



EGE ÜNİVERSİTESİ

YÜKSEK LİSANS TEZİ

**İLETKEN GEÇİRGEN OKSİT İÇERMEYEN
MAVİ ORGANİK IŞIK YAYAN DİYOTLARDA
GRAFEN OKSİTİN ETKİLERİNİN
ARAŞTIRILMASI**

Fatih YEŞİL

Tez Danışmanı : Prof. Dr. Canan VARLIKLI

Güneş Enerjisi Anabilim Dalı

Sunuş Tarihi : 24.03.2017

Bornova-İZMİR

2017

EGE ÜNİVERSİTESİ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

(YÜKSEK LİSANS TEZİ)

**İLETKEN GEÇİRGEN OKSİT İÇERMEYEN
MAVİ ORGANİK IŞIK YAYAN DİYOTLARDA
GRAFEN OKSİTİN ETKİLERİNİN
ARAŞTIRILMASI**

Fatih YEŞİL

Tez Danışmanı : Prof. Dr. Canan VARLIKLİ

Güneş Enerjisi Anabilim Dalı

Sunuş Tarihi : 24.03.2017

Bornova-İZMİR

2017

Fatih YEŞİL tarafından **Yüksek Lisans** tezi olarak sunulan “**İletken geçirgen oksit içermeyen mavi organik ışıık yayan diyotlarda grafen oksitin etkilerinin araştırılması**” başlıklı bu çalışma EÜ Lisansüstü Eğitim ve Öğretim Yönetmeliği ile EÜ Fen Bilimleri Enstitüsü Eğitim ve Öğretim Yönergesi’nin ilgili hükümleri uyarınca tarafımızdan değerlendirilerek savunmaya değer bulunmuş ve **24.03.2017** tarihinde yapılan tez savunma sınavında aday oybirliği/~~oyçokluğu~~ ile başarılı bulunmuştur.

Jüri Üyeleri:

İmza

Jüri Başkanı

: Prof. Dr. Canan VARLIKLI

.....

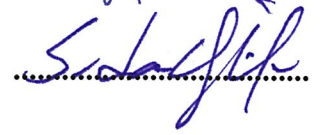
Raportör Üye

: Yrd. Doç. Dr. İlbeyi AVCI

.....

Üye

: Prof. Dr. Serdar ÖZÇELİK

.....

EGE ÜNİVERSİTESİ FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ
ETİK KURALLARA UYGUNLUK BEYANI

EÜ Lisansüstü Eğitim ve Öğretim Yönetmeliğinin ilgili hükümleri uyarınca Yüksek Lisans Tezi / ~~Doktora Tezi~~ olarak sunduğum “**İletken geçirgen oksit içermeyen mavi organik ışık yayan diyotlarda grafen oksitin etkilerinin araştırılması**” başlıklı bu tezin kendi çalışmam olduğunu, sunduğum tüm sonuç, doküman, bilgi ve belgeleri bizzat ve bu tez çalışması kapsamında elde ettiğimi, bu tez çalışmasıyla elde edilmeyen bütün bilgi ve yorumlara atıf yaptığımı ve bunları kaynaklar listesinde usulüne uygun olarak verdiğimi, tez çalışması ve yazımı sırasında patent ve telif haklarını ihlal edici bir davranışımın olmadığını, bu tezin herhangi bir bölümünü bu üniversite veya diğer bir üniversitede başka bir tez çalışması içinde sunmadığımı, bu tezin planlanmasından yazımına kadar bütün safhalarda bilimsel etik kurallarına uygun olarak davrandığımı ve aksinin ortaya çıkması durumunda her türlü yasal sonucu kabul edeceğimi beyan ederim.

24 / 03 / 2017


Fatih YEŞİL

ÖZET
İLETKEN GEÇİRGEN OKSİT İÇERMİYEN MAVİ ORGANİK IŞIK
YAYAN DİYOTLARDA GRAFEN OKSİTİN ETKİLERİNİN
ARAŞTIRILMASI

YEŞİL, Fatih

Yüksek Lisans Tezi, Güneş Enerjisi Anabilim Dalı

Tez Danışmanı: Prof. Dr. Canan VARLIKLI

Mart 2017, 80 sayfa

Bu tez çalışmasında, grafen oksit (GO), modifiye grafen oksit (mGO) ve indirgenmiş grafen oksit (iGO) katkılanmış poly(3,4-ethylenedioxythiophene)-poly(styrenesulfonate) (PEDOT:PSS) [PH1000] kompozit filmleri Anot/PEDOT:PSS[Al4083] /ADS231BE /Cs₂CO₃/Al yapısındaki bir organik ışık yayan diyot'da (OLED) anot olarak kullanılmıştır. Bu aygıtın aktif katmanında, mavi emisyonu sahip olan polihedral oligomerik silseskuioksan (POSS) grubu takılmış poli[9,9-di-(2-etilhekzil)-fluorenil-2,7-diil](ADS231BE) polimeri kullanılmıştır.

OLED'lerin yapımı ve karakterizasyonları öncesinde, elde edilen kompozit filmlerin elektriksel, optik ve morfolojik özellikleri incelenmiştir. En yüksek verim değerleri, iGO katkılanmış PH1000'in kullanıldığı OLED'ten elde edilmiştir. Anot olarak ITO nun kullanıldığı OLED'e göre ışık güç, parlılık ve dış kuantum verimlerinde sırasıyla, 1.6, 2.6 ve 2.15 katlık artışlar elde edilmiştir.

Anahtar sözcükler: Grafen oksit, İndirgenmiş grafen oksit, PEDOT:PSS, Organik ışık yayan diyot.

ABSTRACT**INVESTIGATING THE EFFECTS OF GRAPHENE OXIDE ON
TRANSPARENT CONDUCTIVE OXIDE FREE BLUE ORGANIC
LIGHT EMITTING DIODES**

YEŞİL, Fatih

MSc in Solar Energy

Supervisor: Prof. Dr. Canan VARLIKLI

March 2017, 80 pages

In this thesis, graphene oxide (GO), modified graphene oxide (mGO) and reduced graphene oxide (rGO) doped poly(3,4-ethylenedioxythiophene)-poly(styrenesulfonate) (PEDOT:PSS) [PH1000] composite films were prepared and they were used as anode in an organic light emitting diode (OLED) structure of Anode/ PEDOT:PSS[Al4083] /ADS231BE /Cs₂CO₃ /Al. Poly[9,9-di-(2-ethylhexyl)-fluorenyl-2,7-diyl] end-capped with POSS blue emitter was used as emission layer in this device.

Electrical, optical and morphological properties of the composite films were studied before the fabrication and characterization of OLEDs. The best efficiencies were obtained from the OLEDs which contain PH1000 doped with rGO. Compared to the OLED using ITO as an anode, 1.6, 2.6 and 2.15 fold increases in power, luminance and external quantum efficiencies were obtained, respectively.

Keywords: Graphene oxide, Reduced graphene oxide, PEDOT:PSS, Organic light emitting diode.

TEŞEKKÜR

Bu çalışmayı gerçekleştirdiğim süre boyunca, yanımda olan, düştüğümde kaldıran, hayata dair görüşlerimi dahada olgunlaştıran, benim için çok değerli olan, değerli bilgi ve tecrübelerini benimle paylaşan, saygıdeğer danışman hocam Prof. Dr. Canan VARLIKLI'ya sonsuz teşekkürlerimi sunarım.

Laboratuvar çalışmalarım boyunca benimle tecrübelerini paylaşan, nasıl sorusunun cevabını sıkılmadan veren İlker ÖNER ve Hakan BOZKURT'a, bazen kız kardeşim, bazen ablam hepsinden öte sonsuz dostum ve desteğini her zaman hissettiğim Halide DİKER'e, bana sıcacık bir çalışma ortamı sunan değerli ve sevgili çalışma arkadaşlarım, Erkan AKSOY, Nuriye DEMİR, Saliha ÖNER, Gamze Belkıs DURMAZ, Shirin SİYAHJANI, Görkem MEMİŞOĞLU, Ali Koray ERDİNÇ ve Fulya AYDIN'a çok teşekkür ederim.

Beni bu günlere getiren, başta babam İhsan YEŞİL olmak üzere, tüm aileme sonsuz teşekkürlerimi bir borç bilirim. Zorlu yüksek lisans sürecimde yanımda olan, beni dinleyen, enerji kaynağım Bahar GÜL'e teşekkür ederim.

Yüksek lisans eğitimimde, bursiyer olarak görev aldığım, 114M508 nolu TÜBİTAK projesine maddi desteklerinden dolayı teşekkür ederim.

Fatih YEŞİL

İÇİNDEKİLER

Sayfa

ÖZET	vii
ABSTRACT	ix
TEŞEKKÜR	xi
ŞEKİLLER DİZİNİ	xv
ÇİZELGELER DİZİNİ.....	xvii
SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ.....	xix
1. GİRİŞ.....	1
2. LİTERATÜR ÖZETİ.....	2
2.1. İletken Geçirgen Oksit (TCO)	4
2.2. ITO Alternatifi Materyaller	6
3. DENEYSEL BÖLÜM	21
3.1. Materyaller.....	21
3.2. Karakterizasyon Yöntemleri ve Cihazları	21
3.3. Aygıt Hazırlığı.....	22
4. SONUÇLAR VE TARTIŞMA	25
4.1. Optik, Morfolojik ve Elektriksel Karakterizasyonlar	25
4.1.1. PH1000 Kaplama Optimizasyonları	25

İÇİNDEKİLER (devam)Sayfa

4.1.2. PH1000:mGO Kompozit Karakterizasyonları	31
4.1.3. PH1000:iGO Kompozit Karakterizasyonları	36
4.2. Aygıt Karakterizasyonları	37
4.2.1. PH1000'nin Anot Olarak Kullanımı	37
4.2.2. PH1000:mGO Kompozitlerinin Anot Olarak Kullanımı	41
4.2.3. PH1000:iGO Kompozitlerinin Anot Olarak Kullanımı	44
5. ÖNERİLER.....	47
KAYNAKLAR DİZİNİ	48
ÖZGEÇMİŞ	67
EKLER.....	

ŞEKİLLER DİZİNİ

<u>Sekil</u>	<u>Sayfa</u>
1.1. Temel OLED aygıt yapısı ve enerji bant diyagramı.....	2
1.2. POSS grubu takılmış poli[9,9-di-(2-etilhekzil)-fluorenil-2,7-diil](ADS231BE) polimerinin kimyasal yapısı.....	3
1.3. PEDOT:PSS polimerinin kimyasal yapısı	16
1.4. Literatür verileri ile oluşturulmuştur. Ticari olarak ulaşılabilen ITO ve tez kapsamında paylaşılan bazı TCO materyallerin yüzey direnç ($\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik (%) değişimleri (Lee et al., 2014; Baik et al., 2015; Chang et al., 2015; Gaynor et al., 2013; Hecht et al., 2011a; Mirri et al., 2012; Wu et al., 2010; Geng et al., 2007; Kim et al., 2008; Liu et al., 2011; Wang et al., 2008; Zhou et al., 2015; Lee et al., 2014; Wang et al., 2011; Chen et al., 2013; Khrapach et al., 2012; Li et al., 2013; Shi et al., 2014; Alemu et al., 2012; Kim et al., 2011; Yan et al., 2015; Liu et al., 2014; Chang et al., 2010; Wu et al., 2014b; Liu et al., 2015; Wu et al., 2016).....	19
3.1. Hazırlanan aygıt yan kesit görüntüleri ve enerji diyagramı.....	22
4.1. H ₂ SO ₄ tedavisi ile PEDOT:PSS yapısında ki değişimin temsili gösterimi, a) öncesi, b) sonrası.	25
4.2. Farklı sürelerde uygulanan O ₂ plazma etkisiyle değişen geçirgenlik ve yüzey dirençleri; a) tüm görünür alan, b) 555 nm (insan gözü algı maksimumu) ve c) 420 nm (ADS231BE EL maksimumu).....	28
4.3. Anot/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs ₂ CO ₃ /Al aygıtlarının uygulanan O ₂ plazma sürelerine göre değişen a) akım yoğunluğu-gerilim, b) normalize edilmiş elektrolüminesans eğrileri.	38

ŞEKİLLER DİZİNİ (devam)

Şekil

Sayfa

- 4.4.** Anot/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının uygulanan O₂ plazma sürelerine göre değişen a) parıltı-gerilim, b) parıltı verimi-, c) ışık güç verimi- ve d) DKV-akım yoğunluğu eğrileri.....40
- 4.5.** Anot/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının farklı çözenler ile değişen a) akım yoğunluğu-gerilim, b) normalize edilmiş elektrolüminesans eğrileri.....41
- 4.6.** PH1000:çözen/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının farklı çözenler ile değişen a) parıltı-gerilim, b) parıltı verimi-, c) ışık güç verimi- ve d) DKV-akım yoğunluğu eğrileri.....41
- 4.7.** PH1000:mGO/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının a) akım yoğunluğu-gerilim, b) normalize edilmiş elektrolüminesans eğrileri.....42
- 4.8.** PH1000:mGO/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının a) parıltı-gerilim, b) parıltı verimi-, c) ışık güç verimi- ve d) DKV-akım yoğunluğu eğrileri.....43
- 4.9.** Anot/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Au boşluk iletimine izin veren aygıt mimarilerine ait Akım Yoğunluğu (*J*) – Gerilim (V) eğrileri.....43
- 4.10.** PH1000:iGO/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının a) akım yoğunluğu-gerilim, b) normalize edilmiş elektrolüminesans eğrileri.....45
- 4.11.** PH1000:iGO/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının a) parıltı-gerilim, b) parıltı verimi-, c) ışık güç verimi- ve d) DKV-akım yoğunluğu eğrileri.....45

ÇİZELGELER DİZİNİ

<u>Çizelge</u>	<u>Sayfa</u>
2.1. Katkılama ile elde edilen çok bileşenli metal oksitler (Minami, 2005).....	5
2.2. Ticari olarak erişilebilir bazı ITO kaplamalarında yüzey direnç, geçirgenlik ve kalınlık değerleri	6
2.3. Dönü kaplama metodu ile elde edilen AgNW filmlerinin kalınlık (nm), yüzey direnci ($\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik (%T) değerleri (Song et al., 2013).....	8
2.4. Literatür verileri ile oluşturulan CNT filmlerin yüzey direnci ($\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik (%T) değerleri.....	11
2.5. CVD ile hazırlanan grafen filmlerin, tabaka sayısı ve katkı malzemesine göre değişen, iş fonksiyonu (W_F) yüzey direnci ($\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik (%T) değerleri.....	12
2.6. iGO filmler için, indirgeme metodu veya indirgeyici ajan ve katkı malzemelerine göre değişen yüzey direnci ($\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik (%T) değerleri.....	14
2.7. Literatür verileri ile oluşturulan ve çeşitli tedavi yöntemleri ile elektriksel özellikleri iyileştirilen PH1000 filmlerin yüzey direnç ($\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik (%T) değerleri.....	16
2.8. Literatür verileri ile oluşturulan PEDOT:PSS-GO/iGO kompozitlerinin yüzey direnç ($\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik (%T) değerleri.....	18
4.1. PH1000'e H_2SO_4 ile tedavi ve farklı sürelerde 70 watt O_2 plazma uygulaması sonrası değişen kalınlık (nm), AFM faz görüntüleri, pürüzlülük (nm), yüzey direnci ($k\Omega/\square$) ve geçirgenlik değerleri (%T).....	27

ÇİZELGELER DİZİNİ (devam)

Çizelge

Sayfa

- 4.2.** PH1000 ve PH1000'e hacimce 15:1 oranında katkılandırılarak dimetil formaid (DMF), etilen glikol (EG) ve izopropil alkol (IPA) çözümleri ile elde edilen filmlerin AFM faz görüntüleri, pürüzlülük (nm), yüzey direnç ($k\Omega/\square$) ve geçirgenlik değerleri (%T)32
- 4.3.** PH1000 ve dimetil formaid (DMF), etilen glikol (EG) ve izopropil alkol (IPA) çözgeni içerisinde PH1000 ve PH1000:mGO kompozit filmlerinin yüzey direnç ($k\Omega/\square$) değerleri.....34
- 4.4.** PH1000 ve dimetil formaid (DMF), etilen glikol (EG) ve izopropil alkol (IPA) çözgeni içerisinde PH1000 ve PH1000:mGO kompozit filmlerinin optik geçirgenlik değerleri (%T).....34
- 4.5.** PH1000 ve PH1000'e hacimce 15:1 oranında katkılandırılarak etilen glikol (EG) çözgeni ve PH1000:mGO ile elde edilen kompozit filmlerinin AFM faz görüntüleri, pürüzlülük (nm), yüzey direnç ($k\Omega/\square$) ve geçirgenlik değerleri (%T)35
- 4.6.** PH1000 ve PH1000:DMSO(iGO) kompozit filmlerinin kalınlık (nm), AFM faz görüntüleri, pürüzlülük (nm), yüzey direnci ($k\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik değerleri (%T).....37

SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ

<u>Simgeler</u>	<u>Açıklama</u>
μ_e	Elektron yük hareketliliği
$^{\circ}\text{C}$	Celsius ölçeği cinsinden sıcaklık
σ	Elektriksel iletkenlik
nm	Nanometre
V	Volt
W	Watt
Dk	Dakika
eV	Elektronvolt
S/cm	Siemens/santimetre; <i>iletkenlik</i>
$\Omega/\square$	Ohm/yüzey alanı; <i>Yüzey direnci</i>
$\Omega\cdot\text{cm}$	Özdirenç
mg/mL	Derişim
mbar	Milibar
mm^2	Milimetrekare
M	Molar
dv/dk	Dönüş/dakika; <i>rounds per minutes</i>
cd/m^2	Kandela/metrekare; <i>Parıltı</i>
lm/W	Lümen/watt; <i>ışık güç verimi</i>

SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ (devam)

<u>Simgeler</u>	<u>Açıklama</u>
mA/cm^2	Miliamper/santimetrekare; <i>akım yoğunluğu</i>
Cd/A	Kandela/Amper; <i>Parıltı verimi</i>
<u>Kısaltmalar</u>	
OLED	Organik ışık yayan diyot
PLED	Polimerik ışık yayan diyot
PHOLED	Fosforesan organik ışık yayan diyot
EML	Aktif katman
HTL	Boşluk taşıma katmanı
HIL	Boşluk enjeksiyon katmanı
ITO	İndiyum katkılı kalay oksit
TCO	İletken geçirgen oksit
AgNW	Gümüş nanotel
CNT	Karbon nanotüp
CVD	Kimyasal buhar biriktirme
GO	Grafen oksit
mGO	Modifiye grafen oksit
iGO	İndirgenmiş grafen oksit
HOMO	En yüksek enerjili dolu moleküler orbital

SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ (devam)

Kısaltmalar

LUMO	En düşük enerjili boş moleküler orbital
W_F	İş Fonksiyonu
PEDOT:PSS	Poli(etilendioksitiyofen):poli(sitirensulfonat)
EG	Etilen glikol
IPA	İzopropil alkol
DMSO	Dimetil sülfoksit
DMF	Dimetil formamid
N_2H_4	Hidrazin
VitC	Vitamin C
RMS	Yüzey pürüzlülüğü
H_2SO_4	Sülfirik asit
VTE	Vakum termal evaporasyon
ADS231BE	Polihebral oligomerik silseskuioksan (POSS) grubu takılmış poli[9,9-di-(2-etilhekzil)-fluorenil-2,7-diil]
EL	Elektrolüminesans
AFM	Atomik Kuvvet Mikroskobu
RMS	Yüzey Pürüzlülüğü



1. GİRİŞ

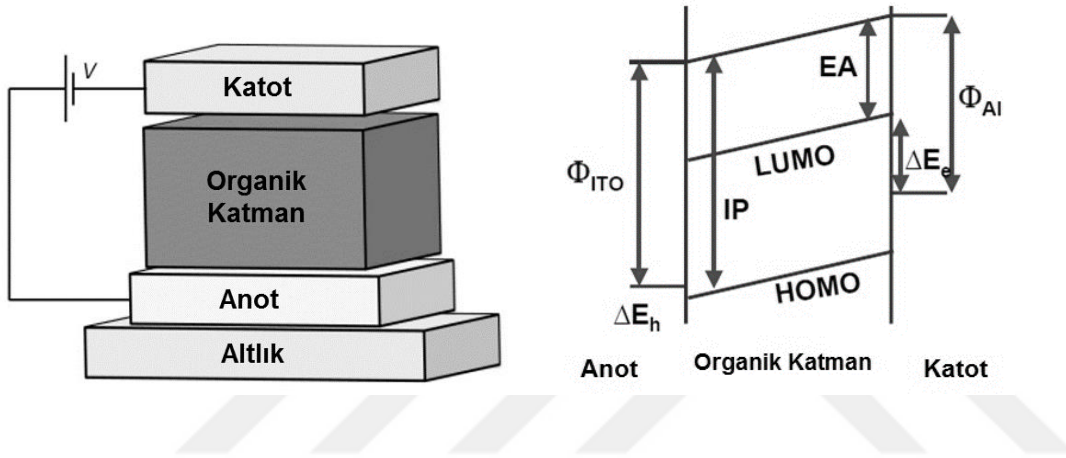
Elektrik kelimesinin, elektriğin en küçük birimi olan “elektron”dan türemesi gibi, fotonik de, ışığın en küçük birimi olan “foton”dan türemiştir. Fotonik, elektromanyetizmayı temel alan ve ışık-madde etkileşmelerinin anlaşılması ile geliştirilmiş, disiplinler arası bir bilim dalıdır (Kafafi et al., 2015). Genel olarak, ışığın üretimi, iletimi, yükseltilmesi ve algılanmasını kapsar. Işık bilimi olarak ifade edilebilir. Fotonik alanında yürütülen çalışmalar, temel bilimlerde gelişmelere yol açmasının yanı sıra; gündelik yaşamda, sağlık, enerji, iletişim, güvenlik, aydınlatma, görüntüleme, üretim teknolojileri, veri transferi ve algılama sistemleri gibi birçok alana katkı sağlamaktadır.

1980’lerin başında organik fotonik uygulamaların ilerlemesi ile organik malzemelerin kullanım alanları genişlemiştir. Malzemelerde aranan en temel özellikler; yüksek performans, düşük maliyet ve yapıya uyumluluk olarak ifade edilebilir. Organik ışık yayan diyotlar, alan etkili transistörler, fotovoltaiik hücreler, fotosensörler, lazerler ve fotorefraktif aygıtlar en yaygın organik fotonik uygulamalar olarak karşımıza çıkmaktadır.

Organik fotonik, henüz genç bir teknoloji alanıdır ve organik malzemelerden ileri besleme altında ışık oluşumu en çok çalışılan başlıkları arasında yer alır. Bu çalışma alanının, genel aydınlatma uygulamalarındaki potansiyel katkılarının yanı sıra, düz ve bükülebilir ekranlarda kullanımı söz konusudur (Bender et al., 2015). Genel olarak, organik ışık yayan diyot (OLED) olarak adlandırılan bu aygıtlarda çoğunlukla iletken geçirgen oksit (TCO) türevlerinden, indiyum katkılı kalay oksit (ITO) anot olarak kullanılmaktadır. Ancak, ITO gerek maliyeti, gerekse yapıya ve uygulama alanına uyumluluğu gibi problemleri bünyesinde barındırmaktadır. Tez çalışması kapsamında, ITO alternatifi malzemeler tanıtılarak, poli(3,4-etilendioksitofen)-poli(stirensülfonat) (PEDOT:PSS) [PH1000] ve PEDOT:PSS’e katkılanmış grafen oksitin, mavi ışık yapan bir OLED aygıtında, ITO ya alternatif oluşturma potansiyeli araştırılmıştır.

2. LİTERATÜR ÖZETİ

OLED, iki elektrot arasında bir dizi ince organik katman içeren bir aygıttır. Dışarıdan gerilim uygulandığında, elektronlar katottan, boşluklar anottan organik katmana enjekte edilirler. Organik katmanda boşluk ve elektronların ışımalı birleşimi sonucu ışık elde edilmiş olur. Bu olaya elektroluminesans (EL) denir. Elde edilen ışığın yoğunluğu, elektrotlara uygulanan elektrik akımına ve elde edilecek renk, aktif katmanda kullanılacak organik materyal özelliklerine bağlıdır. Şekil 1.1’de tipik bir OLED aygıt yapısı ve enerji bant diyagramı görülmektedir.

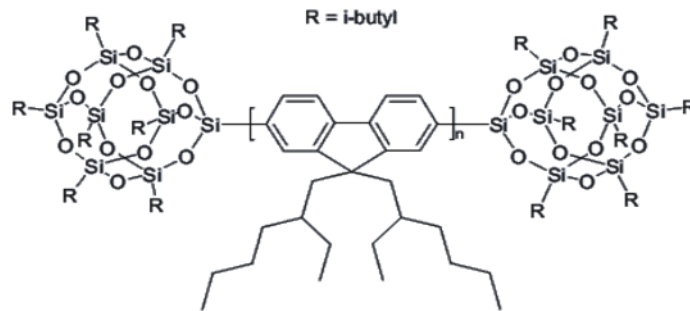


Şekil 1.1. Temel OLED aygıt yapısı ve enerji bant diyagramı

EL sürecinin bir asrı aşan tarihi, H. J. Round’un 1907 yılında, inorganik materyal olan silisyum karbür (SiC) materyalinden ışıma görmesi ile başlar (Round, 1907). Organik EL nin tespiti ise, 1953 yılında Bernanose ve ark. tarafından alternatif akıma (AC) maruz bırakılan, 3,6-akridindiamin ile yapılmıştır (Bernanose et al., 1953). Bundan 10 yıl sonra 1963 yılında, tek kristal antrasenden doğru akım (DC) altında mavi renkte EL eldilmiş ve tek katmanlı ilk OLED raporlanmıştır (Pope et al., 1963). İlk çift katmanlı OLED, 1987 yılında, ITO anot üzerine, vakum termal evaporasyon (VTE) ile yeşil emisyonu sahip alüminyum tris 8-hidroksikuinolin) (Alq₃) aktif katmanının ve katot olarak metal alaşımının kaplanması ile hazırlanmıştır. 2.5 V gerilim altında yeşil ışık elde edilmiş ve $\cong 1\%$ ’lik dış kuantum verim değeri raporlanmıştır (Tang and Vanslyke, 1987). 1990 yılında, Friend ve arkadaşları, bir poly(p-phenylene)(PPV) türevinin emisyon katmanında kullanıldığı ilk polimer tabanlı organik ışık yayan diyotu (PLED) raporlayarak, PLED literatürünü başlatmışlardır (Friend et al., 1990).

1998 yılında ilk fosforesans OLED (PHOLED) hazırlanmış, emisyon materyali olarak, organometalik kompleks olan platin-octaethylporphyrin (PtOEP) konuk malzemesini kullanılmış ve floresans ışması yapan malzemelere kıyasla etkinliğin arttığı gözlenmiştir (Forrest et al., 1998). 1990 yılında, ilk çok katmanlı mavi renkte ışık yayan OLED aygıtı raporlanmıştır. Bu aygıttan, maksimum parlaltı 700 cd/m^2 ve 10 V ileri besleme altında, 0.22 lm/W 'lık ışık güç verimi elde edilmiştir (Adachi et al., 1990). Mavi ışma yapan malzemelerde, HOMO (en yüksek enerjili dolu molekül orbital) ve LUMO (en düşük enerjili boş molekül orbital) enerji seviyeleri arasındaki yüksek bant boşluğu ışmalı birleşme ihtimalinin azalmasına ve düşük verim değerlerine sebep olur. (Jeong et al., 2015). Ayrıca, bu malzemelerin sentezinde ki zorluklar ve yüksek besleme değerleri altında dayanım problemleri nedeniyle aygıt ömür değerleri düşüktür (Chaskar et al., 2011)

Bu tez kapsamında mavi ışık yayan polihedral oligomerik silseskuioksan (POSS) grubu takılmış poli[9,9-di-(2-etilhekzil)-fluorenil-2,7-diil](ADS231BE) polimeri kullanılmıştır (Şekil 1.2). POSS gruplarının, doğrusal polimer zincirlerine ve/veya polimer içine dahil edilmesi ile zincirler arası etkileşimlerin azaldığı ve yük hareketliliğine katkı sağlandığı bilinmektedir (Wu and Mather, 2009).



Şekil 1.2. POSS grubu takılmış poli[9,9-di-(2-etilhekzil)-fluorenil-2,7-diil](ADS231BE) polimerinin kimyasal yapısı.

2.1. İletken Geçirgen Oksit (TCO)

İletken geçirgen ince filmler olarak ifade edilen bu sınıf materyaller, elektromanyetik spektrumun görünür bölgesinde yüksek optik geçirgenlik ve yüksek elektriksel iletkenliğine sahiptirler (Edwards et al., 2004). TCO adı ilk defa 1907 yılında, Karl Badeker'in, termal oksidasyon ile CdO (kadmiyum oksit) ince filmini elde etmesi ile duyulmuş ve günümüzde milyarlarca dolarlık bir endüstrinin temelleri atılmıştır (Badeker, 1907). Bir malzemenin TCO materyali olarak kullanılması için gerekli ve temel koşullar, yüksek elektriksel iletkenlik ($<10^{-3} \Omega\text{cm}$) ve görünür bölgede yüksek optik geçirgenliktir ($>80\%$) (Minami, 2005). Genellikle TCO, polikristalin veya amorf materyaller ve n-tip yarıiletken malzemeler olarak karşımıza çıkmaktadır. p-tip TCO olarak ifade edilen filmlerinin, performans ve işlenebilirlik problemleri mevcuttur. TCO üretiminde yaygın olarak, yüksek maliyetli, kimyasal ve fiziksel buhar biriktirme, magnetron püskürtme gibi yöntemler kullanılmaktadır (Exarhos and Zhou, 2007).

TCO'lar metal oksit yarıiletkenleri olup, heteroatomlar ile katkılılandırıldığında gerek iletkenlik gerekse görünür bölge optik geçirgenlik değerleri ile organik fotonik sistemlerde elektrot malzemesi olarak kullanımları mümkün olmaktadır. Çizelge 2.1'de görüldüğü gibi katkılama ile elde edilen çok bileşenli metal oksitlerde, genellikle çinko oksit (ZnO), indiyum (III) oksit (In_2O_3) ve kalay oksit (SnO_2) kullanılmaktadır (Minami, 2005). Kadmiyum oksit (CdO) ve titanyum dioksit (TiO_2) katkılı TCO materyaller yüksek sıcaklık kaplamalarına gereksinim duyarlar (Minami, 2008).

ZnO tabanlı TCO materyallerinin, düşük maliyeti, zehirli olmaması, yüksek iletkenlik ve optik geçirgenlikleri gibi avantajları vardır (Stadler, 2012). 3. Grup elementler olan Al (alüminyum), Ga (galyum), In (indiyum) ve B (bor) ile katkılılandırıldığında direnç değerlerinin TCO alternatifi olarak kullanımına uygun olduğu raporlanmıştır (Minami, 2000). Kim ve ark, Al (alüminyum) katkılanmış ZnO elektrotu (AZO) bir OLED aygıtında ilk kez kullanmıştır. Düşük iş fonksiyonu nedeniyle, referans ITO elektroduna göre, düşük verim değerleri elde etmiş olsalar da (Kim et al., 2000) p-i-n OLED aygıtında, AZO anotla, ITO'ya göre düşük çalışma gerilimi ve yüksek verim değerleri raporlayan çalışmalar da

vardır (Tomita et al., 2007). Literatürde oluşan genel kanı OLED uygulamalarında, ZnO'nun düşük iş fonksiyonun boşluk enjeksiyonuna negatif etki ederek, sistem içi yük dengesini bozduğu ve verim kayıplarına neden olduğu şeklindedir (Nayak et al., 2009). Ayrıca, organik fotonik sistemlerde geleneksel bir mimarinin izlenmesi durumunda boşluk taşıma katmanı (HTL) olarak kullanılan asidik PEDOT:PSS'e karşı kimyasal dayanım problemi nedeniyle performans problemleri yaratabilmektedir (Park et al., 2011).

Çizelge 2.1. Katkılama ile elde edilen çok bileşenli metal oksitler (Minami, 2005).

Materyal	Katkı Malzemesi
SnO ₂	Sb, F, As, Nb, Ta
In ₂ O ₃	Sn, Ge, Mo, F, Ti, Zr, Hf, Nb, Ta, W, Te
ZnO	Al, Ga, B, In, Y, Sc, F, V, Si, Ge, Ti, Zr, Hf
CdO	In, Sn
ZnO-SnO ₂	Zn ₂ SnO ₄ , ZnSnO ₃
ZnO-In ₂ O ₃	Zn ₂ In ₂ O ₅ , Zn ₃ In ₂ O ₆
In ₂ O ₃ -SnO ₂	In ₄ Sn ₃ O ₁₂
CdO-SnO ₂	Cd ₂ SnO ₄ , CdSnO ₃
CdO- In ₂ O ₃	CdIn ₂ O ₄
MgIn ₂ O ₄	
GaInO ₃ , (Ga, In) ₂ O ₃	Sn, Ge
CdSb ₂ O ₆	Y
ZnO-In ₂ O ₃ -SnO ₂	Zn ₂ In ₂ O ₅ -In ₄ Sn ₃ O ₁₂
CdO-In ₂ O ₃ -SnO ₂	CdIn ₂ O ₄ -Cd ₂ SnO ₄
ZnO- CdO-In ₂ O ₃ -SnO ₂	

İndiyum katkılı kalay oksit (ITO) sahip olduğu yüksek iletkenlik ($\approx 10^{-15} \Omega/\square$), yüksek iş fonksiyonu (4.3-4.8 eV) ve yüksek optik geçirgenliği ($\approx 90\%$) sayesinde, moleküler fotonik uygulamaların hemen hepsinde kullanılan en

popüler TCO malzemesidir (Wu et al., 2014). Ticari olarak erişilebilen bazı ITO kaplamaların özellikleri Çizelge 2.2’de verilmiştir.

Çizelge 2.2. Ticari olarak erişilebilir bazı ITO kaplamalarında yüzey direnç, geçirgenlik ve kalınlık değerleri

Özellik	Delta	Lumtec	Präzisions Glas & Optik
Yüzey direnci ($\Omega/\square$)	4 - 10	9-15	≤ 20
Görünür alan geçirgenliği (%)	>82	>84	>85
Kalınlık (nm)	150 - 200	120-160	100

Elektriksel iletkenliğin ve optik geçirgenliğin yanı sıra, TCO olarak kullanılan materyallerin aynı zamanda hafif, esnek, ucuz ve geniş alan uygulamalarına uygun olması beklenmektedir. ITO’nun kimyasal istikrarsızlığı, indiyum elementinin yüksek maliyeti, zehirli doğası ve çevresindeki organiklerle difüzyon yoluyla birleşmesi ve kırılkan yapısı yakın gelecekte olgunlaşacağı düşünülen moleküler fotonik endüstrisi için aşılması gereken bir sorundur (Kim et al., 2000; Kim et al., 2011). Bu sorunlara çözüm oluşturabilmek adına, pek çok çalışma yapılmaktadır.

2.2. ITO Alternatifi Materyaller

Xu ve ark., $\text{MoO}_3/\text{Ca:Ag}(\text{alaşım})/\text{MoO}_3$ kompozit filmini PET üzerine kaplayarak bükülebilir beyaz renkte ışık veren OLED aygıtını elde etmişlerdir. Bu anot mimarisi yüzey morfolojisi, iletkenlik ve mekanik dayanım gibi parametrelerde etkileyici sonuçlar vermiştir. Elde edilen aygıttan, dış kuantum ve ışık güç verim değerleri sırasıyla, %47.2 ve 112.4 lm/W olarak raporlanmıştır (Xu et al., 2016). Morales-Masis ve ark., mimarilerinde çinko katkılı kalay oksit (ZTO) kullanmışlar ve PET üzerinde ZTO/Ag/ZTO üç katmanlı kompozit filmini elde etmişlerdir. Elde ettikleri bu filmde $9 \Omega/\square$ gibi bir yüzey direnci ve ITO ile eşdeğer optik geçirgenlik değerlerini elde ederek, rezerv sıkıntısı bulunmayan bu elementler ile ITO’ya alternatif kompozit anot raporlamışlardır (Morales-Masis et al., 2016). Esnek OLED’lerde kullanımları ile ITO’ya direk alternatif teşkil edebilseler de, karmaşık yapım süreci ve üretim maliyetleri düşünüldüğünde, bu yapılar beklentileri karşılayamayabilir. ITO’nun yerini alabilecek ve bükülebilir

OLED teknolojisine hizmet edebilecek, grafen, grafen oksit (GO), indirgenmiş grafen oksit (iGO), karbon nanotüp (CNT), gümüş nanoteller (AgNW) ve iletken polimerler gibi malzemeler üzerinde yoğun çalışmalar yapılmaktadır (Min Cai et al., 2012; Rowell et al., 2006).

Metallerin elektronik ve optoelektronik uygulamalarda, olağanüstü elektriksel iletkenlik değerleri ile elektrot malzemesi olarak kullanımı yaygındır. Ancak, metallerin opak malzemeler olmaları nedeniyle direk TCO olarak kullanımı mümkün değildir. Örneğin; gümüş (Ag), bakır (Cu) ve altın (Au) ITO'ya nazaran 50 kat daha iletkendirler. Ancak, 7 nm kalınlığındaki Au film, $20 \Omega/\square$ yüzey direncine sahipken, 550 nanometrede %75 optik geçirgenliğe sahiptir (Hatton et al., 2003). Metal ızgaralar ve metal nanotel ağları ile bu problem çözülmeye çalışılmaktadır. Metal ızgaralar genellikle iki boyutlu ve altıgen kafes şeklindeki yapılardır. Gölge maskesi ile termal buharlaştırma ya da litografik kaplama yöntemleri ile filmleri elde edilebilmektedir (Guo et al., 2014). OLED uygulamalarında, alternatif TCO malzemesi olarak gümüş nanotel (AgNW), mekanik olarak esnekliği, gerek elektriksel ve optik özellikleri gerekse sentezinde ölçeklenebilirliği ile ilgi odağı olmuştur. Tipik bir AgNW, 20-40 nm yarıçapa ve 40 μm uzunluğa sahiptir, yarıçap ve uzunluk arttıkça, film fazında, iletkenliği ve yüzey pürüzlülüğü artmakta iken optik geçirgenliği azalmaktadır (Bergin et al., 2012). Farklı organik çözügenlerde disperse olabilmesi sayesinde ıslak kaplama süreçlerinde kullanımı mümkündür. En iyi dispersiyonu etanol çözügeninde elde edilmiştir. (Krantz et al., 2013; Hu et al., 2010). Dönü kaplama yöntemi ve farklı devir/dakika (dv/dk) değerleri ile elde edilen, farklı kalınlıklardaki AgNW filmlerinin, cam ve PET altlık üzerindeki, elektriksel ve optik özellikleri Çizelge 2.3'de özetlenmiştir. AgNW kaplama süreçlerinde yaygın olarak makaradan-makaraya ve sıyırma kaplama yöntemleri kullanılmaktadır. Lee ve ark., FeCl_2 ile katkılandırılmış oldukları AgNW filmini PET altlık üzerinde, makaradan-makaraya kaplama yöntemiyle elde etmişler ve $5 \Omega/\square$ yüzey direnci, görünür bölgede %92 optik geçirgenlik değerlerini raporlamışlardır (Lee et al., 2014). Sıyırma kaplama metoduyla elde edilen AgNW filminin, yüzey direnci ve optik geçirgenlik değerleri sırasıyla, $24.1 \Omega/\square$ ve %96.4 olarak raporlanmıştır (Baik et al., 2015). Düşük sıcaklıklarda MoO_3 ile tedavi edilen ve sıyırma kaplama yöntemiyle kaplanan AgNW filminden ise $29.8 \Omega/\square$ lik yüzey direnci ve %96.8 lik optik

geçirgenlik elde edilmiştir (Chang et al., 2015). Poliüretan akrilat polimerine AgNW katkılanmasıyla kompozit filmde $\cong\%120$ 'lik esneklik artışı raporlanmaktadır (Liang et al., 2013).

Çizelge 2.3. Dönü kaplama metodu ile elde edilen AgNW filmlerinin kalınlık (nm), yüzey direnci ($\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik (%T) değerleri (Song et al., 2013).

Altlık	Dönü Kaplama Hızı (dv/dk)	Film Kalınlığı (nm)	Yüzey direnci ($\Omega/\square$)	Optik Geçirgenlik (%T) @550 nm
Cam	600	83.2 ± 4.6	8.6 ± 0.6	90.7
Cam	800	69.6 ± 0.6	9.9 ± 0.7	94.6
Cam	1000	57.8 ± 1.1	12.0 ± 0.4	95.7
Cam	2000	40.3 ± 1.5	17.6 ± 1.6	96.5
Cam	3000	34.0 ± 1.1	23.1 ± 3.8	97.0
Cam	5000	23.7 ± 6.7	31.8 ± 2.4	98.0
PET	600	81.7 ± 3.2	10.5 ± 0.7	88.4
PET	800	66.3 ± 2.1	12.7 ± 1.6	93.5
PET	1000	56.3 ± 2.6	14.1 ± 1.0	93.9
PET	2000	38.7 ± 2.1	22.5 ± 0.6	96.9
PET	3000	31.8 ± 1.8	26.8 ± 3.6	97.3
PET	5000	21.2 ± 4.2	27.6 ± 2.7	97.5

Ancak, AgNW mükemmele yakın elektriksel ve optiksel özelliklerinin yanında, altlık yüzeyine tutunma zorluklarına da sahiptir. Yapısı itibarıyla elde edilen filmlerinde yüzey pürüzlülük değerleri ITO'ya nazaran oldukça yüksektir. Yüzey pürüzlülüğü artışı OLED aygıtlarında kaçak akım ihtimalini güdülemektedir. Bu sorunlar, AgNW-polimer kompozit filmleri ile önlenebilmektedir (Hecht and Kaner, 2011; Z. Liu et al., 2015; Ok et al., 2015). PET altlık üzerine AgNW/polivinil alkol kompoziti ile ITO'ya nazaran düşük parıltı değerine ulaşılsa da, düşük akım yoğunluklarında, daha yüksek ışık güç verimi elde edilebilmiştir (Zeng et al., 2010). AgNW/Poliakrilat kompozit anodu ile ITO'ya göre hemen hemen aynı çalışma gerilimlerinde ışığı gözlemlemiş ve parıltı veriminde $\cong\%12$ artış elde edilmiştir (Yu et al., 2011). Benzer anot mimarisi kullanılarak elde edilen bir diğer çalışmada ise, kırmızı, yeşil ve mavi

ışık eldesinde, ITO'ya göre daha yüksek akım yoğunluğu, çalışma gerilimi, parlıltı ve parlıltı verim değerleri raporlanmıştır (Li et al., 2011). Li ve ark., sonraki çalışmalarında, aynı anot yapısı ile beyaz renkte ışık veren PHOLED aygıtından, referans aygıtı göre dış kuantum verimi ve ışık güç verim değerlerinde sırasıyla, $\cong 37\%$ ve $\cong 28\%$ oranında artış elde etmişlerdir (Li et al., 2012). AgNW/polimetil metakrilat kompozit filminde yüzey direnç ve optik geçirgenlik değerleri sırasıyla, $12.5 \Omega/\square$ ve 92% olarak raporlanmış ve üzerine büyütülen beyaz OLED ile yüksek ışık güç verim değerine ($@1000 \text{ cd/m}^2$, 30 lm/W) ulaşılabilmiştir (Gaynor et al., 2013). AgNW filmlerinin yüzey pürüzlülüğü ($\cong 300 \text{ nm}$) nedeniyle OLED aygıtında, kaçak akım ve yüksek çalışma gerilimi problemlerinin önüne geçilmek adına, AgNW üzerine n-tip boşluk enjeksiyon katmanı (HIL) eklenerek aygıt boşluk enjesiyon bariyeri azaltılmakta ve daha pürüzsüz morfoloji elde edilebilmektedir. Örneğin; Lee ve ark., AgNW anodu üzerine 1,4,5,8,9,11-heksaasatridifenilen-heksakarbonitril (HAT-CN) materyalini boşluk enjeksiyonunu iyileştirmesi adına 150 nm kalınlığında kaplamış, 3.6 V çalışma gerilimi, 44.5 cd/A parlıltı verimi ve 35.8 lm/W ışık güç verimi değerlerine ulaşmışlardır (H. Lee et al., 2014). Song ve ark., AgNW/renksiz poliimid (cPI) kompozit filminin üzerine boşluk taşıma katmanı olarak PEDOT:PSS kapladıktan sonra yüksek enerjili ışınlarla maruz bırakmış ve bu etki sonucunda azalan yüzey pürüzlülüğü ile büyüttükleri OLED aygıtında, sistem içi kaçak akımlarda $\cong 10\%$ azalma raporlamışlardır (Song et al., 2015).

Karbon nanotüp (CNT)'ler, umut verici mekanik ve elektriksel özellikleriyle akademik ve ilgili endüstri alanının dikkatini üzerine çekmektedir. 1991 yılında çok katmanlı ve 1993'de tek katmanlı CNT, ilk defa raporlanmış ve karbon atomlarından oluşan silindirik nanoyapılardan söz edilmiştir (Iijima and Ichihashi, 1993). Tek katman CNT'ler, yüksek elektriksel iletkenliğe ($1 - 6 \times 10^6 \text{ S/m}$) ve yük hareketliliğine ($\mu_e > 10^5 \text{ cm}^2/\text{Vs}$) sahiptir (Hecht et al., 2011b; Shim et al., 2007). 2000'lerin başında potansiyel kullanım alanları arasında, elektrot materyali olarak kullanımının mümkün olduğu anlaşılmıştır (Baughman et al., 2002; Wu et al., 2004). Bu materyalin en büyük avantajı, uyumlu çözücülerde disperse edilerek (kloroform, dimetilformamid, sikloheksilpirolidon, diklorobenzen içinde $0.1\text{-}2 \text{ mg/mL}$) ıslak kaplama süreçlerinde kullanılabilmeleridir (Bahr et al., 2001; Bergin et al., 2008). İnce CNT filmleri, $300 \Omega/\square$ yüzey direncine ve görünür

bölgede %80 optik geçirgenliğe sahiptir. Bu değerler film kalınlığı ile değişmektedir. Aynı zamanda yüksek iş fonksiyonuna (4.5-5.2 eV) sahiptir ve n ya da p tipi katkılama ile elektronik özellikleri değiştirilebilmektedir (Li et al., 2006; Shiraishi and Ata, 2001; Takenobu et al., 2003; Ulbricht et al., 2007). Ancak, ticari OLED anot materyali olabilmeleri için bazı sorunları vardır. CNT filmlerin pürüzlülüğü (9-14 nm) nedeniyle, bitişindeki organik tabakaya boşluk enjeksiyonunda problem yaratmakta ve aygıt ömrünü azaltmaktadır. Ayrıca, geniş en-boy oranları nedeniyle film kaplandıktan sonra, film yüzeyinde dikey yönde büyüme gösterip aygıtın kısa devre yapmasına sebep olmaktadır (Rowell et al., 2006). CNT'lerin, PEDOT:PSS ile kompozitleri oluşturulduğunda, pürüzlülük değerlerinde iyileşmeye, ancak, yüzey direnç ($\cong 1000 \Omega/\square$) değerlerinde artış raporlanmıştır (Gooding, 2005). PLED lerde, 2005 yılında ilk defa Zhang ve arkadaşları, çok katmanlı CNT'leri anot materyali olarak kullanılmıştır. Çalışma gerilimi 2.4 V, maksimum parlıltı 500 cd/m^2 olarak raporlanmıştır (Zhang et al., 2005). Küçük molekül OLED'lerde, 2006 yılında, ilk defa tek katman CNT kullanımı ile ITO anot ile kıyaslanacak değerler raporlanmıştır. Elde edilen CNT'nin film kalınlığı, yüzey direnci ve optik geçirgenliği sırasıyla, 130 nm, $60 \Omega/\square$ ve %44'tür. Aygıt performansları ITO ve CNT anot için sırasıyla, çalışma gerilimi 6.2 V ve 6.6 V, parlıltı verimleri 1.9 cd/A ve 1.4 cd/A , maksimum parlıltı ise, 6000 cd/m^2 ve 2800 cd/m^2 'dir (Aguirre et al., 2006). CNT'lerin çeşitli tedavi yöntemleri ile elektriksel özellikleri iyileştirilebilmektedir (Feng et al., 2009; Kim et al., 2010). OLED'lerde, CNT anot olmak üzere, en yüksek performansın elde edildiği ve plastik altlık üzerine yapılan çalışmada, HNO_3 (nitrik asit) çözeltisine daldırma ile iletkenlik değerleri iyileştirilmiş ($102.9 \Omega/\square$), PEDOT:PSS ile yüzey modifiye edilerek pürüzlülük iyileştirilmiş (6 nm) ve sonucunda 9000 cd/m^2 maksimum parlıltı, 10 cd/A maksimum parlıltı verim değerlerine ulaştırılmıştır. Aynı zamanda bu anot mimarisinde en uzun aygıt ömrü raporlanmıştır (Ou et al., 2009). Çizelge 2.4'de organik fotonik uygulamalarda TCO olarak görev almak üzere CNT ile hazırlanan ve altlık, kaplama metodu, katkı malzemesi gibi farklandırılmalarla elde edilmiş, yüzey direnci ($\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik (%T) baz alınarak oluşturulmuş literatür verileri yer almaktadır.

Çizelge 2.4. Literatür verileri ile oluşturulan CNT filmlerin yüzey direnci ($\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik (%T) değerleri.

Altılık	Kaplama Metodu	Katkı Malzemesi	Yüzey direnci ($\Omega/\square$)	Optik Geçirgenlik (%T)	Kaynak
PET	Filtrasyon	-	60	90.9	(Hecht et al., 2011a)
Cam	Daldırma Kaplama	-	140	88	(Mirri et al., 2012)
PET	Dönü Kaplama	HNO ₃	80	85	(Geng et al., 2007)
PET	Sıyırma Kaplama	HNO ₃	68	89	(Kim et al., 2008)
Cam	Filtrasyon	HNO ₃	76	82	(Liu et al., 2011)
Kuartz	Filtrasyon	SOCl ₂	56	78	(Y. Wang et al., 2008)
Cam	Sprey Kaplama	MoO ₃	100	85	(Hellstrom et al., 2012)
Cam	Sıyırma Kaplama	CuCl	65	85	(Zhou et al., 2015)
PET	Filtrasyon	Gümüş Nanotel	26	90	(J. Lee et al., 2014)

Bir atom kalınlığa sahip, karbon atomlarının hekzagonal düzenlenmesinden meydana gelen grafen eşsiz elektronik ve optik özellikleri nedeniyle oldukça ilgi çekmektedir. Grafen geniş yüzey alanı, optik geçirgenliği (tek tabaka grafen için %97.7), üstün elektriksel iletkenliği ($\mu\epsilon > 15000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$), kimyasal ve mekanik dayanımı bakımından sahip olduğu özellikler nedeniyle ITO'nun yerini alabilmeye aday bir malzemedir (Du et al., 2014; Han et al., 2015). Ancak, tek tabaka grafenin yüzey direncinin $500 \Omega/\square$ 'den fazla ve iş fonksiyonunun düşük olması moleküler elektronik uygulamalarında doğrudan elektrot olarak kullanımını zorlaştırmaktadır (Zhu et al., 2013). Grafenin iş fonksiyonun artırılması ve tabaka direncinin düşürülmesi için genellikle farklı organik ya da inorganik malzemeler kullanılarak katkılandırılmış grafen hibrit sistemleri oluşturulmaktadır (Lee and Ahn, 2013; Shin et al., 2013). Kimyasal buhar biriktirme yöntemi (CVD) ile büyütülen ve farklı altlıklar üzerine transfer edilen grafen için tabaka sayısı ve katkılama ile değişen yüzey direnç ($\Omega/\square$), optik geçirgenlik (%T) ve iş fonksiyonu (W_F) değişimleri Çizelge 2.5'de özetlenmiştir.

Çizelge 2.5. CVD ile hazırlanan grafen filmlerin, tabaka sayısı ve katkı malzemesine göre değişen, iş fonksiyonu (W_F) yüzey direnci ($\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik (%T) değerleri.

Altlık	Katkı Malzemesi	Tabaka Sayısı	İş fonksiyonu W_F (eV)	Yüzey direnci ($\Omega/\square$)	Optik Geçirgenlik (%T)	Kaynak
Cam	-	1	-	2100	97.5	(Li et al., 2009)
		2		1000	95	
		3		600	93	
		4		350	90	
PET	AuCl_3	1	-	301	96.6	(Güneş et al., 2010)
		2		111	90.5	
		3		93	87	
		4		58	83.5	
Kuartz	HNO_3+HCl	4	-	80	90	(Wang et al., 2011)
PET	AgNW	1		22	88	(Chen et al., 2013)
Cam	TCNQ	4	-	182	88	(Hsu et al., 2012)
Cam	FeCl_3	5	-	8.8	84	(Khrapach et al., 2012)
PET	-	5	4.4	240	87.9	(Donghyuk Kim et al., 2013)
	TFSA		5.1	90	88	
PET	-	3	4.45	89	-	(Han et al., 2012)
	HNO_3		4.62	50		
	AuCl_3		5.0	30		
PET	-	1	4.7	$\cong 1000$	$\cong 97$	(Li et al., 2013)
	$\text{OA}+\text{MoO}_3$		5.1	<200	$\cong 95$	
PET	MoO_3	1	4.7	94	-	(Meyer et al., 2014)
	MoO_3	3		89	70	
PET	-	3	-	330.3	88	(J. Lee et al., 2016)
	TiO_2			92.5	90	

CVD ile elde edilen grafenlerin, tabaka sayısı ve katkılandırılması sonucunda yüzey dirençlerinin ve iş fonksiyonlarının OLED uygulamalarında ITO alternatifi olarak kullanımlarına olanak verecek değerlere ulaştığı açıkça görülmektedir. Trifluorometansülfonik asit (TFSA) katkılama sonucu oluşturulan anot yapısı üzerine büyütülen sarı renkte OLED aygıtında, ITO'lu aygıt ile hemen hemen aynı verim değerlerine ulaşılmıştır (D. Kim et al., 2013). Nitrik asit (HNO_3) ve altın (III) klorit (AuCl_3) katkısı sonucunda elde edilen kompozitleri ile OLED aygıtlarında, ışık güç veriminde sırasıyla, $\approx 37\%$ ve $\approx 4\%$ ’lük iyileşme raporlanmıştır (Han et al., 2012). Tek katman grafene, trietiloksonyum heksakloroantimonat (OA) ve molibden trioksit (MoO_3) katkısı ile oluşturulan anot üzerine büyütülen ve yeşil ve beyaz renkte ışık veren organiklerle elde edilen OLED aygıtlarının, ışık güç verimi ve parlıltı verimlerinde sırasıyla, yeşilde, $\approx 25\%$ ve $\approx 13\%$, beyazda, $\approx 12\%$ ve $\approx 18\%$ iyileşme gözlenmiştir (Li et al., 2013). Katkılandırma sonucunda grafen temelli anot ile boşluk transfer katmanı arasındaki potansiyel farkının azalmasına bağlı olarak anottan boşluk transfer katmanına etkin bir şekilde boşluk enjeksiyonunun gerçekleşmesinin nihai OLED performanslarını iyileştirdiği anlaşılmaktadır (J. Wu et al., 2010) Literatürde TCO alternatifi grafen için raporlanan son çalışmada, çok katmanlı grafen CVD ile büyütülmüş ve zayıf ozon tedavisine maruz bırakılarak oksidasyona uğraması sonucu grafen/GO kompozit anodu elde edilmiştir. Bu yapıda, $\approx 94\%$ optik geçirgenlik, $268 \Omega/\square$ yüzey direnci ve 5.3 eV’lik iş fonksiyonu elde edilmiş olup oluşturulan OLED aygıtlarından, ışık güç ve parlıltı verim değerlerine göre CVD grafen anot mimarisinde en iyi performans verilerine ulaşılmıştır. Burada etkin rol oynayan faktörün artan iş fonksiyonu ile boşluk taşıma katmanına yük enjeksiyonun iyileşmesi olduğu işaret edilmiştir (Jia et al., 2016). Ancak, CVD yüksek kalitede grafen tabakalarının üretime izin veren bir yöntem olmakla birlikte, yüksek maliyetli yatırım gerekliliği aşılması gereken bir sorundur. Son yıllarda kimyasal süreçlere dayalı hazırlık yöntemleri önem kazanmıştır (Eigler et al., 2013).

Çok sayıdaki grafen tabakasından oluşan grafitin, grafit oksite yükseltgenmesi ve mekanik süreçler ile grafit oksidin yapraklaştırılması ile elde edilen GO’lar düşük maliyetleri, işleme kolaylığı ve ölçeklenebilirliği ile yüksek kalite ve kapasitede, grafen tabanlı TCO üretimine katkı sağlamaktadır (Chang

and Wu, 2013; Lee and Ahn, 2013; Konios et al., 2015). GO'lar yüksek hidrofilikliği sayesinde su ve birçok organik çözügede disperse olabilmekte ve homojen dispersiyonları ile TCO kullanımında ıslak kaplama süreçlerine izin vermektedir (Yun et al., 2015). GO tabakalarında yer alan oksijenli fonksiyonel gruplar yapıdaki π elektronlarının delokalize konjugasyonunu bozarak yapıya yalıtkan ($\approx 10^{12} \Omega/\square$) özellik kazandırır ve direk TCO olarak kullanımları mümkün değildir (Becerril et al., 2008). Islak kaplama ile elde edilen GO filmine AgNW katkılanması sonucu $24.8 \Omega/\square$ yüzey direnci ve %92 optik geçirgenlik elde edilmiştir (Moon et al., 2013). Dönü kaplama metodu ile, CNT katkılanarak elde edilen GO/CNT kompozit filmi ile $240 \Omega/\square$ yüzey direnci ve görünür bölgede %86 optik geçirgenlik raporlanmıştır (Tung et al., 2009).

GO'ların çeşitli indirgeme süreçleri ve katkılama ile iletkenlikleri iyileştirilerek TCO olarak kullanılmak üzere indirgenmiş GO (iGO) elde edilmektedir. Bu süreçler, katkı malzemeleri ve yüzey direnç ($\Omega/\square$), optik geçirgenlikleri (%T), literatür verileri ile oluşturulan Çizelge 2.6'da paylaşılmıştır.

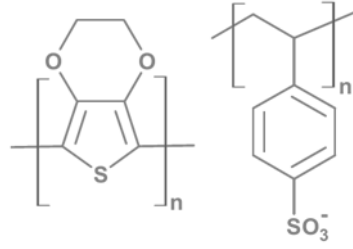
Çizelge 2.6. iGO filmler için, indirgeme metodu veya indirgeyici ajan ve katkı malzemelerine göre değişen yüzey direnci ($\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik (%T) değerleri.

Kaplama Metodu	İndirgeme Metodu/ Ajanı	Katkı Malzemesi	Yüzey direnci ($\Omega/\square$)	Optik Geçirgenlik (%T)	Kaynak
Daldırma Kaplama	Termal (1100 °C)	-	900	70	(Wang et al., 2008)
Daldırma Kaplama	Termal (1000 °C)	CTAB	298	60	(Wu et al., 2014a)
Filtrasyon	Hidrojen iyodür (HI)	HNO ₃	565	91	(Konios et al., 2015)
Daldırma Kaplama	Hidrazin	-	21750	82	(Zhao et al., 2014)
Sıyırma Kaplama	Sn	-	6700	81	(Ning et al., 2014)
Dönü Kaplama	Termal (1100 °C)	-	≈ 800	82	(Wu et al., 2010)
Dönü Kaplama	Hidrazin	AgNW	48	91.2	(Shi et al., 2014)

iGO'ların OLED aygıtında doğrudan anot olarak kullanımında ITO ya göre gerek elektriksel (oksijenli fonksiyonel gruplar, GO tabakalar arası kontak direnci), gerekse kaplama metodu kaynaklı (daldırma kaplama) optiksel hatalar ve aygıt performanslarında kayıplar oluşmaktadır. Örneğin; ITO'lu aygıtta 3.8 V çalışma gerilimi ölçülürken, bu değer iGO anot mimarisinde 4.5 V seviyelerine çıkmaktadır. 300 cd/m² lik parlaltı için ITO ve iGO sırasıyla, 9.9 V ve 11.7 V potansiyele gereksinim duyulmaktadır (Junbo Wu et al., 2010). iGO ların katkılama ile kompozitleri oluşturularak yeşil ışık veren ve EML katmanı VTE ile oluşturulan OLED'lerde anot olarak kullanımlarında, iGO'nun yüksek iş fonksiyonu ile HTL ile anot arası enerji bariyeri azalarak ITO'ya göre, düşük çalışma gerilimi, daha yüksek akım yoğunlukları ve parlaltı değerleri gözlenmiştir. (Wu et al., 2014a).

İletken polimerler, yüksek elektriksel ve mekaniksel özellikleri ile TCO alternatifi malzemeler arasında en çok ilgi çeken başlıklardandır. Düşük maliyet, hafiflik, mekanik esneklik ve plastik yüzeyler ile mükemmel uyumluluk gibi diğer TCO malzemelerle karşılaştırıldığında birçok avantajı vardır. Politiyofen (PT), poli(para-fenilen vinilen) (PPV), polianilin (PANI), Polipirol (PPy) ve poli (3,4-etilendioksitiyofen) (PEDOT) en yaygın kullanılan iletken polimerlerdir (Heeger et al., 1977; Lee et al., 2013; Wang et al., 2013).

1988 yılında geliştirilen yeni bir politiyofen türevi olan PEDOT'ın çözünme problemleri nedeniyle, suda çözünebilen ve yalıtkan olan polielektrolit türevi poli(stirensülfonat) (PSS) eklenerek, ıslak kaplama süreçlerine izin veren PEDOT:PSS elde edilmiştir (Şekil 1.3). PEDOT:PSS, kendinden sonra gelen organik katmanın HOMO seviyesi ile ITO'nun iş fonksiyonu arasındaki enerji bariyerini azaltması ve ITO yüzeyinin pürüzlü yapısını düzeltmesi nedeniyle OLED'lerde en yaygın kullanılan boşluk taşıma katmanıdır. PEDOT:PSS'in TCO alternatifi olarak kullanımı ise son yıllarda artan bir ivmeyle ilerlemektedir. PEDOT:PSS sisteminde PSS miktarı değiştirilerek iletkenlik değerleri iyileştirilebilmektedir (10^{-3} -1 S/cm) ve PH1000 (PEDOT:PSS, 1:2.5) kodu ile bilinen malzeme en yaygın denenen formudur (Stöcker et al., 2012).



Şekil 1.3. PEDOT:PSS polimerinin kimyasal yapısı

PH1000'in organik çözgen ve asit tedavisi gibi yöntemlerle iletkenlik değerinin iyileştirilmesi mümkündür. Çizelge 2.7'de PH1000'e uygulanan yöntem ve elde edilen yüzey direnci ($\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik (%T) değerleri yer almaktadır.

Çizelge 2.7. Literatür verileri ile oluşturulan ve çeşitli tedavi yöntemleri ile elektriksel özellikleri iyileştirilen PH1000 filmlerin yüzey direnci ($\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik (%T) değerleri.

Kaplama Metodu	Yöntem	Yüzey direnci ($\Omega/\square$)	Optik Geçirgenlik (%T)	Kaynak
Dönü Kaplama	Heksafluoroaseton(HFA) ile tedavi	172	80	(Xia et al., 2012a)
Daldırma Kaplama	Kaynama noktasındaki Metanol içerisinde daldırma	147	85	(Alemu et al., 2012)
Daldırma Kaplama	Hacimce %6 Etilen glikol (EG) katkısı + EG buharında bekletme	≈ 65	≈ 80	(Kim et al., 2011)
Dönü Kaplama	Hacimce %5 dimetil sülfoksit (DMSO) katkılama	199	90	(Yan et al., 2015)
Dönü Kaplama	İyonik Sıvı (1-etil-3-metilimidazolyum tetraşyanoborat) katkılama	74	96	(Badre et al., 2012)
Dönü Kaplama	Kuvvetli asit ile tedavi (160 °C'de 5dk 1.5 M H ₂ SO ₄ tedavisi)	70.36	90	(Liu et al., 2014)
Dönü Kaplama	Zayıf (Organik) asit ile tedavi (160 °C'de 8 M CH ₃ SO ₃ H tedavisi)	120	-	(Ouyang, 2013)
Daldırma Kaplama	Vakum buhar fazlı polimerizasyon	45	80>	(Fabretto et al., 2012)
Dönü Kaplama	EG buharında bekletme	105	≈ 85	(Yousefi et al., 2016)
	H ₂ SO ₄ buharında bekletme	134		

Polietilenimin/Ag/PH1000 ile oluşturulan kompozit mimarisinde, $<10 \Omega/\square$ yüzey direnci ve görünür bölgede %95 optik geçirgenlik değerleri elde edilmiştir (Kang et al., 2015). PH1000(35nm)/Au(15 nm)/PH1000(35 nm) kompoziti ile $20.9 \Omega/\square$ yüzey direnci ve optik geçirgenlik %82.6 elde edilmiş olup, Au kalınlığı arttırıldıkça yüzey direncinde ($6.7 \Omega/\square$, 25 nm) düşüş gözlenmiştir (Aleksandrova et al., 2016). PH1000'in OLED aygıtlarında ITO yerine TCO olarak kullanıldığı çalışmalarda genellikle, anot hariç diğer katmanları pahalı olan VTE kaplama yöntemi ile büyütülmektedir. p-Toluensulfonat katkılı PH1000, PET altlık üzerine ince filmi oluşturularak üzerine büyütülen OLED aygıtında maksimum 4500 cd/m^2 parlıltı ve 260 mA/cm^2 akım yoğunluğunda 1.75 cd/A parlıltı verim değerleri elde edilmiştir (M. Kim et al., 2011). EG katkılama ve buharında bekletme yoluyla $226 \Omega/\square$ ve %79 optik geçirgenlik elde edilen çok katmanlı PH1000 anodu üzerine büyütülen yeşil renkte ışık veren OLED aygıtında referans ITO anoda göre, ışık güç, parlıltı ve dış kuantum verim değerlerinde sırasıyla $\cong\%43$, $\cong\%62$ ve $\cong\%66$ artış raporlanmıştır (Min Cai et al., 2012). DMSO katkılama ile elde edilen filmi üzerine büyütülen OLED aygıtında ise, referans aygıtı göre çalışma gerilimi azalması ile artan boşluk enjeksiyonu sonucu performans değerleri iyileşmiştir (Wang et al., 2009; De Girolamo Del Mauro et al., 2012). PH1000 $\cong 5 \text{ eV}$ iş fonksiyonuna sahiptir ve polar çözgen olan DMSO buharında bekletme ile TCO olarak kullanımı mümkün kılınan filmde $\cong 5.35 \text{ eV}$ iş fonksiyonu raporlanmıştır (Yeo et al., 2012). PH1000'e, cam altlık üzerinde H_2SO_4 tedavisi ve PET altlık üzerine transfer edilerek elde edilen OLED aygıtlarında, PET altlık üzerine büyütülen aygıtta cama göre, %38 parlıltı verim iyileşmesi raporlanmış ve bu artış yüzey pürüzlülüğünün azalmasına bağlanmıştır (Liu et al., 2014). Serigrafi yöntemiyle oluşturulan film ile beyaz OLED aygıtında, 1000 cd/m^2 'de 10.8 lm/W ışık güç verim değerine ulaşılabilmiştir (Wang et al., 2012). Dönü kaplama metodu ve hidroiyodik asit (HI) çözeltisine daldırılarak elde edilen filmi üzerine büyütülen OLED aygıtında, referans ITO anoda göre, anot ve HTL arası enerji bariyeri azalması ile artan verim değerleri raporlanmıştır (Wu et al., 2015a).

PH1000 anot üzerine katot hariç tüm diğer katmanların ıslak kaplama süreçleri ile hazırlandığı OLED çalışma sayısı oldukça azdır. Bu çalışmalardan birinde, PH1000 DMSO ile katkılanarak dönü kaplama yöntemiyle 240 ve 60 nm

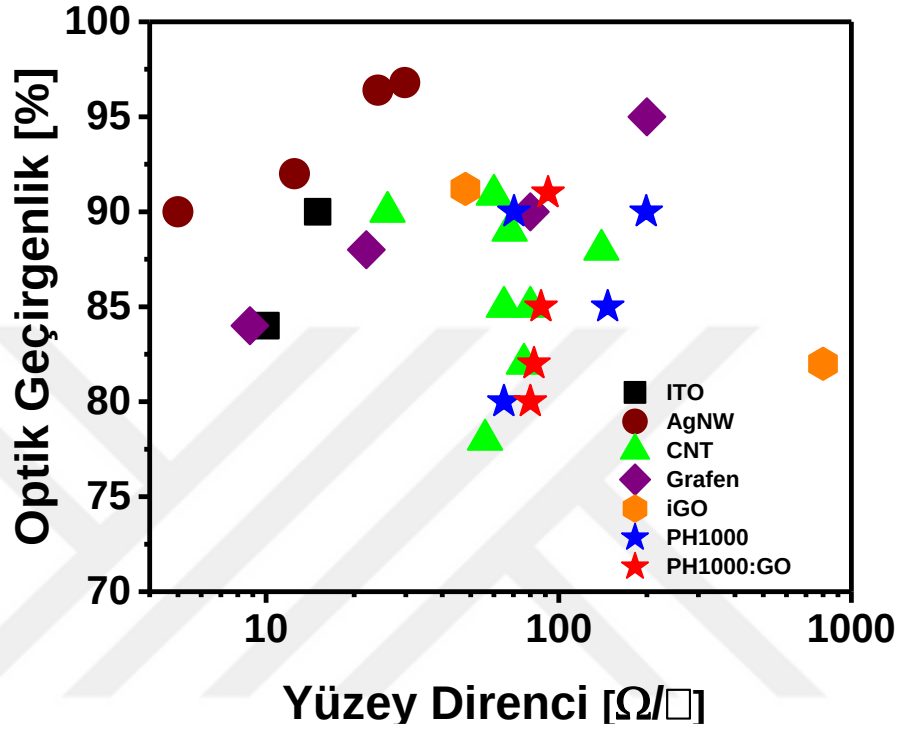
kalınlığındaki filmleri hazırlanmıştır. Hazırlanan filmler sırasıyla, $51 \Omega/\square$ ve $210 \Omega/\square$ yüzey direnç değerlerine, %62 ve %92 optik geçirgenliğe sahiptir. Ancak filmlerin üzerine büyütülen PLED aygıtlarında, yine sırasıyla, optik ve elektriksel kayıplar nedeniyle düşük verim değerleri raporlanmıştır (Chun-Jun et al., 2010). Tüm katmanları ıslak kaplama ile büyütülen, DMSO katkılama ile elektriksel özellikleri iyileştirilen PH1000 anot ve PH1000/AgNW katot olmak üzere, elde edilen sarı (Super Yellow-SY) ve mavi (Merck Mavisi) renkteki OLED aygıtlarında, maksimum parlıltı ve parlıltı verimleri sırasıyla, 4020 ve 500 cd/m^2 , 20.1 ve 2.5 cd/A olarak raporlanmıştır (Zhang et al., 2015).

Grafen türevleri ile iletken polimerlerin birbiri içinde karıştırılması suretiyle grafen-iletken polimer kompozitleri hazırlanabilmektedir. Bu kompozitler ıslak kaplama süreçlerine uyumlu olmakla birlikte, bunlardan oluşturulan ince filmlerin tabaka direnç ve iş fonksiyon değerleri, grafen-iletken polimer kompozitlerinin OLED’lerde TCO alternatifi olarak kullanılmalarına da olanak sağlamaktadır (Singh et al., 2012). PEDOT:PSS(PH1000)’in, yüksek iletkenliğe ($\geq 300 \text{ S/cm}$) ve optik geçirgenliğe ($\cong \%80$) sahip olması sayesinde grafen türevleri ile kompozitlerinin, TCO olarak hizmet edebildiği, literatür örnekleri Çizelge 2.8’de özetlenmiştir.

Çizelge 2.8. Literatür verileri ile oluşturulan PEDOT:PSS-GO/iGO kompozitlerinin yüzey direnç ($\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik (%T) değerleri.

Kaplama Metodu	Kompozit Malzeme	Yüzey direnci ($\Omega/\square$)	Optik Geçirgenlik (%T)	İş fonksiyonu W_F (eV)	Kaynak
Dönü Kaplama	PEDOT:PSS-iGO SDBS	80	80	-	(Chang et al., 2010)
Dönü Kaplama	PEDOT:PSS-GO SDBS	87	85	5.1-5.2	(Wu et al., 2014b)
Dönü Kaplama	PEDOT:PSS-GO	82.3	82	5.32	(Liu et al., 2015)
Dönü Kaplama	PEDOT:PSS-GO	90	92	5.1-5.2	(Wu et al., 2015b)
Dönü Kaplama	PEDOT:PSS-GO	92	91	4.92	(Wu et al., 2016)

ITO alternatifi olarak sunulan; AgNW, CNT, grafen, iGO, PH1000 ve PH1000:GO kompozit filmleri için, yüzey direnci ($\Omega/\square$) ve tekabül eden optik geçirgenlik (%) değerleri Şekil 1.4'te verilmiştir.



Şekil 1.4. Literatür verileri ile oluşturulmuştur. Ticari olarak ulaşılabilen ITO ve tez kapsamında paylaşılan bazı TCO materyallerin yüzey direnç ($\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik (%) değişimleri (Lee et al., 2014; Baik et al., 2015; Chang et al., 2015; Gaynor et al., 2013; Hecht et al., 2011a; Mirri et al., 2012; Wu et al., 2010; Geng et al., 2007; Kim et al., 2008; Liu et al., 2011; Wang et al., 2008; Zhou et al., 2015; Lee et al., 2014; Wang et al., 2011; Chen et al., 2013; Khrapach et al., 2012; Li et al., 2013; Shi et al., 2014; Alemu et al., 2012; Kim et al., 2011; Yan et al., 2015; Liu et al., 2014; Chang et al., 2010; Wu et al., 2014b; Liu et al., 2015; Wu et al., 2016;).

Yakın tarihlerde başlayan grafen türevi/PEDOT:PSS kompozit anodu ile oluşturulan OLED aygıtları umut vaat edici performanslar göstermiştir. Grafenin, sodyum dodesilbenzen sülfonat (SDBS) varlığında oluşturulan grafen türevi iGO ve PH1000 ile kompozit filmi oluşturulan OLED aygıtında, referansa göre çalışma gerilimi 0.3 V yükselmiş ve 3.9 cd/A parlıltı verim değeri elde edilmiştir (Chang et al., 2010). Benzer şekilde oluşturulan kompozit anodu ile yeşil OLED aygıtında kütlece grafen türevi katkısının artırılması ile referans ITO aygıtı göre artan verim değerleri raporlanmıştır (Wu et al., 2014b). PH1000'e GO katkısı ve H_2SO_4 ile tedavisi ile elde edilen kompozit filmde artan GO miktarına karşılık

artan yüzey direnci saptanmış ve elde edilen OLED aygıtlarında optimum PH1000:GO oranı 15:1 olarak raporlanmıştır (Liu et al., 2015). Bu katkılama ardından filmin hidroiyodik asit (HI) çözeltisine daldırılmak suretiyle oluşturulan anot mimarisi ve OLED aygıtında, daha düşük potansiyellerde daha yüksek parlaltı değerleri elde edilmiştir (Wu et al., 2015b). Benzer anot mimarisi ele alınarak yapılan bir diğer OLED aygıtında kütlece %0.01 GO katkısı ile maksimum verim değerleri raporlanmıştır (Wu et al., 2016).

PEDOT:PSS/iGO ya da PEDOT:PSS/GO kompozitlerinin saydam iletken elektrot olarak kullanıldığı OLED performansları, bu kompozitlerin ITO alternatifi olma yolunda umut vaat edici malzemeler olduğunun göstergesidir. Bununla birlikte, ulaşılabilen literatürde bu kompozitlerinin ITO alternatifi olarak kullanıldığı çalışmalar kısıtlıdır ve üzerlerine büyütülen EML katmanları vakum termal evaporasyon yolu ile hazırlanmıştır. PEDOT:PSS-iGO ya da PEDOT:PSS/GO elektrotların üzerine maliyet etkin ıslak kaplama yöntemleri ile EML büyütülmesi ile hazırlanan aygıt performans raporuna ulaşılabilen literatürde rastlanmamıştır.

Bu tez kapsamında GO, modifiye edilmiş GO, hidrazin ve vitamin C (VitC) ortamında elde edilen iGO'nun PH1000'e katkılandırılarak oluşturulan kompozitlerinin ıslak kaplama ile hazırlandığı mavi ışık yayan OLED aygıtında, TCO alternatifi olarak kullanımı araştırılmış ve performans değerlendirmeleri sunulmuştur.

3. DENEYSEL BÖLÜM

3.1. Materyaller

Aygıtların hazırlığında, referans anot malzemesi olan, cam altlık üzerine kaplanmış şekilde 150 nm kalınlıktaki ve $15 \Omega/\square$ yüzey direncine sahip olan ITO, Lumtec firmasından temin edildi. Poli(3,4-etilendioksitiofen)-poli(stirensülfonat) (PEDOT:PSS) (A14083) ve iletken formu olan PH1000 Clevious tan alınarak sırasıyla boşluk taşıma katmanı ve anot alternatifi olarak kullanıldı. Ege Üniversitesi Güneş Enerjisi Enstitüsü doktora öğrencilerinden Halide Diker'in doktora tezi kapsamında hazırlanan GO, modifiye GO (mGO) ve indirgenmiş (iGO), PH1000'e katkılanarak anot olarak kullanıldı [mGO türevleri, dipropilamin (DPRYL-), n-propilamin (n-PRYL-) ve propanolamin (PRPOH-) ile modifikasyon sonucu elde edilmiştir]. Mavi renkte emisyonu sahip poli[9,9-di-(2-etilhekzil)-fluorenil-2,7-diil] (ADS231BE) polimeri American Dye Source firmasından satın alındı. Elektron taşıma materyali olarak kullanılan sezyum karbonat (Cs_2CO_3), elektrot materyalleri olarak kullanılan alüminyum (Al) ve kullanılan çözümler [aseton, izopropil alkol (IPA), klorobenzen, dimetilformamid (DMF), etilen glikol (EG) ve dimetil sülfoksit (DMSO)] ve asitler [hidroklorik asit (HCl) ve sülfirik asit (H_2SO_4)] Sigma Aldrich ten temin edildi.

3.2. Karakterizasyon Yöntemleri ve Cihazları

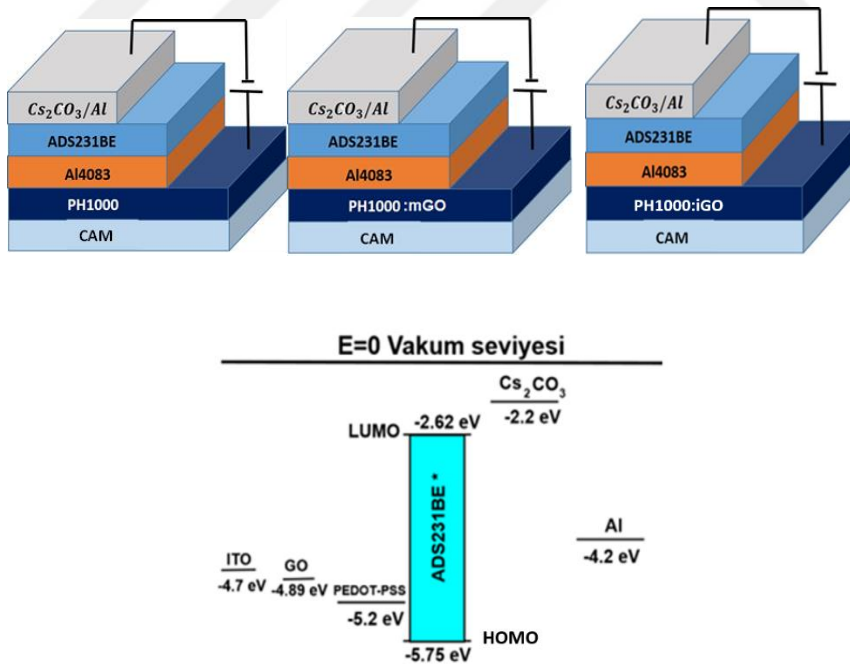
Altlık temizliğinde Elma Transsonic T460H marka ultrasonik banyo, CUTE FC-10046 marka O_2 plazma sistemi kurutma ve tavlama işlemlerinde Nüve EV018 marka vakum etüvü, kullanıldı. Optik geçirgenlik ölçümleri UV-Vis Spektrofotometre (Analytic Jena S 600 UV spectrophotometer), yüzey direnç ölçümleri Four Point Probe (Signatone PRO4-400, kaplamalarda 20 noktadan ölçüm alınarak standart sapma değerleri ile birlikte sunulmuştur). Film kalınlığı ölçümleri Ambios Q1 Profilometre cihazlarının kullanımı ile gerçekleştirildi. Filmlerin morfolojik görüntüleri Ambios Qscope 250 Model Atomik Kuvvet Mikroskopu (AFM) ile elde edildi. Kaplamalar, Laurell WS-400B-6NPP LITE marka dönü kaplama cihazı ve eldivenli kutu (glove box) içine entegre bir vakum termal evaporator kullanımı ile yapıldı. Hazırlanan OLED aygıtlarının performans

değerlerinin tespitinde MBRAUN 200B eldivenli kutu içerisinde yer alan Hamamatsu C9920-12 kuantum verimi ölçüm sistemi (entegre kürelî) ve Keithley 2400 güç kaynağı kullanıldı.

3.3. Aygıt Hazırlığı

Mavi ışık yayan ve ıslak kaplama süreçleri ile hazırlanan bir organik diyotta, PH1000-mGO ve PH1000-iGO kompozitlerinin TCO alternatifi olarak kullanımları için hazırlanan aygıtların yan kesit çizimleri ve enerji diyagramı Şekil 3.1’de verilmiştir. Genel yapıları aşağıdaki gibidir:

1. CAM/ITO/Al4083/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al [referans]
2. CAM/PH1000/Al4083/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al
3. CAM/PH1000:çözgen/Al4083/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al
4. CAM/PH1000:mGO/Al4083/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al
5. CAM/PH1000:iGO/Al4083/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al



Şekil 3.1. Hazırlanan aygıt yan kesit görüntüleri ve enerji diyagramı.

1 nolu aygıt referans aygıt olarak kullanılmak üzere hazırlandı. 3x3 cm boyutunda ITO kaplı cam yüzeyden, mimariye uygun bir biçimde, bir kısım ITO, hidroklorik asit (HCl) ile uzaklaştırıldı. Daha sonra sırası ile saf su, aseton ve izopropil alkolde 15'er dakika (dk) boyunca ultrasonik temizlik işlemi uygulandı. Son temizlik aşaması olarak 10^{-2} mbar, 70 W, 8 dk koşullarında O_2 plazma uygulandı. Al4083'ün kaplaması 3000 dv/dk'da dönü kaplama metodu ile hazırlandı ve ardından 100 °C'de vakum etüvünde 30 dk boyunca kurumaya bırakıldı. Bu kaplamanın üzerine ADS231BE polimerinin klorobenzen içinde hazırlanan ve 10 mg/mL'lik yoğunluğa sahip çözeltisi 2500 dv/dk'da dönü kaplama yöntemi ile kaplandı ve ardından 65 °C'de vakum etüvünde 15 dk boyunca kurumaya bırakıldı. Aygıtlar, eldivenli kutu sistemine entegre termal buharlaştırıcıda, katot materyalleri, 2×10^{-6} mbar'da sırasıyla sezyum karbonat (CS_2CO_3) ve Al kaplanarak tamamlandı. ITO/Al4083 (≈ 40 nm)/ADS231BE (≈ 60 nm)/ CS_2CO_3 (3nm)/Al (100 nm) genel yapısındaki aygıtlarda aktif katman 6 mm²'dir. Bundan sonra yapılacak olan tüm aygıt konfigürasyonlarında, anot hazırlıkları farklı olmak üzere aynı yöntemler izlendi.

2 nolu aygıtta izlenen yöntem şu şekildedir. 1.1 mm et kalınlığına sahip ve 3x3 cm boyutlarındaki camlar temizlendi. Cam altlıklara PH1000 kaplaması 2000 dv/dk'da yapıldı. Kaplama, 250 °C'de 60 dk vakum altında tavlandıktan sonra 160 °C'ye ayarlanan ısıtıcı üzerinde, 1.5 molar (M)'lık H_2SO_4 çözeltisine daldırılarak 5 dk boyunca bekletildi (Xia et al., 2012b). Ölçülen çözelti sıcaklığı 88 °C'dir. Oda sıcaklığına soğuması beklenip saf su ile durulandı. 160 °C vakum altında 30 dk tekrar tavlansak yüzeyde kalan asit çözeltisi uzaklaştırıldı. Anot alternatifi olarak kullanılacak olan PH1000 kaplama, 10^{-2} mbar'da, 50, 70 ve 90 W gücünde 2.0, 2.5, 3.0, 4.0 ve 5.0 dk boyunca O_2 Plazma ile yüzey tedavi edildi ve CAM/PH1000/Al4083 (≈ 40 nm)/ADS231BE (≈ 60 nm)/ CS_2CO_3 (3 nm)/Al (100 nm) aygıtları hazırlandı.

3 nolu aygıt hazırlığında, 2. nolu aygıtta izlenen yol izlendi ve optimize edilen 10^{-2} mbar'da 70 watt 3 dk O_2 plazma süreci anot hazırlığında uygulandı. PH1000'in ITO alternatifi olarak araştırıldığı önceki çalışmalarda, DMF, EG ve IPA'nın iletkenlik iyileşmesine sebep olduğu raporlanmıştır (Liu et al., 2015). Bu çözümler hacimce 15:1 oranında PH1000'e katkılanarak çözümlerin aygıt

performansına etkileri incelendi. Hazırlanan aygıt yapısı CAM/ PH1000:çözgen/ Al4083 ($\approx 40\text{nm}$)/ ADS231BE ($\approx 60\text{nm}$)/ Cs_2CO_3 (3 nm)/ Al(100 nm) şeklindedir.

4 nolu aygıt için 3 nolu aygıttan elde edilen sonuçlara göre hazırlanan bu aygıtta mGO türevleri olarak, ikincil, birincil ve alkol amin modifikasyonu karşılaştırmasına izin verecek DPRYL-, n-PRYL- ve PRPOH-GO seçildi. Bu türevler, etilen glikol (EG) içerisinde 2mg/mL olmak üzere disperse edildi ve PH1000:mGO kompozitlerinde katkılama 15:1 oranında yapıldı. Elde edilen bu kompozitler ile CAM/PH1000:mGO/Al4083(≈ 40 nm)/ADS231BE(60 nm)/ Cs_2CO_3 (3 nm)/Al(100 nm) aygıtları elde edildi.

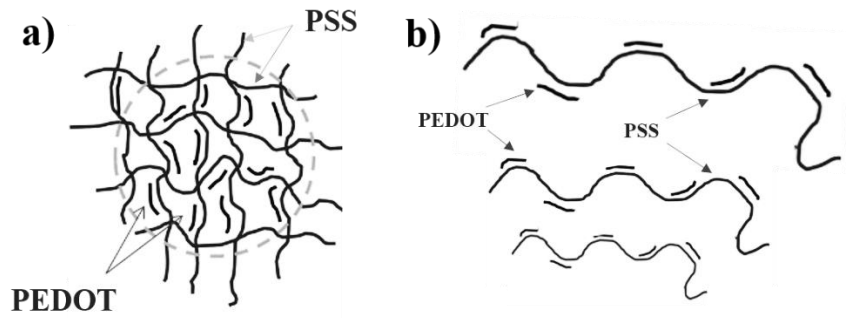
5 nolu aygıt için, hidrazin (N_2H_4) ve vitamin C (VitC) ortamında indirgenmiş GO'ların, DMSO içerisinde 0.1 mg/mL 'lik dispersiyonları hazırlanarak, PH1000'e farklı oranlarda katkılандırıldı. O_2 plazma ve H_2SO_4 tedavisi söz konusu değildir. Elde edilen bu kompozitler ile CAM/PH1000:iGO/Al4083(≈ 40 nm)/ADS231BE(≈ 60 nm)/ Cs_2CO_3 (3 nm)/Al(100 nm) aygıtları elde edildi.

4. SONUÇLAR VE TARTIŞMA

4.1. Optik, Morfolojik ve Elektriksel Karakterizasyonlar

4.1.1. PH1000 Kaplama Optimizasyonları

ITO ya alternatif oluşturacak olan PH1000 kaplamaları, 120 °C 45 dk vakum altında tavlama sonrası yüzey direnci 232.6 k Ω /□ olarak ölçülmüştür. Daha yüksek sıcaklıklarda tavlama işleminin PEDOT:PSS'te faz ayrılmasına sebep olduğu ve PSS gruplarının uzaklaşması sonucu yapının iletken olan PEDOT kısmının etkin kılınması ile yüzey direnç değerinin düştüğü ve iletkenliğin (σ) arttığı bilinmektedir (Friedel et al., 2009; Ouyang et al., 2015; Vitoratos et al., 2009). Bu sebeple, PH1000 kaplamalar ayrıca, 250 °C'de 60 dk vakum altında tavlammıştır. Uygulama sonrası, yüzey direnç değeri 43.20 k Ω /□'e ve H₂SO₄ ile yüzey tedavi işlemi sonrası ise 0.136 k Ω /□'e kadar indirilebilmiştir. Bilindiği gibi H₂SO₄ su içerisinde proton (H⁺) ve bisülfat (HSO₄⁻) olmak üzere iyonlarına ayrılır. H⁺ katyonu PEDOT:PSS'deki PSS⁻ ile etkileşerek PSSH oluşumuna ve PEDOT'dan ayrılmasına neden olur. Bu etki ile PEDOT zincirleri konformasyonel değişim sonucu lineer hale gelir ve PEDOT bölgelerinin boyunun büyümesine neden olur (Şekil 4.1). Bu faz ayrımı PEDOT zincirleri arasındaki enerji bariyerini azaltarak dikey yönde yük sıçramalarını etkin kılar ve iletkenlik iyileşir (Cruz-Cruz et al., 2013).



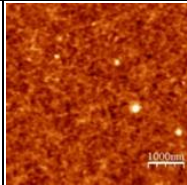
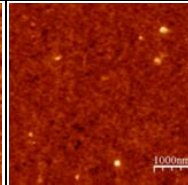
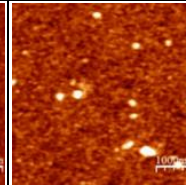
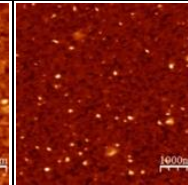
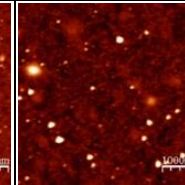
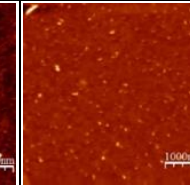
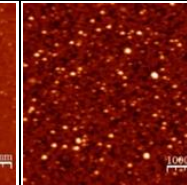
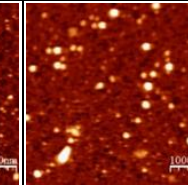
Şekil 4.1. H₂SO₄ tedavisi ile PEDOT:PSS yapısında ki değişimin temsili gösterimi, a) öncesi, b) sonrası.

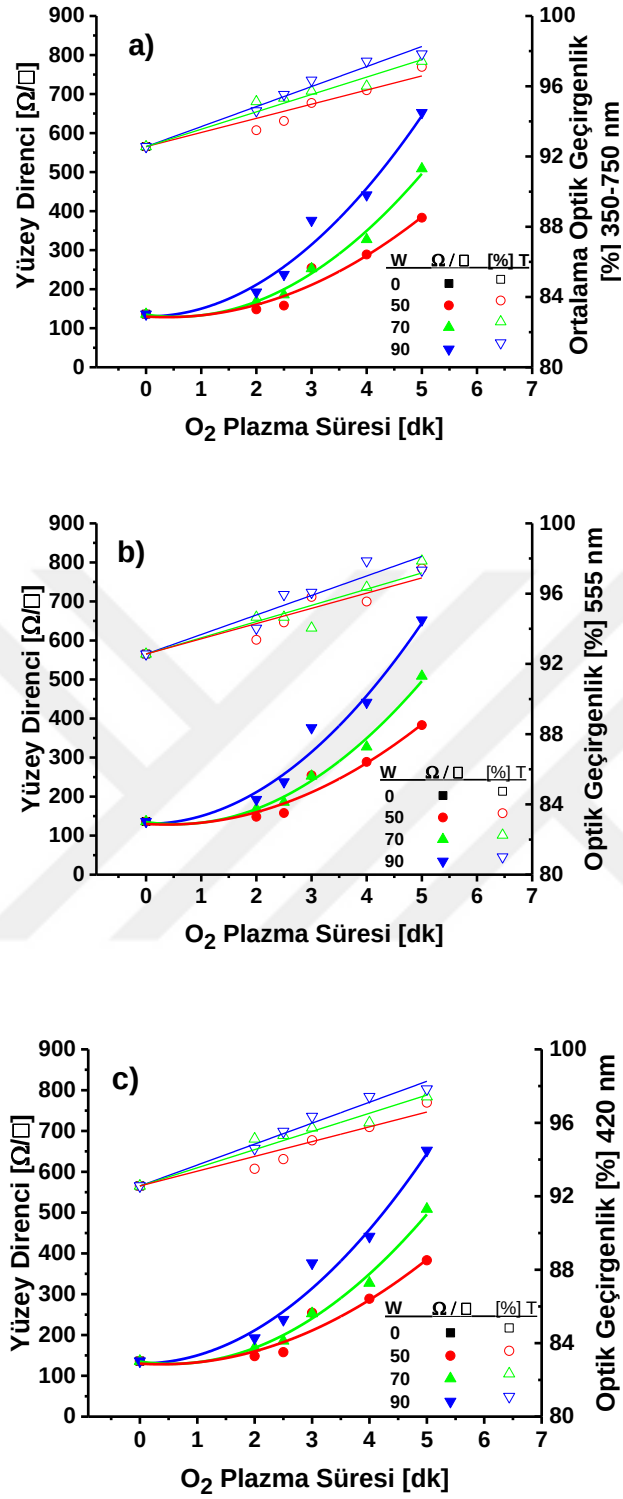
Ancak H₂SO₄ varlığında iletkenlik artışında sadece faz ayrımı tek başına rol almaz. HSO₄⁻ anyonları PEDOT:PSS sisteminde yükseltgeyici dopant görevi alır

ve PSS'e kıyasla düşük moleküler ağırlığı ve yüksek mobilitesi nedeniyle PSS ile yer değiştirerek PEDOT zincirleri ile etkileşir. Bu etkileşim sırasında HSO_4^- anyonu, yapısında yer alan oksijenler nedeniyle PEDOT'ın yükseltgenme derecesini arttırır. Bunun sonucunda ise PEDOT üzerindeki bipolaronların konsantrasyonu artar ve pozitif yük daha delokalize hale gelir. Yük taşıyıcılarının konsantrasyonunun artması film yüzeyinin iletkenliğini arttırır (Cruz-Cruz et al., 2013). Film kalınlıklarındaki azalış ise H^+ ile etkileşim sonucu oluşan serbest PSSH gruplarının uygulanan yıkama ve termal tavlama ($160\text{ }^\circ\text{C}$) işlemleri sonucunda film yüzeyinden buharlaşarak uzaklaşmasına bağlanabilir. H_2SO_4 ile muamele sonrası gözlenen bu durum, yüksek sıcaklıkta tavlama etkisine benzer şekilde, PH1000 yapısındaki PSS gruplarının uzaklaşmasına (Langford et al., 2016), PEDOT bölgelerindeki büyümeye ve PEDOT'ın oksidasyon derecesindeki artışa bağlanabilir. Bu etki H_2SO_4 'ün hem PEDOT zincirleri hem de PSS zincirleri ile ayrı ayrı olan etkileşiminin bir sonucudur (Cai et al., 2012; Cruz-Cruz et al., 2013).

H_2SO_4 ile muamele sonrası ve artan plazma süresiyle değişen film kalınlığı (nm), AFM faz görüntüleri, pürüzlülük (nm), yüzey direnci değerleri Çizelge 4.1 da verilmiştir (Bkz. Ek 1- 3). Bu çalışmaya hedef teşkil eden uygulama alanı düşünüldüğünde, anot için bir diğer önemli parametre de optik geçirgenliktir (Lee et al., 2008; Zhang et al., 2006). Bilindiği gibi O_2 plazma uygulaması ıslak kaplama süreçlerinde yüzey hidrofilikliğini artırarak sonraki katmanın yüzeye daha iyi tutunmasını sağlamaktadır (Larrieu et al., 2005). Uygulanan plazma süresine bağlı olarak film kalınlığı azalmakta, yüzey pürüzlülük değerleri ise artmaktadır (Zhou et al., 2006). Artan süreye bağlı olarak optik geçirgenliğin doğrusal olarak arttığı ve azalan film kalınlığına bağlı olarak artan yüzey direnci Şekil 4.2'de izlenebilir. Optik geçirgenlik 3 farklı parametrede (350-750 nm aralığı- görünür alan yanıtı; 555 nm- insan gözü algı maksimumu; 420 nm- ADS231BE için EL maksimumu) incelenmiş olup her bir parametrede bu doğrusal artıştan söz edilebilmektedir. Yüzey direncindeki artış, film kalınlığının azalışına ve artan plazma süresi ile yüzeyde oluşması muhtemel oksidasyon ürünlerine (oksijenli fonksiyonel gruplara) bağlanmıştır.

Çizelge 4.1. PH1000'e H₂SO₄ ile tedavi ve farklı sürelerde 70 watt O₂ plazma uygulaması sonrası değişen kalınlık (nm), AFM faz görüntüleri, pürüzlülük (nm), yüzey direnci (k Ω /□) ve geçirgenlik değerleri (%T)

Parametre	Tavlama Sıcaklığı							
	120 °C	250 °C						
	H ₂ SO ₄ Tedavisi							
	-	-	+	+	+	+	+	+
	O ₂ plazma süresi (dk)							
	0	0	0	2.0	2.5	3.0	4.0	5.0
Kalınlık (nm)	106	104	68	48	42	40	33	28
AFM Görüntüleri								
RMS (nm)	2.14	2.12	3.60	6.62	6.69	6.29	8.92	12.72
Yüzey direnci(kΩ/□)	232.6±4.1	43.2±0.6	0.136±0.003	0.169±0.002	0.185±0.001	0.252±0.007	0.327±0.005	0.508±0.007
%T (420 nm)	90.56	90.85	92.18	94.56	94.82	94.16	93.65	97.56
%T (555 nm)	90.21	90.29	92.67	94.66	94.69	94.04	93.36	97.85
%T (350-750 nm)	89.72	89.49	92.56	95.12	95.32	95.72	96.00	97.42



Şekil 4.2. Farklı sürelerde uygulanan O₂ plazma etkisiyle değişen geçirgenlik ve yüzey dirençleri; a) tüm görünür alan, b) 555 nm (insan gözü algı maksimumu) ve c) 420 nm (ADS231BE EL maksimumu).

4.1.1.1. Çözgen Etkisi

PH1000'in DMF, EG ve IPA çözgenleri ile hacimce 15:1 oranında karıştırılması ile elde edilen çözeltilerin filmleri hazırlanmış ve bu filmlerin morfolojik, yüzey direnç ve optik geçirgenlik özellikleri üzerindeki çözücü etkileri incelenmiştir. Elde edilen sonuçlar Çizelge 4.2'de verilmiştir (Bkz Ek 4). Bilindiği üzere, PEDOT:PSS sisteminde PEDOT genellikle 6 adet monomerden oluşan kısa zincirli kısımdır ve 3 monomer biriminde bir, bir adet pozitif yük bulundurur. PSS ise yüzlerce monomerden oluşan uzun zincirli polimer kısımdır. Bu durumda PEDOT'lar iki pozitif yük ile PSS zincirine tutunurlar ve sarmal bir yapı oluştururlar. Bir başka deyiş ile PEDOT:PSS sarmalında serbest PSS zincirleri bulunmaktadır. Polar çözgenlerin ve polialkollerin varlığı, PEDOT ile PSS arasındaki elektrostatik etkileşimi zayıflatarak, çözgen ile PSS'in sülfonat grubu arasında hidrojen bağları/kimyasal reaksiyonların oluşumuna sebep olur (ör: Gliserol ve EG gibi polialkoller sülfonat grupları ile sülfonik esterleri, DMF, PSS ile sülfonamidleri oluşturur). Bu etki sırasında, PEDOT'ın PSS zinciri üzerinde yeniden dağılması, düzenlenmesi, serbest PSS'lerin salınımının kolaylaşması, hatta oluşumu söz konusudur. PEDOT:PSS'in sarmal yapısı açılır, yeniden düzenlenme ile π konjugasyon boyu uzar ve PEDOT'daki polaronların delokalizasyonu kolaylaşır ve iletkenlik artışı gerçekleşir. Bu yeniden düzenlenme morfolojik değişimlere de sebep olmaktadır. Genellikle yüzey pürüzlülüğünün artışı raporlanmıştır (Huang et al., 2003; Jonda et al., 2000; Kim et al., 2002). Eklenen çözgenin birim molekülüne başına düşen polar grup sayısı ve dipol momentleri PEDOT:PSS'in iletkenliği üzerinde etkilidir. Asetonitril, nitrometan ve metil alkol gibi bir tane polar grup içeren çözgenler iletkenlik artışında rol almazken iki ya da daha fazla polar grubu olan organik bileşikler iletkenliğin ciddi bir şekilde iyileşmesine neden olmaktadır. Molekül üzerindeki polar gruplardan biri PEDOT:PSS sistemindeki PSS ile hidrojen bağı yaparak film içinde kalırken moleküldeki diğer polar grup ise PEDOT zincirindeki pozitif yük ile dipol-yük ya da dipol-dipol etkileşimine girer. Bu sırada PEDOT tanecikleri birbirlerine yaklaşıp konformasyonel değişim gerçekleşir ve iletkenlik artar. Bu artış sarmal yapının (benzoidal form) lineer ya da genişlemiş sarmal yapıya (quinoidal form) dönüşmesi sonucu PEDOT üzerindeki yüklerin daha fazla delokolize olması ile

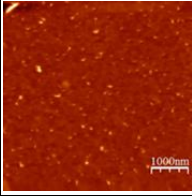
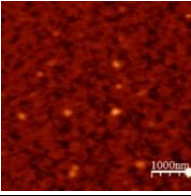
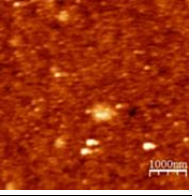
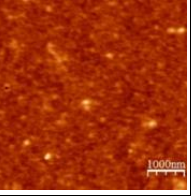
açıklanmaktadır. Polaritesi yüksek dimetilsülfoksit ve DMF gibi organik çözümler tek polar grup içermelerine rağmen dipol momentlerinin yüksek olması yukarıda açıklanan etkileri güdülemektedir (Lee et al., 2016; Ouyang et al., 2004). Belirtilen bu etkenlerin yanı sıra PEDOT:polielektrolit sistemlerine eklenen yüksek kaynama noktalı organik çözümlerin (DMSO, EG, DMF vb.) plastikleştirici görevi üstlenerek, sistem içindeki PEDOT'ın kristalinitesini arttırdığı ve buna bağlı olarak iletkenliğin geliştiği de raporlanmıştır (Petsagkourakis et al., 2016). Morfoloji açısından incelendiğinde, polaritenin artması/dipol momentin artması/polar grup sayısı PSS'ler arasındaki hidrojen bağlarını zayıflatarak, PSS'in PEDOT:PSS sisteminden ayrılmasına ve faz segregasyonu oluşturmaya ve bu sırada PEDOT taneciklerinin birbirlerine yaklaşarak agregatlaşmasına neden olmaktadır. Bu sebeple, polar çözümlerin eklenmesi ile yüzey pürüzlülük değerlerinin arttığı tespit edilmiştir. Literatürde iletkenlik ve pürüzlülük artışı, eklenen organik çözümlerin kütlece % bulunma durumuna bağlı olarak incelenmiş ve her ne kadar optimum değer çözümlerden çözüme değişiklik gösterse de, en az %4 'lük çözümler eklenmesi gerekliliği belirtilmiştir (Thomas et al., 2014). PH1000 için de çözümler etkisine bağlı olarak yüzey pürüzlülük ve iletkenlik değişiminin, DMF>EG>IPA şeklinde olması beklenmektedir. Ancak bu çözümler ile hazırlanmış PH1000 filmlerinin sonradan H_2SO_4 ile muamele ve O_2 plazma işlemlerine tabi tutulması film yüzey özelliklerine farklı parametrelerin dahil olmasına neden olmaktadır. Çözümler katkısı ile beklenenin aksine pürüzlülük değerlerinin ≈ 0.5 kat azaldığı görülmektedir. Bunun nedeni PSS gruplarının PEDOT'dan ayrılmasında rol alan çözümler etkilerine H_2SO_4 ile yapılan muamelenin de katkı sağlaması olabilir. Bu durumda yüzeydeki serbest PSSH gruplarının popülasyonu PH1000 filmine göre artmış ve yıkama ve termal tavlama işlemlerinin etkisi ile de film yüzeylerinden daha fazla PSS grubu ayrılmış olabilir. Bu durum O_2 plazmanın PSS grupları ile etkileşimini ve yüzey pürüzlülüğüne katkısını engelleyecektir. PH1000 filmine kıyasla bu filmlerin yüzey dirençlerindeki azalışta çözümler varlığı ile PEDOT bölgelerindeki π konjugasyonun uzamasından kaynaklı dikey yük transfer etkilerine ek olarak, HSO_4^- anyonlarının oksidatif etkisi ile artan bipolaron konsantrasyonlarının katkıları da söz konusu olabilir.

Kendi içlerinde kıyaslandığında yüzey pürüzlülük artışlarında çözücü etkileri (beklendiği şekilde sırası ile DMF, EG ve IPA) gözlemlenirken, yüzey direnç değişimi açısından IPA katkılı film ($0.146 \text{ k}\Omega/\square$) gidişatı bozmaktadır. IPA'nın PSS ayrılmasına etki ettiği ancak PEDOT kümelenmesine katkısının yok denecek kadar az olduğu düşünülürse direnç düşüşünde dikey yük transferinden çok H_2SO_4 muamelesi ile oksidatif etkilerin rol aldığı düşünülebilir. Yani daha küçük PEDOT kümelerinde, birim PEDOT başına düşen bipolaron konsantrasyonu diğer çözücü katkılı filmlerden daha fazla olabilir. DMF ve EG katkılı filmlerde ise PEDOT kümeleşmeleri çok baskın olduğu için dikey yük transferleri oksidatif etkilerin önüne geçmiş olabilir. Ayrıca film yüzeylerinden PSSH gruplarının büyük oranda uzaklaştığı düşünülen çözücü katkılandırılmış filmlerde (çözücü farkına bakmaksızın) film kalınlıklarında önemli bir değişim gerçekleşmemiştir. Tespit edilen kalınlık farklanmaları $\pm 2 \text{ nm}$ civarındadır (Bkz. Ek 5). Bu nedenle kalınlık değişiminin, O_2 plazma işleminin PSS bölgelerinden çok PEDOT bölgeleri ile olan etkileşiminin bir sonucu olarak gerçekleştiği düşünülmektedir. Literatürde PEDOT ve PSS zincirlerinin O_2 plazmaya farklı dirençler gösterebileceği vurgulanmaktadır (Zhou et al., 2006). Ayrıca PEDOT bölgelerindeki yük dağılım ve popülasyonlarında ki farklılıkların O_2 plazmanın yüzey ile etkileşiminin değişmesine ve buna bağlı olarak da, yukarıda tartışıldığı gibi, W_F 'nin manipüle olmasına neden olduğu düşünülmektedir.

4.1.2. PH1000:mGO Kompozit Karakterizasyonları

DMF, EG ve IPA içindeki mGO dispersiyonlarının katkılandırıldığı PH1000:mGO kompozit filmlerin yüzey direnç ve optik ölçüm sonuçları Çizelge 4.3 ve Çizelge 4.4'de verilmiştir (Bkz. Ek 6). Kompozit filmlerin yüzey dirençlerine PEDOT kümelerinin boyutları ve π konjugasyon uzunlukları, PEDOT bölgelerinin oksidasyon derecesi ve film kalınlıkları gibi farklı parametreler etki etmektedir. Bu parametreler, çözücü özelliklerinden, mGO'ların yapısal farklılıklarından, H_2SO_4 ve O_2 plazma işlemlerinden ve bunların kompozisyonlarından farklı şekilde etkilenmektedir. Yukarıda belirtildiği gibi, PEDOT:PSS filmlerinin mGO türevleri ile etkileşimleri sonucu film yüzeylerinde direnç artışı beklenirken, farklı çözücü etkilerine maruz kalan filmlerin H_2SO_4 ve O_2 plazma muamelesine farklı tepkiler verdiği gözlemlenmektedir.

Çizelge 4.2. PH1000 ve PH1000'e hacimce 15:1 oranında katkılanırlaran dimetil formaid (DMF), etilen glikol (EG) ve izopropil alkol (IPA) çözüenleri ile elde edilen filmlerin AFM faz görüntüleri, pürüzlülük (nm), yüzey direnç ($k\Omega/\square$) ve geçirgenlik değeri (%T)

Parametre	PH1000	PH1000-DMF	PH1000-EG	PH1000-IPA
AFM Görüntüleri				
RMS (nm)	6.29	3.72	3.01	2.41
Yüzey direnci ($k\Omega/\square$)	0.252±0.007	0.162±0.014	0.214±0.010	0.146±0.004
Kalınlık (nm)	40	41	42	38
%T (420 nm)	94.16	96.53	96.12	95.53
%T (555 nm)	94.04	95.47	95.73	95.70
%T (350-750 nm)	95.72	95.14	95.29	94.91

DMF ve IPA'da yüzey dirençlerinde referansa kıyasla artış gözlemlenirken, EG katkılı filmde azalış tespit edilmiştir. mGO türevlerinin çözücü etkilerine bağlı olarak PEDOT zincirleri ile de farklı düzeylerde etkileşime girdikleri bunun bir sonucu olarak da film yüzeylerinin O₂ plazmaya karşı farklı dirençler gösterebileceği düşünülmektedir. Bu durum yüzey dirençlerindeki farklılığın sebebi olabilir. Ancak, yüzey direnç ve % geçirgenlik incelemelerinde mGO yapısına ve çözücü özelliklerine bağlı sistematik bir değişim izlenememiştir.

Ayrıca EG içinde disperse edilen mGO türevlerinin katkılanıldığı PH1000 kompozit filmleri, kendi referansına göre daha düşük yüzey direncine sahiptir. Bu nedenlerle, EG'de hazırlanan PH1000:mGO kompozitlerinin aygıtlarının hazırlanmasına karar verilmiştir. EG içindeki dispersiyon kararlılıklarının yüksek olması ve kimyasal yapı olarak birincil/ ikincil alkil amin ve alkol amin (aynı zincir uzunluğuna sahip) karşılaştırmasına olanak tanımları açısından mGO türevleri arasından DPRYL-GO, nPRYL-GO ve PRPOH-GO örnekleri seçilmiştir. Seçilen türevler ile hazırlanan filmlerin özellikleri,

PH1000:GO kompozitinin film özellikleri ile birlikte Çizelge 4.5'te verilmiştir (Bkz Ek 7). H_2SO_4 ile muamele edilen ve O_2 plazma uygulanan GO katkılılandırılmış filmlerin yüzey pürüzlülüğünün, katkılılandırılmamış filme göre arttığı gözlemlenmiştir. Bunun nedeninin, PSS'e bağlanan GO'ların, film yüzeyindeki PSS gruplarının yıkama ve termal tavlama işlemleri ile (H_2SO_4 muamelesi sonrasında) yüzeyden uzaklaşmasını zorlaştırması olduğu düşünülmektedir. Yüzeyde kalan bu gruplar O_2 plazmanın da etkisi ile film yüzeyinde adacıklar oluşturarak morfolojinin bozulmasına neden olmuştur. DPROYL-GO ve nPROYL-GO örneklerini karşılaştırdığımızda dallanmış yapısı nedeniyle DPROYL-GO'nun PSS ile etkileşiminin nPROYL-GO'ya göre daha düşüktür. Bu nedenle H_2SO_4 ile muamele sonrasında yüzeyden uzaklaşan PSS grubu miktarının DPROYL-GO katkılı filmlerde daha fazla olduğu ve böylece O_2 plazma etkileşiminin PSS grupları açısından daha zayıf olduğu düşünülmektedir. PRPOH-GO örneğinde ise alkolaminde yer alan $-OH$ grubu, PRPOH-GO'nun kendi yüzeyindeki oksijenli gruplar ile etkileşmektedir. Bu durum onun EG ve PSS ile olan etkileşimlerini diğer mGO türevlerine kıyasla zayıflatmış ve H_2SO_4 muamelesi sonucunda PSS gruplarının film yüzeyinden uzaklaşmasını kolaylaştırmış olabilir. Film yüzeyinde O_2 plazmadan etkilenecek PSS gruplarının azlığı yüzey pürüzlülüğünün düşük çıkmasına neden olur. Yüzey direnç değişimleri değerlendirildiğinde beklenenin aksine direnç değerlerindeki düşüş, film kalınlıklarının artmasına bağlanabilir (Bkz. Ek 8). Bu artış mGO türevlerinin PEDOT bölgeleri ile etkileşmesi sonucu PEDOT üzerindeki O_2 plazma etkilerinin zayıflaması ile açıklanabilir. Yukarıda bahsedildiği üzere PRPOH-GO örneğinin PSS ile etkileşimlerinin yok denecek kadar az olması PEDOT ile olan etkileşimini baskın kılmakta, O_2 plazma etkisini azaltmakta ve böylece O_2 plazma etkisi ile gözlenen kalınlık azalışı düşmektedir.

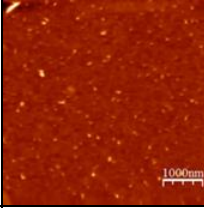
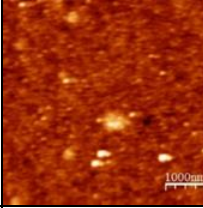
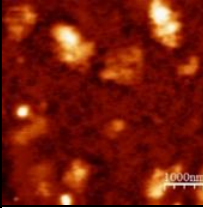
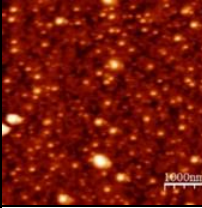
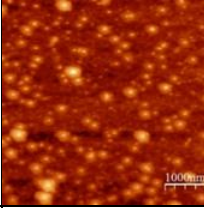
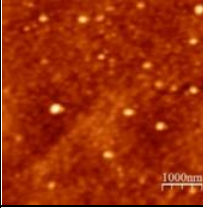
Çizelge 4.3. PH1000 ve dimetil formaid (DMF), etilen glikol (EG) ve izopropil alkol (IPA) çözgeni içerisinde PH1000 ve PH1000:mGO kompozit filmlerinin yüzey direnç ($k\Omega/\square$) değerleri

PH1000	0.252±0.007 $k\Omega/\square$		
	DMF ($k\Omega/\square$)	EG ($k\Omega/\square$)	IPA ($k\Omega/\square$)
PH1000	0.162±0.014	0.214±0.010	0.146±0.004
PH1000:DPRYL-GO	0.167±0.004	0.183±0.011	-
PH1000:DHA-GO	0.221±0.017	0.179±0.009	0.191±0.003
PH1000: DOA-GO	0.193±0.014	0.178±0.010	0.152±0.008
PH1000: n-PRYL-GO	0.226±0.009	0.182±0.008	0.182±0.004
PH1000: 2EHA-GO	0.210±0.018	0.180±0.009	0.202±0.009
PH1000: PRPOH-GO	0.235±0.012	0.177±0.008	-

Çizelge 4.4. PH1000 ve dimetil formaid (DMF), etilen glikol (EG) ve izopropil alkol (IPA) çözgeni içerisinde PH1000 ve PH1000:mGO kompozit filmlerinin optik geçirgenlik değerleri (%T)

	420 nm			555 nm			% T(350-750 nm)		
PH1000	94.16			94.04			95.72		
	DMF			EG			IPA		
	420 nm	555 nm	%T (350-750 nm)	420 nm	555 nm	%T (350-750 nm)	420 nm	555 nm	%T (350-750 nm)
PH1000	96.53	95.47	95.14	96.12	95.73	95.29	95.53	95.70	94.91
PH1000: DPRYL-GO	94.06	93.83	95.14	94.20	94.74	94.14	-	-	-
PH1000: DHA-GO	94.49	94.31	93.67	94.39	94.18	93.68	93.44	92.97	92.33
PH1000: DOA-GO	94.54	95.18	94.22	94.18	94.33	94.03	94.39	94.71	94.22
PH1000: n-PRYL-GO	93.76	94.21	93.32	94.45	94.15	93.53	95.03	94.62	94.30
PH1000: 2EHA-GO	95.46	95.34	94.63	92.46	92.21	91.59	95.32	95.00	94.58
PH1000: PRPOH-GO	93.54	93.51	93.00	93.60	93.18	92.65	-	-	-

Çizelge 4.5. PH1000 ve PH1000'e hacimce 15:1 oranında katkılandırılarak etilen glikol (EG) çözgeni ve PH1000:mGO ile elde edilen kompozit filmlerinin AFM faz görüntüleri, pürüzlülük (nm), yüzey direnç ($k\Omega/\square$) ve geçirgenlik değerleri (%T)

Parametre	PH1000	Etilen Glikol (EG)				
		PH1000	PH1000+GO	PH1000+DPRYL-GO	PH1000+NPRYL-GO	PH1000+PRPOH-GO
AFM Görüntüleri						
RMS (nm)	6.29	3.01	11.91	6.60	13.52	3.80
Yüzey direnci ($k\Omega/\square$)	0.252±0.007	0.214±0.010	2.148±0.086	0.183±0.006	0.182±0.007	0.177±0.004
Kalınlık (nm)	40	42	41	46	44	50
%T (420 nm)	94.16	96.12	94.27	94.20	94.45	93.60
%T (555 nm)	94.04	95.73	93.46	94.74	94.15	93.18
%T (350-750 nm)	95.72	95.29	92.89	94.14	93.53	92.65

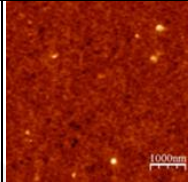
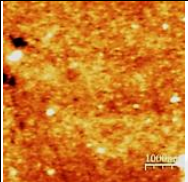
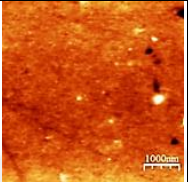
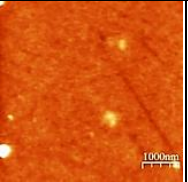
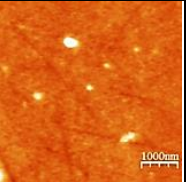
4.1.3. PH1000:iGO Kompozit Karakterizasyonları

Bu kısma konu olan PEDOT:PSS (PH1000):iGO kompozitlerinin hazırlığında, indirgeme ajanı olarak Hidrazin ve VitC'nin kullanımı ile elde edilen iGolar kullanılmıştır. PH1000 filmlerin yüzey iletkenliklerini artırabilmek için literatürde kullanılan çözümlerden bir diğeri de (dimetil sülfoksit) DMSO'dur. Bu çözümlerin PH1000'e katkılanması, PH1000 filmin yüzeyine damlatılması, filmin DMSO buharında bekletilmesi ve filmin ısıtılan DMSO ya daldırılması neticesinde elde edilen direnç karakteristikleri raporlanmıştır (Pathak et al., 2015; Chou et al., 2015). VitC-GO ve H-GO türevlerinin de kullanımına izin verecek katkılama yolu izlenmiştir. iGO'ların DMSO ile dispersiyonları hazırlanmış ve bu dispersiyonlar PH1000'e katkılanarak kompozit filmler hazırlanmıştır. PH1000'e, farklı oranlarda DMSO katkılama ve seçilen katkılama oranında VitC-GO ve H-GO'nun DMSO dispersiyonlarının eklenmesi ile elde edilen kompozit filmlerin, AFM faz görüntüleri, yüzey direnç değişimleri ($k\Omega/\square$), pürüzlülükleri (nm) ve optik geçirgenlikleri Çizelge 4.6'da verilmiştir (Bkz. Ek 9-11). Filmler için kodlama; PD1:PH1000+DMSO (5:1, w:w; %16.67, %w), PD2:PH1000+DMSO (19:1, w:w; %5, %w), PD2-H: PH1000+DMSO-HİDRAZİN (19:1:9x10⁻⁵, w:w:w) ve PD2-VitC: PH1000+DMSO-VitC (19:1:9x10⁻⁵, w:w:w) şeklindedir. VitC-GO ve H-GO türevleri DMSO içerisinde 0.1 mg/mL olarak disperse edilmiştir. Kaplama 2000 dv/dk'da (1 dk) yapılmış ve 250 °C'de 60 dk vakum altında tavlama uygulanmıştır.

Literatür raporları ile uyumlu olarak, PH1000'e DMSO katkılama ve katkılama miktarının artışı ile artan yüzey pürüzlülüğü tespit edilmiştir (Unsworth et al., 2014). VitC-GO ve H-GO varlığında (PD2-H ve PD2-VitC filmleri) pürüzlülük değeri ihmal edilebilir miktarda artmaktadır. DMSO katkısı ile salt PH1000 filme göre $\cong 290$ katlık bir yüzey direnci iyileşmesi saptanmıştır. Bu durum, PEDOT:PSS zincirlerindeki konformasyonel değişim ve DMSO'nun, PSS'e uygulamış olduğu perdeleme etkisine bağlanmıştır (Cruz-Cruz et al., 2010). PD1 ve PD2 kompozitleri yüzey dirençleri sırasıyla, 0.188 ve 0.153 $k\Omega/\square$ olarak ölçülmüştür. DMSO katkılama miktarı azalışı ile yüzey direncinde azalış tespit

edildiği için, kütlece %5 katkılama seçilerek, PD2-H ve PD2-VitC filmleri hazırlanmıştır. PD2-VitC filmi için ölçülen yüzey direnci, PD2-H'den düşüktür.

Çizelge 4.6. PH1000 ve PH1000:DMSO(iGO) kompozit filmlerinin kalınlık (nm), AFM faz görüntüleri, pürüzlülük (nm), yüzey direnci ($k\Omega/\square$) ve optik geçirgenlik değerleri (%T)

Parametre	PH1000	DMSO			
		PD1	PD2	PD2-H	PD2-VitC
AFM Görüntüleri					
RMS (nm)	2.12	5.12	4.12	4.25	4.41
Yüzey direnci ($k\Omega/\square$)	43.2±0.6	0.188±0.005	0.153±0.003	0.150±0.002	0.124±0.003
Kalınlık (nm)	104	94	100	99	96
%T (420 nm)	90.85	94.19	91.94	92.84	93.27
%T (555nm)	90.29	93.71	90.58	92.14	92.37
%T (350-750 nm)	89.49	93.11	91.63	91.84	92.15

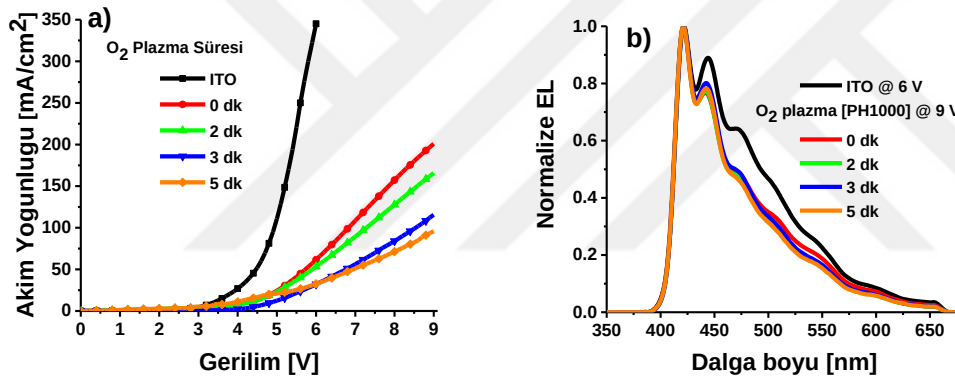
4.2. Aygıt Karakterizasyonları

4.2.1. PH1000'nin Anot Olarak Kullanımı

Elektriksel ve optik karakterizasyonları tamamlanan bu filmler ile 50 ve 90 W O₂ plazma uygulaması sonrası hazırlanan aygıtların performans değerleri 70 W O₂ plazma uygulaması ile hazırlanan aygıtın altında kalmıştır (Bkz. Ek 12-13). Elde edilen bu sonucun açıklanabilmesi için detay yüzey morfolojik inceleme yapılmamış olmakla birlikte, anottan yük enjeksiyonu ve ısımanın eldesi için en

uygun film kalınlığı ve direncinin 70 W'lık uygulama ile elde edildiği düşünülmektedir. Bu kısımda yer verilen tüm aygıtlar için 70 W O₂ plazma uygulaması söz konusudur. Şekil 4.3'de, J-V (akım yoğunluğu-gerilim) ve her bir aygıt için maksimum çalışma gerilimlerinde normalize edilmiş elektrolüminesans eğrileri verilmiştir.

J-V eğrilerinden, ITO üzerine büyütülen referans aygıttaki toplam yük hareketliliğinin daha yüksek olduğu görülmektedir. Bunun nedeni, uygulanan tüm tedavi işlemlerine rağmen PH1000 kaplamanın iletkenliğinin, ticari ITO'yu yakalayamamış olması ve yıkama ve tavlama işlemlerinden sonra dahi yüzeyde H₂SO₄ artıklarının kalmış olması olabilir. Bu artıklar, anot-boşluk taşıma katmanları arasındaki yük enjeksiyonunu etkilemektedir (Liu et al., 2015).

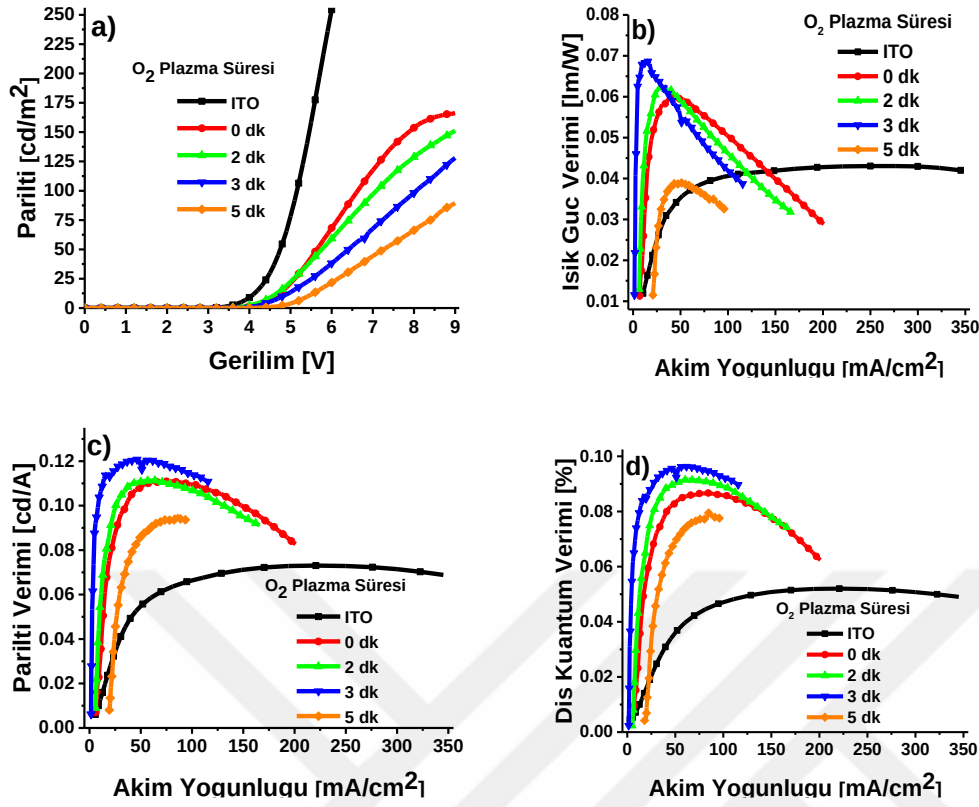


Şekil 4.3. Anot/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının uygulanan O₂ plazma sürelerine göre değişen a) akım yoğunluğu-gerilim, b) normalize edilmiş elektrolüminesans eğrileri.

O₂ plazma uygulama süresinden bağımsız olarak PH1000'in anot olarak kullanıldığı aygıtlardaki renk saflığı daha yüksektir. Uygulanan potansiyelle değişen EL eğrilerinde, ITO ve O₂ plazma uygulaması yapılmamış PH1000 anotların kullanıldığı aygıtlarda, yarı dalga genişliğinin azaldığı, O₂ plazmaya maruz bırakılan altlıklarda ise bu değer değişmediği gözlenmemiştir (Bkz. Ek 14). Referans PH1000 anotlu aygıtlarda yarı dalga genişliğindeki değişim, ITO'lu aygıtlara göre daha düşük olsa da, bu durum bu aygıtlarda etkin ışımalı yük birleşmesinin aktif katmanda eldesinin ancak artan potansiyelle ile sağlanabildiğini işaret ediyor olabilir. Bazı kaynaklarda bu durum elektrolüminesans oluşum süresinin kısalması ile açıklanmıştır (Nikitenko et al.,

1998). O₂ plazma uygulaması gören PH1000 anotlu aygıtlar için yarı dalga genişliği uygulanan potansiyelden bağımsızdır. Maksimum performans değerlerinin elde edildiği potansiyel altında, ITO altlığın kullanıldığı aygıta göre, elektrolüminesans yarı dalga genişliğinde 30 nm'lik bir azalış ile renk saflığında iyileşme sağlanabilmektedir.

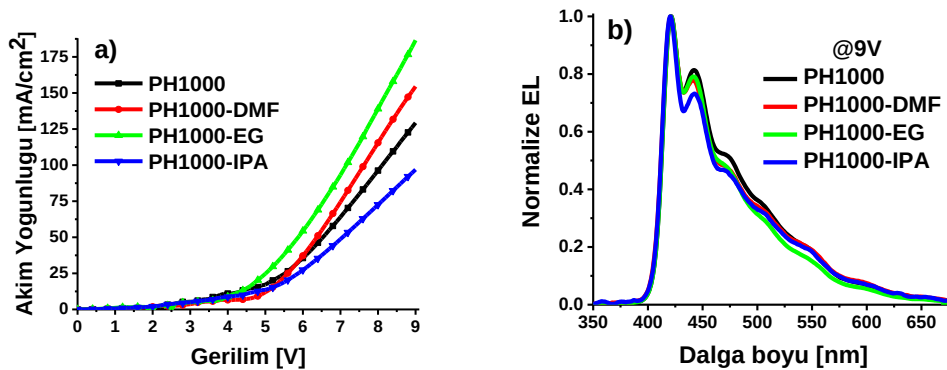
Şekil 4.4'te aygıtlara ait performans eğrileri görülmektedir. ITO'ya alternatif, O₂ plazma uygulanmış ya da uygulanmamış tüm PH1000 altlıklarla hazırlanan aygıtların parıltı ve dış kuantum verimlerinde ≈ 2 katlık iyileşme gözlenmiştir. Sistem içi toplam yük hareketliliğinin azalmasına karşın artan parıltı verim değerleri ışımalı birleşme yapabilen ekziton sayısının arttığını göstermektedir. En yüksek verim değerleri 3 dk'lık O₂ plazmaya maruz bırakılan altlıklar ile elde edilmiştir. Bu aygıtın maksimum ışık güç, parıltı ve dış kuantum verimlerinde, O₂ plazma uygulaması yapılmayan PH1000 altlığa göre sırasıyla, %15, %10 ve %12 iyileşme sağlanmıştır. 5 dk'lık O₂ plazma uygulaması her ne kadar referans ITO altlığa göre daha iyi bir performans sergilese de, 3 dk'lık uygulama ile karşılaştırıldığında, düşüşler izlenmiştir. Literatürde, O₂ plazma etkisi ile film yüzeyine tutunan oksijen moleküllerinin PEDOT:PSS'deki negatif yükleri kendisine doğru çekerek, film yüzeyinde negatif yüklü bölgelerin ve bu bölgelerin altında da pozitif tabakaların oluşmasına neden olduğu tespit edilmiştir. Bu etki sonucu film yüzeyinde dipollerin oluştuğu, PEDOT:PSS'in HOMO seviyesinin daha yüksek bağlanma enerjilerine doğru kaydığı ve filmin iş fonksiyonunun (W_F) arttığı belirtilmektedir (Nagata et al., 2011; Su et al., 2012). ITO, 0 dk, 2 dk ve 3 dk O₂ plazma uygulamasına maruz kalan filmlerin aygıtlarında kaçak akımlar yok denecek kadar düşük bir seviyede, 5 dk'lık uygulamada belirginleşmektedir. Bu durum, Şekil 4.3'de verilen J-V eğrisinden de izlenebilir (3.5-5 V aralığında yük birikmesi ve sonrasında ani boşalma). Bu sonucun açıklaması, uzun süreli O₂ plazma uygulamasının, W_F değerini artırması neticesinde kapasitif etkilerin artması ile yapılabilir. Yüzey direnç incelemeleri ile tespit edilen artış, performans iyileşmesinin kapasitif etkilerden kaynaklanabileceğini desteklemektedir.



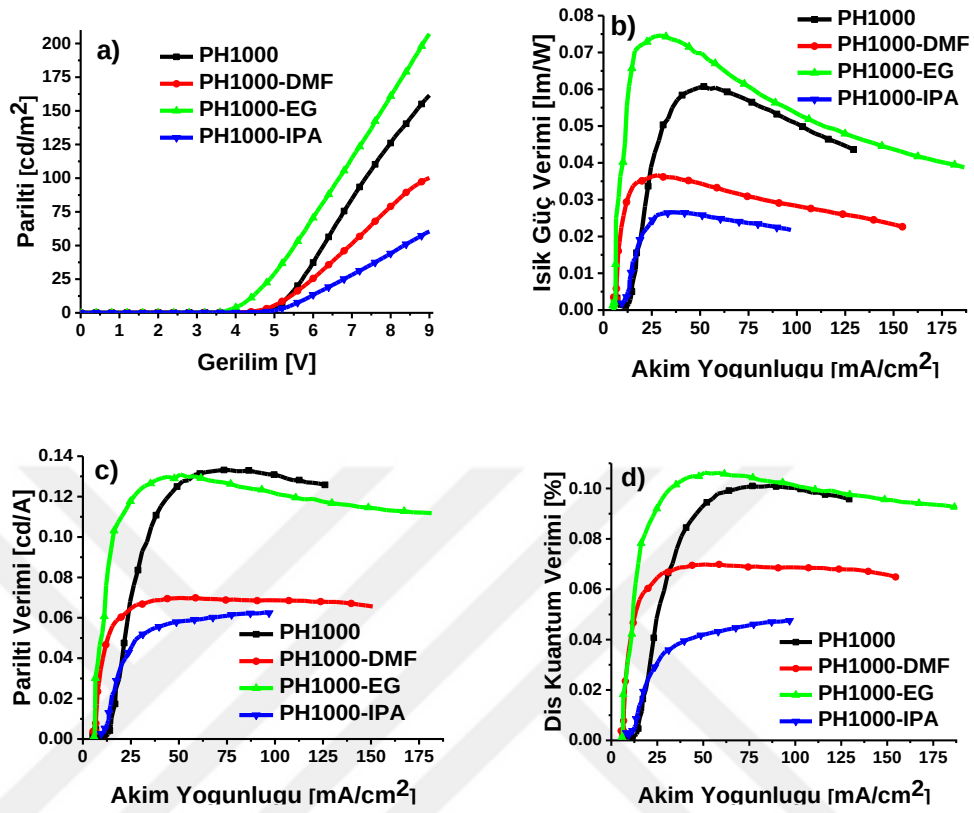
Şekil 4.4. Anot/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının uygulanan O₂ plazma sürelerine göre değişen a) parıltı-gerilim, b) parıltı verimi-, c) ışıık güç verimi- ve d) DKV-akım yoğunluğu eğrileri.

4.2.1.1. Cözgen Etkisi

PH1000 anot kaplamasının hazırlığında kullanılacak çözgenin (DMF, EG ve IPA) aygıt performansına etkisi araştırılmıştır. Şekil 4.5’de J-V ve her bir aygıt için maksimum çalışma gerilimlerinde normalize edilmiş elektrolüminesans eğrileri ve Şekil 4.6’da aygıtlara ait performans eğrileri verilmiştir.



Şekil 4.5. Anot/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının farklı çözümler ile değişen a) akım yoğunluğu-gerilim, b) normalize edilmiş elektrolüminesans eğrileri.



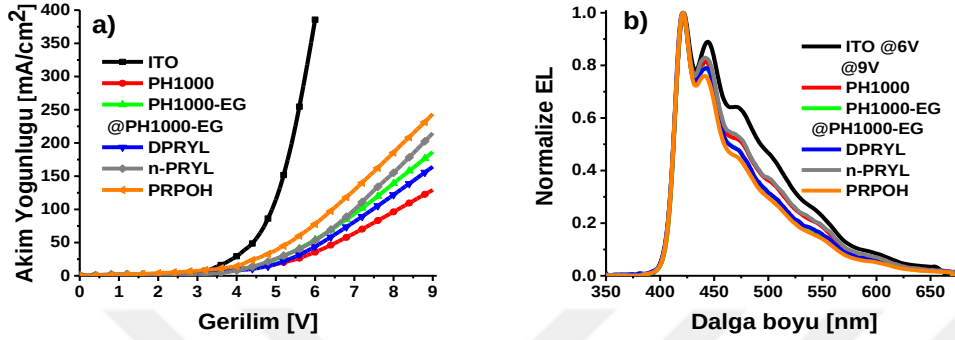
Şekil 4.6. PH1000:çözgen/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının farklı çözümler ile değişen a) parıltı-gerilim, b) parıltı verimi-, c) ışık güç verimi- ve d) DKV-akım yoğunluğu eğrileri.

En yüksek akım yoğunluğu, PH1000-EG kompozitinin anot olarak kullanıldığı aygıtta gözlenmiştir ve çözümler katkısı ile yarı dalga genişliğinde küçük de olsa bir azalma tespit edilmiştir (Şekil 4.5). Referans anot ve PH1000:IPA kompoziti ile 3.5-5 V aralığında gözlenen yük birikimleri ve kaçak akım, PH1000:DMF ve PH1000:EG kompozitlerinin kullanıldığı aygıtlarda gözlenmemiş ve bu aygıtların yüksek sürülme akımları altındaki dayanımları artmıştır (Şekil 4.6).

4.2.2. PH1000:mGO Kompozitlerinin Anot Olarak Kullanımı

EG içerisinde disperse edilen GO'nin katkılılandırıldığı PH1000 kompozitinin anot denemesi yapılırsa da aygıttan herhangi bir performans değeri elde edilememiştir. Bu durum; elde edilen yüzey direnç değerinin anot olarak

kullanımına uygun olmamasından kaynaklanmaktadır. Bu direnç artışının sebebi olarak da PH1000'e katkılanılan EG:GO dispersiyonunun film yüzeyinde bahsedildiği gibi bölgesel adacıkların oluşumu ve morfolojinin bozulmasına bağlanabilir.

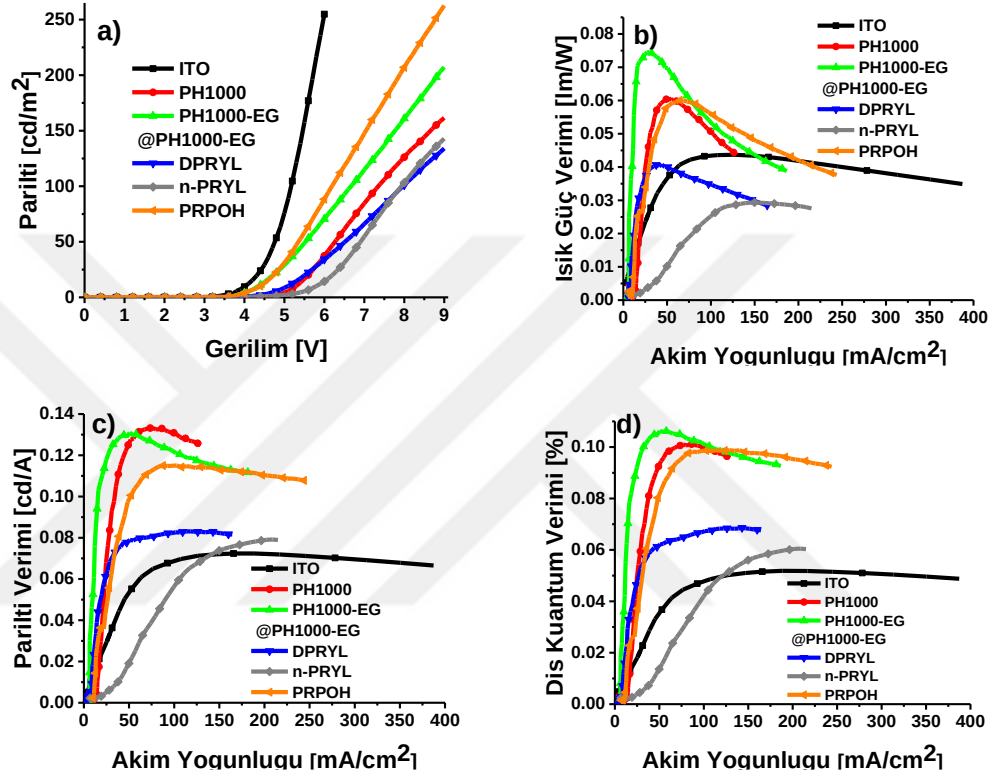


Şekil 4.7. PH1000:mGO/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının a) akım yoğunluğu-gerilim, b) normalize edilmiş elektrolüminesans eğrileri.

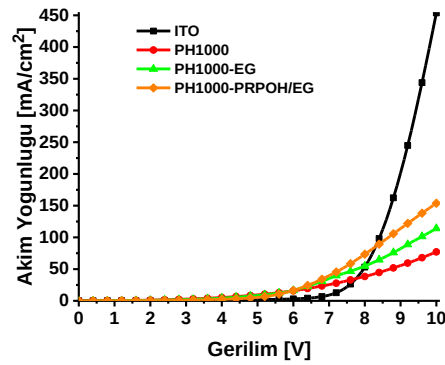
Şekil 4.7'da J-V ve her bir aygıt için maksimum çalışma gerilimlerinde normalize edilmiş elektrolüminesans eğrileri ve Şekil 4.8'de aygıtlara ait performans eğrileri verilmiştir. PH1000 ve PH1000:mGO kompozitleri arasında, sabit potansiyel altında en yüksek akım yoğunluğu anotun PH1000:PRPOH-GO olduğu aygıttan elde edilmiştir. Bu durum film kalınlığı ile bağdaştırılabilir (Bkz. Ek 9) ve bahsedildiği gibi alkol amin kaynaklı PSS gruplarının film yüzeyinden daha kolay uzaklaşması ile açıklanabilir. Diğer türevlerde ise akım yoğunluğu sırasıyla DPRYL ve n-PRYL olarak saptanmıştır. Buradaki farklanmaya yüzey dirençlerinden bağımsız olarak bozulan morfoloji ve yüzey pürüzlülüğü neden olmaktadır. Paylaşılan normalize elektrolüminesans eğrilerinden görüldüğü üzere türevler arasında, n-PRYL, DPRYL ve PRPOH sıralamasında azalan yarı dalga genişliği söz konusudur. Bu durum çekilen akım sonucu yüklerin aktif bölgeye aktarımının kolaylaşması ve ısımalı birleşme olasılığının artması ile doğrudan orantılıdır.

Şekil 4.8 'de görüldüğü gibi PH1000:PRPOH-GO kompozit anodunda çalışma gerilimi 3.7 V iken, morfolojik hataların sonucu olarak; DPRYL ve n-PRYL ile oluşturulan kompozit anotlarında sırasıyla, 4.2 ve 4.6 V'dur. PRPOH kompozit anot aygıtının maksimum performans değerlerinin, DPRYL'ye göre

$\cong 1.5$ katlık iyileşme gösterdiği görülmektedir. Diğer türev olan n-PRYL ile hazırlanan kompozit anot aygıtında yüzey pürüzlülüğünün $\cong 13$ nm seviyelerinde olması kaçak akımları güdülemiş, boşluk taşıma katmanına boşlukların enjeksiyonunu zorlaştırmış ve sonuç olarak aygıtın maksimum performansını sergilemesi daha yüksek akım yoğunluklarında gerçekleşmiştir.



Şekil 4.8. PH1000:mGO/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının a) parıltı-gerilim, b) parıltı verimi-, c) ışık güç verimi- ve d) DKV-akım yoğunluğu eğrileri.

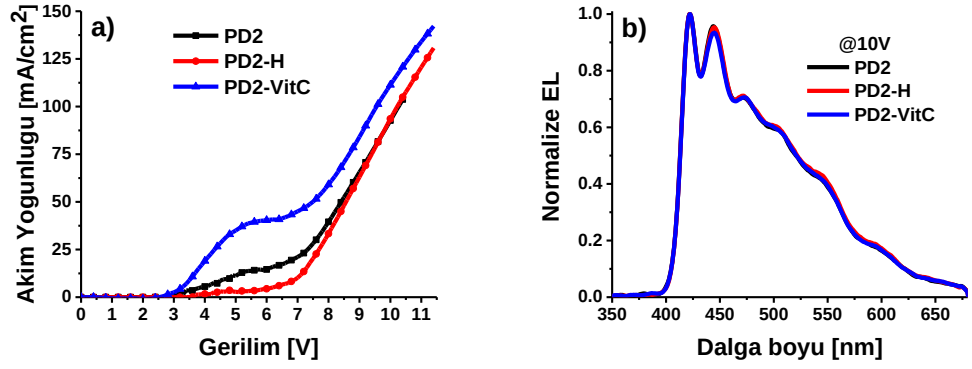


Şekil 4.9. Anot/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Au boşluk iletimine izin veren aygıt mimarilerine ait Akım Yoğunluğu (J) – Gerilim (V) eğrileri

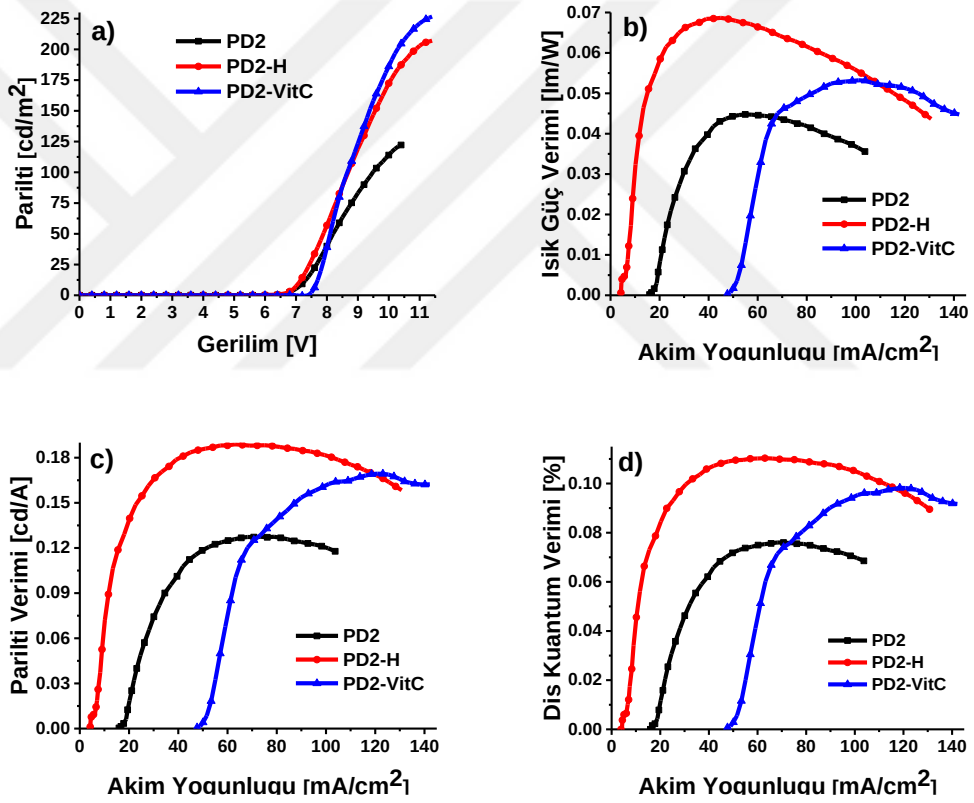
Değişen kompozit anot yapısına bağlı olarak sisteme enjekte olan boşlukların hareketini izlemek için, yalnızca boşluk taşımaya izin verecek aygıt hazırlanmış ve uygulanan gerilimle değişen akım yoğunluğu izlenmiştir (Şekil 4.9). Bu bölümde anot olarak PH1000, PH1000'e hacimce 15:1 oranında katkılandırılan EG ve kompozit anot yapılarından maksimum performans elde edilen PH1000:PRPOH-GO'in boşluk hareketlilikleri izlenmiştir. Elde edilen aygıt performanslarını destekleyen sonuçlar elde edilmiş ve aynı gerilimde en yüksek akım yoğunluğuna sahip anot yapısı PH1000:PRPOH-GO kompozit anodu ile elde edilmiştir.

4.2.3. PH1000:iGO Kompozitlerinin Anot Olarak Kullanımı

PD2, PD2-H ve PD2-VitC kompozit filmlerinin anot olarak kullanıldıkları OLED aygıtları hazırlanmıştır. Salt PH1000 filminin anot olarak kullanıldığı aygıt hazırlanmış olsa da, $43.20 \text{ k}\Omega/\square$ 'luk yüzey direnci nedeniyle, aygıttan herhangi bir performans değeri elde edilememiştir. Elde edilen aygıtların performans eğrileri Şekil 4.10 ve Şekil 4.11'de verilmiştir. Sabit potansiyel altında en yüksek akım yoğunluğu anodun PD2-VitC olduğu aygıttan elde edilmiştir. Ancak; PD2-VitC anodunun J-V karakteristiğinden görüldüğü gibi, iki ayrı diyot eğrisinden söz edilebilir. Bu durum azalan yüzey direnci sonucu artan yük hareketliliğinin etkisiyle yüzeyde oluşan morfolojik hataların ya da iGO katkısıyla oluşan ek enerji seviyesinin sonucu olabilir. PD2-H ve PD2 anotlarının kullanıldığı aygıtların J-V eğrilerinde bu etkiler azalmaktadır. PD2-H anodunun yer aldığı aygıttaki yük birikmesi ve kaçak akım diğerlerine göre oldukça düşük seviyelerdedir. 10 V'da normalize edilmiş elektrolüminesans eğrilerinden görüldüğü gibi ışıma bölgesinde farklanma gözlenmemiştir.



Şekil 4.10. PH1000:iGO/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının a) akım yoğunluğu-gerilim, b) normalize edilmiş elektrolüminesans eğrileri.



Şekil 4.11. PH1000:iGO/PEDOT:PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının a) parıltı-gerilim, b) parıltı verimi-, c) ışık güç verimi- ve d) DKV-akım yoğunluğu eğrileri.

PD2-H kompozit anodunda çalışma gerilimi 6.5 V iken, elde edilen *J-V* eğrilerinin sonucu olarak; PD2 ve PD2-VitC kompozit anotlarında sırasıyla, 6.7 ve 7.5 V'dur. PD2-VitC anot aygıtında, 7.5 V sonrası ani parlama ile aygıtın çalışması söz konusudur. Bu durum; ek enerji seviyesi nedeniyle oluşan potansiyel barajında biriken yüklerin barajı aşmaları sonrası, ışımalı birleşme

yapabilecek boşluk ve elektron sayılarının hızlı bir şekilde dengelenmesinin bir sonucu olabilir. Bahsedilen bu farklanma verim eğrilerinden net bir şekilde gözlenmektedir. PD2-VitC anot aygıtında maksimum performans değerleri daha yüksek akım yoğunluklarında gözlenmiştir. PD2-H kompozit anot aygıtının maksimum performans değerlerinin, PD2'ye göre $\cong 1.5$ katlık iyileşme gösterdiği görülmektedir. PD2-VitC aygıtı, PD2-H aygıtı ile benzer maksimum verim değerlerine ulaşsa da, elektron ve boşluk enjeksiyonunun verimli bir şekilde gerçekleşmemesi nedeniyle, $\cong 50 \text{ mA/cm}^2$ 'lik akım yoğunluğundan itibaren bu durum gözlenebilmiştir. PD2 filmi ile benzer ve PD2-VitC filminden yüksek direnç değerlerine sahip olmasına karşın, PD2-H anodunun kullanıldığı aygıtta kapasitif etkilerin azalışı henüz açıklanamamıştır. Bu çalışma kapsamında hazırlanan OLED aygıtları içinde en iyi performans PD2-H anodunun kullanıldığı aygıtın elde edilmiştir.

5. ÖNERİLER

Elde edilen tüm ITO alternatifi filmler için optik, elektriksel ve morfolojik incelemeler yapılmış, H_2SO_4 tedavisi, O_2 plazma uygulaması, çözügen katkısı, GO ve iGO katkısı; belirlenen sistem dahilinde bir arada kullanımları ile film özellikleri, literatür ile büyük oranda uyumluluk gösterebilir, X-Işını fotoelektron spektroskopisi (XPS), mor ötesi elektron spektroskopisi (UPS), taramalı elektron mikroskopu (SEM), kelvin probe yöntemleri izlenerek değişen film karakteristikleri ile ilgili daha kapsamlı bilgi edinilebilir. Bu analiz sonuçlarına göre, hazırlanacak OLED aygıtları için, gerek mimari, gerekse farklı parametreler eklenerek, aygıt verimleri yükseltilebilir ve en önemlisi kullanım yaygınlığı sağlanabilir.

Aygıt hazırlığında katot hariç ıslak kaplama süreci (dönü kaplama) izlenmiştir. Literatürde, aktif katmanı ıslak kaplama süreçleri ile oluşturulan en yüksek aygıt performans değerlerinin raporlandığı çalışmalar, ticari olarak erişilebilen Super Yellow ve Merck Mavisi gibi polimerlerle elde edilmiştir. Bu çalışma içeriğinde hazırlanan anot yapısı, bu malzemeler ile test edilerek literatürde raporlanan performans değerleri ile karşılaştırma yapılabilir.

KAYNAKLAR DİZİNİ

- Adachi, C., Tsutsui, T., Saito, S.,** 1990, Blue light-emitting organic electroluminescent devices, *Appl. Phys. Lett.*, 56, 799–801pp. doi:10.1063/1.103177
- Aguirre, C.M., Auvray, S., Pigeon, S., Izquierdo, R., Desjardins, P., Martel, R.,** 2006, Carbon nanotube sheets as electrodes in organic light-emitting diodes, *Appl. Phys. Lett.*, 88. doi:10.1063/1.2199461
- Aleksandrova, M., Videkov, V., Ivanova, R., Singh, A.K., Thool, G.S.,** 2016, Highly flexible, conductive and transparent PEDOT:PSS/Au/PEDOT:PSS multilayer electrode for optoelectronic devices, *Mater. Lett.*, 174, 204–208pp. doi:10.1016/j.matlet.2016.03.127
- Alemu, D., Wei, H.-Y., Ho, K.-C., Chu, C.-W.,** 2012, Highly conductive PEDOT:PSS electrode by simple film treatment with methanol for ITO-free polymer solar cells, *Energy Environ. Sci.*, 5, 9662p. doi:10.1039/c2ee22595f
- Badeker, K.,** 1907, Über die electrische leitfähigkeit und die thermoelektrische kraft einiger schwermetallverbindungen, *Ann. Phys.*, 22, 749–766pp.
- Badre, C., Marquant, L., Alsayed, A.M., Hough, L.A.,** 2012, Highly conductive poly(3,4-ethylenedioxythiophene):Poly (styrenesulfonate) films using 1-ethyl-3-methylimidazolium tetracyanoborate ionic liquid, *Adv. Funct. Mater.*, 22, 2723–2727pp. doi:10.1002/adfm.201200225
- Bahr, J.L., Mickelson, E.T., Bronikowski, M.J., Smalley, R.E., Tour, J.M.,** 2001, Dissolution of small diameter single-wall carbon nanotubes in organic solvents, *Chem. Commun.*, 193–194pp. doi:10.1039/b008042j
- Baik, S., Muhammed Ajmal, C., Hee Kim, K., Yang, D., Roh, J., Cheol Park, H., Kwak, C., Choi, J.-Y., Menampambath, M.M.,** 2015, Silver nanowires decorated with silver nanoparticles for low-haze flexible transparent conductive films, *Sci. Rep.*, 5, 16371p. doi:10.1038/srep16371
- Baughman, R., Zakhidov, A., Heer, W.,** 2000, Carbon nanotubes the route toward, *Applications Science*, 297, 787–792pp. doi:10.1126/science.1060928

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Becerril, H.A., Mao, J., Liu, Z., Stoltenberg, R.M., Bao, Z., Chen, Y.,** 2008, Evaluation of solution-processed reduced graphene oxide Films as Transparent Conductors, *ACS Nano*, 2, 463–470pp. doi:10.1021/nn700375n
- Bender, V.C., Marchesan, T.B., Alonso, J.M.,** 2015, Solid-State Lighting: A concise review of the state of the art on LED and OLED modeling, *IEEE Ind. Electron. Mag.*, 9, 6–16pp. doi:10.1109/MIE.2014.2360324
- Bergin, S.D., Nicolosi, V., Streich, P. V., Giordani, S., Sun, Z., Windle, A.H., Ryan, P., Niraj, N.P.P., Wang, Z.T.T., Carpenter, L., Blau, W.J., Boland, J.J., Hamilton, J.P., Coleman, J.N.,** 2008, Towards solutions of single-walled carbon nanotubes in common solvents, *Adv. Mater.*, 20, 1876–1881pp. doi:10.1002/adma.200702451
- Bergin, S.M., Chen, Y.-H., Rathmell, A.R., Charbonneau, P., Li, Z.-Y., Wiley, B.J.,** 2012, The effect of nanowire length and diameter on the properties of transparent, conducting nanowire films, *Nanoscale*, 4, 1996p. doi:10.1039/c2nr30126a
- Bernanose, A., Comte, M., Vouaux, P.,** 1953, *J. Chim. Phys*, 5065.
- Cai, M., Ye, Z., Xiao, T., Liu, R., Chen, Y., Mayer, R.W., Biswas, R., Ho, K.M., Shinar, R., Shinar, J.,** 2012, Extremely efficient indium-tin-oxide-free green phosphorescent organic light-emitting diodes, *Adv. Mater.*, 24, 4337–4342pp. doi:10.1002/adma.201202035
- Chang, B.H., Wang, G., Yang, A., Tao, X., Liu, X.,** 2010, A transparent , flexible , low-temperature , and solution- processible graphene composite electrode, *Adv. Funct. Mater.*, 20, 2893–2902 pp. doi:10.1002/adfm.201000900
- Chang, H., Wu, H.,** 2013, Graphene-based nanomaterials: synthesis, properties, and optical and optoelectronic applications, *Adv. Funct. Mater.*, 23, 1984–1997pp. doi:10.1002/adfm.201202460
- Chang, J.-H., Chiang, K.-M., Kang, H.-W., Chi, W.-J., Chang, J.-H., Wu, C.-L., Lin, H.-W.,** 2015, A solution-processed molybdenum oxide treated silver nanowire network: a highly conductive transparent conducting electrode with superior mechanical and hole injection properties, *Nanoscale*, 7, 4572–4579pp. doi:10.1039/b000000x

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Chaskar, A., Chen, H., Wong, K.**, 2011, Bipolar host materials : a chemical approach for highly efficient electrophosphorescent devices, *Adv. Mater.*, 23, 3876–3895pp. doi:10.1002/adma.201101848
- Chen, R., Das, S.R., Jeong, C., Khan, M.R., Janes, D.B., Alam, M.A.**, 2013, Co-percolating graphene-wrapped silver nanowire network for high performance, highly stable, transparent conducting electrodes, *Adv. Funct. Mater.*, 23, 5150–5158pp. doi:10.1002/adfm.201300124
- Chou, T.-R., Chen, S.-H., Chiang, Y.-T., Lin, Y.-T., Chao, C.-Y.**, 2015, Highly conductive PEDOT:PSS films by post-treatment with dimethyl sulfoxide for ITO-free liquid crystal display, *J. Mater. Chem. C.*, 3, 3760–3766pp. doi:10.1039/C5TC00276A
- Chun-Jun, L., Hui, Z., Zhi-Qun, H., Chun-Xiu, Z., Dan, L., Yong-Sheng, W.**, 2010, Polymer Light-Emitting Diode Using Conductive Polymer as the Anode Layer, *Chinese Phys. Lett.*, 27(9), 97801p. doi:10.1088/0256-307X/27/9/097801
- Cruz-Cruz, I., Reyes-Reyes, M., Aguilar-Frutis, M.A., Rodriguez, A.G., López-Sandoval, R.**, 2010, Study of the effect of DMSO concentration on the thickness of the PSS insulating barrier in PEDOT:PSS thin films, *Synth. Met.*, 160, 1501–1506pp. doi:10.1016/j.synthmet.2010.05.010
- Cruz-Cruz, I., Reyes-Reyes, M., López-Sandoval, R.**, 2013, Formation of polystyrene sulfonic acid surface structures on poly(3,4-ethylenedioxythiophene): Poly(styrenesulfonate) thin films and the enhancement of its conductivity by using sulfuric acid, *Thin Solid Films*, 531, 385–390pp. doi:10.1016/j.tsf.2012.12.050
- De Girolamo Del Mauro, A., Nenna, G., Villani, F., Minarini, C.**, 2012, Study of the effect of the doped poly(3,4-ethylenedioxythiophene): poly(styrene sulfonate) polymeric anode on the organic light-emitting diode performances, *Thin Solid Films*, 520, 5386–5391pp. doi:10.1016/j.tsf.2012.03.128
- Du, J., Pei, S., Ma, L., Cheng, H.**, 2014, 25th anniversary article : Carbon nanotube- and graphene-based transparent conductive films for optoelectronic devices, *Adv. Mater.*, 26, 1958–1991pp. doi:10.1002/adma.201304135

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Edwards, P.P., Porph, A., Jones, M.O., Morgan, D. V., Perks, R.M.,** 2004, Basic materials physics of transparent conducting oxides, *Dalt. Trans.*, 7, 2995–3002pp.
- Eigler, S., Enzelberger-Heim, M., Grimm, S., Hofmann, P., Kroener, W., Geworski, A., Dotzer, C., Röckert, M., Xiao, J., Papp, C., Lytken, O., Steinrück, H.P., Müller, P., Hirsch, A.,** 2013, Wet chemical synthesis of graphene. *Adv. Mater.*, 25, 3583p. doi:10.1002/adma.201300155
- Exarhos, G.J., Zhou, X.-D.,** 2007, Discovery-based design of transparent conducting oxide films, *Thin Solid Films*, 515, 7025–7052pp. doi:http://dx.doi.org/10.1016/j.tsf.2007.03.014
- Fabretto, M. V, Evans, D.R., Mueller, M., Zuber, K., Short, R.D., Wallace, G.G., Murphy, P.J.,** 2012, Polymeric material with metal-like conductivity for next generation organic electronic devices, *Chem. Mater.*, 24, 1–6pp.
- Feng, Y., Ju, X., Feng, W., Zhang, H., Cheng, Y., Liu, J., Fujii, A., Ozaki, M., Yoshino, K.,** 2009, Organic solar cells using few-walled carbon nanotubes electrode controlled by the balance between sheet resistance and the transparency, *Appl. Phys. Lett.*, 94, 1–4pp. doi:10.1063/1.3103557
- Forrest, S.R., Baldo, M.A., O'Brien, D., You, Y., Al, E.,** 1998, Highly efficient phosphorescent emission from organic electroluminescent devices, *Nature*, 395, 151–154pp. doi:10.1038/25954
- Friedel, B., Keivanidis, P.E., Brenner, T.J.K., Abrusci, A., McNeill, C.R., Friend, R.H., Greenham, N.C.,** 2009, Effects of layer thickness and annealing of PEDOT:PSS layers in organic photodetectors, *Macromolecules*, 42, 6741–6747pp. doi:10.1021/ma901182u
- Friend, R.H., Burroughes, J.H., Bradley, D.D.C., Brown, A.R., Marks, R.N., Mackay, K., Burns, P.L., Holmes, A.B.,** 1990, Light-emitting diodes based on conjugated polymers, *Nature*, 347, 539–541pp. doi:10.1038/347539a0

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Gaynor, W., Hofmann, S., Christoforo, M.G., Sachse, C., Mehra, S., Salleo, A., McGehee, M.D., Gather, M.C., Lüssem, B., Müller-Meskamp, L., Peumans, P., Leo, K.,** 2013, Color in the corners: ITO-free white OLEDs with angular color stability. *Adv. Mater.*, 25, 4006–4013pp. doi:10.1002/adma.201300923
- Geng, H.-Z., Kim, K.K., So, K.P., Lee, Y.S., Chang, Y., Lee, Y.H.,** 2007, Effect of acid treatment on carbon nanotube-based flexible transparent conducting films, *J. Am. Chem. Soc.*, 129(25), 7758-7759pp. doi:10.1021/ja0722224
- Gooding, J.J.,** 2005, Nanostructuring electrodes with carbon nanotubes: A review on electrochemistry and applications for sensing, *Electrochim. Acta*, 50, 3049–3060pp. doi:10.1016/j.electacta.2004.08.052
- Guo, C.F., Sun, T., Liu, Q., Suo, Z., Ren, Z.,** 2014, Highly stretchable and transparent nanomesh electrodes made by grain boundary lithography, *Nat. Commun.*, 5, 3121p. doi:10.1038/ncomms4121
- Güneş, F., Shin, H.J., Biswas, C., Han, G.H., Kim, E.S., Chae, S.J., Choi, J.Y., Lee, Y.H.,** 2010, Layer-by-layer doping of few-layer graphene film, *ACS Nano*, 4, 4595–4600pp. doi:10.1021/nn1008808
- Han, T.-H., Jeong, S.-H., Lee, Y., Seo, H.-K., Kwon, S.-J., Park, M.-H., Lee, T.-W.,** 2015, Flexible transparent electrodes for organic light-emitting diodes, *J. Inf. Disp.*, 316, 1–14pp. doi:10.1080/15980316.2015.1016127
- Han, T.H., Lee, Y., Choi, M.R., Woo, S.H., Bae, S.H., Hong, B.H., Ahn, J.H., Lee, T.W.,** 2012, Extremely efficient flexible organic light-emitting diodes with modified graphene anode, *Nat. Photonics*, 6, 105–110pp. doi:10.1038/nphoton.2011.318
- Hatton, R. a., Willis, M.R., Chesters, M. a., Briggs, D.,** 2003, A robust ultrathin, transparent gold electrode tailored for hole injection into organic light-emitting diodes, *J. Mater. Chem.*, 13, 722–726pp. doi:10.1039/b211775b
- Hecht, D.S., Heintz, A.M., Lee, R., Hu, L., Moore, B., Cucksey, C., Risser, S.,** 2011a, High conductivity transparent carbon nanotube films deposited from superacid. *Nanotechnology*, 22, 75201p. doi:10.1088/0957-4484/22/7/075201

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Hecht, D.S., Hu, L., Irvin, G.**, 2011b, Emerging transparent electrodes based on thin films of carbon nanotubes, graphene, and metallic nanostructures, *Adv. Mater.*, 23, 1482–1513pp. doi:10.1002/adma.201003188
- Hecht, D.S., Kaner, R.B.**, 2011, Solution-processed transparent electrodes, *MRS Bull.*, 36, 749–755pp. doi:10.1557/mrs.2011.211
- Heeger, A.J., Chiang, C.K., Fincher, C.R., Park, Y.W., Shirakawa, H., Louis, E.J., Gau, S.C., MacDiarmid, A.G.**, 1977. Electrical conductivity in doped polyacetylene, *Phys. Rev. Lett.*, 39, 1098–1101pp. doi:10.1103/PhysRevLett.39.1098
- Hellstrom, S.L., Vosgueritchian, M., Stoltenberg, R.M., Irfan, I., Hammock, M., Wang, Y.B., Jia, C., Guo, X., Gao, Y., Bao, Z.**, 2012, Strong and stable doping of carbon nanotubes and graphene by MoO_x for transparent electrodes, *Nano Lett.*, 12, 3574–3580pp. doi:10.1021/nl301207e
- Hsu, C., Lin, C., Huang, J., Chu, C., Wei, K., Li, L.**, 2012, Layer-by-Layer graphene / TCNQ stacked films as conducting anodes for organic solar cells, *ACS Nano*, 6(6), 5031–5039pp. doi:10.1021/nl301721q
- Hu, L., Kim, H.S., Lee, J.Y., Peumans, P., Cui, Y.**, 2010, Scalable coating and properties of transparent, flexible, silver nanowire electrodes, *ACS Nano*, 4, 2955–2963pp. doi:10.1021/nn1005232
- Huang, J., Miller, P.F., De Mello, J.C., De Mello, a. J., Bradley, D.D.C.**, 2003, Influence of thermal treatment on the conductivity and morphology of PEDOT/PSS films, *Synth. Met.*, 139, 569–572pp. doi:10.1016/S0379-6779(03)00280-7
- Iijima, S., Ichihashi, T.**, 1993, Single-shell carbon nanotubes of 1-nm diameter, *Nature*, 363, 603–605pp. doi:10.1038/363603a0
- Jeong, H., Lee, J., Park, Y., An, B., Park, J.**, 2015, Recent progress in the use of fluorescent and phosphorescent organic compounds for organic light-emitting diode lighting, *Journal of Photonics for Energy*, 5, 57608p. doi:10.1117/1.JPE.5.057608

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Jia, S., Sun, H.D., Du, J.H., Zhang, Z.K., Zhang, D.D., Ma, L.P., Chen, J.S., Ma, D.G., Cheng, H.-M.M., Ren, W.C.**, 2016, Graphene oxide/graphene vertical heterostructure electrodes for highly efficient and flexible organic light emitting diodes, *Nanoscale*, 8, 10714-10723pp. doi:10.1039/C6NR01649A
- Jonda, C., Mayer, A.B.R., Stolz, U., Elschner, A., Karbach, A.**, 2000, Surface roughness effects and their influence on the degradation of organic light emitting devices, *J. Mater. Sci.*, 35, 5645–5651pp. doi:10.1023/A:1004842004640
- Kafafi, Z.H., Martín-Palma, R.J., Nogueira, A.F., O’Carroll, D.M., Pietron, J.J., Samuel, I.D.W., So, F., Tansu, N., Tsakalakos, L.**, 2015, The role of photonics in energy, *J. Photonics Energy*, 5, 50997p. doi:10.1117/1.JPE.5.050997
- Kang, H., Jung, S., Jeong, S., Kim, G., Lee, K.**, 2015, Polymer-metal hybrid transparent electrodes for flexible electronics, *Nat. Commun.*, 6, 6503p. doi:10.1038/ncomms7503
- Khrapach, I., Withers, F., Bointon, T.H., Polyushkin, D.K., Barnes, W.L., Russo, S., Craciun, M.F.**, 2012, Novel highly conductive and transparent graphene-based conductors, *Adv. Mater.*, 24, 2844–2849pp. doi:10.1002/adma.201200489
- Kim, D., Lee, D., Lee, Y., Jeon, D.Y.**, 2013, Work-function engineering of graphene anode by bis(trifluoromethanesulfonyl)amide doping for efficient polymer light-emitting diodes, *Adv. Funct. Mater.*, 23, 5049–5055pp. doi:10.1002/adfm.201301386
- Kim, H.C., Gilmore, C.M., Horwitz, J.S., Pique, A., Murata, H., Kushto, G.P., Schlaf, R., Kafafi, Z.H., Chrissey, D.B.**, 2000, Transparent conducting aluminum-doped zinc oxide thin films for organic light-emitting devices, *Appl. Phys. Lett.*, 76, 259–261pp. doi:10.1063/1.125740
- Kim, J.Y., Jung, J.H., Lee, D.E., Joo, J.**, 2002, Enhancement of electrical conductivity of poly(3,4-ethylenedioxythiophene)/poly(4-styrenesulfonate) by a change of solvents, *Synth. Met.*, 126, 311–316pp. doi:10.1016/S0379-6779(01)00576-8

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Kim, K.K., Bae, J.J., Park, H.K., Kim, S.M., Geng, H.-Z., Park, K.A., Shin, H.-J., Yoon, S.-M., Benayad, A., Choi, J.-Y., Lee, Y.H.,** 2008, Fermi level engineering of single-walled carbon nanotubes by AuCl₃ doping, *J. Am. Chem. Soc.*, 130, 12757–12761pp. doi:10.1021/ja8038689
- Kim, M., Lee, Y.S., Kim, Y.C., Choi, M.S., Lee, J.Y.,** 2011, Flexible organic light-emitting diode with a conductive polymer electrode, *Synth. Met.*, 161, 2318–2322pp. doi:10.1016/j.synthmet.2011.08.041
- Kim, S., Yim, J., Wang, X., Bradley, D.D.C., Lee, S., DeMello, J.C.,** 2010, Spin-and spray-deposited single-walled carbon-nanotube electrodes for organic solar cells, *Adv. Funct. Mater.*, 20, 2310–2316pp. doi:10.1002/adfm.200902369
- Kim, Y.H., Sachse, C., MacHala, M.L., May, C., Müller-Meskamp, L., Leo, K.,** 2011, Highly conductive PEDOT:PSS electrode with optimized solvent and thermal post-treatment for ITO-free organic solar cells, *Adv. Funct. Mater.*, 21, 1076–1081pp. doi:10.1002/adfm.201002290
- Konios, D., Petridis, C., Kakavelakis, G., Sygletou, M., Savva, K., Stratakis, E., Kymakis, E.,** 2015, Reduced graphene oxide micromesh electrodes for large area, flexible, organic photovoltaic devices, *Adv. Funct. Mater.*, 25, 2213–2221pp. doi:10.1002/adfm.201404046
- Krantz, J., Stubhan, T., Richter, M., Spallek, S., Litzov, I., Matt, G.J., Spiecker, E., Brabec, C.J.,** 2013, Spray-coated silver nanowires as top electrode layer in semitransparent P3HT:PCBM-based organic solar cell devices, *Adv. Funct. Mater.*, 23, 1711–1717pp. doi:10.1002/adfm.201202523
- Langford, E.G., Shaughnessy, K.D., Devore, T.C., Lawrence, D., Constantin, C.,** 2016. Analysis of PEDOT:PSS films after sulfuric acid treatment on silicon and fused silica using FT-IR and UV-VIS. *MRS Adv.*, 1, 465-469pp. doi:10.1557/adv.2016.177
- Larrieu, J., Held, B., Martinez, H., Tison, Y.,** 2005, Ageing of atactic and isotactic polystyrene thin films treated by oxygen DC pulsed plasma, *Surf. Coatings Technol.*, 200, 2310–2316pp. doi:10.1016/j.surfcoat.2004.06.032
- Lee, H., Lee, D., Ahn, Y., Lee, E.-W., Park, L.S., Lee, Y.,** 2014, Highly efficient and low voltage silver nanowire-based OLEDs employing a n-type hole injection layer, *Nanoscale*, 6, 8565–8570pp. doi:10.1039/c4nr01768d

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Lee, H.J., Park, T.H., Choi, J.H., Song, E.H., Shin, S.J., Kim, H., Choi, K.C., Park, Y.W., Ju, B.K.**, 2013, Negative mold transfer patterned conductive polymer electrode for flexible organic light-emitting diodes, *Org. Electronics: Physics, Mater., Appl.*, 14, 416–422pp. doi:10.1016/j.orgel.2012.11.015
- Lee, I., Kim, G.W., Yang, M., Kim, T.S.**, 2016, Simultaneously enhancing the cohesion and electrical conductivity of PEDOT:PSS conductive polymer films using DMSO additives, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 8, 302–310pp. doi:10.1021/acsami.5b08753
- Lee, J., Han, T.-H., Park, M.-H., Jung, D.Y., Seo, J., Seo, H.-K., Cho, H., Kim, E., Chung, J., Choi, S.-Y., Kim, T.-S., Lee, T.-W., Yoo, S.**, 2016, Synergetic electrode architecture for efficient graphene-based flexible organic light-emitting diodes, *Nat. Commun.*, 7, 11791p. doi:10.1038/ncomms11791
- Lee, J., Woo, J.Y., Kim, J.T., Lee, B.Y., Han, C.-S.**, 2014, Synergistically enhanced stability of highly flexible silver nanowire / carbon nanotube hybrid transparent electrodes by plasmonic welding, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 6, 10974–10980pp. doi:10.1002/)
- Lee, J.Y., Connor, S.T., Cui, Y., Peumans, P.**, 2008, Solution-processed metal nanowire mesh transparent electrodes, *Nano Lett.*, 8, 689–692pp. doi:10.1021/nl073296g
- Lee, Y., Ahn, J.H.**, 2013, Graphene-based transparent conductive films, *Nano Br. Reports Rev.*, 8, 1–16pp. doi:10.1142/S1793292013300016
- Lee, J.L., Kim, Y.-H., Kim, J.K., Baik, H., Park, J.H., Lee, J., Nam, J., Park, J.H., Lee, T.-W., Yi, G.-R., Cho, J.H.**, 2014, A roll-to-roll welding process for planarized silver nanowire electrodes, *Nanoscale*, 6, 11828–11834pp. doi:10.1039/c4nr03771e
- Li, J., Hu, L., Wang, L., Zhou, Y., Grüner, G., Marks, T.J.**, 2006, Organic light-emitting diodes having carbon nanotube anodes, *Nano Lett.*, 6, 2472–2477pp.
- Li, L., Yu, Z., Chang, C., Hu, W., Niu, X., Chen, Q., Pei, Q.**, 2012, Efficient white polymer light-emitting diodes employing a silver nanowire–polymer composite electrode, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 14(41), 14249–14254pp. doi:10.1039/c2cp41562c

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Li, L., Yu, Z., Hu, W., Chang, C.H., Chen, Q., Pei, Q.**, 2011, Efficient flexible phosphorescent polymer light-emitting diodes based on silver nanowire-polymer composite electrode, *Adv. Mater.*, 23, 5563–5567pp. doi:10.1002/adma.201103180
- Li, N., Oida, S., Tulevski, G.S., Han, S.-J., Hannon, J.B., Sadana, D.K., Chen, T.-C.**, 2013, Efficient and bright organic light-emitting diodes on single-layer graphene electrodes, *Nat. Commun.*, 4, 2294pp. doi:10.1038/ncomms3294
- Li, X.S., Zhu, Y.W., Cai, W.W., Borysiak, M., Han, B.Y., Chen, D., Piner, R.D., Colombo, L., Ruoff, R.S.**, 2009, Transfer of Large-Area Graphene Films for High-Performance Transparent Conductive Electrodes, *Nano Lett.*, 9, 4359–4363pp. doi:10.1021/nl902623y
- Liang, J., Li, L., Niu, X., Yu, Z., Pei, Q.**, 2013, Elastomeric polymer light-emitting devices and displays, *Nat. Photonics*, 7, 817–824pp. doi:10.1038/nphoton.2013.242
- Liu, E., Liu, C., Zhu, Z., Shi, H., Jiang, Q., Jiang, F., Xu, J., Xiong, J., Hu, Y.**, 2015, Enhanced thermoelectric performance of PEDOT:PSS films by solvent thermal treatment, *J. Polym. Res.*, 22(240), 1–5pp. doi:10.1007/s10965-015-0883-3
- Liu, Y.-F., Feng, J., Zhang, Y.-F., Cui, H.-F., Yin, D., Bi, Y.-G., Song, J.-F., Chen, Q.-D., Sun, H.-B.**, 2015, Improved efficiency of indium-tin-oxide-free organic light-emitting devices using PEDOT:PSS/graphene oxide composite anode, *Org. Electron.*, 26, 81–85pp. doi:10.1016/j.orgel.2015.06.031
- Liu, Y.-F., Feng, J., Zhang, Y.-F., Cui, H.-F., Yin, D., Bi, Y.-G., Song, J.-F., Chen, Q.-D., Sun, H.-B.**, 2014, Improved efficiency of indium-tin-oxide-free flexible organic light-emitting devices, *Org. Electron.*, 15, 478–483pp. doi:10.1016/j.orgel.2013.11.035
- Liu, Z., Xu, J., Chen, D., Shen, G.**, 2015, Flexible electronics based on inorganic nanowires, *Chem. Soc. Rev.*, 44, 161–192pp. doi:10.1039/C4CS00116H

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Liu, W. Bin, Pei, S., Du, J., Liu, B., Gao, L., Su, Y., Liu, C., Cheng, H.M.,** 2011, Additive-free dispersion of single-walled carbon nanotubes and its application for transparent conductive films, *Adv. Funct. Mater.*, 21, 2330–2337pp. doi:10.1002/adfm.201002257
- Meyer, J., Kidambi, P.R., Bayer, B.C., Weijtens, C., Kuhn, A., Centeno, A., Pesquera, A., Zurutuza, A., Robertson, J., Hofmann, S.,** 2014, Metal oxide induced charge transfer doping and band alignment of graphene electrodes for efficient organic light emitting diodes, *Sci. Rep.*, 4, 5380. doi:10.1038/srep05380
- Minami, T.,** 2008, Present status of transparent conducting oxide thin-film development for Indium-Tin-Oxide (ITO) substitutes, *Thin Solid Films*, 516, 5822–5828pp. doi:10.1016/j.tsf.2007.10.063
- Minami, T.,** 2005, Transparent conducting oxide semiconductors for transparent electrodes, *Semicond. Sci. Technol.*, 20, 35–44pp. doi:10.1088/0268-1242/20/4/004
- Minami, T.,** 2000, New n-type transparent conducting oxides. *MRS Bull.*, 25, 38–44pp. doi:https://doi.org/10.1557/mrs2000.149
- Mirri, F., Ma, A.W.K., Hsu, T.T., Behabtu, N., Eichmann, S.L., Young, C.C., Tsentalovich, D.E., Pasquali, M.,** 2012, High-performance carbon nanotube transparent conductive films by scalable dip coating, *ACS Nano*, 6, 9737–9744pp. doi:10.1021/nn303201g
- Moon, I.K., Kim, J.I., Lee, H., Hur, K., Kim, W.C., Lee, H.,** 2013, 2D graphene oxide nanosheets as an adhesive over-coating layer for flexible transparent conductive electrodes, *Sci. Rep.*, 3, 1112. doi:10.1038/srep01112
- Morales-Masis, M., Dazou, F., Jeangros, Q., Dabirian, A., Lifka, H., Gierth, R., Ruske, M., Moet, D., Hessler-Wyser, A., Ballif, C.,** 2016, An indium-free anode for large-Area flexible OLEDs: defect-free transparent conductive zinc tin oxide, *Adv. Funct. Mater.*, 26, 384–392pp. doi:10.1002/adfm.201503753
- Nagata, T., Oh, S., Chikyow, T., Wakayama, Y.,** 2011, Effect of UV-ozone treatment on electrical properties of PEDOT:PSS film, *Org. Electronics: Physics, Mater. Appl.*, 12, 279–284pp. doi:10.1016/j.orgel.2010.11.009

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Nayak, P.K., Kim, J., Chung, S., Jeong, J., Lee, C., Hong, Y.,** 2009, Spin-coated Ga-doped ZnO transparent conducting thin films for organic light-emitting diodes, *J. Phys. D. Appl. Phys.*, 42(13), 139801p. doi:10.1088/0022-3727/42/13/139801
- Nikitenko, V.R., Tak, Y.H., Bassler, H.,** 1998, Rise time of electroluminescence from bilayer light emitting diodes, *J. Appl. Phys.*, 84, 2334–2340pp. doi:10.1063/1.368301
- Ning, J., Wang, J., Li, X.L., Qiu, T.F., Luo, B., Hao, L., Liang, M.H., Wang, B., Zhi, L.J.,** 2014, A fast room-temperature strategy for direct reduction of graphene oxide films towards flexible transparent conductive films, *J. Mater. Chem. A*, 2, 10969–10973pp. doi:10.1039/C4ta00527a
- Ok, K.-H., Kim, J., Park, S.-R., Kim, Y., Lee, C.-J., Hong, S.-J., Kwak, M.-G., Kim, N., Han, C.J., Kim, J.-W.,** 2015, Ultra-thin and smooth transparent electrode for flexible and leakage-free organic light-emitting diodes, *Sci. Rep.*, 5, 9464. doi:10.1038/srep09464
- Ou, E.C.-W., Hu, L., Raymond, G.C.R., Soo, O.K., Pan, J., Zheng, Z., Park, Y., Hecht, D., Irvin, G., Drzaic, P., Gruner, G.,** 2009, Surface-modified nanotube anodes for high performance organic light-emitting diode, *ACS Nano*, 3, 2258–2264pp. doi:10.1021/nn900406n
- Ouyang, J.,** 2013, Solution-processed PEDOT : PSS films with conductivities as indium tin oxide through a treatment with mild and weak organic acids, *ACS Appl. Mater. Interfaces.*, 5, 13082–13088pp.
- Ouyang, J., Xu, Q., Chu, C.W., Yang, Y., Li, G., Shinar, J.,** 2004, On the mechanism of conductivity enhancement in poly(3,4-ethylenedioxythiophene):poly(styrene sulfonate) film through solvent treatment, *Polymer*, 45(25), 8443–8450pp. doi:10.1016/j.polymer.2004.10.001
- Ouyang, L., Musumeci, C., Jafari, M.J., Ederth, T., Inganäs, O.,** 2015, Imaging the phase separation between PEDOT and polyelectrolytes during processing of highly conductive PEDOT:PSS films, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 7, 19764–19773pp. doi:10.1021/acsami.5b05439

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Park, J.H., Kang, S.J., Na, S.I., Lee, H.H., Kim, S.W., Hosono, H., Kim, H.K.,** 2011, Indium-free, acid-resistant anatase Nb-doped TiO₂ electrodes activated by rapid-thermal annealing for cost-effective organic photovoltaics, *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, 95, 2178–2185pp. doi:10.1016/j.solmat.2011.03.021
- Pathak, C.S., Singh, J.P., Singh, R.,** 2015, Effect of dimethyl sulfoxide on the electrical properties of PEDOT:PSS/n-Si heterojunction diodes, *Curr. Appl. Phys.*, 15, 528–534pp. doi:10.1016/j.cap.2015.01.020
- Petsagkourakis, I., Pavlopoulou, E., Portale, G., Kuropatwa, B.A., Dilhaire, S., Fleury, G., Hadziioannou, G.,** 2016, Structurally-driven enhancement of thermoelectric properties within Poly(3,4-ethylenedioxythiophene) thin films, *Sci. Rep.*, 6, 30501. doi:10.1038/srep30501
- Pope, M., Kallmann, H.P., Magnante, P.,** 1963, Electroluminescence in organic crystals. *J. Chem. Phys.*, 38, 2042. doi:10.1063/1.1733929
- Round, H.J.,** 1907, A note on carborundum, *Electr. World*.
- Rowell, M.W., Topinka, M.A., McGehee, M.D., Prall, H.J., Dennler, G., Sariciftci, N.S., Hu, L., Gruner, G.,** 2006, Organic solar cells with carbon nanotube network electrodes, *Appl. Phys. Lett.*, 88, 233506. doi:10.1063/1.2209887
- Shi, L., Yang, J., Yang, T., Hanxun, Q., Zheng, Q.,** 2014, Molecular level controlled fabrication of highly transparent conductive reduced graphene oxide / silver nanowire hybrid films, *RSC Adv.*, 4, 43270–43277pp. doi:10.1039/C4RA07228F
- Shim, B.S., Tang, Z., Morabito, M.P., Agarwal, A., Hong, H., Kotov, N.A.,** 2007, Integration of conductivity, transparency, and mechanical strength into highly homogeneous layer-by-layer composites of single-walled carbon nanotubes for optoelectronics, *Chem. Mater.*, 19, 5467–5474pp. doi:10.1021/cm070442a
- Shin, S., Kim, J., Kim, Y.H., Kim, S.I.,** 2013, Enhanced performance of organic light-emitting diodes by using hybrid anodes composed of graphene and conducting polymer, *Curr. Appl. Phys.*, 13, 144–147pp. doi:10.1016/j.cap.2013.01.016

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Shiraishi, M., Ata, M.**, 2001, Work function of carbon nanotubes. *Carbon N. Y.*, 39, 1913–1917pp. doi:10.1016/S0008-6223(00)00322-5
- Singh, K., Ohlan, A., Dhawan, S.K.**, 2012, Polymer-graphene nanocomposites: preparation, characterization, properties, and applications, *Nanocomposite*, 108, 37–71pp. doi:10.5772/3389
- Song, C.-H., Ok, K.-H., Lee, C.-J., Kim, Y., Kwak, M.-G., Han, C.J., Kim, N., Ju, B.-K., Kim, J.-W.**, 2015, Intense-pulsed-light irradiation of Ag nanowire-based transparent electrodes for use in flexible organic light emitting diodes, *Org. Electron.*, 17, 208–215pp. doi:10.1016/j.orgel.2014.12.015
- Song, M., You, D.S., Lim, K., Park, S., Jung, S., Kim, C.S., Kim, D.H., Kim, D.G., Kim, J.K., Park, J., Kang, Y.C., Heo, J., Jin, S.H., Park, J.H., Kang, J.W.**, 2013, Highly efficient and bendable organic solar cells with solution-processed silver nanowire electrodes, *Adv. Funct. Mater.*, 23, 4177–4184pp. doi:10.1002/adfm.201202646
- Stadler, A.**, 2012, Transparent conducting oxides—An Up-To-Date overview. *Materials*, 5, 661–683pp. doi:10.3390/ma5040661
- Stöcker, T., Köhler, A., Moos, R.**, 2012, Why does the electrical conductivity in PEDOT:PSS decrease with PSS content? A study combining thermoelectric measurements with impedance spectroscopy, *J. Polym. Sci. Part B Polym. Phys.*, 50, 976–983pp. doi:10.1002/polb.23089
- Su, Z., Wang, L., Li, Y., Zhao, H., Chu, B., Li, W.**, 2012, Ultraviolet-ozone-treated PEDOT:PSS as anode buffer layer for organic solar cells, *Nanoscale Res. Lett.*, 7, 465p. doi:10.1186/1556-276X-7-465
- Takenobu, T., Takano, T., Shiraishi, M., Murakami, Y., Ata, M., Kataura, H., Achiba, Y., Iwasa, Y.**, 2003, Stable and controlled amphoteric doping by encapsulation of organic molecules inside carbon nanotubes, *Nat. Mater.*, 2, 683–688pp. doi:10.1038/nmat976
- Tang, C.W., Vanslyke, S.A.**, 1987, Organic electroluminescent diodes, *Appl. Phys. Lett.*, 51, 913–915pp. doi:10.1063/1.98799

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Thomas, J.P., Zhao, L., McGillivray, D., Leung, K.T.**, 2014, High-efficiency hybrid solar cells by nanostructural modification in PEDOT:PSS with co-solvent addition, *J. Mater. Chem. A*, 2, 2383–2389pp. doi:10.1039/c3ta14590e
- Tomita, Y., May, C., Toerker, M., Amelung, J., Erritt, M., Loeffler, F., Lubner, C., Leo, K., Walzer, K., Fehse, K., Huang, Q.**, 2007, Highly efficient p-i-n-type organic light emitting diodes on ZnO:Al substrates, *Appl. Phys. Lett.*, 91, 63510. doi:10.1063/1.2768865
- Tung, V.C., Chen, L.M., Allen, M.J., Wassei, J.K., Nelson, K., Kaner, R.B., Yang, Y.**, 2009, Low-temperature solution processing of graphene- carbon nanotube hybrid materials for high-performance transparent conductors, *Nano Lett.*, 9, 2513p. doi:10.1021/nl9001525
- Ulbricht, R., Lee, S.B., Jiang, X., Inoue, K., Zhang, M., Fang, S., Baughman, R.H., Zakhidov, A.A.**, 2007, Transparent carbon nanotube sheets as 3-D charge collectors in organic solar cells, *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, 91, 416–419pp. doi:10.1016/j.solmat.2006.10.002
- Unsworth, N.K., Hancox, I., Argent Dearden, C., Sullivan, P., Walker, M., Lilley, R.S., Sharp, J., Jones, T.S.**, 2014, Comparison of dimethyl sulfoxide treated highly conductive poly(3,4-ethylenedioxythiophene):poly(styrenesulfonate) electrodes for use in indium tin oxide-free organic electronic photovoltaic devices, *Org. Electronics: Physics, Mater. Appl.*, 15, 2624–2631pp. doi:10.1016/j.orgel.2014.07.015
- Vitoratos, E., Sakkopoulos, S., Dalas, E., Paliatsas, N., Karageorgopoulos, D., Petraki, F., Kennou, S., Choulis, S.A.**, 2009, Thermal degradation mechanisms of PEDOT:PSS. *Org. Electronics: Physics, Mater. Appl.*, 10, 61–66pp. doi:10.1016/j.orgel.2008.10.008
- Wang, G.F., Tao, X.M., Xin, J.H., Fei, B.**, 2009, Modification of conductive polymer for polymeric anodes of flexible organic light-emitting diodes, *Nanoscale Res. Lett.*, 4, 613–617pp. doi:10.1007/s11671-009-9288-8
- Wang, P.-C., Liu, L.-H., Alemu Mengistie, D., Li, K.-H., Wen, B.-J., Liu, T.-S., Chu, C.-W.**, 2013, Transparent electrodes based on conducting polymers for display applications. *Displays* 34, 301–314pp. doi:10.1016/j.displa.2013.05.003

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Wang, X., Zhi, L., Müllen, K.,** 2008, Transparent, conductive graphene electrodes for dye-sensitized solar cells, *Nano Lett.*, 8, 323–327pp. doi:10.1021/nl072838r
- Wang, Y., Di, C., Liu, Y., Kajiura, H., Ye, S., Cao, L., Wei, D., Zhang, H., Li, Y., Noda, K.,** 2008, Optimizing single-walled carbon nanotube films for applications in electroluminescent devices, *Adv. Mater.*, 20, 4442–4449pp. doi:10.1002/adma.200801088
- Wang, Y., Liu, S., Dang, F., Li, Y., Yin, Y., Liu, J., Xu, K., Piao, X., Xie, W.,** 2012, An efficient flexible white organic light-emitting device with a screen-printed conducting polymer anode, *J. Phys. D. Appl. Phys.*, 45, 402002. doi:10.1088/0022-3727/45/40/402002
- Wang, Y., Tong, S.W., Xu, X.F., Özyilmaz, B., Loh, K.P.,** 2011, Interface engineering of layer-by-layer stacked graphene anodes for high-performance organic solar cells, *Adv. Mater.*, 23, 1514–1518pp. doi:10.1002/adma.201003673
- Wu, J., Agrawal, M., Becerril, H.A., Bao, Z., Liu, Z., Chen, Y., Peumans, P.,** 2010, Organic light-emitting diodes on solution-processed graphene transparent electrodes, *ACS Nano*, 4, 43–48pp. doi:10.1021/nn900728d
- Wu, J., Mather, P.T.,** 2009, POSS Polymers: Physical Properties and Biomaterials Applications, *Polym. Rev.*, 49, 25–63pp. doi:10.1080/15583720802656237
- Wu, X., Li, F., Wu, W., Guo, T.,** 2014, Flexible organic light emitting diodes based on double-layered graphene/PEDOT:PSS conductive film formed by spray-coating, *Vacuum*, 101, 53–56pp. doi:10.1016/j.vacuum.2013.07.034
- Wu, X., Li, S., Zhao, Y., Tang, Y., Liu, J., Guo, X., Wu, D., He, G.,** 2014a, Using a layer-by-layer assembly method to fabricate a uniform and conductive nitrogen-doped graphene anode for indium-tin oxide-free organic light-emitting diodes, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 6, 15753–15759pp. doi:10.1021/am502629b

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Wu, X., Lian, L., Yang, S., He, G.,** 2016, Highly conductive PEDOT:PSS and graphene oxide hybrid film with the dipping treatment by hydroiodic acid for organic light emitting diodes, *J. Mater. Chem. C*, 4, 8528–8534pp. doi:10.1039/C6TC02424F
- Wu, X., Liu, J., He, G.,** 2015a, A highly conductive PEDOT:PSS film with the dipping treatment by hydroiodic acid as anode for organic light emitting diode, *Org. Electronics: Physics, Mater. Appl.*, 22, 160–165pp. doi:10.1016/j.orgel.2015.03.048
- Wu, X., Liu, J., Wang, Y., Min, Z., Yang, M., He, G.,** 2015b, Highly conductive graphene and PEDOT : PSS hybrid film with the treatment by hydroiodic acid for indium tin oxide-free flexible organic light emitting diodes, *The Society for Information Display*, 46, 1654–1657pp. doi: 10.1002/sdtp.10150
- Wu, X., Liu, J., Wu, D., Zhao, Y., Shi, X., Wang, J.,** 2014b, Highly conductive and uniform graphene oxide modified PEDOT : PSS electrodes for ITO-Free organic light emitting diodes, *J. Mater. Chem. C*, 2, 4044–4050pp. doi:10.1039/c4tc00305e
- Wu, Z., Chen, Z., Du, X., Logan, J.M., Sippel, J., Nikolou, M., Kamaras, K., Reynolds, J.R., Tanner, D.B., Hebard, A.F., Rinzler, A.G.,** 2004, Transparent, conductive carbon nanotube films. *Science*, 305, 1273–1276pp. doi:10.1126/science.1101243
- Xia, Y., Sun, K., Ouyang, J.,** 2012a, Highly conductive poly(3,4-ethylenedioxythiophene):poly(styrene sulfonate) films treated with an amphiphilic fluoro compound as the transparent electrode of polymer solar cells, *Energy Environ. Sci.*, 5, 5325–5332pp. doi:10.1039/C1EE02475B
- Xia, Y., Sun, K., Ouyang, J.,** 2012b, Solution-processed metallic conducting polymer films as transparent electrode of optoelectronic devices, *Adv. Mater.*, 24, 2436–2440pp. doi:10.1002/adma.201104795
- Xu, L.-H., Ou, Q.-D., Li, Y.-Q., Zhang, Y.-B., Zhao, X.-D., Xiang, H.-Y., Chen, J.-D., Zhou, L., Lee, S.-T., Tang, J.-X.,** 2016, Microcavity-free broadband light outcoupling enhancement in flexible organic light-emitting diodes with nanostructured transparent metal-dielectric composite electrodes, *ACS Nano*, 10, 1625–1632pp. doi:10.1021/acsnano.5b07302

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Yan, F., Parrott, E.P.J., Ung, B.S.Y., Pickwell-Macpherson, E.,** 2015, Solvent doping of PEDOT/PSS: Effect on terahertz optoelectronic properties and utilization in terahertz devices, *J. Phys. Chem. C*, 119, 6813–6818pp. doi:10.1021/acs.jpcc.5b00465
- Yeo, J.S., Yun, J.M., Kim, D.Y., Park, S., Kim, S.S., Yoon, M.H., Kim, T.W., Na, S.I.,** 2012, Significant vertical phase separation in solvent-vapor-annealed poly(3,4-ethylenedioxythiophene):Poly(styrene sulfonate) composite films leading to better conductivity and work function for high-performance indium tin oxide-free optoelectronics, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 4, 2551–2560pp. doi:10.1021/am300231v
- Yousefi, M.H., Shahr, S., Box, P.O., Fallahzadeh, A., Saghaei, J., Darareh, M.D., Shahr, S., Box, P.O.,** 2016, Fabrication of flexible ITO-free OLED using vapor-treated PEDOT : PSS thin film as anode, *Journal of Display Technology*, 99, 1–8pp. doi:10.1109/JDT.2016.2624341
- Yu, Z., Zhang, Q., Li, L., Chen, Q., Niu, X., Liu, J., Pei, Q.,** 2011, Highly flexible silver nanowire electrodes for shape-memory polymer light-emitting diodes, *Adv. Mater.*, 23, 664–668pp. doi:10.1002/adma.201003398
- Yun, J.-M., Jung, C.-H., Noh, Y.-J., Jeon, Y.-J., Kim, S.-S., Kim, D.-Y., Na, S.-I.,** 2015, Morphological, optical, and electrical investigations of solution-processed reduced graphene oxide and its application to transparent electrodes in organic solar cells, *J. Ind. Eng. Chem.*, 21, 877–883pp. doi:10.1016/j.jiec.2014.04.026
- Zeng, X.Y., Zhang, Q.K., Yu, R.M., Lu, C.Z.,** 2010, A new transparent conductor: Silver nanowire film buried at the surface of a transparent polymer, *Adv. Mater.*, 22, 4484–4488pp. doi:10.1002/adma.201001811
- Zhang, D., Ryu, K., Liu, X., Polikarpov, E., Ly, J., Tompson, M.E., Zhou, C.,** 2006, Transparent, conductive, and flexible carbon nanotube films and their application in organic light-emitting diodes, *Nano Lett.*, 6(9), 1880–1886pp.
- Zhang, M., Fang, S., Zakhidov, A.A., Lee, S.B., Aliev, A.E., Williams, C.D., Atkinson, K.R., Baughman, R.H.,** 2005, Strong, transparent, multifunctional, carbon nanotube sheets, *Science*, 309, 1215–1219pp. doi:10.1126/science.1115311

KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

- Zhang, M., Höfle, S., Czolk, J., Mertens, A., Colsmann, A.**, 2015, All-solution processed transparent organic light emitting diodes, *Nanoscale*, 7, 20009–20014pp. doi:10.1039/C5NR05820A
- Zhao, C., Xing, L., Xiang, J., Cui, L., Jiao, J., Sai, H., Li, Z., Li, F.**, 2014, Formation of uniform reduced graphene oxide films on modified PET substrates using drop-casting method, *Particuology*, 17, 66–73pp. doi:10.1016/j.partic.2014.02.005
- Zhou, Y., Shimada, S., Saito, T., Azumi, R.**, 2015, Building interconnects in carbon nanotube networks with metal halides for transparent electrodes, *Carbon N. Y.*, 87, 61–69pp. doi:10.1016/j.carbon.2015.01.031
- Zhou, Y., Yuan, Y., Lian, J., Zhang, J., Pang, H., Cao, L., Zhou, X.**, 2006, Mild oxygen plasma treated PEDOT:PSS as anode buffer layer for vacuum deposited organic light-emitting diodes, *Chem. Phys. Lett.*, 427, 394–398pp. doi:10.1016/j.cplett.2006.06.035
- Zhu, X.Z., Han, Y.Y., Liu, Y., Ruan, K.Q., Xu, M.F., Wang, Z.K., Jie, J.S., Liao, L.S.**, 2013, The application of single-layer graphene modified with solution-processed TiO_x and PEDOT:PSS as a transparent conductive anode in organic light-emitting diodes, *Org. Electron.*, 14, 3348–3354pp. doi:10.1016/j.orgel.2013.10.003

ÖZGEÇMİŞ

Adı ve Soyadı : Fatih YEŞİL
Adres : Kazım Dirik Mah. 210 Sk. No:7 Bornova/İZMİR
E-posta ve Telefon : fatihyesil67@gmail.com/ 0 (554) 632 7899
Doğum Yeri ve Tarihi : KDZ. EREĞLİ – 23/01/1989
Medeni Durum : Bekar
Askerlik : Tecilli (Eylül 2018)

EĞİTİM

Lisans : Ege Üniversitesi Fen Fak. Fizik Bölümü (2014)

AKADEMİK PROJE

“Kimyasal yolla grafen türevlerinin sentezi ve organik ışık yayan diyotlarda anot ve boşluk transfer malzemesi olarak kullanımları” başlıklı, 24 Ay süreli, 1001 program kodlu, 114M508 nolu, TÜBİTAK projesinde bursiyer olarak görev alarak, OLED aygıt yapım ve karakterizasyonları iş paketinde çalıştı.

BİLİMSEL YAYINLAR

Halide Diker, Gamze Belkıs Durmaz, Hakan Bozkurt, **Fatih Yeşil**, Canan Varlikli, Controlling the distribution of oxygen functionalities on GO and utilization of PEDOT:PSS-GO composite as hole injection layer of a solution processed blue OLED, Current Applied Physics, *yayına kabul edildi, 08.02.2017.*

Fatih Yesil, Hakan Bozkurt, Halide Diker, Canan Varlikli, Application of PEDOT-PSS and rGO as TCO alternate in a solution processed blue emitting OLED, International Symposium for the 80th Birthday of Prof. Alan J.Heeger (Nobel prize 2000) held at Johannes Kepler University of Linz, Austria, March 21, 2016 (Poster)

EKLER

Ek 1 H₂SO₄ ile tedavi ve 70 watt farklı sürelerde uygulanan O₂ plazma etkisiyle değişen film kalınlıkları. 2000 dv/dk PH1000, a) 120 °C tavlama, b) 250 °C tavlama, c) 250 °C tavlama + H₂SO₄ tedavisi, d) 250 °C tavlama + H₂SO₄ tedavisi + 2.0 dk O₂ plazma, e) 250 °C tavlama + H₂SO₄ tedavisi + 2.5 dk O₂ plazma, f) 250 °C tavlama + H₂SO₄ tedavisi + 3.0 dk O₂ plazma, g) 250 °C tavlama + H₂SO₄ tedavisi + 4.0 dk O₂ plazma, h) 250 °C tavlama + H₂SO₄ tedavisi + 5.0 dk O₂ plazma.

Ek 2 H₂SO₄ ile muamele ve 70 watt farklı sürelerde uygulanan O₂ plazma etkisiyle değişen PH1000 film AFM görüntüleri.

Ek 3 Farklı güç ve sürelerde uygulanan plazma etkisiyle optik geçirgenlik değişimleri.

Ek 4 Referans PEDOT:PSS (PH1000) ve PH1000'e hacimce 15:1 oranında katkılandırılan dimetil formaid (DMF), etilen glikol (EG) ve izopropil alkol (IPA) çözümleri ile elde edilen filmlerin AFM görüntüleri.

Ek 5 PH1000 ve PH1000'e hacimce 15:1 oranında katkılandırılan dimetil formaid (DMF), etilen glikol (EG) ve izopropil alkol (IPA) çözümleri ile elde edilen filmlerin kalınlıkları.

Ek 6 Referans PEDOT:PSS (PH1000) ve PH1000'e hacimce 15:1 oranında katkılandırılan etilen glikol (EG) çözgeni ve PH1000:mGO ile elde edilen kompozit filmlerinin geçirgenlik değişimleri (%T).

Ek 7 a) Referans PEDOT:PSS (PH1000), b) hacimce 15:1 oranında etilen glikol (EG) katkılandırılmış PH1000, c) PH1000:GO, d) PH1000:DPRYL-GO, e) PH1000:NPRYL-GO, f) PH1000:PRPOH-GO kompozit filmlerinin AFM faz görüntüleri.

Ek 8 PH1000'e hacimce 15:1 oranında katkılandırılan etilen glikol (EG) çözgeni içerisinde disperse edilen GO ve mGO ile elde edilen PH1000:mGO kompozit filmlerinin kalınlık değişimleri a) GO, b) DPRYL, c) n-PRYL ve d) PRPOH.

Ek 9 PH1000 ve PH1000:DMSO(iGO) kompozit filmlerinin AFM görüntüleri

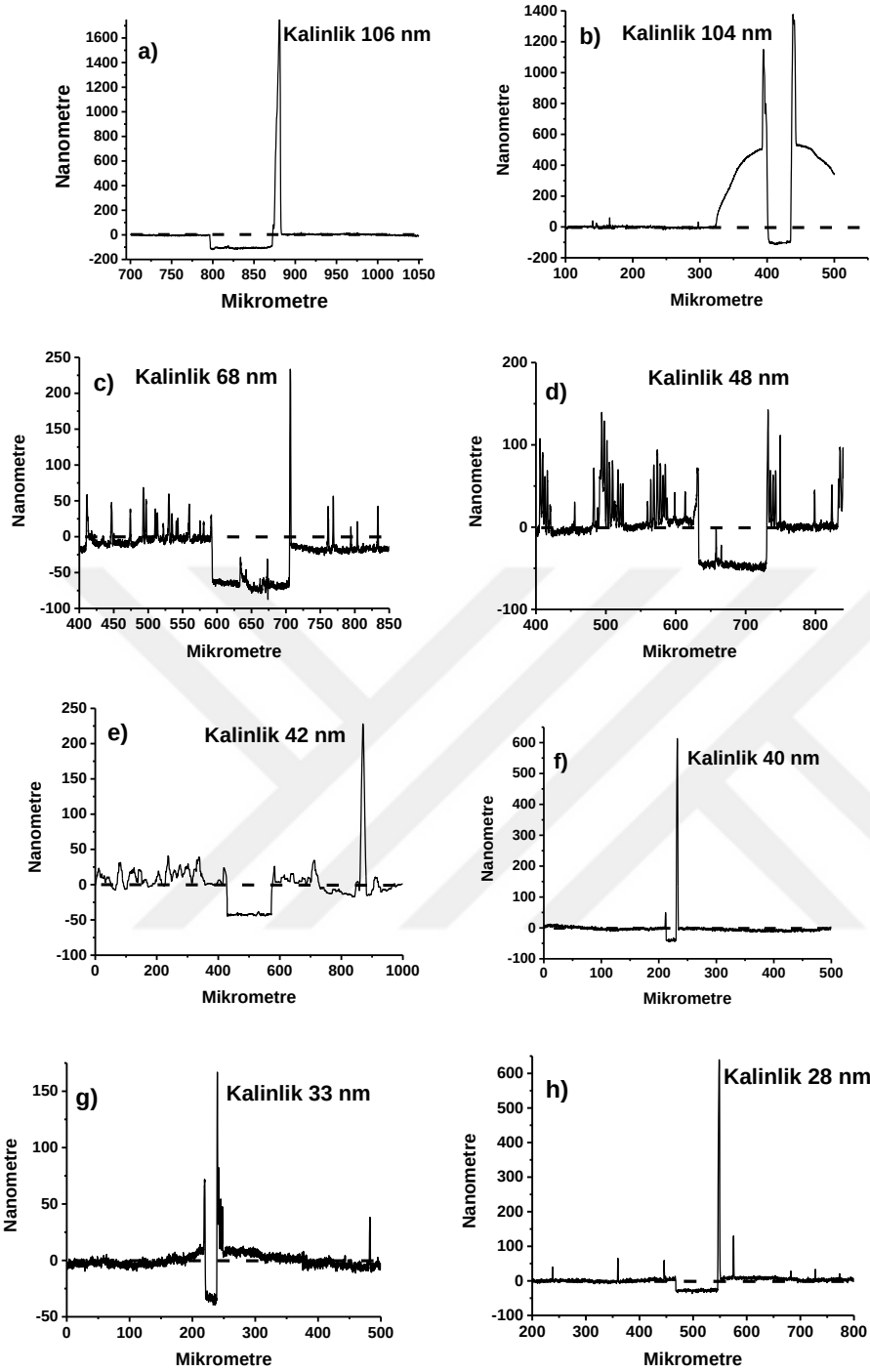
Ek 10 PH1000 ve PH1000:DMSO(iGO) kompozit filmlerinin optik geçirgenlik eğrileri.

Ek 11 PH1000 ve PH1000:DMSO(iGO) kompozit filmlerinin kalınlık değişimleri. a) PD1, b) PD2, c)PD2-H ve d)PD2-VC.

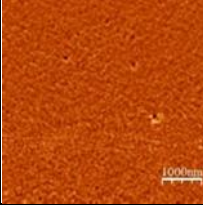
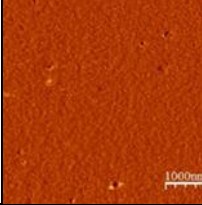
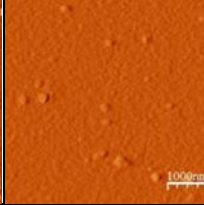
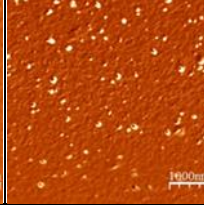
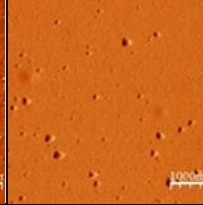
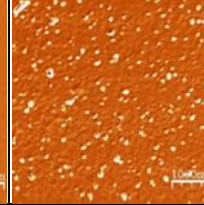
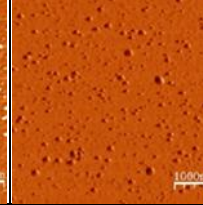
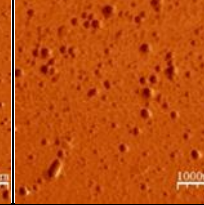
Ek 12 Anot/PEDOT-PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının uygulanan 50 watt O₂ plazma sürelerine göre değişen a) akım yoğunluğu-gerilim, b) parıltı-gerilim, c) ışık güç verimi- akım yoğunluğu, d) parıltı verimi-akım yoğunluğu eğrileri.

Ek 13 Anot/PEDOT-PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının uygulanan 90 watt O₂ plazma sürelerine göre değişen a) akım yoğunluğu-gerilim, b) parıltı-gerilim, c) ışık güç verimi- akım yoğunluğu, d) parıltı verimi-akım yoğunluğu eğrileri.

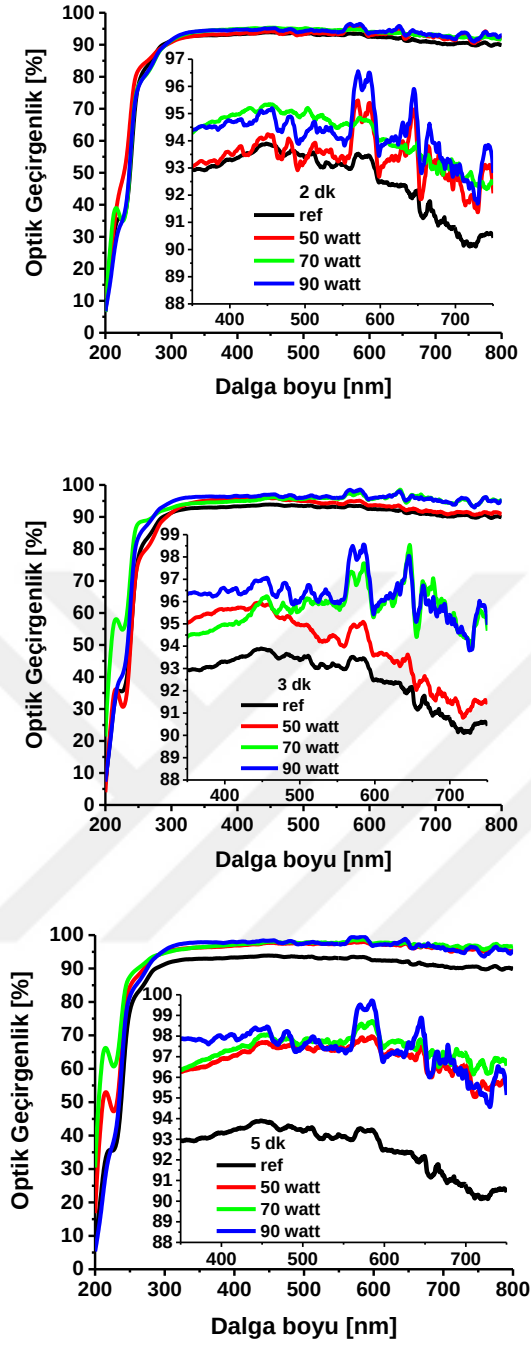
Ek 14 Referans aygıt ve 0 , 2.0 , 3.0 , 5.0 O₂ plazma uygulanmış alternatif anot mimarisindeki aygıtların normalize edilmiş elektrolüminesans eğrileri



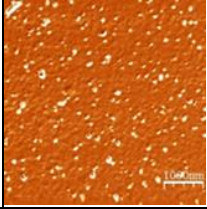
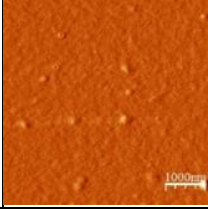
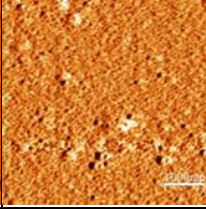
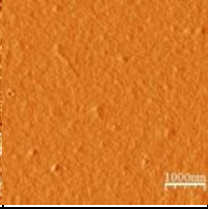
Ek 1. H_2SO_4 ile tedavi ve 70 watt farklı sürelerde uygulanan O_2 plazma etkisiyle değişen film kalınlıkları. 2000 dv/dk PH1000, a) 120 °C tavlama, b) 250 °C tavlama, c) 250 °C tavlama + H_2SO_4 tedavisi, d) 250 °C tavlama + H_2SO_4 tedavisi + 2.0 dk O_2 plazma, e) 250 °C tavlama + H_2SO_4 tedavisi + 2.5 dk O_2 plazma, f) 250 °C tavlama + H_2SO_4 tedavisi + 3.0 dk O_2 plazma, g) 250 °C tavlama + H_2SO_4 tedavisi + 4.0 dk O_2 plazma, h) 250 °C tavlama + H_2SO_4 tedavisi + 5.0 dk O_2 plazma.

Parametre	Tavlama Sıcaklığı							
	120 °C	250 °C						
	H ₂ SO ₄ Tedavisi							
	-	-	+	+	+	+	+	+
	O ₂ plazma süresi (dk)							
	0	0	0	2.0	2.5	3.0	4.0	5.0
AFM Faz görüntüleri								

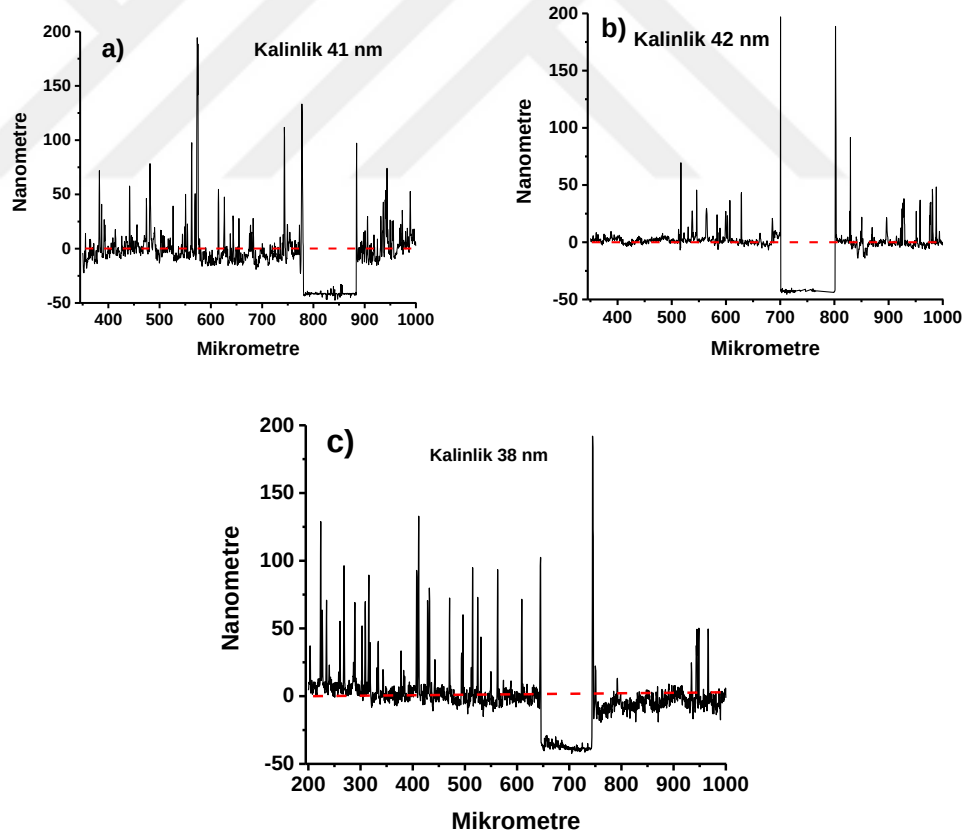
Ek 2. H₂SO₄ ile muamele ve 70 watt farklı sürelerde uygulanan O₂ plazma etkisiyle değişen PH1000 film AFM faz görüntüleri.



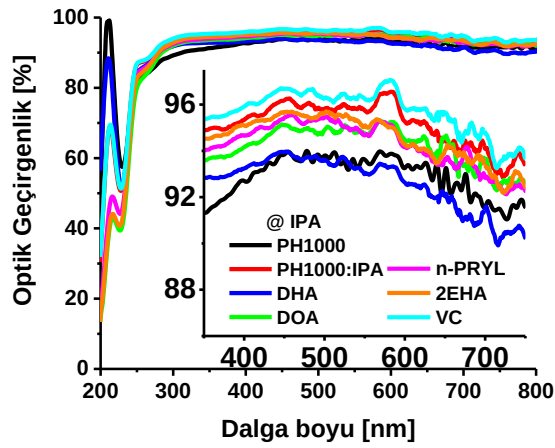
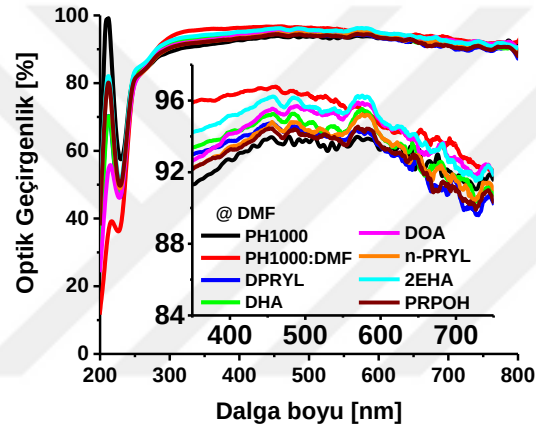
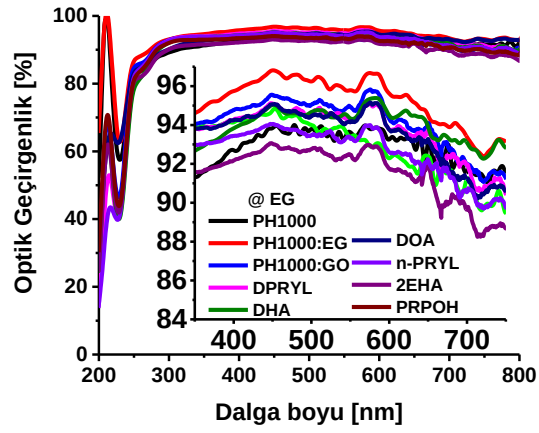
Ek 3. Farklı güç ve sürelerde uygulanan plazma etkisiyle optik geçirgenlik değişimleri.

Parametre	PH1000	PH1000-DMF	PH1000-EG	PH1000-IPA
AFM faz görüntüleri				

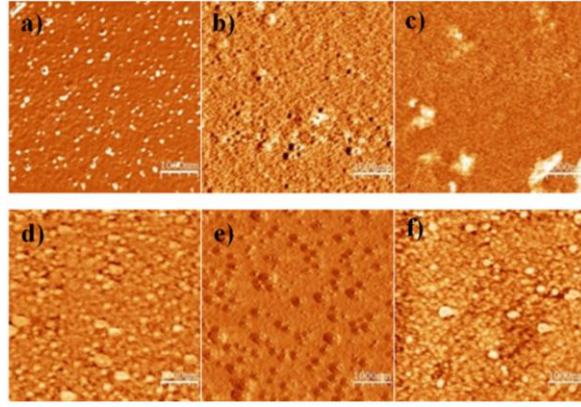
Ek 4. Referans PEDOT:PSS (PH1000) ve PH1000'e hacimce 15:1 oranında katkılanırlaran dimetil formaid (DMF), etilen glikol (EG) ve izopropil alkol (IPA) çözenleri ile elde edilen filmlerin AFM faz görüntüleri.



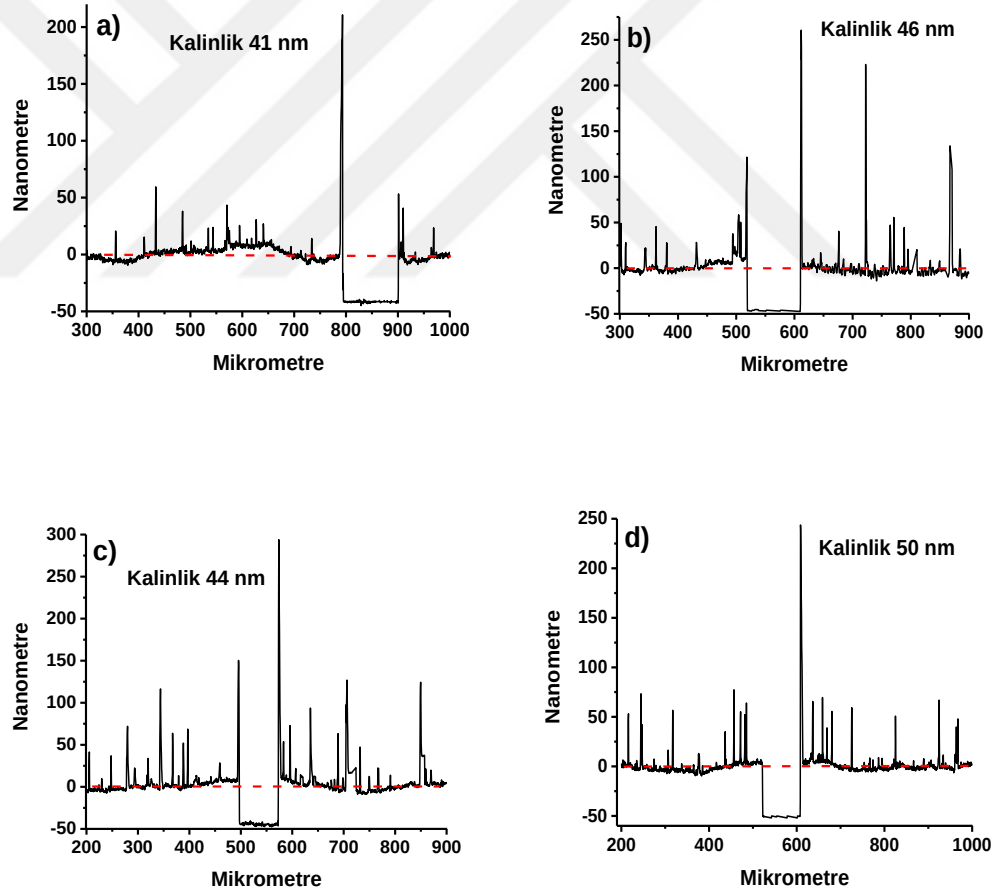
Ek 5. PH1000 ve PH1000'e hacimce 15:1 oranında katkılanırlaran dimetil formaid (DMF), etilen glikol (EG) ve izopropil alkol (IPA) çözenleri ile elde edilen filmlerin kalınlıkları.



Ek 6. Referans PEDOT:PSS (PH1000) ve PH1000'e hacimce 15:1 oranında katkılandırılan etilen glikol (EG) çözüne ve PH1000:mGO ile elde edilen kompozit filmlerinin geçirgenlik değişimleri (%T).



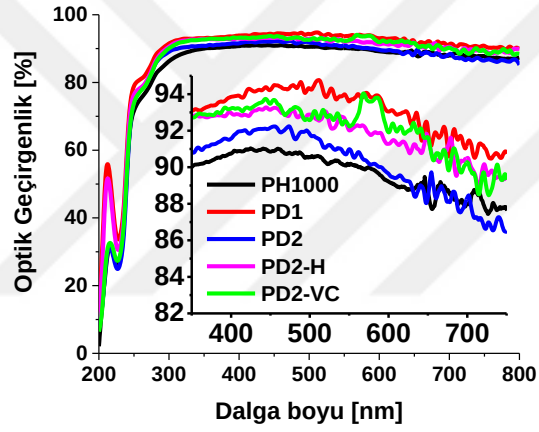
Ek 7. a) Referans PEDOT:PSS (PH1000), b) hacimce 15:1 oranında etilen glikol (EG) katkılanmış PH1000, c) PH1000:GO, d) PH1000:DPRYL-GO, e) PH1000:NPRYL-GO, f) PH1000:PRPOH-GO kompozit filmlerinin AFM faz görüntüleri.



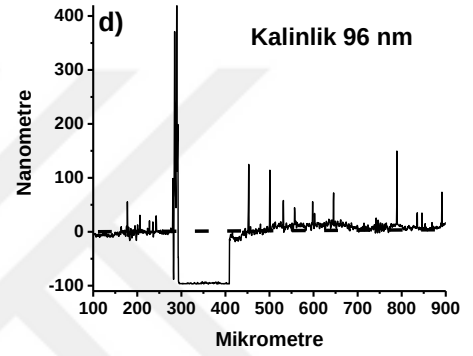
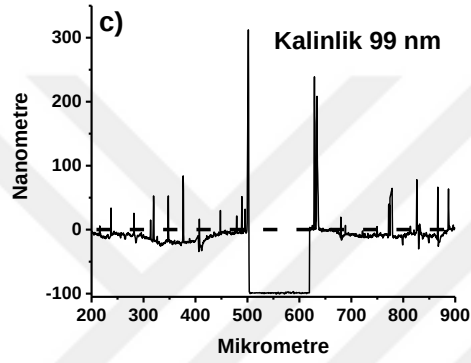
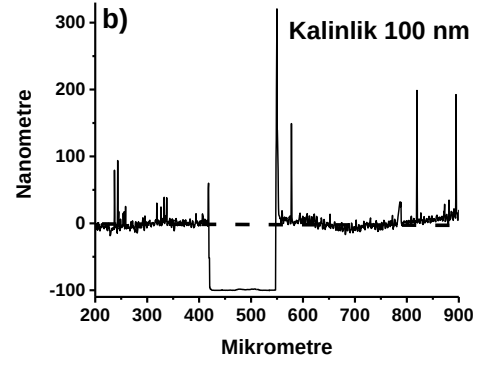
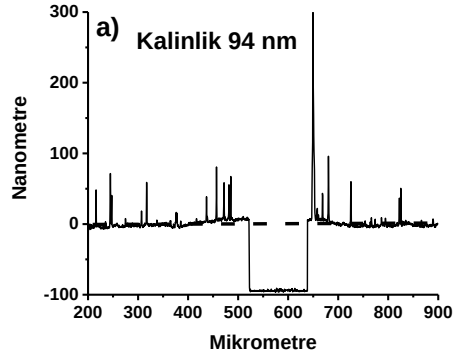
Ek 8. PH1000'e hacimce 15:1 oranında katkılanırlaran etilen glikol (EG) çözgeni içerisinde disperse edilen GO ve mGO ile elde edilen PH1000:mGO kompozit filmlerinin kalınlık değişimleri a) GO, b) DPRYL, c) n-PRYL ve d) PRPOH.

Parametre	PH1000	Dimetil Sülfoksit (DMSO)			
		PD1	PD2	PD2-H	PD2-VC
Faz görüntüleri					

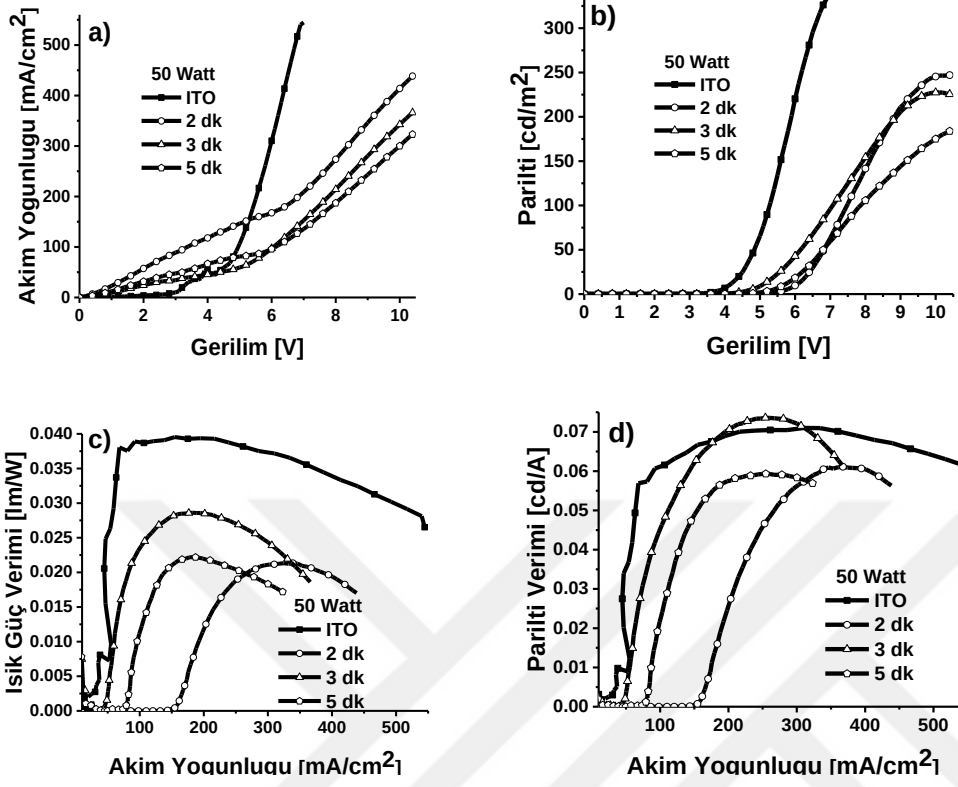
Ek 9. PH1000 ve PH1000:DMSO(iGO) kompozit filmlerinin AFM faz görüntüleri



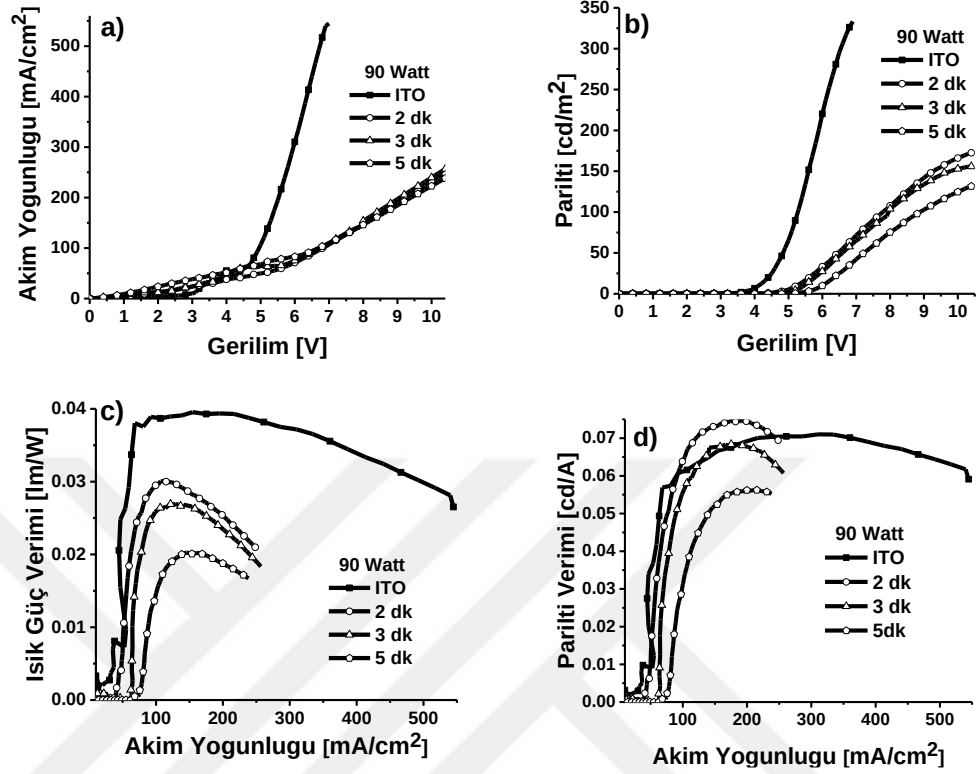
Ek 10. PH1000 ve PH1000:DMSO(iGO) kompozit filmlerinin optik geçirgenlik eğrileri.



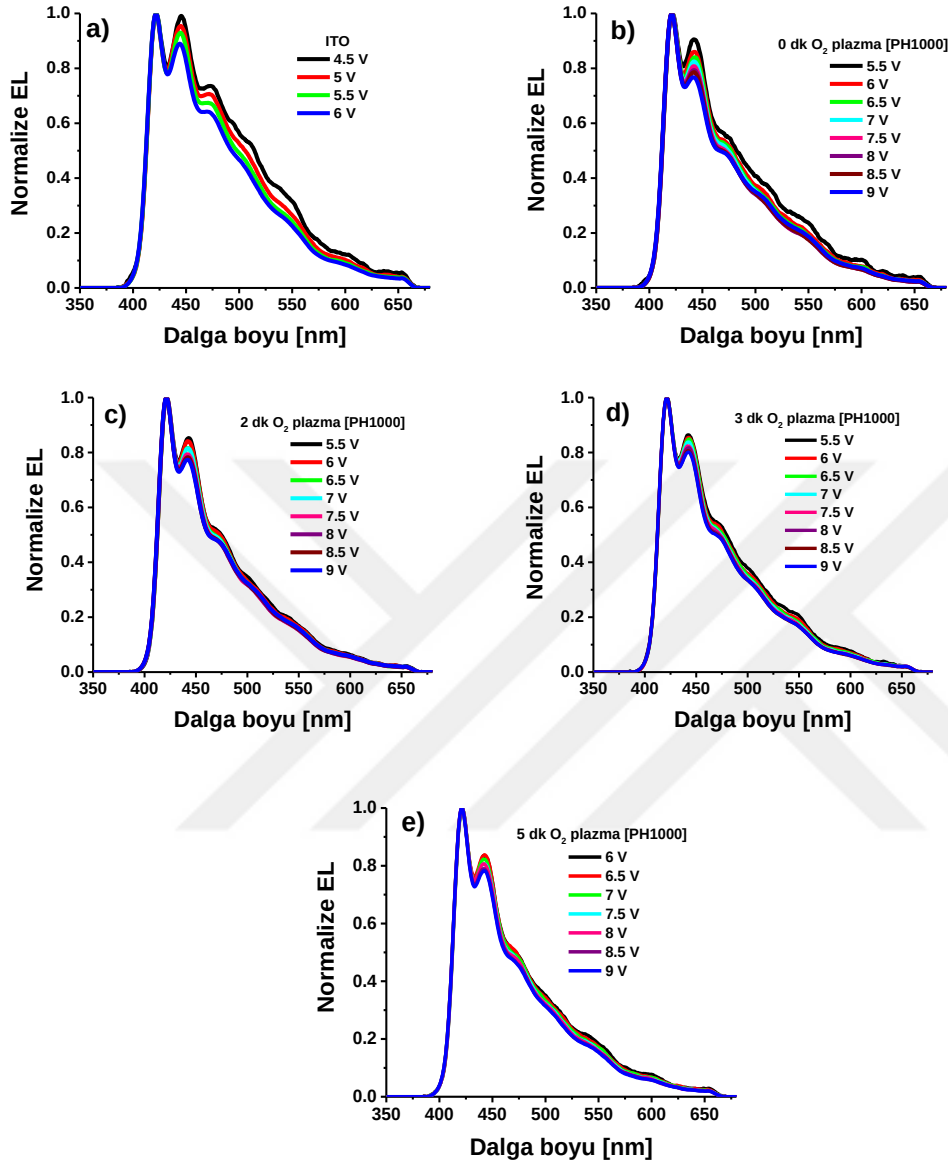
Ek 11. PH1000 ve PH1000:DMSO(iGO) kompozit filmlerinin kalınlık deęiřimleri. a) PD1, b) PD2, c)PD2-H ve d)PD2-VC.



Ek 12. Anot/PEDOT-PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının uygulanan 50 watt O₂ plazma sürelerine göre değişen a) akım yoğunluğu-gerilim, b) parliti-gerilim, c) ışık güç verimi-akım yoğunluğu, d) parliti verimi-akım yoğunluğu eğrileri.



Ek 13. Anot/PEDOT-PSS/ADS231BE/Cs₂CO₃/Al aygıtlarının uygulanan 90 watt O₂ plazma sürelerine göre değişen a) akım yoğunluğu-gerilim, b) parliti-gerilim, c) ışık güç verimi-akım yoğunluğu, d) parliti verimi-akım yoğunluğu eğrileri.



Ek 14. Referans aygıt ve 0 , 2.0 , 3.0 , 5.0 O₂ plazma uygulanmış alternatif anot mimarisindeki aygıtların normalize edilmiş elektrolüminesans eğrileri.

