

Epitaksiyel Grafen Nanořerit Ađları

Program Kodu: 3501

Proje No: 112T773

Proje Yürütücüsü:

Yrd. Doç. Dr. Cem ÇELEBİ

Bursiyerler:

Erdi KUŞDEMİR
Dilce ÖZKENDİR

MAYIS 2016

İZMİR

İÇİNDEKİLER DİZİNİ

Sayfa

ÖNSÖZ	2
ŞEKİLLER DİZİNİ	3
ÖZET	4
ABSTRACT	5
1. PROJE ANA METNİ	6
1.1 GİRİŞ	6
1.2 LİTERATÜR ÖZETİ	7
1.3 GEREÇ VE YÖNTEM	11
1.4 BULGULAR	17
1.4.1 Epitaksiyel Grafen Örneklerinin Raman Spektroskopisi Ölçümleri	18
1.4.2 Epitaksiyel Grafen Örneklerinin AFM Ölçümleri	22
1.4.3 Grafen Nanoşerit Ağı Yapılarının Üretimi	23
1.4.4 Grafen Nanoşerit Ağı Tabanlı Aygıt Fabrikasyonu	27
1.4.5 Grafen Nanoşerit Ağı Tabanlı Aygıtların Elektriksel Karakterizasyonu	30
2. SONUÇLAR	32
3. KAYNAKLAR	33

ÖNSÖZ

İki boyutlu balistik taşınım, oda sıcaklığında kuvantum hall etkisi, Klein paradoksu ve majorana fermiyonları gibi birçok olağanüstü fiziksel olgunun ilk kez gözlemlendiği tek katman grafende, bir yasak enerji bandı aralığı bulunmamaktadır. Bu durum grafenin, özellikle mikroelektronik ve optoelektronik alanlarında, transistör veya optik duyarlı malzeme olarak kullanılabilmesini engellemektedir. İki boyutlu grafende yasak enerji bandı aralığı oluşturmak için, grafeni kuvantum noktası veya nanoşerit gibi daha düşük boyutlarda kuvantize olmuş yapılara dönüştürmek gerekmektedir. Bu gibi nanoyapıların fabrikasyonu için e-demeti litografisi ve/veya taramalı tünelleme mikroskobu (STM) litografisi gibi görece zahmetli ve karmaşık nanofabrikasyon teknikleri kullanılmaktadır.

Bu projede, yüksek taşıyıcı yük hareketliliğine sahip tek katman epitaksiyel grafen katmanları üzerine nanoşerit ağı yapısı işlenmiş ve bu yapıların elektronik taşınım özellikleri belirlenmiştir. Bir SiC tabanı üzerinde epitaksiyel grafen büyütme ve kopolimer litografisi tekniklerinin bir arada kullanılmasıyla epitaksiyel grafen nanoşerit ağı (GNA) yapılarının seri ve sistematik üretimi gerçekleştirilmiştir. Proje kapsamında sentezi yapılan epitaksiyel GNA örgüsü üzerine, temiz oda yöntem ve teknikleri kullanılarak Hall aygıtları imal edilmiştir. Bu aygıtlar kullanılarak GNA örneklerinin, elektronik taşınım ve yarıiletken özellikleri açığa çıkartılmıştır.

Toplam 36 aylık bir dönem boyunca gerçekleştirilen bu projedeki bütün deneysel çalışma ve faaliyetler Türkiye Bilimsel ve Teknolojik Araştırma Kurumu (TÜBİTAK) tarafından 112T773 proje numarasıyla desteklenmiştir.

ŞEKİLLER DİZİNİ

Sayfa

Şekil 1. HOPG'den imal edilen grafen nanoşeritler ve elektronik karakteristikleri.....	9
Şekil 2. GNA yapısı ve bu yapıya ait yasak enerji bandı aralığındaki değişim.....	10
Şekil 3. Proje kapsamında kurulan UHV sistemi ve çevre birimleri.....	13
Şekil 4. UHV sistemiyle ulaşılabilen temel basınç düzeyi.....	13
Şekil 5. Silisyum Karbür'ün UHV'de ısıtılmasında kullanılan tavlama düzeneği.....	14
Şekil 6. SiC/SiC istifleme yöntemi ve yüksek sıcaklıkta SiC'nin tavllanması.....	16
Şekil 7. Raman spektrometresi ve AFM ölçüm düzenekleri.....	18
Şekil 8. Tek katman ve çok katman grafen tabakalarının Raman spektroskopisi ölçümü.....	18
Şekil 9. Grafen/grafit katmanlarının optik mikroskop görüntüleri ve Raman ölçümleri.....	20
Şekil 10. Grafen/grafit katman yüzeylerinin Micro-Raman haritalama ölçümleri.....	21
Şekil 11. SiC tabanı ve üzerindeki grafen katmanlarının (tapping mode) AFM ölçümleri.....	22
Şekil 12. Bir veya birkaç katman grafene ait granüler pullu yapıların AFM ölçümleri.....	22
Şekil 13. Blok kopolimer litografisi süreç ve aşamaları.....	26
Şekil 14. GNA tabakasında grafen nanoşeritlerini gösteren SEM mikrograf ölçümleri.....	26
Şekil 15. GNA tabakasında, SiC deşiklerini ve grafen nanoşeritlerini gösteren büyütülmüş SEM mikrograf görüntüsü.....	26
Şekil 16. GNA tabakasına ait AFM topografi ölçümleri.....	27
Şekil 17. GNA tabanlarına uygulanan Hall aygıtı fabrikasyon aşamaları.....	28
Şekil 18. GNA tabanlarına işlenen Hall aygıtlarına ait optik mikroskop görüntüleri.....	29
Şekil 19. GNA örneğinin Hall aygıtındaki şekil ve konumunu gösteren şematik ve optik mikroskop görüntüleri.....	30
Şekil 20. GNA örneklerinin elektronik taşınım deneylerinin yapılmasında kullanılan rack ünitesi ve kapalı devre He kuru krayostat birimi.....	31
Şekil 21. GNA örneğine ait farklı V_g kapılama voltajları için elde edilen $V_{sd} - I_{sd}$ karakteristiği ve farklı V_{sd} sürme voltajları için alınan (b) $V_g - I_{sd}$ ölçüm verileri.....	31

ÖZET

Gerçekleştirilen projenin amacı, bir yasak enerji bandı aralı bulunmayan tek katman grafenin, alt örgü simetrisinin kırılarak, yarıiletken özellikler sergileyen bir malzeme haline getirilmesidir. Bu kapsamda, proje dönemi boyunca tek katmanlı epitaksiyel grafen tabakaları 1400 - 1500 °C gibi yüksek sıcaklıklarda ve ultra yüksek vakum koşulları altında SiC tabanları üzerinde büyütülmesi sağlanmıştır. Üretimi yapılan bütün epitaksiyel grafen tabanlarının yapısal karakteristikleri, Raman spektroskopisi ve Atomik Kuvvet Mikroskobu ölçümleriyle saptanmıştır. Özellikle dünyada son yıllarda geliştirilen grafen nanoşerit ağı (GNA) yapılarının, büyütme işlemi tamamlanan yüksek taşıyıcı hareketli tek katman epitaksiyel grafenden üretimi yapılmıştır. Bir SiC tabanı üzerinde epitaksiyel grafen büyütme ve kopolimer litografisi tekniklerinin bir arada kullanılmasıyla bu yapıların seri ve sistematik üretimi gerçekleştirilmiştir. Proje kapsamında sentezi yapılan epitaksiyel GNA örgüsü üzerine, Hall aygıtları imal edilmiş ve bu aygıtlar kullanılarak GNA örneklerinin, 5K gibi krayojen sıcaklıklarda yarıiletken karakteristikleri belirlenmiştir.

Anahtar Kelimeler: Yarıiletken, Epitaksiyel Grafen, Nanoşerit Ağı, Elektronik Taşınım

ABSTRACT

The aim of this project is to convert single layer epitaxial graphene which lacks of a forbidden energy band gap into such a material revealing semiconductor characteristics. A forbidden energy band gap is introduced to epitaxial graphene by breaking its sublattice symmetry. During the project period, the epitaxial graphene layers were grown on SiC substrates at high temperatures like 1400 - 1500 °C and under ultra high vacuum conditions. The structural characteristics of the grown epitaxial graphene layers were determined by using Raman spectroscopy and Atomic Force Microscopy measurements. Well ordered graphene nanoribbon mesh (GNM) structures, composed of a network of physically interconnected nanoribbons with the widths varying within a few tens of nanometers, were produced by on the grown single layer epitaxial graphene templates. The GNM structures were fabricated systematically on graphene layers by using epitaxial growth and block copolymer lithography methods. The GNM samples were shaped into Hall bar device geometries by using clean room techniques. And the electrical characteristics of those GNM based Hall device samples were measured under cryogenic temperatures like 5K. The semiconducting characteristics of the GNM samples were revealed by using those low temperature electrical transport measurements.

Keywords: Semiconductor, Epitaxial Graphene, Nanoribbon Mesh, Electronic Transport

1. PROJE ANA METNİ

1.1 GİRİŞ

İki boyutlu balistik taşınım, oda sıcaklığında kuvantum hall etkisi, Klein paradoksu ve majorana fermiyonları gibi birçok olağanüstü fiziksel olgunun ilk kez gözlemlendiği tek katman grafende, bir yasak enerji bandı aralığı bulunmamaktadır. Bu durum grafenin, özellikle mikroelektronik ve optoelektronik alanlarında, transistör veya optik duyarlı malzeme olarak kullanılabilmesini engellemektedir. İki boyutlu grafende yasak enerji bandı aralığı oluşturmak için, grafeni kuvantum noktası veya nanoşerit gibi daha düşük boyutlarda kuvantize olmuş yapılara dönüştürmek gerekmektedir. Bu tip nanoyapıların fabrikasyonu için e-demeti litografisi ve/veya taramalı tünelleme mikroskobu (STM) litografisi gibi görece zahmetli ve karmaşık nanofabrikasyon teknikleri kullanılmaktadır.

Tek katman grafen tabakası üzerine periyodik deşiklerin açılmasıyla, birbirine fiziksel olarak bağlı ve genişlikleri bir kaç nanometre ile onlarca nanometre arasındaki nanoşeritlerden oluşan düzenli bir grafen nanoşerit ağı (GNA) yapısı oluşturulabilmektedir. Grafen anti-nokta örgüsü olarak da bilinen bu GNA yapılarının, blok kopolimer litografisi, nanoimprint litografisi gibi basit tekniklerle grafitten (HOPG) ayrıştırılmış bir grafen parçası üzerine işlenebildiği gösterilmiştir. Son yıllarda yapılan kuramsal çalışmalar, bir grafen matrisi üzerinde oluşturulan periyodik deşiklerin, tek katman grafende bir yasak enerji bandı aralığını ortaya çıkarttığını ve bu band aralığının örgüyü meydana getiren deşiklerin periyodu ve/veya nanoşeritlerin genişliğinin değiştirilmesi ile modüle edilebileceğini göstermektedir. Bu kapsamda, GNA örgülü yapılarda deşik periyodu veya nanoşerit genişliğinin değiştirilebilir olması, yarıiletken bilimi ve teknolojisinin büyük ilgisini çekebilecek, özellikle band aralığı mühendisliğine dayalı birçok fırsatı sunması beklenmektedir.

HOPG`den ayrıştırılmış grafenle kıyaslandığında, daha geniş boyutlarda ve seri olarak büyütülebilen, yaklaşık $1,5 \times 10^5 \text{ cm}^2/\text{V.s}$ gibi yüksek elektron hareketliliğine ulaşabilen epitaksiyel grafenden GNA yapıları henüz üretilmemiştir. Kuramsal hesaplarla ortaya konmuş olmasına rağmen, yarıiletken GNA`ların band aralığı değerinin, GNA yapısal parametrelerinin değiştirilmesiyle modüle edilip edilmeyeceği konusunda doğrudan ölçümlere dayalı deneysel çalışmalar bulunmamaktadır. Proje kapsamında karakterizasyonları yapılacak GNA örnekleri, bir silikon karbür (SiC) tabanı üzerindeki yüksek elektron hareketli epitaksiyel grafenden üretilecektir. Deşik periyodu ve nanoşerit genişliği gibi GNA örgü yapısına ait parametreler, dünyada yeni uygulanmaya başlanmış blok kopolimer litografisi yöntemi ile yaklaşık 5 nm`lik bir hassasiyetle belirlenebilecektir. Bu yöntem ile sentezlenecek faklı nanoşerit

genişliklerindeki ve deşik periyodundaki GNA örneklerinden, Hall aygıtları üretilerek, bu aygıtların krayojen sıcaklıklardan oda sıcaklığına kadar (10mK – 300K) geniş bir aralıkta elektriksel karakterizasyonları gerçekleştirilecektir. Epitaksiyel GNA aygıtlarından elde edilecek elektronik taşınım ölçüm sonuçları, GNA örgü parametrelerine bağımlı, yük hareketliliğindeki ve taşıyıcı yoğunluğundaki değişimler konusunda önemli bilgiler sağlayacaktır. Düşük sıcaklıklarda yapılacak ve kapı voltajına bağımlı diferansiyel kondüktans ölçümleri yardımıyla GNA örneklerinin yasak enerji bandı büyüklüğü ile ilgili veriler toplanacaktır.

1.2 LİTERATÜR ÖZETİ

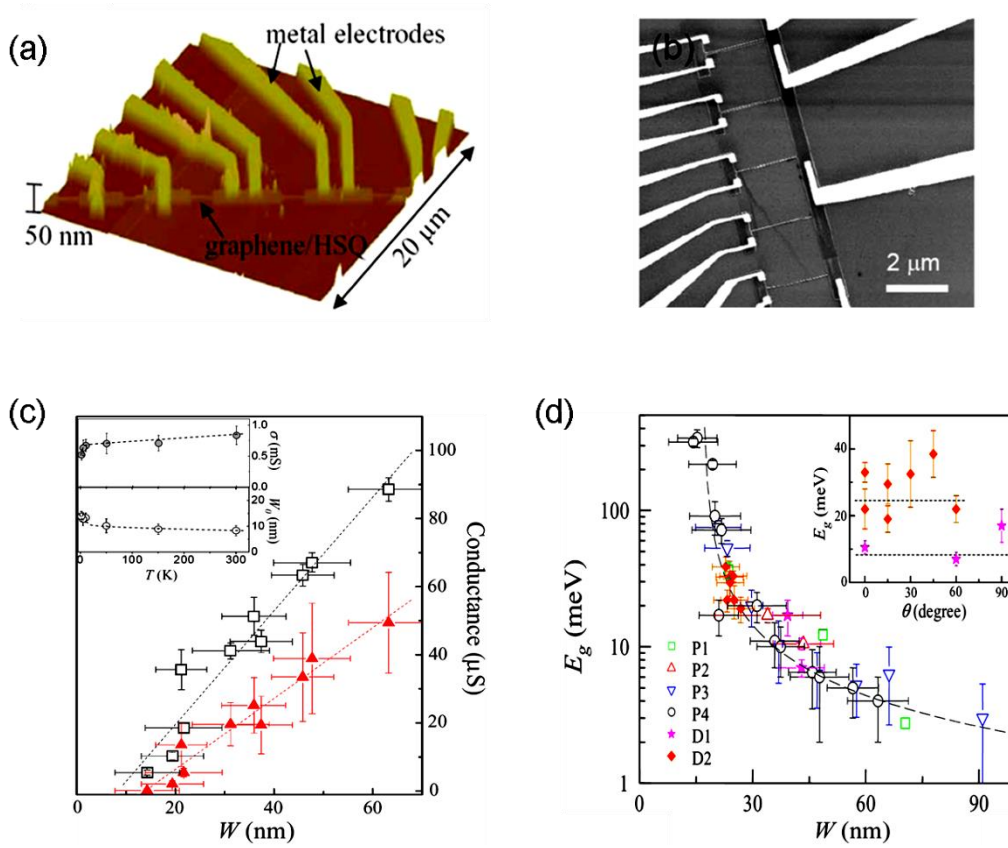
Grafitten üretilen 1-boyutlu karbon nanotüpler ve 0-boyutlu karbon nanotoplar üzerinde yapılan çalışmalar grafit katmanlarının 2-boyutlu ve serbest olarak bulunamayacağını öngörmekteydi. Bunun aksine, grafiti oluşturan grafen katmanlarının, HOPG'den mekanik ayrıştırma metodu olarak da bilinen oldukça basit bir yöntemle ayrıştırılabileceği ve elde edilen bu katmanların SiO₂ gibi yalıtkan tabanlara aktarılabileceği gösterilmiştir [1]. Elde edilen tek atom kalınlığındaki (~1Å) grafen katmanının, kimyasal olarak çok kararlı kovalent bağlardan meydana gelen C-tabanlı altıgen bir örgü oluşturduğu ve bu yapının yaklaşık 10⁸ A/cm² seviyesinde akım taşıyabildiği belirlenmiştir. Elektronik taşınım ölçümlerden alınan sonuçlar, grafende yük taşıyıcı dalga fonksiyonlarının tek katmana sıkışarak çevreyle etkileşmeden iletilebildiğini göstermektedir. Oda sıcaklığında Kuantum Hall etkisinin de [2] deneysel olarak ortaya konmasından sonra, grafen üzerine elde edilen bu bulgular 2010 yılı Nobel ödülüne layık görülmüştür.

Grafenle yapılan ilk deneylerde, elektrik alanı uygulanarak taşıyıcı yoğunluğunun ve hatta türünün kolayca değiştirilebildiği ve 10¹³ cm⁻² düzeylerinde elektron yada boşluk yoğunluğu elde edilebildiği gösterilmiştir [1, 3]. Daha sonraki deneylerde, cyclotron kütlelerinin taşıyıcı yoğunluğuyla deşiminden, grafende elektronların doğrusal bir enerji-momentum dağılımı (dispersion) gösterdiği bulunmuştur. Bu da elektronların grafende Dirac fermiyonları olarak da adlandırılan, kütsüz relativistik parçacıklar gibi davranarak sabit hızda hareket ettiklerini ortaya koymaktadır [4, 5]. Grafende, düşük enerjilerde iletkenlik ve değerlik bantları birbirlerine tepe noktalarında dokunan (Dirac noktası) konilerden oluşmakta, bu noktada durum yoğunluğu sıfıra inerken taşıyıcı yükü de nötr olmaktadır. Bu fiziksel özelliklerinden dolayı tek katman izole bir grafende yasak enerji bandı aralığı bulunmamaktadır.

Diğer taraftan, aç-çözünürlü fotoemisyon spektroskopisi (ARPES) ölçümleri, bir SiC tabanı *Si-yüzünde* büyütülen tek katman grafen tabakasında, değeri yaklaşık 260 meV olan bir enerji

bandı aralığı oluştuğunu göstermektedir [6]. Birbirinden farklı örgü sabitlerine sahip SiC tabanı ve grafen arasındaki çok yüksek gerilme (strain), grafen katmanında Dirac noktasını bozmakta, alt-örgü simetrisinin kırılmasına ve iletkenlik ve değerlik bandlarının birbirinden uzaklaşmasına neden olmaktadır. Grafenle alttabanın bu denli güçlü etkileşmesinin diğer bir sonucu olarak, Si-yüzündeki grafen katmanı, SiC tabanı tarafından yoğun biçimde katkılanmaktadır. Bu nedenle örneklerdeki taşıyıcı yoğunlu 10 ile 100 kat düzeyinde artmakta ve bu yüzeydeki grafen katmanının oda sıcaklığındaki yük hareketlilik değeri ancak $\sim 5 \times 10^3 \text{ cm}^2/\text{V.s}$ gibi görece düşük seviyelerde bulunmaktadır [7, 8]. Öte yandan, SiC'nin C-yüzeyinde grafen tabakası alttabana göre yaklaşık 30° lik bir düzlemsel dönme ile büyümektedir [9]. Bunun bir sonucu olarak, bu yüzeydeki grafen katmanı alttabandan bağlaşımını kesmekte, böylece alttaban ve grafen arasındaki gerilme büyük oranda gevşemektedir. Gerilme gevşemesinin (strain relaxation) sayesinde, SiC tabanı C-yüzeyinde büyüyen katmanlar, bağımsız bir grafen gibi kendine has fiziksel özellikler sergilemektedir [10]. SiC tabanı C-yüzeyindeki grafende, diğer yüzeyin aksine bir yasak enerji bandı aralığı oluşmamakta, fakat oda sıcaklığı taşıyıcı hareketlilik değeri yaklaşık $1,5 \times 10^5 \text{ cm}^2/\text{V.s}$ gibi yüksek değerlere çıkabilmektedir.

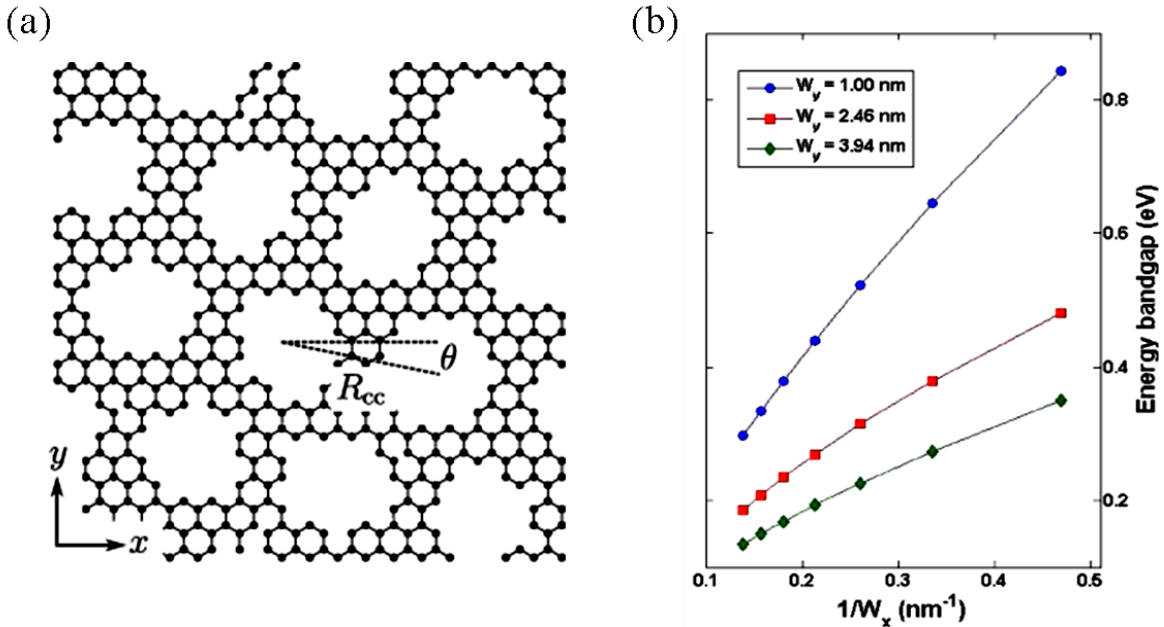
Nanoşerit haline getirilmiş izole tek katman grafende, kuvantum boyut etkisiyle açığa çıkan yasak enerji bandı aralığı TB ve DFT kuramsal hesaplarıyla ortaya konmuştur [11, 12]. Daha sonraları, düşük sıcaklıklarda gerçekleştirilen kondüktans ölçümleri, grafen nanoşeritlerdeki band aralığı değerinin, nanoşerit genişliği ve/veya kısmen de olsa grafen kristal oryantasyonunun bir fonksiyonu olarak modüle edilebileceğini deneysel olarak göstermiştir [13]. Nanoşeritlerin yasak enerji bandı aralığı, grafen örgü sabiti (a) ve en-yakın komşuluk sıçrama parametresi (γ) ile doğru, nanoşerit genişliği (W) ile ters orantılı olarak $E_g = \pi a |\gamma| / W \sqrt{3}$ biçiminde değişmektedir [14]. Şekil-1`de HOPG`den mekanik ayrıştırılmış tek katman grafenden litografik yöntemler kullanılarak farklı genişliklerde üretilen bir dizi nanoşeritten oluşmuş aygıtlar ve bu örneklerde ölçülen nanoşerit genişliğine bağımlı kondüktans ve yasak enerji bandı aralığı değerlerinin değişimi gösterilmektedir. Bu ölçümler, nanoşeritlerde band aralığı değerinin, kristal oryantasyonundan çok, nanoşerit genişliği ile sistematik olarak modüle edilebileceğini ortaya koymaktadır.



Şekil 1. (a) ve (b) e-demeti litografisi ile HOPG`den ayrıştırılmış grafenden yapılan nanoşerit tabanlı aygıtlar. Bu örnekler için belirlenen, nanoşerit genişliği (W) ve oryantasyonuna (θ) bağımlı, (c) kondüktans ve (d) bu kondüktans değerlerinden saptanmış yasak enerji band aralığı değerlerinin değişimi [13].

Hâlihazırda uygulanan konvansiyonel litografi teknikleriyle üretilen grafen nanoşeritlerin kenar durumlarının yapısı, atomik düzeyde kesin olarak kontrol edilememektedir. Bu nedenle bu gibi yöntemlerle elde edilen örneklerin kenarları büyük oranda pürüzlü ve düzensiz olabilmektedir. Öyle ki, kenar durumları düzensiz ve geometrileri iyi tanımlanmamış nanoşeritler üzerine yapılan kuramsal hesaplar ve deneyler, nanoşeritte Anderson lokalizasyonu [15], Coulomb blockade ve Fabry-Perot davranışı [16] gibi bir dizi ilginç etkilere yol açtığını göstermektedir. Düzensiz biçimde sıralanmış ve istemsiz katılanmış nanoşerit kenar atomlarından saçılan yük taşıyıcıları, nanoşeridin kondüktansını önemli ölçüde düşürebilmekte ve enerji bandı aralığı ölçümlerinde kritik bir rol oynamaktadır. Bu nedenle nanoşeridin, sadece kuvantum boyut etkilerine dayalı, kendisine has elektronik yapısını koruyabilmesi için, nanoşerit kenar durumlarının olabildiğince düzgün ve pürüzsüz olarak üretilmesi gerekmektedir. Son zamanlarda yapılan bir çalışmayla, yüzeyi basamak halde olacak biçimde aşındırılmış bir SiC tabanı üzerinde büyütülen bir epitaksiyel grafen nanoşeridin kenarlarının, diğer yöntemlerle üretilen nanoşeritlerdekine göre çok daha düzenli ve pürüzsüz olduğu gösterilmiştir [17].

Yakın zamanda yapılan deneysel alıřmalar, GNA`ların konvansiyonel litografi yntemleri de dahil olmak zere bir dizi farklı teknikle retilebileceđini ortaya koymuřtur. Dnyada sadece birkaç grup tarafından, blok kopolimer, nanokre ve nanoimprint gibi farklı litografi yntemleri kullanarak, sadece HOPG`den elde edilen bir veya birkaç katman grafen parası zerine, geniřlikleri $W < 10$ nm olan nanořeritlerden meydana gelmiř GNA rglerinin retilabileceđi gsterilmiřtir [18, 19]. Bu nanoađ yapılarının, kendisini oluřturan nanořeritlerden dolayı, bir yasak enerji bandı aralıđına sahip olması gerektiđi, yine TB ve DFT gibi kuramsal hesaplarla ortaya konmaktadır [20, 21]. Yakın bir zamanda, mekanik ayırılmıř grafen tabanlı bir GNA zerine yapılan alan etkili transistrn tek bir nanořeritten ibaret aygıtlarla kıyaslandığıında 100 kat daha fazla akım yođunluđuna dayanabildiđi ve 10^4 dzeyinde ama/kapama oranlarına ulařabildiđi bulunmuřtur.



řekil 2. (a) R_{cc} deđik periyoduna sahip bir GNA yapısı ve (b) nanořerit geniřliđinin bir fonksiyonu olarak hesaplanan GNA yasak enerji bandı aralıđındaki deđiřim [20, 22].

te yandan, bađımsız nanořeritlere uygulandıđı gibi [13], farklı nanořerit geniřliklerine sahip GNA`lar iin, enerji bandı aralıđının belirlenmesine ynelik deneysel alıřmalara literatrde rastlanmamaktadır. Kuramsal olarak hesaplanan ve nanořerit geniřliđinin bir fonksiyonu biiminde deđiřen GNA`lara ait yasak enerji bandı aralıđı deđeri řekil–2`de sunulmuřtur. Proje kapsamında yapılacak dřk sıcaklıkta kondktans lm deneylelerinden elde edilecek band aralıđı verilerini, řekil–2(b)`de gsterilen hesaplanmıř deđerlerle karřılařtırmak ok ilgin olacaktır. Geniřlikleri 10 nm altında nanořeritlerden oluřan ve btnyle yarıiletken zellikler gstermesi beklenen GNA yapıları, elektronik endstrisinin talep edebileceđi biimde seri

olarak üretilememektedir. Bu sorunun da epitaksiyel grafen büyütme yöntemi ile aşılabacağı planlanmaktadır. Diğer taraftan, özellikle bu boyutlardaki nanoşeritlerden oluşmuş GNA yapılarının, nanoşerit genişliği ve deşik periyoduna bağımlı taşıyıcı hareketliliği, taşıyıcı yük yoğunluğu gibi elektronik taşıyım parametreleri henüz belirlenmemiştir.

1.3 GEREÇ VE YÖNTEM

Proje kapsamında tamamlanan çalışmalar ve izlenen yöntemler aşağıdaki gibi sıralanmıştır;

- Epitaksiyel Grafen Büyütme Düzeneği Kurulmuştur
- Epitaksiyel Grafen Örnekleri Üretilmiştir
- Grafenin Yapısal Karakterizasyonları Yapılmıştır
- GNA Örneklerinin Üretilmiştir
- GNA tabanlı Aygıt Fabrikasyonu ve Aşamaları Tamamlanmıştır
- Aygıtların Elektronik Taşıyım Ölçümleri Yapılmıştır

Epitaksiyel grafenin büyütülmesinde kullanılan ultra yüksek vakum (UHV) sistemi, çevre birimleri ve SiC tavlama düzeneği için gerekli malzemelerin satın alma işlemleri gerçekleştirilmiş, aşağıda listesi verilen malzemeler teslim alınmış, kurulum işlemleri gerçekleştirilmiş ve testleri tamamlanmıştır.

Proje kapsamında satın alınan malzemeler ve bunların teknik özellikleri aşağıda listelenmiştir:

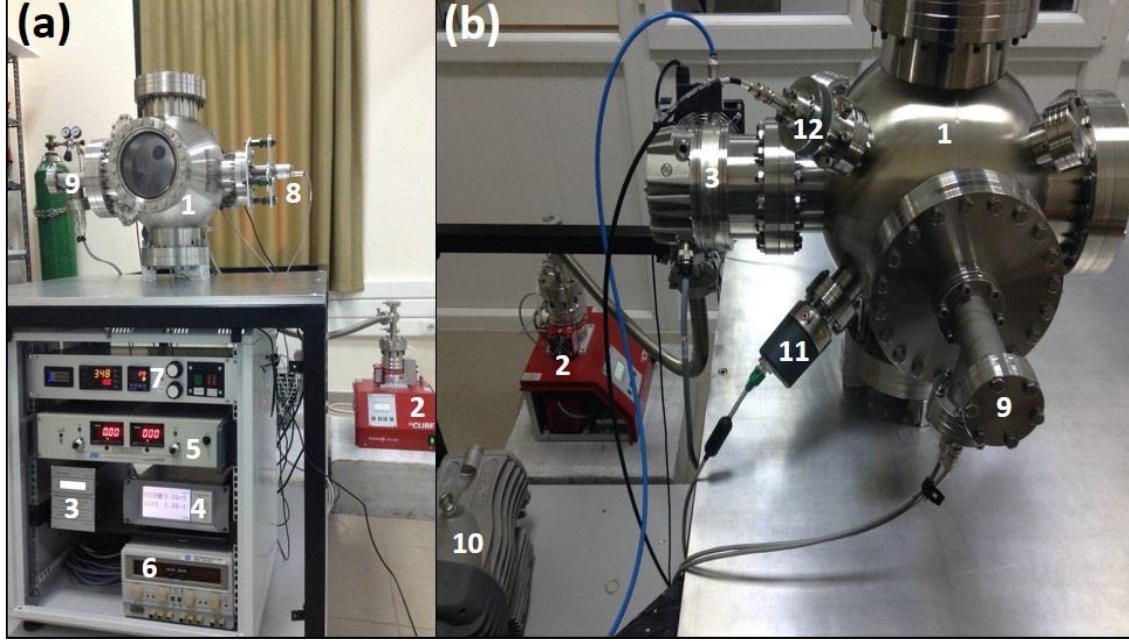
- Mekanik Scroll pompa ve kontrol cihazı (Edwards nXDS 6i – erişebildiği en düşük basınç düzeyi 2×10^{-2} mbar): Satın alımı gerçekleştirildi ve teslim alındı.
- Kombine pompa ve kontrol cihazı (Pfeiffer high-cube eco 80 - 67 l/s N₂ pompalama hızı, limit basınç $< 1 \times 10^{-7}$ mbar): Satın alımı gerçekleştirildi ve teslim alındı.
- Turbo moleküler pompa ve kontrol cihazı (Agilent Turbo-V 301 Navigator - 280 l/s N₂ pompalama hızı, limit basınç $< 5 \times 10^{-10}$ mbar): Satın alımı gerçekleştirildi ve teslim alındı.
- Vakum ölçer (Varian FRG-700 – 5×10^{-9} mbar'dan atmosfer basıncına kadar ölçüm aralığı): Satın alımı gerçekleştirildi ve teslim alındı.
- Vakum ölçer (Varian IMG-300 - 1×10^{-3} mbar dan 1×10^{-11} mbar'a kadar ölçüm aralığı): Satın alımı gerçekleştirildi ve teslim alındı.

- Vakum ölçer kontrol ünitesi (Agilent XGS-600 - 12 üniteye kadar çeşitli vakum ölçer tiplerini aynı anda çalıştırmak mümkündür): Satın alımı gerçekleştirildi ve teslim alındı.
- Pirometre (Lumasense IGA210-L - 350°C den 1800°C'ye kadar ölçüm aralığı): Satın alımı gerçekleştirildi ve teslim alındı.
- Vakum çemberi (Kurt J. Lesker UHV küresel vakum çemberi - 12" çap, toplam 11 port): Satın alımı gerçekleştirildi ve teslim alındı.
- Viewportlar, flanjlara, feedthroughlar, gasketler vs. gibi vakum çemberi aksesuar ve parçaları (Kurt J. Lesker): Satın alımı gerçekleştirildi ve teslim alındı.
- SiC tavlama düzeneğinin kurulumu için gerekli refrakter malzemeler: Satın alımı gerçekleştirildi ve teslim alındı.
- Fırınlama "Bake-out" için ısıtma bandı, sıcaklık kontrolcülerini, termokupl vs. : Satın alımı gerçekleştirildi ve teslim alındı.
- 4H-SiC ve 6H-SiC politip SiC tek kristal yarıiletken tabanları: Satın alımı gerçekleştirildi ve teslim alındı.
- DC güç kaynağı (Lambda Countant - 0-120V; 0-2.5A değerleri arasında ayarlanabilir DC çıkış): Sisteme eklenmiştir.
- DC güç kaynağı (GW Instek GPC-3030D - 0-30V; 0-3A ayarlanabilir 2 çıkış ve 5V;3A sabit tek çıkış): Sisteme eklenmiştir.

Satın alımları tamamlanan ve laboratuvarın bünyesinde bulunan teçhizat, aksesuarlar ve vakum sarf malzemeleri bir araya getirilerek tarafımızca tasarlanan UHV çemberinin kurulumu Şekil-3'de görüldüğü gibi tamamlanmıştır. UHV sistemi bir vakum çemberi ve etrafındaki, vakum ölçerler, pompalar, optik pirometre ve viewport gibi çeşitli çevre birimlerinden oluşmaktadır. Turbo moleküler pompası ve vakum ölçerler vakum odasının uygun boyuttaki girişlerine, kombine pompa ise turbo moleküler pompasına seri olarak bağlanmıştır. Vakum sisteminin ve çevre birimlerinin kurulumu tamamlandıktan sonra pompalar çalıştırılmış ve testleri yapılmıştır.

İlk olarak, 67 lt/sn.'lık bir turbo moleküler pompa ve diyafram pompasından oluşan kombine pompa çalıştırılmış ve vakum çemberinin basıncı yaklaşık 1×10^{-2} mbar mertebesine ulaştığında TV-301 turbo moleküler pompası tam güçte çalıştırılmıştır. Bu süreç yaklaşık olarak 15 dakikada tamamlanmış olup, vakum çemberinin basınç düzeyi belirli aralıklarla Varian FRG-700 Cold cathode vakum ölçer ile ölçülmüştür. Turbo moleküler pompası, çalıştırdıktan 3 dk. sonra, 963Hz'lik tam devir düzeyine ulaşmış ve bu değerinde sabit kalmıştır. Bu 3 dk.'lık süreç ardından cold cathode vakum ölçer ile çemberin basıncı yaklaşık olarak 5×10^{-6} mbar olarak ölçülmüş ve çember bu basınç düzeyindeyken Varian IMG-300 vakum ölçer

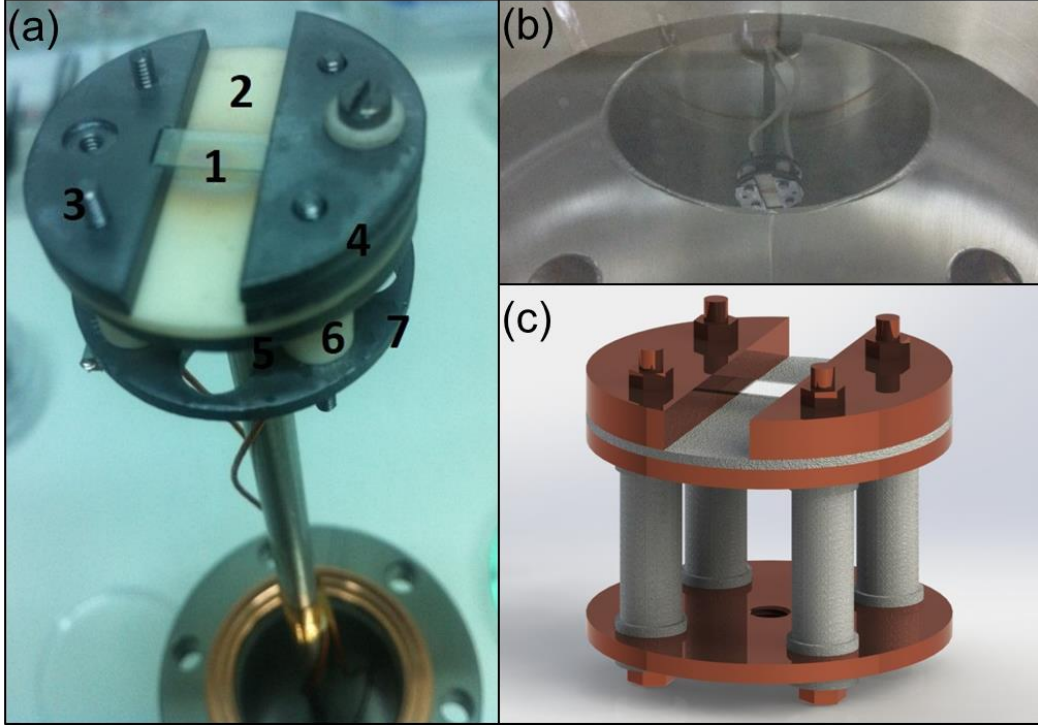
devreye alınarak vakum seviyesi ölçüm işlemi bu vakum ölçer üzerinden devam edilmiştir. Turbo moleküler pompası, vakum çemberini; fırınlama (bake-out) işlemini gerçekleştirmeden yaklaşık 24 saat içerisinde yaklaşık 1×10^{-9} mbar vakum seviyesine kadar indirebilmiştir.



Şekil 3. (a) (b) Proje kapsamında kurulumu tamamlanan UHV sisteminin ve kontrol ünitesinin son hali. 1- UHV çemberi 2- Kombine (turbo moleküler+diyafram) pompa 3- Turbo moleküler pompa ve kontrol ünitesi 4- Vakum ölçer kontrol ünitesi 5- DC güç kaynağı (Lambda Countant) 6- DC güç kaynağı (GW Instek) 7- Fırınlama sistemi ve sıcaklık kontrol paneli 8- Optik pirometre 9- SiC tavlama düzeneğinin monte edildiği feedthrough Tee probu 10- Scroll pompa 11- Cold cathode vakum ölçer (Varian FRG-700) 12- UHV vakum ölçer (Varian IMG-300).



Şekil 4. Fırınlama işlemi tamamlandıktan 24 saat sonrasında Varian IMG-300 (şekilde IMG1 olarak kodlu) vakum ölçer ile ölçülen çember basınç değeri. 5×10^{-9} mbar basınç seviyesinin altındaki değerler Varian FRG-700 Cold Cathode (şekilde AUX1 kodlu) vakum ölçerin çalışma aralığı dışında kalmaktadır. Bu nedenle kontrolcü Varian FRG-700 için doğru bir ölçüm sonucu göstermemektedir.



Şekil 5. (a) SiC tavlama düzeneği 1- SiC taban 2- Alümina seramik plaka 3- Ta vidalar ve somunlar 4- Ta taban sıkıştırma plakaları 5- Ta üst plaka 6- Alümina seramik boncuklar 7- Ta alt plaka. (b) SiC tavlama düzeneğinin vakum sistemi içindeki görüntüsü. (c) SiC tavlama düzeneğinin üç boyutlu modelleme programından alınan tasarım aşamasındaki görüntüsü.

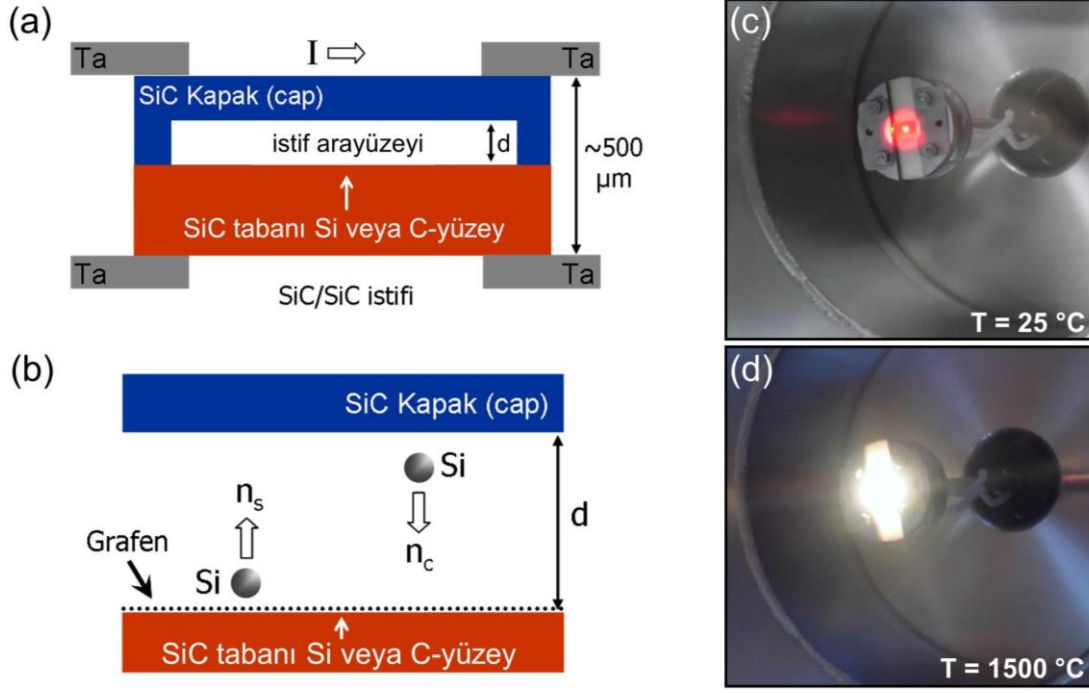
Vakum sisteminin fırınlanma işlemi için bir ısıtma bandı vakum çemberi etrafında homojen ısı dağılımı sağlayacak şekilde sarılmıştır. Çember üzerinde ısı homojenliği sağlamak için çemberin etrafı alüminyum folyo ile kaplanmıştır. Fırınlanma işlemi esnasında çemberin sıcaklığı, çemberin üzerine monte edilmiş olan K-tipi bir termokupl aracılığı ile ölçülmüştür. Isıtma bandı yardımıyla, çember sıcaklığı kontrollü olarak 150°C'ye çıkartılmış ve çember 24 saat boyunca bu sıcaklıkta sabit tutulmuş ve çember sıcaklığı yine kontrollü bir şekilde oda sıcaklığına indirilmiştir. Tüm bu fırınlanma işlemi toplamda 48 saat sürmektedir. Fırınlanma sürecinin ardından sistem, 24 saat boyunca turbo moleküler pompası tam güçte açık bırakılmış ve bu sürenin ardından Şekil-4'te görülebileceği gibi vakum ölçerden yaklaşık 2×10^{-10} mbar basınç değeri ölçülmüştür. Vakum testlerinin sonunda yapılan Helyum kaçak testi ile ulaşılan vakum seviyesi veya üzerinde herhangi bir kaçak olmadığı saptanmıştır.

Proje kapsamında, katkılanmış SiC tabanlarının üzerinden doğru akım (DC) geçirilerek bu tabanların 1400 - 1600°C'ye sıcaklığa kadar çıkartılması ve bu tabanlar üzerinde epitaksiyel grafen katmanının büyütülmesi hedeflenmiştir. Bunun için, vakum ortamına uyumlu ve çok yüksek sıcaklıklara dayanabilen, tamamı refrakter malzemelerden oluşan bir SiC tavlama

düzeneği tasarlanmıştır. Gerek iletkenlik değerlerinden dolayı gerekse UHV sistemlerinde kullanmaya uygun olmalarından dolayı tavlama düzeneği için sadece yüksek saflıkta tantalum (Ta) ve alümina seramik (Al_2O_3) malzemeler kullanılmıştır. Şekil-5'te SiC tavlama düzeneğinin, tasarımını yaptığımız üç boyutlu modeli ve bu model kullanılarak imal edilmiş görüntüsü bulunmaktadır. Doğru akım, düzeneğin en alt kısmından tantalum vidalar aracılığı ile en üst kısımdaki Ta plakalara iletilmektedir. Doğru akımın SiC tabanı üzerine görece düşük direnç değerleriyle iletilebilmesi için Ta plakalar kullanılmıştır. Ayrıca, tavlama düzeneğinde kullanılan ve Ta plakalar üzerinden DC akımın verildiği kapton bağlantı telleri, Al_2O_3 seramik boncuklar ile örnek tarafından üretilen yüksek şiddetli termal radyasyona (kara cisim ışımasına) karşı izole edilmiştir. Refrakter malzemelerden üretilen örnek tutucu, bir paslanmaz çelik çubuk prob aracılığı ile bir "Tee" vakum (Şekil-3'de 9 nolu bileşen) komponentine monte edilmiştir. Tee vakum komponentinin boşta kalan diğer portuna takılan bir 500V - 3A'lik feedthrough ile örnek tutucu üzerinden SiC tabanlara DC akım uygulanabilmektedir. Proje kapsamında tasarlanan ve imal edilen bu örnek tutucu ile üzerinden DC akım geçirilen SiC tabanları, rezistif olarak ısıtılabilir ve böylece SiC taban sıcaklığı $1500^{\circ}C$ 'ye kadar çıkartılabilmektedir.

Grafeni epitaksiyel olarak büyütme için, SiC kristali belirli bir zaman aralığında ve $1400 - 1500^{\circ}C$ gibi yüksek sıcaklıklarda ve vakum ortamında tavlama yapılmaktadır. Bu işlem sonunda, SiC tabanı C-yüzeyinde ve/veya Si-yüzeyinde ince grafen/grafit tabakaları kendiliğinden meydana gelmektedir. Epitaksiyel büyütme işlemi için genelde SiC yarıiletken kristalinin altıgen örgülü 4H-SiC veya 6H-SiC politipleri kullanılmaktadır. Bu iki politip SiC kristali arasında grafen büyütülmesi bakımından herhangi bir fark bulunmamaktadır. Isıl tavlama yönteminde, özellikle yüksek vakum koşulları altında, $1400^{\circ}C$ ve üzeri sıcaklıklarda tavlama yapılan SiC tabanı yüzeyinden süblimleşen Si atomları vakum ortamına salınmakta, geride kalan C atomları birbirleriyle sp^2 tip bağlanma yaparak, bal peteği benzeri altıgen grafen yapısını oluşturmaktadır. Prensip, tavlama sıcaklığı ve/veya süresinin optimize edilmesiyle istenilen kalınlıkta veya katman sayısında grafen elde edilmesi mümkün olmaktadır.

Epitaksiyel grafen üretilmesi için öncelikli olarak SiC tabanlarının büyütme işlemine hazır hale getirilmesi gerekmektedir. Uygun SiC tabanlarının kullanılması bu konuda önemli bir rol oynamaktadır. Büyütme deneylerinde, grafenin kristal örgü sabitine ($a = 2.46\text{Å}$) yakın örgü sabitlerine sahip altıgen kristal örgülü 4H-SiC ve 6H-SiC ($a = 3.07\text{Å}$) politip tabanlar kullanılmıştır. Tek kristal SiC alttaşları sağlayıcı şirket tarafından; büyütme işleminin gerçekleşeceği taban yüzeyleri kimyasal mekanik parlatma (CMP) yöntemi ile atomik düzeyde pürüzsüz hale getirilmiştir. Son olarak, kalınlığı yaklaşık $250\ \mu m$ olan SiC tabanları, SiC tavlama düzeneğine yerleştirilebilmesi için $4\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ ölçülerinde kesilmiştir.



Şekil 6. (a) SiC tavlama sistemine yerleştirilen SiC/SiC istifinin ve iki istif arasında oluşturulan boşluğun çizimi. (b) Tavlama işlemi sırasında SiC tabanı yüzeyinde oluşan grafen tabakası ve buharlaşan Si atomlarının istif ara-yüzeyindeki durumu. (n_s) süblimleşme hızındaki Si atomları (n_c) yoğunlaşma hızı ile SiC yüzeyine geri dönmekte, süblimleşen Si atomlarının bir kısmı da istif arasındaki boşluktan vakuma salınmaktadır. (c) Oda sıcaklığındaki SiC istifinin vakum çemberi içerisindeki görüntüsü. Kırmızı lazer ışığı kullanılan pirometreden kaynaklanmaktadır. (d) 1500°C sıcaklığına ısıtılan SiC istifinin vakum çemberi içerisindeki görünümü.

SiC taban yüzeyleri iki aşamalı kimyasal işleme tabii tutulmuştur. İlk aşamada; ultrasonik titreştiricide 10'ar dakika ile aseton, iso-propil alkol (IPA) ve DI su uygulanarak yüzeylerin solvent temizliği yapılmıştır. İkinci aşamada ise tabanlar 3 dk.'lık bir süre ile %6'luk hidroflorik asit (HF) çözeltisine daldırılarak, SiC tabanı yüzeylerindeki doğal oksit tabakası kaldırılmıştır. Solvent ve oksit temizliğinin yapılmasının ardından SiC tabanı tavlama düzeneğine yüklenerek deneye hazır hale getirilmiştir.

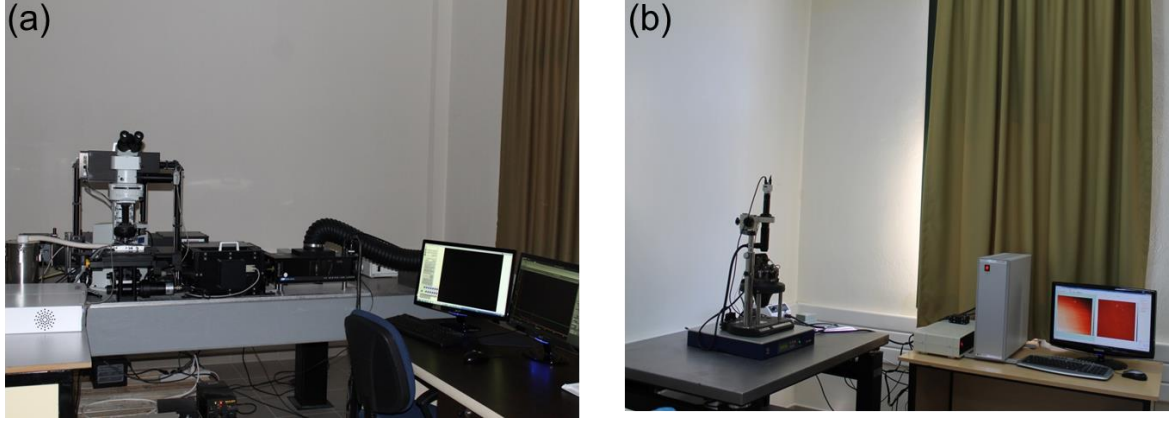
Epitaksiyel grafen Si ya da C ile sonlandırılmış SiC yüzeylerinde 1400 – 1500°C'de vakumda ısıtılma metodu ile büyütülebilmektedir. Ancak büyütülen bu grafen örneklerinin arasında belirgin farklar bulunmaktadır. Bunlardan en önemli olanı; aynı koşullarda C ile sonlandırılmış yüzeyde, Si ile sonlandırılmış yüzeye görece grafenin daha hızlı büyümesidir. Ancak tarafımızdan geliştirilen kapatma (capping) yöntem kullanılarak SiC'nin C yüzeyinde grafenin büyüme hızı kontrol altına alınabilmektedir. SiC/SiC istifleme olarak adlandırılan bu grafen büyütme yöntemi benzeri, Şekil-6(a)'da görüldüğü gibi grafenin büyütüleceği ve kapak (cap)

görevi görecek iki adet SiC örnekleri karbon yüzeyleri birbirlerine bakacak biçimde üst üste yerleştirilmektedir. Epitaksiyel grafen büyütme deneyinden önce “cap” olarak kullanılacak SiC tabanı, vakumda 1 dk.'lık bir süre ile 1500°C sıcaklıkta ısıl tavlama işlemiyle tavlama yapılmıştır. Böylece bu taban yüzeyinin grafitleştirilmesi sağlanmıştır. SiC kapağı üzerindeki grafit katmanı, diğer SiC tabanı üzerine kapatıldığında, yüksek sıcaklıkta tavlama yapılan tabanların birbirine yapışmasını engellemekte ve grafen büyütme işlemi için inert koşullar sağlamaktadır. Yüzeyinde büyütmenin yapılacağı SiC tabanı ve üzerine kapatılan grafitleştirilmiş SiC tabanından oluşan SiC/SiC istifi, örnek tutucu üzerinde, sağ ve sol kenarlarından Ta plakalarla sıkıştırılmıştır. Bu sıkıştırma ile iki taban arasında, her seferinde $d = 1 \mu\text{m}$ 'den küçük bir boşluk kalmaktadır.

Tabanların ısıtılması işlemi için şekil-6(c) ve (d)'deki gibi SiC tabanları üzerinden doğru akım geçirilmiş ve SiC/SiC istifi ilk olarak 600°C'lik bir sıcaklıkta 12 saat bekletilmiştir. Böylece istifin vakum ortamında termal temizlenmesi sağlanmıştır. Termal temizliği tamamlanan istifin sıcaklığı yaklaşık 1100°C'ye çıkartılarak 10 dk'lık bir süre içerisinde yüzeyde bulunması muhtemel oksit kalıntıları buharlaştırılmıştır. Oksit kalıntısından arındırılan SiC/SiC istifinin sıcaklığı 1500°C'ye kadar kontrollü bir şekilde artırılmıştır. 1 veya 3 dk. boyunca bu sıcaklık tutulan SiC tabanı yüzeyinde epitaksiyel grafen büyütülmüştür. Büyütme süresi sonunda istif sıcaklığının yaklaşık 10 sn. içerisinde 350°C'nin altına düşmesi sağlanmıştır. Büyütme deneyleri sırasında taban yüzey sıcaklığı $\pm 1^\circ\text{C}$ hassasiyetli bir optik pirometre ile ölçülmekte ve büyütme deneyleri sırasında çember basıncı düşük 10^{-8} mbar seviyelerine çıkmaktadır. Proje kapsamında kurulumu tamamlanan epitaksiyel grafen büyütme düzeneği ile, örnek büyütme sıklığı haftada ortalama 3 örnek olacak biçimde, projenin ilk rapor döneminden itibaren toplamda 100'den fazla grafen büyütme deneyi gerçekleştirilmiştir.

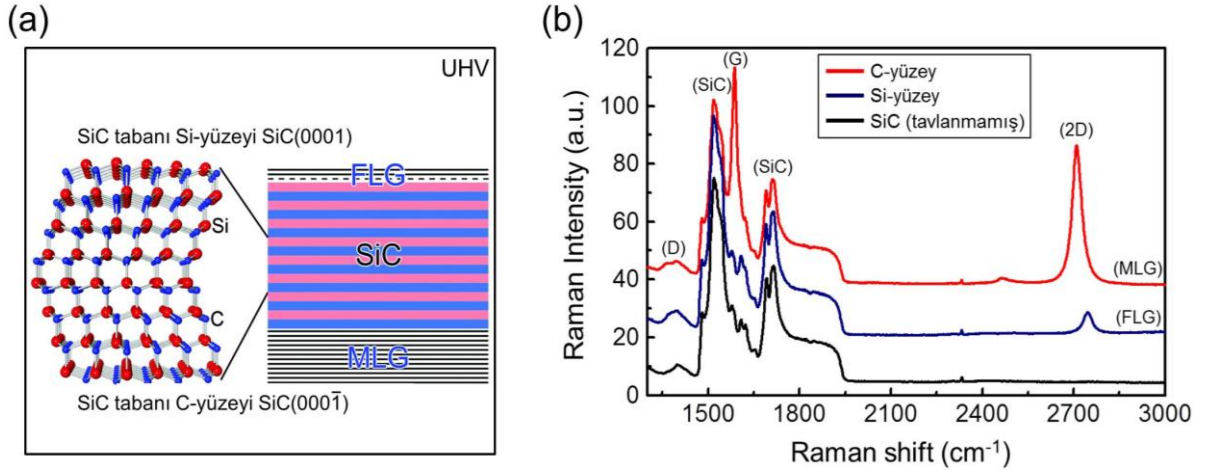
1.4 BULGULAR

Proje dönemi boyunca büyütme işlemleri tamamlanan epitaksiyel grafen örneklerinin, yapısal karakterizasyonları Raman spektroskopisi ve AFM ölçümleri ile periyodik olarak gerçekleştirilmiştir. Grafen büyütme deneyleri ve büyütülen grafen örneklerinin yapısal karakterizasyonları işlemleri paralel yapılmıştır. Raman spektroskopisi ve AFM ile yapısal karakterizasyonları tamamlanan ve tek katman olduğu saptanan grafen tabakaları, bir sonraki aşam olan grafen nanoşerit ağı (GNA) örneklerinin fabrikasyonlarının yapılmasında kullanılmıştır. Epitaksiyel grafen örneklerinin AFM ve Raman spektroskopisi ölçümleri, İYTE fizik bölümü bünyesinde bulunan ve şekil-7'de gösterilen, NT-MDT Nanscope SPM ve Princeton Instruments Acton SP-2750 Raman spektrometresi donanımlarıyla gerçekleştirilmiştir.



Şekil 7. Büyütülen epitaksiyel grafen örneklerinin yapısal karakterizasyonlarında kullanılan, İYTE fizik bölümü bünyesindeki (a) Raman spektrometresi ve (b) AFM donanımları.

1.4.1 Epitaksiyel Grafen Örneklerinin Raman Spektroskopisi Ölçümleri

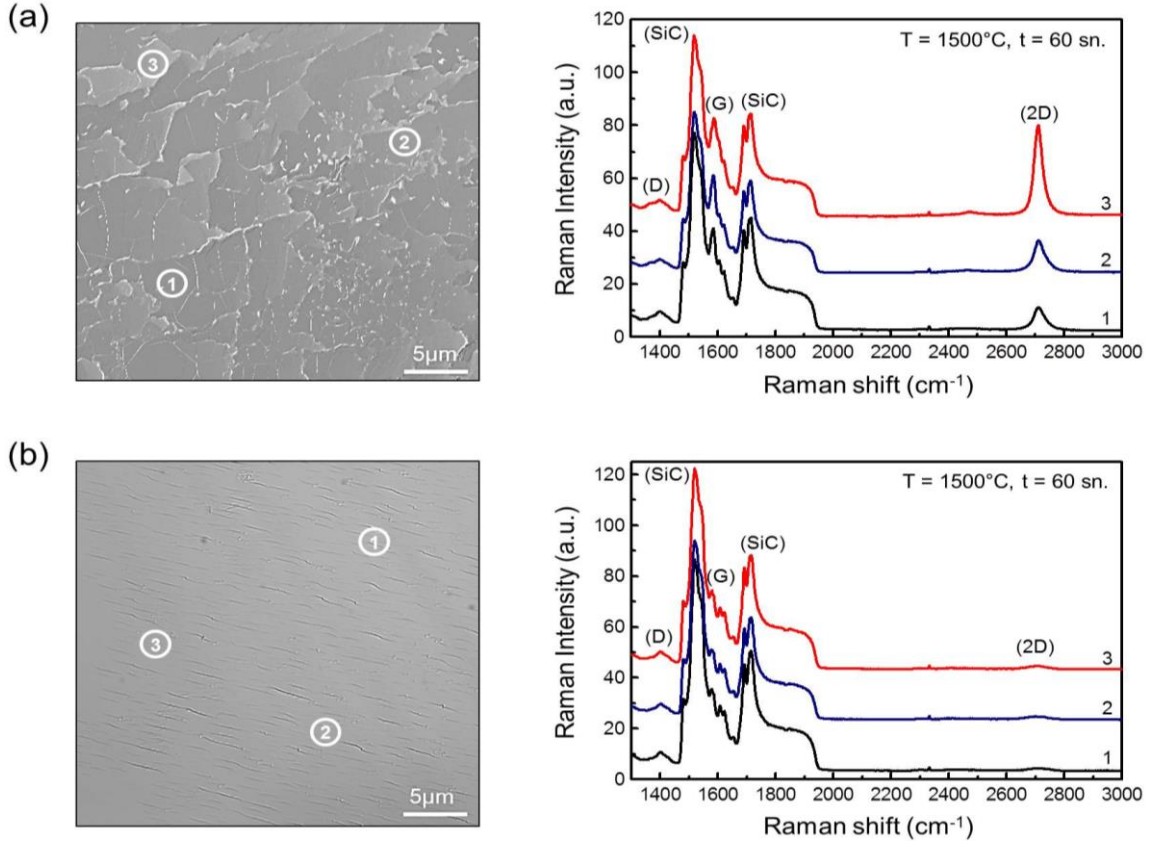


Şekil 8. Aynı büyütme parametreleriyle ($T = 1500\text{ }^{\circ}\text{C}$ ve 5 dk.) tavlanan SiC tabanı Si-yüzeyinde oluşan bir veya birkaç katman epitaksiyel grafen (FLG) ve C-yüzeyinde oluşan çok katmanlı grafene (MLG) ait (a) şematik çizim ve bu yüzeylerdeki grafen/grafit katmanlarının (b) Raman spektroskopisi ölçüm sonuçları.

SiC tabanı Si ve C ile sonlandırılmış yüzeylerinde grafen oluşma hızlarının birbirinden çok farklı olduğu literatürden bilinmektedir. Bu nedenle, proje kapsamında kurulumunu yaptığımız UHV epitaksiyel grafen büyütme sistemi kullanılarak bir SiC tabanı 1500°C sıcaklıkta 5 dk'lık bir süre ile tavllanmış ve tabanın Si ve C yüzeylerinde ayrı ayrı Raman spektroskopisi ölçümleri yapılmıştır. Şekil-8(b)'de aynı sıcaklık ve sürede tavlanan SiC tabanı Si ve C yüzeylerinden alınan Raman ölçümleri, ısıl tavlaması yapılmamış saf SiC tabanına ait Raman verisiyle karşılaştırılmıştır. Alınan Raman ölçümlerinde, 1368 cm^{-1} dalga sayısında gözlemlenen çizgi,

yapısal kusura/bozukluğa ait D-bandına, 1520 ve 1713 cm^{-1} dalga sayılarında gözlemlenen çizgiler SiC tabanına, 1597 cm^{-1} dalga sayısında görülen çizgi düzlem içi titreşime ait G-bandına karşılık gelmektedir. Isıl tavlama yapılmayan SiC tabanının aksine, ısıl tavlama yapılmayan SiC'nin her iki yüzeyinden alınan ölçümlerde, yaklaşık 2700 cm^{-1} dalga sayısı civarında, grafen/grafit yapısına ait çift fonon 2D-bandına ait Raman sinyalleri gözlemlenmiştir. Si-yüzeyinden alınan ölçümlerle kıyaslandığında, C-yüzeyinden elde edilen Raman spektrumunda, SiC sinyalinin düştüğü, G-bandı ve 2D-bandı sinyal şiddetlerinin yüksek değerlerde olduğu saptanmıştır. Si-yüzeyinden farklı olarak, C-yüzeyinden alınan Raman spektrumuna ait G ve 2D bandlarının görece yüksek doruk şiddetleri, bu yüzeyde çok katmanlı grafen (MLG) tabakasının oluştuğunu göstermektedir. Raman ölçümlerinden elde ettiğimiz bu verilerden, aynı tavlama süresi ve sıcaklığı için, SiC tabanı C-yüzeyindeki grafen büyüme hızının Si-yüzeyindekinden daha yüksek olduğu sonucu çıkarılmıştır.

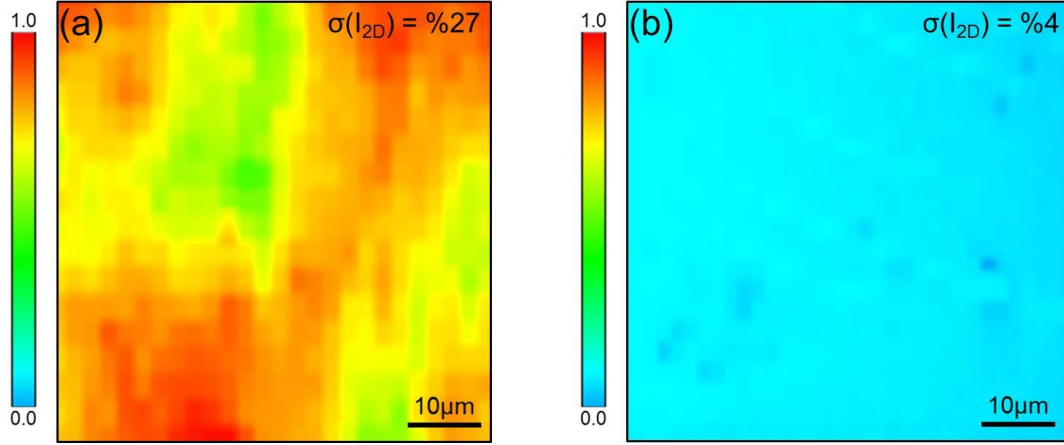
SiC'nin Si-yüzeyinden farklı olarak, C-yüzeyinde büyütülen monokristal tek katmanlı grafen tabakası, SiC tabanından büyük oranda izole olmakta, bu nedenle elektronik olarak bağımsız bir grafen tabakasıyla aynı özellikler sergilemektedir. Sonuçta, SiC tabanının C-yüzeyinde büyütülen grafende yük hareketliliği ($\sim 10^5 \text{ cm}^2/\text{V.s}$), Si yüzeyindeki grafene göre ($\sim 10^3 \text{ cm}^2/\text{V.s}$) çok daha yüksek seviyelere çıkmaktadır. Bu nedenle, projenin ileriki aşamalarında üretimi yapılacak grafen nanoşerit ağ yapılarının üretimi için SiC tabanının C yüzeyinde büyütülen bir veya birkaç katman epitaksiyel grafen tabakaları kullanılacaktır. Ancak SiC'nin bu yüzeyinde, grafenin çok yüksek ve kontrolsüz büyüme hızı kontrol altına alınmak durumundadır.



Şekil 9. (a) SiC/SiC istifleme yöntemi kullanılmadan ve (b) istiflenerek tavlanan SiC tabanı C-yüzeyinde oluşan grafen/grafit katmanlarının optik mikroskop görüntüleri ve bu yüzeylerde farklı noktalardan alınan Raman spektroskopisi ölçümleri.

Şekil-9(a)'da, 1 dk'lık bir süre ile 1500°C sıcaklıkta tavlanan bir SiC tabanın C-yüzeyine ait optik mikroskop görüntüsü ve yine bu yüzeyden geliş güzel noktalardan alınan Raman spektroskopisi ölçüm verileri sunulmuştur. Optik mikroskop ölçümlerinde, ortalama boyutları 1 - 10 μm gibi görece geniş bir aralıkta değişen, pullu (granüler) yapılar görülmektedir. Bu yüzeyin farklı noktalarından alınan Raman ölçümlerinde ortaya çıkan ve görece yüksek şiddetteki 2D band sinyali, bu granüler yapının çok katmanlı grafene (grafite) ait olduğunu göstermektedir. Birbirinden farklı şiddetlerdeki 2D band pikleri ise grafen/grafit kalınlığının her noktada farklı ve düzensiz olarak değiştiğini, dolayısıyla bu yüzeydeki grafit tabakasının homojen olmadığını ortaya koymaktadır. Şekil-9(b)'de ise üzerine grafitleştirilmiş SiC tabanı kapatılarak yine 1 dk'lık bir süre ile 1500°C sıcaklıkta tavlanan bir SiC tabanın C-yüzeyine ait optik mikroskop görüntüsü ve Raman spektroskopisi ölçüm verileri sunulmuştur. SiC/SiC istifleme yöntemi kullanılarak tavlanan SiC tabanın C-yüzeyinde yapılan optik mikroskop ölçümlerinde, istiflenmeden tavlanan örneklerden farklı olarak, kalın grafit katmanlarına ait granüler yapılar görülmemektedir. Fakat istiflenmeden tavlanan örneklerden farklı olarak, bu örneklere ait yüzeylerde birbirine paralel, düzenli teras benzeri yapılar açığa çıkmaktadır. Bu

yüzeylerde yapılan Raman spektroskopisi ölçümlerinde, Şekil-9(a)'daki Raman verileriyle karşılaştırıldığında, çok daha düşük şiddetli çift fonon 2D-band pikleri gözlemlenmiştir. İstiflenerek tavlanan bir dizi örnekten alınan Raman ölçümleri literatür verileriyle karşılaştırılmış ve Raman spektrumlarında gözlemlenen görece düşük şiddetli 2D piklerinin bir veya birkaç katman grafene ait olduğu belirlenmiştir. Örnek üzerinde gelişmiş güzel bölgelerden alınan tek nokta Raman ölçümlerinden, 2D bandı pik şiddetinin konuma göre değişmediği ve dolayısıyla bu yüzeydeki grafen katmanının homojen biçimde büyümüş olduğu anlaşılmaktadır.

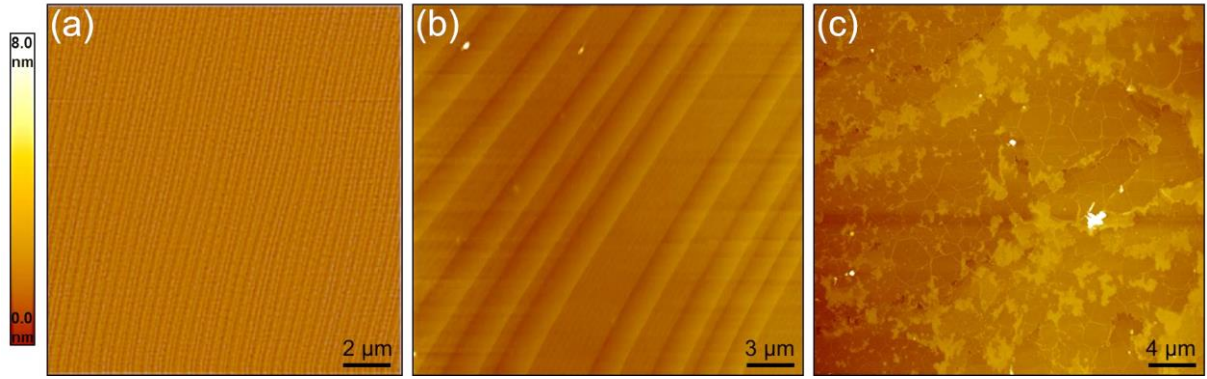


Şekil 10. (a) SiC/SiC istifleme yöntemi uygulanmadan tavlanan SiC tabanının C-yüzeyine ait geniş alan mikro-Raman haritalama ölçümü. (b) Aynı süre ve sıcaklıkta istiflenerek tavlanan, SiC tabanı C-yüzeyine ait geniş alan mikro-Raman haritalama ölçümü. $\sigma(I_{2D})$ parametresi, grafen/grafit tabakasına ait 2D pik şiddetinin ortalama değişimini göstermektedir. Grafen üzerinde her bir noktadan alınan 2D sinyal şiddeti değeri, (a)'daki en yüksek şiddetli 2D sinyaline göre normalize edilmiştir.

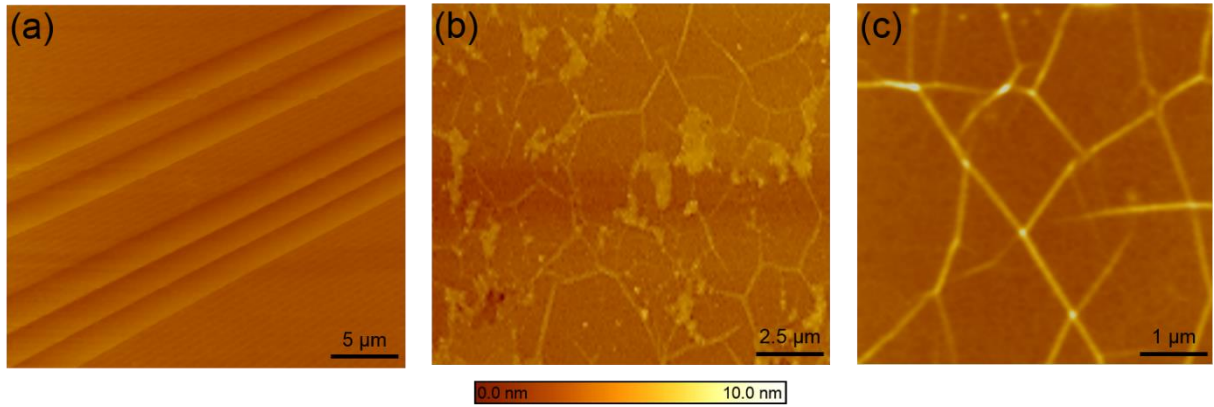
SiC yüzeyinde büyütülen grafen/grafit katmanlarının homojenliği hakkında daha detaylı veriler elde etmek için, örneklerin geniş alan mikro-Raman haritalama (Raman mapping) ölçümleri yapılmıştır. Raman haritalama ölçümleri 514 nm dalgaboylu lazer ışığı ile yaklaşık 60 x 60 μm²'lik örnek yüzeylerinde ve 1 μm aralıklarla gerçekleştirilmiştir. Grafen/grafit katmanlarının 2575 – 2850 cm⁻¹ dalgasayısı aralığındaki 2D bandı pik şiddetlerine ait Raman haritaları Şekil-10'da gösterilmektedir. Raman haritalarında gözlemlenen yüksek şiddetli bölgeler kalın grafen katmanlarına, pik şiddetindeki farklılıklar ise grafen katman sayısındaki bölgesel değişimlere karşılık gelmektedir. Şekil-10(a)'da istiflenmeden, 1 dk'lık bir süre ile 1500°C sıcaklıkta tavlanan SiC tabanının C-yüzeyine ait 2D piki Raman haritası sunulmuştur. Raman haritalama ölçümlerinden, istiflenmeden tavlanan SiC tabanı C-yüzeyinde 2D bandı pik şiddetlerinin bir bölgeden diğer bir bölgeye düzensiz ve dramatik biçimde farklılık gösterdiği (hesaplanan ortalama 2D sinyali şiddet değişimi $\sigma(I_{2D}) = \%27$), dolayısıyla bu yüzeyde grafen katman sayısının yeterince homojen olmadığı bulunmuştur. Diğer taraftan, şekil-10(b)'de yine aynı süre (1 dk.) ve sıcaklıkta (1500°C) istiflenerek tavlanan SiC tabanı C-yüzeyindeki 2D pik

şiddetlerinin, istiflenmeden tavlanan örneklerle kıyaslandığında, görece çok daha düşük seviyelerde olduğu görülmektedir. Düşük şiddetli 2D piklerinin varlığı, bu yüzeyde bir veya birkaç katman grafen tabakasının oluştuğunu göstermektedir. Bu tabakalara ait 2D pik şiddetlerinin bir bölgeden diğer bölgeye ortalama $\sigma(I_{2D}) = \%4$ 'lük görece düşük bir oranda değişmesinden, istiflenerek tavlanan örnek yüzeylerinde büyütülen grafen tabakasının görece daha homojen olduğu anlaşılmaktadır. Raman haritalama ölçümlerinden elde edilen bu veriler, şekil-9'da gösterilen ve örnekler yüzeylerinin farklı noktalarında alınan Raman spektroskopisi ölçüm verileriyle uyuşmaktadır.

1.4.2 Epitaksiyel Grafen Örneklerinin AFM Ölçümleri



Şekil 11. SiC tabanı C-yüzeyinin (a) tavlansadan önceki, (b) istifleme yöntemi kullanılarak tavlandıktan sonra ve (c) istifleme yöntemi kullanılmadan tavlandıktan sonraki (tapping mode) AFM ölçümleri.



Şekil 12. SiC tabanı C-yüzeyinin, istifleme yöntemi kullanılarak tavlandıktan sonra, farklı nokta ve büyütme ölçümleri. (b) ve (c) Bir veya birkaç katman grafene ait granüler yapılar.

SiC tabanlarının ısıtılma işlemi öncesinde ve sonrasında yüzey karakterizasyonu, atomik kuvvet mikroskobu (AFM) ölçüleriyle yapılmıştır. Şekil-11(a) ve 12(a)'da görüldüğü gibi ısıtılma işlemi öncesinde yapılan AFM ölçümlerinde, SiC tabanı yüzeyinde yaklaşık 0.5 - 0.6 µm genişliğindeki teraslı yapılar gözlemlenmiştir. Bu teraslı yapılar SiC alttaşının yaklaşık 0.1°'lik hata payı ile kesilmesinden kaynaklanmaktadır. CMP işleminin örnek yüzeyini epitaksiyel büyütmeye hazır hale getirmesi sayesinde bu sistematik teraslı yapılar gözlemlenebilmektedir. 1500°C sıcaklıkta ve 1 dk.'lık bir süre ile istifleme yöntemi kullanılarak yapılan ısıtılma işlemi sonrasında şekil-11(b)'deki gibi yaklaşık 3 - 5 µm genişliğinde ve 2 nm yüksekliğinde düzenli teraslı yapılar gözlemlenmiştir. Daha önce yapılan çalışmalarla, ısıtılması yapılan SiC tabanı yüzeyindeki bu teraslı yapıların grafen oluşumunda reaksiyon merkezi (nucleation center) rolünü üstlendiği gösterilmiştir. Aynı süre ve sıcaklıkta fakat istiflenmeden tavlanan SiC tabanı C-yüzeyinde ise şekil-8(c)'deki gibi pullu/granüller yapılar ve yükselteler gözlemlenmiştir. Bu düzensiz yapılar, yüzeyde birkaç katmandan fazla grafen (grafit) tabakalarının bulunduğu işaret etmektedir. Aynı yüzeylerdeki 5 µm x 5 µm'lik bir alanda yapılan yüzey pürüzsüzlük analizi (surface RMS roughness) sonucunda; sırası ile şekil-11(b) ve (c) için 2.1 nm ve 9.8 nm olarak tespit edilmiştir. Bu değerler işlem görmemiş SiC örneklerinin pürüzsüzlük değerinden (~0.9 nm) daha yüksektir. Bu farklılık ısıtılma işlemi sırasında SiC tabanı yüzeyinde grafen oluştuğunun ve grafen katman sayısı ile doğru orantılı olarak pürüzsüzlük değerinin de arttığının bir göstergesidir.

1.4.3 Grafen Nanoşerit Ağı Yapılarının Üretimi

Bir önceki aşamada Raman ve AFM ölçümleriyle yeterince homojen ve tek katman olduğu belirlenen epitaksiyel grafen tabanlarından nanoşerit ağı yapılarının fabrikasyonu gerçekleştirilmiştir. Bu kapsamda, bir dizi epitaksiyel grafen tabanına, Ref.[1]'de tanımlanan blok kopolimer litografisi ve standart temiz oda yöntemleri uygulanmıştır. Kopolimer litografisi prosesleri İYTE fizik bölümü Ulusal Kuantum Araştırmaları Merkezi (UKAM) klas 10.000 temiz odasında gerçekleştirilmiştir. Blok kopolimer litografisi için gerekli, %1 wt karışımı P (S- r- MMA) (random polimeri), %1wt P(S- b- MMA) (blok polimeri), tolüen, % 99,9 saflıktaki asetik asit (glasiyal asit), Hidroflorik (HF) asit kimyasalları proje bütçesinden karşılanarak hazır olarak temin edilmiştir. Şekil-13'de de gösterilen ve blok kopolimer litografisi işlemi ile grafen nanoşerit ağı yapılarının fabrikasyon aşamalarına ait detaylar aşağıdaki gibidir;

Kalınlığı yaklaşık 10 nm olan SiO₂ ince filmi, boyutları 4 mm x10 mm x 300 µm olan SiC tabanları üzerinde büyütülen epitaksiyel grafen tabakası üzerine termal buharlaştırma ile kaplanmıştır. Bu işlem için termal buharlaştırıcı örnek tutucu haznesine bir seferde 4 adet

örnek yüklenmiştir. Termal buharlaştırma sırasında SiO₂ kalınlığı, kalınlık monitörü (thickness monitor) ile gerçek zamanlı olarak ölçülmüştür. Bu katman ileriki aşamalarda uygulanacak polimerlerin spin-kaplama işlemleri sırasında grafen tabakalarının zarar görmemesi için bir koruyucu tabaka işlevi yapmaktadır.

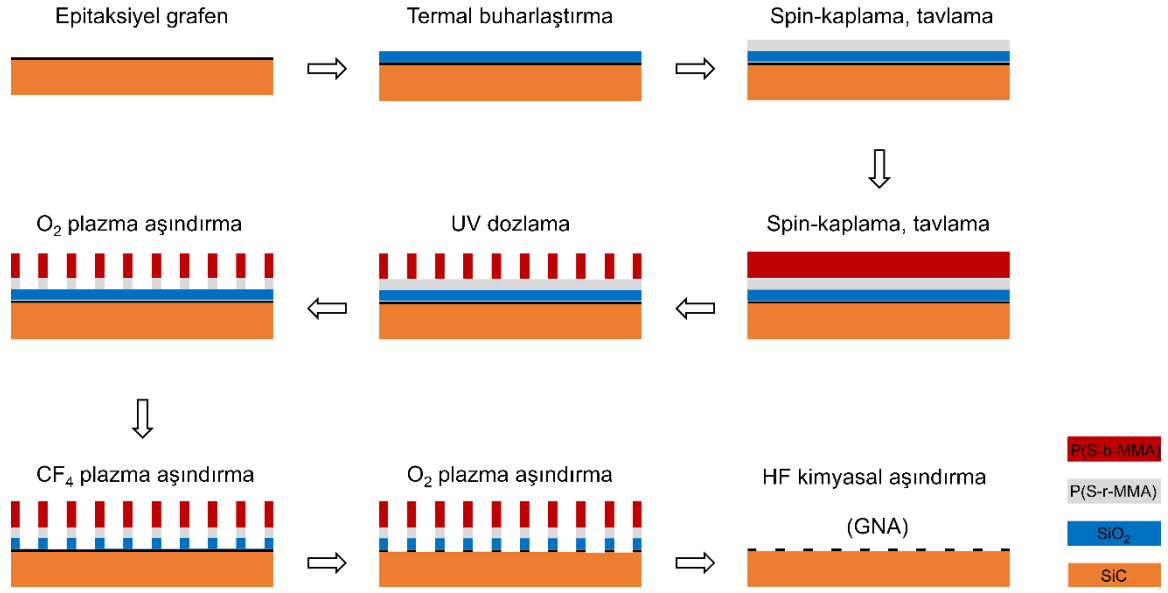
%1 wt oranındaki P(S-r-MMA) polimeri %0,3 oranında olacak biçimde yüksek saflıktaki toluen ile inceltirilerek ayrı bir kaba aktarılmıştır. Grafen üzerindeki SiO₂ koruyucu katmanı üzerine, %0,3'lük P(S-r-MMA) toluen karışımı cam pipet yardımıyla, bir damla olacak biçimde uygulanmıştır. Polimer toluen karışımı 3600 rpm dönme hızıyla spin-kaplayıcı ile SiO₂ koruyucu katmanı üzerine kaplanmıştır. Daha sonra örnekler vakum fırınında 3 saat 150 °C sıcaklıkta tavlansmıştır. Bu tavlama sıcaklığında polimer katmanının çapraz bağlanması (cross-link) sağlanmıştır. %1'lik P(S-b-MMA) blok polimeri, yine 3600 rpm devir hızında spin-kaplama ile çapraz bağlaması yapılan P(S-r-MMA) polimeri üzerine kaplanmıştır. Spin-kapla işleminin ardından örnekler vakum fırınında 3 saat için 200 °C sıcaklıkta tavlansmıştır. Tavlama işleminin ardından örnekler, şekildeki kapalı çembere alınmış ve 60 dk'lık bir süre için polimer katmanının 295 nm dalgaboyunda UV ışınım altında indirgemeleri yapılmıştır. UV ile kütleme işlemi tamamlanan örnekler asetik asit içinde 30 dk. bekletilerek, çapraz bağlamaya uğramamış olası PMMA kalıntıları temizlenmiştir. Örnekler yüksek saflıkta deiyonize (DI) suya daldırılarak, asetik asitten temizlenmiştir. Bu işlemler sonunda, P(S-b-MMA) blok polimeri periyodik deşikler açığa çıkartılmıştır.

Periyodik deşiklerin altında kalan P(S-r-MMA) polimeri, 30 W, 10 mT, 10 sccm set-parametreleri ile, 30 sn'lik bir süre için oksijen plazma ile aşındırılmış ve bu deşik bölgelerin altındaki SiO₂ katmanı açığa çıkartılmıştır. Bu plazma parametreleriyle O₂ plazmanın P(S-r-MMA) polimerini aşındırma hızı yaklaşık 1 nm/sn. olmaktadır. Oksijen plazma ile açığa çıkartılan, deşikler altındaki SiO₂ bölgelerinin, 20 sn'lik bir sürede CF₄ gazı ile reaktif iyon aşındırması yapılmıştır. CF₄ ile reaktif iyon aşındırma parametreleri (300 W, 60 mT, 45 sccm) olarak girilmiştir. CF₄ gazı SiO₂'yi aşındırmasına rağmen polimer tabakasına etki etmemektedir. Bu işlem sonunda, SiO₂ bölgelerinin altında kalan grafenli bölgeler açığa çıkartılmıştır.

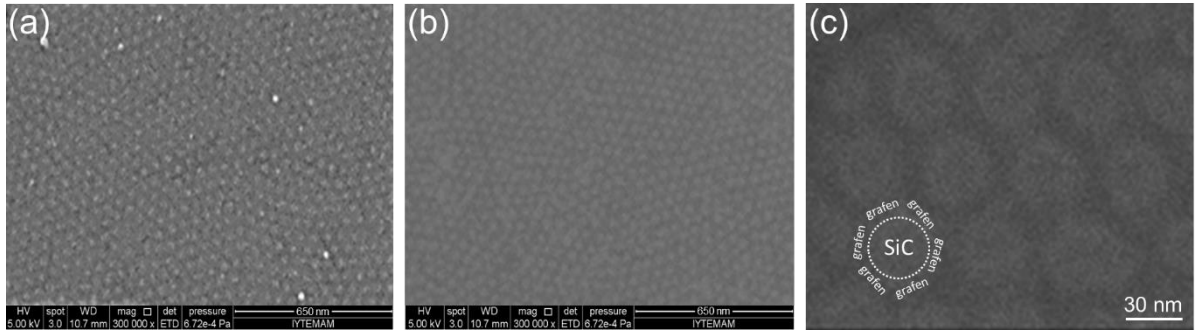
Deşiklerin tabanındaki grafenli bölgeler 10 sn.'lik bir sürede uygulanan O₂ plazma ile aşındırılmıştır. SiO₂ katmanı ve bu katmanın üzerindeki polimer tabakası %10'luk HF asidi ile grafen üzerinden atılmıştır (lift-off). HF asidi sadece SiO₂'yi aşındırmakta ve dolayısıyla SiO₂ ince katmanı üzerindeki polimeri de beraberinde grafen üzerinden kaldırmaktadır. HF ile kimyasal aşındırma işleminin ardından örnekler üzerindeki HF kalıntıları, DI su ile temizlenmiştir.

Blok kopolimer litografisinden işlemleri sırasında ve sonrasında, örneklerin yapısal karakterizasyonu SEM ve AFM ile yapılmıştır [bkz. Şekil-14, 15 ve 16]. SEM ölçüleriyle GNA yapılarının oluşup oluşmadığı, AFM ölçüm ve analizleriyle de başarıyla üretilen örneklerde deşik ve nanoşerit büyüklüğü parametreleri saptanmıştır. Şekil-14 ve 15'te gösterilen SEM ölçüm verileri 5 keV'luk elektron demet enerjisi ile ikincil elektron dedektörü kullanılarak alınmıştır. Şekil-14(a)'daki SEM ölçümü, P(S-b-MMA) blok kopolimerinin UV ile dozlamadan sonra indirgenerek, polimer katmanı boyunca gözenekli bir yapı meydana getirdiği görülmektedir. Yüzey düzlemi boyunca gözlemlenen periyodik kontrast, açık ve koyu renkle beliren bölgelerin iletkenliklerinin birbirinden farklı olduğunu, dolayısıyla (UV) ışığa duyarlı ve duyarsız, ardışık dizilimli (A – B dizilimli) iki tip polimer domaini oluştuğunu göstermektedir. Şekil-14(b)'de ise blok kopolimer litografisi işlemlerinden sonra elde edilen grafen nanoşerit ağı yapısına ait SEM ölçümü yer almaktadır. Bu SEM ölçümünde örnek yüzeyi üzerinde birbirinden farklı iletkenliklere sahip, açık ve koyu bölgelerden oluşan periyodik bölgeler görülmektedir. Şekil-14(c) ve 15'de, büyütülmüş SEM görüntüsünde sunulduğu üzere, açık renkle beliren dairesel görünümlü bölgeler SiC alttabanına, koyu renkle beliren ince bölgeler ise epitaksiyel grafene karşılık gelmektedir.

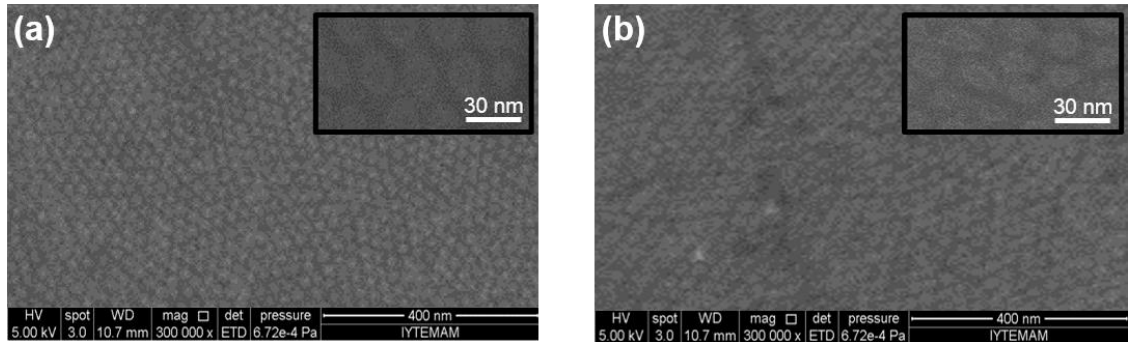
GNA örneklerinde deşik ve nanoşerit boyutlarının belirlenmesi için tıklatmalı mod (tapping mode) AFM topografi ölçümleri yapılmıştır. SEM ölçümlerinden gözlemlendiği gibi AFM ölçümlerinden de, geniş alanlarda düzenli deşiklerden meydana gelen nanoşerit ağı yapıları çözümlenmiştir [bkz. Şekil-16(a), (b)]. Şekil-16(c)'de de gösterilen bir dizi arakesit yükseklik profil ölçüm verilerinden, GNA düzlemindeki SiC tabanlı deşik çapının ortalama 38 ± 2 nm, grafen nanoşerit genişliğinin ise ortalama 17 ± 2 nm olduğu bulunmuştur. SiC tabanı referans alınarak yapılan yükseklik profil ölçümlerinden, grafen şeritlerin ortalama topografi yüksekliğinin ortalama $\Delta Z = 3$ nm düzeyinde olduğu saptanmıştır. Bu örnekler üzerinde yapılan Raman spektroskopisi ölçümlerinden, SiC tabanı üzerindeki grafenin tek katman olduğunun belirlenmesine rağmen, $\Delta Z = 3$ nm'lik topografi yüksekliği ilk etapta bir kaç katman grafenin varlığını işaret etmektedir. Ancak diğer taraftan, grafen üzerinde bulunması muhtemel ince su katmanının AFM ucuyla van der waals etkileşimi sonucu, grafende profil yüksekliğini olması gereken nominal değerinden ($\Delta Z \approx 0.37$ nm) daha yukarı düzeylere çıkarttığı düşünülmektedir.



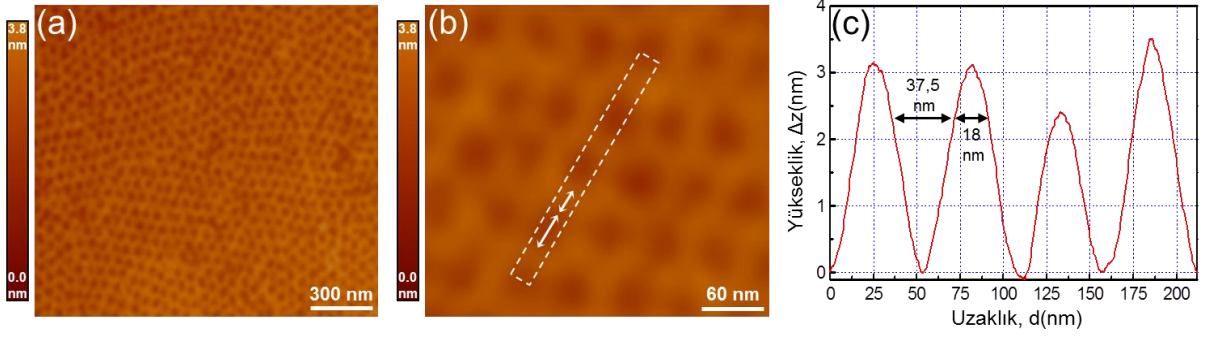
Şekil 13. Proje döneminde uygulanan blok kopolimer litografisi aşamalarını gösteren şema.



Şekil 14. (a) P(S-b-MMA) blok kopolimerinin UV dozlamasının ardından alınan SEM mikrograf görüntüsü. (b) Blok kopolimer litografisi işlemlerinden sonra GNA oluşumunu gösteren SEM ölçümü. (c) GNA tabakasında, SiC deşikleri ve grafen nanoşeritlerini gösteren büyütülmüş SEM mikrograf görüntüsü.



Şekil 15. Blok kopolimer litografisi işlemlerinden sonra GNA oluşumunu gösteren SEM ölçümü. GNA tabakasında, SiC deşikleri ve grafen nanoşeritlerini gösteren büyütülmüş SEM mikrograf görüntüsü.

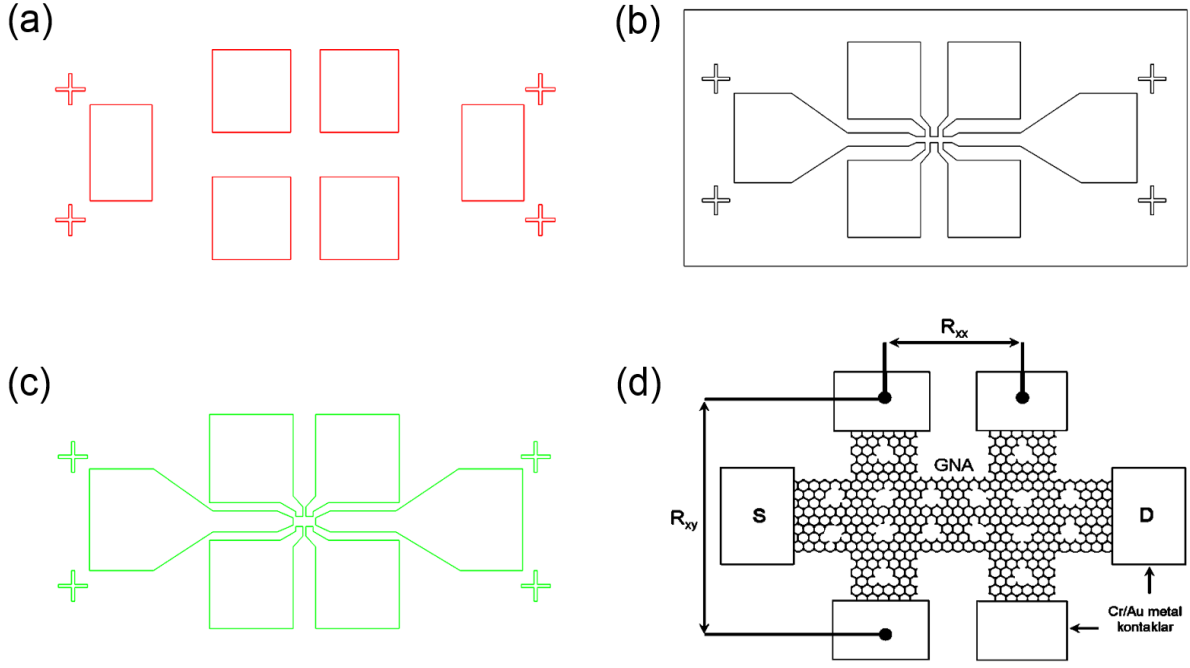


Şekil 16. Blok kopolimer litografisi işlemlerinden sonra örnek yüzeyinden alınan ve GNA tabakasına ait AFM topografi ölçümü. (b) GNA tabakasının yüksek büyütmeli AFM topografi görüntüsü. (c) Yüksek büyütmeli AFM görüntüsünden elde edilen GNA yapısına ait arakesit yükseklik profil ölçümü.

1.4.4 Grafen Nanoşerit Ağ Tabanlı Aygıt Fabrikasyonu

Epitaksiyel nanoşerit ağı tabanlarının elektriksel karakterizasyonu için bu tabanları temel alan Hall aygıtlarının üretimi yapılmıştır. Hall aygıtı fabrikasyonunda bir önceki aşamada SEM ve AFM ile morfolojik yapıları ve geometrik parametreleri belirlenen GNA tabanları kullanılmıştır. Projenin dönemi boyunca temiz oda yöntem ve teknikleri kullanılarak imal edilen aygıtlar yardımıyla proje önerisinde belirtilen GNA tabakalarının kondüktans, taşıyıcı yoğunluğu ve yük hareketliliği gibi elektronik taşınım parametrelerinin belirlenmesine yönelik elektriksel karakterizasyon ölçümlerinin yapılması çalışmaları yapılmıştır. Bu kapsamda, proje dönemlerinde gerçekleştirilen GNA tabanlı Hall aygıtı üretim detayları aşağıdaki gibidir.

Hall aygıtı yapımı için hâlihazırdaki mevcut kuvarz cam üzerine işlenmiş, krom kaplı Hall aygıtı desenlerinden oluşan optik litografi maskesi kullanılmıştır. Bu maske yardımıyla, boyutları 4 mm x 10 mm olan SiC tabanı yüzeyindeki GNA tabakası üzerine aynı anda birbirine özdeş toplam 8 adet Hall aygıtı işlemek mümkün olabilmektedir. GNA tabakası üzerine işlenen Hall aygıtlarının her biri kanal boyu 35µm ve eni 5µm olacak şekilde, source ve drain padleri dahil, toplam 6 adet kontak pad'den meydana gelmektedir. Bu pad'ler sayesinde GNA tabakasına uygulanan sabit bir akım (I_{sd}) altında enine (R_{xy}) ve boyuna (R_{xx}) dirençlerdeki değişimler ölçülebilmektedir [bkz. Şekil-17].



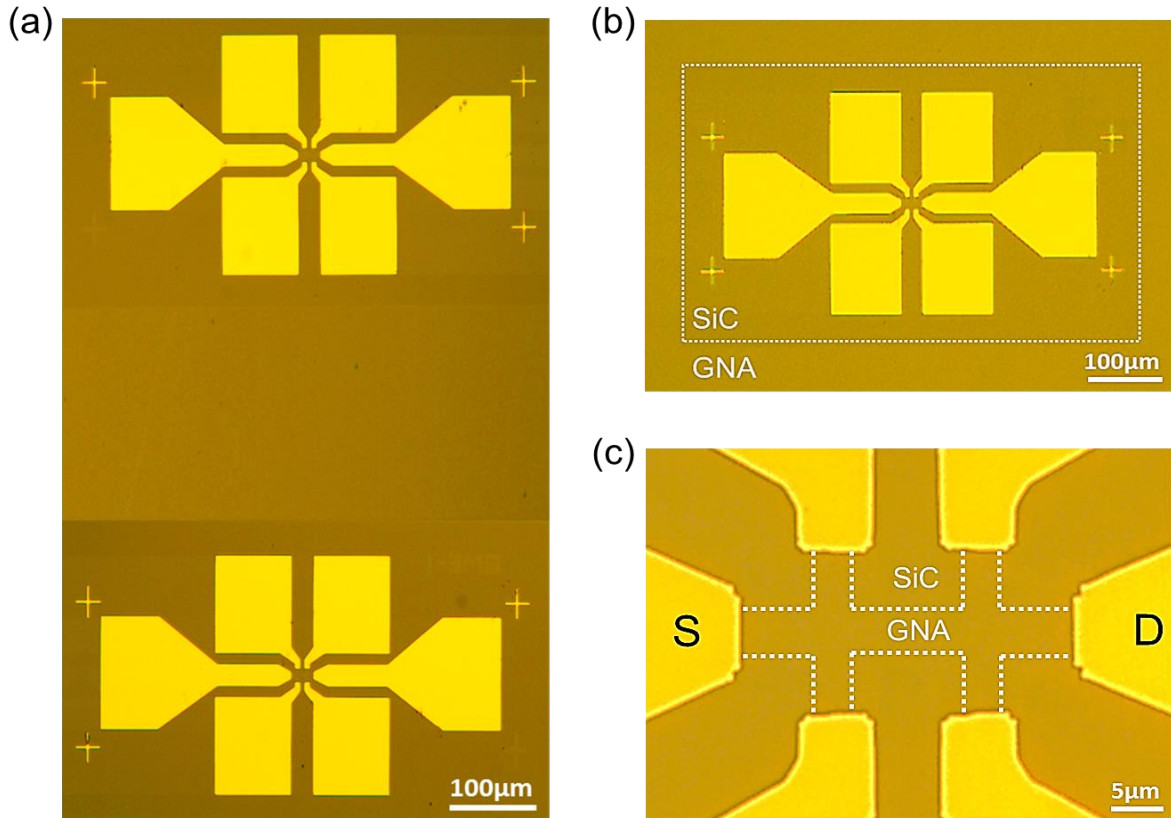
Şekil 17. SiC yüzeyindeki epitaksiyel GNA tabakası üzerine optik litografi yöntemiyle işlenen (a) birincil kontak padlerin, (b) Hall-bar yapısının, (c) ikincil kontak padlerin maske üzerindeki biçimleri. (d) Prosesleri tamamlanmış tek atom kalınlığındaki GNA örgüsü üzerine işlenen Hall-bar aygıtı ve DC ölçümlerin yapılacağı metalik (ohmik) kontak bölgelerini gösteren şema.

Hall aygıtı fabrikasyonu için şekil-17(a, b ve c)'da gösterilen kontak padlerini içeren toplam üç aşamalı optik litografi ile işlenebilen mesa yapılar ve Hall-bar geometrisi kullanılmıştır. Yapmış olduğumuz bir dizi deney sonucunda, Cr ve Au metallerinden oluşan kontakların grafen yüzeyine tam olarak tutunamadığı ve dolayısıyla kontak padlerinin grafenli bölgeler üzerine gelen kısımlarının kolayca kalkabildiği saptanmıştır. Bu sorunu aşmak için kontakların yapılacağı grafen yüzeyine ilk etapta şekil-17(a)'da gösterilen pencereler (birincil kontak padler), AZ5214 fotorezisti kullanılarak ve negatif işleme yöntemiyle fotolitografi ile basılmıştır. Şekil-17(a)'da gösterilen dikdörtgen ve kare çerçeveler içinde kalan bölgeler O_2 plazma ile grafenden arındırılmış, bu bölgelerdeki SiC alttabanı açığa çıkarılmıştır. Açıkta kalan bu padler üzerine önce 10 nm Cr ve ardından 150 nm Au buharlaştırılmıştır. Metal kaplamanın ardından, kontakların bulunduğu bölge hariç, örnek yüzeyindeki geri kalan kısımlar aseton içinde lift-off yöntemiyle temizlenmiştir.

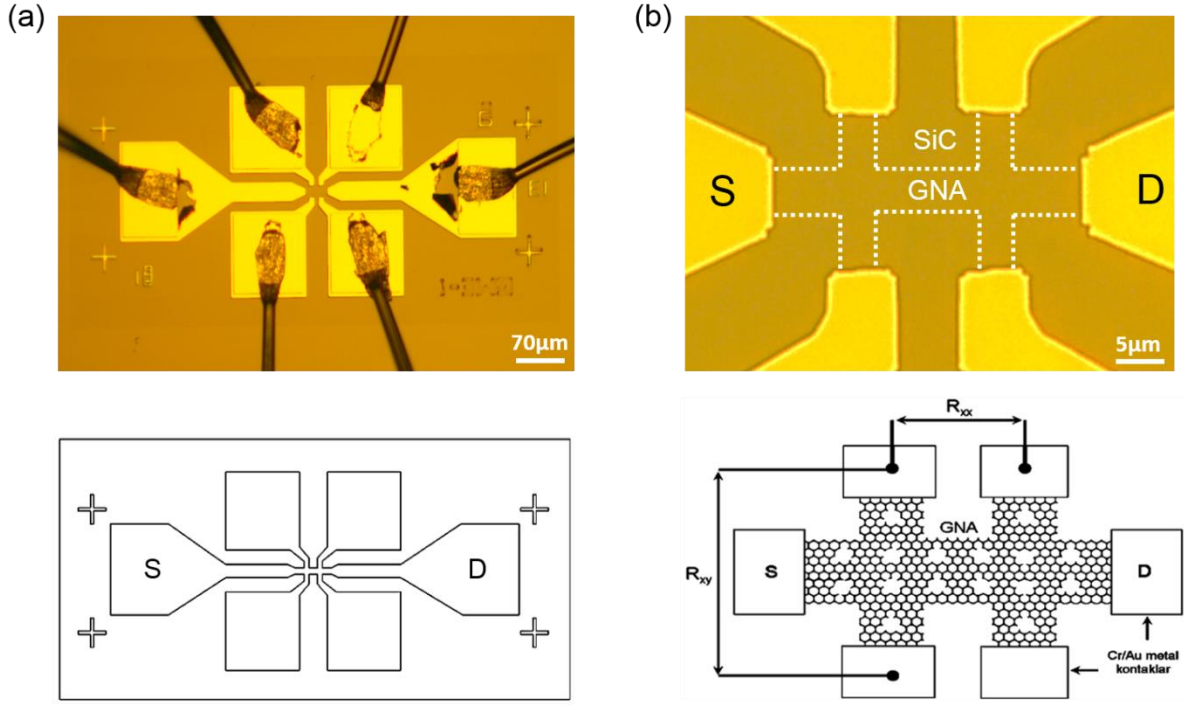
Üzerinde sadece GNA tabakası ve metal kaplı padlerin bulunduğu örnek üzerine, şekil-17(b)'de gösterilen Hall-bar yapısı, negatif işlem ve AZ5214 fotorezisti kullanılarak optik litografi yöntemiyle daha önceden işlenen padlere denk gelecek biçimde hizalanmış ve basılmıştır. Hall-bar geometrisi dışında kalan grafenli bölgeler O_2 plazma yardımıyla

aşındırılmıştır. Aşındırma işleminin ardından şekil-17(c)'de gösterilen ikincil kontak padleri işlenmiş olan Hall-bar yapısıyla üst üste gelecek şekilde hizalanmış ve yukarıda belirtilen yöntemle basılmıştır. Optik litografi ile işlenen bu kontak padler, tekrar önce 10nm Cr ve ardından 150nm Au ile kaplanmıştır. Sonuç olarak padleri ve leadleri kontak padlerle kapatılan Hall-bar yapısının merkezinde boyu 35 μ m ve eni 5 μ m'deki GNA tabanlı ölçümü yapılacak aktif bir bölge oluşturulmuştur [bkz. şekil-17(d)]. Bütün bu işlemler sonucunda fabrikasyonları başarıyla tamamlanan ve kontak padleri işlenmiş bir çift GNA temelli Hall aygıtının optik mikroskop görüntüsü şekil-18'da sunulmuştur.

Bütün bu işlemler sonucunda fabrikasyonları başarıyla tamamlanan ve kontak padleri işlenmiş GNA temelli Hall aygıtının optik mikroskop görüntüsü şekil-19'da sunulmuştur. Hazırlanan GNA Hall aygıtının Cr/Au padlerine wire bonder yardımıyla Au tel bağlantıları yapılmıştır. GNA tabanlı Hall aygıtı fabrikasyonları için, masrafları proje bütçesi hizmet alımı faslından karşılanmak üzere Sabancı Üniversitesi, nanoteknoloji Araştırma ve Uygulama Merkezi (SUNUM) temiz oda alt yapı ve olanakları kullanılmıştır.



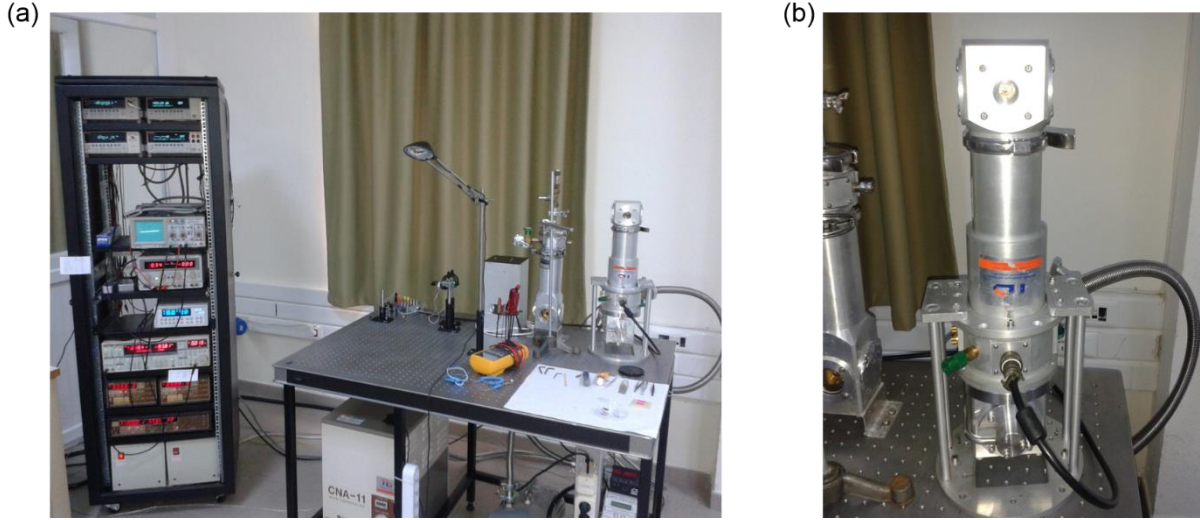
Şekil 18. GNA tabakası üzerine optik litografi ile işlenen Hall-bar aygıtlarının ve bu aygıtlara tel bağlantısıyla elektriksel kontakların yapılacağı Cr/Au omik kontak padlerinin optik mikroskop görüntüleri.



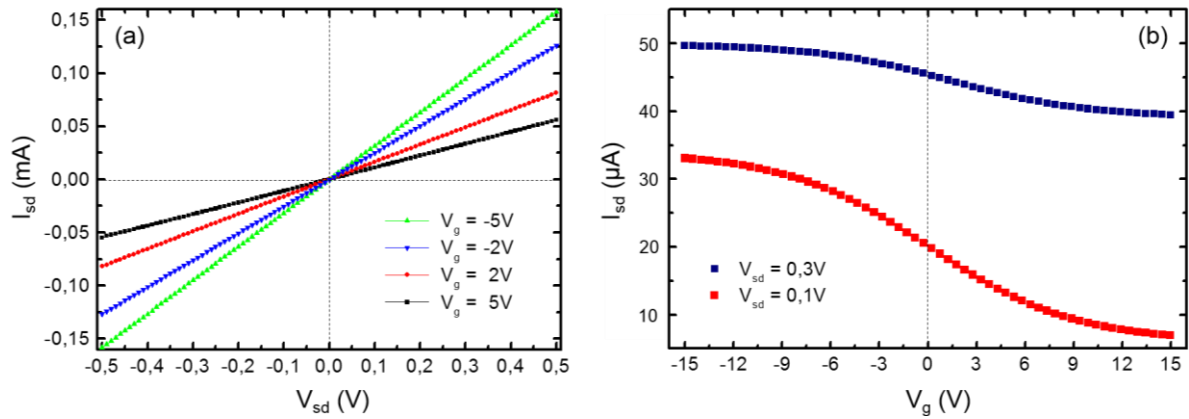
Şekil 19. GNA tabanı üzerine işlenen Hall aygıtının metal kontak padlerine Au tel bağlantılarının yapılmış hali. GNA örneğinin Hall aygıtındaki şekil ve konumunu gösteren şematik ve optik mikroskop görüntüleri.

1.4.5 Grafen Nanoşerit Ağı Tabanlı Aygıtların Elektriksel Karakterizasyonu

Gerçekleştirilen proje dönemleri boyunca fabrikasyonu tamamlanan aygıtlar üzerinden GNA örneklerinin elektriksel ölçümleri yapılmıştır. Örneklerin I-V ölçümlerini içeren elektriksel karakterizasyonları İYTE Fizik bölümündeki nanofizik araştırma laboratuvarımızda bulunan şekil-20'de gösterilen kapalı çevrim kuru He krayostatı ve çevre birimleri kullanılarak gerçekleştirilmiştir. Örneklerin I-V karakterizasyonları bu krayostat ünitesine bağlantısı yapılan rack birimindeki Keithley-2400 SMU ve Keithley-2182A nanovoltmetre gibi ölçüm cihazlarıyla gerçekleştirilmiştir. Elektronik taşınım ölçümler RS-232 bağlantılı düzenekle ve Labview arayüzü kullanılarak bir bilgisayar aracılığıyla gerçekleştirilmiştir.



Şekil 20. GNA örneklerinin elektronik taşıma deneylerinin yapılmasında kullanılan (a) rack ünitesi ve (b) kapalı devre He kuru krayostat birimi.



Şekil 21. Ortalama nanoşerit genişliği 18 nm olan GNA örneğine ait farklı V_g kapılama voltajları için elde edilen (a) $V_{sd} - I_{sd}$ karakteristiği ve farklı V_{sd} sürme voltajları için alınan (b) $V_g - I_{sd}$ ölçüm verileri.

Şekil-21'de ortalama nanoşerit eni 18 nm olan GNA örnekleri için alınan elektronik taşıma ölçümleri sunulmuştur. Bu ölçümler Şekil-20'deki krayostat kullanılarak ve $T = 5,2K$ sıcaklığında gerçekleştirilmiştir. Örneğin farklı kapı voltajları (V_g) etkisinde alınan sürme voltajı (V_{sd}) ve akım (I_{sd}) karakteristikleri Şekil-21(a)'da gösterilmektedir. V_g ve V_{sd} büyüklük ve polaritelerinin değişiminden elde edilen akım davranışlarından örneğin p-tipi kanallı bir transistör karakteristiği sergilediği görülmektedir. Grafene bağlanan oksijenin grafeni p-tipi katkıladığı bilinmektedir. Ölçümlerini yaptığımız örneklerin, p-tipi iletkenlik karakteristiği sergilemesinin, GNA fabrikasyonu için uygulanan oksijen plazma aşamasında oksijenin GNA deşik kenarlarına tutunmasından ileri geldiği düşünülmektedir. Şekil-21(b)'de $V_{sd} = 0,1V$ ve

0,3V gibi sabit sürme voltajları için elde ettiğimiz V_g - I_{sd} ölçüm sonuçları gösterilmiştir. Her iki sürme voltajı için, uygulanan V_g potansiyelinin negatif olması durumunda akımın arttığı diğer taraftan pozitif değerlerinde ise akımın azaldığı görülmektedir. $V_{sd} = 0,1$ V sabit sürme voltajı etkisinde, $V_g = -15$ V için örneğin kondüktans değerinin yaklaşık $320 \mu S$ ve $V_g = 15$ V için kondüktansın $70 \mu S$ 'e kadar azaldığı bulunmuştur. Diğer taraftan, bu maksimum ve minimum V_g değerleri için ölçülen I_{sd} akım değerlerine karşılık gelen açma/kapama (on/off) oranı 5 olarak saptanmıştır. Bu açma/kapama oranı, 10 nm nanoşerit genişliğine sahip GNA örnekleri için ölçülen değerden ($I_{on}/I_{off} = 10$) %50 daha düşüktür. Ancak diğer taraftan, üretimini yaptığımız 18 nm nanoşerit genişliğindeki GNA örnekleri için elde ettiğimiz bu açma/kapama değeri, literatürde sunulan ve yaklaşık 15 nm nanoşerit genişliğine sahip GNA örneklerinin açma kapama değerleriyle ($I_{on}/I_{off} = 6$) uyuşmaktadır. $V_{sd} = 0,3$ V sürme akımı etkisi altında örneğin açma/kapa oranının yaklaşık 1,3 değerine düştüğü gözlemlenmiştir.

2. SONUÇLAR

Toplam 36 aylık bir süreyi kapsayan proje dönemleri boyunca, grafen nanoşerit ağı yapılarının, özellikle SiC tabanlar üzerinde büyütülen bir veya birkaç katman grafen tabakaları üzerinde, üretimi başarıyla gerçekleştirilmiştir. Bu kapsamda, İYTE Fen Fakültesi Fizik bölümünde bulunan laboratuvarımızda, epitaksiyel grafenin yüksek sıcaklık tavlama yöntemiyle büyütülebilmesi için bir ultra yüksek vakum sistemi tasarlanmış ve kurulmuştur. Bu vakum sistemiyle proje boyunca 100'den fazla epitaksiyel grafen örneği büyütülmüş ve her bir örneğin Raman spektroskopisi ve Atomik Kuvvet Mikroskobu ölçümleri yapılmıştır. Raman spektroskopisi ve Atomik Kuvvet Mikroskobu ölçümleriyle tek katman olduğu belirlenen grafen örnekleri üzerine blok kopolimer litografisi yöntem ve teknikleriyle nanoşerit ağı yapılarının fabrikasyonu gerçekleştirilmiştir. Grafen tabanlı nanoşerit ağı yapılarının şerit genişlikleri ve periyodları taramalı elektron mikroskobu ve Atomik Kuvvet Mikroskobu ölçümleriyle belirlenmiştir. Başarıyla fabrikasyonu gerçekleştirilen ve ortalama nanoşerit eni 17-18 nm olan nanoşerit ağı yapıları üzerine temiz oda yöntem ve teknikleriyle Hall aygıtı imalatları yapılmıştır. Örneklerin elektronik taşınım karakterizasyonları imal edilen Hall aygıtları üzerinden gerçekleştirilmiştir. Düşük sıcaklıklarda (5K) elde edilen elektriksel ölçüm verilerinden, proje kapsamında büyütülen epitaksiyel grafenden imal edilen nanoşerit ağı yapılarının bir taşınım enerji bant aralığı açığa çıkartmış olduğu ve ölçülen bütün örneklerin yarileken özellik gösterdiği sonucuna varılmıştır. Böylece, bir yasak enerji bandı aralığı bulunmayan tek katman grafenin, nanoşerit ağı yapıları ile alt örgü simetrisinin kırılması suretiyle, yariletken özellik sergilemesi sağlanmıştır.

Proje dönemleri boyunca yapılan bu deneysel çalışmaların, farklı nanoşerit enine ve dolayısıyla farklı deşik periyodlarına sahip diğer nanoşerit ağı örnekleri için tekrarlanarak, bu örneklerde açığa çıkan taşınım yasak enerji bandı aralığının nanoşerit ağı yapısal parametrelerine bağımlılığının ortaya çıkartılması önerilmektedir. Ayrıca, proje boyunca elektriksel karakterizasyonları tamamlanan örneklerden mikroelektronik ve optoelektronik endüstrilerine yönelik olası aygıt tasarımlarının yapılmasının araştırılması da gerekmektedir.

Tamamlanan proje kapsamında SiC tabanları üzerinde büyütülen epitaksiyel grafen ile yapılan çalışmalardan elde edilen verileri temel alan iki adet yüksek lisans tezi tamamlanmış ve ayrıca uluslararası düzeyde bir makale yayınlanmıştır. Proje sonuçlarını içeren bütün çalışmalarda TÜBİTAK desteği proje numarası ile belirtilmiştir.

3. KAYNAKLAR

- [1] K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang , S. V. Dubonos, I. V. Grigorieva, and A. A. Firsov, *Science* **306**, 666 (2004).
- [2] K. S. Novoselov, Z. Jiang, Y. Zhang, S. V. Morozov, H. L. Stormer, U. Zeitler, J. C. Maan, G. S. Boebinger, P. Kim, and A. K. Geim, *Science* **315**, 1379 (2007).
- [3] Y. Zhang, Y.-W. Tan, H. L. Stormer, and P. Kim, *Nature* **438**, 201 (2005).
- [4] C. Berger, Z. Song, X. Li, X. Wu, N. Brown, C. Naud, D. Mayou, T. Li, J. Hass, A. N. Marchenkov, E. H. Conrad, P. N. First, and W. A. de Heer, *Science* **312**, 1191 (2006).
- [5] K. S. Novoselov *et al.*, *Nature* **438**, 197 (2005).
- [6] S.Y. Zhou, G.-H. Gweon, A.V. Fedorov, P.N. First, W.A. de Heer, D.-H. Lee, F. Guinea, A.H. Castro Neto, and A. Lanzara, *Nature Mat.* **6**, 770 (2007).
- [7] J. L. Tedesco, B. L. VanMil, R. L. Myers-Ward, J. M. McCrate, S. A. Kitt, P. M. Campbell, G. G. Jernigan, J. C. Culbertson, C. R. Eddy, and D. K. Gaskill, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 122102 (2009).
- [8] W. A. de Heer, C. Berger, X. Wu, M. Sprinkle, Y. Hu, M. Ruan, J. A. Stroscio, P. N. First, R. Haddon, B. Piot, C. Faugeras, M. Potemski, and J-S. Moon, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **43**, 374007 (2010).
- [9] J. Hass, R. Feng, T. Li, X. Li, Z. Zong, W. A. de Heer, P. N. First, E. H. Conrad, C. A. Jeffery, and C. Berger, *Appl. Phys. Lett.* **89**, 143106 (2006).
- [10] J. Hass, F. Varchon, J. E. Millán-Otoya, M. Sprinkle, N. Sharma, W. A. de Heer, C. Berger, P. N. First, L. Magaud, and E. H. Conrad, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 125504 (2008).
- [11] V. Barone, O. Hod, and G. E. Scuseria, *Nano Letts.* **6**, 2748 (2006).
- [12] D. Gunlycke and C. T. White, *Phys. Rev. B* **77**, 115116 (2008).
- [13] M. Y. Han, B. Özyilmaz, Y. Zhang, and P. Kim, *Phys. Rev. Letts.* **98**, 206805 (2007).

- [14] D. Gunlycke, D. A. Areshkin, and C. T. White, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 142104 (2007).
- [15] M. Ewaldsson, I. V. Zozoulenko, H. Xu, and T. Heinzl, *Phys. Rev. B* **78**, 161407 (2008).
- [16] K. Todd, H. T. Chou, S. Amasha, and D. Goldhaber-Gordon, *Nano Lett.* **9**, 416 (2009).
- [17] M. Sprinkle, M. Ruan, Y. Hu, J. Hankinson, M. Rubio-Roy, B. Zhang, X.Wu, C. Berger, and W. A. de Heer, *Nature Nanotech.* **5**, 727 (2010).
- [18] A. Sinitskii and J. M. Tour, *J. Am. Chem. Soc.* **132**, 14730 (2010).
- [19] X. Liang, Y-S. Jung, S. Wu, A. Ismach, D. L. Olynick, S. Cabrini, and J. Bokor, *Nano Lett.* **10**, 2454 (2010).
- [20] V. Hung Nguyen, F. Mazzamuto, J. Saint-Martin, A. Bournel, and P. Dollfus, *Nanotechnol.* **23**, 065201 (2012).
- [21] J. A. Fürst, J. G. Pedersen, C. Flindt, N. A. Mortensen, M. Brandbyge, T. G. Pedersen, and A.-P. Jauho, *New J. Phys.* **11**, 095020 (2009).
- [22] K. Lopata, R. Thorpe, S. Pistinner, X. Duan, and D. Neuhauser, *Chem. Phys. Letts.* **498**, 334 (2010).

TÜBİTAK
PROJE ÖZET BİLGİ FORMU

Proje Yürütücüsü:	Yrd. Doç. Dr. CEM ÇELEBİ
Proje No:	112T773
Proje Başlığı:	Epitaksiyel Grafen Nanoşerit Ağları
Proje Türü:	3501 - Kariyer
Proje Süresi:	36
Araştırmacılar:	
Danışmanlar:	
Projenin Yürütüldüğü Kuruluş ve Adresi:	İZMİR YÜKSEK TEKNOLOJİ ENS. FEN F. FİZİK B.
Projenin Başlangıç ve Bitiş Tarihleri:	15/03/2013 - 15/03/2016
Onaylanan Bütçe:	292115.0
Harcanan Bütçe:	261700.22
Öz:	<p>İki boyutlu balistik taşınım, oda sıcaklığında kuvantum hall etkisi, Klein paradoksu ve majorana fermiyonları gibi birçok olağanüstü fiziksel olgunun ilk kez gözlemlendiği tek katman grafende, bir yasak enerji bandı aralığı bulunmamaktadır. Bu durum grafenin, özellikle mikroelektronik ve optoelektronik alanlarında, transistör veya optik duyarlı malzeme olarak kullanılabilmesini engellemektedir. İki boyutlu grafende yasak enerji bandı aralığı oluşturmak için, grafeni kuvantum noktası veya nanoşerit gibi daha düşük boyutlarda kuvantize olmuş yapılara dönüştürmek gerekmektedir. Bu gibi nanoyapıların fabrikasyonu için e-demeti litografisi ve/veya taramalı tünelleme mikroskobu (STM) litografisi gibi görece zahmetli ve karmaşık nanofabrikasyon teknikleri kullanılmaktadır.</p> <p>Bu projede, yüksek taşıyıcı yük hareketliliğine sahip tek katman epitaksiyel grafen katmanları üzerine nanoşerit ağı yapısı işlenmiş ve bu yapıların elektronik taşınım özellikleri belirlenmiştir. Bir SiC tabanı üzerinde epitaksiyel grafen büyütme ve kopolimer litografisi tekniklerinin bir arada kullanılmasıyla epitaksiyel grafen nanoşerit ağı (GNA) yapılarının seri ve sistematik üretimi gerçekleştirilmiştir. Proje kapsamında sentezi yapılan epitaksiyel GNA örgüsü üzerine, temiz oda yöntem ve teknikleri kullanılarak Hall aygıtları imal edilmiştir. Bu aygıtlar kullanılarak GNA örneklerinin, elektronik taşınım ve yarıiletken özellikleri açığa çıkartılmıştır.</p> <p>Gerçekleştirilen projenin amacı, bir yasak enerji bandı aralı bulunmayan tek katman grafenin, alt örgü simetrisinin kırılarak, yarıiletken özellikler sergileyen bir malzeme haline getirilmesidir. Bu kapsamda, proje dönemi boyunca tek katmanlı epitaksiyel grafen tabakaları 1400 - 1500 °C gibi yüksek sıcaklıklarda ve ultra yüksek vakum koşulları altında SiC tabanları üzerinde büyütülmesi sağlanmıştır. Üretimi yapılan bütün epitaksiyel grafen tabanlarının yapısal karakteristikleri, Raman spektroskopisi ve Atomik Kuvvet Mikroskobu ölçümleriyle saptanmıştır. Özellikle dünyada son yıllarda geliştirilen grafen nanoşerit ağı (GNA) yapılarının, büyütme işlemi tamamlanan yüksek taşıyıcı hareketli tek katman epitaksiyel grafenden üretimi yapılmıştır. Bir SiC tabanı üzerinde epitaksiyel grafen büyütme ve kopolimer litografisi tekniklerinin bir arada kullanılmasıyla bu yapıların seri ve sistematik üretimi gerçekleştirilmiştir. Proje kapsamında sentezi yapılan epitaksiyel GNA örgüsü üzerine, Hall aygıtları imal edilmiş ve bu aygıtlar kullanılarak GNA örneklerinin, 5K gibi krayojen sıcaklıklarda yarıiletken karakteristikleri belirlenmiştir.</p> <p>Toplam 36 aylık bir dönem boyunca gerçekleştirilen bu projedeki bütün deneysel çalışma ve faaliyetler Türkiye Bilimsel ve Teknolojik Araştırma Kurumu (TÜBİTAK) tarafından 112T773 proje numarasıyla desteklenmiştir.</p>
Anahtar Kelimeler:	Yarıiletken, Epitaksiyel Grafen, Nanoşerit Ağı, Elektronik Taşınım
Fikri Ürün Bildirim Formu Sunuldu Mu?:	Hayır

Projeden Yapılan Yayınlar:

1- Epitaxial graphene contact electrode for silicon carbide based ultraviolet photodetector
(Makale - Diğer Hakemli Makale),

TÜBİTAK