

## Synthesis of Double-doped Graphene Oxide with Garlic Extract and Cu Cations for Application in Anti-bacterial Coatings

Sepideh Akbaripoor Tafreshi Nejad<sup>1</sup>, Eiman Alibakhshi<sup>2</sup>, Bahram Ramezanzadeh<sup>1</sup>, Seyyed Arash Haddadi<sup>3</sup>, Mohammad Arjmand<sup>3</sup>, Mohammad Mahdavian<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Department of Surface Coatings and Corrosion, Institute for Color Science and Technology, P.O. Box: 16765-654, Tehran, Iran

<sup>2</sup>Atlas Protecting Coating, P. O. Box: 1668815-841, Tehran, Iran

<sup>3</sup>Nanomaterials and Polymer Nanocomposites Laboratory, School of Engineering, University of British Columbia, Kelowna, BC, V1V 1V7 Canada

### ARTICLE INFO

Article history:

Received: 23-10-2021

Accepted: 22-02-2022

Available online: 11-09-2022

Print ISSN: 1735-8779

Online ISSN: 2383-2169

**DOR: 20.1001.1.17358779.1401.16.2.7.1**

### Keywords:

Graphene oxide

Garlic extract

Reduction

Antibacterial

Acrylic

PVC panel

### ABSTRACT

*Notwithstanding the indefatigable endeavor to explore antibacterial drugs and agents, achieving improved antibacterial properties and minimizing hazardous matters has always been challenging. Garlic extract was utilized to reduce and dope graphene oxide simultaneously, considering the astonishing antibacterial characteristics of garlic extract instead of using dangerous reducing agents. A hydrothermal method was used to reduce/ dope graphene oxide. Copper cations were also loaded on the graphene oxide nanosheets doped with garlic extract. The successful synthesis of the products was confirmed by Fourier transform infrared spectroscopy. X-ray photoelectron spectroscopy was used to affirm the doping of graphene oxide using garlic extract. Furthermore, according to the results obtained from X-ray photoelectron spectroscopy, the atomic percentage of S and N elements was 1.4 % and 1 %, respectively. The result revealed that double-doped graphene oxide in water base acrylic coating on PVC panels showed a 100 percent decrease in the growth of bacteria after 6 hours.*

\*Corresponding author: [mahdavian-m@icrc.ac.ir](mailto:mahdavian-m@icrc.ac.ir)





## سنتز اکسیدگرافن آلایش شده مضاعف با عصاره سیر و کاتیون‌های مس برای استفاده در پوشش‌های ضدباکتری

سپیده اکبری پور تفرشی نژاد<sup>۱</sup>، ایمان علی بخشی<sup>۲</sup>، بهرام رمضان زاده<sup>۳</sup>، سید آرش حدادی<sup>۴</sup>، محمد ارجمند<sup>۴</sup>، محمد مهدویان<sup>۳\*</sup>

۱- دانشجوی، گروه پژوهشی پوشش‌های سطح و خوردگی، پژوهشگاه رنگ، تهران، ایران، صندوق پستی: ۱۶۷۶۵۴-۶۵۴

۲- شرکت اطلس پوشش محافظ، تهران، ایران، صندوق پستی: ۱۶۶۸۸۱۵-۸۴۱

۳- دانشیار، گروه پژوهشی پوشش‌های سطح و خوردگی، پژوهشگاه رنگ، تهران، ایران، صندوق پستی: ۱۶۷۶۵۴-۶۵۴

۴- آزمایشگاه نانومواد و نانوکامپوزیت پلیمری، دانشکده مهندسی، دانشگاه بریتیش کلمبیا، کانادا

### چکیده

### اطلاعات مقاله

علی‌رغم تلاش‌های خستگی‌ناپذیر در زمینه کاوش داروها و عوامل ضدباکتری، همواره دست‌یابی به خاصیت ضدباکتری بهبود یافته و به‌حداقل رساندن مواد مضر امری چالش برانگیز بوده‌است. نظر به خواص ضدباکتری اعجاب برانگیز عصاره‌ی سیر، در این پژوهش به‌جای استفاده از عوامل احیاکننده خطرناک از عصاره‌ی سیر با هدف احیا و آلایش اکسید گرافن به‌صورت هم‌زمان استفاده گردید. به منظور احیا/آلایش اکسید گرافن روش گرمایی به‌کار گرفته شد. در ادامه، کاتیون‌های مس بر روی بستر اکسید گرافنی آلایش‌شده با عصاره سیر بارگذاری شد. سنتز موفقیت‌آمیز محصول توسط آزمون طیف‌سنجی تبدیل فوریه زیر قرمز تایید شد. جهت تایید آلایش اکسید گرافن توسط عصاره سیر از آزمون طیف‌سنجی فوتوالکترون پرتو ایکس استفاده شد. همچنین براساس نتایج آزمون طیف سنجی فوتوالکترون پرتو ایکس میزان بارگذاری دو عنصر گوگرد و نیتروژن به ترتیب برابر با ۱،۴ درصد و ۱،۰ درصد گزارش شد. نتایج استفاده از اکسید گرافن آلایش‌شده مضاعف در پوشش آب‌پایه آکرلیکی بر روی دیوارپوش پی‌وی‌سی نشان داد که میزان رشد عوامل باکتریایی با گذشت ۶ ساعت در حدود ۱۰۰ درصد کاهش می‌یابد.

تاریخچه مقاله:

تاریخ دریافت: ۱۴۰۰/۸/۱

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۰/۱۲/۳

در دسترس به صورت الکترونیکی: ۱۴۰۱/۶/۲۰

شاپا چاپی: ۱۷۳۵-۸۷۷۹

شاپا الکترونیکی: ۲۳۸۳-۲۱۶۹

DOR: 20.1001.1.17358779.1401.16.2.7.1

### واژه‌های کلیدی:

اکسید گرافن

عصاره سیر

احیا

ضدباکتری

آکرلیک

دیوارپوش پی‌وی‌سی

\*Corresponding author: [mahdavian-m@icrc.ac.ir](mailto:mahdavian-m@icrc.ac.ir)



## ۱- مقدمه

آلودگی میکروبی هوا، خاک و آب منجر به بروز مشکلات در شرایط زندگی، سلامت عمومی و زمینه‌های صنعتی می‌شود [۱]. استفاده بیش از حد آنتی‌بیوتیک‌ها در برابر باکتری‌های بیماری‌زا منجر به عوارض جانبی مضر می‌شود که ظهور باکتری‌های مقاوم در برابر آنتی‌بیوتیک‌ها را در پی دارد [۲، ۳]. کارهای پژوهشی بسیاری بر روی سنتز مواد نوین برای طراحی ویژگی‌ها برای کاربردهای نوآورانه در کاشته‌های پزشکی، سامانه‌های ره‌ایش دارو، پوشش‌های استریل و بسته‌بندی متمرکز شده‌است [۴]. پوشش‌های ضدباکتری به سرعت به‌عنوان جز اصلی رویکرد جهانی حذف باکتری‌های بیماری‌زا ظهور پیدا کرده‌اند [۵]. جلوگیری از کلنی شدن سطوح زیست پزشکی کلید مسدودسازی انتشار عفونت‌هاست [۵]. سه رویکرد عمده برای طراحی پوشش‌های ضدباکتری وجود دارد: ره‌ایش عوامل ضدباکتری<sup>۱</sup>، سازوکار تماسی<sup>۲</sup> و دافع باکتری/ ضدچسبندگی<sup>۳</sup> [۵]. فعالیت ضدباکتری پوشش‌های تهیه‌شده برپایه‌ی رویکرد ره‌ایش، از طریق ره‌ایش ترکیبات ضدباکتری بارگذاری شده طی زمان است. ره‌ایش عوامل ضدباکتری توسط نفوذ به محیط آبی، فرسایش و تخریب یا آبکافت پیوندهای کوالانسی حاصل می‌شود [۶]. در سازوکار تماسی، ترکیبات ضد میکروبی به‌صورت کوالانسی و توسط زنجیره‌های پلیمری انعطاف‌پذیر و آبگریز به سطح ماده متصل می‌شوند. باکتری متصل شده به دلیل اختلال غشا سلولی که ناشی از ترکیبات ضدباکتری است کشته می‌شود [۷]. سطوح ضدباکتری ممکن است موجب دفع باکتری شده و یا در برابر چسبیدن اولیه باکتری مقاومت کنند [۸]. هدف این پوشش‌ها جلوگیری از گام آغازین تشکیل زیست‌لایه<sup>۴</sup> با استفاده از سازوکارهای غیرسمی است [۹].

نانومواد خانواده گرافن، به‌ویژه مواد جفت‌شده با مواد خانواده گرافن (دارای ویژگی ضدباکتری هم‌افزا) مشخصه‌های ضدباکتری قابل توجهی از خود نشان می‌دهند. این مواد به سه صورت استفاده می‌شوند: شکل تک‌جزئی، ترکیب‌شده با سایر عوامل ضدباکتری و همراه با یک ماده پایه نظیر پلیمر [۱۰]. گرافن و مشتقات آن، شامل گرافن با تعداد لایه کم، اکسید گرافن و اکسید گرافن احیاشده از جمله مشهورترین نانومواد در سال‌های اخیر به حساب می‌آیند [۱۱]. اکسید گرافن حاوی گروه‌های عاملی هیدروکسیل، کربونیل، اسید کربوکسیلیک و اپوکسی است [۱۲] و با داشتن تک‌لایه‌ها و بلورهای دوبعدی با ساختار هیبریدی  $sp^2$  شناسایی می‌شود [۱۳]. ویژگی‌های ضد میکروبی نانومواد خانواده گرافن به آسیب فیزیکی غشا سلولی به علت لبه‌های تیز و

تنش اکسایشی نسبت داده می‌شوند [۱۴].

در پژوهشی نقش گروه‌های عاملی اکسید گرافن بر روی ویژگی ضدباکتری آن مورد بررسی قرار گرفت. به این منظور از روش‌های احیا و آبدار کردن برای تهیه اکسید گرافن با سطوح مختلف رادیکال کربن، هیدروکسیل و اکسیداسیون استفاده شد [۱۵]. اخوان<sup>۶</sup> و همکارش عملکرد نانوصفحات گرافنی را در قالب نانودیوارهای گرافنی برای باکتری گرم منفی و گرم مثبت ارزیابی کردند. غیرفعال‌سازی باکتری به آسیب غشا سلولی حاصل از تماس مستقیم باکتری با لبه‌های بسیار تیز نانودیوارها نسبت داده شد. همچنین مشاهده گردید نانودیوارهای احیاشده اکسید گرافن سمی تر از گونه احیا نشده آن است [۱۶]. گروناتان<sup>۷</sup> و همکارانش عملکرد ضدباکتری اکسید گرافن و اکسید گرافن احیاشده با دی‌تیوتریتول<sup>۸</sup> را در برابر باکتری گرم منفی *E. Coli* بررسی کردند. نتایج حاصل شده نشان داد که اکسید گرافن و اکسید گرافن احیاشده از عملکرد ضد میکروبی بسیار خوبی برخوردار هستند. عملکرد ضدباکتری توسط سنجش سلول‌های زنده<sup>۹</sup>، تولید گونه‌های اکسیژن فعال<sup>۱۰</sup> و تجزیه DNA ارزیابی شد [۱۷]. در پژوهشی اسفنج گرافنی تزئین شده با نانوذرات مس به روش گرمایی<sup>۱۱</sup> تهیه شد. محصول تهیه شده دارای شبکه گرافنی متخلخل سه بعدی و نانوذرات مس بود که به‌خوبی پراکنده شده بودند. عملکرد محصول تهیه شده به عنوان پالاینده ضدباکتری در برابر باکتری گرم منفی *E. Coli* بررسی شد. عملکرد قابل قبول محصول تهیه شده را می‌توان به تخریب غشا سلولی نسبت داد. همچنین ره‌ایش یون‌های مس تاثیر مثبتی بر روی عملکرد ضد باکتری دارد [۱۸].

عصاره سیر دارای گروه‌های حاوی نیتروژن و گوگرد فراوانی است که می‌تواند در عملکرد ضدباکتری آن سودمند باشد. تاکنون پژوهشی با محوریت بررسی اثر ضد باکتری هم‌افزای اکسید گرافن احیاشده/ آلاینش شده با عصاره سیر ارائه نشده‌است. به‌همین منظور این پژوهش برای نخستین بار به سنتز اکسید گرافن آلاینش شده مضاعف با عصاره سیر و کاتیون‌های مس و بررسی خاصیت ضدباکتری آن در پوشش‌های آکرلیک پایه آب می‌پردازد.

## ۲- بخش تجربی

## ۲-۱- مواد

پودر گرافیت از کراپمومول گرافیت آلمان<sup>۱</sup> تهیه شد. پرمنگنات

6- Akhavan

7- Gurunathan

8- Dithiothreitol

9- Cell viability

10- Reactive oxygen species (ROS)

11- Hydrothermal

1- Implants

2- Antibacterial agent release

3- Contact-killing

4- Anti-adhesion/bacteria-repelling

5- Biofilm

**۲-۲-۳- سنتز اکسید گرافن احیا شده / آلایش شده با عصاره****سیر (نمونه GGO)**

ابتدا ۰,۱۱ گرم از پودر عصاره سیر به همراه ۵ میلی لیتر آب دی یونیزه تا زمان انحلال کامل بر روی هم‌زن قرار گرفت. سپس ۵ میلی لیتر اکسید گرافن اضافه شد و به همراه ۶۰ میلی لیتر آب دی یونیزه به مدت ۵ دقیقه با توان ۱۵۰ وات تحت امواج فراصوت قرار گرفت. سپس این مواد به اتوکلاو منتقل شد و به مدت ۱۸ ساعت در دمای ۹۰ درجه سانتی گراد قرار گرفت. بعد از اتمام فرآیند گرمایی و رسیدن دمای اتوکلاو به دمای محیط، محصول توسط سانتریفیوژ شستشو شد. بخشی از محصول جهت مشخصه‌یابی و آنالیز در آون خشک گردید و باقی محصول جهت استفاده در مراحل بعدی نگهداری شد. محصول تهیه شده از این پس با نام GGO معرفی می‌گردد.

**۲-۲-۴- عامل دار کردن نمونه GGO با استفاده از نیترات مس****(نمونه Cu@GGO)**

ابتدا ۰,۲۲ گرم از GGO برداشته و به محلول آبی نیترات مس (۲,۵ گرم نیترات مس در ۱۰ میلی لیتر آب) اضافه شد و به مدت ۲۴ ساعت در دمای محیط بر روی هم‌زن مغناطیسی قرار گرفت. بعد از اتمام ۲۴ ساعت محصول ۵ مرتبه با آب دی یونیزه سانتریفیوژ شد. محصول تهیه شده از این پس با عنوان Cu@GGO معرفی می‌گردد.

**۲-۲-۵- تهیه پوشش‌های ضدباکتری**

برای تهیه پوشش‌های ضدباکتری، به میزان ۲ درصد (نسبت به محتوای جامد رزین آکرلیک) از عامل ضدباکتری GGO و Cu@GGO برداشته شد. پراکنه آبی همگن هر ماده ضدباکتری ابتدا با اعمال امواج فراصوت تهیه شد و سپس به رزین آکرلیک اضافه گردید. فرمول‌بندی تهیه شده بر روی دیوارپوش‌های پی‌وی‌سی اعمال و در دمای محیط خشک گردید. برای مقایسه دیوارپوش پی‌وی‌سی بدون پوشش به عنوان نمونه مرجع تهیه شد.

پتاسیم، نیترات مس ۳ آب  $(\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O})$  از شرکت مرک تهیه شد. اسید سولفوریک ۹۸ درصد، پراکسید هیدروژن و اسید هیدروکلریک ۳۷ درصد از صنایع شیمیایی دکتر مجللی تهیه شد. رزین پلی‌فام ۷۷۷ از رزینفام تهیه شد و برای تهیه عصاره سیر از بوته‌های سیر موجود در بازار استفاده شد. دیوار پوش‌های پی‌وی‌سی به عنوان زیرآیند مورد استفاده قرار گرفت.

**۲-۲-۲- روش کار****۲-۲-۱- تهیه اکسید گرافن**

سنتز اکسید گرافن که از این پس با کد (GO) معرفی می‌شود، به روش هامر اصلاح شده انجام شد [۱۹]. در ابتدا ۱ گرم گرافیت به همراه ۱۲۰ میلی لیتر اسید سولفوریک به مدت ۱ ساعت هم زده شد و در مرحله بعد ۱ گرم نیترات سدیم و ۶ گرم پتاسیم پرمنگنات به آرامی به مخلوط واکنش اضافه شدند. بعد از گذشت ۷۲ ساعت، رقیق‌سازی مخلوط واکنش با افزودن ۶۰۰ میلی لیتر آب دی یونیزه انجام شد. در پایان نیز با افزودن پراکسید هیدروژن سنتز تکمیل شد. بعد از تشکیل رسوب اکسید گرافیت، به منظور تهیه اکسید گرافن، مراحل متعدد شستشو با اسید هیدروکلریک و آب دی یونیزه انجام شد.

**۲-۲-۲- تهیه عصاره سیر (نمونه Ge)**

در ابتدا بوته‌های سیر شستشو شدند و در سایه خشک شدند. در ادامه ۳ گرم از پودر سیر تهیه شده به همراه ۱ لیتر آب دی یونیزه به مدت ۳ ساعت در دمای ۷۰ درجه سانتی گراد هم خورد. سپس عصاره تهیه شده از کاغذ پالایه عبور داده شد و محلول نهایی پس از شستشو در دمای ۶۰ درجه سانتی گراد خشک گردید. پودر عصاره سیر به عنوان منبع طبیعی گوگرد و نیتروژن در فرآیند آلایش اکسید گرافن استفاده شد. پودر سیر، عصاره آبی و پودر عصاره تهیه شده در شکل ۱ نشان داده شده است. عصاره تهیه شده از این پس با نام Ge معرفی می‌گردد.

**1- Graphite Kropfmühl**

شکل ۱: پودر سیر تهیه شده (سمت چپ)، عصاره آبی سیر (وسط) و پودر عصاره سیر (سمت راست)

Figure 1: The prepared garlic powder (left), aqueous extract of garlic (middle) and garlic extract powder (right).

## ۲-۶- مشخصه یابی نمونه‌ها

طیف‌سنج تبدیل زیر قرمز<sup>۱</sup> در محدوده عدد موجی  $4000-450 \text{ cm}^{-1}$  توسط دستگاه (Perkin Elmer spectrum one) تهیه شد. برای این منظور ابتدا نمونه پودر شده و فاقد آب با پتاسیم برماید مخلوط و از آن قرص تهیه گردید. سپس قرص در نگهدارنده دستگاه قرار داده شد و اسکن انجام شد. برای ارزیابی ترکیب شیمیایی نمونه GGO از آزمون طیف‌سنجی فوتوالکترون پرتو ایکس<sup>۲</sup> استفاده شد. برای انجام این آزمون دستگاه BesTech-8025 ray-X استفاده گردید. میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی<sup>۳</sup> Tescan Mira3 با ولتاژ ۱۵ کیلوولت تجهیز شده با طیف‌سنجی پراش انرژی پرتو ایکس<sup>۴</sup> برای ارزیابی نمونه‌ها استفاده شد. برای بررسی رفتار حرارتی نمونه‌های تهیه شده از آزمون تجزیه گرما وزنی<sup>۵</sup> استفاده شد. این آزمون توسط دستگاه Q600 شرکت TA در محدوده دمای محیط تا دمای ۶۰۰ درجه سانتی‌گراد و در اتمسفر خنثی انجام شد. در این روش تغییرات جرم نمونه با افزایش دما و در طی زمان ارزیابی می‌شود. نتایج به دست آمده اطلاعاتی در خصوص پدیده‌هایی همچون تبخیر اجزای نمونه و تخریب فراهم می‌کند. عملکرد ضدباکتری دیوارپوش‌های پوشش داده‌شده در برابر باکتری *S. aureus* ATCC 6538 و *E. Coli* ATCC 25922 براساس استاندارد ملی ۱۰۹۰۰ و استاندارد ISO 22196 ارزیابی شد.

## ۳- نتایج و بحث

## ۳-۱- بررسی مشخصه یابی نمونه‌های سنتز شده

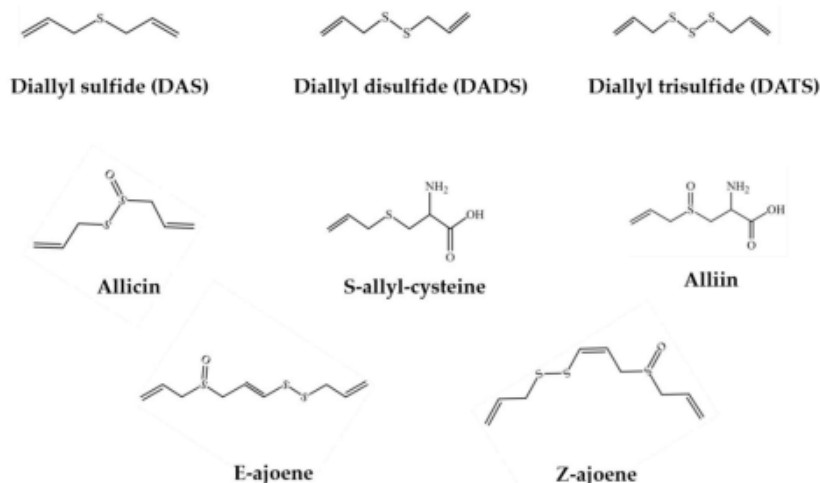
## ۳-۱-۱- نتایج آزمون طیف‌سنجی تبدیل فوریه زیر قرمز

بعد از تهیه عصاره سیر و سنتز نمونه‌های GO، GGO و Cu@GGO آزمون طیف‌سنجی تبدیل فوریه زیر قرمز انجام شد. شکل ۲ دربرگیرنده ترکیبات موجود در عصاره سیر (Ge) و شکل ۳ نشان

دهنده طیف FTIR نمونه‌های GO، Ge، GGO و Cu@GGO می‌باشد. عصاره سیر حاوی ترکیبات متنوعی است که از آن جمله می‌توان به مولکول‌های دی‌سولفید زیست فعال<sup>۱</sup> و گونه‌های تیول اشاره کرد. پیک‌های ظاهر شده در عدد موجی  $3387.92$  و  $2932.38 \text{ cm}^{-1}$  به ترتیب نشان دهنده پیوندهای O-H [۲۰] و کشش پیوند C-H است [۲۱]. پیک‌های موجود در نواحی  $1640.39$ ،  $1414.99$ ،  $1129.44$ ،  $1028.24$ ،  $931.07$ ،  $817.01$  و  $669.77 \text{ cm}^{-1}$  به ترتیب اثبات کننده کشش پیوند C=C، خمش پیوند O-H کربوکسیلات، SO<sub>2</sub> (سولفون)، لرزش کشش C-N، پیوند C-H، خمش پیوند N-H آمین نوع اول و خمش پیوند C-H آلکین است [۲۲]. وجود پیک‌های یادشده، حضور ترکیبات بر پایه گوگرد و نیتروژن را در عصاره سیر اثبات می‌نماید [۲۱].

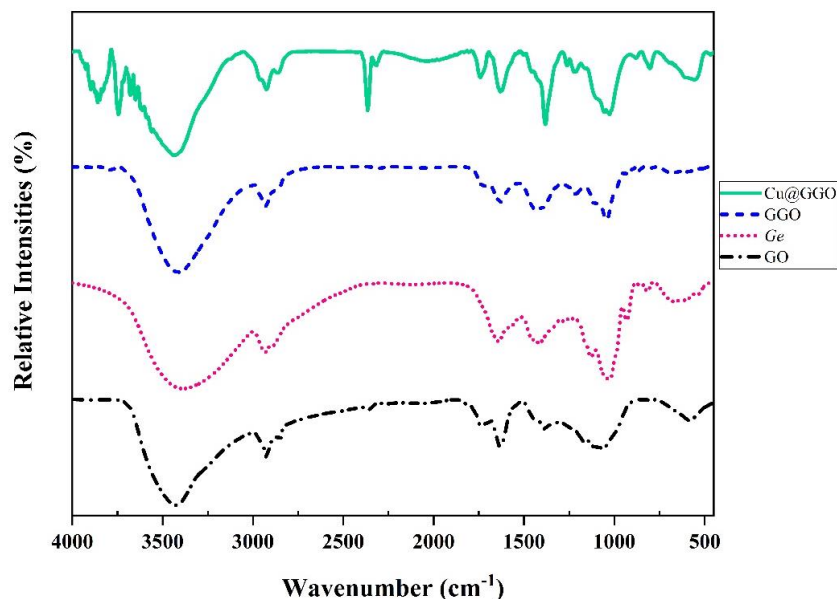
همان‌گونه که در شکل ۲ مشاهده می‌شود، طیف GO دربرگیرنده پیک‌های ظاهر شده در محدوده  $3473$ ،  $1734$ ،  $1630$  و  $1218 \text{ cm}^{-1}$  می‌باشد که به ترتیب به کشش پیوند O-H [۲۳، ۲۴]، کشش C=O، ارتعاشات C=C در حلقه فنلی و کشش C-O و یا C-OH نسبت داده می‌شود [۲۵]. حضور پیک‌های مشخصه عصاره سیر در طیف نمونه GGO، نشان دهنده سنتز موفقیت‌آمیز GGO می‌باشد. همچنین شدت پیک مربوط به پیوند C=O ( $1700 \text{ cm}^{-1}$ ) [۲۶] در نمونه GGO در مقایسه با نمونه GO کاهش اندکی داشته که نشان‌دهنده احیای اکسید گرافن در حین فرآیند گرمایی می‌باشد.

- 1- Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR)
- 2- X-ray photoelectron spectroscopy (XPS)
- 3- Field emission scanning electron microscope (FESEM)
- 4- Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy (EDX)
- 5- Thermogravimetric analysis (TGA)
- 6- Bioactive



شکل ۲: ساختار شیمیایی برخی ترکیبات آلی گوگردی موجود در سیر [۳۰].

Figure 2: Chemical structures of some organosulfur compounds in garlic.



شکل ۳: طیف‌های FTIR نمونه‌های GO، Ge، GGO و Cu@GGO.

Figure 3: FTIR spectra of GO, Ge, GGO and Cu@GGO.

استفاده شد. همچنین به منظور ارزیابی دقیق پیوندها، طیف S 2p و N 1s این نمونه نیز در شکل ۴ ارائه شده‌است. طیف XPS کلی این نمونه در داخل طیف S 2p (شکل ۴) درج شده‌است. با هدف تحلیل بهتر، پیک‌ها در طیف‌های با تفکیک بالا برازش شده‌اند. پیک‌های واقع در ۱۶۵،۱ و ۱۶۸،۲ الکترون ولت به ترتیب به جفت اسپین-اوربیتال پیک S 2p<sub>1/2</sub> گوگرد تیوفنی و C-SO<sub>x</sub>-C (x=۲-۴) نسبت داده می‌شود [۳۱، ۳۲].

همچنین در طیف N 1s، پیک‌های برازش شده در موقعیت‌های ۳۹۹،۸ و ۴۰۱،۴ الکترون ولت به نیتروژن پیرولیکی و گرافیتی نسبت داده می‌شوند [۳۳]. درصد اتمی هر کدام از عناصر مستخرج از طیف XPS در جدول ۱ ارائه شده‌است.

در طیف نمونه Cu@GGO، پیک‌های جدیدی مشاهده می‌شود که از جمله می‌توان به حضور پیک ۵۵۹،۳۸ اشاره کرد که به پیوند Cu-O نسبت داده می‌شود [۲۷]. پیک‌های ظاهر شده در محدوده ۱۰۰۰-۴۰۰ به علت وجود پیوندهای Cu-O-H است [۲۸]. همچنین جایجایی پیک مربوط به کشش پیوند C-O در نمونه مربوط به Cu@GGO به سمت عددهای موجی بالاتر به برهم‌کنش میان اکسید گرافن احیا شده با اکسید مس نسبت داده می‌شود [۲۹].

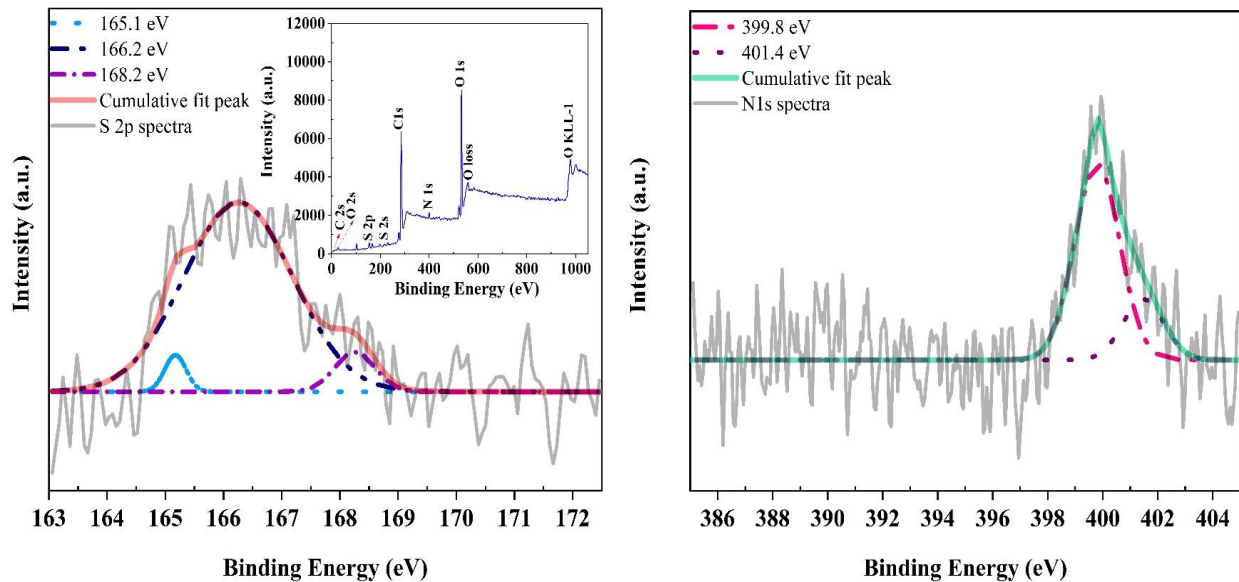
### ۳-۲- نتایج آزمون طیف‌سنجی فوتوالکترون پرتو ایکس

برای ارزیابی محصول تهیه شده در فرآیند گرمایی (GGO) و تعیین درصد عناصر مختلف از آزمون طیف‌سنجی فوتوالکترون پرتو ایکس

جدول ۱: درصد اتمی عناصر موجود در نمونه GGO.

Table 1: Atomic percentage of the elements available in GGO sample.

| Peak ID                | O    | C    | N   | S   |
|------------------------|------|------|-----|-----|
| Atom percentage (at %) | 54.7 | 42.9 | 1.0 | 1.4 |



شکل ۴: نمودار S2p و N1s نمونه GGO، نمودار کلی در داخل شکل مربوط به طیف S2p درج شده است.  
**Figure 4:** S2p and N1s high-resolution spectra of GGO sample, XPS survey is inserted in S2p spectra

جدول ۲: نتایج آنالیز EDX نمونه‌ها.

**Table 2:** The results of EDX analysis of the samples.

| Cu@GGO |          | GGO   |          | GO    |        |
|--------|----------|-------|----------|-------|--------|
| W%     | Elt      | W%    | Elt      | W%    | Elt    |
| 13.98  | Carbon   | 49.17 | Carbon   | 42.11 | Carbon |
| 36.00  | Oxygen   | 35.10 | Oxygen   |       |        |
| 5.71   | Nitrogen | 5.32  | Nitrogen | 57.89 | Oxygen |
| 17.87  | Sulfur   | 10.41 | Sulfur   |       |        |
| 26.43  | Copper   |       |          |       |        |

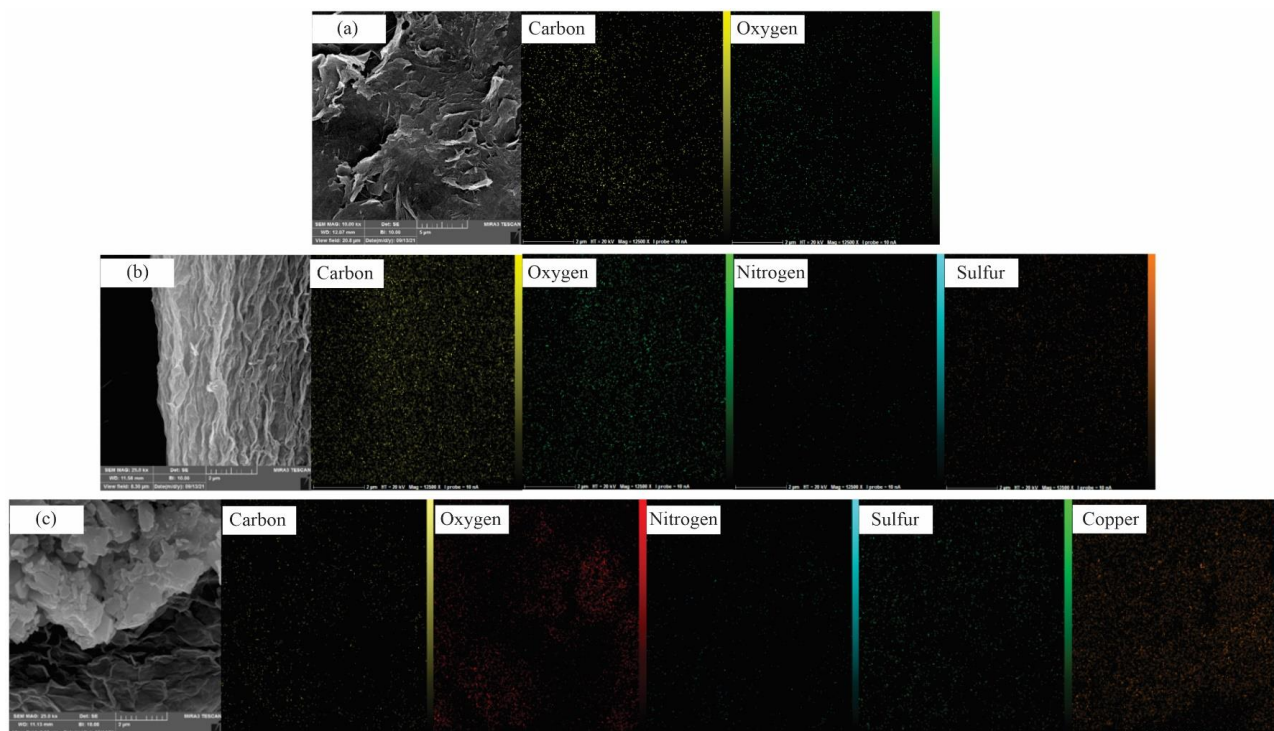
GGO مشاهده می‌شود. از طرفی فرآیند بارگذاری عنصر مس بر روی نمونه GGO منجر به تشکیل تجمعات صفحات شده‌است.

### ۳-۱-۴- نتایج تجزیه گرما وزنی

نتایج آزمون تجزیه گرما وزنی در شکل ۶ نشان داده شده است. مرحله کاهش وزن نمونه GO تا دمای ۱۰۰ درجه سانتی‌گراد به علت تبخیر مولکول‌های آب به دام افتاده در ساختار می‌باشد مقدار کمتر کاهش وزن نمونه GGO در مقایسه با نمونه GO به علت مقادیر کمتر آب موجود در ساختار این نمونه می‌باشد. کاهش وزن مرحله دوم نمونه GO در محدوده ۱۰۰-۲۱۰ درجه سانتی‌گراد اتفاق می‌افتد که به حذف گروه‌های عاملی اکسیژن‌دار نسبت داده می‌شود [۳۶]. کاهش وزن مرحله سوم نمونه GGO به پیرولیز اسکلت کربنی نسبت داده می‌شود.

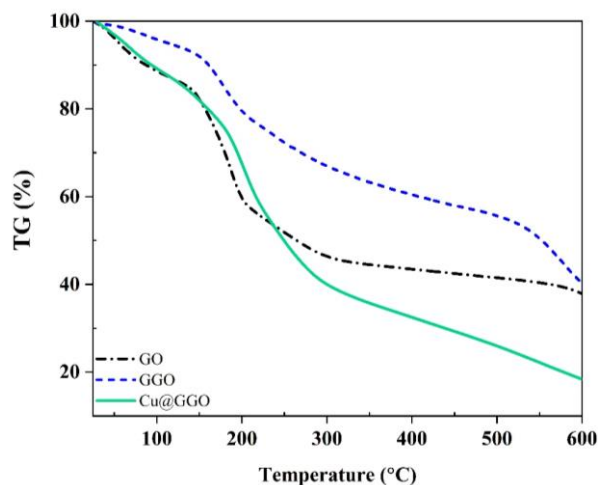
### ۳-۱-۳- نتایج آزمون میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی/طیف‌سنجی پراش انرژی پرتو ایکس

برای بررسی ریخت‌شناسی سطح نمونه‌ها، عناصر موجود و همچنین نحوه توزیع عناصر از آزمون FESEM/EDX/map استفاده شد. نتایج FESEM/map نمونه‌های GO، GGO و Cu@GGO به ترتیب در شکل ۵ قسمت a، b و c نشان داده شده است. نتایج EDX نمونه‌ها در جدول ۲ ارائه شده است. همانگونه که در تصویر مشاهده می‌شود، صفحات اکسید گرافن قابل تشخیص بوده و تحت تاثیر فرآیند گرمایی و خروج اکسیژن از ساختار، تغییرات ریخت در نمونه GGO (قسمت ب) مشهود است [۳۴]. از طرفی به دلیل احیای هم‌زمان اکسید گرافن، انباشتگی صفحات و وجود ساختارهای چندلایه متراکم مشاهده می‌شود [۳۵]. همچنین در اثر اصلاح گرافن با عصاره سیر توزیع قابل قبولی از عناصر گوگرد و نیتروژن در نمونه



شکل ۵: تصاویر FESEM و نتایج آنالیز map نمونه‌ها: (a) GO، (b) GGO و (c) Cu@GGO.

Figure 5: FESEM micrographs and the corresponding results of map analysis of the samples: a) GO, b) GGO and c) Cu@GGO.



شکل ۶: نمودار آنالیز تجزیه گرما وزنی نمونه‌های GO، GGO و Cu@GGO.

Figure 6: The diagram of thermogravimetric analysis of GO, GGO and Cu@GGO.

GO می‌باشد. کاهش وزن مشاهده شده در مرحله اول (تا دمای ۱۰۰ درجه سانتی‌گراد) به حذف آب از ساختار نمونه نسبت داده می‌شود. تغییرات وزن مشاهده شده در مرحله دوم ناشی از حذف گروه‌های اکسیژن دار و تجزیه هیدروکسید مس می‌باشد. هیدروکسید مس ناپایدار بوده و در دماهای بالاتر از ۱۵۰ درجه سانتی‌گراد به

همانگونه که از نمودار نمونه GGO نتیجه‌گیری می‌شود، در طی فرآیند هم‌زمان آلاینش - احیا، فرآیند احیا به صورت کامل انجام نشده و کاهش وزن در اثر حذف گروه‌های عاملی حاوی اکسیژن نیز در این نمونه مشهود است [۳۷]. کاهش وزن نمونه Cu@GGO گواهی بر تغییر ماهیت این نمونه و آبدوست بودن آن (قابل مقایسه با نمونه



CuO تجزیه می شود [۳۸].

ضدباکتری به ترتیب در جدول ۳ و ۴ آورده شده است. دیوارپوش های پوشش داده شده عملکرد بهتری در برابر باکتری گرم مثبت نشان داده اند. در واقع آلیسین ترکیب فعالی است که به صورت زیستی مسئول خواص ضد میکروبی سیر می باشد و تاثیر بازدارندگی سیر بر روی رشد باکتری *S. aureus* نیز به دلیل وجود این ترکیب می باشد [۳۹].

### ۲-۳- بررسی رفتار ضدباکتری دیوارپوش های پی وی سی پوشش داده شده

تصاویر نمونه ها و نتایج مستخرج از آزمون ضدباکتری دیوارپوش های پوشش داده شده با پوشش آکرلیک فاقد و حاوی ۲ درصد از عوامل

جدول ۳: ارزیابی چشمی آزمون ضدباکتری نمونه ها.

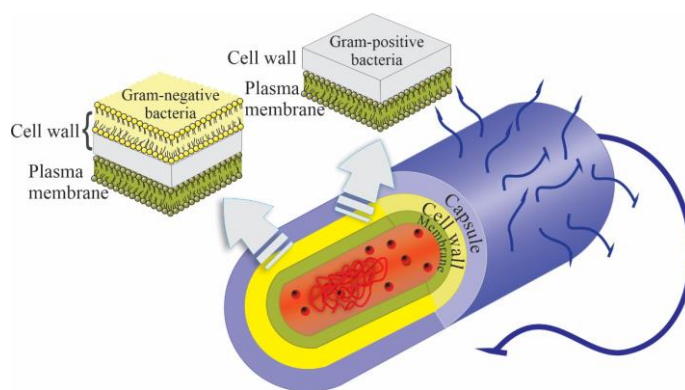
Table 3: Visual evaluation of the samples' antibacterial test.

| Sample | Viable Cell Count |      |       |         |      |       |
|--------|-------------------|------|-------|---------|------|-------|
|        | S. aureus         |      |       | E. Coli |      |       |
|        | 1 hr              | 6 hr | 24 hr | 1 hr    | 6 hr | 24 hr |
| Blank  |                   |      |       |         |      |       |
| GGO    |                   |      |       |         |      |       |
| Cu@GGO |                   |      |       |         |      |       |

جدول ۴: نتایج مستخرج از آزمون ضدباکتری نمونه ها

Table 4: The results extracted from antibacterial test

| Strain: S. aureus |                       |                      |  |                       |                      |  |                       |                      |  |
|-------------------|-----------------------|----------------------|--|-----------------------|----------------------|--|-----------------------|----------------------|--|
|                   | Blank                 |                      |  | GGO                   |                      |  | Cu@GGO                |                      |  |
| Time              | Viable Count (CFU/ml) | Reduction Percentage | Logarithmic Reduction (Log <sub>10</sub> ) | Viable Count (CFU/ml) | Reduction Percentage | Logarithmic Reduction (Log <sub>10</sub> ) | Viable Count (CFU/ml) | Reduction Percentage | Logarithmic Reduction (Log <sub>10</sub> ) |
| 1 hr              | 1×10 <sup>5</sup>     | -                    | -  | 5×10 <sup>4</sup>     | 50                   | 0.301                                      | 2×10 <sup>4</sup>     | 80                   | 0.699                                      |
| 6 hr              | 1×10 <sup>5</sup>     | -                    | -  | 1×10 <sup>4</sup>     | 90                   | 1  | <10                   | >99.9                | >4   |
| 24 hr             | 1×10 <sup>5</sup>     | -                    | -  | <20                   | >99.9                | >3.699                                     | <10                   | >99.9                | >4   |
| Strain: E. Coli   |                       |                      |  |                       |                      |  |                       |                      |  |
|                   | Blank                 |                      |  | GGO                   |                      |  | Cu@GGO                |                      |  |
| Time              | Viable Count (CFU/ml) | Reduction Percentage | Logarithmic Reductio (Log <sub>10</sub> )  | Viable Count (CFU/ml) | Reduction Percentage | Logarithmic Reduction (Log <sub>10</sub> ) | Viable Count (CFU/ml) | Reduction Percentage | Logarithmic Reduction (Log <sub>10</sub> ) |
| 1 hr              | 1×10 <sup>5</sup>     | -                    | -  | 9×10 <sup>4</sup>     | 10                   | 0.046                                      | 9×10 <sup>4</sup>     | 10                   | 0.046                                      |
| 6 hr              | 1×10 <sup>5</sup>     | -                    | -  | 2×10 <sup>4</sup>     | 80                   | 0.699                                      | <10                   | >99.9                | >4   |
| 24 hr             | 1×10 <sup>5</sup>     | -                    | -  | <50                   | >99.9                | >3.301                                     | < 10                  | >99.9                | >4   |



شکل ۷: طرح‌واره‌ای از ساختار کلی باکتری‌ها و وجه تمایز باکتری گرم مثبت و گرم منفی.

Figure 7: Schematic illustration of the bacteria general structure and the distinction between Gram positive and Gram-negative bacteria.

سنتز موفقیت‌آمیز محصول توسط آزمون طیف‌سنجی تبدیل فوریه زیر قرمز تایید شد. همچنین براساس نتایج آزمون طیف‌سنجی فوتوالکترون پرتو ایکس میزان بارگذاری دو عنصر گوگرد و نیتروژن به ترتیب برابر با ۱,۴ و ۱,۰ درصد گزارش شد. آزمون ضدباکتری عملکرد خوب نمونه حاوی مس را در برابر باکتری گرم مثبت نشان داد. نتایج آزمون ضدباکتری عملکرد منحصر به فرد و کاهش تقریباً ۱۰۰ درصدی باکتری را هنگام استفاده از ۲ درصد از عوامل ضدباکتری سنتز شده را در پوشش آکرلیک و در طی زمان ۲۴ ساعت تایید کردند. محصولات تهیه شده پتانسیل استفاده در سطوح ضدباکتری مختلف با فرمول‌بندی‌های متفاوت را دارا می‌باشند.

#### تعارض منافع

کلیه حقوق طرح که این مقاله مستخرج از آن است متعلق به مرکز مطالعات و همکاری‌های علمی بین‌المللی وزارت علوم، تحقیقات و فناوری است. هیچ گونه تعارض منافع دیگری توسط نویسندگان بیان نشده است.

#### تشکر و قدردانی

این پروژه با حمایت مالی مرکز مطالعات و همکاری‌های علمی بین‌المللی وزارت علوم، تحقیقات و فناوری انجام شده است.

- 1- Reactive sulfur species (RSS)
- 2- Membrane stress
- 3- Oxidative stress
- 4- Photothermal reaction
- 5- Coverage and isolation

گونه‌های واکنش‌پذیر گوگرد<sup>۱</sup> موجود در سیر می‌توانند با گروه‌های تیول در گلوکاتین و پروتئین‌ها که برای فعالیت‌های زیستی باکتری ضروری هستند، وارد واکنش اکسایش-کاهش شوند [۴۰]. در واقع گوگرد می‌تواند به دیواره سلولی متصل شده و باعث از هم گسستگی غشا شده که منجر به زوال دیواره سلولی و مرگ سلول می‌شود. از طرفی عملکرد ضدباکتری نمونه Cu@GGO در مقایسه با نمونه GGO بهتر است که این نتایج به تسهیل اتصال نمونه Cu@GGO به دیواره سلولی باکتری نسبت داده می‌شود چرا که سطح دیواره باکتری دارای بار منفی بوده و کاتیون‌های مس فرآیند پیوند و تخریب را تسهیل می‌نمایند [۴۱]. مقادیر کم یون‌های مس برای باکتری‌ها سمی می‌باشد که به رهائش مقدار کم یون‌های مس به داخل بافت باکتری نسبت داده می‌شود [۴۲].

علت دیگر نتایج حاصل شده تفاوت در ساختار کلی باکتری‌های گرم مثبت و گرم منفی است. در واقع مقاومت بیشتر باکتری *E. Coli* در برابر تماس مستقیم در مقایسه با باکتری *S. aureus* را می‌توان به وجود یک غشا خارجی در ساختار باکتری *E. Coli* نسبت داد [۱۶]. شکل ۷ طرح‌واره‌ای از ساختار این باکتری‌ها را ارائه می‌کند.

به‌طور کلی می‌توان عملکرد خوب ضدباکتری نمونه‌های بر پایه گرافن را به تنش غشایی<sup>۲</sup> [۴۳]، تنش اکسیدکننده<sup>۳</sup> [۴۴، ۴۵]، انتقال الکترون [۴۶، ۴۷]، واکنش نور گرمایی<sup>۴</sup> [۴۸] و پوشش و انزوا<sup>۵</sup> [۴۹] نسبت داد.

#### ۴- نتیجه‌گیری

در این پژوهش اکسید گرافن آلاینش شده/ احیاء شده با کمک عصاره سیر سنتز شد. همچنین با هدف بهبود عملکرد ضدباکتری از این محصول به عنوان بستری برای تشکیل هیدروکسید مس استفاده شد.

## ۵- مراجع

- M. Raffi. S. Mehrwan. T. M. Bhatti. J. I. Akhter. A. Hameed. W. Yawar. M. M. ul Hasan. Investigations into the antibacterial behavior of copper nanoparticles against *Escherichia coli*. *Ann. Microbiol.* 60 (2010). 75-80.
- S. B. Levy. Antibiotic availability and use: consequences to man and his environment. *J. Clin. Epidemiol.* 45 (1991). 83-87.
- G. Tong. M. Yulong. G. Peng. X. Zirong. Antibacterial effects of the Cu (II)-exchanged montmorillonite on *Escherichia coli* K88 and *Salmonella choleraesuis*. *Vet. Microbiol.* 105 (2005). 113-122.
- N. Cioffi. L. Torsi. N. Ditaranto. G. Tantillo. L. Ghibelli. L. Sabbatini. T. Bleve-Zacheo. M. D'Alessio. P. G. Zamboni. E. Traversa. Copper nanoparticle/polymer composites with antifungal and bacteriostatic properties. *Chem. Mater.* 17 (2005). 5255-5262.
- M. Cloutier. D. Mantovani. F. Rosei. Antibacterial coatings: challenges, perspectives, and opportunities. *Trends Biotechnol.* 33 (2015). 637-652.
- D. Campoccia. L. Montanaro. C. R. Arciola. A review of the biomaterials technologies for infection-resistant surfaces. *Biomaterials.* 34 (2013). 8533-8554.
- K. Lewis. A. M. Klivanov. Surpassing nature: rational design of sterile-surface materials. *Trends Biotechnol.* 23 (2005). 343-348.
- J. Hasan. R. J. Crawford. E. P. Ivanova. Antibacterial surfaces: the quest for a new generation of biomaterials. *Trends Biotechnol.* 31 (2013). 295-304.
- W. M. Dunne Jr. Bacterial adhesion: seen any good biofilms lately? *Clin Microbiol Rev.* 15 (2002). 155-166.
- W. Han. Z. Wu. Y. Li. Y. Wang. Graphene family nanomaterials (GFNs)—promising materials for antimicrobial coating and film: A review. *Chem. Eng. J.* 358 (2019). 1022-1037.
- V. C. Sanchez. A. Jachak. R. H. Hurt. A. B. Kane. Biological interactions of graphene-family nanomaterials: an interdisciplinary review. *Chem. Res. Toxicol.* 25 (2012). 15-34.
- M. Mohammad Raei Nayini, M. Jalili, Z. Ranjbar, Printed Electronics, Based on Carbon Nanotubes and Graphene Nanosheets. *J. Stud. Color World*, 10(2020), 29-42.
- A. C. Neto. F. Guinea. N. M. Peres. Drawing conclusions from graphene. *Phys. World.* 19 (2006). 33.
- W. Hu. C. Peng. W. Luo. M. Lv. X. Li. D. Li. Q. Huang. C. Fan. Graphene-based antibacterial paper. *ACS nano.* 4 (2010). 4317-4323.
- R. Li. N. D. Mansukhani. L. M. Guiney. Z. Ji. Y. Zhao. C. H. Chang. C. T. French. J. F. Miller. M. C. Hersam. A. E. Nel. Identification and optimization of carbon radicals on hydrated graphene oxide for ubiquitous antibacterial coatings. *ACS nano.* 10 (2016). 10966-10980.
- O. Akhavan. E. Ghaderi. Toxicity of graphene and graphene oxide nanowalls against bacteria. *ACS nano.* 4 (2010). 5731-5736.
- S. Gurunathan. J. W. Han. A. A. Dayem. V. Eppakayala. M.-R. Park. D.-N. Kwon. J.-H. Kim. Antibacterial activity of dithiothreitol reduced graphene oxide. *J Ind Eng Chem.* 19 (2013). 1280-1288.
- C.-H. Deng. J.-L. Gong. G.-M. Zeng. P. Zhang. B. Song. X.-G. Zhang. H.-Y. Liu. S.-Y. Huan. Graphene sponge decorated with copper nanoparticles as a novel bactericidal filter for inactivation of *Escherichia coli*. *Chemosphere.* 184 (2017). 347-357.
- M. Ramezanzadeh. M. Asghari. B. Ramezanzadeh. G. Bahlakeh. Fabrication of an efficient system for Zn ions removal from industrial wastewater based on graphene oxide nanosheets decorated with highly crystalline polyaniline nanofibers (GO-PANI): Experimental and ab initio quantum mechanics approaches. *Chem. Eng. J.* 337 (2018). 385-397.
- L. Tavares. C. P. Z. Noreña. Characterization of the physicochemical, structural and thermodynamic properties of encapsulated garlic extract in multilayer wall materials. *Powder Technol.* 378 (2021). 388-399.
- L. Rastogi. J. Arunachalam. Sunlight based irradiation strategy for rapid green synthesis of highly stable silver nanoparticles using aqueous garlic (*Allium sativum*) extract and their antibacterial potential. *Mater. Chem. Phys.* 129 (2011). 558-563.
- P. Parthipan. P. Elumalai. J. Narenkumar. L. L. Machuca. K. Murugan. O. P. Karthikeyan. A. Rajasekar. *Allium sativum* (garlic extract) as a green corrosion inhibitor with biocidal properties for the control of MIC in carbon steel and stainless steel in oilfield environments. *Int. Biodeterior. Biodegradation.* 132 (2018). 66-73.
- A. Gholami Akerdi, S. H. Bahrami, M. Arami, N. Noormohammadi, Discoloration of Cationic Dye by Using Reduced Graphene Oxide Modified Carbon Electrode and Magnetite Nanoparticles Within Heterogeneous Electrode Process, *J. Color Sci. Tech.* 15(2021), 1-11.
- A. M. Mollaei, Sh. Salem, Synthesis of Magnesium Aluminate-Graphene Oxide Composite for Dye Removal, *J. Color Sci. Tech.* 14(2020), 173-190.
- M. Ramezanzadeh. B. Ramezanzadeh. M. Mahdavian. G. Bahlakeh. Development of metal-organic framework (MOF) decorated graphene oxide nanoplateforms for anti-corrosion epoxy coatings. *Carbon.* 161 (2020). 231-251.
- S. K. Srivastava. C. Ogino. A. Kondo. Green synthesis of thiolated graphene nanosheets by alliin (garlic) and its effect on the deposition of gold nanoparticles. *RSC Adv.* 4 (2014). 5986-5989.
- B. De. B. Voit. N. Karak. Carbon dot reduced Cu<sub>2</sub>O nanohybrid/ hyperbranched epoxy nanocomposite: mechanical, thermal and photocatalytic activity. *RSC Adv.* 4 (2014). 58453-58459.
- M. Fukuda. N. Koga. Kinetics and mechanisms of the thermal decomposition of copper (II) hydroxide: A consecutive process comprising induction period, surface reaction, and phase boundary-controlled reaction. *J. Phys. Chem. C.* 122 (2018). 12869-12879.
- D. Majumdar. N. Baugh. S. K. Bhattacharya. Ultrasound assisted formation of reduced graphene oxide-copper (II) oxide nanocomposite for energy storage applications. *Colloids Surf. A.* 512 (2017). 158-170.
- A. Shang. S.-Y. Cao. X.-Y. Xu. R.-Y. Gan. G.-Y. Tang. H. Corke. V. Mavumengwana. H.-B. Li. Bioactive compounds and biological functions of garlic (*Allium sativum* L.). *Foods.* 8 (2019). 246.
- M. Li. C. Liu. H. Zhao. H. An. H. Cao. Y. Zhang. Z. Fan. Tuning sulfur doping in graphene for highly sensitive dopamine biosensors. *Carbon.* 86 (2015). 197-206.
- C. Zhai. M. Sun. M. Zhu. S. Song. S. Jiang. A new method to synthesize sulfur-doped graphene as effective metal-free electrocatalyst for oxygen reduction reaction. *Appl. Surf. Sci.* 407 (2017). 503-508.
- B. Quan. S.-H. Yu. D. Y. Chung. A. Jin. J. H. Park. Y.-E. Sung. Y. Piao. Single source precursor-based solvothermal

- synthesis of heteroatom-doped graphene and its energy storage and conversion applications. *Sci. Rep.* 4 (2014). 1-6.
34. N. Sharma. V. Sharma. Y. Jain. M. Kumari. R. Gupta. S. Sharma. K. Sachdev, Synthesis and characterization of graphene oxide (GO) and reduced graphene oxide (rGO) for gas sensing application. *Macromol. Symp.* 376(2017), 1700006: Wiley Online Library.
  35. M. Mahmudzadeh. H. Yari. B. Ramezanzadeh. M. Mahdavian. *Urtica dioica* extract as a facile green reductant of graphene oxide for UV resistant and corrosion protective polyurethane coating fabrication. *J Ind Eng Chem.* 78 (2019). 125-136.
  36. S. Park. J. An. J. R. Potts. A. Velamakanni. S. Murali. R. S. Ruoff. Hydrazine-reduction of graphite-and graphene oxide. *Carbon.* 49 (2011). 3019-3023.
  37. M. Wojtoniszak. X. Chen. R. J. Kalenczuk. A. Wajda. J. Łapczuk. M. Kurzewski. M. Drozdik. P. K. Chu. E. Borowiak-Palen. Synthesis, dispersion, and cytocompatibility of graphene oxide and reduced graphene oxide. *Colloids Surf. B.* 89 (2012). 79-85.
  38. X. Wu. G. Shi. Production and characterization of stable superhydrophobic surfaces based on copper hydroxide nanoneedles mimicking the legs of water striders. *J. Phys. Chem. B.* 110 (2006). 11247-11252.
  39. A. A. Khashan. Antibacterial activity of garlic extract (*Allium sativum*) against *Staphylococcus aureus* in vitro. *GJBB.* 3 (2014). 346-348.
  40. J. Borlinghaus. F. Albrecht. M. C. Gruhlke. I. D. Nwachukwu. A. J. Slusarenko. Allicin: chemistry and biological properties. *Molecules.* 19 (2014). 12591-12618.
  41. S. Shankar. R. Pangeni. J. W. Park. J.-W. Rhim. Preparation of sulfur nanoparticles and their antibacterial activity and cytotoxic effect. *Mater. Sci. Eng. C.* 92 (2018). 508-517.
  42. S. Khamseh. M. Ganjaee Sari. E. Alibakhshi. M. Nemati. Hydrogen-free Cu: Amorphous-C: N Coating on TC4 Titanium alloy: The role of gas ratio on mechanical and antibacterial potency. *Prog. Color Color. Coat.* 14 (2021). 281-291.
  43. X. Zou. L. Zhang. Z. Wang. Y. Luo. Mechanisms of the antimicrobial activities of graphene materials. *J. Am. Chem. Soc.* 138 (2016). 2064-2077.
  44. Y. Tu. M. Lv. P. Xiu. T. Huynh. M. Zhang. M. Castelli. Z. Liu. Q. Huang. C. Fan. H. Fang. Destructive extraction of phospholipids from *Escherichia coli* membranes by graphene nanosheets. *Nat. Nanotechnol.* 8 (2013). 594-601.
  45. L. Shi. J. Chen. L. Teng. L. Wang. G. Zhu. S. Liu. Z. Luo. X. Shi. Y. Wang. L. Ren. The antibacterial applications of graphene and its derivatives. *Small.* 12 (2016). 4165-4184.
  46. J. Li. G. Wang. H. Zhu. M. Zhang. X. Zheng. Z. Di. X. Liu. X. Wang. Antibacterial activity of large-area monolayer graphene film manipulated by charge transfer. *Sci. Rep.* 4 (2014). 1-8.
  47. S. Panda. T. K. Rout. A. D. Prusty. P. M. Ajayan. S. Nayak. Electron transfer directed antibacterial properties of graphene oxide on metals. *Adv. Mater.* 30 (2018). 1702149.
  48. W. Qian. C. Yan. D. He. X. Yu. L. Yuan. M. Liu. G. Luo. J. Deng. pH-triggered charge-reversible of glycol chitosan conjugated carboxyl graphene for enhancing photothermal ablation of focal infection. *Acta Biomater.* 69 (2018). 256-264.
  49. J. Zhao. Z. Wang. J. C. White. B. Xing. Graphene in the aquatic environment: adsorption, dispersion, toxicity and transformation. *Environ. Sci. Technol.* 48 (2014). 9995-10009.

**How to cite this article:**

S. Akbaripoor Tafreshi Nejad, E. Alibakhshi, B. Ramezanzadeh, S. A. Haddadi, M. Arjmand, M. Mahdavian, Synthesis of Double-doped Graphene Oxide with Garlic Extract and Cu Cations for Application in Anti-bacterial Coatings. *J. Color Sci. Tech.* 16, 2(2022), 173-184.

**DOR: 20.1001.1.17358779.1401.16.2.7.1**