

## اثر غلظت متان و دما در تعداد لایه‌های گرافین فوم سنتز شده به روش CVD

نرگس کریمی‌زاده، محسن بابامرادی

دانشکده فیزیک، دانشگاه علم و صنعت ایران

روح اله عظیمی راد، سعید صفا

گروه نانوفیزیک، دانشگاه صنعتی مالک اشتر، تهران

(دریافت مقاله: ۹۶/۰۷/۱۸ - پذیرش مقاله: ۹۷/۰۲/۱۹)

### چکیده

در این پژوهش گرافین فوم (GF) کم‌لایه به روش رسوب‌دهی بخار شیمیایی (CVD) سنتز شد و اثر غلظت متان و دمای سنتز مورد مطالعه قرار گرفت. با تغییر غلظت گاز عامل (متان) با مقادیر ۰.۵، ۰.۶، ۰.۷، ۱ و ۱.۵ sccm (standard cubic centimeters per minute) به ترتیب گرافین فوم با تعداد لایه‌های ۲، ۴، ۶، ۱۱ و ۲۵ بدست آمد. همچنین با تغییر دمای سنتز CVD در دماهای ۹۰۰، ۱۰۰۰ و ۱۱۲۰ درجه سانتی‌گراد به ترتیب گرافین فوم ۲۳، ۱۰ و ۶ لایه تولید شد. تصاویر بدست آمده از میکروسکوپ روبشی الکترونی (SEM) کیفیت ساختار متخلخل GF را نشان می‌دهد. طیف سنجی رامان برای تایید تشکیل گرافین و ارتباط بین تعداد لایه‌های GF با تغییر غلظت گاز متان و دمای سنتز بکار گرفته شد. نتایج بدست آمده از طیف سنجی رامان نشان می‌دهد، تغییر غلظت گاز عامل (متان) و دمای سنتز عوامل مهم در تعیین تعداد لایه‌های گرافین کم‌لایه هستند. با کاهش غلظت گاز متان به ۰/۶ sccm و افزایش دمای سنتز به ۱۱۲۰ درجه سانتی‌گراد نمونه GF دولایه سنتز شد. واژه‌های کلیدی: رسوب‌دهی بخار شیمیایی، گرافین فوم کم‌لایه، متان، دمای سنتز.

## Effect of Methane Concentration and Temperature on The Layer Number of Graphene Foam Synthesized by CVD

Narges Karimizadeh, Mohsen Babamoradi

Department of Physics, Iran University of Science and Technology, Tehran, Iran

Rouhollah Azimirad, Saeid Safa

Malek-Ashtar University of Technology, Tehran, Iran

(Received 10 October 2017, accepted 9 May 2018)

### Abstract

In this study, the few-layer graphene foam (GF) was synthesized by chemical vapor deposition (CVD) method and the effect of methane concentration and the synthesizing temperature on the number of GF layer have been studied. With methane concentration changing as 0.5, 0.6, 0.7, 1 and 1.5 sccm (standard cubic centimeters per minute) the 2, 4, 6, 11 and 25 layer graphene foam was obtained, respectively. The CVD synthesizing temperature also was studied and by changing the temperature as 900, 1000 and 1120°C, the 23, 10 and 6 layer GF was synthesized. The images of scanning electron microscopy (SEM) showed the good quality of porous structure of synthesized GF. Raman analysis was used to confirm the formation of graphene foam and to find the relationship between the methane concentration and the synthesizing temperature (as synthesizing conditions) and layers number of GF. The obtained results from Raman analysis showed that the methane concentration and synthesizing temperature are important parameters for formation of few-layer GF. The two-layer GF was synthesized by decreasing the concentration of methane to 0.6 sccm and increasing the temperature to 1120 C.

**Keywords:** Chemical Vapor deposition (CVD); low layer graphene foam; methane; synthesizing temperature.

**E-mail of Corresponding author:** babamoradi@iust.ac.ir.

## مقدمه

گرافین یک ورقه دو بعدی از هیبرید  $SP^2$  کربن است که اتم‌ها داخل یک شبکه لانه زنبوری آراییده شده‌اند [۱] و می‌توان آن را به صورت گرافین تک لایه و یا چند لایه تولید کرد. گرافین‌های دولایه و کم‌لایه نسبت به گرافین تک لایه گاف غیر صفر دارند [۲]. گرافین چند لایه مساحت سطح بسیار بالایی را در مقایسه با گرافین تک‌لایه نشان می‌دهد [۳]، همچنین از قابلیت خوبی برای عامل‌دار شدن با مواد مختلف به صورت کووالانسی و غیر کووالانسی برخوردار است که منجر به حل شدن آن در حلال‌های مختلف می‌شود [۴]. با توجه به موارد گسترده خاصیت و کاربرد گرافین، سنتز گرافین با تعداد لایه‌های مختلف برای پیشبرد برنامه‌های پیش‌رو در این فناوری اهمیت ویژه‌ای پیدا می‌کند.

گرافین فوم (GF) بخاطر ساختار سه بعدی، نسبت به ساختار دو بعدی آن، سطح قابل دسترس بیشتری دارد. این موضوع باعث می‌شود برای کاربردهایی که نسبت سطح به حجم بالا اهمیت دارد مانند ابرخازن‌ها [۵،۶]، سلول‌های خورشیدی [۷] و زیست حسگرهای گرافینی [۸]، استفاده شوند.

یکی از پرکاربردترین روش‌های تولید میکرو ساختار GF، روش رسوب‌دهی بخار شیمیایی (CVD) است و در چند سال اخیر برای تولید گرافین‌های کم‌لایه و با کیفیت مورد توجه قرار گرفته است [۹]. ویژگی برجسته این روش توانایی تولید لایه‌هایی با تنوع ساختاری زیاد و ساخت لایه‌هایی با ترکیبات آلی و غیرآلی استمی‌باشد. به کمک برخی فلزات واسطه مانند مس و نیکل می‌توان لایه‌های گرافینی را به این روش لایه نشانی کرد. با توجه به حلالیت بسیار کم کربن در مس، مس بعنوان بستری برای رشد گرافین تک لایه استفاده می‌شود. در فوم نیکل با توجه به ساختار متخلخل، هر دو رشد تک لایه و چند لایه را می‌توان ایجاد کرد [۱۱]. قابلیت انحلال کربن در کاتالیزور مس و نیکل متفاوت است و مقدار آن در مس

کمتر از ۰.۰۰۱ درصد اتمی و در نیکل بیشتر از ۰.۱ درصد اتمی است [۱۲]. آنچه در نیکل جلب توجه می‌کند، این است که در نیکل نسبت به مس در دماهای نسبتاً بالا حلالیت کربن افزایش می‌یابد.

عوامل مختلفی در کنترل ضخامت و کیفیت گرافین موثر هستند که مورد توجه پژوهشگران قرار گرفته است. میزان گاز هیدروژن و اثر آن در سرعت رشد و سنتز گرافین بر روی مس و نیکل توسط لوسوردو<sup>۱</sup> و همکاران انجام شده است [۱۲]. نتایج آن‌ها نشان داده رقابت بین تجزیه شدن هیدروژن و متان جذب شده بر روی سطح و همچنین رقابت بین پخش شدن کربن و هیدروژن تجزیه شده در سطح از عوامل موثر در تولید گرافین فوم کم لایه و با کیفیت هستند که هر چه کربن روی سطح کمتر باشد گرافین کم لایه‌تری خواهیم داشت. همچنین نوع بستر استفاده شده در تعیین شرایط سنتز گرافین موثر است؛ چرا که هیدروژن در مس سریع‌تر از نیکل پخش می‌شود در حالی که پخش کربن در نیکل سریع‌تر از مس است. تحقیق مشابهی بر روی غلظت گاز هیدروژن نشان داده است که غلظت بالای گاز هیدروژن، باعث سنتز گرافین‌های ضخیم یا چندلایه می‌شود [۱۳].

پژوهش ترینسترو<sup>۲</sup> و همکاران [۱۴] نشان داد که دمای پخت در مرحله آماده سازی برای رشد گرافین در افزایش دانه‌بندی فویل مس که بعنوان بستر رشد گرافین انتخاب شده بود، موثر است. با افزایش دمای سنتز و همچنین با کم کردن غلظت گاز متان ورودی تا ۲۰ ppm (parts per million) گرافین کم لایه سنتز می‌شود. نتایج آن‌ها همچنین نشان داد زمان سنتز هر چه بیشتر باشد هم کیفیت گرافین سنتز شده کاهش می‌یابد و هم تعداد لایه‌های گرافین به دست آمده افزایش می‌یابد.

اثر نرخ خنک کردن نمونه بعد از رشد گرافین مورد مطالعه قرار گرفته است و نتایج نشان می‌دهد که با آهنگ

<sup>1</sup> Losurdo

<sup>2</sup> Trinsoutrot

مرکز کوارتز قرار گرفته کنترل می‌گردد. در فرآیند سنتز GF یک ساختار متخلخل بهم پیوسته سه بعدی، فوم نیکل، بعنوان کاتالیزور برای رشد انتخاب شد. فوم نیکل به صورت آماده و سنتز شده از کمپانی Shenyang با ۹۹.۵ درصد تخلخل خریداری شد. ابتدا فوم نیکل در ابعاد  $1\text{cm} \times 1\text{cm}$  برش زده شد، سپس در داخل لوله کوارتز محفظه CVD تحت دمای ۱۱۲۰ درجه سانتی گراد توسط گازهای آرگون (300 sccm) و هیدروژن (200 sccm)، به مدت ۵ دقیقه برای تمیز کردن و احیا شدن مواد ناخالصی در فشار ۱ bar قرار داده شد. سپس گاز متان در هر فرآیند با غلظت‌های مختلف ۰.۶، ۰.۷، ۰.۸، ۱ و ۱.۵ همراه با گازهای آرگون و هیدروژن وارد گردید. بعد از گذشت ۵ دقیقه گاز متان قطع شد. فرآیند سرد سازی بلافاصله (با آهنگ کاهش دما ۱۰۰ درجه سانتی گراد در هر دقیقه) انجام شد، سپس پلیمر پلی‌متیل-متاکریلات (PMMA EG920) با قطره چکان بر روی فوم نیکل که بر روی آن گرافین رشد داده شده، ریخته شد تا سطح نمونه کامل پوشش داده شود. نمونه ساخته شده (فوم نیکل، گرافین و پلیمر) در دمای ۱۰۰ درجه سانتی گراد به مدت یک ساعت تحت حرارت قرار گرفت. بعد از خشک شدن پلیمر، در محلول ۳ مولار HCl به مدت سه ساعت تحت دمای ۸۰ درجه سانتی گراد فرآیند سونش شیمیایی انجام شد. بعد از حذف نیکل، در نهایت پلیمر موجود در پلیمر-گرافین فوم توسط استون از بین برده شد. سپس GF بر روی زیرلایه شیشه‌ای قرار داده شد.

در این پژوهش تصاویر SEM سطح نمونه‌ها بوسیله میکروسکوپ الکترونی روبشی (VEGAI TESCAN) گرفته شد. آنالیز طیف سنجی پاشندگی پرتوایکس (EDX) برای اطمینان از حذف کامل زیر لایه فوم نیکل مورد استفاده قرار گرفت. طیف سنجی رامان برای آنالیز کیفیت نمونه‌های GF و تایید تشکیل گرافین بکار گرفته

خنک کردن نمونه در اندازه متوسط (حدود ۱۰ درجه سانتی‌گراد بر ثانیه) می‌توان گرافین‌های با ساختار بلوری عالی سنتز کرد و همچنین ضخامت لایه گرافین‌ها را بخوبی کنترل نمود [۱۵].

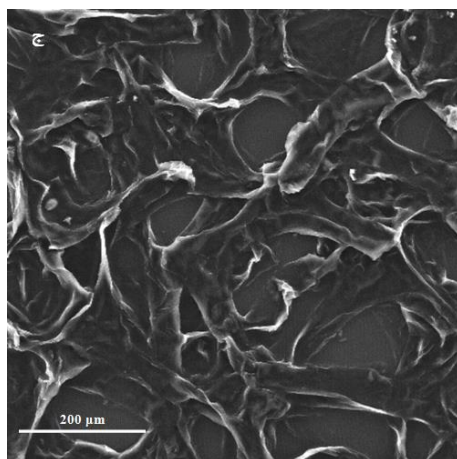
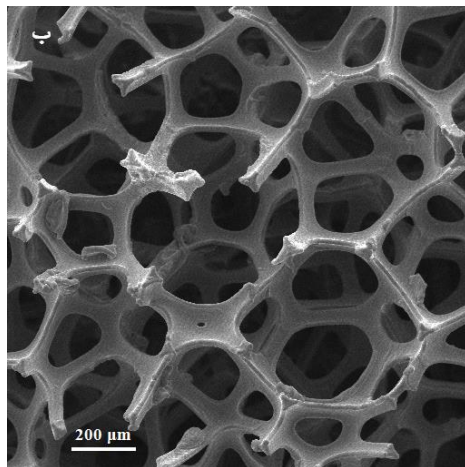
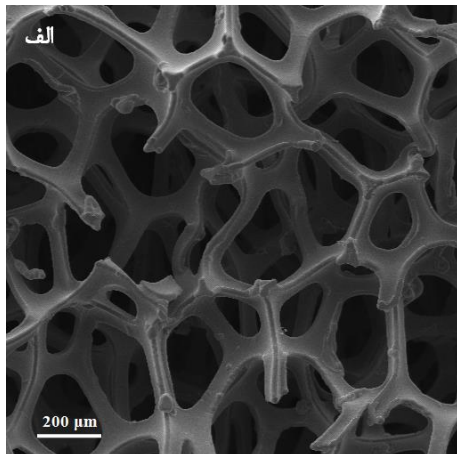
پارامترهای رشد گرافین کم لایه بر روی فویل نیکل مورد بررسی قرار گرفته است؛ ولی به دلیل متفاوت بودن اثر برخی از پارامترهای رشد بر روی بستر فویل نیکل با فوم نیکل لازم است این پارامترها بر روی بستر فوم نیکل بررسی شود که در این پژوهش مورد توجه قرار گرفته و شرایط بهینه به دست آمده است. از جمله پارامترهای تاثیرگذار که به آن‌ها اشاره شد، اثر تغییر غلظت متان و دمای سنتز است. ما در این تحقیق اثر تغییر غلظت گاز متان و دمای سنتز بر روی تعداد لایه‌های گرافین کم لایه را بررسی کردیم.

در این تحقیق با توجه به اهمیت ضخامت گرافین، با استفاده از روش CVD شرایط بهینه برای رسیدن به گرافین کم لایه به کمک کاتالیزور فوم نیکل مورد مطالعه قرار گرفت. با تغییر غلظت گاز عامل متان در چهار نمونه با غلظت‌های (standard cubic centimeters per minute) ۰.۶، ۰.۷، ۱ و ۱.۵ و ثابت نگه داشتن باقی عوامل موثر و همچنین تاثیر دماهای مختلف سنتز (۹۰۰، ۱۰۰۰ و ۱۱۲۰ درجه سانتی‌گراد) طی فرآیند تولید گرافین فوم، GF با تعداد لایه‌های مختلف بدست آمد. طیف سنجی رامان نشان می‌دهد غلظت گاز متان و دمای سنتز گرافین از عوامل مهم در سنتز گرافین فوم کم لایه و با کیفیت خوب هستند.

### بخش تجربی

دستگاه CVD مورد استفاده، ساخت بخش نانو دانشگاه مالک اشتر است. این دستگاه تا دمای ۱۱۲۰ درجه سانتی‌گراد مورد استفاده قرار می‌گیرد. گازهای مختلف با MFC کنترل شده و هر کدام جداگانه وارد بخش ترکیبی شده و سپس وارد دستگاه می‌شوند. زیرلایه در وسط دستگاه قرار گرفته و دمای آن توسط دماسنج دقیق که در

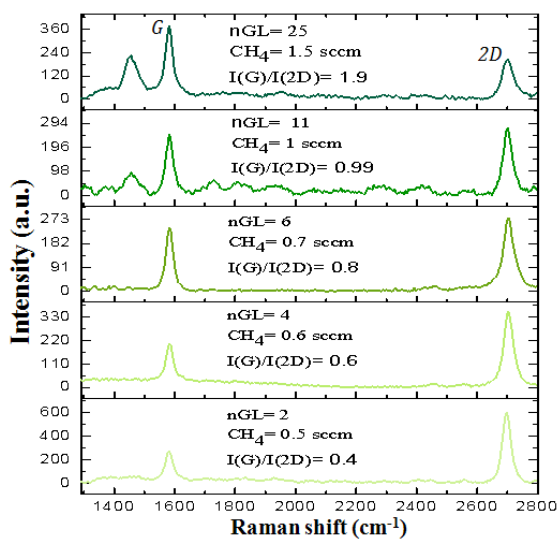
Ca و K, Si, Al, Na, O, Cl مواد موجود در شیشه که بعنوان زیرلایه استفاده شد، هستند. برای تایید گرافین بودن کربن رشد داده شده باید از آنالیز رامان باید استفاده کرد و آنالیز EDX نوع کربن را مشخص نمی‌کند.



شد. طیف سنجی رامان بوسیله دستگاه (Takram P50C0R10) با لیزری با طول موج 532 nm انجام شد.

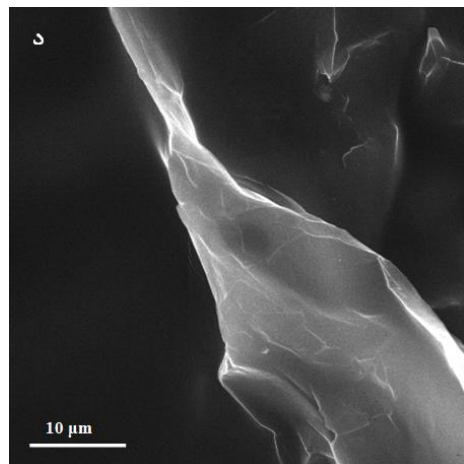
### نتایج و بحث

برای بررسی مورفولوژی میکروساختار GF نمونه سنتز شده با ۰/۷ sccm گاز متان ورودی از آنالیز SEM استفاده شد. شکل ۱ الف) تصویر فوم نیکل قبل از رشد گرافین و شکل ۱ ب) تصویر فوم نیکل به همراه گرافین فوم رشد داده شده را نشان می‌دهند. در شکل ۱ ج) و د) تصویر گرافین رشد داده شده بعد از حذف فوم نیکل در دو بزرگنمایی نشان داده شده است. ابعاد سوراخ‌های فوم نیکل از ۵۰ تا ۲۰۰ میکرومتر متغیر است. بعد از حذف فوم نیکل، گرافین رشد داده شده با تقریب خوبی همان ساختار و اسکلتی که روی آن رشد یافته را حفظ کرده است. در شکل ۱ د) که تصویر صفحات گرافین را نشان می‌دهد می‌توان چروک‌های روی صفحات را مشاهده کرد. چین و چروک‌های مشاهده شده بر روی سطح نیکل ناشی از تفاوت ضرایب انبساط گرمایی بین نیکل و گرافین است که به هنگام سرد شدن رخ می‌دهد [۱۶]. چین و چروک‌ها باعث یک سطح ویژه بزرگ در گرافین و همچنین باعث بهبود خصوصیات مکانیکی گرافین می‌شوند. با توجه به تصاویر SEM که برای نمونه‌های دیگر با غلظت‌های متفاوت انجام شد، تصاویر SEM نمونه‌های سنتز شده با غلظت‌های مختلف گاز متان تفاوت چندانی با هم ندارند و بعنوان نمونه تصاویر SEM یکی از گرافین‌های سنتز شده آورده شده است. تصاویر SEM نمی‌توانند تفاوت بین ضخامت لایه‌ها را مشخص کنند و باید از آنالیز رامان برای این منظور استفاده کرد. شکل ۲) طیف سنجی EDX نمونه گرافین سنتز شده با ۰/۷ sccm غلظت گاز متان ورودی را نشان می‌دهد. همان‌گونه که در شکل دیده می‌شود تقریباً اثری از نیکل در نمونه باقی نمانده است و فوم نیکل بخوبی حذف شده است. حدوداً ۰.۲۷ درصد وزنی نیکل و ۶۸.۱۲ درصد وزنی کربن وجود دارد. باقی عناصر مانند

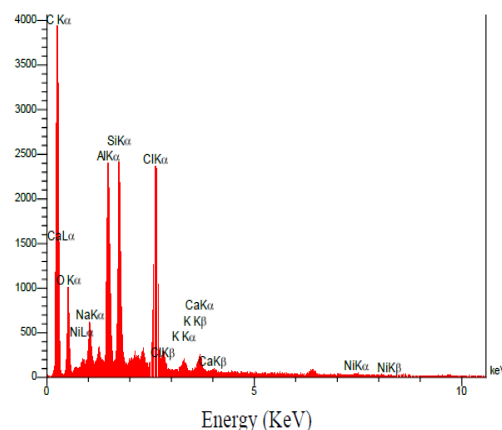


شکل ۳. طیف سنجی رامان از نمونه‌های گرافین رشد داده در غلظت‌های مختلف متان و دمای سنتز ثابت ۱۱۲۰ درجه سانتی‌گراد.

همان‌طور که اشاره شد تعداد لایه‌های گرافین‌ها با استفاده از میکروسکوپ میکرورامان مشخص می‌شود. با توجه به شکل (۳) قله‌های مهم طیف رامان عبارتند از: D (مربوط به بی‌نظمی‌های محلی)، G (مشخص‌کننده هیبرید SP<sup>2</sup> پیوند کربن-کربن) و 2D (مرتبه دوم D وابسته به انرژی تحریک لیزر) که به ترتیب در مکان‌های ۱۳۴۵ cm<sup>-1</sup>، ۱۵۸۰ cm<sup>-1</sup> و ۲۷۰۰ cm<sup>-1</sup> قرار می‌گیرند [۱۷]. نسبت شدت I(G)/I(2D) تعداد لایه [۱۸] و نسبت I(D)/I(G) کیفیت لایه [۱۹] را مشخص می‌کند. هر چه نسبت I(G)/I(2D) کمتر باشد، تعداد لایه سنتز شده کمتر است و هر چه نسبت I(D)/I(G) کمتر باشد، کیفیت ساختاری نمونه سنتز شده بهتر است. شکل‌های (۳) و (۴) مقایسه طیف رامان گرافین سنتز شده را برای دو حالت تغییر غلظت گاز متان و تغییر دمای سنتز نشان می‌دهد. همان‌گونه که مشخص است در گرافین‌های تولید شده پیک D دیده نمی‌شود که با توجه به مرجع [۱۹]، پیک D در گرافین‌های عالی و خوب بخاطر تقارن بلوری قابل مشاهده نیست. بنابراین گرافین‌های سنتز شده از کیفیت خوبی برخوردار هستند. پیک مشاهده شده در محدوده



شکل ۴. تصویر SEM از الف) فوم نیکل بدون گرافین ب) فوم نیکل به همراه گرافین رشد داده شده بر روی آن ج) گرافین بعد از حذف فوم نیکل و د) صفحه‌گرافین رشد یافته بعد از حذف نیکل در بزرگنمایی بیشتر برای نمونه سنتز شده با (CH<sub>4</sub>=۰.۷ sccm) در دمای ۱۱۲۰ °C.



شکل ۵. طیف سنجی پاشندگی پرتو ایکس (EDX) از گرافین ۶ لایه (دمای سنتز ۱۱۲۰ درجه سانتی‌گراد و غلظت گاز متان CH<sub>4</sub> = 0.7 sccm) (W%): C 68.12 (W%); Ni 0.27 (W%).

بیشتر فراهم می‌شود. این نتیجه با نتایج کارهای دیگران مانند مرجع [۱۲] در تطابق است.

شکل (۷) تغییرات تعداد لایه‌ها برحسب تغییر در دمای سنتز گرافین فوم را نشان می‌دهد. افزایش دمای سنتز در دستگاه CVD ما را به تعداد لایه‌های کمتر می‌رساند که این پارامتر تا دمای ۱۱۲۰ درجه سانتی‌گراد انجام شد. بالاتر از این دما برای سنتز گرافین با غلظت گاز متان  $0.7 \text{ sccm}$  هم از لحاظ محدودیت‌های دستگاه و هم شرایط سنتز نمونه در بستر فوم نیکل انجام نشد. این امر که افزایش تا حد امکان دمای سنتز در دستگاه CVD امکان رشد گرافین‌های کم لایه را فراهم می‌کند، موضوعی شناخته شده است [۱۴]. با افزایش دمای سنتز امکان تجزیه بیشتر متان به کربن و هیدروژن در سطح نیکل افزایش پیدا می‌کند ولی به نسبت هیدروژن هم بیشتر تجزیه شده و این هیدروژن‌ها در سطح در رقابت با کربن نقش مهم‌تری خواهند داشت و انتظار تشکیل گرافین با لایه‌های زیاد کمتر می‌شود. همچنین با افزایش دما انحلال‌پذیری افزایش و تعداد کربن‌های بیشتری در سطح فوم نیکل نفوذ می‌کنند و تعداد کمتری کربن بر روی سطح نیکل می‌نشینند؛ در نتیجه بعد از عملیات سردسازی با کاهش انحلال‌پذیری، کربن‌ها به سطح آمده و به علت کمی تعداد کربن‌ها در سطح، تعداد کمتری شبکه شش‌گوشه زنبوری شکل گرافین تشکیل می‌شود، لذا مقداری از کربن‌ها از سیستم خارج می‌شوند. پایین‌تر از دمای ۹۰۰ درجه سانتی‌گراد برای سنتز گرافین با غلظت گاز متان  $0.7 \text{ sccm}$ ، شرایط مناسبی نیست و گرافینی تشکیل نمی‌شود.

$1460 \text{ cm}^{-1}$  مربوط به پلیمر PMMA بوده که در کارهای دیگران گزارش شده است [۲۰]. عدم مشاهده این پیک در نمونه‌های تا زیر ده لایه نشان می‌دهد که این پلیمر در این نمونه‌ها بخوبی حذف شده است. دلیل این امر این است که در گرافین‌های کم‌لایه چون پلیمر PMMA در سطح قرار دارد؛ با قرار گرفتن تحت بخار استون براحتی از بین می‌رود. در حالی که برای نمونه‌های ده لایه و بیشتر با افزایش تعداد لایه‌ها، پلیمر بیشتر نفوذ کرده و براحتی با بخار استون حذف نمی‌شود. با توجه به این‌که تمام نمونه‌ها تحت شرایط یکسان بخار استون قرار گرفتند؛ برای گرافین‌های با لایه‌های زیاد باید زمان پلیمرزدایی را افزایش داد. پیک مربوط به PMMA در نمودار رامن برای دماهای مختلف سنتز هم مشاهده می‌شود که مجدد با افزایش تعداد لایه‌ها (کاهش دمای سنتز) پلیمر نفوذ بیشتری کرده، لذا بطور کامل حذف نشده است.

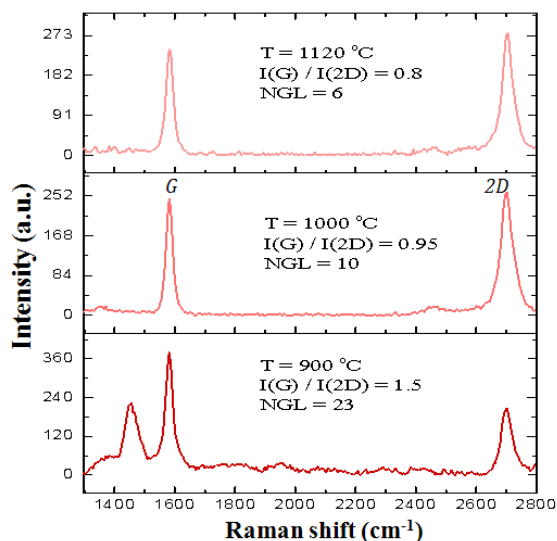
در شکل (۵) نسبت شدت  $I(G)/I(2D)$  برحسب تعداد لایه گرافین رسم شده است. نسبت شدت  $I(G)/I(2D)$  با افزایش تعداد لایه‌ها تقریباً به صورت خطی افزایش یافته است. شکل (۶) تعداد لایه‌های گرافین سنتز شده بر حسب غلظت گاز متان برای دمای سنتز ۱۱۲۰ درجه سانتی‌گراد را نشان می‌دهد. با تقریب خوبی یک رابطه خطی بین غلظت گاز متان و تعداد لایه‌ها وجود دارد. بنابراین می‌توان نتیجه گرفت افزایش غلظت گاز متان سبب افزایش تعداد لایه‌های گرافین می‌شود. علت این امر را می‌توان به افزایش میزان کربن ورودی با افزایش غلظت گاز متان دانست. برای تشکیل گرافین بر روی سطح نیکل گازهای متان و هیدروژن تجزیه شده و کربن‌ها فرصت کنار هم قرار گرفتن را پیدا می‌کنند و هرچه میزان گاز ورودی افزایش یابد بعد از تجزیه شدن به  $\text{C}$  و  $2\text{H}_2$  میزان کربن لازم برای تشکیل گرافین با لایه‌های



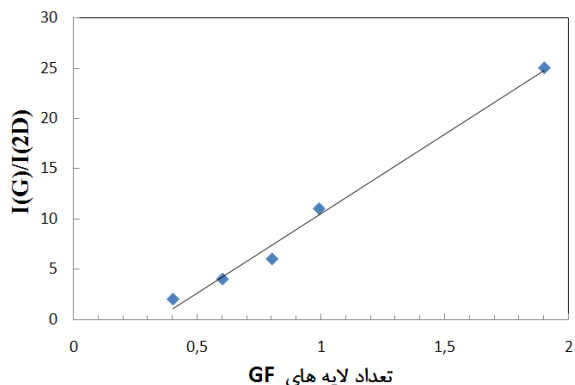
شکل ۷. کاهش تعداد لایه‌های گرافین فوم با افزایش دمای سنتز و غلظت گاز متان ۰/۷ sccm

### نتیجه‌گیری

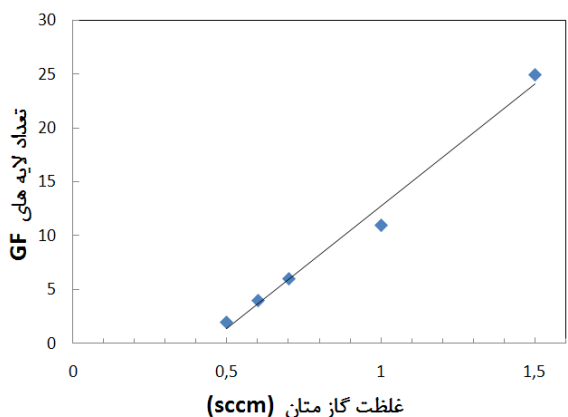
در این مقاله میکروساختار گرافین فوم به کمک روش CVD با غلظت‌های مختلف متان و دماهای سنتز مختلف تولید شد. تصاویر SEM ساختار گرافینی با حفظ پایه فوم نیکل را نشان می‌دهد. آنالیز EDX با ۰/۲۷ (%w) نیکل نشان داده شده حذف نیکل با دقت بسیار خوبی را نشان می‌دهد. با تغییر غلظت گاز متان با مقادیر ۰.۵، ۰.۶، ۰.۷، ۱ و ۱.۵ sccm به ترتیب گرافین فوم با تعداد لایه‌های ۲، ۴، ۶، ۱۱ و ۲۵ بدست آمد. همچنین با تغییر دمای سنتز CVD در دماهای ۹۰۰، ۱۰۰۰ و ۱۱۲۰ درجه سانتی‌گراد به ترتیب گرافین فوم ۲۳، ۱۰ و ۶ لایه تولید شدند. این نتایج نشان می‌دهد که با کاهش غلظت متان و افزایش دمای سنتز می‌توان گرافین کم لایه سنتز کرد و رابطه تقریباً خطی بین تعداد لایه‌های GF سنتز شده با غلظت متان و دمای سنتز وجود دارد. با کاهش غلظت گاز متان، کربن‌های کمتری بر روی فوم نیکل تجزیه شده و در نتیجه گرافین کم لایه‌تری تشکیل خواهد شد. همچنین با افزایش دمای سنتز، کربن‌های تجزیه شده در فوم نیکل نفوذ کرده و با کاهش کربن‌ها در سطح، گرافین با تعداد لایه‌های کمتری سنتز خواهد شد. با تغییر غلظت گاز متان به مقدار ۰/۷ sccm و افزایش دمای سنتز به ۱۱۲۰ درجه سانتی‌گراد نمونه GF دو لایه سنتز شد که می‌توان این



شکل ۴. طیف رامان گرافین‌های سنتز شده در دماهای مختلف سنتز و غلظت گاز متان ۰/۷ sccm



شکل ۵. نمودار خطی نسبت I(G)/I(2D) بر حسب تعداد لایه‌های گرافین فوم برای غلظت‌های مختلف گاز متان نشان داده شده در شکل ۳ با دمای سنتز ۱۱۲۰ درجه سانتی‌گراد.



شکل ۶. افزایش خطی نسبت تعداد لایه‌های گرافین فوم بر حسب غلظت گاز متان و دمای سنتز ۱۱۲۰ درجه سانتی‌گراد.

10. O. Akhavan, and E. Ghaderi, *Graphene nanomesh promises extremely efficient in vivo photothermal therapy*, *Small* (9)(2013)3593-3601.

11. N. Liu, L. Fu, B. Dai, K. Yan, X. Liu, R. Zhao, Y. Zhang and Z. Liu, *Universal segregation growth approach to wafer-size graphene from non-noble metals*, *nano Lett.* (11)(2011)297-303.

12. M. Losurdo, M. M. Giangregorio, P. Capezuto and G. Bruno, *Graphene CVD growth on copper and nickel: role of hydrogen in kinetics and structure*, *Phys. Chem. Chem. Phys.* (13)(2011)20836-20843.

13. F.T. Si, X.W. Zhang, X. Liu, Z.G. Yin, S.G. Zhang, H.L. Gao, J.J. Dong, *Effects of ambient conditions on the quality of graphene synthesized by chemical vapor deposition*, *Vacuum* (86)(2012)1867-1870.

14. P. Trinsoutrot, C. Rabot, H. Vergnes, A. Delamoreanu, A. Zenasni, B. Caussat, *High quality graphene synthesized by atmospheric pressure CVD on copper foil*, *Surface & Coatings Technology* (230)(2013)87-92.

15. Q. Yu, J. Lian, S. Siriponglert, H. Li, Y. Chen and S-S. Pei, *Graphene segregated on Ni surfaces and transferred to insulators*, *Appl. Phys. Lett.* (93)(2008)103-113.

16. R. Azimirad and S. Safa, *Preparation of three dimensional graphene foam-WO<sub>3</sub> nanocomposite with enhanced visible light photocatalytic activity*, *J. Mater. Chem. Phys.* (162)(2015)686-691.

17. M.S. Dresselhaus, A. Jorio, M. Hofmann, G. Dresselhaus, R. Saito, *Perspectives on carbon nanotubes and graphene Raman spectroscopy*, *Nano Lett.* (10)(2010)751-758.

18. A. Das, B. Chakraborty and A. K. Sood, *Raman spectroscopy of graphene on different Substrates and influence of defects*, *Bulletin. Mat.* (31)(2008)579-584.

19. F. Tuinstra and J. L. Koenig, *Raman spectrum of graphite*, *Chem. Phys.* (53)(1970)1126-1130.

20. K.J. Thomas, M. Sheeba, V.P.N. Nampoori, C.P.G. Vallabhan and P. Radhakrishnan, *Raman spectra of polymethyl methacrylate optical fibres excited by a 532 nm diode pumped solid state laser*, *J. Opt. A: Pure and Appl. Opt.* (10)(2008)055303 (5pp).

گرافین با کیفیت عالی را در کاربردهای صنعتی مورد استفاده قرار داد.

## مراجع

1. C. Soldano, A. Mahmood, E. Dujardin, *Production, properties and potential of graphene*, *Carbon* (48)(2010)2127-2150.
2. Y. Zhang, T. Tang, C. Girit, Z. Hao, M. C. Martin, A. Zettl, M. F. Crommie, Y. Ron Shen and F. Wang, *Direct observation of a widely tunable bandgap in bilayer graphene*, *Nature* (459)(2009)820-823.
3. S. V. Morozov, K. S. Novoselov, F. Schedin, D. Jiang, A. A. Firsov, and A. K. Geim, *Two-dimensional electron and hole gases at the surface of graphite*, *Phys. Rev. B* (72)(2015)201401.
4. M. I. Ali Umar, C. C. Yap, R. Awang, M. Mat Salleland M. Yahaya, *Effect of graphite oxide solution concentration on the properties of multilayer grapheme*, *AIP Conference* (1571)(2013)115-119.
5. W. Chen, Z. Fan, G. Zeng and Z. Lai, *Layer-dependent supercapacitance of graphene films grown by chemical vapor deposition on nickel foam*, *Journal of power sources* (225)(2013)251-256.
6. X. Dong, Y. Cao, J. Wang, Mary B. Chan-Park, L. Wang, W. Huang and P. Chen, *Hybrid structure of zinc oxide nanorods and three dimensional graphene foam for supercapacitor and electrochemical sensor applications*, *RSC Advances* (2)(2012)4364-4369.
7. H. Bi, F. Huang, J. Liang, Y. Tang, X. Lu, X. Xie and M. Jiang, *Large-scale preparation of highly conductive three dimensional graphene and its applications in CdTe solar cells*, *J. Mater. Chem.* (21)(2011)17366-17370.
8. Y. Ma, M. Zhao, B. Cai, W. Wang, Z. Ye, J. Huang, *3D graphene network@WO<sub>3</sub> nanowire composites: a multifunctional colorimetric and electrochemical biosensing platform*, *Chem.* (50)(2014)11135-11138.
9. M. S. Dresselhaus, A. Jorio, M. Hofmann, G. Dresselhaus, R. Saito, *Perspectives on carbon nanotubes and graphene Raman Spectroscopy*, *Nano Lett.* (2010)10:751-8.