

**KİMYASAL BUHAR BİRİKTİRME TEKNİĞİ
KULLANILARAK SENTEZLENEN GRAFEN
KATMANLARIN OPTİK, YAPISAL VE
ELEKTROKİMYASAL ÖZELLİKLERİNİN
İNCELENMESİ**

**INVESTIGATION OF OPTICAL, STRUCTURAL
AND ELECTROCHEMICAL PROPERTIES OF
GRAPHENE LAYERS SYNTHESIZED BY CHEMICAL
VAPOR DEPOSITION TECHNIQUE**

AYBÜKE SENBANİ

PROF. DR. ÖZLEM DUYAR ÇOŞKUN

Tez Danışmanı

Hacettepe Üniversitesi

Lisansüstü Eğitim-Öğretim ve Sınav Yönetmeliğinin

Fizik Mühendisliği Anabilim Dalı için Öngördüğü

YÜKSEK LİSANS TEZİ olarak hazırlanmıştır.

2023

ÖZET

KİMYASAL BUHAR BİRİKTİRME TEKNİĞİ KULLANILARAK SENTEZLENEN GRAFEN KATMANLARIN OPTİK, YAPISAL VE ELEKTROKİMYASAL ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

Aybüke SENBANİ

Yüksel Lisans, Fizik Mühendisliği Bölümü

Tez Danışmanı: Prof. Dr. ÖZLEM DUYAR ÇOŞKUN

Ocak 2023, 168 sayfa

Son yıllarda yapılan bilimsel ve teknolojik çalışmaların sonucu olarak pek çok üstün özellikleri ile birçok ileri teknolojinin alt yapısında alternatif olarak kullanılabileceği anlaşılan malzemelerden biri de grafendir. Yüksek optik geçirgenliği, mükemmel elektriksel iletkenliği ve mekanik dayanımı nedeni ile grafen katmanlar şeffaf iletken elektrot olarak kullanım için dikkat çekici bir adaydır. Bu nedenle, bu tez çalışması kapsamında, kimyasal buhar biriktirme (KBB) yöntemi ile 1000 °C’de ve plazma destekli kimyasal buhar biriktirme (PDKBB) yöntemi ile 850 °C’de sentezlenen grafen filmlerin optik, elektrokimyasal ve yapısal özellikleri incelenmiştir. Örneklerin çevrimsel voltametri (CV) eğrileri kullanılarak elektrokimyasal süreçler boyunca örnek yüzeyine giren ve çıkan yük miktarları ve kronoamperometri (CA) eğrilerinden de örnek üzerine uygulanan gerilim pulsları boyunca örnek yüzeyine giren ve çıkan yük miktarları hesaplanmıştır.

Sentezlenen filmlerin optik geçirgenlikleri % 71 ile % 90 aralığında deęiřtięi gözlemlenmiřtir. G1 nolu örneęin üzerine $\pm 2,5$ V uygulanarak elde edilen CV eęrisinden en yüksek giren ve çıkan yük miktarları sırası ile $Q_C = 2138 \mu C/cm^2$ ve $Q_A = 2788 \mu C/cm^2$ olarak hesaplanmıřtır. PDKBB yöntemi ile sentezlenen grafen filmlerin optik geçirgenliklerinin de % 79 ile % 81 aralığında deęiřtięi gözlemlenmiřtir. 50W güç altında sentezlenen P7 nolu örneęin CV eęrilerinden ($\pm 2,5V$) en yüksek giren ve çıkan yük miktarları ise, $Q_C = 419,20 \mu C/cm^2$ ve $Q_A = 674,88 \mu C/cm^2$ olarak hesaplanmıřtır. Bu tez çalışması kapsamında Hacettepe Üniversitesi Fizik Mühendislięi Bölümü İnce Film Hazırlama ve Karakterizasyon Laboratuvarı'nda PDKBB ve KBB teknięi kullanılarak sentezlenen örneklerin elektrokimyasal süreçler boyunca kararlı olduęu ve uzun çevrimler boyunca özelliklerini çok fazla deęiřtirmedikleri gözlenmiřtir. Bu nedenle söz konusu grafen katmanların elektrokromik uygulamalarda řeffaf iletken tabaka olarak kullanılabileceęi düşünölmektedir.

Anahtar Kelimeler: Grafen, Kimyasal Buhar Biriktirme, Plazma Destekli Kimyasal Buhar Biriktirme, řeffaf İletken Elektrot, Çevrimsel Voltametri ve Kronoamperometri.

ABSTRACT

INVESTIGATION OF OPTICAL, STRUCTURAL AND ELECTROCHEMICAL PROPERTIES OF GRAPHENE LAYERS SYNTHESIZED BY CHEMICAL VAPOR DEPOSITION TECHNIQUE

Aybüke SENBANİ

Master of Science, Physics Engineering Department

Supervisor: Prof. Dr. Özlem DUYAR COŞKUN

January 2023, 168 pages

One of the materials that can be used as an alternative in the infrastructure of many advanced technologies due to its many superior properties, as a result of recent scientific and technological studies, is graphene. Due to their high optical transparency, excellent electrical conductivity, and mechanical strength, graphene layers are remarkable candidates for use as transparent conductive electrodes. Therefore, this thesis study examined the optical, electrochemical, and structural properties of graphene films synthesized at 1000 °C by chemical vapor deposition (CVD) and at 850 °C by plasma-enhanced chemical vapor deposition (PECVD). The amount of ions intercalated to and deintercalated from the sample surface during electrochemical processes was calculated using the cyclic voltammetry (CV) curves of the samples, and the amount of ions intercalated to and deintercalated from the sample surface during voltage pulses applied to the sample surface was calculated using chronoamperometry (CA) curves.

The optical transmittances of the synthesized films were observed to vary between 71% and 90%. From the CV curve obtained by applying ± 2.5 V to sample G1, the highest amounts of ions intercalated and deintercalated were calculated as $Q_C = 2138 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ and $Q_A = 2788 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, respectively. Additionally, the optical transmittances of the graphene films synthesized by PECVD were observed to vary between 79 % and 81 %. From the CV curves (± 2.5 V) of sample P7 synthesized under 50W power, the highest amounts of ions intercalated and deintercalated were calculated as $Q_C = 419.20 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ and $Q_A = 674.88 \mu\text{C}/\text{cm}^2$. Accordingly, it was noted in this thesis that the samples synthesized using PECVD and CVD methods in the Thin Film Preparation and Characterization Laboratory of the Department of Physics Engineering at Hacettepe University were stable during electrochemical processes and did not change their properties significantly over long cycles. Hence, it is thought that the aforementioned graphene layers can be used as transparent conductive layers in electrochromic applications.

Keywords: Graphene, Chemical Vapor Deposition, Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition, Transparent Conductive Electrode, Cyclic Voltammetry, and Chronoamperometry.

TEŞEKKÜR

Yüksek lisans öğrenimim boyunca bana her türlü maddi ve manevi destek veren, tez çalışmalarımın her aşamasında değerli bilgi birikimini ve tecrübelerini hiç esirgemedi benimle paylaşan değerli tez danışmanım, Sayın Prof. Dr. Özlem DUYAR COŞKUN' a, Tüm çalışmalarım süresince kıymetli bilgilerini, deneyimlerini ve yardımlarını hiçbir zaman benden esirgemeyen Dr. Mustafa COŞKUN' a

Çalışmalarım sırasında tüm yardımları için Dr. Meltem CİNALİ' ye, ölçümlerimin alınmasında ve zorlu laboratuvar çalışmalarında bana yardımları ve tüm katkıları için başta Mehmet ALİ' ye, M. Cihad KÜÇÜKARSLAN' a ve İnce Film Hazırlama ve Karakterizasyon Laboratuvarında çalışan tüm arkadaşlarıma,

Yüksek lisans çalışmalarımı, “118F070, “Yeni Nesil Bükülebilir-Esnek Elektrokromik Kaplama/Cihaz Tasarımı ve Üretimi” adlı TÜBİTAK 1001 Projeleri kapsamında desteklediği için TÜBİTAK' a

Ölçümler için Bilkent Ulusal Nanoteknoloji Araştırma Merkezi (UNAM)'ne,

Tüm yaşamım boyunca sevgiyle hep yanımda oldukları için minnettar olduğum annem ve babama, biricik ablam Meliha SENBANİ 'ye ve her zaman beni destekleyen, motive eden ve hayatı güzel kılan başta Seda Nur ESEROĞLU'na, Bilge ÇİLİNGİR'e, Fahriye Nur KIRMACI 'ya ve tüm değerli arkadaşlarıma çok teşekkür ederim.

İÇİNDEKİLER

ABSTRACT	iii
TEŞEKKÜR	v
İÇİNDEKİLER	vi
ŞEKİLLER DİZİNİ	viii
TABLolar DİZİNİ	xvi
SİMGELER VE KISALTMALAR.....	xix
1. GİRİŞ.....	1
2. GENEL BİLGİLER	3
2.1. Karbonun Yapısı ve Karbonun Allotropları	3
2.2. Grafen Sentez Yöntemleri.....	11
2.2.1. Yukarıdan Aşağıya Grafen Sentez Yöntemleri	11
2.2.2. Aşağıdan Yukarıya Grafen Sentez Yöntemleri	13
3. GRAFEN FİMLERİN KARAKTERİZASYON YÖNTEMLERİ.....	19
3.1. Raman Spektroskopisi	19
3.2. Optik Karakterizasyon Yöntemleri.....	20
3.3. Elektrokimyasal Karakterizasyon	22
3.3.1. Çevrimsel Voltametri	24
3.3.2. Kronoamperometri.....	25
4. DENEYSEL ÇALIŞMALAR.....	26
4.1. Grafen Sentezi	28
4.2. Grafen Transferi.....	29
4.2.1. Kimyasal Buhar Biriktirme Yöntemi ile Sentezlenen Grafen Filmlerin Özellikleri Üzerinde Büyütme Süresinin Etkisi	31

4.2.2. Kimyasal Buhar Biriktirme Yöntemi ile Sentezlenen Grafen Filmlerin Özellikleri Üzerinde Metan Gaz Akış Oranının Etkisi	64
4.2.3. Plazma Destekli Kimyasal Buhar Biriktirme Yöntemi ile Sentezlenen Grafen Filmlerin Özellikleri Üzerine Büyütme Süresinin Etkisi	90
4.2.4. Plazma Destekli Kimyasal Buhar Biriktirme Yöntemi ile Sentezlenen Grafen Filmlerin Özellikleri Üzerinde Uygulanan RF Gücün Etkisi.....	130
5. SONUÇLAR VE TARTIŞMA	163
6. KAYNAKLAR.....	169
EKLER	175
EK 5 - Tezden Türetilmiş Bildiriler	175
EK 6 - Tez Çalışması Orjinallik Raporu	176
ÖZGEÇMİŞ.....	177

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 2.1. 2B grafen tabakası fulleren, karbon nanotüp ve grafit yapıları [9].	4
Şekil 2.2. Karbon atomunun (a) temel durum elektron dağılımı, (b) uyarılmış durumdaki elektron dağılımı (c) sp hibritleşmesi elektron dağılımı (d) sp ² hibritleşmesi elektron dağılımı (e) sp ³ hibritleşmesi elektron dağılımı [15].	6
Şekil 2.3. Grafenin bal peteği örgüsünün ilkel birim hücresinin top çubuk model gösterimi.	7
Şekil 2.4. Grafenin ters örgüsü ve Brillouin bölgesi koyu mavi ile temsil edilmektedir.	8
Şekil 2.5. (a) K ve K' noktalarının yakınındaki karakteristik Dirac konileri ile grafen bant yapısının şematik görünümü. (b) Altıgen bir düzlemde bulunan Dirac konileri [21].	9
Şekil 2.6. Grafen Sentez Yöntemleri [30].	11
Şekil 2.7. Grafit oksit elde etmek için kullanılan grafit oksidasyon prosedürlerinin şematik diyagramı [31].	12
Şekil 2.8. Kimyasal buhar biriktirme yöntemiyle ile Bakır alttaşlar üzerinde grafenin büyümesini gösteren akış şeması: (a) doğal oksitli bakır folyo, (b) tavlama sonrası bakır yüzeyde tanecikli yapı oluşması (c) bakır folyo üzerindeki grafen adalarının çekirdeklenmesi ve farklı konumlarda büyümesi (d) grafen adalarının birleşmesi ve grafen katmanların oluşması [34].	14
Şekil 2.9. PDKBB düzeneğinin şematik gösterimi [39].	16
Şekil 3.1. Grafenin Raman Spektrumu.	19
Şekil 3.2. Malzemenin ışık ile etkileşimi.	21
Şekil 3.3. Elektrokimyasal hücre [60].	24
Şekil 3.4. İndirgenme ve yükseltgenme piklerinin görüldüğü çevrimsel voltmetri eğrisi [61].	25
Şekil 3.5. a) Kronoamperometri ölçümü için hücreye uygulanan potansiyelinin zamana bağlı değişimi b) Okunan zamana bağlı akım değerinin değişimi.	25
Şekil 4.1. Grafen filmlerin sentezi için kullanılan PDKBB sistemi.	26
Şekil 4.2. Sentez sırasında PDKBB sisteminin bir görüntüsü.	27

Şekil 4.3. Grafen transfer sürecindeki aşamalar a) grafen kaplı bakır folyonun FeCl_3 çözeltisi içerisindeki ilk hali, b) bakır folyonun FeCl_3 çözeltisinde bakır yüzeyin büyük bir kısmının çözünmüş hali, c) bakır folyonun çözündükten sonra geriye kalan PMMA kaplı grafen film, d) bükülebilir PET alttaş üzerindeki grafen film.	29
Şekil 4.4. KBB tekniği ile sentezlenen a) G1, b) G2, c) G3 ve d) G4 nolu örneklerden alınan optik mikroskop görüntüleri.....	32
Şekil 4.5. a) G1, G2, G3 ve G4 nolu örneklerin optik geçirgenlik ve b) optik yansıtma spektrumları.	33
Şekil 4.6. G1, G2, G3 ve G4 nolu örneklerin Raman spektrumları.....	34
Şekil 4.7. Cam alttaş üzerine transfer edilen G1 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) +0,5 V ile -0,5 V aralığında b) +1 V ile -1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.	36
Şekil 4.8. G1 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	37
Şekil 4.9. G1 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	38
Şekil 4.10. G1 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	39
Şekil 4.11. G1 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	40
Şekil 4.12. Cam alttaş üzerine transfer edilen G2 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.	43
Şekil 4.13. G2 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	44
Şekil 4.14. G2 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	45
Şekil 4.15. G2 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	46

Şekil 4.16. G2 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	47
Şekil 4.17. Cam alttaş üzerine transfer edilen G3 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1V aralığında c)-1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.....	50
Şekil 4.18. G3 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	51
Şekil 4.19. G3 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	52
Şekil 4.20. G3 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	53
Şekil 4.21. G3 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri	54
Şekil 4.22. Cam alttaş üzerine transfer edilen G4 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c)-1,5 V ile +1,5V aralığında d) - 2V ile +2V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.....	57
Şekil 4.23. G4 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	58
Şekil 4. 24. G4 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	59
Şekil 4.25. G4 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	60
Şekil 4.26. G4 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	61
Şekil 4.27. KBB tekniği ile sentezlenen a) G2, b) G5, c) G6 ve G7 nolu örneklerinden alınan optik mikroskop görüntüleri.	65
Şekil 4.28. a) G2, G5, G6 ve G7 örneklerinin optik geçirgenlik ve b) optik yansıtma spektrumları.....	66
Şekil 4.29. G2, G5, G6 ve G7 nolu örneklerin Raman spektrumları.	67

Şekil 4.30. Cam alttaş üzerine transfer edilen G5 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5V ile +1,5V aralığında d) -2V ile +2V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.	69
Şekil 4.31. G5 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	70
Şekil 4.32. G5 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	71
Şekil 4.33. G5 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	72
Şekil 4.34. G5 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	73
Şekil. 4.35. Cam alttaş üzerine transfer edilen G6 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.	76
Şekil 4.36. G6 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	77
Şekil 4.37. G6 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	78
Şekil 4.38. G6 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	79
Şekil 4.39. G6 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	80
Şekil 4.40. Cam alttaş üzerine transfer edilen G7 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a)-0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.	83
Şekil 4.41. G7 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	84
Şekil 4.42. G7 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	85

Şekil 4.43. G7 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50, ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	86
Şekil 4.44. G7 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	87
Şekil.4.45. KBB yöntemi ile sentezlenen a) G2, b) G5, c) G6 ve d) G7 nolu örneklerden alınan optik mikroskop görüntüleri.	91
Şekil 4.46. P1, P2, P3, P4 ve P5 örneklerinin a) optik geçirgenlik ve b) optik yansıtma spektrumları.....	92
Şekil 4.47. P1, P2, P3, P4 ve P5 nolu örneklerin Raman spektrumları.....	93
Şekil 4.48. PET alttaş üzerine transfer edilen P1 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.....	95
Şekil 4.49. P1 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	96
Şekil 4.50. P1 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	97
Şekil 4.51. P1 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	98
Şekil 4.52. P1 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	99
Şekil 4.53. PET alttaş üzerine transfer edilen P2 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.....	102
Şekil 4.54. P2 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	103
Şekil 4.55. P2 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	104
Şekil 4.56. P2 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	105
Şekil 4.57. P2 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	106

Şekil 4.58. PET alttaş üzerine transfer edilen P3 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.	109
Şekil 4.59. P3 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	110
Şekil 4.60. P3 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	111
Şekil 4.61. P3 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40,50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	112
Şekil. 4.62. P3 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	113
Şekil 4.63. PET alttaş üzerine transfer edilen P4 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5V ile +1,5V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.	116
Şekil 4.64. P4 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	117
Şekil 4.65. P4 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	118
Şekil 4.66. P4 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	119
Şekil 4.67. P4 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	120
Şekil 4.68. PET alttaş üzerine transfer edilen P5 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.	123
Şekil 4.69. P5 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	124
Şekil 4.70. P5 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	125

Şekil 4.71. P5 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	126
Şekil 4.72. P5 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	127
Şekil 4.73. PDKBB tekniği ile sentezlenen a) P6, b) P7, c) P8 ve d) P9 nolu örneklerin optik mikroskop görüntüleri.	131
Şekil 4.74. P5, P6, P7, P8 ve P9 nolu örneklerin a) optik geçirgenlik ve b) optik yansıtma spektrumları.	132
Şekil 4.75. P5, P6, P7, P8 ve P9 nolu örneklerin Raman spektrumu.	133
Şekil 4.76. PET alttaş üzerine transfer edilen P6 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mVs^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2V ile +2V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.	135
Şekil 4.77. P6 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	136
Şekil 4.78. P6 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	137
Şekil 4.79. P6 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	138
Şekil 4.80. P6 örneğinin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	139
Şekil 4.81. PET alttaş üzerine transfer edilen P7 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.	142
Şekil. 4.82. P7 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40,50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	143
Şekil 4.83. P7 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	144
Şekil 4.84. P7 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	145
Şekil 4.85. P7 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40,50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	146

Şekil 4.86. PET alttaş üzerine transfer edilen P8 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.	149
Şekil 4.87. P8 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40,50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	150
Şekil 4.88. P8 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40,50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	151
Şekil 4.89. P8 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	152
Şekil 4.90. P8 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	153
Şekil 4.91. PET alttaş üzerine transfer edilen P9 nolu örneğin 10, 20, 30 ,40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c)-1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.	156
Şekil 4.92. P9 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10 ,20, 40, 50 ve100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	157
Şekil 4.93. P9 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.	158
Şekil 4.94. P9 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10 ,20, 40, 50 ve100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	159
Şekil 4.95. P9 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10 ,20, 40, 50 ve100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.....	160

TABLÖLAR DİZİNİ

Tablo 1.1. Web of Science ve Scopus veri tabanında grafen hakkındaki bilimsel çalışmaların alanlara göre sayısal dağılımı.	2
Tablo 4.1. KBB tekniği ile hazırlanan örneklerin büyütme parametreleri.	31
Tablo 4.2. G1, G2, G3 ve G4 nolu örneklerin Raman spektrumlarından elde edilen bilgiler.	35
Tablo 4.3. G1 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	41
Tablo 4.4. G1 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	42
Tablo 4.5. G2 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	48
Tablo 4.6. G2 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	49
Tablo 4.7. G3 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	55
Tablo 4.8. G3 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	56
Tablo 4.9. G4 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	62
Tablo 4.10. G4 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	63
Tablo 4.11. KBB tekniği ile hazırlanan örneklerin büyütme parametreleri.	64
Tablo 4.12. G2, G5, G6 ve G7 nolu örneklerin Raman spektrumlarından edinilen bilgiler.	68
Tablo 4.13. G5 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	74
Tablo 4.14. G5 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	75
Tablo 4.15. G6 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	81

Tablo 4.16. G6 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	82
Tablo 4.17. G7 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	88
Tablo 4.18. G7 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	89
Tablo 4.19. PDKBB tekniği ile hazırlanan örneklerin büyütme parametreleri.	90
Tablo 4.20. P1, P2, P3, P4 ve P5 nolu örneklerin Raman spektroskopisinden elde edilen bilgiler.	94
Tablo 4.21. P1 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri	100
Tablo 4.22. P1 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	101
Tablo 4.23. P2 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	107
Tablo 4.24. P2 nolu örneğin CA ölçümleri sonucu elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	108
Tablo 4.25. P3 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	114
Tablo 4.26. P3 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	115
Tablo 4.27. P4 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	121
Tablo 4.28. P4 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	122
Tablo 4.29. P5 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	128
Tablo 4.30. P5 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.	129
Tablo 4.31. PDKBB tekniği ile hazırlanan örneklerin büyütme parametreleri.	130
Tablo 4.32. P5, P6, P7, P8 ve P9 nolu örneklerin Raman spektrumundan elde edilen bilgiler.	134

Tablo 4.33. P6 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.....	140
Tablo 4.34. P6 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.....	141
Tablo 4.35. P7 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.....	147
Tablo 4.36. P7 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.....	148
Tablo 4.37. P8 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.....	154
Tablo 4.38. P8 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.....	155
Tablo 4.39. P9 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.....	161
Tablo 4.40. P9 nolu örneğin CA ölçümleri sonucundan elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.....	162

SİMGELER VE KISALTMALAR

Simgeler

PC	Pik Kapasitesi
μ	Mobilite
E_F	Fermi Enerjisi
π	Değerlik Bandı
π^*	İletim Bandı
n	Kırma İndisi
P	Güç

Kısaltmalar

KBB	Kimyasal Buhar Biriktirme
PDKBB	Plazma Destekli Kimyasal Buhar Biriktirme
HOPG	Yüksek Yönelimli Pirolitik Grafit
PMMA	Polimetilmetakrilat
CV	Çevrimsel Voltametri
CA	Kronoamperometri
Q_A	Anodik Yük
Q_c	Katodik Yük
ΔQ	Film Yapısına Katılan Yük Miktarı
RF	Radyo Frekans
RT	Oda Sıcaklığı
2B	İki Boyutlu
3B	Üç Boyutlu
W	Watt

1. GİRİŞ

İnsanoğlu geçmişten günümüze var olduğu süreçte kendisini yaşatmak ve yaşam koşullarını iyileştirmek için çeşitli yollar, teknolojiler geliştirmiştir. Bu gelişmeler ışığında insanlar birçok alanda enerjiye ihtiyaç duymuşlar ve enerjiyi sağlamak için çeşitli kaynaklar bulmuşlardır. Günümüzde enerji talebi doğalgaz, petrol, kömür ve fosil gibi kaynaklardan sağlanmaktadır. Endüstrilerin ve artan nüfusun tüm talebini karşılamak için her geçen yıl küresel enerji tüketimi artmakta, dolayısıyla fosil yakıt kaynakları giderek azalmaktadır [1].

Kaynakların azalmasına ek olarak yoğun bir şekilde fosil yakıtların kullanımı, küresel iklim dengesinin bozulması, çevre ve hava kirliliği gibi birçok probleme sebep olmaktadır. Yeryüzündeki hava, deniz ve kara ortamlarında ortalama sıcaklığındaki anormal artış anlamına gelen küresel iklim değişikliği tüm dünyada önemli bir sorun haline gelmiştir. Tüm endüstriyel ve ekonomik faaliyetler dahil olmak üzere doğa olayları ve insan faaliyetleri, ortalama küresel sıcaklıktaki artışa katkıda bulunur. Oluşan bu değişikliklerin artması ciddi çevresel problemlere neden olmaktadır [2]. Bu nedenle bilim insanları, artan enerji talebini karşılamak için yenilenebilir ve çevre dostu teknolojiler bulmak ve geliştirmek durumundadır. Son yıllarda yapılan bilimsel ve teknolojik çalışmaların sonucunda pek çok üstün özelliklere sahip malzemeler, çeşitli uygulamalarıyla günlük hayatımıza girmeye başlamıştır. Bu çalışma alanlarından biri olan taşınabilir ve giyilebilir elektroniklerdeki hızlı gelişmeler, esnek enerji depolama sistemlerinin tasarımını teşvik etmektedir. Esnek süper kapasitörler ve piller umut verici enerji depolama cihazları olarak büyük ilgi görmektedir. Dolayısıyla hem süper kapasitörlerin hem de pillerin temel bileşeni olan yeni elektrot malzemelerine ihtiyaç duyulmaktadır. 2004 yılında Manchester Üniversitesi araştırmacıları tarafından keşfedilen, bal peteği kafeslere sahip iki boyutlu, tek karbon atomlu bir tabaka olan grafen geniş yüzey alanı, kimyasal kararlılık, yüksek iletkenlik ve mükemmel mekanik esneklik (bükülme, burulma, katlanma, gerilme vb.) gibi çok sayıda dikkat çekici özelliğe sahiptir [3]. Grafen, üzerine 2004-2023 yıllarında yayınlanan makale sayıları hakkında yapılan istatistiksel araştırmalar neticesinde grafenin, kullanım alanı çok geniş bir malzeme olduğu anlaşılmaktadır.

Grafen ile ilgili birçok farklı disiplinde bilimsel çalışmalar yürütülmüştür. Yapılan araştırmalarda Web of Science veri tabanında grafen hakkında toplam 326,205 adet bilimsel yayın üretilmiştir. Scopus veri tabanında ise grafen üzerine üretilen toplam bilimsel yayın sayısı 228,740'dır. Tablo 1'de bu bilimsel yayınların alanlara ve yayın sayısına göre sıralaması verilmiştir.

Tablo 1.1. Web of Science ve Scopus veri tabanında grafen hakkındaki bilimsel çalışmaların alanlara göre sayısal dağılımı.

	Malzeme Bilimi	Kimya	Fizik Uygulamaları	Nanoteknoloji Mühendisliği	Katıhal Fiziği ve Kimya Müh. Uygulamaları	Elektrokimya ve Enerji
Web of Science	112,442	71,419	66,127	57,313	54,986	22,908
Scopus	115,588	83,398	81,142	66,543	42,103	16,328

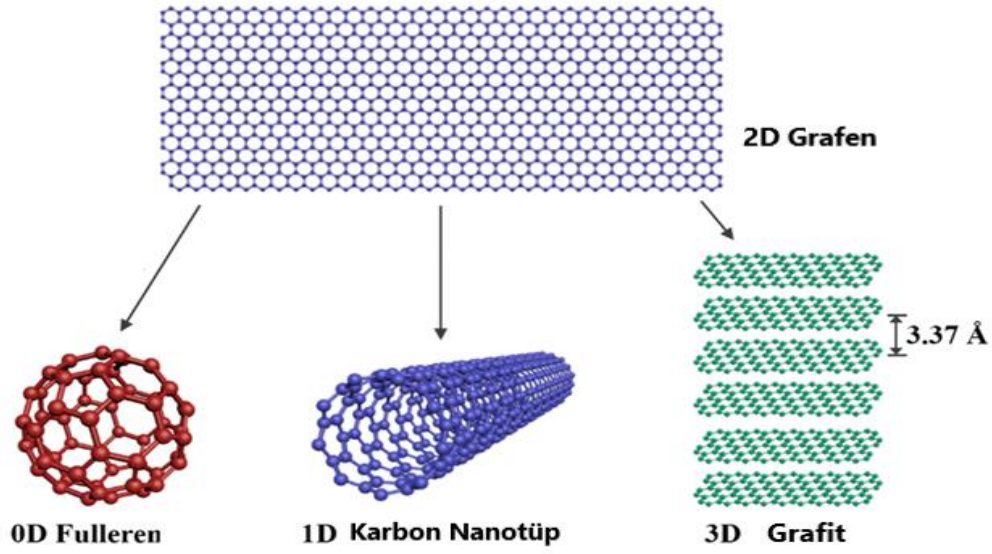
Tablo 1 incelendiğinde de grafen üzerindeki çalışmaların en çok kimya, fizik, nanoteknoloji ve mühendislik uygulamaları alanında olduğu görülmektedir. Birbirinden bağımsız, oldukça çeşitli alanlarda çok sayıda çalışma olduğu da görülmektedir. Dolayısıyla grafenin birçok ileri teknolojinin temelinde yer alabileceği veya var olan teknolojilerin iyileştirme ve geliştirme çalışmalarında iyi bir seçenek olarak kullanılabileceği öngörülmektedir. Grafenin bulunuşu, birçok teknolojik uygulamada olduğu gibi elektrokromik aygıt tasarımı için de umut vadeden çalışmalara ışık tutmaktadır. Elektrokromizm, elektrokimyasal olarak üretilen optik özelliklerde tersine çevrilebilir bir değişiklik olgusudur. Elektrokromik malzeme, elektrokimyasal bir reaksiyonla kalıcı fakat tersine çevrilebilir bir şekilde renk değiştiren malzemedir. Elektrokromik malzemelerin üzerine uygulanan gerilim değiştirildiğinde optik özellikleri ayarlanabilir ve bu malzemeler birçok teknolojinin alt yapısında kullanılabilir [4, 5]. Tüm bu bilgiler ışığında bu tez çalışmaları kapsamında Hacettepe Üniversitesi Fizik Mühendisliği Bölümü İnce Film Hazırlama ve Karakterizasyon Laboratuvarı'nda bulunan plazma destekli kimyasal buhar biriktirme sistemi kullanılarak hazırlanan çok katlı grafen katmanlardan oluşturulmuş grafen filmler sentezlenmesi için sentez parametreleri optimize edilmiştir. Hazırlanan örneklerin optik, yapısal ve elektrokimyasal özellikleri incelenmiştir.

2. GENEL BİLGİLER

2.1. Karbonun Yapısı ve Karbonun Allotropları

Karbon, yaşam için gerekli olan bir maddedir. Karbon kelimesin kaynağı 'kömür' anlamına gelen Latince 'carbo' kelimesinden gelmektedir. Karbon, fosil yakıtlardan karmaşık moleküllere kadar çoğu organik maddenin içerisinde en yaygın olarak bulunan bileşendir. Karbon, periyodik tablonun 4A grubunda yer alır. Değerlik elektronu 4 olup ve bu elektronların ikisi, $2s^2$ orbitalin de diğer ikisi de $2p^2$ orbitalinde yer almaktadır [6, 7].

Allotroplar, tek bir kimyasal elementin farklı yapısal formları olarak tanımlanır. Karbon bazlı malzemeler birbirinden değişik sertliğe, termal iletkenliğe veya elektriksel iletkenlik gibi ayırt edici fiziksel ve kimyasal özelliklere sahip birçok allotropa sahip olabilir. Bunun sebebi ise karbon atomlarının farklı türlerde bağlara sahip olmasıdır. Bu yapıların özelliklerinin farklı olmasının sebebi, farklı birleşme türleri olan sp , sp^2 sp^3 hibritleşmelerine ek olarak sahip olduğu farklı bağ uzunlukları ve şekillerinden kaynaklanmaktadır [6,7]. Elmas ve grafit karbonun, uzun süredir bilinen iki doğal allotropudur. Bu durum 1985 yılında, ilk kez gözlemlenen fullerenlerin ortaya çıkmasıyla değişmiştir. Fullerenlerin, ilk örneği C_{60} , Kroto ve ekibi tarafından keşfedilen sp^2 hibritleşmesi yapan içi boş karbon kafes molekülleridir. 1990'ların başında, fullerenler (C_{60} , C_{70} , C_{76} , C_{78} ...) ilk olarak buharlaştırılmış grafitin yoğunlaştırılmasıyla makroskobik miktarlarda üretilmiştir. Doğal olarak oluşan fullerenler, 1990'larda yıldırım çarpmaları, meteorlar gibi yüksek enerjili olaylardan etkilenen malzemelerde tespit edilmiştir. Optik, elektronik, kozmetik ve biyomedikal uygulamalarda kullanım için fulleren ve yüzey işlevsel fulleren nanomalzeme sınıfları önerilmektedir [8]. Bu tesadüfi keşif, sentetik karbon allotropları çağının başlangıcına neden olmuştur. Ardışık olarak 1991'de karbon nanotüplerin sentezi ve 2004'de grafenin keşfi ile birlikte büyüyen bir sentetik karbon allotropları ailesi (Şekil 2.1) oluşmuştur. Bir iki boyutlu petek kafes içine paketlenmiş bir tek karbon tabakası olan grafen, diğer boyutlara sahip karbonlu malzemeler (grafit, fullerenler ve karbon nanotüpler) için temel yapısal elemanıdır [9].



Şekil 2.1. 2B grafen tabakası fulleren, karbon nanotüp ve grafit yapıları [9].

Sp^2 hibritleşmesindeki temel karbon, çeşitli şaşırtıcı yapılar oluşturur. Bunlardan biri de karbon nanotüplerdir. Bilinen grafitin yanı sıra karbon, petek atom düzenine sahip kapalı ve açık kafesler oluşturabilir. Çeşitli karbon kafesleri çalışılmış olmasına rağmen, ilk kez boru karbon nanotüp 1991’de sentezlenmiştir. Karbon nanotüp, silindir şeklinde yuvarlanmış grafen tabakasından oluşmaktadır. Bir karbon nanotüpün çapı nanometre boyutunda olup karbon nano tüpler yüksek termal ve elektriksel iletkenliğe sahiptir. Ayrıca bu malzemeler oldukça esneklerdir ve hasar görmeden büyük ölçülerde bükülebilirler. Bu özelliklerinden dolayı birçok uygulama alanı vardır ve giderek artmaktadır. Başlıca kullanım alanları, elektrokimyasal sensörler, bazı transistörler, heterojen kataliz olarak kullanıldığı nano kompozit uygulamalar, güneş gözeleri, nano gözenekli filtrelerdir [10].

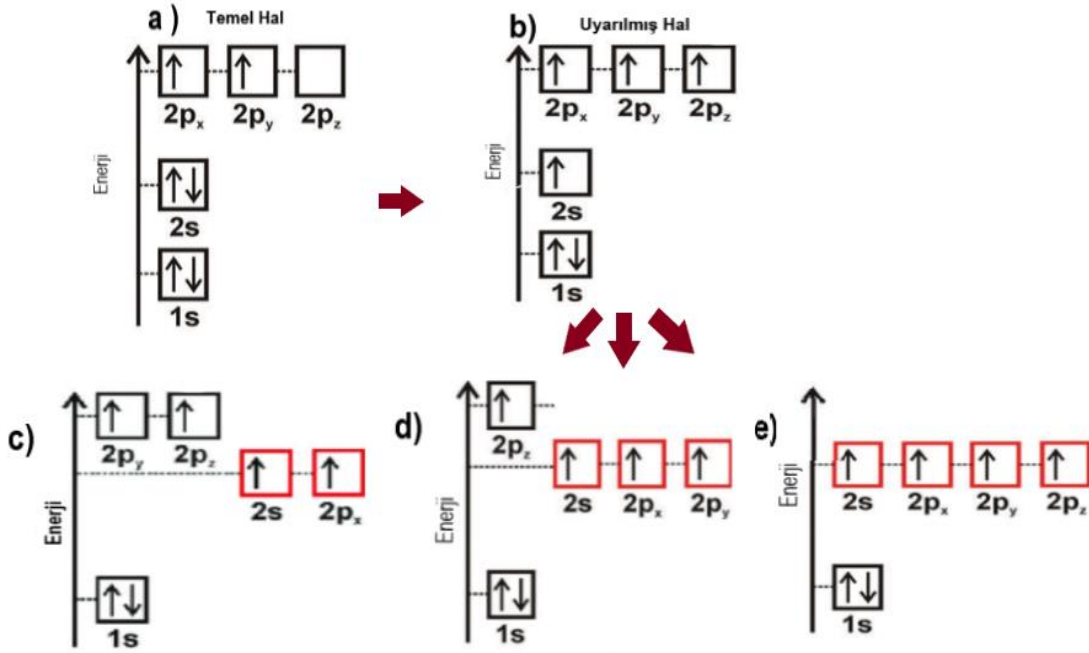
2.1.1. Grafen ve Özellikleri

Grafiti oluşturan katmanların tek bir tabakası olarak tanımlanan grafen, sahip olduğu üstün özelliklerinden dolayı günümüzde en ilgi çekici araştırma konularından birisidir. Grafit Yunanca “graphe in” (yazmak) kelimesinden türetilen bir terim olmakla beraber kimya, fizik ve mühendisliğin birçok alanında çok uzun süredir çalışılmaktadır.

İki boyutlu karbon malzemenin izolasyonunun uzun bir süre birçok bilim insanı tarafından gerçekçi olmadığı düşünülüyordu [7, 10]. Bu düşünce karşısındaki ilk girişim 1947'de Wallace tarafından gerçekleştirilmiştir. Ardından 1962'de Boehm ve ekibi ilk grafit oksidasyon ve indirgeme denemesini gerçekleştirdi. Bu çalışma grafen katmanlarının kimyasal olarak ayrılabilmesi gösterilmiş olmasına rağmen, toplam izolasyon konusu o yıllarda hala çözülmesi gereken bir zorluktu. İlerleyen zaman içerisinde 1975 yıllarında van Bommel ve çalışma arkadaşları, silisyum karbürden silisyum süblimleştirerek tek katmanlı grafit hazırlamanın mümkün olduğunu kanıtlamıştır. 1999'da Rodney S. Ruoff ve ekibinin yaptıkları çalışmada ise grafiti çoklu grafen katmanları içeren ince lamelleri elde etmek için mikro mekanik bir yaklaşım kullandı ancak, bu lameller tek katmanlara tamamen indirgenemedi ve bu anlamda ilk başarı 2004 yılına kadar elde edilememiştir [7,11]. Geim, Novoselov ve ekibi çok basit bir mikro kimyasal bölünme yöntemi kullanarak yüksek yönelimli pirolitik grafit (Highly oriented pyrolytic graphite (HOPG)) yüzeyi bir Si/SiO₂ altaşa karşı bastırıldığında ve daha sonra çıkarıldığında, ince grafen pullarının oluşabileceğini göstererek bu mekanik yaklaşımın potansiyel kullanımını gösterdiler. Böylece, şimdiye kadar keşfedilen ilk iki boyutlu malzeme olan atom mikroskobu altında, petek şeklinde birbirine bağlı düz bir altıgen kafesi olarak görünen grafen izole edilmiştir [7, 11].

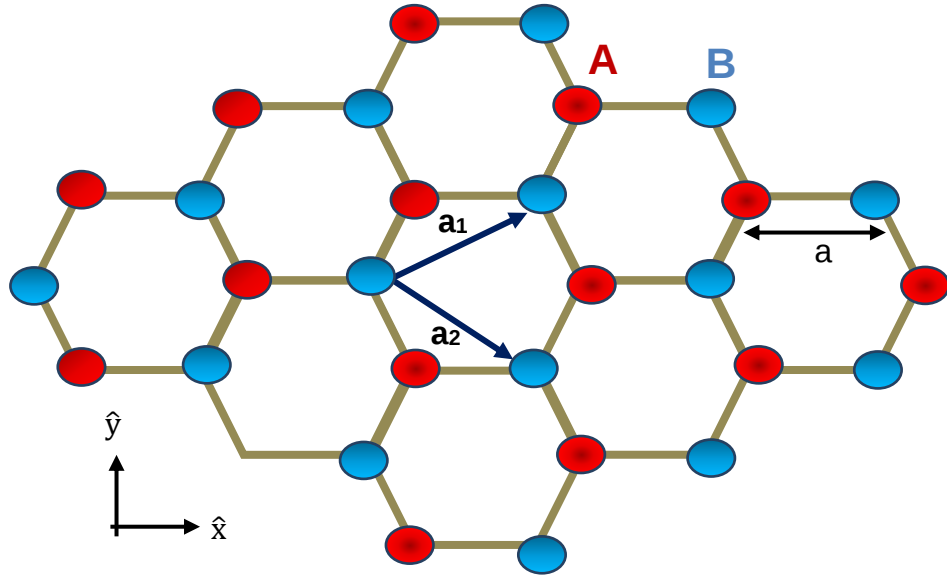
Bu başarının ardından Geim ve Novoselov, keşiflerini anlatan üç sayfalık bir makale yazdılar. Ekim 2004'te Science dergisinde yayınlanan 'Atomik Olarak İnce Karbon Filmlerde Elektrik Alanı Etkisi' (Electric field effect in atomically thin carbon films) makalesi bilim insanlarını hayrete düşürdü. Konstantin Novoselov ve Andre Geim bu makaleden 6 yıl sonra 2010 yılında yeni bir malzemenin keşfini ve karakterizasyonunu gerçekleştirdikleri için Nobel Fizik Ödülü ile ödüllendirilmiştir. Ürettikleri yüksek kaliteli grafen kristali, araştırmacıların ilgisini oldukça çekmiş, o günden bugüne bu konudaki araştırmalar ve yayın sayısı katlanarak artmıştır [7]. Uluslararası Temel ve Uygulamalı Kimya Birliği (International Union of Pure and Applied Chemistry (IUPAC)) tarafından daha önce karbonun 3-boyutlu istifleme ile oluşan grafitten gelen ismi olan "grafit tabakası" teriminin yeterli bulunmaması gerekçesi ile bu tek tabakalı yapı için "Grafen" terimi önerilmiştir. İlerleyen zamanlarda grafen yenilenebilir enerji teknolojilerinden, kimya ve pil çalışmalarına, sağlık ve biyoloji alanlarına kadar birçok farklı alanda kullanılmıştır ve hala geliştirilmeye devam etmektedir [12-14].

Bir karbon atomunun atomik orbitallerde $1s^2 2s^2 2p^2$ olarak dağılmış altı elektronu vardır. 1s elektronları kimyasal bağa katkıda bulunmazlar. Karbon atomları arasında kurulan bağların sayısına bağlı olarak, karbonda şekil 2.2’de gösterilen üç farklı hibritleşmiş durum tanımlanır. Karbon atomları 2s ve 2p orbitallerini kolayca hibritleme eğilimindedir ve bunlar, sp , sp^2 ve sp^3 hibritleşmeleri olarak tanımlanır.



Şekil 2.2. Karbon atomunun (a) temel durum elektron dağılımı, (b) uyarılmış durumdaki elektron dağılımı (c) sp hibritleşmesi elektron dağılımı (d) sp^2 hibritleşmesi elektron dağılımı (e) sp^3 hibritleşmesi elektron dağılımı [15].

Simetrik olarak dağılmış sp^2 adı verilen her biri bir elektron içeren yörünge karbon atomları komşu üç karbon atomuyla sp^2 elektronlarını paylaşarak sigma (σ) bağı olarak adlandırılan kovalent bağ ile birleşir. Sigma bağlarının gücü, grafeni en güçlü malzemelerden biri yapar. Ayrıca bu yörüngeler 120 derecelik açılarla yönlendirilir. Şekil 2. 3’de gösterilen grafenin altıgen bal peteği kafes yapısını oluşturur. Grafenin mekanik özellikleri bağın sertliği ile belirlenir [15,16].



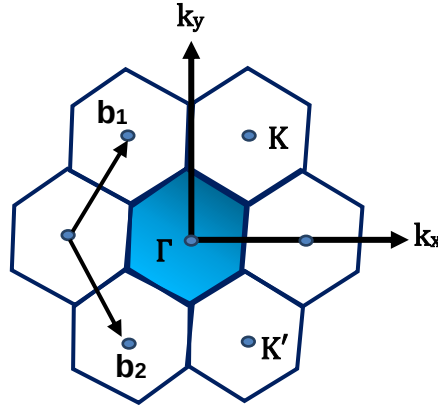
Şekil 2.3. Grafenin bal peteği örgüsünün ilkel birim hücresinin top çubuk model gösterimi.

Bu örgünün ilkel öteleme vektörleri $\mathbf{a}_1$ ve $\mathbf{a}_2$ olup, aşağıdaki gibi verilirler.

$$\mathbf{a}_1 = \left(\frac{3a}{2}, \frac{\sqrt{3}a}{2} \right) \quad \mathbf{a}_2 = \left(\frac{3a}{2}, -\frac{\sqrt{3}a}{2} \right)$$

Şekil 2.3' de grafenin x-y düzlemindeki gerçek uzaydaki düzlemsel bal peteği örgüsü top-çubuk modeli kullanılarak gösterilmiştir. Burada $\mathbf{a}_1$ ve $\mathbf{a}_2$ birim hücrenin iki ilkel birim hücre örgü vektörüdür. Burada A ve B olarak belirtilen toplar farklı karbon atomlarını, bu atomları bağlayan çubuklar ise karbon atomunun yapmış olduğu bağları temsil etmektedir. Karbon atomları arasındaki bağ uzunluğu 1,42 nm'dir [16,17].

Şekil 2.4 'de gösterilen grafenin ters örgüsü olan altıgen örgüdür, Gama Γ noktası Brillouin bölgesinin merkezi olup bu noktalarda momentum ($k_x=k_y=0$) sıfırdır.



Şekil 2.4. Grafenin ters örgüsü ve Brillouin bölgesi koyu mavi ile temsil edilmektedir.

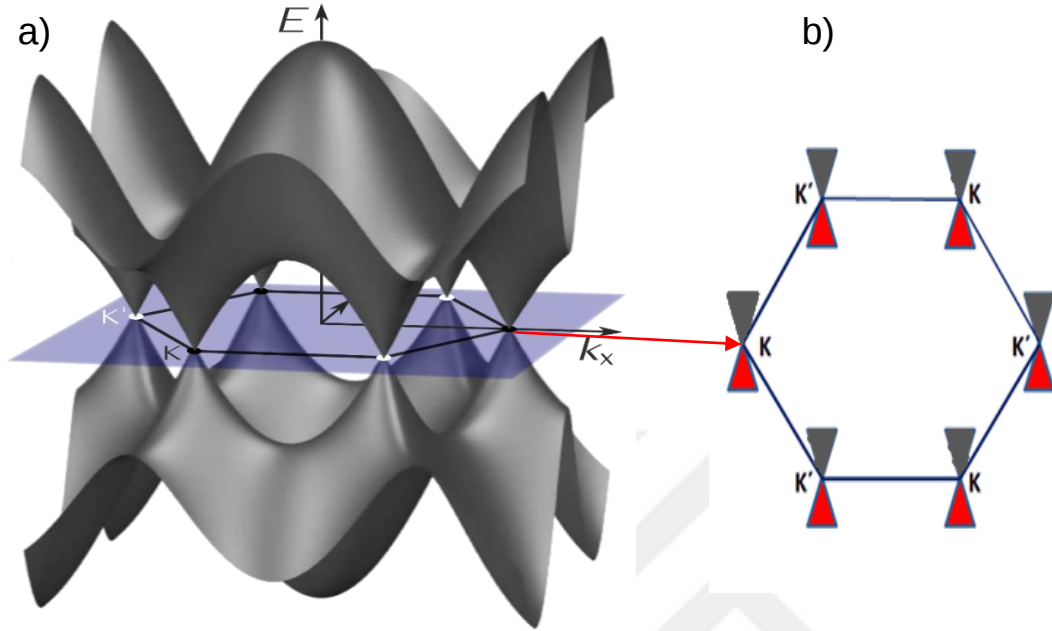
Grafenin ters örgü ilkel öteleme vektörleri $\mathbf{b}_1$ ve $\mathbf{b}_2$ olup, aşağıdaki gibi gösterilir [16, 17].

$$\mathbf{b}_1 = \left(\frac{2\pi}{3a}, \frac{2\pi}{\sqrt{3}a} \right) \quad \mathbf{b}_2 = \left(\frac{2\pi}{3a}, -\frac{2\pi}{\sqrt{3}a} \right)$$

Karbon atomlarının x-y düzlemine dik kalan p_z elektronlarının yörüngeleri moleküler düzleme dik olarak dağılmıştır ve en yakın üç, orbital ile yanıl etkileşim ile π bağları olarak adlandırılan bağları oluşturur. Düzleme dik π bağları farklı grafen katmanları arasındaki etkileşimi kontrol etmektedir. Daha güçlü ve sıkı olan π bağları, grafen içindeki elektrik iletiminden sorumludur [16-18].

Dengede grafenin enerji bant yapısı, altıgen Brillouin bölgesini köşelerinde (K ve K' noktaları) bulunan koniler olarak tanımlanır. Grafen fiziksel düzlemsel yapısındaki ters simetri nedeniyle sıfır bant aralığına sahiptir. Değerlik ve iletim bantlarının buluşma noktaları Dirac noktası olarak bilinmektedir. Dirac konileri olarak adlandırılan konilerin enerji band dağılımları doğrusal olup bu noktadaki elektronlar ile holler etkin kütlelerini tamamen kaybeder. Bu nedenle grafen içindeki elektronlar Fermi hızına eşit etkin bir ışık hızı mertebesinde hareket eden kütesiz Dirac fermiyonları gibi davranmaktadırlar [19].

Şekil 2.5’de grafenin elektronik bant yapısı şematik olarak gösterilmiştir. Enerji bandının koniler olarak temsil edildiği Dirac konilerinin üst ve alt kısımları sırasıyla iletim ve değerlik bantlarına karşılık gelir [20].



Şekil 2.5. (a) K ve K' noktalarının yakınındaki karakteristik Dirac konileri ile grafen bant yapısının şematik görünümü. (b) Altıgen bir düzlemde bulunan Dirac konileri [21].

İki boyutlu (2B) nanomalzemelerin optik ve elektronik özellikleri kalınlıklarına büyük ölçüde bağlıdır. Grafenin olağanüstü optoelektronik özellikleri ilginç elektronik yapısından kaynaklanmaktadır. Çok katmanlı grafen, düzlemler arasında zayıf van der Waals etkileşimleri olan ve optoelektronik özellikleri düzlemlerin sayısı ve bunların istiflenme sıraları ile ilişkili olan yığılmış grafen nano tabakalardan oluşur. Çalışmalar grafenin optik geçirgenliği, görünür bölgede grafen katmanlarının sayısı ile yaklaşık olarak doğrusal olarak orantılı olduğunu göstermektedir [16, 22]. Çok katmanlı grafen katmanlar arasında zayıf van der Waals etkileşimi olan ince bir filmdir. Elektronik ve optik özelliklerde, düzgün bir biçimde üst üste yığılmış grafen tabakalarının katman sayısına duyarlıdır.

Bir grafen filmin optik iletimin doğrudan grafen yığınının optik iletkenliğine bağlıdır. Eşitlik 2.1’de grafen filmlerin optik geçirgenliği ($T(\omega)$) gelen ışık frekansının bir fonksiyonu olarak yazılabileceği türetilmiştir.

$$T(\omega) = [1 + f(\omega) \frac{\pi\alpha}{2} N]^{-2} \quad (2.1)$$

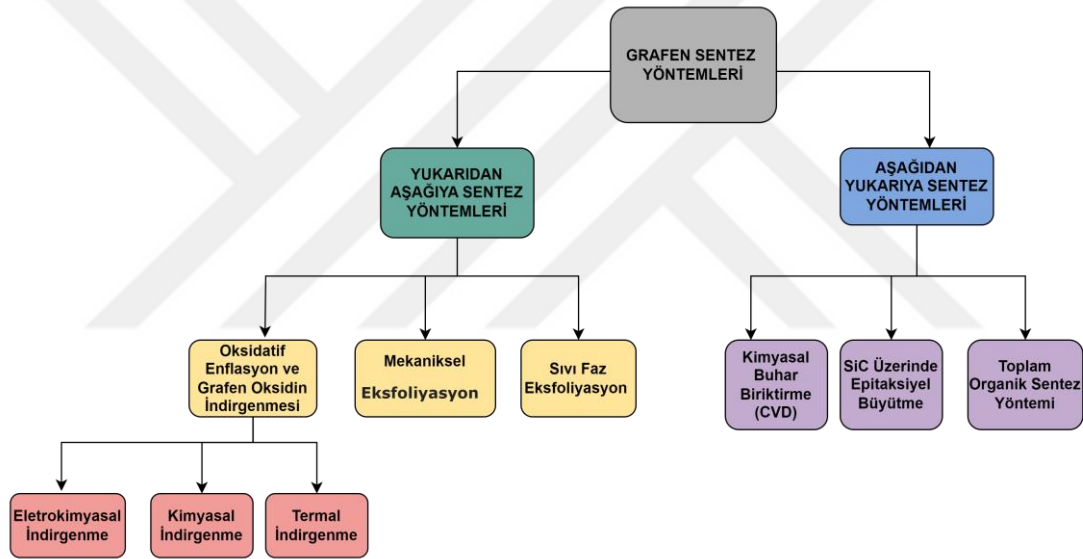
Burada $f(\omega)$, 550nm dalga boyunda bir tek tabaka için 1.13 olan düzeltme katsayısını α , ince yapı sabitini, ($\alpha = e^2 / \hbar c \approx 1/137$) ve N , grafenin tabaka sayısını temsil etmektedir. Eşitlik 2.1’de bu denklemin tek katmanlı grafen için türetilen sadeleştirilmiş hali eşitlik 2.2’de verilmiştir.

$$T(\omega) \approx 0.977 \approx \% 97.7 \approx 1 - \pi\alpha \quad (2.2)$$

Tek katmanlı grafen, gelen ışığın yaklaşık % 97’sini iletir ve % 2,3’ünü soğurur. Görünür bölgede katmanlar arası etkileşim ihmal edilerek, çok katmanın optik iletkenliği katman sayısı ile doğrusal orantılı olarak kabul edilir. Katman sayısı arttıkça geçirgenlik azalır [22-24]. Öte yandan Young modülü, elastik bir malzemenin sertliğinin bir ölçüsüdür ve bu nedenle mühendislik tasarımındaki en önemli özelliklerden biridir. Grafen için ölçülen değer yaklaşık 0,5 TPa’dır [25]. Grafen yüksek yüzey alanına, yüksek yük mobilitesine ($15000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$), iyi elektriksel iletkenliğe, yüksek mobiliteye ($\mu > 105 \text{ (cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1})$), iyi ısı iletkenliğine ve kimyasal eylemsizlik gibi birçok eşsiz özelliklere sahiptir [26,29]. Bu nedenle çok sayıda teknolojik uygulamalar için büyük bir potansiyeli vardır. İyi elastikiyete, mukavemet ve gözenekliliğe sahip olan grafen, bir araya getirildiğinde kompozitler üzerinde olumlu etkiye sahiptir. Ayrıca yüksek yüzey alanının yanı sıra iyi iletkenlik sergileyen grafen, elektrokimyasal sensör, şeffaf iletken elektrotlar ve pil teknolojileri uygulamaları için önem taşımaktadır [27-29].

2.2. Grafen Sentez Yöntemleri

Grafen sentez yöntemi elde etmek istenen ürünün boyutuna, saflığına ve kristallğine bağlı olarak grafen üretimi için yapılan bir işlemi ifade eder. 2004 yılındaki keşfinden sonra grafen uzun bir süre deneysel olarak incelenmiştir, katmanlar ve ince tabakalar üretmek için farklı teknikler geliştirilmiştir. Ancak endüstride başarılı bir şekilde uygulanabilmesi için grafenin mevcut malzemelerle rekabet edebilecek bir maliyetle üretilmesi de gerekmektedir. Dolayısıyla uygun maliyetli, son derece güvenilir ve ölçeklendirilebilir üretimin yanı sıra yüksek ürün verimi ve üretilen malzemenin kalitesi de oldukça önem taşımaktadır. Şekil 2.6'da gösterildiği gibi grafeni sentezi iki ana yaklaşımla gerçekleştirilebilir: aşağıdan yukarıya (yapım) yöntemleri ve yukarıdan aşağıya (yıkım) yöntemleriyle grafen sentezi sağlanmaktadır [30].

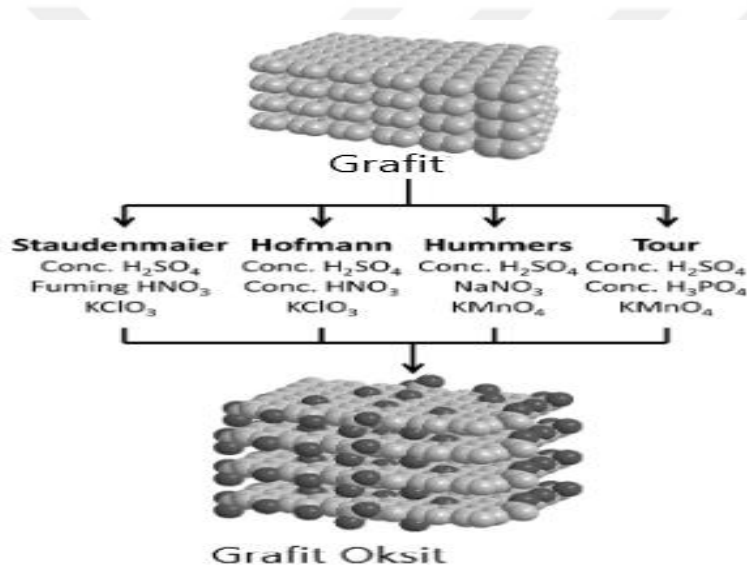


Şekil 2.6. Grafen Sentez Yöntemleri [30].

2.2.1. Yukarıdan Aşağıya Grafen Sentez Yöntemleri

Yukarıdan aşağıya sentez yaklaşımı, genellikle bir eksfoliyasyon işlemi yoluyla toplu grafitten başlayarak grafen üretiminin gerçekleştiği yöntemleri kapsamaktadır. Grafen mekanik pul pul dökülme ile, yüksek oranda yönlendirilmiş pirolitik grafitin (HOPG) küçük katlarına band ile yapıştır çek işleminin tekrarlanmasıyla oluşur. Optik olarak şeffaf pullar içeren bant daha sonra aseton içinde çözülür; birkaç adım sonra hem çok katmanlı hem de tek katmanlı grafen içeren pullar bir hedef altına aktarılır.

Bu teknik daha sonra modifiye edilerek sıvı aşaması kaldırılmıştır. Sentez tekniğinin kolaylığı ve elde edilen grafenin kalitesi şaşırtıcıdır. Ancak, mikro mekanik pul pul dökülme temel çalışmaları elektriksel olarak izole edilmiş ancak henüz geniş alanda ölçeklenebilir yüksek kaliteli grafen üretmek için kullanılamamaktadır. Yukarıdan aşağıya yaklaşımın içinde daha ölçeklenebilir yöntemler, grafen oksit (GO) elde etmek için kimyasal bir pul pul dökülme işlemi gerçekleştirilir. Genel olarak GO, sp^2 ve sp^3 hibritleşmesi yapan karbon atomlarına sahiptir. Genel olarak GO, grafitin oksidatif pul pul dökülmesi ve ardından grafen tabakalarına indirgenmesiyle sentezlenir. GO sentezi için yaygın olarak bilinen Brodie, Staudenmaier, Hofmann ve Hummers adlı dört ana yöntem vardır. Şekil 2.7' de bu yöntemlerin 100 °C'nin altındaki sıcaklıklarda hangi reaksiyon yollarını kullandığı gösterilmektedir.



Şekil 2.7. Grafit oksit elde etmek için kullanılan grafit oksidasyon prosedürlerinin şematik diyagramı [31].

Grafen oksit, grafit oksidin ultrasonikleştirilmesi yoluyla üretilir. Bu yöntemler nispeten düşük sentez sıcaklığı, üretim maliyetini düşürmek ve sabitlemek için seçilmektedir. Ancak, bu yöntemler esnasında dinitrojen tetroksit (N_2O_4) ve azot dioksit (NO_2) gibi ve toksik gazlar açığa çıkmaktadır. Bu nedenle, proses güvenliği ve çevresel maliyetlerin ve risklerin dikkate alınması gerekmektedir. Yakın tarihte yapılan çalışmalar da Hummers yöntemi, büyük oranda daha hızlı ve tehlikesiz bir işlem olması sebebiyle GO'nın sentezi için oldukça benimsenmiş bir yöntemdir.

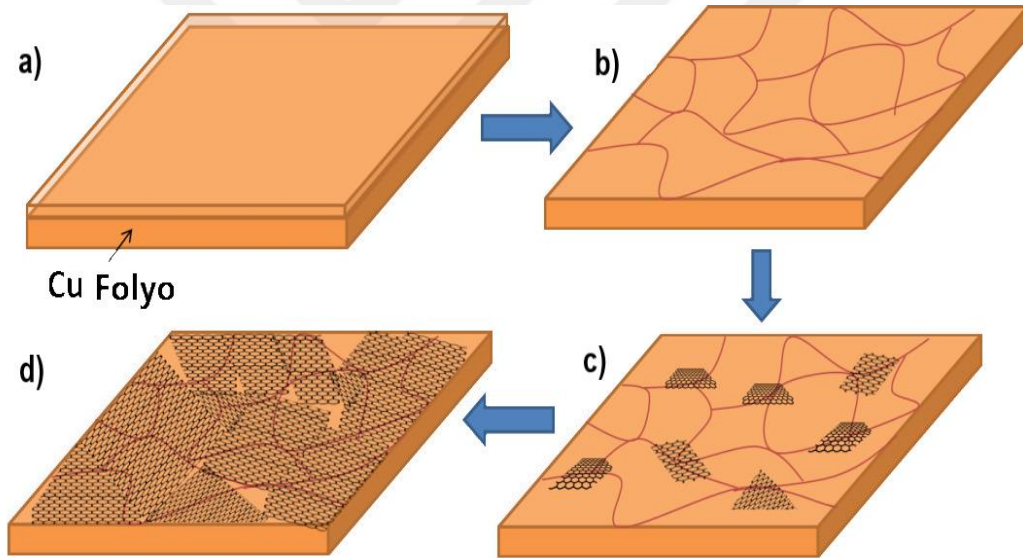
Ayrıca potasyum perklorat ($KClO_4$) ve nitrik asit (HNO_3) yerine potasyum permanganat ($KMnO_4$) ve sodyum nitrat ($NaNO_3$) kullanımı ile klor dioksit (ClO_2) gibi patlayıcı gazların oluşmaması önemli bir artıdır. Hummers yönteminin iyileştirilmesi ile GO üretimine daha çevreci bir yaklaşım getirilmiştir. Bu iyileştirmeler sebebiyle üretim ve çevre koruma maliyeti de azaltmıştır. Sıvı fazlı pul pul dökülme, grafen üretimi için ise en yaygın kullanılan sentez yöntemlerinden biridir. İlk olarak 2008'de gerçekleştirilmiş olup grafen sentezi grafiti uygun bir çözücü içinde dağıtılması, yığının pul pul dökülmesi ve nihai ürünlerin saflaştırılması şeklinde üç ana adımdan oluşmaktadır ve birçok çalışmada tercih edilmektedir [30-32].

2.2.2. Aşağıdan Yukarıya Grafen Sentez Yöntemleri

Aşağıdan yukarıya sentez yaklaşımı genel olarak daha sonra kaldırılan ve transfer sürecini zorunlu kılan çeşitli alttaşlar üzerindeki grafen büyütme yöntemlerini içerir. Bu teknikler, elektriksel, fotonik ve mekanik özellikler açısından yüksek kaliteli standartları sürdürürken, büyük ölçekli grafen üretimini de sağlamaktadır. En yaygın olanları, epitaksiyel büyütme ve kimyasal buhar biriktirme (KBB) yöntemleridir. Epitaksiyel büyütme, bir tek kristal SiC (silikon karbür) alttaşın yüksek sıcaklık etkisiyle birkaç atomik Si katmanının süblimleşmesi ile oluşmaktadır. Süblimleştirme genellikle 1450 °C ile 1550 °C arasındaki sıcaklıklarda bir fırın içerisinde gerçekleştirilir. Si-C bağlarının kırılmasını ve silikonun süblimleşmesinden sonra, karbon türleri yüksek sıcaklıkta bağımsız tek katmanlı grafen tabakaları halinde kendiliğinden birleşir. Bir polikristal SiC bileşiğinden başlayarak grafen üretimi oldukça verimli bir yöntemdir ve bu yöntemin uygulaması oldukça basittir ve grafenin verimi sadece fırının boyutuyla sınırlı olduğu için grafen sentezi bu yöntemle kolayca gerçekleştirilebilir [33]. Diğer bir aşağıdan yukarıya sentez yaklaşımı Kimyasal buhar biriktirme (Chemical Vapor Deposition (CVD)) yöntemidir. Grafenin bir karbonlu gaz kaynağı kullanılarak bir alttaş üzerinde büyütülme işlemidir. Bu işlem karbonlu bir gaz kaynağının sıcak bir reaktöre verildiği bir kimyasal reaksiyondan oluşur. Yüksek sıcaklıklarda, hidrokarbon öncüsü, metal substrat üzerinde bir grafen tabakası oluşturmak için karbon kaynağı olan gaz karbon radikallerine ve hidrojene ayrışır. Grafenin üzerinde büyütüleceği metal sadece bir katalizör olarak çalışmakla kalmaz, aynı zamanda büyüme mekanizmasını da belirlemektedir [30,33].

Tek katmanlı grafen sentezi için geiş metalleri (Ni, Cu, Ru, Ir, Pd, gibi) alttař olarak kullanılmaktadır. Yapılan alıřmalar incelendiėinden en ok bakır (Cu) ve nikel (Ni) folyoların kullanıldıėı bilinmektedir. Bunun sebebi ise bakır ve nikelin karbon öz c l ė n y ksek olmasıdır [32].

Rouff ve ekibi tarafından 2009 yılında İlk kimyasal buhar biriktirme y ntemi ile ilk kez grafen sentezi gerekleřtirilmiřtir. İlerleyen alıřmalar neticesinde y zey sıcaklıėı ok farklı sıcaklıklarda alıřılıp olduka g zel bařarılar edilmiřtir [30, 33]. O zamandan beri, cihaz  retimi ve testi iin tek katmanlı grafen b y tmek ve grafeni yalıtkan bir alt tabakaya aktarmak iin bakır kullanan birok arařtırma yapılmıřtır ve hala devam etmektedir. Prensipde bakır folyo  zerindeki grafen, metan gazının genellikle 1000  C 'de y zey  zerinde seyreltik hidrojen ortamında bozunmasıyla b y t l r. Ek olarak yapılan birok alıřmada argon gazı kullanılmıřtır. řekil 2. 8'de bir kimyasal buhar biriktirme y ntemi kullanılarak grafen sentezleme deneyindeki ařamaları temsil edilmiřtir.



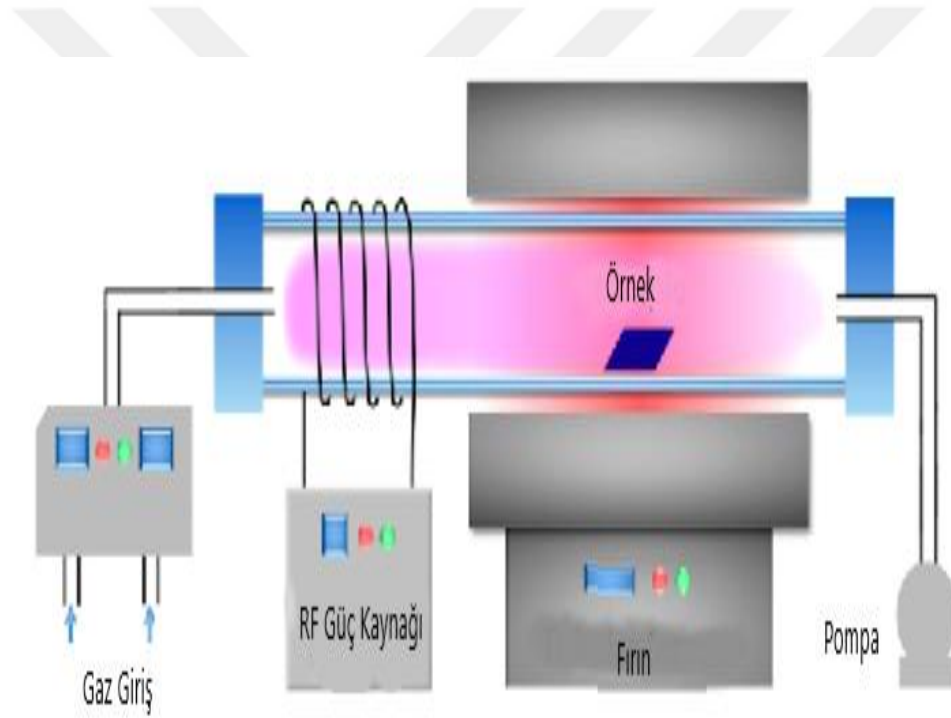
řekil 2.8. Kimyasal buhar biriktirme y ntemiyle ile Bakır alttařlar  zerinde grafenin b y mesini g steren akıř řeması: (a) doėal oksitli bakır folyo, (b) tavlamadan sonra bakır y zeyde tanecikli yapı oluřması (c) bakır folyo  zerindeki grafen adalarının ekirdeklenmesi ve farklı konumlarda b y mesi (d) grafen adalarının birleřmesi ve grafen katmanların oluřması [34].

İlk olarak tavlama ařaması adlandırılan ařamada oksitlendiėi d ř n len genellikle 25-50  m kalınlıėındaki bir bakır folyonun, H₂ ortamında y ksek sıcaklıkta tavlaması ile bakır folyo y zeyindeki doėal oksit tabakasının temizlenmesi saėlanır.

Grafenin büyümesi için bakır folyonun yüzeyinin tanecikli hale getirilerek adacıklar oluşturulması ve çekirdeklenme merkezlerinin oluşturulması için belirlenen sıcaklığa getirilir. Tavlama süresi de değişiklik gösterebilen ve sentezlenen grafenin kalitesinde etkilidir. Daha sonraki büyütme olarak adlandırılan aşamada karbon kaynağı olan gazın belirlenene gaz akış hızı ile belirlenen süre boyunca verildiği aşamadır. Bakır folyonun belirlenen gazların ortamında kalmasıyla (genellikle CH_4/H_2), grafen adalarının çekirdeklenmesi rastgele fakat genellikle bakır folyonun yüzeyinin tane sınırında gerçekleşmeye başlar [30-33]. Bu şekilde devam ederken bir süre sonra, grafen alanları bakır alttaşın tüm alanını kaplayacak şekilde büyür ve sonunda sürekli bir grafen film oluşur. Büyüme evresinde gazların birbirleri ile olan oranı, akış miktarlarının ve büyütme süresinin grafenin kalitesi üzerinde etkili olduğunu belirten fazlasıyla çalışma bulunmaktadır. Diğer bir aşama ise soğutma aşamasıdır. Bu aşamada birikme evresinden sonra belirlenen gazlar verilerek fırın oda sıcaklığına soğutulur. Tüm aşağıdan yukarıya sentez yöntemleri arasında, kimyasal buhar biriktirme (KBB) geniş alanda yüksek kaliteli grafen üretme avantajı nedeniyle öne çıkmaktadır [29-36].

Kimyasal buhar biriktirme yöntemine alternatif olan yöntemlerden birisi de plazma destekli kimyasal buhar biriktirme (PDKBB) yöntemidir. Geleneksel kimyasal buhar biriktirme yönteminden farklı olarak bu reaksiyonlar enerji verilerek iyonlaştırılmış ve bu iyonize ortamda negatif yüklerin diğer bir değişle serbest elektronların ve pozitif yüklerin sayısının yaklaşık olarak eşit olduğu plazma ortamı olarak adlandırılan ortamda gerçekleşmektedir [37]. Kimyasal buhar biriktirme sisteminin ekipmanlarına ek olarak plazma destekli kimyasal buhar biriktirme sisteminde güç ünitesi bulunmaktadır.

Şekil 2.9’ da plazma destekli kimyasal buhar biriktirme (PDKBB) sistemi gösterilmiştir. Düzenek gaz akış kontrol cihazı, RF güç kaynağı, yüksek sıcaklık fırını ve vakum sistemi olmak üzere dört ana bölümden oluşmaktadır. Kimyasal reaksiyonlar fırın içerisindeki kuartz tüp içerisinde kimyasal buhar biriktirme tekniğinde olduğu gibi öncü ve yardımcı gazlar arasında kimyasal reaksiyonlar gerçekleşir. Gaz halindeki türler, üç fonksiyonel gruba ayrılabilen grafen ve türevlerinin sentezi için gereklidir. Karbon içeren gaz halindeki öncüler, plazma ile güçlendirilmiş reaksiyon yoluyla grafen büyümesi için karbon radikalleri sağlar. Yüksek kaliteli grafen ve türevlerini üretmek için H_2 , O_2 gibi gazlar amorf karbon aşındırıcılar olarak kullanılır. Genellikle N_2 , NH_3 gibi gazlar ise, grafenin elektriksel özelliklerini uyarlayabilen büyümüş grafenin katkısını elde etmek için kullanılır [38].



Şekil 2.9. PDKBB düzeneğinin şematik gösterimi [39].

PDKBB, standart KBB tekniğinden daha düşük sıcaklıkta alttaşılar üzerine çeşitli malzemelerden ince filmler biriktirmek için kullanılır. PDKBB nispeten düşük alttaşı sıcaklıkları gerektirdiğinden ve yüksek biriktirme hızları elde edilebildiğinden; filmler geleneksel KBB teknikleri için gerekli olan yüksek sıcaklıklara (600 ile 800°C aralığında) dayanamayan geniş alanlı alttaşılar üzerinde de biriktirilebilir [38-43]

2.2.2.1. Kimyasal Buhar Biriktirme Yöntemiyle Sentezlenen Grafenin Transferi

Geçiş metalleri üzerinde büyütülen grafen, elektrokromik cihaz üretimi, elektriksel veya elektrokimyasal geçiş karakterizasyonu için yalıtkan yüzeylere aktarılması gerekmektedir. Sentezlenen grafenin transferini oksitlenmiş silikon alttaşı (Si/SiO_2) veya kuvars gibi katı alttaşlar üzerine transfer edilmiş pek çok çalışma bulunmaktadır. Grafenin bu alttaşlara transfer edilmesi transistörler ve fotoelektrik aygıtları içeren elektronik uygulamalar için oldukça elverişlidir. Diğer bir uygulama ise polietilen tereftalat (PET), polikarbonat (PC) ve polivinil klorid (PVC)) gibi bükülebilir-esnek alttaşlara transfer edilmesidir. Esnek alttaşlara transfer edilebilmesi grafeni, bükülebilir dokunmatik ekranlar, güneş pilleri, batarya uygulamaları ile optoelektronik ve organik elektronik teknolojileri için benzersiz ve değerli kılmaktadır [43,44]. Grafenin transferi için yaygın olarak kullanılan birçok yöntem bulunmaktadır. Bunlardan bir tanesi, polimetilmetakrilat (PMMA) yöntemidir. Bu yöntem serbest duran bir grafen zar elde etmek için üzerinde grafen büyütülmüş olan metali kimyasal olarak aşındırmayı içerir. Metal alttaş aşındırıldıktan sonra bu zar daha sonra transfer edilmek istene bir alttaş üzerine alınabilir. Genel olarak transfer sürecinde ilk önce polimetilmetakrilat (PMMA) veya Polidimetilsiloksan (PDMS) gibi ince bir polimerik tabakanın büyütülmüş grafenin üzerine damlatılarak kaplanmasıyla gerçekleştirilir. Bu polimer, transferden önce grafen için destekleyici bir çerçeve sağlar. Altındaki metal alttaş daha sonra demir klorür (FeCl_3) çözeltisi ile aşındırılarak uzaklaştırılır. FeCl_3 çözeltisi yerine hidroklorik asit (HCl), nitrik asit (HNO_3), demir nitrat ($\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$), amonyum sülfat ($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_8$) ve bakır klorür (CuCl_2) gibi çözeltiler kullanılarak alttaşın aşındırıldığı çalışmalar mevcuttur. Ama bu çözeltiler zehirli olması nedeniyle çalışma şartlarını zorlaştırmaktadır. Bu sebeple FeCl_3 çözeltisi daha yaygın olarak kullanılmaktadır.

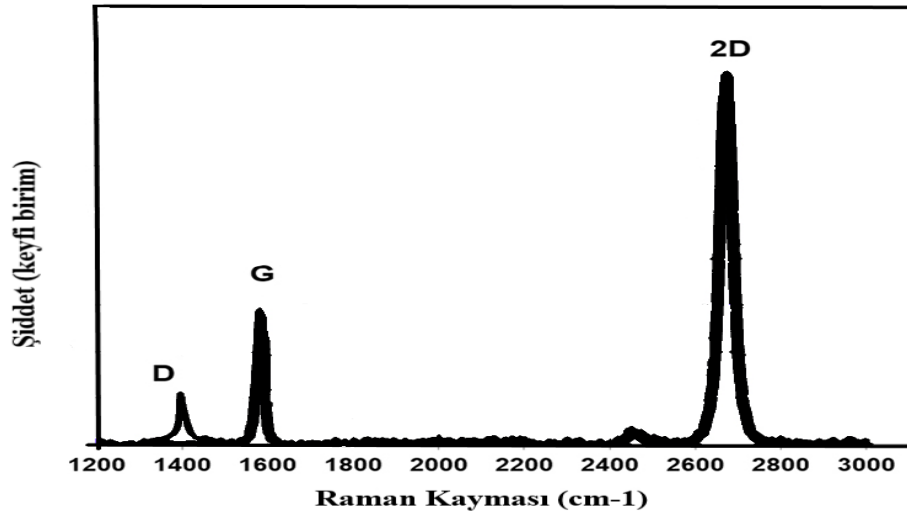
Alttař tamamen özndkten sonra, yzen zar istenen bir alttař zerine yerleřtirilebilir. Kurutulduktan sonra PMMA tabaksının grafen film zerinden uzaklařması aseton yardımıyla saęlanarak transfer etme iřlemi tamamlanmaktadır. Grafenin bir bařka bařarılı transfer yntemi ise laminasyon yntemidir. Grafen laminasyon teknięi ile řeffaf PVC (polietilen tereftalat) yzeylere PET esnek alttařlara, PVA (Polivinil alkol) yzeylere transfer edilebilir. Genel olarak laminasyon teknięi aktarılabilecek olan alttař zelliklerine gre 100  C ve 130  C arasında ısı iřlem uygulayarak masa st olarak kullanılabilen iki paralel silindir arasında basın ve ısı uygulayan bir cihazla saęlanır. Lamine edilmiř filminden grafenin uzaklařtırılması tamamen iin kullanılan alttařa gre zmek iin uygun bir zelti seilir. rneęin bakırın grafen ve lamine edilmiř filminden tamamen ayrılabilmesi iin konsantre FeCl₃ zeltisi kullanılabılır. Yaklařık 40-45 dakika sren ařındırma iřleminden sonra bakır alttař tamamen zelti iinde zlr. Bu yntem, grafenin geniř yzey alanını en az fiziksel hasara maruz bırakmak iin olduka etkilidir [45].

Metal alt tabakalardan yalıtkan alt tabakalara grafenin tm bu transfer yntemleri, atlak, kırıkklıklar ve dalgalanmalar gibi belirli derecelerde yapısal kusurlar ortaya ıkarmaktadır. Ek olarak grafen zerinde belirli miktarda safsızlık bırakan polimer tabakasını tamamen ıkarmak zordur. Bu aıdan bytlen grafenin kalitesini korumak iin PMMA ısıtması, alttař iřleme, yksek vakumlu tavlama, kloroform temizleme ve benzeri gibi ek iřlemler de kullanılan yntemlerdir [34].

3. GRAFEN FİMLERİN KARAKTERİZASYON YÖNTEMLERİ

3.1. Raman Spektroskopisi

Raman spektroskopisi, kimyasal yapı hakkında ayrıntılı bilgi veren çok yönlü, tahribatsız bir tekniktir. Raman spektrometreleri, malzemeleri genellikle görünür veya yakın kızılötesi dalga boylarında tek renkli lazer ışığı kullanarak araştırır. Bir numune aydınlatıldığında, ışığın çoğu enerjide bir değişiklik olmadan dağılır; buna Rayleigh saçılması denir. Bununla birlikte, fotonların küçük bir kısmı, moleküler titreşimlerde enerji kaybı veya kazanımı ile dağılır. Bu fenomen Raman etkisi veya Raman saçılması olarak adlandırılır. Bu titreşimlerin enerjileri moleküllerin bileşimine ve yapısına özgüdür. Toplanan ışıktan ayrıntılı ve bilgi açısından zengin spektrumlar üretmek için son derece hassas dedektörler ve spektrograflar kullanılır. Raman spektroskopisi, üç boyutlu elmas ve grafit, iki boyutlu grafen, bir boyutlu karbon nanotüpler dahil olmak üzere karbon malzemelerin kafes yapısının ve elektronik, optik ve fonon özelliklerinin karakterizasyonu için hızlı, tahribatsız ve yüksek çözünürlüklü bir karakterizasyon aracıdır. Geometrik yapılarıdaki küçük farklılıklar bile bir molekülün gözlemlenen Raman spektrumunda önemli farklılıklara yol açtığı için kolayca fark edilmektedir. Şekil 3.1’de gösterildiği gibi grafenin Raman spektroskopisi, genel olarak üç temel pikten oluşmaktadır [48].



Şekil 3.1. Grafenin Raman Spektrumu.

Bunlardan birincisi D piki olarak adlandırılır ve yaklaşık 1350 cm^{-1} civarında oluşur. Örneğin iç yapısındaki kusurlar hakkında bilgi verir. G bandı, grafen spektrumunda 1587 cm^{-1} civarında görünen keskin bir banttır. G piki 1585 cm^{-1} civarında ve 2D piki ise $2550\text{-}2800 \text{ cm}^{-1}$ aralığında oluşmaktadır. 2D pikinin G pikine oranı grafenin katman sayısı ve kalitesi hakkında bilgi vermektedir G bandı konumu, numunede bulunan katmanların sayısına oldukça duyarlıdır ve katman kalınlığını belirlemek için bir yöntemdir [46-50]. Literatürde belirtildiği gibi grafenin Raman spektroskopindeki G piki doğrudan grafen filminin katman sayısı hakkında bilgi vermektedir. Ayrıca piklerin yarı maksimumdaki tam genişliği (FWHM) 80 cm^{-1} 'den küçük olan numunelerin katman sayısının ≤ 3 olduğu bilinmektedir [48].

Eşitlik 3,1'de farklı katman sayılarına göre G pikinin konumu arasındaki ilişki verilmiştir. Eşitlikte ω_G dalga sayılarındaki bant konumunu ve n, numunede bulunan katmanların sayısını belirtmektedir [51].

$$\omega_G = 1581.6 + 11/(1 + n^{1.6}) \quad (3.1)$$

Grafenin Raman spektrumlarının 2D bandının grafen tabakalarının istiflenmesine daha duyarlı olduğu bilinmektedir. Örneğin, tek katmanlı grafenin 2D bandının konumu $\sim 2679 \text{ cm}^{-1}$ iken, çok katmanlı grafen (2-4 katman) için 2D bandın konumunun daha büyük konumlara doğru kaydığı gözlemlenir. Ayrıca tek katmanlı grafen için I_{2D} / I_G yoğunluk oranı 1,6 civarında ve daha büyük olduğu, çift katmanlı grafen için bu oran yaklaşık olarak 0,8 olduğu, üç katmanlı grafen için 0,30 civarında olduğu ve üç ve çok (>4) katmanlı grafen için bu oranın 0,07 olduğu bilinmektedir [52, 53].

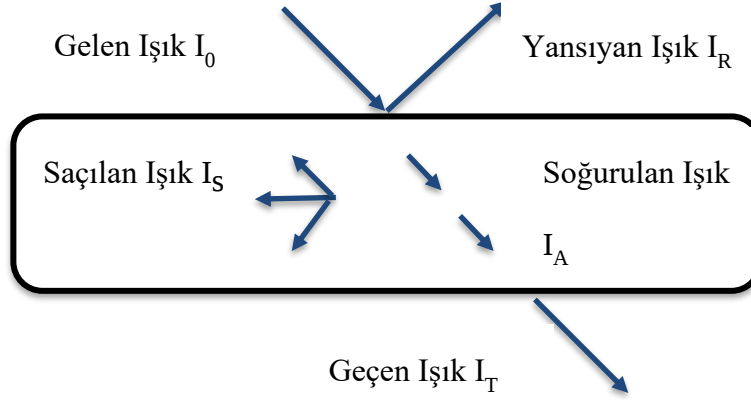
3.2. Optik Karakterizasyon Yöntemleri

Işık insan gözü tarafından algılanabilen elektromanyetik radyasyonu ifade eder. Işık dalga ve parçacık özelliklerini birlikte gösterir ve elektromanyetik enerji olarak tanımlanır. Bu enerji frekans ve dalga boyu ile matematiksel olarak ilişkilidir ve aşağıdaki eşitlik 3.2'de verilmiştir. Burada E fotonun enerjisini, λ radyasyonun dalga boyunu, h plank sabitini c ise ışık hızını göstermektedir.

$$E = h.v = \frac{h.c}{\lambda} \quad (3.2)$$

Işığı oluşturan elektrik ve manyetik alan bileşenleri birbirine diktir. Işık bu bileşenlerin ikisine birden dik bir doğrultuda ilerler.

Şekil 3.2’de gösterildiği bir yüzeye ışık geldiği zaman ışık demeti malzeme üzerinden yansır, soğrulur ve malzemenin içerisinden geçer [54].



Şekil 3.2. Malzemenin ışık ile etkileşimi.

Enerji korunumlu olduğu için gelen ışık şiddeti (I_0) aşağıdaki eşitlik 3.3’de verildiği gibidir.

$$I_0 = I_R + I_A + I_T + I_S \quad (3.3)$$

Eşitlik 3.4’de bir malzemenin optik geçirgenliği (T) malzemenin içerisinden geçen ışığın şiddetinin $I(T)$ malzemeye, gelen ışığın şiddetine (I_0) oranına eşittir.

$$T = \frac{I(T)}{I_0} \quad (3.4)$$

Eşitlik 3’5 de Malzemenin optik yansıtması (R), yansıyan ışığın şiddetinin $I(R)$, gelen ışığın şiddetine (I_0) oranına eşittir.

$$R = \frac{I(R)}{I_0} \quad (3.5)$$

Saçılma ve soğrulmanın olmadığı durumlarda $T+R = 1$ olarak verilmektedir. Soğrulmanın olduğu durumlarda, soğrulma (A) ile verilir, bu eşitlik $T+R+A = 1$ şeklinde sağlaması yapılır [54, 55]. Bu tez kapsamındaki çalışmalarda büyütülen grafen örneklerin s ve p polarize ışık için 350-1000 nm dalga boylarına karşı optik geçirgenlik ve yansıtmaları, Hacettepe Üniversitesi Fizik Mühendisliği İnce Film Hazırlama ve Karakterizasyon Laboratuvarında bulunan Aquila nkd-8000 fotospektrometre kullanılarak filmlerin optik geçirgenlik ve yansıtmaları ölçülmüştür.

3.3. Elektrokimyasal Karakterizasyon

Elektrokimya, elektrik akımının akışı nedeniyle meydana gelen kimyasal değişiklikleri veya kimyasal değişikliklerden elektrik enerjisi üretimini inceleyen bir kimya dalıdır [56]. Elektrokimyasal tepkimelerin gerçekleştiği sistemler bir elektronik iletken (bir elektrot) ve bir iyonik iletken (bir elektrolit) arasındaki kimyasal fazlar arasındaki arayüz boyunca yükün taşınmasını ve etkileyen süreçleri içerir. Elektrot/elektrolit arayüzüne bir elektrik potansiyeli uygulandığında geçen akımın oluşturduğu ve kimyasal tepkimelerin gerçekleştiği sistem elektrokimyasal hücre olarak adlandırılmaktadır [57, 58]. Elektrokimyasal hücrede kimyasal reaksiyonlar gerçekleşmektedir. Bu sistemlerde yük, elektronların hareketiyle elektrot boyunca taşınır. Tipik elektrot malzemeleri arasında katı metaller (Örn. Pt, Au), sıvı metaller (Hg, Civalı alaşımlar), karbon (grafit) ve bazı yarıiletkenler (indiyum kalay oksit (ITO), Silisyum) bulunur. Elektrolit fazında, yük iyonların hareketi ile taşınır. En sık kullanılan elektrolitler, H^+ , Na^+ gibi iyonik türler içeren sıvı çözeltilerdir. Bir elektrokimyasal hücrede yararlı olması için çözücü/elektrolit sistemi öngörülen elektrokimyasal tepki için yeterince düşük dirençli yani, yeterince iletken olmalıdır. Daha az geleneksel elektrolitler arasında erimiş tuzlar ($NaCl$ - KCl) ve iyonik olarak iletken polimerler (Nation, polietilenoksit, $LiClO_4$) kullanılabilir. Ayrıca yükün alüminyum oksit levhalar arasında hareket eden hareketli sodyum iyonları tarafından taşındığı alümina gibi katı elektrolitlerde mevcuttur. Uygun potansiyel uygulandığında elektrotta bir elektrokimyasal reaksiyon meydana gelir. Çalışan bir elektrodun yüzeyindeki bir maddenin uygun uygulanan potansiyelde indirgenmesi veya yükseltgenmesi, yeni malzemenin elektrot yüzeyine toplu olarak taşınmasına ve bir akımın oluşmasına neden olur. Üç olası yük taşıma süreci vardır bunlar elektriksel difüzyon, göç ve konveksiyondur. Elektrik alan varlığında yüklü iyonun hareketi elektriksel göç olarak tanımlanır [59, 60].

Elektro aktif türlerin termal akımlarla, elektrotu döndürerek veya çözeltiyi karıştırma hareketi konveksiyon olarak tanımlanır. Sistemde ki iyonlar oluşan elektrik alan yönünde ve elektronlar ise ters yönde hareket etmesi nedeniyle anot ve katot uç arasında oluşan yoğunluk farkı nedeniyle yük hareketi difüzyon olarak bilinir ve elektrokimyasal ölçümler için etkisi oldukça önemlidir.

Genel olarak, başlangıçta reaktan, çözeltiden kütle aktarımı olan elektrot arayüzüne difüze olur. Daha sonra, elektrot yüzeyi ile çözeltideki türler arasında elektron alışverişini indükleyen hücreye potansiyel uygulanır. Akım, elektrotun yüzey alanıyla orantılı olduğundan, reaksiyonun hızı devreden geçen akımı ölçerek basit bir şekilde belirlenebilir.

Akım, Eşitlik 3,6'daki gibi ifade edilir burada Q yüzeyden geçen toplam yükü temsil etmektedir. Akım yoğunluğu Eşitlik 3.7'de olduğu gibi ifade edilir. Burada I akımı ve A, örneğin yüzey alanı temsil etmektedir [59,60].

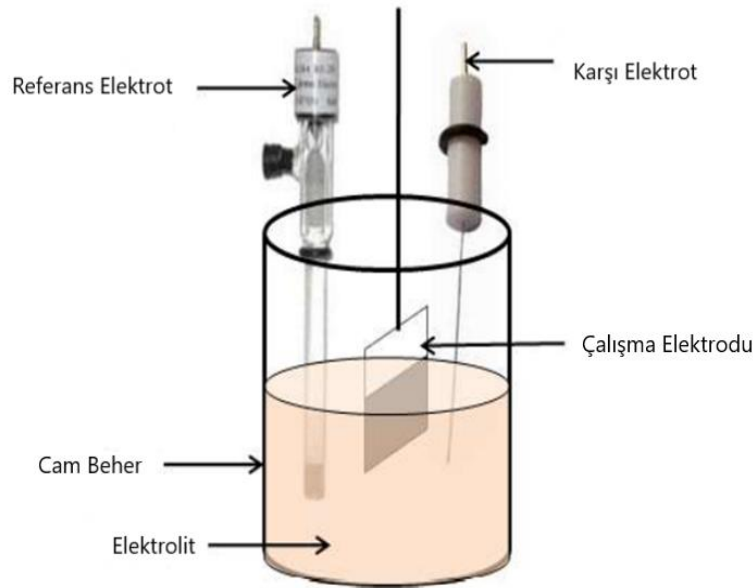
$$I = \frac{dQ}{dt} \quad (3.6)$$

$$J = \frac{I}{A} \quad (3.7)$$

Elektrokimyasal süreçleri analiz etmek için çeşitli elektrokimyasal analizler incelenmektedir. Yaygın olarak kullanılan elektrokimyasal yöntemler arasında çevrimsel voltammetri (CV), kronoamperometri (CA), kronopotansiyometri ölçümleri yer almaktadır. Bu tez kapsamında da dönüşümlü voltametri (CV), kronoamperometri (CA) ve teknikleri kullanılmıştır.

3.3.1. Çevrimsel Voltametri

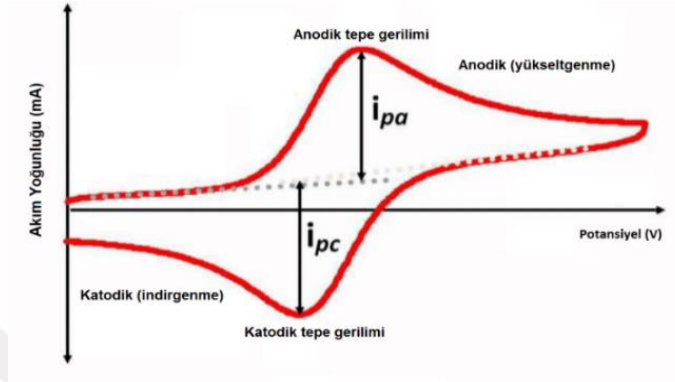
Çevrimsel voltametri (Cyclic voltammetry (CV)), elektrokimyasal süreçler boyunca meydana gelen indirgenme ve yükseltgenme reaksiyonlarını incelemek için kullanılan önemli, dinamik ve yaygın olarak kullanılan bir elektrokimyasal yöntemdir. Şekil 3,3'de üç elektrotlu bir elektrokimyasal hücrenin şematik gösterimi verilmiştir. Elektrokimyasal ölçümler söz konusu üç elektrod yönteminde genellikle bir sıvı veya jel elektrolit içerisinde bir referans elektrot, karşı elektrot ve çalışma elektrodu kullanılarak gerçekleştirilir. Çalışma elektroduna ölçümü yapılacak malzeme/film bağlanır. Referans elektroda uygulanan gerilim ölçüm boyunca sabit tutulur. Karşı elektrot ise uygulanan gerilimi güç kaynağından elektrolite aktarma işlevi görür. Elektrokimyasal ölçüm sırasında çalışma elektrodu ile referans elektrodu arasına zamanla değişen bir gerilim uygulanmaktadır. Uygulanan gerilime karşı çalışma elektrodundan geçen akım yoğunluğu ölçülmektedir. Bu ölçüm ile elde edilen eğri çevrimsel voltametri (CV) olarak adlandırılmaktadır [60,65].



Şekil 3.3. Elektrokimyasal hücre [60].

Çevrimsel voltametri, çalışan elektrotun potansiyelinin başlangıç potansiyeline geri dönmek için ters yönde yükseltildiği tersinir bir elektrokimyasal ölçümdür. Bu döngüler birçok kez tekrarlanabilir. Ölçümler, döngüsel akıma karşı uygulanan potansiyele karşı döngüsel akımın değişimini vermektedir. Uygulanan gerilim ilk önce başlangıç geriliminde tutulur.

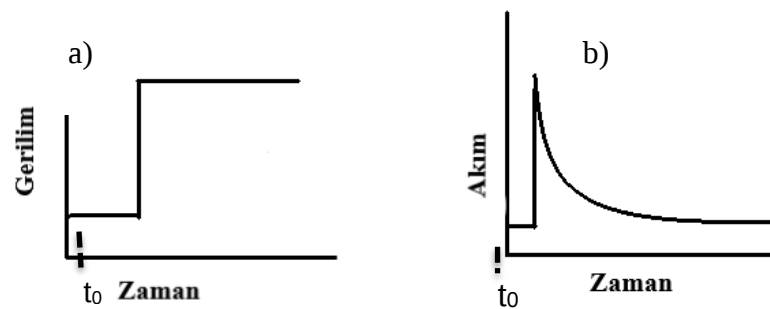
Gerilim belirli aralıklarla artırıldıkça indirgenmiş olan örnek yükseltgenir. Diğer bir süreçte gerilim tersine çevrilir ve daha önce yükseltgenmiş olan malzeme indirgenir. Şekil 3.4’de bu süreçlerdeki yükseltgenme ve indirgenme reaksiyonlarının gerçekleştiği noktalar tipik bir çevrimsel voltmetri eğrisinde gösterilmiştir [60, 61].



Şekil 3.4. İndirgenme ve yükseltgenme piklerinin görüldüğü çevrimsel voltmetri eğrisi [61].

3.3.2. Kronoamperometri

Kronoamperometri (CA), Şekil 3.5’de gösterildiği bir kare dalga potansiyelinin uygulandığı ve elektrot akımının zamanın bir fonksiyonu olarak ölçüldüğü ve örneğin elektrokimyasal aktivitesini, kararlılığını ve bir elektro aktif türün çözeltiden örnek yüzeyine doğru difüzyonunu ölçmek için kullanılan tekniktir [62, 63].

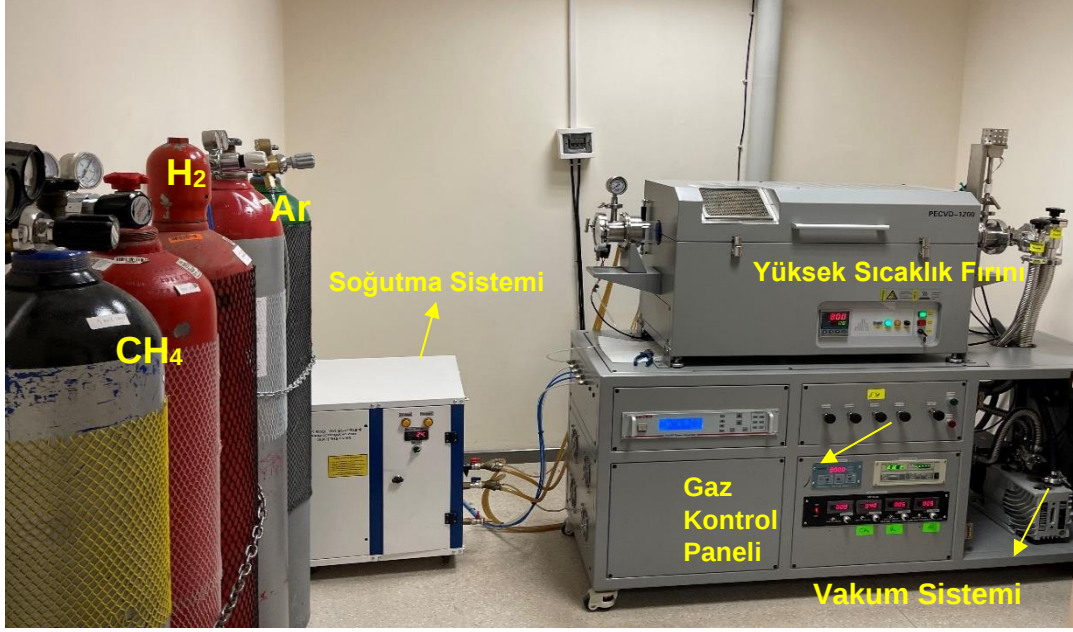


Şekil 3.5. a) Kronoamperometri ölçümü için hücreye uygulanan potansiyelinin zamana bağlı değişimi b) Okunan zamana bağlı akım değerinin değişimi.

Ölçümler kapsamında CA eğrileri olarak adlandırılan eğriler belirlenen sürelerle negatif ve pozitif potansiyel fark örnekler üzerine uygulanarak zamana bağlı akım değerleri okunur. Örnek yüzeyine giren ve çıkan yük miktarları, anodik ve katodik akım değerleri CA eğrileri altında kalan alanlar hesaplanarak elde edilir [65, 66].

4. DENEYSEL ÇALIŞMALAR

Bu tez kapsamında Hacettepe Üniversitesi Fizik Mühendisliği Bölümü İnce Film Hazırlama ve Karakterizasyon Laboratuvarı'nda bulunan şekil 4.1'de gösterilen Plazma Destekli Kimyasal Buhar Biriktirme sistemi kullanılarak çok katlı grafen katmanları sentezlenmiştir. Söz konusu grafen katmanlardan oluşturulan kaplamalara grafen filmler adı verilmektedir.



Şekil 4.1. Grafen filmlerin sentezi için kullanılan PDKBB sistemi

Grafen filmlerin üretiminde kullanılan alttaşın karbon çözünürlüğü, erime sıcaklığı, pürüzlülüğü gibi özellikleri, sistemin hangi sıcaklık aralığında çalıştığı, belirlenen sıcaklığa ısıtma hızı, tavlama süresi, filmin sentezlenmesi sırasında quartz tüpe verilen öncü ve taşıyıcı gazların akış miktarları ve bu gazların birbiriyle olan oranları, gazların belirlenen akış hızlarında sisteme verilme süreleri, vakum seviyesi, grafen filmleri oluşturmak için biriktirme süresi, büyütme süresi sonrasında sistemin ve metal alttaşın soğutulma hızı gibi çok fazla parametre grafen filmlerin katman sayısına ve kalitesine etki etmektedir [36]. Tüm bu parametrelerin doğrultusunda, geniş yüzey alanlarına sahip, iyi kalitede grafen filmlerin sentezlenebilmesi için öncelikle sentez parametrelerinin optimize edilmesi gereklidir. Öncelikle ilk çalışmalarda sistem grafen katmanlarının elde edilmesi için sentez parametrelerinin belirlenmesi için çalışmalar yapılmıştır. Bu süreç sonunda birçok açıdan iyi olan parametreler belirlenerek grafen sentezi için iki ayrı teknik kullanılmıştır.

Bunlardan birincisi olan kimyasal buhar biriktirme yöntemi ile sentezlenen filmlerde büyütme süresinin etkisi ve metan gaz (CH_4) akış miktarının etkileri incelenmiştir. İkinci aşamada diğer sentezleme tekniği olan plazma destekli kimyasal buhar biriktirme (PDKBB) tekniği ile grafen filmler sentezlenmiş ve büyütme süresinin, büyütme esnasında uygulanan gücün film özellikleri üzerindeki değişimi incelenmiştir. Şekil 4.3’de PDKBB sistemi gösterilmiştir.



Şekil 4.2.Sentez sırasında PDKBB sisteminin bir görüntüsü.

Tüm sentez süreçleri sonrasında büyütülen grafen filmler polimetilmetakrilat (PMMA) yöntemi ile cam ve pet alttaşlar üzerine transfer edilmiştir. Sentezlenen grafen örneklerin optik geçirgenlik ve yansıtma spektrumları 350–1100 nm dalga boyu arasında Aquila marka nkd-8000 spektrofotometre ile ölçümleri alınmıştır. Grafen filmlerin elektrokimyasal ve optik özelliklerinin incelenmek için CHI marka elektrokimyasal analizör ve Hitachi Diode Array U-0080D spektrofotometre kullanılmıştır. Grafen filmlerin ölçümleri 0,1 M LiClO_4/PC çözeltisi kullanılarak üç elektrot sistemi kurularak örneklerin çevrimsel voltametri (CV) ve kronoamperometri (CA) ölçümleri elde edilmiştir. Ölçümlerde referans elektrot olarak Ag/AgCl ve karşıt elektrot olarak platin (Pt) elektrot kullanılmıştır. CV ölçümleri için - 0,5 V ve +0,5 V gerilim aralığından başlanarak ardışık olarak 0,5 V artırılarak -2,5 V ve +2,5 V aralığına kadar artırılmıştır ve her bir gerilim değeri için 10, 20, 30, 40 ve 50 $\text{mV} \cdot \text{s}^{-1}$ tarama hızlarında ölçümler tekrarlanmıştır. Çevrimsel voltametri eğrilerinde yatay eksen Ag/AgCl elektrotu referans alındığında uygulanan gerilimi, dikey eksen ise akım yoğunluğunu ifade etmektedir.

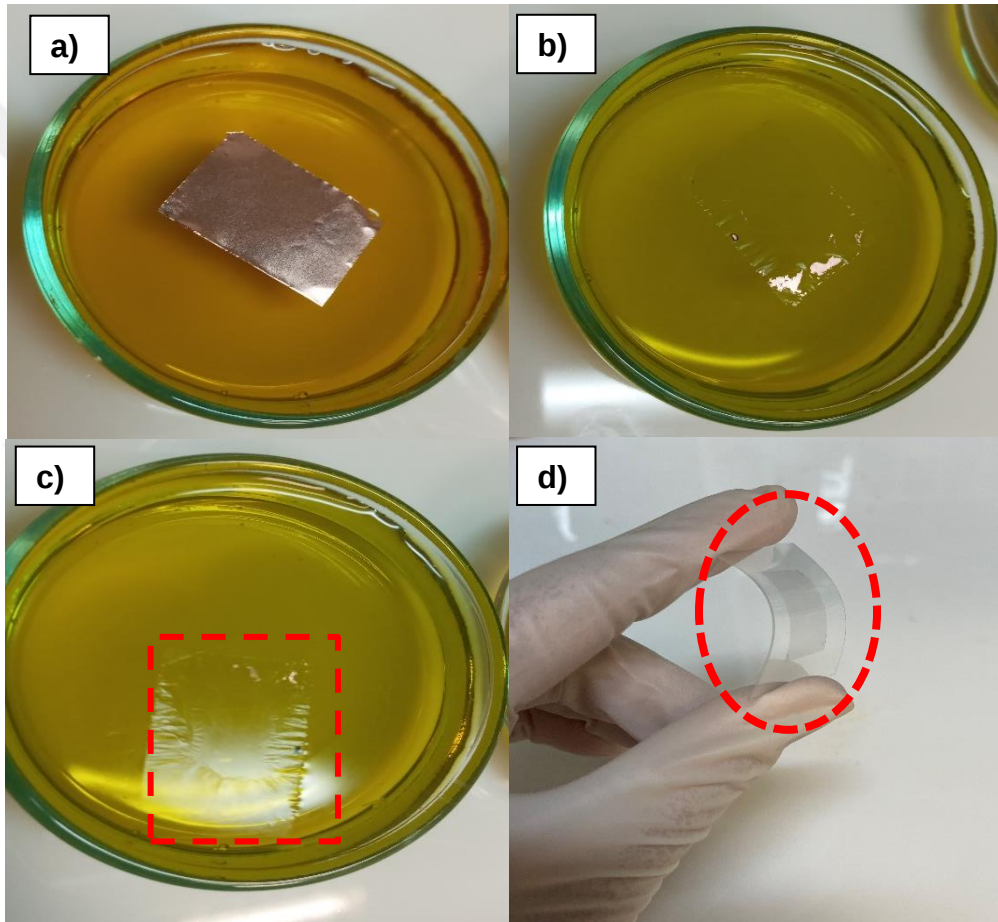
Akım yoğunluğunun uygulanan potansiyel farka göre değişimi CV eğrisi, zamana karşı akım yoğunluğunun değişimi ise CA eğrisi olarak adlandırılmaktadır. Sentezlenen grafen filmlerin Raman spektrumları Bilkent Ulusal Nanoteknoloji Araştırma Merkezi (UNAM) bünyesinde bulunan Raman spektrometre kullanarak ölçülmüştür.

4.1. Grafen Sentezi

Bu tez çalışmaları kapsamında plazma destekli kimyasal buhar biriktirme sistemi kullanılarak grafen katmanların sentezi gerçekleştirilmiştir. Grafen sentezi için kalınlığı Cu folyolar kullanılmıştır ve alıtış olarak kullanılan bakır folyoların kalınlığı 20 µm olup, $2 \times 2 \text{ cm}^2$ boyutlarında kesilerek sisteme yerleştirilmiştir. Kuvars tüpün basıncı 2×10^{-3} Pa temel basıncına düşürülmüştür. Karbon kaynağı olarak metan (CH_4) gazı ve yardımcı gaz olarak da Ar ve H_2 gazları kullanılmıştır. Sentez işleminden önce deneylere ilk olarak gaz temizliği işlemi ile başlanmıştır. Gaz temizliği sürecinin temel amacı; deney ortamını kirliliklerden ve su buharından arındırarak daha kaliteli filmlerin sentezlenmesine yardımcı olmaktır. Gaz temizliği sürecin de ilk önce sisteme üç dakika boyunca argon gazı verilmiştir ve gazın ortama akış hızı belirlenen değere ayarlanarak, gaz akış sistemindeki basınç göstergeleri kontrol edilerek verilen gaz ile doğru orantılı olarak değiştiği kontrol edilerek deney öncesinde sistemde herhangi bir hata olup olmadığından emin olunmuştur. Ardından aynı işlemler H_2 ve CH_4 gazları içinde tekrarlanmıştır. Sonraki aşamada sistemin ısıtma, tavlama ve büyütme sıcaklıklarının değerleri, tavlama ve büyütmenin olacağı sıcaklıkta kalması gereken süreler ve değerler programlanmıştır. Tüp fırının sıcaklığı her on dakikada on derece artırılarak istenilen sıcaklığa ulaşacak ve bu sıcaklık, sistemdeki sıcaklık kontrolü vasıtasıyla bu sıcaklığa ulaşıldığında sabit kalacak şekilde sisteme veri girişi yapılmıştır. Yardımcı gaz olarak kullanılan H_2 ve Ar gazları ısıtma, tavlama, büyütme ve soğutma süreçlerinin hepsinde mevcut olmakla birlikte, karbon kaynağı olarak kullanılan CH_4 gazı ise sadece büyütme esnasında sisteme verilmektedir. Sentez tamamlandıktan sonra verilmiştir. Sentez işlemi tamamlandıktan sonra sistem soğumaya bırakılarak işlemler tamamlanmıştır.

4.2. Grafen Transferi

Grafen üretimi için kimyasal buhar biriktirme veya plazma destekli kimyasal buhar biriktirme yöntemi kullanıldıktan sonra bakır folyo üzerine grafen filmlerin transfer edilmesi gerekmektedir. Bu tez kapsamında bakır folyolar üzerin de sentezlenen grafen katmanların polimetilmetakrilat (PMMA) aracılı yöntemle gerçekleştirilmiştir. Bu süreçteki esas amaç grafen filmlerin en az hasarla Si/SiO₂, cam ve polietilen tereftalat (PET) alttaşlar üzerine transferinin yapılmasıdır. Şekil 4.3'de FeCl₃ çözeltisine bırakılan grafen kaplı bakır folyolar ve bir süre sonra bakırın çözünmüş hali ile PET alttaşa transfer edilmiş bir grafen film gösterilmiştir.



Şekil 4.3. Grafen transfer sürecindeki aşamalar a) grafen kaplı bakır folyonun FeCl₃ çözeltisi içerisindeki ilk hali, b) bakır folyonun FeCl₃ çözeltisinde bakır yüzeyin büyük bir kısmının çözünmüş hali, c) bakır folyonun çözündükten sonra geriye kalan PMMA kaplı grafen film, d) bükülebilir PET alttaş üzerindeki grafen film.

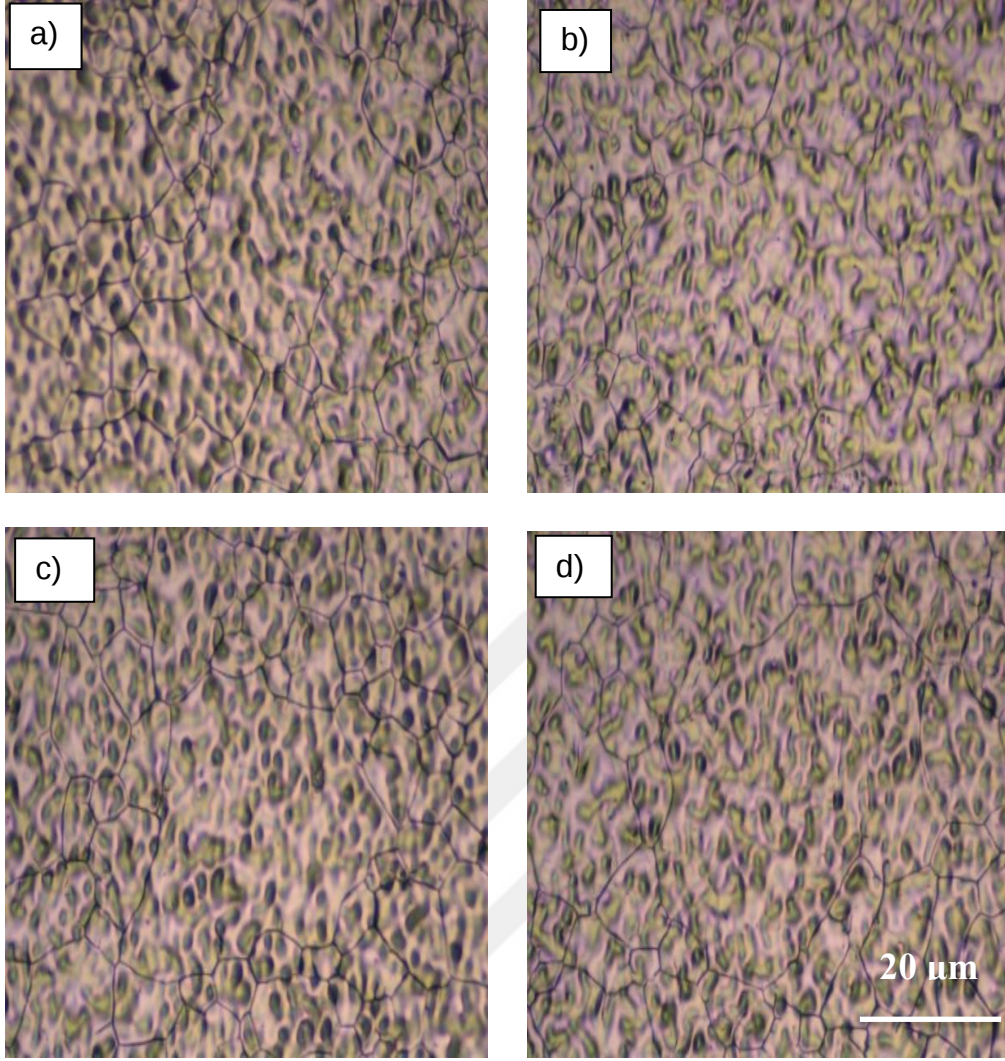
Transfer sürecinin ilk aşamasında üzerine grafen büyütülmüş bakır folyolar 3000 dev/dk hızla 30 s boyunca damlatılan PMMA çözeltisiyle spin kaplama (spin coating) tekniği kullanılarak kaplanmıştır. Ardından kaplanan örnekler kurutulmaya bırakılmıştır. Yeterince kuruyan örnekler grafen altındaki bakır folyonun çözünmesi için laboratuvarında hazırlanan demir klorür (FeCl_3) çözeltisi içerisine bırakılmıştır. Bakırın çözünme hızı örneğin büyüklüğüne göre değişiklik göstermektedir. Bakır alttaş tamamen çözündükten sonra PMMA kaplı grafen filmler FeCl_3 çözeltisinin kalıntılarını arındırılmak amacıyla örneğin boyutuna uygun temiz bir cam yardımıyla çözelti içerisinden alınarak distile su ile yıkanmıştır. Örnekler yaklaşık beş dakika boyunca distile su içerisinde bekletilmiştir. Ardından PMMA kaplı grafen filmlerin altında kalan oksitlenmiş metal kirlilikleri temizlemek amacıyla yüzde beşlik bir oranda hazırlanan HCl asit çözeltisi içerisine yine temiz bir cam üzerine alınan örnekler bırakılmıştır. Burada yaklaşık 5 dakika beklet örnekler tekrar ildikten sonra, örneklerin HCl asit çözeltisinden tamamıyla temizlenmesi için örnekler tekrar temiz distile su içerisine bırakılmıştır. Distile su içerisinden hangi yüzeye transfer edilmek isteniyorsa o yüzey üzerine alınarak transfer işlemi tamamlanmıştır. Transfer edilen filmler ile alttaş arasındaki su molekülleri ortadan kalkması için transfer edilmiş alttaşa uygun bir sıcaklıkta örnekler ısıtılmıştır. Grafen filmlerin üzerinden PMMA çözeltisini arındırmak için transfer edilen örnekler aseton içerisinde temizleninceye kadar bekletilmiştir. Örnekler aseton içerisinden çıkarıldıktan sonra distile su ile yıkanarak transfer süreci tamamlanmıştır.

4.2.1. Kimyasal Buhar Biriktirme Yöntemi ile Sentezlenen Grafen Filmlerin Özellikleri Üzerinde Büyütme Süresinin Etkisi

Tez çalışmalarının bu bölümün de grafen örneklerin sentez sürecinin optimizasyonu için deneysel çalışmalar yapılmıştır. Yapılan ön deneyler gaz akış miktarları, tavlama sıcaklığı, tavlama süresi ve büyütme parametrelerinin optimizasyonunu sağlamak için deneyler yapılmıştır. Yapılan bu çalışmaların sonuçları incelenerek en iyi sonuçları veren deney parametrelerinin bir kombinasyonu oluşturulmuştur. Bu parametreler kullanılarak grafen filmler üzerinde büyütme süresinin etkilerini incelemek için farklı büyütme sürelerinde deneyler gerçekleştirilmiştir. Bu kapsamdaki grafen sentez deneyleri için Argon (Ar), Hidrojen (H₂) ve Metan (CH₄) gazları için dakika başına santimetre küp gaz akış oranları sırasıyla 80, 40 ve 5 sccm (standard cubic centimeters per minute) olarak belirlenmiştir. Deneyler 1000 °C’de gerçekleştirilmiştir. Örneklerin büyüme süreleri ise 20, 10, 5 ve 2 dakika olmak üzere deney gerçekleştirilmiştir. Tablo 4.1’de örneklerin sentez parametreleri verilmiştir.

Tablo 4.1. KBB tekniği ile hazırlanan örneklerin büyütme parametreleri.

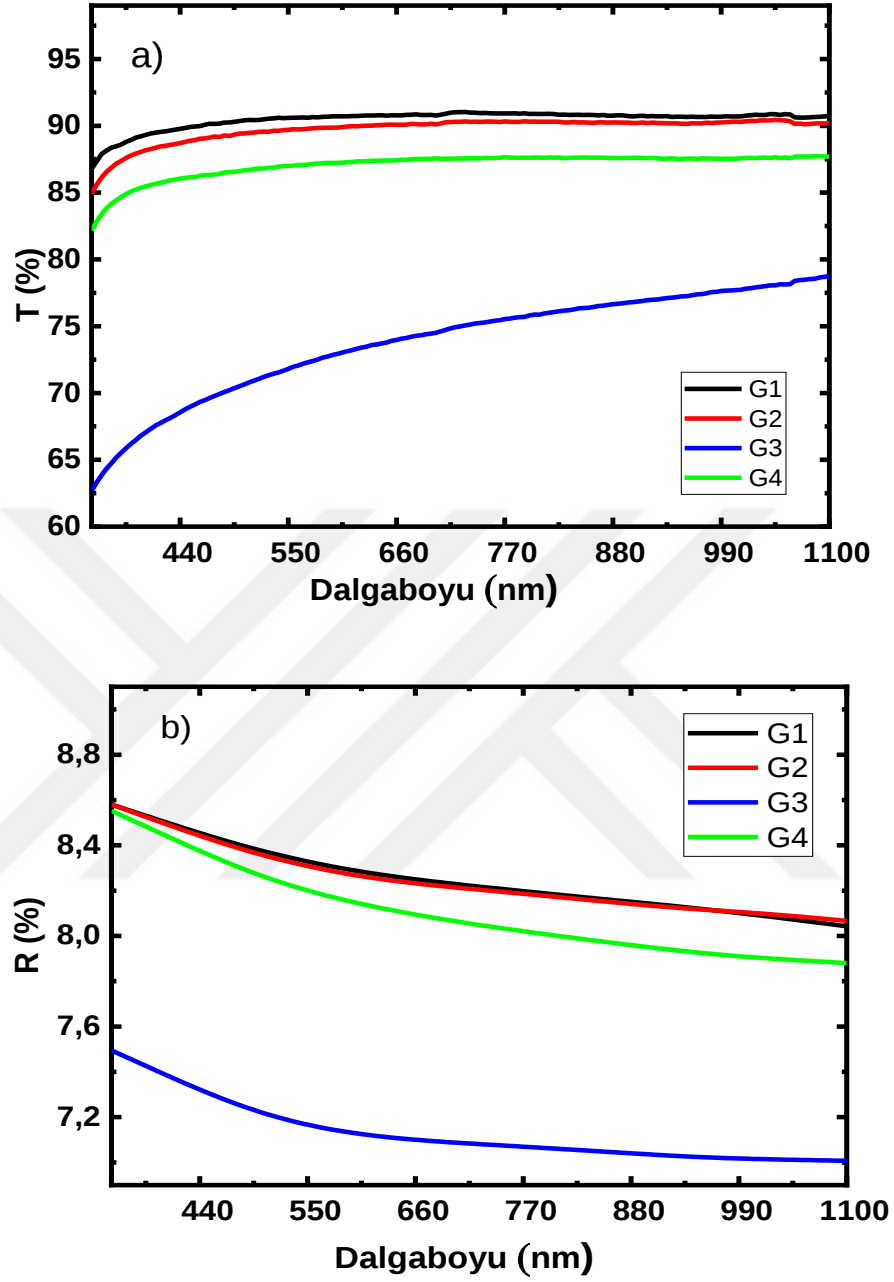
Örnek Adı	Ar (sccm)	H ₂ (sccm)	CH ₄ (sccm)	Tavlama Süresi (dk.)	Büyütme Süresi (dk.)
G1	80	40	5	35	20
G2	80	40	5	35	10
G3	80	40	5	35	5
G4	80	40	5	35	2



Şekil 4.4. KBB tekniği ile sentezlenen a) G1, b) G2, c) G3 ve d) G4 nolu örneklerden alınan optik mikroskop görüntüleri.

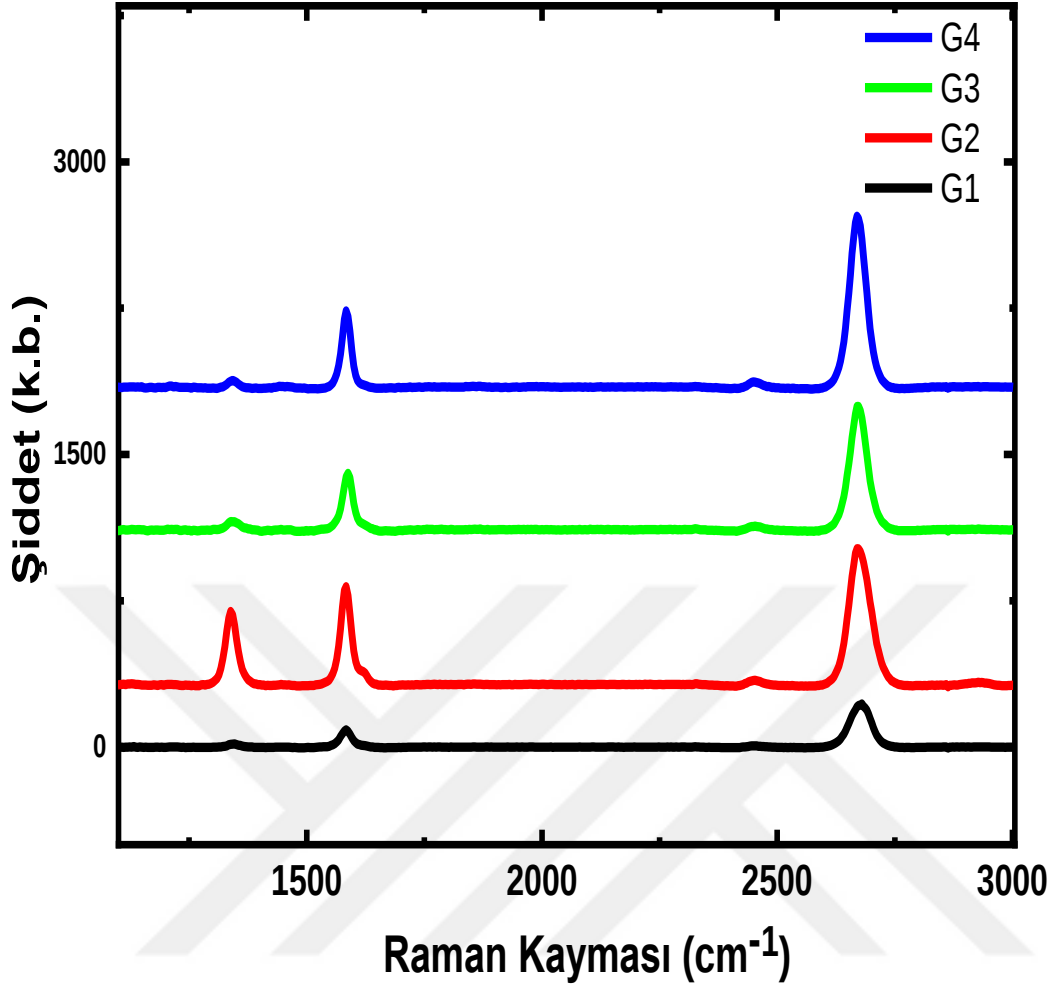
Optik mikroskop görüntüleri incelendiğinde bakır folyo üzerinde oluşan farklı büyüklük ve yönelimlerde tanecikler bulunmaktadır. Oluşan mikro grain yapıların sınırları belirgin bir şekilde görülmektedir.

Şekil 4.5’de KBB tekniği ile farklı sürelerde büyütmüş örneklerin dalga boyuna bağlı optik geçirgenlikleri verilmiştir. Şekiller incelendiğinde G1, G2, G3 ve G4 nolu numunelerin 550 nm deki optik geçirgenlik yüzdeleri sırasıyla % 90,6, % 89,7, % 86,9 ve % 71,99’dur. Bu sonuçlar doğrultusunda en fazla optik geçirgenlik yirmi dakikalık büyütme süresi ile gerçekleştirilen G1 örneğine ve en düşük optik geçirgenlik ise G3 nolu örneğe aittir.



Şekil 4.5. a) G1, G2, G3 ve G4 nolu örneklerin optik geçirgenlik ve b) optik yansıtma spektrumları.

Aynı örneklerin Raman spektrumları incelenmiştir. Şekil 4.6’da tüm örneklerde grafenin Raman spektrumunda sahip olması beklenen D, G ve 2D olarak adlandırılan üç ana pik gözlemlenmiştir.



Şekil 4.6. G1, G2, G3 ve G4 nolu örneklerin Raman spektrumları.

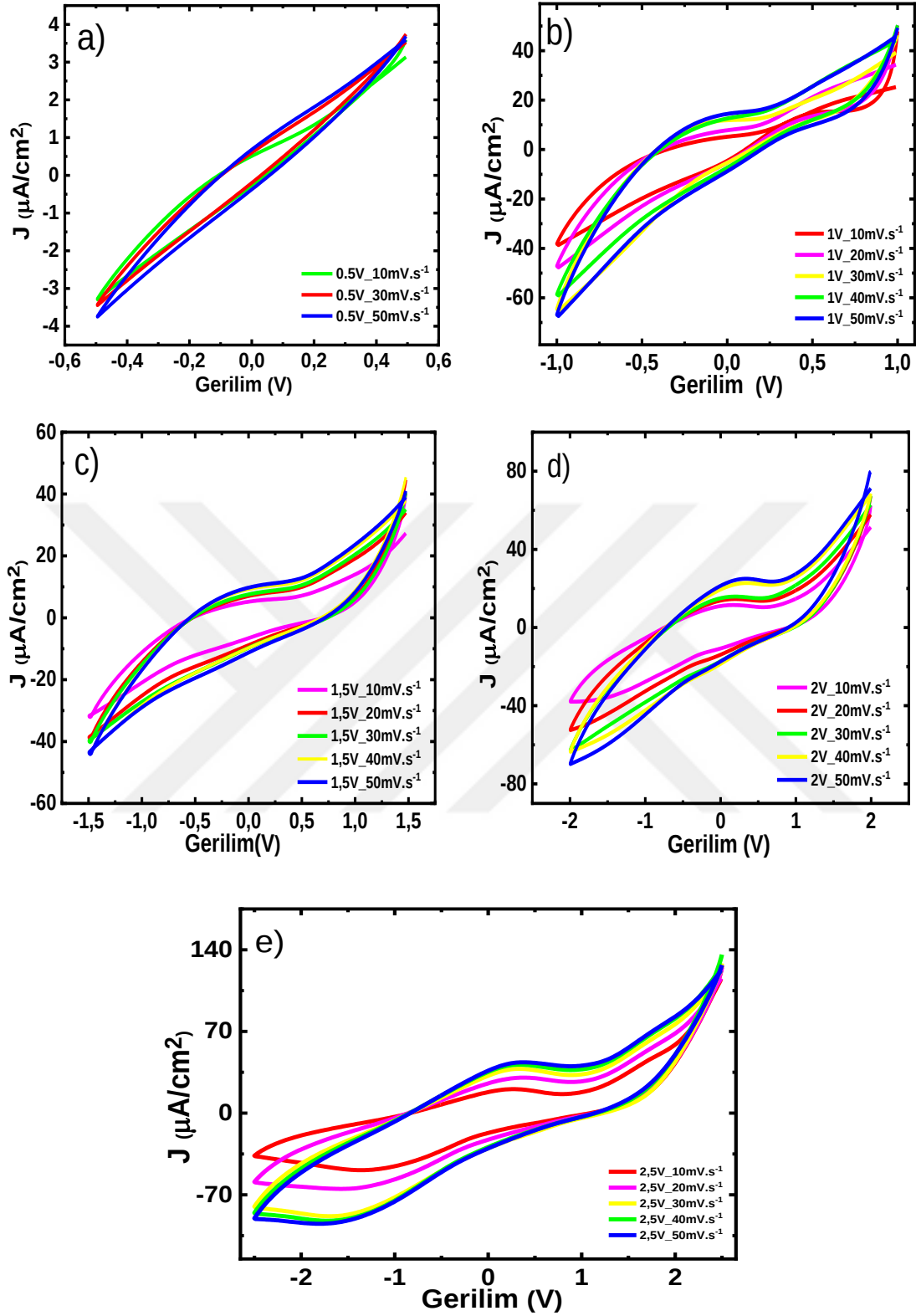
Tüm örneklerin Raman spektrumları incelendiğinde, her örneğin kendine özgü bir Raman spektrumuna sahip olduğu görülmektedir. G1, G2, G3 ve G4 nolu örneklerin 2D piklerinin konumu 2676,44, 2675,40, 2672,47 ve 2669,53 cm^{-1} 'dir. Tek katmanlı grafen için bu pik merkezinin konumu 2679 cm^{-1} civarındadır. Bu konum grafenin katman sayısı arttıkça sağa doğru kayarak artar [52, 53]. Metan gazının akış hızı azaldıkça 2D pik merkezinin konumu küçülerek sola doğru kaydığı yani tabaka sayısının azalmış olabileceği tespit edilmiştir. Tek katmanlı grafen için G pikinin konumu yaklaşık olarak 1587 cm^{-1} 'dir ve katman sayısı arttıkça G pikinin konumu sola doğru artmaktadır. G3 örneğinin G piki diğer örneklerden farklıdır ve bu örnek için G pikinin konumu 1587,17 cm^{-1} olarak tespit edilmiştir. Geriye kalan diğer örneklerin G piki ise 1583 cm^{-1} civarında olduğu hesaplanmıştır.

Tablo 4.2’de grafen örneklerin Raman spektrumlarındaki farklı oranlarda ve pozisyonlarda olan piklerinin bazı karakteristik özellikleri verilmiştir.

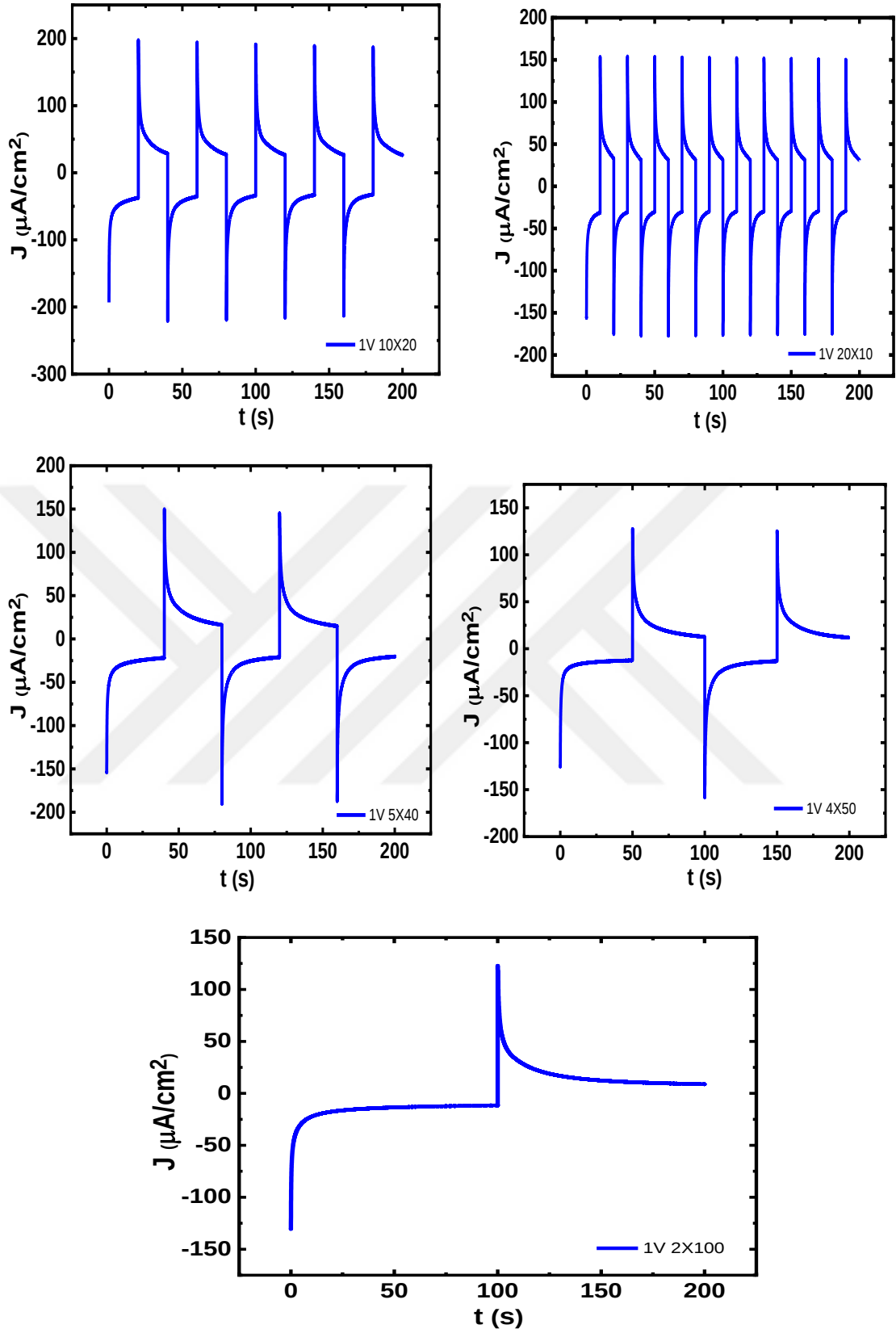
Tablo 4.2. G1, G2, G3 ve G4 nolu örneklerin Raman spektrumlarından elde edilen bilgiler.

Örnek Adı	Pik Merkezi (cm ⁻¹)	Maksimum Şiddet (k.b.)	FWHM (cm ⁻¹)	I _D / I _G	I _{2D} / I _G
G1	1344,60	15,42	28,88	0,18	2,51
	1583,45	88,81	32,58		
	2676,44	221,62	54,90		
G2	1339,60	362,02	30,80	0,72	1,37
	1583,39	501,43	29,30		
	2675,40	689,64	54,47		
G3	1344,30	44,29	34,41	0,16	2,10
	1587,17	288,94	28,19		
	2672,47	608,06	44,74		
G4	1342,52	36,73	24,49	0,10	2,24
	1583,88	390,47	42,88		
	2669,53	875,35	24,15		

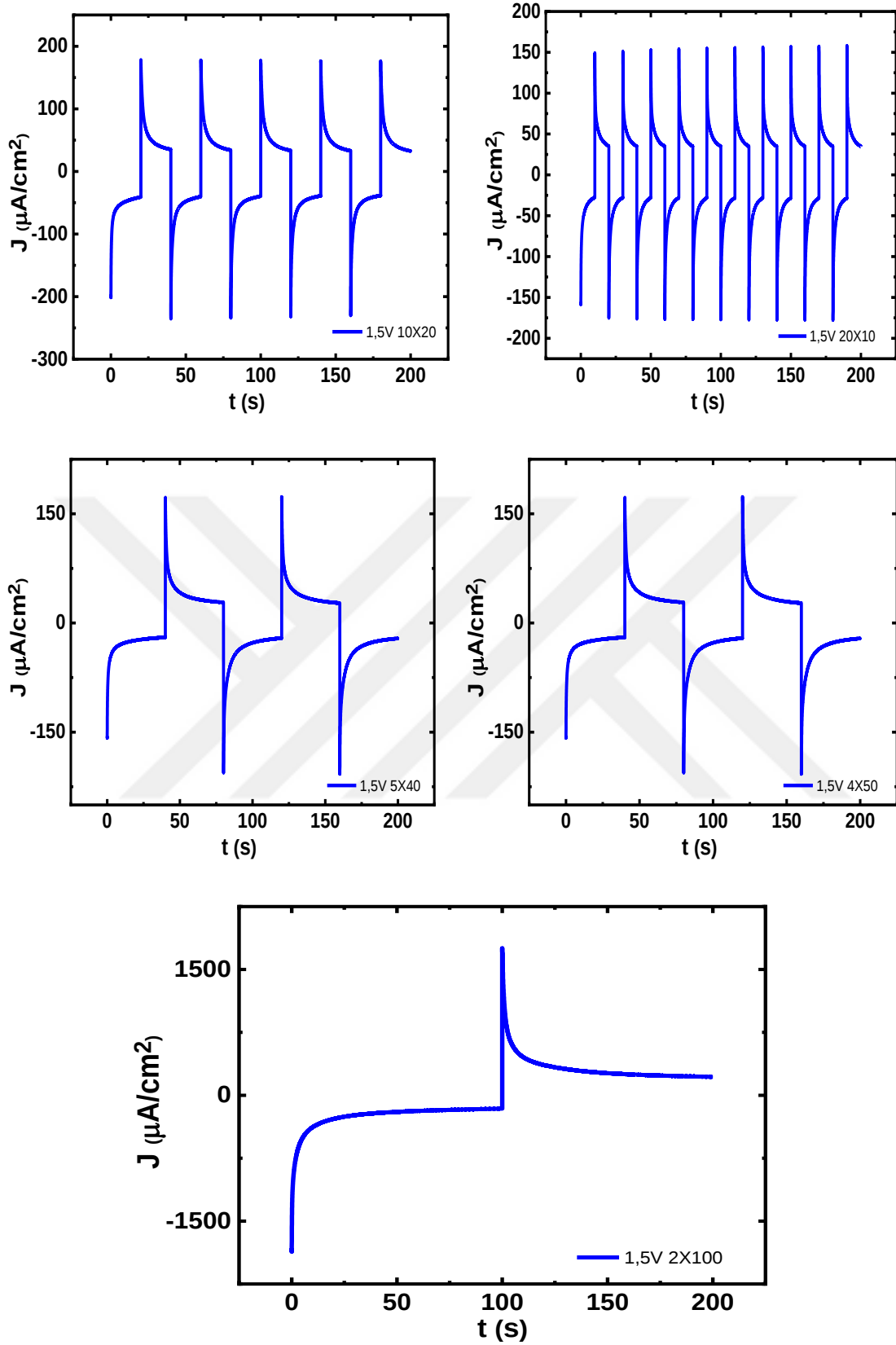
Örneklerin bu bilgiler ışığında hesapları yapıldığında G1, G4 örneklerinin yaklaşık olarak 3 veya 4 katmanlı, G2 örneğinin 2 veya 3 katmanlı, G3 örneğinin 1 veya 2 katmanlı olduğu değerlendirilmiştir.



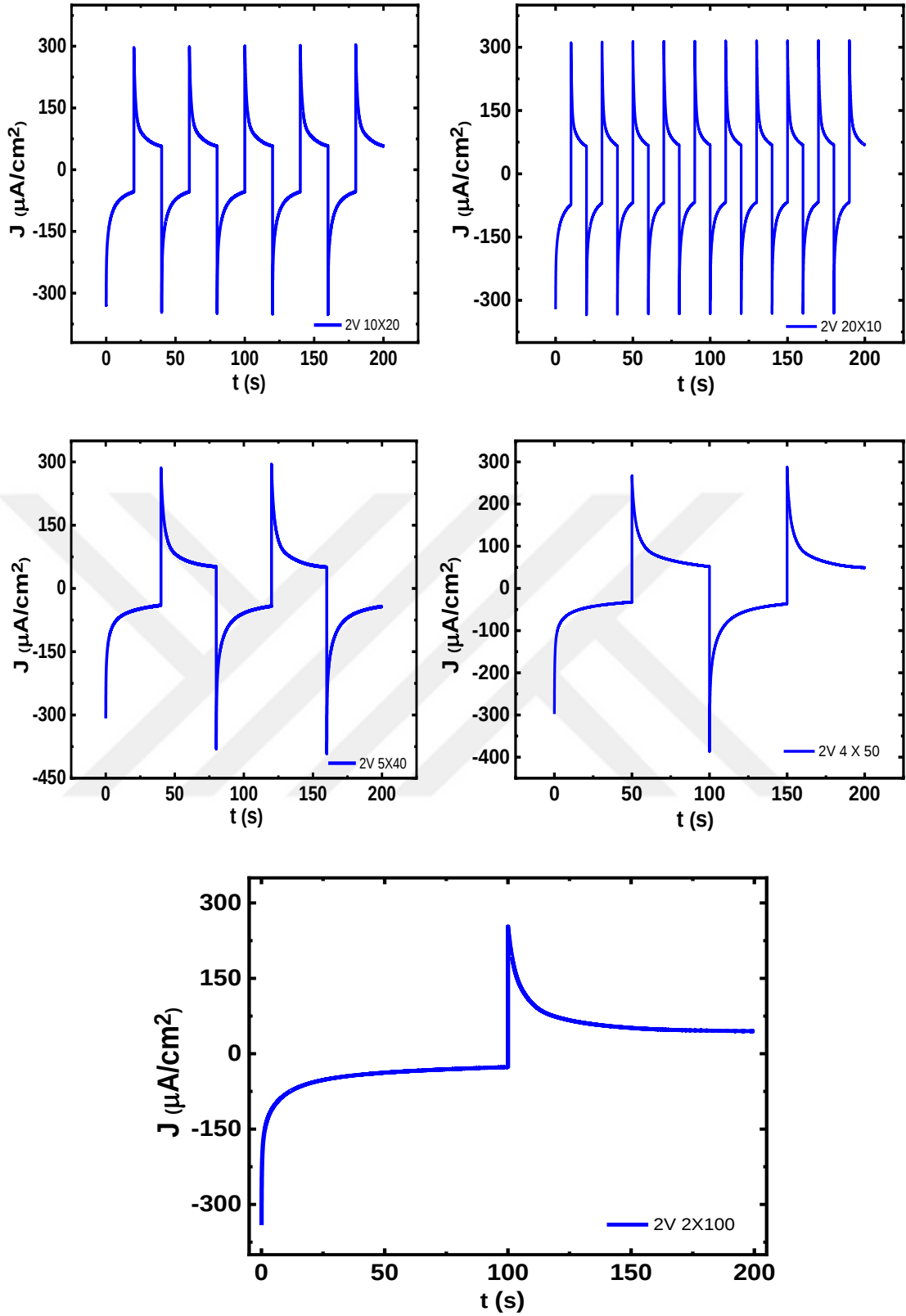
Şekil 4.7. Cam alttaş üzerine transfer edilen G1 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 $\text{mV} \cdot \text{s}^{-1}$ tarama hızlarında a) +0,5 V ile -0,5 V aralığında b) +1 V ile -1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.



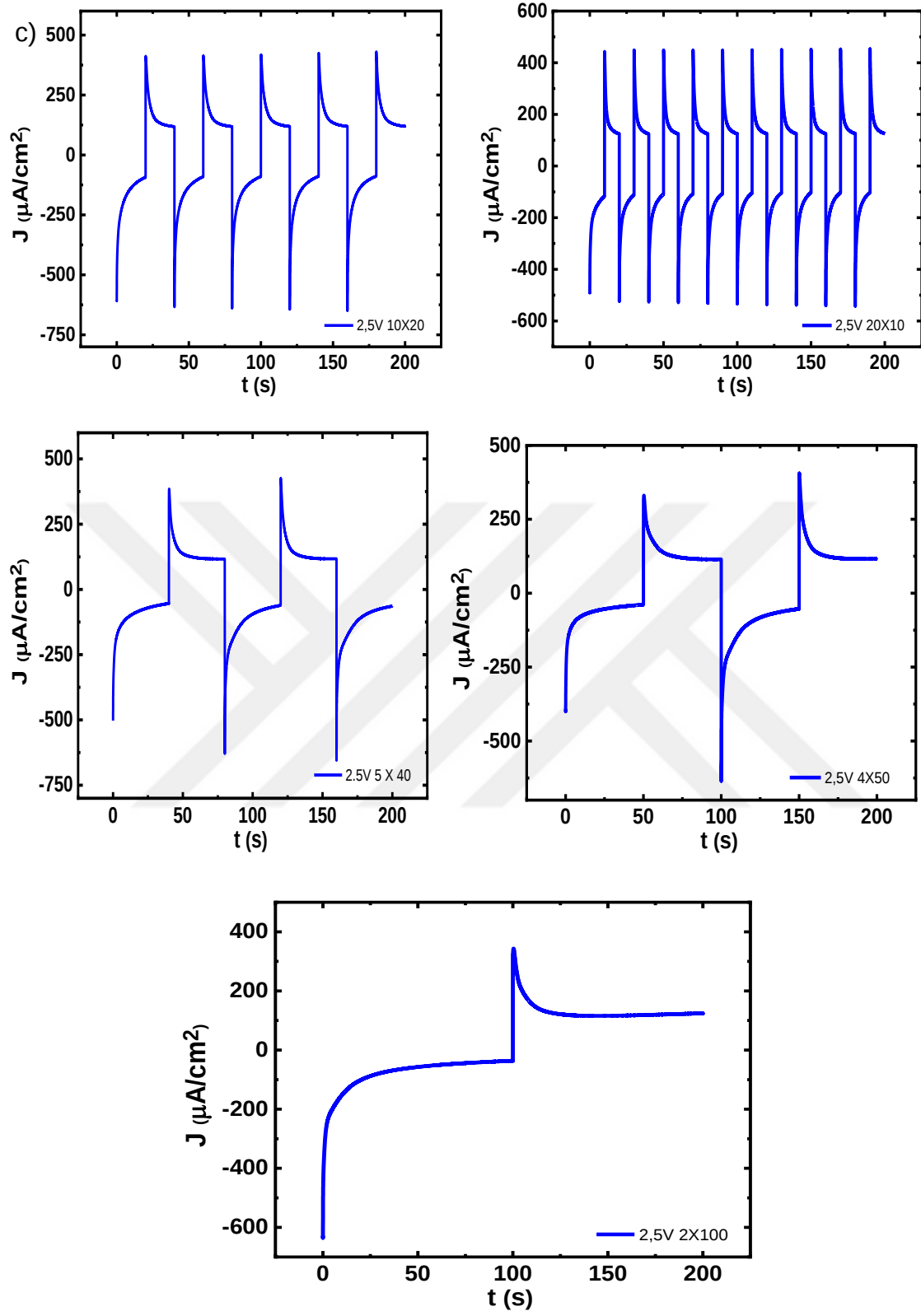
Şekil 4.8. G1 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.9. G1 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.10. G1 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.11. G1 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.

KBB yöntemi ile hazırlanmış G1 nolu örneğin uygulama gerilimi $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 30, 40, ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarından elde edilen CV eğrilerinden maksimum katodik (I_c) ve anodik (I_A) akım yoğunluğu değerleri, örneğin yüzeyine giren (Q_c) ve çıkan (Q_A), yük miktarları hesaplanmıştır. Tablo 4.3’de hesaplanan bu değerler verilmiştir.

Tablo 4.3. G1 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	Tarama Hızı (mV.s^{-1})	Q_A ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	Q_c ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	I_c ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)	I_A ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)
$\pm 0,5$	10	10,9	34,0	3,29	3,59
	30	9,05	10,01	3,45	3,74
	50	6,2	6,86	3,75	3,68
± 1	10	298	1287	38,64	47,87
	20	354,8	762	47,70	50,30
	30	273	709,6	65,23	42,79
	40	324,5	461,7	59,04	50,28
	50	308,6	438	67,39	49,25
$\pm 1,5$	10	1013,84	1551,44	32,08	42,24
	20	736,15	962,11	39,05	44,62
	30	572,69	712,91	40,22	40,40
	40	454,38	548,92	45,32	45,43
	50	363,50	439,13	44,08	40,99
± 2	10	400	380	37,94	62,38
	20	150	200	52,48	67,29
	30	126	166,6	62,91	67,55
	40	122,5	142,5	63,61	68,63
	50	94	118,2	69,88	79,8
$\pm 2,5$	10	5293	8154	48,88	128,48
	20	3850	5250	64,92	124,72
	30	3300	4500	88,4	128,48
	40	2522	3460	92,24	135,84
	50	2138	2788	94,8	126,85

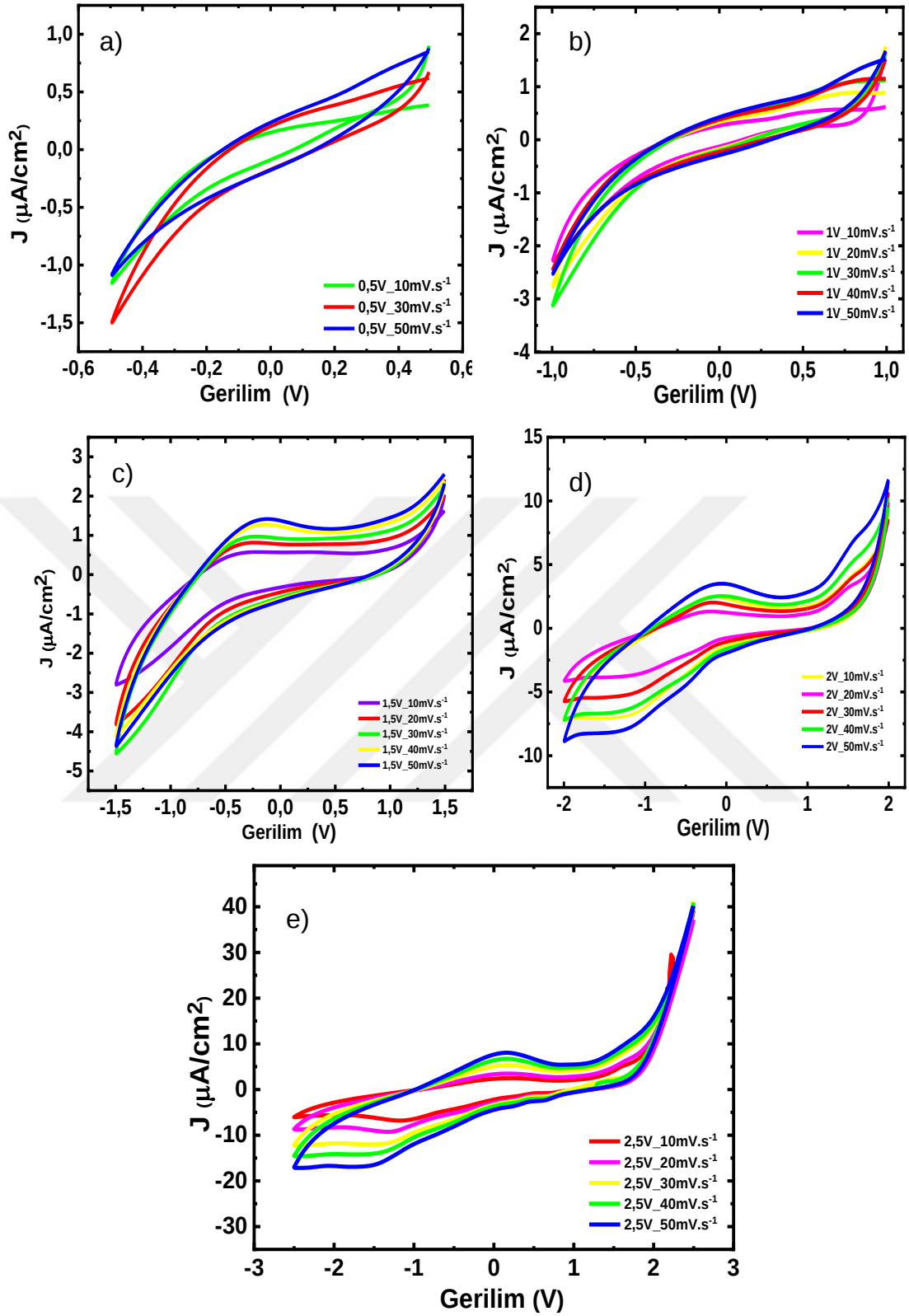
G1 nolu örneğin $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V uygulanan potansiyel farklar ile 20 ve 100 saniyelik pulslarla toplamda 200 saniye boyunca ölçülen CA eğrilerinden film yüzeyine giren (ΔQ_C) ve çıkan (ΔQ_A) yük miktarları hesaplandı. Tablo 4.4.'de bu hesaplanan değerler verilmektedir.

Tablo 4.4. G1 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

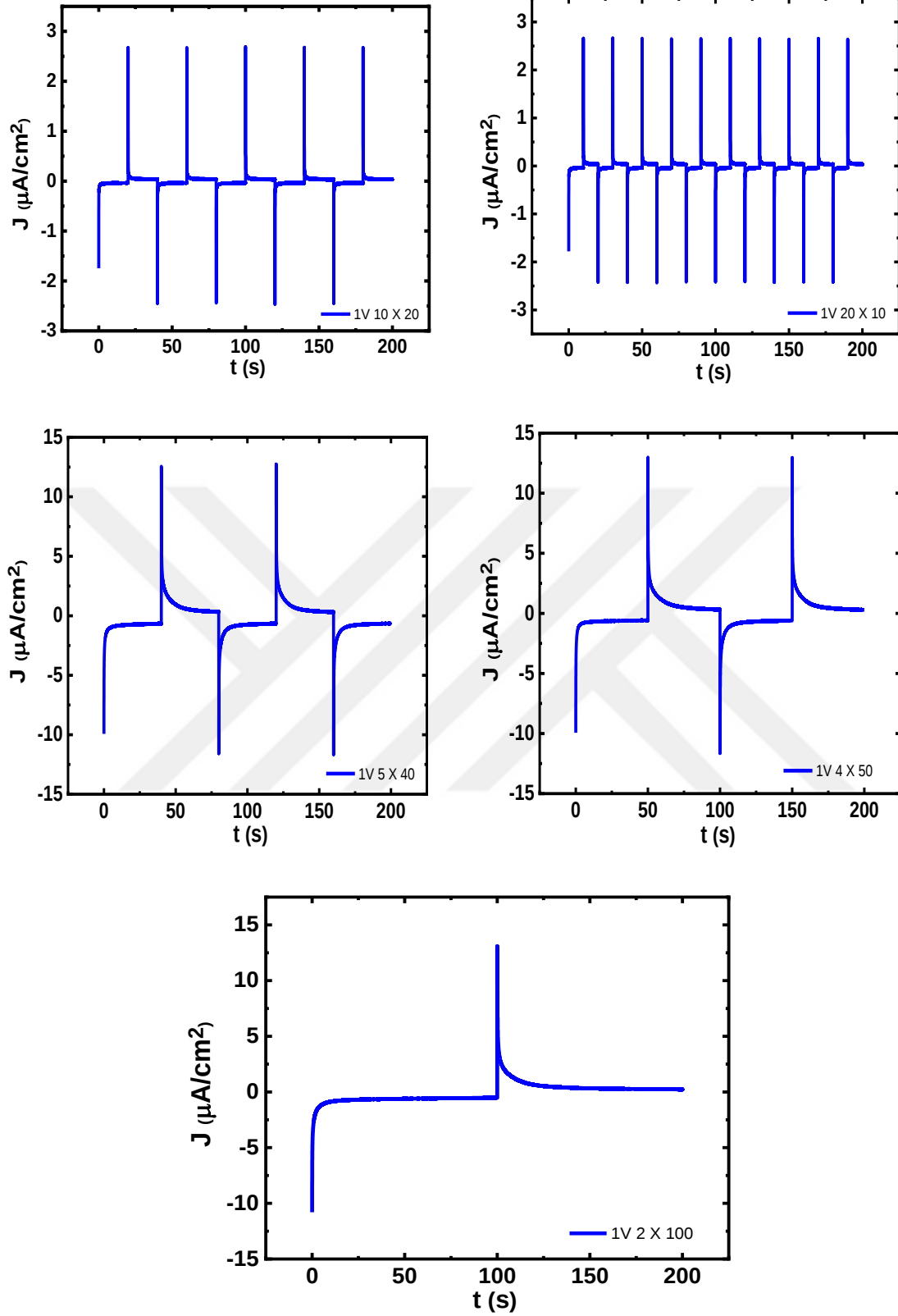
Gerilim (V)	$\Delta Q_C(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_C(\mu C/cm^2)$ (2X100)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (2X100)
± 1	1004,90	915,79	1609,89	1714,01
$\pm 1,5$	1150,17	1043,07	2483,74	3169,02
± 2	1768,37	1761,85	4767,36	6439,21
$\pm 2,5$	3175,66	3169,93	7788,23	1235,25

G1 nolu örnek üzerine uygulanan tüm gerilim aralıkları için ölçülen CV eğrileri incelendiğinde, tarama hızı arttırıldıkça CV eğrilerinin altında kalan alanlar ile katodik ve anodik tepe akımı değerlerinin de arttığı görülmektedir. Ayrıca uygulanan gerilimin ve tarama hızlarının artmasıyla maksimum anodik ve katodik akım piklerinin de arttığı gözlemlenmektedir. Ölçümün alındığı $-2,5$ V ile $+2,5$ V gerilim arasında anodik maksimum akım değerlerinin katodik akım değerlerinden belirgin bir şekilde büyük olduğu görülmektedir.

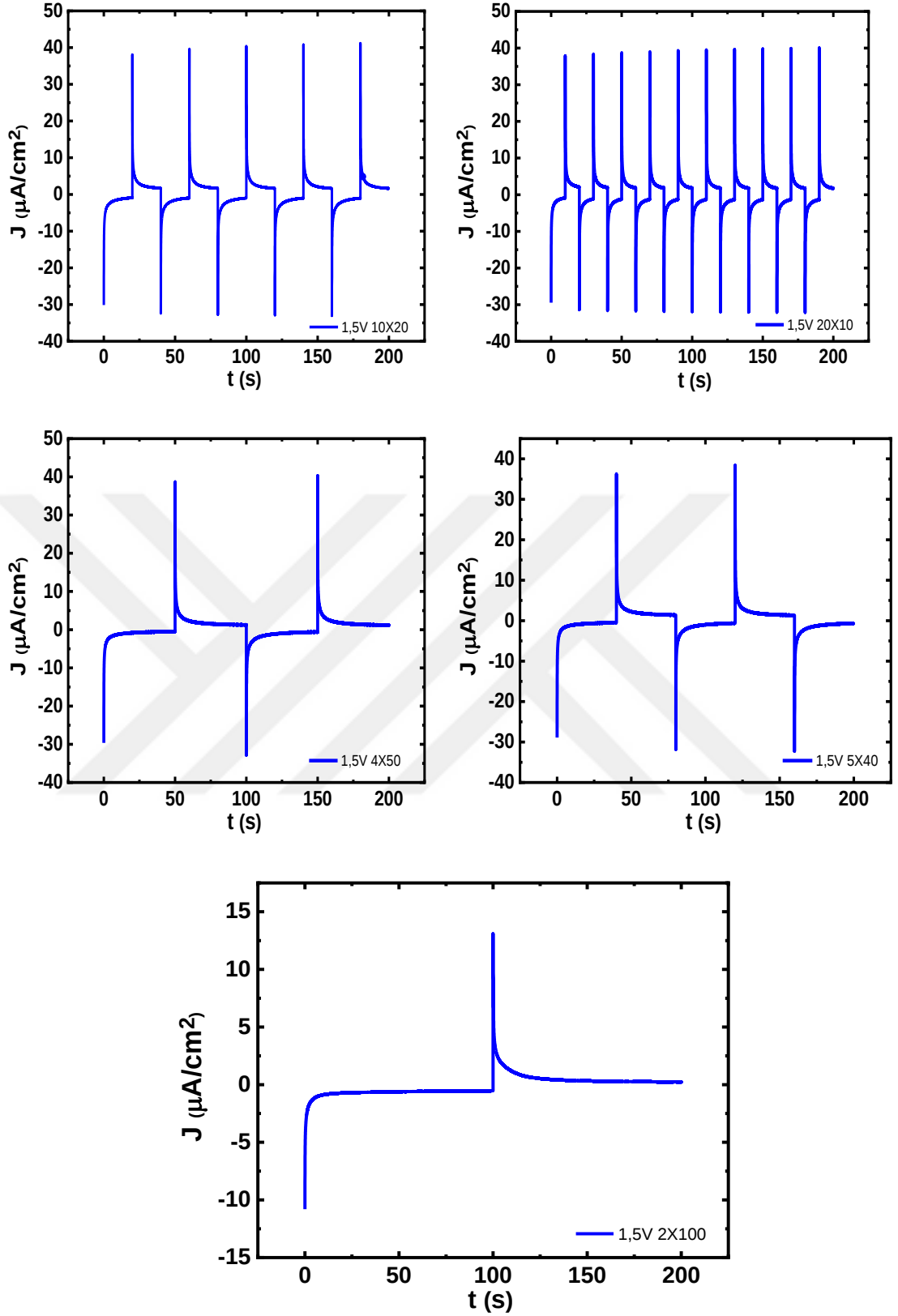
Elektrokimyasal ölçümleri kapsamında incelenen kronoamperometri akım-zaman eğrilerinden film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarları uygulanan potansiyel fark ile birlikte arttığı görülmektedir. Hesaplanan katodik ve anodik yük miktarlarındaki değişim birbirine oldukça yakındır.



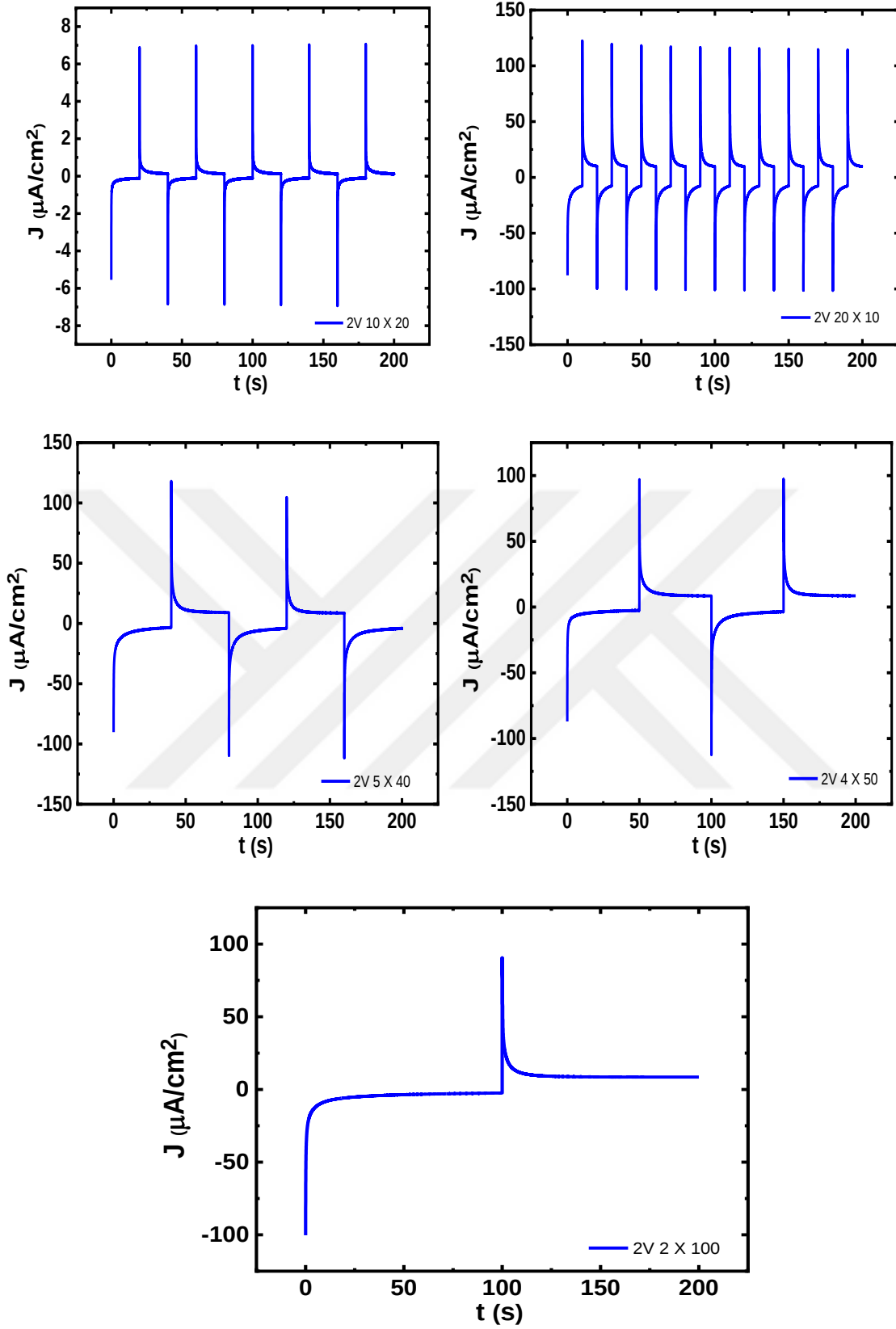
Şekil 4.12. Cam alttaş üzerine transfer edilen G2 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 $\text{mV}\cdot\text{s}^{-1}$ tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.



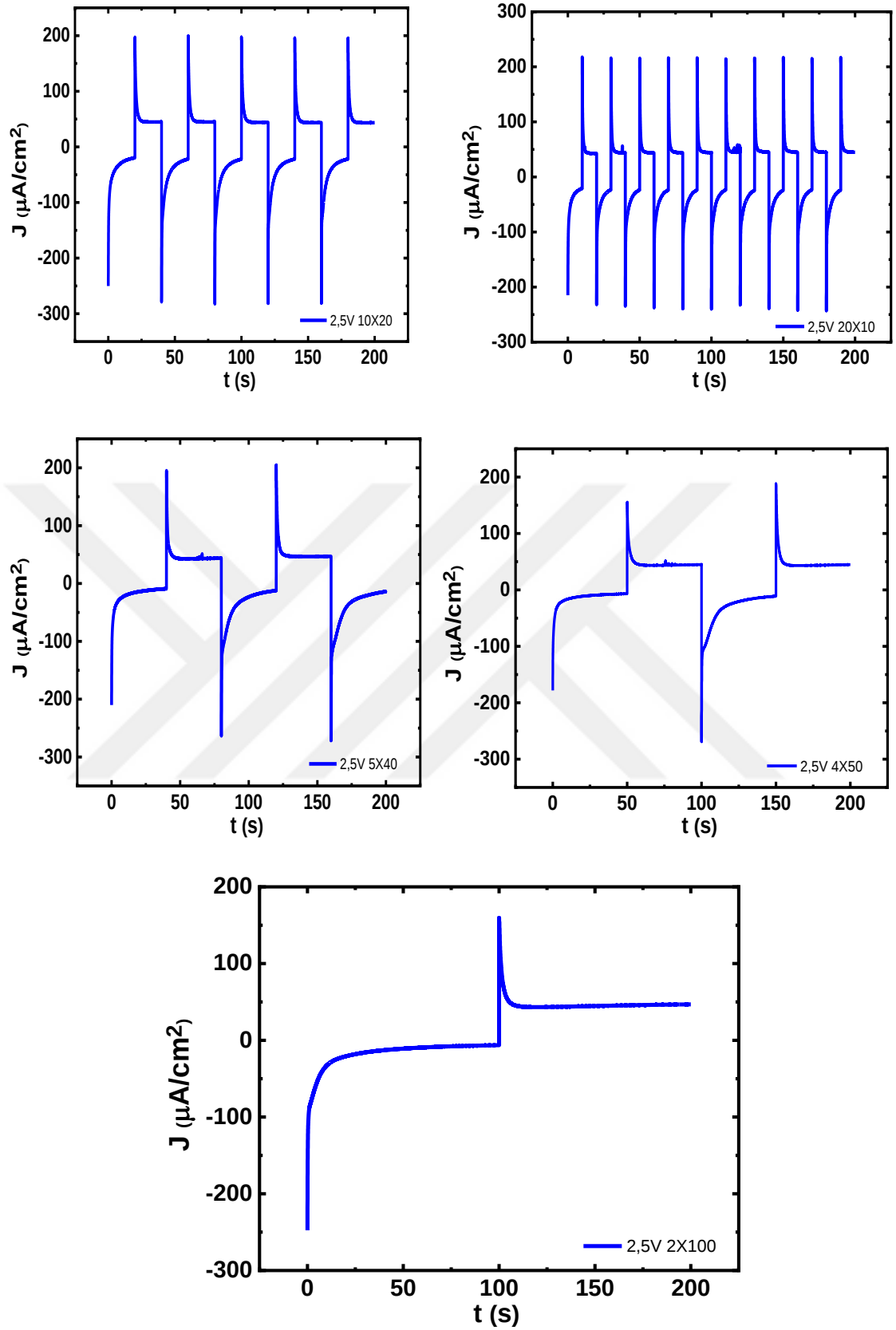
Şekil 4.13. G2 nolu örneğin $\pm 1\text{ V}$ aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.14. G2 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.15. G2 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.16. G2 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.

KBB yöntemi ile hazırlanmış G2 nolu örneğin uygulama gerilimi $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 30, 40, ve 50 mV/s tarama hızlarından elde edilen CV eğrilerinden maksimum katodik ve anodik akım yoğunluğu değerleri, katodik (Q_c) ve anodik (Q_A) yük miktarları hesaplanmıştır. Tablo 4.5’de bu değerler verilmiştir.

Tablo 4.5. G2 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

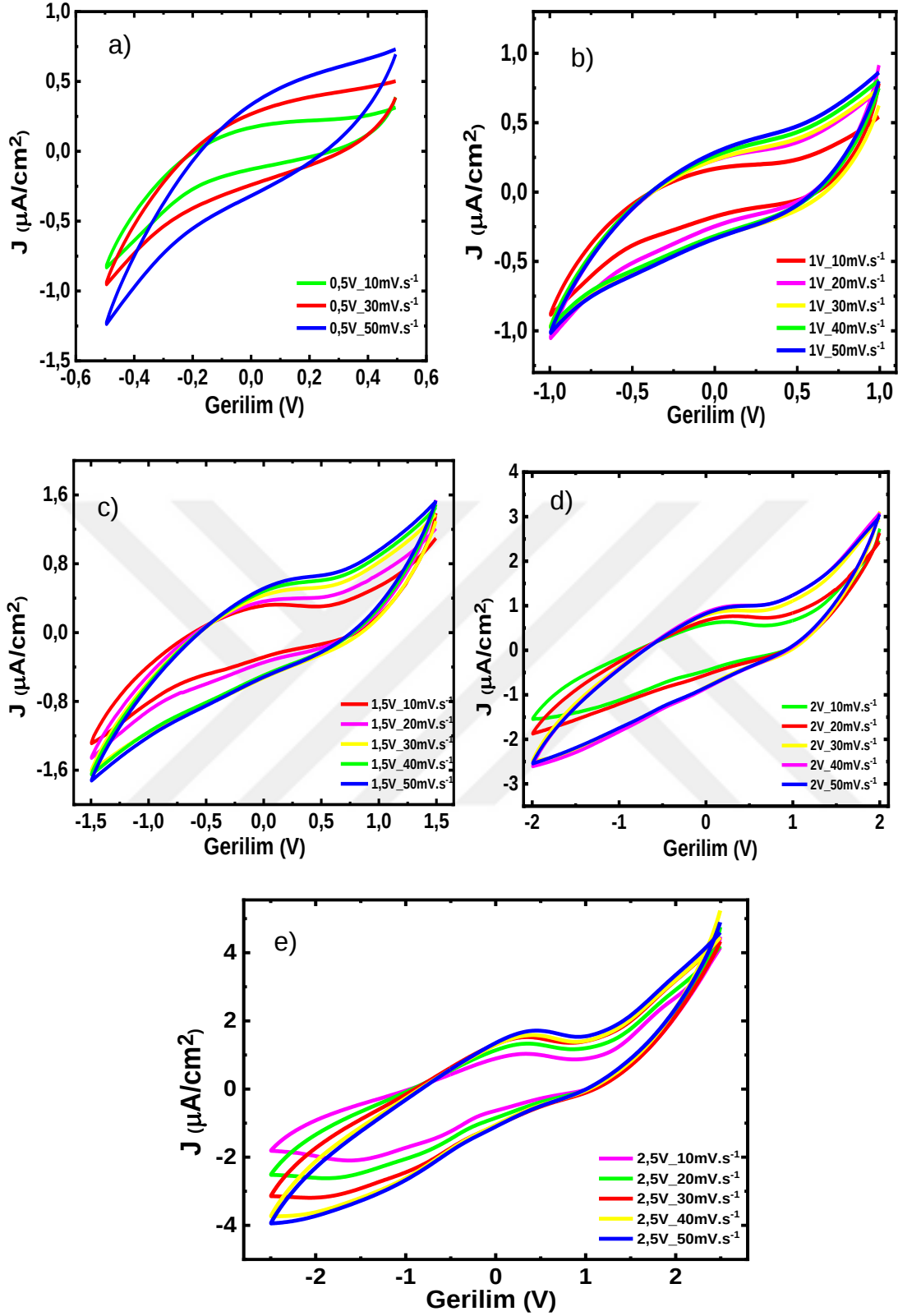
Gerilim (V)	Tarama Hızı (mV . s ⁻¹)	Q _A (μ C/cm ²)	Q _c (μ C/cm ²)	I _c (μ A/cm ²)	I _A (μ A/cm ²)
$\pm 0,5$	10	4,30	4,2	1,16	0,90
	30	3,75	3,15	1,50	0,67
	50	3,04	2,6	1,1	0,87
± 1	10	195,7	439,3	2,28	1,64
	20	218,5	255,5	2,77	1,65
	30	168,00	143,5	3,13	1,61
	40	126,20	108	2,63	1,62
	50	115,60	88,4	2,52	1,67
$\pm 1,5$	10	84,30	158,00	2,08	2,00
	20	59,50	103,40	3,08	2,26
	30	50,67	80,51	4,56	2,40
	40	44,75	61,35	4,13	2,39
	50	44,81	66,04	4,37	2,56
± 2	10	294,21	499,70	4,13	9,91
	20	184,30	345,90	5,74	10,68
	30	199,46	296,70	7,20	10,24
	40	163,72	266,01	8,13	11,17
	50	148,00	226,02	8,87	11,68
$\pm 2,5$	10	614,20	1097,00	6,80	39,83
	20	480,35	735,51	9,27	38,47
	30	363,17	657,47	12,30	41,24
	40	335,82	571,25	14,64	40,92
	50	350,08	534,62	17,18	40,21

G2 nolu örneğin $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V uygulanan potansiyel farklarda 20 ve 100 saniyelik pulslarla toplamda 200 saniye boyunca alınan CA eğrilerinden film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarı hesaplanmıştır. Tablo 4.6.'de hesaplanan değerlerler verilmiştir.

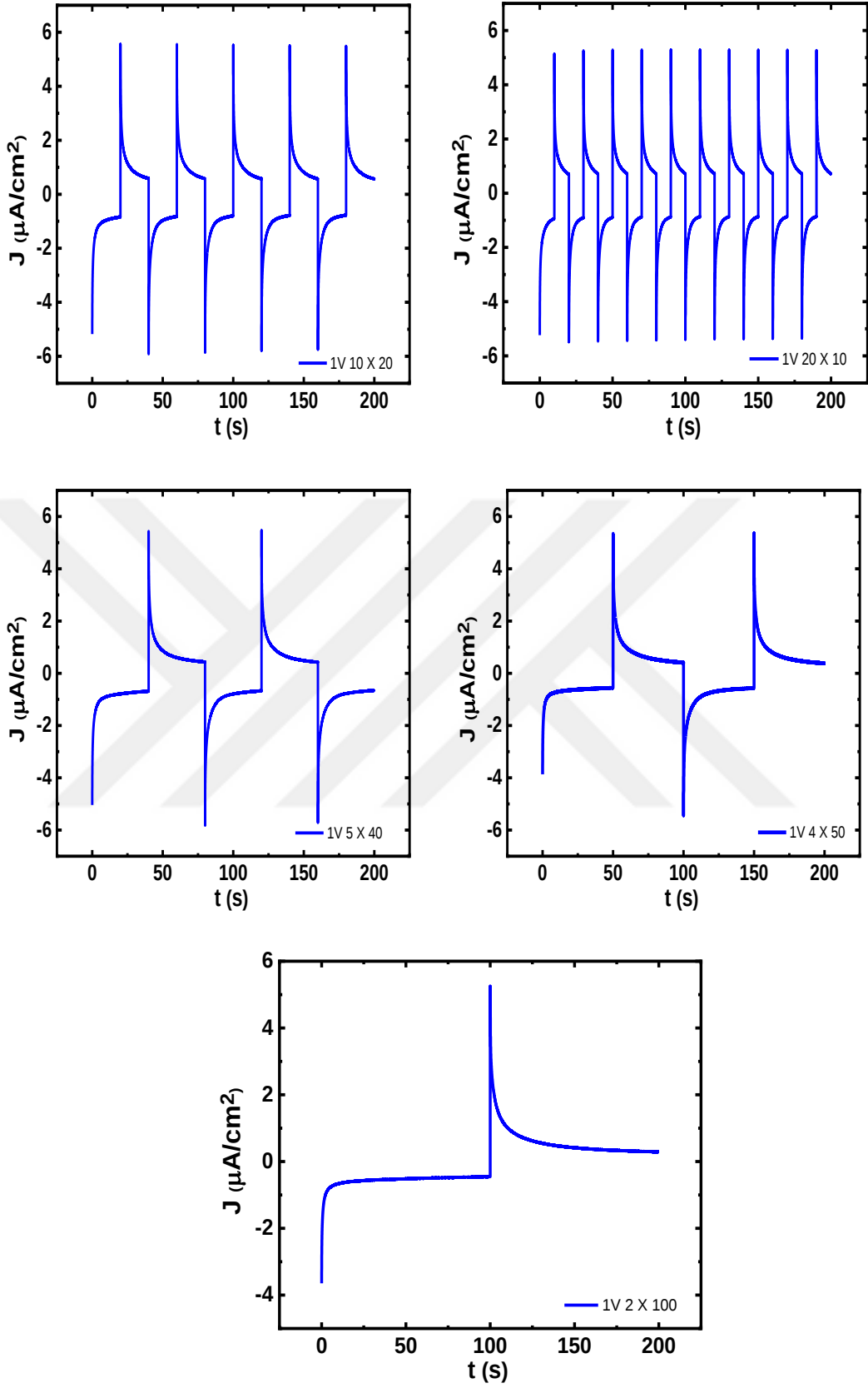
Tablo 4.6. G2 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	$\Delta Q_c(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_c(\mu C/cm^2)$ (2X100)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (2X100)
± 1	22,43	23,15	70,86	56,46
$\pm 1,5$	45,93	57,35	91,51	163,68
± 2	4,36	4,80	501,78	978,58
$\pm 2,5$	932,64	1031,37	1707,42	4659,31

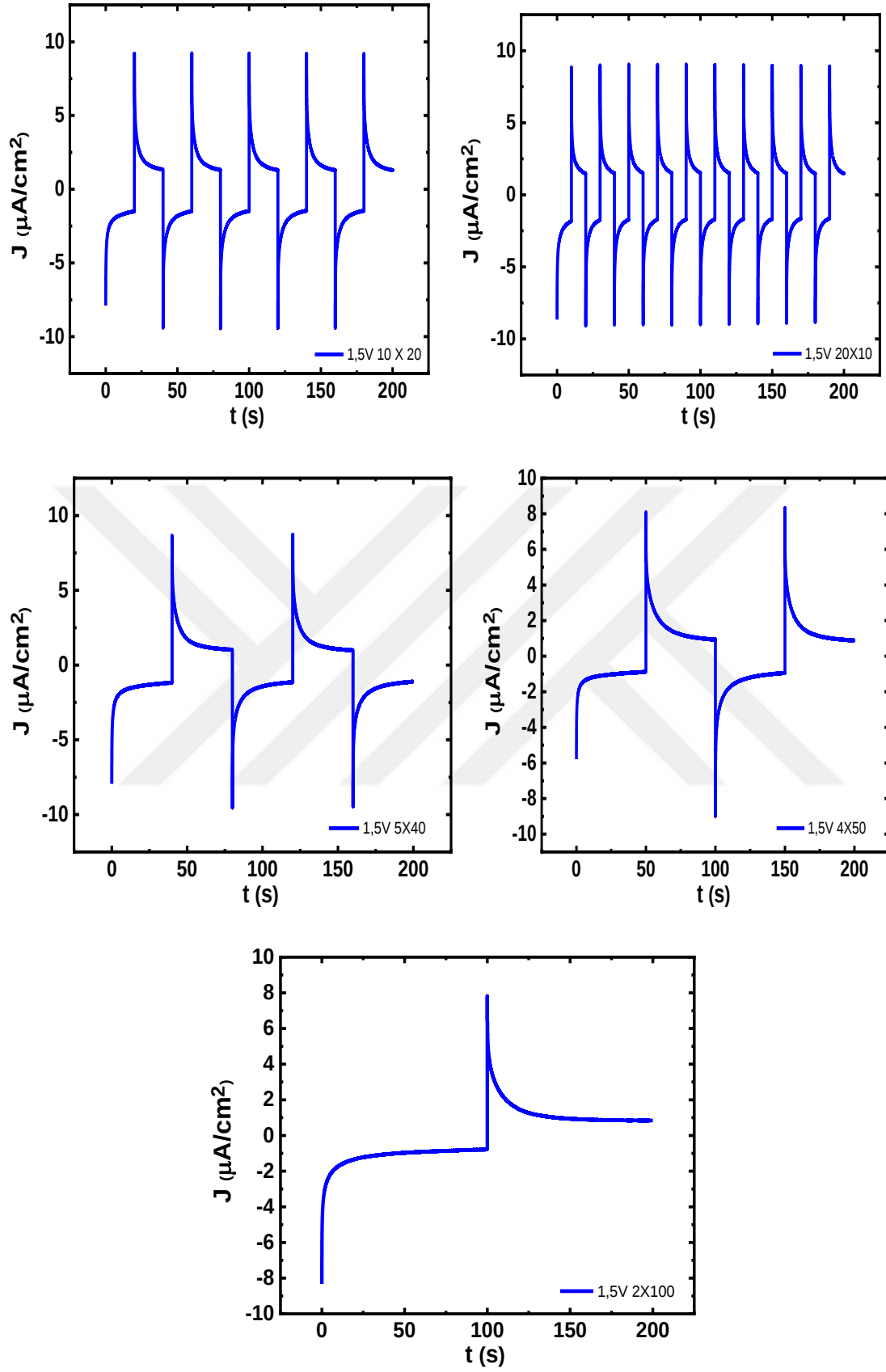
G2 nolu örnek üzerine uygulan tüm gerilim aralıkları için ölçülen CV eğrileri incelendiğinde, tarama hızı arttırıldıkça CV eğrilerinin altında kalan alanlar ile katodik ve anodik tepe akımı değerlerinin de arttığı görülmektedir. ± 2 V potansiyel farktan itibaren giren çıkan yük miktarları neredeyse iki katına çıkmıştır. Uygulan potansiyel fark $\pm 1,5$ V olduğu ölçümlerden itibaren anodik ve katodik pikler daha belirgin hale geldiği görülmektedir. G2 nolu örneğin elektrokimyasal ölçümleri kapsamında incelenen konoamperometri akım-zaman eğrilerinden film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarı değerleri uygulanan potansiyel fark ile birlikte arttığı görülmektedir. Hesaplanan 20 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrilerinden hesaplanan giren çıkan yük miktarı eşittir.



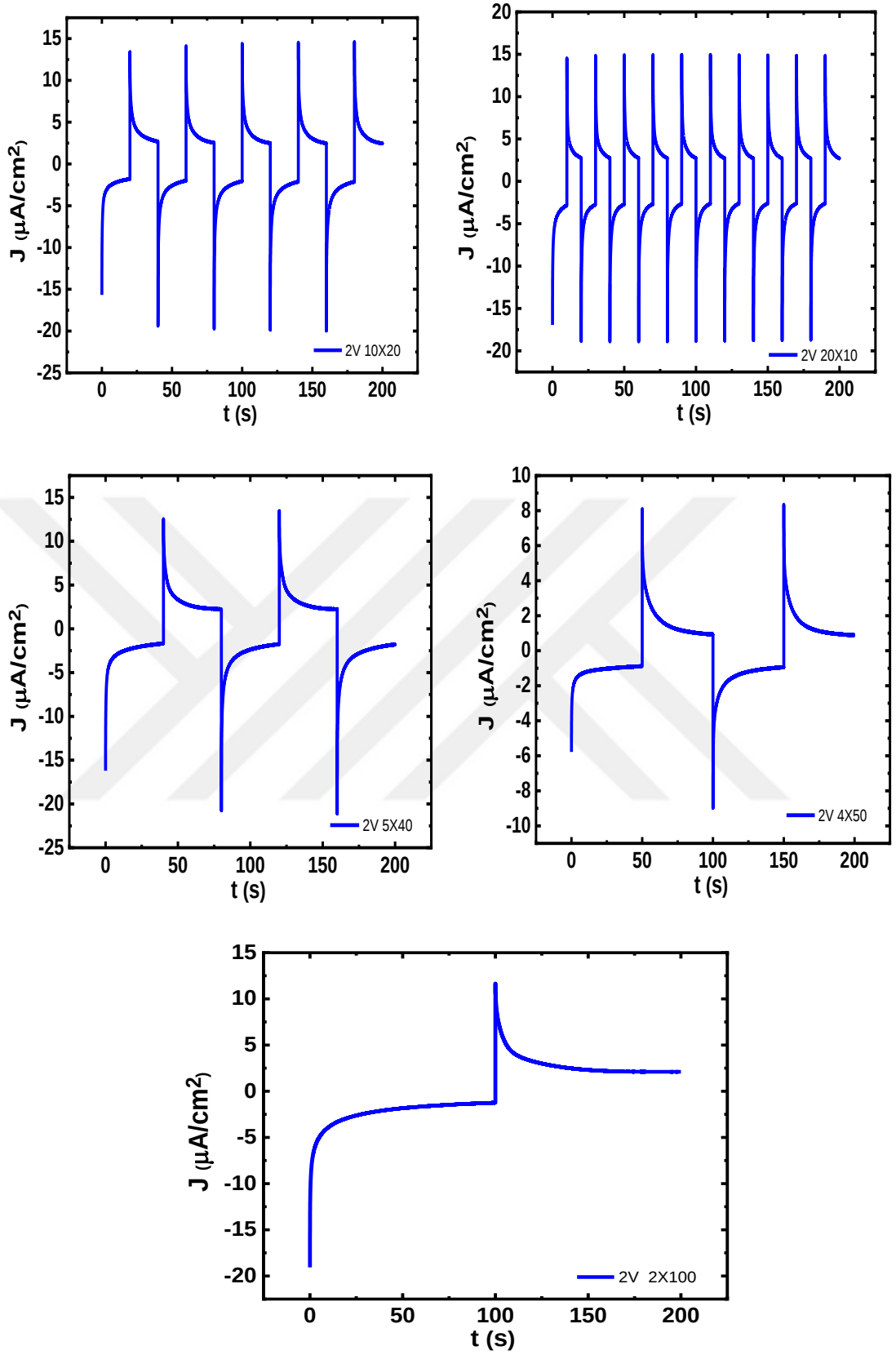
Şekil 4.17. Cam alttaş üzerine transfer edilen G3 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.



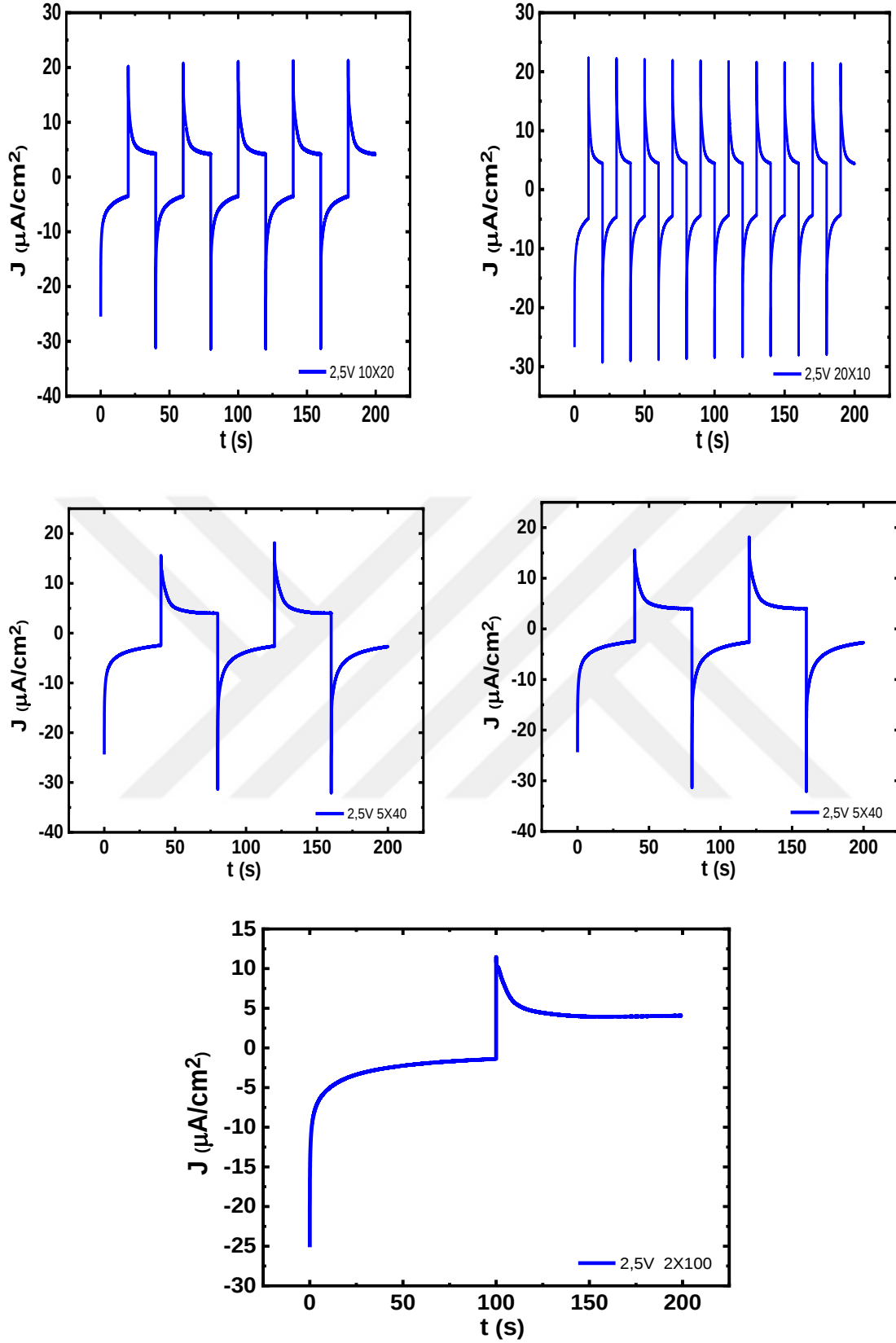
Şekil 4.18. G3 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.19. G3 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.20. G3 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.21. G3 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri

KBB yöntemi ile hazırlanmış G3 nolu örneğin uygulama gerilimi $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 30, 40, ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarından elde edilen CV eğrilerinden maksimum katodik ve anodik akım yoğunluğu değerleri, Q_C ve Q_A yük miktarları hesaplanmıştır. Tablo 4.7’de hesaplanan bu değerler verilmiştir.

Tablo 4.7. G3 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

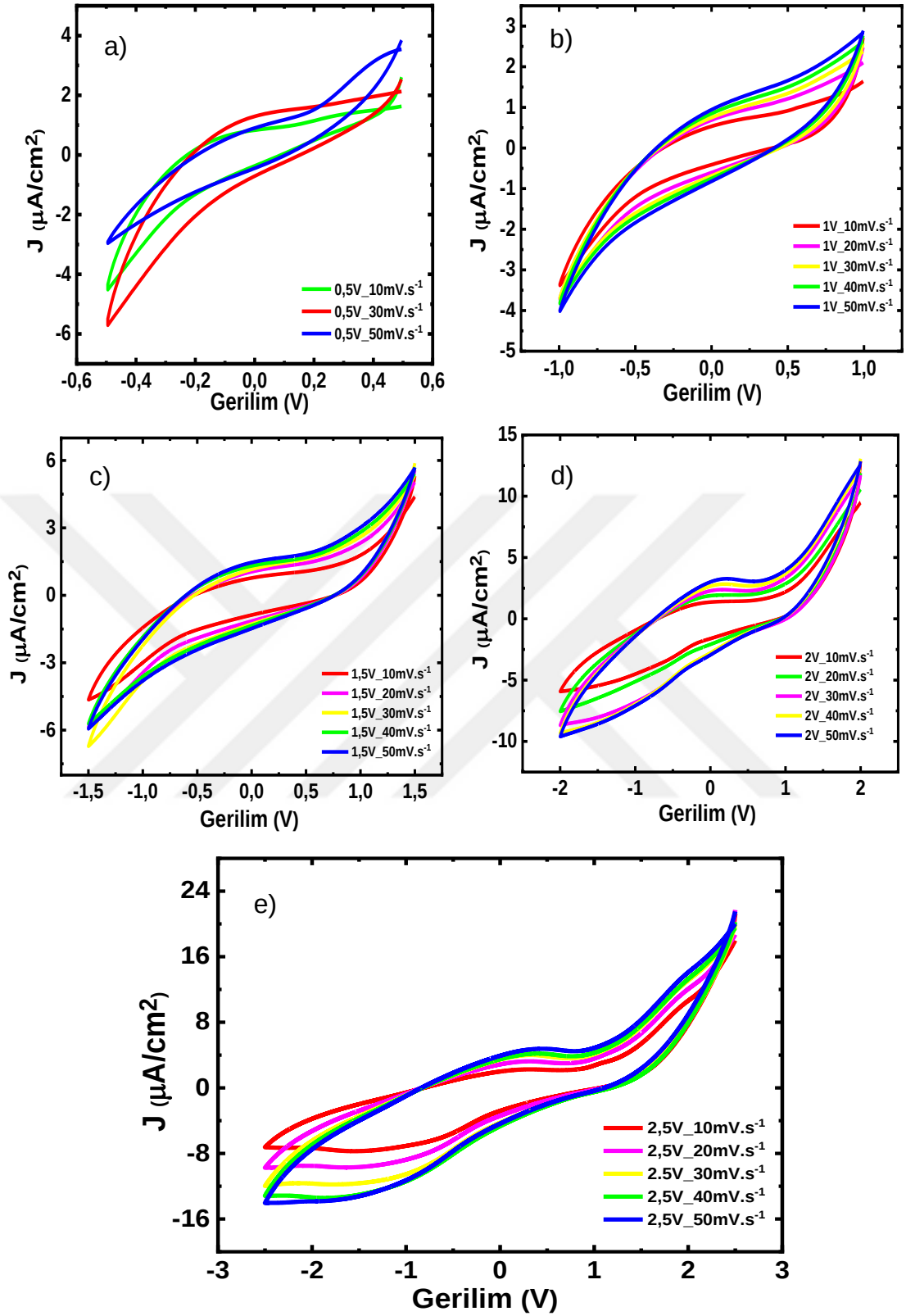
Gerilim (V)	Tarama Hızı (mV.s^{-1})	Q_A ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	Q_C ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	I_C ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)	I_A ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)
$\pm 0,5$	10	10,3	11,49	0,83	0,39
	30	6,93	5,53	0,95	0,50
	50	4,64	3,76	1,24	0,73
± 1	10	24,01	27,11	0,78	0,88
	20	17,92	17,35	0,91	1,05
	30	15,67	13,17	0,74	0,92
	40	11,68	9,85	0,81	0,97
	50	9,98	8,34	0,86	1,02
$\pm 1,5$	10	52,21	69,52	1,38	1,28
	20	32,95	37,63	1,54	1,45
	30	33,34	34,22	1,37	1,60
	40	24,75	24,99	1,49	1,65
	50	21,16	20,84	1,53	1,72
± 2	10	63,23	214,83	1,54	2,73
	20	42,31	113,70	1,87	2,63
	30	43,04	107,13	2,49	3,11
	40	35,17	82,37	2,60	3,09
	50	27,32	62,33	2,54	3,05
$\pm 2,5$	10	137,63	420,89	2,09	4,47
	20	90,01	253,63	2,62	4,75
	30	79,85	197,56	3,19	4,44
	40	52,45	149,15	3,73	5,23
	50	47,63	120,73	3,94	4,89

G3 nolu örneğin $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V uygulanan potansiyel farklarda 20 ve 100 saniyelik pulslarla toplamda 200 saniye boyunca ölçülen CA eğrilerinden yararlanılarak giren ve çıkan yük miktarı hesaplandı. Tablo 4.8’de hesaplanan ΔQ_C ve ΔQ_A değerleri verilmiştir.

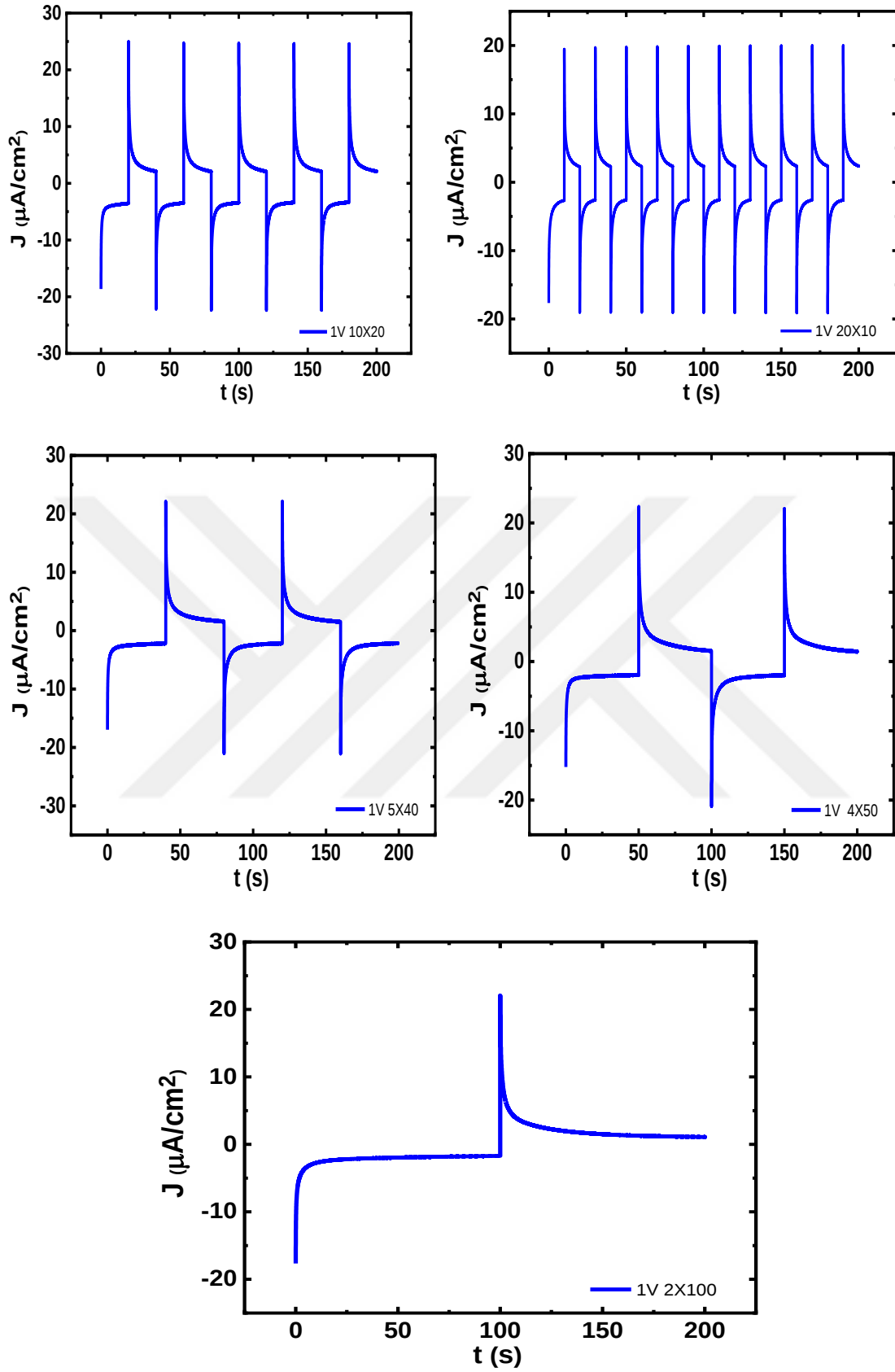
Tablo 4.8. G3 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	$\Delta Q_C(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_C(\mu C/cm^2)$ (2X100)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (2X100)
± 1	24,49	20,53	55,91	57,58
$\pm 1,5$	43,33	40,19	115,99	124,84
± 2	63,49	72,04	231,43	282,50
$\pm 2,5$	112,02	115,75	289,36	439,67

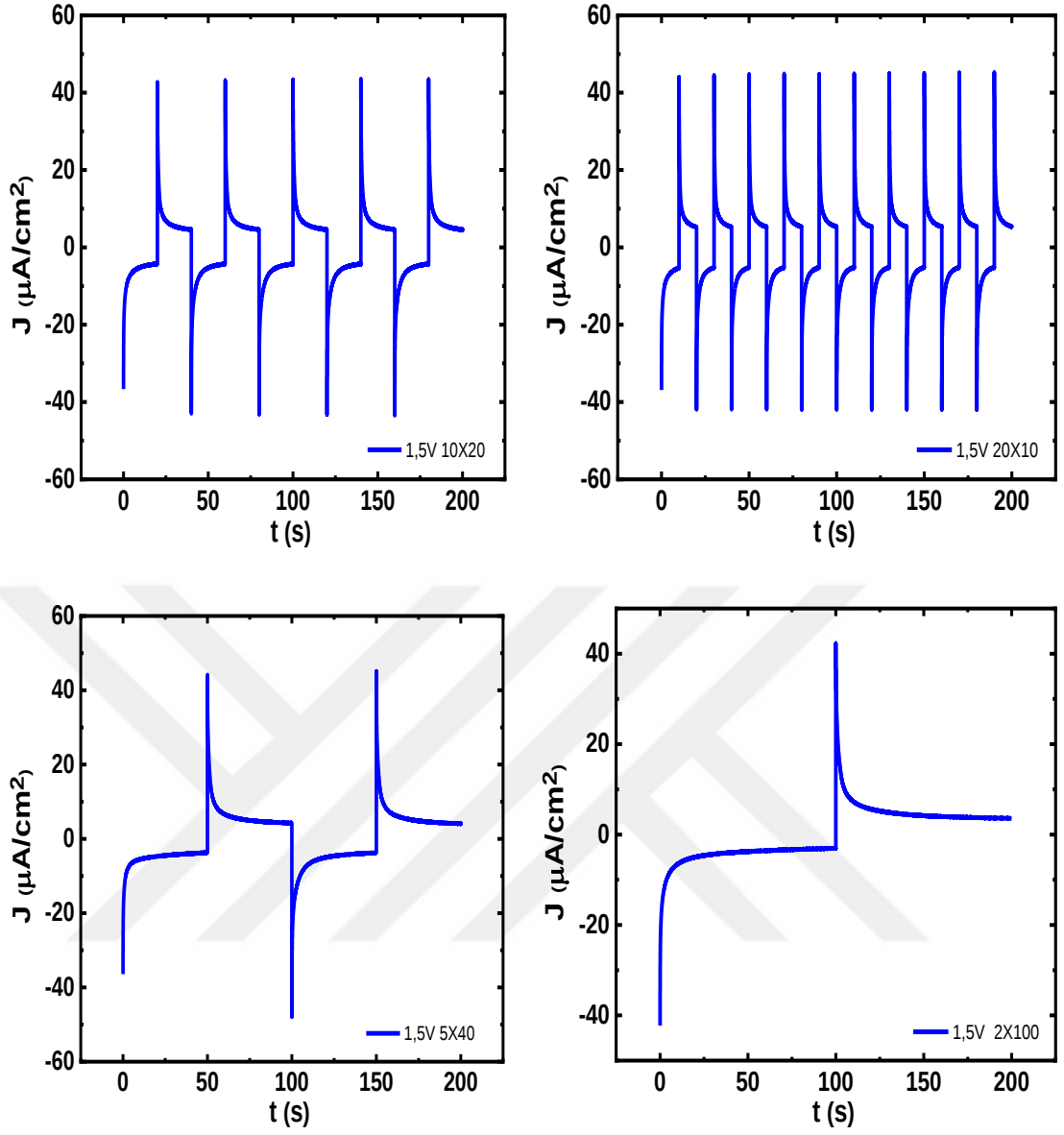
G3 nolu örnek üzerine uygulanan tüm gerilim aralıkları için ölçülen CV eğrileri incelendiğinde, tarama hızı arttırıldıkça CV eğrilerinin altında kalan alanlar ile katodik ve anodik tepe akımı değerlerinin de yükseldiği görülmektedir. $\pm 0,5$ V, ± 1 V ve $\pm 1,5$ V gerilimler altındaki anodik ve katodik yük miktarlarının hemen hemen eşit olduğu ancak ± 2 V ve $\pm 2,5$ V gerilimler altındaki ölçümlerde ise anodik ve katodik yük miktarlarının katodik yük miktarından oldukça büyük olduğu saptanmıştır. CA eğrilerinden film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarı değerleri uygulanan potansiyel fark ile birlikte arttığı görülmektedir. Hesaplanan katodik ve anodik yük miktarları birbirine oldukça yakındır. Ancak 100 saniyelik pulslarla elde edilen CA eğrilerinden film yüzeyine giren yük miktarının fazla olduğu görülmektedir.



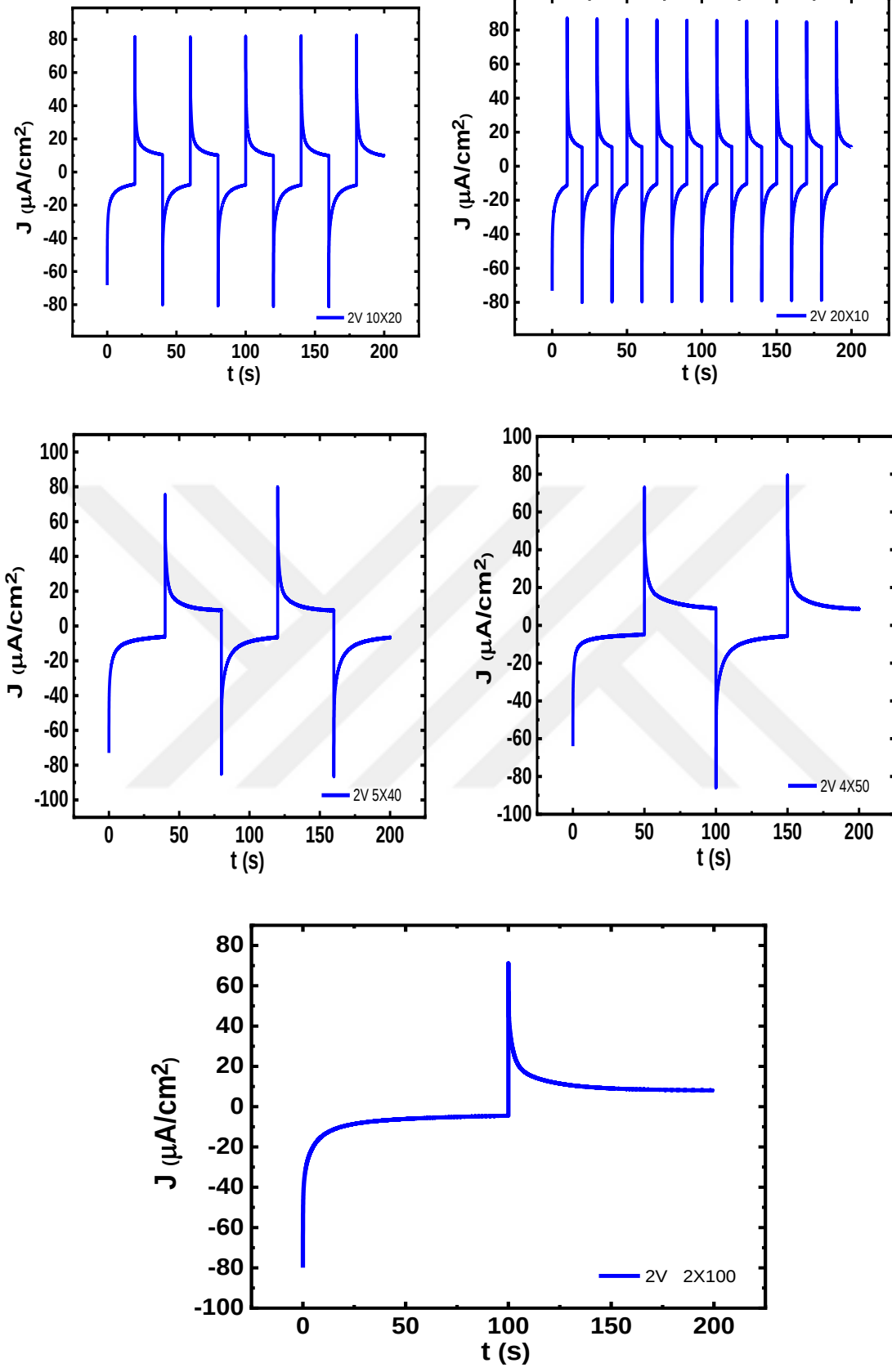
Şekil 4.22. Cam alttaş üzerine transfer edilen G4 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5V aralığında d) - 2V ile +2V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.



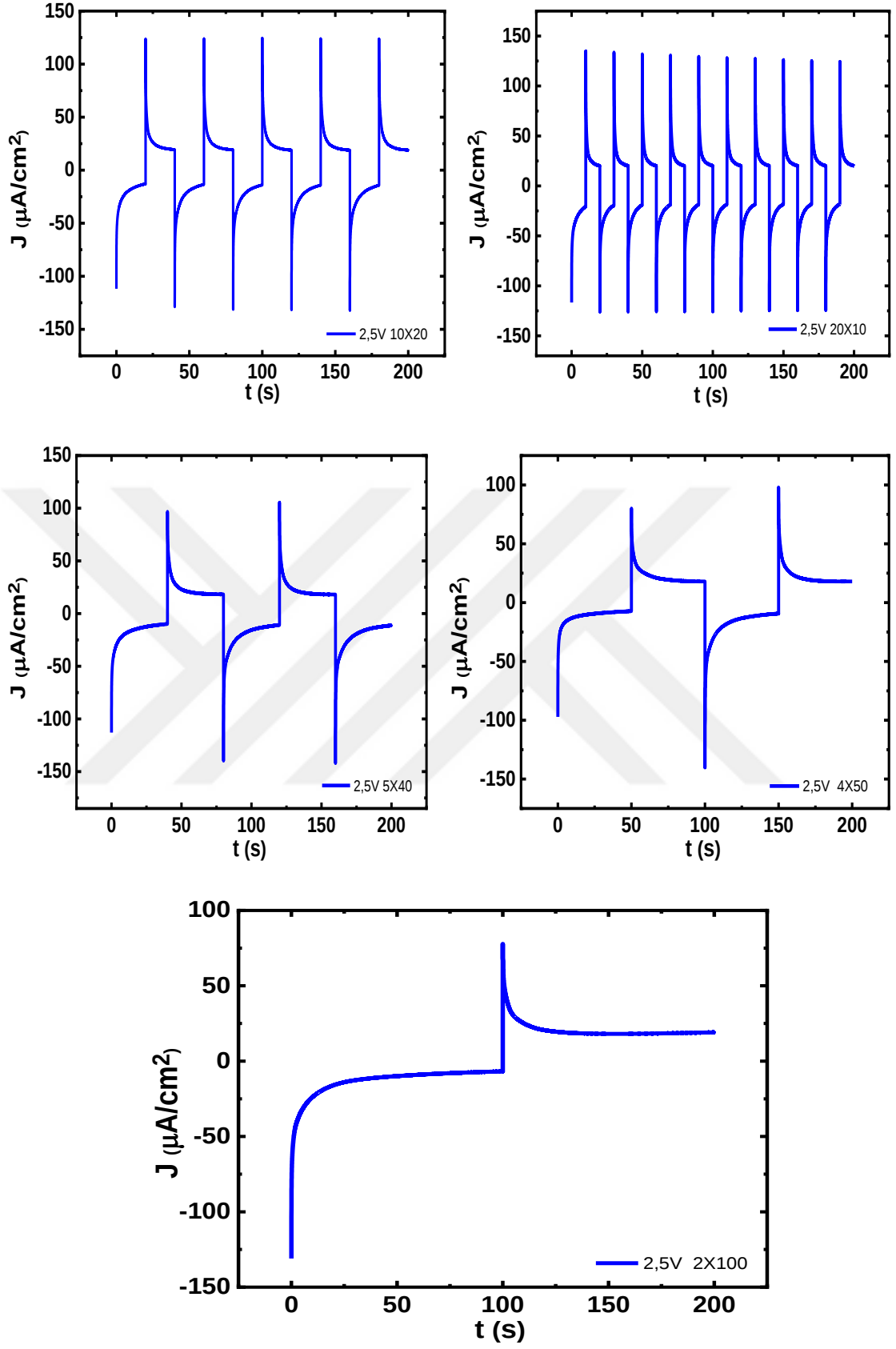
Şekil 4.23. G4 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4. 24. G4 nolu örneğin $\pm 1,5\text{ V}$ aralığında 10, 20, 40, ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.25. G4 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.26. G4 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslerle elde edilmiş CA eğrileri.

KBB yöntemi ile hazırlanmış G4 nolu örneğin uygulama gerilimi $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 30, 40, ve 50 $\text{mV} \cdot \text{s}^{-1}$ tarama hızlarından elde edilen CV eğrilerinden maksimum katodik ve anodik akım yoğunluğu değerleri ve giren/çıkan yük miktarları hesaplanmıştır. Tablo 4.9’de bu hesaplanan değerler verilmiştir.

Tablo 4.9. G4 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	Tarama Hızı ($\text{mV} \cdot \text{s}^{-1}$)	Q _A ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	Q _C ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	I _C ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)	I _A ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)
$\pm 0,5$	10	25,41	65,5	4,51	2,61
	30	18,33	27,67	5,52	2,53
	50	9,42	9,6	2,29	3,84
± 1	10	65,01	68,03	3,38	2,72
	20	49,05	42,50	3,72	2,48
	30	36,73	32,33	3,70	2,58
	40	29,72	26,35	3,83	2,77
	50	17,23	20,92	4,02	2,89
$\pm 1,5$	10	168,61	218,41	4,64	5,30
	20	115,85	126,62	5,88	5,60
	30	86,07	90,73	6,71	5,88
	40	70,97	75,35	5,72	5,69
	50	62,81	64,41	5,94	5,68
± 2	10	378,01	597,02	5,93	12,88
	20	252,80	339,52	7,55	11,89
	30	230,30	305,00	8,68	11,73
	40	171,71	235,01	9,33	13,07
	50	150,22	194,01	9,61	12,85
$\pm 2,5$	10	736,01	1259,01	7,72	21,27
	20	489,02	766,02	9,75	21,70
	30	424,00	610,03	11,98	19,94
	40	335,02	500,73	13,42	20,25
	50	288,83	420,01	14,05	21,51

G4 örneğinin ± 0.5 V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V uygulanan potansiyel farklarda 20 ve 100 saniyelik pulslarla toplamda 200 saniye boyunca olan akım-zaman eğrilerinden film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarı hesaplandı. Tablo 4.10'da hesaplanan ΔQ_C ve ΔQ_A değerleri verilmiştir.

Tablo 4.10. G4 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	ΔQ_C ($\mu C/cm^2$) (10X20)	ΔQ_A ($\mu C/cm^2$) (10X20)	ΔQ_C ($\mu C/cm^2$) (2X100)	ΔQ_A ($\mu C/cm^2$) (2X100)
± 1	85,37	74,79	219,22	207,89
$\pm 1,5$	138,99	139,69	454,01	518,14
± 2	270,32	295,21	819,01	1079,73
$\pm 2,5$	463,58	512,87	1323,07	1947,66

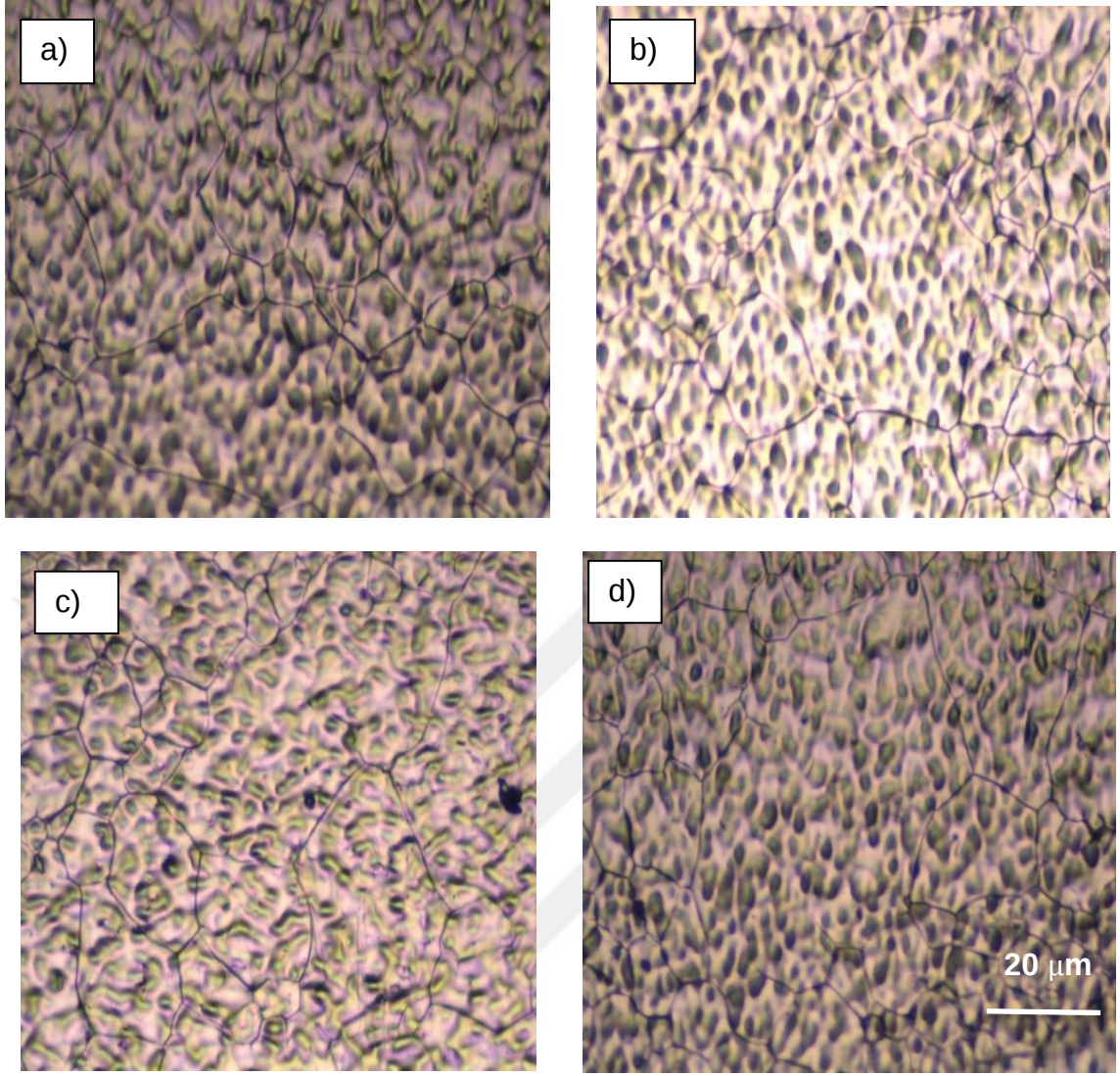
G4 nolu örnek üzerine uygulanan tüm gerilim aralıkları için ölçülen CV eğrileri incelendiğinde, tarama hızı arttırıldıkça CV eğrilerinin altında kalan alanlar ile katodik ve anodik tepe akımı değerlerinin de yükseldiği görülmektedir. Uygulanan gerilimler altında anodik ve katodik yük miktarlarının $\pm 2,5$ V hariç tüm ölçümlerde benzer olduğu saptanmıştır. G4 örneğinin elektrokimyasal ölçümleri kapsamında incelenen CA eğrilerinden film yüzeyine giren/çıkan yük miktarı değerleri uygulanan potansiyel fark ile birlikte arttığı görülmektedir. Hesaplanan giren ve çıkan yük miktarları birbirine yakın olduğu gözlemlenmiştir.

4.2.2. Kimyasal Buhar Biriktirme Yöntemi ile Sentezlenen Grafen Filmlerin Özellikleri Üzerinde Metan Gaz Akış Oranının Etkisi

Tez çalışmalarının bu bölümün de grafen örneklerin sentez sürecinin optimizasyonu için deneysel çalışmalar yapılmıştır. Yapılan ön deneyler gaz akış miktarları, tavlama sıcaklığı, tavlama süresi ve büyütme parametrelerinin parametrelerini belirlemek için gerçekleştirilmiştir. Optimizasyon için yapılan deneyler değerlendirilerek en iyi sonuç veren deney parametreleri kombinasyonu belirlenmiştir ve bu değerler kullanılarak dört farklı büyütme süresinde deneyler gerçekleştirilmiştir. Bu kapsamda sentezlenen grafen filmler için Argon (Ar) ve Hidrojen (H₂) gazları sırasıyla 80 ve 40 sccm ve büyütme süreleri de 10 dakika olarak belirlenmiştir. Metan gaz akışları sırasıyla 5, 10, 15 ve 20 sccm olmak üzere 1000 °C’ de dört farklı deney gerçekleştirilmiştir. Tablo 4.11’de örneklerin sentez parametreleri verilmiştir.

Tablo 4.11. KBB tekniği ile hazırlanan örneklerin büyütme parametreleri.

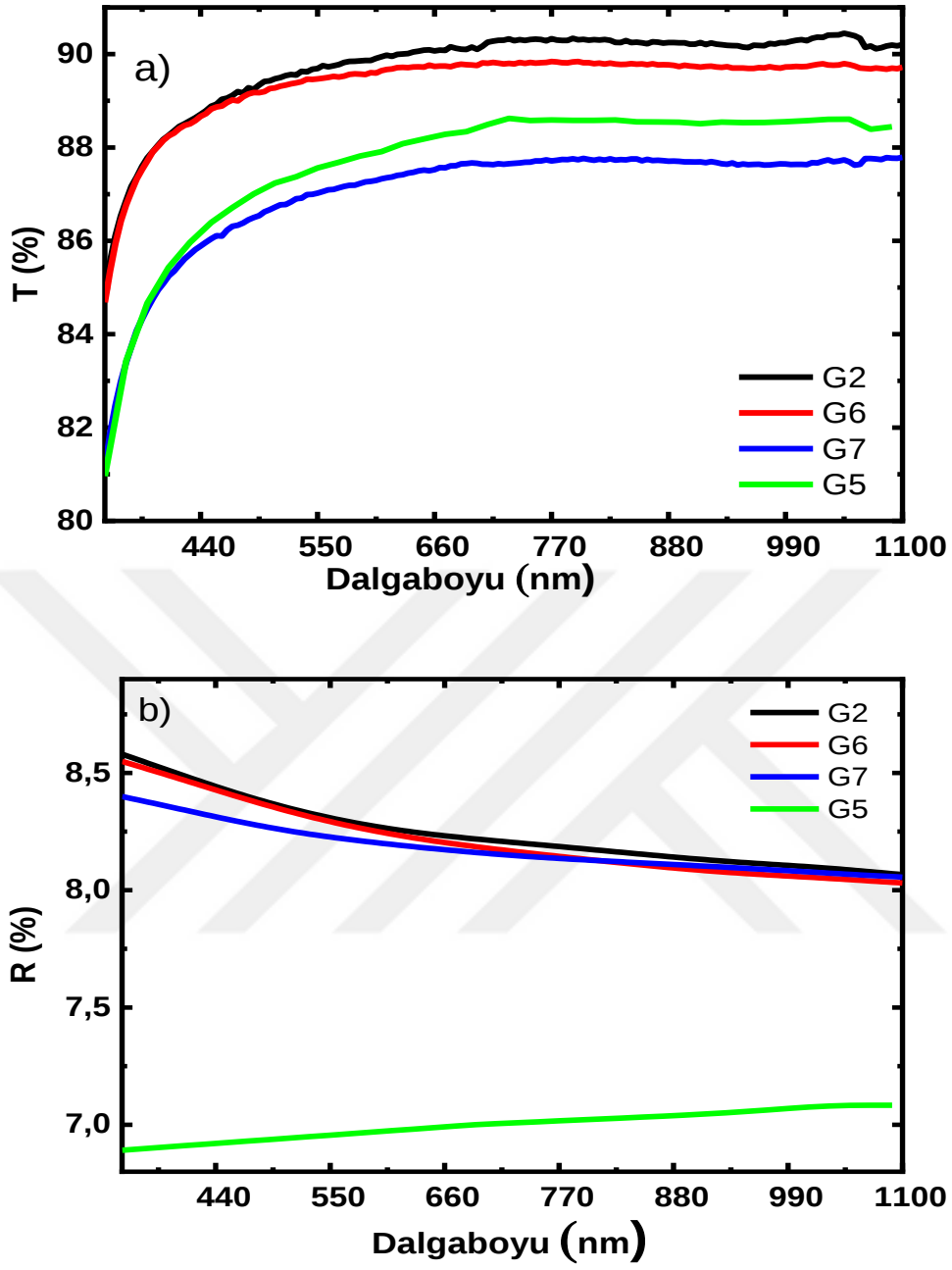
Örnek Adı	Ar (sccm)	H ₂ (sccm)	CH ₄ (sccm)	Tavlama Süresi (dk.)	Zaman (dk.)
G2	80	40	5	35	10
G5	80	40	10	35	10
G6	80	40	15	35	10
G7	80	40	20	35	10



Şekil 4.27. KBB tekniği ile sentezlenen a) G2, b) G5, c) G6 ve G7 nolu örneklerden alınan optik mikroskop görüntüleri.

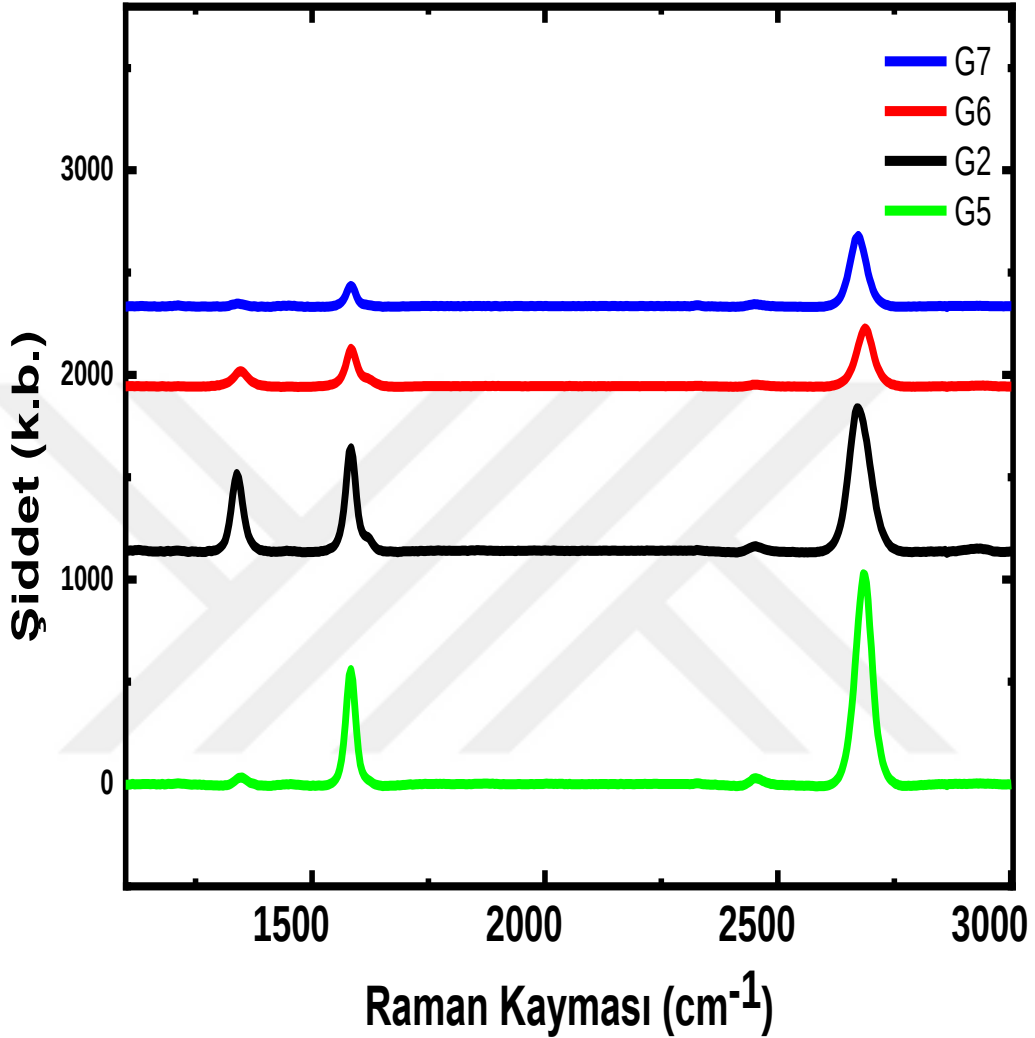
Optik mikroskop görüntüleri incelendiğinde bakır folyo üzerinde oluşan farklı büyüklük ve yönelimlerde tanecikler bulunmaktadır. Oluşan mikro grain yapıların sınırları belirgin bir şekilde görülmektedir.

KBB tekniği ile farklı gaz akış miktarlarında büyütmüş örneklerin dalga boyuna bağlı optik geçirgenlikleri Şekil 4.27’de verilmiştir. Şekiller incelendiğinde G2, G5, G6 ve G7 örnek kodlu filmlerin 550 nm’deki optik geçirgenlik yüzdeleri sırasıyla % 89,7, % 89, 5, % 87,6 ve % 87,1 olarak belirlenmiştir. Bu sonuçlar doğrultusunda, en yüksek optik geçirgenliğin G2 nolu örneğe ve en düşük optik geçirgenliğin ise G7 nolu örneğe ait olduğu gözlemlenmiştir.



Şekil 4.28. a) G2, G5, G6 ve G7 örneklerinin optik geçirgenlik ve b) optik yansıtma spektrumları.

Aynı örneklerin Raman spektrumları incelenmiştir. Şekil 4.29’de tüm örneklerde grafenin Raman spektrumunda sahip olması beklenen D, G ve 2D olarak adlandırılan üç ana pik olduğu görülmektedir.



Şekil 4.29. G2, G5, G6 ve G7 nolu örneklerin Raman spektrumları.

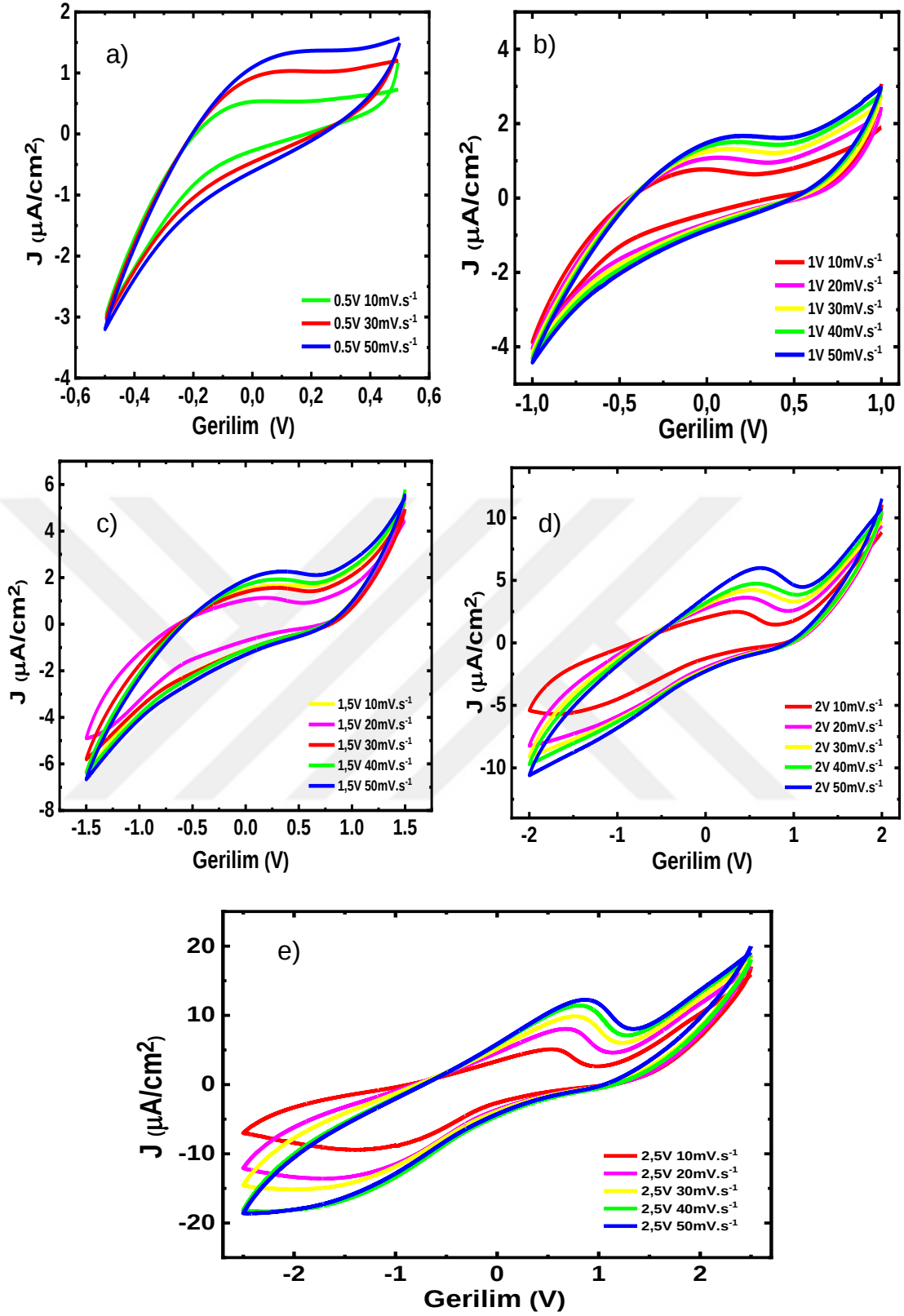
Tek katmanlı grafenin Raman spektrumunda 2D pik merkezinin konumu 2679 cm^{-1} civarındadır. Bu değer grafenin katman sayısı artışı ile artmaktadır. Tek katmanlı grafenin G pikinin konumu ise yaklaşık olarak 1587 cm^{-1} 'dir. Katman sayısı arttıkça G pikinin konumu sola doğru kayarak artmaktadır [52, 53]. G2, G5, G6 ve G7 örneklerinin Raman spektrumları incelendiğinde, örneklerin birbirinden farklı Raman spektrumlarına sahip olduğu görülmektedir.

Aynı örneklerin Raman spektrumları incelendiğinde, G2 nolu örneğin D pikinin şiddeti diğer örneklerle kıyasla daha yüksek olduğu için bu örneğin iç yapısındaki kusurlarının daha fazla olduğu düşünülmektedir. Tablo 4.12’de grafen örneklerin Raman spektrumlarındaki farklı oranlarda ve pozisyonlarda olan piklerin bazı karakteristik özellikleri verilmiştir.

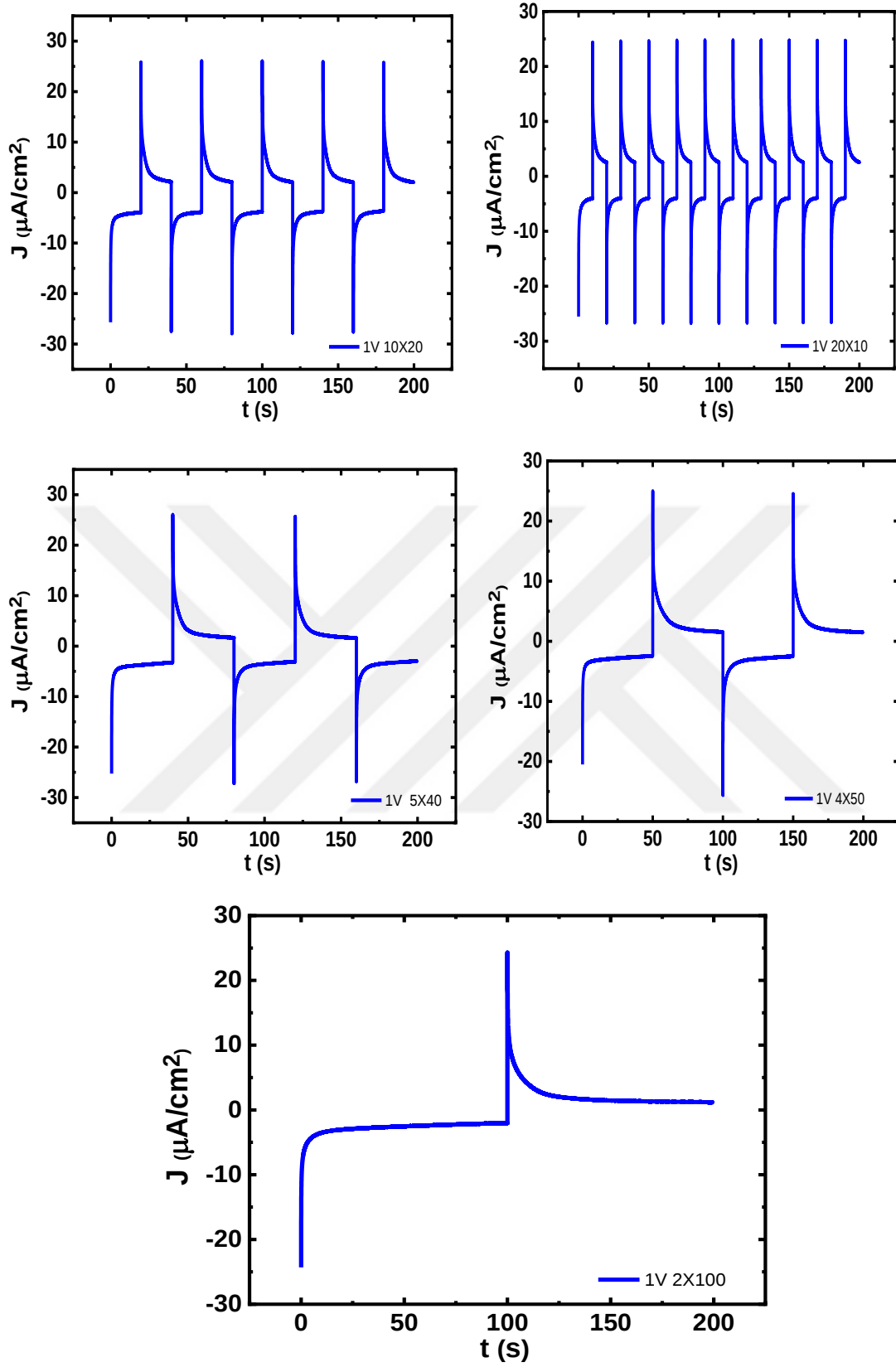
Tablo 4.12. G2, G5, G6 ve G7 nolu örneklerin Raman spektrumlarından edinilen bilgiler.

Örnek Adı	Pik Merkezi (cm^{-1})	Maksimum Şiddet (k.b.)	FWHM (cm^{-1})	I_D / I_G	I_{2D} / I_G
G2	1339,60	362,02	30,80	0,72	1,37
	1583,39	501,43	29,30		
	2675,40	689,64	54,47		
G5	1347,64	37,71	29,11	0,07	1,83
	1582,95	543,38	25,73		
	2684,39	995,62	43,16		
G6	1346,74	72,81	39,59	0,40	1,54
	1583,62	183,18	35,10		
	2687,01	282,58	45,37		
G7	1341,68	10,55	21,49	0,11	3,41
	1583,55	96,63	24,92		
	2672,32	329,36	42,58		

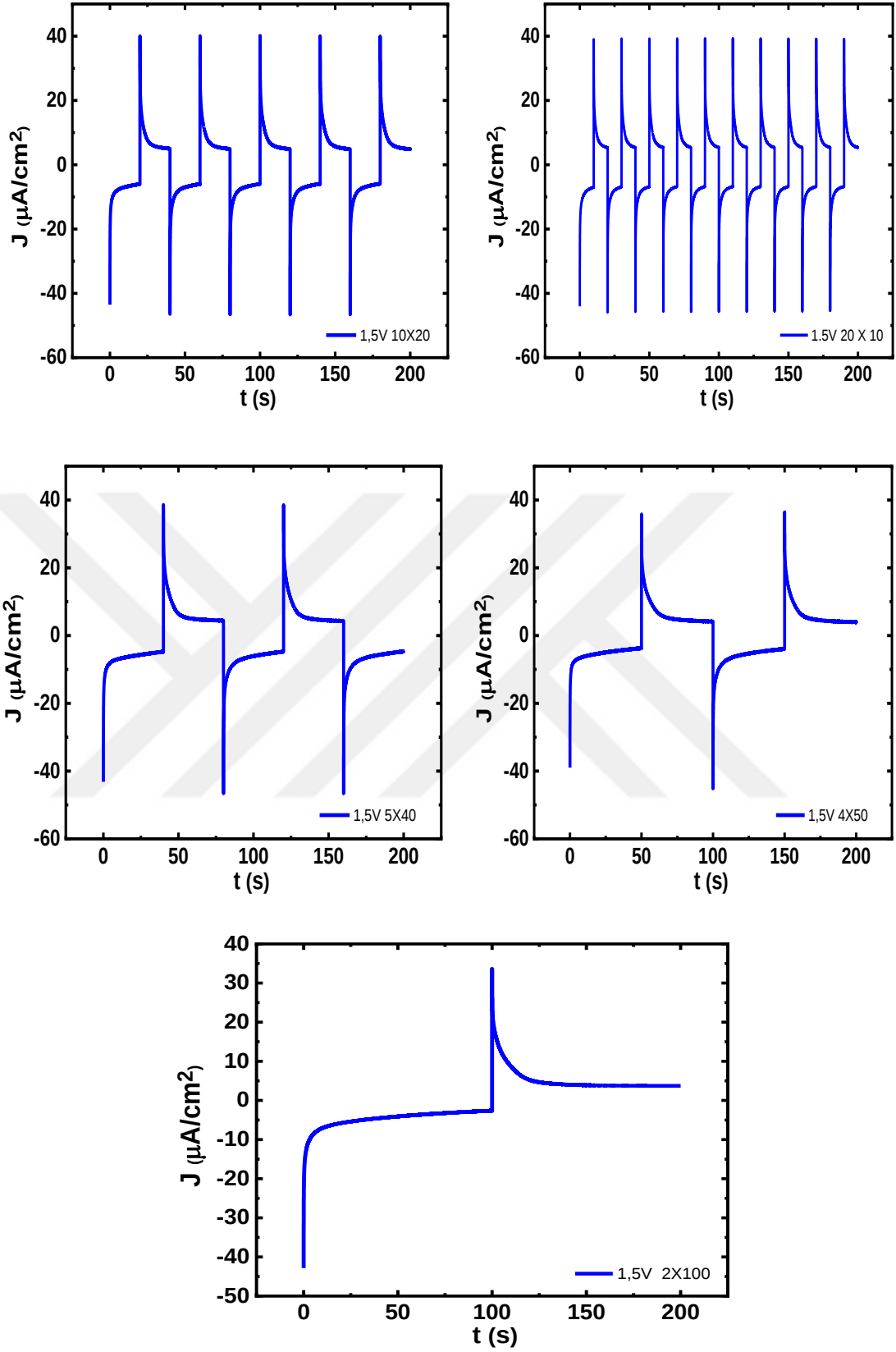
Örneklerin maksimum pik konumları ve tablodaki değerler incelendiğinde, G5 ve G7 örneklerinin katman sayılarının yaklaşık olarak 2 veya 3 katmanlı olduğu, G2 ve G6 örneklerinin katman sayısının ise 3 ile 5 arasında olduğu değerlendirilmiştir.



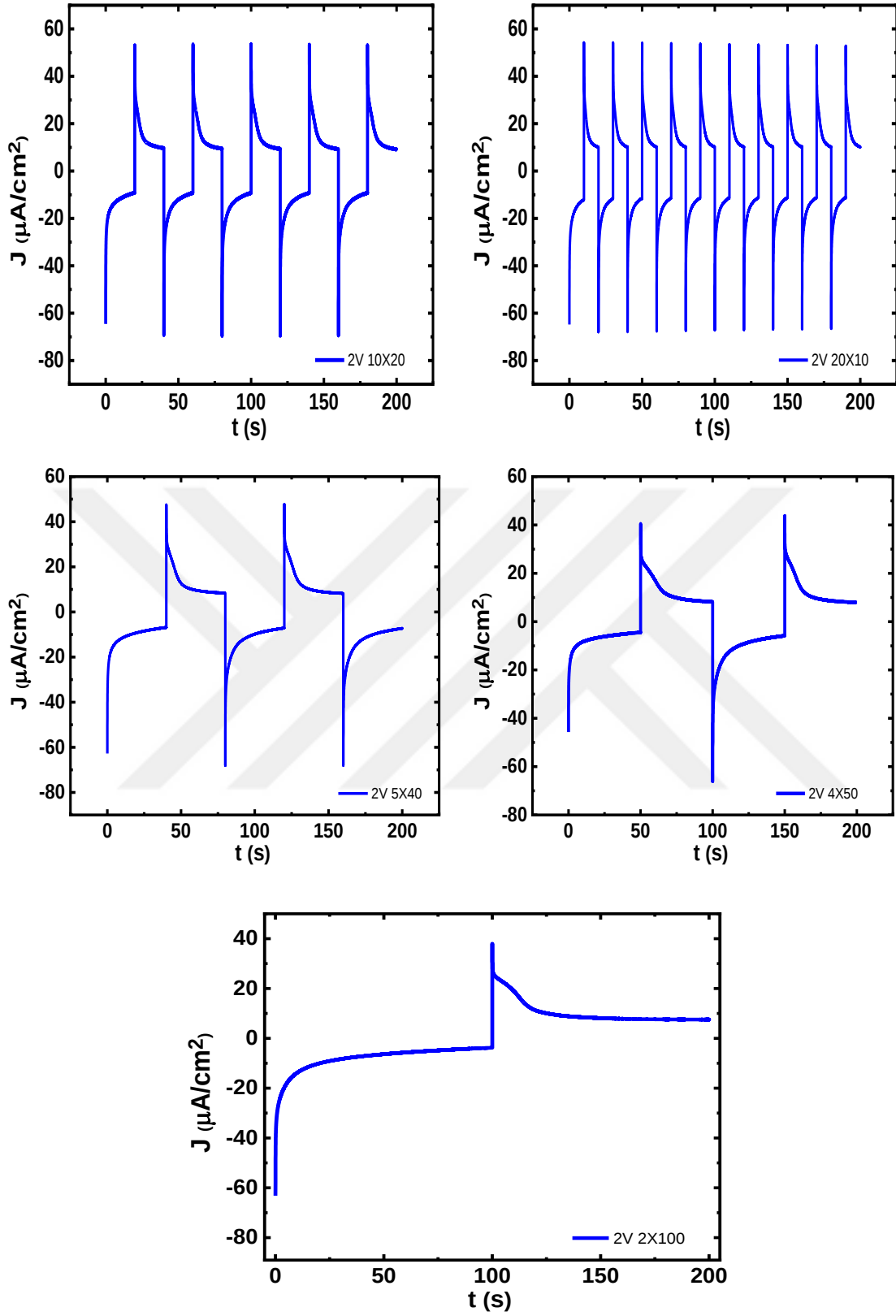
Şekil 4.30. Cam alttaş üzerine transfer edilen G5 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 $\text{mV}\cdot\text{s}^{-1}$ tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5V ile +1,5V aralığında d) -2V ile +2V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.



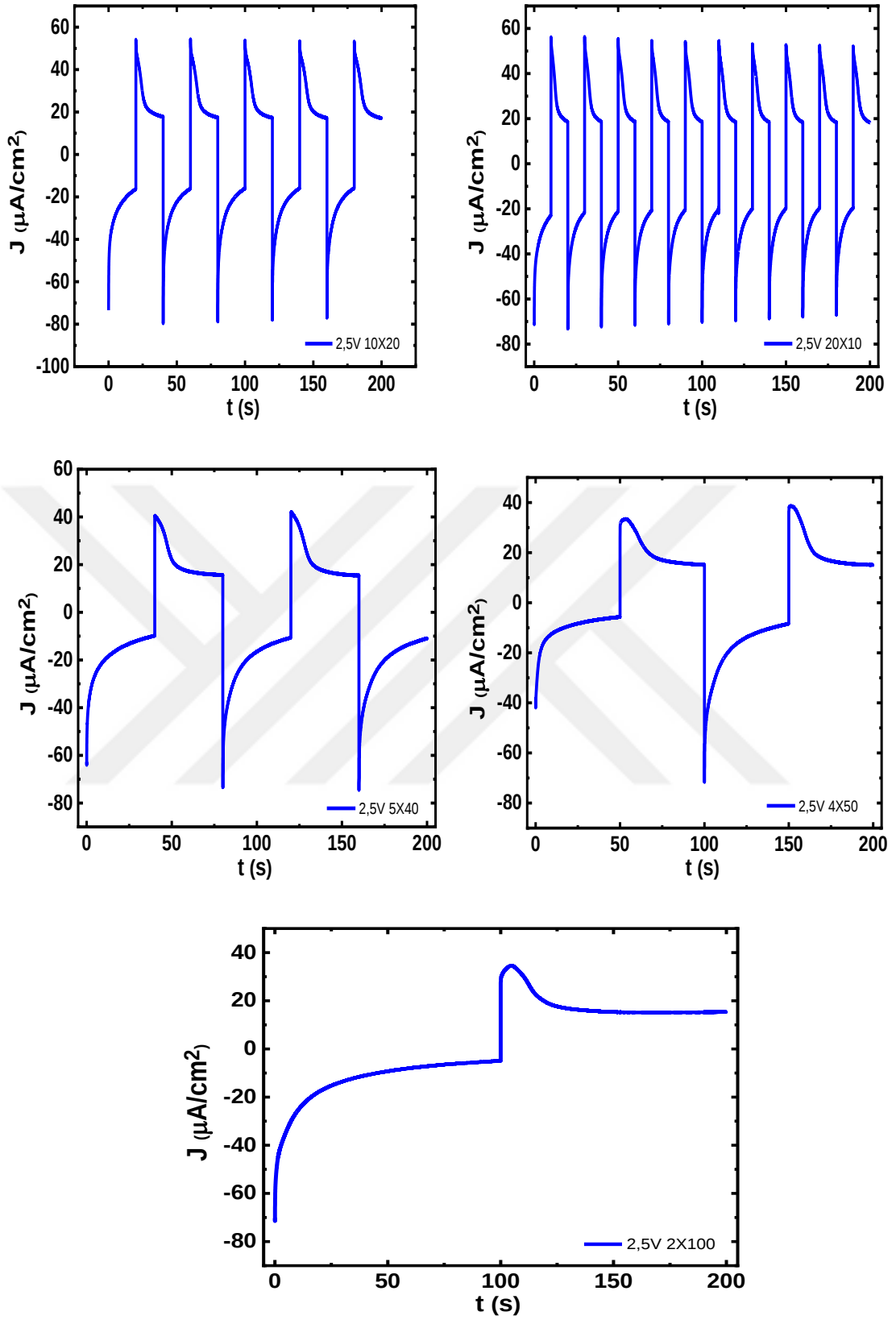
Şekil 4.31. G5 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.32. G5 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.33. G5 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.34. G5 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.

KBB yöntemi ile hazırlanmış G5 nolu örneğin uygulama gerilimi $\pm 0,5V$, $\pm 1V$, $\pm 1,5V$, $\pm 2V$ ve $\pm 2,5 V$ aralığında 10, 20, 30, 40, ve 50 $mV.s^{-1}$ tarama hızlarından elde edilen CV eğrilerinden örneğin katodik (I_C), anodik (I_A) maksimum akım yoğunluğu değerleri ve giren (Q_C) ve çıkan (Q_A) yük miktarları hesaplanmıştır. Tablo 4.13’de bu değerler verilmiştir.

Tablo 4.13. G5 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

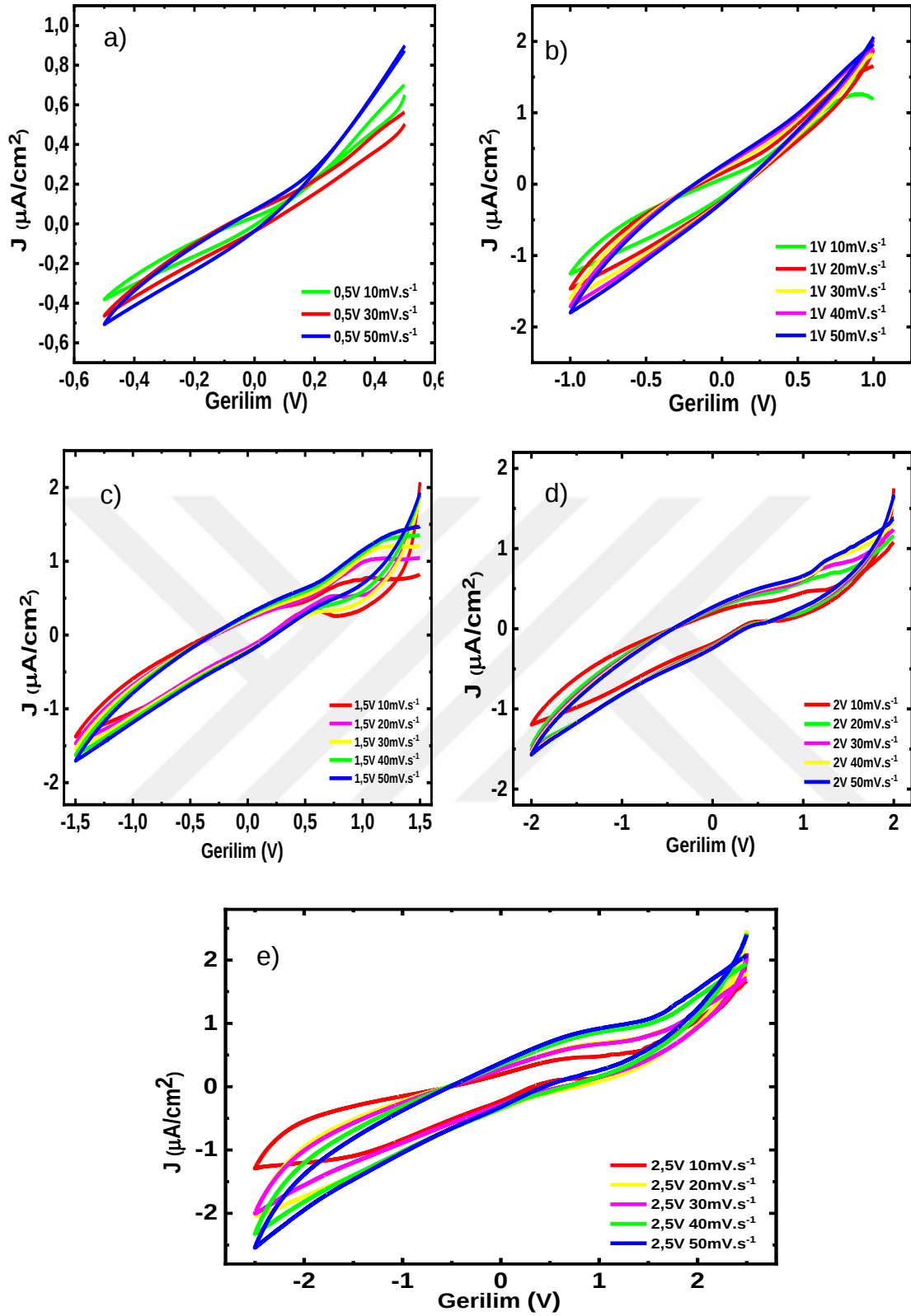
Gerilim (V)	Tarama Hızı ($mV.s^{-1}$)	Q_A ($\mu C/cm^2$)	Q_C ($\mu C/cm^2$)	I_C ($\mu A/cm^2$)	I_A ($\mu A/cm^2$)
$\pm 0,5$	10	21,13	32,02	2,97	1,17
	30	14,33	14,02	3,04	3,04
	50	12,21	10,28	3,20	3,20
± 1	10	31,30	50,8	3,87	3,08
	20	57,33	61,52	4,04	2,45
	30	43,21	43,96	4,17	2,78
	40	36,01	34,87	4,32	2,96
	50	31,82	29,45	4,43	3,02
$\pm 1,5$	10	134,02	263,92	6,36	5,69
	20	117,01	101,34	4,92	5,54
	30	86,47	80,82	5,82	4,94
	40	69,74	84,07	6,67	5,61
	50	47,68	54,06	6,89	5,65
± 2	10	8,23	10,36	8,23	10,36
	20	8,99	10,70	8,99	10,66
	30	9,12	10,50	9,12	10,50
	40	9,72	10,58	9,74	10,58
	50	10,59	11,53	10,60	11,53
$\pm 2,5$	10	713,51	809,11	9,43	17,07
	20	475,68	1051,21	13,58	18,65
	30	542,34	716,67	15,13	18,55
	40	476,53	587,15	18,32	18,72
	50	396,21	469,82	18,62	20,02

G5 örneğinin $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V uygulanan potansiyel farklarda 20 ve 100 saniyelik pulslarla toplamda 200 saniye boyunca olan akım-zaman eğrilerinden film yüzeyine giren/çıkan yük miktarı hesaplanmıştır. Tablo 4.14’de hesaplanan giren ve çıkan yük miktarları verilmiştir.

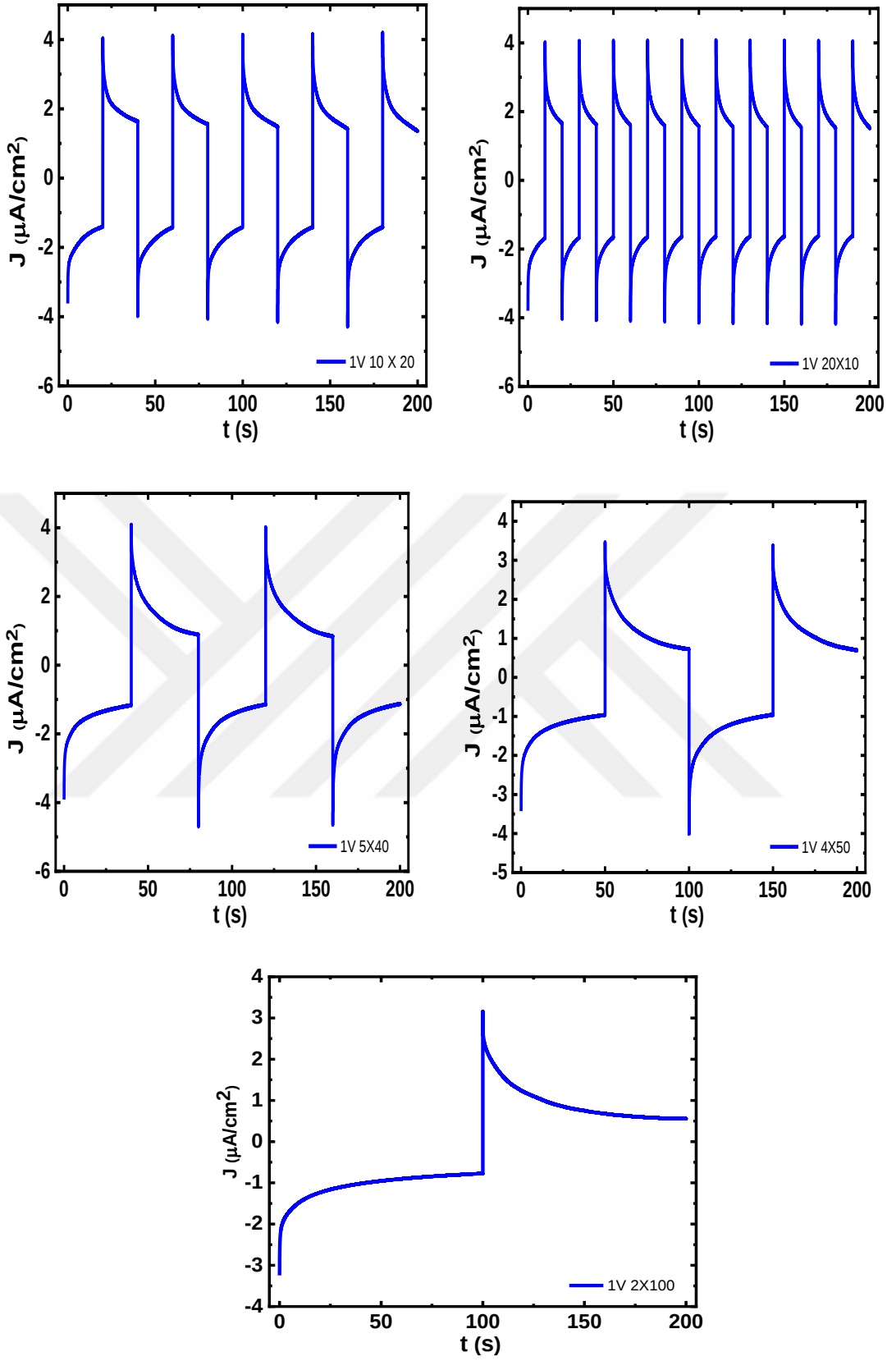
Tablo 4.14. G5 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	$\Delta Q_c(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_c(\mu C/cm^2)$ (2X100)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (2X100)
± 1	92,99	81,44	212,01	214,16
$\pm 1,5$	161,74	150,21	469,89	507,85
± 2	64,56	69,32	799,39	1004,44
$\pm 2,5$	511,57	508,22	1282,13	1789,12

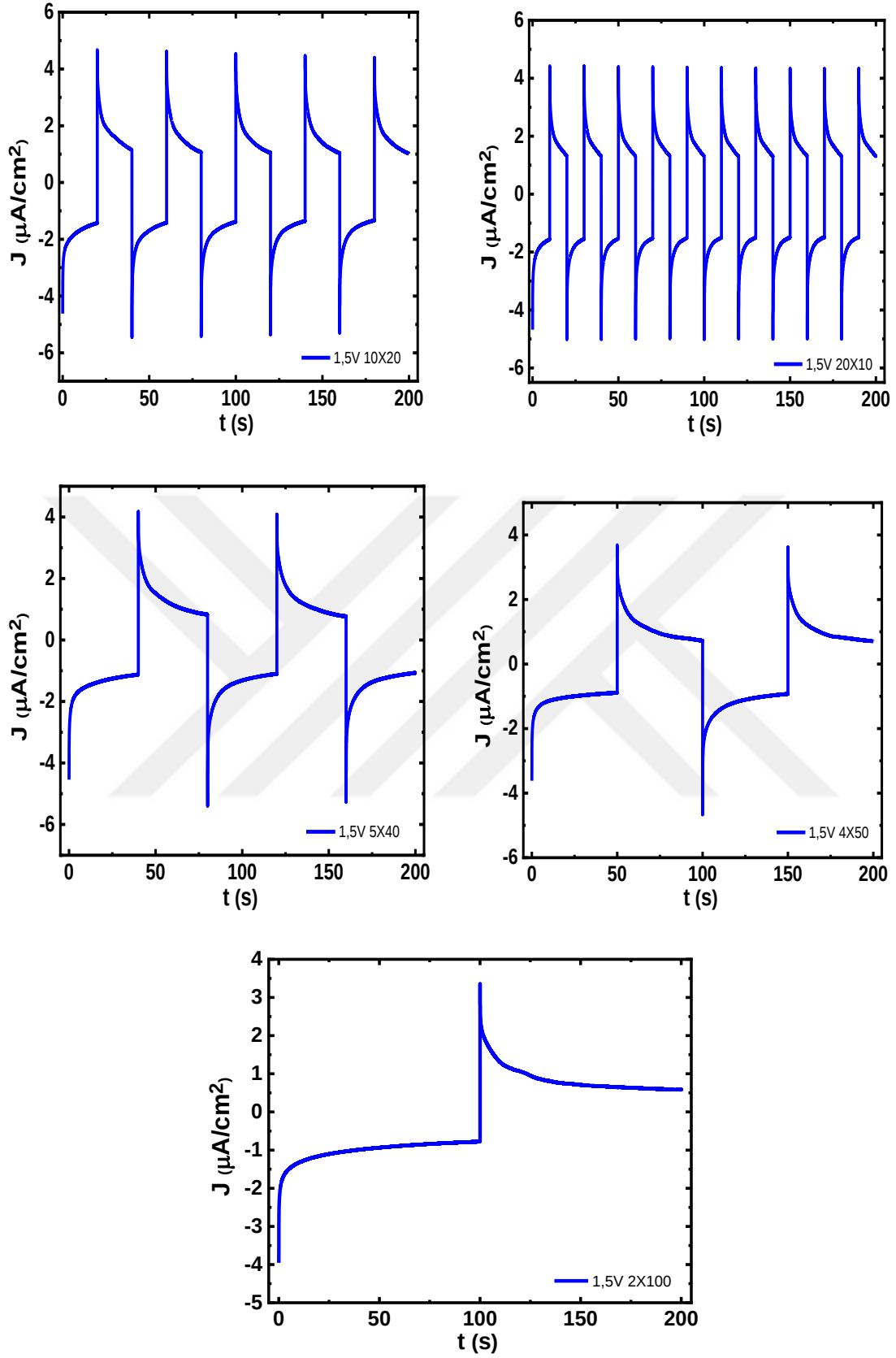
G5 nolu örnek üzerine uygulanan tüm gerilim aralıkları için ölçülen CV eğrileri incelendiğinde, tarama hızı arttırıldıkça CV eğrilerinin altında kalan alanlar ile katodik ve anodik tepe akımı değerlerinin de arttığı görülmektedir. Çalışılan tüm gerilimler de anodik ve katodik piklerin tepe değerleri potansiyel fark artışı ile arttığı ve özellikle $\pm 1,5$ V potansiyel farktan sonra daha da belirgin hale geldiği saptanmıştır. Ek olarak, ± 2 V çalışma geriliminden $\pm 2,5$ V’a çıkıldığı zaman anodik ve katodik yük miktarlarının neredeyse iki katına çıktığı görülmektedir. Aynı örneğin 50 mV.s^{-1} tarama hızında $\pm 2,5$ V gerilim altında anodik ve katodik yük miktarları sırası ile $Q_A=396,21 \mu C/cm^2$ ve $Q_C=469,82 \mu C/cm^2$ olarak hesaplanmıştır. CA eğrileri incelendiğinde, film yüzeyine giren/çıkan yük miktarlarının uygulanan potansiyel fark ile birlikte arttığı gözlemlenmiştir.



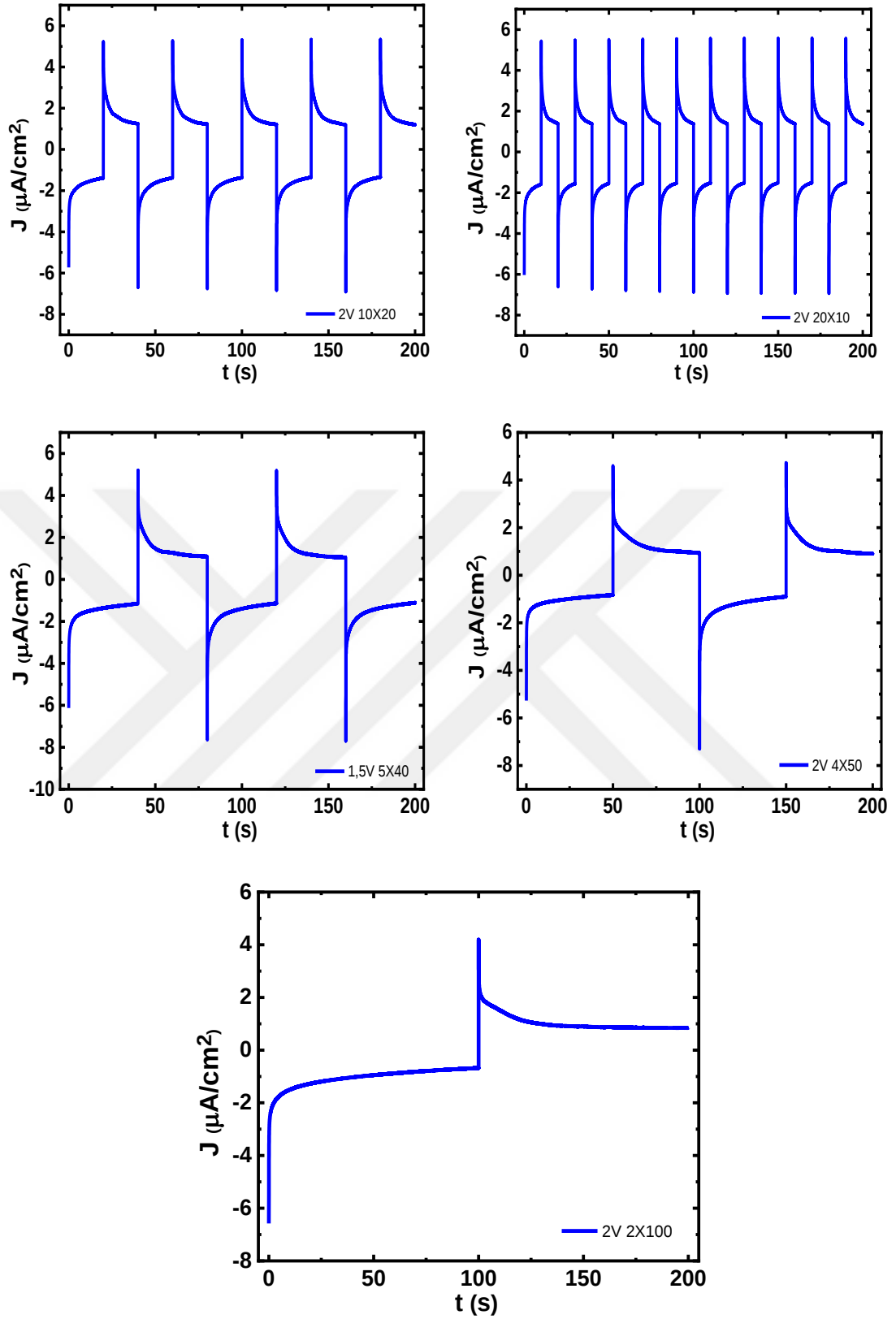
Şekil. 4.35. Cam alttaş üzerine transfer edilen G6 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 $\text{mV}\cdot\text{s}^{-1}$ tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.



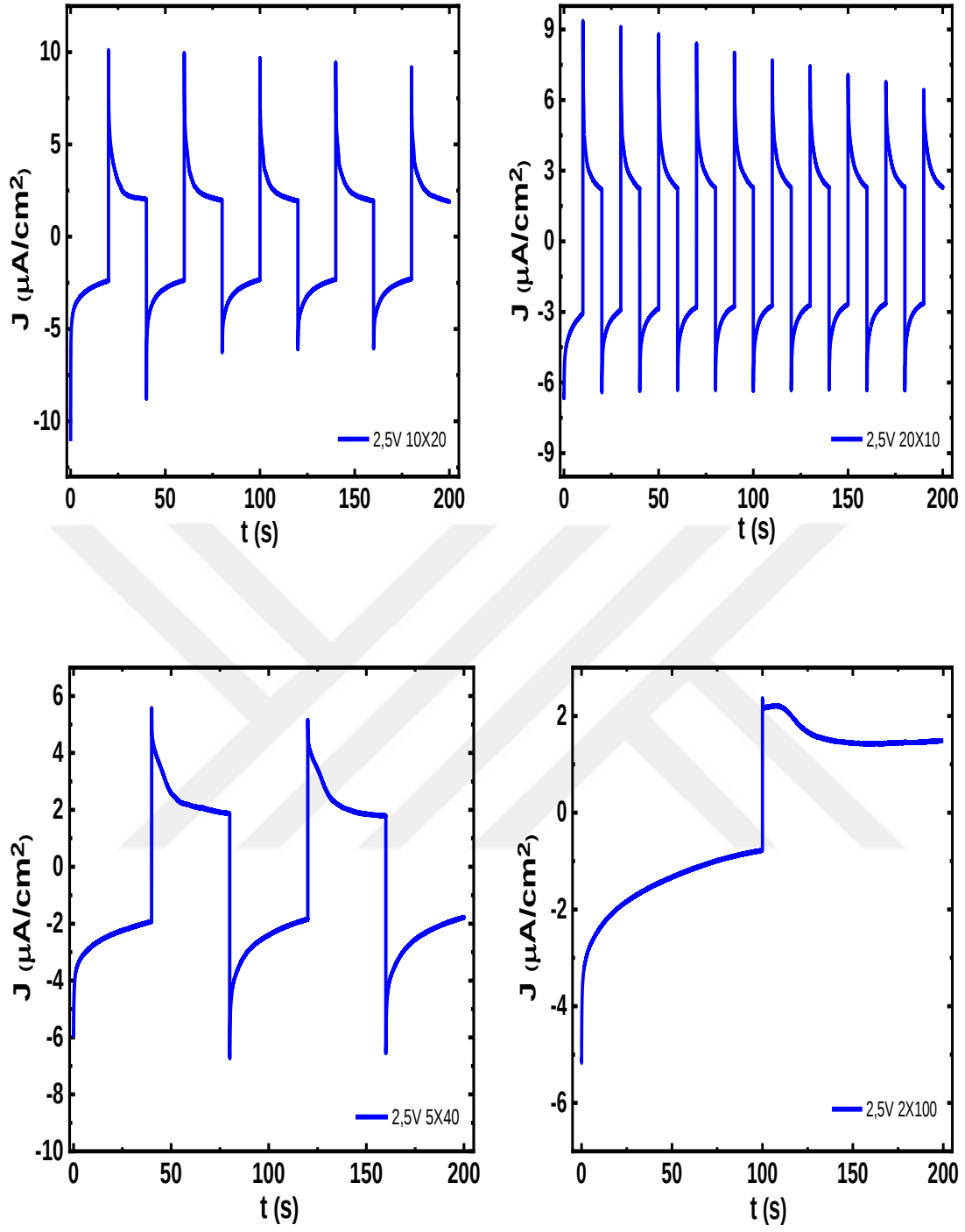
Şekil 4.36. G6 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.37. G6 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.38. G6 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.39. G6 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.

KBB yöntemi ile hazırlanmış G6 nolu örneğin uygulama gerilimi $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 30, 40, ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarından elde edilen CV eğrilerinden faydalanarak maksimum I_c ve I_A akım değerleri, anodik (Q_A), ve katodik (Q_c) yük miktarları hesaplanmıştır. Tablo 4.15’de bu değerler verilmiştir.

Tablo 4.15. G6 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

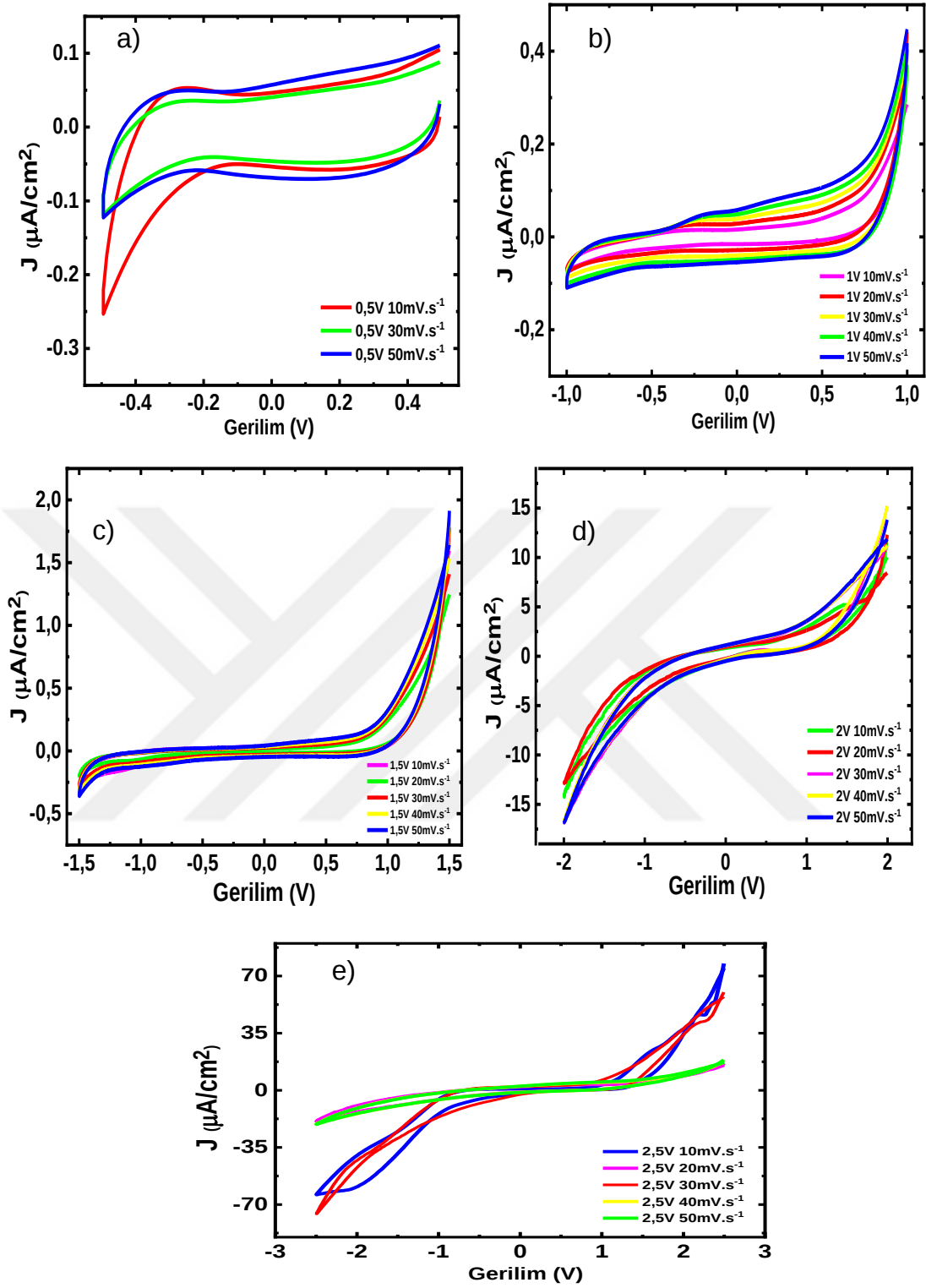
Gerilim (V)	Tarama Hızı (mV.s^{-1})	Q_A ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	Q_c ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	I_c ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)	I_A ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)
$\pm 0,5$	10	1,78	2,73	0,38	0,70
	30	1,30	1,29	0,46	0,51
	50	0,22	0,99	0,51	0,90
± 1	10	1,36	30,53	1,25	2,02
	20	10,87	19,64	1,46	1,89
	30	7,68	14,17	1,61	1,96
	40	6,03	11,03	1,71	2,03
	50	5,04	8,93	1,82	2,06
$\pm 1,5$	10	30,21	62,53	1,37	2,07
	20	14,21	26,42	1,47	1,91
	30	17,28	18,92	1,54	1,85
	40	12,69	14,74	1,62	1,90
	50	9,98	12,06	1,71	1,93
± 2	10	33,17	72,78	1,20	1,75
	20	24,45	40,04	1,46	1,67
	30	23,85	25,61	1,61	1,86
	40	16,60	18,61	1,54	1,60
	50	14,17	14,67	1,57	1,67
$\pm 2,5$	10	57,01	48,71	1,29	2,11
	20	51,75	91,15	2,04	2,47
	30	32,63	46,01	2,01	2,04
	40	31,37	39,52	2,34	2,42
	50	24,04	74,91	2,54	2,40

G6 örneğinin ± 0.5 V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V uygulanan potansiyel farklarda 20 ve 100 saniyelik pulslarla toplamda 200s boyunca olan akım-zaman eğrilerinden film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarı hesaplanmıştır. Tablo 4.16’da hesaplanan ΔQ_C ve ΔQ_A yük miktarları verilmiştir.

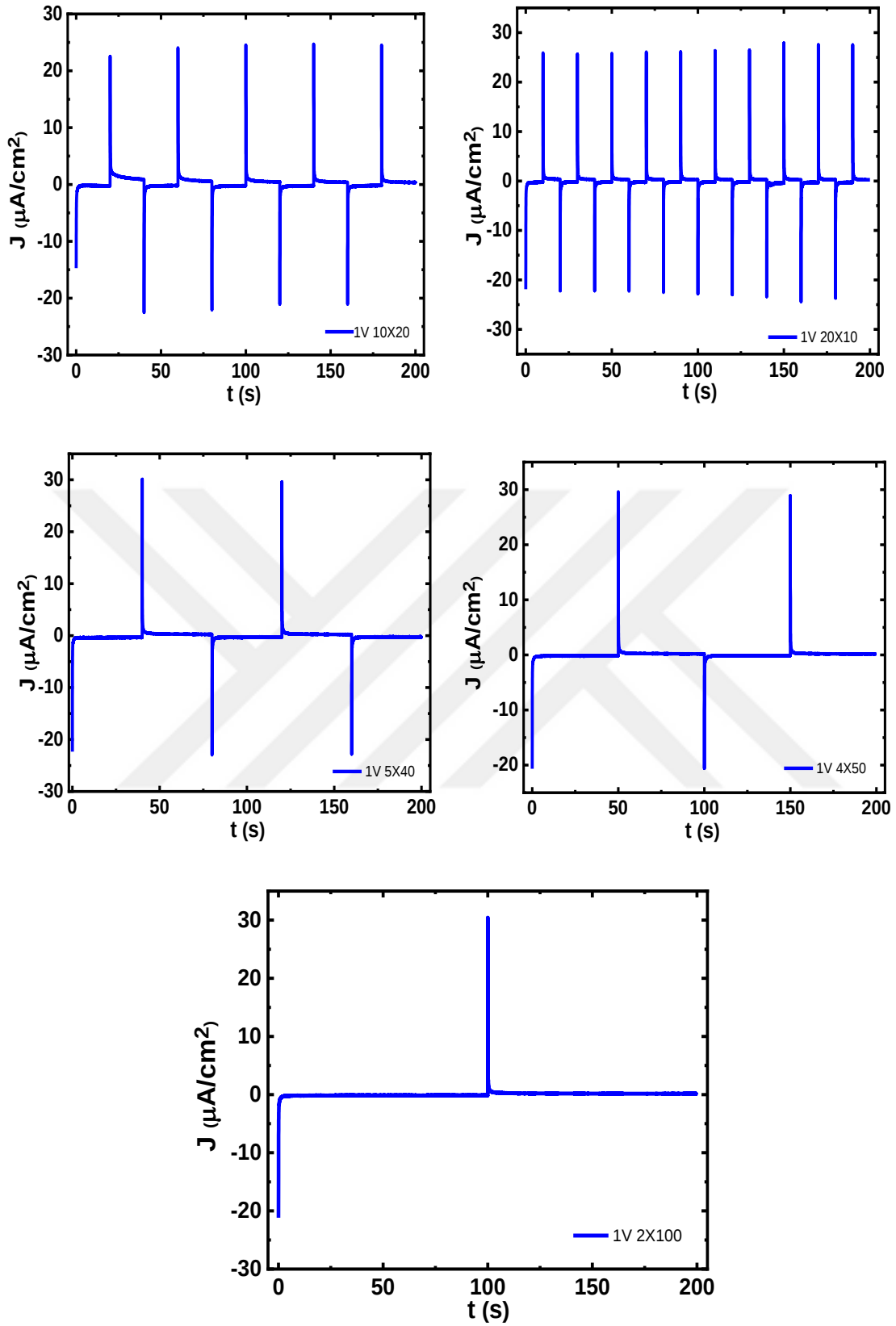
Tablo 4.16. G6 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	$\Delta Q_C(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_C(\mu C/cm^2)$ (2X100)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (2X100)
± 1	36,78	39,22	105,31	92,56
$\pm 1,5$	36,61	32,63	101,26	85,42
± 2	35,50	32,67	104,85	103,28
$\pm 2,5$	60,72	54,33	149,21	161,09

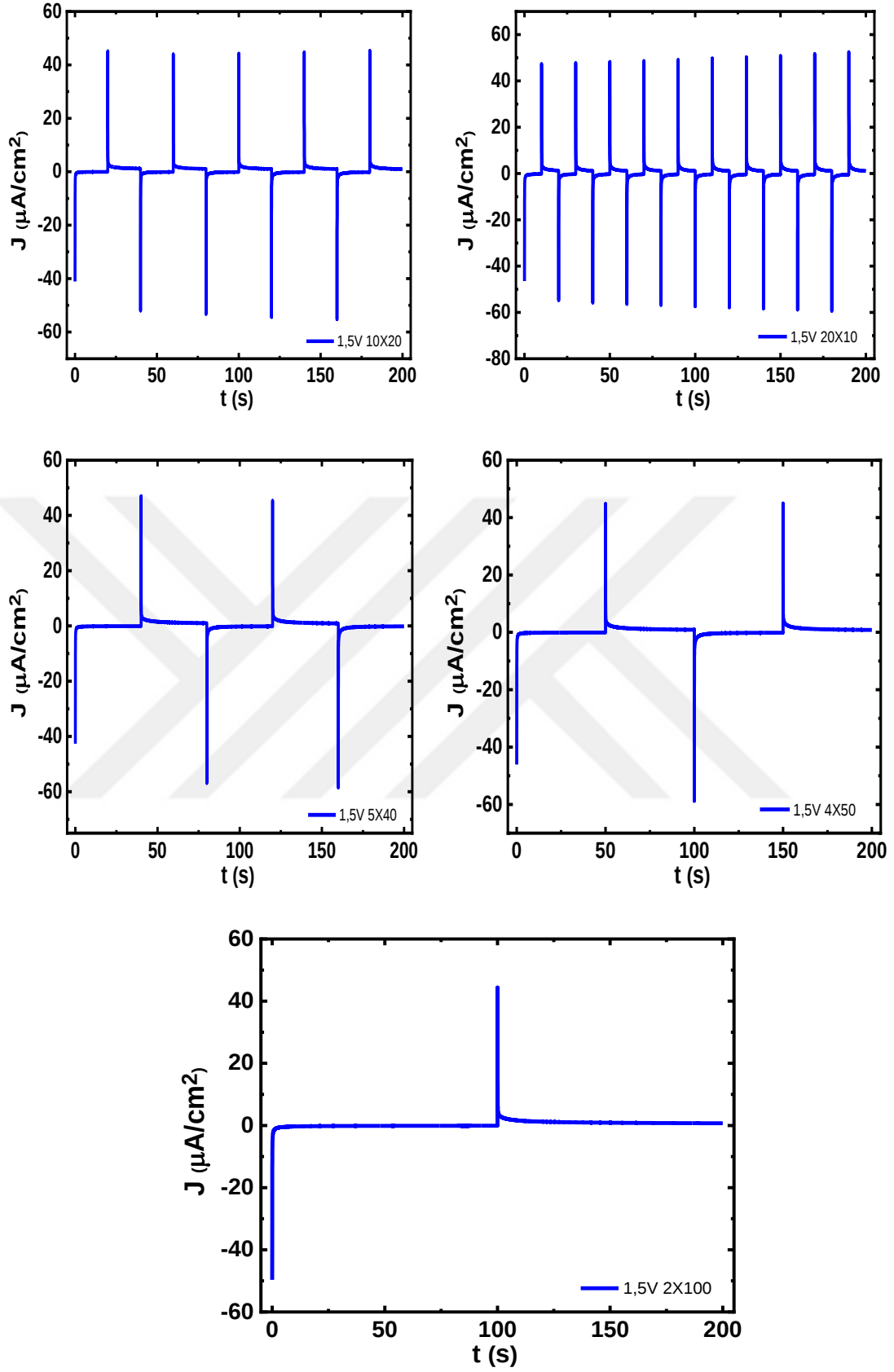
G6 nolu örnek üzerine uygulanan tüm gerilim aralıkları için ölçülen CV eğrileri incelendiğinde, tarama hızı arttırıldıkça CV eğrilerinin altında kalan alanlar ile katodik ve anodik tepe akımı değerlerinin de arttığı görülmektedir. Tüm gerilimlerdeki tarama hızı ve gerilim artışı ile birlikte maksimum anodik ve katodik akım piklerinin değerleri birbirilerine benzer oranlarda arttığı görülmektedir. Aynı örneğinin CA eğrilerinden yararlanılarak hesaplanan film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarı değerleri uygulanan potansiyel fark ile birlikte arttığı görülmektedir. Hesaplanan katodik ve anodik yük miktarları birbirine yakındır.



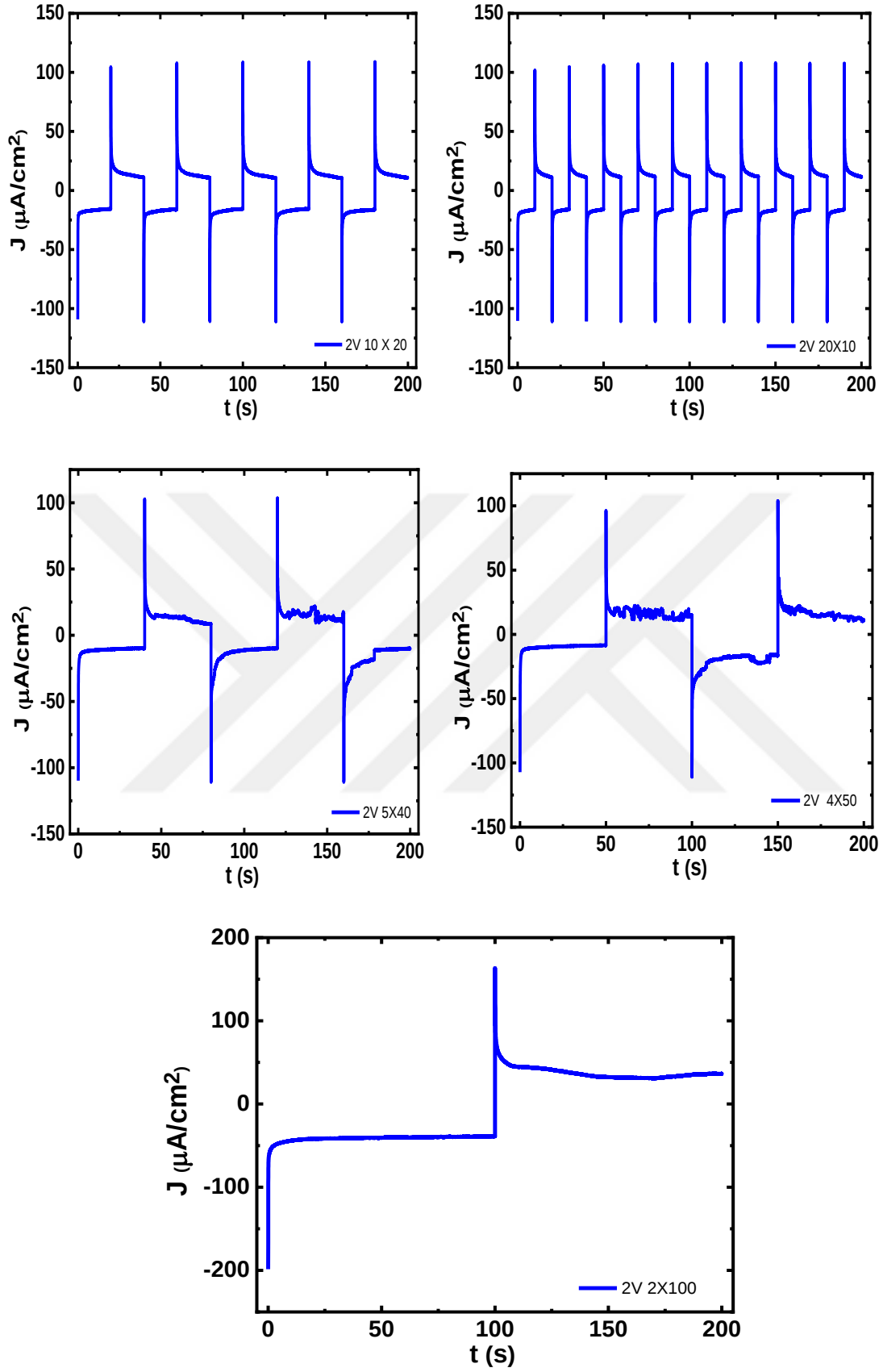
Şekil 4.40. Cam alttaş üzerine transfer edilen G7 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 $\text{mV}\cdot\text{s}^{-1}$ tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.



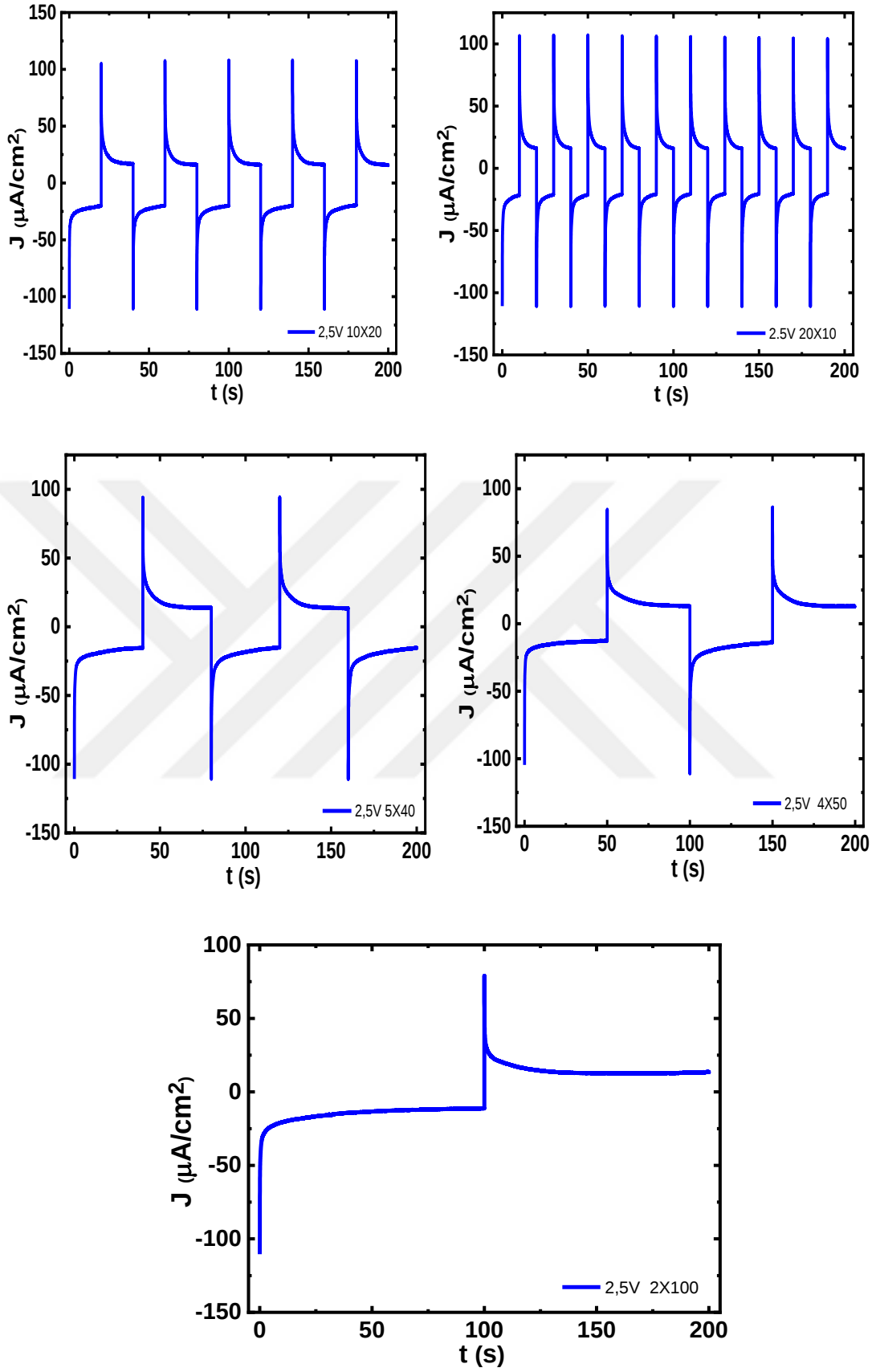
Şekil 4.41. G7 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.42. G7 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslerle elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.43. G7 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50, ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.44. G7 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslerle elde edilmiş CA eğrileri.

KBB yöntemi ile hazırlanmış G7 nolu örneğin uygulama gerilimi $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 30, 40, ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarından elde edilen CV eğrilerinden ölçülen maksimum katodik (I_c) ve anodik (I_A) akım yoğunluğu değerleri, anodik (Q_A) ve katodik (Q_C) yük miktarları hesaplanmıştır. Tablo 4.17’de bu değerler verilmiştir.

Tablo 4.17. G7 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	Tarama Hızı (mV.s^{-1})	Q_A ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	Q_C ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	I_c ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)	I_A ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)
$\pm 0,5$	10	1,81	1,92	0,25	0,10
	30	1,53	1,27	0,12	0,09
	50	1,31	1,05	0,13	0,11
± 1	10	4,51	2,82	0,07	0,41
	20	3,52	2,17	0,07	0,44
	30	3,37	1,98	0,09	0,42
	40	3,15	1,82	0,10	0,41
	50	2,84	1,64	0,11	0,45
$\pm 1,5$	10	13,86	5,96	0,30	1,86
	20	10,75	5,01	0,20	1,87
	30	8,33	4,27	0,32	1,88
	40	7,25	3,85	0,35	1,91
	50	6,78	3,58	0,41	1,87
± 2	10	246,21	381,71	14,25	12,28
	20	124,32	185,41	12,85	12,30
	30	96,11	132,20	16,88	15,17
	40	67,25	90,79	16,67	15,19
	50	82,81	68,61	16,82	13,82
$\pm 2,5$	10	192,61	694,58	64,01	77,71
	20	191,82	464,11	18,97	16,47
	30	189,67	301,67	75,73	60,08
	40	179,74	221,75	29,62	18,47
	50	158,61	175,01	20,92	18,63

G7 örneğinin $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V uygulanan potansiyel farklarda 20 ve 100 saniyelik pulslarla toplamda 200 saniye boyunca olan CA eğrilerinden film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarı hesaplanmıştır. Tablo 4.18’de hesaplanan ΔQ_C ve ΔQ_A yük miktarları verilmiştir.

Tablo 4.18. G7 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	$\Delta Q_C(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_C(\mu C/cm^2)$ (2X100)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (2X100)
± 1	8,25	14,38	16,62	21,70
$\pm 1,5$	7,10	29,39	20,54	106,19
± 2	358,18	290,71	4134,65	3748,16
$\pm 2,5$	494,77	418,517	1505,69	1456,25

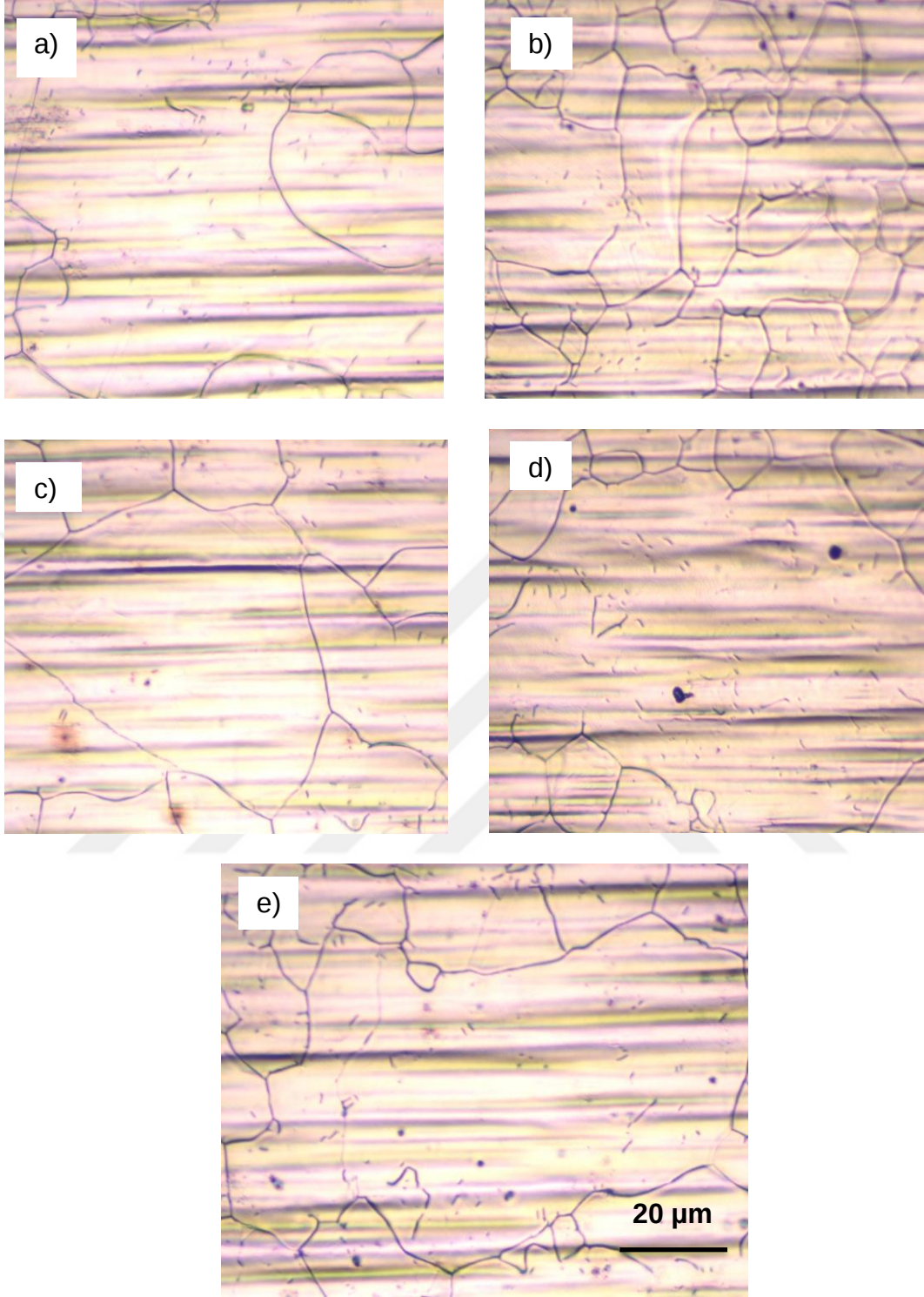
G7 nolu örnek üzerine uygulanan tüm gerilim aralıkları için ölçülen CV eğrileri incelendiğinde, tarama hızı arttırıldıkça CV eğrilerinin altında kalan alanlar ile katodik ve anodik tepe akımı değerlerinin de arttığı görülmektedir. CV eğrilerinden yararlanılarak yapılan hesaplar incelendiğinde, katodik maksimum akım piklerinin, maksimum anodik akım piklerine göre daha yüksek olduğu görülmektedir. Aynı örneğin elektrokimyasal ölçümleri kapsamında incelenen kronoamperometri eğrilerinden film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarlarının uygulanan potansiyel fark ile birlikte arttığı görülmektedir. Sonuçlar değerlendirildiğinde, katodik ve anodik yük miktarları birbirine oldukça yakındır.

4.2.3. Plazma Destekli Kimyasal Buhar Biriktirme Yöntemi ile Sentezlenen Grafen Filmlerin Özellikleri Üzerine Büyütme Süresinin Etkisi

Tez çalışmalarının bu bölümün de grafen örneklerin sentez sürecinin optimizasyonu için deneysel çalışmalar yapılmıştır. Yapılan ön deneyler gaz akış miktarları, tavlama sıcaklığı, tavlama süresi ve büyütme parametrelerinin yanında uygulanan gücün etkilerini belirlemek için gerçekleştirilmiştir. Optimizasyon için yapılan deneyler değerlendirilerek en iyi sonuç veren deney parametreleri kombinasyonu belirlenmiştir ve bu değerler kullanılarak dört farklı büyütme süresinde deneyler gerçekleştirilmiştir. Bu kapsamdaki grafen sentezi deneyleri için Ar, H₂ ve CH₄ gazları için dakika başına santimetre küp gaz akış oranları sırasıyla 5, 5 ve 40 sccm olarak belirlenmiştir. Örneklerin 850 °C’de büyütme süreleri 5, 10, 20, 30 ve 40 dakika olmak üzere toplam beş farklı sentez 200 Watt (W) RF güç altında gerçekleştirilmiştir. Tablo 4.19’da örneklerin büyütme parametreleri verilmiştir.

Tablo 4.19. PDKBB tekniği ile hazırlanan örneklerin büyütme parametreleri.

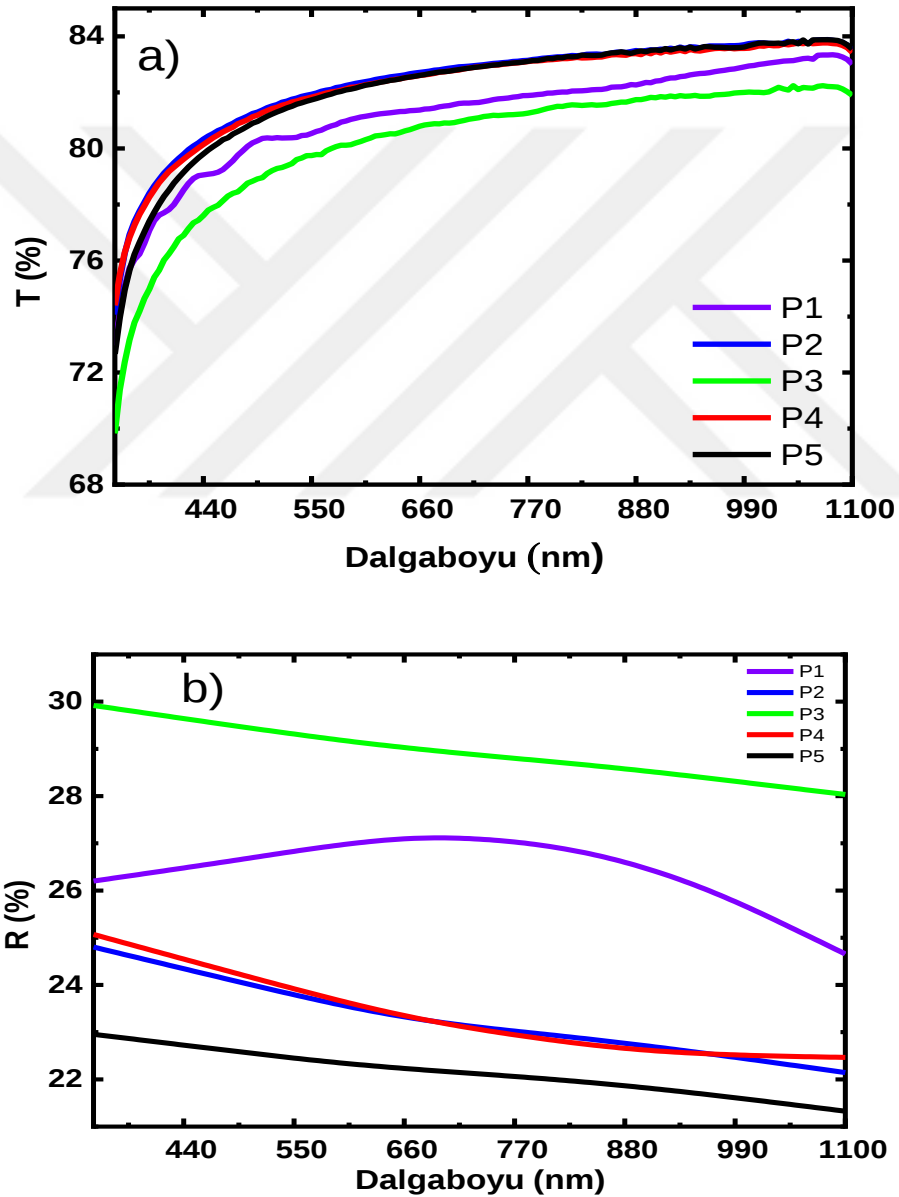
Örnek Adı	Ar (sccm)	H ₂ (sccm)	CH ₄ (sccm)	Tavlama Süresi (dk)	Büyütme Süresi (dk)	Güç (W)
P1	5	5	40	35	5	200
P2	5	5	40	35	10	200
P3	5	5	40	35	20	200
P4	5	5	40	35	30	200
P5	5	5	40	35	40	200



Şekil.4.45. KBB yöntemi ile sentezlenen a) G2, b) G5, c) G6 ve d) G7 nolu örneklerden alınan optik mikroskop görüntüleri.

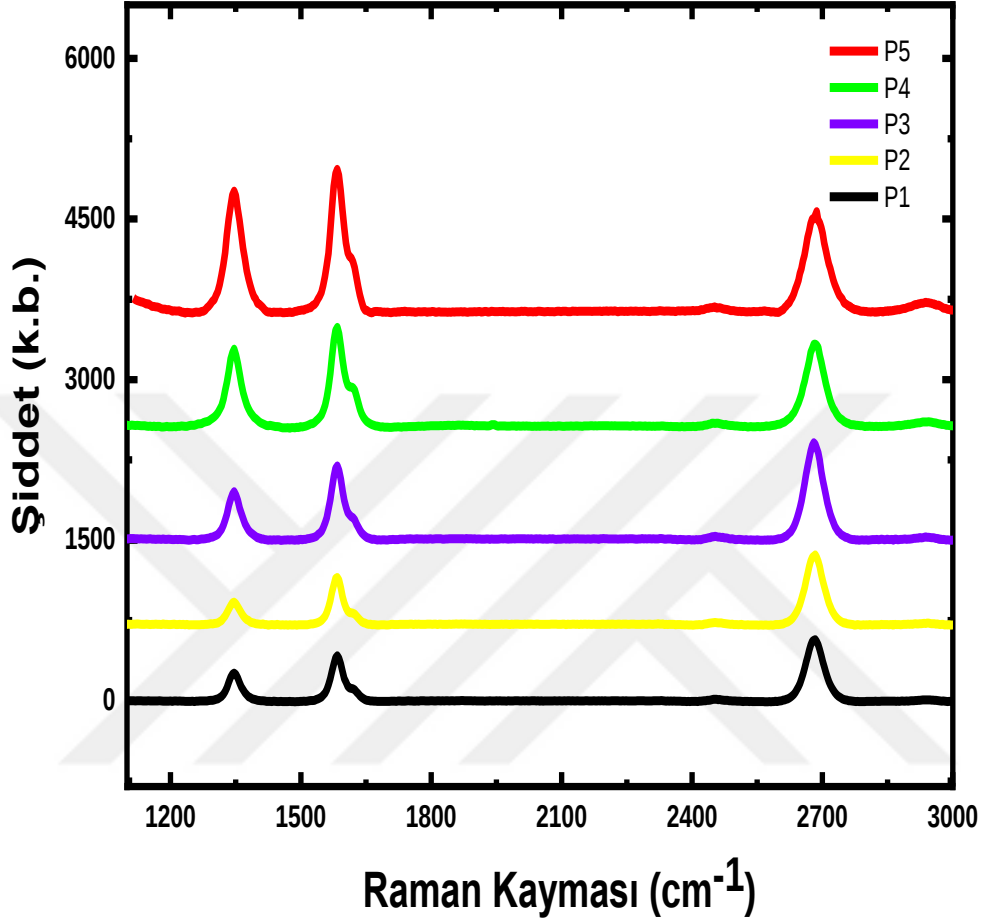
Optik mikroskop görüntüleri incelendiğinde, bakır folyo üzerinde oluşan farklı büyüklük ve yönelimlerde tanecikler bulunmaktadır. Oluşan mikro grainlerin sınırları belirgin bir şekilde görülmektedir.

PDKBB tekniđi ile farklı gaz akış miktarlarında büyütölmüş örneğlerin dalga boyuna bağılı optik yansıtma ve geçirgenlikleri Şekil 4.40’de verilmiştir. P1, P2, P3, P4 ve P5 nolu örneğlerin optik geçirgenlikleri incelendiğinde, 550 nm dalga boyundaki optik geçirgenlikleri sırasıyla % 80,54, % 81,9, % 79,7, % 81,8 ve % 81,7’dir. En yüksek optik geçirgenlik on dakika büyütme süresiyle gerçekleştirilen P2 örneğinde, en düşük değeri ise, yirmi dakikada büyütölen P3 nolu örnekte gözlemlenmektedir. Diğer örneğlerin optik geçirgenlikleri ise birbirine çok yakındır ve aralarında ardışık bir değışim görölmemektedir.



Şekil 4.46. P1, P2, P3, P4 ve P5 örneğlerinin a) optik geçirgenlik ve b) optik yansıtma spektrumları.

Aynı örneklerin Raman spektrumları incelenmiştir. Şekil 4.41’de tüm örneklerde grafenin Raman spektrumunda sahip olması beklenen D, G ve 2D olarak adlandırılan üç ana pik görülmektedir.



Şekil 4.47. P1, P2, P3, P4 ve P5 nolu örneklerin Raman spektrumları.

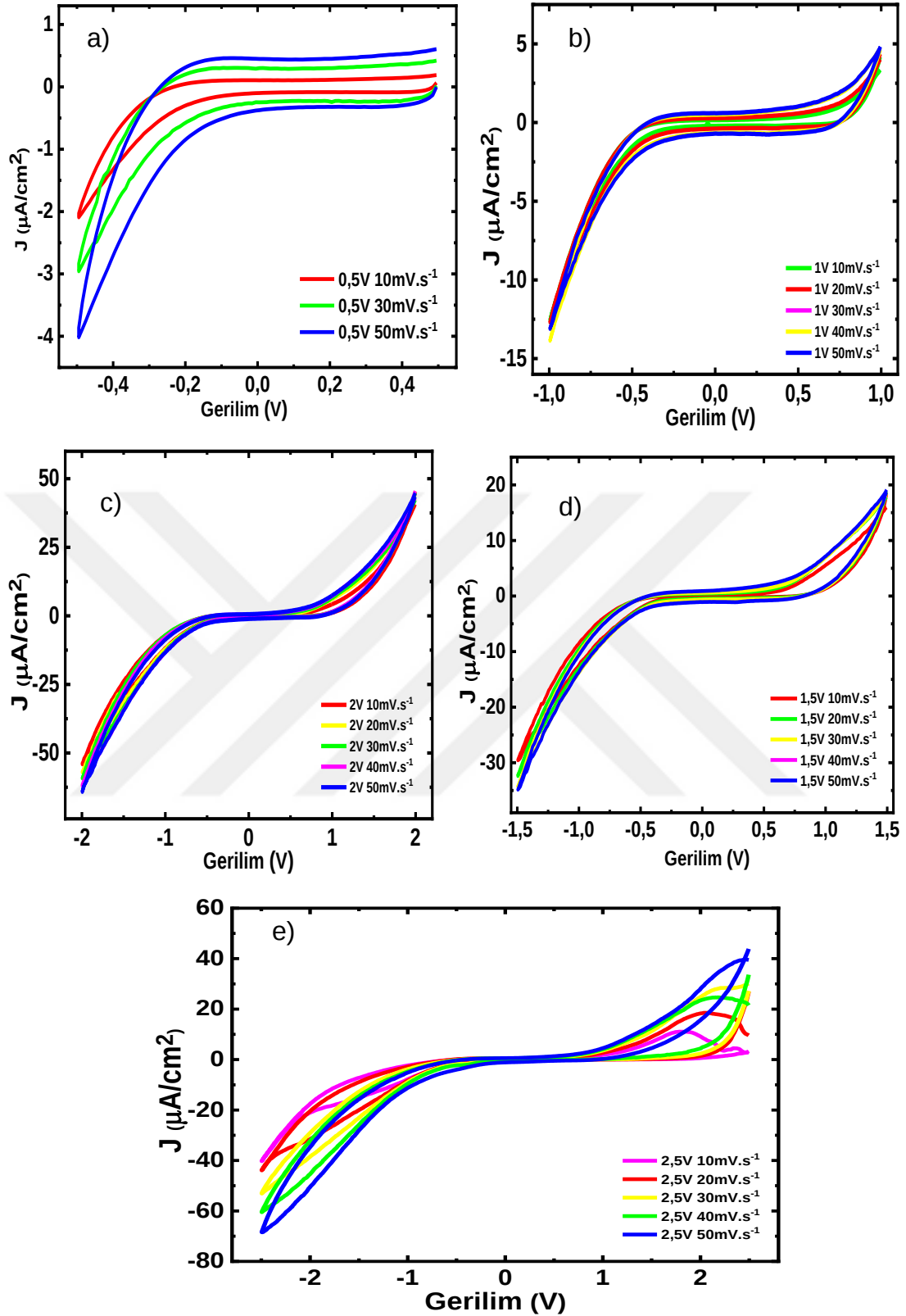
P1, P2, P3, P4 ve P5 nolu örneklerin Raman spektrumları incelendiğinde her örneğin farklı Raman spektrumunun olduğu görülmektedir. Tek katmanlı grafen için 2D pikinin konumu 2679 cm^{-1} civarında olduğu ve bu değerin grafenin katman sayısı arttıkça sağa doğru kaydığı bilinmektedir. Tek katmanlı grafenin Raman spektrumunda G pikinin konumu ise yaklaşık olarak 1587 cm^{-1} ’dir. Katman sayısı arttıkça G pikinin konumu sola doğru kaymaktadır [52,53]. Aynı örneklerin Raman spektrumu incelendiğinde, P2 nolu örneğin D pikinin şiddeti diğer örneklerle kıyasla daha düşük olduğu için bu örneğin iç yapısındaki kusurların daha az olduğu düşünülmektedir.

Tablo 4.20’de grafen örneklerin Raman spektrumlarındaki farklı oranlarda ve pozisyonlarda olan piklerin bazı karakteristik özellikleri verilmiştir.

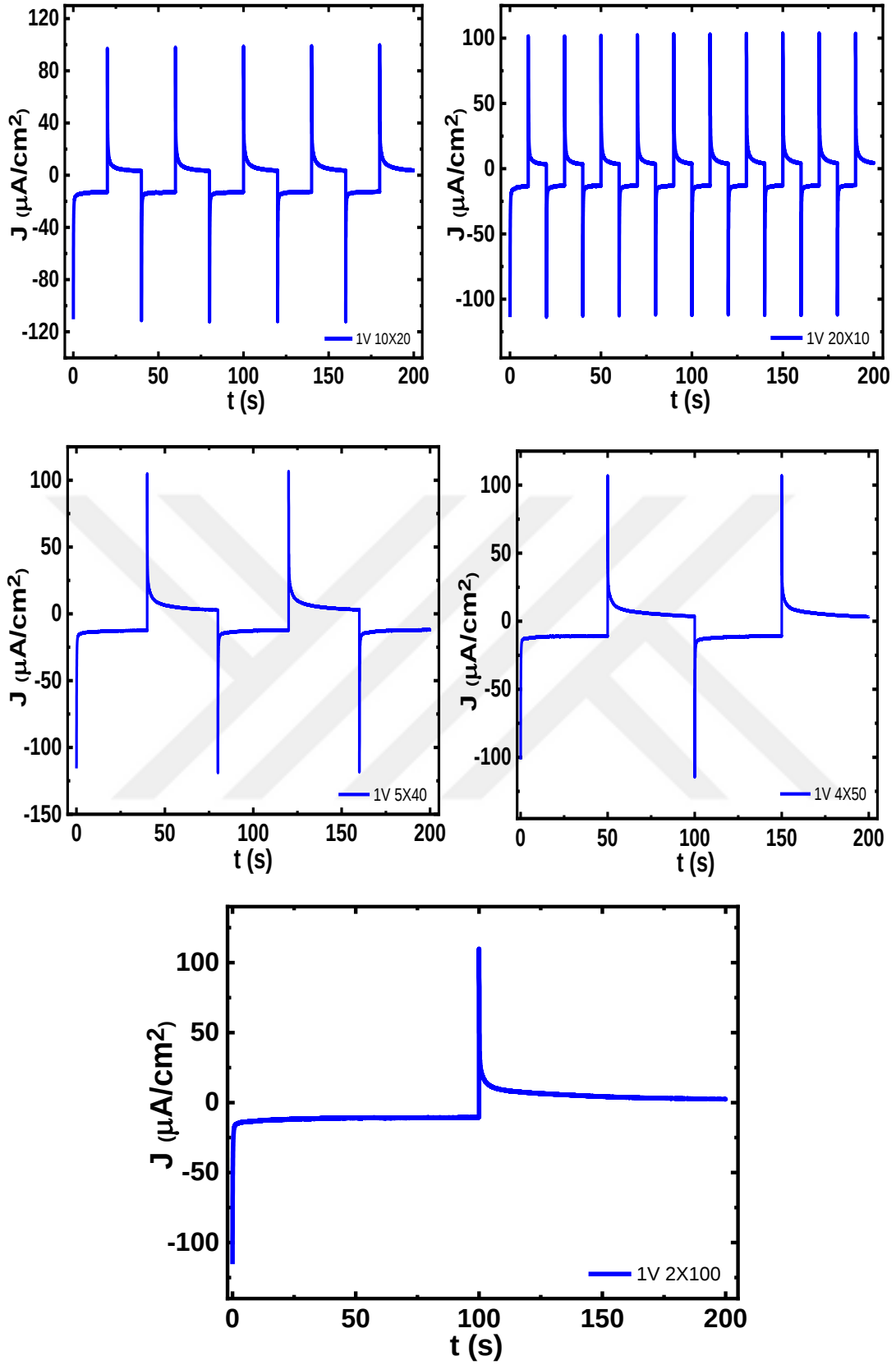
Tablo 4.20. P1, P2, P3, P4 ve P5 nolu örneklerin Raman spektroskopisinden elde edilen bilgiler.

Örnek Adı	Pik Merkezi (cm ⁻¹)	Maksimum Şiddet (k.b.)	FWHM (cm ⁻¹)	I _D /I _G	I _{2G} /I _G
P1	1347,01	259,51	34,94	0,61	1,37
	1583,88	422,40	39,56		
	2682,13	5771,81	50,65		
P2	1346,55	191,51	35,38	0,48	1,54
	1583,75	401,25	36,56		
	2681,87	617,97	49,94		
P3	1346,90	441,89	38,55	1,54	1,32
	1583,88	681,28	43,41		
	2681,08	899,42	51,83		
P4	1346,39	641,98	42,69	0,92	0,90
	1587,09	780,75	50,40		
	2682,90	705,20	53,51		
P5	1346,92	984,62	40,31	0,86	0,70
	1585,43	1326,12	41,78		
	2684,73	929,71	61,14		

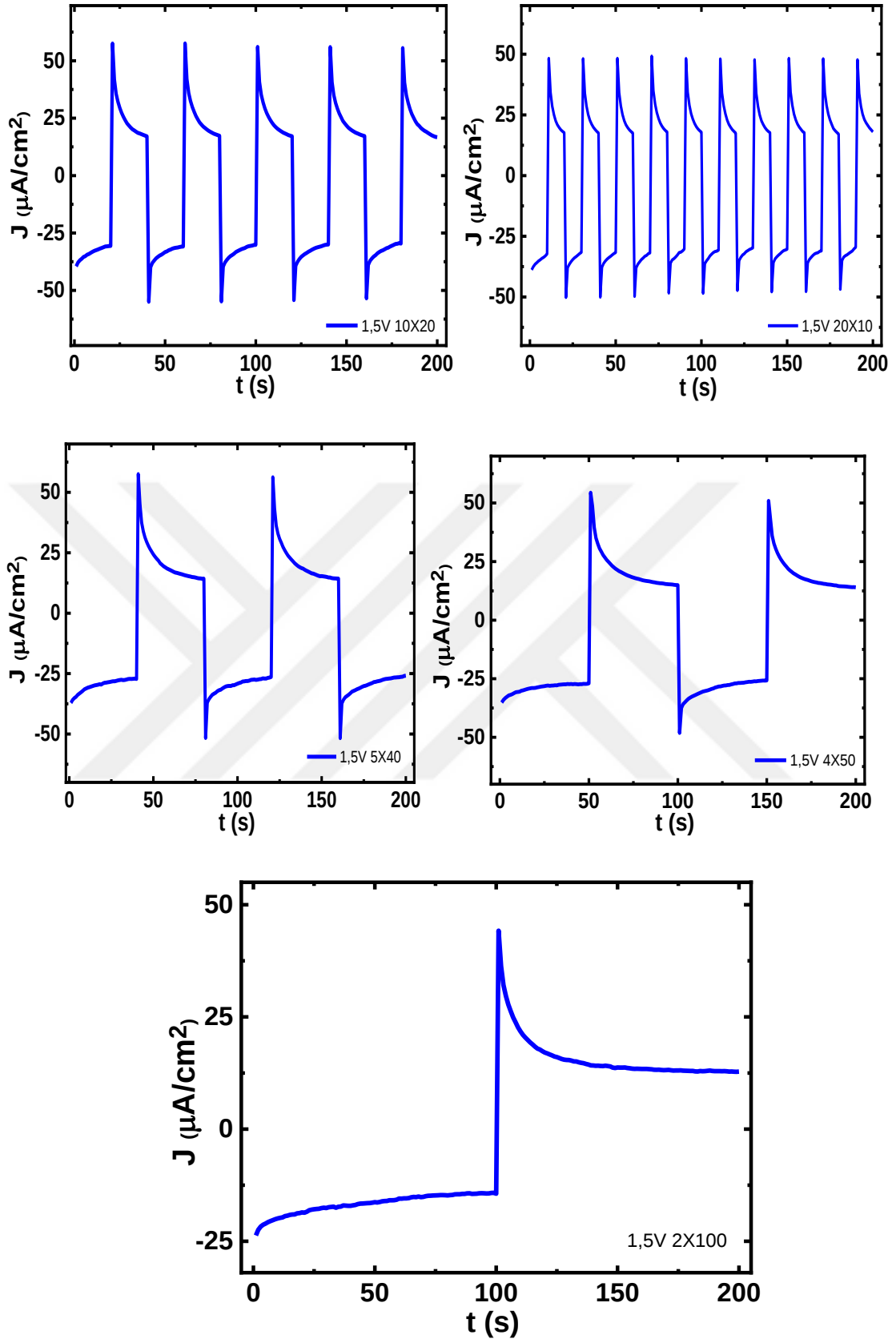
Tablodaki verilerden örneklerin Raman spektroskopisindeki I_D/I_G ve I_{2D}/I_G oranları hesaplanmıştır. Tüm sonuçlar incelendiğinde, P1, P2 ve P3 ve P4 nolu örneklerinin 2 veya 3 katmandan, P5 nolu örneğin 4 veya 5 katmandan oluşabileceği değerlendirilmiştir.



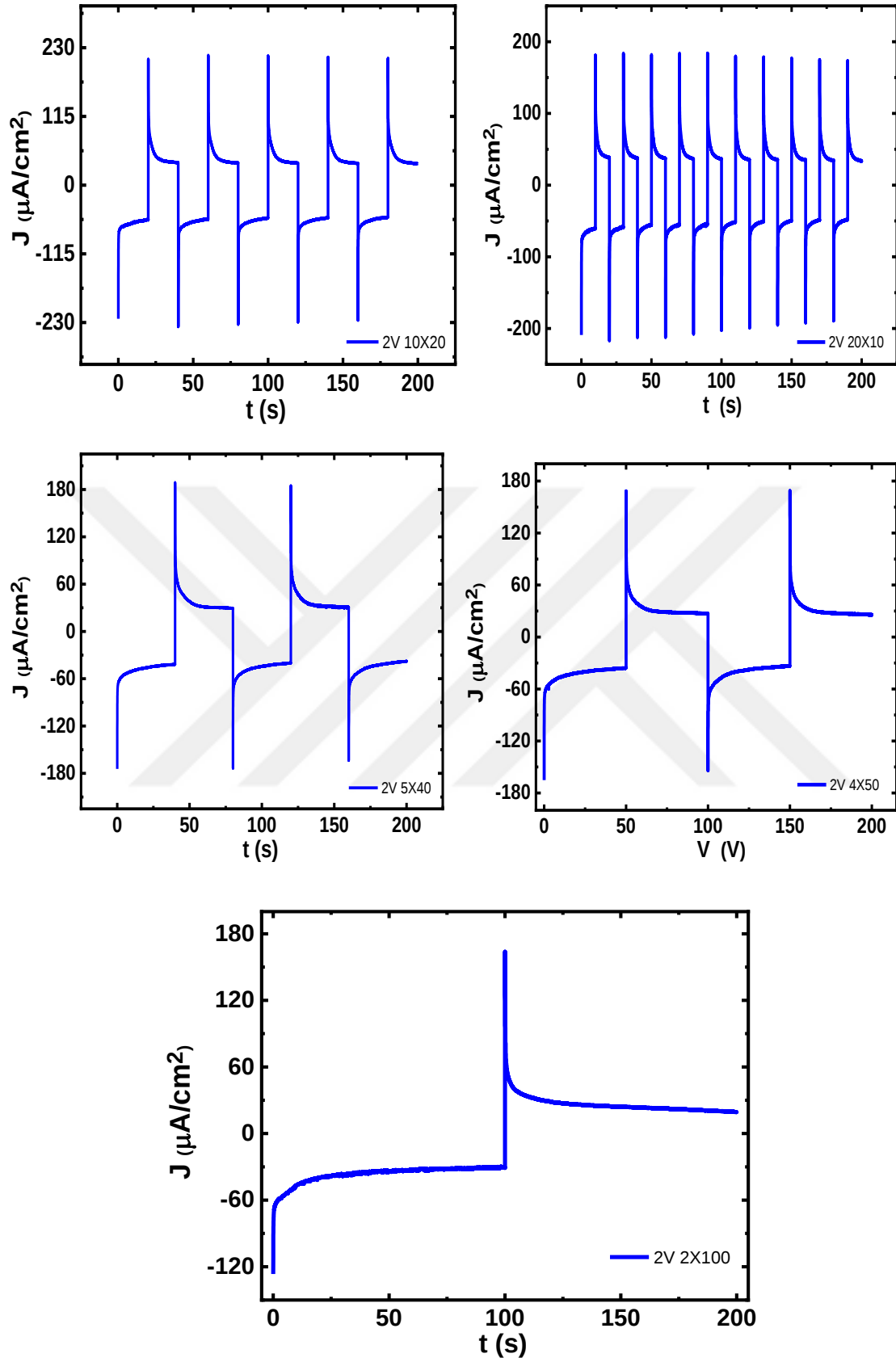
Şekil 4.48. PET alttaş üzerine transfer edilen P1 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 $\text{mV}\cdot\text{s}^{-1}$ tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.



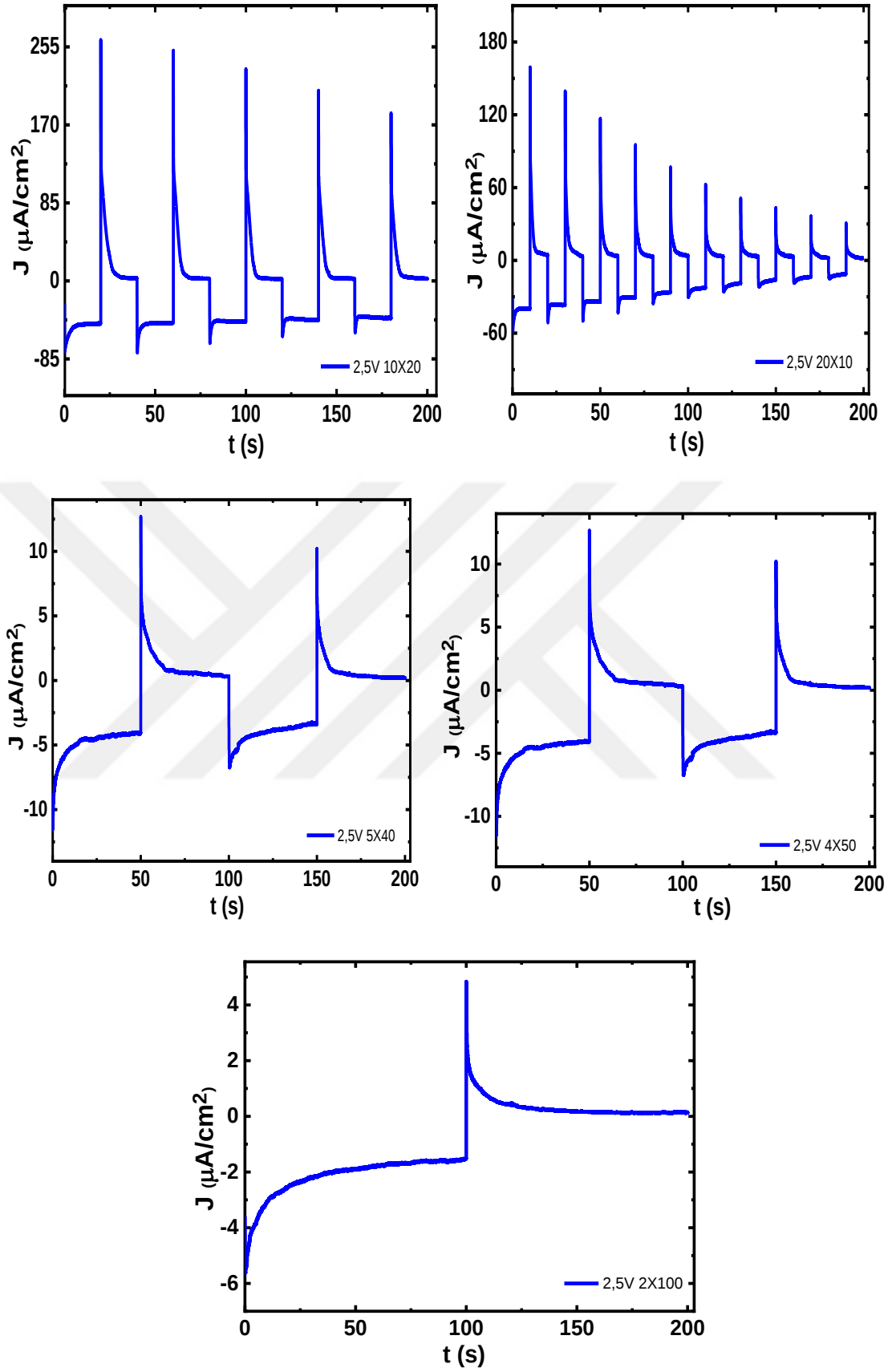
Şekil 4.49. P1 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.50. P1 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.51. P1 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.52. P1 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.

PDKBB yöntemi ile hazırlanmış P1 nolu örneğin uygulama gerilimi $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 30, 40, ve 50 mV.s⁻¹ tarama hızlarından elde edilen CV eğrilerinden yararlanılarak ölçülen katodik (I_C) ve anodik (I_A) maksimum akım yoğunluğu değerleri, anodik yük (Q_A) ve katodik yük (Q_C) miktarları hesaplanmıştır. Tablo 4.21’de hesaplanan bu değerler verilmiştir.

Tablo 4.21. P1 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri

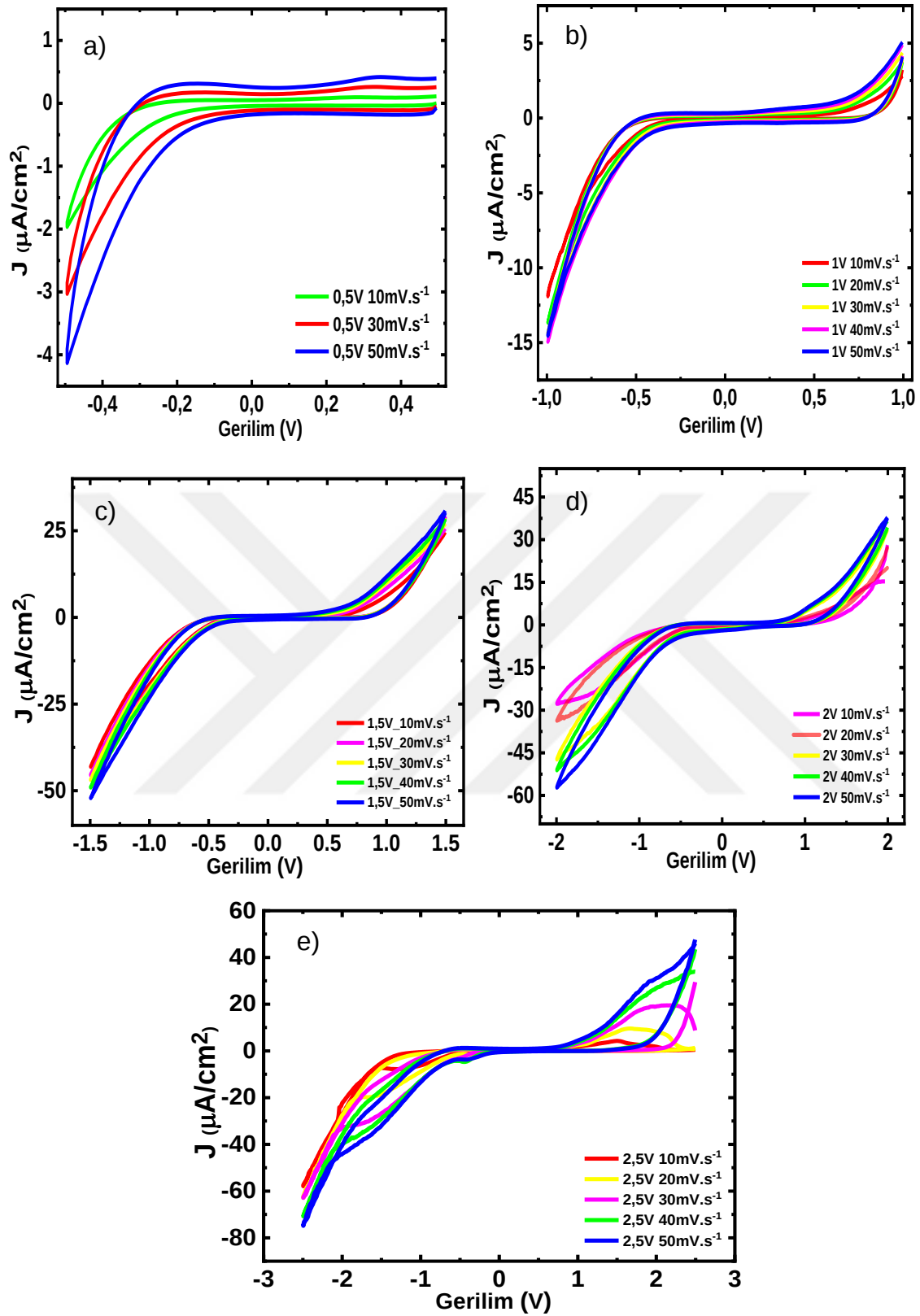
Gerilim (V)	Tarama Hızı (mV.s ⁻¹)	Q_A ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	Q_C ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	I_C ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)	I_A ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)
$\pm 0,5$	10	8,11	19,79	2,09	0,18
	30	7,43	12,11	2,96	0,42
	50	6,74	11,60	4,02	0,61
± 1	10	42,11	63,30	12,54	4,16
	20	32,92	52,39	12,70	4,36
	30	29,74	42,15	13,28	4,49
	40	27,30	38,79	13,86	4,77
	50	22,59	35,41	13,19	4,82
$\pm 1,5$	10	280,35	339,25	29,57	18,32
	20	200,54	179,01	32,4	18,78
	30	140,92	128,86	34,37	18,65
	40	122,07	104,86	34,74	19,42
	50	95,68	83,62	34,86	19,12
± 2	10	352,87	680,24	54,08	45,14
	20	271,31	282,26	57	45,23
	30	204,39	286,03	59,2	44,86
	40	177,91	215,26	61,89	45,51
	50	176,421	155,01	64,17	44,77
$\pm 2,5$	10	921,12	910,82	40,26	11,08
	20	721,66	733,50	43,91	26,97
	30	742,09	469,59	53,11	3014
	40	455,78	420,89	60,49	33,63
	50	294,93	426,82	68,46	43,89

P1 nolu örneğin $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V uygulanan potansiyel farklarda 20 ve 100 saniyelik pulslarla toplamda 200 saniye boyunca ölçülen CA eğrilerinden yapıya giren ve çıkan yük miktarı hesaplanmıştır. CA eğrilerinden yararlanılarak elde edilen ΔQ_C ve ΔQ_A değerleri tablo 4.22’de verilmiştir.

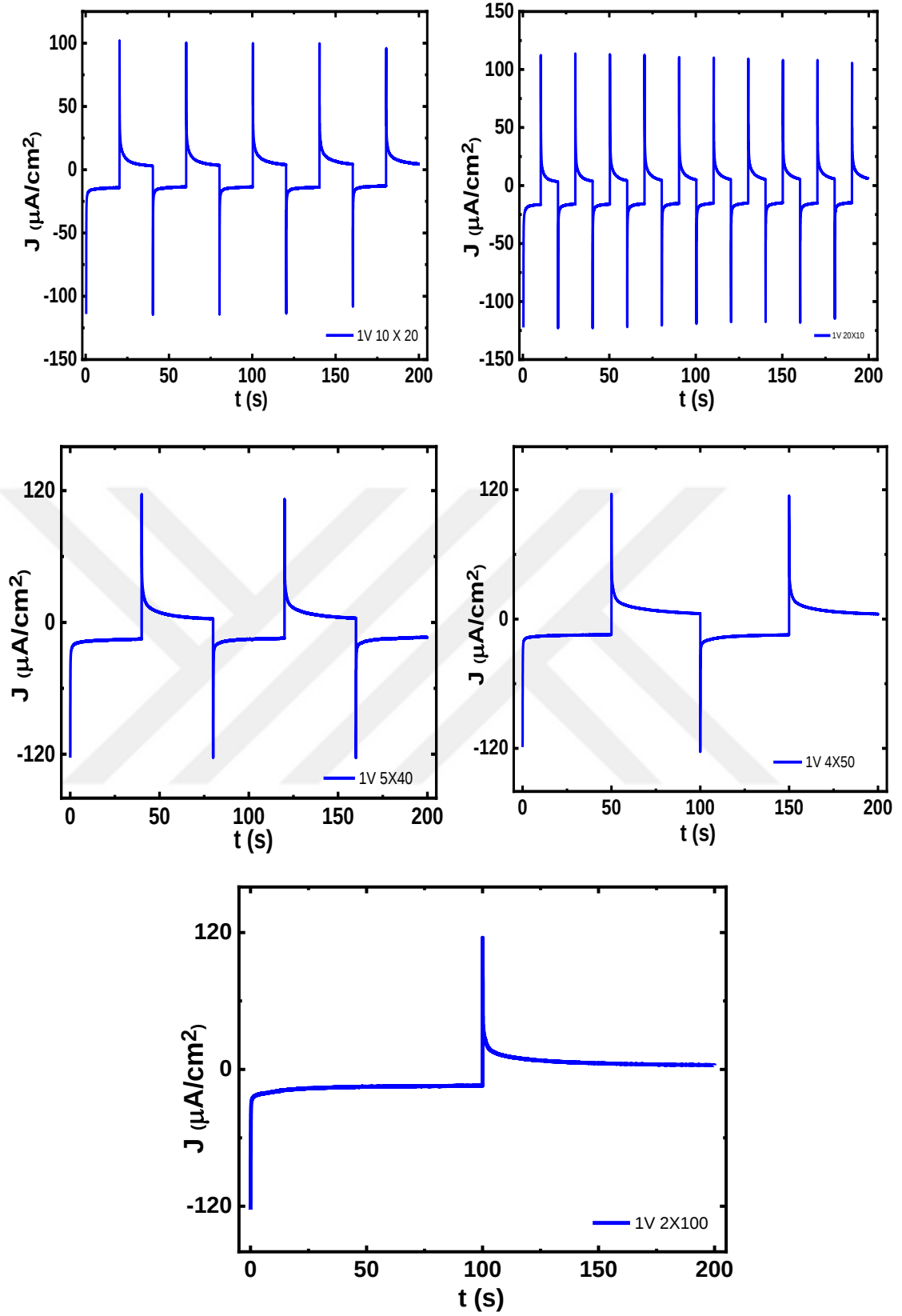
Tablo 4.22. P1 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	$Q_C(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$Q_A(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$Q_C(\mu C/cm^2)$ (2X100)	$Q_A(\mu C/cm^2)$ (2X100)
$\pm 0,5$	44,91	14,48	141,23	19,25
± 1	28,98	128,28	1163,27	544,90
$\pm 1,5$	662,01	488,01	1649,94	1566,58
± 2	1276,59	952	3669,75	2596,89
$\pm 2,5$	960,27	359,93	214,95	32,14

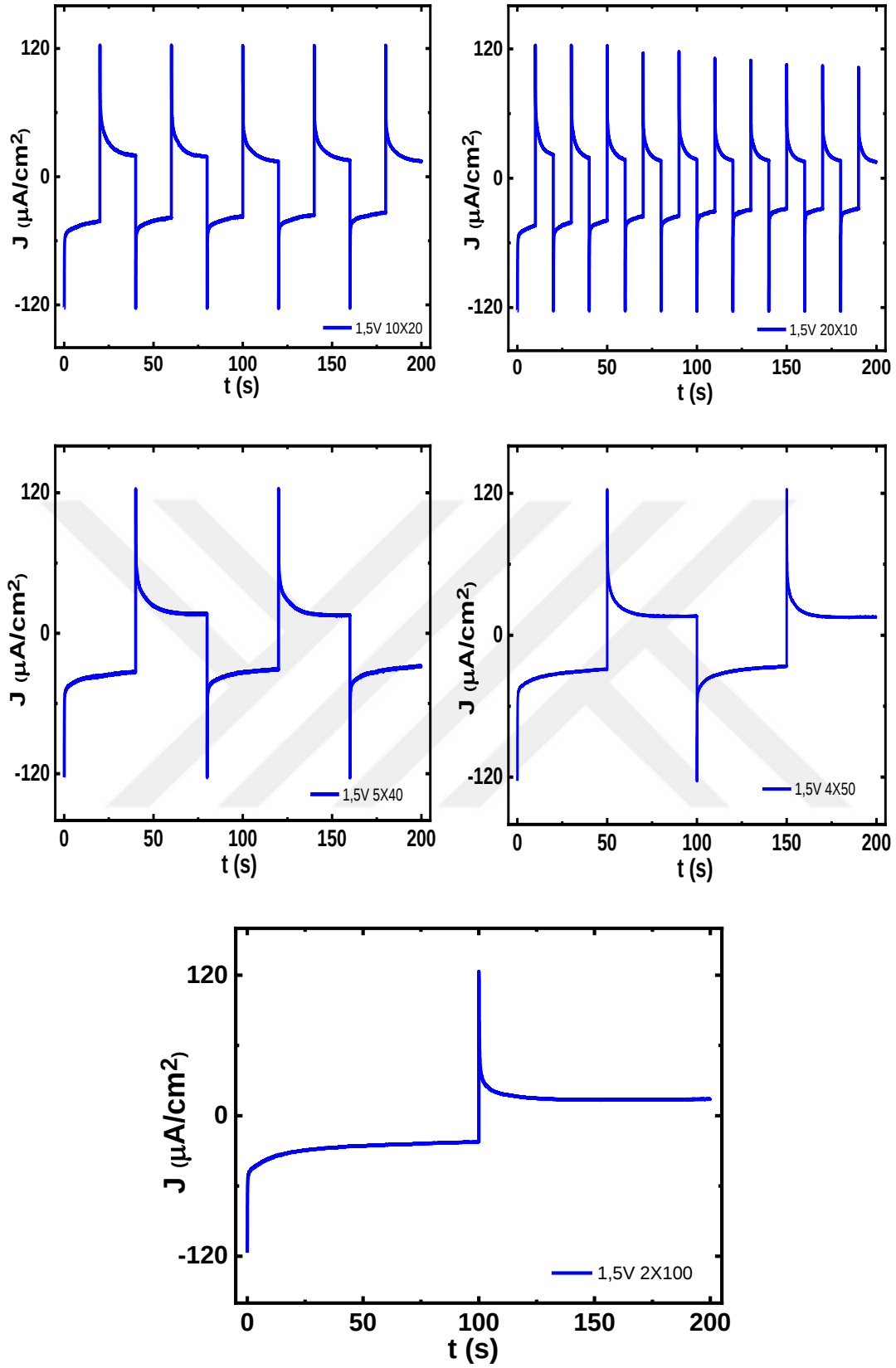
P1 nolu örnek üzerine uygulanan tüm gerilim aralıkları için ölçülen CV eğrileri incelendiğinde, tarama hızı arttırıldıkça CV eğrilerinin altında kalan alanlar ile katodik ve anodik tepe akım değerlerinin de arttığı görülmektedir. Aynı örneğin elektrokimyasal CA eğrilerinden film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarları örneklerin üzerine uygulanan potansiyel fark yükseldikçe artmaktadır. Sonuçlar incelendiğinde, hesaplanan katodik ve anodik yük miktarlarının birbirine yakın olduğu fakat, $\pm 2,5$ V gerilim altında giren çıkan yük miktarının belirgin bir şekilde azaldığı gözlemlenmiştir.



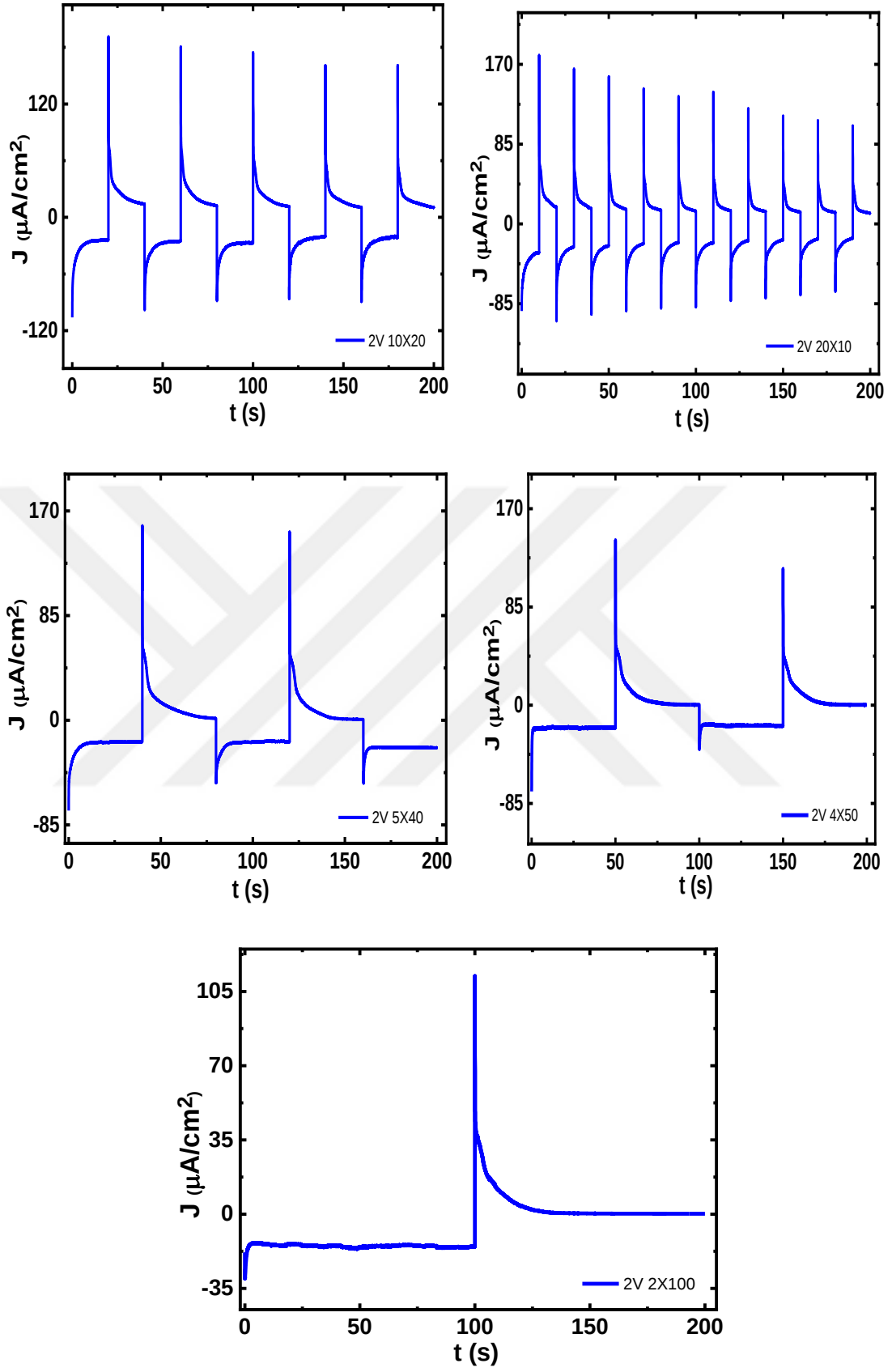
Şekil 4.53. PET altaş üzerine transfer edilen P2 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 $\text{mV}\cdot\text{s}^{-1}$ tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.



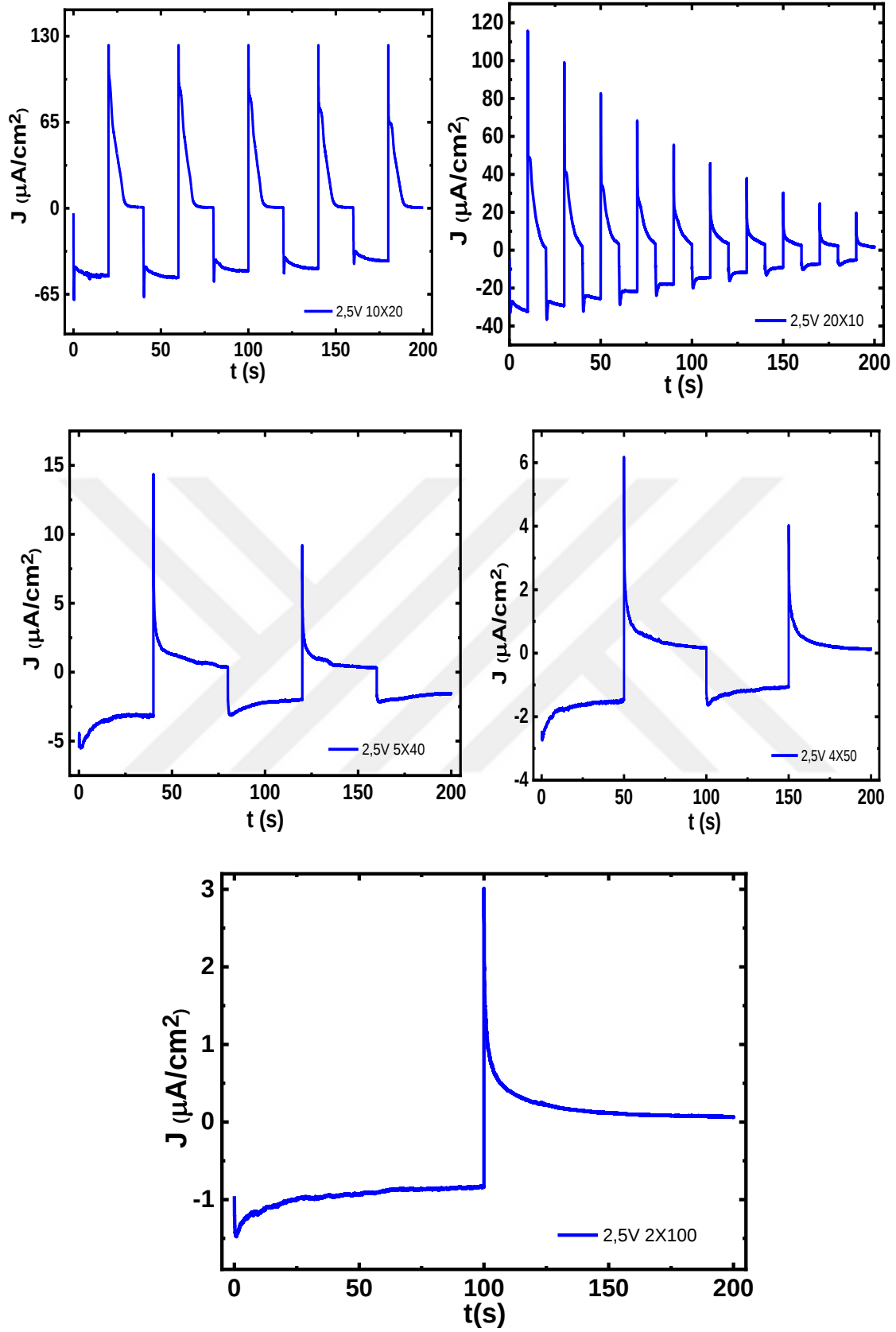
Şekil 4.54. P2 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.55. P2 nolu örneğin $\pm 1,5\text{ V}$ aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.56. P2 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.57. P2 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.

PDKBB yöntemi ile hazırlanmış P2 nolu örneğin uygulama potansiyel farkları $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 30, 40, ve 50 $\text{mV} \cdot \text{s}^{-1}$ tarama hızlarından ölçülen CV eğrilerinden maksimum I_c ve I_A akım yoğunluğu değerleri, giren ve çıkan yük miktarları hesaplanmıştır. Tablo 4.23’de bu değerler verilmiştir.

Tablo 4.23. P2 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

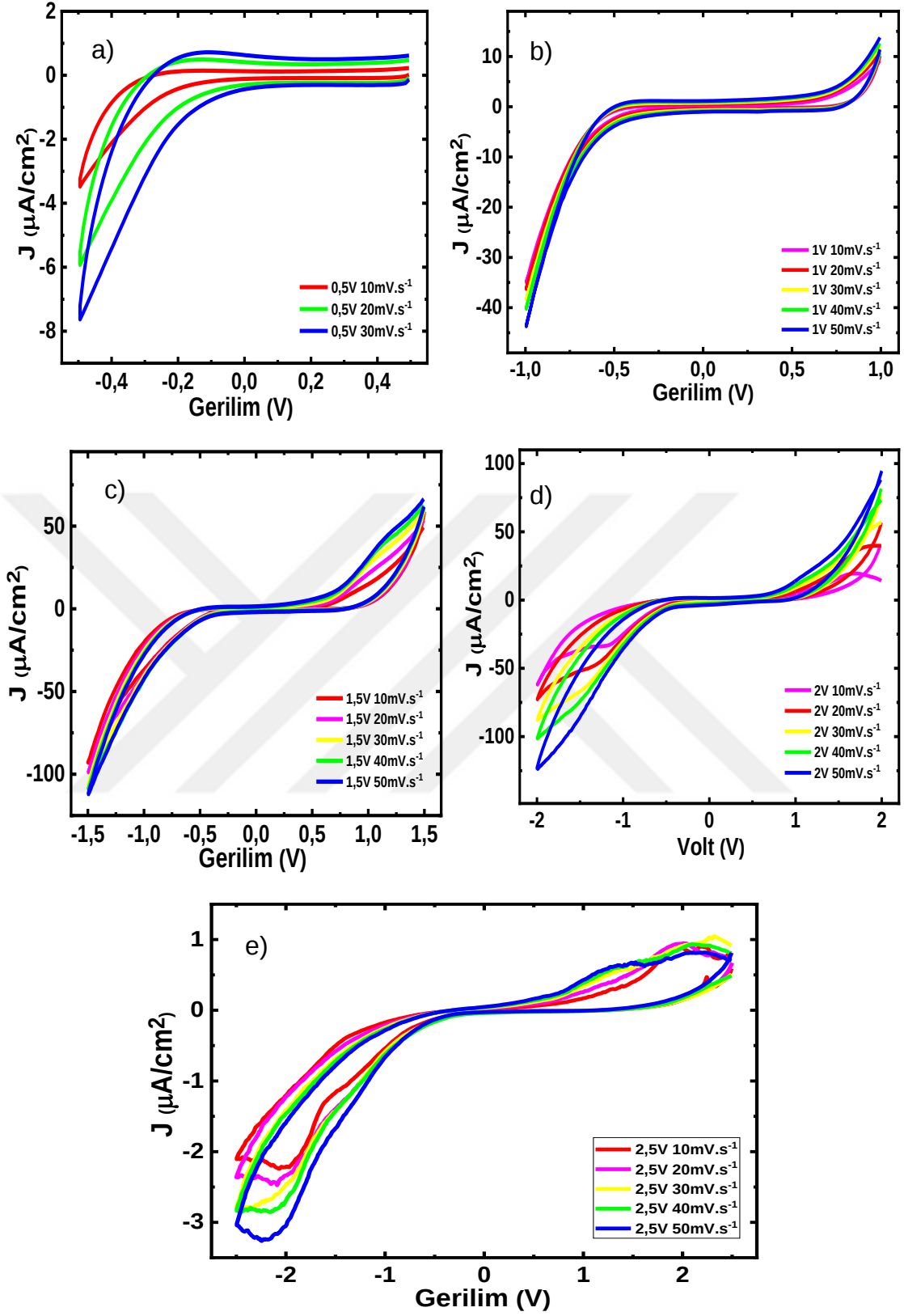
Gerilim (V)	Tarama Hızı ($\text{mV} \cdot \text{s}^{-1}$)	Q_A ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	Q_c ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	I_c ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)	I_A ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)
$\pm 0,5$	10	5,01	14,75	0,20	1,97
	30	4,84	11,11	0,46	3,03
	50	4,86	10,58	0,72	4,13
± 1	10	39,44	50,64	0,90	11,91
	20	30,68	41,16	1,43	13,68
	30	27,33	38,42	1,92	14,37
	40	25,23	38,86	2,31	14,95
	50	22,63	29,37	2,48	14,55
$\pm 1,5$	10	178,32	466,49	6,32	43,11
	20	150,24	247,88	7,78	45,53
	30	149,60	163,94	9,19	46,92
	40	138,43	126,25	10,41	49,12
	50	127,59	115,67	12,00	52,13
± 2	10	237,07	1072,05	13,29	27,76
	20	77,85	531,26	12,20	33,74
	30	224,84	401,82	20,45	47,36
	40	193,04	355,87	21,74	51,15
	50	148,56	296,77	22,01	57,28
$\pm 2,5$	10	382,46	6714,57	9,83	57,92
	20	481,79	472,58	19,13	62,85
	30	575,0	493,59	32,11	62,92
	40	474,67	366,52	33,65	70,82
	50	487,31	278,97	37,96	74,88

P2 nolu örneğin $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V uygulanan potansiyel farklarda 20 ve 100 saniyelik pulslarla toplamda 200 saniye boyunca ölçülen CA eğrilerinden film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarı hesaplanmıştır. Tablo 4.24.'de hesaplanan değerlerler verilmiştir.

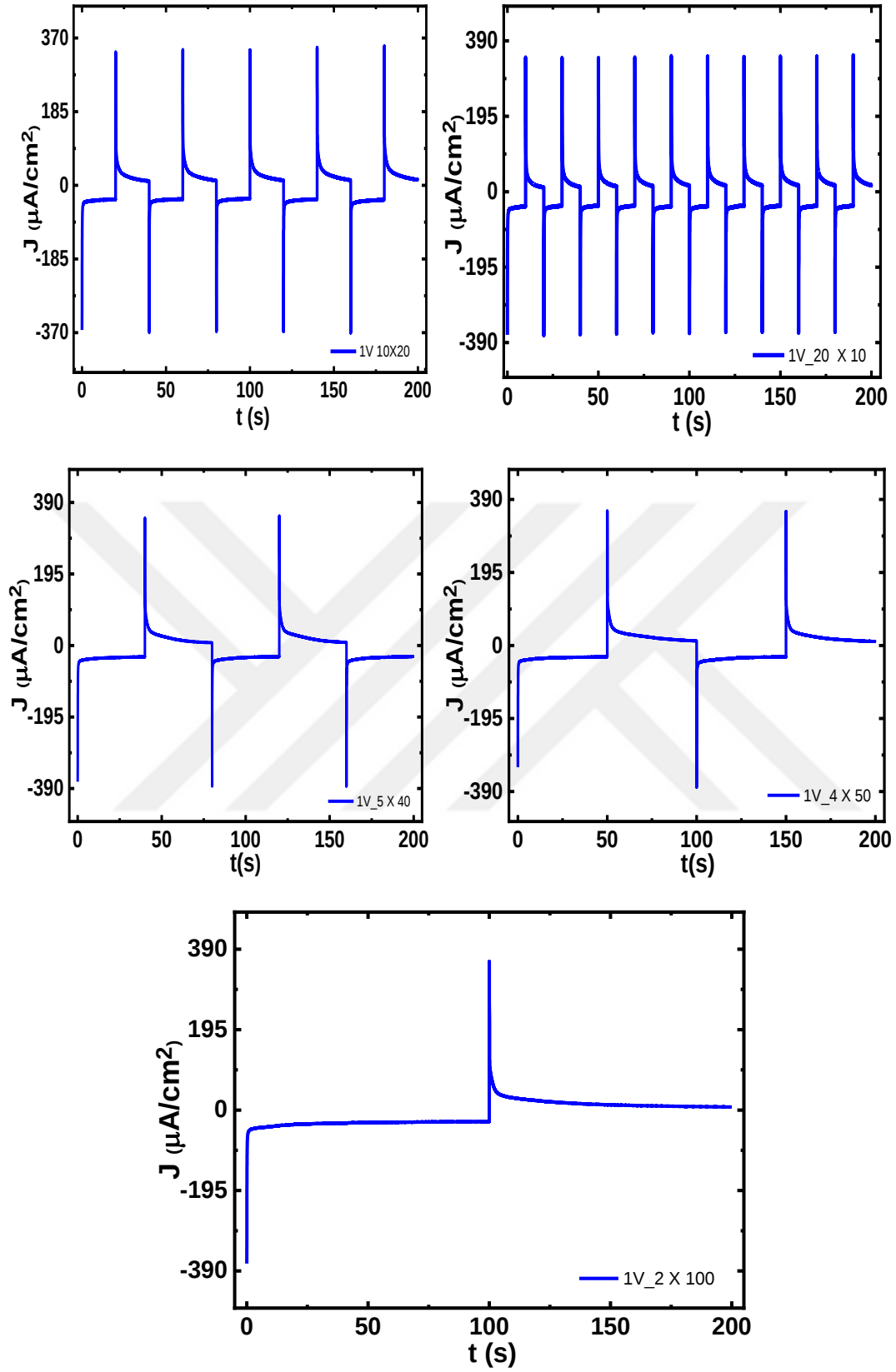
Tablo 4.24. P2 nolu örneğin CA ölçümleri sonucu elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	$\Delta Q_c(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_c(\mu C/cm^2)$ (2X100)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (2X100)
$\pm 0,5$	32,66	9,82	88,01	13,05
± 1	294,94	146,70	1622,80	693,90
$\pm 1,5$	856,79	518,87	2778,41	1543,04
± 2	629,75	480,54	1505,67	345,62
$\pm 2,5$	908,10	435,92	96,08	19,52

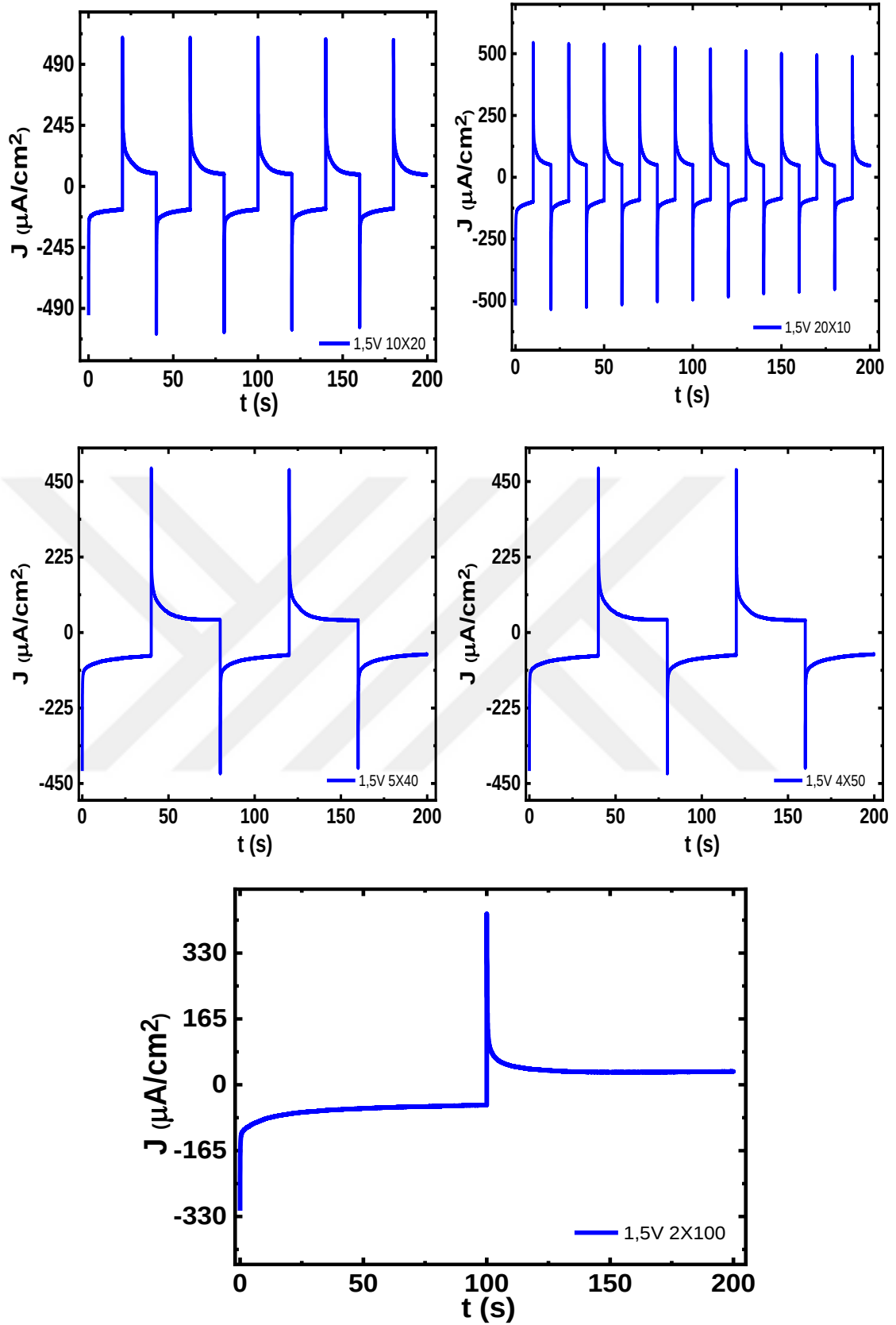
P2 nolu örnek üzerine uygulanan tüm gerilim aralıkları için ölçülen CV eğrileri incelendiğinde, tarama hızı artırıldıkça CV eğrilerinin altında kalan alanlar ile katodik ve anodik tepe akımı değerlerinin de arttığı görülmektedir. Hesaplamalar doğrultusunda, katodik yük miktarının, anodik yük miktarından belirgin bir farkla büyük olduğu saptanmıştır. Ayrıca uygulanan tüm gerilimler için anodik maksimum akım pik değerlerinin katodik maksimum akım piklerinden daha yüksek olduğu gözükmemektedir. Elektrokimyasal ölçümler kapsamında incelenen CA eğrilerinden film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarı değerleri uygulanan potansiyel fark ile birlikte arttığı görülmektedir. Fakat tüm gerilimler altında giren yük miktarının çıkan yük miktarından fazla olduğu ve bu farkın özellikle $\pm 2,5$ V potansiyel fark altındaki ölçümlerde oldukça fazla olduğu görülmektedir.



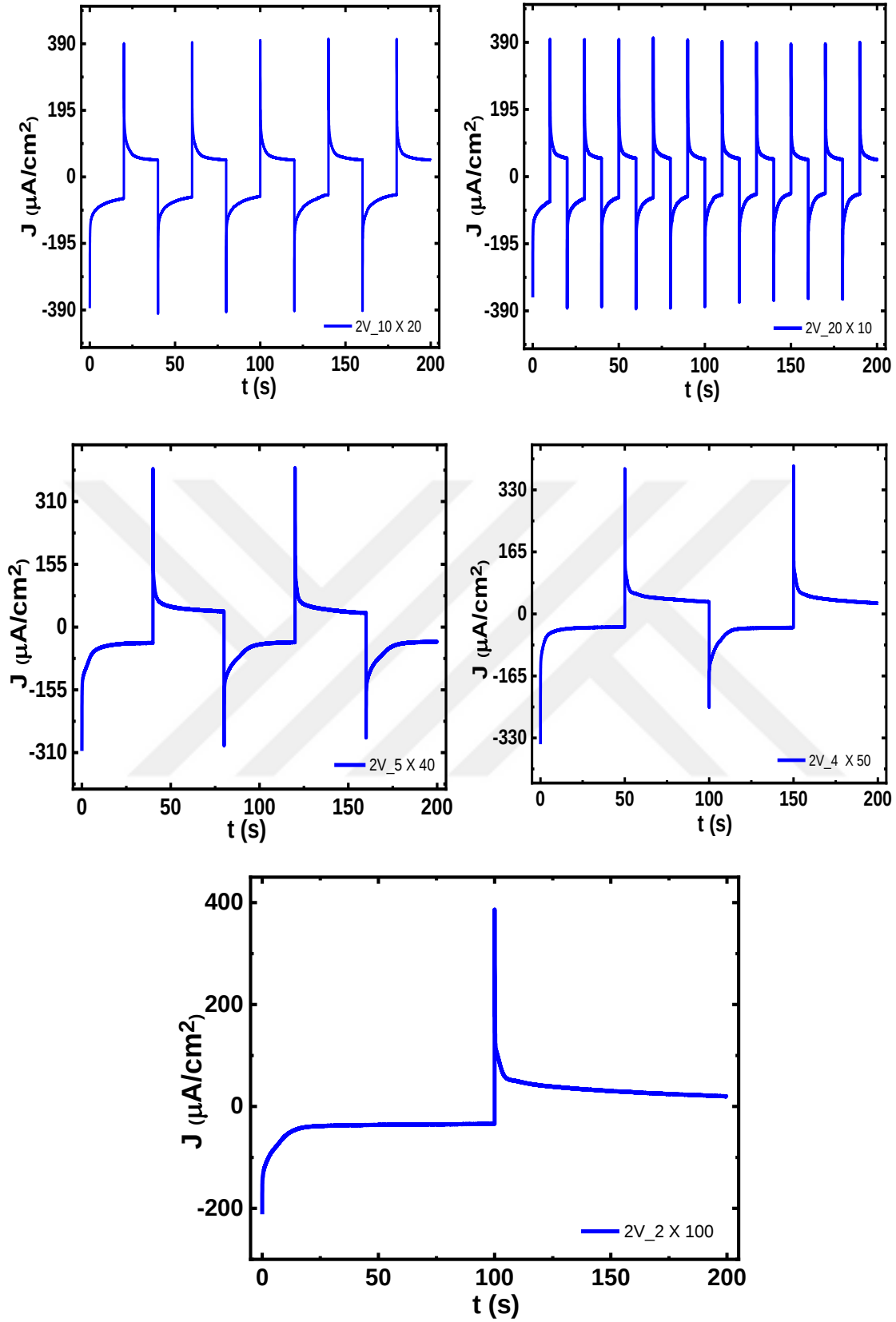
Şekil 4.58. PET alttaş üzerine transfer edilen P3 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.



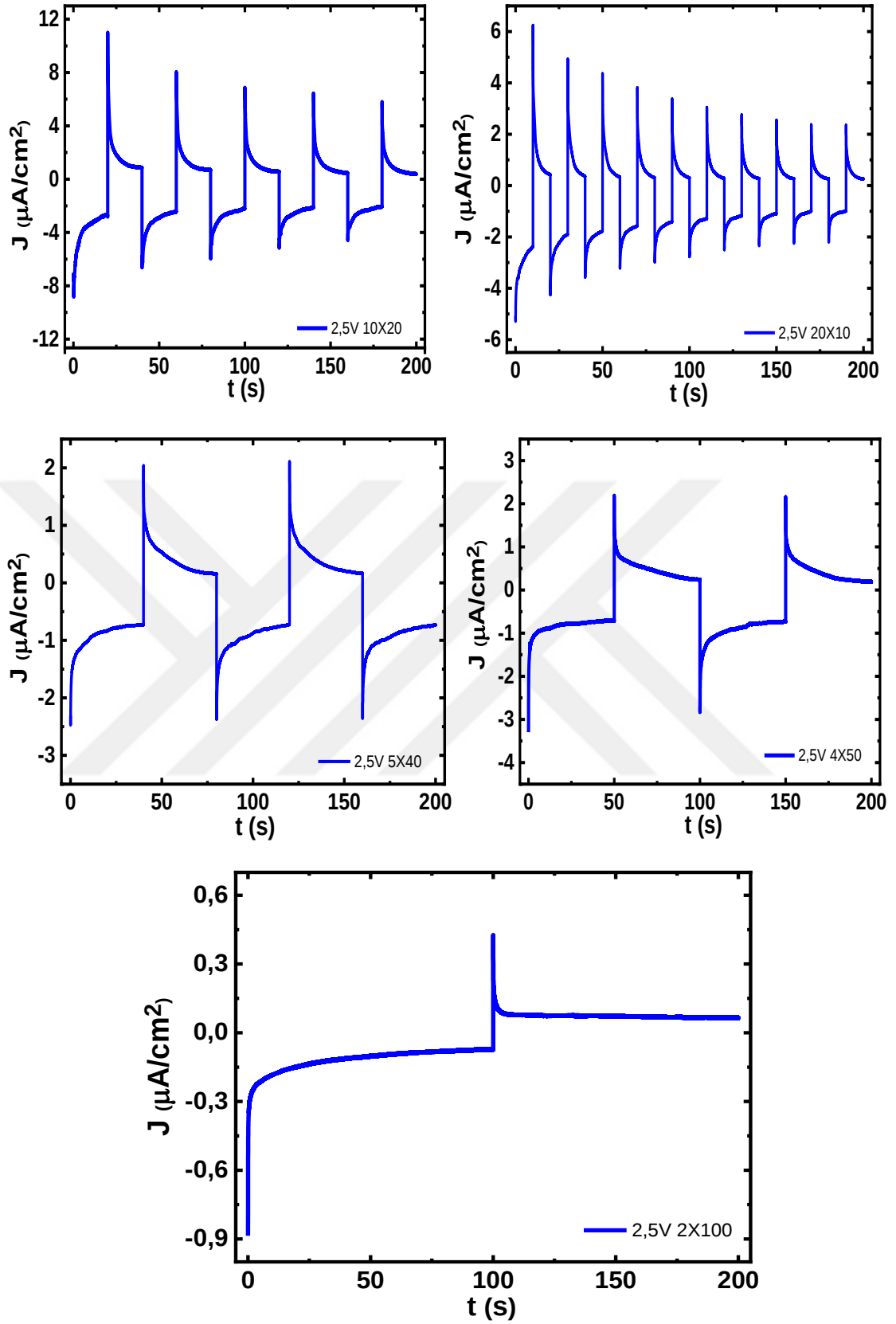
Şekil 4.59. P3 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.60. P3 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.61. P3 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil. 4.62. P3 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslerle elde edilmiş CA eğrileri.

PDKBB yöntemi ile hazırlanmış P3 nolu örneğin uygulama gerilimi $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 30, 40, ve 50 $\text{mV} \cdot \text{s}^{-1}$ tarama hızlarından elde edilen CV eğrilerinden Q_A ve Q_C yük miktarları ve maksimum I_C ve I_A akım yoğunluğu değerleri hesaplanmıştır. Tablo 4.25’de hesaplanan bu parametreler verilmiştir.

Tablo 4.25. P3 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

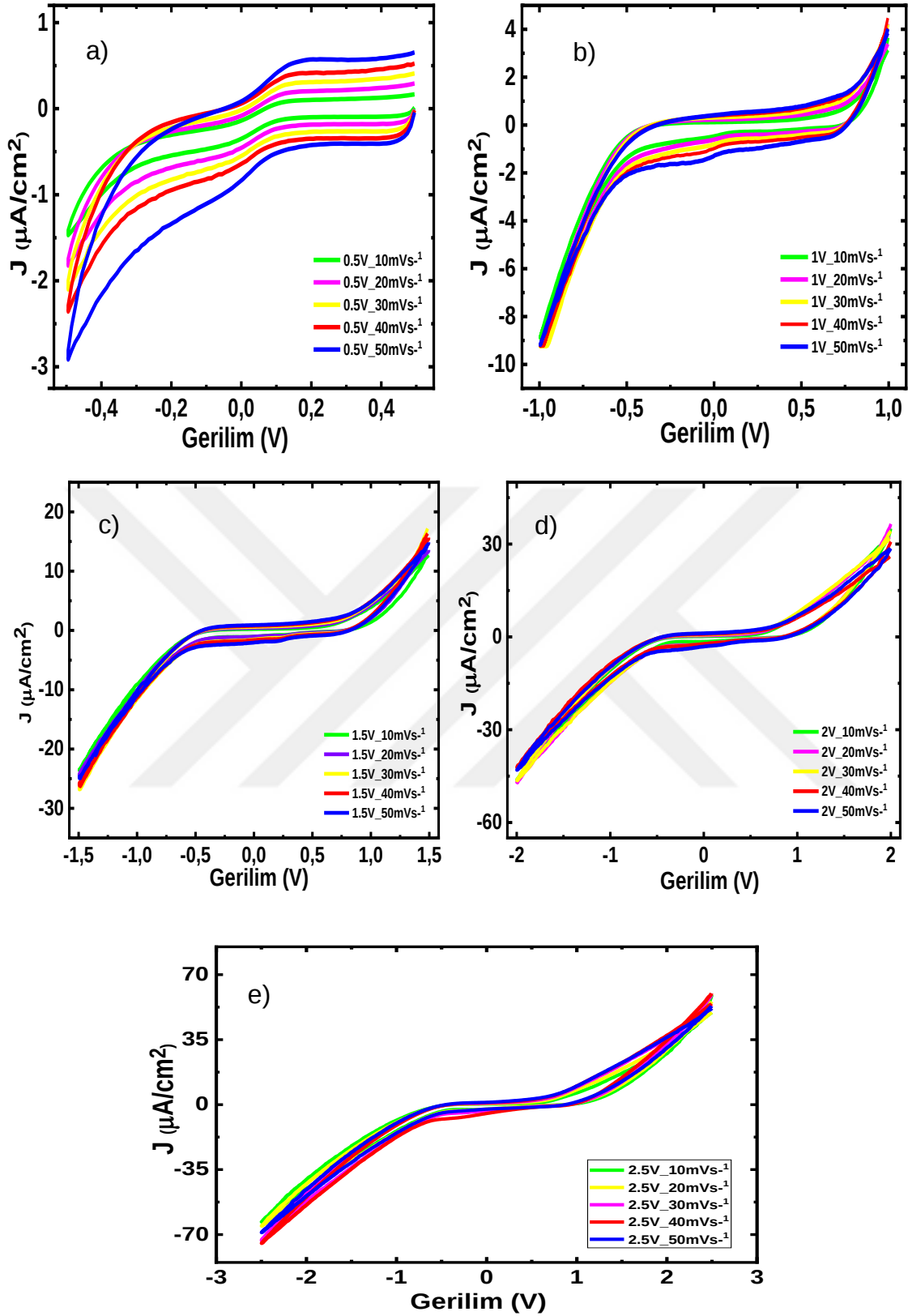
Gerilim (V)	Tarama Hızı ($\text{mV} \cdot \text{s}^{-1}$)	Q_A ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	Q_C ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	I_C ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)	I_A ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)
$\pm 0,5$	10	10,38	36,62	3,48	0,23
	30	10,08	23,93	5,93	0,50
	50	8,48	20,08	7,63	0,72
± 1	10	115,48	126,96	34,93	10,21
	20	88,80	94,99	36,31	10,79
	30	74,84	83,77	38,46	11,98
	40	65,64	70,09	40,26	12,64
	50	57,85	65,10	43,74	13,79
$\pm 1,5$	10	738,30	1287,86	93,06	58,94
	20	562,22	631,22	98,86	61,5
	30	517,40	439,87	106,90	59,27
	40	453,89	362,54	108,94	62,47
	50	403,12	286,31	112,06	66,34
± 2	10	542,95	2122,79	62,01	44,1
	20	471,52	1440,79	72,74	56,74
	30	329,93	1371,86	87,90	76,93
	40	316,41	872,62	101,44	81,57
	50	305,35	742,61	123,77	94,64
$\pm 2,5$	10	73,94	112,62	2,24	0,90
	20	45,05	65,07	2,47	0,95
	30	35,47	41,74	2,80	1,20
	40	26,15	33,18	2,86	0,93
	50	18,77	31,23	3,26	0,82

P3 nolu örneğin $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V uygulanan potansiyel farklarda 20 ve 100 saniyelik pulslarla toplamda 200 saniye boyunca ölçülen CA eğrilerinden ΔQ_C ve ΔQ_A değerleri hesaplanmıştır. Tablo 4.26.'da hesaplanan giren ve çıkan yük miktarları verilmiştir.

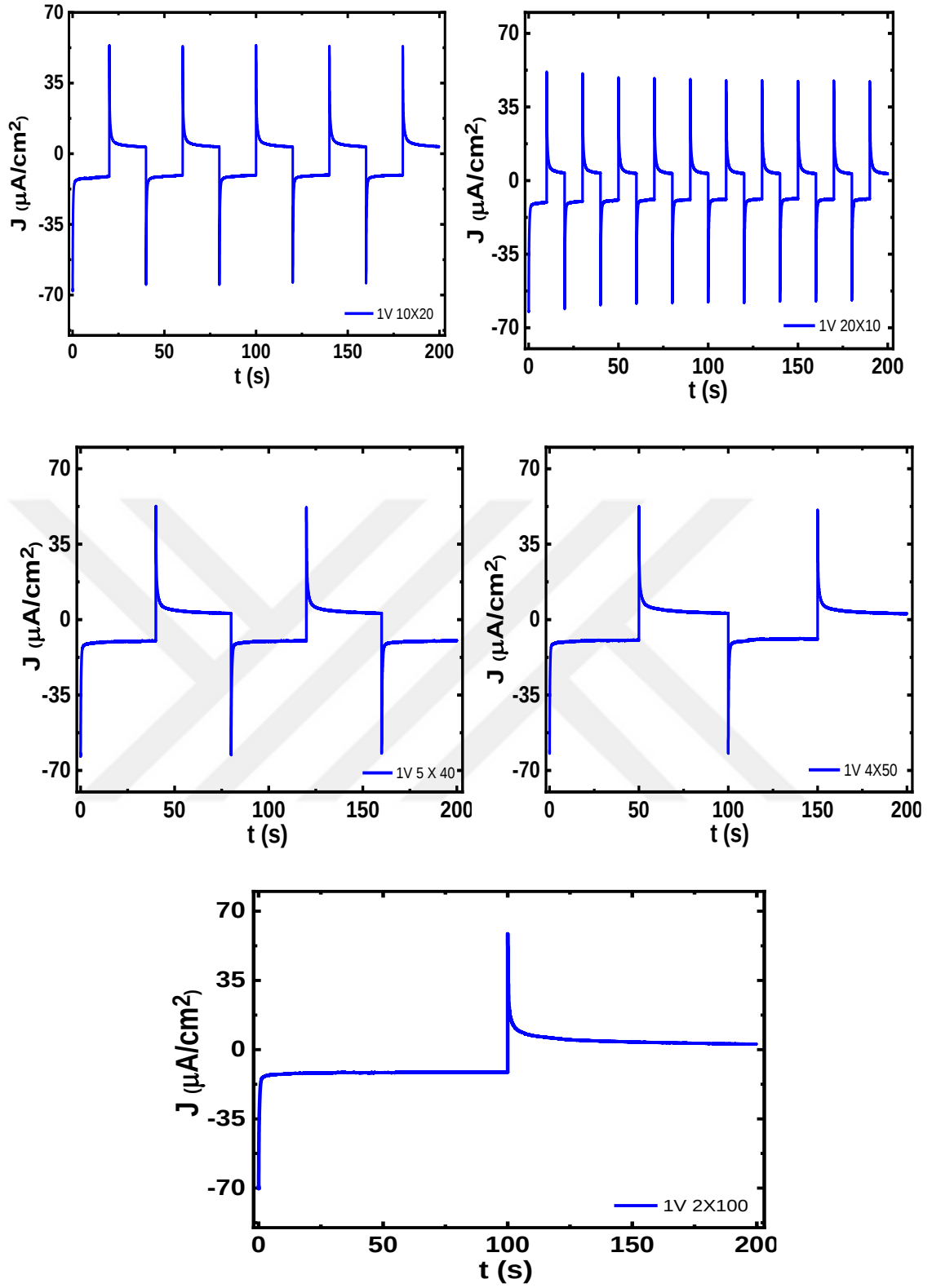
Tablo 4.26. P3 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	$\Delta Q_C(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_C(\mu C/cm^2)$ (2X100)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (2X100)
$\pm 0,5$	56,57	21,92	162,72	26,50
± 1	756	530,40	3241,92	1684,08
$\pm 1,5$	2183,18	1619,72	6474,20	3735,62
± 2	1581,63	1290,22	4212,37	3419,43
$\pm 2,5$	56,61	27,17	11,78	7,30

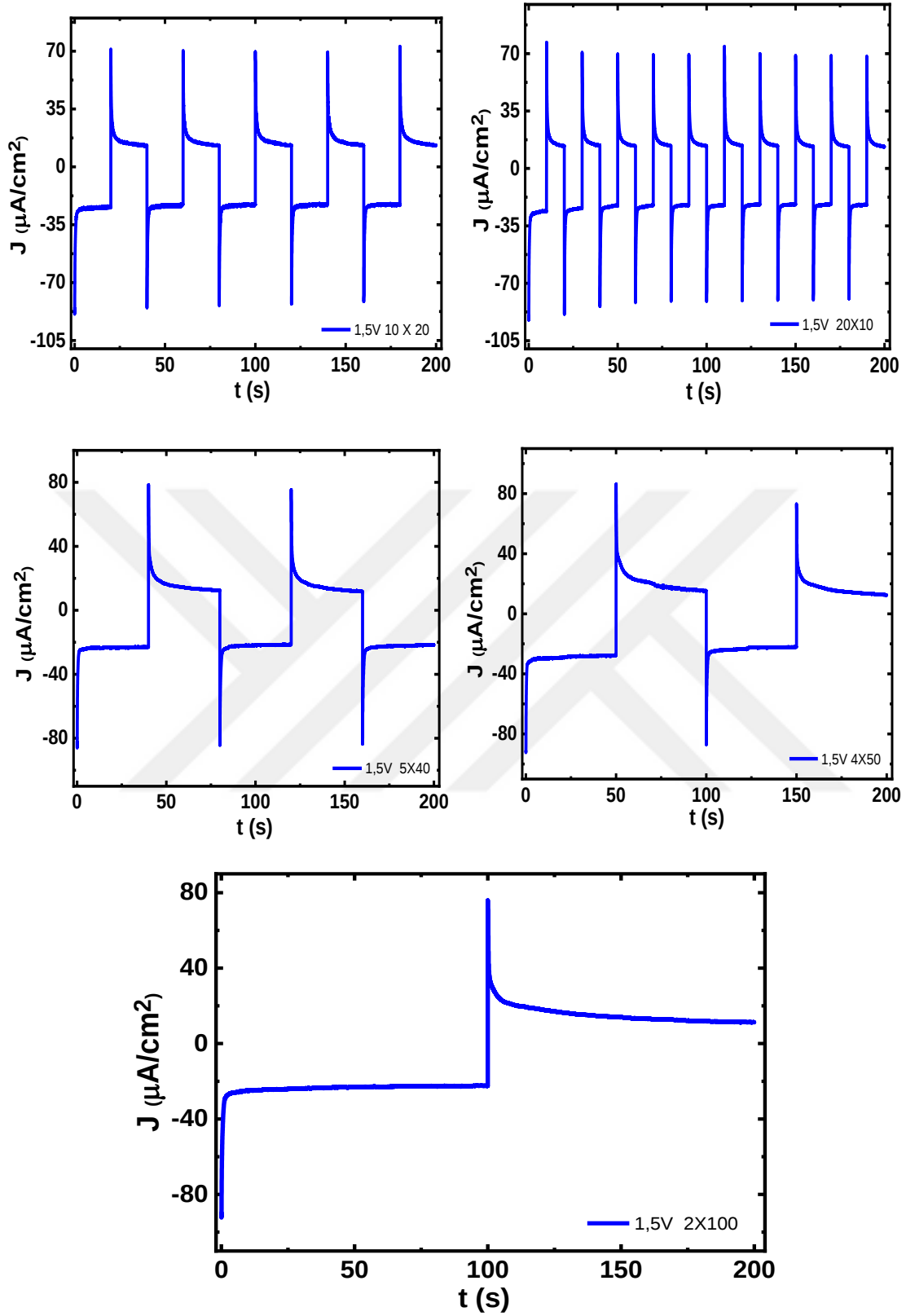
P3 nolu örnek üzerine uygulanan tüm gerilim aralıkları için ölçülen CV eğrileri incelendiğinde, tarama hızı arttırıldıkça CV eğrilerinin altında kalan alanlar ile katodik ve anodik tepe akımı değerlerinin de arttığı görülmektedir. Ancak, $-2,5$ V ile $+2,5$ V aralığındaki gerilim altında alınan akım değerlerinin diğer gerilimler altında alınmış ölçümlere göre oldukça düşük olduğu ve tüm gerilimler altında katodik yük miktarlarının anodik yük miktarlarından büyük olduğu gözükmemektedir. Ek olarak potansiyel fark arttıkça katodik maksimum akım piklerinin, anodik maksimum akım piklerinden yüksek bir oranda arttığı ve değerlerinin daha yüksek olduğu gözlemlenmiştir. Aynı örneğin $-2,5$ V ile $+2,5$ V aralığındaki gerilim altında alınan ölçümlerinde katodik ve anodik yük miktarlarının düşük olduğu gözükmemektedir. Aynı örneğin ölçülen CA eğrilerinden film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarları uygulanan potansiyel fark ile birlikte arttığı gözlemlenmiştir. Ayrıca, hesaplanan giren ve çıkan yük miktarları $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V gerilimler altında neredeyse eşit olmasına rağmen, $\pm 2,5$ V gerilim altında bu durum gözlenmemiştir.



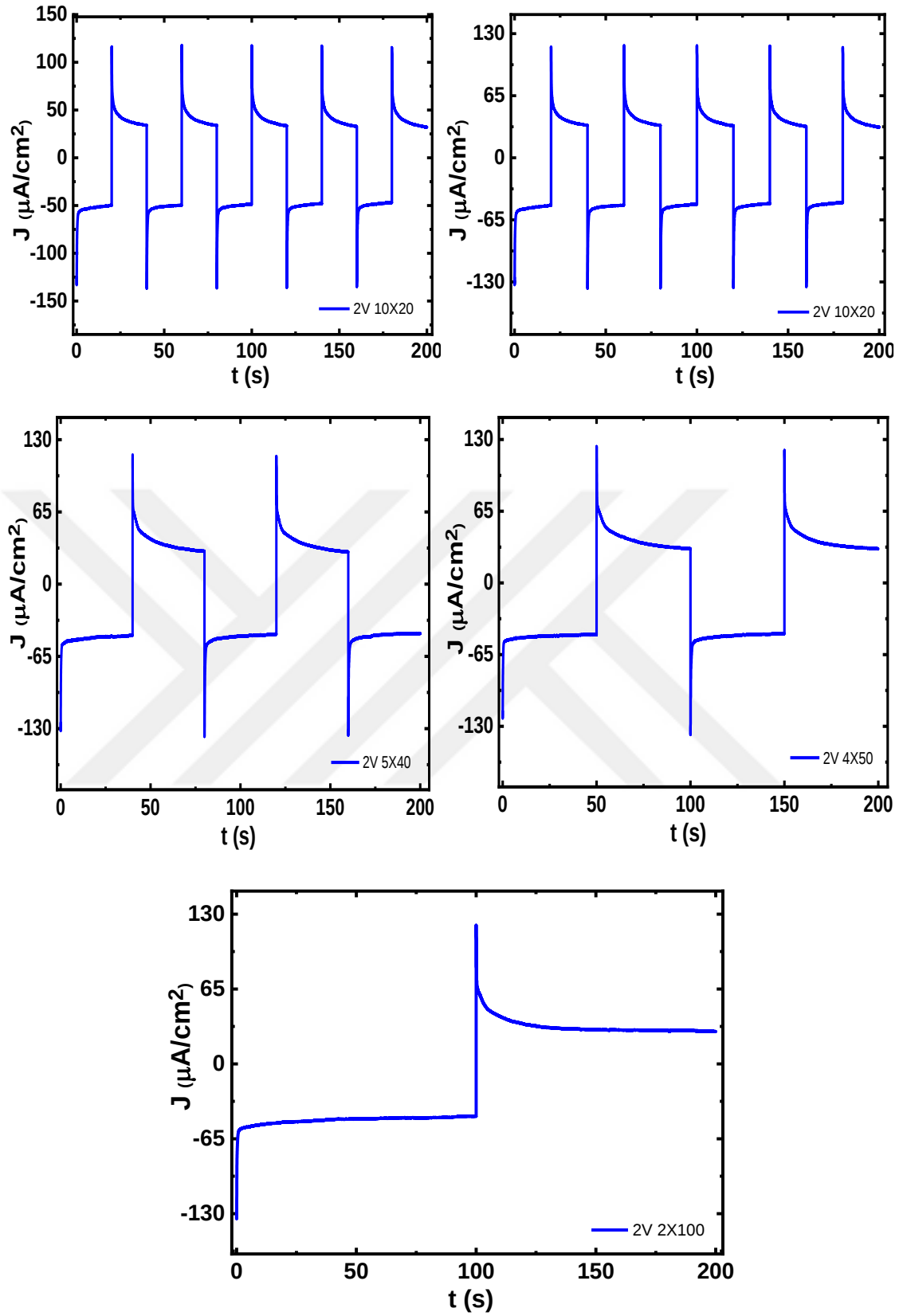
Şekil 4.63. PET alttaş üzerine transfer edilen P4 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5V ile +1,5V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.



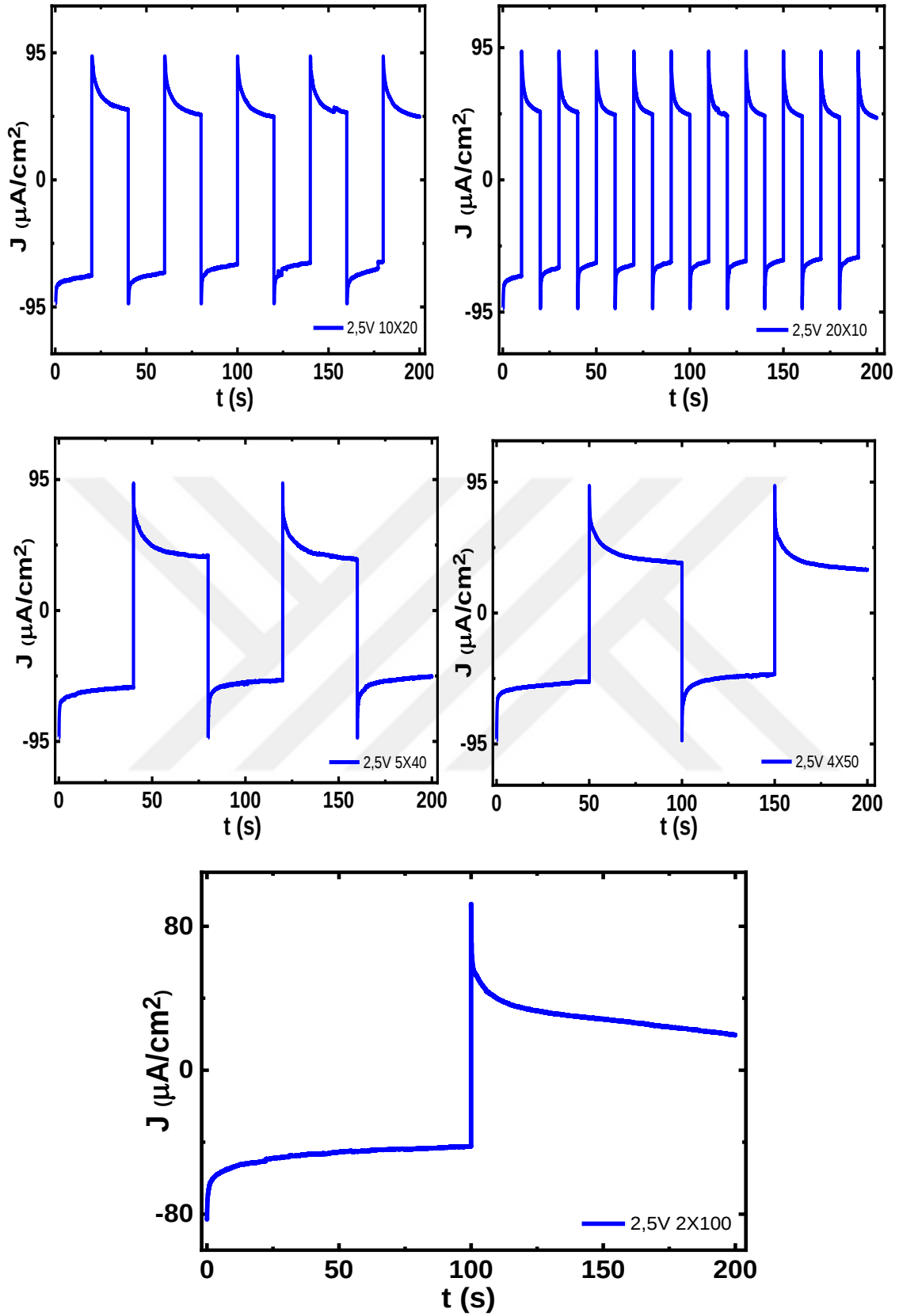
Şekil 4.64. P4 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.65. P4 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.66. P4 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.67. P4 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri

PDKBB yöntemi ile hazırlanmış P4 nolu örneğin uygulama gerilimi $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 30, 40, ve 50 $\text{mV} \cdot \text{s}^{-1}$ tarama hızlarından elde edilen CV eğrilerinden katodik ve anodik maksimum akım yoğunlukları ve giren/çıkan yük miktarları hesaplanmıştır. Tablo 4.27’de hesaplanan bu değerler verilmiştir.

Tablo 4.27. P4 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

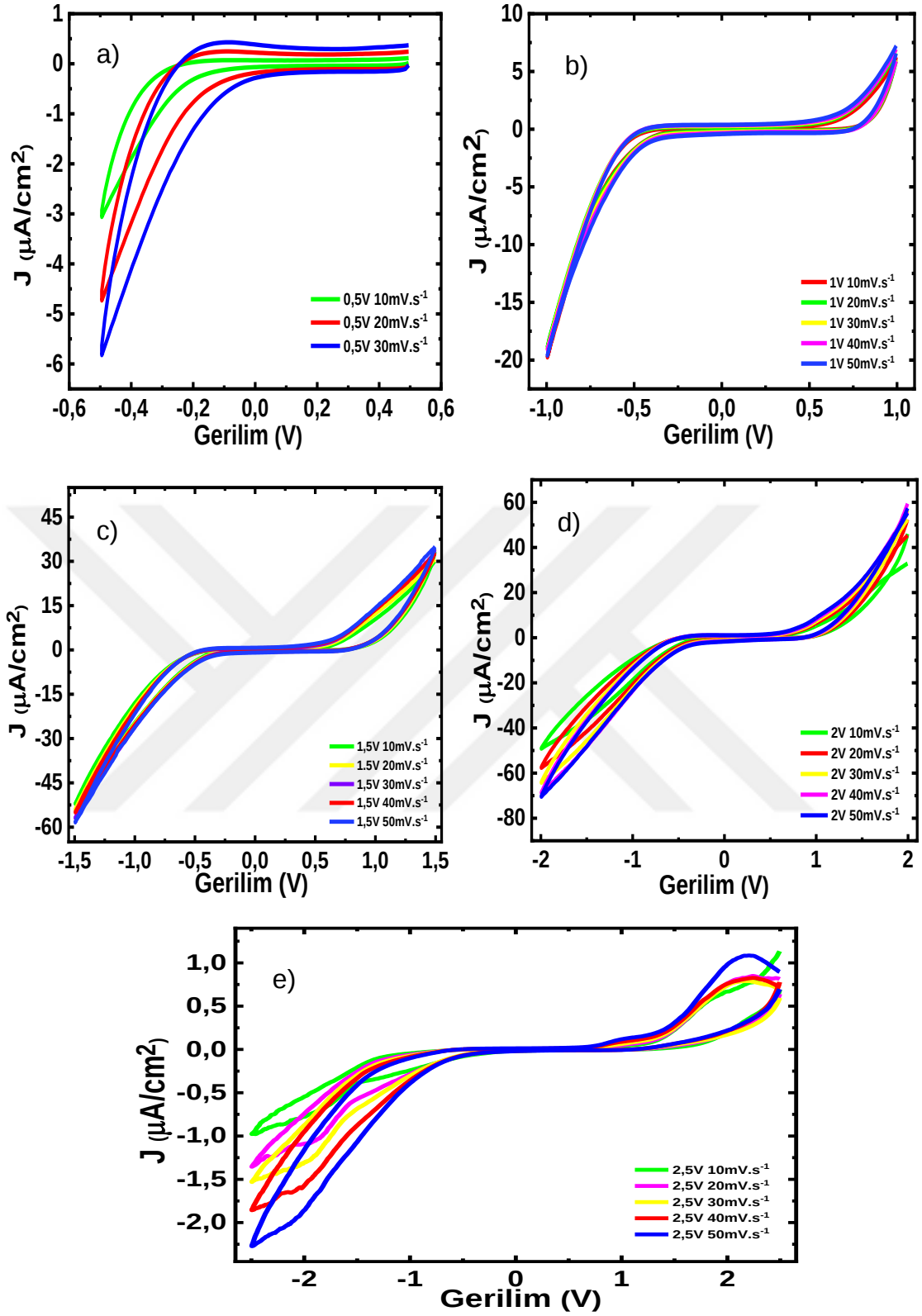
Gerilim (V)	Tarama Hızı ($\text{mV} \cdot \text{s}^{-1}$)	Q_A ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	Q_c ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	I_c ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)	I_A ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)
$\pm 0,5$	10	4,51	16,83	1,47,	0,16
	30	4,65	13,58	2,10	0,40
	50	5,00	13,72	2,91	0,65
± 1	10	33,25	79,76	8,89	3,65
	20	21,38	51,82	9,23	4,23
	30	20,38	40,18	9,23	4,21
	40	16,67	33,58	9,23	4,47
	50	15,81	32,87	9,18	4,02
$\pm 1,5$	10	185,83	179,52	23,57	13,58
	20	77,51	69,85	24,60	15,56
	30	58,99	69,29	26,81	17,18
	40	55,55	60,44	26,30	16,37
	50	54,17	60,57	24,94	14,86
± 2	10	695,53	513,87	46,20	35,05
	20	315,63	370,11	47,10	36,51
	30	245,99	264,04	46,41	34,23
	40	134,67	166,27	42,17	30,78
	50	157,63	151,55	43,31	28,60
$\pm 2,5$	10	736,12	1234,81	19,74	63,17
	20	462,44	586,73	65,42	55,56
	30	374,27	460,46	73,18	59,31
	40	264,94	391,55	74,72	60,00
	50	285,02	223,40	68,94	54,03

P4 nolu örneğin $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V uygulanan potansiyel farklarda 20 ve 100 saniyelik pulslarla toplamda 200 saniye boyunca ölçülen CA eğrilerinden ölçülen, film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarları hesaplanmıştır. Tablo 4.28’de hesaplanan bu ΔQ_C ve ΔQ_A değerleri verilmiştir.

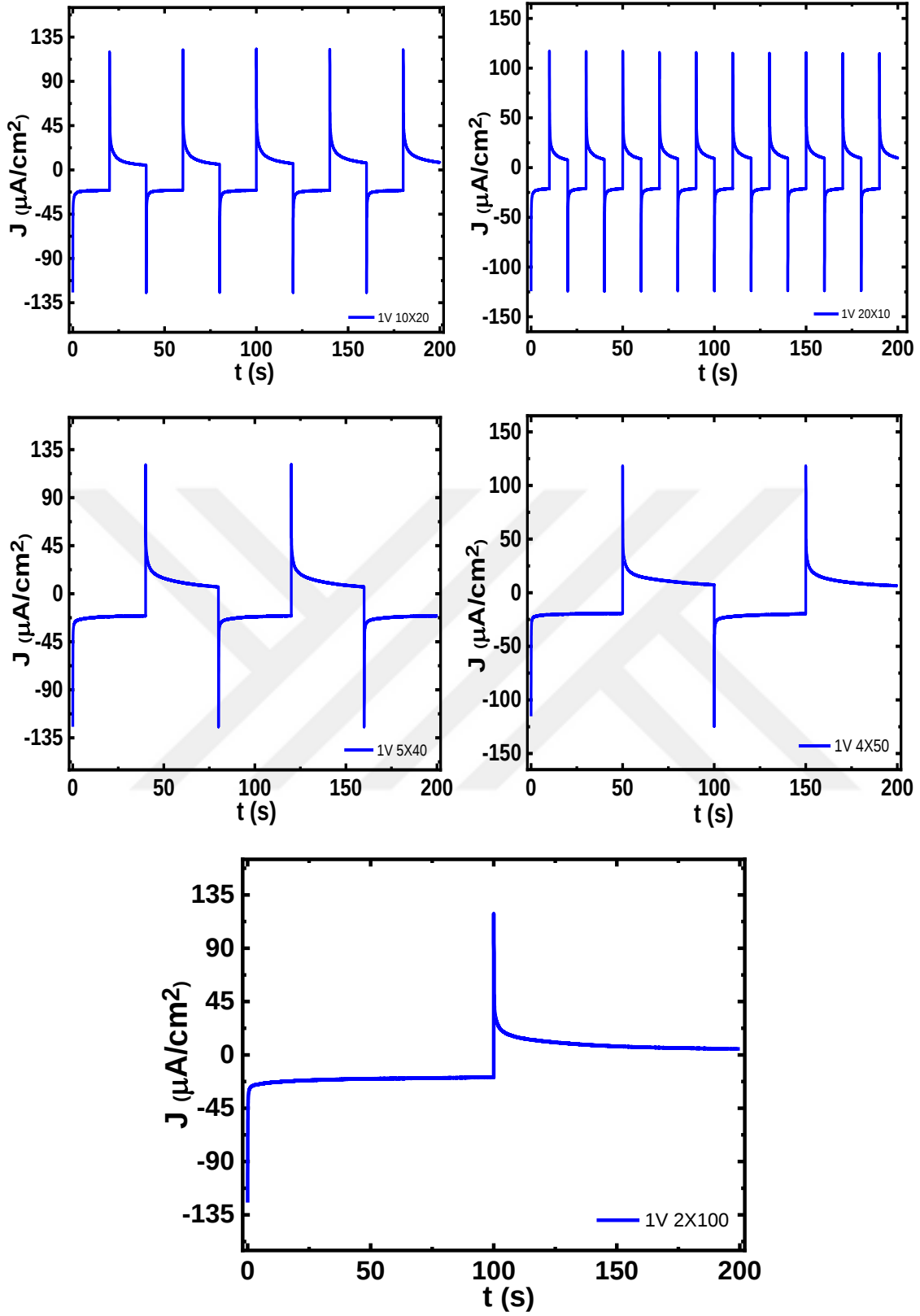
Tablo 4.28. P4 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	$\Delta Q_C(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_C(\mu C/cm^2)$ (2X100)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (2X100)
$\pm 0,5$	34,55	11,32	127,85	13,99
± 1	242,18	104,06	1188,20	472,32
$\pm 1,5$	498,23	319,20	2373,11	1528,10
± 2	1022,03	820,60	4886,50	3264,75
$\pm 2,5$	1457,48	1127,38	4722,68	3000,04

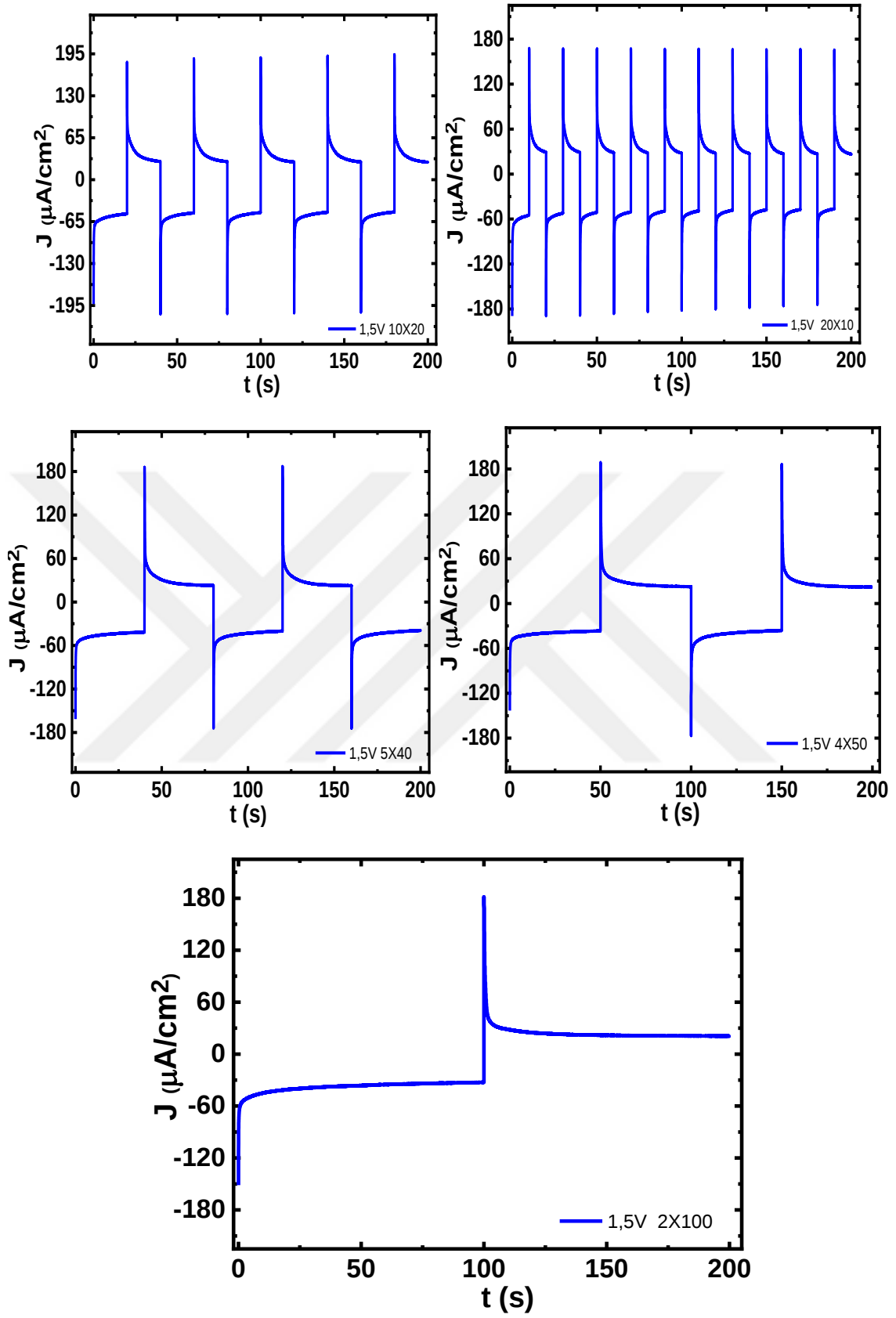
P4 nolu örnek üzerine uygulanan tüm gerilim aralıkları için ölçülen CV eğrileri incelendiğinde, tarama hızı arttırıldıkça, CV eğrilerinin altında kalan alanlar ile katodik ve anodik tepe akımı değerlerinin de yükseldiği gözlemlenmiştir. Hesaplanan değerler incelendiğinde, katodik yük miktarının anodik yük miktarından büyük olduğu dolayısıyla, uygulanan tüm gerilimler için maksimum anodik akım pik değerlerinin maksimum katodik akım piklerinden yüksek olduğu gözlemlenmiştir. Elektrokimyasal ölçümler kapsamında incelenen kronoamperometri grafiklerinden film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarı değerleri uygulanan potansiyel fark ile birlikte artışı ve hesaplanan katodik ve anodik yük miktarları incelendiğinde, giren çıkan yük miktarlarının birbirine yakın olduğu görülmektedir.



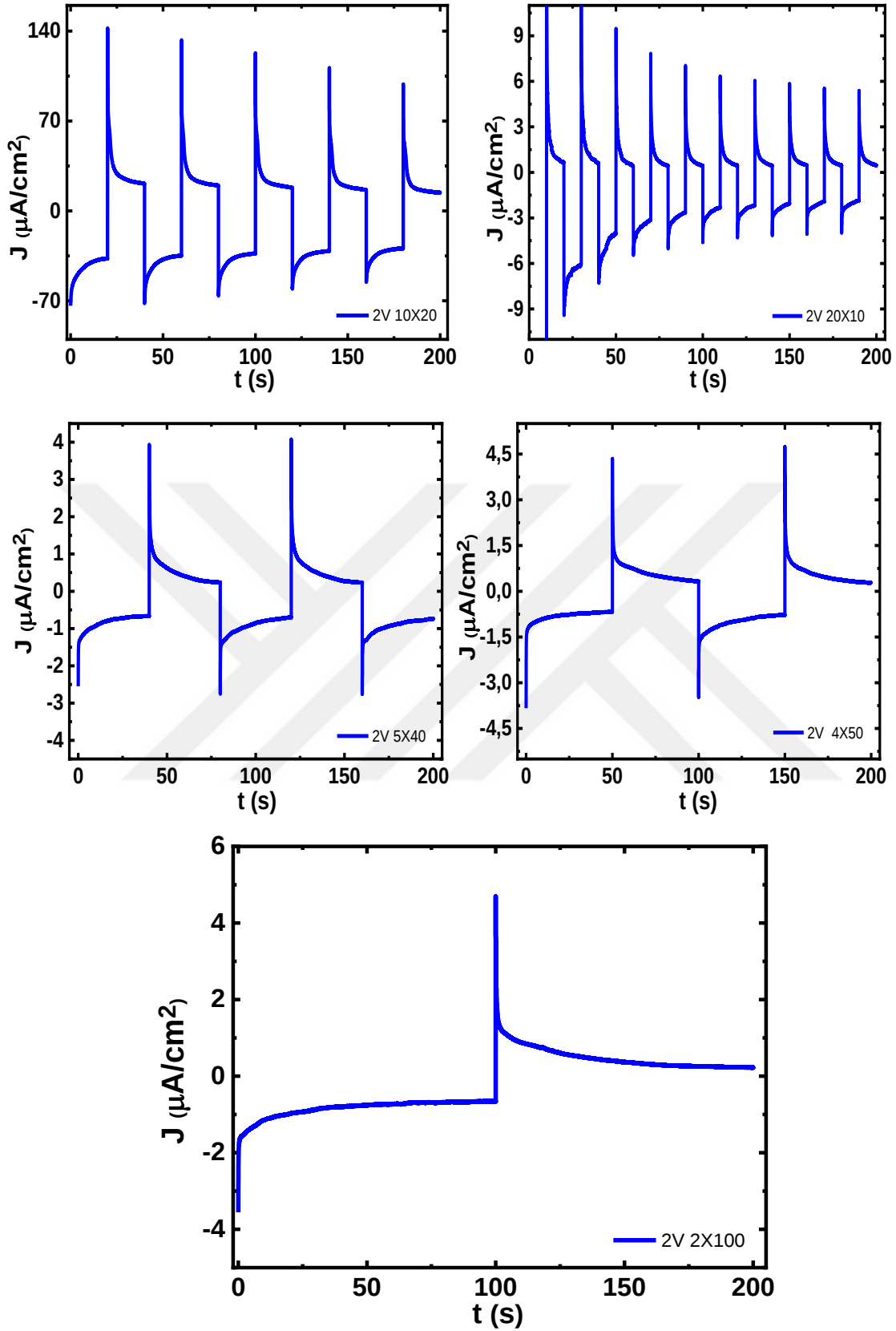
Şekil 4.68. PET alttaş üzerine transfer edilen P5 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s⁻¹ tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.



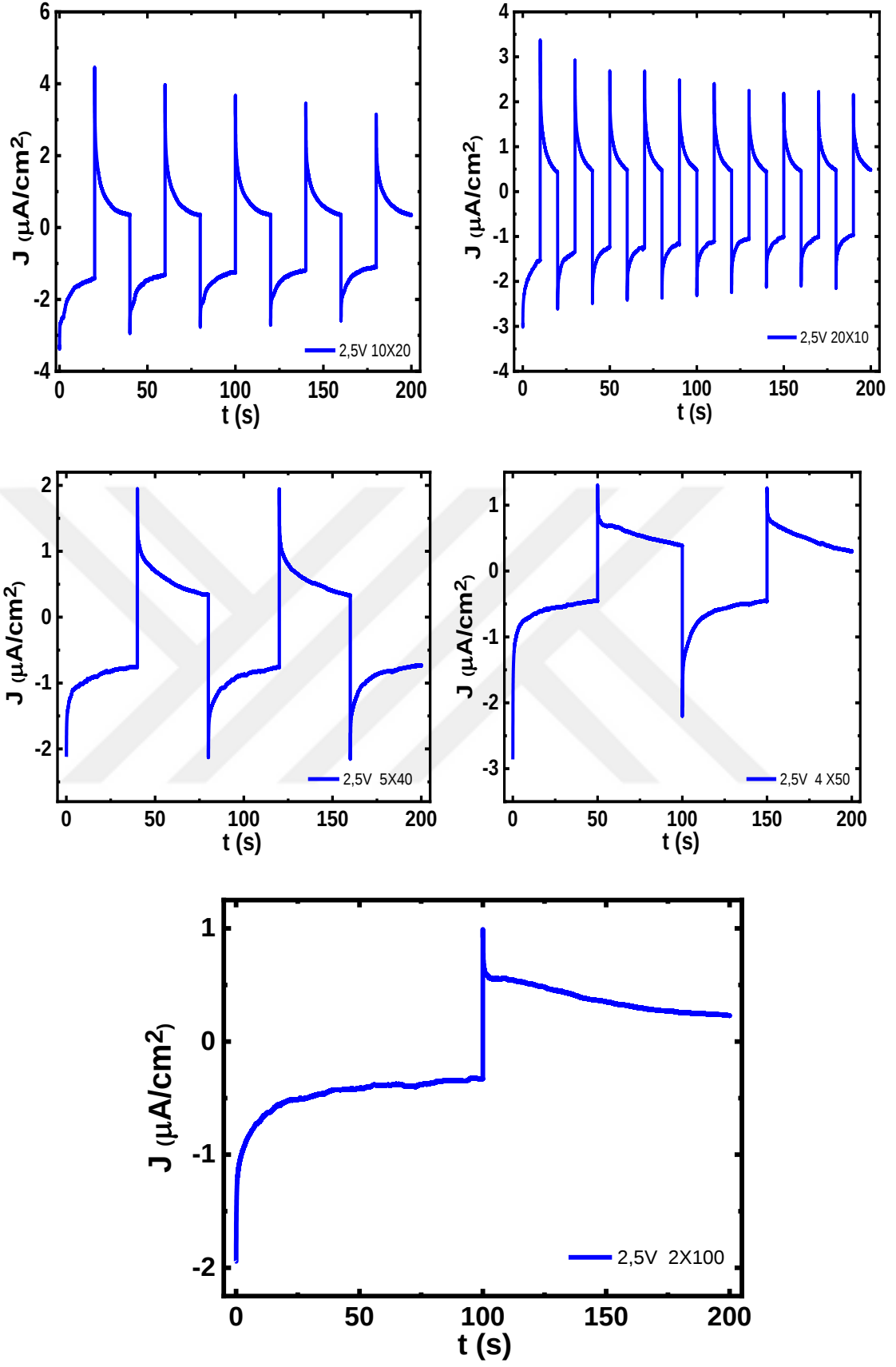
Şekil 4.69. P5 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.70. P5 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslerle elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.71. P5 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.72. P5 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulsarla elde edilmiş CA eğrileri.

PDKBB yöntemi ile hazırlanmış P5 nolu örneğin uygulama gerilimi $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 30, 40, ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarından elde edilen CV eğrilerinden maksimum katodik (I_C) ve anodik (I_A) akım yoğunluğu değerleri, örneğin yüzeyine giren (Q_C) ve çıkan (Q_A), yük miktarları hesaplanmıştır. Tablo 4.29’da hesaplanan bu değerler verilmiştir.

Tablo 4.29. P5 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	Tarama Hızı (mV.s^{-1})	Q_A ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	Q_C ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	I_C ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)	I_A ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)
$\pm 0,5$	10	5,05	25,18	3,06	0,12
	30	4,92	15,99	4,73	0,25
	50	4,87	13,87	5,82	0,43
± 1	10	68,208	66,09	19,77	6,235
	20	46,404	40,98	18,865	6,61
	30	36,683	39,84	19,05	6,90
	40	29,469	34,27	19,01	6,93
	50	22,663	27,711	19,61	7,22
$\pm 1,5$	10	466,54	543,24	52,11	33,32
	20	280,65	260,45	54,09	34,31
	30	228,37	187,00	56,92	33,97
	40	172,90	136,36	55,02	32,9
	50	152,44	112,90	58,41	35,04
± 2	10	393,94	1254,33	49,2	46,05
	20	289,95	702,70	57,71	52,39
	30	219,38	503,32	64,31	56,47
	40	172,08	396,55	68,79	59,44
	50	146,14	307,40	70,49	57,40
$\pm 2,5$	10	46,77	39,26	1,13	0,98
	20	25,15	26,01	1,35	0,85
	30	16,59	20,00	1,53	0,79
	40	12,23	19,90	1,86	0,83
	50	13,69	18,38	2,28	1,08

P5 nolu örneğin $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V uygulanan potansiyel farklarda 20 ve 100 saniyelik pulslarla toplamda 200 saniye boyunca ölçülen CA eğrilerinden film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarları hesaplanmıştır. Tablo 4.30'da hesaplanan ΔQ_C ve ΔQ_A değerlerler verilmiştir.

Tablo 4.30. P5 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	$\Delta Q_C(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_C(\mu C/cm^2)$ (2X100)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (2X100)
$\pm 0,5$	42,16	10,05	101,65	14,50
± 1	441,43	236,90	2085,62	900,005
$\pm 1,5$	1149,93	775,80	3790,49	2393,69
± 2	809,35	540,28	84,47	47,92
$\pm 2,5$	31,72	15,28	47,26	37,46

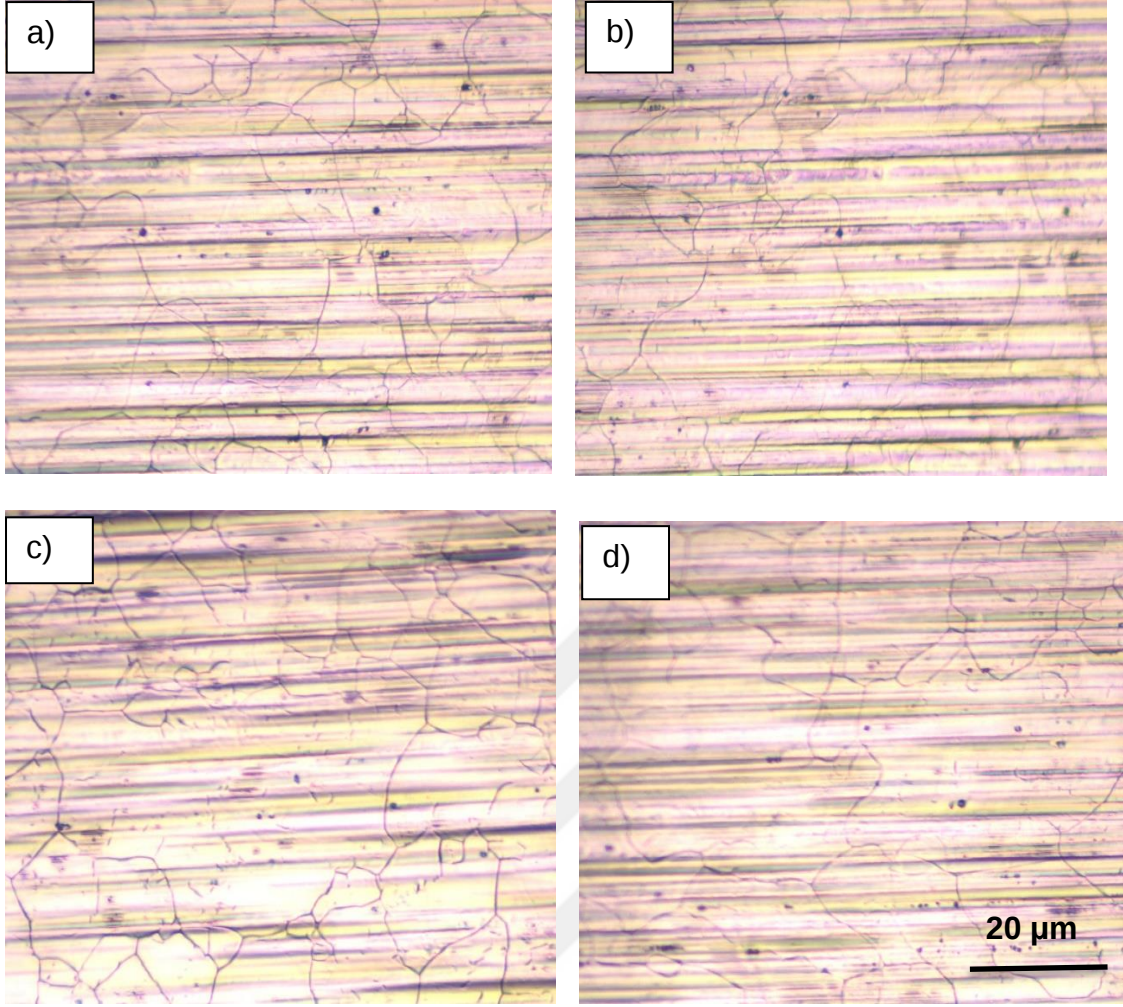
P5 nolu örnek üzerine uygulana tüm gerilim aralıkları için ölçülen CV eğrileri incelendiğinde, tarama hızı arttırıldıkça, CV eğrilerinin altında kalan alanlar ile katodik ve anodik tepe akımı değerlerinin de yükseldiği görülmektedir. -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilim altında alınan ölçümün anodik ve katodik yük miktarlarının diğer ölçümler arasında en düşük değerlere sahip olduğu görülmektedir. Uygulanan tüm potansiyel farklar altındaki ölçümlerde maksimum katodik akım piklerinin, maksimum anodik piklerden daha fazla olduğu görülmektedir. Elektrokimyasal ölçümler kapsamında incelenen CA eğrilerinden film yüzeyine giren/çıkan yük miktarları uygulanan potansiyel fark ile birlikte yükselmiştir. Hesaplanan değerlerde ± 1 V, $\pm 1,5$ V ve ± 2 V potansiyel farklar altındaki ölçümlerde çıkan yük miktarlarının daha yüksek olduğu ve $\pm 0,5$ V ve $\pm 2,5$ V potansiyel farklar altında giren yük kadar çıkan yük miktarının olmadığı görülmüştür.

4.2.4. Plazma Destekli Kimyasal Buhar Biriktirme Yöntemi ile Sentezlenen Grafen Filmlerin Özellikleri Üzerinde Uygulanan RF Gücün Etkisi

Tez çalışmalarının bu bölümün de grafen örneklerin sentez sürecinin optimizasyonu için deneysel çalışmalar yapılmıştır. Yapılan ön deneyler gaz akış miktarları, tavlama sıcaklığı, tavlama süresi ve büyütme parametrelerinin yanında uygulanan gücün etkilerini belirlemek için gerçekleştirilmiştir. Optimizasyon için yapılan deneyler değerlendirilerek en iyi sonuç veren deney parametreleri kombinasyonu belirlenmiştir ve bu değerler kullanılarak sentezlene grafen katmanların özelliklerine büyütme işlemi sırasında uygulanan RF gücün etkisini incelemek amacıyla 25 W, 50 W, 100 W, 150 W ve 200 W olmak üzere beş farklı güç değerleri altında deneyler gerçekleştirilmiştir. Bu kapsamdaki grafen sentezi deneyleri için Ar, H₂ ve CH₄ gazları için gaz akış oranları sırasıyla 5, 5 ve 40 sccm olarak belirlenmiştir. Örneklerin 850 °C’de büyüme süreleri 40 dakika olmak üzere toplam beş farklı sentez gerçekleştirilmiştir. Tablo 4.31’de örneklerin sentez parametreleri verilmiştir.

Tablo 4.31. PDKBB tekniği ile hazırlanan örneklerin büyütme parametreleri.

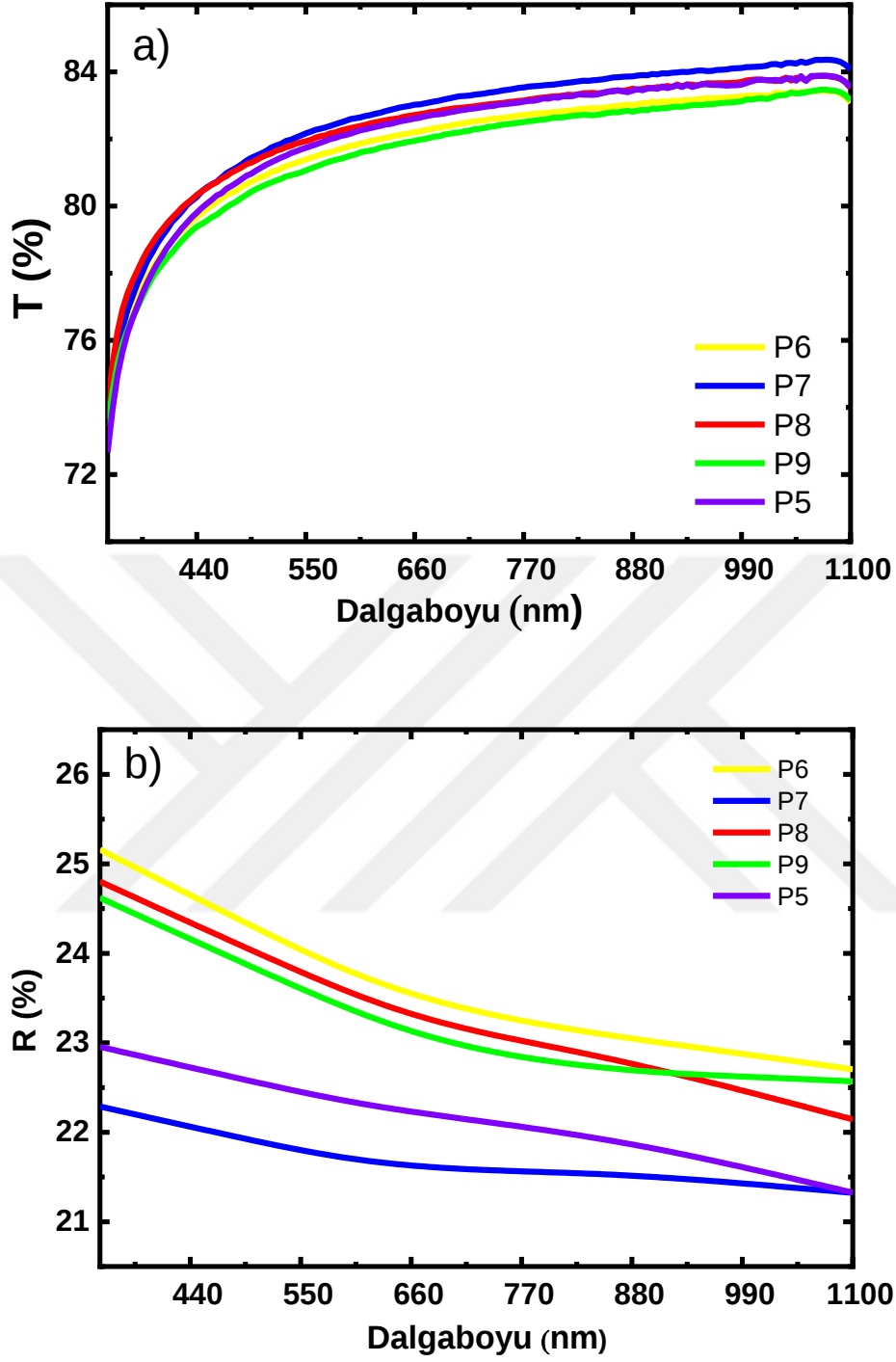
Örnek Adı	Ar (sccm)	H ₂ (sccm)	CH ₄ (sccm)	Tavlama Süresi (dk.)	Büyütme Süresi (dk.)	Güç (W)
P6	5	5	40	35	40	25
P7	5	5	40	35	40	50
P8	5	5	40	35	40	100
P9	5	5	40	35	40	150
P5	5	5	40	35	40	200



Şekil 4.73. PDKBB tekniği ile sentezlenen a) P6, b) P7, c) P8 ve d) P9 nolu örneklerin optik mikroskop görüntüleri.

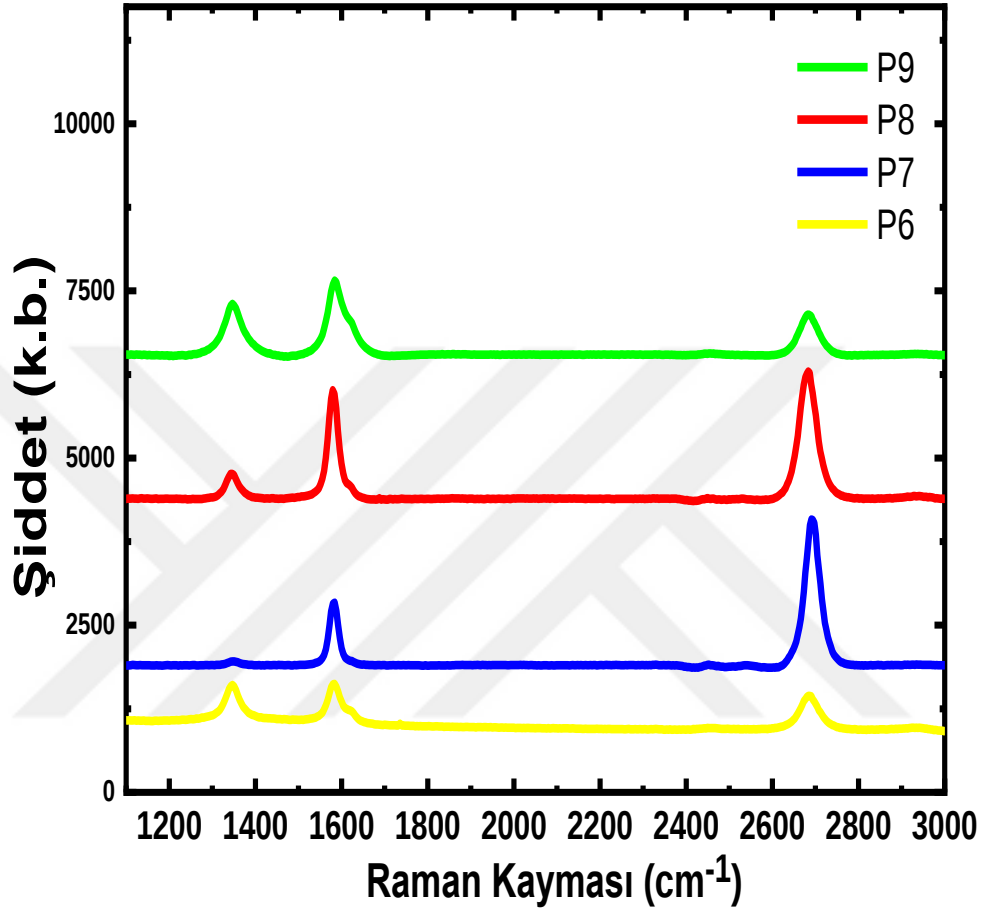
P6, P7, P8 ve P9 nolu örneklerin optik mikroskop görüntüleri incelendiğinde bakır folyo üzerinde oluşan farklı büyüklük ve yönelimlerde tanecikler bulunmaktadır. Tanecikliklerin sınırları belirgin bir şekilde görülmektedir. Ek olarak büyük taneciklerin oluştuğu görülmüştür.

PDKBB tekniği ile farklı gaz akış miktarlarında büyütmüş örneklerin dalga boyuna bağlı optik geçirgenlikleri Şekil 4.68’de verilmiştir. Şekiller incelendiğinde P5, P6, P7, P8 ve P9 nolu örneklerin 550 nm’deki optik geçirgenliklerinin sırasıyla % 80,5, % 81,9 % 79,7, % 81,8 ve % 81,7 olduğu görülmüştür. Bu sonuçlar doğrultusunda en yüksek optik geçirgenliğe 50 W güç altında sentezlenen P7 nolu örneğin ve en düşük optik geçirgenliğe ise P3 nolu örneğin sahip olduğu tespit edilmiştir. Diğer örneklerin ise optik geçirgenliklerinin birbirine çok yakın olduğu görülmektedir.



Şekil 4.74. P5, P6, P7, P8 ve P9 nolu örneklerin a) optik geçirgenlik ve b) optik yansıtma spektrumları.

Aynı örneklerin Raman spektrumları incelenmiştir. Şekil 4.5’de tüm örneklerde grafenin Raman spektrumunda sahip olması beklenen D, G ve 2D olarak adlandırılan üç ana pik olduğu görülmektedir. Tablo 4.32’de grafen örneklerin Raman spektrumlarındaki farklı oranlarda ve pozisyonlarda olan piklerinin bazı karakteristik özellikleri verilmiştir.



Şekil 4.75. P5, P6, P7, P8 ve P9 nolu örneklerin Raman spektrumu.

P5, P6, P7, P8 ve P9 nolu örneklerinin Raman spektrumları incelendiğinde her örneğin birbirinden farklı Raman spektrumunun olduğu görülmektedir. Tek katmanlı grafen 2D pik merkezinin konumu 2679 cm^{-1} civarındadır. Bu değer grafenin katman sayısı arttıkça sağa doğru kayarak artar. Tek katmanlı grafen için G pikinin konumu yaklaşık olarak 1587 cm^{-1} ’dir. Katman sayısı arttıkça G pikinin konumu sola doğru kaymaktadır [52,53].

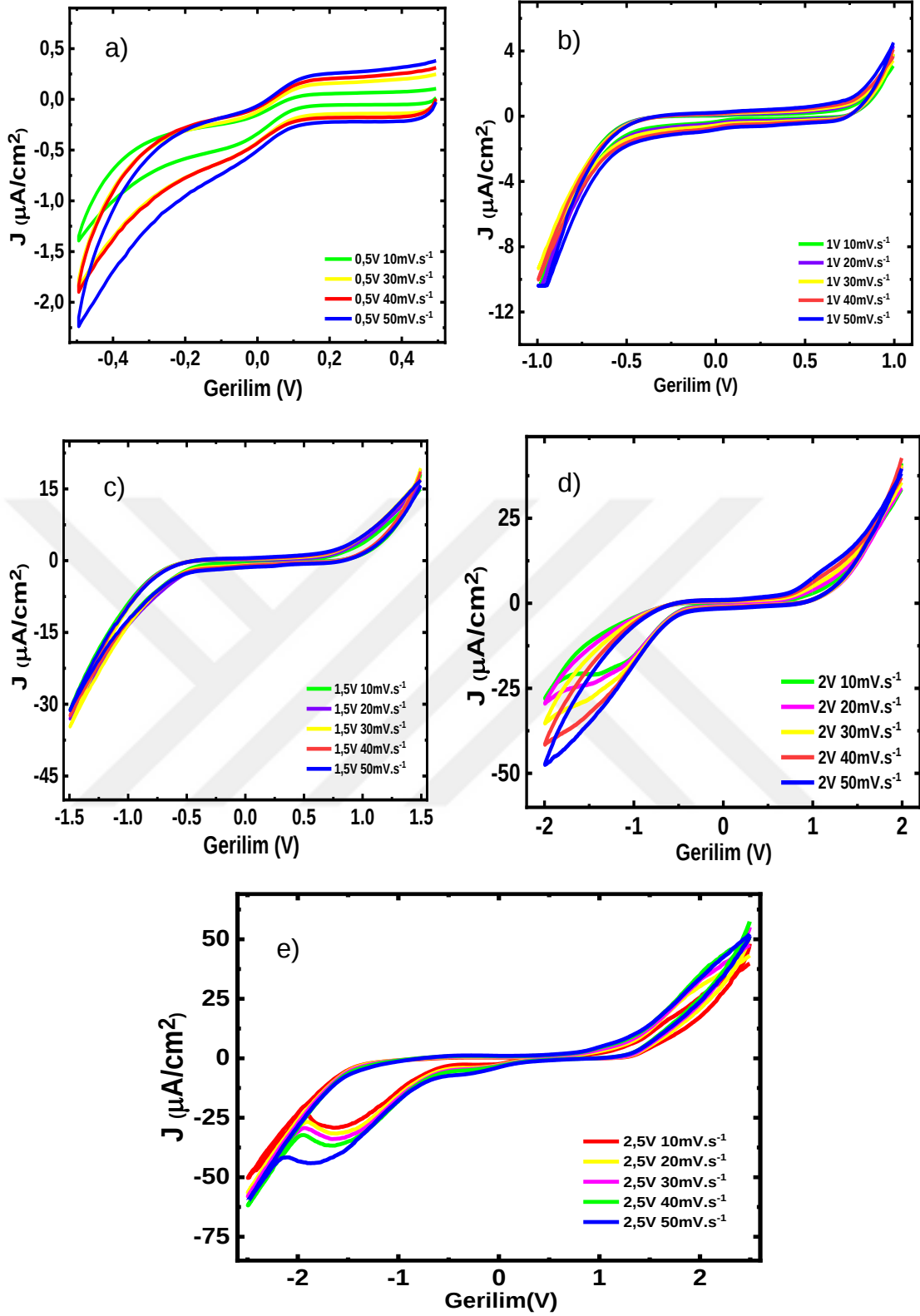
P5, P6, P7, P8 ve P9 nolu örneklerin Raman spektrumları incelendiğinde, D pikin en yüksek şiddeti P5 nolu örneğe aittir. Bu nedenle P5 nolu örneğin daha fazla iç kusurlara sahip olduğu değerlendirilmiştir.

Tablo 4.32’de grafen örneklerin Raman spektrumlarındaki farklı oranlarda ve pozisyonlarda olan piklerinin bazı karakteristik özellikleri verilmiştir.

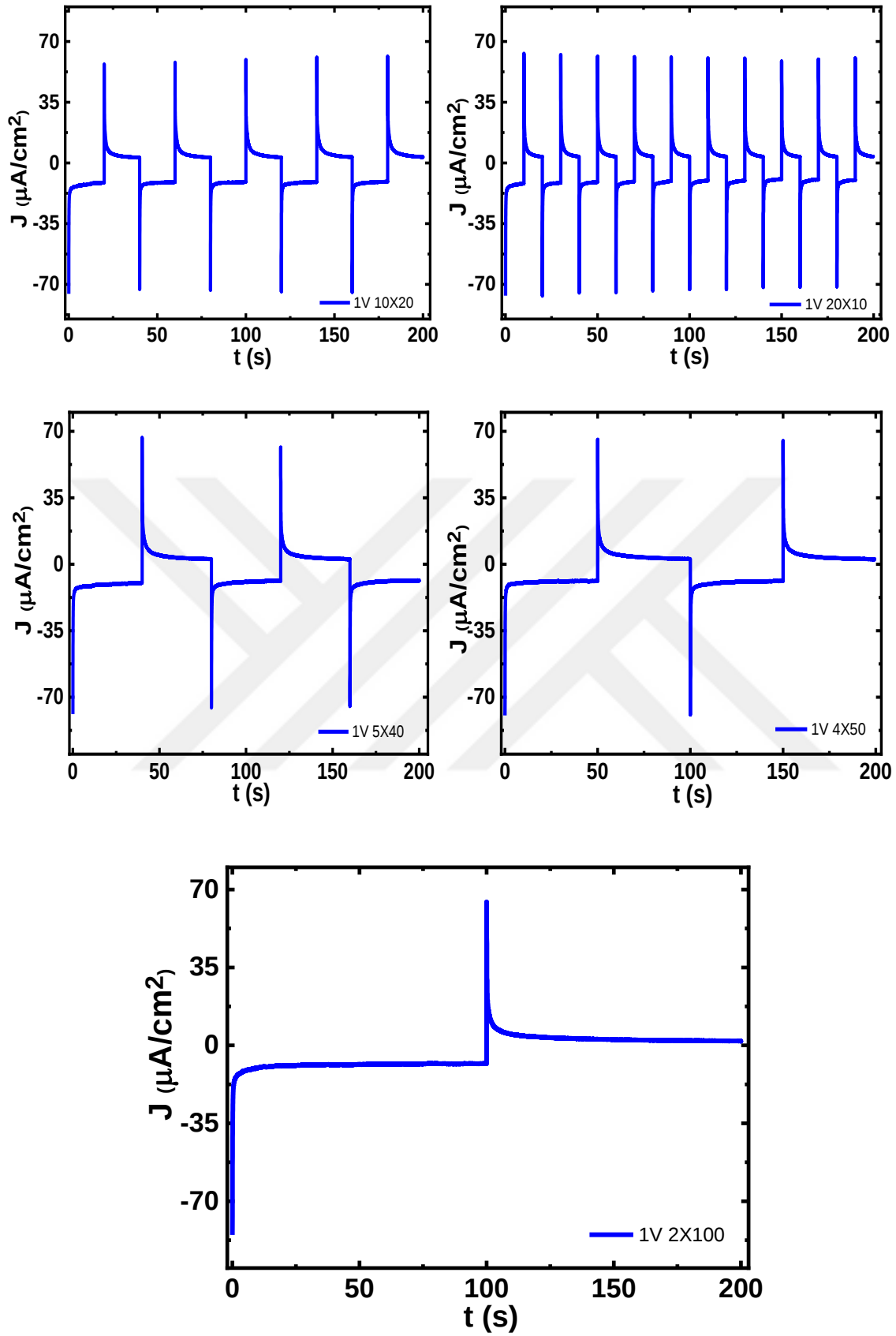
Tablo 4.32. P5, P6, P7, P8 ve P9 nolu örneklerin Raman spektrumundan elde edilen bilgiler.

Örnek Adı	Pik Merkezi (cm^{-1})	Maksimum Şiddet (k.b.)	FWHM (cm^{-1})	I_D / I_G	I_{2D} / I_G
P5	1346,92	984,62	40,31	0,86	0,70
	1585,43	1326,12	41,78		
	2684,73	929,71	61,14		
P6	1346,49	460,84	42,83	0,93	0,94
	1585,12	495,48	46,05		
	2685,94	461,59	54,42		
P7	1345,74	50,70	33,84	0,05	2,38
	1583,88	930,98	30,23		
	2682,27	2091,39	48,81		
P8	1345,74	50,70	33,84	0,05	2,24
	1583,88	930,98	30,23		
	2682,27	2091,39	48,81		
P9	1348,50	687,11	56,42	0,70	0,60
	1590,24	964,10	59,97		
	2684,62	584,18	55,47		

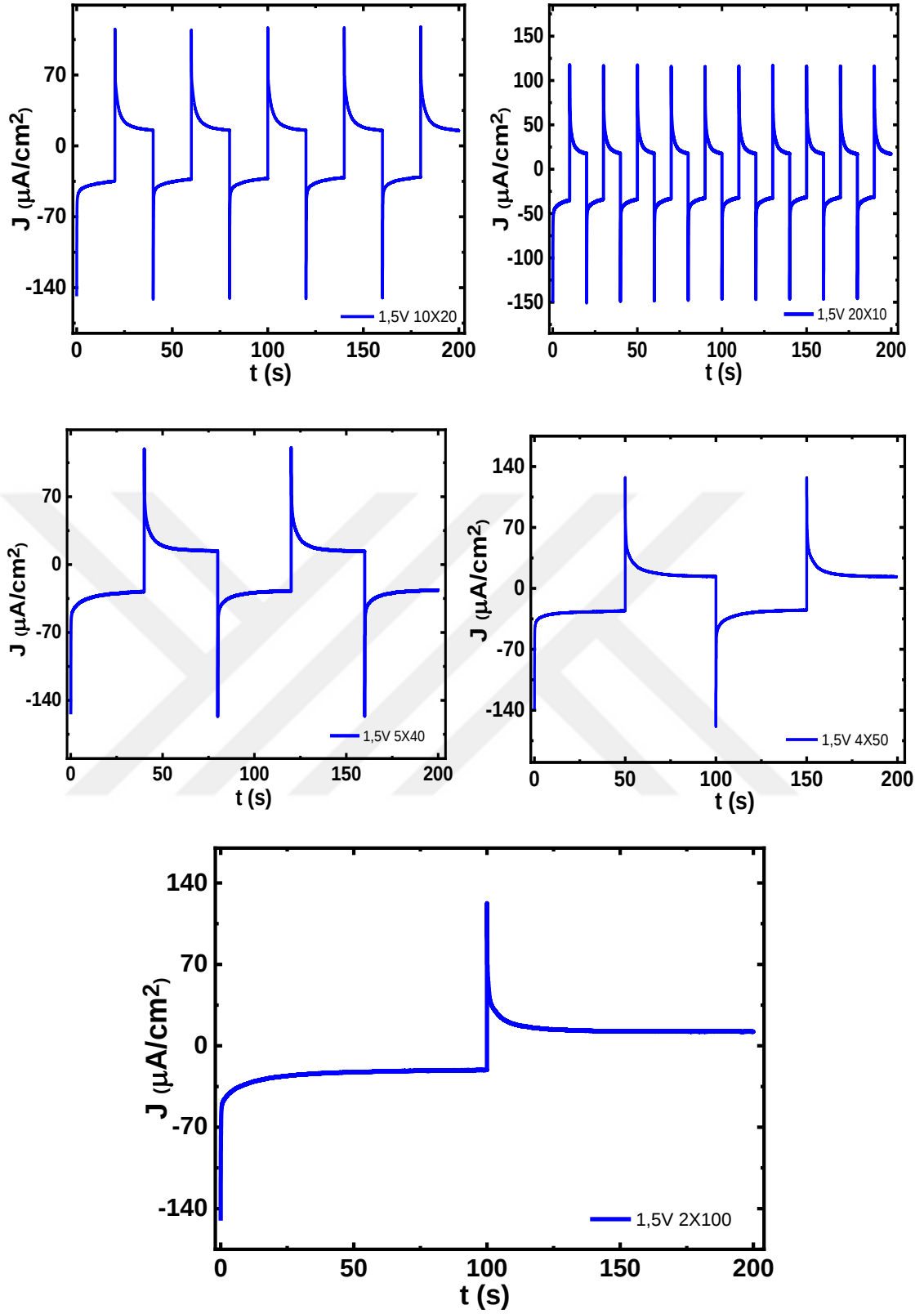
Tablodaki verilerden örneklerin Raman spektroskopisindeki I_D/I_G ve I_{2D}/I_G oranları hesaplanmıştır. Tüm sonuçlar incelendiğinde, P5, P6 ve P9 nolu örneklerin en fazla dört katmanlı olduğu, P7 ve P8 nolu örneğin en fazla üç katmanlı olduğu değerlendirilmektedir.



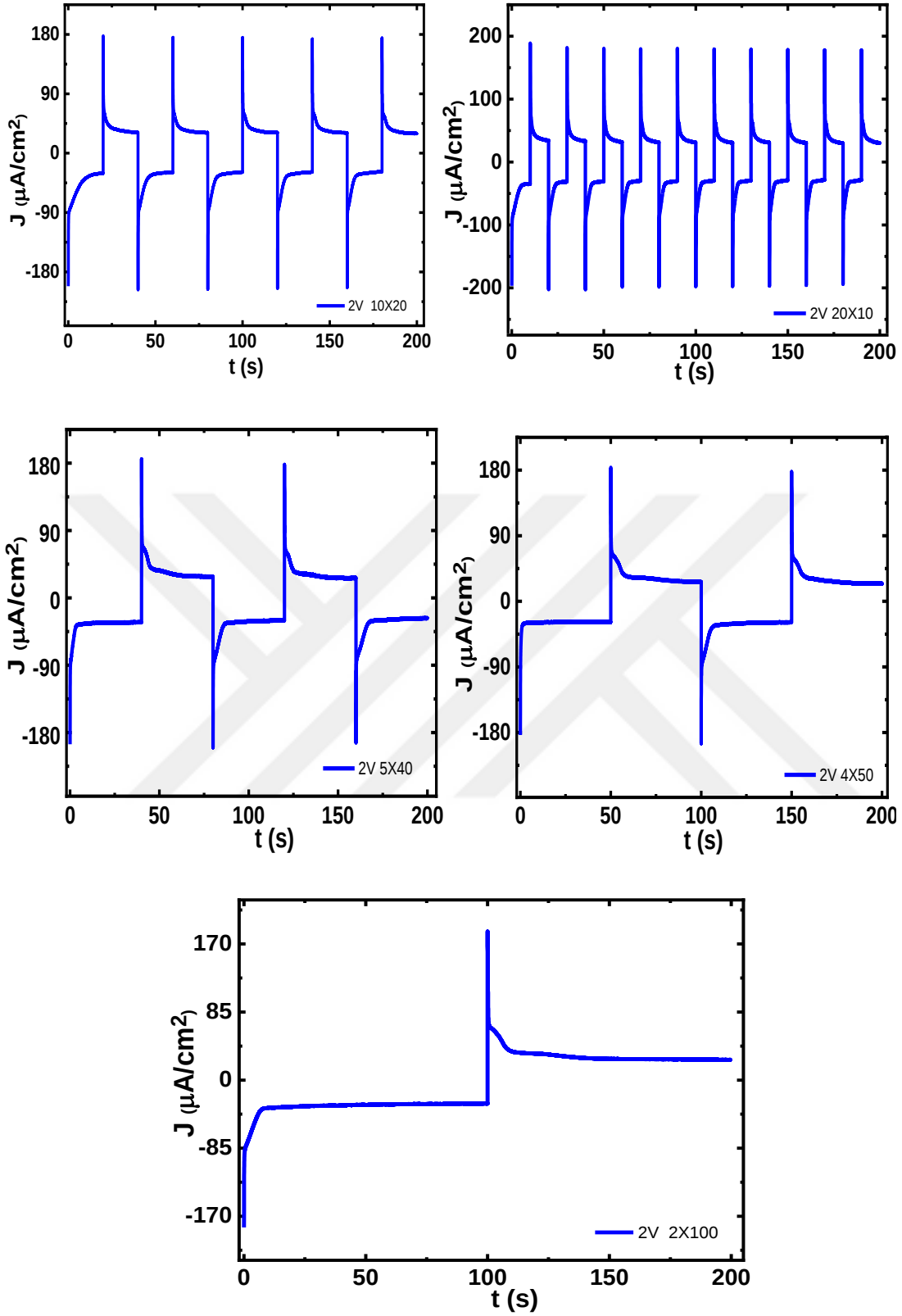
Şekil 4.76. PET alttaş üzerine transfer edilen P6 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mVs⁻¹ tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2V ile +2V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.



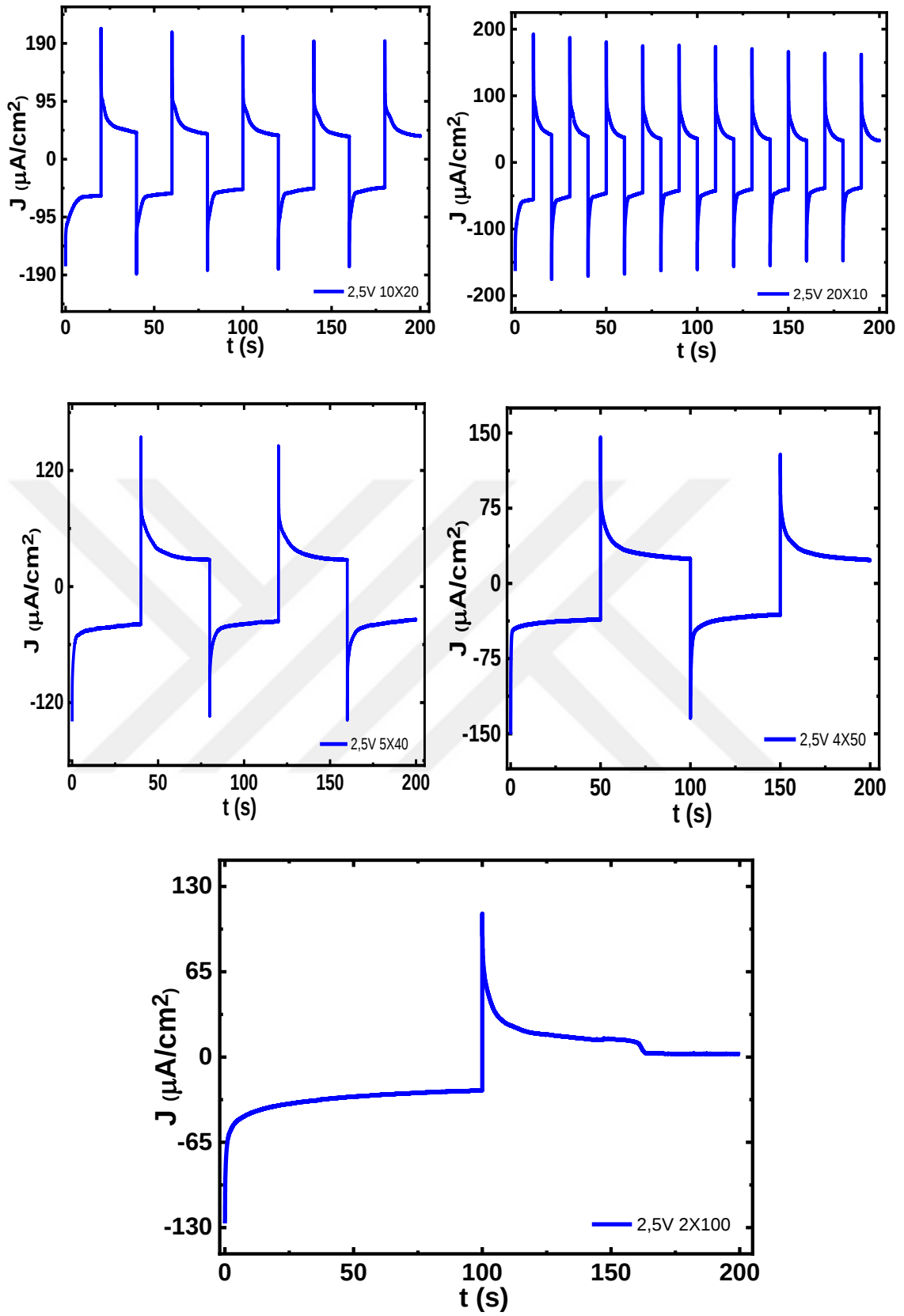
Şekil 4.77. P6 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.78. P6 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.79. P6 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.80. P6 örneğinin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.

PDKBB yöntemi ile hazırlanmış P6 nolu örneğin uygulama gerilimi $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 30, 40, ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarından elde edilen CV eğrilerinden örneğin giren ve çıkan yük miktarları ve maksimum I_C ve I_A akım yoğunluğu değerleri hesaplanmıştır. Tablo 4.33’de bu değerler verilmiştir.

Tablo 4.33. P6 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

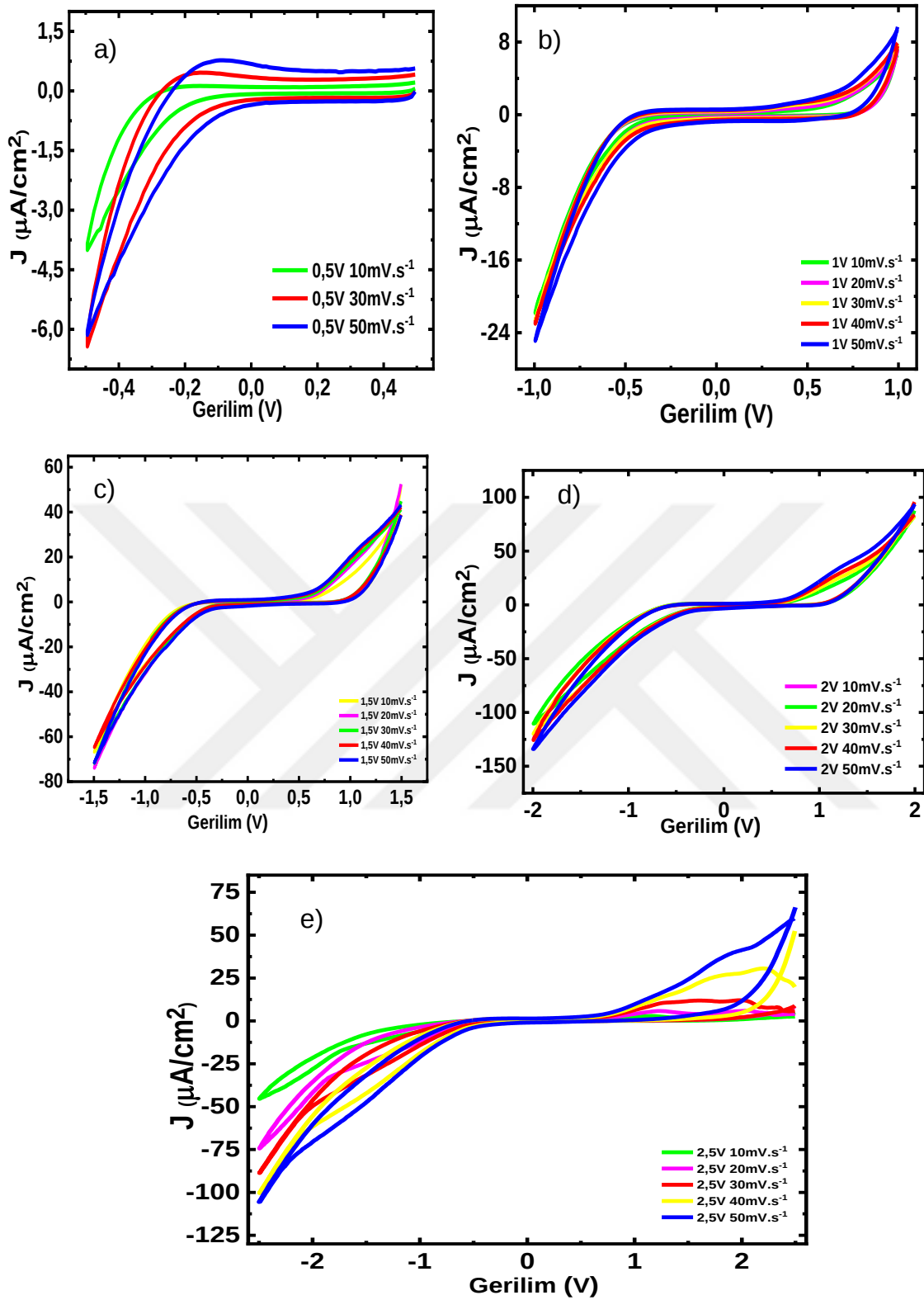
Gerilim (V)	Tarama Hızı (mV.s^{-1})	Q_A ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	Q_C ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	I_C ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)	I_A ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)
$\pm 0,5$	10	2,51	16,41	1,40	0,11
	30	0,07	0,26	1,89	0,24
	50	2,35	7,95	2,24	0,38
± 1	10	18,98	66,45	10,38	3,80
	20	15,21	39,78	10,38	4,30
	30	12,36	30,83	9,33	3,83
	40	10,22	27,79	10,03	4,10
	50	11,59	26,71	10,38	4,52
$\pm 1,5$	10	148,45	348,15	31,19	18,09
	20	95,89	21,89	33,02	19,12
	30	85,74	125,77	34,68	19,33
	40	66,72	94,43	32,38	18,59
	50	67,48	77,59	31,30	16,85
± 2	10	98,46	116,70	28,03	41,16
	20	136,82	655,36	29,45	40,13
	30	119,07	405,62	30,32	40,64
	40	120,35	404,19	41,56	42,71
	50	146,60	327,42	47,50	39,60
$\pm 2,5$	10	842,46	2339,46	31,84	48,17
	20	503,56	1316,91	50,53	51,25
	30	359,38	954,72	58,07	55,06
	40	301,77	769,75	61,82	57,47
	50	273,12	727,92	60,08	52,21

P6 nolu örneğin $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V uygulanan potansiyel farklarda 20 ve 100 saniyelik pulslarla toplamda 200 saniye boyunca ölçülen CA eğrilerinden film yüzeyine giren (ΔQ_C) ve çıkan(ΔQ_A) yük miktarları hesaplanmıştır. Tablo 4.34’de hesaplanan değerlerler verilmiştir.

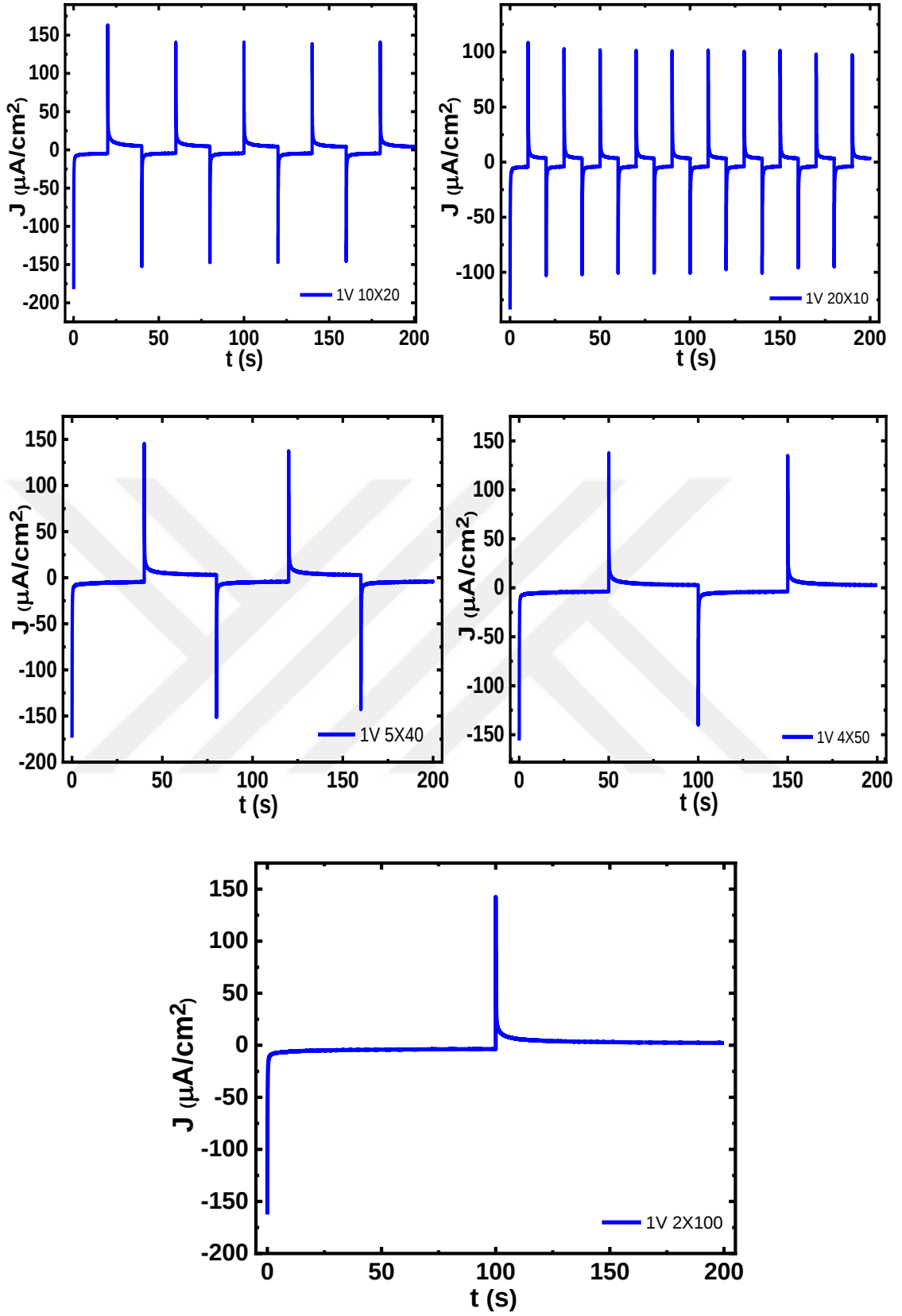
Tablo 4.34. P6 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	Q_c(μC/cm²) (10X20)	Q_A (μC/cm²) (10X20)	Q_c (μC/cm²) (2X100)	Q_A (μC/cm²) (2X100)
$\pm 0,5$	32,58	8,18	108,05	9,58
± 1	239,88	108,58	902,14	329,96
$\pm 1,5$	739,99	461,04	2500,01	1160,72
± 2	797,58	737,64	3227,41	3039,98
$\pm 2,5$	1293,95	1095,01	3289,26	1295,03

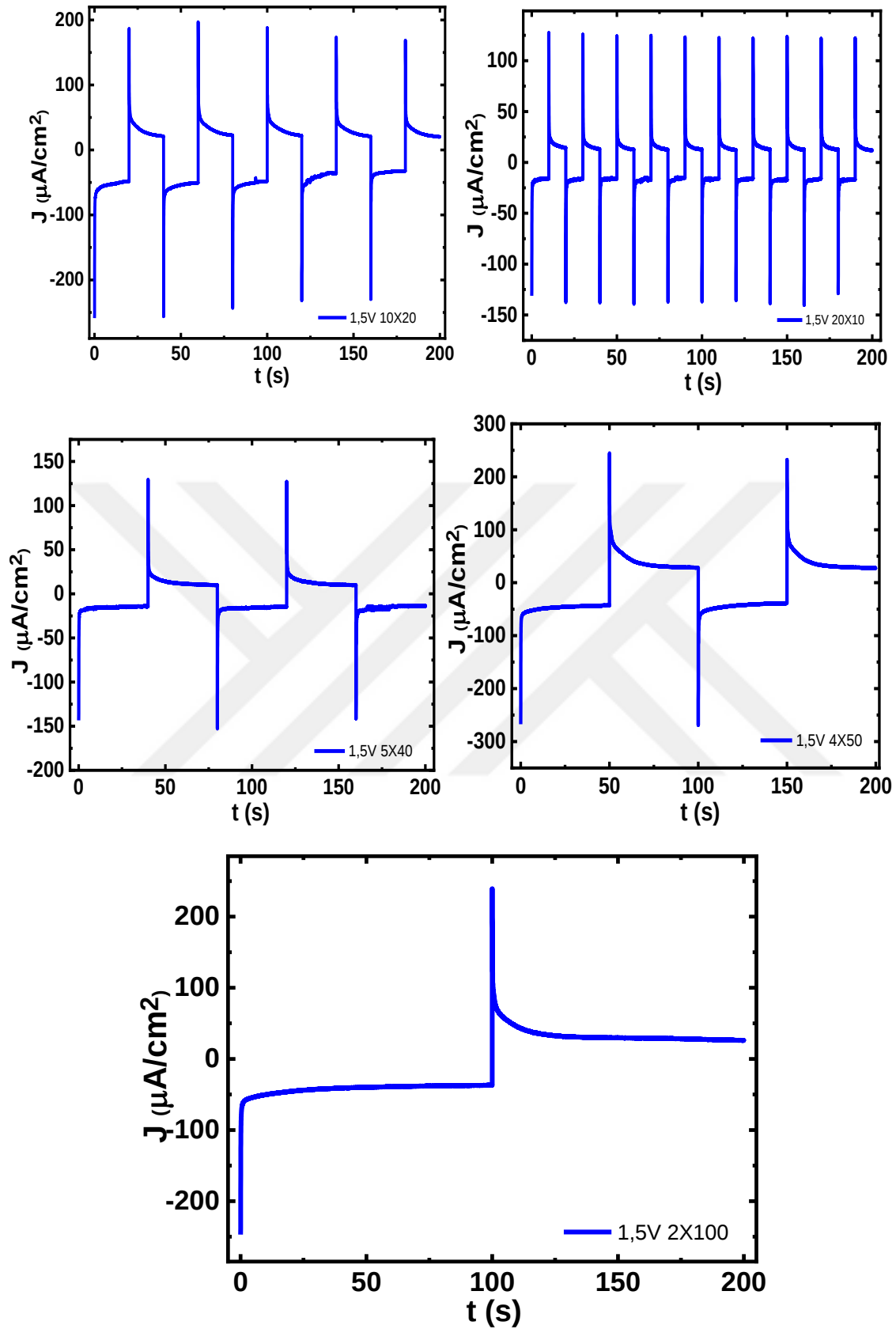
P6 nolu örnek üzerine uygulanan tüm gerilim aralıkları için ölçülen CV eğrileri incelendiğinde, tarama hızı arttırıldıkça CV eğrilerinin altında kalan alanlar ile katodik ve anodik tepe akımı değerlerinin de yükseldiği görülmektedir. Elektrokimyasal ölçümler kapsamında incelenen CA eğrilerinden yararlanılarak hesaplanan film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarları uygulanan potansiyel fark ile birlikte yükseldiği görülmektedir. Ayrıca, çevrimler boyunca giren ve çıkan yük miktarlarının birbirlerine oldukça yakın olduğunu gözlemlenmiştir.



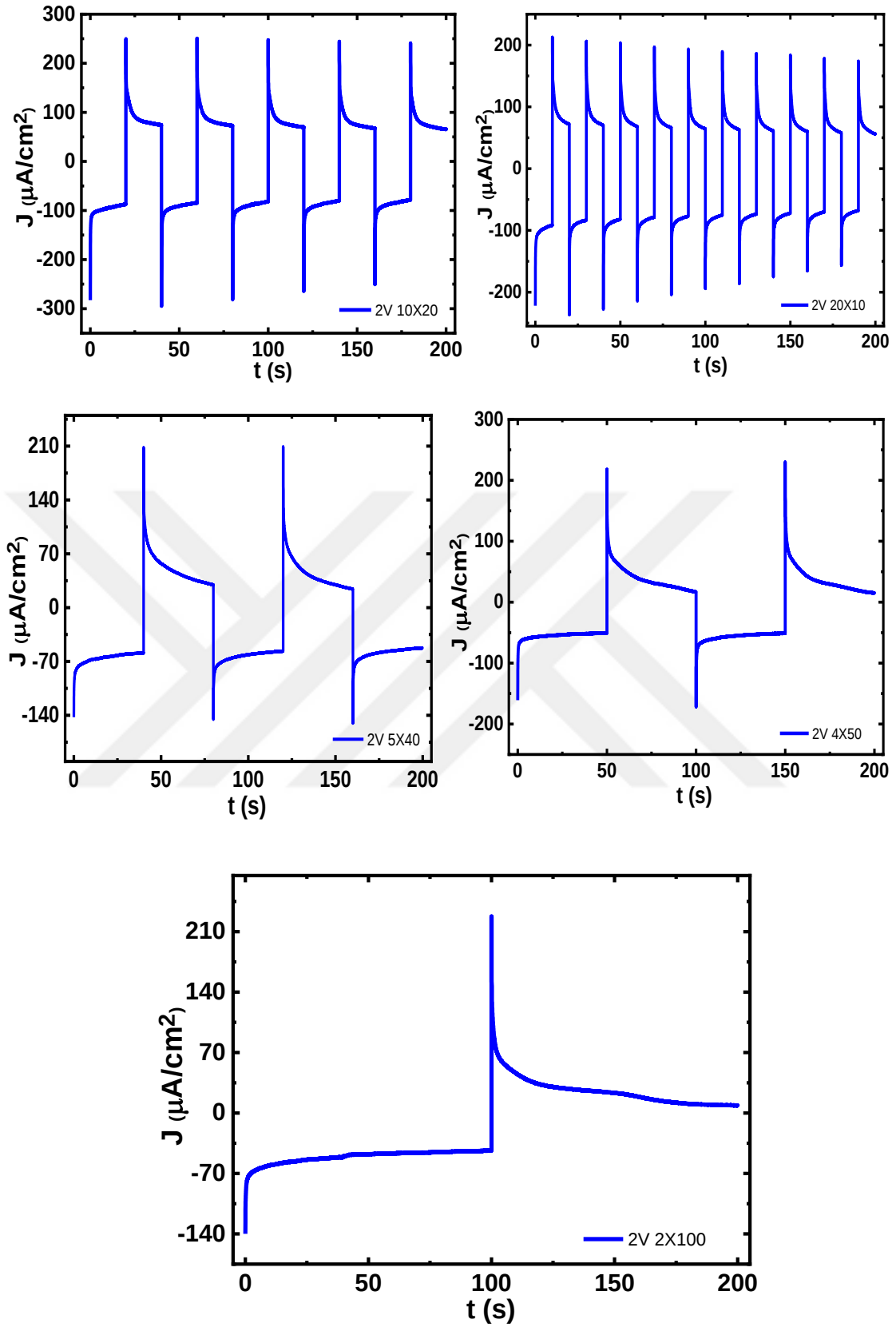
Şekil 4.81. PET alttaş üzerine transfer edilen P7 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 mV.s⁻¹ tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.



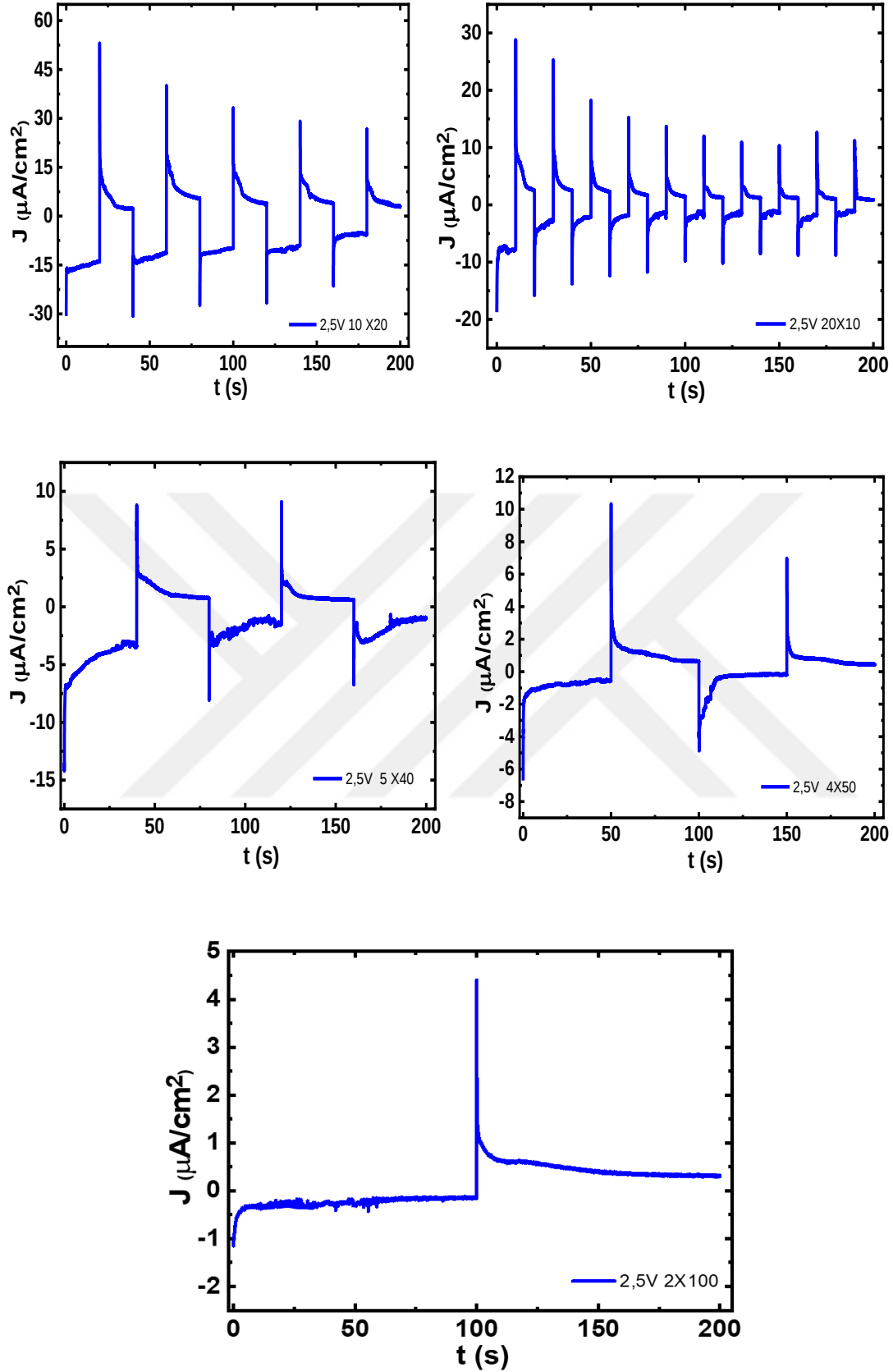
Şekil. 4.82. P7 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40,50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.83. P7 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulsarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.84. P7 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.85. P7 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40,50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri

PDKBB yöntemi ile hazırlanmış P7 nolu örneğin uygulama gerilimi $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 30, 40, ve 50 mVs^{-1} tarama hızlarından elde edilen CV eğrilerinden ölçülen ve maksimum katodik (I_c ve anodik (I_a) akım yoğunluğu değerleri, giren ve çıkan yük miktarı hesaplanmıştır. Tablo 4.35’de hesaplanan bu değerler verilmiştir.

Tablo 4.35. P7 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

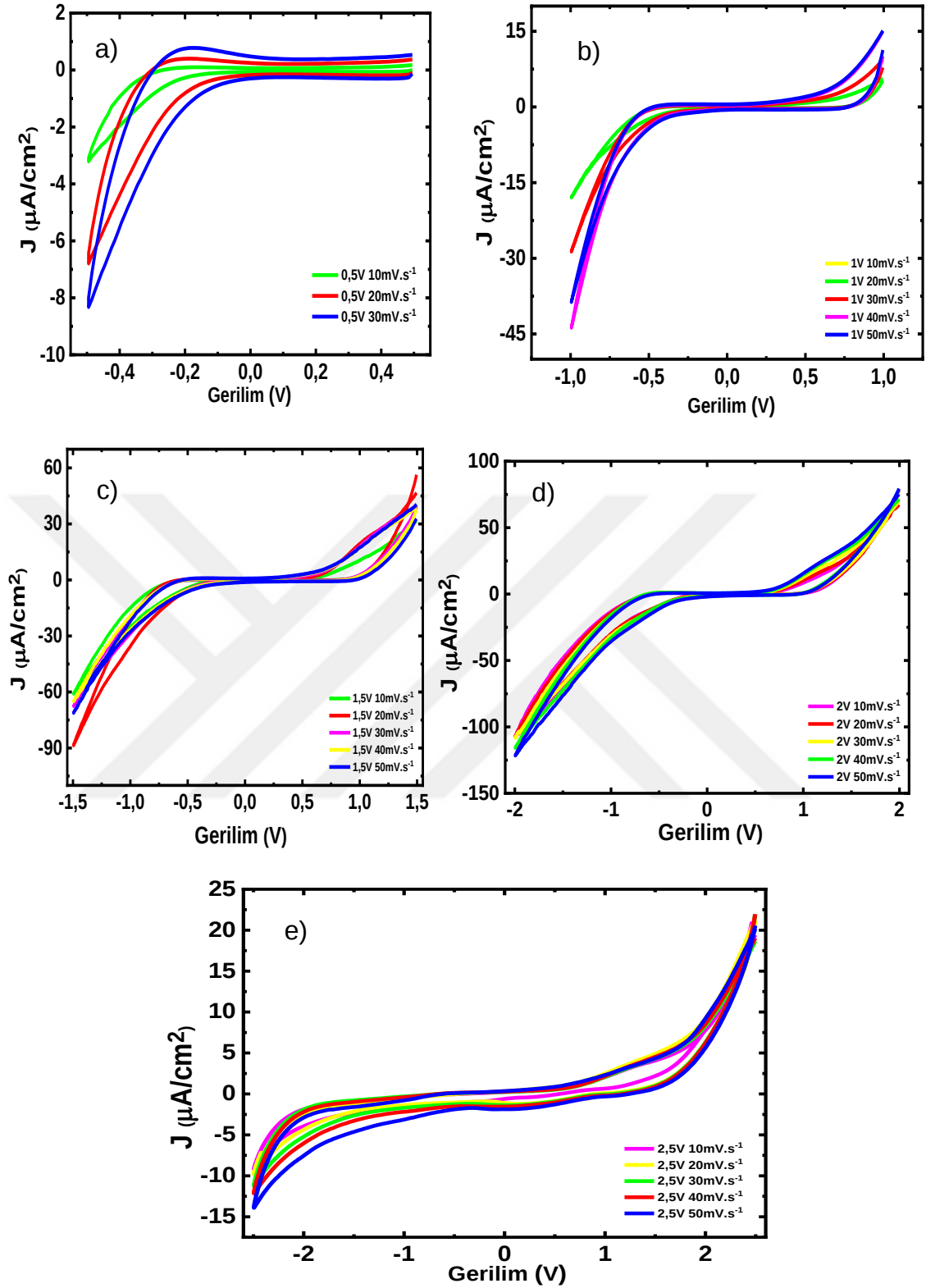
Gerilim (V)	Tarama Hızı (mV.s^{-1})	Q_A ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	Q_c ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	I_c ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)	I_A ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)
$\pm 0,5$	10	8,58	31,04	0,21	4,01
	30	8,51	19,70	0,46	6,43
	50	8,13	13,54	0,77	6,14
± 1	10	98,78	70,67	21,87	7,25
	20	61,62	55,52	22,79	7,24
	30	49,68	41,33	22,70	7,85
	40	41,50	4062	23,01	7,9
	50	37,17	46,57	24,90	9,67
$\pm 1,5$	10	603,22	770,38	66,79	51,9
	20	427,73	417,46	73,93	52,48
	30	318,36	269,10	71,79	44,86
	40	300,56	181,59	64,7	42,21
	50	276,81	179,50	71,64	42,52
± 2	10	1098,05	2667,38	98,48	86,48
	20	609,80	120,8,55	110,9	87,61
	30	430,27	827,66	120,1	95,15
	40	386,003	632,11	125,71	95,63
	50	462,474	525,229	134,07	93,62
$\pm 2,5$	10	234,56	910,90	100,61	66,22
	20	301,27	730,75	100,4	52,42
	30	475,10	442,923	88,71	12,03
	40	617,33	434,96	74,4	8,52
	50	674,88	419,201	45,47	4,98

P7 nolu örneğin $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V uygulanan potansiyel farklarda 20 ve 100 saniyelik pulslarla toplamda 200 saniye boyunca ölçülen CA eğrilerinden ölçülen film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarları hesaplanmıştır. Tablo 4.36’da hesaplanan parametreler verilmiştir.

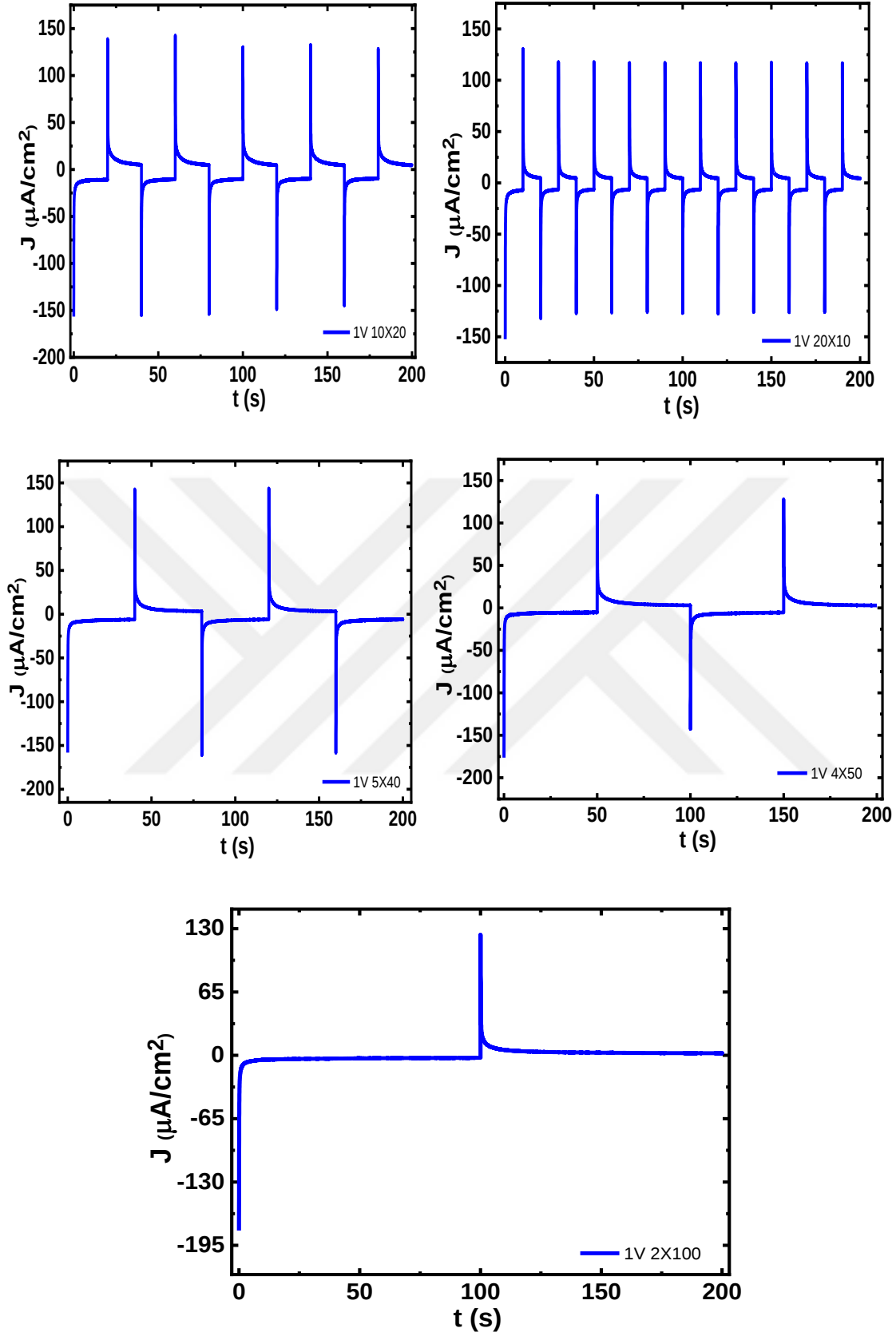
Tablo 4.36. P7 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	$\Delta Q_c(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_c(\mu C/cm^2)$ (2X100)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (2X100)
$\pm 0,5$	57,85	14,98	144,97	27,22
± 1	127,40	143,96	476,43	998,42
$\pm 1,5$	1119,93	645,90	4217,64	3343,66
± 2	1864,94	1732,69	5075,38	3040,22
$\pm 2,5$	225,87	218,25	25,00	46,18

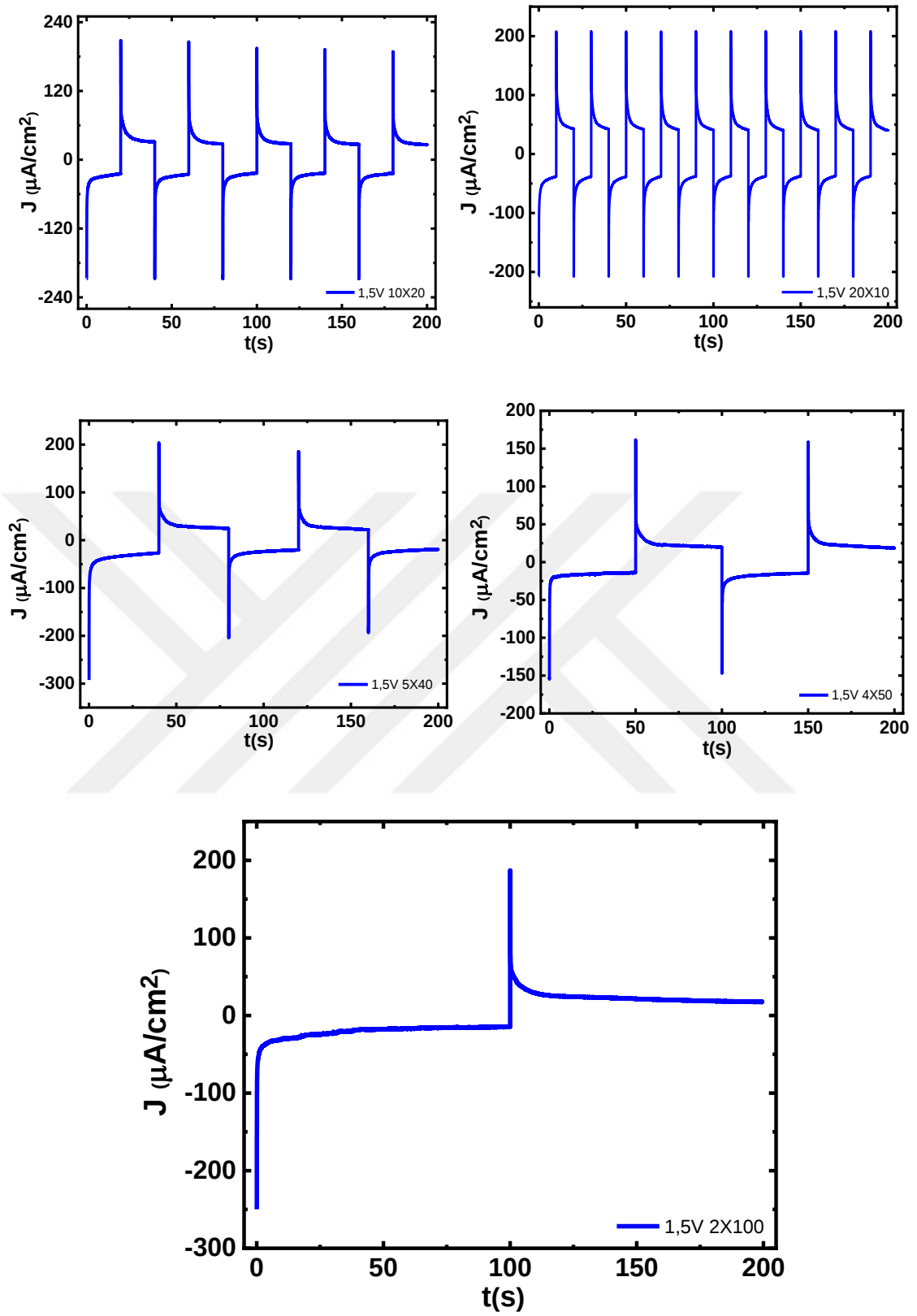
P7 nolu örnek üzerine uygulanan $\pm 2,5$ V hariç tüm gerilim aralıkları için ölçülen CV eğrileri incelendiğinde, tarama hızı arttırıldıkça CV eğrilerinin altında kalan alanlar ile katodik ve anodik tepe akımı değerlerinin de arttığı görülmektedir. Ayrıca, tüm gerilimler için katodik ve anodik yük miktarlarının birbirine çok yakın olduğu görülmektedir. Elektrokimyasal ölçümler kapsamında CA eğrilerinden film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarları uygulanan gerilim ile birlikte yükseldiği görülmektedir ve çevrimler boyunca giren ve çıkan yük miktarlarının da birbirine yakın olduğu gözlemlenmiştir.



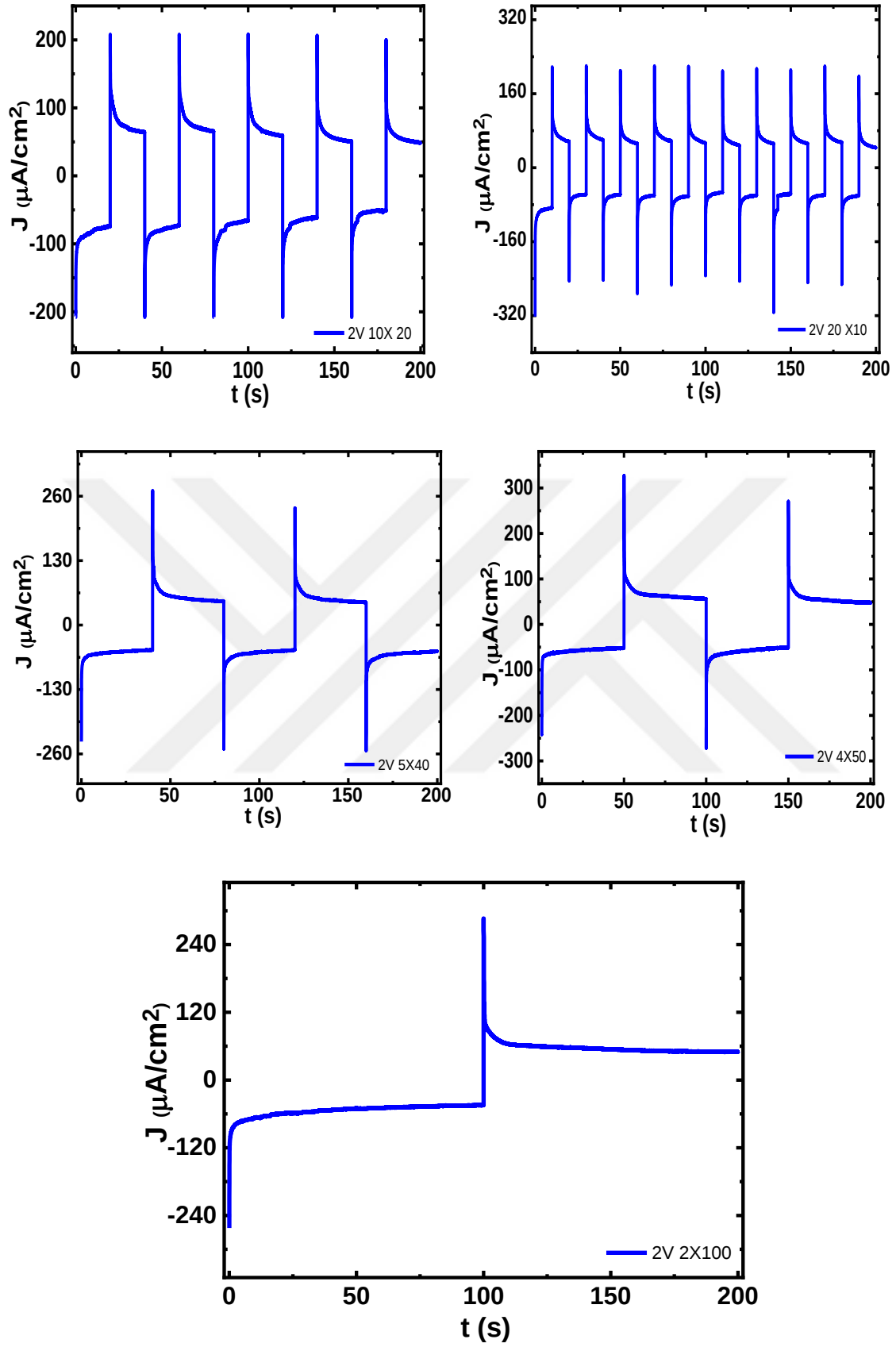
Şekil 4.86. PET alttaş üzerine transfer edilen P8 nolu örneğin 10, 20, 30, 40 ve 50 $\text{mV}\cdot\text{s}^{-1}$ tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.



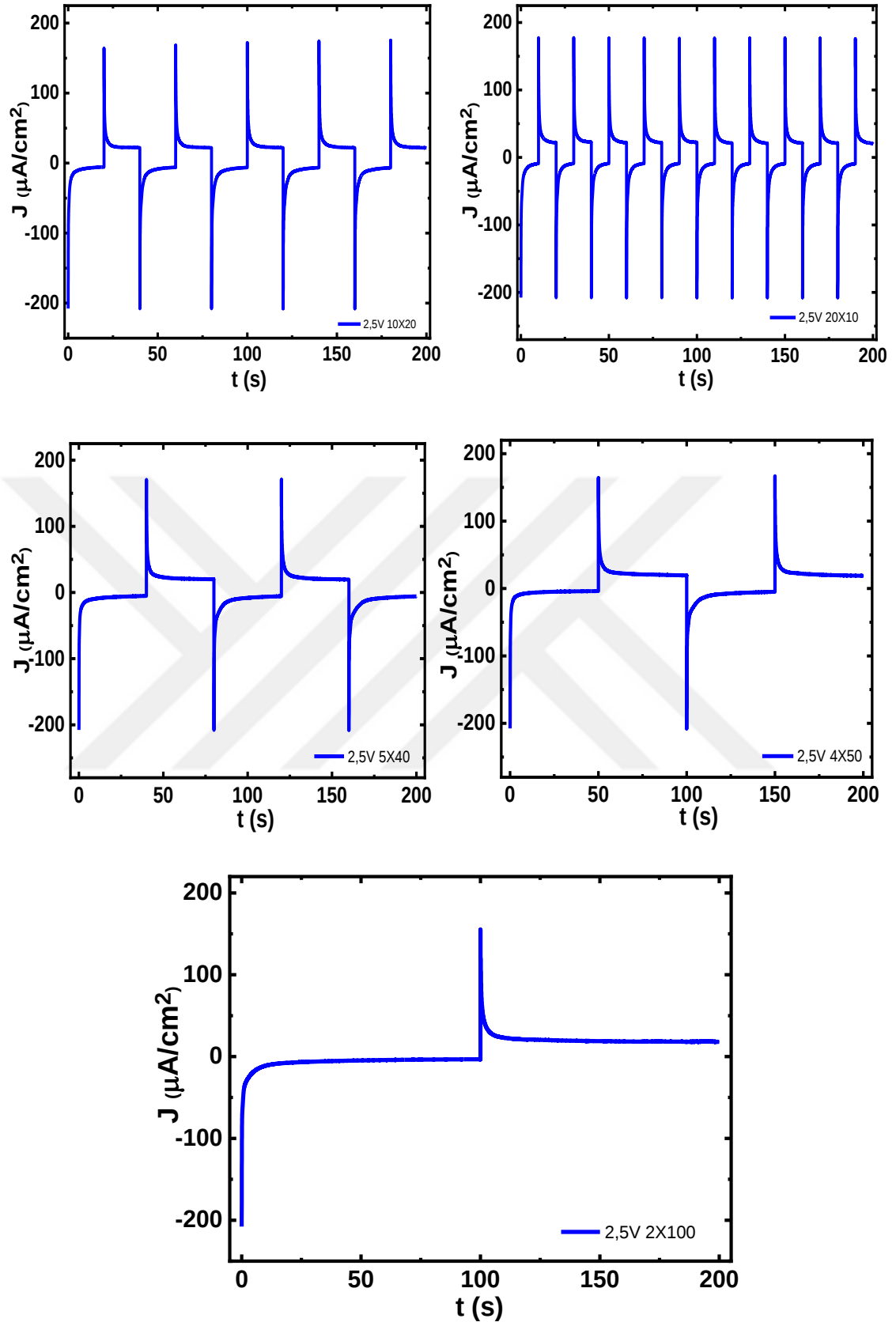
Şekil 4.87. P8 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10, 20, 40,50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.88. P8 nolu örneğin $\pm 1,5$ V aralığında 10, 20, 40,50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.89. P8 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.90. P8 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslerle elde edilmiş CA eğrileri.

PDKBB yöntemi ile hazırlanmış P8 nolu örneğin $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V potansiyel farklar aralığında 10, 20, 30, 40, ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarından elde edilen CV eğrilerinden maksimum katodik ve anodik akım yoğunluğu değerleri ve giren/çıkan yük miktarları hesaplanmıştır. Tablo 4.37’de bu hesaplanan değerler verilmiştir.

Tablo 4.37. P8 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

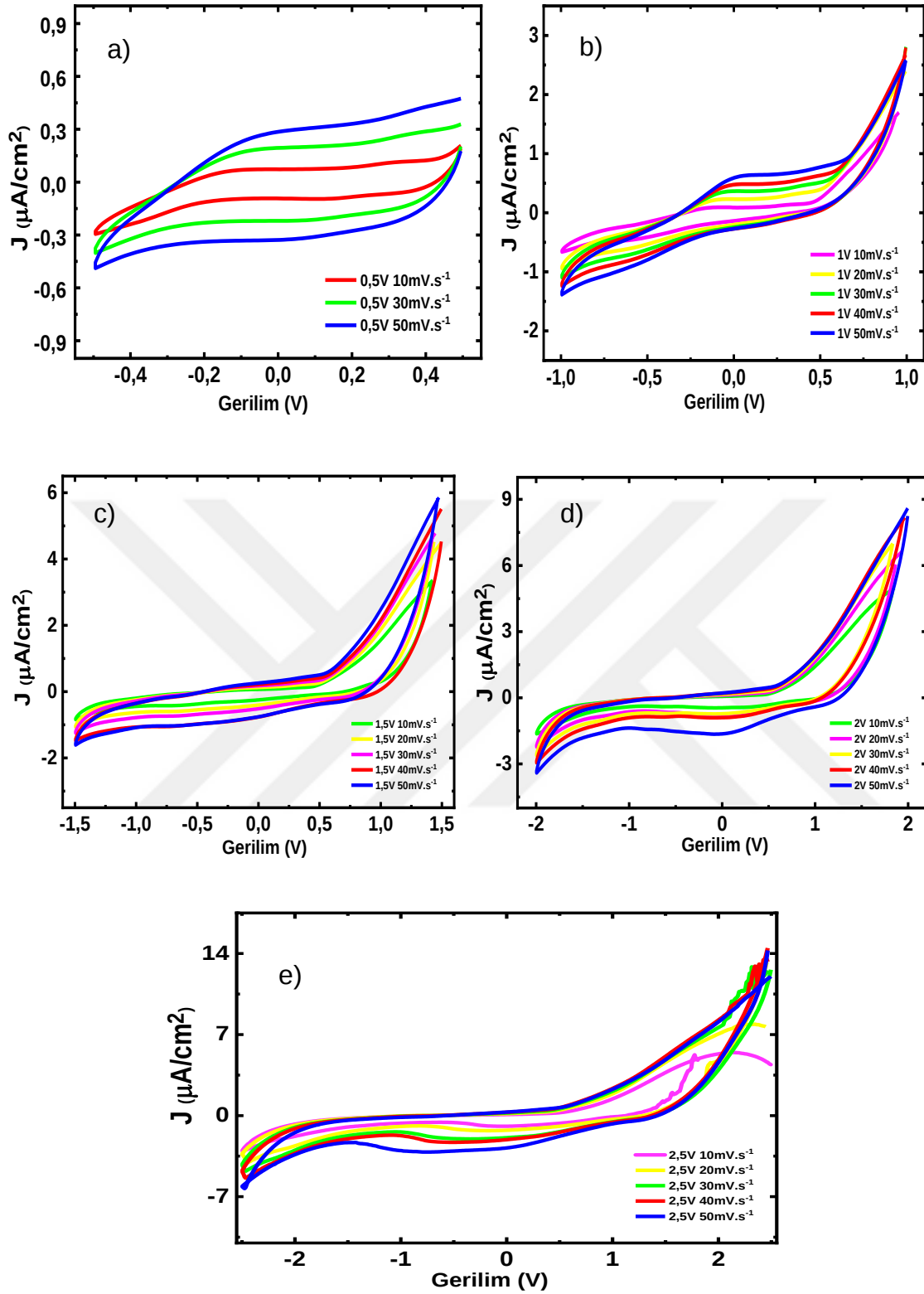
Gerilim (V)	Tarama Hızı (mV.s^{-1})	Q_A ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	Q_C ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	I_C ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)	I_A ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)
$\pm 0,5$	10	6,49	24,64	3,21	0,17
	30	7,27	22,41	6,79	0,39
	50	7,71	16,91	8,32	0,78
± 1	10	57,99	88,20	13,48	4,33
	20	53,19	51,82	17,97	5,61
	30	59,28	52,78	28,69	9,38
	40	75,48	62,94	43,77	15,01
	50	63,06	55,91	38,67	15,13
$\pm 1,5$	10	404,96	763,14	61,02	40,33
	20	446,78	527,66	88,60	56,35
	30	352,08	258,42	67,60	40,14
	40	278,28	188,89	65,06	38,74
	50	263,49	141,49	71,22	40,375
± 2	10	769,220	2743,62	107,14	71,89
	20	423,200	1113,36	106,89	78,41
	30	384,10	666,66	108,35	76,12
	40	314,04	552,58	115,93	78,66
	50	300,03	479,46	121,71	79,45
$\pm 2,5$	10	162,41	352,75	9,21	21,02
	20	294,45	176,36	9,81	21,29
	30	133,46	184,90,	11,22	21,93
	40	4,56	6,64	12,15	21,96
	50	5,80	8,28	13,92	20,56

P8 nolu örneğin $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V uygulanan potansiyel farklarda 20 ve 100 saniyelik pulslarla toplamda 200 saniye boyunca CA eğrilerinden ölçülen film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarı hesaplandı. Tablo 4.3’de bu değerler verilmiştir.

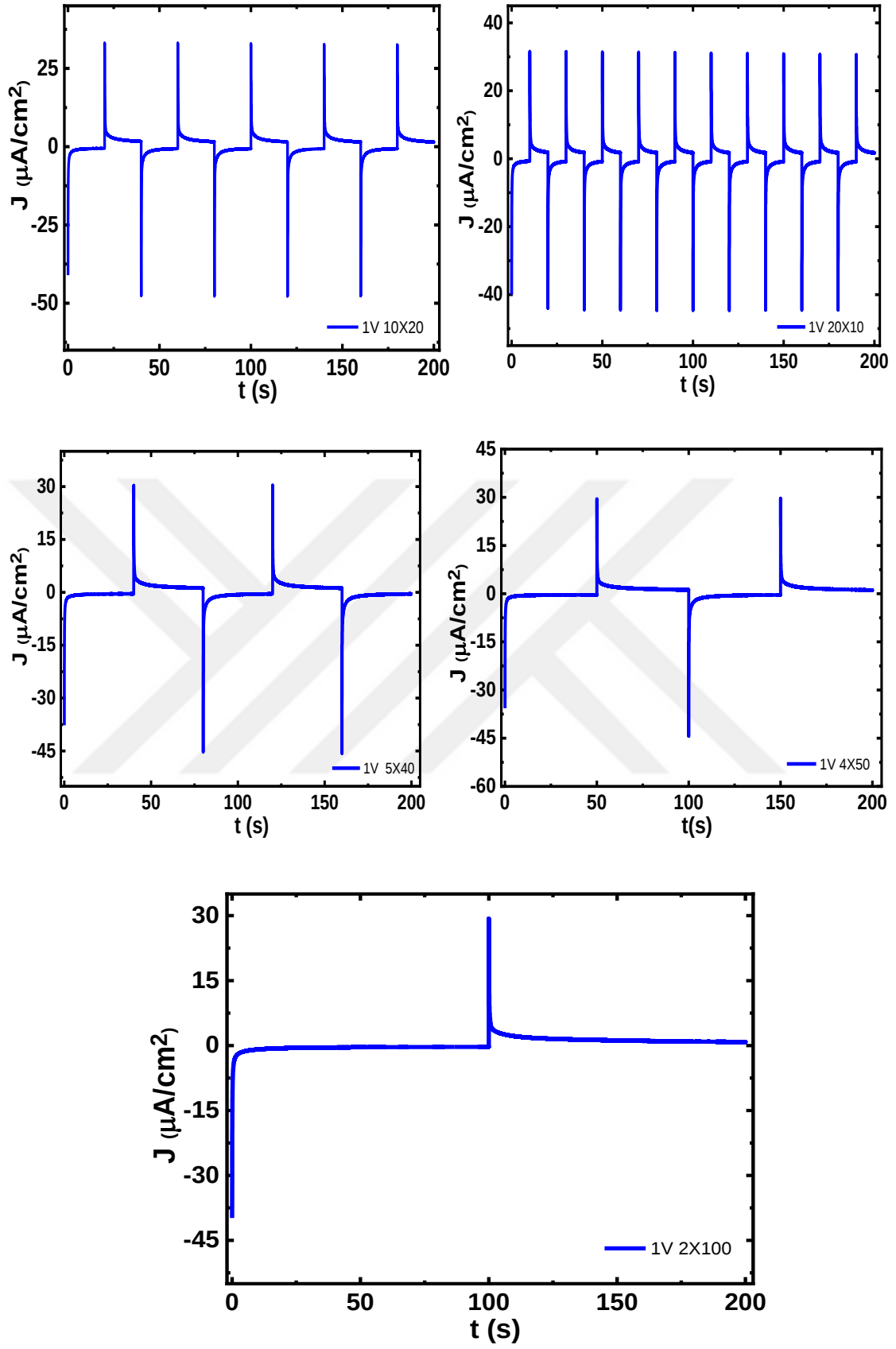
Tablo 4.38. P8 nolu örneğin CA ölçümleri sonucunda elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	$\Delta Q_c(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_c(\mu C/cm^2)$ (2X100)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (2X100)
$\pm 0,5$	103,86	13,24	270,84	21,57
± 1	261,01	187,38	371,44	360,49
$\pm 1,5$	1372,65	898,81	2087,50	2303,21
± 2	1651,66	1543,36	5418,36	5676,7
$\pm 2,5$	204,10	532,07	693,47	2059,60

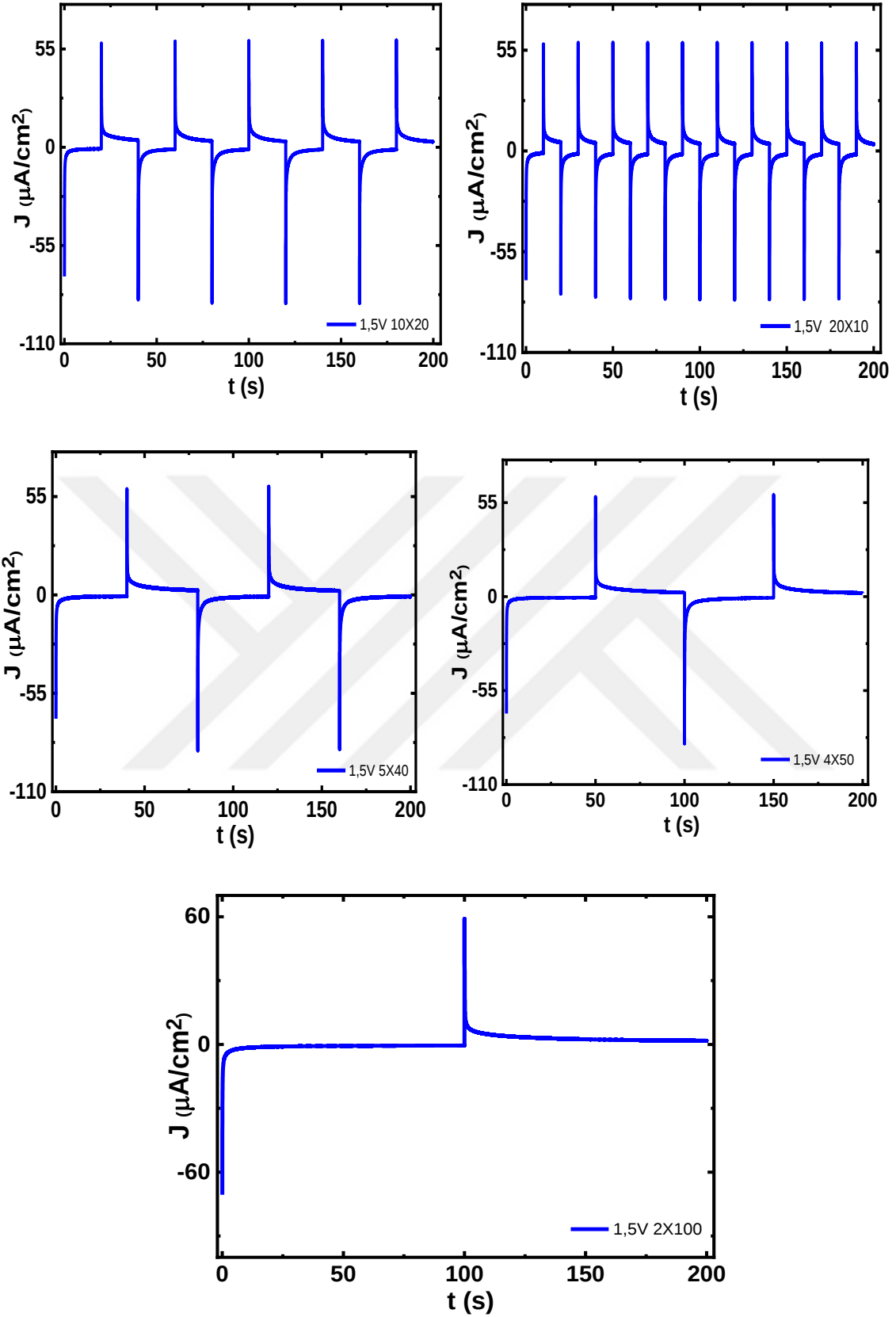
P8 nolu örnek üzerine uygulanan $\pm 2,5$ V hariç tüm gerilim aralıkları için ölçülen CV eğrileri incelendiğinde, tarama hızı arttırıldıkça CV eğrilerinin altında kalan alanlar ile katodik ve anodik tepe akımı değerlerinin de yükseldiği görülmektedir. Elektrokimyasal ölçümler kapsamında CA eğrilerinden film yüzeyine giren/çıkan yük miktarı değerleri uygulanan potansiyel fark ile birlikte arttığı görülmektedir. Tüm potansiyel farklar altındaki çevrimler için giren ve çıkan yük miktarlarının birbirine yakın olduğu görülmektedir. Ancak $\pm 2,5$ V gerilim altında giren çıkan yük miktarları arasındaki farkın arttığı görülmektedir. Elektrokimyasal çevrimlerde özellikle yüksek enerjili depolama görmek için anodik ve katodik yüklerin yüksek olması ile birlikte her ikisini birbirine yakın değerlerde olması malzemelerde uzun çevrimler boyunca kararlı cevap verme potansiyellerini artırır. Dolayısıyla P8 nolu örnek ± 2 V potansiyel fark altında elektrokimyasal olarak daha kararlı olduğu değerlendirilmiştir.



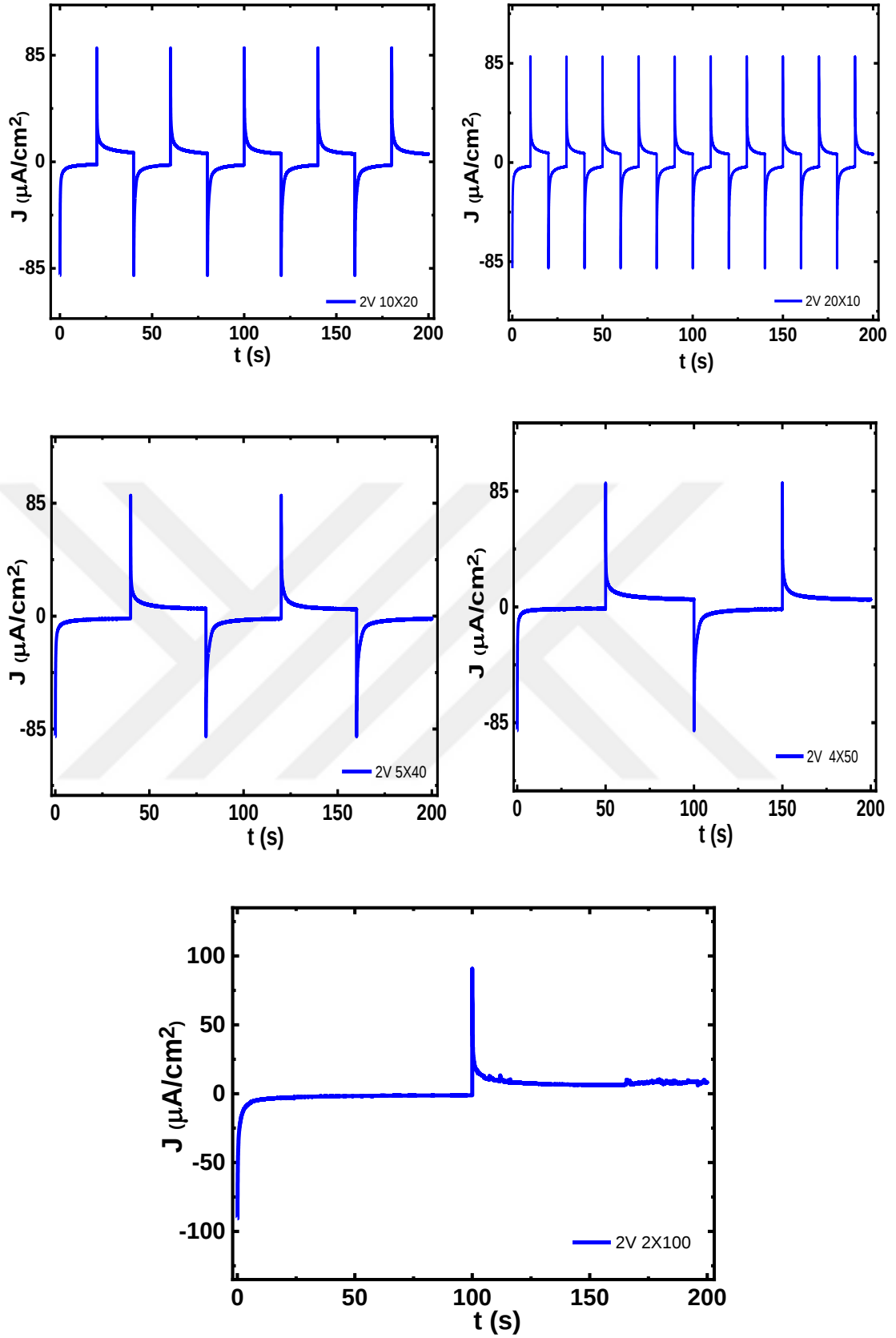
Şekil 4.91. PET alttaş üzerine transfer edilen P9 nolu örneğin 10, 20, 30 ,40 ve 50 $\text{mV}\cdot\text{s}^{-1}$ tarama hızlarında a) -0,5 V ile +0,5 V aralığında b) -1 V ile +1 V aralığında c) -1,5 V ile +1,5 V aralığında d) -2 V ile +2 V aralığında ve e) -2,5 V ile +2,5 V aralığındaki gerilimler altında CV grafikleri.



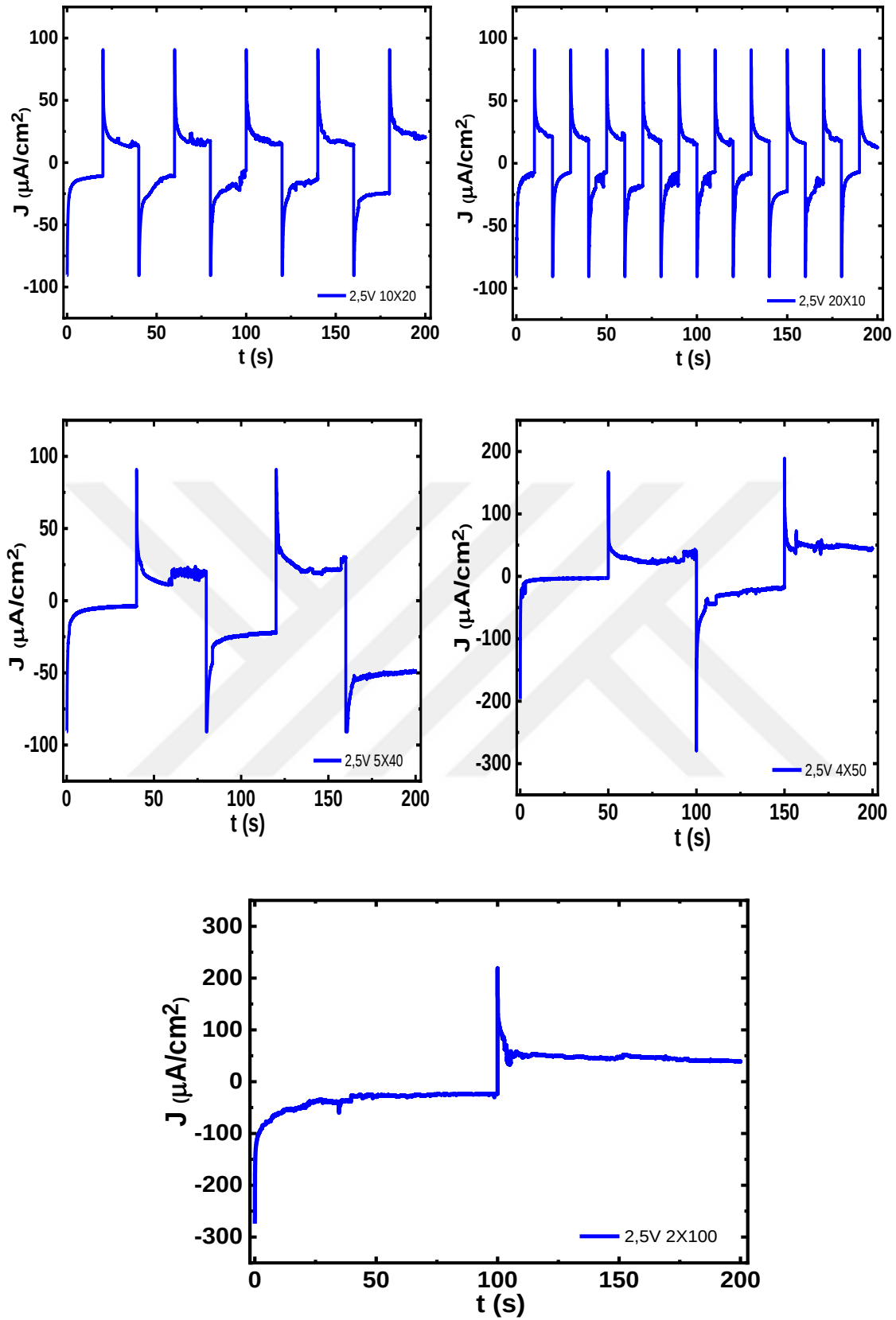
Şekil 4.92. P9 nolu örneğin ± 1 V aralığında 10 ,20, 40, 50 ve100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.93. P9 nolu örneğin $\pm 1,5\text{ V}$ aralığında 10, 20, 40, 50 ve 100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.94. P9 nolu örneğin ± 2 V aralığında 10 ,20, 40, 50 ve100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.



Şekil 4.95. P9 nolu örneğin $\pm 2,5$ V aralığında 10 ,20, 40, 50 ve100 saniyelik pulslarla elde edilmiş CA eğrileri.

PDKBB yöntemi ile hazırlanmış P9 nolu örneğin uygulama gerilimi $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V aralığında 10, 20, 30, 40, ve 50 mV.s^{-1} tarama hızlarından elde edilen CV eğrilerinden maksimum katodik (I_c) ve anodik (I_a) akım yoğunluğu değerleri, örneğin yüzeyine giren (Q_c) ve çıkan (Q_a), yük miktarları hesaplanmıştır. Tablo 4.39’da bu hesaplanan değerler verilmiştir.

Tablo 4.39. P9 nolu örneğin CV eğrilerinden elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	Tarama Hızı (mV.s^{-1})	Q_a ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	Q_c ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	I_c ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)	I_a ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)
$\pm 0,5$	10	5,36	7,87	0,29	0,20
	30	4,64	5,56	0,40	0,32
	50	4,26	4,84	0,48	0,47
± 1	10	19,89	23,80	0,66	1,70
	20	19,27	15,11	0,94	2,77
	30	16,44	12,71	1,10	2,80
	40	14,41	11,04	1,24	2,81
	50	13,69	10,00	1,39	2,58
$\pm 1,5$	10	84,10	50,27	0,84	6,32
	20	52,19	39,64	1,07	6,69
	30	39,42	34,23	1,25	6,84
	40	47,15	23,85	1,48	5,51
	50	33,44	30,30	1,61	6,78
± 2	10	169,75	109,52	1,64	11,22
	20	118,98	9031	2,34	10,80
	30	69,64	6205	2,62	12,06
	40	72,24	57,31	2,95	9,53
	50	73,46	73,37	3,41	8,60
$\pm 2,5$	10	238,02	249,60	3,06	5,45
	20	195,47	200,85	4,34	11,56
	30	211,98	187,34	4,80	12,85
	40	145,04	157,76	5,40	14,07
	50	113,23	152,76	6,30	14,30

P9 nolu örneğin $\pm 0,5$ V, ± 1 V, $\pm 1,5$ V, ± 2 V ve $\pm 2,5$ V uygulanan potansiyel farklarda 20 ve 100 saniyelik pulslarla toplamda 200 saniye boyunca ölçülen CA eğrilerinden film yüzeyine giren ve çıkan yük miktarı hesaplanmıştır. Tablo 4.40'da bu değerlerler verilmiştir.

Tablo 4.40. P9 nolu örneğin CA ölçümleri sonucundan elde edilen bazı elektrokimyasal parametreleri.

Gerilim (V)	$\Delta Q_c(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (10X20)	$\Delta Q_c(\mu C/cm^2)$ (2X100)	$\Delta Q_A(\mu C/cm^2)$ (2X100)
$\pm 0,5$	9,95	9,26	24,59	22,67
± 1	31,50	50,40	58,00	141,01
$\pm 1,5$	66,33	112,25	102,34	296,86
± 2	139,13	204,67	284,01	817,02
$\pm 2,5$	435,34	400,26	3707,04	4742,28

P9 nolu örnek üzerine uygulana tüm gerilim aralıkları için ölçülen CV eğrileri incelendiğinde, tarama hızı arttırıldıkça CV eğrilerinin altında kalan alanlar ile katodik ve anodik tepe akımı değerlerinin de yükseldiği görülmektedir. Değerler incelendiğinde, $-2,5$ V ile $+2,5$ V aralığındaki gerilim altında ölçülen CV eğrilerinden hesaplan anodik ve katodik yük miktarlarının diğer ölçümler arasında en düşük değerlere sahip olduğu saptanmıştır. Ayrıca, uygulanan tüm potansiyel farklar için ölçümlerde maksimum katodik akım piklerinin anodik maksimum piklerden daha yüksek olduğu görülmektedir.

Aynı örnek için Elektrokimyasal ölçümler kapsamında incelenen CA eğrilerinden film yüzeyine giren/çıkan yük miktarları uygulanan potansiyel fark ile birlikte artışı görülmektedir. Hesaplanan değerlerde $\pm 0,5$ V ve $\pm 2,5$ V potansiyel farklar altında giren yüklerin aynı miktarda çıkamadığı görülmüştür.

5. SONUÇLAR VE TARTIŞMA

Grafen, 2004 yılında sentezlendiği zamandan günümüze kadar olan süreçte transistörler, gaz sensörleri, pillerin şeffaf elektrotları ve süper kapasitörler gibi bir çok alandaki uygulamalarda kullanılmak için büyük ilgi gören bir malzemedir [48]. Bu doğrultuda tez kapsamında çalışmalar grafen sentezini farklı iki yöntem kullanılarak gerçekleştirmek ve sentezlenen grafen filmler üzerindeki büyütme süresinin, metan gazı akış miktarının ve uygulanan gücün etkilerinin incelenmesi amaçlanmıştır. Bu tez çalışmasından birkaç katmanlı grafen tabakalarının üst üste gelmesiyle oluşan çok katmanlı yapılar grafen filmler olarak adlandırılmıştır. Grafen filmler kimyasal buhar biriktirme (KBB) ve plazma destekli kimyasal buhar biriktirme (PDKBB) büyütme teknikleri kullanılarak sentezlenmiştir. KBB yöntemi ile sentezlenen grafen filmlerde büyütme süresinin ve metan gazı akış miktarının etkileri, PDKBB tekniği kullanılan deneylerde ise büyütme süresinin ve büyütme işlemi boyunca uygulanan RF gücün grafen filmler üzerindeki etkileri ve tüm bu parametreler dahilinde yapılan deneylerden elde edilen grafen filmlerin optik, yapısal ve elektrokimyasal özellikleri incelenmiştir. Tez çalışması kapsamında tüm örneklerin çevrimsel voltametri ölçümleri $-0,5\text{ V}$ ile $+0,5\text{ V}$, -1 V ile $+1\text{ V}$, $-1,5\text{ V}$ ile $+1,5\text{ V}$, -2 V ile $+2\text{ V}$ ve $-2,5\text{ V}$ ile $+2,5\text{ V}$ aralığında örnekler üzerine uygulanan her gerilim değeri için $10, 20, 30, 40, \text{ ve } 50\text{ mV.s}^{-1}$ tarama hızları için yapılmıştır. CV eğrileri kullanılarak filmlerin elektrokimyasal çevrimler boyunca film yüzeyine giren (Q_C), ve film yüzeyinden çıkan (Q_A) yük miktarları ile maksimum anodik ve katodik akım piklerinin değerleri elde edilmiştir. Diğer bir elektrokimyasal analiz yöntemi olan krontamperometri (CA) ölçümleri incelendiğinde, her bir örnek için sırasıyla $4, 5, 10, 20$ ve 100 saniyelik pulslarla örnekler üzerine ardışık olarak $\pm 1,0, \pm 1,5, \pm 2,0$ ve $\pm 2,5\text{ V}$ potansiyel farkları örnekler üzerine ardışık olarak uygulanarak gerçekleştirilmiştir. Tüm örnekler için uygulanan gerilim pulsları boyunca örnek yüzeyine giren ve çıkan yük miktarları hesaplanmıştır.

Öncelikle kimyasal buhar biriktirme yöntemi kullanılarak farklı sürelerde büyütülmüş filmlerin optik özellikleri incelendiğinde, görünür bölgedeki ortalama optik geçirgenliklerinin % 70 ile % 89 aralığında değiştiği gözlemlenmiştir. En yüksek optik geçirgenliğe sahip olan örnek en uzun büyütme süresi ile 20 dakika da sentezlenen örnektir. Büyütme süresi kısaldıkça örneklerin sahip olduğu optik geçirgenliklerin de doğrusal olarak düştüğü görülmüştür. Tek katmanlı grafen yaklaşık % 2,3 optik soğurmaya sahiptir ve bu oran katman sayısı arttıkça doğrusal olarak artmaktadır [26]. Örneklerin transfer edildiği boş cam yüzeylerin görünür bölgedeki optik geçirgenlikleri yaklaşık % 92'dir. KBB yöntemi ile farklı biriktirme sürelerinde sentezlenen G1, G2 ve G4 örneklerinin en fazla 3 katmanlı olduğu ve son olarak G3 nolu örneğin 7 veya 8 katmana sahip olduğu optiksel geçirgenlikleri baz alınarak hesaplanmıştır.

Raman spektroskopisi, üç boyutlu elmas, grafit, iki boyutlu grafen ve bir boyutlu karbon nanotüpler dahil olmak üzere karbon malzemelerin kafes yapısının ve elektronik, optik ve fonon özelliklerinin karakterizasyonu için hızlı, tahribatsız ve yüksek çözünürlüklü bir karakterizasyon aracıdır [48]. Raman spektrumlarına bakıldığında, örneğin iç yapısındaki kusurlar hakkında bilgi veren yaklaşık 1350 cm^{-1} civarında gözlenen D piki incelendiğinde, D pikinin maksimum şiddeti en yüksek olan örnek G1 ve en düşük olan örneğin ise G2 nolu örneğe ait olduğu saptanmıştır. G2 nolu örneğin iç kusurlarının daha fazla olduğunun bir göstergesidir. G piki 1585 cm^{-1} civarında ve 2D piki ise $2550\text{-}2800\text{ cm}^{-1}$ aralığında oluşur. 2D pikinin G pikine oranı grafenin katman sayısı ve kalitesi hakkında bilgi vermektedir. G bandı konumu, katman kalınlığını belirlemek için bir yöntemdir ve katman sayısı arttıkça G pikinin konumu 1587 cm^{-1} 'den daha küçük konumlara kaydığı bilinmektedir. Tek katmanlı grafenin 2D pikinin konumu $\sim 2679\text{ cm}^{-1}$ iken, çok katmanlı grafen için 2D pikinin konumu daha büyük konumlara doğru kaydığı gözlemlenir. Katman sayılarını belirlemek için diğer göz önünde bulundurulacak parametre ise piklerin maksimum şiddetlerinin birbirine oranıdır. Tek katmanlı grafen için I_{2D}/I_G oranının 1,6 civarında ve daha büyük olduğu, çift katmanlı grafen için bu oran yaklaşık olarak 0,8 olduğu, üç katmanlı grafen için 0,3 civarında olduğu ve üç ve çok (>4) katmanlı grafen için bu oranın 0,07 olduğu bilinmektedir. Piklerin yarı maksimumdaki tam genişliği (FWHM) 80 cm^{-1} 'den küçük olduğu örnek katman sayısının ≤ 3 olduğu da bilinmektedir [46-50]. Tüm bu bilgiler incelendiğinde, G1, G2, G3 ve G4 nolu örneklerin katman sayısının en fazla üç katmanlı olduğu sonucuna varılmıştır.

Aynı örneklerin Raman spektrumundan hesaplanan katman sayıları ile örneklerin optik geçirgenliklerinden elde edilen katman sayıları hesapları örtüşmektedir. Sadece G3 nolu örneğin Raman spektroskopisine göre birkaç katlı olduğu anlaşıyor olsa da optik geçirgenliği düşük olmasının nedeninin örneklerin üzerinde sentezlendikleri bakır folyolardan, transferleri sürecinde oluşabilecek katlanmalar veya transfer sürecinde kaplanmış olan PMMA çözeltisinin kalıntılarından kaynaklandığı düşünülmektedir. Tüm hesaplar göz önünde bulundurulduğunda, büyütme süresinin daha kısa olduğu örneklerde katman sayısının fazla olduğunun anlaşıyor olması kimyasal buhar biriktirme yöntemiyle yapılan deneylerde büyütme süresi artıkça hali hazırda oluşmuş grafen katmanların yardımcı gazlar tarafından aşındırılmasından kaynaklanıyor olabilir.

KBB yöntemi ile farklı sürelerde büyütülmüş örneklerin elektrokimyasal ölçümleri incelendiğinde en yüksek giren ve çıkan yük değerleri -2,5 V ile +2,5 V potansiyel fark aralığında yapılan çevrimsel voltmetri ölçümünden hesaplanan ($Q_A = 2138 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ ve $Q_C = 2788 \mu\text{C}/\text{cm}^2$) 20 dakika büyütme süresine sahip G1 nolu örneğe aittir. G1, G2, G3 ve G4 nolu örneklerin CA eğrileri incelendiğinde uygulama gerilimi artarken giren ve çıkan yük miktarlarının arttığı açık bir şekilde görülmektedir. CA eğrilerinden en yüksek giren ve çıkan yük miktarı ($\Delta Q_C = 3175,66$ ve $\Delta Q_A = 3169,93 \mu\text{C}/\text{cm}^2$) G1 nolu örneğe aittir. Tüm elektrokimyasal ölçüm sonuçları incelendiğinde büyütme süresi 2 dakikadan 20 dakikaya çıkarıldığında giren/çıkan yük miktarlarının arttığı gözlemlenmektedir. G3 nolu örneğin diğer örneklere göre daha düşük giren ve çıkan yük miktarına sahip olması daha önce de belirtildiği gibi transfer esnasında oluşan yırtılmalar, katlanmalar ile transfer süreci esnasında kaplanan PMMA çözeltisi kalıntılarının sebep olduğu safsızlıklardan kaynaklandığı düşünülmektedir.

KBB yöntemi ile sentezlenen diğer bir örnek setinde ise, metan gaz akış miktarının grafen filmlerin özellikleri üzerindeki etkileri incelenmiştir. G2, G5, G6 ve G7 nolu örneklerin görünür bölgedeki ortalama optik geçirgenlik yüzdeleri yaklaşık % 89'dur. En yüksek optik geçirgenliğe 10 sccm metan gazı akış hızında sentezlenen G2 nolu örneğin sahip olduğu, en düşük optik geçirgenliğe ise 20 sccm metan gazı akış hızında sentezlenen G7 nolu örneğin sahip olduğu görülmektedir. Örneklerin optik geçirgenlikleri incelendiğinde metan gaz akış oranının arttırılmasının daha fazla grafen katmanlardan oluşan grafen filmlerin elde edilmesine yardımcı olduğu anlaşılmaktadır. Ayrıca Raman spektrumları ile örneklerin optik geçirgenlikleri bir arada değerlendirildiğinde tüm örneklerin birkaç katmalı olduğu düşünülmektedir.

Bu örneklerin elektrokimyasal ölçümleri incelendiğinde, -2,5 V ile +2,5 V gerilim aralığında yapılan CV ölçümünden hesaplanan en yüksek giren çıkan yük miktarları ($Q_A = 396,21 \mu C/cm^2$ ve $Q_C = 469,82 \mu C/cm^2$) G2 nolu örneğe aittir. G2, G5, G6 ve G7 nolu örneklerin tüm CA eğrileri incelendiğinde, uygulanan gerilim artarken giren ve çıkan yük miktarının arttığı net bir şekilde görülmektedir. CA eğrilerinden en yüksek giren ve çıkan yük miktarları $\pm 2,5$ V gerilim altında ölçülen ($\Delta Q_C = 932,84 \mu C/cm^2$, $\Delta Q_A = 1031,37 \mu C/cm^2$) G2 nolu örneğe aittir. Yapılan CA çevrimleri boyunca giren/çıkan yük miktarları incelendiğinde en düşük giren/çıkan yük miktarlarına ise G6 nolu örneğin sahip olduğu gözlemlenmiştir. İncelenen örnek seti için tüm veriler değerlendirildiğinde metan gaz akış miktarı ile grafen filmlerin yüzeyine elektrokimyasal çevrimler boyunca giren /çıkan yük miktarı ile katman sayıları arasında çok hassas bir ilişki olduğu anlaşılmaktadır. Metan gaz akış miktarı arttırılırken ilk başta giren/çıkan yük miktarında artış gözlenirken 15 sccm'e çıkıldığında ciddi bir düşüş görülmüştür. 15 sccm'den itibaren arttırmaya devam edildikçe tekrar artarak en yüksek giren /çıkan yük miktarı değerlerine yaklaştığı görülmüştür. Bu durum metan gaz akış oranı arttığında sistemdeki basınçta arttığı için bir taraftan ortamda artan karbon atomlarının sayısının daha fazla grafen katmanının oluşmasına yardımcı olurken, diğer taraftan artan basınç sebebiyle tüp içerisindeki gaz akışının oluşmuş katmanları aşındırmasına yol açabilir.

Tezin bir diğer aşamasında PDKBB tekniği ile grafen sentezlenmesine odaklanılmıştır ve iki parametrenin grafen filmlerin özellikleri üzerindeki etkileri incelenmiştir. Bunlardan birincisi büyütme sürelerinin grafen filmler üzerindeki etkisidir. P1, P2, P3, P4 ve P5 nolu örneklerin görünür bölgedeki optik geçirgenlikleri % 77 ile % 82 aralığında değişmektedir. En yüksek optik geçirgenliğine P4 nolu örnek sahiptir. En düşük optik geçirgenlik 20 dakika boyunca sentezlenen P3 nolu örneğe aittir. Büyütme süresi 5 dakikadan 20 dakikaya çıkarıldığında, optik geçirgenliğin arttığı gözlenirken, büyütme süresi 20 dakikadan 40 dakikaya kadar çıkarıldığında optik geçirgenliğin tekrar düştüğü gözlemlenmektedir. Büyütme süresinin artırılmasının KBB tekniği ile büyütülmüş örneklerde olduğu gibi, optik geçirgenlikler üzerinde çok etken olduğu görülmektedir. Örneklerin Raman spektrumları incelendiğinde, tüm bu örneklerin katman sayısının en fazla beş olduğu sonucuna varılmıştır.

Bu örneklerin elektrokimyasal ölçümleri incelendiğinde, -2,5 V ile +2,5 V gerilim aralığında yapılan CV ölçümünden hesaplanan en yüksek giren çıkan yük miktarları ($Q_C = 278,97 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, $Q_A = 487,31 \mu\text{C}/\text{cm}^2$), P2 nolu örneğe aittir. Örneklerin tüm CA eğrileri incelendiğinde, uygulanan gerilim artarken giren ve çıkan yük miktarları artışı görülmektedir. CA eğrilerinden en yüksek giren ve çıkan yük miktarları $\pm 2,5$ V gerilim altında alınan ($\Delta Q_C = 4722,68 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, $\Delta Q_A = 3000,04 \mu\text{C}/\text{cm}^2$) P4 nolu örneğin ölçümüne aittir.

PDKBB tekniği ile büyütülmüş grafen filmleri için incelenen ikinci parametre ise büyütme esnasında uygulanan gücün etkisidir. 25 W ile 200 W güç altında sentezlenen P5, P6, P7, P8 ve P9 nolu örneklerin optik geçirgenlikleri incelendiğinde, görünür bölgedeki optik geçirgenliklerinin % 80 ile % 81,4 aralığında değiştiği gözlemlenmiştir. 100 W güç altında sentezlenen P7 nolu örneğin en yüksek optik geçirgenliğe sahip olduğu görülmüştür. En düşük optik geçirgenliğe ise 200 W güç altında sentezlenen P9 nolu örneğin sahip olduğu gözlemlenmiştir. Raman spektrumları incelendiğinde, tüm örneklerin en fazla dört katmanlı olduğu anlaşılmıştır. Bu örneklerin elektrokimyasal ölçüm hesapları ve eğrileri incelendiğinde en geniş CV eğrisine 50 W güç altında sentezlenen ve -2,5 V ile +2,5 V gerilim altında yapılan en yüksek giren ve çıkan yük miktarları ($Q_C = 419,20 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, $Q_A = 674,88 \mu\text{C}/\text{cm}^2$) P7 nolu örneğin sahip olduğu görülmektedir. CA eğrilerinden en yüksek giren ve çıkan yük miktarları ± 2 V gerilim altında alınan ($\Delta Q_C = 5418,36 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, $\Delta Q_A = 5676,70 \mu\text{C}/\text{cm}^2$) P8 nolu örneğe aittir.

Tüm elektrokimyasal ölçümlere incelendiğinde genel olarak tarama hızı arttırıldıkça CV eğrilerinin altında kalan alanların arttığı, maksimum anodik ve katodik akım değerlerinin de yükseldiği görülmüştür. Tarama hızı değiştikçe katodik ve anodik piklerin oluştuğu potansiyel değerleri değişmektedir. Bu nedenle grafen elektrot yüzeyinde meydana gelen redoks tepkimeleri yarı tersinir tepkimelerdir. Bu bağlamda elde edilen sonuçlar çevrimsel voltametrde ölçülen akım yoğunluklarının tarama hızı ile doğru orantılı olduğunu ifade eden Randles-Sevcik eşitliğine uymaktadır. Elektrokimyasal süreçler boyunca grafen filmlerin yüzeyine giren ve çıkan yük değerlerinin uygulanan potansiyel aralıklarının pek çoğunda genel olarak birbirine yakın olması tez kapsamında sentezlenmiş örneklerin elektrokimyasal olarak kararlı yapılara sahip olduğunu göstermektedir.

Laboratuvarımızda şimdiye kadar büyütülen ve büyütülmeye devam eden yarım hücre ve tam hücre konfigürasyonuna sahip EC kaplamalar/aygıtlar ITO kaplı alttaşlar üzerinde büyütülmekle birlikte bu kaplamaların elektrokimyasal ölçümleri genellikle farklı konsantrasyonlarda LiClO_4/PC çözeltisi içerisinde yapılmaktadır. Bu tez çalışması kapsamında sentezlenen örneklerin elektrokimyasal ölçümleri de LiClO_4/PC çözeltisi üzerinde gerçekleştirilmiştir. Ölçümlerde bu çözeltinin kullanılmasının, oda sıcaklığında çalışabilme olanağı, insan sağlığı açısından görece olarak daha güvenli olması gibi elektrokimyasal ölçümlerde kullanılan diğer çözeltilere göre önemli avantajları mevcuttur. Böylece laboratuvarımızda tasarımı yapılmış pek çok elektrokromik (EC) aygıt şeffaf geçirgen katman olarak grafen filmlerin kullanıldığı konfigürasyonlarda yeniden hazırlanarak, elektrokimyasal özellikleri incelenebilir. Tez çalışması kapsamında elde edilen sonuçlar kimyasal buhar biriktirme tekniği kullanılarak sentezlenen grafen filmlerin EC kaplamalar/aygıtlarda şeffaf iletken elektrot olarak kullanılabileceği yönünde çok umut vaat edicidir.

6. KAYNAKLAR

- [1] V. Smil, Energy transitions: global and national perspectives, ABC-CLIO (2016).
- [2] T. Sueyoshi, M. Goto, Returns to scale and damages to scale on US fossil fuel power plants: Radial and non-radial approaches for DEA environmental assessment, Energy economics, 34 (2012) 2240.
- [3] K. Chen, Q. Wang, Z. Niu, J. Chen, Graphene-based materials for flexible energy storage devices, Journal of energy chemistry, 27 (2018) 12.
- [4] P.R. Somani, S. Radhakrishnan, Electrochromic materials and devices: present and future, Materials chemistry and physics, 77 (2003) 117.
- [5] M.A. Habib, Electrochromism, Electrochemistry in Transition, Springer, 51 (1992).
- [6] Y. Wu, T. Yu, Z. Shen, Two-dimensional carbon nanostructures: Fundamental properties, synthesis, characterization, and potential applications, Journal of applied physics, 108 (2010) 10.
- [7] K.S. Novoselov, A.K. Geim, S.V. Morozov, D.-e. Jiang, Y. Zhang, S.V. Dubonos, I.V. Grigorieva, A.A. Firsov, Electric field effect in atomically thin carbon films, science, 306 (2004) 669.
- [8] C.W. Isaacson, M. Kleber, J.A. Field, Quantitative analysis of fullerene nanomaterials in environmental systems: a critical review, Environmental science & technology, 43 (2009) 6463.
- [9] S. Zhao, Z. Zhao, Z. Yang, L. Ke, S. Kitipornchai, J. Yang, Functionally graded graphene reinforced composite structures: A review, Engineering Structures, 210 (2020) 110339.
- [10] S. Das, A review on Carbon nano-tubes-A new era of nanotechnology, International Journal of Emerging Technology and Advanced Engineering, 3 (2013) 774-783.
- [11] M. Ciszewski, A. Koszorek, T. Radko, P. Szatkowski, D. Janas, Review of the selected carbon-based materials for symmetric supercapacitor application, Journal of Electronic Materials, 48 (2019) 717-744.

- [12] E. Fitzer, K.-H. Kochling, H. Boehm, H. Marsh, Recommended terminology for the description of carbon as a solid (IUPAC Recommendations 1995), Pure and Applied Chemistry, 67 (1995) 473-506.
- [13] C. Miao, C. Zheng, O. Liang, Y.-H. Xie, Chemical vapor deposition of graphene, Physics and applications of graphene-experiments, (2011).
- [14] A.J. Pollard, C.A. Clifford, Terminology: the first step towards international standardisation of graphene and related 2D materials, Journal of Materials Science, 52 (2017) 13685-13688.
- [15] J. Tuček, P. Błoński, J. Ugolotti, A.K. Swain, T. Enoki, R. Zbořil, Emerging chemical strategies for imprinting magnetism in graphene and related 2D materials for spintronic and biomedical applications, Chemical Society Reviews, 47 (2018) 3899-3990.
- [16] M. Babayigit, Polikristalin bakır folyo üzerinde büyütülmüş grafenin elektriksel karakterizasyonu, Yüksek Lisans Tezi, Hacettepe Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Ankara, (2013).
- [17] D.S. Tüzemen, D.D.C. Kocabaş, Grafen tabanlı elektrokromik aygıtların in-situ karakterizasyonu, Doktora Tezi, Atatürk Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Erzurum, (2017).
- [18] N. Peres, Graphene, new physics in two dimensions, Europhysics News, 40 (2009) 17-20.
- [19] P. Zhao, R.M. Feenstra, G. Gu, D. Jena, SymFET: A proposed symmetric graphene tunneling field-effect transistor, IEEE Transactions on Electron Devices, 60 (2013) 951-957.
- [20] N. Bhattacharjee, Multi-colour transient spectroscopy on single wall carbon nanotubes, Itä-Suomen yliopisto, (2012).
- [21] Anonim, Graphene <https://en.wikipedia.org/wiki/Graphene> (Erişim Tarihi: 6 Şubat)
- [22] B.M. John, S.W. Mugo, N.S. Timonah, P.K. Ngumbi, K. Ngei, Correlation of optical transmittance with number of graphene layers, (2016).
- [23] S.-E. Zhu, S. Yuan, G. Janssen, Optical transmittance of multilayer graphene, EPL (Europhysics Letters), 108 (2014) 17007.
- [24] L.A. Falkovsky, Optical properties of graphene, Journal of Physics: conference series, IOP Publishing, 129 (2008) 1.

- [25] N. Jing, Q. Xue, C. Ling, M. Shan, T. Zhang, X. Zhou, Z. Jiao, Effect of defects on Young's modulus of graphene sheets: a molecular dynamics simulation, *Rsc Advances*, 2 (**2012**) 9124-9129.
- [26] F. Giannazzo, V. Raineri, Graphene: Synthesis and nanoscale characterization of electronic properties, *La Rivista del Nuovo Cimento*, 35 (**2012**) 267-304.
- [27] W. Wei, X. Qu, Extraordinary physical properties of functionalized graphene, *Small*, 8 (**2012**) 2138-2151.
- [28] L. Cui, J. Wang, M. Sun, Graphene plasmon for optoelectronics, *Reviews in Physics*, 6 (**2021**) 100054.
- [29] E.O. Polat, Graphene Based Optoelectronics in the Visible Spectrum, *Doktora Tezi, Bilkent Universitesi Fen bilimleri Enstitüsü, Ankara*, **2015**.
- [30] X.J. Lee, B.Y.Z. Hiew, K.C. Lai, L.Y. Lee, S. Gan, S. Thangalazhy-Gopakumar, S. Rigby, Review on graphene and its derivatives: Synthesis methods and potential industrial implementation, *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 98 (**2019**) 163-180.
- [31] A.Y.S. Eng, A. Ambrosi, C.K. Chua, F. Šaněk, Z. Sofer, M. Pumera, Unusual inherent electrochemistry of graphene oxides prepared using permanganate oxidants, *Chemistry—A European Journal*, 19 (**2013**) 12673-12683.
- [32] D. Deng, X. Pan, H. Zhang, Q. Fu, D. Tan, X. Bao, Freestanding graphene by thermal splitting of silicon carbide granules, *Advanced Materials*, 22 (**2010**) 2168-2171.
- [33] S.S. Shams, R. Zhang, J. Zhu, Graphene synthesis: a Review, *Mater. Sci. Pol*, 33 (**2015**) 566-578.
- [34] A.Kumar, C.H. Lee, Synthesis and biomedical applications of graphene: present and future trends, *Advances in graphene science*, (**2013**) 5772-5578.
- [35] X. Li, W. Cai, J. An, S. Kim, J. Nah, D. Yang, R. Piner, A. Velamakanni, I. Jung, E. Tutuc, Large-area synthesis of high-quality and uniform graphene films on copper foils, *science*, 324 (**2009**) 1312-1314.
- [36] C. Mattevi, H. Kim, M. Chhowalla, A review of chemical vapour deposition of graphene on copper, *Journal of Materials Chemistry*, 21 (**2011**) 3324-3334.
- [37] D.L. Flamm, *Plasma Chemistry, Basic Processes, and PECVD, Plasma Processing of Semiconductors*, Springer, 23-59, **1997**.
- [38] W. Kern, *Thin film processes II*, Elsevier, **1991**.

- [39] D. Wei, L. Peng, M. Li, H. Mao, T. Niu, C. Han, W. Chen, A.T.S. Wee, Low temperature critical growth of high quality nitrogen doped graphene on dielectrics by plasma-enhanced chemical vapor deposition, *ACS nano*, 9 (2015) 164-171.
- [40] K. Gupta, N.K. Jain, R. Laubscher, *Advanced gear manufacturing and finishing: classical and modern processes*, (2017).
- [41] M. Li, D. Liu, D. Wei, X. Song, D. Wei, A.T.S. Wee, Controllable synthesis of graphene by plasma-enhanced chemical vapor deposition and its related applications, *Advanced Science*, 3 (2016) 1600003.
- [42] X. Cao, K. Zhang, G. Feng, Q. Wang, P. Fu, F. Li, Preparation of a Vertical Graphene-Based Pressure Sensor Using PECVD at a Low Temperature, *Micromachines*, 13 (2022) 681.
- [43] L. Martinu, O. Zabeida, J. Klemberg-Sapieha, Plasma-enhanced chemical vapor deposition of functional coatings, *Handbook of deposition technologies for films and coatings*, (2010) 392-465.
- [44] L.G. Martins, Y. Song, T. Zeng, M.S. Dresselhaus, J. Kong, P.T. Araujo, Direct transfer of graphene onto flexible substrates, *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 110 (2013) 17762-17767.
- [45] V.P. Verma, S. Das, I. Lahiri, W. Choi, Large-area graphene on polymer film for flexible and transparent anode in field emission device, *Applied Physics Letters*, 96 (2010) 203108.
- [46] S. Xu, L. Zhang, B. Wang, R.S. Ruoff, Chemical vapor deposition of graphene on thin-metal films, *Cell Reports Physical Science*, 2 (2021) 100372.
- [47] V. León, M. Quintana, M.A. Herrero, J.L. Fierro, A. de la Hoz, M. Prato, E. Vázquez, Few-layer graphenes from ball-milling of graphite with melamine, *Chemical Communications*, 47 (2011) 10936-10938.
- [48] S. Wang, L. Qiao, C. Zhao, X. Zhang, J. Chen, H. Tian, W. Zheng, Z. Han, A growth mechanism for graphene deposited on polycrystalline Co film by plasma enhanced chemical vapor deposition, *New Journal of Chemistry*, 37 (2013) 1616-1622.
- [49] Childres, L.A. Jauregui, W. Park, H. Cao, Y.P. Chen, Raman spectroscopy of graphene and related materials, *New developments in photon and materials research*, 1 (2013) 1-20.

- [50] A.C. Ferrari, J.C. Meyer, V. Scardaci, C. Casiraghi, M. Lazzeri, F. Mauri, S. Piscanec, D. Jiang, K.S. Novoselov, S. Roth, Raman spectrum of graphene and graphene layers, *Physical review letters*, 97 (2006) 187401.
- [51] M. Wall, The Raman spectroscopy of graphene and the determination of layer thickness, *Thermo Sci*, 5 (2011) 1-5.
- [52] O. Akhavan, K. Bijanzad, A. Mirsepah, Synthesis of graphene from natural and industrial carbonaceous wastes, *RSC Advances*, 4 (2014) 20441-20448.
- [53] Calizo, A. Balandin, W. Bao, F. Miao, C. Lau, Temperature dependence of the Raman spectra of graphene and graphene multilayers, *Nano letters*, 7 (2007) 2645-2649.
- [54] E. Pehlivan, Saf ve katkılı niobyum pentoksit ince filmlerin optik, yapısal, elektriksel ve elektrokromik özellikleri, Yüksek Lisans Tezi, Nevşehir Hacı Bektaş Veli Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Nevşehir, 2007.
- [55] B. Erbar, Rf Magnetron Kopartma Tekniği ile Büyütülen Licoo2 İnce Filmlerin Optik, Elektrokromik ve Yapısal Özelliklerinin İncelenmesi, Yüksek Lisans Tezi, Hacettepe Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü, Ankara, 2020.
- [56] T.F. Fuller, J.N. Harb, *Electrochemical engineering*, John Wiley & Sons 2018.
- [57] J. Bard Allen, R. Faulkner Larry, *Electrochemical methods: fundamentals and applications*, Wiley New York, 2001.
- [58] A.S.L. Loh, R. Subramaniam, K.C.D. Tan, Exploring students' understanding of electrochemical cells using an enhanced two-tier diagnostic instrument, *Research in Science & Technological Education*, 32 (2014) 229-250.
- [59] T. Kim, W. Choi, H.-C. Shin, J.-Y. Choi, J.M. Kim, M.-S. Park, W.-S. Yoon, Applications of voltammetry in lithium ion battery research, *Journal of Electrochemical Science and Technology*, 11 (2020) 14-25.
- [60] P. Joshi, D. Sutrave, A brief study of cyclic voltammetry and electrochemical analysis, *International Journal of ChemTech Research*, 11 (2018) 77.
- [61] S. Demirel, Reaktif Rf Magnetron Kopartma Yöntemi Kullanılarak Hazırlanan Wo3 İnce Filmlerin Optik, Yapısal ve Elektrokromik Özelliklerinin İncelenmesi, (2014).
- [62] O.J. Guy, K.-A.D. Walker, Graphene functionalization for biosensor applications, *Silicon Carbide Biotechnology*, (2016) 85-141.
- [63] C. Heubner, C. Lämmel, A. Nickol, T. Liebmann, M. Schneider, A. Michaelis, Comparison of chronoamperometric response and rate-performance of porous

insertion electrodes: Towards an accelerated rate capability test, Journal of Power Sources, 397 (2018) 11-15.

- [64] N. Woehrl, O. Ochedowski, S. Gottlieb, K. Shibasaki, S. Schulz, Plasma-enhanced chemical vapor deposition of graphene on copper substrates, AIP Advances, 4 (2014) 047128.
- [65] Ö.Duyar Çoşkun(Yürütücü), TÜBİTAK 1001 Projesi: Yeni Nesil Bükülebilir-Esnek Elektrokromik Kaplama/Cihaz Tasarımı ve Üretimi, Sonuç Raporu, No.118F070, Ankara, 2022.
- [66] N. Woehrl, O. Ochedowski, S. Gottlieb, K. Shibasaki, S. Schulz, Plasma-enhanced chemical vapor deposition of graphene on copper substrates, AIP Advances, 4 (2014) 047128.



EKLER

EK 5 - Tezden Türetilmiş Bildiriler

Aybüke Senbani, Özlem Duyar Coşkun, Mehmet Ali, Meltem Babayiğit Cinali, M. Cihad Küçükarslan, Seçil Söyleriz. “Investigation of Optical and Electrochemical Properties Of Graphene Layers Synthesized By Chemical Vapor Deposition”. Sözlü Sunum. Türk Fizik Derneği 38. Uluslararası Fizik Kongresi (2022) Bodrum.

