



T.C.
HATAY MUSTAFA KEMAL ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**ÇİNKO OKSİT İNCE FİLMLEİN KEMOMETRİK YAKLAŞIMLA
ÜRETİMİ ve KARAKTERİZASYONU**

Ömer OTUZBİR

KİMYA ANABİLİM DALI

YÜKSEK LİSANS TEZİ

HATAY
OCAK - 2022



T.C.
HATAY MUSTAFA KEMAL ÜNİVERSİTESİ
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**ÇİNKO OKSİT İNCE FİLMLEİN KEMOMETRİK YAKLAŞIMLA
ÜRETİMİ ve KARAKTERİZASYONU**

Ömer OTUZBİR
ORCID:0000-0001-6148-8645

KİMYA ANABİLİM DALI

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Danışman
Prof. Dr. Yasin YÜCEL
ORCID: 0000-0002-8572-4213

HATAY
OCAK - 2022

20/01/2022

TEZ BİLDİRİMİ

Tez içindeki bütün bilgilerin etik davranış ve akademik kurallar çerçevesinde elde edilerek sunulduğunu, tez yazım kurallarına uygun olarak hazırlanan bu çalışmada bana ait olmayan her türlü ifade ve bilginin kaynağına eksiksiz atıf yapıldığını ve tez üzerinde Yükseköğretim Kurulu tarafından hiçbir değişiklik yapılamayacağı için tezin bilgisayar ekranında görüntülendiğinde asıl nüsha ile aynı olması sorumluluğunun tarafıma ait olduğunu beyan ederim.

İmzası

Ömer OTUZBİR

ÖZET

ÇİNKO OKSİT İNCE FİMLERİN KEMOMETRİK YAKLAŞIMLA ÜRETİMİ ve KARAKTERİZASYONU

Malzeme biliminde öne çıkan konulardan biri saydam iletken oksit filmlerin uygulamaları ve temel özellikleridir. Bu tür malzemelerin karakteristik özelliği, düşük elektriksel direnç ve görünür bölgede yüksek geçirgenliğe sahip olmalarıdır. Optik ve elektriksel özelliklerinden dolayı çinko oksit (ZnO) saydam yarıiletken filmler son yıllarda oldukça dikkat çekmektedir. ZnO elektromanyetik spektrumun geniş bir aralığında yüksek geçirgenliğe sahip bir malzemedir. ZnO ince filmler fiziksel veya kimyasal kaplama teknikleriyle üretilebilmektedir. Yarıiletken malzemelerin yüksek kaliteye sahip olmasında malzemenin üretiminde kullanılan metot önemli yer tutar. ZnO saydam iletken oksitlerin optik, yapısal ve elektriksel özellikleri uygun üretim parametreleri kullanılarak iyileştirilebilir. Bu nedenle çalışmamızda çinko oksit yarıiletken ince filmlerin kemometrik yaklaşımla üretimi ve fiziksel özelliklerinin geliştirilmesi hedeflenmiştir. Bu çalışmada çinko oksit ince filmler kemometrik tekniklerle optimize edilen üretim koşullarında SILAR yöntemiyle üretilmiştir. ZnO ince filmlerin SILAR yöntemiyle üretiminde etkili faktörler incelenmiş ve merkezi kompozit dizayn (CCD) ile yanıt yüzey yöntemi (RSM) kullanılarak optimum üretim koşulları belirlenmiştir. Elde edilen çinko oksit saydam yarıiletken filmlerin kristal yapısı ve morfolojik özellikleri X ışını difraksiyonu (XRD) ve taramalı elektron mikroskobu (SEM) ile karakterize edilmiştir.

2022, 36 sayfa

Anahtar Kelimeler: Çinko oksit ince film, SILAR, Kemometrik optimizasyon, Yanıt yüzey yöntemi, Merkezi kompozit dizayn

ABSTRACT

PRODUCTION and CHARACTERIZATION of ZINC OXIDE THIN FILMS WITH a CHEMOMETRIC APPROACH

One of the prominent topics in material science is the applications and basic properties of transparent conductive oxide films. Such materials are characterized by low electrical resistance and high transmittance in the visible region. Due to its optical and electrical properties, zinc oxide (ZnO) transparent semiconductor films have attracted considerable attention in recent years. The ZnO is a high transmission material in a wide range of electromagnetic spectrum. ZnO thin films can be produced by physical or chemical coating techniques. The method used in the production of the material has an important place in the high quality of semiconductor materials. The optical, structural and electrical properties of ZnO transparent conductive oxides can be improved using appropriate production parameters. Therefore, in our study, it was aimed to produce zinc oxide semiconductor thin films with chemometric approach and to improve their physical properties. In this study, zinc oxide thin films were produced by SILAR method under production conditions optimized by chemometric techniques. The factors affecting the production of ZnO thin films by SILAR method were investigated and optimum production conditions were determined using the central composite design (CCD) and response surface method (RSM). The crystal structure and morphological properties of the obtained zinc oxide transparent semiconductor films were characterized by X-ray diffraction (XRD) and scanning electron microscopy (SEM).

2022, 36 pages

Key Words: Zinc oxide thin film, SILAR, Chemometric optimization, Response surface method, Central composite design

TEŐEKKÖR

Mesleki ve akademik hayatımda önemli kararlar almam gerektiğinde sürekli yanımda olan ve varlığı ile benim için önemli bir rol model oluŐturan, gerek yüksek lisans tez konumunun belirlenmesinde gerek araştırılması ve yazımı sırasında sahip olduđu bilgi birikimi ve tecrübesi ile çalışmalarına ışık tutan ve yardımını esirgemeyen danışman hocam Prof. Dr. Yasin YÜCEL'e sonsuz saygı ve teşekkürlerimi sunarım.

Tez çalışmalarım sırasında tüm bölüm olanaklarından yararlanmamı sağlayan Hatay Mustafa Kemal Üniversitesi (HMKÜ) Fen Edebiyat Fakültesi Kimya Bölüm Başkanlığı'na ve Hatay Mustafa Kemal Üniversitesi (HMKÜ) Fen Bilimleri Enstitüsü Müdürlüğü çalışanlarına,

Çalışmalarım sırasında desteklerini esirgemeyen eşime ve çocuklarıma çok teşekkür ederim. Ayrıca eğitim hayatım boyunca beni maddi ve manevi olarak destekleyen, güvenen ve daima yanımda olan Anneme ve Babama sonsuz minnet ve şükranlarımı sunarım.

İÇİNDEKİLER

ÖZET.....	I
ABSTRACT.....	II
TEŞEKKÜR.....	III
İÇİNDEKİLER.....	IV
ÇİZELGELER DİZİNİ.....	V
ŞEKİLLER DİZİNİ.....	VI
SİMGELER ve KISALTMALAR DİZİNİ.....	VII
1. GİRİŞ.....	1
2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR.....	3
3. MATERYAL ve YÖNTEM.....	6
3.1. Materyal.....	6
3.1.1. Çalışmada Kullanılan Reaktifler.....	6
3.1.2. Çalışmada Kullanılan Cihazlar.....	6
3.2. Yöntem.....	7
3.2.1. Çinko Oksit İnce Film Üretimi.....	7
3.2.2. Çinko Oksit İnce Filmlerin Kemometrik Optimizasyonu.....	8
3.2.3. Çinko Oksit İnce Filmlerin Yapısal Morfolojik ve Karakterizasyonu.....	10
4. ARAŞTIRMA BULGULARI ve TARTIŞMA.....	11
4.1. Sentezlenen Çinko Oksit İnce Filmlerin Kemometrik Analiz Sonuçları.....	11
4.1.1. Merkezi Kompozit Dizayn (CCD).....	11
4.1.2. ANOVA Analizi.....	15
4.1.3. Yanıt Yüzey Analizi.....	18
4.1.4. Merkezi kompozit tasarım deneylerine göre sentezlenen ZnO ince filmlerin SEM analizleri.....	22
4.1.5. ZnO ince filmler için optimize edilmiş parametre değerleri ve RSM Modellerinin doğrulanması.....	26
4.2. Optimum Koşullarda Üretilen ZnO İnce Filmlerin Yapısal Analiz Sonuçları.....	27
4.3. Optimum Koşullarda Üretilen ZnO İnce Filmlerin Morfolojik Analiz Sonuçları.....	28
4.4. Optimum Koşullarda Üretilen ZnO İnce Filmlerin Optik Analiz Sonuçları.....	29
5. SONUÇ ve ÖNERİLER.....	31
KAYNAKLAR.....	34
ÖZGEÇMİŞ.....	36

ÇİZELGELER DİZİNİ

Çizelge 3.1. Yanıt yüzeyi tasarımı için kullanılan bağımsız değişkenler ve seviyeler.....	8
Çizelge 3.2. SILAR metoduyla ZnO ince film üretiminin optimizasyonunda kullanılan bağımsız değişkenlerin kodlu ve deneysel değerleri.....	9
Çizelge 4.1. Beş seviyeli, üç faktörlü yüzey yanıt tasarımı için deneysel kurulum ve değişkenlerin gerçek değerleriyle deneysel veriler.....	12
Çizelge 4.2. Yanıt değişkenlerinin ikinci dereceden polinom denklemleri ve regresyon katsayıları (A: Amonyak çözeltisi miktarı; B: Döngü sayısı; C: Karıştırma hızı).....	13
Çizelge 4.3. RMS Pürüzlülüğü için elde edilen ikinci dereceden polinom modelinin ANOVA sonuçları.....	17
Çizelge 4.4. Ortalama Pürüzlülük için elde edilen ikinci dereceden polinom modelinin ANOVA sonuçları.....	17
Çizelge 4.5. RMS Pürüzlülüğü ve Ortalama Pürüzlülük yanıtlarıyla oluşturulan modeller için optimize edilmiş parametre değerleri ile tahmin edilen ve deneysel olarak elde edilen değerler.....	26

ŞEKİLLER DİZİNİ

Şekil 4.1. RMS Pürüzlülüğü (a) ve Ortalama Pürüzlülük (b) için RSM modellerinin deneysel (kareler) ve tahmini (çizgi) değerlerinin karşılaştırılması.....	14
Şekil 4.2. RMS Pürüzlülüğü (a) ve Ortalama Pürüzlülük (b) için artıkların normal olasılık grafiği.....	16
Şekil 4.3. İkinci dereceden modelden tahmin edilen RMS Pürüzlülüğünün yanıt yüzey çizimleri. (a) Amonyak çözeltisi miktarı, Döngü sayısı; (b) Amonyak çözeltisi miktarı, Karıştırma hızı; (c) Döngü sayısı, Karıştırma hızı.	20
Şekil 4.4. İkinci dereceden modelden tahmin edilen Ortalama Pürüzlülüğün yanıt yüzey çizimleri. (a) Amonyak çözeltisi miktarı, Döngü sayısı; (b) Amonyak çözeltisi miktarı, Karıştırma hızı; (c) Döngü sayısı, Karıştırma hızı.....	21
Şekil 4.5. Merkezi kompozit tasarım deneylerine göre sentezlenen ZnO ince filmlerin SEM analizleri.....	23
Şekil 4.6. Optimize edilmiş koşullarda üretilen ZnO ince film numunesinin X-ışını kırınım deseni.....	27
Şekil 4.7. Optimize edilmiş koşullarda üretilen ZnO ince film numunesinin SEM görüntüsü.....	28
Şekil 4.8. Optimize edilmiş koşullarda üretilen ZnO ince film numunesinin optik bant spektrumu.....	29
Şekil 4.9. Optimize edilmiş koşullarda üretilen ZnO ince film numunesinin optik geçirgenlik spektrumu.....	30

SİMGELER ve KISALTMALAR DİZİNİ

SİMGELER

eV	: Elektron volt
mL	: Mililitre
M	: Molarite
nm	: Nanometre
°C	: Santigrat Derece
rpm	: Dakikadaki devir sayısı

KISALTMALAR

RSM	: Yüzey Yanıt Yöntemi
CCD	: Merkezi Kompozit Dizayn
SILAR	: Aşamalı İyonik Katmanlı Adsorpsiyon ve Reaksiyon
SEM	: Taramalı Elektron Mikroskobu
XRD	: X Işını Difraksiyonu
CBD	: Kimyasal Banyo Depolama
ZnO	: Çinko Oksit
SnS	: Kalay Sülfür
CdS	:Kadmiyum Sülfür
UV	: Ultraviyole
ANOVA	: Varyans Analizi
RF	: Radyo Frekansı
TiC	:Titanyum Karbür
EG	:Etilen Glikol
H ₂ SO ₄	:Süfirik Asit
Rq	:RMS pürüzlülüğü
Ra	:Ortalama pürüzlülük

1. GİRİŞ

Nanoteknoloji günümüzde en önemli araştırma alanlarından biridir. Bilim ve teknoloji alanlarında meydana gelen yenilikler arasında nanoteknoloji alanı önemli bir yere sahiptir. Bu teknoloji sayesinde üstün özelliklere sahip yeni malzemeler üretilmektedir. Günümüzün en önemli keşiflerinden biri olan nanoteknoloji birçok alanda kullanım olanağı sunmaktadır (Pawar ve ark., 2011). Yarıiletken ince filmler nanoteknoloji alanında önemli bir yere sahiptir. Son yıllarda yarıiletken malzemelerin artan kullanımıyla birlikte bu alanda yapılan yatırımlar daha da artmıştır. Yarıiletken şeffaf ince filmler temel özellikleri ve uygulama alanlarıyla malzeme biliminde yoğun ilgi görmektedir. Düşük elektriksel direnç ve görünür bölgede yüksek geçirgenliğe sahip olan bu tür şeffaf yarıiletken malzemeler endüstride çok çeşitli alanlarda kullanılabilir. Yarıiletken şeffaf filmlerin uygulama alanları arasında güneş pilleri, sensörler, fotoelektrokimyasal piller, görüntü cihazları, ışık geçiren elektrodlar, ısı yansıtıcıları ve transistörler sayılabilir (Znaidi ve ark., 2003; Lee ve Park 2003; Zhang ve ark., 2007; Ashith ve ark., 2018). Sahip oldukları optik ve elektriksel özellikleri nedeniyle metal oksit yarıiletken filmlere olan ilgi son yıllarda daha da artmıştır. Şeffaf iletken oksit malzemeler arasında ZnO yaygın olarak kullanılan kalay oksit ve indiyum kalay oksit'e (ITO) alternatif bir malzemedir (Lee ve Park 2003). Enerji band aralığı 3.3 eV olan çinko oksit (ZnO) elektromanyetik spektrumun geniş bir aralığında yüksek geçirgenliğe sahip bir oksit malzemedir (Radhi Devi ve ark., 2020). Çinko oksit yarıiletken ince filmler güneş pillerinde ve diğer optoelektronik cihazlarda şeffaf, iletken katman olarak potansiyel uygulamalarda kapsamlı bir şekilde çalışılmaktadır. ZnO ince filmlerin üretiminde şimdiye kadar RF püskürtme, lazer biriktirme, kimyasal buhar biriktirme, döndürmeli kaplama, kimyasal banyo depolama, SILAR (Aşamalı İyonik Katmanlı Adsorpsiyon ve Reaksiyon) ve spreylendirme gibi çeşitli teknikler kullanılmıştır (Klochko ve ark., 2022). Bu tekniklerin çoğu ayrıntılı kurulumlar gerektirmekte ve çok yüksek sıcaklıklara veya vakuma ihtiyaç duymaktadır. Bu gereksinimler genellikle üretim maliyetini artırmaktadır. ZnO ince filmlerin SILAR tekniği ile üretimi maliyetleri önemli ölçüde azaltılabilir. SILAR yöntemi pahalı donanım gerektirmemekte, ayrıntılı numune hazırlama veya vakum ortamına ihtiyaç duymamaktadır (Ashith ve ark., 2018).

Oksit ince filmlerin enerji bant aralığı değerleri pH, sıcaklık, karıştırma hızı ve depolama süresi gibi pek çok faktörden etkilenmektedir. Yarıiletken ince filmlerin optik ve yapısal özellikleri uygun üretim parametreleri kullanılarak iyileştirilebilir (Yücel ve ark., 2014; Yücel ve ark., 2015). Yüksek standartlara sahip yarıiletken malzemelerin üretilmesinde tane boyutu, filmin kalınlığı, yüzey morfolojisi ve kristal yapının kontrolünde kullanılan üretim metodu ve üretim parametreleri oldukça etkilidir (Sun ve ark., 2014; Yücel ve ark., 2015; Yücel ve ark., 2015a; Yücel ve ark., 2015b). Üretim aşamasındaki faktörler bir seferde sadece tek faktörün değiştirildiği geleneksel ya da sistematik bir yaklaşım getiren istatistiksel yöntemle optimize edilebilmektedir. Geleneksel yöntemler diğer faktörlerin sabit tutulduğu bir defada bir bağımsız değişkenin değiştirilmesiyle gerçekleştirilen yöntemlerdir. İstatistiksel yaklaşımlar arasında kemometri çoklu süreç değişkenlerinin analizinde güçlü bir teknik olarak öne çıkmaktadır. Kemometrik teknikler geleneksel yöntemle kıyaslandığında daha az deneysel çalışmaya ihtiyaç duyması ve değişkenler arasındaki etkileşimlerin tanımlanabilir ve hesaplanabilir olması yönleriyle avantajlıdır (Brereton, 1990; Brereton, 2003). Parametrelerin optimizasyonunda genellikle merkezi kompozit dizayn (CCD) ve yanıt yüzey yöntemi (RSM) gibi kemometrik optimizasyon metotları kullanılmaktadır (Cornell, 1990; Yücel ve ark., 2012a; Yücel, 2012b; Yücel, 2012c; Yücel ve ark., 2014; Yücel ve ark., 2015; Yücel ve ark., 2016; Yücel ve ark., 2017).

Bu çalışmada çinko oksit ince filmlerin Kemometrik yaklaşım kullanılarak üretilmiş ve karakterize edilmiştir. Çalışmada çinko oksit (ZnO) yarıiletken ince filmlerin yapısal, optik ve morfolojik özellikleri incelenmiştir. Üretim parametrelerin optimize edilmesinde 5-seviyeli-3-faktörlü merkezi kompozit dizayn oluşturulmuştur. ZnO yarıiletken malzemenin SILAR metoduyla sentezinde hangi parametrelerin daha etkili olduğu varyans analiziyle belirlenmiştir. Optimum üretim koşulları tespit edildikten sonra optimize koşullarda üretilen çinko oksit yarıiletken ince filmlerin taramalı elektron mikroskobu (SEM), X-ışını kırınımı (XRD) ve ultraviyole spektroskopisi (UV) gibi tekniklerle karakterizasyonu yapılmıştır.)

2. ÖNCEKİ ÇALIŞMALAR

Ghos ve arkadaşları (2021), SILAR yöntemiyle 30-65 °C sıcaklıkta izopropil alkol varlığında sentezledikleri ZnO ince filmlerin yapısal, morfolojik ve optik özellikleri üzerindeki substrat, sonikasyon işlemi ve post-tavlamanın etkisini rapor etmişlerdir. Araştırmacılar birikmiş filmlerin taramalı elektron mikroskobu görüntüsünün 50 ve 65 °C sıcaklıklarda izopropil alkol kullanırken sonikasyon olmadan büyütülen numuneler için kompakt ve düzgün dağılmış taneler gösterdiğini bildirmiş ve tavlama sonrası XRD sonuçları ile daha belirgin olan filmlerin kristalliğinin iyileştiğini belirlemiştir. Çalışma sonunda yüksek kaliteli ZnO ince filmlerin 50 °C'de bir izopropil alkol dağıtıcı kullanılarak sonikasyon olmadan büyütülebileceği ortaya koyulmuştur.

Santhamoorthy ve arkadaşları (2021), ZnO ince filmlerin ardışık iyonik tabaka adsorpsiyon ve reaksiyon (SILAR) tekniği kullanılarak biriktirme döngülerinin 25 ila 100 arasında değiştirilerek cam substratlar üzerine biriktirildiğini bildirmiştir. Çalışmada biriktirme döngülerinin yapısal, morfolojik, optik ve elektriksel özellikler üzerindeki etkisi araştırılmış ve rapor edilmiştir. Morfolojik analizler 25 ve 50'lik biriktirme döngüleri için nanoçubuk benzeri morfoloji oluşumunu ortaya çıkarırken, 75 ve 100 döngüde deforme olduğunu göstermiştir. Araştırmacılar 75 biriktirme döngüsünde, bant aralığını 3.2468 ± 0.0026 eV olarak hesaplamıştır.

Ashith ve arkadaşları (2018), ZnO ince filmlerin üretiminde SILAR metodunun kullanıldığını ve sentezlenen filmlerin farklı sıcaklıklarda biriktirme sonrası tavlamaya tabi tutulduğunu bildirmiştir. Yapılan çalışmada SILAR yöntemiyle elde edilen ZnO ince filmlerinin altıgen kristal yapıya sahip polikristal olduğu bulunmuş ve tavlamadan sonra filmlerin kristalit boyutunun önemli ölçüde arttığı bildirilmiştir. Ayrıca üretilen filmleri görünür bölgede çok düşük absorpsiyon gösterdiği ancak UV bölgesinde tavlama sıcaklığının artmasıyla filmlerin absorpsiyonunun arttığı ve ince filmlerin yaklaşık 3.1 eV'lik bir doğrudan bant aralığına sahip olduğu rapor edilmiştir.

Klochko ve arkadaşları (2022), tarafından yapılan çalışmada ucuz ve ölçeklenebilir SILAR yöntemi kullanılarak nanoyapılı çinko oksit (ZnO) filmlerin poliimid (PI) altlıklara biriktirilmesiyle üretilen esnek geniş bant fotodetektörleri incelenmiştir. Araştırmacılar esnek bir geniş bantlı fotodetektör için ZnO/PI ışığa duyarlı malzemenin 25 um kalınlığında poliimid substrat üzerine SILAR yöntemi kullanılarak üretildiğini ve ardından 300'de tavlandığını, ZnO yapısının ortalama tane boyutunun 24-55 nm

aralığında bulunduğunu bildirmiştir. Sentezlenen ZnO malzemesinin optik bant aralığının yaklaşık olarak 3,2 eV bulunduğu rapor edilmiştir.

Yücel ve arkadaşları (2015a), SILAR yöntemiyle üretilen kurşun sülfür yarıiletken ince filmlerin optimum üretim koşullarının belirlenmesinde yanıt yüzey metodunu kullanmıştır. Yaptıkları çalışmada kurşun sülfür ince filmlerin daldırma süresi, pH ve daldırma sayısını incelemiştir. RSM ve CCD metotları ile yarıiletken ince filmlerin bant aralığı değerlerine etki eden parametrelerin yer aldığı ikinci dereceden bir polinom denklem elde etmişler ve optimum pH değerini 9,5, daldırma süresini 10 saniye ve toplam tur sayısını ise 10 olarak hesaplamışlardır.

Yücel ve arkadaşları (2016), CdS yarıiletken ince filmlerin SILAR yöntemiyle destek materyali üzerine kaplanmasında etkili deneysel koşulların istatistiksel yaklaşımla optimize edilmesinde kemometrik teknikler kullanmışlardır. CdS filmlerin optimize edilme sürecinde sıcaklık, daldırma süresi ve daldırma döngü sayısının filmlerin bant aralığı üzerindeki etkilerini incelemiştir. Araştırmacılar çoklu regresyon analizi ile ikinci dereceden polinom denklemi elde etmiş ve ANOVA analizi ile ince film üretim prosesi için geliştirdikleri modelin yeterli olduğunu ortaya koymuşlardır. Çalışma sonunda araştırmacılar CdS filmlerin optimum kaplama koşullarını 30,1 °C sıcaklık, 29,5 saniye daldırma süresi ve 30 devir daldırma döngüsü olarak belirlemişlerdir. Optimum çalışma koşullarında ürettikleri CdS yarıiletken filmin bant aralığı değerini 2.43 eV olarak rapor etmişler ve bu değerini ikinci dereceden polinom denklem ile hesaplanan değer ile uyumlu olduğunu göstermişlerdir.

Yücel ve arkadaşları (2017), SnS yarıiletken ince filmlerin sentezine yönelik çalışmalarında kemometrik optimizasyon metodunu kullanmışlardır. Deneysel tasarım ile tespit ettikleri kaplama koşulları altında destek malzemesi üzerine SnS ince filmlerin SILAR yöntemiyle kaplanması sağlanmış ve yarıiletken filmlerin çökeltme parametrelerine bağlı depolama sürecinin beş seviyeli üç faktörlü merkezi kompozit tasarımı ile optimize edildiği bildirilmiştir. Araştırmacılar SnS kalkojenit filmlerin optimum şartlarda üretilmesi için solüsyonların sıcaklığının 40 °C, daldırma süresinin 23,4 saniye ve daldırma döngü sayısının 50 devir olması gerektiğini rapor etmişlerdir.

Abegunde ve arkadaşları (2020), RF magnetron proses parametrelerinin Ti6Al4V substrat üzerinde büyütülen TiC ince filmlerin yüzey pürüzlülüğü üzerindeki etkisini incelemiştir. Araştırmacılar RF püskürtme süreç parametrelerinin katkı oranını

belirlemek için Taguchi optimizasyon yöntemi kullanmış ve TiC ince film yüzey pürüzlülüğünün optimizasyonu için matematiksel tahmin modelleri geliştirmişlerdir. TiC ince filmin yapısal karakterizasyonunda X-ışını difraktometresi kullanılmış ve optimizasyon analizinde TiC ince film yüzey pürüzlülüğünün davranışına en çok RF gücünün %87,97 katkı oranıyla katkı sağladığını bildirilmiştir.

Abegunde ve arkadaşları (2021), magnetron püskürtme işlemindeki parametrelerin Ti6Al4V alaşımlarının yüzey pürüzlülüğü üzerindeki etkisini ve etkileşimini araştırmıştır. Çalışmalarında %99,99 saflıkta titanyum karbür (TiC) ince filmleri radyo frekansı (RF) magnetron püskürtme işlemi ile Ti6Al4V alt tabakalar üzerinde biriktirmişlerdir. Araştırmacılar biriktirme süreç parametreleri olarak püskürtme süresi, RF gücü ve sıcaklığın dikkate alındığını ve yirmi deneysel çalışmadan oluşan merkezi kompozit dönelbilir tasarım (CCD) kullanıldığını rapor etmiştir. Çalışmada optimal süreç parametrelerini ve modelin yeterliliğinin belirlenmesi için regresyon analizi ve varyans analizi (ANOVA) kullanıldığı ve püskürtme parametrelerinin kaplanmış numunelerin yüzey pürüzlülüğü üzerindeki etkisini araştırmak ve yüzey pürüzlülüğünü tahmin etmek için ampirik bir denklem geliştirildiği bildirilmiştir. Araştırma sonunda RF gücünün yüzey pürüzlülüğü üzerinde en önemli etki yaptığı ortaya koyulmuş ve geliştirilen matematiksel modelin anlamlı olduğu bildirilmiştir.

Costa ve arkadaşları (2021), etilen glikol (EG) ile muamele edilmiş PEDOT:PSS/Ag nanotel ince filmlerinin elektriksel ve optik özelliklerinin oluşumunu ve optimizasyonunu değerlendirmek için bir başlangıç tipi yanıt yüzey yanıt yüzey metodu (RSM) yaklaşımı ile merkezi kompozit dizayn (CCD) kullanmışlardır. Yaptıkları çalışmada filmlerin etilen glikol ortamında ve termal son işlem varlığında belirli hacim oranlarıyla döndürme kaplaması ile biriktirildiğini rapor etmişlerdir. Araştırmacılar çalışmada geliştirdikleri PEDOT:PSS/Ag nanotel ince filmlerinin elektriksel ve optik özelliklerini optimize etmek için yanıt yüzey metodu (RSM) ve merkezi kompozit dizayn (CCD) yaklaşımının değerli bir araç olduğunu göstermiştir.

3. MATERYAL ve YÖNTEM

3.1. Materyal

3.1.1. Çalışmada Kullanılan Reaktifler

Tez çalışmamızda ZnO yarıiletken ince filmler cam destek malzemesi üzerine SILAR yöntemi kullanılarak kaplanmıştır. Çalışmada çinko kaynağı olarak çinko nitrat tuzu kullanılmıştır. Kompleksleştirici olarak ise sulu amaonyak çözeltisi kullanılmıştır. Çalışma boyunca hazırlanan tüm çözeltilerde deiyonize su kullanılmıştır. ZnO nanoyapısının kaplandığı cam destek malzemesinin temizlenmesinde sırasıyla seyreltik H₂SO₄ asit çözeltisiyle ultrasonik banyo, deiyonize su ile yıkama, aseton ile yıkama, saf su ile durulama ve kurutma adımları uygulanmıştır.

3.1.2. Çalışmada Kullanılan Cihazlar

SILAR metoduyla sentezlenen ZnO ince filmlerin SEM analizlerinde Thermo Fisher Scientific Apreo S model taramalı elektron mikroskobu kullanılmıştır. Maddenin yüzeyi ile ilgili bilgi sahibi olmak ve yüzeyde meydana gelebilecek değişimlerin izlenmesinde taramalı elektron mikroskobu yaygın olarak kullanılmaktadır. SEM metodu maddenin yüzeyinden saçılan elektronların dedektörde tespit edilmesi ve görüntülenmesi ilkesine dayanmaktadır. Maddenin yüzeyine gönderilen elektronların dalga boyu elde edilen görüntülemenin nanometre boyutlarında yapılmasına olanak sağlamaktadır. Bu yöntemle oldukça hassas görüntüleme yapılabilmektedir.

Cam destek malzemesi üzerine kaplanan ZnO ince filmlerin bant aralığının belirlenmesi için THERMO SCIENTIFIC Evolution 160 marka UV-vis spektroskopisinden elde edilen absorbans verileri kullanılmıştır. Yarıiletken malzemelerin optik özelliklerinin incelenmesi ile malzemelerin bant yapıları ve malzemelerdeki elektronların ve hollerin davranışları hakkında bilgiler elde edilebilmektedir.

SILAR metoduyla kaplanan ZnO yarıiletken ince filmlerin yapısal analizi RIGAKU Smart Lab marka X-ışını difraktometresi kullanılarak yapılmıştır. X-ışını kırınım desenleri yarıiletken ince filmlerin yapısal analizinde kullanılan önemli metotlardan biridir. Yarıiletken çinko oksit ince filmlerden elde edilen kırınım

desenlerinde oluşan piklerin şiddet olarak büyük ve pik yarı genişliği olarak küçük olması malzemedeki kristalleşmenin iyi olduğu hakkında bilgi sahibi olmamızı sağlar. Ayrıca elde edilen veriler malzemedeki örgü parametreleri hakkında bilgi içermektedir.

3.2. Yöntem

Çinko oksit yarıiletken ince filmlerin kemometrik yaklaşımla üretimi ve karakterizasyonunun hedeflendiği çalışmamızda ZnO ince filmler cam destek malzemesi üzerine SILAR yöntemi kullanılarak kaplanmıştır. Sentezleme işleminden önce ZnO film kaplamasının yapılacağı cam destek malzemesi seyreltik H₂SO₄ asit çözeltisiyle ultrasonik banyo, deiyonize su ile yıkama, aseton ile yıkama, saf su ile durulama ve kurutma işlemlerinden geçirilerek temizlenmiştir. Yarıiletken ince filmlerin üretiminde çinko kaynağı olarak çinko nitrat tuzu, kompleksleştirici reaktif olarak ise sulu amaonyak çözeltisi kullanılmıştır. Sentezlenen ince filmler atmosfer ortamında 300 °C sıcaklıkta bir saat süreyle tavlansmıştır.

3.2.1. Çinko Oksit İnce Film Üretimi

Çinko oksit yarıiletken ince filmlerin cam destek malzemesi üzerine kemometrik yaklaşımla kaplanması ve optimizasyon işleminde yanıt yüzey metodu (RSM) ve merkezi kompozit dizayn (CCD) metotları kullanılmıştır. ZnO ince filmlerin cam destek malzemesi üzerine SILAR yöntemiyle kaplanmasında yanıt yüzeyi tasarımı için kullanılan bağımsız değişkenler sırasıyla amaonyak çözeltisi miktarı, döngü sayısı ve karıştırma hızı olarak belirlenmiştir. Çinko kaynağı olarak çinko nitrat tuzunun, kompleksleştirici olarak ise sulu amaonyak çözeltisinin kullanıldığı üretim metodunda tüm çözeltiler beş seviyeli, üç faktörlü yanıt tasarımı için oluşturulan deneysel kurulumda gösterilen bağımsız değişkenlerin deneysel değerleri kullanılarak hazırlanmış ve uygulanmıştır. 20 SILAR deneyinden oluşan çalışma sonunda üretilen ZnO yarıiletken ince film numuneleri atmosfer ortamında 300 °C sıcaklıkta bir saat süreyle ısıl işleme tabi tutulmuştur. Yapılan kemometrik hesaplamalar sonunda ZnO ince filmlerin cam destek malzemesi üzerine SILAR yöntemiyle kaplanması ile ilgili optimum sentez koşulları belirlenmiş ve optimum sentez koşullarında üretilen ZnO yarıiletken ince film numunesinin karakterizasyon çalışmaları yapılmıştır.

3.2.2. Çinko Oksit İnce Filmlerin Kemometrik Optimizasyonu

ZnO yarıiletken ince filmlerin SILAR yöntemiyle cam destek malzemesi üzerine kaplanması işleminin kemometrik optimizasyonunda RSM ve 3 faktörlü 5 seviyeli CCD metotları kullanılmıştır. RSM için kullanılan bağımsız değişkenler ve seviyeleri Çizelge 3.1. de gösterilmiştir.

Çizelge 3.1. Yanıt yüzeyi tasarımı için kullanılan bağımsız değişkenler ve seviyeler

Bağımsız değişkenler	Sembol	Seviyeler				
		-1.682	-1	0	1	1.682
Amonyak çözeltisi miktarı (mL)	A	6.6	8.0	10.0	12.0	13.4
Döngü sayısı (cycles)	B	13.2	20.0	30.0	40.0	46.8
Karıştırma hızı (rpm)	C	231.8	300.0	400.0	500.0	568.2

Çinko oksit yarıiletken ince filmlerin SILAR metoduyla üretiminde bağımsız değişken olarak belirlenen amonyak çözeltisi miktarı, döngü sayısı ve karıştırma hızı parametreleri ve belirlenen bağımsız değişkenlerin seviye değerleri laboratuvar ön çalışmaları ile belirlenmiştir. 3 faktörlü 5 seviyeli CCD için oluşturulan tasarımda α değerleri -1.682 ve +1.682 olarak belirlenmiştir. ZnO ince filmlerin cam destek malzemesi üzerine kemometrik yaklaşımla kaplanması ve optimizasyonu için uygulanan 20 deneyle CCD (merkezi kompozit dizayn) tablosu ve değişkenlerin kodlu değerleriyle deneysel değerleri Çizelge 3.2.' de verilmiştir.

Çizelge 3.2.' de gösterilen A, B ve C sembolleri sırasıyla amonyak çözeltisi miktarı, döngü sayısı ve karıştırma hızını ifade etmektedir.

Çizelge 3.2. SILAR metoduyla ZnO ince film üretiminin optimizasyonunda kullanılan bağımsız değişkenlerin kodlu ve deneysel değerleri

Deney	Bağımsız değişkenlerin kodlu değerleri			Bağımsız değişkenlerin deneysel değerleri		
	A	B	C	Amonyak çözeltisi miktarı (mL)	Döngü sayısı (cycles)	Karıştırma hızı (rpm)
1	-1	-1	-1	8	20	300
2	1	-1	-1	12	20	300
3	-1	1	-1	8	40	300
4	1	1	-1	12	40	300
5	-1	-1	1	8	20	500
6	1	-1	1	12	20	500
7	-1	1	1	8	40	500
8	1	1	1	12	40	500
9	-1.682	0	0	6.6	30	400
10	1.682	0	0	13.4	30	400
11	0	-1.682	0	10	13.2	400
12	0	1.682	0	10	46.8	400
13	0	0	-1.682	10	30	231.8
14	0	0	1.682	10	30	568.2
15	0	0	0	10	30	400
16	0	0	0	10	30	400
17	0	0	0	10	30	400
18	0	0	0	10	30	400
19	0	0	0	10	30	400
20	0	0	0	10	30	400

3.2.3. inko Oksit İnce Filmlerin Yapısal Morfolojik ve Karakterizasyonu

20 deneyli CCD tablosunda gösterilen deneysel kořullarda SILAR metoduyla sentezlenen ZnO ince filmlerin ve optimum sentez kořullarında üretilen inko oksit yarıiletken ince film numunesinin morfolojik analizleri Thermo Fisher Scientific Apreo S model taramalı elektron mikroskobu (SEM) ile yapılmıřtır. Cam destek malzemesi üzerine kaplanan ZnO ince filmlerin absorbands ve geirgenlik deęerlerinin belirlenmesi iin THERMO SCIENTIFIC Evolution 160 marka UV-vis spektroskopisi kullanılmıřtır. SILAR metoduyla kaplanan ZnO yarıiletken ince filmlerin yapısal analizleri ise RIGAKU Smart Lab marka X-ıřını difraktometresi kullanılarak gerekleřtirilmiřtir.



4. ARAŞTIRMA BULGULARI ve TARTIŞMA

4.1. Sentezlenen Çinko Oksit İnce Filmlerin Kemometrik Analiz Sonuçları

SILAR yöntemiyle sentezlenen ZnO yarıiletken ince filmlerin cam destek malzemesi üzerine kaplanmasında etkili olan parametrelerin kemometrik optimizasyonunda RSM ve 3 faktörlü 5 seviyeli CCD metotları kullanılmıştır. RSM modellemesinde çıktı olarak ZnO yarıiletken ince filmlerin RMS pürüzlülüğü (Rq) ve Ortalama pürüzlülük (Ra) değerleri kullanılmıştır. Çinko oksit yarıiletken ince filmlerin SILAR metoduyla üretiminde bağımsız değişken olarak belirlenen amonyak çözeltisi miktarı, döngü sayısı ve karıştırma hızı parametreleri için optimum deneysel koşullar hesaplanmıştır.

4.1.1. Merkezi Kompozit Dizayn (CCD)

ZnO yarıiletken ince filmlerin cam destek malzemesi üzerine kemometrik yaklaşımla kaplanması ve optimizasyonu için uygulanan beş seviyeli ve üç faktörlü yüzey yanıt tasarımı için deneysel kurulum ve değişkenlerin gerçek değerleriyle deneysel olarak elde edilen veriler Çizelge 4.1.'de verilmiştir. Çizelge 4.1.'de görüldüğü gibi ZnO yarıiletken ince film numunelerinin RMS pürüzlülüğü (Rq) ve Ortalama pürüzlülük (Ra) değerleri olmak üzere iki deneysel çıktı kullanılmıştır. Çizelge 4.1.'de RMS pürüzlülüğü (Rq) için verilen deneysel değerler 174,3 nm ile 225,7 nm aralığında değişirken, Ortalama pürüzlülük (Ra) için verilen deneysel değerler 137,9 nm ile 190,3 nm aralığında ölçülmüştür. ZnO yarıiletken ince filmlerin cam destek malzemesi üzerine kemometrik yaklaşımla optimize edilmesinde kullanılan ikinci dereceden polinom denklemleri ve regresyon katsayıları herbir yanıt değişkeni (RMS pürüzlülüğü (Rq) ve Ortalama pürüzlülük (Ra)) için hesaplanmış ve Çizelge 4.2.'de verilmiştir. İkinci dereceden polinom denklemlerinde verilen A, B, ve C sembolleri sırasıyla amonyak çözeltisi miktarı, döngü sayısı ve karıştırma hızını ifade etmektedir. Şekil 4.1. RMS Pürüzlülüğü ve Ortalama Pürüzlülük çıktıları için deneysel (kareler) ve tahmini (çizgi) yanıtlar arasındaki ilişkiyi göstermektedir.

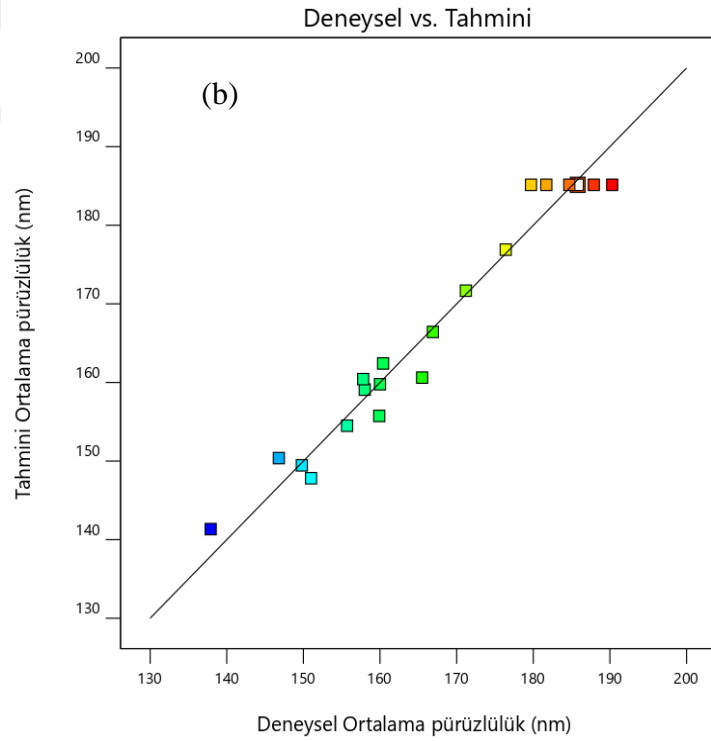
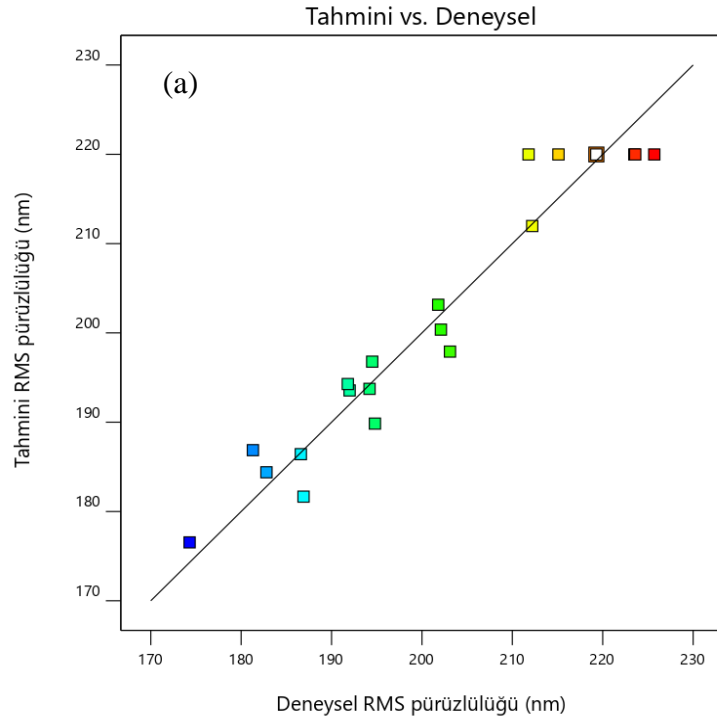
Çizelge 4.1. Beş seviyeli, üç faktörlü yüzey yanıt tasarımı için deneysel kurulum ve değişkenlerin gerçek değerleriyle deneysel veriler.

Deneysel Kurulum	Değişkenlerin gerçek değerleri			Yanıt-1		Yanıt-2	
				RMS Pürüzlülüğü (Rq)		Ortalama Pürüzlülük (Ra)	
				nm		nm	
Deneysel	Tahmini	Deneysel	Tahmini				
1	8	20	300	201.8	203.2	171.2	171.7
2	12	20	300	174.3	176.5	137.9	141.3
3	8	40	300	202.1	200.4	166.9	166.4
4	12	40	300	192.0	193.6	158.0	159.1
5	8	20	500	194.5	196.8	160.4	162.4
6	12	20	500	181.3	186.9	146.8	150.4
7	8	40	500	182.8	184.4	149.8	149.5
8	12	40	500	191.8	194.3	157.8	160.4
9	6.6	30	400	212.2	212.0	176.4	176.9
10	13.4	30	400	203.1	197.9	165.5	160.6
11	10	13.2	400	194.8	189.8	159.9	155.7
12	10	46.8	400	194.2	193.7	160.0	159.8
13	10	30	231.8	186.6	186.4	155.7	154.5
14	10	30	568.2	186.9	181.7	151.0	147.8
15	10	30	400	219.3	220.0	185.8	185.1
16	10	30	400	223.5	220.0	187.9	185.1
17	10	30	400	211.8	220.0	179.7	185.1
18	10	30	400	215.1	220.0	181.7	185.1
19	10	30	400	223.6	220.0	184.7	185.1
20	10	30	400	225.7	220.0	190.3	185.1

ZnO yarıiletken ince film numunelerinin RMS pürüzlülüğü (Rq) ve Ortalama pürüzlülük (Ra) için ölçülen ve hesaplanan deneysel değerler ile tahmini değerlerin oldukça yüksek bir uyum içerisinde olduğu Çizelge 4.1. ve Şekil 4.1.'de görülmektedir. RMS pürüzlülüğü (Rq) ve Ortalama pürüzlülük (Ra) polinom denklemleri için R² değerleri sırasıyla 0,9371 ve 0,9618 olarak hesaplanmıştır.

Çizelge 4.2. Yanıt değişkenlerinin ikinci dereceden polinom denklemleri ve regresyon katsayıları (A: Amonyak çözeltisi miktarı; B: Döngü sayısı; C: Karıştırma hızı).

Yanıtlar	İkinci dereceden polinom denklemleri
RMS Pürüzlülüğü	$y(Rq) = 219.99 - 4.18A + 1.16B - 1.41C +$ $4.95AB + 4.17AC - 2.40BC - 5.32A^2 - 9.97B^2 -$ $12.71C^2$
Ortalama Pürüzlülük	$y(Ra) = 185.14 - 4.84A + 1.20B - 1.98C +$ $5.75AB + 4.57AC - 1.93BC - 5.79A^2 - 9.68B^2 -$ $12.02C^2$



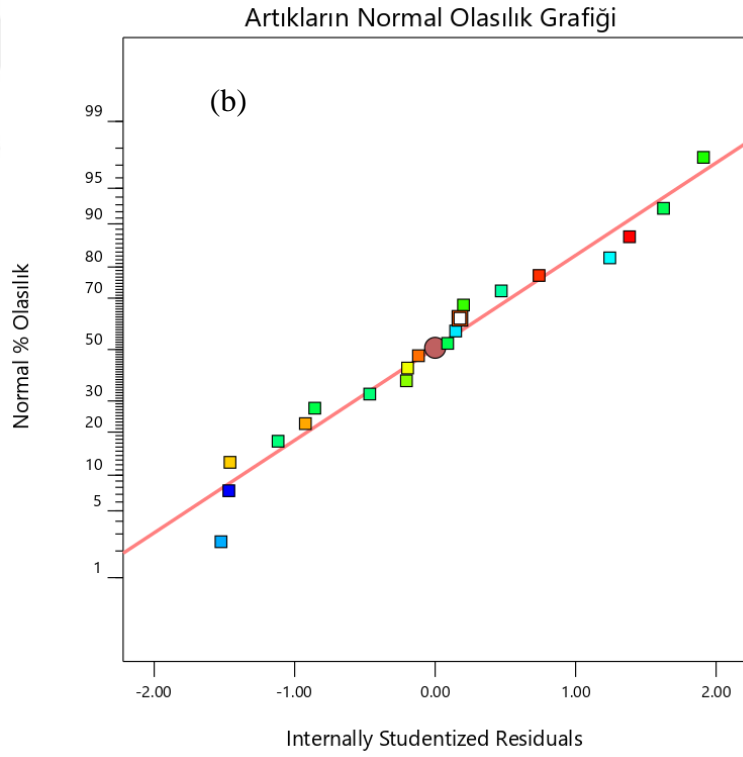
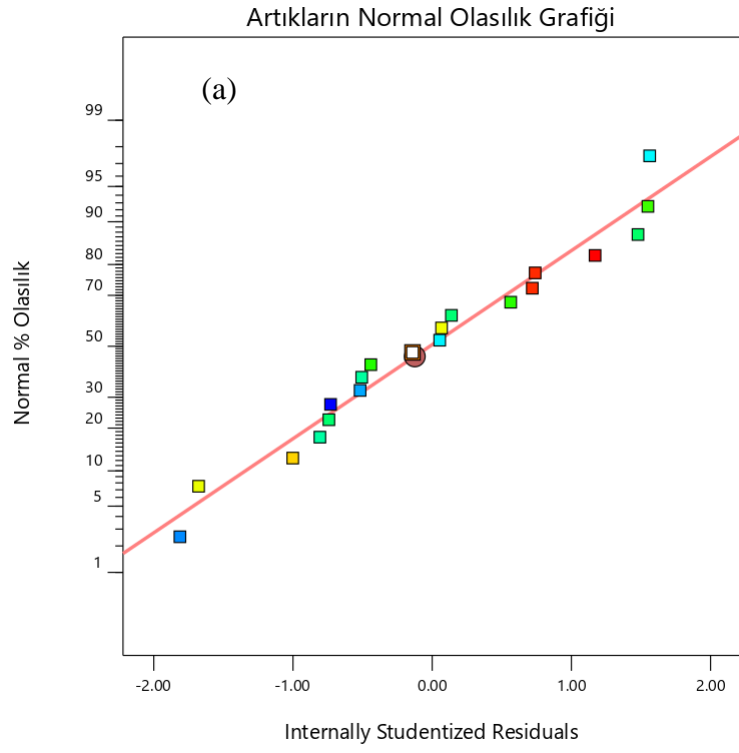
Şekil 4.1. RMS Pürüzlülüğü (a) ve Ortalama Pürüzlülük (b) için RSM modellerinin deneysel (kareler) ve tahmini (çizgi) değerlerinin karşılaştırılması

Verilerin normalliđi, artıkların normal olasılık grafiđi çizilerek kontrol edilmiřtir. Őekil 4.2.'de RMS Pürüzlülüđü ve Ortalama Pürüzlülük için gösterilen artıkların normal olasılık grafiđi, artıkların düz çizgi üzerine düřtüđünü ortaya koymaktadır. Bu sonuç hataların normal olarak dađıldığı anlamına gelmektedir.

4.1.2. ANOVA Analizi

Çizelge 4.2. de verilen yanıt deđişkenlerinin ikinci dereceden polinom denklemlerinin geçerliliđinin istatistiksel olarak analizi AVOVA ile yapılmıřtır. RMS Pürüzlülüđü ve Ortalama Pürüzlülük yanıtları için ayrı ayrı oluřturulan ikinci dereceden model denklemlerindeki terimlerin anlamlı olup olmadığının belirlenmesinde olasılık deđerine bakılmaktadır. Olasılık deđerinin 0,05 ten küçük olması durumunda modeldeki terimin anlamlı, olasılık deđerini 0,05 ten büyük olması durumunda ise terimin anlamlı olmadığı ve sonuç üzerindeki etkinliđinin düşük olduđu kabul edilmektedir. RMS Pürüzlülüđü ve Ortalama Pürüzlülük için elde edilen ikinci dereceden polinom modellerinin ANOVA sonuçları sırasıyla Çizelge 4.3. ve Çizelge 4.4. te verilmiřtir.

Çizelge 4.3. te verilen ANOVA sonuçları incelendiđinde model için verilen 16,55' lik F deđerini RMS Pürüzlülüđü için oluřturulan modelin anlamlı olduđunu göstermektedir. 0,05 ten küçük olan A, AB, A², B², C² önemli model terimlerinin anlamlı olduđu, modelin uyumsuzluk deđerinin (Lack of Fit) ise 0,05 ten büyük olduđu yani anlamlı olmadığı görülmektedir. Çizelge 4.4. te verilen Ortalama Pürüzlülük için elde edilen ikinci dereceden polinom modellerinin ANOVA sonuçları incelendiđinde, model için verilen 28' lik F deđerinin Ortalama Pürüzlülük için oluřturulan modelin anlamlı olduđunu gösterdiđi görülmektedir. Ayrıca 0,05 ten küçük olan A, AB, A², B², C² terimlerinin önemli olduđu ve modelin uyumsuzluk deđerinin (Lack of Fit) ise 0,05 ten büyük olduđu yani anlamlı olmadığı ANOVA tablosunda görülmektedir.



Şekil 4.2. RMS Pürüzlülüğü (a) ve Ortalama Pürüzlülük (b) için artıkların normal olasılık grafiği.

Çizelge 4.3. RMS Pürüzlülüğü için elde edilen ikinci dereceden polinom modelinin ANOVA sonuçları.

Kaynak	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Kuadratik Ortalama	F-değeri	p-değeri
Model	4254.08	9	472.68	16.55	< 0.0001
A- Amonyak çözültisi miktarı	238.77	1	238.77	8.36	0.0161
B- Döngü sayısı	18.26	1	18.26	0.6391	0.4426
C- Karıştırma hızı	27.26	1	27.26	0.9543	0.3517
AB	196.02	1	196.02	6.86	0.0256
AC	139.44	1	139.44	4.88	0.0516
BC	46.08	1	46.08	1.61	0.2328
A ²	407.85	1	407.85	14.28	0.0036
B ²	1432.23	1	1432.23	50.13	< 0.0001
C ²	2327.73	1	2327.73	81.48	< 0.0001
Residual	285.68	10	28.57		
Lack of Fit	136.41	5	27.28	0.9138	0.5382
Pure Error	149.27	5	29.85		
Cor Total	4539.76	19			
R ² = 0.9371					

Çizelge 4.4. Ortalama Pürüzlülük için elde edilen ikinci dereceden polinom modelinin ANOVA sonuçları.

Source	Kareler Toplamı	Serbestlik Derecesi	Kuadratik Ortalama	F-değeri	p-değeri
Model	4200.43	9	466.71	28.00	< 0.0001
A- Amonyak çözültisi miktarı	320.23	1	320.23	19.21	0.0014
B- Döngü sayısı	19.62	1	19.62	1.18	0.3035
C- Karıştırma hızı	53.79	1	53.79	3.23	0.1027
AB	264.50	1	264.50	15.87	0.0026
AC	167.44	1	167.44	10.05	0.0100
BC	29.65	1	29.65	1.78	0.2119
A ²	483.65	1	483.65	29.01	0.0003
B ²	1351.00	1	1351.00	81.05	< 0.0001
C ²	2080.66	1	2080.66	124.82	< 0.0001
Residual	166.69	10	16.67		
Lack of Fit	90.49	5	18.10	1.19	0.4276
Pure Error	76.21	5	15.24		
Cor Total	4367.12	19			
R ² = 0.9618					

4.1.3. Yanıt Yüzey Analizi

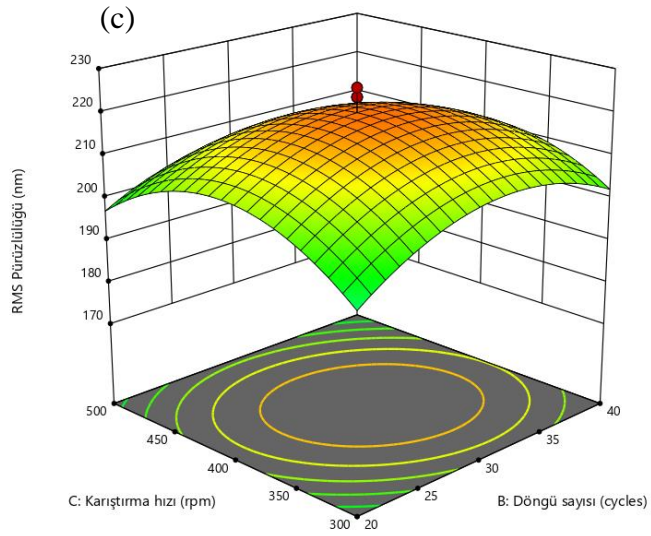
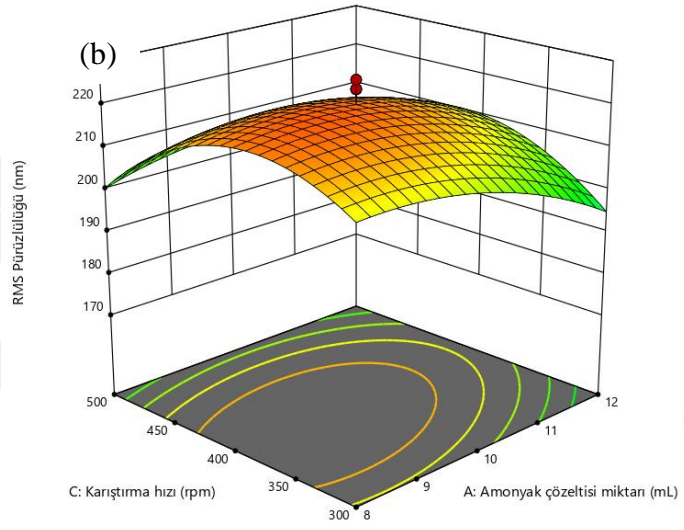
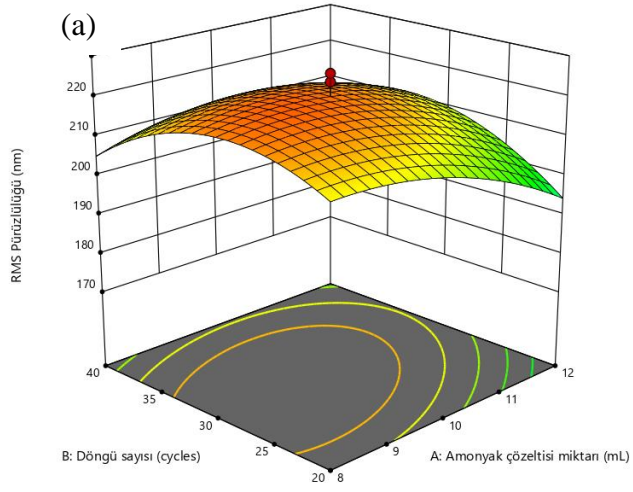
SILAR yöntemiyle cam destek malzemesi üzerine kaplanan ZnO ince filmlerin RMS pürüzlülüğü ve Ortalama pürüzlülük değerleri ile bağımsız değişkenler (amonyak çözeltisi miktarı, döngü sayısı ve karıştırma hızı) arasındaki ilişki yanıt yüzey analizi ile incelenmiştir. Amonyak çözeltisi miktarı, döngü sayısı ve karıştırma hızı parametrelerinin ZnO ince filmlerin RMS Pürüzlülüğü değerlerine olan etkileri Şekil 4.3.'te, Amonyak çözeltisi miktarı, döngü sayısı ve karıştırma hızı parametrelerinin ZnO ince filmlerin Ortalama Pürüzlülük değerlerine olan etkileri ise Şekil 4.4.'te gösterilmiştir.

Şekil 4.3' te verilen amonyak çözeltisi miktarı ile döngü sayısı parametrelerinin ZnO ince filmin RMS pürüzlülüğüne etkisini gösteren yanıt yüzey grafiği incelendiğinde amonyak çözeltisi miktarındaki artışın özellikle döngü sayısının düşük olduğu bölgelerde RMS pürüzlülüğü değerlerini önemli derecede etkilemediği, amonyak çözeltisi miktarının daha da artmasıyla eğilimin tersine döndüğü ve ZnO ince film RMS pürüzlülüğü değerinin azaldığı görülmektedir. Ayrıca, amonyak çözeltisi miktarı ile karıştırma hızının ZnO ince filmin RMS pürüzlülüğüne etkisini gösteren yanıt yüzey grafiğinde de benzer eğilim gözlenmiştir. Bu durum SILAR yöntemiyle ZnO ince film üretiminde amonyak çözeltisi miktarının RMS pürüzlülüğündeki değişimde önemli derecede etkili olduğunu göstermiştir. Diğer taraftan döngü sayısı ile karıştırma hızı parametrelerinin RMS pürüzlülüğüne etkisi incelendiğinde genel olarak döngü sayısındaki artış ile ZnO ince filmin yüzey pürüzlülüğünde artış olduğu, karıştırma hızındaki artışın ise ilk olarak RMS pürüzlülüğünde artışa neden olduğu 400 rpm değeri aşıldığında ise eğilimin tersine döndüğü ve ZnO ince film yüzey pürüzlülüğünde düşüş olduğu gözlenmiştir. SILAR metoduyla ince film sentezleme prosesinde döngü sayısının artmasıyla ince film kalınlığı etkilenmekte ve ince film yüzey pürüzlülüğünde film kalınlığına bağlı değişim gözlenebilmektedir.

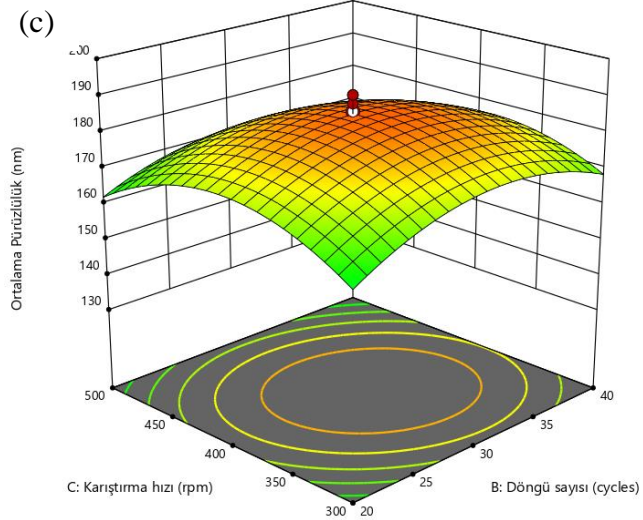
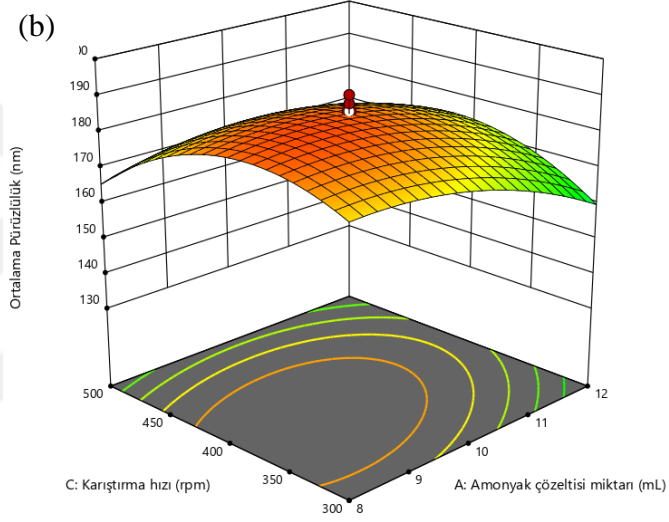
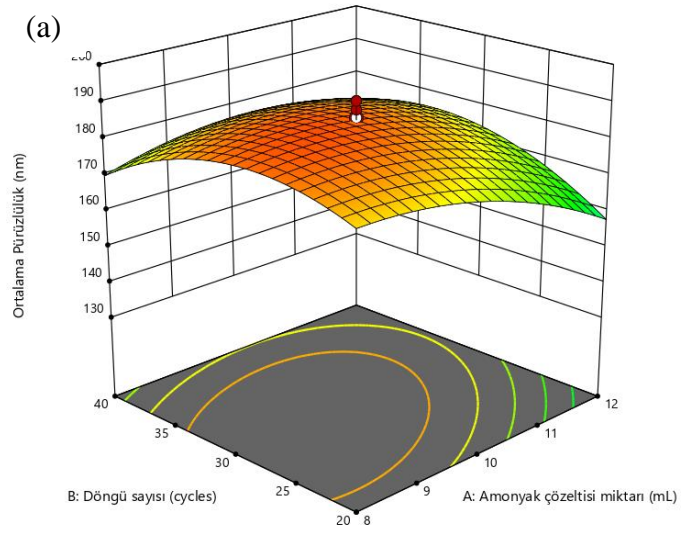
Şekil 4.4. SILAR metoduyla ZnO yarıiletken ince film üretiminde amonyak çözeltisi miktarı, döngü sayısı ve karıştırma hızının ZnO ince filmlerin Ortalama pürüzlülüğüne etkisini göstermektedir. Şekil 4.3' te gözlenen yüzey şekillerinde olduğu gibi özellikle yüksek miktarda amonyak çözeltisinin olduğu bölgede amonyak miktarındaki artışın ZnO ince filmlerin ortalama pürüzlülük değerlerinde düşüşe neden olduğu gözlenmiştir. Ayrıca, benzer eğilim amonyak çözeltisi miktarı ile karıştırma hızının ZnO ince filmin Ortalama pürüzlülüğüne etkisini gösteren yanıt yüzey grafiğinde

de görülmüştür. Bunun yanında döngü sayısı ile karıştırma hızının ince filmlerin Ortalama pürüzlülüğüne etkisi incelendiğinde genel olarak döngü sayısındaki artışın ince film numunelerinin yüzey pürüzlülüğünde artışa neden olduğu, karıştırma hızındaki artışın ise ilk olarak pürüzlülük değerini artırdığı 400 rpm değeri aşıldığında ise eğilimin tersine döndüğü ve ZnO ince filmlerin ortalama pürüzlülük değerinde düşüş oluşturduğu gözlenmiştir.





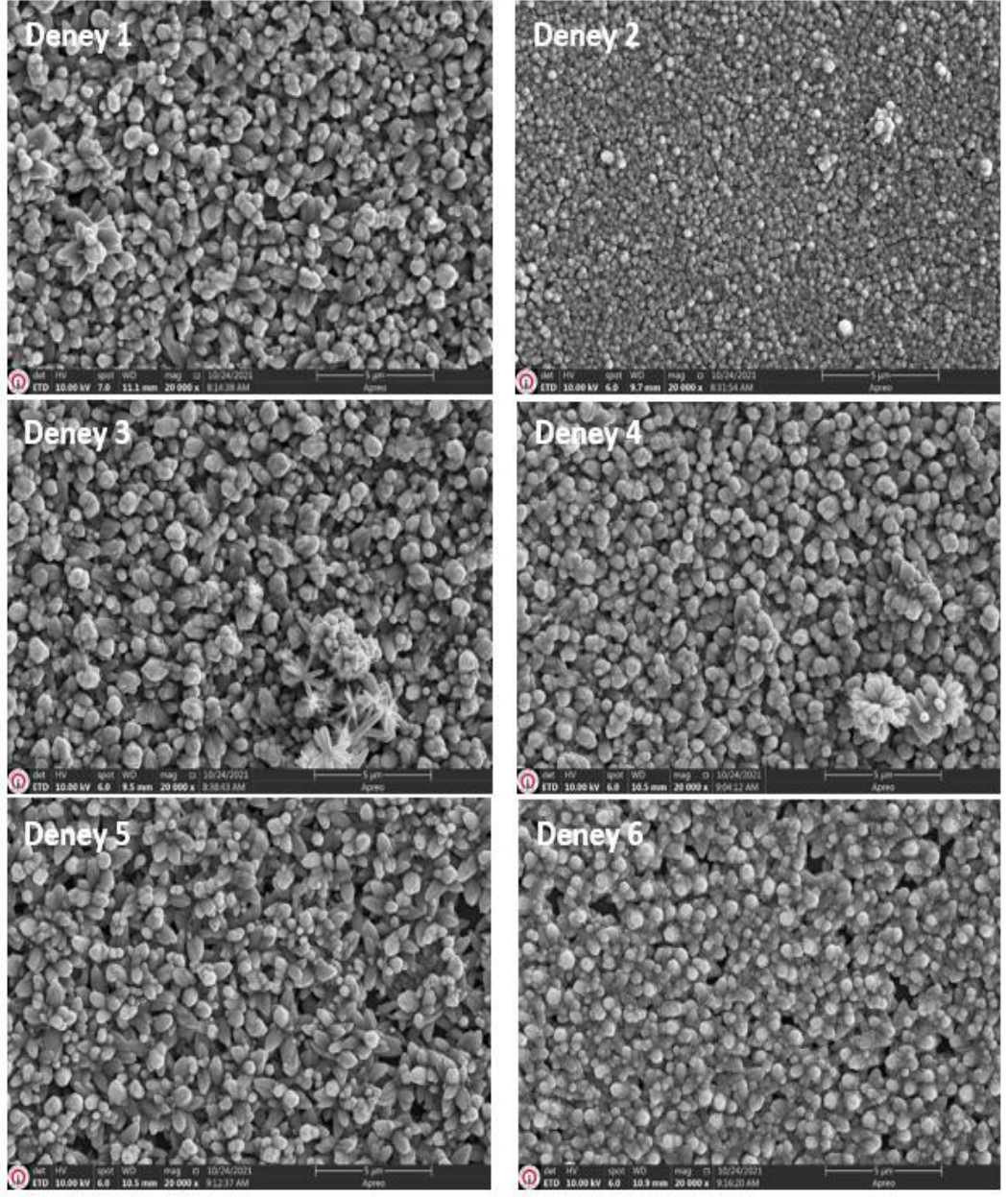
Şekil 4.3. İkinci dereceden modelden tahmin edilen RMS Pürüzlülüğünün yanıt yüzey çizimleri. (a) Amonyak çözeltisi miktarı, Döngü sayısı; (b) Amonyak çözeltisi miktarı, Karıştırma hızı; (c) Döngü sayısı, Karıştırma hızı.



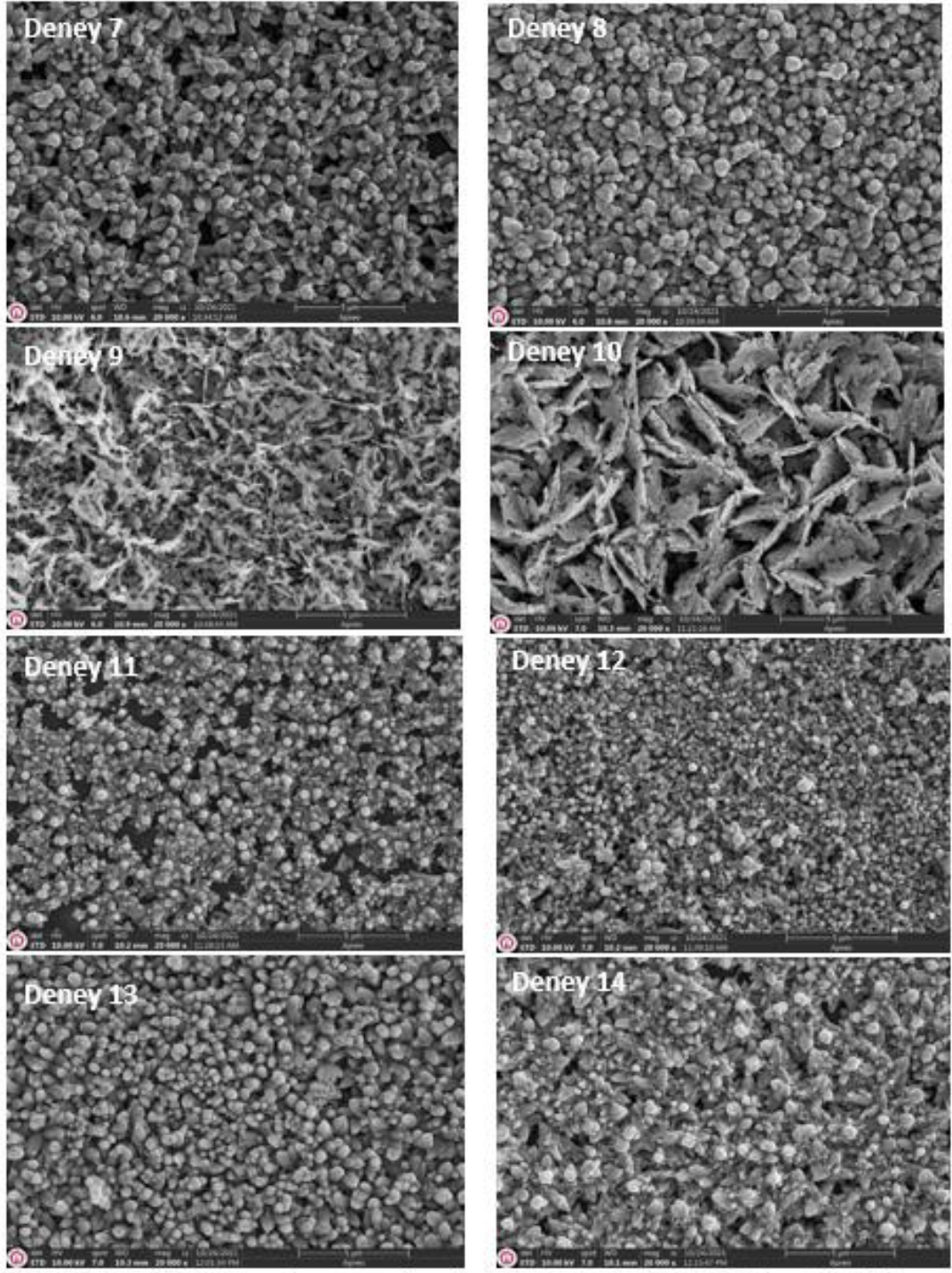
Şekil 4.4. İkinci dereceden modelden tahmin edilen Ortalama Pürüzlülüğün yanıt yüzey çizimleri. (a) Amonyak çözeltisi miktarı, Döngü sayısı; (b) Amonyak çözeltisi miktarı, Karıştırma hızı; (c) Döngü sayısı, Karıştırma hızı.

4.1.4. Merkezi kompozit tasarım deneylerine göre sentezlenen ZnO ince filmlerin SEM analizleri

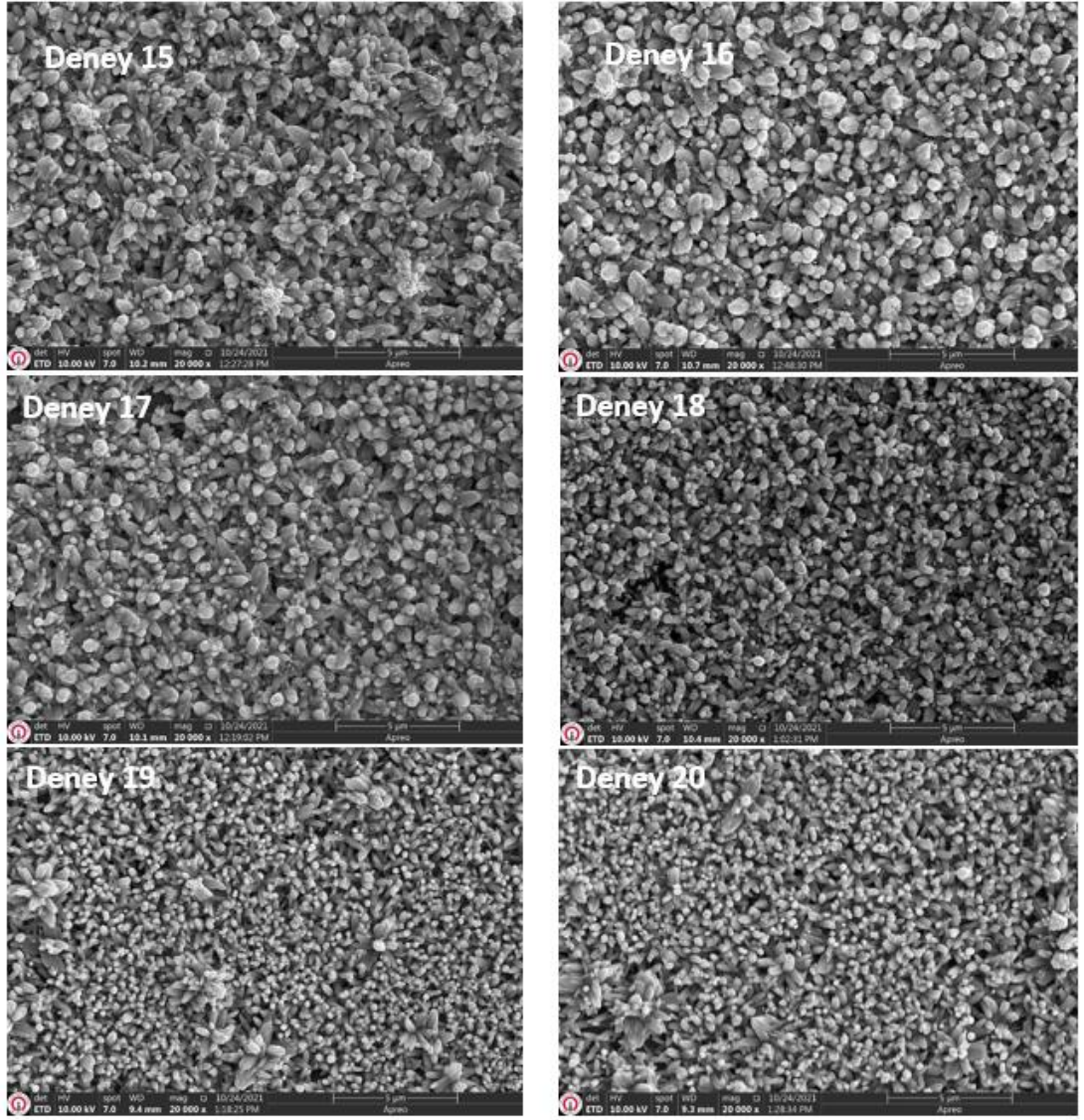
İnce filmlerin yüzey morfolojisinin filmlerin üretimi sırasında kullanılan deneysel koşullarla yüksek oranda bağlantılı olduğu bilinmektedir. Yaptığımız çalışmalar ZnO ince filmlerin SILAR metoduyla üretimi sırasında reaksiyon ortamındaki amonyak çözeltisi miktarının değişimi ile sentezlenen ince filmlerin yüzey şekilleri arasında bir ilişki olduğunu göstermiştir. SILAR yöntemiyle cam destek malzemesi üzerine merkezi kompozit tasarım deneylerine göre sentezlenen ZnO ince filmlerin SEM grafikleri Şekil 4.5.'te verilmiştir. 20 SILAR deneyinden oluşan çalışma sonunda üretilen tüm ZnO yarıiletken ince film numunelerinin SEM görüntüsü incelendiğinde 11 nolu SILAR deneyinin dışında filmlerin cam substrat yüzeyine düzgün bir şekilde kaplandığı ve tüm numunelerde yüzey homojenliğinin yüksek düzeyde olduğu ve kompakt yüzey morfolojisi elde edildiği gözlemlenmiştir. 11 nolu SILAR deneyinde ise ZnO ince film sentezi sırasında döngü sayısının düşük düzeyde tutulması nedeniyle film yüzeyinde yer yer boşluklar meydana geldiği ve kaplamanın tamamlanamadığı görülmüştür. Merkezi kompozit tasarımı gereği döngü sayısının düşük düzeyde tutulmasıyla film yüzeyinde boşluklar oluşması beklenen bir durumdur. Şekil 4.5. incelendiğinde 8 mL amonyak çözeltisi içeren 1,3,5 ve 7 nolu ZnO ince film numunelerinde gözlenen yüzey şekillerinin birbiriyle uyumlu olduğu, amonyak miktarının en düşük düzeyde tutulduğu 9 nolu numunede dikey yönlü nanoparçacıkların oluştuğu ve amonyak miktarının en fazla olduğu 10 nolu ZnO ince film numunesinde ise daha derin ve dik nanoyapıların meydana geldiği gözlenmiştir. Ayrıca, 11 ve 12 nolu ZnO numunelerinin yüzey şekillerindeki farklılığa döngü sayısının, 13 ve 14 nolu ZnO ince film yapılarının yüzey şekillerinde meydana gelen farklılıkta ise karıştırma hızının etkili olduğu düşünülebilir. Bunun yanında, 15-20 nolu deneylerde elde edilen ZnO numunelerinin beklenildiği gibi genel olarak benzer yüzey şekilleri oluşturduğu gözlenmiştir.



Şekil 4.5. Merkezi kompozit tasarım deneylerine göre sentezlenen ZnO ince filmlerin SEM analizleri



Şekil 4.5. Merkezi kompozit tasarım deneylerine göre sentezlenen ZnO ince filmlerin SEM analizleri (Devam)



Şekil 4.5. Merkezi kompozit tasarım deneylerine göre sentezlenen ZnO ince filmlerin SEM analizleri (Devam)

4.1.5. ZnO ince filmler için optimize edilmiş parametre değerleri ve RSM Modellerinin doğrulanması

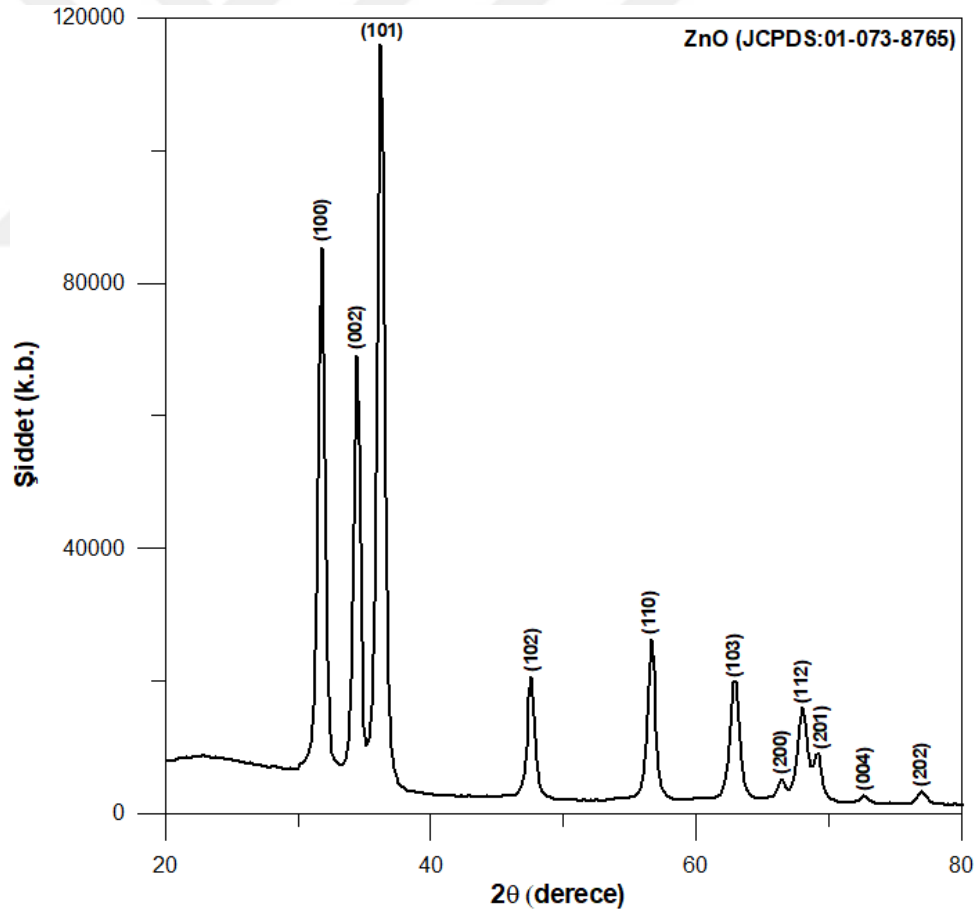
ZnO yarıiletken ince film numunelerinin RMS pürüzlülüğü ve Ortalama pürüzlülük yanıtlarıyla oluşturulan modeller için optimize edilmiş parametre değerleri ile tahmin edilen ve deneysel olarak elde edilen değerler Çizelge 4.5.'te verilmiştir. ZnO ince filmlerin cam destek malzemesi üzerine SILAR yöntemiyle kaplanmasında RMS Pürüzlülüğü değerleri ile elde edilen optimum parametre değerleri amonyak çözeltisi miktarı için 10,1 mL, döngü sayısı için 37,3 ve karıştırma hızı için 365,2 rpm olarak belirlenmiştir. RMS pürüzlülüğü yanıtıyla oluşturulan model denkleminde hesaplanan tahmini RMS pürüzlülüğü değeri 214,9 nm iken, bulunan optimum deney koşullarında üretilen numunenin RMS pürüzlülüğü değerinin 213,4 nm olarak elde edilmesi RMS pürüzlülüğü için oluşturulan modelin başarısını göstermektedir. Benzer şekilde, ZnO ince filmlerin cam destek malzemesi üzerine SILAR yöntemiyle kaplanmasında Ortalama pürüzlülük değerleri ile elde edilen optimum parametre değerleri amonyak çözeltisi miktarı için 9,8 mL, döngü sayısı için 37,7 ve karıştırma hızı için 412,4 rpm olarak hesaplanmıştır. Ortalama pürüzlülük yanıtıyla oluşturulan model denkleminde hesaplanan tahmini Ortalama pürüzlülük değeri 179,6 nm olup, hesaplanan optimum deney koşullarında üretilen ZnO ince film numunesinin Ortalama pürüzlülük değerinin 177,8 nm olarak ölçülmesi RMS pürüzlülüğü için oluşturulan modelin başarılı olduğunu göstermektedir.

Çizelge 4.5. RMS Pürüzlülüğü ve Ortalama Pürüzlülük yanıtlarıyla oluşturulan modeller için optimize edilmiş parametre değerleri ile tahmin edilen ve deneysel olarak elde edilen değerler

Yanıtlar	Optimize edilmiş parametre değerleri			Tahmin edilen ve deneysel olarak elde edilen değerler	
	Amonyak çözeltisi miktarı (mL)	Döngü sayısı (cycles)	Karıştırma hızı (rpm)	Tahmini	Deneysel
RMS Pürüzlülüğü (nm)	10.1	37.3	365.2	214.9	213.4
Ortalama Pürüzlülük (nm)	9.8	37.7	412.4	179.6	177.8

4.2. Optimum Koşullarda Üretilen ZnO İnce Filmlerin Yapısal Analiz Sonuçları

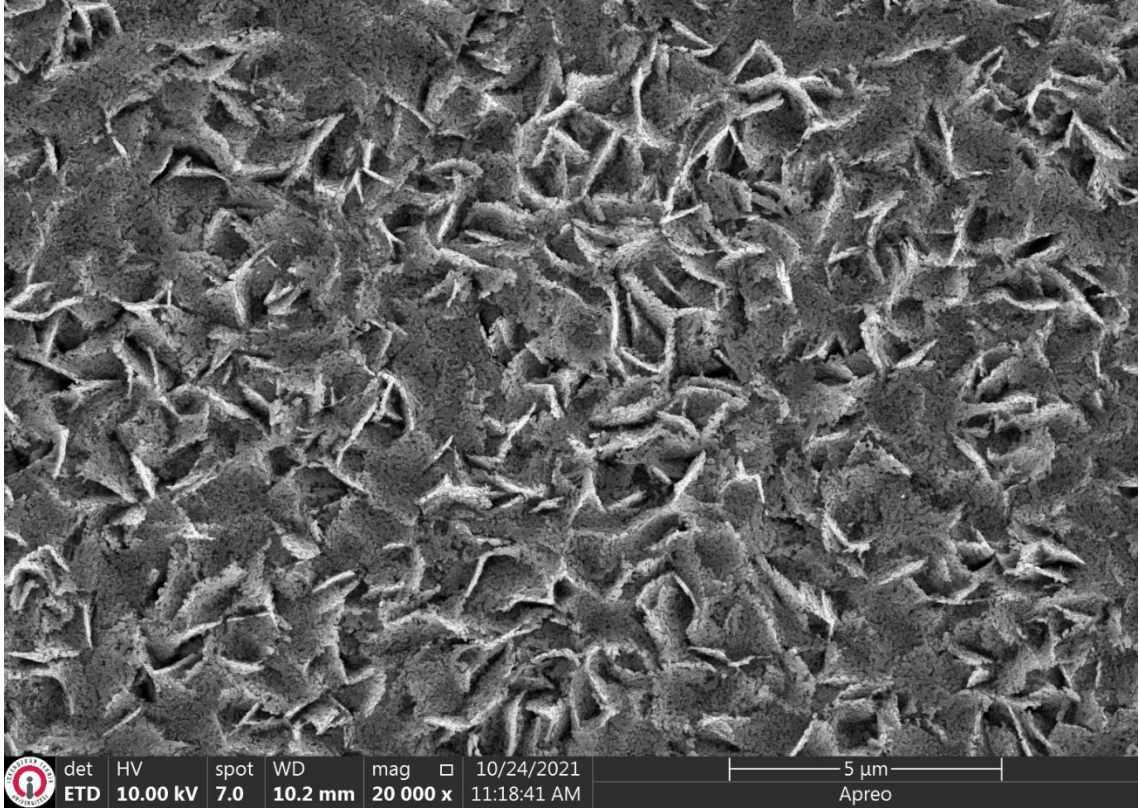
Optimize edilmiş koşullarda SILAR yöntemiyle üretilen ZnO ince film numunesinin X-ışını kırınım deseni Şekil 4.6' da verilmiştir. ZnO yarıiletken ince filmin X-ışını kırınım deseni incelendiğinde 31.74° , 34.43° , 36.22° , 47.53° , 56.56° , 62.85° , 66.30° , 67.95° , 69.05° , 72.60° ve 76.78° açılara karşılık gelen pik düzlemlerinin sırasıyla (100), (002), (101), (102), (110), (103), (200), (112), (201), (004) ve (202) olduğu gözlenmiştir. X-ışını kırınım deseni ZnO yarı iletken ince film XRD verilerinin JCPDS ile uyumlu olduğu göstermiştir. Ayrıca XRD grafiğindeki kırınım desenine bakıldığında sentezlenen maddenin ZnO olduğu ve bileşende farklı yapıların bulunmadığı söylenebilir. Bunun yanında pik yükseklik ve genişliklerinin yapısı üretilen malzemenin kaliteli bir kristallenmeye sahip olduğu hakkında bilgi vermektedir.



Şekil 4.6. Optimize edilmiş koşullarda üretilen ZnO ince film numunesinin X-ışını kırınım deseni

4.3. Optimum Koşullarda Üretilen ZnO İnce Filmlerin Morfolojik Analiz Sonuçları

Genel olarak ince film yapısındaki malzemelerin yüzey morfolojisinin şekli onların kullanım alanlarını belirleyen önemli kriterlerden birisi olabilmektedir. Optimize edilmiş koşullarda SILAR yöntemiyle sentezlenen ZnO yarıiletken ince film numunesinin SEM görüntüsü Şekil 4.7' de gösterilmiştir.

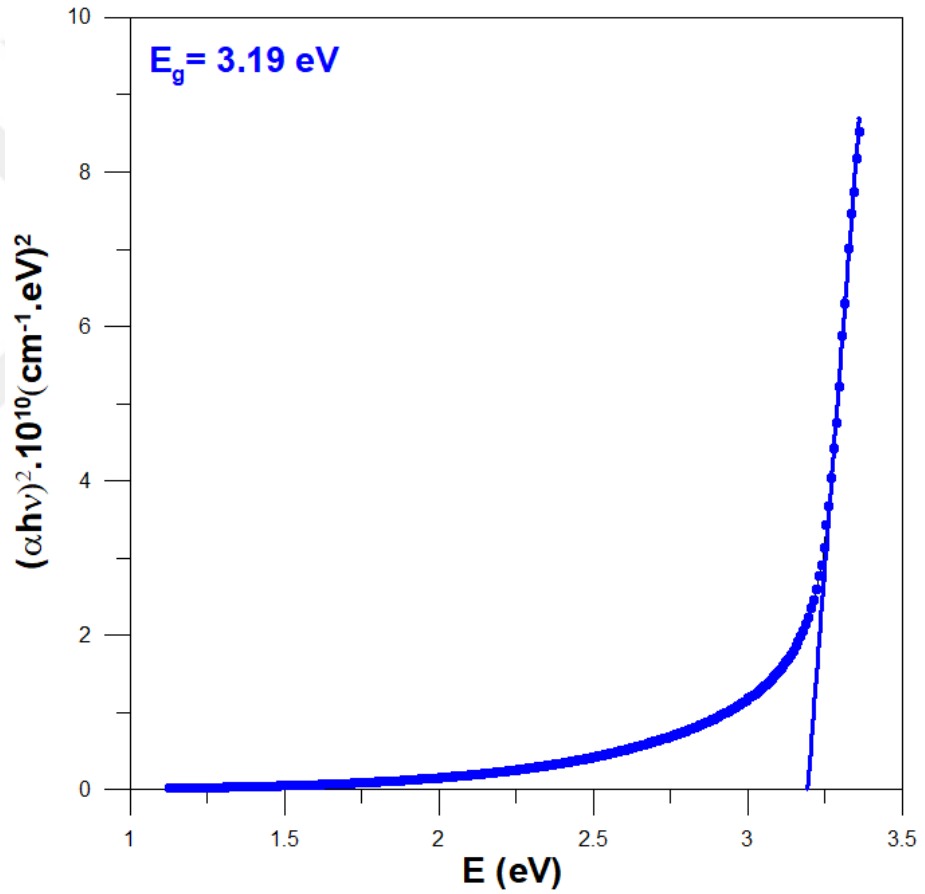


Şekil 4.7. Optimize edilmiş koşullarda üretilen ZnO ince film numunesinin SEM görüntüsü.

Şekil 4.7.' de verilen SEM görüntüsü incelendiğinde ZnO bileşeninin cam destek malzemesi yüzeyine tamamen kaplandığı ve yüzey homojenliğinin yüksek düzeyde olduğu gözlemlenmiştir. Ayrıca ZnO ince film SEM görüntüsünden çatlaksız ve kompakt bir yüzey morfolojisi elde edildiği görülmektedir.

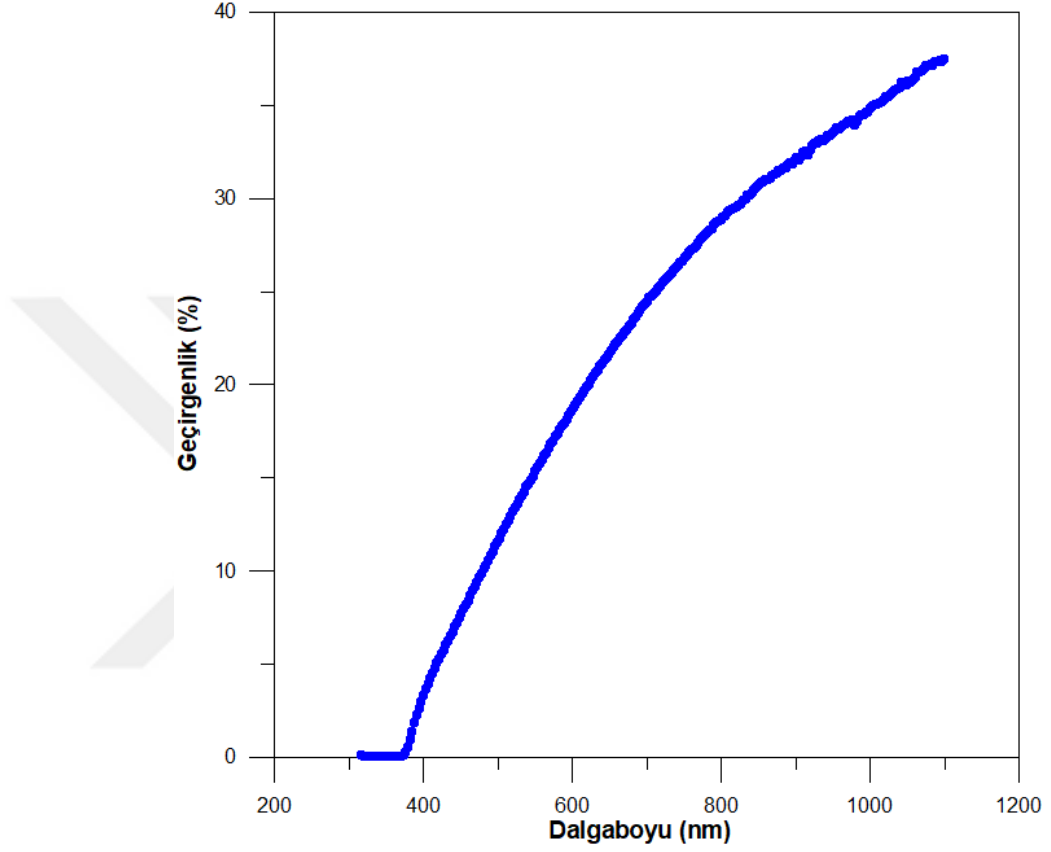
4.4. Optimum Koşullarda Üretilen ZnO İnce Filmlerin Optik Analiz Sonuçları

Optimize edilmiş koşullarda SILAR yöntemiyle üretilen ZnO ince film numunesinin UV-vis spektrofotometre cihazından alınan optik soğurma ve geçirgenlik verileriyle Şekil 4.8.' de gösterilen optik bant spektrumu ve Şekil 4.9.' da verilen optik geçirgenlik spektrumu elde edilmiştir. Optimize edilmiş koşullarda sentezlenen ZnO ince film numunesi için çizilen optik bant spektrumu grafiğinden numune için elde edilen E_g değeri 3,19 eV olarak hesaplanmıştır. Çinko oksit numunesi için elde edilen enerji band aralığı değerinin literatür ile uyumlu olduğu görülmüştür (Radhi Devi ve ark., 2020).



Şekil 4.8. Optimize edilmiş koşullarda üretilen ZnO ince film numunesinin optik bant spektrumu

Optimum sentez koşullarında üretilen ZnO yarıiletken ince filmin Şekil 4.9.' da verilen optik geçirgenlik spektrumu incelendiğinde numunenin 200 nm ile 1200 nm dalgaboyu aralığında tarandığı ve optik geçirgenlik değerinin yaklaşık % 39 olarak hesaplandığı görülmektedir.



Şekil 4.9. Optimize edilmiş koşullarda üretilen ZnO ince film numunesinin optik geçirgenlik spektrumu

5. SONUÇ ve ÖNERİLER

Çalışmamızda SILAR yöntemiyle sentezlenen ZnO yarıiletken ince filmlerin cam destek malzemesi üzerine kaplanmasında etkili olan parametrelerin kemometrik optimizasyonunda RSM ve 3 faktörlü 5 seviyeli CCD metotları kullanılmıştır. RSM modellemesinde çıktı olarak ZnO yarıiletken ince filmlerin RMS pürüzlülüğü (Rq) ve Ortalama pürüzlülük (Ra) değerleri incelenmiştir. Çinko oksit yarıiletken ince filmlerin SILAR metoduyla üretiminde bağımsız değişken olarak belirlenen amonyak çözeltisi miktarı, döngü sayısı ve karıştırma hızı parametreleri için optimum deneysel koşullar hesaplanmıştır. Deneysel tasarımda RMS pürüzlülüğü için verilen deneysel değerler 174,3 nm ile 225,7 nm aralığında değişirken, Ortalama pürüzlülük için verilen deneysel değerler 137,9 nm ile 190,3 nm aralığında ölçülmüştür. ZnO yarıiletken ince filmlerin cam destek malzemesi üzerine kemometrik yaklaşımla optimize edilmesinde kullanılan ikinci dereceden polinom denklemleri ve regresyon katsayıları her bir yanıt değişkeni (RMS pürüzlülüğü ve Ortalama pürüzlülük) için hesaplanmıştır. ZnO yarıiletken ince film numunelerinin Rq ve Ra değerleri için ölçülen ve hesaplanan deneysel değerler ile tahmini değerlerin oldukça yüksek bir uyum içerisinde olduğu görülmüştür. RMS pürüzlülüğü ve Ortalama pürüzlülük polinom denklemleri için R^2 değerleri sırasıyla 0,9371 ve 0,9618 olarak hesaplanmıştır. Verilerin normalliği, artıkların normal olasılık grafiği çizilerek kontrol edilmiştir. RMS pürüzlülüğü ve Ortalama pürüzlülük için gösterilen artıkların normal olasılık grafiği, artıkların düz çizgi üzerine düştüğünü ve hataların normal olarak dağıldığı göstermiştir.

Yanıt değişkenlerinin ikinci dereceden polinom denklemlerinin geçerliliğinin istatistiksel olarak analizi AVOVA ile yapılmıştır. Rq verilerinin ANOVA sonuçlarında model için elde edilen 16,55' lik F değeri RMS pürüzlülüğü için oluşturulan modelin anlamlı olduğunu göstermiştir. 0,05 ten küçük olan A, AB, A^2 , B^2 , C^2 model terimlerinin anlamlı olduğu, modelin uyumsuzluk değerinin ise 0,05 ten büyük olduğu yani anlamlı olmadığı görülmüştür. Ortalama pürüzlülük için elde edilen ikinci dereceden polinom modelinin ANOVA sonuçları model için elde edilen 28' lik F değerinin ortalama pürüzlülük için oluşturulan modelin anlamlı olduğunu göstermiştir. Ayrıca Lack of Fit değerinin 0,05 ten büyük olması model uyumsuzluğunun anlamlı olmadığı göstermiştir.

SILAR yöntemiyle cam destek malzemesi üzerine kaplanan ZnO ince filmlerin Rq ve Ra değerleri ile bağımsız değişkenler (amonyak çözeltisi miktarı, döngü sayısı ve

karıştırma hızı) arasındaki ilişki yanıt yüzey analizi ile incelenmiştir. ZnO ince filmlerin cam destek malzemesi üzerine SILAR yöntemiyle kaplanmasında RMS Pürüzlülüğü değerleri ile elde edilen optimum parametre değerleri amonyak çözeltisi miktarı için 10,1 mL, döngü sayısı için 37,3 ve karıştırma hızı için 365,2 rpm olarak hesaplanmıştır. RMS pürüzlülüğü yanıtıyla oluşturulan model denkleminde hesaplanan tahmini RMS pürüzlülüğü değeri 214,9 nm iken, bulunan optimum deney koşullarında üretilen numunenin RMS pürüzlülüğü değerinin 213,4 nm olarak elde edilmesi RMS pürüzlülüğü için oluşturulan modelin başarısını göstermiştir. Benzer şekilde, ZnO ince filmlerin cam destek malzemesi üzerine SILAR yöntemiyle kaplanmasında Ortalama pürüzlülük değerleri ile elde edilen optimum parametre değerleri amonyak çözeltisi miktarı için 9,8 mL, döngü sayısı için 37,7 ve karıştırma hızı için 412,4 rpm olarak belirlenmiştir. Ortalama pürüzlülük yanıtıyla oluşturulan model denkleminde hesaplanan tahmini ortalama pürüzlülük değeri 179,6 nm iken, hesaplanan optimum deney koşullarında üretilen ZnO ince film numunesinin ortalama pürüzlülük değerinin 177,8 nm olarak ölçülmesi RMS pürüzlülüğü için oluşturulan modelin başarılı tahmin yapabildiğini göstermiştir.

Amonyak çözeltisi miktarı, döngü sayısı ve karıştırma hızı parametrelerinin ZnO ince filmlerin RMS pürüzlülüğü ve ortalama pürüzlülük değerlerine olan etkileri yanıt yüzey grafikleriyle de gösterilmiştir. Amonyak çözeltisi miktarı ile döngü sayısı parametrelerinin ZnO ince filmin RMS pürüzlülüğüne etkisinde amonyak çözeltisi miktarındaki artışın özellikle döngü sayısının düşük olduğu bölgelerde RMS pürüzlülüğü değerlerini önemli derecede etkilemediği, amonyak çözeltisi miktarının daha da artmasıyla eğilimin tersine döndüğü ve ZnO ince film RMS pürüzlülüğü değerinin azaldığı görülmüştür. Ayrıca, amonyak çözeltisi miktarı ile karıştırma hızının ZnO ince filmin RMS pürüzlülüğüne etkisinin de benzer eğilim gösterdiği gözlenmiştir. Döngü sayısındaki artış ile ZnO ince filmin yüzey pürüzlülüğünde artış olduğu, karıştırma hızındaki artışın ise ilk olarak RMS pürüzlülüğünde artışa neden olduğu 400 rpm değeri aşıldığında ise eğilimin tersine döndüğü ve ZnO ince film yüzey pürüzlülüğünde düşüş olduğu görülmüştür. SILAR metoduyla ZnO yarıiletken ince film üretiminde amonyak çözeltisi miktarı, döngü sayısı ve karıştırma hızının ZnO ince filmlerin ortalama pürüzlülüğüne etkilerinin de genel olarak RMS pürüzlülük değerinde elde edilen eğilimlere benzer olduğu görülmüştür.

Optimize edilmiş koşullarda SILAR yöntemiyle üretilen ZnO ince film numunesinin X-ışını kırınım deseni sentezlenen maddenin ZnO olduğu ve bileşende farklı yapıların bulunmadığı göstermiştir. Ayrıca SEM görüntüsünden ZnO bileşenin cam destek malzemesi yüzeyine tamamen kaplandığı, yüzey homojenliğinin yüksek düzeyde olduğu, çatlaksız ve kompakt bir yüzey morfolojisi elde edildiği gözlenmiştir. Optimize edilmiş koşullarda sentezlenen ZnO ince film numunesi için çizilen optik bant spektrumu grafiğinden numunenin enerji band aralığı değeri 3,19 eV olarak hesaplanmıştır.

Sonuç olarak, çinko oksit yarıiletken ince filmler Kemometrik yaklaşımla sentezlenmiş ve karakterize edilmiştir. Çalışmamızda Kemometrik yaklaşımla optimize edilen ZnO ince filmlerin yapısal, optik ve morfolojik özellikleri incelenmiştir. Üretim parametrelerinin optimize edilmesinde 5-seviyeli-3-faktörlü merkezi kompozit dizayn başarıyla kullanılmış ve ZnO yarıiletken malzemenin SILAR metoduyla sentezinde hangi parametrelerin daha etkili olduğu varyans analiziyle belirlenmiştir. Klasik optimizasyon metotlarıyla tespit edilemeyen süreç faktörleri arasındaki etkileşimler RSM yöntemiyle incelenmiştir.

KAYNAKLAR

- Abegunde, O., Akinlabi, E., Oladijo, P., 2020. Developing an empirical relationship for optimizing surface roughness of TiC thin film grown by magnetron sputtering using Taguchi analysis. **Materials Today: Proceedings**, 26 3282-3287.
- Abegunde, O., Akinlabi, E., Oladijo, P., 2021. Process parameters optimization to maximize surface roughness using response surface methodology of TiC thin film grown by radio frequency magnetron sputtering. **Materials Today: Proceedings**, 44, 1221-1226.
- Ashith, V.K., Gowrish, K., Rao, Sahana N. Moger, Smitha, R., 2018. Effect of post-deposition annealing on the properties of ZnO films obtained by high temperature, micro-controller based SILAR deposition. **Ceramics International**, 44, 10669-10676.
- Brereton, G., R., 1990. **Chemometrics Applications of Mathematics and Statistics to Laboratory Systems**. Ellis Horwood Limited, England. 307p.
- Brereton, R.G. 2003. **Chemometrics: Data Analysis for the Laboratory and Chemical Plant**, John Wiley & Sons, Ltd.
- Cornell, J.A., 1990. “**How to apply response surface methodology**”, 2nd Ed., American Society for Quality Control, US.
- Costa, E.L., Soares F.B., Lourenço A.S., Muniz E.C., Cava C.E., 2021. Design experiment (parameters) applied to PEDOT: PSS/AgNW composite doped with EG for transparent conductive films. **Journal of Molecular Liquids** 329, 115516.
- Ghos, B.C., Farhad S.F.U., Patwary Md.A.M., Majumder S., Hossain Md.A., Tanvir N.I., M.A. Rahman, Tanaka T., and Guo O., 2021. Influence of the Substrate, Process Conditions, and Postannealing Temperature on the Properties of ZnO Thin Films Grown by the Successive Ionic Layer Adsorption and Reaction Method. **ACS Omega** 6, 2665-2674.
- Klochko, N.P., Klepikova, K.S., Khrypunova, I.V., Kopach, V.R., Tyukhov, I.I., Petrushenko, S. I., Dukarov, S.V., Sukhov, V.M., Kirichenko, M.V., Khrypunova, A.L., 2022. Solution-processed flexible broadband ZnO photodetector modified by Ag nanoparticles. **Solar Energy** 232, 1-11.
- Lee, J.H. and Park, B.O., 2003. Transparent conducting ZnO:Al, In and Sn thin films deposited by the sol-gel method, **Thin Solid Films**, 426, (2003) 94-99.
- Pawar, S.M., Pawar B.S., Kim J.H., Joo O.S., Lokhande, C.D., 2011. Recent status of chemical bath deposited metal chalcogenide and metal oxide thin films, **Current Applied Physics**, 11, 117-161.
- Radhi, Devi K., Selvan, G., Karunakaran, M., Loyola Poul Raj, I., Ganesh, V., AlFaify S., 2020. Enhanced room temperature ammonia gas sensing properties of strontium doped ZnO thin films by cost-effective SILAR method. **Materials Science in Semiconductor Processing**, 119, 105117.
- Santhamoorthy, A., Srinivasan, P., Krishnakumar, A., Rayappan, J.B.B. and Babu, K.J., 2021. SILAR-deposited nanostructured ZnO thin films: effect of deposition cycles on surface properties. **Bull. Mater. Sci.**, 44:188.
- Sharma, K., 2021. Tuning the morphology of the ZnO nanostructures by seeded-growth method. **Materials Today: Proceedings**, 37, 2971-2973.

- Sun, L., Wanb, S., Yu, Z., Wang, L., 2014. Optimization and modeling of preparation conditions of TiO₂ nanoparticles coated on hollow glass microspheres using response surface methodology, **Sep. Purif. Technol.** 125, 156-162.
- Yücel, E., Güler, N., Yücel, Y., 2104. Optimization of deposition conditions of CdS thin films using response surface methodology, **Journal of Alloys and Compounds**, 589: 207-212.
- Yücel, E., Yücel, Y., Belenli, I., 2012a. Optimization of fabrication conditions of MgB₂/Fe superconducting tapes using response surface methodology, **Journal of Materials Science: Materials in Electronics**, 23, 1284-1292.
- Yücel, E., Yücel, Y., Durak, M., 2016. Process optimization for window material CdS thin films grown by a successive ionic layer adsorption and reaction method using response surface methodology, **Journal of Alloys and Compounds**, 664, 530-537.
- Yücel, E., Yücel, Y., Durak, M., 2017. Optimization of growth parameters for absorber material SnS thin films grown by SILAR method using response surface methodology, **Journal of Materials Science: Materials in Electronics**, 28, 2206-2214.
- Yücel, E., Yücel, Y., Beleli, B., 2015. Optimization of synthesis conditions of PbS thin films grown by chemical bath deposition using response surface methodology, **Journal of Alloys and Compounds** 642: 63-69.
- Yücel, E., Yücel, Y., Beleli, B., 2015b. Process optimization of deposition conditions of PbS thin films grown by successive ionic layer adsorption and reaction (SILAR) method using response surface methodology, **Journal of Crystal Growth** 422: 1-7.
- Yücel, E., Yücel, Y., Gökhan, D., 2015c. Computer assisted optimization of copper sulphide thin film coating parameters on glass substrates, **Applied Surface Science** 351: 904-910.
- Yücel, E., Yücel, Y., 2015. Optimization of zinc sulfide thin film coating process using response surface methodology, **J Mater Sci: Mater Electron** 26:196-203.
- Yücel, Y., 2012b. Optimization of biocatalytic biodiesel production from pomace oil using response surface methodology, **Fuel Processing Technology**, 99, 97-102.
- Yücel, Y., 2012c. Optimization of immobilization conditions of *Thermomyces lanuginosus* lipase on olive pomace powder using response surface methodology, **Biocatalysis and Agricultural Biotechnology**, 1, 39-44.
- Yücel, Y., Yücel, E., Gökhan, D., 2015a. Optimization and modelling of preparation conditions of CuS thin films deposited by successive ionic layer adsorption and reaction (SILAR) method using response surface methodology, **J Mater Sci: Mater Electron** 26:4105-4112.
- Zhang, R., Kerr, L. L., 2007. A simple method for systematically controlling ZnO crystal size and growth orientation, **Journal of Solid State Chemistry**, 180, 988-994.
- Znaidi, L., Illia, G.J.A.A.S., Benyahia, S., Sanchez, C. and Kanaev, A.V., 2003. Oriented ZnO thin films synthesis by sol-gel process for laser application, **Thin Solid Films**