مجلة جامعة دمشق للعلوم الهندسية
المجلد41 العدد(1) – 2025: 61–75

Damascus University Journal for engineering sciences
Vo 41 number (1) -2025: 61-75

النمذجة الإحصائية لخصائص الخيوط القطنية المعالجة بحبر الغرافين باستخدام تقنية إرجاع الموقع

ميسم محمد الأحمر*[1] باسل يونس[2] إبراهيم الغريبي[3]

*[1]. طالبة دكتوراة قسم هندسة ميكانيك الصناعات النسيجية وتقاناتها، كلية الهندسة الميكانيكية والكهربائية، جامعة دمشق، سوريا. MaisamAl-Ahmar@Damascusuniversity.edu.sy

[2]. أستاذ ، قسم هندسة ميكانيك الصناعات النسيجية وتقاناتها، كلية الهندسة الميكانيكية والكهربائية، جامعة دمشق، سوريا BaselYounes@Damascusuniversity.edu.sy .

[3]. أستاذ ، قسم الفيزياء، جامعة دمشق، سوريا.
IbrahimAlghoraibi@Damascusuniversity.edu.sy

الملخّص:

حُضر في هذا البحث خيوط قطنية ناقلة للكهرباء من خلال معالجتها بحبر الغرافين الناقل للكهرباء وذلك بواسطة تقنية الغمس والتجفيف، حيث تم غمس الخيوط القطنية في محلول من أكسيد الغرافين المحضر بطريقة الأكسدة الكيميائية، ومن ثم إرجاع أكسيد الغرافين بشكل مباشر على الخيوط من خلال محلول الهيدرازين، وذلك ضمن حمام من الأمواج الفوق الصوتية، وتم دراسة العوامل المؤثرة على عملية الإرجاع والتي هي (الزمن، التركيز، درجة الحرارة)، كما تم توصيف الخيوط المعالجة بأكسيد الغرافين المرجع عليها بشكل مباشر كهربائياً من خلال قياس المقاومة الكهربائية للخيوط المعالجة، وإجراء نمذجة إحصائية لدراسة التأثير المتبادل بين هذه العوامل المدروسة وأهمية تأثير كل عامل على جودة عملية الإرجاع على الخيط حيث تَبيّن أنَّ تغيير شروط عملية الإرجاع يؤثر بصورة كبيرة على الخواص الكهربائية للغرافين المحضر على الخيط القطني، وشُخصت الخواص البنيوية والضوئية للخيوط المعالجة من خلال المجهر الالكتروني الماسح (SEM) وجهاز تحليل التركيب العنصري(EDs)، وكما تم دراسة السلوك الحراري للخيط المعالج بحبر الغرافين من خلال تطبيق جهد عليه(20(V فكانت درجة الحرارة المتولد عنه(32(c^{O} ودراسة البارامترات المؤثرة على السلوك الحراري، وذلك من أجل إدراج الخيوط المعالجة بالغرافين في الأقمشة الذكية المستخدمة في التطبيقات الكهربائية والحرارية.

الكلمات المفتاحية: أكسيد الغرافين(GO)، أكسيد الغرافين المرجع(RGO)، الهيدرايزين، الخيط القطني، المجهر الماسح الضوئي (SEM).

تاريخ الايداع: 2022/12/12
تاريخ القبول: 2023/3/2

حقوق النشر: جامعة دمشق – سورية، يحتفظ المؤلفون بحقوق النشر بموجب **CC BY-NC-SA**

Statistical modeling of the properties of graphene ink-treated cotton yarns using the site reduction technique

Maisam Mohamad Al-Ahmar*[1] Basel Younes[2] Ibrahim Alghoraibi[3]

*[1]. PhD Student, Department of Mechanical Engineering for Textile Industries, Faculty of Mechanical and Electrical Engineering, Damascus University, Syria. MaisamAl-Ahmar@Damascusuniversity.edu.sy

[2]. Supervising Professor, Department of Mechanical Engineering for Textile Industries, Faculty of Mechanical and Electrical Engineering, Damascus University, Syria. BaselYounes@Damascusuniversity.edu.sy

[3]. Associate Supervising Professor, Department of Physics, and Damascus University, Syria. IbrahimAlghoraibi@Damascusuniversity.edu.sy

Received: 12/12/2022

Accepted: 2/3/2023

Copyright: Damascus University- Syria, The authors retain the copyright under a CC BY- NC-SA

Abstract:

In this research, conductive cotton yarns were produced by processing them with conductive graphene ink through dipping and drying technology. in which the cotton yarn was dipped into a solution of graphene oxide prepared in the chemical oxidation way, and then directly reduced the graphene oxide on the strands through the hydrazine solution in a bath of ultrasonic waves, the factors affecting the reduction process were studied. (time, concentration, temperature), as the graphene oxide-treated yarns directly reduced electrically by measuring the electrical resistance of the treated yarns, Statistical modelling to study the cross-effect of these factors and the importance of each factor's impact on the quality of the reduction process on the yarns, as it was shown that changing the terms of the reduction process significantly affects the electrical properties of the graphene produced on the cotton yarn and the structural and optical properties of the yarns processed were diagnosed through the scanning electron microscope (SEM) and Energy-dispersive X-ray spectroscopy(EDs), and the thermal behavior of graphene-treated yarn was also studied by applying an voltage it (20) Volt generated temperature was 32 c^{O} and studied parameters affecting thermal behavior, in order to include graphene-treated yarns in smart fabrics used in electrical and thermal applications.

Keywords: Graphene oxide (GO), Reduced graphene oxide (RGO), Hydrazine, Cotton yarn, Scanning electron microscope (SEM).

المقدّمة:

تزايد الطلب على الخيوط الناقلة للكهرباء التي يتم نسجها وحياكتها في المنسوجات الذكية لكونها بديلة عن الأسلاك النحاسية المستخدمة في الأقمشة، حيث تمكن الخيوط الناقلة للكهرباء إدخال الخصائص الكهربائية للأقمشة من أجل مختلف التطبيقات التقنية (Tang.Y et al.,10,2022)، ويتم تصنيع الخيوط الناقلة للكهرباء من خلال معالجتها بمواد موصلة مثل المواد المعدنية أو الكربونية بطرق مختلفة مثل الرش، والطلاء السطحي، والطباعة على الشاشة (Jakubinek.M et al., 244 – 248,2012).

تتصف الدوائر الإلكترونية التقليدية بصلابة الركيزة (A. C. Siegel et al.,28-35,2010) وبالتالي لها حدود مقيدة لاستخدامها في مختلف التطبيقات، في حين أن الدوائر الالكترونية المستخدمة في الأقمشة الذكية تكون مرنة (A.C.Siegel et al.,28-35,2010 and S.Afroj et al., 103945,2022) ، وتستخدم في العديد من التطبيقات حيث تُستخدم المنسوجات الإلكترونية حاليًا في العديد من تطبيقات المراقبة لنشاطات جسم الإنسان الحيوية (Karim.N et al.,12266–12275,2017) ، وتستخدمها في تقدير النشاط البدني في الألعاب الرياضية اللازم للتدريب وإعادة تأهيل الرياضيين، والمراقبة الطبية مثل مستشعرات معدل ضربات القلب (K.Alexander and M,Shlom,48.2019) ، وأنظمة السلامة المساعدة لاستجابة الطوارئ، والتطبيقات التجارية حيث يتم دمج أدوات التحكم الإلكترونية وشاشات العرض ولوحات المفاتيح في الملابس اليومية (K.Alexander and M,Shlom,48.2019),(P. Sungmee and S. Jayaraman,41-48,2003),(He.S et al.,1-13,2018) and (Rchana.S and Bordes. R, 2396–2403, 2020).

ومن أهم المواد التي تدخل في بناء الدوائر الالكترونية المرنة هي مادة الغرافين والتي تعد مادة رخيصة نسبياً مقارنة بالمواد النانومترية الأخرى (P. Drzaic et al., 1131-1134,2010 and K. Cherenack and L. v. Pieterson,091301,2012) ، فهي البديل الأول عن الأحبار المعدنية الباهظة الثمن (P. Drzaic et al., 1131-1134,2010) ، التي تتطلب عملية تصنيعها درجات حرارة عالية، وتستخدم في العديد من التطبيقات التقنية كالخلايا الشمسية الصباغية والبطاريات (P.Kewen et al., 5197,2018)، والمكثفات عالية السعة (F.J. Jiang et al., 2369–2380,2019) ، والحساسات (Sahitoa.T and Sun.K, 299–306,2015) ، والأغشية الناقلة للكهرباء (Sahitoa.T and Sun.K, 299–306, 2015,and He.S and Xin.B, 1038 - 1050,2021)، وفي التطبيقات الليزرية وفلترة المياه والتحفيز الضوئي والأجهزة الكهرضغطية(Sahitoa.T and Sun.K, 299–306, 2015,and He.S and Xin.B,1038-1050,2021)، وترانزستورات الأغشية الرقيقة (K.Alexander and M,Shlom., 1712-1740,2017) وغيرها، ومن تطبيقاته الواعدة في مجال المنسوجات الذكية (Liu,Y et al., 611,2021, Samanta.A and Bordes.R, 2396–2403, 2020 and Noothongkaew and O. Thumthan, 12266−12275,2017) واستخدامها كمستشعرات في نظم مراقبة الأنشطة الحيوية للإنسان، كونها تمتاز بخفة بالوزن وقابلية للطي اضافةً لموصليتها العالية للتيار الكهربائي (Samanta.A and Bordes.R, 2396–2403, 2020, Kkarim.N et al., 12266−12275,2018 and Noothongkaew and O. Thumthan, 12266−12275,2017) وقابليتها للغسيل لعدة مرات وثباتيتها لعمليات الطباعة والتجهيز النهائي (Afroj.S st al.,68,2021) وبالتالي يمكن ترشيح الغرافين لاستخدامه في مختلف التطبيقات الصناعية وأهمها صناعة الأقمشة الذكية (Zhou.L et al.,11982–11989,2020 and Kkarim.N, 12266−12275,2018) ، التي تستوجب خصائص ميكانيكية وكهربائية جيدة (Yin.F et al., 5722–5733,2020, Yun.Y et al. 188, 2013 and S. Noothongkaew and O. Thumthan, 12266−12275,2017).

حُضر في هذا البحث خيوط ناقلة للكهرباء من خلال معالجتها بحبر الغرافين الناقل للكهرباء وذلك بواسطة تقنية الغمس والتجفيف من خلال إرجاع أكسيد الغرافين على الخيط بشكل مباشر، وتم دراسة العوامل المؤثرة على عملية الإرجاع والتي هي (الزمن، التركيز، درجة الحرارة)، وتم إجراء نمذجة إحصائية لدراسة التأثير المتبادل بين هذه العوامل المدروسة وأهمية تأثير كل عامل على جودة عملية الإرجاع على الخيط، كما تم توصيف الخيوط المعالجة بأكسيد الغرافين المرجع عليها بشكل مباشر كهربائياً من خلال قياس المقاومة الكهربائية للخيوط المعالجة، وكما شُخصت الخواص البنيوية والضوئية للخيوط المعالجة من خلال المجهر الالكتروني الماسح (sem)،وتحليل التركيب العنصري(EDs)،وتم دراسة السلوك الحراري للخيط المعالج بهذه الطريقة ذو المقاومة الكهربائية الأقل من أجل إدراج الخيوط المعالجة في مختلف تطبيقات الأقمشة الذكية الناقلة للكهرباء والمولدة للحرارة.

2.المواد المستخدمة:

- مسحوق الغرافيت كمصدر للغرافين بنقاوة عالية 99.99%، أحضرت من شركة Sigma Aldrich.
- نترات الصوديوم $NaNO_3$ بنقاوة 98%، أحضر من شركة Chem-Lap.
- حمض الكبريت المركز بنقاوة 98%، أحضر من شركة Sigma Aldrich.
- برمنغنات البوتاسيوم$KMNO_4$ بنقاوة99%، أحضر من شركةMerck.
- ماء أوكسيجيني (H_2O_2) تجاري.
- والأمونيا بنقاوة99%، أحضر من شركةMerck.
- هيدرات الهيدرازين جميعها أحضرت من شركة Sigma Aldrich.
- خيوط قطنية مسرحة نمرة Ne (20) أحضرت من الشركة الخماسية للغزل.
- باستخدام ماء منزوع الشوارد (DI-Water) حيث تم تحضير جميع العينات بالماء المقطر.

3.الأجهزة المُستعملة:

- جهاز المجهر الالكتروني الماسح (SEM، طراز XMU5136 Tescan Vega-II) ومن تصنيع شركة(TESCAN (El-Segundo, CA USA، حيث تم تصوير العينات المحضرة بالمجهر الماسح الإلكتروني من أجل توصيف مورفولوجية السطح كل منها.

الشكل (1) جهاز المجهر الالكتروني الماسح (SEM)

- جهاز مطيافية تشتت الاشعة السينية (EDs)، من طراز(EDX-100a)، ومن تصنيع شركة Shaanxi.

الشكل (2) جهاز مطيافية تشتت الاشعة السينية (EDs)

- جهاز تنظيف بالأمواج فوق الصوتية مع مثبت لدرجة الحرارة طراز DSA100-GL-4.0L .

- مجففة (0-250CO) من شركةMEMMERT .
- ميزان الكتروني حساس بدقة تصل إلى 0.00001g من نوعSHIMADZU .
- خلاطات مغناطيسية (Magnetic Stirrer) مع منظّم للحرارة.
- مقياس درجة الحموضة(PH Meter) .
- دوارق وبياشر زجاجية مختلفة الأحجام وشرائح زجاجية مع حافظات لها.
- جهاز قياس المقاومة الكهربائية (AVO meter).
- مقياس درجة حرارة رقمي، (Fo 392+ to 58-) (- 50 to +200 CO) من شركة France.
- مولد جهد (1-20) فولت.
- كاميرا الحرارية بالأشعة تحت الحمراء IR من طراز SIFROBOT-7.51 وهي جهاز يقوم بالتصوير باستخدام الأشعة تحت الحمراء بدلاً عن الضوء المرئي وبالتالي عوضا عن الطول الموجي (nm) 450-750 للضوء المرئي يتم استخدام طول موجي للأشعة الحمراء(nm)1400.

4.الإجراء التجريبي:

4.1طريقة تحضير أكسيد الغرافين (Go):

تم تصنيع أكسيد الغرافين باتباع طريقة هامر المعدّلة استناداً للدراسة المرجعية [22] من خلال عملية الأكسدة الكيميائية، حيث تمَّ وضع (90Ml) من H_2SO_4 داخل دورق مستدير القاع في حمام جليدي للتحكم بدرجة حرارة التشغيل تتراوح بين 0–6 درجة مئوية ثم أضيف (2(g من بودرة الجرافيت و(2(g من نترات الصوديوم إلى محلول حمض الكبريت الممدد مع التحريك المستمر لمدّة (20(min بهدف الحصول على مزيج متجانس، بعد ذلك تمت إضافة (3(g منKMnO4 كعامل أكسدة تدريجياً حتى يتم تحول لون المزيج إلى اللون الأخضر مع الاستمرار بالتحريك مع تثبيت درجة حرارة المزيج بحيث لا تزيد عن (15درجة مئوية) ولمدة (120(min، بعدها تضاف كمية من الماء المقطر المنزوع الشوارد (200(mL إلى المزيج يرافقه ارتفاع في درجة الحرارة إلى (98درجة مئوية) وبعد مرور (30(min مع الاستمرار يضاف بعدها (35(ml من محلول H2O بتركيز 30٪ مع التحريك لمدّة (10(min لضمان إنهاء التفاعل، يحفظ المزيج لمدة 12 ساعة عند درجة حرارة 57 (درجة مئوية)، لوحظ تغير لون المحلول من اللون الاصفر الفاتح إلى اللون البني الفاتح دليلاً على تشكل اكسيد الغرافين GO كما هو مبين في الشكل (3).

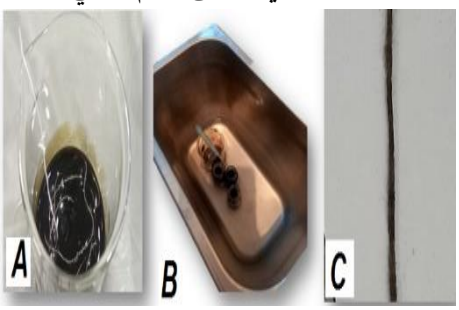
في النهاية يُغسل الـ GO عدة مرات باستخدام حمام الأمواج الفوق صوتية لإزالة الشوائب وبقايا الحمض وأيونات المنغنيز ثم يُغسل تباعاً ثلاث مرات بمحلول HCl بتركيز (0.1M) والميتانول ثم يجفف المحلول الناتج للحصول على مسحوق صلب من أكسيد الغرافين كما هو موضح بالشكل (3).

الشكل (3) تحضير أكسيد الغرافين من خلال عملية الأكسدة الكيميائية

2.4: عملية الإرجاع على الخيط بشكل مباشر:

تم بعثرة نسب وزن مختلفة من أكسيد الغرافين في DI-water باستخدام الأمواج الفوق صوتية لمدة (30(min، تم الحصول على GO متجانس بلون بني، تم إضافة الأمونيا لضبط درجة حموضة المحلول عند Ph=10 عندها يتم غمس الخيط القطني في المحلول، وذلك ضمن حمام مائي مطبق عليه الأمواج الفوق الصوتية، يليه عملية الإرجاع على الخيط بشكل مباشر من خلال إضافة (15(ml من محلول الهيدرازين تدريجياً إلى محلول GO المغموس فيه الخيط القطني حتى يتحول لون الخيط القطني المغموس في المحلول من اللون البني إلى اللون للأسود، وبعد الانتهاء من الحصول على خيط قطني بلون

أسود الذي يعود الى حدوث عملية الإرجاع لأكسيد الغرافين بعد إضافة الهيدرازين، يتم غسيل الخيط المعالج بأكسيد الغرافين المرجع (ثلاث مرات) بالماء المنزوع الشوارد ثم يتم تجفيفه وذلك بدرجة حرارة الغرفة ويترك إلى اليوم الثاني .



الشكل (4) عملية الإرجاع لأكسيد الغرافين بشكل مباشر على الخيوط القطنيةa :-غمس الخيط القطني ضمن محلول أكسيد الغرافينb-إرجاع أكسيد الغرافين ضمن حمام من الأمواج فوق الصوتية c-الخيط المعالج بأكسيد الغرافين المرجع.

وتم دراسة عملية الإرجاع لأكسيد الغرافين بشكل مباشر على الخيوط القطنية عند بارامترات مختلفة والتي تم تحديدها استناداً للدراسات المرجعية [148,] كما هو موضح في الجدول (1):

الجدول (1) البارامترات المدروسة ومستويات الدراسة لكل بارامتر

مستوى الدراسة	البارامتر		
	الوقت	درجة الحرارة	التركيز (كمية نسبة المذاب إلى المذيب الكلي)
	Time	Temperature	Concentration
	h	[c^{O}]	mL
1	1	25	25
2	2.5	50	50
3	4	100	75

وتم قياس المقاومة الكهربائية لكل من الخيوط القطنية المحضرة بالبارامترات المختلفة فكانت النتائج كما يلي مبينة بالجدول (2):

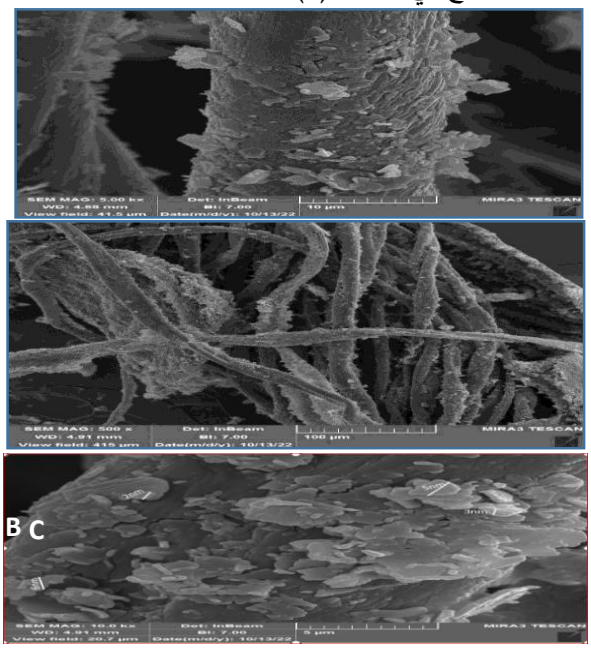
الجدول (2) قيم المقاومة الكهربائية للخيوط القطنية عند تغير البارامترات المدروسة (الزمن-التركيز-درجة الحرارة)

رقم التجربة	الوقت	درجة الحرارة	التركيز	المقاومة الكهربائية
	Time	Temperature	Concentration	Electrical resistance
	h	[cO]	mL	[kΩ]
1	1	25	25	190
2	2.5	25	25	185
3	4	25	25	175
4	1	50	25	172
5	2.5	50	25	155
6	4	50	25	130
7	1	100	25	120
8	2.5	100	25	110
9	4	100	25	100
10	1	25	50	200
11	2.5	25	50	165
12	4	25	50	114
13	1	50	50	108
14	2.5	50	50	102
15	4	50	50	95
16	1	100	50	89
17	2.5	100	50	83
18	4	100	50	90
19	1	25	75	350
20	2.5	25	75	340
21	4	25	75	320
22	1	50	75	300
23	2.5	50	75	295
24	4	50	75	280
25	1	100	75	270
26	2.5	100	75	250
27	4	100	75	220

حيث يلاحظ من الجدول (2) تغير المقاومة الكهربائية للعينات المدروسة الناتجة عن تغير البارامترات المدروسة والتي هي درجة الحرارة (100-50-25) درجة مئوية، والزمن (4-2.5-1) ساعة، والتركيز (ml) (75-50-25)، وكانت أقل مقاومة كهربائية((kΩ) (83) للخيط القطني المعالج بأكسيد الغرافين المرجع عند درجة حرارة 100 درجة مئوية وزمن ساعتين ونصف وتركيز (50ml) من أكسيد الغرافين.

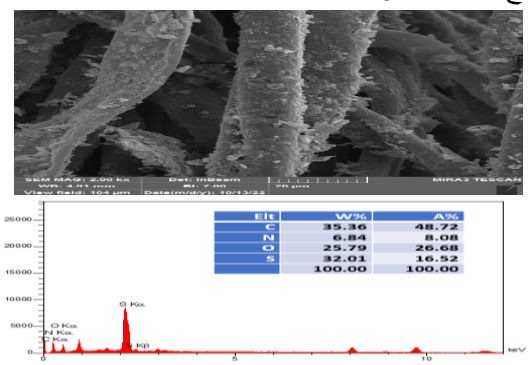
5.التوصيف الضوئي:

وصفت طبغرافية السطح للخيط المعالج بأكسيد الغرافين المرجع ذو المقاومة الكهربائية الأفضل (kΩ) (83) وذلك من خلال جهاز المجهر الإلكتروني الماسح (SEM)بمقاييس تكبير مختلفة (µm) (5,10,20,100)، حيث نلاحظ من الصور وجود شرائح نانوية متراكمة وبأشكال هندسية وبسماكات قليلة في عينة أكسيد الغرافين المرجع حيث تراوحت سماكتها (1-6nm) كما هو واضح في الشكل (5).



الشكل (5)صور (sem)لسطح الخيط المعالج بأكسيد الغرافين المرجع a:- صور (sem) لشرائح الغرافين على سطح شعيرة الخيط المعالج بالغرافين بمقياس تكبير µm(5)،b - صور (sem) لشرائح الغرافين على سطح شعيرة الخيط المعالج بالغرافين بمقياس تكبير µm(10)،c - صور (sem) لشرائح الغرافين على سطح شعيرات الخيط المعالج بالغرافين بمقياس تكبير µm(20)، d- صور (sem) لشرائح الغرافين على سطح شعيرات الخيط المعالج بمقياس تكبير µm(100).

كما يبين الشكل (6) تحليل التركيب العنصري للخيط المعالج بأكسيد الغرافين المرجع حيث نلاحظ وجود قمم لكل من عنصر c و o يدل على تشكل اكسيد الغرافين المرجع على سطح الخيط، وبنسبة وزنية وذرية للكربون والاوكسجين (c/o) % 1.82 و1.37%على الترتيب، حيث يتضح أن نسبة الكربون كانت أعلى من نسبة الاكسجين كما تظهر بعض القمم مثل الكبريت (16.52%) وهذا يدل على وجود آثار قليلة من حمض الكبريت المستخدم وعدم حدوث عملية التنقية بشكل جيد لأكسيد الغرافين، كما نلاحظ وجود قمم لعنصر النتروجين (8.08%) حيث تعود إلى الهيدرازين المستخدم في عملية الإرجاع لأكسيد الغرافين.



الشكل (6) تحليل التركيب العنصري للخيط المعالج بأكسيد الغرافين المرجع

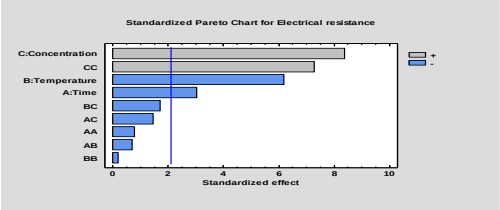
6.النمذجة الإحصائية:

تم استخدام النمذجة الإحصائية باستخدام برنامج (STATGRAPHICS) وذلك من خلال تحليل الانحدار الخطي لدراسة تأثير كل من التركيز والزمن ودرجة الحرارة على المقاومة الكهربائية للخيوط القطنية المعالجة بحبر أكسيد الغرافين المرجع والتأكد من نتائج التجارب المخبرية ولدراسة العلاقة بين جميع المعاملات المستقلة والتأثير المتبادل فيما بينها وخلصت نتائج الدراسة إلى القيم المبينة في الجدول (2).

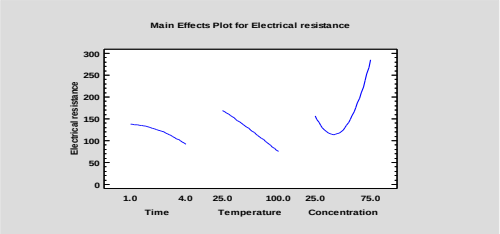
أولاً: مخطط باريتو:

يبين في الشكل (7) مخطط تأثير مقادير الدخل على المقاومة الكهربائية للخيوط القطنية المعالجة حيث نلاحظ من الشكل أن عامل تركيز أكسيد الغرافين هو المؤثر الأكبر على المقاومة الكهربائية وأن تأثيره طردي أي تزداد المقاومة الكهربائية بزيادته والعكس بالعكس، يليه عامل درجة الحرارة تأثيراً على المقاومة الكهربائية وبشكل عكسي أي أنه كلما زادت درجة الحرارة تنخفض المقاومة الكهربائية للخيط القطني المعالج، وأما بالنسبة لعامل الزمن كان أقل تأثير على المقاومة الكهربائية وتأثيره

عكسي حيث كلما ازداد الزمن تنخفض المقاومة الكهربائية للخيط القطني المعالج بأكسيد الغرافين المرجع، أما بالنسبة للتأثير المتبادل لعامل درجة الحرارة والتركيز كان تأثيره عكسي على المقاومة الكهربائية وأكبر من التأثير المتبادل لكل لعامل درجة الحرارة والزمن والتأثير المتبادل لدرجة الحرارة والتركيز.



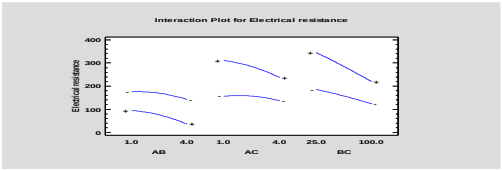
الشكل (7) مخطط تأثير مقادير الدخل على المقاومة الكهربائية



الشكل (8) مخطط تأثير مُعاملات الدخل المستقلة على المقاومة الكهربائية

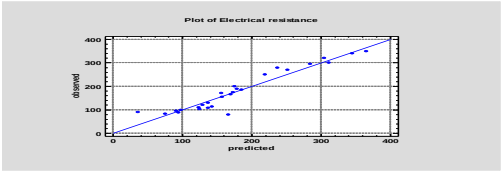
يبين الشكل (8) مخطط تأثير معاملات الدخل المستقلة على المقاومة الكهربائية للخيط القطني المعالج بأكسيد الغرافين المرجع،حيث نلاحظ انخفاض قيمة المقاومة الكهربائية للخيط المعالج من (kΩ) (95) إلى (kΩ) (135) مع زيادة زمن الإرجاع بشكل مستقل من (1) إلى (4)،كما تنخفض أيضاً قيمة المقاومة الكهربائية من (kΩ) (83) إلى (kΩ) (175) مع زيادة عامل درجة الحرارة بشكل مستقل من (c^O)(25) وحتى (c^O)(100)، في حين أن المقاومة الكهربائية تنخفض من (kΩ)(130) إلى (kΩ)(155)مع زيادة عامل التركيز بشكل مستقل من (ml)(25) إلى (ml)(50) ، ثم مع زيادة التركيز من (ml)(50) إلى (ml)(75) تبدأ المقاومة الكهربائية للخيوط القطني المعالجة بأكسيد الغرافين المرجع بالارتفاع من جديد من (kΩ) (130) إلى (kΩ) (300).

يبين الشكل (9) مخطط التأثير المتبادل لمُعاملات الدخل على المقاومة الكهربائية للخيط القطني المعالج بأكسيد الغرافين المرجع حيث نلاحظ أنه لا يوجد تأثير متبادل بين عامل الزمن وعامل درجة الحرارة على انخفاض المقاومة الكهربائية أي في الوقت الذي تنخفض فيه المقاومة الكهربائية بزيادة الزمن تنخفض فيه المقاومة الكهربائية بزيادة درجة الحرارة، كما نلاحظ أنه لا يوجد تأثير متبادل بين عامل الزمن وعامل التركيز على انخفاض المقاومة الكهربائية أي في الوقت الذي تنخفض فيه المقاومة الكهربائية بزيادة الزمن تنخفض فيه المقاومة الكهربائية بزيادة التركيز، وأيضاً نلاحظ أنه لا يوجد تأثير متبادل لعامل الحرارة وعامل التركيز على انخفاض المقاومة الكهربائية، أي في الوقت الذي تنخفض فيه المقاومة الكهربائية بزيادة التركيز تنخفض فيه المقاومة الكهربائية بزيادة درجة الحرارة.



الشكل (9) مخطط التأثير المتبادل لمُعاملات الدخل على المقاومة الكهربائية

تم اختبار النموذج التنبؤي من خلال البرنامج برسم مخطط التأثير الخطي بين مُعاملات الدخل وقيم الخواص المقاسة وتم الحصول على المخطط (الشكل 10) الذي يبين العلاقة بين القيم المتوقعة من المعادلة 1 والقيم التجريبية للمقاومة الكهربائية حيث نلاحظ تبعثر القيم المقاومة الكهربائية بشكل قريب جداً من الخط المستقيم وهذا يدل على أن القيم التجريبية مطابقة بشكل كبير للقيم المقاسة.



الشكل (10) مخطط التأثير الخطي بين مُعاملات الدخل وقيم الخواص المقاسة للمقاومة الكهربائية

ثانياً: تحليل ((ANOVA: Analysis of Variance for Evenness:

تم الاستعانة بتحليل (ANOVA)لدراسة وتحليل أهمية تأثير كل من معاملات الدخل على المقاومة الكهربائية حيث يظهر الجدول (3) الذي يوضح تحليل التباين بين المعاملات المدروسة والتأثير المتبادل بينها على قيمة المقاومة الكهربائية ، حيث أن للتركيز ودرجة الحرارة تأثير حدي واضح على المقاومة الكهربائية حيث بلغت قيمة P-value للتركيز والحرارة 0.0000 أما الزمن فهو ذو تأثير منخفض نسبياً لكل من درجة الحرارة والتركيز حيث بلغت قيمة P-value للزمن 0.0076، وكما نلاحظ قيمة F-Ratio الأكبر هي لعامل التركيز 70.13وبالتالي هو العامل الأكثر تأثير على المقاومة الكهربائية للخيط المعالج بأكسيد الغرافين المرجع يليه عامل درجة الحرارة ثم عامل الزمن.

الجدول (3) قيم P–Value لجميع المعاملات المستقلة والتأثير المتبادل فيما بينها

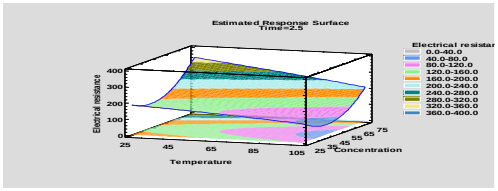
P-Value	F-Ratio	Mean Square	Df	Sum of Squares	Source
0.0076	9.16	9568.06	1	9568.06	A:Time
0.0000	38.17	39856.1	1	39856.1	B:Temperature
0.0000	70.13	73216.9	1	73216.9	C:Concentration
0.4418	0.62	647.574	1	647.574	AA
0.4953	0.49	507.0	1	507.0	AB
0.1635	2.12	2214.08	1	2214.08	AC
0.8584	0.03	34.2407	1	34.2407	BB
0.1078	2.88	3008.33	1	3008.33	BC
0.0000	53.08	55424.1	1	55424.1	CC

كما استخدم دليل الارتباط (R sq) لقياس درجة الارتباط بين تغير قيمة المقاومة الكهربائية بالنسبة لقيم متغيرات الدخل والتي هي (الزمن وتركيز محلول أكسيد الغرافين ودرجة الحرارة)، وتمت الاستعانة ببرنامج (STATGRAPHICS) للحصول على نموذج رياضي تنبؤي لقيم المقاومة الكهربائية وكانت النتائج موضحة في المعادلة 1:

$$\text{Electrical resistance} = 346.877 + 33.0494*\text{Time} + 0.0908642*\text{Temperature} + 10.8656*\text{Concentration} - 4.61728*\text{Time}^2 - 0.115556*\text{Time}*\text{Temperature} - 0.362222*\text{Time}*\text{Concentration} - 0.00169877*\text{Temperature}^2 + 0.0168889*\text{Temperature}*\text{Concentration} + 0.153778*\text{Concentration}^2$$

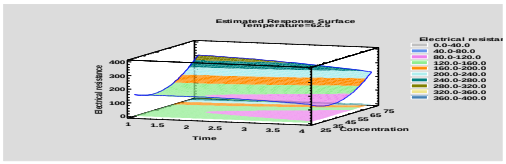
يلاحظ قيمة دليل الارتباط (R sq = 91.223 %) وبالتالي يوجد ارتباط مهم بين قيم معاملات الدخل المدروسة (تركيز المحلول وزمن الغمر ودرجة الحرارة) قيم المقومة الكهربائية.

وبتوزيع قيم المقاومة الكهربائية على مخطط ثلاثي الأبعاد للسطح والذي يمثل مُعاملات الدخل نحصل على المخطط شكل (11) حيث يوضح الشكل وجود انحناء بسيط على السطح وهذا يعود إلى تأثير تبادلي ضعيف بين المعاملات المدروسة ضمن مجال تغير قيم درجة الحرارة والتركيز وذلك عند زمن ثابت 2.5 (ساعة).



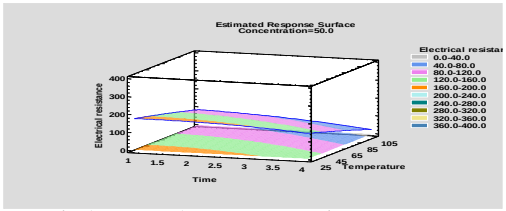
الشكل (11) مخطط ثلاثي الأبعاد لقيم المقاومة الكهربائية عند ثبات الزمن

كما يبين الشكل (12) مخطط ثلاثي الأبعاد لقيم المقاومة الكهربائية عند تغير المعاملات المدروسة حيث يلاحظ وجود انحناء بسيط على السطح وهذا يعود إلى تأثير تبادلي ضعيف بين المعاملات المدروسة وذلك ضمن مجال تغير قيم درجة الحرارة والتركيز وذلك عند تركيز ثابت 50(ml).



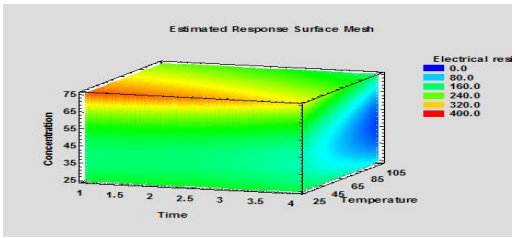
الشكل (12) مخطط ثلاثي الأبعاد لقيم المقاومة الكهربائية عند ثبات درجة الحرارة

كما يبين الشكل (13) مخطط ثلاثي الأبعاد لقيم المقاومة الكهربائية عند تغير المعاملات المدروسة حيث يلاحظ أن السطح بشكل مستو ولا يوجد فيه انحناء وهذا يعود إلى عدم وجود تأثير تبادلي بين المعاملات المدروسة ضمن مجال تغير قيم الزمن التركيز وذلك عند درجة حرارة ثابتة (c^{O})62.5.



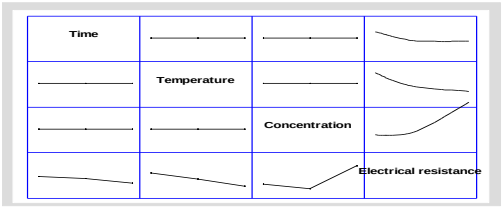
الشكل (13) مخطط ثلاثي الأبعاد لقيم المقاومة الكهربائية الأبعاد عند ثبات التركيز

نلاحظ من الشكل (14) مخطط توزع تغير قيم المقاومة الكهربائية مع تغير المعاملات المدروسة (الزمن –التركيز– درجة الحرارة) حيث نلاحظ أن مجال انخفاض قيم المقاومة الكهربائية كان أكبر عند أعلى قيمة لعامل درجة الحرارة 100(c^{o})، وزيادة التركيز إلى حد معين 50(ml)، وعند أعلى قيمة للزمن ساعتين.



الشكل (14) مخطط ثلاثي الأبعاد لتوزع قيم المقاومة الكهربائية المتغيرة مع تغير الزمن والحرارة والتركيز

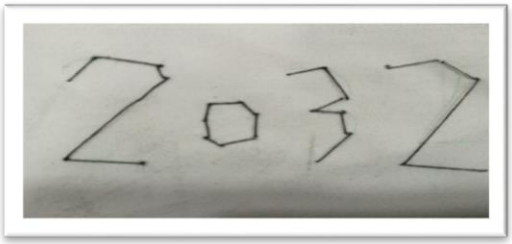
ويمكن تلخيص ما سبق في الشكل (15) الذي يوضح أن انخفاض المقاومة الكهربائية للخيوط المعالجة بأكسيد الغرافين تتناسب طرداً مع التركيز وعكساً مع الزمن ودرجة الحرارة أي أن الناقلية الكهربائية تكون أفضل مع ارتفاع الزمن ودرجة الحرارة وانخفاض التركيز ويعزى ذلك إلى أنه مع زيادة الزمن تزداد عملية الإرجاع أي يتم زيادة نزع ذرات الأوكسجين من طبقات أكسيد الغرافين، وكذلك الأمر بالنسبة لعامل درجة حرارة الذي يعزز بارتفاعه من عملية الإرجاع، وبالتالي زيادة تغلغل ذرات الهيدرازين بين طبقات أكسيد الغرافين وهذا بدوره يؤدي إلى تحسين الناقلية الكهربائية، في حين أنه كلما زاد تركيز أكسيد الغرافين تنخفض المقاومة الكهربائية ولكن عند حد معين من تركيز أكسيد الغرافين والذي هو(50)ml حيث بعد هذا التركيز ترتفع المقاومة الكهربائية من جديد وهذا يعزى الى عدم استكمال عملية الإرجاع لعدد من طبقات أكسيد الغرافين على الخيط عند التراكيز الكبيرة لأكسيد الغرافين وذلك ضمن شروط المدروسة ويمكن تلخيص العلاقة بالمخطط شكل(15).



الشكل (15) مخططات العلاقة بين المقاومة الكهربائية والمعاملات المدروسة (التركيز–الزمن–درجة الحرارة)

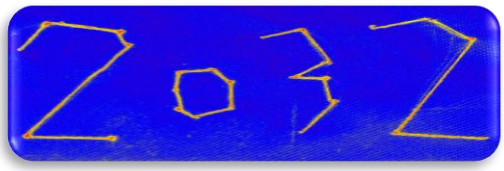
كما نستنتج أن أقل مقاومة كهربائية للخيط المعالج بأكسيد الغرافين المرجع هي (kΩ) (83) والتي تم الحصول عليه عند إرجاع أكسيد الغرافين على الخيط بشروط معينة (درجة حرارة100(C^{o})، وزمن ساعتين، وتركيز (50(ml).

تم دراسة السلوك الحراري للخيط القطني المعالج بأكسيد الغرافين المرجع ذي المقاومة الكهربائية الأقل(83kΩ) من خلال تطبيق عملي حيث تم تشكيل الكترود محاك من الخيط المعالج بأكسيد الغرافين المرجع، وتم تطبيق جهد (20v) على الخيط المعالج، فكان التيار المار (A 0.05)، كما كانت الاستطاعة الكهربائية (wat)1، وتم قياس درجة الحرارة المتولدة عن الخيط فكانت(38(c^{o}) وتم خياطة الخيط المعالج بحبر الغرافين كما هو موضح بالشكل (16).



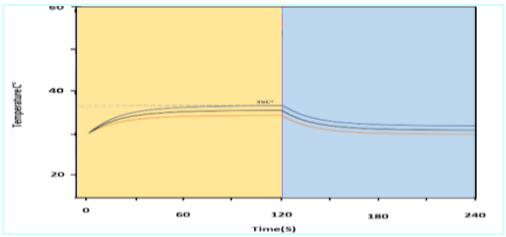
الشكل(16) الكترود من الخيط المعالج بأكسيد الغرافين المرجع

تم قياس التوزع الحراري ضمن الالكترود من خلال كاميرا حرارية بالأشعة تحت الحمراء IR كما هو موضح في الشكل (17) حيث تم التصوير باستخدام الأشعة تحت الحمراء بدلاً عن الضوء المرئي وبالتالي عوضا عن الطول الموجي 450- 750nm للضوء المرئي يتم استخدام طول موجي للأشعة الحمراء (1400(nm، فكانت الأشعة متوهجة وبتوزع حراري على طول الالكترود، ونلاحظ أنها بكثافة كبيرة في الأجزاء القصيرة منه حيث أن طول الالكترود يؤثر على التوزع الحراري ضمنه.



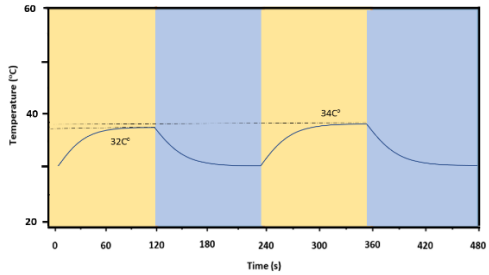
الشكل(17) قياس التوزع الحراري ضمن الالكترود من خلال كاميرا الحرارية بالأشعة تحت الحمراء IR

كما تم دراسة البارامترات المؤثرة على درجة الحرارة المتولدة من الخيط المعالج بحبر الغرافين حيث يوضح الشكل (18) علاقة الوقت ودرجة الحرارة بسماكة الطبقات حبر الغرافين المعالج بها الخيط، فعندما تم تطبيق جهد (20(v، ارتفعت درجة الحرارة من درجة حرارة الغرفة (30(c^O حتى وصلت إلى (36(c^O درجة بعد 120 ثانية، بعد أن كانت درجة الحرارة (32(c^O عند الطلاء الأول وبالتالي (36(c^O هي أعلى قيمة تم الوصول إليه عندما تم تطبيق حبر الغرافين بسماكة 3 طبقات على الخيط، ثم مع إيقاف تشغيل الجهد انخفضت درجة الحرارة لتعود إلى درجة حرارة الغرفة، وبالتالي زيادة عدد الطبقات يؤدي إلى ارتفاع درجة الحرارة وتفسر الزيادة في كمية الحرارة المنبعثة نتيجة زيادة سماكة حبر الغرافين على الخيط وبالتالي انخفاض المقاومة الكهربائية وزيادة كمية التيار الكهربائي والطاقة الحرارية المتولدة فيه.



الشكل (18) علاقة الوقت ودرجة الحرارة بسماكة الطبقات حبر الغرافين المعالج بها الخيط

يوضح الشكل(19) العلاقة بين الزمن ودرجة الحرارة عندما تطبيق جهد (20(v لمدة (8(mints بشكل متناوب (on-off)، متضمنة (2(min طور تشغيل و(2(min طور إيقاف على التناوب، حيث عندما تم تطبيق جهد (20v) لمدة2 (min) ارتفعت درجة الحرارة المتولدة من الخيط المعالج بحبر الغرافين من درجة حرارة الغرفة إلى 32(درجة مئوية)، وعندما تم فصل الجهد لمدة (2(min انخفضت درجة الحرارة إلى درجة حرارة الغرفة، وعند العودة إلى طور التشغيل لمدة (2(min أيضاً ارتفعت درجة الحرارة من جديد حتى وصلت إلى 34(درجة مئوية)، ويعود سبب ارتفاعها إلى هذه القيمة بسبب احتفاظ الخيط بكمية قليلة من الحرارة من طور التشغيل السابق، ثم انخفضت درجة الحرارة من جديد إلى درجة حرارة الغرفة بعد فصل منبع الجهد المطبق على الخيط المعالج بحبر الغرافين.



الشكل (19) العلاقة بين الزمن ودرجة الحرارة عندما تم تطبيق جهد 20 فولت لمدة 8 دقائق بشكل متناوب (on-off)

7.النتائج:

درست طريقة معالجة الخيوط القطنية بأكسيد الغرافين المرجع من خلال الإرجاع المباشر عليها وذلك من خلال عامل الإرجاع محلول الهيدرازين لأكسيد الغرافين وذلك ضمن حمام من الأمواج الفوق صوتية وشروط مختلفة من زمن التفاعل ودرجة الحرارة وتركيز أكسيد الغرافين، وتَبيّن أنَّ تغيير شروط عملية الإرجاع يؤثر بصورة كبيرة على الخواص الكهربائية للغرافين المحضر على الخيط القطني حيث أظهرت نتائج النمذجة الإحصائية لهذه البارامترات ما يلي:

- انخفاض المقاومة الكهربائية للخيوط المعالجة بأكسيد الغرافين تتناسب طرداً مع التركيز وعكساً مع الزمن ودرجة الحرارة، وتم الحصول على أفضل ناقلية كهربائية للخيط المعالج بهذه الطريقة حيث كانت المقاومة الكهربائية (KΩ) (83) للخيط القطني المعالج بأكسيد الغرافين المرجع عند درجة حرارة 100(درجة مئوية)وزمن ساعتين ونصف وتركيز (50(ml من أكسيد الغرافين.
- من خلال دراسة طبوغرافية السطح للخيط المعالج بالغرافين ذو المقاومة الكهربائية الأفضل (kΩ) (83) بواسطة جهاز المجهر الالكتروني الماسح (SEM) تبين ظهور شرائح نانوية متراكمة وبأشكال هندسية وبسماكات قليلة حيث تراوحت سماكتها (1-6nm).
- من خلال دراسة التركيب العنصري بواسطة جهاز تحليل التركيب العنصري للخيط المعالج بأكسيد الغرافين المرجع ذو المقاومة الكهربائية(kΩ)(83) لوحظ وجود قمم لكل من عنصر c وo يدل على تشكل اكسيد الغرافين المرجع على سطح الخيط المعالج بأكسيد الغرافين المرجع، وبنسبة وزنية وذرية للكربون والاوكسجين(c/o) % 1.82 و1.37%على الترتيب حيث يتضح أن نسبة الكربون كانت أعلى من نسبة الاكسجين وهذا يدل على حدوث عملية الإرجاع مع ظهور بعض القمم مثل الكبريت (16.52%) وهذا يدل على وجود آثار قليلة من حمض الكبريت المستخدم وعدم حدوث عملية التنقية بشكل جيد لأكسيد الغرافين، كما نلاحظ وجود قمم لعنصر النتروجين (8.08%) حيث تعود إلى الهيدرازين المستخدم في عملية الإرجاع لأكسيد الغرافين.
- عندما تم دراسة البارامترات المؤثرة على درجة الحرارة المتولدة من الخيط المعالج بحبر الغرافين ذو المقاومة الكهربائية(kΩ) 83بعد تطبيق جهد عليه (20(v كانت درجة الحرارة المتولد عنه ($32(c^O$ حيث تزداد هذه القيمة بزيادة عدد طبقات الحبر على الخيط وبزيادة قيمة الجهد المطبق حيث ارتفعت درجة الحرارة إلى ($36(c^O$ وذلك عند الطبقة الثالثة من حبر الغرافين على الخيط وعند قيمة جهد(20(v.

وبالتالي إن تغير بارامترات عملية إرجاع أكسيد الغرافين على الخيط يؤثر بشكل كبير على ناقلية الخيوط القطنية المعالجة بهذه الطريقة، وسيتم معالجة الخيوط القطنية بالغرافين بطريقة أخرى (الطلاء السطحي) في الأبحاث القادمة للمقارنة بالخواص المختلفة للخيوط المعالجة بكلا الطريقتين لاختيار أفضل طريقة لمعالجة الخيوط بحبر الغرافين وإدراجها في التطبيقات الكهربائية والحرارية في الأقمشة الذكية القابلة للارتداء.

التمويل: هذا البحث ممول من جامعة دمشق وفق رقم التمويل(501100020595).

8. References:

1. Tang.Y, Guo.B, Cruz.M et al.,(2022).Colorful Conductive Threads for Wearable Electronics: Transparent Cu–Ag Nanonets. Advanced Science. vol 9 pp 10.

2. .Jakubinek.M et al., (2012). Thermal and electrical conductivity of array-spun multi-walled carbon nanotube yarns. Carbovol 50 pp 244 – 248.

3. A. C. Siegel, S. T. Phillips, M. D. Dickey, N. Lu, Z. Suo, and G. M. Whitesides. (2010)."Foldable Printed Circuit Boards on Paper Substrates," Advanced Functional Materials, vol. 20, no. 1, pp. 28-35,

4. S. Afroj et al.,(2022)."Highly Conductive, Scalable ,and Machine Washable Graphene-Based E-Textiles for Multifunctional Wearable Electronic Applications" vol 30, p.2000293.

5. Karim.N, Afroj.S et al., (2017)."Scalable Production of Graphene-Based Wearable E-Textiles". vol 11, pp.12266−12275.

6. K.Alexander and M,Shlom,(2019)."Stretchable and Designable Textile Pattern Strain Sensors Based on Graphene Decorated Conductive Nylon Filaments".vol pp.48.1712-1740.

7. P. Sungmee and S. Jayaraman, (2003)."Enhancing the quality of life through wearable technology," Engineering in Medicine and Biology Magazine, vol. 22, no. 3, pp. 41-48.

8. He.S, Xin.B et al.,(2018)."Functionalization of cotton by reduced graphene oxide for improved electricaln conductivity". vol (00) pp1–13.

9. Rchana.S and Bordes.R.(2020)."Nanoparticles Incorporated Graphene-Based Durable Cotton Fabrics", vol10, pp.2396–2403.

10. P. Drzaic et al,(2010) "L: A Printed and Rollable Bistable Electronic Display," in SID Symposium Digest of Technical Papers, vol. 29, no. 1, pp. 1131-1134: Wiley Online Library.

11. K. Cherenack and L. v. Pieterson,(2012). "Smart textiles: Challenges and opportunities," vol. 112, no. 9, p. 091301.

12. P. Kewen, F. Yangyang, L. Ting et al., (2018). Sustainable production of highly conductive multilayer graphene ink for wireless connectivity and Iot applications. Nature communication vol 9:5197.

13. F. Jiang, J.Sun, F.Sun L, Wang.T, Liu.Y, Li.M (2019). Flexible wearable graphene/alginate composite non-woven fabric temperature sensor with high sensitivity and anti-interference. Cellulose 27:2369–2380.

14. Sahitoa.T,Sun.K(2015).Integrating high electrical conductivity and photocatalytic activity in cotton fabric by cationizing for enriched coating of negatively charged graphene oxide. arbohydrate Polymers 130 (2015) 299–306.

15. He.S, Xin.B.(2021).Functionalization of cotton by reduced graphene oxide for improved electrical conductivity. Textile Research Journal.

16. K. Alexander and M, Shlom. (2017). Conductive nanomaterials for 2D and 3D printed flexible

electronic. The royal society of chemistry 48.1712-1740.

17. Liu.Y· Li1.Z et al.,(2021). Scale production of conductive cotton yarns by sizing process and its conductive mechanism. SN Applied Sciences (2021) 3:611.

18. Samanta.A and Bordes.R. (2020).Conductive textiles prepared by spray coating of water-based graphene dispersions. The Royal Society of Chemistry 10, (2396–2403).

19. Noothongkaew and O. Thumthan, (2017). Scalable Production of Graphene-Based Wearable E-Textiles. American Chemical Societ.11(2017)12266−12275.

20. Kkarim.N, Afroj.S et al.,(2018) Scalable Production of Graphene-Based Wearable E-Textiles.ACS Nano .11, 12266−12275.

21. Afroj.S, Tan.S Abdelkader.A, Kostya S. Novoselov, and Karim.N.(2020). Highly Conductive, Scalable, and Machine Washable Graphene-Based E-Textiles for Multifunctional Wearable Electronic. ApplicationsAdv. Funct. Mater, 30, 2000293.

22. Zhou.L, Luo.Q et al., (2020). Assembly of graphene oxide on cotton fiber through dyeing and their properties. The Royal Society of Chemistry,10, 11982–11989

23. Kkarim.N, Afroj.S et al., (2018). Scalable Production of Graphene-Based Wearable E-Textiles.ACS Nano .11, 12266−12275.

24. Yin.F, Hu.J, Hong.Z et al.,(2020). A review on strategies for the fabrication of graphene fibres with graphene oxide.RSC Adv., 2020, 10, 5722–5733

25. Yun.Y, Hong.W, Kim.W.et al., (2013). A Novel Method for Applying Reduced Graphene Oxide Directly to Electronic Textiles from Yarns to Fabrics.Adv. Mater.10(1002).

26. S. Noothongkaew and O. Thumthan, (2017). Scalable Production of Graphene-Based Wearable E-Textiles".American Chemical Societ.11(2017)12266−12275.