



Atf için / For Citation: M. Koç, "Ultrasonik sprej piroliz ile üretilen ZnO ince filmlerin altta sıcaklıklarının yapısal ve optik özelliklerine etkisi", *Süleyman Demirel Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fen Dergisi*, 16(1), 169-178, 2021.

Ultrasonik Sprej Piroliz ile Üretilen ZnO İnce Filmlerin Altta Sıcaklıklarının Yapısal ve Optik Özelliklerine Etkisi

Murat KOÇ*¹

¹*Isparta Uygulamalı Bilimler Üniversitesi, Teknik Bilimler MYO, Elektrik ve Enerji Bölümü, Nükleer Teknoloji ve Radyasyon Güvenliği Programı, Isparta, 32100, Türkiye*

*yazışılan yazar e-posta: muratkoc@isparta.edu.tr

(Alınış / Received : 07.04.2021, Kabul / Accepted : 28.04.2021, Yayımlanma / Published: 27.05.2021)

Özet: Bu çalışmada, ZnO ince filmler; 350, 400 ve 450 °C üç farklı sıcaklıktaki altta ultrasonik sprej piroliz yöntemi ile biriktirilmiştir. ZnO ince film üretiminde çinko kaynağı olarak çinko asetat dihidrat ($Zn(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O$) kullanılmıştır. Yapılan XRD analizleri, ZnO ince filmlerin, nano boyutta hekzagonal yapıda ve baskın pik pozisyonunun (100) düzleminde olduğunu doğrulamıştır. Kristal tane boyutu Debye-Scherrer formülü kullanılarak hesaplanmış ve 324.7-442.3 Å aralığında bulunmuştur. SEM yüzey görüntüleri incelendiğinde ZnO ince filmlerin homojen bir şekilde kaplandığı ve SEM kesit görüntülerinden kalınlıkların ~251-286 nm aralığında değiştiği görülmektedir. Filmlerin yüzey pürüzlülüğü AFM ile incelenmiş ve yüzey pürüzlülük değerleri 23.00-43.44 nm aralığında elde edilmiştir. ZnO ince filmlerin UV spektrumlarından, optik geçirgenlikleri %80' in üzerinde bulunurken, yasak enerji aralıkları 3.13-3.26 eV olarak bulunmuştur.

Anahtar kelimeler: Ultrasonik sprej piroliz, ZnO, Yüzey morfolojisi, Altta sıcaklığı, Optik özellikler

Effect of Substrate Temperatures on Structural and Optical Properties of ZnO Thin Films Produced by Ultrasonic Spray Pyrolysis

Abstract: In this study, ZnO thin films were deposited at three different temperatures of 350, 400, and 450 °C by the ultrasonic spray pyrolysis method. Zinc acetate dihydrate ($Zn(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O$) was used as a zinc source in the production of ZnO thin film. XRD analysis confirmed that the ZnO thin films are in nano-sized hexagonal structure and the dominant peak position belongs the plane of (100). The crystal grain size was calculated using the Debye-Scherrer formula and found between 324.7-442.3 Å. When SEM surface images are examined, it is seen that ZnO thin films have a homogeneous structure and thicknesses vary between ~253-286 nm from SEM cross-section. The surface roughness of the films was examined with AFM, and the surface roughness values were obtained in the range of 23.00-43.44 nm. From the UV spectra of ZnO thin films, optical transmittance was found to be over 80%, and the forbidden bandgap energies in-between 3.13-3.26 eV.

Key words: Ultrasonic spray pyrolysis, ZnO, Surface morphology, Substrate temperature, Optical properties

1. Giriş

Görünür bölgede yüksek optik geçirgenliğe sahip olması ve düşük elektrik direnci sergilemesi nedeniyle geçirgen iletken oksit filmler, güneş pilleri, sıvı kristal ekranlar ve organik ışık yayan diyotlar gibi birçok opto-elektronik aygıtın bileşeni olarak kullanılmaktadır [1-3]. Opto-elektronik uygulamalarda yaygın olarak tercih edilen geçirgen iletken oksit filmler, flor katkılı kalay oksit (FTO) ve indiyum katkılı kalay oksittir (ITO) [4]. İndiyum kaynaklarının tükenmesi, kalay maliyetinin yükselmesi, ITO'nun toksik olması ve 300 °C'nin üzerinde tavlandığında direncinin önemli derecede artması, FTO'nun ısıya dirençli olmasına rağmen yüksek direnç sergilemesi bilim insanlarını geçirgen oksit filmler için yeni arayışlara yöneltmiştir [1, 5-7]. Çinko oksit (ZnO), düşük malzeme maliyeti, stabil olması, çözelti tabanlı olarak kolayca sentezlenmesi ve toksik olmamasından dolayı geçirgen iletken oksit film üretimi için dikkat çekici bir alternatiftir. ZnO, vurtzit altıgen yapıya sahiptir ve şeffaf özellik sergilemektedir. Aynı zamanda ZnO, geniş direk bant aralığına (oda sıcaklığında 3.37 eV), yüksek bağlanma enerjisine (60 meV) ve yüksek elektron mobilitesine ($115-155 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$) sahip II-VI türü bileşik olan bir n-tipi yarıiletkenidir. Sahip oldukları eşsiz kimyasal ve fiziksel özelliklerinden dolayı, özellikle katılanmış ZnO ince filmler, FTO ve ITO'ya alternatiftir [7-10]. Elektronik sanayinde, heteroeklem yapılarında [11], fotovoltaiik uygulamalarda [12], UV fotoiletken fotodedektör [13], gaz sensörü [14], transistör [15] ve güneş pili [16] gibi birçok aygıtta ZnO ince filmler kullanılmaktadır.

Yüksek performans sergileyen kaliteli bir ince film elde etmek; katkılanmaya, üretim koşullarına ve üretim tekniğine bağlıdır [9]. ZnO ince filmler, literatürde, termal buharlaştırma [17], sol-jel [18], RF magnetron saçtırma [19], kimyasal buhar biriktirme, [20], sprey piroliz [21] ve ultrasonik sprey piroliz [22] gibi üretim yöntemleri ile elde edilmiştir. Sprey piroliz, geniş alanda ince film biriktirmeye uygundur ve düşük maliyetlidir. Sprey piroliz yöntemi altaş sıcaklığının, nözülün altaşa olan mesafesinin, çözeltinin akış hızının ve oranının kontrol edilmesine imkân sağladığı için çözelti tabanlı ince filmlerin elde edilmesi için oldukça uygun bir yöntemdir [8, 23]. Ultrasonik sprey piroliz (USP) yöntemi ise sprey piroliz yönteminin avantajlarının yanı sıra malzeme tasarrufu sağlayan ve oldukça kullanışlı bir kaplama tekniğidir [24, 25].

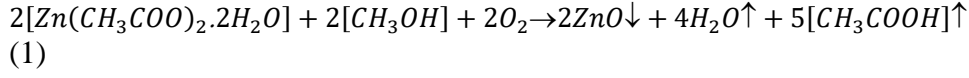
Bu çalışmada, ZnO ince filmler, USP yöntemi kullanılarak cam altlıklar üzerine çinko asetat dihidratın ($\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) pirolizi ile biriktirilmiştir. Farklı altaş sıcaklıklarında (350, 400 ve 450 °C) üretilen ve 525 °C sıcaklıkta bir saat süre ile tavlanan ZnO ince filmlerin yapısal, morfolojik ve optik özellikleri incelenmiştir. Bu çalışma ile FTO ve ITO gibi maliyetli kaynak ve üretim yöntemleri problemleri olan şeffaf iletken oksitlere bir alternatif olarak ZnO filmlerin maliyet etkin bir yöntem olan USP yöntemi ile kontrollü bir şekilde üretilebileceği gösterilmiştir.

2. Materyal ve Metot

ZnO ince filmler, 2 mm kalınlığa ve $2 \times 2 \text{ cm}^2$ yüzey alanına sahip cam altlıklar üzerine USP yöntemi ile farklı altaş sıcaklıklarında (350, 400 ve 450 °C) üretilmiştir. Cam altlıklar, inorganik ve organik kirliliklerden arındırılmak amacıyla çift distile su, etanol ve aseton ile ultrasonik olarak temizlenmiştir. Temizlenen camlar azot gazı ile kurutulmuştur.

ZnO üretiminde çinko kaynağı olarak çinko asetat dihidrat ($\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$), çinko nitrat hegzahidrat ($\text{Zn}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) ve çinko klorür (ZnCl_2) kullanılabilir [26, 27]. Bu kaynaklar arasında ($\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) ticari olarak yaygın bulunabilmesi, kolay kullanımı ve düşük maliyetli olması sebebiyle bu çalışmada tercih edilmiştir. 25 mL ve

0.1 M $(Zn(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O)$ çözeltisi hazırlanmıştır. Çözücü olarak asetik asit, su, metanol (1:1:8) karışımı kullanılmıştır. Çözelti 1 saat boyunca oda sıcaklığında manyetik karıştırıcı ile karıştırılmıştır. Çözeltinin şeffaf ve homojen olduğu, çözeltide çökmenin ya da herhangi bir topaklanmanın olmadığı gözlemlenmiştir. Olası kimyasal reaksiyon aşağıdaki gibidir [9]:



Cam altlıklar üzerine alttaş sıcaklığına bağlı ZnO ince filmlerin elde edilebilmesi için USP cihazında kullanılan parametreler Tablo 1’de verilmiştir.

Tablo 1. ZnO ince filmler için USP cihazında kullanılan parametreler

Parametreler	Değerler
Alttaş sıcaklıkları	350-400-450 °C
Çözelti akış oranı	0.5 mL/dk
Nozülün alttaşa olan mesafesi	12 cm
Nozül gaz basıncı	1.04 kPa
Sprey açısı	90°
Sprey nozül frekansı	80 kHz
Sprey nozül gücü	5.33 W

Cam altlıklar üzerine USP yöntemi ile alttaş sıcaklığına bağlı olarak kaplanan ZnO ince filmler, kül fırında 525 °C’de 1 saat boyunca tavlansmıştır. Tavlanan ince filmlerin X-ışını kırınımı (XRD) ölçümleri, Bruker D8 Advance Twin–Twin difraktometrenin (40 kV, 40 mA) Cu K α radyasyonu ($\lambda=1.5418 \text{ \AA}$) kullanılarak, 0.01° çözünürlük ile 20-80° aralığında gerçekleştirilmiştir. Filmlerin yüzey morfolojileri taramalı elektron mikroskobu (FEI Quanta FEG 250) ile incelenirken yüzey pürüzlülükleri atomik kuvvet mikroskobu (Nanomagnetics ezAFM) ile gözlenmiştir. Optik soğurma ölçümleri, oda sıcaklığında çalıştırılan UV–Vis spektrofotometre (PG-Instruments T80 +) cihazı kullanılarak oda sıcaklığında alınmıştır.

3. Bulgular

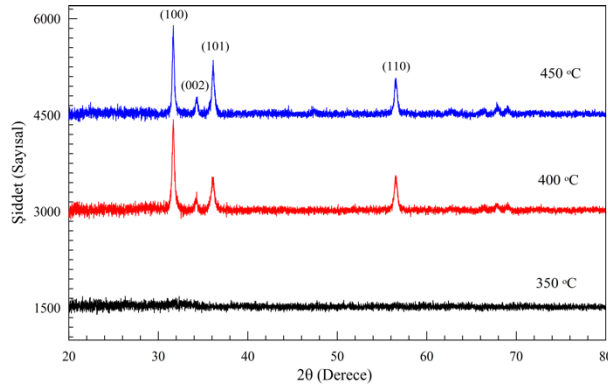
3.1. Yapısal Özellikler

350, 400 ve 450 °C’de üç farklı alttaş sıcaklığında biriktirilen ZnO ince filmlerin yapısal analizleri XRD sisteminde, $2\theta = 20-80^\circ$ aralığı taranarak Bragg-Brentano yöntemi kullanılarak yapılmıştır. Üç farklı alttaş sıcaklığında (350, 400 ve 450 °C) biriktirilen ve daha sonra 525 °C’de tavlama işlemine tabi tutulan ZnO ince filmlerin X-ışını kırınım desenleri Şekil 1 ve Şekil 2’de sırasıyla verilmiştir.

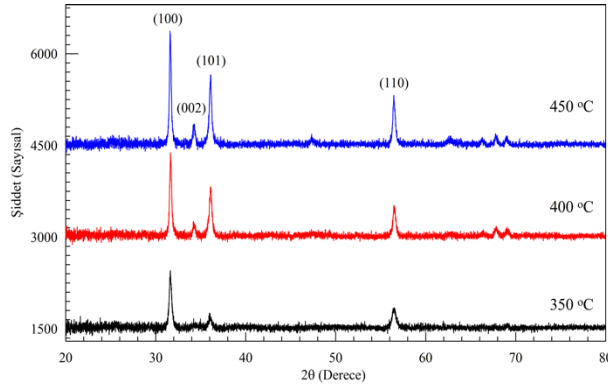
350 °C alttaş sıcaklığında biriktirilen ve tavlama işlemine tabi tutulmayan örneğin kristal yapısının oluşmadığı ve alttaş sıcaklığının artırılması ile filmlerin kristal yapısında bir iyileşme olduğu Şekil 1’de görülmektedir. Alttaş sıcaklığının artması ile termal ayrışmanın sonucu olarak kristal yapıdaki iyileşme literatürle uyum içindedir [28]. Yeterli termal enerjiye ulaşan molekül gruplarının hem organik taşıyıcılarından (C, H vb.) kurtulduğu hem de enerji bakımından daha uygun bağlar yaparak kristallenmeye katkı sağladığı düşünülmüştür. Ayrıca 525 °C’de tavlanan tüm ZnO ince filmler örneklerin hegzagonal yapıda olduğu görülmüştür.

525 °C’de tavlama işlemine tabi tutulan ZnO ince filmlerin ana pikleri $2\theta = 31.737^\circ$, 34.379° , 36.215° ve 56.536° açılarında görülmüş olup, bu açılar (100), (002), (101) ve (110) düzlemlerine karşılık gelmektedir. Kırınım desenindeki pikler, “Joint Committee

on Powder Diffraction Standards (JCPDS)” veri tabanı ile indekslenmiştir ve 01-089-1397 kart numarasına uygundur.



Şekil 1. 350, 400 ve 450 °C alttaş sıcaklığında biriktirilen ZnO ince filmlerin XRD deseni



Şekil 2. 525 °C’ de tavlanan ZnO ince filmlerin XRD deseni

Cam altlıklar üzerine biriktirilen ZnO ince filmlerin kristal boyutu (D) denklem 2’de verilen Debye-Scherrer eşitliği kullanılarak hesaplanmıştır.

$$D = K \frac{\lambda}{\beta(\cos\theta)} \quad (2)$$

Burada, β ilgili pikin maksimum yüksekliğinin yarı genişliğini (FWHM), K boyutsuz şekil faktörünü ($K=0.94$), θ Bragg açısını (radyan) ve λ kullanılan X-ışınının dalga boyunu (1.5418 Å) göstermektedir.

ZnO ince filmlerin kristal boyutu Tablo 2’de verilmiştir. Tablo 2’de görüldüğü gibi alttaş sıcaklığının artması ile kristal boyutunda artma gözlenmiş ve en yüksek kristal boyutu 450 °C alttaş sıcaklığında üretilen ZnO ince film için 442.3 Å olarak ölçülmüştür. Bu sonuç daha önce yapılan çalışma ile uyum içerisindedir [28].

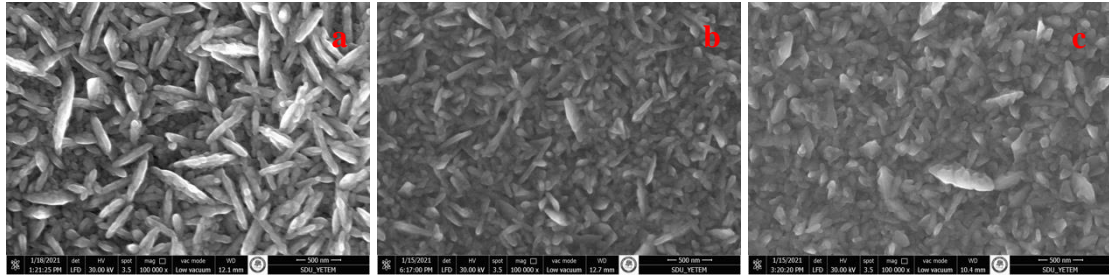
Tablo 2. USP ile biriktirilmiş ve 525 °C’de tavlanan ZnO ince filmlerin kristal boyutun farklı alttaş sıcaklıklarına bağlı olarak değişimi

Sıcaklık (°C)	Kristal Boyut (D) (Å)
350	324.7
400	385.7
450	442.3

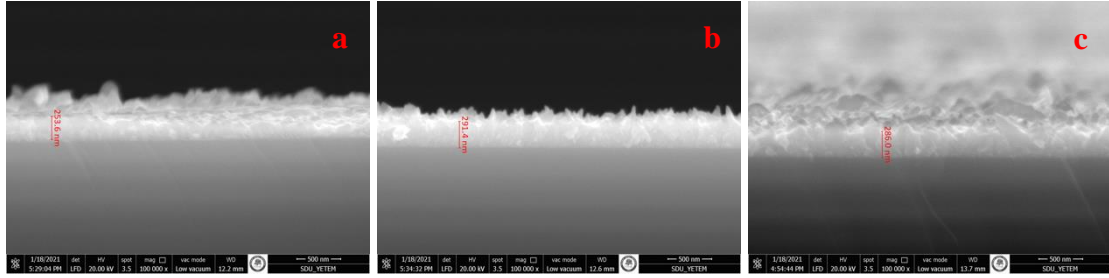
Kristal boyutlardaki artışın; ZnO ince filmlerin direncinde bir azalma ile sonuçlandığı Mahmoud ve Kiriakidis tarafından yapılan daha önceki çalışmada bildirilmiştir [29].

3.2. Morfolojik Özellikler

350, 400 ve 450 °C alttaş sıcaklıklarında biriktirilen ve 525 °C sıcaklıkta bir saat tavlanan ZnO filmlerin yüzey ve kesit SEM görüntüleri Şekil 3 ve Şekil 4'te sırasıyla verilmiştir. Farklı alttaş sıcaklıklarında yapılan ZnO ince film kaplamaların homojen bir yapıya sahip olduğu, Şekil 3'te verilen $\times 100000$ büyütme oranındaki SEM yüzey görüntüleri ile gösterilmiştir. 350 °C'de biriktirilen ZnO ince filmlerin nano-çubuk şeklinde olduğu Şekil 3a'da görülmektedir. Alttaş sıcaklığının artması ile nano-çubukların birbirlerine bağlanmaları artmış ve sıcaklığın sonucu olarak nano boyuttaki boşluklar kapanmıştır. Artan sıcaklıkla daha homojen bir yapıya dönüşen ZnO ince filmlerin yüzey pürüzlülüğünde de (Ra) artma meydana gelmiştir. Bu sonucu Atomik Kuvvet Mikroskobu (AFM) ile yapılan Ra ölçümü desteklemektedir.



Şekil 3. Farklı alttaş sıcaklıklarında biriktirilen (a) 350 °C, b) 400 °C ve c) 450 °C ve 525 °C sıcaklıkta tavlanan ZnO filmlerin yüzey görüntüleri



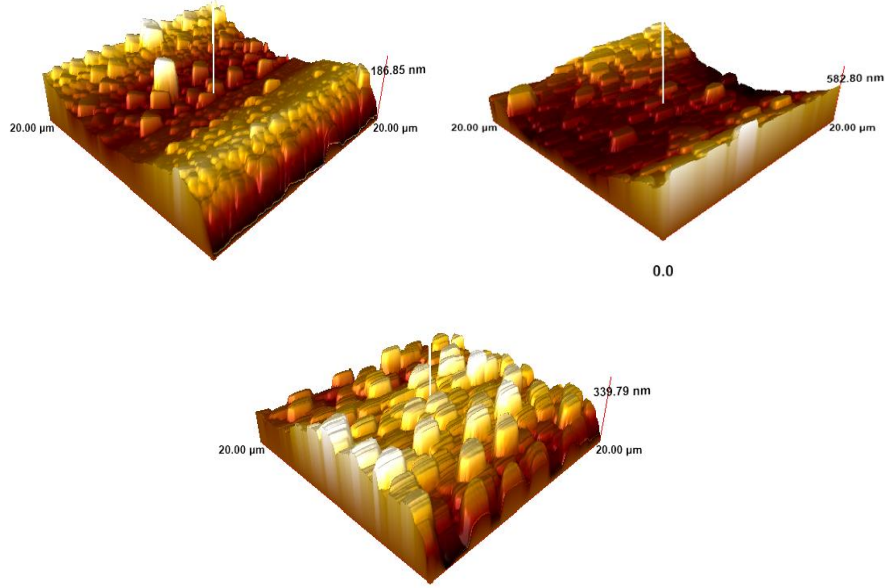
Şekil 4. Farklı alttaş sıcaklıklarında biriktirilen (a) 350 °C, b) 400 °C ve c) 450 °C ve 525 °C sıcaklıkta tavlanan ZnO filmlerin kesit görüntüleri

Kesit görüntülerinde film kalınlıkları 350, 400 ve 450 °C alttaş sıcaklıkları için sırasıyla 251 ± 10 , 289 ± 15 ve 286 ± 09 nm olarak ölçülmüştür. 350 °C alttaş sıcaklığında biriktirilen ZnO ince filmlerde amorf fazdan kristal faza geçişi tam olarak gerçekleşmediğinden film kalınlığı 400 ve 450 °C alttaş sıcaklıklarındaki filmlere göre daha düşüktür. Alttaş sıcaklığının 400 °C'den 450 °C'ye çıkmasıyla kalınlığın azaldığı gözlenmiştir.

İnce filmlerin yüzey morfolojisi hakkında bilgi veren diğer bir yöntem ise AFM analizidir. Farklı alttaş sıcaklıklarında biriktirilen (350, 400 ve 450 °C) ve 525 °C sıcaklıkta tavlanan ZnO filmlerin AFM yüzey görüntüleri Şekil 5'te verilmiştir.

AFM analizi ile 350, 400 ve 450 °C üç farklı alttaş sıcaklığı için ortalama yüzey pürüzlülük değerleri sırasıyla, 23.00, 24.63, ve 43.44 nm olarak belirlenmiştir. Yüzey pürüzlülüğünün, alttaş sıcaklığının artması ile artması Swapna ve Kumar tarafından yapılan çalışma ile uyum içindedir [30]. Ortalama yüzey pürüzlülük değerlerinden de anlaşılacağı üzere alttaş sıcaklığının artması ve tavlamanın etkisi ile Ra değeri artmıştır.

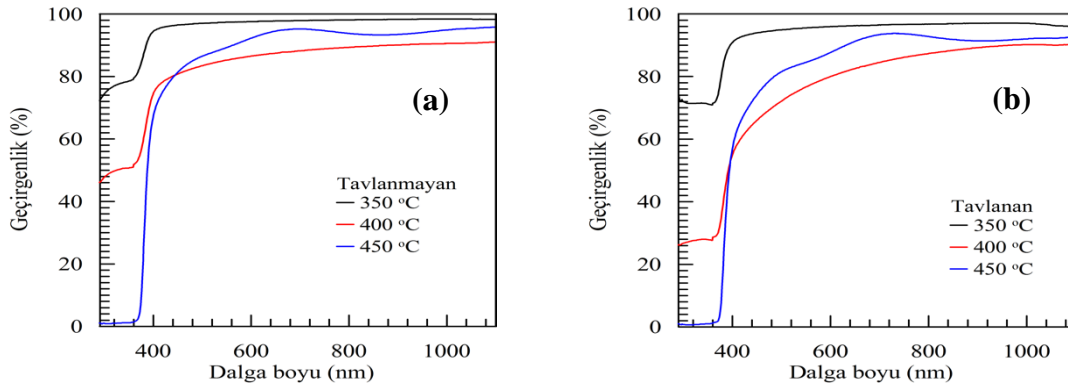
Özellikle 450 °C’de pürüzlülüğün neredeyse iki katına çıktığı görülmektedir. Alttaş sıcaklığının artması ile Ra değerindeki değişimin, XRD analizi ile verilen kristal boyutlarındaki değişimle uyum içinde olduğu görülmüştür.



Şekil 5. Farklı alttaş sıcaklıklarında biriktirilen (a) 350 °C, b) 400 °C ve c) 450 °C ve 525 °C sıcaklıkta tavlanan ZnO filmlerin AFM yüzey görüntüleri

3.3. Optik Özellikler

Şekil 6a ve 6b, farklı alttaş sıcaklıklarında (350, 400 ve 450 °C) cam üzerine biriktirilen ve 525 °C’de tavlanan ZnO filmlerinin geçirgenlik spektrumlarını göstermektedir. Tüm ZnO ince film örnekler, görünür bölgede, %80’den daha fazla geçirgenlik göstermiştir. ZnO ince filmlerin yasak enerji aralıkları, yakın ultraviyole bölgeye (~350-380 nm) karşılık geldiği için bu bölgede güçlü bir bozulma gösterir [31]. Şekil 6a’da tavlama işlemine tabi tutulmayan ZnO ince filmlerin geçirgenlikleri, Şekil 6b’de tavlama işlemine tabi tutulan ZnO ince filmlerin geçirgenliklerine kıyasla daha yüksek olduğu görülmektedir.



Şekil 6. Farklı alttaş sıcaklıklarında biriktirilen (a) 350, 400 ve 450 °C ve (b) 525 °C sıcaklıkta tavlanan ZnO filmlerin geçirgenlik spektrumu

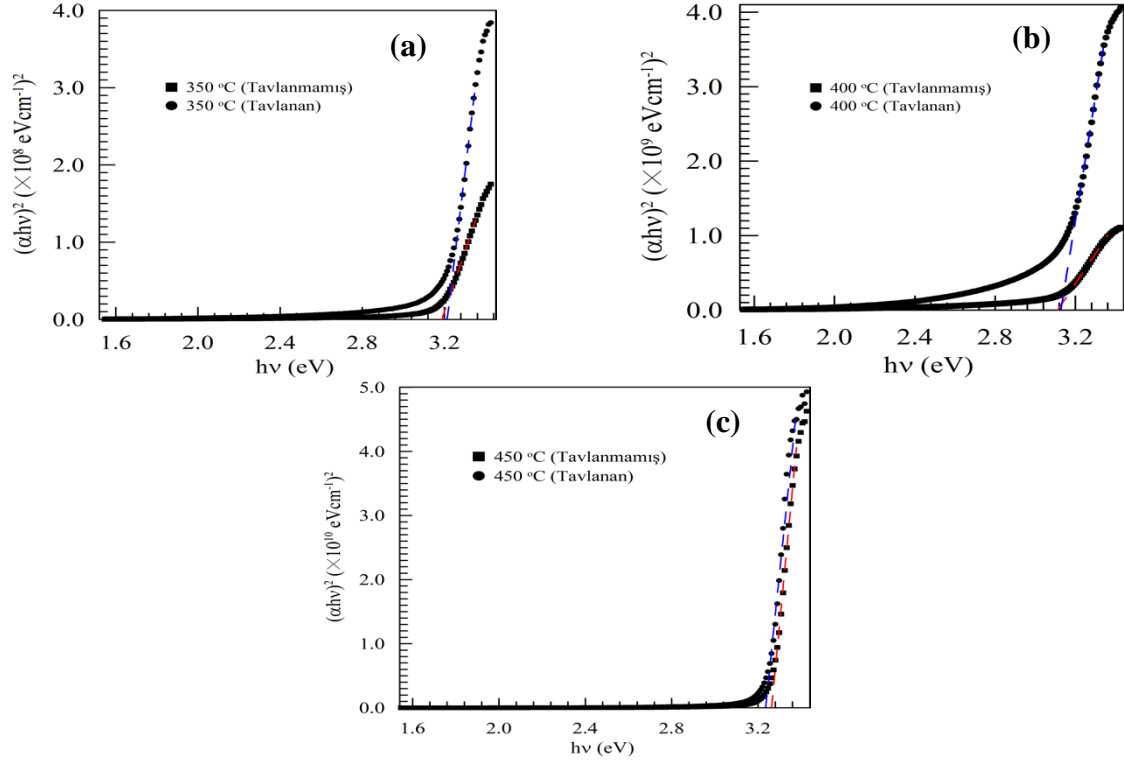
ZnO ince filmlerin geçirgenlik spektrumlarından anlaşılacağı üzere, en yüksek geçirgenlik 350 °C alttaş sıcaklığında biriktirilen örnekte görülürken, en düşük

geçirgenlik ise 450 °C alttaş sıcaklığında biriktirilen örnektir. 350 °C alttaş sıcaklığında biriktirilen ZnO ince filmin daha iyi optik geçirgenliğe sahip olmasının daha küçük yüzey pürüzlülüğünün sonucu olduğu düşünülmektedir.

ZnO ince filmlerin yasak enerji aralığı (E_g) denklem 3'te verilen Tauc eşitliği kullanılarak hesaplanmıştır.

$$\alpha h\nu = K(h\nu - E_g)^m \quad (3)$$

Burada α , soğurma katsayısı, h , Planck sabiti, ν , foton frekansı, K , bir sabit ve m ince filmin optik geçiş türüne (direkt- endirekt) ait bir katsayıdır [32]. Şekil 7'de, ZnO ince filmlerin $(\alpha h\nu)^2$ 'nin $h\nu$ 'ye karşı çizilen grafikleri görülmektedir. ZnO ince filmlerin yasak enerji aralığı değerini elde etmek için ekstrapolasyon yöntemi kullanılmıştır.



Şekil 7. Farklı alttaş sıcaklıklarında biriktirilen tavlanmamış-tavlanmış ZnO ince film örneklerinin $(\alpha h\nu)^2$ 'nin $h\nu$ 'ye karşı grafikleri ve ekstrapolasyon yöntemiyle bulunan yasak enerji (E_g) değerleri

Ekstrapolasyon yöntemi ile hesaplanan filmlerin yasak enerji aralıkları Tablo 3'te verilmiştir. ZnO ince filmlerin yasak enerji aralıkları, E_g , alttaş sıcaklığına ve tavlamanın etkisine bağlı olarak 3.13-3.26 eV aralığında değişmektedir.

Tablo 3. Farklı alttaş sıcaklarında biriktirilen ZnO ince filmlerin yasak enerji (E_g) değerleri

Alttaş Sıcaklığı (°C)	Tavlanmayan E_g (eV)	Tavlanan (525 °C) E_g (eV)
350	3.19	3.21
400	3.19	3.13
450	3.26	3.25

Rahal ve arkadaşları tarafından USP yöntemiyle farklı alttaş sıcaklıklarında biriktirilen ZnO ince filmlerinin yasak enerji aralıklarının, alttaş sıcaklığının artması ile azaldığı rapor edilmiştir [33]. Ancak yapılan bu çalışma, alttaş sıcaklığının artmasıyla ZnO ince filmlerin yasak enerji aralığında bir düşüş olduğunu göstermektedir. Diğer taraftan tavlamanın etkisiyle yasak enerji E_g 'nin artacağı Aoun ve arkadaşları tarafından yapılan çalışmada rapor edilmiştir [34]. Yapılan bu çalışmada alttaş sıcaklığına ve tavlama sıcaklığına bağlı olarak net bir sonuç görülmemektedir. Ancak 350 °C alttaş

sıcaklığında biriktirilen ve daha sonra 525 °C'de tavlanan ZnO ince filmin E_g değerindeki değişim literatürle benzerdir [33-34]. 400 ve 450 °C alttaş sıcaklıklarında biriktirilen ve daha sonra 525 °C'de tavlanan ZnO ince filmlerin E_g yasak enerji aralıklarının benzer eğilimde olduğu görülmektedir.

4. Sonuç ve Yorum

Ultrasonik sprej piroliz yöntemi ile yapılan bu çalışmada, farklı alttaş sıcaklıklarının (350, 400 ve 450 °C) ve 525 °C tavlama sıcaklığının ZnO ince filmler üzerine yapısal, morfolojik ve optik özellikleri üzerindeki etkisi araştırılmıştır. ZnO ince filmlerinin XRD spektrumu, 350 °C alttaş sıcaklığında biriktirilen filmin kristal yapısının oluşmadığını, ancak alttaş sıcaklığının artması ve 525 °C tavlama ile kristal yapının ZnO krsitaline uyduğunu göstermektedir. Ayrıca XRD sonucu, filmlerin hegzagonal yapıda ve kristal tane boyutlarının 324.7-442.3 Å aralığında olduğunu göstermektedir. ZnO ince filmlerin yüzey morfolojileri incelendiğinde kaplamaların homojen bir yapıya sahip olduğu, alttaş sıcaklığının artması ile nano-çubukların birbirlerine bağlanmalarının arttığı ve boşluklar kapandığı görülmüştür. Sıcaklığın artmasıyla filmlerin yüzey pürüzlülüğünde de (Ra) artma gözlemlenmiştir. ZnO ince filmlerin tamamı, görünür bölgede %80'in üzerinde geçirgenlik göstermiştir. Tavlama işlemine tabi tutulan filmlerin geçirgenliğinde bir miktar azalma gözlemlenmiştir. ZnO ince filmlerin, farklı alttaş sıcaklığı ve tavlamanın etkisiyle, yasak enerji değerlerinin (E_g) 3.13-3.26 eV aralığında değiştiği görülmüştür.

Araştırmacıların Katkı Oranı Beyanı

Murat KOÇ Araştırma, Deneysel Süreci Yürütme, Yazım, Doğrulama, İnceleme ve Düzenleme

Çatışma Beyanı

Bu çalışmanın yazarları olarak beyan edecek bir çıkar çatışmamız yoktur.

Etik Kurul Onayı ve Aydınlatılmış Onam Bilgileri

Bu çalışmanın yazarları olarak herhangi bir etik kurul onayı ve/veya aydınlatılmış onam bilgileri beyanımızın bulunmadığını bildiririz.

Kaynakça

- [1] C. H. Lai, Z. Y. Lee, S. C. Lin, and Y. H. Chuang, "Al-doped ZnO transparent conducting glass with an IGZO buffer layer for dye-sensitized solar cells," *IEEE J Photovolt*, 10 (3), 795-802, 2020.
- [2] A. K. Sahoo, C. S. Yang, O. Wada, and C. L. Pan, "Twisted nematic liquid crystal based terahertz phase shifter with crossed indium tin oxide finger type electrodes," *IEEE Trans. Terahertz Sci. Technol*, 9 (4), 399-408, 2019.
- [3] D. Saikia, and R. Sarma, "A comparative study of the influence of nickel oxide layer on the FTO surface of organic light emitting diode," *Indian J. Phys.*, 92 (3), 307-313, 2018.
- [4] T. Kawashima, H. Matsui, and N. Tanabe, "New Transparent Conductive Films: FTO Coated ITO," *Thin Solid Films*, 445 (2), 241-244, 2003.
- [5] D. A. Keller, H. N. Barad, E. Rosh-Hodesh, A. Zaban, and D. Cahen, "Can fluorine-doped tin oxide, FTO, be more like indium-doped tin oxide, ITO? Reducing FTO surface roughness by introducing additional SnO₂ coating," *Mrs Commun.*, 8 (3), 1358-1362, 2018.
- [6] T. V. Dang, S. V. N. Pammi, J. Choi, and S. G. Yoon, "Utilization of AZO/Au/AZO multilayer electrodes instead of FTO for perovskite solar cells," *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, 163, 58-65, 2017.
- [7] A. Andersson, N. Johansson, P. Bröms, N. Yu, D. Lupo, and W. R. Salaneck, "Fluorine tin oxide as an alternative to indium tin oxide in polymer LEDs," *Adv. Mater.*, 10 (11), 859-863, 1998.
- [8] S. J. Ikhmayies, "Spray-deposited coral-like ZnO micro/nano thin films on glass substrates," *JOM*, 73(1), 356-363, 2021.
- [9] N. Guermat, W. Daranfed, and K. Mirouh, "Extended wide band gap amorphous ZnO thin films deposited by spray pyrolysis," *Ann Chimie Sci Materiaux*, 44 (5), 347-352, 2020.
- [10] Y. Benkhetta, A. Attaf, H. Saidi, R. Messemeche, A. Bouhdjer, H. Bendjedidi, I.B. Kherkhachi, and A. Rahil, "Controlling of c-axis position of ZnO nano-crystalline films deposited at various substrate temperature by ultrasonic spray method," *Surf. Interfaces*, 21, 100698, 2020.
- [11] H. Trir, L. Radjehi, N. Sengouga, T. Tibermacine, L. Arab, W. Filali, D. Abdelkader, and N. Attaf, "Effect of annealing on the dark and illuminated I(V) characterization of a ZnO: Ga|Cu₂O hetero-junction prepared by ultrasonic spray system," *Semiconductors*, 54, 534-542, 2020.
- [12] T. Potlog, L. Gorceac, M. Taku, I. Lungu, S. Raevschi, S. Worasawat, V. Botnariuc, and H. Mimura, "Synthesis and properties of Al-doped ZnO thin films for photovoltaics," *In 2018 4th ICNERE, IEEE*, 1-6, 2018.
- [13] M. Acosta-Osorno, S. Alcántara-Iنيesta, J. Alvarado, C. D. Young, I. Mejia, M. García, J.R. Ramos-Serrano, and G. Juarez-Díaz, "Characterization of ZnO thin films obtained by ultrasonic spray pyrolysis for application in uv photoconductive detectors," *Mater. Res. Express*, 6(11), 116450, 2019.
- [14] P. S. Kolhe, A. B. Shinde, S. G. Kulkarni, N. Maiti, P. M. Koinkar, and K. M. Sonawane, "Gas sensing performance of Al doped ZnO thin film for H₂S detection," *J. Alloys Compd.*, 748, 6-11, 2018.
- [15] G. R. Lima, J. P. Braga, G. Gozzi, and L. Fugikawa-Santos, "On the reproducibility of spray-coated ZnO thin-film transistors," *Mrs Advances*, 5 (35), 1859-1866, 2020.
- [16] N. Kumari, S. R. Patel, and J. V. Gohel, "Optical and structural properties of ZnO thin films prepared by spray pyrolysis for enhanced efficiency perovskite solar cell application," *Opt. Quantum Electron.*, 50 (4), 1-22, 2018.
- [17] L. S. Chuah, H. I. Abdulgafour, and Z. Hassan, "Preparation of aluminum foil-supported ZnO nanocoral reef films," *The IJES*, 2, 42-45, 2013.
- [18] K. Davis, R. Yarbrough, M. Froeschle, J. White, and H. Rathnayake, "Band gap engineered zinc oxide nanostructures via a sol-gel synthesis of solvent driven shape-controlled crystal growth," *Rsc Advances*, 9 (26), 14638-14648, 2019.
- [19] M. Bouderbala, S. Hamzaoui, B. Amrani, A. H. Reshak, M. Adnane, T. Sahraoui, and M. Zerdali, "Thickness dependence of structural, electrical and optical behaviour of undoped ZnO thin films," *Physica B. Condens. Matter*, 403 (18), 3326-3330, 2008.
- [20] M. G. Faraj, and K. Ibrahim, "Optical and structural properties of thermally evaporated zinc oxide thin films on polyethylene terephthalate substrates," *Int. J. Polym. Sci.*, 2011, 1-4, 2011.
- [21] S. P. Bharath, K. V. Bangera, and G. K. Shivakumar, "Enhanced gas sensing properties of indium doped ZnO thin films," *Superlattices Microstruct.*, 124, 72-78, 2018.
- [22] Y. Lee, H. Kim, and Y. Roh, "Deposition of ZnO thin films by the ultrasonic spray pyrolysis technique," *Jpn J Appl Phys*, 40 (4R), 2423, 2001.
- [23] M. P. F. de Godoy, L. K. S. de Herval, A. A. C. Cotta, Y. J. Onofre, and W. A. A. Macedo, "ZnO thin films design: the role of precursor molarity in the spray pyrolysis process," *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, 31 (20), 17269-17280, 2020.

- [24] W. Yang, Z. Yang, D. Li, X., Zhang, Z. Zhou, S. Tian, Y. Tong, C. Xia, M. Liu, L. Li, and F. Wang, "Study on the growth and optical properties of ZnO thin films fabricated by ultrasonic spray pyrolysis," *Mod. Phys. Lett. B*, 32 (29), 1850351, 2018.
- [25] S. Akyürekli, M. Kaleli, M. Koç, D. A. Aldemir, "Ultrasonik sprej piroliz yöntemi ile üretilen güneş soğurucu $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3\text{-xCl}_x$ perovskit yapısının optik, morfolojik ve yapısal özelliklerinin incelenmesi," *Süleyman Demirel Üniv. FEF Derg.*, 15 (2), 253-263, 2020.
- [26] D. Gültekin, F. Kayış, H. Akbulut, "ZnO ince film kaplamaların kıvrımlı ağ morfolojisinin incelenmesi," *Bilecik Şeyh Edebali Üniv. Fen Bilim. Derg.*, 3 (1), 25-28, 2016.
- [27] B. I. Lahlouh, S. J. Ikhmayies, H. K. Juwhari, "Structural, optical, and vibrational properties of ZnO microrods deposited on silicon substrate," *J. Electron. Mater.*, 47(8), 4455-4462, 2018.
- [28] E. Karaköse, and H. Colak, "Effect of substrate temperature on the structural properties of ZnO nanorods," *Energy*, 141, 50-55, 2017.
- [29] F. A. Mahmoud, and G. Kiriakidis, "Nanocrystalline ZnO thin film for gas sensor application," *J Ovonic Res.*, 5, 15-20, 2009.
- [30] R. Swapna, and M. S. Kumar, "The role of substrate temperature on the properties of nanocrystalline Mo doped ZnO thin films by spray pyrolysis," *Ceram. Int.*, 38(5), 3875-3883, 2012.
- [31] H. Nanto, T. Minami, S. Shooji, and S. Takata, "Electrical and optical properties of zinc oxide thin films prepared by rf magnetron sputtering for transparent electrode applications," *Int. J. Appl. Phys.*, 55 (4), 1029-1034, 1984.
- [32] H. K., Kaplan ve S. K. Akay, "ZnSe/Si heteroeklem yapının fotoelektrik özelliklerinin incelenmesi," *Uludağ University JFE*, 24 (1), 265-276, 2019.
- [33] A. Rahal, S. Benramache, and B. Benhaoua, "Substrate temperature effect on optical property of ZnO thin films," *Eng. J.*, 18 (2), 81-88, 2014.
- [34] Y. Aoun, B. Benhaoua, S. Benramache, and B. Gasmı, "Effect of annealing temperature on structural, optical and electrical properties of zinc oxide (ZnO) thin films deposited by spray pyrolysis technique," *Optik*, 126 (24), 5407-5411, 2015.