

Электрохимическая энергетика. 2023. Т. 23, № 1. С. 33–40

Electrochemical Energetics, 2023, vol. 23, no. 1, pp. 33–40

<https://energetica.sgu.ru>

<https://doi.org/10.18500/1608-4039-2023-23-1-33-40>, EDN: YBLAIY

Научная статья

УДК 542.9526:547.551.1

ЭЛЕКТРОХИМИЧЕСКОЕ ВОССТАНОВЛЕНИЕ МНОГОСЛОЙНОГО ОКСИДА ГРАФЕНА В ЩЕЛОЧНОМ ЭЛЕКТРОЛИТЕ

С. В. Брудник¹, А. В. Яковлев^{1✉}, Е. В. Яковлева¹, А. А. Алфёров¹, В. Н. Целуйкин², А. С. Мостовой²

¹Саратовский государственный технический университет имени Гагарина Ю. А.

Россия, 410054, г. Саратов, ул. Политехническая, д. 77

²Энгельсский технологический институт (филиал) Саратовского государственного технического университета имени Гагарина Ю. А.

Россия, 413100, Саратовская область, г. Энгельс, пл. Свободы, д. 17

Брудник Сергей Витальевич, аспирант, sergbrudnik@gmail.com, <https://orcid.org/0000-0001-7093-6494>

Яковлев Андрей Васильевич, доктор технических наук, профессор, профессор кафедры «Химия и химическая технология материалов», aw_71@mail.ru, <https://orcid.org/0000-0002-3542-1927>

Яковлева Елена Владимировна, кандидат химических наук, доцент, доцент кафедры «Экология и техносферная безопасность», elenayakovleva1977@list.ru, <https://orcid.org/0000-0002-8489-9804>

Алфёров Андрей Алексеевич, студент, andrey_080202@mail.ru, <https://orcid.org/0000-0003-2610-9365>

Целуйкин Виталий Николаевич, доктор технических наук, профессор кафедры «Технология и оборудование химических, нефтегазовых и пищевых производств», tseluikin@mail.ru, <https://orcid.org/0000-0002-7977-5823>

Мостовой Антон Станиславович, кандидат технических наук, доцент кафедры «Технология и оборудование химических, нефтегазовых и пищевых производств», mostovoy19@rambler.ru, <https://orcid.org/0000-0003-2828-9988>

Аннотация. Изложены результаты исследования электрохимического восстановления многослойного оксида графена при потенциостатическом режиме, показана возможность использования щелочного электролита (КОН) с концентрацией ниже 0.1 М. Идентификация электрохимически восстановленного оксида графена проводилась методами рентгенофазового анализа, ИК-Фурье и ИК-КР спектроскопией. Методом ИК-КР установлено увеличение интенсивности G и 2D полосы, свидетельствующее об образовании малослойных форм восстановленного оксида графена. Морфология поверхности электрохимически восстановленного оксида графена изучена методом СЭМ.

Ключевые слова: оксид графена, многослойный оксид графена, электрохимический синтез, электрохимическое восстановление, щелочной электролит

Для цитирования: Брудник С. В., Яковлев А. В., Яковлева Е. В., Алфёров А. А., Целуйкин В. Н., Мостовой А. С. Электрохимическое восстановление многослойного оксида графена в щелочном электролите // Электрохимическая энергетика. 2023. Т. 23, № 1. С. 33–40. <https://doi.org/10.18500/1608-4039-2023-23-1-33-40>, EDN: YBLAIY

Статья опубликована на условиях лицензии Creative Commons Attribution 4.0 International (CC-BY 4.0)

Article

Electrochemical reduction of multilayer graphene oxide in alkaline electrolyte

S. V. Brudnik¹, A. V. Yakovlev^{1✉}, E. V. Yakovleva¹, A. A. Alferov¹, V. N. Tseluikin², A. S. Mostovoy²

¹Yuri Gagarin State Technical University of Saratov

77 Polytechnicheskaya St., 410054 Saratov, Russia

²Engels Technological Institute (Branch), Yuri Gagarin State Technical University of Saratov

17 Svobody Sq., 413100 Engels, Saratov oblast, Russia

Sergei V. Brudnik, sergbrudnik@gmail.com, <https://orcid.org/0000-0001-7093-6494>

Andrei V. Yakovlev, aw_71@mail.ru, <https://orcid.org/0000-0002-3542-1927>

Elena V. Yakovleva, elenayakovleva1977@list.ru, <https://orcid.org/0000-0002-8489-9804>

Andrei A. Alferov, andrey_080202@mail.ru, <https://orcid.org/0000-0003-2610-9365>

Vitalii N. Tseluikin, tseluikin@mail.ru, <https://orcid.org/0000-0002-7977-5823>

Anton S. Mostovoy, mostovoy19@rambler.ru, <https://orcid.org/0000-0003-2828-9988>

Abstract. The results of the study of the electrochemical reduction of multilayer graphene oxide in the potentiostatic mode are presented and the possibility of using alkaline electrolyte (KOH) with the concentration below 0.1 M is shown. The identification of the electrochemically reduced graphene oxide was carried out using the XRD, FTIR and Raman-spectroscopy methods. Applying the method of Raman spectroscopy the increase in the intensity of the G and 2D bands, indicating the formation of few-layer forms of reduced graphene oxide was found. The surface morphology of the electrochemically reduced graphene oxide was studied by means of the SEM method.

Keywords: graphene oxide, multilayer graphene oxide, electrochemical synthesis, electrochemical reduction, alkaline electrolyte

For citation: Brudnik S. V., Yakovlev A. V., Yakovleva E. V., Alferov A. A., Tseluikin V. N., Mostovoy A. S. Electrochemical reduction of multilayer graphene oxide in alkaline electrolyte. *Electrochemical Energetics*, 2023, vol. 23, no. 1, pp. 33–40 (in Russian). <https://doi.org/10.18500/1608-4039-2023-23-1-33-40>, EDN: YBLAIY

This is an open access article distributed under the terms of Creative Commons Attribution 4.0 International License (CC-BY 4.0)

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время разработка высокоэффективных функциональных материалов для устройств накопления и преобразования энергии является одной из приоритетных задач электрохимической энергетики [1–3]. Особый интерес в данной области представляют графеновые материалы и их производные, в частности, оксид графен (ОГ), развитие химии которого получило широкое распространение в научных сообществах [4–7]. Эффективным методом изменения функциональных свойств ОГ является восстановление кислородсодержащих групп, как на базальной плоскости, содержащей гидроксильные и эпоксидные группы, так и на краевой плоскости, содержащей карбоксильные и карбонильные группы (хинонного и лактонного типа) [8], приводящее к образованию восстановленного оксида графена.

В литературе описаны различные химические и физико-химические методы восстановления, однако в основном они включают получение ОГ методом химического окисления графита по Хаммерсу [9, 10] и его восстановление с использованием гидразина (N_2H_4) [11, 12], боргидрида на-

трия ($NaBH_4$) [13], гидрохинона [14], аскорбиновой кислоты [15, 16]; методами термовосстановления [17], электрохимического восстановления [18, 19]. Конечной целью во всех случаях является реструктуризация графитовой матрицы, однако в зависимости от выбора восстановителя процессы восстановления приводят к различным восстановленным формам ОГ, характеризующихся соотношением C/O не более 20 [20]. Восстановленные формы ОГ отличаются от монослойного графена более дефектной структурой, сопровождающейся разрушением π -делокализованной системы графена, и сохранением менее 10% кислородсодержащих групп.

Целью данной работы является исследование электрохимического восстановления многослойного оксида графена в щелочном электролите, полученного электрохимическим анодным окислением графита.

МЕТОДИКА ЭКСПЕРЕМЕНТА

Синтез многослойного ОГ был проведён методом электрохимического (анодного) окисления дисперсного графита с фракционным составом от 400 до 600 мкм в сер-

ной кислоте [21]. Электрохимическое окисление проводили в гальваностатическом режиме током 0.4 А с последующим гидролизом окисленного графита до рН 5.7 и обработкой в ультразвуковой ванне (с частотой 40 кГц) в течение часа и последующей сушкой при температуре 90°C. Электрохимические измерения проводились на потенциостате Р-150х (ООО «Элинс», Россия) в трехэлектродной ячейке с использованием платиновых катода и токоотвода анода. Электродные потенциалы измерялись относительно ртутносulfатного (Hg/Hg₂SO₄/K₂SO₄) электрода сравнения.

Для получения электрохимически восстановленного оксида графена (в-ОГ) использовали дисперсию оксида графена в растворе КОН (0.05 М) с массовым соотношением 1:4. Для определения потенциала катодного восстановления проводили потенциодинамические исследования в диапазоне потенциалов от 0.11 до -0.9 В со скоростью развертки потенциала 10 мВ/с. Электродные потенциалы измерялись относительно хлоридсеребряного электрода сравнения (Ag/AgCl/KCl).

Исследования распределения размеров частиц окисленного многослойного оксида графена (ОГ) и восстановленного оксида графена (в-ОГ) производились лазерным анализатором размеров частиц Analysette-22 NanoTech (Fritsch GmbH, Германия) с диапазоном измерения 0.08–2100 мкм.

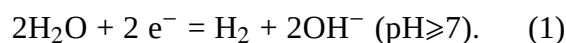
Изучение морфологии поверхности и структуры частиц наноструктурированного многослойного оксид графена осуществляли с помощью метода сканирующей электронной микроскопии (СЭМ) со встроенным энергодисперсионным анализом EXplorer (Aspex, США).

Спектры пропускания частиц наноструктурированного многослойного ОГ регистрировали на ИК-Фурье спектрометре «ФТ-801» («Симекс», Россия). Спектры комбинационного рассеяния (ИК-КР) зарегистрированы на приставке inVia Raman microscope («Renishaw», Великобритания). Рентгенофазовый анализ (РФА) проводи-

ли на рентгеновском дифрактометре ARL X'TRA (Thermo Fisher Scientific (Ecublens) SARL, Швейцария).

ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Потенциодинамические исследования ОГ в растворе КОН (0.05 М) (рис. 1) при смещении потенциала в катодную область от стационарного потенциала ($E = 0.1$ В) не выявляют заметного увеличения тока до потенциала ≈ -0.6 В, при котором наиболее вероятным процессом будет адсорбция катионов водорода на поверхности ОГ:



Электрохимическое восстановление, вероятнее всего, будет проходить по общему механизму:

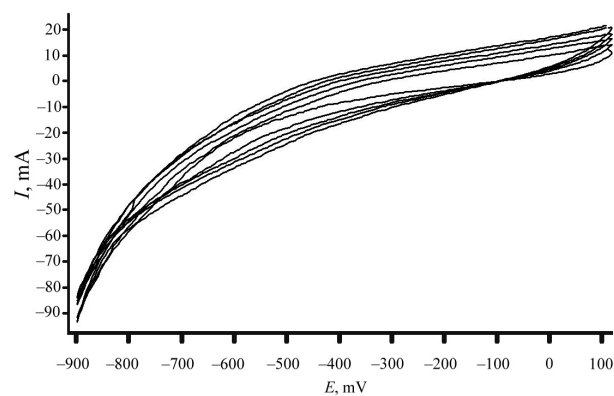
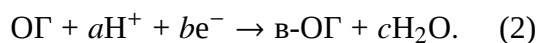


Рис. 1. Потенциодинамические поляризационные кривые процесса катодного восстановления оксида графена при скорости развёртки 10 мВ/с в растворе КОН (0.05 М)

Fig. 1. Potentiodynamic polarization curves of the process of cathodic reduction of graphene oxide at the sweep rate of 10 mV/s in the KOH solution (0.05 M)

В связи с этим электрохимическое восстановление ОГ проводилось в потенциостатическом режиме при потенциале -0.2 В с сообщением электроду ёмкости 0.2 А·г⁻¹ (рис. 2).

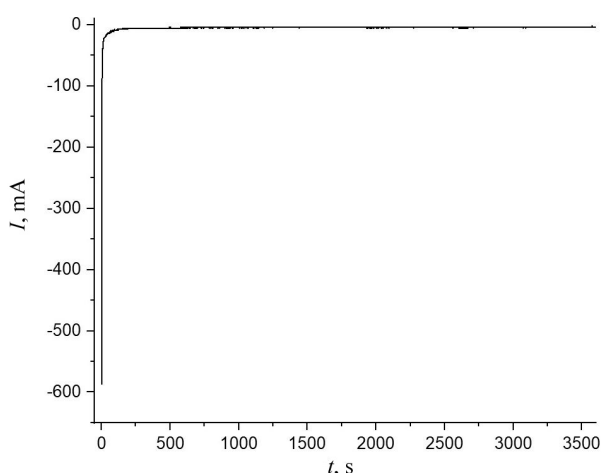
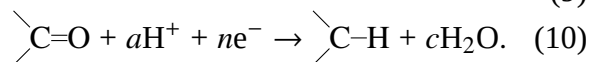
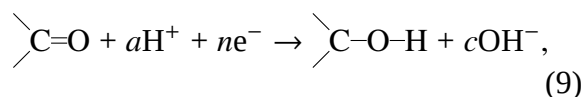
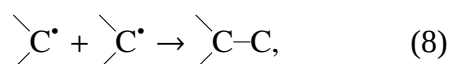
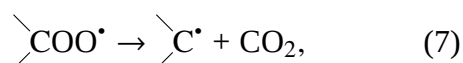
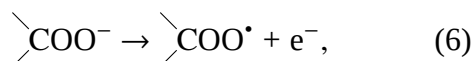
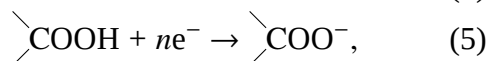
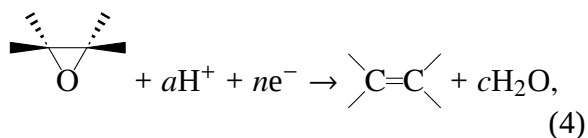
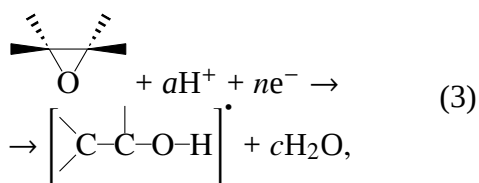


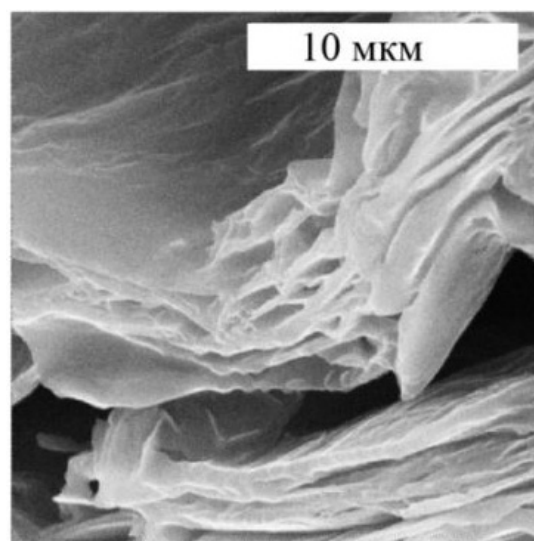
Рис. 2. Потенциостатическая кривая процесса катодного восстановления оксида графена при потенциале -0.2 В в растворе КОН (0.05 М)

Fig. 2. Potentiostatic curve of the process of cathodic reduction of graphene oxide at the potential of -0.2 V in the solution of KOH (0.05 M)

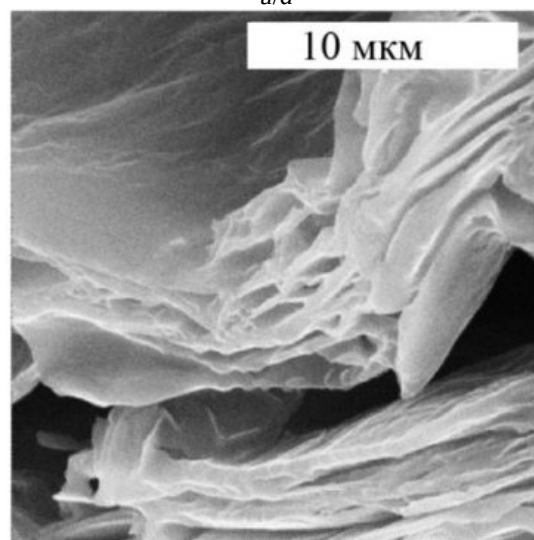
Механизм взаимодействия адсорбированного водорода с кислородсодержащими функциональными группами требует дополнительного изучения. Судя по увеличению тока и гистерезиса на потенциодинамических кривых по мере циклирования можно предположить восстановление кислородсодержащих групп и снижение их концентрации [22]:



После процесса электрохимического восстановления удаётся получить фракцию в-ОГ с модальным размером частиц ~ 18 мкм до 50%. Исходя из результатов СЭМ (рис. 3) структура частиц в-ОГ представлена в виде периодически повторяющихся упорядоченных слоев.



a/a



b/b

Рис. 3. Сканирующая электронная микроскопия электрохимически восстановленного оксида графена: а – $\times 10000$, б – $\times 25000$

Fig. 3. Scanning electron microscopy of electrochemically reduced graphene oxide: a – $\times 10000$, b – $\times 25000$

Для идентификации строения и исследования свойств восстановленного ОГ использовали методы ИК- и ИК-КР-спектроскопии, рентгенофазового анализа (РФА); исследование морфологии проводилось с использованием метода сканирующей электронной микроскопии (СЭМ).

На ИК-спектре ОГ (рис. 4) наблюдается интенсивный пик при 3481 см^{-1} , соответствующий колебаниям гидроксильных групп, также находящимся между графеновыми слоями (пик $\sim 3200\text{ см}^{-1}$). Присутствует пик при 1711 см^{-1} (C=O группа). Пик при 1635 см^{-1} обусловлен наличием sp^2 -гибридизации C=C в структуре графена. Полоса между 1103 см^{-1} соответствует деформационным колебаниям связей эпоксидных групп [15]. Полоса при 1350 см^{-1} представляет собой деформационное колебание -COOH групп.

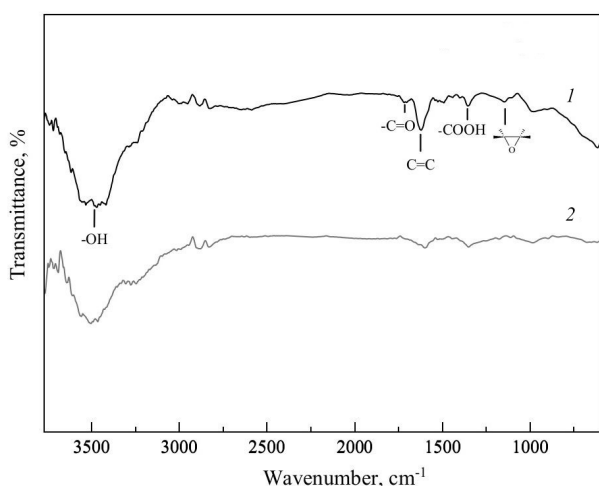


Рис. 4. ИК-спектры оксида графена (1) и восстановленного оксида графена (2)

Fig. 4. IR spectra of graphene oxide (1) and reduced graphene oxide (2)

Стоит отметить, что в ИК-спектре в-ОГ интенсивность пиков валентных и деформационных колебаний снижается, пик, соответствующий колебаниям гидроксильных групп, смещается в область 3500 см^{-1} , пик при 1635 см^{-1} смещается к 1602 см^{-1} , пики при 1711 и 1103 см^{-1} не наблюдаются, что, возможно, свидетельствует о восстановлении карбонильных и эпоксидных групп.

В спектре комбинационного рассеивания ОГ (рис. 5) присутствуют D-полоса при 1345 см^{-1} , характеризующая дефектность структуры, и G-полоса, которая описывает колебания системы sp^2 углеродных связей (1594 см^{-1}). Увеличение интенсивности полосы D по сравнению с полосой G указывает на увеличение количества неупорядоченной фазы в ОГ. В отличие от ИК-КР-спектров графитов для ОГ полоса D более интенсивна, чем полоса G, что связано с образованием sp^3 -гибридных связей в результате окисления графита [23]. G полоса ОГ смещена в сторону меньших волновых чисел, что подтверждает наличие дефектов в графеновых слоях. Смещение обертона D полосы, называемого 2D ($\sim 2700\text{ см}^{-1}$), коррелирует с количеством графеновых слоев. Пик D+D' в спектре ОГ более интенсивен, чем остальные обертона D полосы.

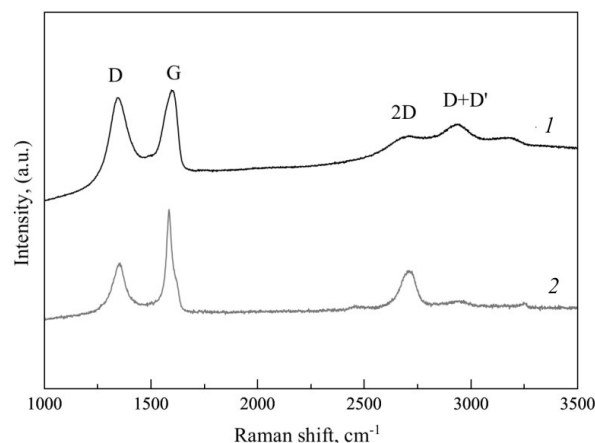


Рис. 5. ИК-КР-спектры оксида графена (1) и восстановленного оксида графена (2)

Fig. 5. Raman spectra of graphene oxide (1) and reduced graphene oxide (2)

Увеличение количества слоев снижает интенсивность 2D-пика и сдвигает компоненты в сторону больших волновых чисел. Форма, а также наличие D+D' полосы в спектре указывают на то, что ОГ состоит из двух или более графеновых слоев. Кроме того более высокая интенсивность 2D-полосы по сравнению с G-полосой подтверждает наличие большего количества дефектов в структуре. Отношение интенсивностей I_D/I_G показывает меру неупорядо-

ченности структуры – так, для ОГ $I_D/I_G = 0.94$.

В спектре комбинационного рассеивания в-ОГ наблюдается смещение пиков по сравнению с ОГ, присутствует D-полоса с максимумом пика $\sim 1355 \text{ см}^{-1}$ и G-полоса с максимумом 1584 см^{-1} , форма 2D полосы в-ОГ имеет вид одиночного пика с максимумом в 2710 см^{-1} большей по интенсивности, чем в спектре ОГ, отсутствует D+D'. Отношение интенсивностей полос $I_D/I_G = 0.64$.

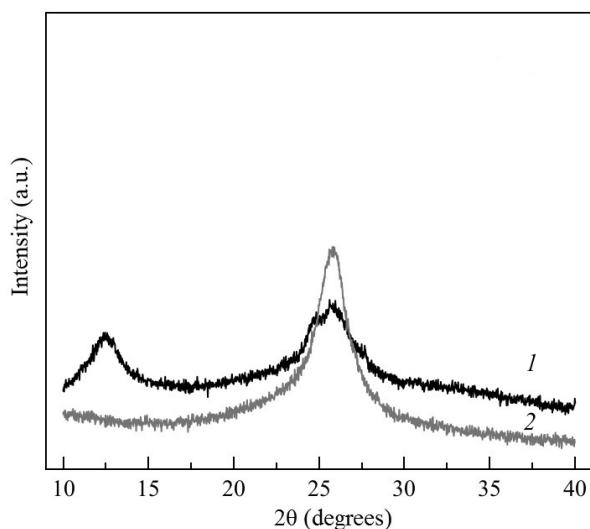


Рис. 6. Дифрактограммы оксида графена (1) и восстановленного оксида графена (2)

Fig. 6. XRDs of graphene oxide (1) and reduced graphene oxide (2)

Результаты РФА показывают (рис. 6), что на рентгенограмме ОГ регистрируются сигналы с пиками при $2\theta = 11.86$ и 26.12° , соответствующими дифракционным индексам плоскостей (001) и (002) оксида графена. Однако на дифрактограмме в-ОГ пик фазы оксида графена (001) отсутствует.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В результате проведенных исследований получен восстановленный многослойный оксид графена методом электрохимического катодного восстановления в щелочном электролите на основе 0.05 М КОН, при потенциостатическом режиме при потенциале -0.2 В .

Восстановленный оксид графена охарактеризован методами рентгенофазового анализа, ИК-Фурье спектроскопии, спектроскопии комбинационного рассеяния и сканирующей электронной микроскопии.

Полученный таким образом восстановленный оксид графена может применяться в качестве компонента электродов для накопителей энергии, а дополнительное его модифицирование галогенами и азотсодержащими функциональными группами позволит использовать его в качестве катализатора.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Khan A. H., Ghosh S., Pradhan B., Dalui A., Shrestha L. K., Acharya S., Ariga K. Two-dimensional (2D) nanomaterials towards electrochemical nanoarchitectonics and energy-related applications // *Bull. Chem. Soc.* 2017. Vol. 90. P. 627. <https://doi.org/10.1246/bcsj.20170043>
2. Iro Z. S., Subramani C., Dash S. S. A Brief Review on Electrode Materials for Supercapacitor // *Int. J. Electrochem. Sci.* 2016. Vol. 11. P. 10628–10643. <https://doi.org/10.20964/2016.12.50>
3. Dai L., Chang D. W., Baek J.-B., Lu W. Carbon Nanomaterials for Advanced Energy Conversion and Storage // *Nano-Micro Letters.* 2012. Vol. 8, iss. 8. P. 1130–1166. <https://doi.org/10.1002/sml.201101594>
4. Panahi-Sarmad M., Chehrizi E., Noroozi M., Raef M., Razzaghi-Kashani M., Baian M. A. H. Tuning the Surface Chemistry of Graphene Oxide for Enhanced Dielectric and Actuated Performance of Silicone Rubber Composites // *CS Appl. Electron. Mater.* 2019. Vol. 1, № 2. P. 198–209. <https://doi.org/10.1021/acsaelm.8b00042>
5. Yu W., Sisi L., Haiyan Y., Jie L. Progress in the functional modification of graphene / graphene oxide: A review // *RSC Adv.* 2020. Vol. 10. P. 15328–15345 <https://doi.org/10.1039/D0RA01068E>
6. Sun L. Structure and synthesis of graphene oxide // *Chin. J. Chem. Eng.* 2019. Vol. 27, iss. 10. P. 2251–2260. <https://doi.org/10.1016/j.cjche.2019.05.003>
7. Paulchamy B., Arthi G., Lignesh B. D. A Simple Approach to Stepwise Synthesis of Graphene Oxide Nanomaterial // *J. Nanomed. Nanotechnol.* 2015. Vol. 6, № 1. P. 1–4. <https://doi.org/10.4172/2157-7439.1000253>

8. Brisebois P. P., Siyaj M. Harvesting graphene oxide – years 1859 to 2019: A review of its structure, synthesis, properties and exfoliation // *J. Mater. Chem. C*. 2020. Vol. 8. P. 1517–1547. <https://doi.org/10.1039/C9TC03251G>
9. Yu H., Zhang B., Bulin C., Li R., Xing R. High-efficient Synthesis of Graphene Oxide Based on Improved Hummers Method // *Sci. Rep.* 2016. Vol. 6. Article number 36143. <https://doi.org/10.1038/srep36143>
10. Alkhouzaam A., Qiblawey H., Khraisheh M., Atieh M. Synthesis of graphene oxides particle of high oxidation degree using a modified Hummers method // *Ceram.* 2020. Vol. 46, iss. 15. P. 23997–24007. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2020.06.177>
11. De Silva K. K. H., Huang H.-H., Joshi R. K., Yoshimura M. Chemical reduction of graphene oxide using green reductants // *Carbon*. 2017. Vol. 119. P. 190–199. <https://doi.org/10.1016/j.carbon.2017.04.025>
12. Chua C. K., Pumera M. The reduction of graphene oxide with hydrazine: Elucidating its reductive capability based on a reaction-model approach // *Chem. Commun.* 2016. Vol. 52. P. 72–75. <https://doi.org/10.1039/C5CC08170J>
13. Guex L. G., Sacchi B., Peuvot K. F., Andersson R. L., Pourrahimi A. M., Ström V., Farris S., Olsson R. T. Experimental review: Chemical reduction of graphene oxide (GO) to reduced graphene oxide (rGO) by aqueous chemistry // *Nanoscale*. 2017. Vol. 9. P. 9562–9571. <https://doi.org/10.1039/C7NR02943H>
14. Liu Y., Feng J. An attempt towards fabricating reduced graphene oxide composites with traditional polymer processing techniques by adding chemical reduction agents // *Compos. Sci. Technol.* 2017. Vol. 140. P. 16–22. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2016.12.026>
15. Lavin-Lopez M. P., Paton-Carrero A., Sanchez-Silva L., Valverde J. L., Romero A. Influence of the reduction strategy in the synthesis of reduced graphene oxide // *Adv. Powder. Technol.* 2017. Vol. 28, iss. 12. P. 3195–3203. <https://doi.org/10.1016/j.apt.2017.09.032>
16. Abdolhosseinzadeh S., Asgharzadeh H., Seop K. H. Fast and fully-scalable synthesis of reduced graphene oxide // *Sci. Rep.* 2015. Vol. 5. Article number 10160. <https://doi.org/10.1038/srep10160>
17. Sengupta I., Chakraborty S., Talukdar M., Pal S. K., Chakraborty S. Thermal reduction of graphene oxide: How temperature influences purity // *J. Mater. Res.* 2018. Vol. 33, iss. 23. P. 4113–4122. <https://doi.org/10.1557/jmr.2018.338>
18. Liu G., Xiong Z., Yang L., Shi H., Fang D., Wang M., Shao P., Luo X. Electrochemical approach toward reduced graphene oxide-based electrodes for environmental applications: A review // *Sci. Total. Environ.* 2021. Vol. 778. Article number 146301. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.146301>. Epub2021
19. Harima Y., Setodoi S., Imae I., Komaguchi K., Ooyama Y., Ohshita J., Mizota H., Yano J. Electrochemical reduction of graphene oxide in organic solvents // *Electrochimica Acta*. 2011. Vol. 56, iss. 15. P. 5363–5368. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2011.03.117>
20. Tarcan R., Todor-Boer O., Petrovai I., Leordean C., Astilean S., Botiz I. Reduced graphene oxide today // *J. Mater. Chem. C*. 2020. Vol. 8. P. 1198–1224. <https://doi.org/10.1039/C9TC04916A>
21. Яковлев А. В., Яковлева Е. В., Целуйкин В. Н., Краснов В. В., Мостовой А. С., Рахметуллина Л. А., Фролов И. Н. Электрохимический синтез многослойного оксида графена анодным окислением дисперсного графита // *Электрохимия*. 2019. Т. 55, № 12. С. 1463–1470. <https://doi.org/10.1134/S0424857019120193>
22. Marrani A. G., Motta A., Schreiber R., Zaroni R., Dalchiele E. A. Insights from experiment and theory into the electrochemical reduction mechanism of graphene oxide // *Electrochimica Acta*. 2019. Vol. 304. P. 231–238. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2019.02.108>
23. Muzyka R., Drewniak S., Pustelny T., Chrubasik M., Gryglewicz G. Characterization of Graphite Oxide and Reduced Graphene Oxide Obtained from Different Graphite Precursors and Oxidized by Different Methods Using Raman Spectroscopy // *Materials*. 2018. Vol. 11, iss. 7. P. 1–15. <https://doi.org/10.3390/ma11071050>

REFERENCES

1. Khan A. H., Ghosh S., Pradhan B., Dalui A., Shrestha L. K., Acharya S., Ariga K. Two-dimensional (2D) nanomaterials towards electrochemical nanoarchitectonics and energy-related applications. *Bull. Chem. Soc.*, 2017, vol. 90, pp. 627. <https://doi.org/10.1246/bcsj.20170043>
2. Iro Z. S., Subramani C., Dash S. S. A Brief Review on Electrode Materials for Supercapacitor. *Int. J. Electrochem. Sci.*, 2016, vol. 11, pp. 10628–10643. <https://doi.org/10.20964/2016.12.50>
3. Dai L., Chang D. W., Baek J.-B., Lu W. Carbon Nanomaterials for Advanced Energy Conversion and Storage. *Nano-Micro Letters*, 2012, vol. 8, iss. 8, pp. 1130–1166. <https://doi.org/10.1002/sml.201101594>
4. Panahi-Sarmad M., Chehraz E., Noroozi M., Raef M., Razzaghi-Kashani M., Baian M. A. H. Tuning the Surface Chemistry of Graphene Oxide for Enhanced Dielectric and Actuated Performance of Silicone Rubber Composites. *CS Appl. Electron. Mater.*, 2019, vol. 1,

no. 2, pp. 198–209. <https://doi.org/10.1021/acsaelm.8b00042>

5. Yu W., Sisi L., Haiyan Y., Jie L. Progress in the functional modification of graphene / graphene oxide: A review. *RSC Adv.*, 2020, vol. 10, pp. 15328–15345 <https://doi.org/10.1039/D0RA01068E>

6. Sun L. Structure and synthesis of graphene oxide. *Chin. J. Chem. Eng.*, 2019, vol. 27, iss. 10, pp. 2251–2260. <https://doi.org/10.1016/j.cjche.2019.05.003>

7. Paulchamy B., Arthi G., Lignesh B. D. A Simple Approach to Stepwise Synthesis of Graphene Oxide Nanomateria. *J. Nanomed. Nanotechnol.*, 2015, vol. 6, no. 1, pp. 1–4. <https://doi.org/10.4172/2157-7439.1000253>

8. Brisebois P. P., Sijaj M. Harvesting graphene oxide – years 1859 to 2019: A review of its structure, synthesis, properties and exfoliation. *J. Mater. Chem. C*, 2020, vol. 8, pp. 1517–1547. <https://doi.org/10.1039/C9TC03251G>

9. Yu H., Zhang B., Bulin C., Li R., Xing R. High-efficient Synthesis of Graphene Oxide Based on Improved Hummers Method. *Sci. Rep.*, 2016, vol. 6, article no. 36143. <https://doi.org/10.1038/srep36143>

10. Alkhouzaam A., Qiblawey H., Khraisheh M., Atieh M. Synthesis of graphene oxides particle of high oxidation degree using a modified Hummers method. *Ceram*, 2020, vol. 46, iss. 15, pp. 23997–24007. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2020.06.177>

11. De Silva K. K. H., Huang H.-H., Joshi R. K., Yoshimura M. Chemical reduction of graphene oxide using green reductants. *Carbon*, 2017, vol. 119, pp. 190–199. <https://doi.org/10.1016/j.carbon.2017.04.025>

12. Chua C. K., Pumera M. The reduction of graphene oxide with hydrazine: Elucidating its reductive capability based on a reaction-model approach. *Chem. Commun.*, 2016, vol. 52, pp. 72–75. <https://doi.org/10.1039/C5CC08170J>

13. Guex L. G., Sacchi B., Peuvot K. F., Andersson R. L., Pourrahimi A. M., Ström V., Farris S., Olsson R. T. Experimental review: Chemical reduction of graphene oxide (GO) to reduced graphene oxide (rGO) by aqueous chemistry. *Nanoscale*, 2017, vol. 9, pp. 9562–9571. <https://doi.org/https://doi.org/10.1039/C7NR02943H>

14. Liu Y., Feng J. An attempt towards fabricating reduced graphene oxide composites with traditional polymer processing techniques by adding chemical reduction agents. *Compos. Sci. Technol.*, 2017, vol. 140, pp. 16–22. <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2016.12.026>

15. Lavin-Lopez M. P., Paton-Carrero A., Sanchez-Silva L., Valverde J. L., Romero A. Influence of the reduction strategy in the synthesis of reduced graphene oxide. *Adv. Powder. Technol.*, 2017, vol. 28, iss. 12, pp. 3195–3203. <https://doi.org/10.1016/j.apt.2017.09.032>

16. Abdolhosseinzadeh S., Asgharzadeh H., Seop K. H. Fast and fully-scalable synthesis of reduced graphene oxide. *Sci. Rep.*, 2015, vol. 5, article no. 10160. <https://doi.org/10.1038/srep10160>

17. Sengupta I., Chakraborty S., Talukdar M., Pal S. K., Chakraborty S. Thermal reduction of graphene oxide: How temperature influences purity. *J. Mater. Res.*, 2018, vol. 33, iss. 23, pp. 4113–4122. <https://doi.org/10.1557/jmr.2018.338>

18. Liu G., Xiong Z., Yang L., Shi H., Fang D., Wang M., Shao P., Luo X. Electrochemical approach toward reduced graphene oxide-based electrodes for environmental applications: A review. *Sci. Total. Environ.*, 2021, vol. 778, article no. 146301. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.146301>. Epub2021

19. Harima Y., Setodoi S., Imae I., Komaguchi K., Ooyama Y., Ohshita J., Mizota H., Yano J. Electrochemical reduction of graphene oxide in organic solvents. *Electrochimica Acta*, 2011, vol. 56, iss. 15, pp. 5363–5368. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2011.03.117>

20. Tarcan R., Todor-Boer O., Petrovai I., Leordean C., Astilean S., Botiz I. Reduced graphene oxide today. *J. Mater. Chem. C*, 2020, vol. 8, pp. 1198–1224. <https://doi.org/10.1039/C9TC04916A>

21. Yakovlev A. V., Yakovleva E. V., Tseluikin V. N., Krasnov V. V., Mostovoy A. S., Rakhmetulina L. A., Frolov I. N. Electrochemical synthesis of multilayer graphene oxide by anodic oxidation of disperse graphite. *Russ. J. Electrochem.*, 2019, vol. 55, no. 12, pp. 1196–1202. <https://doi.org/10.1134/S102319351912019X>

22. Marrani A. G., Motta A., Schrebler R., Zannoni R., Dalchiele E. A. Insights from experiment and theory into the electrochemical reduction mechanism of graphene oxide. *Electrochimica Acta*, 2019, vol. 304, pp. 231–238. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2019.02.108>

23. Muzyka R., Drewniak S., Pustelny T., Chrubasik M., Gryglewicz G. Characterization of Graphite Oxide and Reduced Graphene Oxide Obtained from Different Graphite Precursors and Oxidized by Different Methods Using Raman Spectroscopy. *Materials*, 2018, vol. 11, iss. 7, pp. 1–15. <https://doi.org/10.3390/ma11071050>

Поступила в редакцию 12.01.2023; одобрена после рецензирования 25.01.2023; принята к публикации 15.03.2023
The article was submitted 12.01.2023; approved after reviewing 25.01.2023; accepted for publication 15.03.2023