پرن^۳

۱- استادیار، دپارتمان صنایع شیمیایی، دانشکده شهید چمران رشت، دانشگاه فنی و حرفه‌ای استان گیلان، ایران.

۳- استادیار، پژوهشکده فرآیند، پژوهشگاه پلیمر و پتروشیمی ایران، تهران، ایران.

اطلاعات مقاله	چکیده
<p>نوع مقاله: مقاله پژوهشی</p> <p>دریافت مقاله: ۱۴۰۲/۰۲/۰۹</p> <p>بازنگری مقاله: ۱۴۰۲/۰۳/۲۹</p> <p>پذیرش مقاله: ۱۴۰۲/۰۵/۲۲</p> <p>کلید واژگان: چسب رزین اپوکسی نانو صفحات گرافن اصلاح رزین کربن باقی مانده</p> <p>*نویسنده مسئول: رسول شمشادی پست الکترونیکی: rshemshadi@tvu.ac.ir</p>	<p>امروزه با گسترش صنایع، لزوم استفاده از چسب‌های صنعتی که در عین رفع مشکلات بتواند خواص جدیدی را در نمونه نهایی ایجاد کند، بیش از پیش احساس می‌شود. رزین‌های اپوکسی به دلیل خواص فوق العاده خود علاوه بر تامین مقاومت حرارتی و مکانیکی مناسب، قابلیت این را دارند که با انواع نانو پرکننده‌ها مطابقت داشته باشند. در پروژه حاضر، پس از تهیه اکسید گرافن (GO) به روش هامرز و اصلاح آن با اصلاح‌کننده سیلانی او^۱-۱ (هگزان- ۱-۶-دی‌وایل) بیس (۳-۳-تری‌متوکسی‌سیلیل) پروپیل) اوره (HDBTMSPU)، FGO به دست آمد. پس از تهیه FGO، زیروزل گرافن (GX) با واکنش سل- ژل نانوصفحات FGO با تترااتیل‌ارتوسیلیکا (TEOS) و HDBTMSPU تهیه شد. رزین اپوکسی به وسیله الیگومر TEOS و (۳- ایزوسیانات‌پروپیل)‌تری‌اتوکسی‌سیلان (IPTEOS) اصلاح شیمیایی شد. نانوکامپوزیت GX / اپوکسی (EGX) و هم‌چنین نانو هیبرید سیلیکا/گرافن/اپوکسی با استفاده از TEOS، FGO و دو نوع رزین TE و IE (IEGX, TEGX) از طریق واکنش سل- ژل تهیه شد و خواص حرارتی آنها با نانوکامپوزیت EGX مورد ارزیابی قرار گرفت. نتایج مربوط به آزمون‌های FTIR، XPS، TGA نشان داد که گرافن و رزین اپوکسی به صورت موفقیت‌آمیز اصلاح شیمیایی شده است. ساختار GX به وسیله آزمون‌های رامان، XRD، SEM و TEM بررسی شد. نتایج به دست آمده از آزمون تجزیه حرارتی نمونه‌های گرافنی و نمونه‌های نانوکامپوزیتی نشان داد که پس از هر مرحله اصلاح شیمیایی GO، پایداری و مقاومت حرارتی نانوصفحات افزایش چشمگیری داشته است و خواص حرارتی نانوکامپوزیت‌های تهیه شده نسبت به رزین اپوکسی بهبود یافت.</p>



مقدمه

چسب اپوکسی یکی از پرکاربردترین انواع چسب هستند. به طور کلی چسب اپوکسی از دو جزء تشکیل شده که پس از اختلاط به ماده‌ای سخت مبدل می‌شود. این عناصر عبارت هستند از رزین و ماده سخت کننده (هاردنر). برای استفاده از چسب می‌بایست رزین را با ماده سخت کننده که یک کاتالیزور مخصوص است ترکیب کنیم. این ترکیب باعث شروع فرآیندی به نام پخت می‌شود. پخت فرآیندی شیمیایی است که از طریق آن دو عنصر در ترکیب با یکدیگر واکنشی حرارتی می‌دهند و پیوند دوگانه پلیمر را رقم می‌زنند. این مسئله منجر به سختی و نیرومندی چسب اپوکسی می‌شود. چسب اپوکسی از انواع مقاوم چسب در انواع شرایط محسوب می‌شود که از این میان به مقاومت چسب در مقابل حلال‌های شیمیایی، جریان الکتریسیته، گرما و حرارت و همچنین ضربه‌های مکانیکی اشاره می‌کنیم. چسب اپوکسی به دو شکل سیستم تک جزئی و سیستم دوجزئی در دسترس قرار دارند که این دو ویژگی‌های خاص خود را دارا هستند. ساخت این چسب‌ها معمولاً در دمایی حدود ۲۵۰-۳۰۰ فارنهایت انجام می‌شود و این موضوع سبب افزایش ویژگی چسبناک این محصول می‌شود. قدرت چسبناکی این محصولات به حدی است که از آن به عنوان جایگزین جوش و پرچ استفاده می‌شود. یکی دیگر از خواص این محصول کاهش حجم اندک آن در برابر حرارت است و این خواص چسب اپوکسی را برای مصرف در صنایع پزشکی، الکترونیک و هوافضا در کنار سایر صنایع مناسب کرده است [۱-۳]. چسب‌های نانو اپوکسی از نوع چسب‌های دو جزئی می‌باشد که در آنها جهت افزایش خواص علاوه بر فیلرهای مرسوم مورد استفاده در چسب‌ها از افزودنی‌های نانو نیز طی فرآیندهای خاصی استفاده شده است. اضافه کردن این افزودنی‌ها سبب شده است خواص چسب‌های اپوکسی نانو در مقایسه با چسب‌های معمولی بهبود یابد. از این چسب‌ها می‌توان جهت اتصال انواع سطوح فلزی، غیر فلزی و پلیمری استفاده نمود. به عنوان مثال با افزودن نانو کلی و یا نانو تیوب کربنی به چسب‌های اپوکسی می‌توان استحکام کششی و برشی آنها را بین ۲۰ تا ۳۰ درصد افزایش داد ضمن این‌که مقاومت دمایی این چسب‌ها با اضافه کردن افزودنی‌های نانو افزایش می‌یابد. با توجه به خواص چسب‌های نانو، کاربرد آنها در صنایع خاص و شرایط کاری پیچیده و دشوار مانند صنایع هواپیمایی و خودرویی میسر می‌گردد [۴].

در راستای دستیابی به چسب‌های برپایه رزین اپوکسی با استفاده از نانو پرکننده‌ها، لازم است احاطه کاملی بر انواع رزین‌های اپوکسی و انواع این نانو پرکننده‌ها نیز داشت.

رزین‌های اپوکسی در بین تمامی رزین‌های گرماسخت به چند دلیل بی‌همتا هستند: فشار ناچیزی برای تهیه محصولات گرماسخت مورد نیاز است. جمع‌شوندگی^۱ ناشی از پخت بسیار پایین است و به همین علت تنش‌های باقی‌مانده در پخت رزین اپوکسی نسبت به پخت رزین‌های پلی‌استر غیراشباع به وسیله پلیمریزاسیون وینیلی بسیار کمتر است. با استفاده از محدوده وسیع دمایی به وسیله انتخاب درست عامل پخت^۲، می‌توان کنترل مناسب و دقیقی بر روی درجه شبکه‌ای شدن^۳ اعمال کرد. محدوده وسیعی از رزین‌ها از ویسکوزیته پایین تا رزین‌های جامد در دسترس است [۴؛ ۵]. به دلیل خواص منحصر به فرد و ویژگی‌های مفید پلیمرهای شبکه‌ای، رزین‌های اپوکسی به صورت گسترده‌ای در چسب‌ها، پوشش‌های سطحی، کامپوزیت‌های مهندسی و ورقه‌های الکتریکی مورد استفاده قرار می‌گیرند. در بسیاری از این کاربردها، زمینه‌های کامپوزیتی از رزین‌های اپوکسی دوعاملی^۴ استفاده می‌شوند. در کاربردهای پیشرفته‌تر مانند هوا فضا و کاربردهای نظامی - دفاعی از رزین‌های چندعاملی^۵ مورد استفاده قرار می‌گیرد. رزین اپوکسی DGEBA از واکنش بین اپی کلروهیدرین و بیس فنول A تشکیل می‌شود که نسبت‌های مولی متفاوت

¹ Shrinkage

² Curing agent

³ Degree of crosslinking

⁴ Difunctional

⁵ Multifunctional

ابی کلروهیدرین و بیس فنول A سبب طیف وسیعی از رزین‌ها با وزن مولکولی متفاوت می‌گردد. طیفی که رزین‌های مایع تا رزین‌های جامد را در اختیار قرار می‌دهد.

رزین‌های اپوکسی به عنوان ماتریس مناسبی برای انواع نانو پرکننده‌ها عمل کرده و پراکنش مناسبی را باعث می‌شوند. از میان انواع نانو پرکننده‌ها، نانوصفحات گرافن اصلاح شده می‌توانند به دلیل خواص فیزیکی و حرارتی مناسب مورد توجه باشند.

در سال‌های اخیر، گرافن^۱ به عنوان لایه‌ای از اتم‌های کربن که با هیبریداسیون SP^2 در شبکه دویعدی کنار هم قرار گرفته‌اند، بسیار مورد توجه قرار گرفته است. گرافن به عنوان بلوک سازنده سایر آلوتروپ‌های کربن شناخته می‌شود. گرافن با مدول یانگ برابر با ۱ تراپاسکال و مقاومت نهایی ۱۳۰ گیگاپاسکال به عنوان مقاوم‌ترین ماده شناخته شده هستی معروف است. در حال حاضر بهترین روش برای تولید گرافن در مقادیر زیاد روش پراکنش و کاهش اکسید گرافیت است. در این روش‌ها گرافیت در حضور اکسیدکننده‌های قوی نظیر پرمنگنات پتاسیم، کلرات پتاسیم و نیتريت سدیم و هم‌چنین اسید نیتريك و اسید سولفوریک اکسید می‌شود. مشابه با گرافیت که از صفحات گرافن تشکیل شده است؛ اکسید گرافیت از صفحات اکسید گرافن تشکیل شده است. در ساختار اکسید گرافیت، صفحات اکسید گرافن با فاصله ۶-۱۰ آنگستروم قرار دارند. در پروژه حاضر نیز از این روش جهت تهیه اکسید گرافن استفاده شده و سپس نانوصفحات تولید شده با استفاده از عوامل سیلانی که گفته خواهد شد، اصلاح شده و آماده وارد شدن به ماتریس پلیمری چسب خواهد بود [۲].

با توجه به این که اصلی‌ترین مشکل پرکننده‌های شیمیایی از جمله بور و فسفر نیاز به مقادیر زیاد از پرکننده است و مشکل پرکننده‌های کربنی مانند گرافن پخش کردن آنها در زمینه پلیمری است، در پروژه حاضر، سعی بر این است که با وارد کردن گرافن در شبکه هیبریدی سیلیکاتی و از طرفی اصلاح شیمیایی رزین اپوکسی و وارد کردن آن در شبکه گرافن/زیروزل^۲ سیلیکاتی، بهبود خواص حرارتی چسب اپوکسی صورت پذیرد.

مواد و روش‌ها

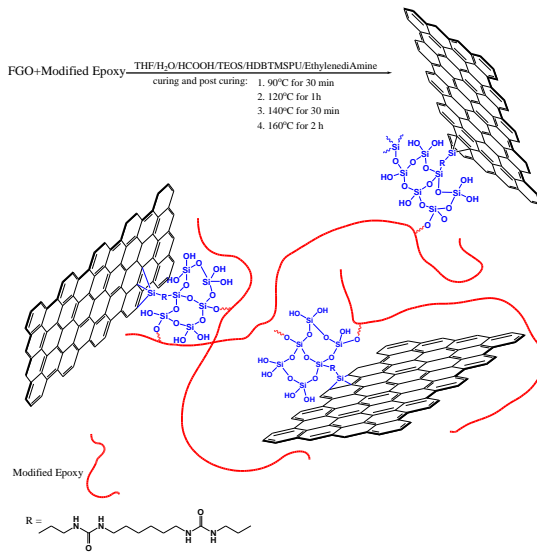
از رزین اپوکسی EP-۴۱۸ (گرید تولیدی شرکت رزینان) جهت تهیه محصولات نانوکامپوزیتی استفاده شد. هم‌چنین گرافیت از شرکت مرک آلمان تهیه شده و (۳- آمینوپروپیل)تری‌متوکسی سیلان (APTMS) با درصد خلوص ۹۹٪ برای سنتز اصلاح‌کننده HDBTMSPU از شرکت مرک آلمان خریداری شد. وزن مولکولی APTMS برابر $179/28 \text{ g/mol}$ می‌باشد. تترا اتیل ارتوسیلیکا (TEOS) با درصد خلوص ۹۸٪ از شرکت مرک خریداری شده است. وزن مولکولی TEOS برابر $208/33 \text{ g/mol}$ می‌باشد. هگزامتیلن‌دی‌ایزوسیانات^۳ (HMDI) به منظور سنتز HDBTMSPU از شرکت مرک آلمان خریداری شده است. وزن مولکولی HMDI برابر $160/20 \text{ g/mol}$ می‌باشد.

پس از آماده‌سازی نمونه‌های ذکر شده و تهیه نانوکامپوزیت‌ها، نمونه‌ها به قالب منتقل شده و طی زمان مشخص و برنامه دمایی پخت صورت گرفت. مراحل و نحوه انجام واکنش به صورت خلاصه در زیر قابل مشاهده است.

¹ Graphene

² xerogel

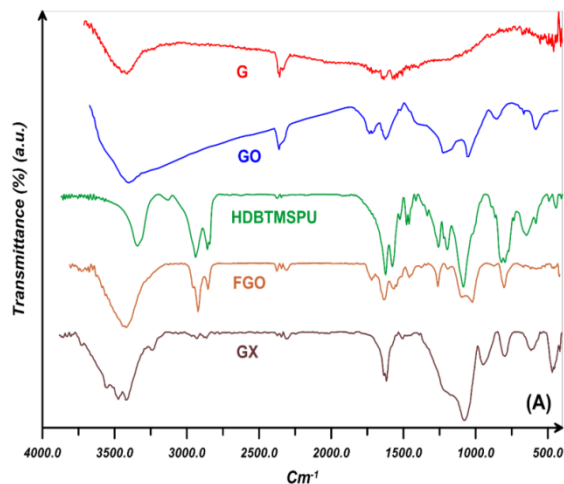
³ Hexamethylenediisocyanate



شکل ۱. مراحل و نحوه انجام واکنش.

نتایج و بحث

نتایج طیفسنجی FT-IR

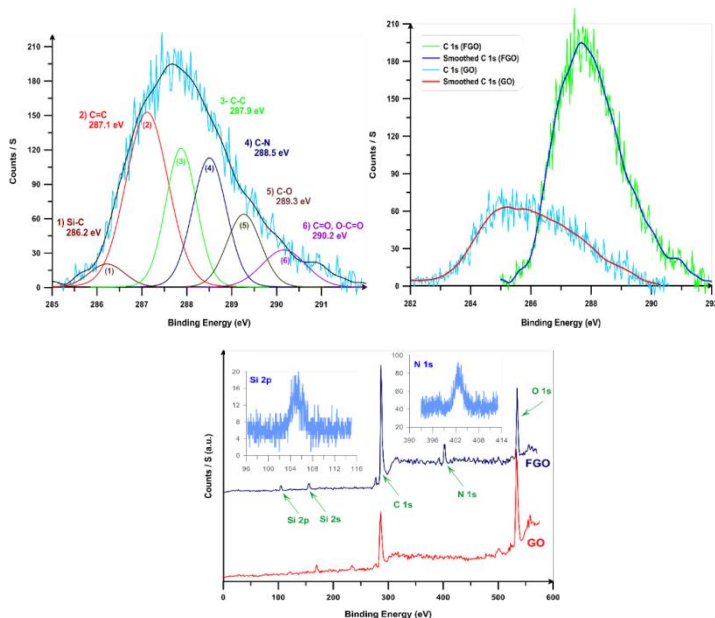


شکل ۲. نتایج آنالیز طیف‌های FTIR روی نمونه‌ها.

پس از اکسیداسیون نانولایه‌های گرافن، مد کششی گروه هیدروکسیل در 3398cm^{-1} ، مد کششی گروه کربونیل در 1716cm^{-1} و مد کششی گروه اتری اکسیرانی در 853 و 1051cm^{-1} ظاهر شده‌اند [۲]. در طیف اصلاح کننده HDBTMSPU، پیک ظاهر شده در 3338cm^{-1} مربوط به کشش گروه آمید نوع دوم می‌باشد. در آمید نوع دوم نوار ضعیف تری در حدود 3129cm^{-1} ظاهر شده است. این پیک به اورتون^۱ رزونانس فرمی^۲ نوار 1565cm^{-1} نسبت داده می‌شود. پیک‌های ظاهر شده در 2936 و 2848cm^{-1} به ترتیب مربوط به مد کششی نامتقارن^۳ و متقارن^۴ گروه CH_2 می‌باشند. پیک کربونیل در 1621cm^{-1} و مد خمشی N-H در عدد موجی برابر با 1571cm^{-1} قرار گرفته است.

طیف‌سنجی فتوالکترون اشعه ایکس (XPS)

از طیف‌سنجی XPS به منظور مطالعه ترکیب سطح GO و FGO استفاده شده است. شکل زیر، طیف کلی و بزرگنمایی شده پیک‌های C 1s و N 1s، Si 2p در مورد نمونه‌های GO و FGO و همچنین پیک دیکانولوت شده C 1s مربوط به FGO را نشان می‌دهد. با توجه به شکل، تفاوت طیف کلی GO در مقایسه با طیف FGO در انرژی‌های اتصال مربوط به $41/105$ و $98/402\text{ eV}$ است که مربوط به اتم سیلیسیم و نیتروژن موجود در FGO است [۶-۸]. پیک‌های XPS مربوط به N 1s و Si 2p در بازه $95-110$ و $400-470\text{ eV}$ ظاهر می‌گردد که جایگاه انرژی اتصال آنها به ترکیب شیمیایی وابسته است. با ظاهر شدن پیک Si-C در انرژی اتصال $2/286\text{ eV}$ می‌توان اتصال شیمیایی HDBTMSPU بر سطح GO را موفقیت آمیز دانست.



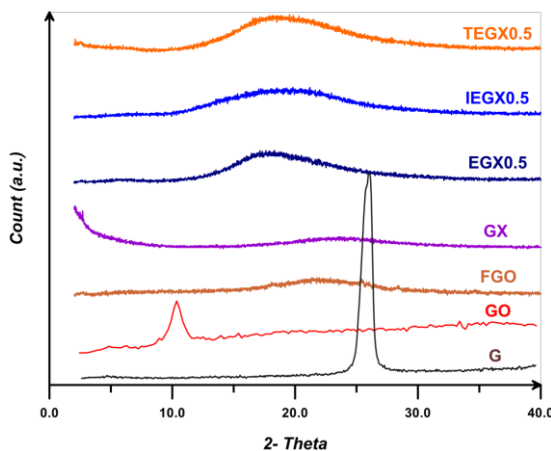
شکل ۳. طیف‌سنجی فتوالکترون اشعه ایکس روی نمونه‌ها.

- 1 Overtone
- 2 Fermi Resonance
- 3 Asymmetric
- 4 Symmetric

با مقایسه درصد اکسیژن و گروه‌های کربنی حاوی اکسیژن نمونه‌های GO و FGO، مقادیر گروه‌های کربنی حاوی اکسیژن در مورد نمونه FGO کاهش داشته که در اثر ایجاد پیوند کوالانسی HDBTMSPU با سطح GO است

طیف‌سنجی پراش اشعه ایکس (XRD)

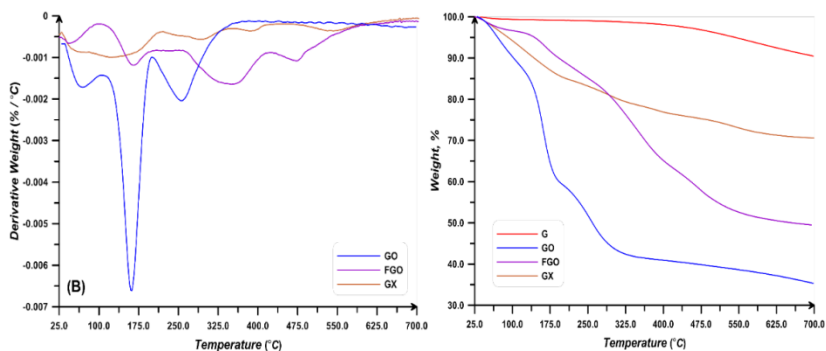
طیف XRD نمونه‌های G، GO، FGO، GX و همچنین کامپوزیت‌های EGX۰.۵، IEGX۰.۵ و TEGX۰.۵ در شکل نشان داده شده است. با مقایسه طیف نمونه‌های گرافنی، مشخص شد که پس از هر مرحله اصلاح شیمیایی، پیک تفرق نمونه‌ها ضعیف‌تر و پهن‌تر شده است. این امر حاکی از آن است که پس از هر مرحله اصلاح، ساختار گرافیتی به هم خورده و لایه‌ها از هم فاصله گرفته‌اند [۷]. پیک ظاهر شده در نمونه G در زاویه تفرق 26° مربوط به صفحات (002) است که معادل با فاصله بین لایه‌های برابر $34/0 \text{ nm}$ می‌باشد. نمونه GO پیک پهن و ضعیفی در زاویه تفرق 10° نشان می‌دهد که معادل با فاصله بین لایه‌های نمونه GO برابر با $85/0 \text{ nm}$ است. افزایش فاصله بین لایه‌ها از $34/0$ تا $85/0 \text{ nm}$ نشان دهنده حضور گروه‌های اکسیژنی بر سطح گرافن است که در نتیجه کاهش اندازه کریستال‌های باند sp^2 به دلیل اکسیداسیون قوی می‌باشد [۹].



شکل ۴. طیف‌سنجی پراش اشعه ایکس روی نمونه‌ها.

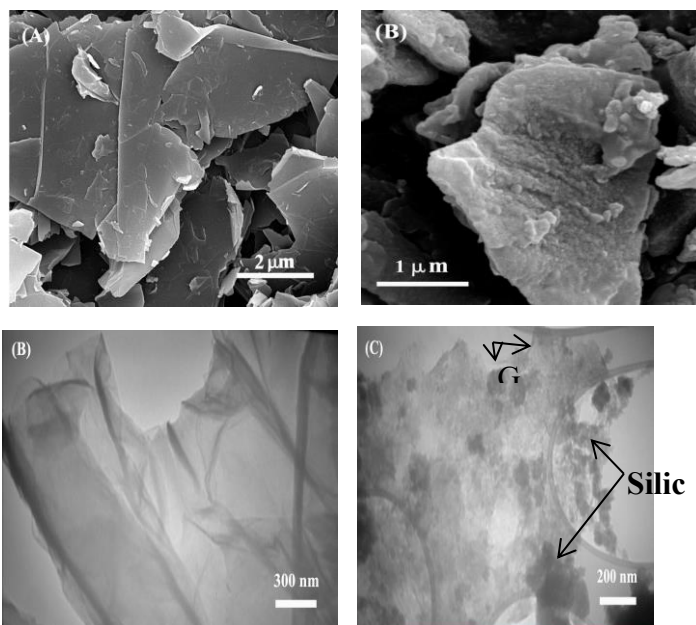
آنالیز تجزیه حرارتی (TGA)

شکل زیر نتایج مربوط به آنالیز تجزیه حرارتی نمونه‌های G، GO، FGO، GX را نشان می‌دهد. با توجه به نتایج، در دمای حدود 700°C به میزان باقیمانده حدود $90/48\%$ رسیده است. بیشترین میزان افت وزنی نمونه GO در حدود دمای 150°C - 220°C است. دلیل این افت تخریب اکثر گروه‌های عاملی اکسیژن‌دار موجود بر رو و لبه صفحات GO به صورت گازهای متعادل‌شده مونوکسید کربن و دی‌اکسید کربن است [۲؛ ۴-۸]. در محدوده دمای 700°C - 230°C ، تخریب حرارتی گروه‌های اکسیژنی با مقاومت حرارتی بالاتر مشاهده می‌شود [۲؛ ۵-۸] و در نهایت باقی‌مانده بعد از سوختن برابر $22/35\%$ می‌گردد. این در حالی است که یک نمودار تخریب حرارتی متفاوت در مورد نمونه FGO مشاهده می‌شود. دلیل افزایش میزان باقی‌مانده در مورد این نمونه نسبت به GO، کاهش گروه‌های اکسیژنی با عامل‌داری است. $35/49\%$ باقی‌مانده بعد از سوختن در مورد نمونه FGO و افزایش $T_{0.05}$ از 104 (نمونه $T_{0.05}$) به 144°C به دلیل تخریب حرارتی اصلاح‌کننده و گروه‌های اکسیژنی است.



شکل ۵. نتایج آنالیز تجزیه حرارتی روی نمونه‌ها.

تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) و میکروسکوپ الکترونی عبوری (TEM)



شکل ۶. نتایج تصاویر SEM, TEM.

شکل بالا تصویر نمونه G را نشان می‌دهد. همان‌طور که در شکل مشخص است، نمونه G دارای سطحی صاف و یکنواخت است. پس از اصلاح شیمیایی و قرار دادن گرافن در شبکه ایجاد شده به وسیله فرآیند سل-ژل سطح زیر و زمختی بر روی صفحات دیده شده است. همچنین بر اساس تصاویر TEM که مربوط به نمونه‌های G, GO و GX در شکل بالا نشان داده شده است. همان‌طور که نشان داده شده است، نمونه G سطحی صاف و هموار دارد. پس از اعمال اکسیداسیون قوی بر نانوصفحات گرافن، توپولوژی صفحات به علت حضور گروه‌های اکسیژنی به صورت چروکیده و

چین خورده تبدیل شده است. حضور شبکه سیلیکاتی بر روی صفحات گرافن نشان‌دهنده موفقیت آمیز بودن فرآیند سل-ژل است.

نتیجه گیری

نتایج آزمون FTIR به خوبی نشان می‌دهد که سنتز نانوصفحات گرافن و سپس اصلاح آنها به خوبی و با موفقیت انجام شده است که درستی مواد انتخاب شده و کاربردی بودن روش هامرز را بار دیگر اثبات می‌کند. همچنین نتایج حاصل از XPS نشان می‌دهد که، نسبت کربن به اکسیژن بعد از عاملداری GO افزایش یافته است که نتیجه کاهش جزئی لایه‌های GO با اصلاح است و با توجه به طیف XPS در مورد GOFASi، نسبت کربن به سیلیکون ۱۵/۴۸ است که نشان می‌دهد در حدود ۱ مولکول APTES به هر ۲/۵ حلقه آروماتیک گرافن متصل شده است. با توجه به نتایج حاصل از XRD مشاهده شد که با اکسید شدن گرافن، تفرق پرتوایکس از زاویه 2θ به $9/45^\circ$ منتقل می‌شود که معادل با تغییر فاصله بین صفحات گرافن از ۰/۳۴ تا ۰/۹۴ نانومتر است که نشان می‌دهد پراکنش نانو صفحات گرافن به خوبی انجام شده است. نتایج به دست آمده از آزمون تجزیه حرارتی نمونه‌های گرافنی و نمونه‌های نانوکامپوزیتی نشان داد که پس از هر مرحله اصلاح شیمیایی GO، پایداری و مقاومت حرارتی نانوصفحات افزایش چشمگیری داشته است و خواص حرارتی نانوکامپوزیت‌های تهیه شده نسبت به رزین اپوکسی بهبود یافت.

در نهایت نتایج SEM و TEM پیوندزنی موفقیت آمیز زیروزل سیلیکاتی را بر سطح گرافن تأیید کرد.

References

- [1] Bello, S. A., Agunsoye, J. O., Hassan, S. B., Zebase Kana, M. G., & Raheem, I. A. (2015). Epoxy resin based composites, mechanical and tribological properties: A review. *Tribology in Industry*, 37(4), 500-524. <https://www.proquest.com/docview/2555413990?source=Scholarly%20Journals>
- [2] Jin, F-L., Li, X., & Park, S-J. (2015). Synthesis and application of epoxy resins: A review. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 29, 1-11. <https://doi.org/10.1016/j.jiec.2015.03.026>
- [3] Mohan, P. (2013). A Critical Review: The Modification, Properties, and Applications of Epoxy Resins. *Polymer-Plastics Technology and Engineering*, 52(2), 107-125. <https://doi.org/10.1080/03602559.2012.727057>
- [4] Jolanki, R., Kanerva, L., & Estlander, T. (2000). Epoxy Resins. In L. Kanerva, J. E. Wahlberg, P. Elsner, & H. I. Maibach (Eds.), *Handbook of Occupational Dermatology* (pp. 570-590). Springer Berlin Heidelberg. https://doi.org/10.1007/978-3-662-07677-4_73
- [5] May, C. A., & Tanaka, Y. (1973). *Epoxy Resins: Chemistry and Technology*. Marcel Dekker. <https://books.google.com/books?id=p219QgAACAAJ>
- [6] Ratna, D. (2009). *Handbook of thermoset resins*. ISmithers https://books.google.com/books/about/Handbook_of_Thermoset_Resins.html?id=ia4TQgAACAAJ
- [7] Shiran, F., Rahimi, A., & Afshar, F. (2003). Preparation and Characterization of Liquid Epoxy Resin DGEBA. *Iranian Journal of Polymer Science and Technology*, 16(1), 51-57. <https://doi.org/10.22063/jipst.2003.412>
- [8] Wei, M., Wang, B., Zhang, X., Wei, W., & Li, X. (2024). Cycloaliphatic epoxy-functionalized polydimethylsiloxanes for comprehensive modifications of epoxy thermosets. *European Polymer Journal*, 202(6), 112656. <https://doi.org/10.1016/j.eurpolymj.2023.112656>
- [9] Pascault, J-P., & Williams, R. J. (2009). *Epoxy polymers: new materials and innovations*. John Wiley & Sons. <https://www.wiley.com/en-gb/Epoxy+Polymers:+New+Materials+and+Innovations-p-9783527628711>