



مطالعه رفتار الکتریکی گرافن / عایق سیلیکون نیتريد (SiN) با اتصالات فتولیتوگرافی شده

مارال پورخیابی و آسیه السادات کاظمی*

دانشکده فیزیک، دانشگاه علم و صنعت ایران، تهران، ایران

چکیده: گرافن، ماده‌ای دوبعدی از اتم‌های کربن در یک شبکه‌ی لانه زنبوری است که در ساخت قطعات نانو و میکروالکترونیک کاربرد دارد. در این پژوهش، گرافن ورقه‌ای و گسترده به ترتیب از طریق روش‌های لایه‌برداری میکرومکانیکی و انباشت بخار شیمیایی تولید شده‌اند. اتصالات الکتریکی از جنس کروم با روش الگودهی فتولیتوگرافی مستقیم و کاهنده، بر روی بستر عایق سیلیکون نیتريد ایجاد شده‌اند. سپس، هر دو نوع گرافن به‌طور جداگانه بر روی این اتصالات انتقال یافته‌اند. مشخصه‌یابی سطحی با میکروسکوپ‌های نوری و نیروی اتمی و طیف‌سنجی رامان در شناسایی تعداد لایه‌ها، گستردگی، پیوستگی لایه‌ها و خلوص سطح موثر بوده است. همچنین مشخصه‌یابی جریان-ولتاژ با پروب چهار نقطه‌ای پویا و مشخصه‌یابی مقاومت با پروب چهار نقطه‌ای ایستا، انجام شده است. اثر نوع الگوها، ابعاد اتصالات، خلوص و تعداد لایه‌ها در رفتار الکتریکی گرافن مورد بررسی قرار گرفته است. نتایج به دست آمده نشان می‌دهد گرافن تک‌لایه در سنجش جریان-ولتاژ، رفتاری خطی و گرافن چندلایه رفتاری غیر خطی دارد.

واژگان کلیدی: گرافن گسترده، انباشت بخار شیمیایی، گرافن ورقه‌ای، مشخصه‌یابی الکتریکی، مشخصه‌یابی سطحی

asihsadat_kazemi@iust.ac.ir

شیمیایی^۱ و یا انتقال ورقه‌های آن با فرآیند لایه‌برداری میکرومکانیکی^۲ روی بسترهای عایق، می‌تواند بر روی خواص الکترونیکی گرافن اثر بگذارد. ساختار نوار انرژی گرافن در نزدیکی شش گوشه منطقه بریلوئن در ساختار لانه زنبوری گرافن در انرژی‌های نزدیک به انرژی فرمی به شکل خطی است. الکترون‌های این شش گوشه به دلیل رفتار نسبیتی، فرمیون‌های دیراک^۳ نامیده می‌شوند و همین رفتار باعث می‌شود گاف نواری برای گرافن خالص صفر شود، زیرا نوارهای رسانش و ظرفیت آن در نقاط دیراک در سطح فرمی به هم می‌رسند [۲]. با این حال،

۱- مقدمه

گرافن، لایه‌ای دو بعدی از اتم‌های کربن است که در یک شبکه لانه زنبوری قرار گرفته‌اند. گرافن در حالت خالص، دارای ساختاری بدون گاف نواری است و خواص حرارتی، الکتریکی و نوری منحصر به فردی را داراست. ساختار نواری متمایز گرافن از بقیه‌ی مواد دوبعدی و نیز حامل‌های بار دارای تحرک پذیری بسیار بالای این ماده، آن را کاندیدای مناسبی برای ساختن قطعات الکترونیکی مانند دیودها یا ترانزیستورها قرار داده است [۱]. فناوری‌های ساخت گرافن گسترده از طریق انباشت بخار

¹ Chemical Vapor Deposition

² Micromechanical Exfoliations

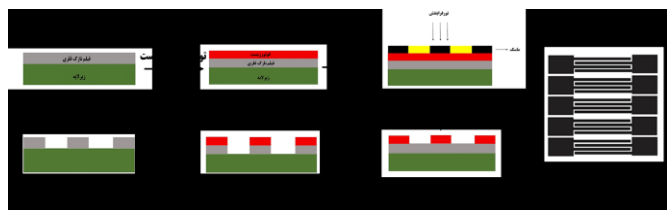
³ Dirac Fermions

تاریخ دریافت: ۱۴۰۱/۰۲/۱۰

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۱/۰۸/۱۴

دستورالعمل مطرح شده در [۸]، به روش انباشت بخار فیزیکی^۹ بر روی SiN لایه‌نشانی شده است.

فتولیتوگرافی شامل استفاده از پرتوی فوتون و ایجاد ماسکی حامل اطلاعات الگوی موردنظر و سپس انتقال آن الگو، با استفاده از برخی روش‌های نوری، بر روی پلیمر واسط مثبت^{۱۰} است [۹]. در این پژوهش، فتولیتوگرافی در دو نسبت ۱/۱ و ۱/۷ (به جهت کاهش اندازه اتصالات)، انجام شده است. الگوی اتصالات الکتریکی طراحی شده در نرم افزار Corel با کمک پرتو لیزر بر روی طلق (شکل ۱ ب) چاپ و به‌عنوان ماسک جهت انتقال الگو در فرایند فتولیتوگرافی مستقیم و کاهنده، استفاده شده است. با انجام فرایندهای توسعه^{۱۱}، زدایش فوتورزیست ضعیف‌شده بر روی SiN، زدایش شیمیایی کروم در نواحی بدون ماسک و در نهایت، زدایش فوتورزیست باقی‌مانده، الگوی اتصالات الکتریکی مدنظر (مطابق با طرح‌واره ارائه شده در شکل ۱ الف) به وجود آمده است.



شکل ۱: الف) طرح‌واره فرایند فتولیتوگرافی، ب) طرح الگوی نخستیه اتصالات الکتریکی.

برای تولید گرافن تک‌لایه از روش انباشت بخار شیمیایی [۱۰] استفاده می‌شود. در این روش، گازی مانند متان^{۱۲} به عنوان منبع کربن، با سطح یک بستر فلزی کاتالیزگر مانند مس بسیار نازک (به ضخامت چند میکرون)، در داخل یک محفظه خلاء تحت شرایط خاص دما، فشار و دبی گاز، واکنش می‌دهد و لایه گرافنی گسترده تشکیل می‌شود. گرافن تک‌لایه استفاده شده در این پژوهش، از شرکت Graphenea خریداری شده که به روش مذکور تولید شده است. بر روی این ورقه، لایه بسیار نازکی از

فقدان گاف نواری از بهره برداری مستقیم از گرافن خالص در الکترونیک جلوگیری می‌کند. به‌عنوان مثال، این فقدان باعث می‌شود که در ترانزیستورها، نسبت جریان روشن به جریان خاموش کاهش یابد. در واقع ترانزیستور ساخته شده با گرافن، همیشه در حالت روشن باقی می‌ماند. این محدودیت عمده‌تاً توسط اختلالاتی مانند ایجاد ناخالصی‌های بار و استفاده از رابط گرافن - دی الکتریک برطرف می‌شود [۳-۵]. به سرانجام رساندن این امر و ایجاد گاف نواری در گرافن مستلزم انتقال ورقه‌های گرافنی بر روی بستری خاص دی الکتریک است. این بستری می‌تواند به طور قابل توجهی بر خواص گرافن و قطعات مرتبط با آن تأثیر بگذارند. مطالعات دانشمندان نشان داده است که ساخت قطعات مبتنی بر گرافن/دی الکتریک باعث عملکرد بهتر و قابل کنترل‌تر این دستگاه‌ها در مقیاس نانومتر می‌شوند و در حوزه‌های اسپینترونیک و اپتوالکترونیک هم می‌توانند مورد استفاده قرار گیرند [۶، ۷].

در اینجا رفتار الکتریکی گرافن/عایق تخت شامل جریان-ولتاژ و مقاومت سطحی به کمک پروب‌های چهار نقطه‌ای^۴ پویا و ایستا بررسی شده است. گرافن به دو روش میکرومکانیکی و انباشت بخار شیمیایی بر روی ساختار عایق تخت سیلیکون نیتريد (SiN) انتقال یافته است. خلوص، گستردگی، تعداد لایه‌ها و پیوستگی لایه‌های گرافن ورقه‌ای^۵، از طریق میکروسکوپ نوری^۶ و میکروسکوپ نیروی اتمی^۷ ارزیابی شده است. برای ساخت قطعات مبتنی بر گرافن/عایق، از اتصالات الکتریکی با فتولیتوگرافی استفاده شده است.

۲- بخش تجربی

SiN (با دو روی صیقل یافته) برای تولید اتصالات الکتریکی با روش الگودهی فتولیتوگرافی^۸ به کار برده شده است. قبل از الگودهی، لایه نازکی از فلز کروم با خلوص ۹۹٫۹۹٪ مطابق با

^۴ Four Point Probe

^۵ Flakes

^۶ Optical Microscopy

^۷ Atomic Force Microscopy

^۸ Photolithography

^۹ Physical Vapor Deposition

^{۱۰} Photoresist

^{۱۱} Develop

^{۱۲} CH₄

از پلیمری استفاده می‌شود که بعد از فرایند انتقال، باید از روی سطح گرافن زدوده شود. تحقیقات نشان داده که رسوبات ناشی از این پلیمر در دمای بالا حتی در حضور خلاء و یا با کمک محلول-های شیمیایی تا حدی بر روی سطح گرافن باقی می‌ماند و بطور کامل از بین نمی‌رود [۱۵]. همین معضل، یکی از چالش‌های مهم استفاده از گرافن گسترده بدست آمده از روش انباشت بخار شیمیایی است. هنگام اعمال ولتاژ، این آلودگی‌ها به عنوان منبع پراکندگی الکترون‌ها عمل می‌کنند و انتقال الکترون‌ها با سرعت و تعداد کمتری رخ می‌دهد. در واقع تحرک پذیری الکترون و تراپرد الکتریکی آن کم می‌شود، لذا جریان به دست آمده کمتر از حد انتظار است [۱۶]. اما به دلیل تک‌لایه بودن این نوع گرافن، احتمال عبور الکترون‌ها نسبت به چندلایه بیشتر است. هنگامی که الکترون‌ها در گرافن تک‌لایه به موانع (هم ارز سد پتانسیل) می‌رسند، احتمال عبور کامل آنها از موانع در زوایای مختلف فرود، بیشتر است. پس نمودار جریان-ولتاژ تقریباً خطی می‌شود [۱۷]. در یک مطالعه مقایسه‌ای، رفتار جریان-ولتاژ گرافن تک‌لایه بر روی عایق سیلیکون دی‌اکسید (SiO_2) با اتصالات الکتریکی فتولیتوگرافی شده در محدوده -1V تا 1V نیز خطی گزارش شده است [۱۹].

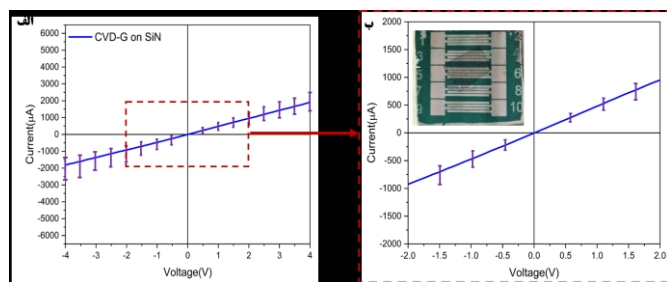
پلیمر^{۱۳} اسپین کوت شده است. وجود این لایه، در فرایند انتقال تر گرافن بر روی بستر عایق ضروری است [۱۱، ۱۲]. این لایه بعد از انتقال، شستشو شده و تا حد مطلوبی پاکسازی می‌شود. گرافن ورقه‌ای هم، با چسباندن گرافیت^{۱۴} بر روی نوار اسکاچ^{۱۵} و تکرار این فرایند، به دست آمده است. این روش، به لایه‌برداری میکرومکانیکی [۱۳] معروف بوده و نتیجه آن استقرار ورقه‌های چندلایه‌ای گرافن با گستره چند ده میکرون بر روی بستر دلخواه است.

در نهایت نمونه‌های مختلف گرافن، برای مشخصه‌یابی رامان (تکرام N-541)، مشخصه‌یابی جریان-ولتاژ با ولت‌متر (نانوپژوهان راگا) متصل به پروب چهار نقطه‌ای پویا و مجهز به میکروسکوپ نوری و نیز مشخصه‌یابی مقاومت الکتریکی با پروب چهار نقطه‌ای ایستا (Jandel RM3000 4-point probe) آماده شد. مطابق تحقیقات گذشته [۱۴]، مشخصه‌یابی جریان-ولتاژ با اعمال ولتاژ در محدوده -4V تا 4V صورت گرفت و مقاومت ویژه الکتریکی در جریان‌های مختلف 10 nA تا 50 mA اندازه‌گیری شد.

۳- نتایج و بحث

۳-۱- رفتار جریان-ولتاژ گرافن حاصل از انباشت بخار شیمیایی

گرافن تک‌لایه (رشد یافته با انباشت بخار شیمیایی) بر روی اتصالات الکتریکی حاصل از فتولیتوگرافی ۱/۱ (مطابق با شکل ۱) قرار گرفت. عرض هر یک از دندان‌ها در این روش، حدود $140\text{ }\mu\text{m}$ بوده است. در فرایند انتقال تلاش شده مرزهای گرافن فقط بر روی دندان‌های اتصالات قرار گیرد. شکل ۲ رفتار جریان-ولتاژ گرافن گسترده را بر روی SiN نشان می‌دهد. استفاده از پلیمر واسط برای ایجاد الگو و محلول‌های شیمیایی برای تمیز کردن سطح نمونه، هردو از عوامل وجود آلودگی‌های سطحی در نمونه‌های فتولیتوگرافی شده است. بعلاوه اینکه در روش انتقال گرافن گسترده از انباشت بخار شیمیایی، به اضطراب



شکل ۲: الف) مشخصه‌یابی جریان-ولتاژ گرافن گسترده تک‌لایه (رشد یافته با انباشت بخار شیمیایی) بر روی SiN و ب) تصویر میکروسکوپ نوری این لایه بر روی اتصالات الکتریکی فتولیتوگرافی (با نسبت ۱/۱)؛ ناحیه در کادر خط‌چین، برای وضوح بیشتر بزرگ‌نمایی شده است.

۳-۲- مقاومت ویژه گرافن حاصل از انباشت بخار شیمیایی

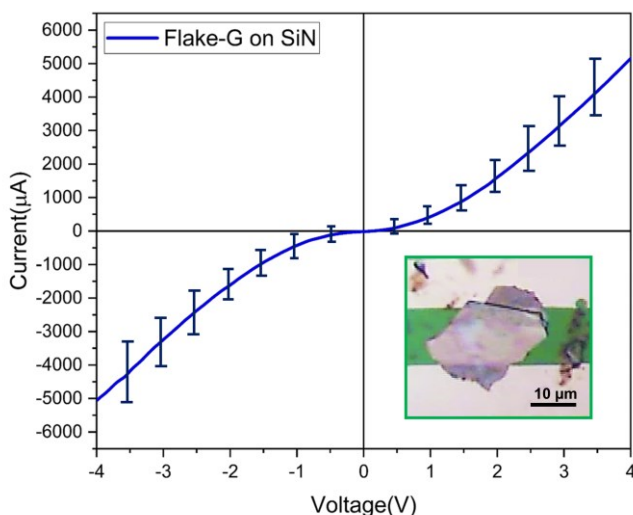
از دیگر روش‌های مشخصه‌یابی الکتریکی، سنجش مقاومت ویژه سطح است. مقاومت ویژه همان مقاومت نسبت به جریان

¹³ PMMA

¹⁴ HOPG

¹⁵ Scotch tape

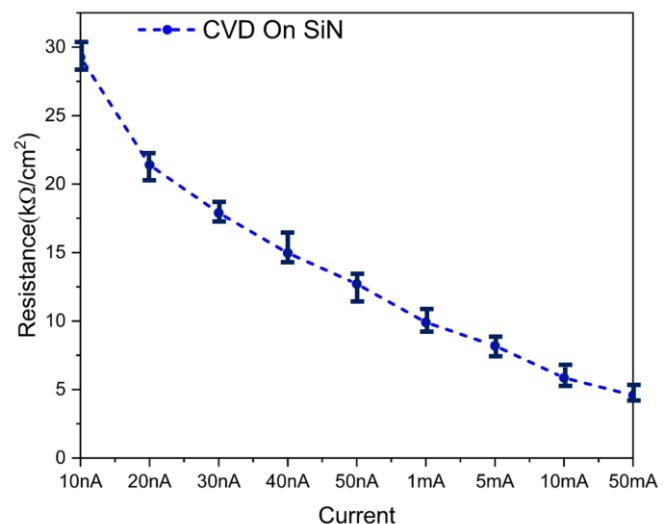
بسیار کوچک بوده، اتصالات الکتریکی بر روی بستر، با فتولیتوگرافی با نسبت ۱/۷ ایجاد شده است. عرض هر یک از دندانها در این روش، حدود $20 \mu\text{m}$ بوده است. تولید تک لایه گرافن از روش لایه برداری میکرومکانیکی دشوار و تکرارناپذیر است، لذا عمده ورقه‌های به دست آمده، چندلایه بوده‌اند. همانطور که در تصویر میکروسکوپ نوری بازتابی در شکل ۴ مشخص است، ورقه‌ایی که بین دو دندان الکتریکی جای‌گزیده شده، شامل چندین رنگ روشن و تیره است. این تفاوت رنگ، ضخامت متفاوت گرافن ورقه‌ای را نشان می‌دهد. شکل ۴، نمودار مربوط به تغییرات جریان-ولتاژ یکی از ورقه‌های کوچک گرافن را نشان می‌دهد.



شکل ۴: مشخصه‌یابی جریان-ولتاژ گرافن ورقه‌ای (میکرومکانیکی) بر روی اتصالات الکتریکی SiN به همراه تصویر میکروسکوپ نوری بازتابی آن که بین دو دندان اتصال الکتریکی کروم جای‌گزیده شده است.

در مقایسه با نمودار جریان-ولتاژ گرافن گسترده تک لایه در شکل ۲، رفتار جریان-ولتاژ در گرافن چندلایه، غیرخطی است. با اعمال ولتاژ بر ورقه‌های کوچک گرافن/اتصالات باریک الکتریکی، الکترون از یک سمت اتصال حرکت کرده و به دلیل اهمی بودن اتصال بین گرافن چندلایه و فلز کروم و یا فلزات دیگر، وارد گرافن می‌شود [۲۲-۲۵]. هنگام عبور از مرز بین لایه‌ها و به دلیل تغییر در ضخامت لایه‌ها، الکترون این تفاوت را سد پتانسیل می‌پندارد و با افزایش ولتاژ از این سد عبور می‌کند و به سمت دیگر

الکتریکی ایجاد شده در یک مدار در واحد سطح است. از قبل می‌دانیم که رسانندگی و مقاومت ویژه با یکدیگر رابطه‌ی متقابل دارند. رسانندگی، میزان هدایت الکترون‌های آزاد از نوار ظرفیت به نوار رسانش است. با انتقال الکترون به سمت نوار رسانش، حفره باقی می‌ماند. هرچه زوج الکترون-حفره ایجاد شده زیادتر باشد، رسانندگی بیشتر می‌شود. همین امر امکان کاربرد ماده در قطعات نیم‌رسانا را فراهم می‌کند [۲۰، ۲۱]. همان‌طور که از شکل ۳ پیداست، به‌آسانی می‌توان به رابطه‌ی معکوس مقاومت و جریان در گرافن تک لایه گسترده پی برد. با افزایش جریان، مقاومت ویژه به مقدار چشم‌گیری در هر دو مقیاس میلی‌آمپر و نانوامپر، کاهش پیدا کرده است. این کاهش در محدوده نانوامپر سریع‌تر است. از آنجا که پروب‌های مقاومت‌سنج بسیار بزرگتر از اتصالات و ورقه‌های نوع دوم گرافن (ورقه‌ای) در این پژوهش بودند، این دستگاه قابلیت اندازه‌گیری تغییرات مقاومت ویژه بر حسب جریان این نوع گرافن را نداشته است.



شکل ۳: تغییرات مقاومت ویژه گرافن گسترده رشد یافته با انباشت بخار شیمیایی بر حسب تغییرات جریان در دو محدوده نانو و میلی‌آمپر.

۳-۳- مشخصه‌یابی گرافن ورقه‌ای چندلایه

رفتار جریان-ولتاژ در گرافن ورقه‌ای چندلایه که به روش لایه-برداری میکرومکانیکی بر روی SiN انتقال یافته، با شرایط مشابه با گرافن تک لایه بررسی شد. از آنجا که ابعاد ورقه‌های گرافن

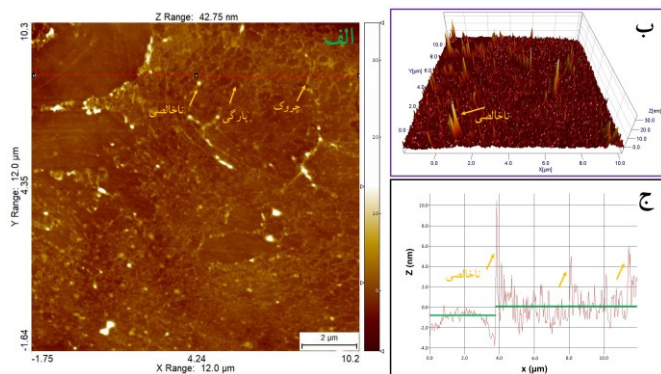
۳-۴-۱ مشخصات سطحی گرافن تک‌لایه و چندلایه با میکروسکوپ نیروی اتمی

همانطور که در شکل ۵ (الف) پیداست، گرافن تک‌لایه از انباشت بخار شیمیایی و منتقل شده بر روی SiN پیوستگی کامل ندارد. این ناپیوستگی از نتایج اجتناب ناپذیر انتقال گرافن به کمک پلیمر است. چروک‌ها، آلودگی‌ها و ناخالصی‌های باقی‌مانده روی سطح هم (که در تصاویر ۵ (الف و ب) مشخص شده) حاکی از اثرات انتقال گرافن با پلیمر است. مجموعه این عوامل منجر به کاهش تراکم الکتریکی شده‌اند. ضخامت این لایه از پروفایل قرمز رنگ اخذ شده روی ناحیه‌ای از نمونه و زیر لایه SiN در شکل ۵ (ج) حدود ۰٫۵ nm است که با مقادیر پیش بینی شده نظری (۱ nm) ۰٫۳۵ برابر الکتریکی شده‌اند. توجه شود که ضخامت اندازه‌گیری شده با حضور همه ناخالصی‌ها و ناهمواری‌های حاصله بر روی سطح گرافن، ایجاد شده است. این ناخالصی‌ها در پروفایل، شبیه قله‌های نویز ظاهر می‌شوند.

اتصال می‌رود. عبور از این سد، عامل غیر خطی شدن جریان-ولتاژ است [۲۶، ۱۸]. از طرفی، طبق نتایج تحقیقات گزارش شده در [۲۷]، رفتار غیر خطی جریان-ولتاژ، چندلایه بودن ورقه‌های گرافن را تایید می‌کند. ابعاد اتصالات الکتریکی نسبت به ابعاد ورقه‌های گرافن هم در بروز این رفتار غیرخطی موثر است. در [۲۷]، که ابعاد اتصالات الکتریکی فتولیتوگرافی شده بر روی SiO₂، نسبت به ابعاد ورقه گرافن چندلایه بسیار بزرگتر است، رفتار جریان-ولتاژ در ولتاژهای پایین (1V تا 10 V) تا حدی غیرخطی و در ولتاژهای بالا (بیش از 10 V) کاملاً غیرخطی است. در تحقیقات ما، ابعاد اتصالات و ابعاد ورقه‌های چندلایه، هر دو از مرتبه چند ده میکرون است. تولید این نوع اتصالات به دلیل پیچیدگی‌های فنی، به ندرت مشاهده شده است [۲۸]. مقایسه مقادیر جریان عبوری از گرافن تک‌لایه و گرافن چندلایه در دو شکل ۲ و ۴ نشان می‌دهد این مقدار در گرافن چندلایه بدلیل خلوص بسیار بالا حدود شش برابر گرافن تک‌لایه است.

۳-۴-۲ مشخصات گرافن تک‌لایه و چندلایه

مهم‌ترین روش‌های اندازه‌گیری ضخامت و ویژگی‌های ساختاری و مورفولوژیکی مواد دوبعدی از جمله گرافن و خانواده مربوط به آن، شامل تصویربرداری میکروسکوپ نیروی اتمی در مد تماسی و ضربه‌ای و نیز طیف‌سنجی رامان است. در اینجا، دو روش تصویربرداری میکروسکوپ نیروی اتمی در مد تماسی (با کنتیلور سیلیکون نیتريد) و طیف‌سنجی رامان جهت مشخصه‌یابی ساختاری هر دو نوع گرافن تک‌لایه و چندلایه استفاده شده‌اند. ضخامت مواد دوبعدی در مقایسه با خانواده لایه‌های نازک بسیار کم و از مرتبه اتمی است و همواره این مواد جهت استفاده و مشخصه‌یابی، بر روی زیرلایه تخت قرار می‌گیرند. بنابراین روش‌هایی مانند پراش پرتو ایکس^{۱۶} صرفاً اطلاعات زیرلایه را منعکس می‌کنند و قادر به تشخیص سطح گرافن نیستند. با این حال، نتیجه پراش پرتو ایکس از سطح گرافن تک‌لایه گسترده، در بخش‌هایی ارائه و در مورد آن بحث شده است.



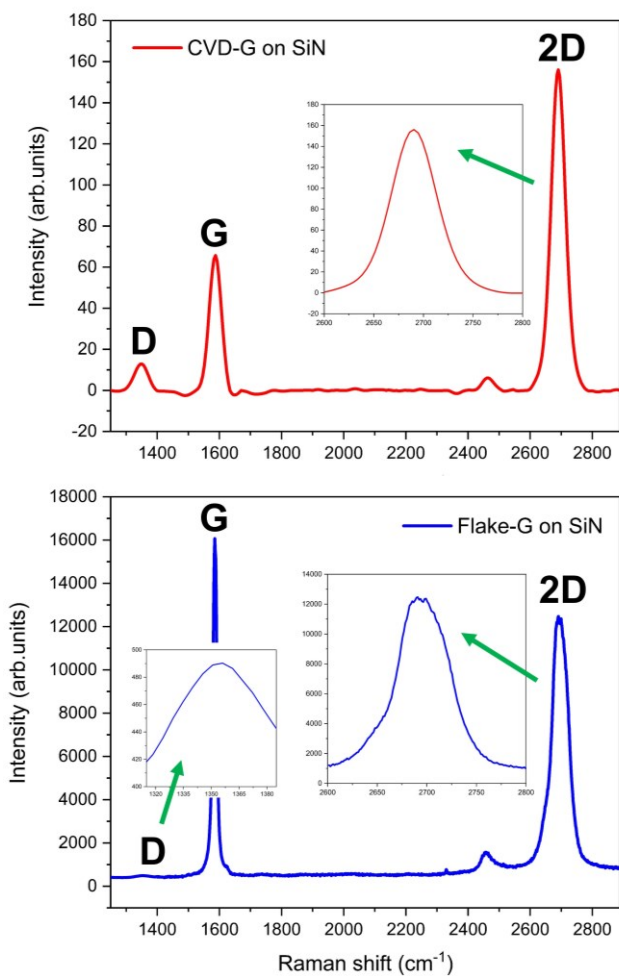
شکل ۵: تصاویر توپوگرافی (الف) دوبعدی و (ب) سه‌بعدی میکروسکوپ نیروی اتمی گرافن رشد یافته به روش انباشت بخار شیمیایی بر روی SiN. (ج) پروفایل اخذ شده روی بخشی از تصویر توپوگرافی در (الف) که نشان دهنده تک‌لایه بودن گرافن است. اختلاف دو خط سبز رنگ مشخص شده در این پروفایل، به‌طور تقریبی نماینده ضخامت لایه گرافن است.

رفتار غیرخطی جریان-ولتاژ گرافن ورقه‌ای که ناشی از چندلایه بودن آن است با تصویر میکروسکوپ نیروی اتمی مربوطه در شکل ۶ (الف) تایید می‌شود. این تصویر دوبعدی، ساختار ورقه‌ای گرافن را نشان می‌دهد که در نقاط مختلف، ضخامت متفاوتی

¹⁶ X-ray Diffraction (XRD)

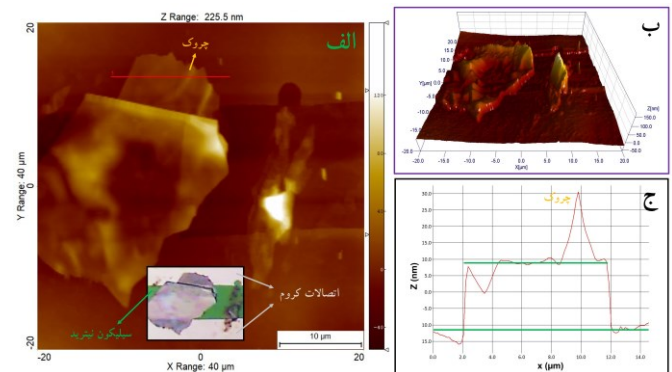
۳-۴-۲ طیف سنجی رامان گرافن تک لایه و چند لایه

طیف سنجی رامان یک ابزار مشخصه یابی جهت بررسی ساختار گرافن، تعداد لایه ها، وجود عیوب و میزان نقص های ساختاری است. مشخصه ی طیف رامان گرافن تک لایه بی نقص شامل هیبریداسیون sp^2 ، دارای سه قله در 1350 cm^{-1} ، 1580 cm^{-1} و 2700 cm^{-1} است که به ترتیب به قله های D، G و 2D نسبت داده می شود [۱۲]. شکل ۷، طیف های رامان هر دو نوع گرافن را نشان می دهد.



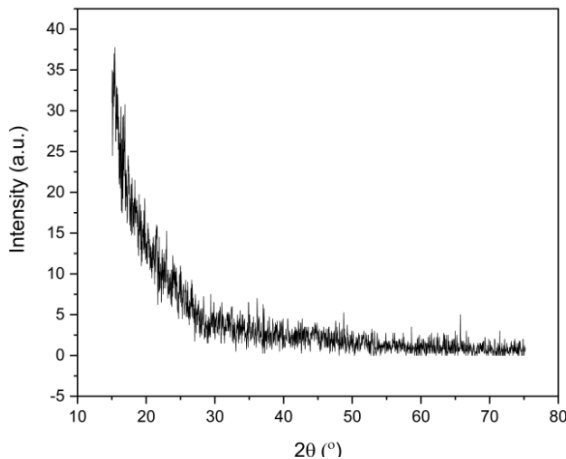
شکل ۷: مقایسه طیف رامان دو نمونه گرافن گسترده تک لایه رشد یافته با انباشت بخار شیمیایی (بالا) و گرافن ورقه ای چند لایه میکرومکانیکی (پایین). تصاویر داخل کادرها، نمای بزرگ تری از قله های D و 2D را نشان می دهد.

دارد. با توجه به شاخص کنار تصویر، هرچه رنگ لایه روشن تر باشد، تعداد لایه ها بیشتر و هرچه رنگ لایه تیره تر باشد، تعداد لایه ها کمتر است. البته در بعضی موارد، ممکن است مقداری از گرافن ورقه ای از روی سطح بلند شده باشد که در این صورت، هم لایه روشن تر می شود و هم ضخامت بیشتری را در پروفایل نشان می دهد. تصویر میکروسکوپ نوری همین ورقه روی اتصالات کروم برای مقایسه در شکل ۶(الف) آمده است. تصویر سه بعدی در شکل ۶(ب)، موید تغییرات ضخامت گرافن ورقه ای و نیز اتصالات کروم نسبت به زیر لایه SiN است. شکل ۶(ج) پروفایل اخذ شده از ورقه گرافن در قسمت ۶(الف) را نشان می دهد. اختلاف دو خط سبز رنگ در این پروفایل حدود ۱۷ nm است. این رقم حاکی از چندین لایه (حدود ۴۰ لایه) بودن ورقه گرافن است. بنابراین، با توجه به چند لایه بودن گرافن مشخص شده، رفتار غیرخطی جریان-ولتاژ این نوع گرافن در اینجا تایید می شود.



شکل ۶: تصاویر توپوگرافی (الف) دوبعدی و (ب) سه بعدی میکروسکوپ نیروی اتمی گرافن انتقال یافته (میکرومکانیکی) بر روی SiN. در قسمت (الف) تصویر میکروسکوپ نوری همین ورقه گرافن با مشخص نمودن اتصالات کروم و ناحیه سیلیکون نیتريد آمده است. (ج) پروفایل اخذ شده روی بخشی از تصویر توپوگرافی در (الف). این پروفایل و اختلاف خطوط مشخص شده، ضخامت بخشی از ورقه گرافن را بهتر نشان می دهد.

انجام شده [۳۱-۳۳]، طیف پراش پرتو ایکس گرافن تک‌لایه رشد یافته به روش انباشت بخار شیمیایی، هیچ قله‌ای نشان نمی‌دهد.



شکل ۸: طیف پراش پرتو ایکس گرافن تک‌لایه از روش انباشت بخار شیمیایی.

همان‌طور که در شکل ۸ مشخص است، این طیف، هیچ قله‌ای را نشان نمی‌دهد. البته، این به معنای بی‌شکل بودن نمونه گرافن نیست، بلکه با توجه به عمق نفوذ پرتوهای ایکس، ساختار بلوری تک‌لایه اتمی، مشارکتی در ایجاد طیف ندارد.

۴- نتیجه گیری

گرافن به دست آمده با لایه‌برداری میکرومکانیکی به دلیل دارا بودن تعداد لایه‌های بالا، رفتار غیر خطی و دیودی از خود نشان داده‌است اما گرافن تک‌لایه رشد یافته با انباشت بخار شیمیایی، در مشخصه‌یابی‌های جریان-ولتاژ، رفتاری اهمی و خطی را نشان می‌دهد. ضمناً مشخص شده که جریان کمتر از حد انتظار (در نمونه گرافن گسترده تک‌لایه) می‌تواند ناشی از آلودگی بر روی سطح، چروک‌ها، آسیب دیدن و پاره شدن گرافن هنگام انتقال آن به واسطه پلیمر بر روی بستر باشد. در مقابل، گرافن چندلایه (که مستقیماً بدون واسطه پلیمر بر بستر قرار می‌گیرد)، جریان بالاتری را نسبت به گرافن گسترده تک‌لایه، نشان می‌دهد و به انتقال الکترون‌ها با سرعت بیشتر در سطح گرافن دامن می‌زند. مقاومت-

پس‌زمینه همه طیف‌ها جهت مقایسه بهتر، با دقت و مطابق با استانداردها، حذف شده است. موقعیت قله‌های مشخص شده در هر دو طیف، با طیف گرافن بی‌نقص مشابهت دارد. پهنا و مکان قله D نشانگر عیوب ساختاری و ناخالصی‌ها هستند. عیوب ساختاری در اثر عواملی چون زاویه پیوندی و طول پیوندها نمایان می‌شود. مکان قله G برای نشان دادن عیوب توپولوژیکی لحاظ می‌شود که این عیوب از اندازه، شکل و پراکندگی خوشه‌های sp^2 نشأت می‌گیرد. [۱۲]. بطور واضح، پهنا و شدت قله D در هر دو نمونه، نسبت به سایر قله‌ها بسیار کم است. در طیف نمونه گرافن ورقه‌ای، این قله در نگاه نخست قابل شناسایی نیست چون شدت سایر قله‌ها در این طیف، بسیار زیاد است. پهناهای قله G در نمونه گرافن ورقه‌ای بسیار کم و شدت آن بسیار زیادتر از گرافن تک-لایه از انباشت بخار شیمیایی است. شدت بسیار زیاد قله G در جریان عبوری چندبرابری گرافن چندلایه نسبت به گرافن تک-لایه هم مشخص شده است. قله 2D در طیف رامن گرافن، مربوط به تعداد لایه‌هاست [۱۲]. در مقایسه دو طیف، قله 2D در گرافن تک‌لایه، پهناهای کمتری از گرافن چندلایه دارد. مطالعات علمی [۱۲, ۲۹, ۳۰] نشان می‌دهد این قله در گرافن چندلایه، به چند قله گوسین قابل تقسیم است که در اینجا هم در مورد گرافن چندلایه قابل تصور است. نسبت قله 2D به قله G در گرافن تک‌لایه از گرافن چندلایه بیشتر و موید تک‌لایه بودن گرافن حاصل از انباشت بخار شیمیایی است.

۳-۴-۳ پراش پرتو ایکس گرافن تک‌لایه

پراش پرتو ایکس برای مطالعه ساختار مواد بلوری و تعیین فازهای بلوری و موقعیت آن‌ها به کار می‌رود. طیف حاصل از پراش پرتو ایکس ساختارهای سه‌بعدی نظیر فوم‌های گرافن، کامپوزیت گرافن، گرافیت و گرافن اکسید^{۱۷} با تعداد لایه‌های بسیار زیاد، حاوی قله‌هایی در زوایای مختلف خواهد بود. این مواد گاهی با عنوان "گرافن" نام‌برده می‌شوند، اما با ویژگی‌های ساختاری و الکترونیکی گرافن واقعی، بسیار فاصله دارند. شکل ۸، طیف پراش پرتو ایکس گرافن تک‌لایه دوبعدی در این مطالعه را جهت مقایسه با منابع علمی، نشان می‌دهد. مطابق با تحقیقات

¹⁷ Graphene oxide

[6] D. Sinha, J.U. Lee, "Ideal graphene/silicon Schottky junction diodes, " Nano letters, 14(8), 4660-4664,2014.

[7] R. Zhou, "Structural And Electronic Properties of Two-Dimensional Silicene, Graphene, and Related Structures, " Wright State University,2012.

[8] R.J. Martín-Palma, and A. Lakhtakia, "Vapor-deposition techniques, in Engineered Biomimicry, " Elsevier Inc. 383-398,2013.

[9] D.S. Kumar, B.J. Kumar, and H. Mahesh, "Quantum nanostructures (QDs): an overview, " Synthesis of Inorganic Nanomaterials,,: 59-88,2018.

[10] V.B. Mbayachi, et al., "Graphene synthesis, characterization and its applications: A review, "Results in Chemistry, 3, 100163,2021.

[11] S. Ullah, et al., "Graphene transfer methods: A review, " Nano Research, 14(11), 3756-3772,2021.

[12] A.S. Kazemi, S.M. Hosseini, and Y. Abdi, "Large total area membrane of suspended single layer graphene for water desalination. Desalination, " 451,160-171,2019.

[13] Yi, M. and Z. Shen, "A review on mechanical exfoliation for the scalable production of graphene, " Journal of Materials Chemistry A, 3(22): p. 11700-11715,2015.

[14] N. Margaryan, N. Kokanyan, and E. Kokanyan, "Low-temperature synthesis and characteristics of fractal graphene layers, " Journal of Saudi Chemical Society, 23(1),13-20,2019.

[15] A.S. Kazemi, et al., "Support based novel single layer nanoporous graphene membrane for

سنجی سطح گرافن تک‌لایه (در دمای اتاق) نشان داده با بالا رفتن جریان، مقاومت ویژه کاهش می‌یابد. نتایج این مطالعه نشان داده که روش فتولیتوگرافی برای الگودهی اتصالات الکتریکی با نسبت ۱/۱ برای نمونه‌های گسترده گرافن و با نسبت ۱/۷، برای ورقه‌های کوچک گرافن بسیار مناسب است. در حالی که پراش پرتو ایکس از سطح نمونه‌های چندلایه کوچک گرافن و یا تک-لایه گسترده گرافن، هیچ قله‌ای را نشان نمی‌دهد، استفاده از میکروسکوپ نیروی اتمی در مشخصه‌یابی سطح و تعیین ضخامت هر دو نوع گرافن و آلودگی‌ها و ناخالصی‌های موجود بر روی سطح بستر بسیار موثر است. همچنین طیف‌سنجی رامان در تعیین تعداد لایه‌ها، عیوب ساختاری و خلوص گرافن نقش به‌سزایی دارد.

مراجع

[1] Li, X., et al., "Large-area synthesis of high-quality and uniform graphene films on copper foils, "science, 324(5932),1312-1314,2009.

[2] M.I. Katsnelson, "Carbon in Two Dimensions," Cambridge University Press Cambridge, UK,2012.

[3] D. Ge, et al., "Effect of patterned silicon nitride substrate on Raman scattering and stress of graphene," Materials & Design, 198: p. 109338.2021.

[4] B. Aufray, et al., "Graphene-like silicon nanoribbons on Ag (110): A possible formation of silicene," Applied Physics Letters, 96(18),183102,2010.

[5] M.C. Lemme, et al., "A graphene field-effect device, " IEEE Electron Device Letters, 28(4),282-284,2007.

Letters, 104(21),212101,2014.

[24] R. Fates, J.P. Raskin, "Linear and non-linear electrical behaviors in graphene ribbon based devices, " Journal of Science: Advanced Materials and Devices, 3(3), 366-370,2018.

[25] P. Sung Park, et al., "Ohmic contact formation between metal and AlGaIn/GaN heterostructure via graphene insertion, " Applied Physics Letters, 102(15),153501,2013.

[26] C.-C. Chen, et al., "Graphene-silicon Schottky diodes, " Nano letters, 11(5), 1863-1867,2011.

[27] J.A. Khamaj, "Influence of ion irradiation on temperature dependent electrical transport behavior of thin graphite flakes, " Materials Science-Poland, 34(2), 399-403,2016.

[28] R. Zhang, et al., "Optical lithography technique for the fabrication of devices from mechanically exfoliated two-dimensional materials, " Microelectronic Engineering, 154, 62-68,2016.

[29] R. Saito, et al., "Raman spectroscopy of graphene and carbon nanotubes, " Advances in Physics, 60(3), 413-550,2011.

[30] A.C. Ferrari, D.M. Basko, "Raman spectroscopy as a versatile tool for studying the properties of graphene, " Nature nanotechnology, 8(4), 235-246,2013.

[31] J. Fan, et al., "Comprehensive study of graphene grown by chemical vapor deposition, " Journal of Materials Science: Materials in Electronics, 25(10): p. 4333-4338,2014.

efficacious water desalination, " Desalination, 451,148-159,2019.

[16] N. Lisi, et al., "Contamination-free graphene by chemical vapor deposition in quartz furnaces, " Scientific reports, 7(1),1-11,2017.

[17] I. Sharma, S.R. Dhakate, K.M. Subhedar, "CVD growth of continuous and spatially uniform single layer graphene across the grain boundary of preferred (111) oriented copper processed by sequential melting-resolidification-recrystallization, " Materials Chemistry Frontiers, 2(6), 1137-1145,2018.

[18] O.M. Van't Erve, et al., "Graphene and monolayer transition-metal dichalcogenides: properties and devices, " Journal of Materials Research, 31(7), 845-877,2016.

[19] F.C. Rufino, et al., "Definition of CVD Graphene Micro Ribbons with Lithography and Oxygen Plasma Ashing, " Carbon Trends, 4: p. 100056,2021.

[20] X. Wan, K. Chen, and J. Xu, "Interface engineering for CVD graphene: current status and progress, " Small, 10(22), 4443-4454,2014.

[21] Y. Dong, et al., "Transfer-free, lithography-free and fast growth of patterned CVD graphene directly on insulators by using sacrificial metal catalyst, " Nanotechnology, 29(36),365301,2018.

[22] J. Moon, et al., "Ultra-low resistance ohmic contacts in graphene field effect transistors, " Applied Physics Letters, 100(20), 203512,2012.

[23] H. Zhong, et al., "Graphene in ohmic contact for both n-GaN and p-GaN. Applied Physics

[32] H.C. Lee, et al., "Review of the synthesis, transfer, characterization and growth mechanisms of single and multilayer graphene," RSC advances, 7(26),15644-15693,2017.

[33] S. Hussain, et al., "A highly sensitive enzymeless glucose sensor based on 3D graphene-Cu hybrid electrode," New Journal of Chemistry, 39(9),7481-7487.2015.



Electrical behavior of graphene/SiN insulator with photolithographic contacts

M. Pourkhiabi and A. S. Kazemi*

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

Abstract: Graphene as a two-dimensional material of carbon atoms in a honeycomb lattice show that this substance is applicable in nano- and micro-scale electrical devices. In this research, small graphene flakes and large area graphene were produced through micromechanical exfoliation and chemical vapor deposition (CVD), respectively. They were further transferred on silicon nitride (SiN) insulating substrates that were previously decorated by electrical contacts. These contacts were obtained by direct and reduced photolithography. Surface characterization with optical and atomic force microscopies and Raman spectroscopy determined the number, extension, continuity of layers and purity of the surface. Current-voltage and resistance measurements were carried out via dynamic and static 4-point probes, respectively. The effect of type and dimensions of the contacts, purity of the surface and the number of graphene layers were explored. Our results demonstrated linear and nonlinear voltage behavior in single-layer and multi-layer graphene sheets, respectively.

Keywords: Extended Graphene, Chemical vapor deposition, Graphene flakes, Electrical characteristic, Surface characteristics