



(12)

BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: **a 2019 00855**

(22) Data de depozit: **04/12/2019**

(45) Data publicării mențiunii acordării brevetului: **29/10/2021** BOPI nr. **10/2021**

(41) Data publicării cererii:
29/05/2020 BOPI nr. **5/2020**

(73) Titular:
• **INSTITUTUL NAȚIONAL DE
CERCETARE-DEZVOLTARE PENTRU
TEHNOLOGII CRIOGENICE ȘI IZOTOPICE,
STR.UZINEI NR.4, O.P.RÂURENI C.P.7,
RÂMNICU VÂLCEA, VL, RO**

(72) Inventatori:
• **MARINOIU TEODORA ADRIANA,
STR.TUDOR VLADIMIRESCU NR.93, BL.K,
SC.A, ET.2, AP.5, BĂILE GOVORA, VL, RO;**
• **CARCADEA ELENA, CALEA LUI TRAIAN
NR.60, BL.S31, SC.A, ET.4, AP.13,
RÂMNICU VÂLCEA, VL, RO;**
• **RĂCEANU MIRCEA, STR.ALEEA MUZICII,
NR.3-4, BL.RO, SC.3, ET.1, AP.8,
RÂMNICU VÂLCEA, VL, RO;**

• **CAPRIȘ IOAN-CĂTĂLIN,
STR.NICOLAE IORGA, NR.23, BL.ANL4,
SC.A, AP.1, RÂMNICU VÂLCEA, VL, RO;**
• **VARLAM MIHAI, STR. VASILE
OLĂNESCU NR. 14, BL.C10, SC.B, ET.1,
AP.13, RÂMNICU VÂLCEA, VL, RO**

(56) Documente din stadiul tehnicii:
**RO 131442 (A0); RO 132196 (A0); KUMAR
M. P., RAJU M. M., ARUNCHANDER A.,
SELVARAJ S., KALITA G., NARAYANAN T.
N., SAHU A. K., PATTANAYAKA D. K.,
"NITROGEN DOPED GRAPHENE AS
METAL FREE ELECTROCATALYST FOR
EFFICIENT OXYGEN REDUCTION
REACTION IN ALKALINE MEDIA AND ITS
APPLICATION IN ANION EXCHANGE
MEMBRANE FUEL CELLS", JOURNAL OF
THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY,
VOL. 163(8), PP. F848-F855, 2016**

(54) **PROCEDEU DE PREPARARE MATERIALE GRAFENICE
DOPATE CU AZOT ÎN CÂMP DE MICROUND**



RO 134113 B1

1 Invenția se referă la un procedeu de obținere a materialelor grafenice dopate cu azot
în câmp de microunde, ceea ce oferă în special avantajul de producere rapidă, eficientă și
3 ieftină. Materialele grafenice dopate cu azot sunt recunoscute pentru stabilitatea electro-
chimică ridicată și au numeroase aplicații în producerea de electrozi în diverse dispozitive
5 electrochimice.

Este cunoscut din cererea de brevet **RO 131442 (A0)** un procedeu de preparare a
7 unui material nanocompozit pe baza de chitosan și grafenă dopată cu atomi de azot, utilizat
pentru modificarea suprafeței unor electrozi aurii, pentru detectarea ionilor Pb în soluții
9 apoase.

De asemenea, este cunoscut din cererea de brevet **RO 132196 (A0)** un procedeu de
11 obținere a unui material nanocompozit utilizat pentru modificarea unui senzor pentru detec-
tarea pirocatechinei din soluții apoase.

13 Este cunoscută din articolul "**Nitrogen doped graphene as metal free
electrocatalyst for efficient oxygen reduction reaction in alkaline media and its
15 application in anion exchange membrane fuel cells**", Kumar M. P., Raju M. M.,
Arunchander A., Selvaraj S., Kalita G., Narayanan T. N., Sahu A. K., Pattanayaka D. K.
17 (2016), pag. 848-855 sinteza simplă a grafenei dopată cu N în prezența melaminei ca
precursor al azotului, activitatea de reacție de reducere a oxigenului în mediu alcalin este
19 studiată cu raport variabil GO la melamina pentru a optimiza conținutul de N din foaia de
grafen, iar grafenul N-dopat rezultat este utilizat drept catalizator catodic și performanța este
21 evaluată într-o celulă de combustie cu membrană schimbătoare de anioni la 60°C.

Grafena, un strat bidimensional de atomi de carbon, este binecunoscută ca un
23 element constituent pentru toate tipurile de materiale grafitice, de tipul nanotuburi de carbon,
fulerene, grafit. Grafena are o grosime de numai 0,34 nm, iar acest strat este format din
25 atomi de carbon într-o stare de hibridizare sp^2 , aranjate astfel încât fiecare atom de carbon
este legat covalent la alți trei atomi.

27 Grafena dopată heteroatomic a demonstrat o activitate electrocatalitică ridicată, în
special datorită următoarelor proprietăți:

29 - grafena posedă o mare suprafață specifică teoretică (SSA) de $\sim 2600 \text{ m}^2/\text{g}$, care
este de două ori mai mare decât la nanotuburi de carbon;

31 - grafena are o structură plană complet conjugată sp^2 hibridizată, dând naștere la o
conductivitate electrică foarte ridicată, proprietăți mecanice excelente și o termocon-
33 ductivitate ridicată;

35 - grafena funcționalizată ori dopată chimic conține defecte de rețea (locuri goale,
găuri) și grupări funcționale de suprafață (carbonil, epoxid, hidroxil etc), care pot ancora și
imobiliza diverse nanoparticulele.

37 Astfel, materialele grafenice au atras o atenție considerabilă datorită proprietăților
sale fizice și chimice superioare, cum ar fi: suprafață specifică mare, conductivitate elec-
39 tronică excelentă și rezistență mecanică ridicată, ceea ce le conferă statutul de candidate
ideale pentru aplicații în diverse domenii electrochimice, cum ar fi pile de combustibil, baterii,
41 senzori, celule solare și supercapacitori. Dintre materialele grafenice, oxidul de grafenă (GO)
a primit o atenție remarcabilă ca o clasă valoroasă de derivați de grafenă, datorită stabilității
43 sale chimice, a conductivității ridicate și a capacității de a forma cu ușurință legături chimice.
Cercetări recente au demonstrat că introducerea de heteroatomi în rețeaua de carbon ar
45 putea îmbunătăți considerabil proprietățile de suprafață, în principal prin optimizarea
distribuției sarcinii electronice. Astfel, doparea folosind elemente de tip p și n (N, B, O, P, S)
47 este un mod eficient de modificare a proprietăților electrice, chimice sau fizice ale GO.

RO 134113 B1

Atomul de azot are 5 electroni pe ultimul nivel energetic, dintre care trei sunt nepereche, numiți participanți, în formarea legăturilor covalente, iar doi pereche, neparticipanți. Electronii nepereche generează o structură electronică ce acționează ca semiconductor de tip n, ceea ce îmbunătățește performanța electrocatalitică a grafenei dopate.	1
Rețeaua de carbon poate fi dopată cu ușurință cu atomi de azot (N) datorită dimensiunilor atomice similare (0,77 Å pentru C, respectiv 0,7 Å pentru N) și datorită unei electronegativități (Pauling) mai mari a azotului față de carbon ($\chi_N = 3/04$ și respectiv $\chi_C = 2,55$).	3
Doparea cu azot duce la perturbarea hibridizării ideale sp^2 a atomilor de carbon și la modificări semnificative ale reactivității chimice și proprietăților electronice ale rGO. În particular, grafena dopată cu N a fost intens investigată ca și catalizator promițător pentru reacția de reducere a oxigenului (ORR), în special datorită îmbunătățirii proprietăților electronice în reacțiile cu transfer de electroni.	5
Diferite substanțe, precum amoniac, uree, săruri de amoniu și săruri organice au fost cercetate ca precursori de N. Până recent, grafena dopată cu N a fost preparată prin descompunerea chimică din vapori (CVD), descărcarea în arc a unui electrod grafitic în prezența vaporilor piridinici, exfolierea termică a oxidului de grafit cu NH_3 , tratarea în plasmă cu azot a grafenei, descompunerea termică și cale solvotermală.	7
Până în prezent, grafenele dopate cu N au fost sintetizate preponderent prin diferite metode de călire termică. A fost dezvoltată o metodă de sinteză fără catalizator pentru prepararea grafenei dopate cu N, prin tratamentul termic al oxidului de grafit cu melamină (ca sursă de azot). Metoda a inclus trei etape:	9
- moleculele de melamină au fost adsorbite pe oxid de grafit (GO) pre-sintetizat;	11
- melamină a fost apoi condensată la nitrură de carbon, la temperaturi ridicate (600°C);	13
- în final, odată cu eliminarea grupurilor de oxigen de pe nano-foițele de grafene la temperaturi ridicate, atomii de azot pot fi dopați în situ-rile active furnizate.	15
Concentrația azotului dopat poate fi reglată prin modificarea raportului masic al GO față de melamină și prin temperatura de călire. Grafena dopată cu cel mai ridicat nivel de dopare cu azot de 10,1% s-a obținut cu un raport de masă GO/melamină de 1/5 la 700°C [Zhen-Huan Sheng, Lin Shao, Jing-Jing Chen, Wen-Jing Bao, Feng-Bin Wang, Xing-Hua Xia, " <i>Catalyst-free synthesis of nitrogen-doped graphene via thermal annealing graphite oxide with melamine and its excellent electrocatalysis</i> ", <i>ACS Nano</i> , VOL. 5, NO. 6, 4350-4358, 2011].	17
Au fost preparate grafene dopate cu N prin călirea termică a GO în atmosferă de amoniac. S-a arătat că grupele care conțin oxigen pe suprafața GO sunt esențiale pentru formarea C-N din reacția dintre GO și NH_3 . Cea mai mare concentrație de dopare cu N de 5% masic a fost realizată la o temperatură de 500°C.	19
În ultimii ani, sinteza în fază gazoasă fără substrat grafenic a fost realizată prin tratament în plasmă. S-a dezvoltat o metodă de a transforma grafenele multistrat în grafene monostrat într-un mediu de plasmă cu hidrogen și azot. În comparație cu alte condiții grele, tratamentul cu plasmă poate fi realizat în condiții ambientale. Din punct de vedere al eficienței energetice și privită ca metodă alternativă ecologică pentru a sintetiza materiale carbonice, tratamentul cu plasmă a fost utilizat pentru a prepara grafene dopate cu heteroatom (în principal N) sau GO. În atmosferă de plasmă cu N_2 sau NH_3 , atomii de carbon din grafenă pot fi înlocuiți cu azot. Au fost obținute grafene dopate cu N prin tratare cu plasmă a grafenei suportate pe nano-foițe de electrod din cărbune sticlos, într-o atmosferă de azot.	21

RO 134113 B1

1 Prin procedeul CVD, s-au sintetizat grafene dopate cu azot pe substrat de foiță de
Cu, utilizând polistiren, uree și acid boric ca precursori ce conțin C, N. Prin schimbarea
3 concentrației precursorilor, concentrația de dopare de N poate fi reglată de la 0,9% la 4,8%.
S-a constatat că tipurile de azot variază în funcție de concentrația de dopare N în filmele
5 grafenice. Pentru grafena dopată cu circa 2,1%, configurația legăturii N este predominant de
N piridinic. Cu toate acestea, pentru grafena dopată cu circa 4,8%, produsul final este
7 alcătuit din 60,2% conținut N piridinic și 39,8% conținut de N pirolitic. Un astfel de rezultat
indică faptul că proprietățile grafenei dopate cu N pot fi manipulate prin controlul gradului de
9 dopare [Tianru Wu, Honglie Shen, Lei Sun, Bin Cheng, Bin Liu, Jiancang Shen, "**Nitrogen
and boron doped monolayer graphene by chemical vapor deposition using
11 polystyrene, urea and boric acid**", *NewJ. Chem.*, 2012, 36, 1385-1391].

Procentul de azot dopat în grafene poate fi controlat în intervalul 0,11-1,35% prin
13 controlul timpului de expunere. S-a constatat, de asemenea, că tratamentul cu plasmă nu
duce numai la doparea azotului în grafenă, ci și la creșterea conținutul de oxigen, de la
15 aproximativ 15% în cazul grafenei, până la aproximativ 27% în grafene dopate cu N. S-a
încercat o abordare graduală pentru a reduce simultan GO și a introduce azot în GO la
17 temperatura apropiată de cea a camerei, prin tratare cu plasmă într-o atmosferă de amestec
de gaz de H₂ și NH₃. Sinteza poate produce cantități de grafene dopate cu N cu un nivel
19 ridicat de dopare de azot de 5,8%, dar la scară mică. Într-un alt studiu, s-au sintetizat foi
grafenice mono sau dublu strat pe folii de cupru prin procedeul în plasmă, în cuptor cu
21 microunde, folosind polimetilmetacrilat ca sursă de carbon. Grafenele dopate cu N cu
concentrație în jurul valorii de 5% au fost apoi obținute prin tratarea în plasmă cu N₂/H₂.
23 Măsurătorile XPS au arătat că cei mai mulți dintre atomii de azot dopați au o structură
piridinică, această structură fiind atribuită naturii policristaline a foilor de grafen și formării
25 spațiilor libere de carbon, prin tratare în plasmă N₂/H₂.

Au fost dezvoltate o serie de tratamente solvotermale și hidrotermale de preparare
27 a grafenelor dopate cu N. A fost dezvoltată o metodă de preparare solvotermală la o scară
de ordinul gramelor prin reacția dintre nitrura de litiu (Li₃N) și tetraclorometan (CCl₄) la 250°C,
29 timp de 10 h, sau între clorură cianurică (N₃C₃Cl₃), Li₃N, și CCl₄ la 350°C, timp de 6 h
[Dongsheng Geng, Ning Ding, T. S. Andy Hor, Zhaolin Liu, Xueliang Sun, Yun Zong,
31 „**Potențial de metal-free "graphene alloy" as electrocatalysts for oxygen reduction
reaction**", *J. Mater. Chem. A*, 2015, 3, 1795-1810, 1795].

33 Principalele dezavantaje ale procedeelor menționate le constituie metodele de
preparare implicate, cu multiple activități de operare, precum și echipamentele sofisticate,
35 făcând ca procedeele să fie puțin atractive pentru a fi transpuse la scară mai mare de
producție. Alte dezavantaje sunt condițiile de reacție dure, ce necesită temperaturi înalte
37 pentru descompunerea termică, vid înalt ori condiții supercritice. În plus, prin aceste
procedee rezultă materiale grafenice de calitate mai slabă (prezintă multe defecte
39 structurale). Prin urmare, sinteza grafenei dopate cu N utilizând o metodă de sinteză facilă
reprezintă încă un subiect de mare actualitate.

41 Problema tehnică pe care o rezolvă invenția constă în obținerea într-o singură etapă
de reacție a materialelor grafenice dopate cu azot cu stabilitatea electrochimică ridicată

43 Procedeul, conform invenției, utilizează sinteza într-o singură etapă de reacție, iar
această cale de sinteză prezintă un mare potențial pentru a fi optimizată și îmbunătățită,
45 astfel încât să permită obținerea la scară industrială a grafenelor de calitate superioară,
utilizând un protocol mai ieftin, mai rapid și mai eficient.

RO 134113 B1

Procedeul, conform invenției, prezintă o abordare originală: o cale rapidă și eficientă din punct de vedere al costurilor, de preparare a grafenelor dopate cu N, pornind de la oxid de grafenă comercial, diverse surse de azot (amoniac, uree, diverse săruri organice) și un agent reducător (etanol). 1
3

Conform exemplului 1, s-a folosit amoniacul ca sursă de azot, întrucât activarea catalitică a legăturii N-H la utilizarea acestui precursor este bine cunoscută în chimia N1. Amoniacul este un compus chimic format dintr-un atom de azot și trei atomi de hidrogen. Molecula de amoniac are o structură piramidal-trigonală, având suprafețe tetraedrice, care au în colț un atom de azot cu o pereche liberă de electroni. Amoniacul are un caracter amfoter. Amoniacul conține cantitate mare de azot (82% masic) și structură bi-funcțională. 5
7
9

Grafena dopată cu N (Proba A) a fost preparată folosind o metodă chimică simplă, descrisă în continuare. O cantitate de 250 mg pulbere de oxid de grafenă (GO) a fost bine dispersată în apă demineralizată și apoi într-o soluție de etanol, folosind atât o baie cu ultrasunete, cât și un ultrasonicator. S-a adăugat soluție de amoniac la dispersia de GO și din nou s-a ultrasonat. Amestecul obținut a fost introdus într-un reactor cu microunde (cuptor MARS 6 One touch, CEM) timp de 15 min, în următoarele condiții de reacție: temperatură de reacție 60-80°C, putere microunde 800 W. Amestecul de reacție, care conține un lichid polar, adsoarbe energia produsă de microunde foarte rapid. Astfel, temperatura în masa de suspensie crește rapid, determinând reacția probei într-un timp scurt. Produsul de reacție a fost evacuat, separat, spălat intensiv cu apă deionizată și, la final, uscat prin liofilizare. Se obține grafena dopată cu azot, pulbere. Produsul obținut (N/rGO), perfect dispersabil în apă deionizată (baie cu ultrasunete, 15 min) poate fi uscat și redispersat, fiind potrivit pentru a fi utilizat drept material catalitic. 11
13
15
17
19
21
23

Conform exemplului 2 (Proba B), s-a folosit ca sursă de azot o soluție apoasă pe bază de uree (2,43%), complet netoxică și neinflamabilă. Ureea (denumită și diamida acidului carbonic) este compusul organic cu formula moleculară $\text{CO}(\text{NH}_2)_2$, folosit frecvent în reacții organice, datorită conținutului ridicat de N. 25
27

Grafena dopată cu N a fost preparată folosind o metodă chimică simplă, descrisă în continuare. O cantitate de 250 mg pulbere de oxid de grafenă (GO) a fost bine dispersată în apă demineralizată și apoi într-o soluție de etanol, folosind atât o baie cu ultrasunete, cât și un ultrasonicator. S-a adăugat soluția de uree (2,5 g uree 98%, 100 ml apă deionizată) la dispersia de GO și din nou s-a ultrasonat. Amestecul obținut a fost introdus în reactorul cu microunde timp de 15 min, în condițiile de reacție menționate (temperatura de reacție 60-80°C, putere microunde 800 W). Produsul de reacție a fost separat, spălat intensiv cu apă deionizată și, în final, uscat prin liofilizare. Se obține grafena dopată cu azot pulbere, un produs, de asemenea, perfect dispersabil în apă. 29
31
33
35

Procedeului conform invenției, include o metodologie de lucru, prezentată schematic în fig. 1. 37

Procedeul de preparare a grafenelor dopate cu azot conform invenției, este simplu, într-o singură etapă, nu prezintă dificultăți tehnologice de sinteză (se realizează într-o instalație simplă de laborator), activitățile de operare, exploatare și control sunt ușor de executat pe parcursul etapelor întregului proces, procedeul este economic, iar reactivii și materialele folosite sunt ușor accesibile și ieftine, comparativ cu metodele actuale de preparare a grafenelor dopate cu azot. 39
41
43

Materialul grafenă dopată cu azot, conform invenției, constă în aceea că se obține pornind de la oxid de grafenă comercial, printr-un procedeu într-o singură etapă de reacție, în condiții blânde de reacție în câmp de microunde (60-80°C, 800 W). 45
47

RO 134113 B1

1 Se prezintă în continuare 2 exemple de materiale tip grafenă dopată cu azot
preparate conform invenției, în legătură cu fig. 2...7 ce reprezintă:

3 - fig. 2, prezintă rezultatele măsurătorilor de spectroscopie de fotoelectroni de raze
X, cu referire la materialul grafenă dopată cu N, pornind de la precursorul de N - soluție de
5 amoniac (Proba A);

7 - fig. 3, prezintă rezultatele măsurătorilor de spectroscopie de fotoelectroni de raze
X, cu referire la materialul grafenă dopată cu N, pornind de la precursorul de N - soluție de
uree (Proba B);

9 - fig. 4, prezintă izotermele de adsorbție - desorbție a azotului obținute prin metoda
BET, cu referire la materialul grafenă dopată cu N, pornind de la precursorul de N - soluție
11 de amoniac (Proba A).

13 - fig. 5, prezintă distribuția mărimii porilor prin metoda BJH, cu referire la materialul
grafenă dopată cu N pornind de la precursorul de N - soluție de amoniac (Proba A);

15 - fig. 6, prezintă izotermele de adsorbție - desorbție a azotului obținute prin metoda
BET, cu referire la materialul grafenă dopată cu N, pornind de la precursorul de N - soluție
de uree (Proba B);

17 - fig. 7, prezintă distribuția mărimii porilor prin metoda BJH, cu referire la materialul
grafenă dopată cu N pornind de la precursorul de N - soluție de uree (Proba B).

19 Compoziția elementară a grafenelor dopate cu azot a fost realizată prin măsurători
de spectroscopie de fotoelectroni cu raze X (XPS). Această tehnică avansată a confirmat
21 doparea cu azot, astfel:

23 - materialele grafenice dopate cu N, pornind de la precursorul de N - soluție de
amoniac au dat cea mai mare concentrație de dopare cu N de 2,84% atm, respectiv 3,15%
wt. (Proba A).

25 - materialele grafenice dopate cu N, pornind de la precursorul de N - soluție de uree
au dat cea mai mare concentrație de dopare cu N de 1,3% at, respectiv 1,45% wt (Proba B).

27 De asemenea, pentru ambele tipuri de probe a fost pusă în evidență și prezența
atomilor de C și O.

29 Măsurătorile de spectroscopie de fotoelectroni de raze X au fost realizate utilizând
spectrometrul de fotoelectroni de raze X, PHI-5000 VersaProbe, PHI-Ulvac/Physical
31 Electronics). Spectrele XPS au fost achiziționate utilizând radiația Al K α monocromatică
(1486,7 eV). Analiza elementară calitativă a probelor analizate s-a făcut prin achiziționarea
33 spectrelor largi, iar identificarea diferitelor tipuri de legături chimice care se formează la
suprafață s-a realizat prin deconvoluțiile spectrelor de înaltă rezoluție ale elementelor chimice
35 existente la suprafața probei respective. Spectrele XPS au fost interpretate utilizând
software-ul PHI-MultiPak. Concentrațiile atomice ale elementelor chimice au fost determinate
37 din ariile peak-urilor, ținând cont de factorii de sensibilitate ale elementelor analizate,
realizându-se astfel analiza elementară cantitativă. În fig. 2 și 3 sunt prezentate spectrele
39 largi, deconvoluțiile spectrelor de înaltă rezoluție și concentrațiile atomice ale elementelor
chimice pentru probele analizate.

41 Măsurătorile de suprafață specifică a grafenelor dopate cu azot (pulbere) s-au
efectuat utilizând echipamentul Autosorb IQ Quantachrome prin metoda Brunauer-Emmett-
43 Teller (BET). Izotermele de adsorbție și desorbție de azot au fost măsurate la 77 K, iar
rezultatele sunt prezentate în fig. 4 și 6. Suprafața specifică a fost calculată (tabelul 1).
45 Analizele de porozitate, respectiv volumul porilor și raza porilor au fost estimate prin metoda
Barret-Joyner-Halenda (BJH) și sunt prezentate în fig. 5 și 7. Înainte de măsurătorile de
47 adsorbție propriu-zise, probele a fost degazate la 393 K, timp de 10 h.

RO 134113 B1

Izotermele de adsorbție-desorbție au fost analizate și forma acestora a fost atribuită tipului IV conform clasificării IUPAC. Adsorbția verticală de gaz în domeniul de presiuni joase (până la $P/P_0 = 0,02$), precum și apariția buclei de histeresis între $P/P_0 = 0,4$ și $P/P_0 = 1,0$ sunt rezultatele coexistenței atât a microporilor, cât și a mezoporilor. Suprafața BET calculată și proprietățile texturale estimate pentru volumul de pori și raza porilor sunt prezentate în tabelul 1. Se constată că suprafețele calculate sunt mai mici decât suprafața calculată pentru materialul GO inițial ($397 \text{ m}^2/\text{g}$) [7]. Valorile BET obținute pentru ambele probe preparate sugerează că procesul de dopare a condus la diminuarea suprafeței specifice, dar volumul de pori a fost destul de bine conservat față de structura GO inițială.

Proprietăți fizice și chimice ale probelor preparate

Tabelul 1

Proba	Compoziție chimică (at%)			Compoziție chimică (wt%)			Suprafața specifică (m^2g^{-1})	Rază por (nm)	Volum pori ($\text{cm}^3 \text{g}^{-1}$)
	C	O	N	C	O	N			
Proba A	83,34	13,82	2,84	79,31	17,53	3,15	83	1,96	1,068
Proba B	85,92	12,78	1,3	82,33	16,3	1,45	232	1,97	0,534

RO 134113 B1

Revendicări

1

3

1. Procedeu de obținere a unui material nanocompozit de grafene dopate cu azot, **caracterizat prin aceea că**, sinteza materialului are loc într-o singură etapă de reacție, prin amestecarea suspensiei ultrasonată de oxid de grafenă cu etanol ca agent reducător - și un precursor de azot care poate fi amoniacul sau ureea, introducerea amestecului într-un câmp de microunde de 800 W, la o temperatură cuprinsă între 60...80°C, evacuarea produsului de reacție, separarea, spălarea cu apă deionizată și, la final, uscarea prin liofilizare, obținându-se grafena dopată cu azot sub formă de pulbere.

5

7

9

11

2. Procedeu de obținere a unui material nanocompozit conform revendicării 1, **caracterizat prin aceea că**, pornind de la soluție de amoniac drept precursor de N, se obține o grafenă dopată cu azot care are o concentrație de dopare cu N de 2,84% atm, respectiv 3,15% wt, o suprafață specifică între 70-300 m²/g și o porozitate mare.

13

15

3. Procedeu de obținere a unui material nanocompozit conform revendicării 1, **caracterizat prin aceea că**, pornind de la soluție de uree drept precursor de N, se obține o grafenă dopată cu azot care are o concentrație de dopare cu N, de 1,3% atm, respectiv 1,45% wt, o suprafață specifică între 70-300 m²/g și o porozitate mare.

17

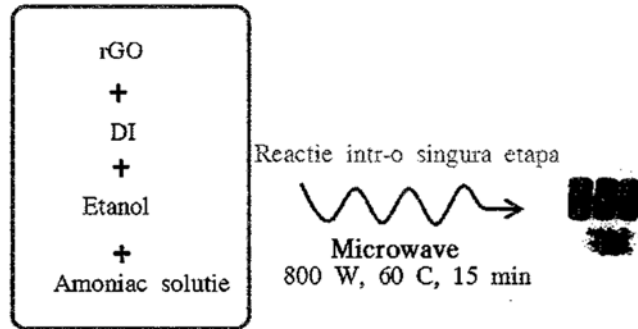


Fig. 1

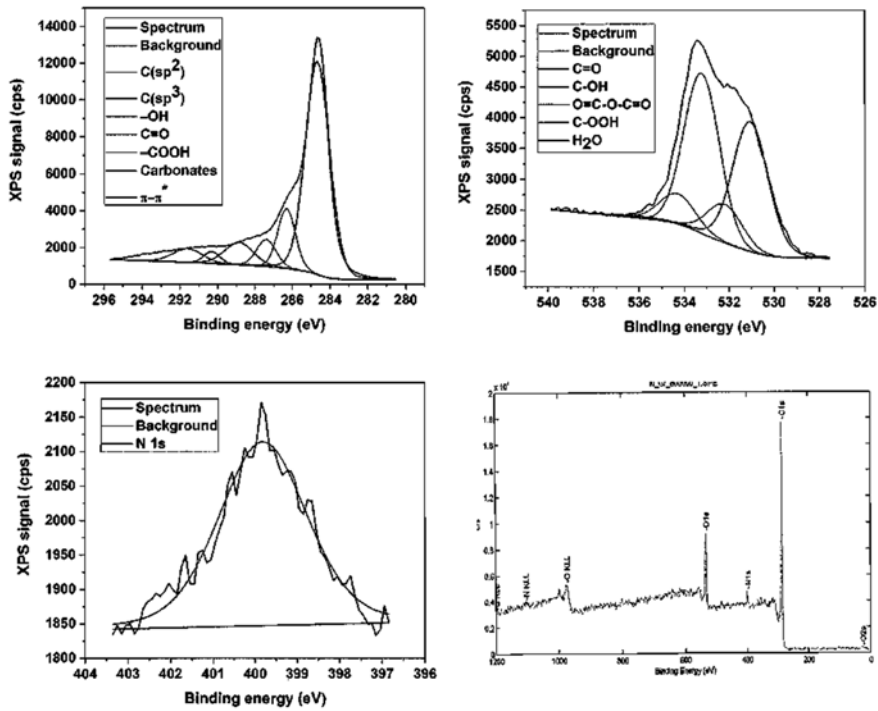


Fig. 2

(51) Int.Cl.

C01B 32/18 (2017.01),

C01B 32/19 (2017.01)

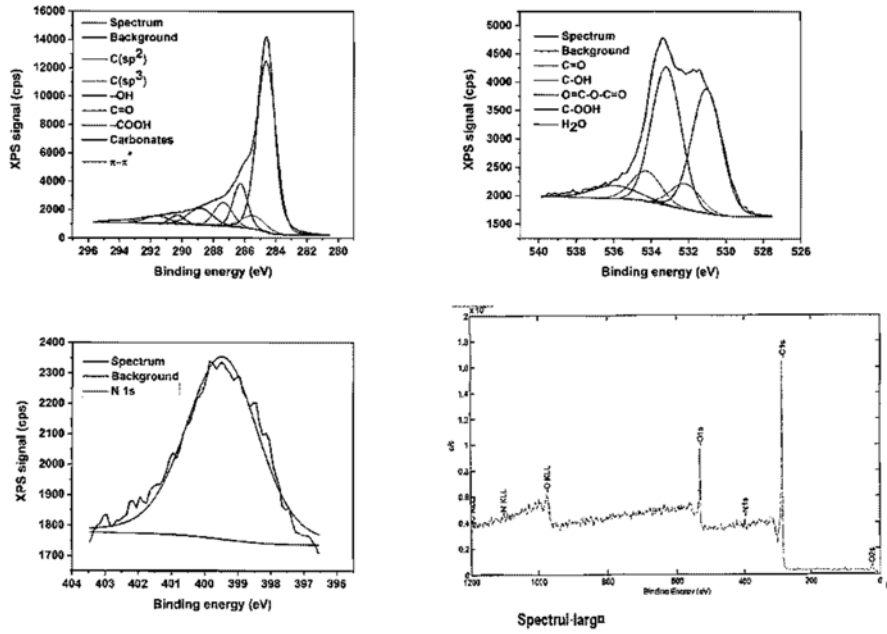


Fig. 3

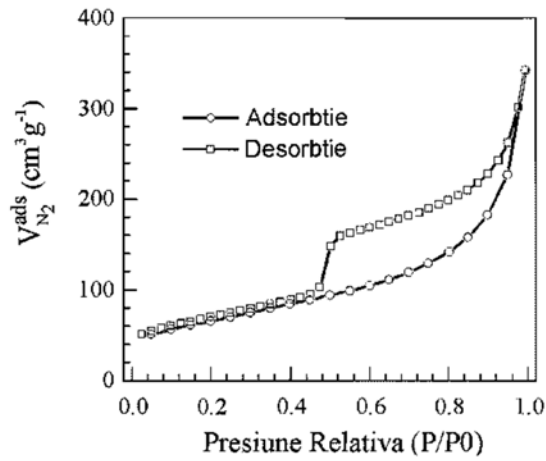


Fig. 4

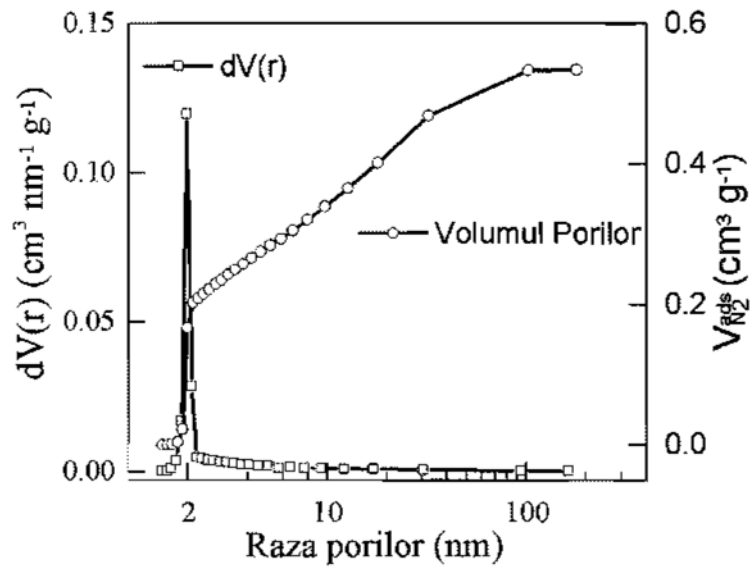


Fig. 5

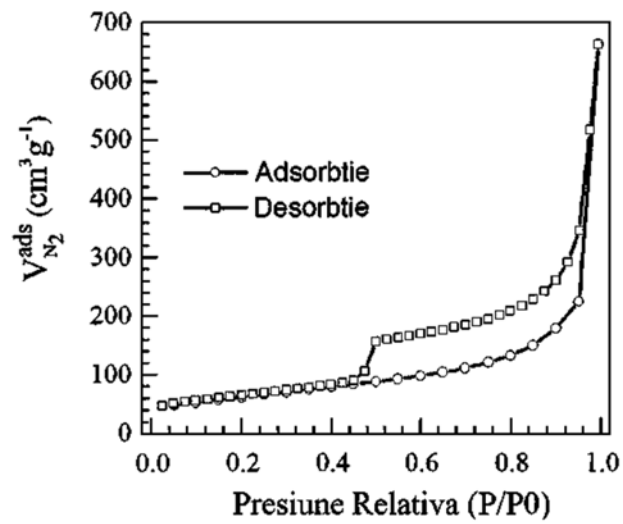


Fig. 6

(51) Int.Cl.

C01B 32/18 (2017.01),

C01B 32/19 (2017.01)

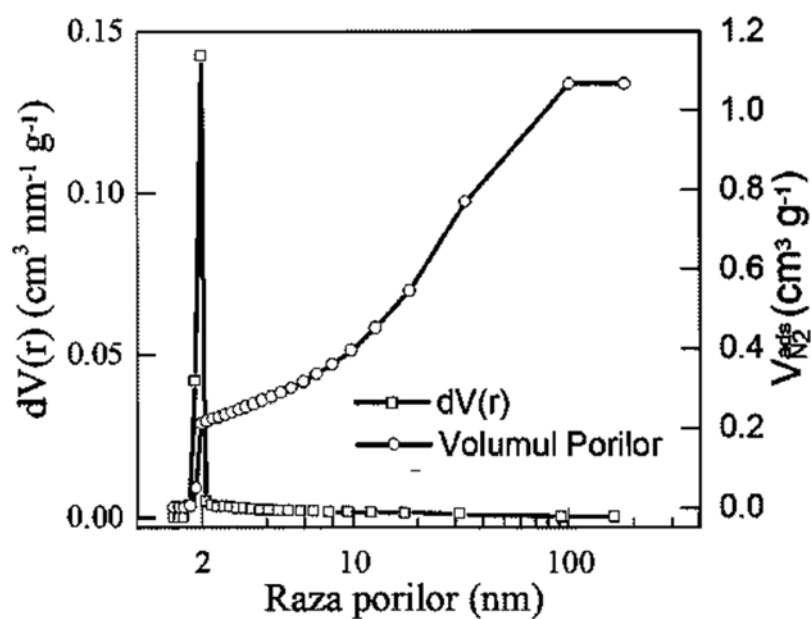


Fig. 7



Editare și tehnoredactare computerizată - OSIM
 Tipărit la Oficiul de Stat pentru Invenții și Mărci
 sub comanda nr. 473/2021