

رسوب گذاری نانوجندسازه اکسید گرافن/طلا با کمک جت پلاسمای غیر تعادلی

رضا مظفری مکی آبادی، مهدی شریعت^{*}، مسعود کریمی پور و مهدی ملایی

گروه فیزیک، دانشکده علوم پایه، دانشگاه ولی عصر(عج)، رفسنجان، ایران.

چکیده

در این مقاله، نانوجندسازه های اکسید گرافن/طلا (GO/Au)، طی یک مرحله به صورت مستقیم با استفاده از جت پلاسمای غیر تعادلی در فشار اتمسفری تولید می شود. در این روش قطرات ریزی از محلول پیش ماده شامل کلرو آئوریک اسید (HAuCl_4) و اکسید گرافن با ورود به پلاسمای کاهش شده و چندسازه GO/Au بر سطح زیرلایه رسوب گذاری می شود. ساختار بلوری و ریخت شناسی نانوجندسازه های رسوب شده با استفاده از پراش پرتو ایکس (XRD)، میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی (FESEM)، طیف نگاری پراکندگی انرژی پرتو ایکس (EDS) و طیف سنجی رامان مورد بررسی قرار گرفت. نتایج XRD نشان داد نانوساختارهای طلا با ساختار بلوری مکعبی مرکز سطحی تولید شده اند. از این نتایج دریافت شد که با افزایش ولتاژ اعمالی پلاسمای، تراکم بلورکها طلا بر سطوح گرافنی افزایش می یابد. تصاویر FESEM تایید می کند که نانوذرات طلا روی سطوح اکسید گرافن تشکیل شده است. آنالیز EDS نشان داد که ذرات طلا روی سطوح اکسید گرافن با توزیع یکنواخت رسوب گذاری شده است. طیف رامان نانوجندسازه های رسوب شده بر زیرلایه شیشه دارای قله هایی در 1355cm^{-1} و 1590cm^{-1} است. این قله ها حضور اکسید گرافن را در چندسازه GO/Au تایید می کند.

واژه های کلیدی: نانوجندسازه، نانوذرات طلا، اکسید گرافن، جت پلاسمای غیر تعادلی.

ایمیل نویسنده مسئول: m.shariat@vru.ac.ir

۱-مقدمه

نانوجندسازه اکسید گرافن/طلا (GO/Au-NC) کاربردهای زیادی در زمینه های متفاوت از جمله حسگرهای الکتروشیمیایی و پراکندگی رامان ارتقاء یافته سطحی دارد [۸، ۹]. ویژگی ها و کاربردهای زیاد این نانوجندسازه باعث شد تا روش های متنوع برای تولید آن مطرح شود. سانگ و همکارانش از روش احیا شیمیایی برای تولید نانوجندسازه GO/Au بهره گرفتند [۱۰]. آنها نانوذراتی با قطر تقریبی ۳۰nm روی ورق های اکسید گرافن تولید کردند. کویی و همکارانش، از روش سونوشیمیایی برای تولید GO/Au-NC استفاده کردند [۱۱]. با استفاده از این روش، نانوذرات طلا در حضور اتیلن گلیکول به عنوان تثبیت کننده، روی سطوح GO ایجاد شد. در مطالعات دیگر از روش های میکروویو [۱۲]، بیوسنتز [۱۳] و الکتروشیمیایی [۱۴] برای تولید و رسوب گذاری چندسازه های اکسید گرافن استفاده شده است. معمولاً در این روش ها، تولید نانومواد مورد نظر با اتلاف مواد و صرف انرژی و زمان زیادی همراه است. [۱۵] از این رو، روش های نوینی برای تولید این نانومواد مطرح شده است.

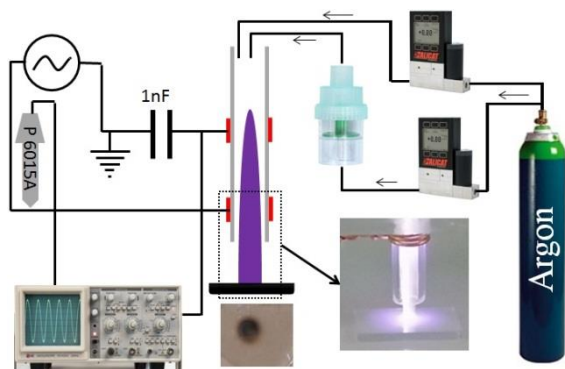
در دهه ها اخیر، روش های پلاسمایی به دلیل مزیت های فراوان آنها نسبت به دیگر روش های مرسوم، بیشتر مورد توجه قرار گرفته است [۱۶، ۱۷]. در این روش ها تعداد مراحل فرایند تولید و لایه نشانی نانومواد پایین است و این فرایندها نیز در دمای

نانوذرات طلا به دلیل ویژگی های منحصر به فرد اپتیکی، زیستی و شیمیایی به شدت مورد توجه پژوهشگران است. این نانوذرات دارای زیست پذیری و ثبات شیمیایی بالایی هستند. نانوذرات طلا می توانند کارایی بالایی در تصویربرداری پزشکی و حسگرهای زیستی داشته باشند [۱، ۲]. همچنین از این نانوذرات به عنوان کاتالیست در تصفیه آب و گازهای آلاینده استفاده می شود [۳، ۴]. این نانوذرات فلزی می توانند با مواد دیگری مانند اکسید گرافن (GO) ترکیب شوند و این ترکیب می تواند خواص هر یک از اجزاء آن ها را بهبود ببخشد [۵]. اکسید گرافن یک لایه اتمی از صفحات کربنی با پیوند sp^2 است که این صفحات دارای گروه های عاملی اکسیژن دار است [۶]. این گروه های عاملی شامل کربوکسیلیک ($-\text{COOH}$)، کربونیل (C=O)، اپوکسی (C-O-C) و هیدروکسیل (C-OH) است [۵]. وجود این عامل ها باعث می شود که لایه های GO به خوبی در حلال های قطبی مانند آب پراکنده شوند [۷]. این خاصیت آب دوستی، قابلیت زیادی برای تشکیل نانوذرات فلزی در سطح GO فراهم می آورد که در نهایت منجر به شکل گیری نانوجندسازه اکسید گرافن/فلز می شود. در این نانوجندسازه ها استفاده از فلزات زیست پذیر مانند طلا بیشتر مورد توجه است.

زایس آلمان بهره گرفته شد. طیف نگاری رامان با استفاده از دستگاه XploRA Plus، شرکت هوریا ژاپن انجام شد.

۲-۲- تهیه پیش‌ماده

برای آماده سازی پیش‌ماده مورد نیاز برای رسوب نانوچندسازه‌های GO/Au ابتدا ۰/۰۶ گرم اکسید گرافن به ۴۰ میلی‌لیتر آب دیونیزه اضافه شده و به مدت ۳۰ دقیقه در دستگاه آلتراسونیک پراب‌دار قرار داده شد تا سوسپانسیون کاملاً یکدستی به دست آید. همچنین به طور جداگانه ۰/۰۷ گرم $\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ به ۱۰ میلی‌لیتر آب دیونیزه اضافه شد و به مدت ۱۰ دقیقه روی همزن مغناطیسی قرار گرفت. سپس ۳ میلی‌لیتر از محلول اکسید گرافن و یک میلی‌لیتر از محلول طلا با هم مخلوط شده و حجم آن به ۶ میلی‌لیتر رسانده شد. این محلول پس از ۱۰ دقیقه هم خوردن به عنوان پیش‌ماده نانوچندسازه GO/Au استفاده شد.



شکل ۱. طرحواره جت پلاسمایی غیر تعادلی

۲-۳- روش کار

در اینجا از یک جت پلاسمای غیر تعادلی برای رسوب‌گذاری چندسازه GO/Au استفاده می‌شود (شکل ۱). این جت با پیکربندی تخلیه سد دی‌الکتریک کار می‌کند و دارای دو الکترود مسی و یک لوله کوآرتز است. این لوله با قطر داخلی ۲ میلی‌متر و قطر خارجی ۴ میلی‌متر به عنوان دی‌الکتریک در این جت استفاده می‌شود. دو الکترود مسی به فاصله ۱ سانتی‌متر از یکدیگر روی لوله کوآرتز پیچیده شده است. الکترود زمین در فاصله ۸ میلی‌متری تا انتهای نازل کوآرتز قرار گرفته است. برای تولید پلاسما این الکترودها به یک منبع تغذیه ولتاژ متغیر (۵-۱۰ kV)، و فرکانس ثابت ۲۰ کیلوهرتز متصل می‌شوند. ولتاژ اعمالی به پلاسما به وسیله یک پراب ولتاژ بالا (P6015A) و اسیلوسکوپ اندازه‌گیری می‌شود. در این جت از گاز آرگون به عنوان گاز پلاسما و همچنین گاز حامل استفاده می‌شود. نرخ جریان شارش گاز پلاسما ۲SLPM و گاز حامل

پایین پیش می‌روند. این امر امکان استفاده از زیرلایه‌های حساس به دما را فراهم می‌نماید. از دیگر مزایای روش‌های پلاسمایی می‌توان به پایین بودن توان مصرفی، هزینه تولید و اتلاف مواد اشاره کرد [۱۸]. همچنین، لازم به ذکر است، روش‌های رسوب‌گذاری پلاسمایی به اصلاح اولیه سطح زیرلایه و پخت نهایی لایه‌ی ایجاد شده نیازی ندارد [۱۹]. محیط پلاسما به دلیل دارا بودن گونه‌های فعال همچون الکترون‌ها، یون‌ها، رادیکال‌ها و فوتون‌های پر انرژی شرایط لازم برای پیشبرد واکنش‌های شیمیایی و فیزیکی جهت تشکیل نانومواد را ایجاد می‌کند. الکترون‌ها پلاسما به عنوان یک عامل احیا کننده در کاهش شیمیایی پیش‌ماده‌های فلزی جهت تولید نانومواد، نقش موثری دارند [۲۰]. در روش پلاسمایی، پیش‌ماده مورد استفاده می‌تواند در فاز گاز یا مایع باشد [۲۱، ۲۲]. طی مطالعات اخیر، برای پیش‌ماده‌های مایع در پلاسما، دریافت شد که الکترون‌های پلاسما در تماس با سطح مایع می‌توانند در آن نفوذ کنند و یون‌های محلول را به طور مستقیم احیا کنند تا در نهایت نانومواد مطلوب تولید شوند [۲۳، ۲۴]. بیشتر روش‌های سنتی پلاسمایی برای رسوب‌گذاری نیاز به خلاء داشته اما در سال‌های اخیر روش‌های پلاسمایی که در فشار اتمسفری کار می‌کنند مانند جت پلاسمایی مطرح شده است [۲۰]. طی تحقیقات انجام شده، از جت پلاسمای در فشار اتمسفری برای رسوب‌گذاری نانوساختارهای اکسید تیتانیوم، اکسید قلع، اکسید مس، اکسید گرافن کاهش یافته، نقره و غیره استفاده شده است [۱۸، ۲۵-۲۷]. همچنین، ماگنیر و همکارانش توانستند نانوذرات طلا را به طور مستقیم از محلول کلرو آئوریک اسید (HAuCl_4) با کمک جت پلاسمایی تولید کنند [۲۸]. در بیشتر این پژوهش‌ها، نانوساختارهای مورد نظر با روش‌های دیگر تولید شده و توسط جت پلاسمایی رسوب‌گذاری و پخت آنها انجام گرفته است.

در این کار، برای اولین بار نانوچندسازه‌های اکسید گرافن /طلا به طور مستقیم به کمک جت پلاسمای غیر تعادلی در فشار اتمسفری تولید و رسوب‌گذاری می‌شود. محلول پیش‌ماده شامل HAuCl_4 و اکسید گرافن می‌باشد که به صورت آئروسول به پلاسما تزریق می‌شود. در نهایت چندسازه مورد نظر روی سطح زیر لایه شیشه لایه‌نشانی می‌شود.

۲- بخش تجربی

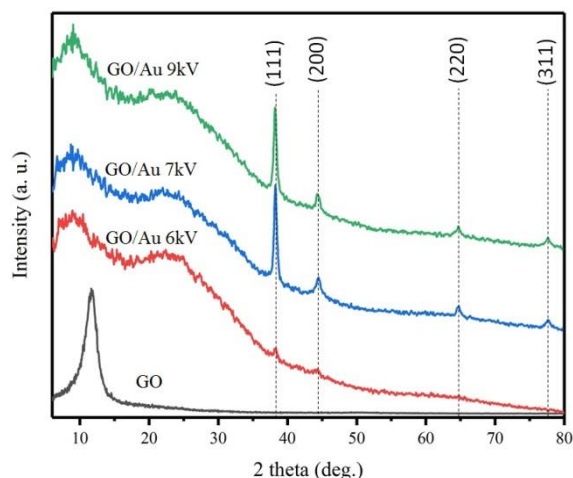
۲-۱- مواد و تجهیزات

در این کار، اکسید گرافن مورد استفاده از روش اصلاح شده هامر به دست آمد [۲۹]. تترا کلرو آئوریک اسید تری هیدرات ($\text{HAuCl}_4 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$) از شرکت مرک تهیه شد. دستگاه طیف سنجی Avantes (2024) برای تحلیل طیف تابشی پلاسما (OES) به کار گرفته شد. برای آنالیز پراش پرتوی ایکس (XRD) از دستگاه X' Pert Pro، شرکت پانالیتیکال استفاده شد. به منظور تصویر برداری میکروسکوپ الکترونی روبشی گسیل میدانی (FESEM) از دستگاه مدل Sigma VP شرکت

سطح آنها نفوذ کنند [۲۰]. یون‌های فلزی محلول پیش‌ماده در نزدیک سطح قطرات توسط این الکترون‌های احیا می‌شوند و اتم‌های طلا را تشکیل می‌دهند (شکل ۲-ب). در حین فرآیند نفوذ الکترون‌های در قطرات، تبخیر سطحی نیز در آنها رخ می‌دهد و حجم آنها کاهش می‌یابد و این کمک می‌کند که اتم‌های احیا شده یکدیگر را بهتر ببینند و با یکدیگر توده‌های چند اتمی و در نهایت نانوذرات طلا را تشکیل دهند. از آنجایی که در این قطرات سطوح اکسید گرافن به عنوان یک بستر مناسب وجود دارد، در نتیجه نانوذرات طلا روی آن سطوح ایجاد می‌شوند و یک نانوجندسازه را تشکیل می‌دهند. این چندسازه همراه با قطرات به سمت زیرلایه‌ای که جلوی نازل پلاسمایی قرار دارد تابیده می‌شوند. این فرآیندها ممکن است بعد از اینکه قطرات به سطح زیرلایه رسیدند هنوز ادامه داشته باشد و در نهایت چندسازه GO/Au روی سطح زیرلایه رسوب‌گذاری می‌شود. بنابراین نانوجندسازه مورد نظر با کمک جت پلاسمایی طی یک مرحله و به طور مستقیم لایه‌نشانی می‌شود.

۳-۲- آنالیز XRD

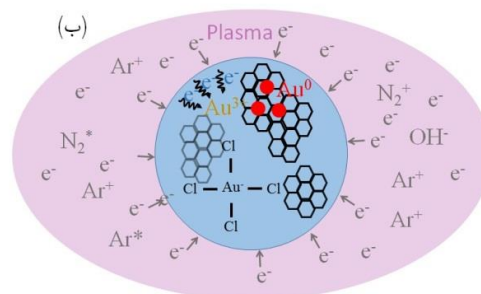
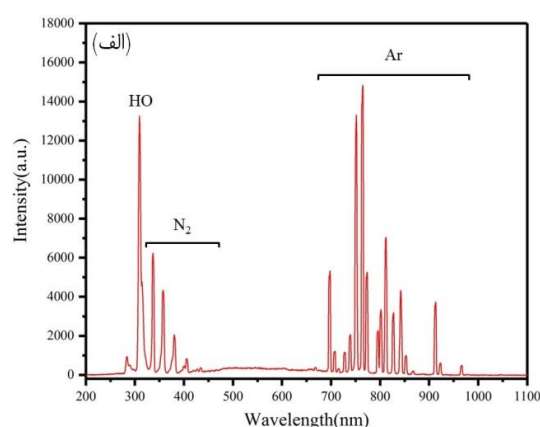
شکل ۳، نمودارهای پراش پرتوی ایکس از GO خالص و چندسازه‌های GO/Au رسوب‌گذاری شده روی زیرلایه شیشه در ولتاژهای متفاوت را نشان می‌دهد. نمودار XRD اکسید گرافن تولید شده به روش اصلاح شده هامر دارای یک قله در حوالی زاویه 2θ ، 11° می‌باشد. این قله مشخصه اکسید گرافن با ساختار بلوری (۰۰۲) است. با توجه به این زاویه، فاصله بین صفحات اکسید گرافن در حدود 0.76 nm به دست می‌آید. این عدد برای صفحات گرافنی در بلور گرافیت 0.33 nm است که این اختلاف نشان از اکسایش گرافیت و تشکیل اکسید گرافن دارد [۳۱].



شکل ۳. نمودار چاپ شده از لایه‌های رسوب شده در ولتاژهای متفاوت

در الگوی XRD چندسازه اکسید گرافن/طلا رسوب شده روی زیرلایه شیشه، قله‌هایی در زوایای 2θ ، 38° ، 44° ، 54° و 64°

است. گاز حامل بعد از عبور از نبولایزر پنوماتیکی، آئروسول از قطرات محلول کلرو آئوریک اسید و اکسید گرافن ایجاد کرده و همراه با گاز پلاسما به لوله جت پلاسمایی شارش می‌یابد. این گاز پس از عبور از فاصله بین دو الکتروود پلاسما شده و با خروج از نازل لوله کوارتز، جت پلاسما را ایجاد می‌کند. این جت به سطح زیر لایه شیشه که در فاصله ۳ میلی‌متر از آن قرار دارد، تابیده می‌شود و طی مدت ۵ دقیقه رسوب‌گذاری انجام می‌شود. سطح زیر لایه‌های شیشه پیش از لایه‌نشانی با استون، اتانول و آب مقطر دوبار تقطیر به‌طور کامل تمیز و عاری از هرگونه آلودگی می‌شود.



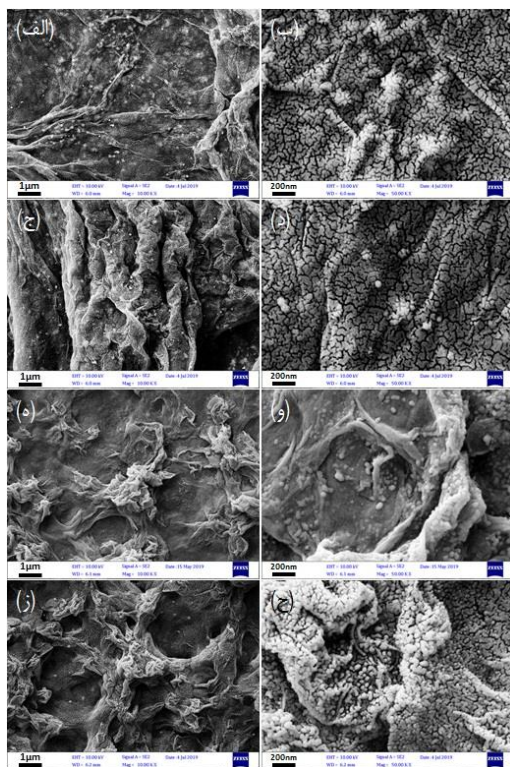
شکل ۲. الف) طیف تابشی پلاسما ب) قطره معلق در پلاسما

۳- نتایج و بحث

۳-۱- سنتز نانوجندسازه اکسید گرافن/طلا

با عبور گاز حامل از نبولایزر پنوماتیکی حاوی محلول پیش‌ماده قطرات ریزی با قطری بین ۲ تا ۱۰ میکرومتر تولید می‌شود. این قطرات ریز معلق در گاز برای مدت زمان کوتاهی در معرض پلاسما قرار می‌گیرند. شکل ۲-الف طیف تابشی جت پلاسمایی در فاصله ۳ میلی‌متر از نازل را نشان می‌دهد. در این شکل قله‌های مربوط به گونه‌های فعال OH، Ar و N_2 مشاهده می‌شود [۳۰]. گونه‌های فعال OH و نیتروژن ناشی از برهمکنش پلاسما با هوای محیط است. این گونه‌های فعال حضور الکترون‌های پر انرژی در پلاسما را تأیید می‌کنند [۱۷]. الکترون‌های پلاسما می‌توانند با برخورد به سطح قطرات در

نانوذرات پراکنده‌ای روی سطوح گرافنی مشاهده می‌شود. ولی با افزایش ولتاژ اعمالی پلاسما تراکم این نانوذرات افزایش می‌یابد. در ولتاژ ۹kV عملاً سطح اکسید گرافن با نانوذرات طلا پوشیده شده است. این نتایج، که با افزایش ولتاژ اعمالی پلاسما تراکم نانوذرات در GO/Au-NC افزایش می‌یابد، دستاوردهای حاصل از نمودارهای XRD را تایید می‌کند.



شکل ۴. تصاویر FESEM در مقیاس ۱ μm (سمت چپ) و ۲۰۰ nm (سمت راست) از نانوپندسازه‌های رسوب شده با ولتاژ اعمالی الف-ب) ۵، ج-د) ۶، ه-و) ۷ و ز-ح) ۹ کیلوولت

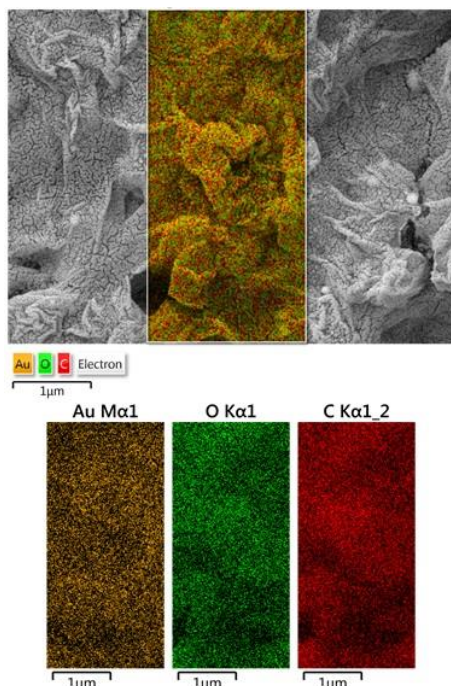
از طرف دیگر، افزایش ولتاژ منجر به مچاله شدن بیشتر لایه‌های گرافن می‌شود. این می‌تواند مربوط به این باشد که با افزایش ولتاژ پلاسما چگالی و انرژی گونه‌های فعال پلاسما افزایش می‌یابد و این باعث تبخیر سریع‌تر حلال قطرات معلقی شده و در نهایت منجر به فشردگی بیشتر سطوح نانوپندسازه اکسید گرافن لایه‌نشانی شده می‌شود. بنابراین، در این روش پلاسمایی می‌توان مقدار چروکیدگی و مچاله شدن لایه‌های اکسید گرافن در نانوپندسازه GO/Au را کنترل کرد، در حالی که در روش‌های دیگر معمولاً نانوذرات طلا روی لایه‌های سطح اکسید گرافن تشکیل می‌شوند [۱۰، ۱۵].

۷۷/۳° مشاهده می‌شود که این زوایا به ترتیب معرف صفحات بلوری (۱۱۱)، (۲۰۰)، (۲۲۰) و (۳۱۱) است (JCPDS: 04-0784). این صفحات نشان از تشکیل ساختار بلوری مکعبی مرکز سطحی در نانوذرات طلا دارد. همان‌طور که در شکل ۳ مشاهده می‌شود شدت قله‌های XRD در نمودار مربوط به نانوپندسازه تولید شده در ولتاژ اعمالی ۶kV بسیار کوچک است. در ولتاژهای پایین انرژی و چگالی الکترون‌های پلاسما کم است [۱۷] و بنابراین، نفوذ الکترون‌ها در قطرات محلول کاهش می‌یابد و تعداد یون‌های طلا کمتری احیا شده و به دنبال آن بلورک‌های کمتری تشکیل می‌شوند و شدت این قله‌های کاهش می‌یابد. با افزایش ولتاژ پلاسما به ۷kV شدت قله‌های صفحات بلوری افزایش چشمگیری دارد. با افزایش ولتاژ و در نتیجه افزایش انرژی الکترون‌های پلاسما، چگالی بیشتری از الکترون‌ها به سطح محلول نفوذ کرده و یون‌های فلزی بیشتری احیا می‌شوند و در نهایت منجر به ایجاد بلورک‌های بیشتر و افزایش شدت قله‌های پراش پرتو ایکس می‌شوند. در ولتاژ اعمالی ۹kV شدت این قله‌های نسبت به ۷kV کاهش جزئی را نشان می‌دهد که این می‌تواند مربوط به افزایش سرعت تبخیر حلال قطرات محلول پیش‌ماده در ولتاژ ۹kV باشد. این باعث می‌شود که هسته‌های اولیه چند اتمی تولید شده در این قطرات زمان کمتری برای ایجاد ساختار بلوری مشخصی در نانوساختارهای طلا را داشته باشند که باعث کاهش جزئی در شدت قله‌های نمودار XRD می‌شود.

از طرفی دیگر، با استفاده از معادله شرر می‌توان اندازه تقریبی بلورک‌های تشکیل شده در نانوپندسازه GO/Au را به دست آورد. اندازه این نانوساختارهای طلا برای ولتاژهای ۶، ۷ و ۹kV به ترتیب برابر با ۲۵، ۲۸ و ۲۹ nm است. بنابراین اندازه نانوبلورک‌ها با افزایش ولتاژ اعمالی پلاسما تغییر چندانی نمی‌کند. این می‌تواند مربوط به این باشد که غلظت یون‌های فلزی در قطرات تقریباً ثابت است. و با افزایش ولتاژ فقط تراکم تعداد نانوبلورک‌های تولید شده روی سطوح اکسید گرافن افزایش می‌یابد و اندازه آنها تغییر چندانی نمی‌کند. قله‌های پهن در زاویه‌های کمتر از ۳۰ درجه مربوط به زیرلایه شیشه است. و لازم به ذکر است، هیچ قله قابل توجهی از اکسید گرافن و اکسید گرافن کاهش یافته به دلیل پوشیده شدن آنها توسط نانوذرات طلا مشاهده نمی‌شود [۱۳].

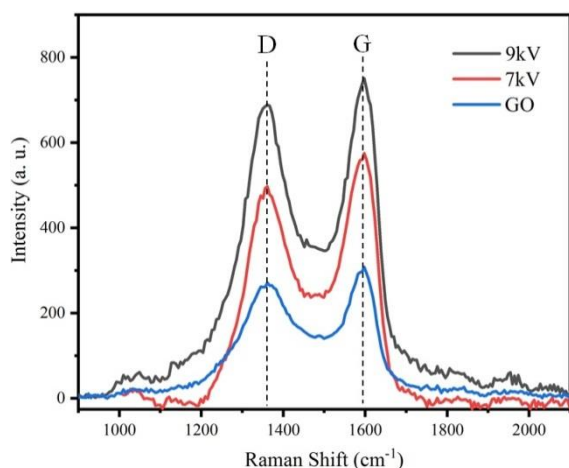
۳-۳- تصاویر FESEM و EDS-Mapping

شکل ۴ تصاویر FESEM از لایه‌های ایجاد شده برای ولتاژهای متفاوت ۵، ۶، ۷ و ۹kV را نشان می‌دهد. در این تصاویر توده‌های چروکیده و مچاله شده‌ای در اندازه‌های میکرومتری مشاهده می‌شود. این توده‌ها مربوط به صفحات اکسید گرافن است که در خود و یا در دیگر صفحات گرافنی تنیده شده است. اگر از سطح این صفحات چروکیده تصاویری با وضوح بیشتر تهیه شود، نانوذرات کروی شکل طلا روی صفحات اکسید گرافن مشهود است. در لایه‌های چاپ شده با ولتاژ پایین



شکل ۶: تصاویر نقشه برداری عنصری از چندسازه اکسید گرافن/طلا

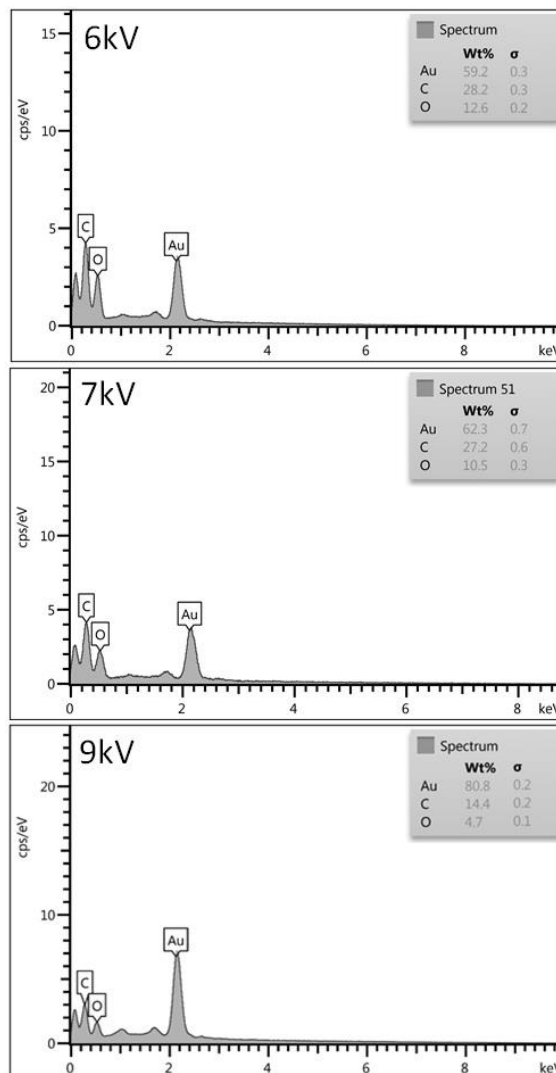
تصاویر نقشه برداری عنصری (EDS-Mapping) از چندسازه اکسید گرافن/طلا لایه‌نشانی شده با ولتاژ اعمالی ۹kV در شکل ۶ مشاهده می‌شود. این تصاویر نشان می‌دهد که نانوذرات طلا با توزیع تقریباً یکنواختی روی سطوح گرافنی پراکنده شده است. در این تصاویر همچنین مشاهده می‌شود که توده‌های مچاله شده از عناصر اکسیژن و کربن تشکیل شده که این تایید می‌کند، این توده‌ها مربوط به صفحات مچاله شده اکسید گرافن است.



شکل ۷: طیف رامان چندسازه‌های رسوب شده

۳-۱- طیف رامان

در شکل ۷ طیف رامان اکسید گرافن خالص و اکسید گرافن پوشیده شده با نانوذرات طلا در ولتاژ ۷ و ۹kV مشاهده



شکل ۵: طیف‌های EDS برای لایه‌های رسوب شده در ولتاژهای متفاوت

طیف EDS از چندسازه‌های رسوب شده با ولتاژهای متفاوت در شکل ۵ مشاهده می‌شود. با افزایش ولتاژ اعمالی نسبت وزنی عنصر Au افزایش می‌یابد. این نشان دهنده رسوب بیشتر نانوذرات طلا در چندسازه تولید شده با ولتاژ بالا می‌باشد. این افزایش عنصر طلا در طیف‌های EDS با نتایج حاصل از آنالیزهای FESEM و XRD مطابقت خوبی دارد. از نتایج EDS همچنین مشاهده می‌شود با افزایش ولتاژ پلاسما درصد وزنی عنصر اکسیژن نسبت به کربن کاهش می‌یابد. یعنی در ساختار اکسید گرافن رسوب شده در ولتاژهای بالا، اکسیژن کمتری وجود دارد. می‌توان نتیجه گرفت که الکترون‌های پلاسما در ولتاژهای بالا انرژی کافی برای احیای صفحات اکسید گرافن را دارند و این امر باعث کاهش عامل‌های اکسیژن‌دار در لایه‌های اکسید گرافن رسوب شده می‌شود.

- [3]. L. Qin, D. Huang, P. Xu, G. Zeng, C. Lai, et al., *Journal of colloid and interface science*, 534, 357-369, (2019).
- [4]. A.K. Sinha, K. Suzuki, M. Takahara, H. Azuma, T. Nonaka, et al., *Angewandte Chemie International Edition*, 46, 2891-2894, (2007).
- [5]. S.W. Chook, C.H. Chia, S. Zakaria, M.K. Ayob, K.L. Chee, et al., *Nanoscale research letters*, 7, 1-7, (2012).
- [6]. C. Li, X. Wang, F. Chen, C. Zhang, X. Zhi, et al., *Biomaterials*, 34, 3882-3890, (2013).
- [7]. J. Paredes, S. Villar-Rodil, A. Martinez-Alonso, and J. Tascon, *Langmuir*, 24, 10560-10564, (2008).
- [8]. J. Huang, L. Zhang, B. Chen, N. Ji, F. Chen, et al., *Nanoscale*, 2, 2733-2738, (2010).
- [9]. S.H. Baek, J. Roh, C.Y. Park, M.W. Kim, R. Shi, et al., *Materials Science and Engineering: C*, 107, 110273, (2020).
- [10]. M. Song, L. Yu, and Y. Wu, *Journal of Nanomaterials*, 2012, (2012).
- [11]. Y. Cui, D. Zhou, Z. Sui, and B. Han, *Chinese Journal of Chemistry*, 33, 119-124, (2015).
- [12]. A. Mehdiinia, S. Rouhani, and S. Mozaffari, *Microchimica Acta*, 183, 1177-1185, (2016).
- [13]. K. Hareesh, J. Williams, N. Dhole, K. Kodam, V. Bhoraskar, et al., *Materials Research Express*, 3, 075010, (2016).
- [14]. G. Zhao and G. Liu, *Nanomaterials*, 9, 41, (2019).
- [15]. D.O. Ididi, J.A. Oke, and I.T. Bello, *International Journal of Energy Research*, (2021).
- [16]. Z. Bahrani, M.R. Khani, and B. Shokri, *Physics of Plasmas*, 23, 113501, (2016).
- [17]. M. Shariat, M. Karimipour, and M. Molaei, *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, 37, 1133-1147, (2017).
- [18]. R.P. Gandhiraman, V. Jayan, J.-W. Han, B. Chen, J.E. Koehne, et al., *ACS applied materials & interfaces*, 6, 20860-20867, (2014).
- [19]. R.P. Gandhiraman, E. Singh, D.C. Diaz-Cartagena, D. Nordlund, J. Koehne, et al., *Applied Physics Letters*, 108, 123103, (2016).
- [20]. J. Hong, S. Yick, E. Chow, A. Murdock, J. Fang, et al., *Journal of Materials Chemistry C*, 7, 6369-6374, (2019).
- [21]. S. Ghosh, B. Bishop, I. Morrison, R. Akolkar, D. Scherson, et al., *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films*, 33, 021312, (2015).

می‌شود. طیف رامان تمامی نمونه‌ها دارای قله G در cm^{-1} ۱۵۹۰ مشخصه پیوند کربن-کربن و قله D در حدود cm^{-1} ۱۳۵۵ نشان‌دهنده عیوب در شبکه کربنی سطوح اکسید گرافن است [۳۲]. این طیف‌ها حضور اکسید گرافن در لایه‌های نانوجندسازه ایجاد شده با جت پلاسما را نشان می‌دهند. در طیف رامان اکسید گرافن، نسبت شدت باند D به G (I_D/I_G) اغلب بیان‌کننده مقدار نواقص سطوح گرافیتی است. این نسبت همچنین محدوده اندازه متوسط ساختارهای گرافیتی را مشخص می‌کند [۲۷]. نسبت I_D/I_G برای GO خالص و نانوجندسازه GO/Au رسوب‌گذاری شده در ولتاژ ۷ و ۹kV به ترتیب برابر با ۰/۸۵، ۰/۸۷ و ۰/۹۲ است. این نتایج همخوانی خوبی با یافته‌های استنکوویچ و همکارانش دارد [۳۳]. آنها دریافتند که احیا GO باعث افزایش I_D/I_G می‌شود. همچنین این افزایش I_D/I_G کاهش اندازه متوسط توده‌های گرافیتی در نانوجندسازه GO/Au را نشان می‌دهد. به عبارت دیگر، الکترون‌های پراثری پلاسما می‌توانند لایه‌های GO را احیا کنند و همچنین آنها را به لایه‌های کوچک‌تر کاهش دهند. از طرفی دیگر هر دو باند D و G طیف رامان چندسازه رسوب شده شدت بیشتری نسبت به GO خالص دارند که این افزایش شدت، می‌تواند مربوط به تقویت میدان الکتریکی به وسیله رزونانس پلاسمونی ناشی از نانوذرات فلزی باشد [۳۴].

۴- نتیجه گیری

نانوجندسازه‌های اکسید گرافن/طلا به طور مستقیم طی یک مرحله توسط جت پلاسمای غیر تعادلی در فشار جوی بر روی سطح زیرلایه شیشه رسوب‌گذاری شد. با استفاده از نتایج XRD، FESEM و رامان، تولید این چندسازه‌ها تایید شد. آنالیز پراش پرتو ایکس حضور نانو بلورک‌های طلا با ساختار مکعبی مرکز سطحی را در لایه چندسازه رسوب شده نشان داد. تصاویر FESEM تایید کرد که نانوذرات کروی طلا روی سطوح گرافنی تشکیل می‌شوند. از این تصاویر همچنین دریافت شد که تراکم تعداد نانوذرات روی سطوح اکسید گرافن با افزایش ولتاژ اعمالی پلاسما افزایش می‌یابد. افزایش ولتاژ پلاسما باعث مچاله شدن لایه‌های گرافنی رسوب شده می‌شود. و در نهایت از طیف سنجی رامان استنباط شد که الکترون‌های پلاسما با انرژی بالا توانایی احیا اکسید گرافن را دارند.

۵. منابع

- [1]. Y. Kobayashi, H. Inose, T. Nakagawa, K. Gonda, M. Takeda, et al., *Journal of colloid and interface science*, 358, 329-333, (2011).
- [2]. M. Shariq, S. Chattopadhyaya, R. Rudolf, and A.R. Dixit, *Materials Letters*, 264, 127332, (2020).

- [22]. S. Askari, V. Svrcek, P. Maguire, and D. Mariotti, *Advanced Materials*, 27, 8011-8016, (2015).
- [23]. P. Rumbach, D.M. Bartels, R.M. Sankaran, and D.B. Go, *Journal of Physics D: Applied Physics*, 48, 424001, (2015).
- [24]. M. Shariat, M. Karimipour, and M. Molaei, *Journal of Luminescence*, 207, 282-287, (2019).
- [25]. R. Ramamurti, R.P. Gandhiraman, A. Lopez, P. Doshi, D. Nordlund, et al., *IEEE Open Journal of Nanotechnology*, 1, 47-56, (2020).
- [26]. A. Dey, A. Lopez, G. FilipiČ, A. Jayan, D. Nordlund, et al., *Journal of Vacuum Science & Technology B, Nanotechnology and Microelectronics: Materials, Processing, Measurement, and Phenomena*, 37, 031203, (2019).
- [27]. A. Dey, S. Krishnamurthy, J. Bowen, D. Nordlund, M. Meyyappan, et al., *ACS nano*, 12, 5473-5481, (2018).
- [28]. P. Maguire, D. Rutherford, M. Macias-Montero, C. Mahony, C. Kelsey, et al., *Nano letters*, 17, 1336-1343, (2017).
- [29]. J. Chen, B. Yao, C. Li, and G. Shi, *Carbon*, 64, 225-229, (2013).
- [30]. A. Sarani, A.Y. Nikiforov, and C. Leys, *Physics of Plasmas*, 17, 063504, (2010).
- [31]. S.K. Mishra, S.N. Tripathi, V. Choudhary, and B.D. Gupta, *Sensors and Actuators B: Chemical*, 199, 190-200, (2014).
- [32]. G. Ding, S. Xie, Y. Liu, L. Wang, and F. Xu, *Applied Surface Science*, 345, 310-318, (2015).
- [33]. S. Stankovich, D.A. Dikin, R.D. Piner, K.A. Kohlhaas, A. Kleinhammes, et al., *Carbon*, 45, 1558-1565, (2007).
- [34]. Y. Zhao, Y.J. Zhang, J.H. Meng, S. Chen, R. Panneerselvam, et al., *Journal of Raman Spectroscopy*, 47, 662-667, (2016).

Deposition of graphene oxide/gold nanocomposite using non-equilibrium plasma jet

Reza Mozafari Maki Abadi, Mahdi Shariat*, Masoud Karimipour, Mahdi Molaei
Department of Physics, Faculty of Science, Vali-e-Asr University of Rafsanjan, Iran.

Abstract:

In this paper, a direct one-step deposition method through reduction by atmospheric pressure plasma jet was used to produce graphene oxide/gold (GO/Au) nanocomposites from HAuCl_4 and graphene oxide suspension. Microdroplets of the solution were reduced to GO/Au nanocomposite in the plasma and printed on glass substrate. The structure and morphology of the composites were characterized by FESEM, XRD, EDS and Raman spectroscopy. The FESEM images demonstrated that graphene oxide surfaces were decorated by Au nanoparticles. The XRD analysis showed that the formation of Au nanoparticles on the surface of GO nanosheets with the face centered cubic crystalline structure. The FESEM and XRD results revealed that increasing the plasma voltage leads to rising of the Au nanoparticles density on the GO surface. The EDS analysis showed that Au was uniformly distributed on GO surface via the plasma jet. The Raman spectrum of GO/Au contained G and D bands at 1355cm^{-1} and 1590cm^{-1} , respectively, due to the GO sheets.

Keywords: nanocomposite, gold nanoparticles, graphene oxide, non-equilibrium plasma jet.