Journal of Acoustical Society of Iran, Vol. 12, No. 1, 2024

(Research Article)
Investigating the effective geometrical parameters in the production and morphology of the graphene layers produced using the designed ultrasonic probe

Ensiyeh Khalili Dermani*, Reza Afzalzadeh
K. N. Toosi University of Technology
Revised: 2024/06/26, Accepted: 2024/09/18

Abstract

In this article, the production of high-quality thin-layer graphene using the liquid-phase exfoliation method has been investigated. The step probe was designed using COMSOL Multiphysics. The diameter of the reaction vessel and the distance of the probe tip from the bottom of the vessel were studied in relation to graphene production. The diameters of the containers used were 60 mm, 75 mm, and 85 mm, while the distance of the probe tip from the bottom of the container varied from 20 mm to 50 mm. Initially, the effect of acoustic pressure in each container was simulated. The highest acoustic pressure difference obtained in the simulation was 7.74×10^{7} Pa for a container with a 60 mm diameter and a probe-to-bottom distance of 50 mm. The results of ultraviolet-visible spectroscopy of the samples indicated the presence of a higher amount of graphene, with a peak at 266 nm. Using the Beer-Lambert law, the concentration of the produced graphene was estimated to be approximately 0.13 g/L. SEM and TEM analyses confirmed the production of few-layer graphene with good quality. Finally, Raman spectroscopy was used for complementary characterization of the samples. The I_2D/I_G ratio was found to be approximately 1.02, confirming the successful production of few-layer graphene in this study.

Keywords: Graphene, Ultrasonic probe, Liquid phase exfoliation, Finite element method, Sound pressure.

pp. 15-25 (In Persian)

* Corresponding author E-mail: ensieh_khalili@yahoo.com

[Downloaded from joasi.ir on 2025-12-08]

مقاله پژوهشی

مجله انجمن علوم صوتی ایران

سال: ۱۴۰۳، دوره: ۱۲، شماره ۱، صفحات: ۱۵-۲۵

بررسی شبه‌سنج‌های هندسی مؤثر در تولید و ریخت‌شناختی لایه‌های گرافن تولیدشده با استفاده از کاونده فراصدای طراحی‌شده

انسیه خلیلی درمنی*، رضا افضل‌زاده

دانشکده فیزیک، دانشگاه صنعتی خواجه نصیرالدین طوسی

دریافت: ۱۴۰۳/۰۴/۰۶، پذیرش: ۱۴۰۳/۰۶/۲۸

چکیده

در این مقاله، تولید لایه‌های گرافن کم‌لایه با کیفیت بالا با استفاده از روش لایه‌برداری در فاز مایع مورد تحقیق قرار گرفته است. کاونده (پروب) پله‌ای با استفاده از نرم‌افزار کامسول طراحی شده‌است. دو شبه‌سنج (شبه‌سنج) قطر ظرف واکنش و فاصله نوک کاونده از کف ظرف در تولید گرافن مورد مطالعه قرار گرفته است. قطر ظرف‌های مورد استفاده ۶۰، ۷۵ و ۸۵ میلی‌متر و فاصله نوک کاونده از کف ظرف نیز از ۲۰ تا ۵۰ میلی‌متر متغیر بوده است. در ابتدا به شبیه‌سازی اثر فشار صوتین در هر یک از سه ظرف پرداخته شد. بیش‌ترین اختلاف فشار صوتین به‌دست‌آمده در فرایند شبیه‌سازی ۷٫۷۴×۱۰۷ پاسکال برای ظرف دارای قطر ۶۰ میلی‌متر و در فاصله ۵۰ میلی‌متری نوک کاونده از کف ظرف به‌دست آمده است. نتایج طیف‌سنجی فرابنفش-مرئی نمونه‌ها نشان‌دهنده وجود گرافن بیش‌تر با قلّه ۲۶۶ نانومتر است. با استفاده از قانون بیر-لامبرت غلظت گرافن تولیدشده تقریباً ۰٫۱۳ گرم بر لیتر به‌دست آمده است. نتایج میکروسکوپ الکترونی روبشی و میکروسکوپ الکترونی عبوری نیز تولید گرافن کم‌لایه و با کیفیت مناسب را تایید کرده است. در پایان از تحلیل رامان برای مشخصه‌یابی نمونه‌ها استفاده شده‌است. نسبت I_{2D}/I_G حدود ۱٫۰۲ به‌دست آمده است که تاییدی بر تولید گرافن کم‌لایه است.

کلیدواژه‌ها: گرافن، کاونده فراصدا، لایه‌برداری در فاز مایع، روش عناصر متناهی، فشار صوتی.

۱. مقدمه

مواد دو-بعدی مانند گرافن لایه‌برداری‌شده از گرافیت حجیم، که در آن لایه‌ها توسط نیروهای ضعیف واندروالسی به‌هم متصل شده‌اند، از سال ۲۰۰۴ توجه زیادی را به خود جلب کرده‌اند.

رسانایی برقی و هدایت حرارتی گرافن به ترتیب ۱۰۰ و ۵۰ برابر بیش‌تر از سیلیکون است. گرافن پتانسیل زیادی برای کاربرد در میکروالکترونیک، اپتوالکترونیک، فوتونیک، و غیره دارد [۱و۲].

در میان روش‌های تولید گرافن همیشه چالش‌هایی در ایجاد تعادل بین کیفیت لایه‌ها، هزینه تولید و بازده گرافن تولیدشده وجود داشته‌است. در مطالعات قبلی نشان داده شده‌است که روش‌های رسوب دهی بخار شیمیایی[1] و سنتز کاربید سیلیکون[2] هزینه تولید بسیار بالا و مقیاس‌پذیری پایینی دارد [۳]. روش لایه‌برداری مکانیکی نیز شانس کمی برای ارتقاء در سطح صنعت دارد [۳]. دو روش دیگر یعنی کاهش اکسید گرافن و لایه‌برداری در فاز مایع اِل‌پی‌ایی[3] برای تولید انبوه گرافن مناسب‌تر به نظر می‌رسد و به روش‌های اولیه برای تولید گرافن تجاری در دسترس تبدیل شده‌است [۴].

کاهش اکسید گرافن امکان تولید مواد حجیم با بازده بالا و هزینه نسبتاً کم را فراهم می‌کند، اما کیفیت گرافن به دلیل وجود عیوب داخلی و خارجی پایین است [۵]. از طرف دیگر، اِل‌پی‌ایی به عنوان یک فن معمولی از بالا به پایین دارای بازده نسبتا کمی است و مقدار قابل توجهی از گرافیت لایه‌برداری‌نشده باید حذف شود. با این حال، مقیاس‌پذیری بالا و هم‌چنین پایین بودن هزینه، این فن را برای تولید گرافن با کیفیت در مقادیر عمده مناسب می‌کند [۶].

* نویسنده پاسخگو: ensieh_khalili@yahoo.com

[1] CVD
[2] SiC
[3] Liquid Phase Exfoliation

[Downloaded from joasi.ir on 2025-12-08]

روش اِل‌پی‌ایی نیز چالش‌هایی دارد که براساس موارد زیر دسته‌بندی می‌شود: ۱) پردازش شیمیایی با استفاده از سورفکتانت‌ها[1] و حلال‌های پرهزینه، مضر و آلاینده برای افزایش فضای بین لایه‌های گرافیتی، ۲) استفاده از عوامل خارجی مانند برش با فراصدا برای لایه‌برداری و تعلیق تکه‌ها در محلول ۳) تصفیه گرافن معلق در محلول از باقی‌مانده مواد شیمیایی [۶].

اِن[2]-متیل۲-پیرولیدن[3] و دی متیل فرمامید[4] معمولاً به عنوان حلال انتخابی برای تولید گرافن استفاده می‌شوند. اما سمی بودن و هزینه بالا، آرمانی بودن این مواد را زیر سوال می‌برد [۷]. آب یک حلال کم هزینه و سازگار با محیط زیست است که در بسیاری از کاربردها مورد نیاز است. با این حال، برای لایه‌برداری موثر گرافیت در آب، کشش سطحی آب برای تولید گرافن باید تغییر یابد. در مطالعه‌ای لایه‌برداری از گرافیت با استفاده از آب به عنوان حلال نیاز به ۶۰ ساعت زمان برای لایه‌برداری را نشان داد که مقرون به صرفه نیست [۸].

استفاده از تثبیت‌کننده‌ها روشی موثر برای عملکردی شدن مواد بدون ایجاد نقص است، در نتیجه خواص ذاتی گرافن را حفظ می‌کند و امکان تعلیق گرافن در آب را فراهم می‌کند. تثبیت‌کننده‌ها معمولاً دارای یک گروه اتصال آبگریز هستند که از طریق فعل و انفعالات واندروالس روی سطح گرافن جذب می‌شوند، و یک گروه آب‌دوست، که از انباشته شدن مجدد نانو ورقه‌های گرافن لایه‌برداری‌شده جلوگیری می‌کند [۹].

اساس کار فرایند فراصدا بر تولید و انفجار حباب‌هایی در ابعاد میکرومتر است که به شدت در حال نوسان هستند و انرژی زیادی را در خود ذخیره می‌کنند. انفجار این حباب‌ها موجب آزاد شدن انرژی و تولید میکروجت‌های مایع پر سرعت شده و امواج ضربه‌ای با فشار بالای ۱گیگاپاسکال را ایجاد می‌کنند. این فرایند به عنوان نیرومحرکه‌ی لایه‌برداری لایه‌های گرافیت در نظر گرفته می‌شود. عواملی مانند بسامد فراصدا، توان دستگاه، دما، زمان فراصدا، هندسه راکتور و کاونده و ترکیب محلول بر فرآیند لایه‌برداری موثراند [۱۰].

در این مقاله با استفاده از یک کاونده فراصدا پله‌ای که با استفاده از نرم‌افزار کامسول شبیه‌سازی و ساخته‌شده به تولید گرافن در محلول اتانول و آب با استفاده از روش لایه‌برداری در فاز مایع پرداخته‌شده‌است. قطر ظرف واکنش و فاصله نوک کاونده از کف ظرف به عنوان شبه‌سنج‌های هندسی تاثیرگذار بر فرآیند لایه‌برداری گرافن در این مطالعه مورد بررسی قرار گرفته است.

۲. مواد و روش‌ها

کاونده تیتانیومی پله‌ای که قطر نوک آن ۴۰ میلی‌متر است با استفاده از نرم‌افزار کامسول طراحی و ساخته‌شد. ژنراتور مورد استفاده در این آزمایش الگوی ۱۲۰۰یوپی‌اِس[5] ساخت شرکت فناوری ایرانیان پژوهش نصیر (فاپن) ایران می‌باشد. توان واقعی دستگاه ۳۰۰ وات و بسامد آن حدود ۲۰ کیلوهرتز می‌باشد.

اختلاف فشار تولیدشده در محیط توسط کاونده فراصدا با تغییر قطر ظرف و فاصله نوک کاونده از کف ظرف مورد بررسی قرار گرفت. سپس نتایج به‌دست‌آمده در فرآیند شبیه‌سازی، در آزمایشگاه مورد آزمایش عملی قرار گرفت. برای تهیه لایه‌های گرافن، پودر گرافیت با اندازه ذرات بیشینه ۵۰ میکرومتر در محلولی متشکل از ۳۵ درصد اتانول و ۶۵ درصد آب دوبار یونیزه، اضافه شد. کشش سطحی محلول حدود ۴۶ میلی‌ژول بر مترمربع به دست آمد که در محدوده کشش سطحی مناسب برای تولید گرافن می‌باشد [۱۱].

جرم گرافیت و حجم محلول با توجه به شرایط هندسی هر آزمایش متفاوت انتخاب شد. برای به‌دست آوردن شرایط هندسی مناسب از سه ظرف با قطرهای مختلف استفاده شد و هم‌چنین فاصله نوک کاونده از ته هر ظرف با ۵ ارتفاع مختلف مورد بررسی قرار گرفت. نسبت قطر و فاصله بهینه در هر مورد به دست آمد. در نهایت بهترین شبه‌سنج‌ها برای تولید گرافن انتخاب شدند.

همه نمونه‌ها در توان ۷۰ درصد معادل۲۳۰ وات و دوره تناوب ۰/۷ ثانیه تولید شدند. دوره تناوب ۰/۷ ثانیه یعنی از مدت زمان یک ثانیه، ۰/۷ ثانیه تابش و ۰/۳ ثانیه عدم تابش وجود دارد. مدت زمان فرایند برای هر آزمایش ۴۵ دقیقه می‌باشد. برای جلوگیری از افزایش دما در حین فرایند، ظرف واکنش در حمام آب و یخ قرار داده شد. بعد از فرایند لایه‌برداری برای جداسازی لایه‌های ضخیم‌تر از سانتریفیوژ ۱۶ شاخه‌ای الگو یونیورسال با تعداد ۳۵۰۰ دور در دقیقه ساخت شرکت بهداد-

[1] Surfactant
[2] N
[3] NMP
[4] DMF
[5] 1200UPS

[Downloaded from joasi.ir on 2025-12-08]

ایران استفاده شد. مدت زمان سانتریفیوژ لایه‌ها ۳۰ دقیقه انتخاب شد. بعد از فرایند سانتریفیوژ مایع رویی جمع‌آوری شد و برای مشخصه‌یابی مورد بررسی قرار گرفت.

طیف جذبی نمونه‌ها با استفاده از طیف‌سنجی فرابنفش – مرئی الگوی پِرکین-اِلمر لامبدا۲۵[1] در بازه طول موج ۲۰۰-۴۰۰ نانومتر مورد بررسی قرار گرفت و غلظت تقریبی گرافن تولیدشده با استفاده از قانون بیر-لامبرت[2] مشخص شد.

ویژگی‌های ساختاری نمونه‌ها با میکروسکوپ الکترونی روبشی اِس‌ایی‌اِم[3] الگو تِسکَن، وِگا۳[4] با ولتاژ کاری ۱۵۰ کیلوولت و میکروسکوپ الکترونی عبوری تی‌ایی‌اِم[5] الگو زِیس ایی‌اِم۱۰سی-آلمان[6] با ولتاژ کاری ۱۰۰ کیلوولت مورد بررسی قرار گرفت. در پایان طیف‌سنجی رامان برای تعیین کیفیت و تعداد لایه‌های گرافن تولیدشده با استفاده از اسپکترومتر تَکرام اِن۱-۵۴۱[7] در طول موج لیزر ۵۳۲ نانومتر انجام گرفت.

۳. نتایج

۳-۱. طراحی کاونده فراصدا

طراحی کاونده فراصدا با نرم‌افزار کامسول با در نظر گرفتن فضای دو بعدی با تقارن محوری انجام شد. با استفاده از ماژول دی‌سی/اِی‌سی[8] و در قسمت سولید مکانیکس[9] بخش ایجِن‌فرکوئنسی[10] انتخاب شد. معادلات مورد استفاده در این بخش طبق قانون دوم نیوتون عبارتست از:

$$-\rho\omega^2 u = \nabla.S \qquad (۱)$$

که ρ، چگالی، ω، بسامد، u، بردار جابجایی و S تابع شکل است. هم‌چنین:

$$-i\omega = \lambda \qquad (۲)$$

که λ، طول موج است. در طراحی کاونده به این مساله باید توجه کرد که طول کاونده باید مضرب درستی از λ/۲ باشد [۱۱].

جنس کاونده از تیتانیوم انتخاب شد که سرعت صوت در آن ۵۰۹۰ متر بر ثانیه و چگالی آن ۴۴۰۰ کیلوگرم بر مترمکعب است. در شکل ۱ کاونده طراحی و ساخته‌شده نشان داده شده‌است.

۳-۲. شبیه سازی اثر فشار فراصدا

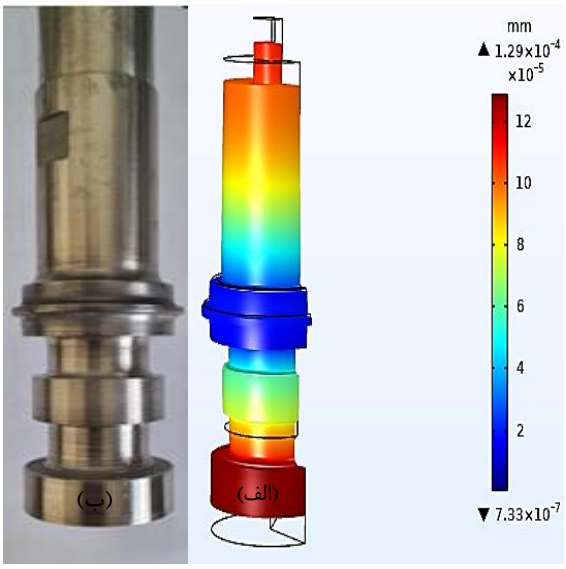
برای بررسی اثر فشار فراصدا در محیط واکنش از ماژول صوتین[11] در فضای دوبعدی با تقارن محوری استفاده شد. معادلات حاکم در این بخش به صورت زیر می‌باشد:

$$\frac{1}{\rho}\nabla^2 p + \frac{\omega^2}{\rho c^2} p = 0 \qquad (۳)$$

و

$$p=\sqrt{2I\rho c} \qquad (۴)$$

که در این معادلات P فشار و ρ چگالی محیط است. هم‌چنین C سرعت صوت در محلول و I شدت صوت در محیط واکنش می‌باشد [۱۲].



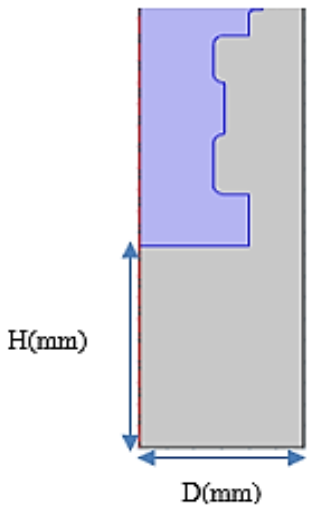
شکل ۱ الف) شبیه‌سازی و نمایش جابجایی در کاونده فراصدا، **ب)** کاونده فراصدای ساخته‌شده.

شرایط مرزی که برای حل مساله در نظر گرفته‌شده بدین صورت است که جداره‌های ظرف و کاونده به عنوان مرز سخت و سطح بالایی محلول که در تماس با هوا است به عنوان مرز نرم در نظر گرفته می‌شود [۱۳]. شبیه‌سازی اثر فشار در ظرف‌هایی با قطر(D) ۶۰، ۷۵ و ۸۵ میلی‌متر که با عنوان ظرف یک، ظرف دو و ظرف سه نام‌گذاری می‌شوند، انجام شد. هم‌چنین فاصله نوک کاونده از کف ظرف(H) برای هر یک از

[1] Perkin-Elmer Lambda 25
[2] Beer-Lambert law
[3] SEM; Scanning Electron Microscopy
[4] TESCAN VEGA3
[5] TEM; Transmittance Electron Microscopy
[6] Zeiss EM10C –Germany
[7] Takram N1-541
[8] AC/DC
[9] Solid Mechanics
[10] Eigenfrequency
[11] Acoustic

[Downloaded from joasi.ir on 2025-12-08]

ظرف‌ها ۲۰، ۳۰، ۴۰ و ۵۰ میلی‌متر انتخاب شد. شکل۲ طرح کلی کاونده و ظرف واکنش را نشان می‌دهد.



شکل۲ طرح ظرف واکنش و کاونده در فرایند شبیه‌سازی اثر فشار فراصدا.

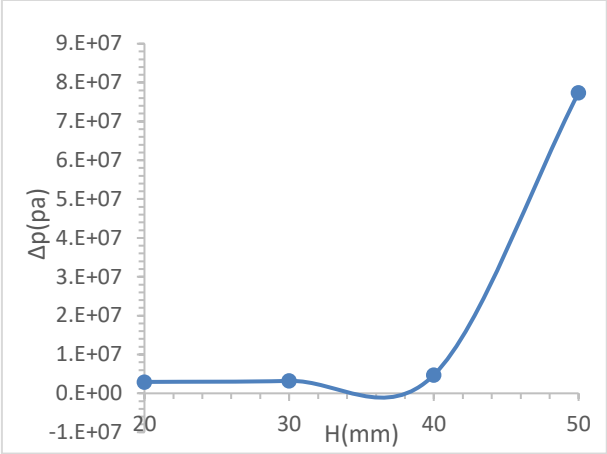
۳-۳. نتایج تجربی

پس از فرایند شبیه‌سازی، تولید نمونه‌ها در آزمایشگاه با توجه به ابعاد و حجم محلول برای هر یک از ظرف‌ها انجام شد. جرم نمونه‌ها با توجه به حجم محلول تغییر کرده‌است بنابراین غلظت گرافیت به کار رفته در همه نمونه‌ها یکسان است. شبیه‌سازی اثر فشار در هر یک از سه ظرف نیز انجام شد. اختلاف بین فشار کمینه و بیشینه در هر یک از سه ظرف و در فواصل مختلف نیز محاسبه شد.

جدول یک شرایط ساخت نمونه‌ها در ظرف یک با قطر ۶۰ میلی‌متر را نشان می‌دهد. هم‌چنین اختلاف فشار ایجادشده در ظرف نیز برای هر یک از فواصل نشان‌داده‌شده‌است.

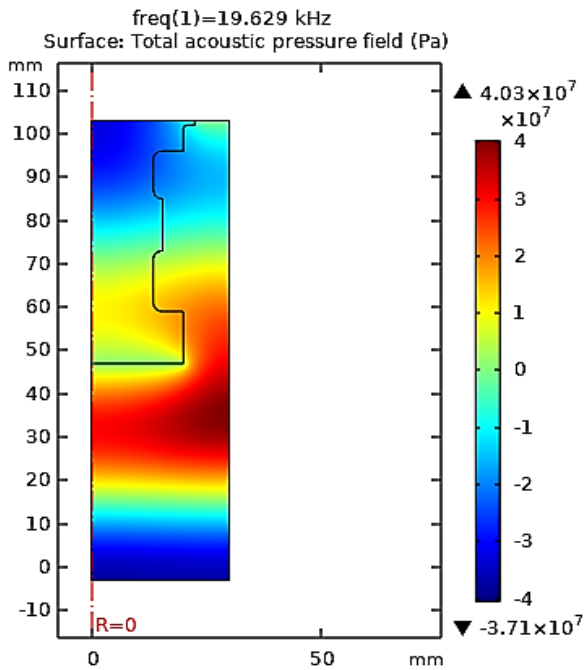
جدول۱ اختلاف فشار و شرایط ساخت نمونه‌ها در ظرف یک.

جرم گرافیت (گرم)	فاصله (میلی‌متر)	حجم محلول (میلی‌لیتر)	اختلاف فشار (پاسکال)
۰٫۰۵۵	۲۰	۶۹	۲٫۹۴×۱۰^۶
۰٫۰۷۰	۳۰	۸۸	۳٫۲۱×۱۰^۶
۰٫۰۸۵	۴۰	۱۰۷	۴٫۷۴×۱۰^۶
۰٫۰۹۹	۵۰	۱۲۴	۷٫۷۴×۱۰^۷



شکل ۳ تغییرات فشار بر حسب فاصله نوک کاونده از کف ظرف یک.

شکل ۳ نمودار اختلاف فشار بر حسب فاصله نوک کاونده از کف ظرف برای ظرف ۱ را نشان می‌دهد. مطابق شکل با افزایش فاصله کاونده از کف ظرف اختلاف فشار افزایش می‌یابد و بیش‌ترین اختلاف فشار برای فاصله ۵۰ میلی‌متری از کف ظرف برابر ۷٫۷۴×۱۰^۷ پاسکال می‌باشد. شکل ۴ نتیجه شبیه‌سازی را نشان داده‌است. مطابق شکل نقاط پر فشار در کناره ظرف و زیر کاونده است که می‌تولند به دلیل تداخل سازنده امواج برگشتی از کف ظرف با موج تابشی اولیه از کاونده باشد.



شکل ۴ شبیه‌سازی فشار فراصدا در فاصله ۵۰ میلی‌متری نوک کاونده از کف ظرف ۱.

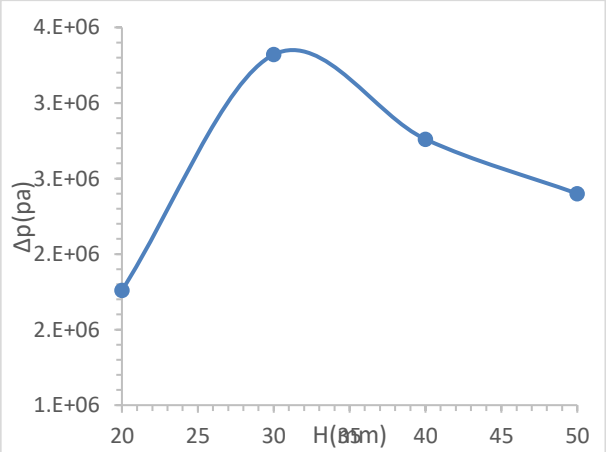
[Downloaded from joasi.ir on 2025-12-08]

شرایط نمونه‌های ساخته‌شده در ظرف دوم با قطر ۷۵ میلی‌متر و هم‌چنین اختلاف فشار ایجادشده در این ظرف در جدول ۲ آمده است.

جدول ۲ اختلاف فشار و شرایط ساخت نمونه‌ها در ظرف ۲.

جرم گرافیت (گرم)	H (میلی‌متر)	حجم محلول (میلی‌لیتر)	اختلاف فشار (پاسکال)
۰٫۰۸۷	۲۰	۱۱۰	۱٫۷۶×۱۰^۶
۰٫۱۱	۳۰	۱۴۰	۳٫۳۲×۱۰^۶
۰٫۱۳۲	۴۰	۱۶۶	۲٫۷۶×۱۰^۶
۰٫۱۴۷	۵۰	۱۸۶	۲٫۴×۱۰^۶

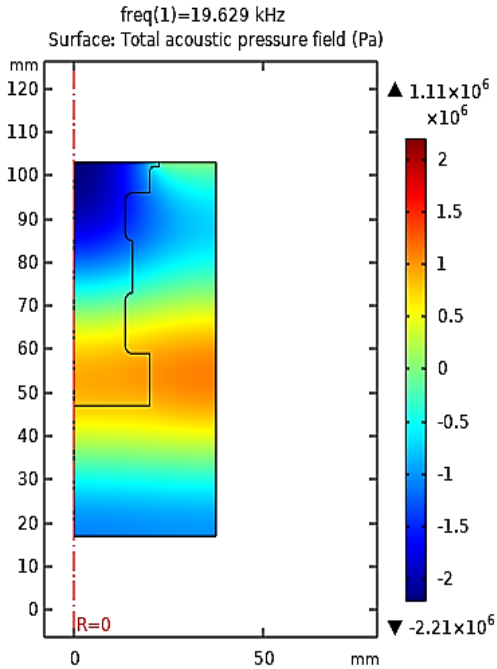
شبیه‌سازی اثر فشار در ظرف دوم، بیش‌ترین اختلاف فشار را در فاصله ۳۰ میلی‌متری از کف ظرف نشان می‌دهد و پس از آن با افزایش فاصله به ۴۰ و ۵۰ میلی‌متر اختلاف فشار در ظرف کاهش یافته‌است (شکل ۵). ناحیه پر فشار و کم‌فشار در ظرف واکنش و در فاصله ۳۰ میلی‌متری در شکل ۶ نشان داده‌شده‌است. ناحیه پر فشار در این شکل در اطراف کاونده متمرکز شده است و نسبت به ظرف یک شدت کم‌تری دارد. اختلاف فشار ایجادشده در این حالت در مقایسه با ظرف اول حدود ۰٫۰۴۲ برابر کم‌تر است و فشار در ناحیه پر فشار نیز حدود ۰٫۰۲۷ کم‌تر از ظرف اول می‌باشد.



شکل ۵ تغییرات فشار بر حسب فاصله نوک کاونده از کف ظرف ۲.

کلیه مراحل فوق برای ظرف سوم با قطر ۸۵ میلی‌متر نیز تکرار شد. شرایط ساخت نمونه‌های تولیدشده با این ظرف به همراه اختلاف فشار ایجادشده در ظرف در جدول ۳ بیان شده‌است.

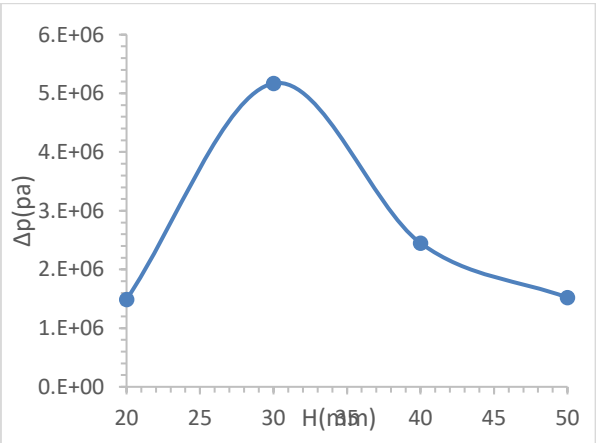
هم‌چنین نمودار اختلاف فشار بر حسب فاصله نوک کاونده از کف ظرف نیز در شکل ۷ نشان داده‌شده‌است.



شکل ۶ شبیه‌سازی فشار فراصدا در فاصله ۳۰ میلی‌متری نوک کاونده از کف ظرف ۲.

جدول ۳ اختلاف فشار و شرایط ساخت نمونه‌ها در ظرف ۳.

جرم گرافیت (گرم)	H (میلی‌متر)	حجم محلول (میلی‌لیتر)	اختلاف فشار (پاسکال)
۰٫۱۲	۲۰	۱۶۱	۱٫۴۹×۱۰^۶
۰٫۱۵	۳۰	۱۹۰	۵٫۱۷×۱۰^۶
۰٫۱۷	۴۰	۲۲۲	۲٫۴۵×۱۰^۶
۰٫۲	۵۰	۲۶۰	۱٫۵۲×۱۰^۶



شکل ۷ تغییرات فشار بر حسب فاصله نوک کاونده از کف ظرف ۳.

[Downloaded from joasi.ir on 2025-12-08]

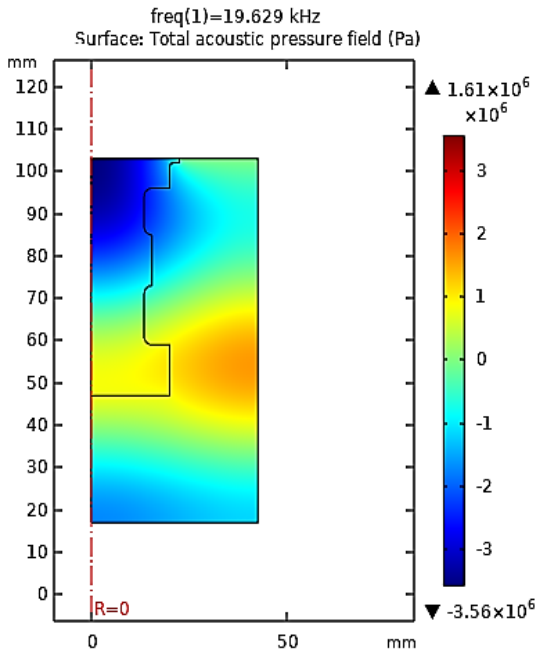
بیش‌ترین اختلاف فشار مشاهده‌شده برای ظرف سوم با قطر ۸۵ میلی‌متر در فاصله ۳۰ میلی‌متری از کف ظرف مشاهده شد. ناحیه پرفشار نیز همان‌طور که در شکل ۸ نشان داده شده‌است، در اطراف کاونده و در کناره ظرف قرار دارد.

اختلاف فشار مشاهده‌شده در این فاصله حدود ۱٫۵۵ برابر بیش‌تر از اختلاف فشار مشاهده‌شده در ظرف دوم با قطر ۷۵ میلی‌متر می‌باشد. فشار در قسمت پرفشار ظرف سوم نیز ۱٫۴۵ برابر بیش‌تر از فشار در ناحیه پرفشار در ظرف دوم می‌باشد. نمودار بیش‌ترین اختلاف فشار مشاهده‌شده در هر ظرف بر حسب قطر در شکل ۹ نشان داده‌شده‌است.

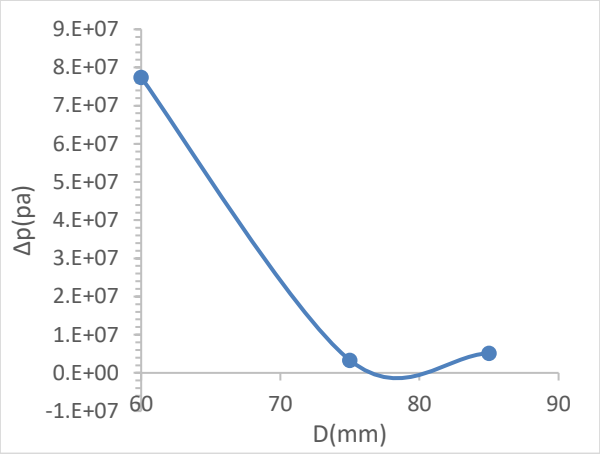
همان‌طور که از نمودار مشهود است اختلاف فشار ایجادشده در ظرف اول با قطر ۶۰ میلی‌متر به میزان قابل توجهی از دو ظرف دیگر بیش‌تر می‌باشد.

از طرفی مکان ناحیه پرفشار و کم‌فشار در ظرف‌های دو و سه کاملاً مشابه یکدیگر بوده و فقط مقدار فشار در این نواحی متفاوت است. اما در ظرف یک با قطر ۶۰ میلی‌متر ناحیه کم‌فشار در کف ظرف و ناحیه پرفشار با شدت بالا در اطراف کاونده قرار دارد.

بنابراین انتظار می‌رود احتمال لایه‌برداری از گرافن در ظرف اول بیش‌تر باشد.



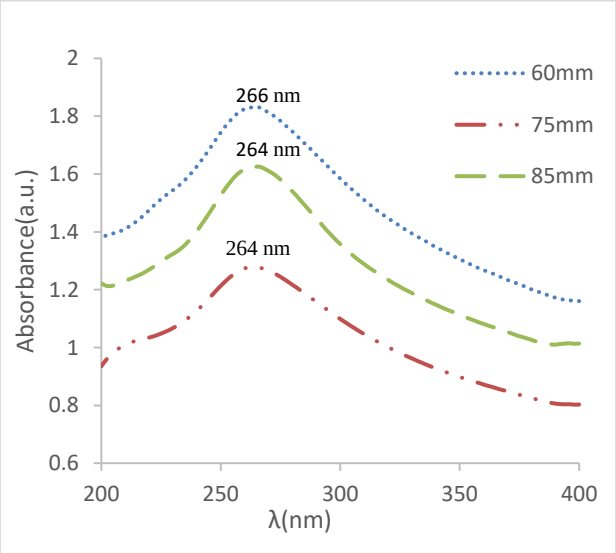
شکل ۸ شبیه‌سازی فشار فراصدا در فاصله ۳۰ میلی‌متری نوک کاونده از کف ظرف ۳.



شکل ۹ نمودار بیش‌ترین اختلاف فشار مشاهده‌شده در هر ظرف بر حسب قطر ظرف.

طیف جذبی نمونه‌های گرافن تولیدشده در هر کدام از ظرف‌ها در بازه طول موج ۲۰۰ تا ۴۰۰ نانومتر در شکل ۱۰ نشان داده‌شده‌است. قلّه جذبی نمونه‌های گرافن تولیدشده در ظرف دوم و سوم در ۲۶۴ نانومتر قرار دارد که مربوط به گذار باند*π-π می‌باشد. قلّه جذبی مربوط به ظرف اول با قطر ۶۰ میلی‌متر به ۲۶۶ نانومتر منتقل شده‌است که نشان‌دهنده کاهش تعداد لایه‌های گرافن در این ظرف می‌باشد [۱۴].

نتایج به‌دست‌آمده از طیف‌سنجی، نتایج شبیه‌سازی را تایید می‌کند و نشان می‌دهد که نمونه تولیدشده با ظرف یک که اختلاف فشار بیش‌تری دارد، جذب بیش‌تری را نیز در طیف‌سنجی نشان می‌دهد.



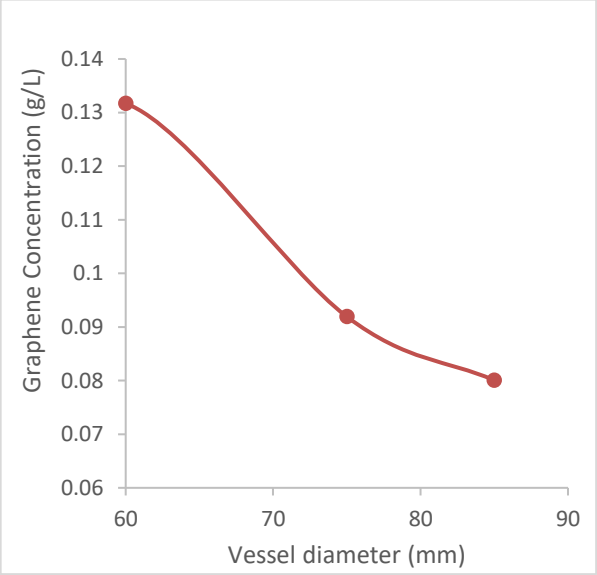
شکل ۱۰ طیف جذب فرابنفش- مرئی برای نمونه‌های تولیدشده در ظرف‌های با قطر ۶۰ و ۷۵ و ۸۵ میلی‌متر.

[Downloaded from joasi.ir on 2025-12-08]

اختلاف فشار بیش‌تر موجب فایق آمدن بر پیوندهای ولندروالسی بین لایه‌های گرافیت شده و لایه‌های گرافنی بیش‌تری را ایجاد می‌کند. از آن‌جا که غلظت گرافیت افزوده‌شده در هر سه ظرف یکسان است افزایش قلّه جذبی نمونه‌ها نشان‌دهنده تولید گرافن بیش‌تر می‌باشد. غلظت تقریبی گرافن تولیدشده با استفاده از قانون بیر-لامبرت در ضریب جذب ۶۶۰ نانومتری محاسبه شد:

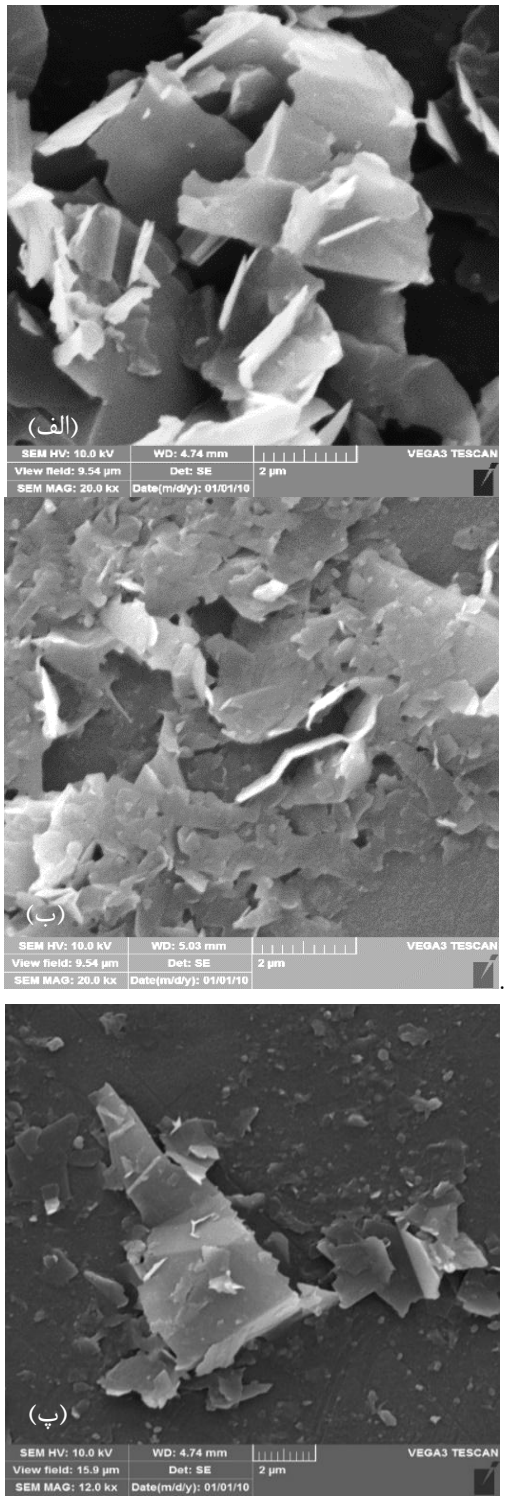
$$C = \frac{A}{l\,\alpha_{660}} \qquad (۵)$$

در این رابطه l=۰/۰۱m طول مسیر طی‌شده توسط نور، C (گرم بر لیتر) غلظت محلول و α=۱۳۹۰ (لیتر بر گرم.متر) ضریب جذب محلول در ۶۶۰ نانومتر می‌باشد [۱۵]. نمودار غلظت نمونه‌ها بر حسب قطر ظرف در شکل ۱۱ نشان می‌دهد که با افزایش قطر ظرف غلظت گرافن تولیدشده کاهش یافته‌است.



شکل ۱۱ غلظت گرافن تولیدشده در ظرف‌های با قطر ۶۰، ۷۵ و ۸۵ میلی‌متر.

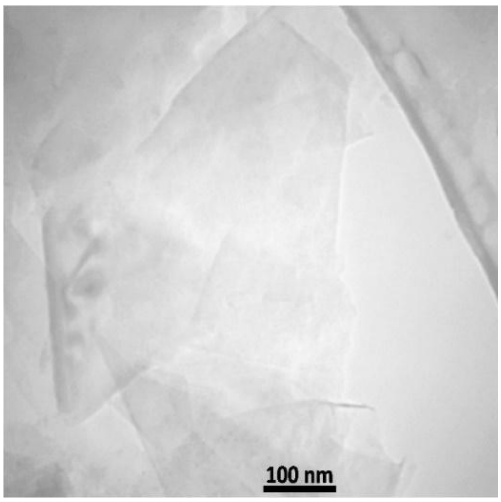
تصاویر میکروسکوپ الکترونی نمونه‌های تولیدشده در قطرهای مختلف در شکل ۱۲ نشان داده‌شده‌است. تصاویر نمونه تولیدشده در ظرف یک نشان می‌دهد که پوسته‌های تولیدشده در این شرایط دارای شفافیت بالا بوده که نشان دهنده کم‌لایه بودن پوسته‌های تولیدشده می‌باشد. هم‌چنین کیفیت لایه‌های تولیدشده در این ظرف نسبت به دو ظرف دیگر بهتر می‌باشد. هم‌چنین در ظرف‌های دو و سه به دلیل اختلاف فشار کم‌تر و نیز فضای بیش‌تر حرکت ذرات، چسبندگی لایه‌ها بیش‌تر شده‌است که در شکل ۱۲ قابل مشاهده است.



شکل ۱۲ تصاویر میکروسکوپ الکترونی برای نمونه‌های تولیدشده در ظرف‌های با قطر **(الف)** ۶۰، **(ب)** ۷۵ و **(پ)** ۸۵ میلی‌متر.

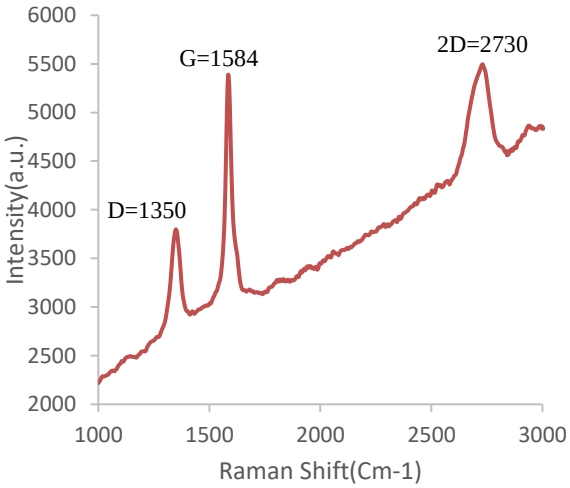
[Downloaded from joasi.ir on 2025-12-08]

تصویر میکروسکوپ الکترونی عبوری نمونه تولیدشده در ظرف اول با قطر ۶۰ میلی‌متر در شکل ۱۳ نشان داده‌شده‌است. تصویر به دست آمده از این نمونه نیز تولید پوسته‌های گرافن کم‌لایه را تایید می‌کند، لایه‌های شفاف‌تر به احتمال زیاد دو یا سه لایه هستند.



شکل ۱۳ تصویر میکروسکوپ الکترونی عبوری نمونه تولیدشده در ظرف یک با قطر ۶۰ میلی‌متر.

طیف رامان نمونه تولیدشده در ظرف ۱ در شکل ۱۴ نشان داده‌شده‌است. در طیف رامان گرافن تولید شده سه باند D در ۱۳۵۰ Cm^{-1} و باند G در ۱۵۴۸ Cm^{-1} و باند ۲D در Cm^{-1} ۲۷۳۰ دیده می‌شود. باند D در طیف رامان نشان‌دهنده نقص‌های ساختار گرافن بوده و دو باند دیگر مشخصه‌های ساختاری گرافن را نشان می‌دهند.



شکل۱۴ طیف رامان نمونه تولیدشده در ظرف یک با قطر ۶۰ میلی‌متر.

از نسبت شدت قلّه‌های G و ۲D می‌توان به تعداد لایه‌های گرافن تولیدشده پی برد. در مورد نمونه تولیدشده در ظرف یک با قطر ۶۰ میلی‌متر I_{2D}/I_G~۱/۰۲ به دست آمد که نشان می‌دهد لایه‌های تولیدشده در محدوده کم‌لایه و حتی دولایه می‌باشند [۱۶].

۴. بحث

با بررسی نتایج به‌دست‌آمده می‌توان گفت با افزایش قطر ظرف، ناحیه مرده در ظرف واکنش افزایش می‌یابد و تعداد ذرات کم‌تری تحت تاثیر اختلاف فشار تابش فراصدا قرار می‌گیرند بنابراین کاهش تولید گرافن با افزایش قطر ظرف مشاهده می‌شود.

نمونه‌های تولیدشده در هر سه ظرف تولید پوسته‌های گرافن را نشان می‌دهد اما پوسته‌های تولیدشده در ظرف‌های دوم و سوم کیفیت کم‌تری دارند و لایه‌ها در این دو ظرف احتمالا بیش‌تر به یکدیگر چسبیده‌اند.

با افزایش قطر ظرف و تغییر اختلاف فشار لایه‌ها، احتمال پوسته شدن لایه‌ها کاهش می‌یابد. با افزایش قطر ظرف حجم محلول مورد نیاز افزایش یافته است و فضای بیش‌تری برای پخش شدن ذرات ایجاد می‌شود.

بنابراین احتمال فرار ذرات از منطقه تابش افزایش می‌یابد. به نظر می‌رسد علاوه بر افزایش اختلاف فشار در محلول، محل قرارگیری نواحی پرفشار و کم‌فشار نیز در فرایند لایه‌برداری از گرافیت تاثیر دارند.

در ظرف یک هر دو ناحیه کم‌فشار و پر فشار زیر کاونده و در قسمت پایینی ظرف قرار دارند، جایی که تعداد ذرات بیش‌تری وجود دارد بنابراین ذرات با سرعت زیاد بین نواحی کم‌فشار و پرفشار جابجا می‌شوند و نیروی وارد شده بر ذرات در این جابجایی موجب لایه‌برداری و تولید گرافن می‌شود.

اما در دو ظرف دیگر علاوه بر این‌که از شدت ناحیه پرفشار کاسته شده‌است، بلکه محل ناحیه کم‌فشار در بالای ظرف و بالاترین قسمت کاونده قرار گرفته است.

بنابراین احتمال جابجایی ذرات بین نواحی کم‌فشار و پرفشار در این دو ظرف کاهش یافته و احتمال لایه‌برداری نیز کاهش می‌یابد.

[Downloaded from joasi.ir on 2025-12-08]

۵. نتیجه گیری

در این مقاله گرافن با روش لایه‌برداری در فاز مایع توسط کاونده فراآوایی[1] پله‌ای طراحی، ساخته شده و تولید شد.

طراحی کاونده فراآوایی با بیشینه جابجایی در نرم‌افزار کامسول انجام شد. سپس اختلاف فشار تولیدشده توسط کاونده در محلول آب و اتانول در سه ظرف با قطرهای ۶۰، ۷۵ و ۸۵ میلی‌متر شبیه‌سازی شد.

فاصله نوک کاونده از کف ظرف نیز از ۲۰ تا ۵۰ میلی‌متر تغییر کرد. طبق نتایج شبیه‌سازی، بیش‌ترین اختلاف فشار تولیدشده حدود $۷/۷۴\times۱۰^{۷}$ پاسکال، برای ظرف یک با قطر ۶۰ میلی‌متر و در فاصله ۵۰ میلی‌متری از کف ظرف می‌باشد. با افزایش قطر ظرف اختلاف فشار تولیدشده در محیط کاهش یافت. هم‌چنین نمودار طیف جذبی نمونه‌های تولیدشده، تولید گرافن با غلظت بیش‌تر در این ظرف را تایید کرد. تصاویر میکروسکوپ الکترونی روبشی و میکروسکوپ الکترونی عبوری نمونه‌ها نیز تولید گرافن کم‌لایه و بدون نقص را نشان می‌دهد.

هم‌چنین از نتایج تحلیل رامان نمونه‌ها نسبت I_{2D}/I_G حدود ۱/۰۲ به دست آمد که نشان می‌دهد گرافن تولیدشده در محدوده کم‌لایه و حتی دولایه می‌باشد.

تقدیر و تشکر

از همکارانی که در راهبرد این پژوهش صمیمانه همراهی داشتند، قدردانی می‌گردد.

تضاد منافع

مقاله ارائه‌شده فاقد هرگونه تضاد منافع است.

فهرست منابع

[1] Y. Htwe, M. Abdullah, M. Mariatti, "Water-based graphene/AgNPs hybrid conductive inks for flexible electronic applications", *Journal of Materials Research and Technology*, vol. 16, pp. 59–73, 2022.

[2] K. Mylvaganam, L. Zhang, "Graphene nanosheets: Mechanisms for large-area thin films production", Scripta Materialia, vol. 115, pp. 145–149, 2016.

[3] C. Backes, A. Abdelkader, C. Alonso, A. Andrieux-Ledier, et al, "Production and processing of graphene and related materials", 2D Materials, vol. 7, no. 2, pp. 022001, 2020.

[4] A. Ciesielski, P. Samorì, "Graphene via sonication assisted liquid-phase exfoliation", Chemical Society Reviews, vol. 43, no. 1, pp. 381-398, 2014.

[5] A. Ručigaj, J. Connell, M. Dular, B. Genorio, "Influence of the ultrasound cavitation intensity on reduced graphene oxide functionalization", Ultrasonics Sonochemistry, vol. 90, pp. 106212, 2022.

[6] P. Turner, M. Hodnett, R. Dorey, J. Carey, "Controlled sonication as a route to in situ graphene flake size control", Scientific Reports, vol. 9, no. 1, pp. 8710, 2019.

[7] L. Xu, J. McGraw, F. Gao, M. Grundy, Z. Ye, Z. Gu, J. Shepherd, "Production of high-concentration graphene dispersions in low-boiling-point organic solvents by liquid-phase noncovalent exfoliation of graphite with a hyperbranched polyethylene and formation of graphene/ethylene copolymer composites", The Journal of Physical Chemistry C, vol. 117, no. 20, pp. 10730-10742, 2013.

[8] Y. Shin, X. Just-Baringo, M. Boyes, A. Panigrahi, M. Zarattini, Y. Chen, X. Liu, G. Morris, E. Prestat, K. Kostarelos, S. Vranic, I. Larrosa, C. Casiraghi, "Enhanced liquid phase exfoliation of graphene in water using an insoluble bis-pyrene stabilizer", Faraday Discussions, vol. 227, pp. 46-60, 2021.

[9] A. Tyurnina, I. Tzanakis, J. Morton, J. Mi, K. Porfyrakis, B. Maciejewska, N. Grobert, D. Eskin, "Ultrasonic exfoliation of graphene in water: A key parameter study", Carbon, vol. 168, pp. 737-747, 2020.

[10] X. Gu, Y. Zhao, K. Sun, C. Vieira, Z. Jia, C. Cui, Z. Wang, A. Walsh, S. Huang, "Method of ultrasound-assisted liquid-phase exfoliation to prepare graphene", Ultrasonics Sonochemistry, vol. 58, pp. 104630, 2019.

[11] J. Jagadish, A. Ray, "Design and performance analysis of ultrasonic probe with a longitudinally changing rectangular cross section for USM using finite element analysis", Journal of the Brazilian Society of Mechanical Sciences and Engineering, vol. 40, pp. 1-11, 2018.

[12] H. Yu, J. Gao, Q. Zhong, Y. Guo, Y. Xie, W. Yao, W. Zhou, "Acoustic pressure and temperature distribution in a novel continuous ultrasonic tank reactor: A simulation study", IOP Conference Series: Materials Science and Engineering, vol. 392, pp. 062021, 2018.

[13] S. Mushfiq, R. Afzalzadeh, "Verification of experimental results with simulation on production of few-layer graphene by liquid-phase exfoliation utilizing sonication", Scientific Reports, vol. 12, pp. 9872, 2022.

[14] S. Uran, A. Alhani, C. Silva, "Study of ultraviolet–visible light absorbance of exfoliated graphite forms", AIP Advances, vol. 7, pp. 035323, 2017.

[1] Ultrasonic

[Downloaded from joasi.ir on 2025-12-08]

[15] A. Capasso, A. Del Rio Castillo, H. Sun, A. Ansaldo, V. Pellegrini, F. Bonaccorso, "Ink-jet printing of graphene for flexible electronics: An environmentally-friendly approach", Solid State Communications, vol. 224, pp. 53-63, 2015.

[16] A. Kaniyoor, S. Ramaprabhu, "A Raman spectroscopic investigation of graphite oxide derived graphene", AIP Advances, vol. 2, no. 3, pp. 032183, 2012.

[Downloaded from joasi.ir on 2025-12-08]