Semnan University

Journal of Modeling in Engineering

Journal homepage: https://modelling.semnan.ac.ir/

ISSN: 2783-2538



*Research Article*

# Clean, Crackless and selective transfer of graphene using reduced graphene oxide and graphene sheet with APTES layers on silicon substrates

**Saeid Masoumi**

Department of Electrical Engineering, Shab.C., Islamic Azad University, Shabestar, Iran.

**PAPER INFO**

***Paper history:***

Received:
Revised:
Accepted:

***Keywords:***

Graphene transfer;
Reduced graphene oxide (RGO);
Surface Functionalization (APTES);
PMMA-Assisted Selective Transfer;
Raman spectroscopy;

**ABSTRACT**

In this study, we introduce an optimized four-step transfer protocol consisting of modified RCA cleaning, short-time Piranha activation, controlled APTES surface functionalization, and selective PMMA protection, aiming to achieve clean, crack-free, and selective transfer of graphene and RGO sheets onto $Si/SiO_2$ substrates. The novelty of this work lies not in the individual use of these steps, but in the engineered sequencing and precise control of the operational parameters, which collectively yield simultaneous improvements in surface cleanliness, layer continuity, and structural uniformity.Raman spectroscopy of the RGO sheets revealed a G band centered at 1572.1 $cm^{-1}$ and a 2D band at 2627 $cm^{-1}$, with low standard deviations, indicating high structural uniformity and a significant reduction of defects in the final film. SEM imaging and EDX elemental mapping further confirmed the removal of surface contaminants, elimination of processing residues, improved film continuity, and homogeneous elemental distribution across the surface.For the selective transfer stage, the use of a lithographic mask together with selective PMMA protection enabled accurate placement of patterned graphene exclusively onto the target regions, while the non-target areas remained intact on the original substrate. This capability provides an effective route for fabricating van der Waals devices, hybrid structures, graphene-based sensors, and flexible electronic components. Overall, the proposed approach enables clean, low-defect, and highly reproducible transfer of graphene/RGO sheets, offering a practical pathway toward large-scale fabrication and seamless integration of graphene into device architectures such as field-effect transistors, bilayer pseudospin structures, and other micro/nano-electronic systems.

DOI: https://doi.org/10.22075/jme.2024.31282.2495

© 2025 Published by Semnan University Press.
This is an open access article under the CC-BY 4.0 license.( https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/)

*** Corresponding author. Saeid Masoumi**
**E-mail address:**Saeid.masoumi@iau.ac.ir

**How to cite this article**:

UNCORRECTED PROOF

مقاله پژوهشی

# انتقال تمیز، بدون ترک و انتخابی گرافن با استفاده از اکسید گرافن احیا شده و شیت گرافن با لایه‌های APTES روی بستر سیلیکونی

سعید معصومی

**اطلاعات مقاله**

دریافت مقاله:
بازنگری مقاله:
پذیرش مقاله:

**واژگان کلیدی:**
انتقال گرافن،
اکسید گرافن احیا شده،
فعال‌سازی سطح با APTES،
انتقال انتخابی با کمک PMMA،
طیف رامان،

**چکیده**

در این پژوهش، یک پروتکل انتقال چهار مرحله‌ای بهینه‌سازی‌شده شامل «تمیزکاری اصلاح‌شده RCA، فعال‌سازی کوتاه زمان با محلول پیرانا، عاملی‌سازی کنترل‌شده سطح با APTES و محافظت انتخابی PMMA ارائه می‌شود که هدف آن دستیابی به انتقال تمیز، بدون ترک و انتخابی شیت‌های گرافن و RGO بر روی زیرلایه‌های $Si/SiO_2$ است. نوآوری اصلی کار، نه در استفاده از هر یک از این مراحل به‌صورت مستقل، بلکه در طراحی توالی مهندسی‌شده و کنترل دقیق پارامترهای عملیاتی است که در مجموع منجر به بهبود هم‌زمان پاکی سطح، پیوستگی لایه و یکنواختی ساختاری می‌شود. نتایج طیف سنجی رامان برای شیت‌های RGO نشان داد که باند G با میانگین $cm^{-1}$ ۱۵۷۲.۱ و باند 2D با میانگین $cm^{-1}$ ۲۶۲۷ ثبت شده‌اند که همراه با انحراف معیار کم این مقادیر، نشان‌دهنده یکنواختی ساختاری و کاهش قابل‌توجه نقص‌ها در فیلم نهایی است. تحلیل‌های SEM و نقشه‌برداری EDX نیز کاهش آلودگی‌های سطحی، حذف بقایای فرآیندی، پیوستگی مناسب لایه و توزیع یکنواخت عناصر روی سطح را تأیید می‌کند. در بخش انتقال انتخابی، استفاده از ماسک لیتوگرافیک و محافظت انتخابی PMMA امکان انتقال دقیق الگوهای گرافن تنها به ناحیه هدف را فراهم کرد و سایر بخش‌ها بدون جابجایی روی بستر اولیه باقی ماندند. این قابلیت، یک مسیر مؤثر برای ساخت دستگاه‌های واندروالسی، ساختارهای هیبریدی، حسگرهای گرافنی و الکترونیک انعطاف‌پذیر ایجاد می‌کند. رویکرد پیشنهادی با فراهم‌سازی انتقال تمیز، کم‌نقص و تکرارپذیر شیت‌های گرافن/RGO، یک مسیر عملی برای تولید در مقیاس بزرگ و یکپارچه‌سازی گرافن در معماری دستگاه‌هایی نظیر ترانزیستورهای اثرمیدانی، ساختارهای شبه‌اسپینی دولایه و سایر سامانه‌های میکرو/نانو الکترونیکی فراهم می‌سازد.

DOI: https://doi.org/10.22075/jme.2024.31282.2495

© 2024 Published by Semnan University Press.
This is an open access article under the CC-BY 4.0 license.( https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/)

UNCORRECTED PROOF

## ۱-مقدمه[۱]

گرافن ساختار دو بعدی با هیبرید Sp2 از یک لایه منفرد شبکه لانه زنبوری کربنی می‌باشد. گرافن به علت داشتن خواص فوق العاده در رسانندگی الکتریکی و حرارتی، تحرک پذیری بالای حامل های بار، رسانندگی نوری و خواص مکانیکی برجسته، به یک ماده منحصربه‌فرد تبدیل شده است[۱]. به علت شفافیت نوری و رسانایی بالا، گرافن

* پست الکترونیک نویسنده مسئول: Saeid.masoumi@iau.ac.ir
[۱] گروه برق، واحد شبستر، دانشگاه آزاد اسلامی، شبستر، ایران

**استناد به این مقاله:** نحوه استناد فارسی در اینجا درج گردد.

می‌تواند به عنوان یک الکترود رسانای شفاف مورد استفاده قرار گیرد[۲]. در مقایسه با الکترودهای رسانای شفاف سنتی مانند اکسید قلع ایندیوم، لایه‌های گرافن دارای استحکام مکانیکی بالا، انعطاف‌پذیری و پایداری شیمیایی هستند[۳]. پژوهش‌های اخیر نشان می‌دهند که کنترل دقیق سطح زیرلایه و افزایش آب‌دوستی می‌تواند به کاهش ترک‌ها و بهبود یکنواختی فیلم گرافن منجر شود، امری که برای کاربردهای الکترونیکی و فوتونیکی نسل جدید اهمیت ویژه دارد. در سال‌های اخیر، توسعه روش‌های انتقال تمیز و بدون ترک گرافن و اکسید گرافن احیا شده (RGO) مورد توجه ویژه قرار گرفته است، زیرا کیفیت انتقال مستقیماً بر خواص الکترونیکی و فوتونیکی نانوساختارها تأثیرگذار است[۴]. کنترل دقیق سطح و مهندسی نانو مقیاس پوشش‌های گرافنی، یکنواختی ضخامت و خواص ساختاری نمونه‌ها را بهبود می‌بخشد و نقش حیاتی در عملکرد دستگاه‌های میکرو/نانو، از جمله حسگرها و ترانزیستورهای اثر میدان، ایفا می‌کند[۵]. مطالعات اخیر نشان می‌دهند که بهره‌گیری از روش‌های نوین آماده‌سازی و انتقال، مانند انتقال خشک با کمک نور UV و پروتکل‌های شیمیایی پیشرفته، علاوه بر کاهش باقی‌مانده‌های سطحی، تکرارپذیری بالا و یکنواختی ضخامت نمونه‌ها را تضمین می‌کند[۶]. همچنین، این روش‌ها امکان کنترل دقیق‌تر بر الگوگذاری و انتقال انتخابی شیت‌های گرافنی را فراهم می‌سازند، که برای کاربردهای الکترونیکی و فوتونیکی نسل جدید اهمیت ویژه دارد[۷]. کیفیت فیلم‌های گرافنی مستقیماً بر عملکرد حسگرها، FETهای کانال نازک و سایر نانوساختارهای الکترونیکی تأثیر می‌گذارد. برای دستیابی به عملکرد مطلوب گرافن و تولید انبوه قطعات الکترونیکی با کارایی بالا، لازم است گرافن با مساحت زیاد و کیفیت بالا روی زیرلایه‌های سازگار با دستگاه‌های الکتریکی و ساخت مدارهای مجتمع تهیه شود[۸]. مهندسی نانو مقیاس و کنترل دقیق مراحل انتقال امکان ساخت دستگاه‌هایی با قابلیت اطمینان و عملکرد پایدارتر را فراهم می‌کند. برای مثال، در فناوری Si مبتنی بر ویفرهای ۳۰۰ میلی‌متری، روش‌هایی مورد بررسی قرار می‌گیرند که بتوانند به طور تکرارپذیر، فیلم‌های گرافن با کیفیت بالا و مساحت ~۰.۱ متر مربع تولید کنند. از زمان معرفی گرافن با روش لایه‌برداری مکانیکی، روش‌های متعددی برای تولید آن توسعه یافته است. تنها رشد اپیتاکسیال روی سطح SiC و رسوب بخار شیمیایی (CVD) می‌توانند با روش‌های استاندارد لیتوگرافی در مقیاس ویفر ترکیب شوند و با فرآیندهای ساخت مدار مجتمع فعلی سازگار باشند. گرافن با مساحت زیاد، مانند روی نیکل و مس، با روش CVD و لایه‌های گرافن پیوسته تا قطر ۳۰ اینچ گزارش شده است[۹]. با توجه به هزینه کم و راندمان بالا، روش CVD امیدوارکننده‌ترین رویکرد برای تولید گرافن در مقیاس بزرگ است. با بهینه‌سازی شرایط رشد، کیفیت گرافن رشد یافته با CVD می‌تواند با گرافن رشد یافته به صورت اپیتاکسی روی SiC مطابقت داشته باشد. گام اصلی در ساخت قطعات از گرافن رشد یافته با CVD، انتقال گرافن از زیرلایه فلزی به یک زیرلایه سازگار با دستگاه (معمولاً یک عایق) است. استفاده از روش‌های بهینه انتقال، مانند فعال‌سازی سطحی و مراحل پخت کنترل‌شده، نشان داده است که می‌توان ترک‌ها و باقی‌مانده‌های آلی را به حداقل رساند و کیفیت فیلم را افزایش داد. مطالعات اخیر (۲۰۲۴–۲۰۲۵) نشان می‌دهند که با بهینه‌سازی توالی مراحل و شرایط عملیاتی، می‌توان یکنواختی لایه گرافن و پایداری اتصال آن را به‌طور قابل توجهی افزایش داد، ضمن اینکه فرآیندهای انتقال قابل تکرار و کم‌هزینه باقی می‌مانند[۱۰]. همچنین، ایجاد نقص‌های کنترل‌شده در گرافن می‌تواند خواص سطحی آن را بهبود بخشد و گرافن را به یک سطح پایدار و یکنواخت برای کاربردهای حساس مانند تصویربرداری با رزولوشن بالا تبدیل کند[۱۱]. این نتایج اهمیت طراحی دقیق پروتکل انتقال و کنترل پارامترهای کلیدی هر مرحله را برای کاربردهای دستگاه‌های الکترونیکی و فوتونیکی نشان می‌دهد. برای عملکرد، بازده و یکنواختی دستگاه، بسیار مهم است که کیفیت گرافن در طول فرآیند انتقال کاهش نیابد[۱۱]. در یک فرآیند انتقال ایده‌آل، فیلم گرافن باید تمیز و پیوسته (بدون چین‌خوردگی، ترک یا سوراخ) باقی بماند. یکی از روش‌های رایج برای انتقال گرافن از زیرلایه فلزات واسطه، روش با واسطه PMMA است. انتقال گرافن به نمونه و الگودهی آن از دو روش، سوسپانسیون اکسید گرافن احیا شده و شیت‌های گرافن رشد یافته روی فویل مسی انجام می‌شود. برای انتقال شیت‌های گرافن، طرحی با ابعاد و گپ‌های مختلف روی زیرلایه سیلیکونی نوع p با ضخامت $SiO_2$ 300نانومتر و الکترودها با $W = 60^{\mu m}\ L = 6^{\mu m}$ و $W = 30^{\mu m}\ L = 6^{\mu m}$ و اندازه پدها $1200 \times$

UNCORRECTED PROOF

$1200^{\mu m^2}$ استفاده شده است (شکل ۱). شکل و نحوه چینش الکترودها (سورس و درین) با توجه به فرآیند ساخت (به عنوان مثال اعمال سوسپانسیون گرافن به نمونه و ...) اهمیت ویژه ای دارد. با توجه به ابعاد کلی $1.2 \times 1.2^{cm^2}$، ناحیه فعال در محدوده $0.8 \times 0.8^{cm^2}$ طراحی گردیده، که دلیل آن، یکنواختی بهتر شیت‌های گرافن هنگام اعمال سوسپانسیون است. در این پژوهش، ما یک پروتکل انتقال چهارمرحله‌ای اصلاح‌شده شامل «تمیزکاری اصلاح‌شده RCA ، فعال‌سازی کوتاه‌زمان با محلول پیرانا، عاملی‌سازی کنترل‌شده سطح با APTES و محافظت انتخابی PMMA ارائه می‌کنیم. که هدف آن دستیابی به انتقال تمیز، بدون ترک و انتخابی شیت‌های گرافن / RGO بر روی زیرلایه‌های $SiO_2$ است.

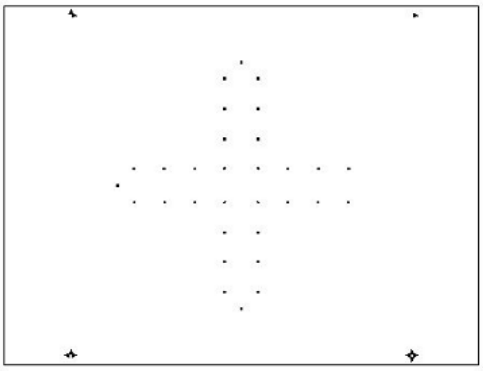


شکل ۱- طرح و ماسک الکترودها با $W = 60^{\mu m}$ $L = 6^{\mu m}$ در بخش بالایی و $W = 30^{\mu m}$ $L = 6^{\mu m}$در بخش پایینی.

نوآوری این رویکرد نه در استفاده از روش‌های شناخته‌شده، بلکه در طراحی توالی بهینه، کنترل پارامترهای هر مرحله، و سازگار کردن فرآیند با رفتار الکترونیکی RGO است؛ به‌گونه‌ای که یکنواختی سطح، تعداد لایه کم و کاهش آلودگی‌های آلی در نمونه نهایی به طور قابل توجهی بهبود یافته است. این مسیر فرآیندی مهندسی شده تا کنون در ادبیات گزارش نشده و زمینه‌ساز ساخت دستگاه‌های میکروالکترونیکی با کیفیت بالاتر و قابلیت اطمینان بیشتر است. در ادامه ابتدا ماسک الگودهی گرافن طراحی و با آماده سازی سوسپانسیون اکسید گرافن احیا شده و شیتهای گرافن رشد یافته شده بر روی فویل مسی، فرآیند انتقال شیت گرافن در کانال های مورد نظر انجام می شود. در نهایت با استفاده از تصاویر میکروسکوپ نوری، SEM و طیف رامان نتایج انتقال شیت گرافن تک لایه بررسی می گردد. این پژوهش با تمرکز بر ارائه فرایندی برای انتقال دقیق و کم نقص گرافن به زیرلایه‌های $SiO_2$، ضمن ارزیابی کیفی با تصاویر SEM و طیف رامان، اهمیت کنترل کیفیت سطح و مهندسی دقیق مراحل ساخت را در بستر گسترده فناوری‌های مبتنی بر نانوساختار نشان می‌دهد.

## ۲- ماسک الگودهی گرافن

ماسک الگودهی گرافن به صورت شکل ۲ طراحی شده است و برای الگودهی گرافن پس از تشکیل شیت‌ها و انتقال آن به نمونه به‌کار می‌رود، به گونه‌ای که تنها گرافن‌هایی که در مساحت‌های بین الکترودها $W = 30^{\mu m}$ $L = 56^{\mu m}$ و $W = 60^{\mu m}$ $L = 56^{\mu m}$ تشکیل شده‌اند، در فرآیند اشینگ محافظت شوند. انتخاب ابعاد بزرگ‌تر از گپ‌های بین الکترودها در ماسک، به منظور قرار دادن بخش‌هایی از شیت‌های گرافن روی زیرلایه اصلی برای بهبود اتصال با لایه‌های رویی کروم/طلا صورت گرفته است. علاوه بر این، مارکرهایی در چهار گوشه ماسک تعبیه شده‌اند تا امکان تنظیم دقیق ماسک و تراز کردن آن با مارکرهای ایجاد شده در مرحله قبل فراهم شود، به طوری که مساحت‌های مورد نظر در طول فرآیند به دقت پوشانده و محافظت شوند.



شکل ۲- ماسک الگودهی گرافن.

## ۳- سوسپانسیون اکسید گرافن احیا شده

برای آماده‌سازی سوسپانسیون گرافن، ۱۰۰ میکروگرم پودر اکسید گرافن احیا شده در ۱ میلی‌لیتر حلال (N-Methylpyrrolidinone) NMP حل می‌شود. محلول به مدت ۲ ساعت تحت سونیکیشن قرار می‌گیرد. سپس سوسپانسیون با سرعت ۸۰۰۰ دور بر دقیقه به مدت ۲۰ دقیقه سانترفیوژ می‌شود تا شیت‌های بزرگ‌تر در ته تیوپ جمع شوند. در

UNCORRECTED PROOF

این مرحله، حجم بالایی سوسپانسیون (شیت‌های کوچک) برای مرحله بعدی نگه داشته شده و حجم پایینی (شیت‌های بزرگ) دور ریخته می‌شود. در مرحله بعد، سوسپانسیون با سرعت ۱۵۰۰ دور بر دقیقه به مدت ۲۰ دقیقه سانترفیوژ می‌شود. در این مرحله، برخلاف مرحله قبل، محلول بالایی دور ریخته شده و رسوب جمع‌شده در ته تیوپ نگه داشته می‌شود و به حجم ۱.۵ میلی‌لیتر رسانده می‌شود. به این ترتیب، سوسپانسیون RGO با غلظت مورد نظر مطابق شکل ۳ آماده می‌گردد. پس از آن، سطح نمونه که دارای مارکرهایی با ضخامت ۳۰ نانومتر از جنس کروم است، برای اعمال سوسپانسیون آماده‌سازی می‌شود. منظور از آماده‌سازی سطح، فعال‌سازی سطح اکسید جهت اعمال سوسپانسیون و تشکیل شیت‌های تک‌لایه گرافن می‌باشد.




شکل ۳- سوسپانسیون اکسید گرافن احیا شده با غلظت 100 µg/ml در حلال NMP.

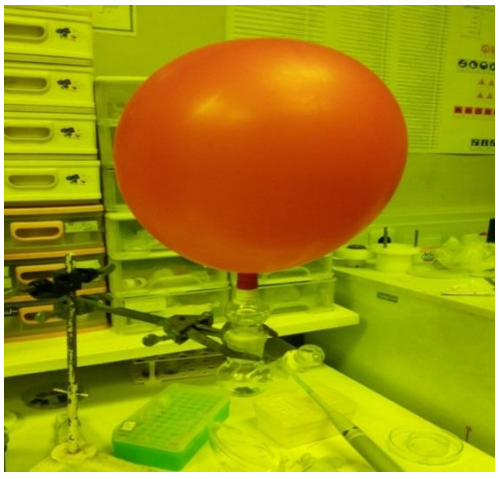
## ۴- آماده سازی سطح نمونه

برای آماده‌سازی نمونه دارای مارکر (بخشی از نمونه دارای لایه‌ای از کروم و بخشی فقط اکسید) جهت اعمال سوسپانسیون برای تشکیل شیت گرافن، سطح نمونه باید آماده‌سازی شود[۱۲] نوآوری این پروتکل در توالی بهینه و کنترل‌شده مراحل آماده‌سازی است که کیفیت سطح و یکنواختی شیت گرافن را بهبود می‌بخشد. به همین منظور از محلول گیرانا و APTES جهت جهت فعال سازی سطح نمونه[۱۳] برای ایجاد شیت های یکنواخت و با تعداد لایه های کم استفاده می گردد. محلول پیرانا می‌تواند چگالی سطحی گروه‌های هیدروکسیل ($OH^-$)روی سطح سیلیکون را افزایش دهد. گروه های $OH^-$ تجزیه و متعاقب آن، پیوندهای سیلوکسان (Si-O-Si) با مولکول های سیلان آلی تشکیل دهد. آماده سازی سطوح سیلیکون برای silanization شامل حذف آلودگی سطحی است.. این را می توان با استفاده از محلول پیرانا به دست آورد. محلول پیرانا به طور خاص دارای رفتار خشن، که به طور بالقوه می تواند به یکپارچگی سطح سیلیکون آسیب برساند. بر طبق بررسیهای صورت گرفته، سطح سیلیکون به طور قابل توجهی پس از ۳۰ چرخه با محلول پیرانا یا پلاسما آسیب می بیند.

پیرانا محلولی است شامل اسید سولفوریک و هیدروژن پروکساید با نسبتهای ۱:۲ یا ۱:۳ یا نسبتهایی نزدیک به این نسبتها می باشد. همیشه نسبت اسید سولفوریک بیشتر از هیدروژن پروکساید است. این محلول معمولاً برای تمیز کردن صفحات سیلسیم در آزمایشگاه به کار می‌رود. در هنگام آماده کردن محلول حتماً باید هیدروژن پروکساید را به اسید اضافه کرد و نه برعکس. در هنگام تهیه محلول، همیشه هیدروژن پراکساید به اسید اضافه شود، نه برعکس، زیرا این کار باعث حرارت شدید و خطرناک می‌شود. همچنین غلظت هیدروژن پراکساید نباید بیش از ۳۰٪ باشد، زیرا غلظت‌های بالاتر امکان انفجار را افزایش می‌دهند. پیرانا ذرات ارگانیک را از سطح پاک می‌کند و سطح تمیز شده را فوق العاده آب دوست (Hydrophilic) می‌کند[۱۲]. بنابراین محلول پرانا ($H_2So_4$:$H_2O_2$) با نسبت ۳:۱ مخلوط می گردد. نمونه را در محلول فوق به مدت ۸ دقیقه قرار داده تا سطح اکسید فعال شود. سپس نمونه را با آب مقطر شست و شو داده و با باد خشک می گردد. مدت زمان کوتاه‌تر پیرانا (۸ دقیقه) در این پروتکل به منظور جلوگیری از آسیب به سطح و حفظ یکنواختی سطح اعمال شده است. در گام بعدی محلول APTES 2% با حجم نهایی ۱ میلی لیتر (۹۸۰ میکرولیتر اتانول با ۲۰ میکرولیتر APTES) آماده می گردد. APTES یک آمینوسیلان می باشد که اغلب در فرآیند silanizationسازی، جهت عاملدار کردن سطوح با مولکولهای گروه سیلان (alkoxysilane) مورد استفاده قرار می گیرد. با توجه به اینکه محلول فوق بسیار حساس به رطوبت و گازهای محیط می باشد، بعد از مدتی رسوب تشکیل می دهد و خاصیت خود را از دست می دهد. به همین منظور از ستاپ شکل ۴ که با گاز نیتروژن خالص، تمیز می گردد استفاده می شود. نمونه در داخل بشری با محلول APTES 2% قرار داده شده و سپس ورودی گاز

UNCORRECTED PROOF

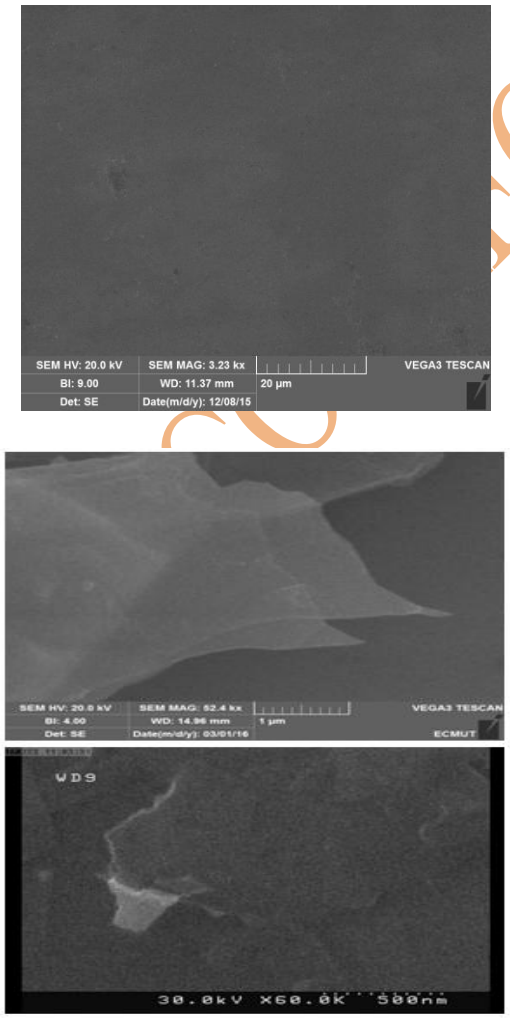
نیتروژن اعمال شده و نمونه به مدت ۲ ساعت در آن نگه داشته می شود تا لایه ای Self assembel monolayer SAM از محلول فوق بر روی اکسید ایجاد گردد[۱۴]. عملیات SAM تحت جریان نیتروژن و دمای کنترل‌شده انجام می‌شود و زمان اتصال کاهش یافته است تا یکنواختی لایه افزایش یابد و رسوب کاهش یابد. سپس یک قطره اتانول روی نمونه ریخته و با باد بطور آرامی خشک می گردد. در نهایت نمونه را در کوره آون با دمای ۱۲۰ درجه سانتیگراد به مدت ۲۰ دقیقه قرار داده تا سطح کاملا برای اعمال سوسپانسیون به آن آماده گردد. در حالت کلی، محلول پیرانا گروه $OH^-$ روی سطح اکسید ایجاد می‌کند و APTES دارای دو سر است (گروه سیلان و $(NH_2)$. گروه سیلان APTES با عامل ایجاد شده توسط پیرانا واکنش داده و سر $NH_2$ با سوسپانسیون RGO واکنش می‌دهد[۱۵]، که از کلوخه شدن سوسپانسیون جلوگیری کرده و تشکیل شیت گرافن روی اکسید را تسهیل می‌کند. این توالی بهینه باعث می‌شود سوسپانسیون RGO یکنواخت روی سطح قرار گیرد و شیت گرافن با تعداد لایه کم تشکیل شود. نوآوری واقعی در ترکیب هدفمند، توالی اصلاح‌شده و کنترل شرایط هر مرحله است، نه در هر روش منفرد.



شکل ۴- ستاپ آماده برای اعمال محلول ۲٪ APTES بر نمونه $Si/SiO_2$ پس از آماده‌سازی سطح با محلول پیرانا.

## ۵- اعمال سوسپانسیون به نمونه

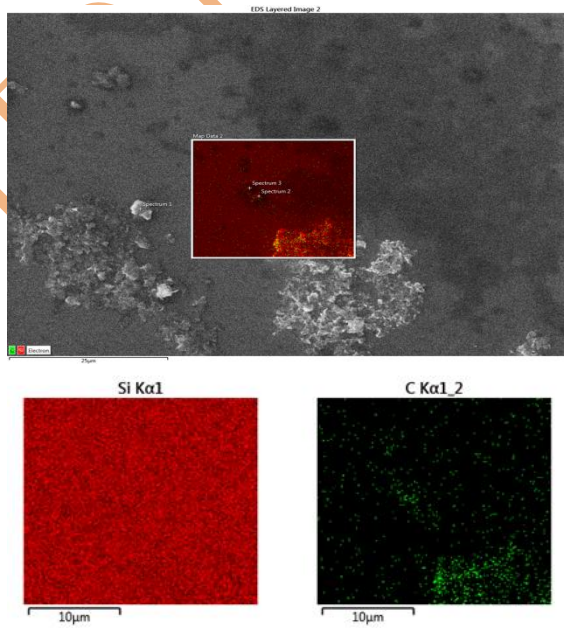
از سوسپانسیون آماده‌شده مقدار ۱۰ تا ۱۵ لاندا روی نمونه ریخته شده و با توجه به این‌که سطح به‌طور کامل فعال‌سازی شده است، سوسپانسیون به‌صورت یکنواخت روی کل سطح پخش می‌شود. سپس نمونه با سرعت ۵۰۰ دور بر دقیقه به‌مدت ۳۰ ثانیه توسط دستگاه اسپین‌کوتر چرخانده می‌شود. در پایان، نمونه در دمای اتاق قرار داده می‌شود تا خشک گردد. بدین ترتیب شیت‌های گرافن بر روی سطح تشکیل می‌شوند. تصاویر SEM در شکل ۵ نشان می‌دهند که شیت‌های RGO روی سطح فعال‌شده با APTES به‌صورت یکنواخت رسوب کرده‌اند و هیچ‌گونه تجمع یا کلوخه‌شدگی قابل‌توجهی مشاهده نمی‌شود؛ امری که نشان‌دهنده پراکندگی مناسب صفحات و کیفیت مطلوب شیت‌ها است. این نتایج، همراه با کنترل دقیق غلظت سوسپانسیون و پارامترهای زمان و سرعت سانتریفیوژ، تأیید می‌کند که پوشش APTES به‌طور مؤثر از تجمع صفحات جلوگیری کرده و موجب حفظ کیفیت ساختاری شیت‌ها می‌شود.




COLLECTED PROOF

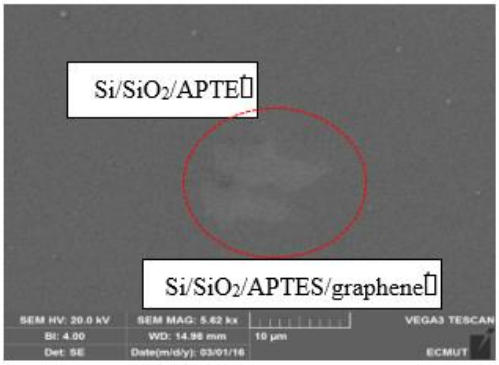
شکل ۵- تصاویر SEM از شیت های گرافن تشکیل شده بر روی بستر فعال سازی شده $Si/Sio_2$.

برای تعیین تعداد لایه‌های شیت‌های گرافن تشکیل‌شده و ارزیابی نحوه قرارگیری و یکنواختی آن‌ها، از تصویربرداری FE-SEM و طیف‌سنجی رامان با لیزر ۵۱۴ nm استفاده شد. همچنین نقشه‌برداری EDX نمونه حاوی شیت‌های گرافن در شکل ۶ ارائه شده است. همان‌طور که در این شکل مشاهده می‌شود، توزیع عناصر نشان می‌دهد که نمونه عمدتاً شامل سیلیکن (Si) از بستر و کربن (C) مربوط به شیت‌های گرافن است. این نتایج حضور و پراکندگی یکنواخت شیت‌های گرافن بر سطح بستر را تأیید کرده و با یافته‌های تصاویر FE-SEM سازگار است.




شکل ۶- تصاویر نقشه‌های EDX

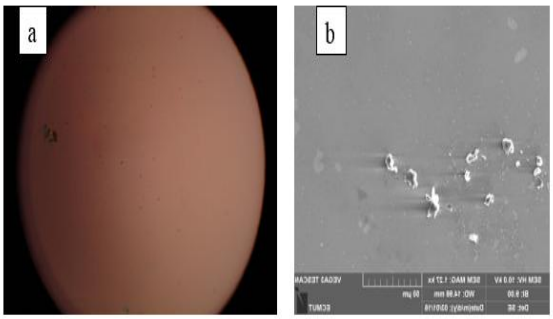
تصویر SEM مربوط به نمونه در شکل ۷ ارائه شده است. این تصویر جهت بررسی مورفولوژی، نحوه استقرار شیت‌های گرافن و یکنواختی پوشش سطحی مورد استفاده قرار گرفته است. همان‌گونه که مشاهده می‌شود، لایه گرافن به‌طور کامل سطح آماده‌سازی‌شده با APTES را پوشش داده و هیچ ناحیه فاقد پوشش یا تجمعات غیرطبیعی مشاهده نمی‌شود که این موضوع نشان‌دهنده کیفیت مناسب فرآیند انتقال و چسبندگی مطلوب گرافن به سطح سیلیکونی فعال‌شده است.




شکل ۷- تصویر SEM از نمونه دارای ساختار $Si/SiO_2$/APTES/Graphene.

برای ارزیابی کیفیت گرافن پس از تشکیل شیت‌ها، آنالیزهای میکروسکوپی و طیفی مورد بررسی قرار گرفتند. اگرچه لایه‌های گرافن رسوب داده شده با این روش، در زیر میکروسکوپ نوری با بزرگ‌نمایی متوسط، ظاهری نسبتاً تمیز و یکنواخت نشان می‌دهند، اما در بزرگ‌نمایی‌های بالاتر وجود مقدار قابل توجهی از ذرات پسماند در مقیاس میکرومتری مشهود است (شکل ۸). حتی زمانی که نمونه‌ها در تصاویر نوری کاملاً تمیز به نظر می‌رسند، تصویربرداری SEM دانسیته بالاتری از این ذرات باقیمانده را آشکار می‌کند، همان‌گونه که در شکل ۸(b) مشاهده می‌شود. این آلودگی‌های سطحی که احتمالاً ناشی از مراحل آماده‌سازی و فرآیند انتقال هستند، برای ساخت مدارها و ادوات الکترونیکی با مقیاس بزرگ قابل قبول نیستند و می‌توانند عملکرد دستگاه را به‌طور جدی تحت تأثیر قرار دهند. در این مرحله، پس از اعمال سوسپانسیون و تشکیل شیت‌های گرافن بر روی سطح، لازم است فرآیند الگودهی و پاک‌سازی انتخابی به‌منظور جداسازی نواحی هدف و حذف بخش‌های ناخواسته انجام شود. برای این منظور، از ماسک الگودهی گرافن استفاده می‌گردد که با تعریف الگوی موردنظر، امکان جداسازی دقیق شیت‌های گرافن و حذف نواحی غیرضروری را فراهم می‌کند. این مرحله نقش مهمی در افزایش تمیزی سطح، رفع بقایای فرآیندی و آماده‌سازی نمونه برای مراحل بعدی ساخت دستگاه دارد.

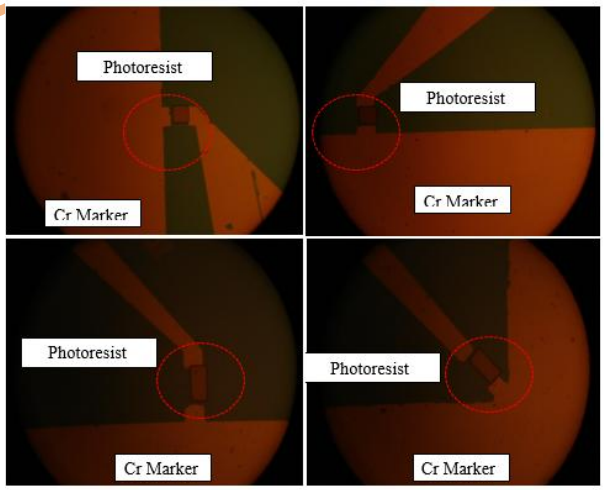
UNCORRECTED PROOF




شکل ۸- (a) تصویر نوری با بزرگنمایی بالا از RGO روی بستر $SiO_2$ ؛ (b) تصویر SEM نشان‌دهنده ذرات باقیمانده روی سطح.

## ۶- الگودهی گرافن

اعمال ماسک فوق بر روی نمونه $Si/SiO_2/Cr$ Markers/APTES/Graphene باعث می‌شود که گرافن در نواحی با ابعاد $W = 30^{\mu m}$ $L = 56^{\mu m}$ و $W = 60^{\mu m}$ $L = 56^{\mu m}$ بین الکترودها توسط فتورزیست پوشانده شده و در مرحله اچ کردن محافظت گردد. تصاویر میکروسکوپ نوری مربوطه در شکل ۹ نشان داده شده است.



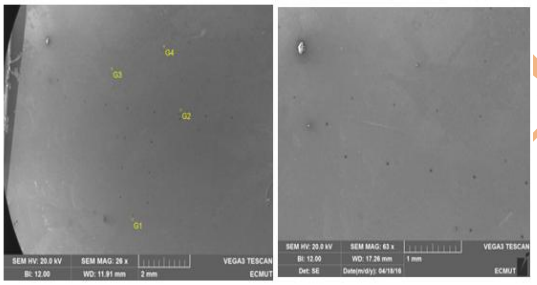

شکل ۹- تصاویر میکروسکوپ نوری از اعمال ماسک الگودهی گرافن.

در این مرحله، برای حذف گرافن اضافی و همچنین پاک‌سازی سطح نمونه، از پلاسما DRIE اکسیژن استفاده می‌شود[۱۶].

برای الگودهی گرافن، نمونه در دستگاه DRIE با توان ۲۵ W، جریان اکسیژن ۲۵sccm ، $SF_6 = 0$ و فشار ۳۵۰ mTorr به مدت ۱۵ ثانیه قرار داده می‌شود (شکل ۱۰). تصاویر SEM پس از فرآیند پلاسما $O_2$ بر روی نمونه $Si/SiO_2/Cr$ Markers/APTES/Graphene در شکل ۱۱ نشان داده شده‌اند.



شکل ۱۰- قرار دادن نمونه در دستگاه DRIE.



شکل ۱۱- مارکرهای ایجاد شده برای محافظت شیت گرافن در برابر پلاسما $O_2$ ، با ابعاد $W = 30\ \mu m, L = 56\ \mu m$ و $W = 60\ \mu m, L = 56\ \mu m$.

سپس فتورزیست با استون پاک شده و شیت‌های گرافن تنها در نواحی مورد نظر محافظت می‌شوند. قابل ذکر است که اندازه شیت‌های باقی‌مانده گرافن به حدی بزرگ است که بحث برشی از گرافن‌ها GNR و تبدیل آن‌ها به فلز منتفی می‌باشد. ماسک الکترودها برای نشانی لایه‌های سورس و درین، شامل ۳۰ نانومتر کروم و ۱۱۰ نانومتر طلا، با روش E-beam اعمال می‌شود. طبق طراحی انجام شده، برای ایجاد اتصال مناسب بین الکترودهای سورس و درین با گرافن کانال، که دارای ابعاد $W = 30\ \mu m, L = 56\ \mu m$

UNCORRECTED PROOF

و W = 60 µm, L = 56 µm هستند، مساحت‌های بین الکترودهای سورس و درین در ماسک الکترود برابر W = 30 µm, L = 6 µm و W = 60 µm, L = 6 µm می‌باشد. این اختلاف باعث می‌شود بخشی از لایه نشانی شده الکترودها بر روی شیت گرافن قرار گیرد و اتصال مناسبی بین الکترودها و کانال گرافن ایجاد شود. طراحی الگوهای فوتولیتوگرافی و فاصله‌گذاری الکترودها بر اساس تحلیل یکنواختی میدان الکتریکی در ناحیه تماس انجام شد تا از عدم تمرکز جریان و ایجاد اتصال یکنواخت بین گرافن و الکترودها اطمینان حاصل شود. تصاویر SEM نشان می‌دهند که شیت گرافن سطح بین الکترودها را به‌طور یکنواخت پوشش می‌دهد و هیچ ناحیه خالی یا ترک قابل مشاهده‌ای وجود ندارد. تصویر SEM شکل ۱۲ توزیع یکنواخت شیت RGO بین الکترودها و تطابق کامل آن با ابعاد و فاصله‌های طراحی‌شده را نشان می‌دهد.




شکل ۱۲- توزیع یکنواخت شیت RGO بین الکترودها در SEM.

## ۷- شیت گرافن

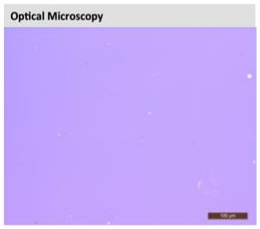
شیت گرافن روی فویل مس، با مشخصات ذکر شده، از شرکت Graphenea (اسپانیا) خریداری شده است (شکل ۱۳).

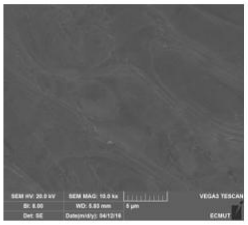


| | |
|---|---|
| Growth Method | CVD synthesis |
| Transfer Method | Clean transfer method |
| Quality Control | Optical Microscopy & Raman checked |
| Appearance (Color) | Transparent |
| Transparency | >97% |
| Appearance (Form) | Film |
| Coverage | >95% |
| Number of graphene layers | 1 |
| Thickness (theoretical) | 0.345 nm |
| Field Effect Mobility on $SiO_2$/Si | 2,000 $cm^2/V·s$ |
| Hall Effect Mobility on $SiO_2$/Si | 4,000 $cm^2/V·s$ |
| Sheet Resistance on $SiO_2$/Si (Van der Pauw) | 350±50 Ohms/sq. (1cm x 1cm) |
| Sheet Resistance PET (Van der Pauw) | 580±50 Ohms/sq. (1cm x 1cm) |
| Sheet Resistance Quartz (Van der Pauw) | 370±50 Ohms/sq. (1cm x 1cm) |
| Grain size | Up to 10 µm |

شکل ۱۳ – شیت گرافن روی فویل مس با ابعاد ۱ سانتی‌متر مربع.

تصاویر میکروسکوپ نوری و SEM از نمونه مذکور در شکل ۱۴ نشان داده شده‌اند.



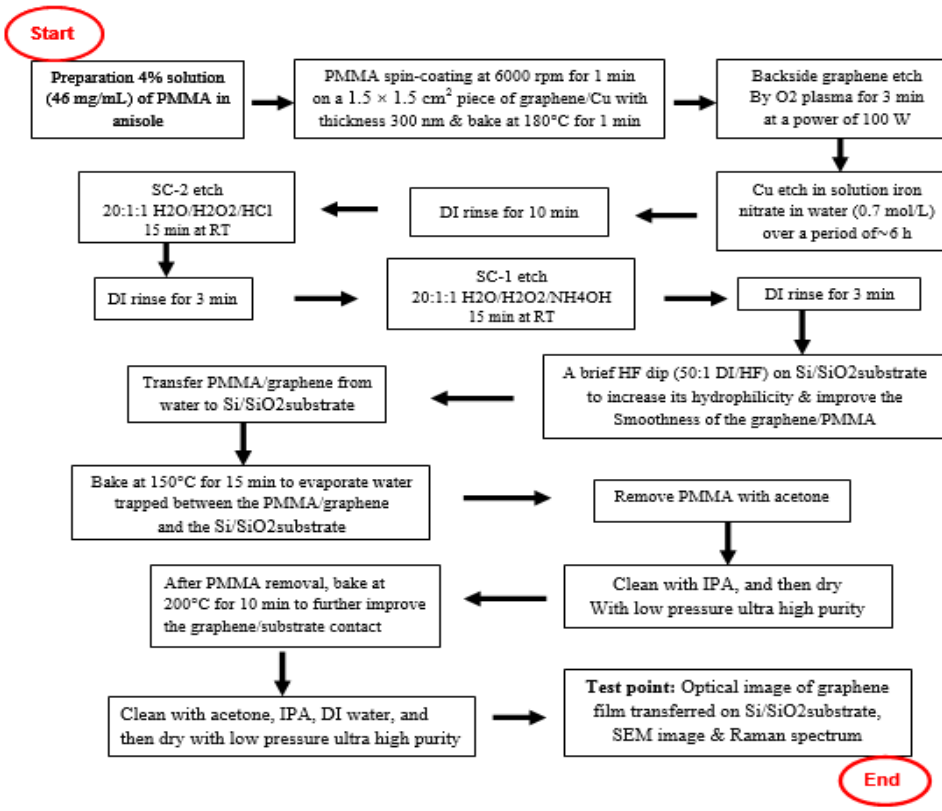




شکل ۱۴ – تصاویر میکروسکوپ نوری و SEM شیت گرافن روی فویل مس.

## ۸- انتقال شیت گرافن تک لایه بر روی بستر $Si/SiO_2$

متد انتقال «Modified RCA clean» برای انتقال شیت گرافن روی بستر، همان‌طور که در شکل ۱۵ نشان داده شده، استفاده شده است.

UNCORRECTED PROOF




شکل ۱۵– نمای شماتیک روش انتقال Modified RCA clean برای شیت گرافن.

این روش، کنترل بسیار بهتری بر آلودگی و ترک‌خوردگی فراهم می‌کند و کیفیت گرافن انتقال‌یافته را کاهش نمی‌دهد. برای حفظ بازده و عملکرد دستگاه، ضروری است که کیفیت گرافن در طول فرآیند انتقال حفظ شود. بنابراین، در یک فرآیند انتقال ایده‌آل، لایه گرافن باید تمیز و پیوسته باقی بماند و از ایجاد تاخوردگی، ترک یا سوراخ جلوگیری شود. در این مطالعه، هدف ارائه مقایسه کمی روش‌های انتقال نبوده و ارزیابی کیفیت انتقال بر اساس تصاویر SEM و طیف رامان به‌صورت کیفی انجام شده است. یکی از متدهای متعارف برای انتقال گرافن از محیط رشد فلز واسطه، استفاده از پلی‌متیل‌متاکریلات (PMMA) است. در این روش، یک لایه PMMA بر روی گرافن پوشانده می‌شود و فلز زیر آن، معمولاً مس، به طور کامل توسط اچینگ حذف می‌گردد. سپس پشته گرافن / PMMA به محیط جدیدی منتقل شده و با استفاده از حلال‌ها، لایه PMMAجدا شده و فرآیند انتقال گرافن بر روی بستر مورد نظر تکمیل می‌شود. انتقال شیت گرافن بر روی بستر $Si/SiO_2$با استفاده از مارکرهای ایجاد شده در مراحل پیشین به صورت زیر انجام می‌شود.

۱- آماده سازی محلول PMMA 4%.

۴۶ میلی گرم PMMA در ۱ میلی لیتر آنیزول (متوکسی بنزن) حل شده و پس از مدت کوتاهی کاملا حل می گردد. (46 mg/mL)

۲- فرآیند اسپین‌کوتینگ PMMA:

محلول PMMA با سرعت ۴۵۰۰ دور بر دقیقه به مدت ۱ دقیقه بر روی نمونه Cu/graphene با ابعاد $1 \times 1^{Cm^2}$ اسپین می شود تا لایه ای از محلول PMMA با ضخامت تقریبی ۱ میکرومتر بر روی گرافن تشکیل گردد.

پوشش PMMA در سرعت‌های بالاتر برای افزایش چسبندگی به سطح گرافن ضروری است. بنابراین، یک لایه اضافی PMMA با سرعت ۱۰۰۰ دور بر دقیقه اعمال می‌شود تا ضخامت لایه‌ی گرافن / PMMA پس از حذف فلز زیرین (مس) افزایش یابد و کنترل آن در مراحل بعدی انتقال آسان‌تر گردد. سپس یک چرخش دیگر از PMMA با همان سرعت (۱۰۰۰ دور بر دقیقه) و به مدت ۶۰ ثانیه

UNCORRECTED PROOF

انجام می‌شود، که ساختار نهایی Cu/graphene/PMMA را تشکیل می‌دهد.

۳- پخت اولیه نمونه در دمای ۱۸۰ °C به مدت ۱ دقیقه انجام می‌شود تا چسبندگی محلول PMMA به سطح نمونه افزایش یابد.

٤- در طول روند سنتز گرافن روی فویل مس، فیلم گرافن روی هر دو طرف فویل تشکیل می‌شود. برای حذف گرافن از سمت پشتی فویلCu ، از پلاسما اکسیژن ($O_2$) استفاده می‌شود ( توان $25^{W}$، جریان ۲۵ Sccm، $SF_6 = 0$ و فشار $350^{mtorr}$ ) به مدت ۱۵ ثانیه. تحت این شرایط، گرافن به مدت ۳۰ ثانیه در پلاسما قرار می‌گیرد تا اچینگ کامل انجام شود.

۵- آماده‌سازی محلول اچینگ مس:

۱.۶۲ گرم $FeCl_3$ در ۱۰ میلی‌لیتر آب (غلظت ۱.۶۲ g/10 mL)حل می‌شود تا محلول اچینگ مس تهیه گردد.

پس از آماده‌سازی محلول اچینگ مس، نمونه Cu/graphene/PMMA به صورت نشان‌داده شده در شکل ۱۶ (الف) در محلول غوطه‌ور می‌شود. پس از تقریباً ۱.۵ ساعت، فلز مس اچ شده و تنها لایه‌ای از PMMA که در زیر آن شیت گرافن قرار دارد باقی می‌ماند (graphene/PMMA). شایان ذکر است که مدت زمان اچ شدن مس به خالص بودن فلز نیز بستگی دارد. تصاویر نمونه پس از حذف مس در شکل‌های ۱۶ (ب، ج) نشان داده شده‌اند.

٦- پس از اچ شدن مس، نمونه با دقت توسط یک شیشه ساعت به داخل ظرف حاوی آب DI منتقل می‌شود و به مدت ۱۰ دقیقه شست‌وشو داده می‌شود تا ذرات ناخالصی باقی‌مانده از مرحله قبل حذف شوند.

۷- در این مرحله، نمونه برای پاک‌سازی ذرات فلز باقی‌مانده، با محلولی از $H_2O/H_2O_2/HCl$ به نسبت ۲۰:۱:۱ در دمای اتاق به مدت ۱۵ دقیقه شست‌وشو داده می‌شود.

۸- در این مرحله، نمونه با دقت توسط شیشه ساعت به داخل ظرف حاوی آب DI منتقل شده و به مدت ۳ دقیقه شست‌وشو داده می‌شود.

۹- حال نمونه نمونه با دقت توسط شیشه ساعت به داخل ظرف حاوی آب DI منتقل شده و به مدت ۳ دقیقه شست‌وشو داده می‌شود.



شکل ۱۶- Cu/graphene/PMMA شکل سمت چپ. graphene/PMMA شکل سمت راست.

۱۰- آماده سازی ماده‌سازی محلولی از $H_2O/H_2O_2/NH_4OH$ با نسبت‌های ۲۰:۱:۱ و شست‌وشوی نمونه در دمای اتاق به مدت ۱۵ دقیقه، سپس ادامه شست‌وشو با آب DI به مدت ۳ دقیقه انجام می‌شود.

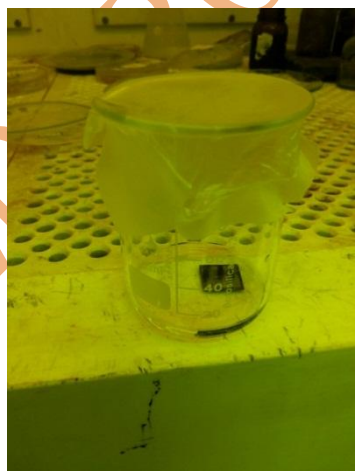
اکنون نمونه دارای مارکر، که شیت گرافن بر روی آن منتقل خواهد شد، باید سطح فعال شود تا شیت گرافن به سطح نمونه بچسبد. برای این منظور، محلول پیرانا به حجم ۳ میلی‌لیتر (۷۵۰ میکرولیتر $H_2O_2$ و ۲۲۵۰ میکرولیتر اسید سولفوریک) آماده شد و نمونه $Si/SiO_2$ مطابق شکل ۱۷ درون آن غوطه‌ور گردید.

۱۱-برای انتقال گرافن بر روی بستر$Si/SiO_2$ ، ترکیب graphene/PMMA شناور در آب با دقت بسیار بالا به بستر $Si/SiO_2$ دارای مارکر منتقل می‌شود تا از آسیب دیدن آن جلوگیری گردد. لازم به ذکر است که با توجه به مساحت گرافن $1 \times 1^{Cm^2}$ و اندازه ویفر بریده‌شده

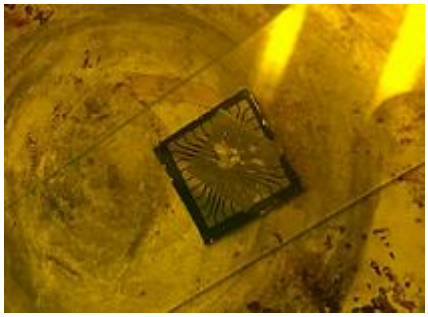
UNCORRECTED PROOF

$1.2 \times 1.2^{Cm^2}$ حین انتقال باید به گونه‌ای تنظیم شود که نمونه graphene/PMMA در ناحیه فعال بستر قرار گیرد و تمامی گپ‌های ایجاد شده (کانال‌ها) را پوشش دهد.

۱۲- در این مرحله برای از بین بردن و بخار شدن آب بین $Si/SiO_2$ و graphene/PMMA نمونه را به مدت ۱۵ دقیقه در دمای $150^{\circ C}$ [۱۷] به صورت شکل ۱۸ پخت داده می شود. پس از پخت ناصافی سطحی نمونه graphene/PMMA انتقال یافته کاهش می‌یابد[۱۸] که نشان‌دهنده افزایش تماس بین گرافن و بستر است. این افزایش تماس، به ویژه برای شکاف‌هایی با مساحت بزرگ، بسیار قابل توجه است.



شکل ۱۷- نمونه $Si/SiO_2$ دارای مارکر، غوطه‌ور در محلول پیرانا؛ فویل کشیده شده بر روی آن به دلیل فرار بودن $H_2O_2$

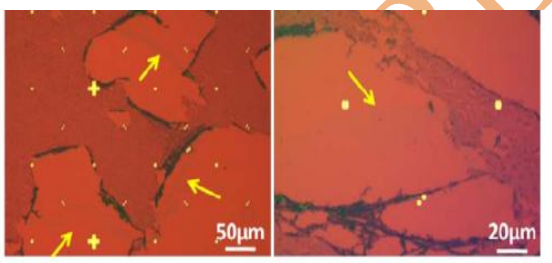


شکل ۱۸- پخت نمونه $Si/SiO_2$/Cr Markers/ graphene sheet/PMMA در دمای $150^{\circ C}$.

۱۳- در این مرحله، PMMA با استفاده از استون یا NMPدر دمای ۶۰ °C برداشته می‌شود، که یکی از مراحل حساس فرآیند است. حذف PMMA با استون یا NMP احتمالاً باعث باقی ماندن یک لایه نازک از پسماندهای آلی روی سطح گرافن شده و می‌تواند عملکرد دستگاه نهایی را کاهش دهد. چندین روش برای پاک‌سازی این باقی‌مانده‌های مقاوم از سطح گرافن گزارش شده است. به عنوان مثال، بازپخت‌های حرارتی یا جریانی (با یا بدون تولید گاز) می‌توانند به حذف بخشی از این آلاینده‌ها کمک کرده و عملکرد ابزار ساخته شده را بهبود بخشند.

۱۴- پس از برداشتن PMMA، نمونه با IPA شست‌وشو شده و با جریان کم باد خشک می‌گردد.

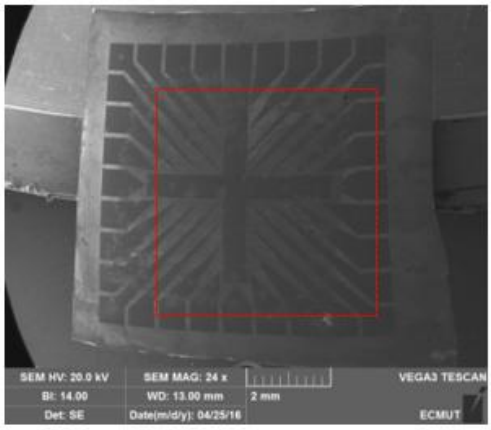
۱۵- در گام نهایی نمونه را جهت حذف باقیمانده ذرات PMMA و بهبود اتصال گرافن به بستر در دمای $300^{\circ C}$ در خلا با حضور گاز آرگون با فلوی $160^{Sccm}$ انیلینگ حرارتی می شود. سپس نمونه با اسیتون، IPA و آب DI شست و شو شده و با جریان کم باد خشک می گردد. تعداد ترک‌ها در لایه‌های گرافن انتقال یافته می‌تواند با کنترل آب‌دوستی محیط هدف و روش خشکسازی کاهش یابند. باقی مانده های مس، ترک‌ها و سوراخ‌های بزرگ باعث ایجاد لایه های باقیمانده ریز زیر نمونه graphene/ PMMA می شوند در شکل ۱۹ قابل مشاهده است.




شکل ۱۹- تصاویر نوری متعارف از لایه‌های گرافن با انتقال ضعیف.

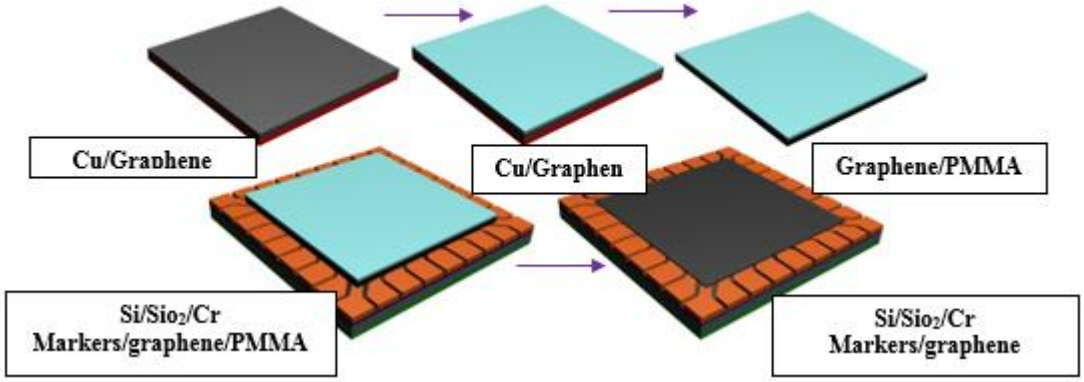
بدین ترتیب بستر $Si/SiO_2$ دارای مارکر کروم، دارای شیت گرافن تک لایه می باشد که با تصویربرداری SEM و اندازه گیری طیف رامان تست می گردد. تصویر SEM از شیت گرافن منتقل‌شده روی بستر در شکل ۲۰ نشان داده شده است.

UNCORRECTED PROOF



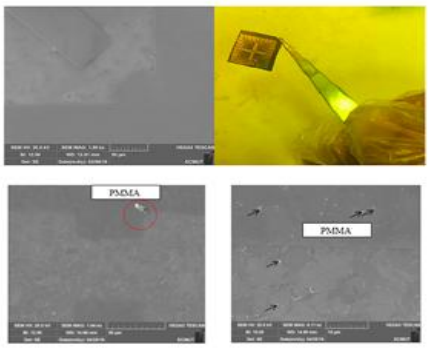

شکل ۲۰- نمای کلی نمونه پس از حذف PMMA؛ ناحیه شیت گرافن منتقل‌شده با کادر قرمز مشخص شده است.

بلوک‌دیاگرام فرایند انتقال گرافن به بستر، به‌صورت خلاصه در شکل ۲۱ ارائه شده است.

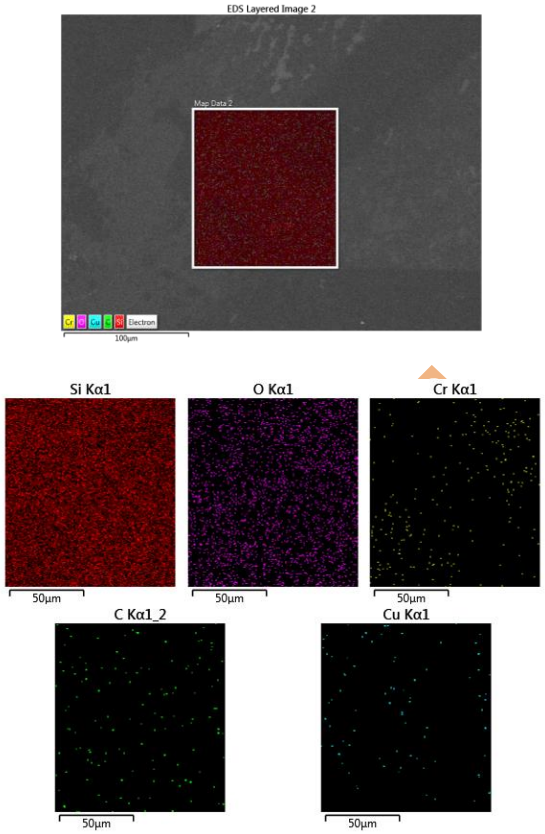



شکل ۲۱- فرآیند انتقال شیت گرافن به بستر Si.

تصاویر SEM شیت گرافن ایجادشده در ناحیه بین گپ‌ها، پس از انتقال شیت گرافن بر روی بستر، الگودهی گرافن و لایه‌نشانی الکترودها، در شکل‌های ۲۲ ارائه شده‌اند. در این تصاویر، مقدار کمتری از ذرات باقیمانده PMMA نیز مشاهده می‌شود. برای بررسی آلودگی‌های فلزی پس از انتقال شیت گرافن با روش RCA اصلاح‌شده، نقشه‌برداری EDX انجام شد (شکل ۲۳). نتایج نشان می‌دهد که هیچ تجمع قابل توجهی از فلزات وجود ندارد و عناصر روی سطح به‌صورت یکنواخت توزیع شده‌اند؛ این موضوع بیانگر انتقال دقیق و تمیز شیت گرافن است.



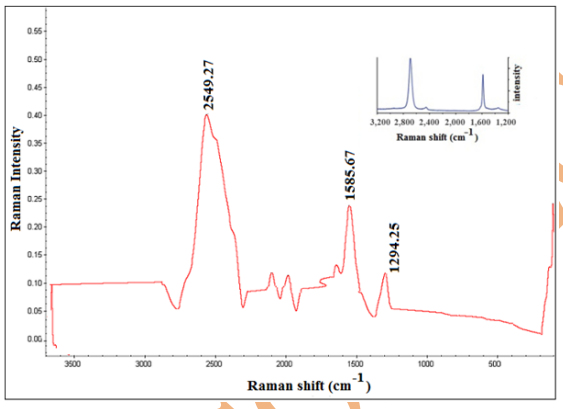

شکل ۲۲- تصاویر SEM از نمونه شامل شیت گرافن در ناحیه بین الکترودها، همراه با ذرات باقیمانده‌ی بسیار کمتر PMMA.




شکل ۲۳- نقشه‌برداری EDX سطح گرافن، پس از انتقال با روش RCA اصلاح‌شده؛ آلودگی فلزی کم و توزیع یکنواخت مشاهده می‌شود.

## ۹- طیف رامان گرافن

با توجه به اینکه هدف این بخش، ارزیابی کیفیت ساختاری و یکپارچگی نمونه‌های مورد استفاده در دستگاه بوده است، لازم به ذکر است که طیف رامان شیت گرافن انتقال‌یافته صرفاً به‌منظور تأیید حفظ ساختار کریستالی پس از فرآیند انتقال مورد استفاده قرار گرفته است .تمرکز اصلی تحلیل‌های کمی رامان بر روی شیت‌های RGO و عدم ارائه بررسی گسترده برای شیت گرافن انتقال‌یافته، به این دلیل است که طیف رامان ثبت‌شده برای شیت گرافن (شکل ۲۴) تمامی ویژگی‌های شاخص گرافن تک‌لایه ایده‌آل را به وضوح نشان می‌دهد. به طور مشخص، این طیف شامل باند Gبارز و باند 2D با شکل متقارن، شدت غالب نسبت به G و نبود افزایش قابل توجه در پیک D است که همگی بیانگر حفظ ساختار شبکه کربنی، کیفیت کریستالی بالا و حداقل میزان نقص‌های ساختاری پس از فرآیند انتقال هستند . موقعیت و شکل پیک‌ها در بازه گزارش‌شده برای گرافن تک‌لایه ایده‌آل در ادبیات قرار می‌گیرد و هیچ‌گونه پهن‌شدگی غیرعادی، شیفت ساختاری معنادار یا افزایش شدت باند D که نشان‌دهنده ایجاد نقص یا آسیب شبکه باشد، مشاهده نشد. از این‌رو، انجام تحلیل‌های کمی تکمیلی نظیر استخراج FWHM پیک‌ها، محاسبه نسبت‌های شدت یا مقایسه سیستماتیک با سایر مطالعات برای شیت گرافن انتقال‌یافته ضروری تشخیص داده نشد و همان طیف ارائه شده برای تأیید کیفیت انتقال و سلامت ساختاری لایه کافی ارزیابی شد. طیف رامان گرافن انتقال‌یافته از چندین نقطه مختلف نمونه استخراج شد و نتیجه‌ها به‌طور قابل اعتماد همسو و یکسان بود، که این امر اعتبار مشاهده‌شده از نظر یکنواختی ساختار و حفظ یکپارچگی لایه گرافن را تقویت می‌کند. این نتایج موفقیت فرآیند انتقال تمیز و حفظ یکپارچگی لایه گرافن را تأیید می‌کند و نشان می‌دهد که لایه انتقال یافته برای کاربردهای الکترونیکی حساس، که نیازمند پوشش‌دهی یکنواخت و سطحی پایدار هستند، کاملاً مناسب است.

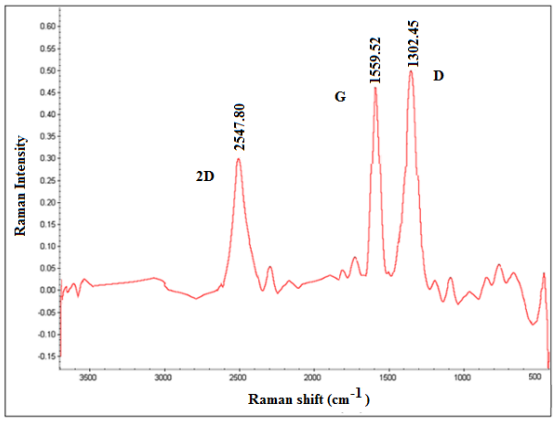



شکل ۲۴- طیف رامان شیت گرافن انتقال‌یافته بین الکترودهای طلا، نشان‌دهنده کیفیت کریستالی و یکپارچگی ساختاری لایه

به بیان دیگر، طیف رامان گرافن تک‌لایه به دلیل کیفیت بالا، شکل ایده‌آل پیک‌ها و نبود نشانه‌های نقص ساختاری، تنها نقش تأییدی داشته؛ اما در مورد RGO، طیف رامان به‌عنوان ابزار ارزیابی کمی کیفیت احیا و یکنواختی عملکردی مورد نیاز دستگاه عمل کرده است. به همین دلیل سطح تحلیل برای دو نمونه متفاوت، متناسب با ماهیت و نیازهای علمی هر یک تنظیم شده است. نمونه‌های RGO به‌طور ذاتی دارای نقص‌های شبکه‌ای، ساختار ناهمگن و وابسته به فرآیند احیا و پراکندگی

UNCORRECTED

ساختاری بیشتر هستند؛ ازاین‌رو، تحلیل کمی دقیق شامل میانگین‌گیری روی چندین ناحیه، محاسبه نسبت I_D/I_G، بررسی تغییرات موقعیت باندها و مقایسه با مطالعات پیشین برای RGO ضرورت داشت تا میزان یکنواختی، تعداد لایه‌ها، کیفیت احیا و نبود افزایش نواقص ناشی از فرآیند انتقال به‌طور دقیق ارزیابی شود. به بیان دیگر، شیت گرافن انتقال‌یافته تنها نقش مرجع ساختاری داشته و طیف آن کاملاً در محدوده استاندارد گزارش‌شده برای گرافن با کیفیت بالا قرار گرفت؛ درحالی‌که بخش کلیدی و حساس پژوهش، کنترل کیفیت لایه‌های RGO در کانال دستگاه و بررسی تکرارپذیری آن‌ها بود. بنابراین تمرکز بر تحلیل کمی RGO نه‌تنها منطقی است، بلکه از نظر علمی نیز مهم‌تر بوده و نتایج دقیق‌تری درباره عملکرد پروتکل پیشنهادی ارائه می‌دهد. در طیف رامان اکسید گرافن احیا شده (RGO)، سه باند اصلی G،D و 2D مشاهده می‌شوند که هر یک اطلاعات مهمی درباره ساختار، کیفیت احیا و تعداد لایه‌ها فراهم می‌کنند. باند G که در حوالی 1580 cm−1 قرار دارد، به ارتعاشات درون صفحه‌ای کربن‌های $sp^2$ مربوط بوده و شدت و موقعیت آن می‌تواند تحت تأثیر تعداد لایه‌ها و میزان احیا قرار گیرد. با افزایش تعداد لایه‌ها، این باند معمولاً اندکی به سمت فرکانس‌های پایین‌تر شیفت می‌یابد که با روند تقریبی 1/n (وابسته به تعداد لایه‌ها) سازگار است[۱۹]. باند D که در محدوده‌ی 1270–1450 cm−1 ظاهر می‌شود، ناشی از حضور نقص‌ها، لبه‌ها و بازآرایی‌های شبکه‌ای در طی فرآیند احیا است. نسبت شدت باندهای I_D/I_G شاخص مهمی برای ارزیابی میزان اختلالات ساختاری و کیفیت احیای RGO محسوب می‌شود. در این مطالعه، بر اساس ۱۵ نقطه اندازه‌گیری، نسبت میانگین $I_D/I_G = 1.16 \pm 0.16$ به‌دست آمد. این مقدار در محدوده گزارش‌شده برای RGO در مطالعات اخیر (تقریباً ۰.۸ تا ۱.۳) قرار دارد و نشان می‌دهد که فرآیند انتقال پیشنهادی موجب افزایش غیرطبیعی نواقص شبکه نشده است. باند 2D که در حوالی 2700 cm−1 قرار دارد، اگرچه در RGO نسبت به گرافن تک‌لایه ایده‌آل پهن‌تر و با شدت کمتر است، اما همچنان معیار مناسبی برای تخمین تعداد لایه‌ها و یکنواختی ضخامت به شمار می‌آید. در شیت‌های کم‌لایه، این باند به‌صورت پیک نسبتاً تیز با شدت قابل مقایسه با G مشاهده می‌شود، درحالی‌که در نمونه‌های چندلایه یا ضخیم، باند 2D پهن و کم ارتفاع است و شدت آن به‌طور قابل توجهی کاهش می‌یابد. طیف رامان اندازه‌گیری‌شده (شکل ۲۵)، حضور مشخص باندهای G، D و 2D را نشان می‌دهد و ویژگی‌های باند 2D شامل پهنای محدود و شدت قابل مقایسه با باند G بیانگر آن است که شیت‌های RGO رسوب کرده در ناحیه کانال دارای تعداد لایه کم و ضخامت یکنواخت هستند، برای بررسی کمی یکنواختی و تکرارپذیری، طیف‌ها در چند ناحیه (حدود ۱۵ ناحیه) مختلف نمونه ثبت شدند.

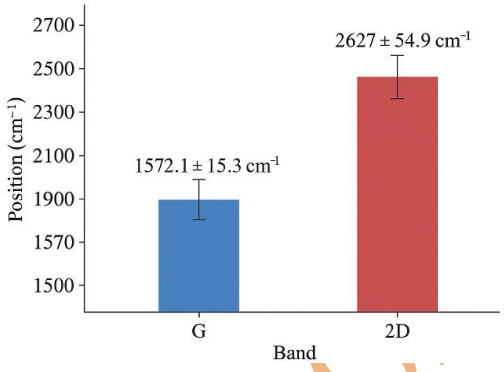



شکل ۲۵- طیف رامان اکسید گرافن احیا شده ( کانال، فاصله بین الکترود سورس و درین).

نتایج اندازه‌گیری طیف رامان برای شیت‌های RGO طبق شکل ۲۶ نشان می‌دهد که موقعیت باند G دارای میانگین ۱۵۷۲.۱ $cm^{-1}$ با انحراف معیار ۱۵.۳ $cm^{-1}$ و واریانس ≈ ۲۳۴.۴ $cm^{-2}$ بوده است. همچنین موقعیت باند 2D با میانگین ۲۶۲۷ $cm^{-1}$، انحراف معیار ۵۴.۹ $cm^{-1}$ و واریانس ≈ ۳۰۱۶ $cm^{-2}$ ثبت شد. این مقادیر نشان‌دهنده تغییرات محدود در موقعیت باندها و یکنواختی ساختاری نمونه‌ها هستند و تکرارپذیری بالای نتایج را تأیید می‌کنند. مقایسه با نتایج گزارش‌شده در مطالعات اخیر (جدول ۱) نشان می‌دهد که موقعیت‌های کمی پایین‌تر نسبت به گرافن تک‌لایه خالص، برای RGO با نقص‌ها و گروه‌های اکسیژن باقی‌مانده طبیعی است و با یافته‌های پیشین در ادبیات همخوانی دارد. با توجه به اینکه هدف این بخش ارزیابی تعداد لایه‌ها و یکنواختی ضخامت بوده است، تمرکز بر رفتار باند 2D نسبت به G کافی بوده و گزارش نسبت‌های کمی مانند FWHM پیک‌ها ضروری نبوده است. همچنین هر

UNCORRECTED PROOF

آزمایش حداقل سه بار به طور مستقل انجام شد که نتایج مشابه و پایدار، صحت طیف ارائه شده را تأیید می‌کند.




شکل ۲۶- میانگین و انحراف معیار موقعیت باندهای D و 2D.

بنابراین، طیف رامان شکل ۲۵ برای ارزیابی کیفیت و یکنواختی شیت‌های RGO کافی است و ارائه طیف جدید ضروری نیست. برای تبیین دقیق جایگاه روش ارائه‌شده در این پژوهش و ارزیابی میزان نوآوری آن نسبت به مطالعات موجود، یک مقایسه نظام‌مند میان معیارهای کلیدی انتقال شیت‌های گرافن و RGO در کارهای پیشین و نتایج این تحقیق انجام شد. همان‌گونه که در جدول ۲ نشان داده شده است، پروتکل پیشنهادی که بر پایه ترکیب «Modified RCA clean»، فعال‌سازی کنترل‌شده سطح با APTES، اسپین‌کوتینگ سوسپانسیون RGO و انتقال انتخابی با ماسک، طراحی شده، توانسته است مجموعه‌ای از ویژگی‌های مهم شامل کاهش آلودگی سطحی، جلوگیری از ایجاد ترک، یکنواختی پوشش، بهبود کیفیت ساختاری و قابلیت استفاده مستقیم در دستگاه‌های میکرو/نانو را به‌طور هم‌زمان فراهم کند.

جدول ۱- مقایسه مقادیر رامان RGO با مطالعات پیشین.

| منبع / مطالعه | موقعیت باند G ($cm^{-1}$) | موقعیت باند D ۲ ($cm^{-1}$) | نسبت I_D/I_G |
|---|---|---|---|
| رفرنس[۲۰] | 1574–1585 | 2690 | 0.93 |
| رفرنس[۲۱] | 1581 | --- | 1.17 |
| کار حاضر | 1572.1 ± 15.3 | 2627 ± 54.9 | 1.16 ± 0.16 |

این مقایسه نشان می‌دهد که روش حاضر نه تنها در ادامه روند پیشرفت‌های اخیر قرار می‌گیرد، بلکه با ارائه یک توالی بهینه و پارامترهای اصلاح‌شده، عملکردی فراتر از روش‌های سنتی انتقال گرافن ارائه می‌دهد.

جدول ۲. مقایسه عملکرد پروتکل پیشنهادی با مطالعات پیشین در انتقال گرافن/RGO از نظر کیفیت سطح، آلودگی، یکنواختی و شاخص‌های رامان.

| ویژگی / معیار | مطالعات پیشین | کار حاضر |
|---|---|---|
| استفاده از روش Modified RCA clean و cleaning / transfer برای انتقال، کنترل آلودگی و ترک | انتقال تمیز با کاهش آلودگی ارائه شده است[۲۲] | گسترش روش با آماده‌سازی سطح با APTES، اسپین سوسپانسیون RGO و ماسک-الگودهی برای انتقال انتخابی و کنترل‌شده شیت‌های گرافن/RGO |
| انتقال انتخابی الگوهای گرافنی | انتقال انتخابی با پلیمر دوتایی و لیزر، الگوها به‌خوبی جدا و منتقل شده‌اند[۱۳] | انتقال انتخابی با پروتکل شیمیایی و سطح فعال‌شده (APTES + RGO) ، شیت، برای کنترل بهتر کیفیت و یکنواختی |

UNCORRECTED PROOF

| | | |
|---|---|---|
| تلاش برای حذف باقی‌مانده و بهبود کیفیت سطح گرافن | روشهای جدید مانند: UV-light-assisted dry transfer تلاش برای انتقال پاک و با کیفیت [۲۳] | تأیید تمیزی و یکنواختی سطح با طیف رامان و آنالیزSEM / EDX ، با کم‌ترین ذرات باقیمانده |
| انعطاف‌پذیری و قابلیت کاربرد در دستگاه | مطالعات قبل برای دستگاه‌های مختلف (FET, electronics, flexible substrates)، مشهود است [۱۳]. | مناسب برای شیت‌های الگوگذاری‌شده و آماده برای کاربرد در میکرو / نانو-دستگاه‌ها و بیوسنسور |

## ۱۰- نتیجه گیری

با وجود مزایای قابل توجه روش پیشنهادی، برخی محدودیت‌ها نیز باید مورد توجه قرار گیرد. این پروتکل چهارمرحله‌ای نیازمند کنترل دقیق پارامترهای عملیاتی از جمله زمان، دما و شرایط شیمیایی در هر مرحله است و تغییرات جزئی در این پارامترها می‌تواند بر کیفیت و یکنواختی شیت‌های گرافن و RGO اثرگذار باشد. علاوه بر این، سازگارسازی فرآیند برای زیرلایه‌های متفاوت یا شیت‌های با ابعاد بسیار بزرگ ممکن است به بهینه‌سازی‌های تکمیلی نیاز داشته باشد و مقیاس‌پذیری صنعتی فرآیند را تا حدی محدود کند. استفاده از لایه‌های واسط نظیر APTES و PMMA نیز، هرچند برای دستیابی به انتقال انتخابی و تمیز ضروری است، ممکن است در برخی کاربردهای خاص الکترونیکی نیازمند تطبیق بیشتر باشد. برای تولید شیت‌های گرافن با کیفیت، از دو رویکرد استفاده شد: سوسپانسیون اکسید گرافن احیاشده و شیت گرافن خریداری شده. با بهینه‌سازی میزان و شرایط پردازش سوسپانسیون، شیت‌های ۱ تا ۲ لایه در نواحی هدف تشکیل شدند. کنترل آب‌دوستی زیرلایه و بهینه‌سازی پخت نیز به کاهش ترک‌ها کمک کرد. نتایج تجربی نشان داد که این فرآیند اصلاح‌شده، ترک‌خوردگی و آلودگی سطحی را به حداقل رسانده و امکان انتقال پیوسته و تکرارپذیر شیت‌های گرافن و RGO را فراهم می‌کند. تصاویر SEM و نقشه‌برداری EDX تأیید کردند که آلودگی‌های سطحی و بقایای فلزی یا آلی پس از انتقال کاهش یافته و توزیع عناصر در سطح یکنواخت است. طیف‌های رامان نیز بیانگر کاهش نقص‌ها و حفظ ساختار کریستالی گرافن در نمونه‌های منتقل‌شده بودند. استفاده از ماسک لیتوگرافیک و محافظت انتخابی PMMA امکان انتقال دقیق و انتخابی شیت‌ها به نواحی هدف را فراهم کرد، در حالی که سایر بخش‌ها دست‌نخورده باقی ماندند. این پروتکل عملیاتی، مسیر مؤثری برای تولید شیت‌های گرافن/RGO با کیفیت بالا، کم‌نقص و قابل تکرار در مقیاس بزرگ، مسیر کارآمدی برای ساخت میکرو/نانو دستگاه‌ها، ترانزیستورهای اثر میدان مبتنی بر گرافن، بیوسنسورها و قطعات الکترونیکی انعطاف‌پذیر ایجاد می‌کند. مطالعات آینده بر بررسی مشخصات الکتریکی این ترانزیستورها، طراحی و ساخت RGO-FETها برای کاربردهای حسگری پیشرفته مانند شناسایی مواد منفجره با رسپتورهای بیولوژیکی متمرکز خواهد بود و می‌تواند کاربردهای عملی حسگرها در حوزه‌های امنیت و زیست‌حسگری را گسترش دهد.

UNCORRECTED PROOF

## مراجع

[1] A. K. Geim, "Graphene: status and prospects," science, vol. 324, pp. 1530-1534, 2009.

[2] K. S. Kim, Y. Zhao, H. Jang, S. Y. Lee, J. M. Kim, K. S. Kim, et al., "Large-scale pattern growth of graphene films for stretchable transparent electrodes," nature, vol. 457, pp. 706-710, 2009.

[3] X. Wang, L. Zhi, and K. Müllen, "Transparent, conductive graphene electrodes for dye-sensitized solar cells," Nano letters, vol. 8, pp. 323-327, 2008.

[4] R. Sharma, "Exciting future of nanotechnology in renewable energy sector," International Journal of Nano Dimension, 2025.

[5] A. Pilehroudia, J. Javidan, Y. R. Irani, and H. Heidarzadeha, "Two-Band Graphene Based Polarization-Independent Full Absorber as a Biosensor," Journal of Modeling in Engineering, vol. 23, pp. 121-132, 2025.

[6] Y. Rafigirania, J. Javidan, and H. Heidarzadeh, "A complete multi-band terahertz absorber graphene structure with frequency tunable and polarization-independent for use in biosensors," 2024.

[7] Alizadeh, Abdollah; Kiani, Dalghavi; Andelabi, "Simulation and Enhancement of Perovskite Solar Cell Jasion (absorbtion) using TiO2 Nanowires," Journal of Modeling in Engineering, vol. 23, pp. 185–192, 2025.

[8] M. C. Lemme, T. J. Echtermeyer, M. Baus, B. Szafranek, J. Bolten, M. Schmidt, et al., "Mobility in graphene double gate field effect transistors," Solid-State Electronics, vol. 52, pp. 514-518, 2008.

[9] W. Xu, J. Xiao, Y. Chen, Y. Chen, X. Ling, and J. Zhang, "Graphene-veiled gold substrate for surface-enhanced Raman spectroscopy," Advanced Materials, vol. 25, pp. 928-933, 2013.

[10] H. Liu, Y. Li, K. Yang, L. Guo, Z. Zeng, and Y. Yao, "Revealing key surface contaminants via stack-flipping strategy: investigating rinsing protocols for clean graphene transfer and enhanced electrical performance," Journal of Materials Chemistry C, vol. 13, pp. 19606-19614, 2025.

[11] K. Sharma, U. López-Sánchez, H. Nury, G. Schoehn, C. Darnault, C. Breyton, et al., "Precision defect integrated graphene as reliable support membrane for high-resolution cryo-transmission electron microscopy," Carbon, vol. 230, p. 119625, 2024.

[12] Q. Yu, J. Lian, S. Siriponglert, H. Li, Y. P. Chen, and S.-S. Pei, "Graphene segregated on Ni surfaces and transferred to insulators," Applied physics letters, vol. 93, 2008.

[13] X.-D. Chen, Z.-B. Liu, W.-S. Jiang, X.-Q. Yan, F. Xing, P. Wang, et al., "The selective transfer of patterned graphene," Scientific Reports, vol. 3, p. 3216, 2013.

[14] J. Lee, K. Kim, W. I. Park, B.-H. Kim, J. H. Park, T.-H. Kim, et al., "Uniform graphene quantum dots patterned from self-assembled silica nanodots," Nano letters, vol. 12, pp. 6078-6083, 2012.

[15] B. Huard, J. Sulpizio, N. Stander, K. Todd, B. Yang, and D. Goldhaber-Gordon, "Transport measurements across a tunable potential barrier in graphene," Physical review letters, vol. 98, p. 236803, 2007.

[16] K. Du, I. Wathuthanthri, Y. Liu, Y. T. Kang, and C.-H. Choi, "Fabrication of polymer nanowires via maskless O2 plasma etching," Nanotechnology, vol. 25, p. 165301, 2014.

[17] H. Min, R. Bistritzer, J.-J. Su, and A. MacDonald, "Room-temperature superfluidity in graphene bilayers," Physical Review B—Condensed Matter and Materials Physics, vol. 78, p. 121401, 2008.

[18] X. Li, Y. Zhu, W. Cai, M. Borysiak, B. Han, D. Chen, et al., "Transfer of large-area graphene films for high-performance transparent conductive electrodes," Nano letters, vol. 9, pp. 4359-4363, 2009.

[19] A. C. Ferrari, J. C. Meyer, V. Scardaci, C. Casiraghi, M. Lazzeri, F. Mauri, et al., "Raman spectrum of graphene and graphene layers," Physical review letters, vol. 97, p. 187401, 2006.

[20] A. A. M. P. Junior, F. K. F. dos Santos, F. de Almeida Araújo, O. S. Leite-Barbosa, L. Altoé, and V. F. Veiga-Junior, "Chemical and structural analysis of graphene oxide reduced with naringenin: A natural product-based alternative," Journal of Materials Research and Technology, vol. 37, pp. 2850-2865, 2025.

UNCORRECTED PROOF

[21] A. Amin, G. V. Prasad, V. Vinothkumar, S. J. Jang, D. E. Oh, and T. H. Kim, "Reduced Graphene Oxide/β-Cyclodextrin Nanocomposite for the Electrochemical Detection of Nitrofurantoin," Chemosensors, vol. 13, p. 247, 2025.

[22] G. Lupina, J. Kitzmann, I. Costina, M. Lukosius, C. Wenger, A. Wolff, et al., "Residual metallic contamination of transferred chemical vapor deposited graphene," ACS nano, vol. 9, pp. 4776-4785, 2015.

[23] Y.-H. Hung, T.-C. Hsieh, W.-C. Lu, and C.-Y. Su, "Ultraclean and facile patterning of CVD graphene by a UV-light-assisted dry transfer method," ACS Applied Materials & Interfaces, vol. 15, pp. 4826-4834, 2023.

UNCORRECTED PROOF