



rGO/SnSbS Nanokompozitlerin Farklı Depolama Sıcaklığına Bağlı Elektriksel, Yapısal ve Yüzeysel Değerlendirmesi

Electrical, Structural, Surface Evaluation Depends on the Different Deposition Temperature of rGO/SnSbS Nanocomposites

Necmi Serkan Tezel¹ , İ. Afşin Kariper^{2,3} 

¹Department of Electrical-Electronics Engineering, Faculty of Engineering, Karabük University, 78050, Karabük, Turkey

²Department of Science Educations, Faculty of Education, Erciyes University, 38039, Kayseri, Turkey

³Erciyes Teknopark, Building Number 1, No. 41, 38039, Kayseri, Turkey

Başvuru/Received: 24/01/2022

Kabul / Accepted: 29/07/2022

Çevrimiçi Basım / Published Online: 31/07/2022

Son Versiyon/Final Version: 31/07/2022

Öz

Bu çalışmada indirgenmiş grafen oksit/sülfosalt (rGO/SnSbS) nanokompozit yapıları ticari cam taban malzemeler üzerine kimyasal banyo depolama (CBD) metodu ile 20, 40, 60 ve 80 °C sıcaklıklarda üretilmiştir. Yapısal olarak düşük sıcaklık değerlerinde amorf yapıya sahiptir ancak 80 °C sıcaklıkta Sn₂Sb₂S₅ kristallenmeleri gözlenmiştir. Artan depolama sıcaklığına bağlı 125,22 nm, 126,27nm, 132,95 nm ve 157,16 nm kalınlıklı nanokompozit yapıların daha homojen ve yoğun yapışkan kıvama geldiği görülmüştür. Elektriksel dirençleri ise four-point probe metodu ile film kalınlığına bağlı olarak I-V ölçümlerinden hesaplanmıştır ve sıcaklığın artması ile elektriksel dirençlerin düştüğü görülmüştür. Elde edilen verilere göre sıcaklığın etkisi ve kullanım alanları tartışılmıştır.

Anahtar Kelimeler

“İnce film; CBD; Sülfosal; Elektriksel direnç; Depolama sıcaklığı”

Abstract

In this study, reduced graphene oxide/sulfosalt (rGO/SnSbS) nanocomposite structures were produced at temperatures of 20, 40, 60 and 80 °C with chemical bath deposition (CBD) method on commercial glass substrates. Structurally, it has an amorphous structure at low temperature values, but crystallizations of Sn₂Sb₂S₅ have been observed at the temperature of 80 °C. It has been observed that nanocomposite structures with thickness of 125.22 nm, 126.27nm, 132.95 nm and 157.16 nm due to increased deposition temperatures have a more homogeneous and dense adhesive consistency. Their electrical resistance was calculated from I-V measurements depending on the film thickness using the four-point probe method, and it was observed that the electrical resistance decreased with increasing temperature. According to the obtained results, the effect of temperature and their usage applications have been discussed.

KeyWords

“Thin film; CBD; Sulfosal; Electrical Resistivity; Deposition Temperature”

1. Giriş

Sülfosaltlar A'nın metalik malzemeleri, B'nin yarımetalik malzemeleri temsil ettiği X'in ise kükürt (S) ya da nadiren Selenyum (Se) olabileceği $A_mB_nX_p$ kimyasal formülüne sahip kompleks bir sülfid mineralinden türetilen bileşikler olarak tanımlanır (Dittrich vd., 2009). Fiziksel buhar biriktirme (PVD), RF püskürtme, sprey proliz, sputtering, electro-deposition, darbeleri lazer birikimi, vakum buharlaştırma, sonokimyasal sentez, elektron ışını, kimyasal buhar biriktirme, termal buharlaştırma, kimyasal banyo depolama gibi yöntemler kullanılarak hazırlanan sülfosalt malzemelerin birçok özelliği çeşitli araştırmaların konusu olmuştur (Gutwirth vd., 2008; Manolache vd., 2007; Mellouki vd., 2018; Wagner vd., 2004). Tek ve polikristal güneş pillerinin aksine, ince filmler daha iyi bir alternatif olabilmektedir, çünkü az miktarda malzeme, gereksinimi karşılayabilir. İnce film güneş pillerinin verimliliği %19'a ulaşsa da, ince film emici malzeme için uygun bant boşluklarına sahip ucuz, daha az toksik, bol ve basit iki veya üç bileşenli emici malzemelerin keşfi üzerine araştırmalar devam etmektedir (Ismail vd., 2014). Bugüne kadar, ticari malzemeler olarak güneş pili uygulaması için kalay antimon sülfür ince filmlere dayanan üçlü malzemelerin kullanımına yeterince dikkat edilmemiştir (Mellouki vd., 2018). Sb, sülfosalt gibi nispeten bol elemente dayanan cis malzemelerine ve yeni yarı iletkenlere alternatif olarak yeni üçlü bileşikler hazırlamak amacıyla $SnSb_2S_4$ ince filmler potansiyel adaylar gibi görünmektedir, ancak yaygın olarak çalışılmamıştır (Gassoumi&Kanzari, 2011). $SnSbS$ sistemi son zamanlarda fotovoltaik alanında araştırılmaktadır, çünkü araştırmalar güneş pili üretimi için basit bir teknoloji ile sentezlenebilen uygun maliyetli ve toksik olmayan malzemelerin geliştirilmesine yöneliktir (Abdelkader vd., 2015). $SnSbS$ yarıiletken, düşük ve doğrudan bant aralığı nedeniyle, fotovoltaik, termoelektrik enerji dönüşümü, X-ışını dedektörleri, optik ve çeşitli sensör tipleri, optik fiberler, ince film güneş filmleri gibi teknolojik alanlardaki uygulamaları sayesinde dikkatleri üzerine çekmektedir (Dittrich et al., 2009; M. Armand & J.-M. Tarascon, 2008).

Fosil yakıtlara bağımlılık sonucu ortaya çıkan olumsuz çevre koşulları sebebiyle yenilenebilir enerji kaynakları kritik bir öneme sahiptir. Bu nedenle taşınabilir elektronik ve elektrikli araçlarda beklenen yüksek performans sebebiyle lityum iyon bataryalar ve süperkapasitörler gibi enerji depolama teknolojileri dikkat çekmektedir. Yüksek kapasiteli, uzun ömürlü ve iyi döngü kapasitesine sahip yeni elektrot malzemelerinin geliştirilmesi oldukça önem arz etmektedir. Sn, Sb ve $SnSb$ gibi metal bazlı anot malzemelerinin, mevcut lityum iyon bataryalarda (LIB) grafit anotlarının yerini almaya en uygun aday olduğu düşünülmektedir (Chen & Cheng, 2009; He vd., 2014; M. Armand & J.-M. Tarascon, 2008; Wu evd., 2013; Zou & Wang, 2011). LIB'lar için Sn bazlı materyaller 990 mAhg^{-1} ile yüksek teorik kapasite sağlayarak, anot materyalleri için umut vaat etmiştir (Lakshmi vd., 2017; Yi vd., 2017; G. Zhang vd., 2014). Ancak şarj-deşarj esnasında yaşanan oldukça yüksek hacim değişimi, malzemenin bozulmasına neden olarak döngü ömrünü ve uygulama potansiyelini olumsuz etkilemektedir (He vd., 2015). Ancak Sn-Sb gibi Sn bazlı intermetalik alaşımlar bu sorunların üstesinden gelmektedir (Dong vd., 2018; Nithyadharseni vd., 2015; L. Zhang vd., 2016). Sn ve Sb'nin spesifik kapasiteye katkıda bulunan lityum iyonlarını saklama kapasitesi ve kademeli lityum yerleştirme mekanizması sayesinde, hacim genişlemesini engelleyebilir ve elektrodun mekanik stabilitesini artırarak $SnSb$ alaşımının tek bir Sn veya Sb fazından daha iyi elektrokimyasal performans elde etmesini sağlayabilmektedir (Antitomaso vd., 2016; Fan vd., 2018; Tesfaye vd., 2017; Wang vd., 2016; Xia vd., 2016, 2017).

Mellouki ve arkadaşları (Mellouki vd., 2018) vakum termal buharlaştırma yöntemiyle elde ettikleri $SnSb_2S_4$, $Sn_2Sb_2S_5$ and $Sn_3Sb_2S_6$ ince filmlerini, özellikle fotovoltaik termal hibrit (PVT)'ler için güneş pilleri uygulamaları amacıyla yapısal ve termal özelliklerini araştırmışlardır. $200 \text{ }^\circ\text{C}$ 'de tavllanmış $SnSb_2S_4$ ince filmin, güneş pili uygulaması için iyi bir aday olarak görülmüştür. Abdelkader ve arkadaşları (Abdelkader vd., 2014) ise termal olarak buharlaştırılmış $SnSb_4S_7$, $Sn_2Sb_6S_{11}$, $SnSb_2S_4$, $Sn_4Sb_6S_{13}$, $Sn_2Sb_2S_5$ ve $Sn_3Sb_2S_6$ ince filmleri için belirledikleri optik parametreler sonucunda, tüm malzemelerin görünür aralıkta 10^4 ve $2 \times 10^5 \text{ cm}^{-1}$ arasında nispeten yüksek absorpsiyon katsayılarına sahip olduğunu ve $Sn_xSb_yS_z$ filmlerinin sırasıyla 1.87 ila 1.46 eV ve 1.71 ila 1.37 eV arasında değişen dolaylı ve dolaysız E_{gd} ve E_{gind} boşlukları gösterdiklerini tespit etmişlerdir. Huang ve arkadaşları (Huang vd., 2018) elektrospinning metodu kullanılarak potasyum iyon batarya anotları olarak $SnSb$ -G-C gözenekli çok kanallı yapıya sahip nanofiberleri sentezlemişlerdir. $SnSb$ -G-C anotları 100 mAg^{-1} akım yoğunluğunda 100 çevrimin üzerinde $275,14 \text{ mAhg}^{-1}$ lik büyük çevrim stabilitesi gösterirken, 1 Ag^{-1} de $207,27 \text{ mAhg}^{-1}$ yüksek kapasiteye sahip olduklarını belirlemişlerdir. Jena ve arkadaşları (Jena vd., 2018) lityum iyon bataryaları için indirgenmiş GO tabakaları arasına nitrojen (N) katılanmış sandviç bir yapı olan Sn-SnSb aktif matrisi alaşımını sentezlemişlerdir. N-rGO ile tasarlanan Sn-SnSb nano kompozit anotlarda özelliklerin bu kombinasyonu 2. çevrim boşalma spesifik kapasitansı 705 mAg^{-1} ; $0,1 \text{ Ag}^{-1}$ de 200 çevrimden sonra ise spesifik kapasitans 500 mAhg^{-1} 'dir. 120 çevrim için $0,8 \text{ Ag}^{-1}$ de 400 mAhg^{-1} kalan kapasiteyi göstermektedir. % 10 ve % 40 oranlarında N-rGO nanokompozit mevcut ticari grafitik anotlara göre oldukça iyi bir performans göstermiştir.

Bu malzemelerin yapısal, morfolojik ve optik özellikleri, hazırlama yöntemi, film kalınlığı, tavlama sıcaklığı ve substrat sıcaklığı gibi birçok faktöre bağlı olarak değişiklik göstermektedir. Bu çalışmada, cam lameller üzerinde indirgenmiş grafen oksit rGO/ $SnSbS$ nanokompozit yapıları Kimyasal Banyo Depolama Metodu (CBD) vasıtasıyla farklı depolama sıcaklıklarında ($20 \text{ }^\circ\text{C}$, $40 \text{ }^\circ\text{C}$, $60 \text{ }^\circ\text{C}$ ve $80 \text{ }^\circ\text{C}$) üretilmiştir. XRD ve FTIR ile yapısal özellikleri, FESEM ile iki boyutlu (2D), AFM ile üç boyutlu (3D) yüzey morfolojileri analiz edilmiştir. EDX ile de bileşim analizleri belirlenen rGO/ $SnSbS$ nanokompozit yapılar için akım-voltaj (I-V) ölçümlerinden ve film kalınlıklarından yararlanarak elektriksel direnç değişimleri hesaplanmıştır. Elde edilen sonuçlar ışığında rGO/ $SnSbS$ nanokompozit yapıların sıcaklığa bağlı olarak yük taşıma kabiliyetleri ve dolayısı ile kullanım alanları hakkında bilgiler edinilecektir.

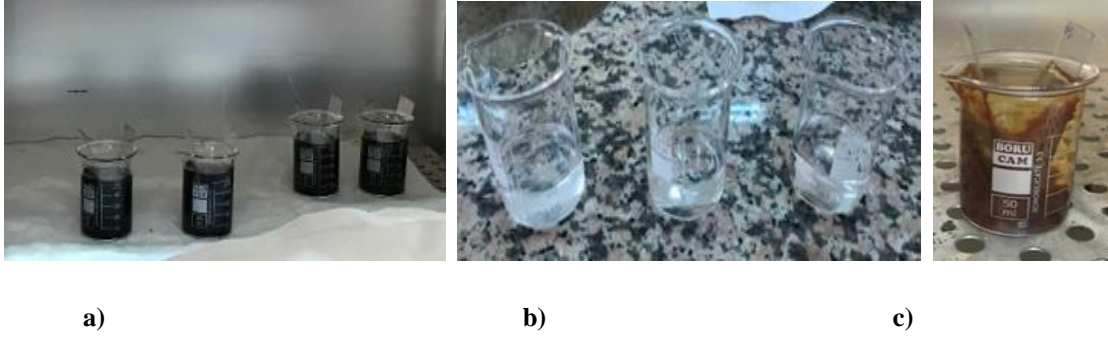
2. Deneysel Yöntem

2.1. rGO/SnSbS Nanokompozitlerin Sentezi

rGO/SnSbS nanokompozit yapıların sentezi üç aşamada gerçekleşmiştir. Birinci aşamada grafen oksit çözeltisi hazırlanmıştır. 0,16 g grafen oksitin (GO), 25 ml metanol (CH_3OH) içinde çözdürülmesiyle hazırlanan GO çözeltisinin üzerine 75 ml damıtık su eklenerek, 50°C 'de ultrasonik banyoda 15 dk karıştırılıp grafen oksit çözeltisi elde edilmiştir. Daha sonra 30 ml distile su içerisine 20 ml grafen oksit çözeltisi eklenmiştir ve dört ayrı beherde hazırlanmıştır. Bu dört grafen oksit çözeltilerine birer adet cam lamel daldırılmış ve 80°C 'de 50 dk fırın içerisinde bekletilmiş ve çıkarılan numuneler kurumaya bırakılmıştır.

İkinci aşamada ise, daha kısa sürede çözünmenin meydana gelmesi için, üç ayrı beher içerisinde sırasıyla 0,0456 g (2×10^{-4} mol) Antimon Klorür (SbCl_3) katısı 20 ml metanolde (CH_3OH), 0,0379 gr (2×10^{-4} mol) Kalay Klorür (SnCl_2) katısı 20 ml metanolde (CH_3OH) ve 0,0480 g (2×10^{-4} mol) Sodyum Sülfür (Na_2S) katısı 20 ml metanolde (CH_3OH) çözdürülmüş ve 3 ayrı beherde toplam 60 ml üç ayrı çözelti hazırlanmıştır.

Son aşamada ise, 80 ml beher içerisinde hazırlanan bütün çözeltiler bir araya getirilerek dört adet 60 ml'lik SnSbS turuncu renkli kimyasal banyo hazırlanmıştır. Sonrasında grafen oksit çözeltisinden çıkarılıp kurutulan cam lameller 60 ml'lik SnSbS kimyasal banyo içerisine yerleştirilerek 20°C , 40°C , 60°C ve 80°C sıcaklıklarda 1 saat süreyle ayrı ayrı etüve yerleştirilmiştir. Kimyasal depolama sonunda banyolardan çıkarılan numuneler saf su ile yıkanıp kurutularak rGO/SnSbS/cam nanokompozit yapılar elde edilmiştir (Şekil 1).



Şekil 1. a) Cam lamellerin rGO ile kaplanması, b) Üç ayrı beherde sırası ile 20 ml antimon klorür, sodyum sülfür ve kalay klorür çözeltileri, c) cam lamellerin 60 ml'lik SnSbS kimyasal banyoda depolanması.

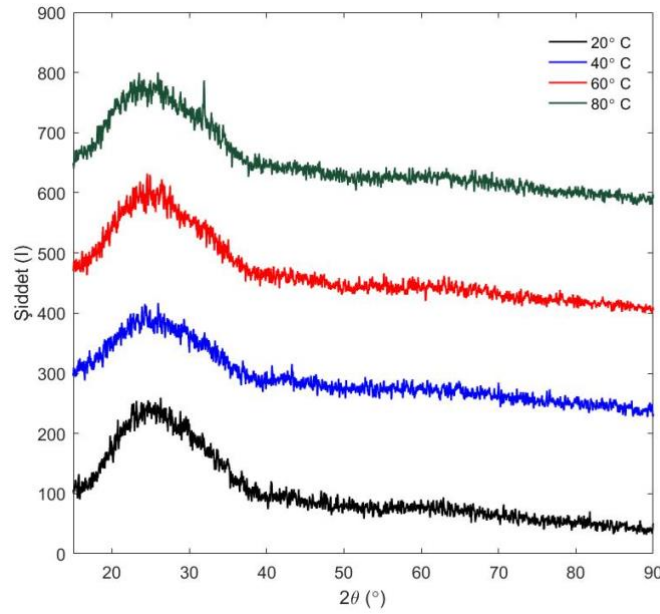
2.2. Analizler

X-ışını kırınım desenleri (XRD), $10^\circ < 2\theta < 90^\circ$ aralığında bir $\text{CuK}\alpha_1$ radyasyon kaynaklı XRD kırınım cihazı (Bruker AXS D8 model, $\lambda = 1.5406 \text{ \AA}$) ile 3° 1/dk. hızında 0.02° lik bir step ile ölçülmüştür. GO ve SnSbS titreşim pikleri ise FTIR (Bruker Alpha) ile karakterize edilmiştir. Numunelerin iki boyutlu (2D) yüzey morfolojileri FESEM (Carl Zeiss Ultra Plus Gemini FESEM) ile incelenmiş; film kalınlığı, üç boyutlu (3D) yüzey morfolojileri ve yüzey pürüzlülükleri AFM (Veeco Multimode 8) ile incelenmiştir. Bileşim analizleri ise EDX ile yapılmıştır. Elektriksel direnç performansları ise Keithley 2400 Sourcemeter ve 2100/220 Keithley multimeter cihazından oluşan dört nokta tekniği I-V ölçümleri alınarak hesaplanmıştır.

3. Sonuçlar ve Tartışma

3.1. Yapısal, yüzeysel ve bileşim karakterizasyonu

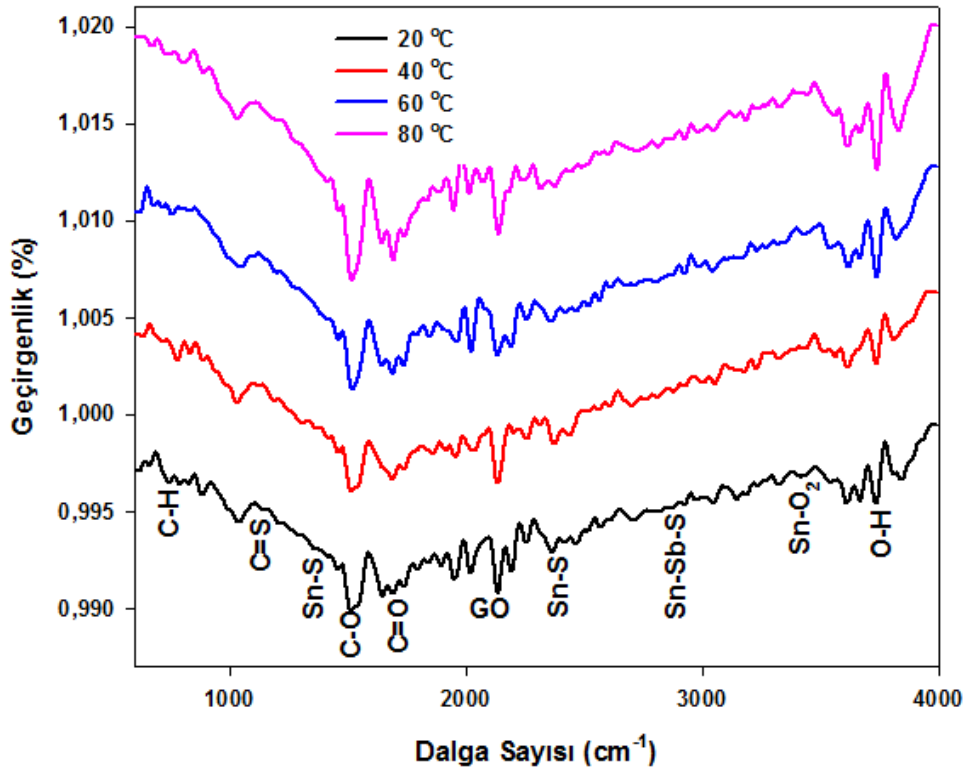
rGO/SnSbS nanokompozit yapıların farklı depolama sıcaklıklarında (20°C , 40°C , 60°C ve 80°C) $2\theta = 10^\circ - 90^\circ$ 'de elde edilen XRD kırınım pikleri Şekil 2'de verilmiştir.



Şekil 2. Farklı Sıcaklıklarda Depolanan rGO/SnSbS Nanokompozit Yapıların XRD Kırınım Desenleri.

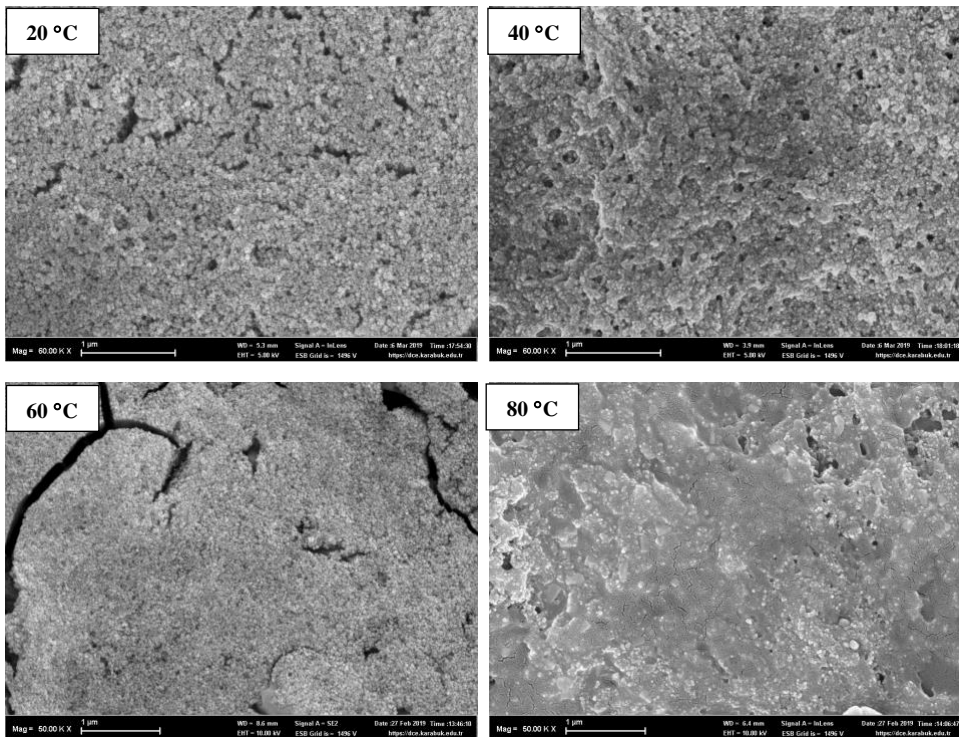
Farklı depolama sıcaklıklarında (20 °C, 40 °C, 60 °C ve 80 °C) elde edilen rGO/SnSbS yapılarına ait, 20, 40 ve 60 °C için XRD kırınım desenlerinde belirgin bir şekilde amorf yapı gözlenmiştir. Ancak 80 °C için yarı amorf-kristalli yapıya sahip olduğu görülmektedir. $2\theta=31.94^\circ$ de elde edilen (6 0 2) Miller indisli $\text{Sn}_2\text{Sb}_2\text{S}_5$ (JCPDS, card no. 35-1469) kristal yapının oluştuğu belirlenmiştir. Sıcaklığın artması ile atomların termal enerjileri artmasına rağmen kararlı pozisyonda yönlenmeye devam etmişlerdir. $\text{Sn}_2\text{Sb}_2\text{S}_5$ kristalleri düşük substrat sıcaklığında kristallenmektedir. $2\theta=31,65^\circ$, $31,67^\circ$ ve $31,58^\circ$ de sırası ile SnSb_2S_4 , $\text{Sn}_2\text{Sb}_2\text{S}_5$ ve $\text{Sn}_3\text{Sb}_2\text{S}_6$ fazlarının güçlü kırınım pikleri vardır. Ancak bu fazların içerisinde $\text{Sn}_2\text{Sb}_2\text{S}_5$ fazı en yüksek ve keskin pik gösterir. Mellouki ve arkadaşları vakum termal buharlaştırma yöntemi ile elde ettikleri SnSbS ince filmleri 200 °C’de tüp fırın içerisinde tavlama işlemi yapmışlardır. Tavladıktan sonra SnSb_2S_4 , $\text{Sn}_2\text{Sb}_2\text{S}_5$ ve $\text{Sn}_3\text{Sb}_2\text{S}_6$ ’dan oluşan polikristalli yapı elde etmişlerdir. Hem Mellouki ve arkadaşlarının (Mellouki vd., 2018) hem de Abdelkader ve arkadaşlarının (Abdelkader vd., 2014) $\text{Sn}_2\text{Sb}_2\text{S}_5$ fazı için, yapılan bu çalışmadaki kristal yapılarla uyum içerisinde olduğu görülmüştür.

rGO/SnSbS nanokompozit yapıların kimyasal bağlarını belirlemek amacıyla yapılan FTIR analizleri, 600 ile 4000 cm^{-1} dalga sayısı aralığında gerçekleştirilmiştir. Şekil 3’te verilen sonuçlara göre 746 cm^{-1} ’de oluşturulan pikler C-H gerilme titreşimlerini, 1498 cm^{-1} C-O piklerini (Nasrollahzadeh vd., 2014; Sudesh vd., 2013), 1694 cm^{-1} ’de C=O titreşimlerini (<https://www.chemguide.co.uk/analysis/ir/interpret.html>; 2019), 1151 cm^{-1} ’de C=S titreşimlerini (Duan vd., 2016), 1385 cm^{-1} ve 2354 cm^{-1} ’de Sn-S titreşimlerini (Khel vd., 2005; Mariappan vd., 2011), 3409 cm^{-1} ’de ise Sn-O₂ titreşimlerini (Akram vd., 2016) ve son olarak 2862 cm^{-1} ’de Sn-Sb-S titreşimlerini (Li vd., 2015) göstermektedir. Alt tabakada kayda değer miktarda film oluştuğundan yaklaşık 2000 cm^{-1} ’de grafen oksitin gerilme titreşimi (Nasrollahzadeh vd., 2014; Sudesh vd., 2013) gözlemlenebilmekte, bu nedenle yapıdaki diğer kimyasal bağların titreşimi düşük kalmaktadır. Ancak bu gerilme titreşimleri belirgin olduğu için şekil üzerinde gösterilmemiştir. Bu çalışmada elde edilen FTIR analizlerindeki Sn-Sb-S, Sn-S, Sn-O₂, C=S, C-O ve C=O gerilme titreşimleri elde edilen filmlerin bileşimlerini doğrulamak için yapılmıştır.

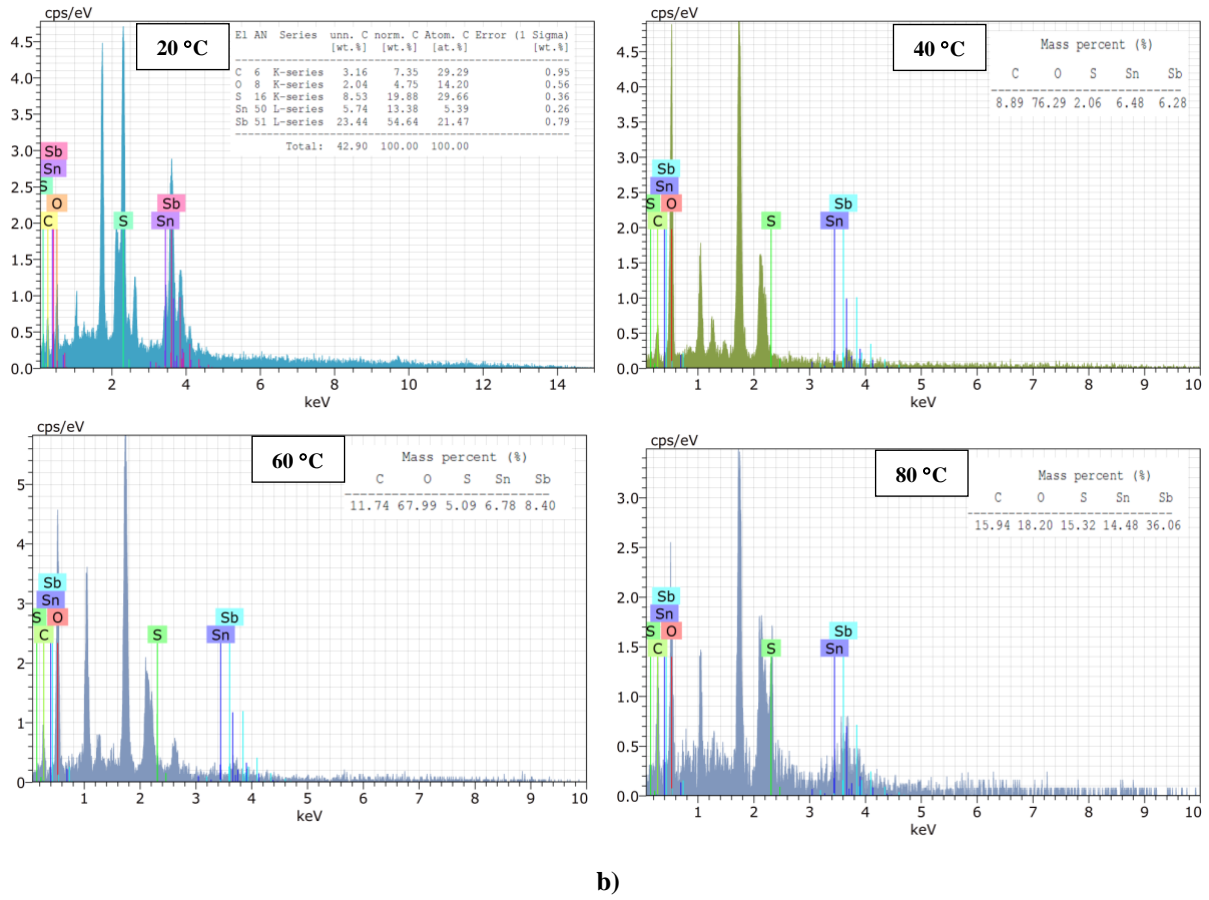


Şekil 3. rGO/SnSbS nanokompozit yapıların farklı depolama sıcaklıklarına bağlı FTIR analizleri ve titreşim pikleri.

rGO/SnSbS nanokompozit yapıların 20 °C, 40 °C, 60 °C ve 80 °C depolama sıcaklıklarındaki FESEM görüntüleri ve EDX sonuçları sırası ile Şekil 4 (a ve b)'de gösterilmektedir. Aynı büyütme oranlarında incelenen görüntülerde, genel olarak homojen görünmekle birlikte aralarında boşlukların ve çatlakların olduğu görülmektedir. Sıcaklığın artması ile birlikte gözenekler çatlaklara dönüşmüş ve sıcaklığın 80 °C'ye ulaşması ile yapışkanimsi bir görüntü elde edilmiştir. Aynı büyütme faktörlü görüntüler olmasına rağmen 20 ve 40 °C sıcaklıklarda tanelerin daha iri olduğu görülmektedir. Depolama sıcaklığının artması ile tanelerin küçüldüğü, yapının sıklaştığı ve ponza taşına benzer gözenekli yapıların olduğu görülmektedir.



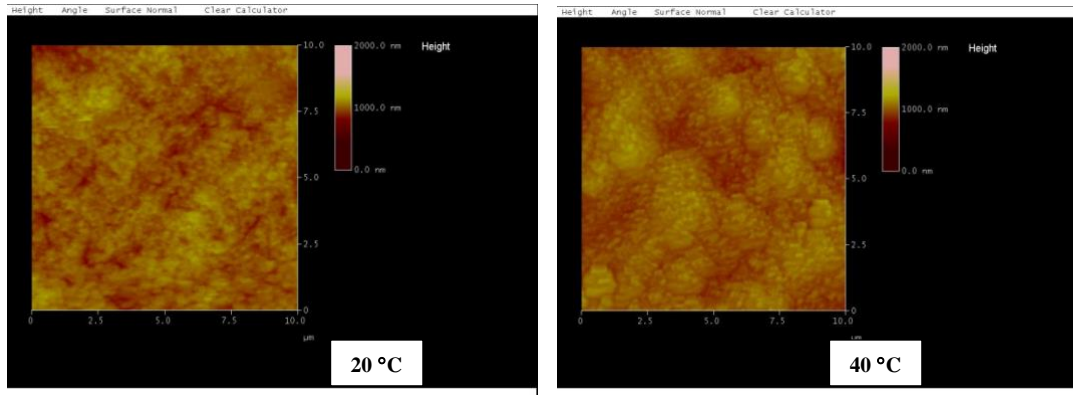
a)

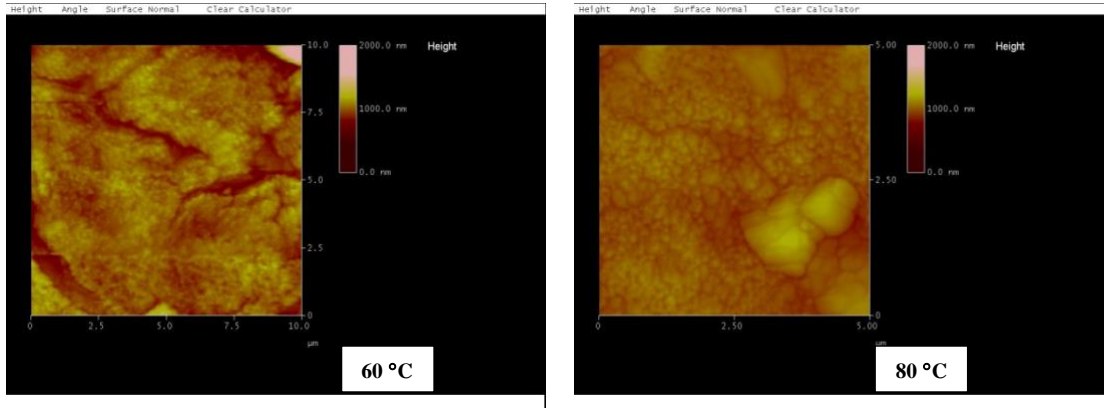


b)

Şekil 4. rGO/SnSbS nanokompozit yapıların farklı depolama sıcaklıklarına bağlı a) FESEM görüntüleri, b) EDX analizleri.

rGO/SnSbS nanokompozit yapıların farklı depolama sıcaklıklarına (20 °C, 40 °C, 60 °C ve 80 °C) bağlı üç boyutlu yüzey morfolojileri ve yüzey pürüzlülüklerinin AFM analiz sonuçları Şekil 5'de verilmiştir. rGO/SnSbS nanokompozit yapıların yüzey pürüzlülükleri (kabalıkları) artan depolama sıcaklıklarına göre sırası ile 44,11 nm, 68,86 nm, 70,17 nm ve 52,35 nm olarak belirlenmiştir. rGO/SnSbS nanokompozit yapıların artan depolama sıcaklıklarına göre kalınlıkları ise sırası ile 125,22 nm, 126,27 nm, 132,95 nm ve 157,16 nm olarak belirlenmiştir. Buna göre depolama sıcaklığının artması ile kalınlıkların arttığı, yüzeylerin daha homojen hale geldiği ve 80 °C'de kristalit yapıların düzgün bir yapı oluşturduğu görülmektedir.



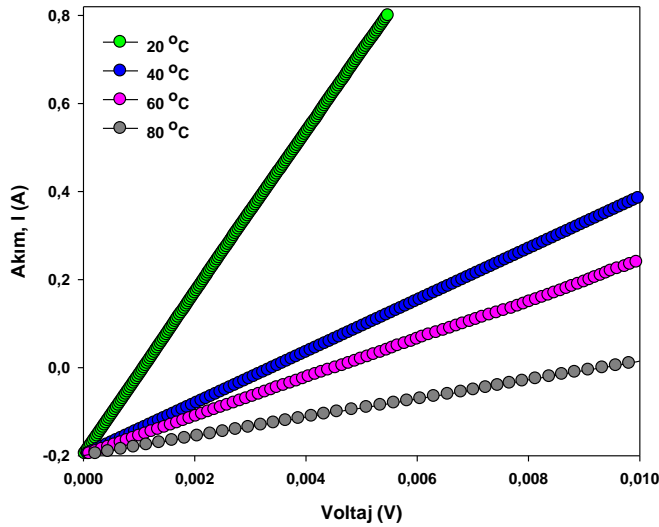


Şekil 5. rGO/SnSbS nanokompozit yapıların farklı depolama sıcaklıklarına bağlı AFM analizi.

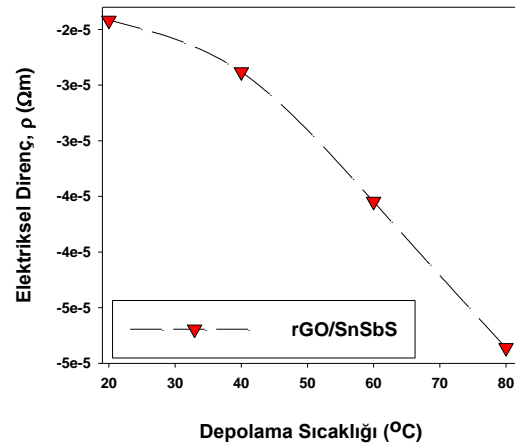
3.2. Elektriksel direnç karakterizasyonu

rGO/SnSbS nanokompozit yapıların farklı depolama sıcaklıklarına (20 °C, 40 °C, 60 °C ve 80 °C) bağlı akım-voltaj (I-V) ölçümleri Keithley 2400 sourcemeter ve 2100/220 Keithley multimetre cihazlarından oluşan dört nokta tekniği (four point probe) ile -0,2 ile +0,8 V aralığında alınmıştır. Kullanılan probe'ların yarıçapları 0,5 mm' dir. Probe'ların arasındaki uzaklık 1 mm olacak şekilde ayarlanmıştır ve gümüş pasta ile oluşturulan kontaklara hafifçe dokundurulmuştur. Bütün ölçümler oda sıcaklığında ve karanlık ortamda alınmıştır. rGO/SnSbS nanokompozit yapıların farklı depolama sıcaklıklarına (20 °C, 40 °C, 60 °C ve 80 °C) bağlı elektriksel direnç değerleri AFM analizi ile belirlenen kalınlıkları yardımı ile denklem (1) (Tezel vd., 2019-a; Tezel vd., 2019-b) kullanılarak hesaplanmıştır. Burada ρ elektriksel direnç, I akım, V potansiyel fark, t ise kalınlıkları ifade etmektedir. rGO/SnSbS nanokompozit yapıların farklı depolama sıcaklıklarına (20 °C, 40 °C, 60 °C ve 80 °C) bağlı I-V ve ρ -T grafikleri Şekil 6 (a ve b)'de verilmiştir.

$$\rho = \frac{\pi t}{\ln 2} \left(\frac{V}{I} \right) \quad (1)$$



a)



b)

Şekil 6. rGO/SnSbS nanokompozit yapıların farklı depolama sıcaklıklarına (20 °C, 40 °C, 60 °C ve 80 °C) bağlı a) akım-voltaj (I-V), b) Elektriksel Direnç-Sıcaklık (ρ -T) grafiği.

Buna göre rGO/SnSbS nanokompozit yapıların depolama sıcaklığı arttıkça elektriksel öz direnç değerlerinin azaldığı görülmektedir. Bunun sebebi vardır; birincisi sıcaklık arttıkça rGO/SnSbS nanokompozit yapıların kalınlıkları artmıştır ve amorf yapılar yarı amorf-kristalli yapılara dönüşmüştür. İkincisi ise EDX analizlerinden görüldüğü üzere elementel oranın artması ile elektriksel iletkenliğin artıp direncin düşmesidir.

4. Sonuçlar

Bu çalışma rGO/SnSbS nanokompozit yapıların farklı depolama sıcaklığına bağlı yapısal, yüzeysel ve elektriksel direncin araştırılmasını ortaya koymuştur. Elde edilen verilere göre sıcaklığın artması ile amorf yapıdan, yarı kristalli amorf yapılara dönüşüm gözlenmiştir. Ayrıca bu nanokompozit yapıların kalınlıkları sıcaklığın artması ile artmıştır ve bu durum yüzey morfolojilerinin daha homojen ve daha yoğun olmasını sağlamıştır. Sıcaklığın artması ile kalınlıkların artmasının yanı sıra elementel oranın da artması, elektriksel direncin düşmesine neden olmuştur. Böylesi düşük dirence sahip nanokompozit yapılar yük depolama cihazları/aparatları/elektrotları, güneş pilleri, güneş panelleri, ısı sensörleri, güç kaynakları-UPS, kamera flaşları, TV uydu alıcıları, yakıt hücreleri, taksi metreler, hibrit elektrik araçlar, diz üstü bilgisayarlar, uçakların acil çıkış kapılarındaki elektronik devreler vb. alanlarda kullanıma sahiptir.

Teşekkür

Bu çalışma Karabük Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri Birimi tarafından KBÜBAP-21-DS-012 nolu proje ile desteklenmiştir. Finansal desteklerinden dolayı KBU-BAP birimine teşekkür ederiz.

Referanslar

- Abdelkader, D., ben Rabeah, M., Khemiri, N., &Kanzari, M. (2014). Investigation on optical properties of $\text{Sn}_x\text{Sb}_y\text{S}_z$ sulfosalts thin films. *Materials Science in Semiconductor Processing*, 21(1), 14–19. <https://doi.org/10.1016/j.mssp.2014.01.027>
- Abdelkader, D., Chaffar Akkari, F., Khemiri, N., Gallas, B., Antoni, F., &Kanzari, M. (2015). Structural and spectroscopic ellipsometry studies on vacuum-evaporated $\text{Sn}_{2m-4}\text{Sb}_4\text{S}_{2m+2}$ ($m = 2.5, 3$ and 4) thin films deposited on glass and Si substrates. *Journal of Alloys and Compounds*, 646, 1049–1057. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2015.06.114>
- Akram, M., Saleh, A. T., Ibrahim, W. A. W., Awan, A. S., &Hussain, R. (2016). Continuous microwave flow synthesis (CMFS) of nano-sized tin oxide: Effect of precursor concentration. *Ceramics International*, 42(7), 8613–8619. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2016.02.092>
- Antitomaso, P., Fraisse, B., Sougrati, M. T., Morato-Lallemand, F., Biscaglia, S., Aymé-Perrot, D., Girard, P., &Monconduit, L. (2016). Ultra-fast dry microwave preparation of SnSb used as negative electrode material for Li-ion batteries. *Journal of Power Sources*, 325, 346–350. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2016.06.010>
- Chen, J., &Cheng, F. (2009). Combination of light weight elements and nanostructured materials for batteries. *Accounts of Chemical Research*, 42(6), 713–723. <https://doi.org/10.1021/ar800229g>
- Dittrich, H., Stadler, A., Topa, D., Schimper, H. J., &Basch, A. (2009). Progress in sulfosalts research. *Physica Status Solidi (A) Applications and Materials Science*, 206(5), 1034–1041. <https://doi.org/10.1002/pssa.200881242>
- Dong, X., Liu, W., Chen, X., Yan, J., Li, N., Shi, S., Zhang, S., &Yang, X. (2018). Novel three dimensional hierarchical porous Sn-Ni alloys as anode for lithium ion batteries with long cycle life by pulse electrodeposition. *Chemical Engineering Journal*, 350, 791–798. <https://doi.org/10.1016/j.cej.2018.06.031>
- Duan, J., Yu, J., Feng, S., & Su, L. (2016). A rapid microwave synthesis of nitrogen-sulfur co-doped carbon nanodots as highly sensitive and selective fluorescence probes for ascorbic acid. *Talanta*, 153, 332–339. <https://doi.org/10.1016/j.talanta.2016.03.035>
- Fan, W., Liu, X., Wang, Z., Fei, P., Zhang, R., Wang, Y., Qin, C., Zhao, W., & Ding, Y. (2018). Synergetic enhancement of the electronic/ionic conductivity of a Li-ion battery by fabrication of a carbon-coated nanoporous SnO: XSb alloy anode. *Nanoscale*, 10(16), 7605–7611. <https://doi.org/10.1039/c8nr00550h>
- Gassoumi, A., &Kanzari, M. (2011). Growth and post-annealing effect on the properties of the new sulfosalts SnSb_2S_4 thin films. *Physica E: Low-Dimensional Systems and Nanostructures*, 44(1), 71–74. <https://doi.org/10.1016/j.physe.2011.07.007>
- Gutwirth, J., Wágner, T., Némec, P., Kasap, S. O., &Frumar, M. (2008). Thermal and optical properties of AgSbS_2 thin films prepared by pulsed laser deposition (PLD). *Journal of Non-Crystalline Solids*, 354(2–9), 497–502. <https://doi.org/10.1016/j.jnoncrysol.2007.08.083>

- He, M., Kravchyk, K., Walter, M., & Kovalenko, M. v. (2014). Monodisperse antimony nanocrystals for high-rate li-ion and na-ion battery anodes: Nano versus bulk. *Nano Letters*, 14(3), 1255–1262. <https://doi.org/10.1021/nl404165c>
- He, M., Walter, M., Kravchyk, K. v., Erni, R., Widmer, R., & Kovalenko, M. v. (2015). Monodisperse SnSb nanocrystals for Li-ion and Na-ion battery anodes: Synergy and dissonance between Sn and Sb. *Nanoscale*, 7(2), 455–459. <https://doi.org/10.1039/c4nr05604c>
- <https://www.chemguide.co.uk/analysis/ir/interpret.html>. (2019).
- Huang, Z., Chen, Z., Ding, S., Chen, C., & Zhang, M. (2018). Multi-protection from nanochannels and graphene of SnSb-graphene-carbon composites ensuring high properties for potassium-ion batteries. *Solid State Ionics*, 324, 267–275. <https://doi.org/10.1016/j.ssi.2018.07.019>
- Ismail, B., Mushtaq, S., Khan, R. A., Khan, A. M., Zeb, A., & Khan, A. R. (2014). Enhanced grain growth and improved optical properties of the Sn doped thin films of Sb₂S₃ orthorhombic phase. *Optik*, 125(21), 6418–6421. <https://doi.org/10.1016/j.jjleo.2014.06.138>
- Jena, S., Mitra, A., Patra, A., Sengupta, S., Das, K., Majumder, S. B., & Das, S. (2018). Sandwich architecture of Sn–SnSb alloy nanoparticles and N-doped reduced graphene oxide sheets as a high rate capability anode for lithium-ion batteries. *Journal of Power Sources*, 401, 165–174. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2018.08.058>
- Khel, L. K., Khan, S., & Zaman, M. I. . (2005). SnS thin films fabricated by normal electrochemical deposition on aluminium plate. *J. Chem. Soc. Pak.*, 27(1), 24–28.
- Lakshmi, D., Nalini, B., Sivaraj, P., & Jayapandi, S. (2017). Electroanalytical studies on indium incorporated SnSb alloy anode for Li-ion batteries. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 801, 459–465. <https://doi.org/10.1016/j.jelechem.2017.08.010>
- Li, Y., Huang, L., Zhang, P., Ren, X., & Deng, L. (2015). Synthesis of Si-Sb-ZnO Composites as High-Performance Anodes for Lithium-ion Batteries. *Nanoscale Research Letters*, 10(1). <https://doi.org/10.1186/s11671-015-1128-4>
- M. Armand, & J.-M. Tarascon. (2008). Building Better Batteries. *Nature*, 451, 652–657.
- Manolache, S., Duta, A., Isac, L., Nanu, M., Goossens, A., & Schoonman, J. (2007). The influence of the precursor concentration on CuSbS₂ thin films deposited from aqueous solutions. *Thin Solid Films*, 515(15 SPEC. ISS.), 5957–5960. <https://doi.org/10.1016/j.tsf.2006.12.046>
- Mariappan, R., Mahalingam, T., & Ponnuswamy, V. (2011). Preparation and characterization of electrodeposited SnS thin films. *Optik*, 122(24), 2216–2219. <https://doi.org/10.1016/j.jjleo.2011.01.015>
- Mellouki, I., Mami, A., Bennaji, N., & Fadhli, Y. (2018). Study of doping and annealing effects on thermal properties of Sn_xSb₂S_y (1 ≤ x ≤ 3, 4 ≤ y ≤ 6) sulfosalts thin films by electro-pyroelectric technique. *Thermochimica Acta*, 670, 123–127. <https://doi.org/10.1016/j.tca.2018.10.021>
- Nasrollahzadeh, M., Jaleh, B., & Jabbari, A. (2014). Synthesis, characterization and catalytic activity of graphene oxide/ZnO nanocomposites. *RSC Advances*, 4(69), 36713–36720. <https://doi.org/10.1039/c4ra05833j>
- Nithyadharseni, P., Reddy, M. v., Nalini, B., & Chowdari, B. V. R. (2015). Electrochemical investigation of SnSb nanoparticles for lithium-ion batteries. *Materials Letters*, 150, 24–27. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2015.02.124>
- Sudesh, Kumar, N., Das, S., Bernhard, C., & Varma, G. D. (2013). Effect of graphene oxide doping on superconducting properties of bulk MgB₂. *Superconductor Science and Technology*, 26(9). <https://doi.org/10.1088/0953-2048/26/9/095008>
- Tesfaye, A. T., Yücel, Y. D., Barr, M. K. S., Santinacci, L., Vacandio, F., Dumur, F., Maria, S., Monconduit, L., & Djenizian, T. (2017). The Electrochemical Behavior of SnSb as an Anode for Li-ion Batteries Studied by Electrochemical Impedance Spectroscopy and Electron Microscopy. *Electrochimica Acta*, 256, 155–161. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2017.10.031>
- Tezel, N. S., Tezel, F. M., & Kariper, I. A. (2019a). Surface and electro-optical properties of amorphous Sb₂S₃ thin films. *Applied Physics A: Materials Science and Processing*, 125(3). <https://doi.org/10.1007/s00339-019-2475-2>
- Tezel, N. S., Tezel, F. M., & Kariper, I. A. (2019b). The impact of pH on the structural, surface, electrical and optical properties of nanostructured PbSe thin films. *Materials Research Express*, 6(7). <https://doi.org/10.1088/2053-1591/ab1675>
- Wagner, T., Krbal, M., Nemeč, P., Frumar, M., Wagner, T., Vlček, M., Perina, V., Mackova, A., Hnatovitz, V., & Kasap, S. O. (2004). AgAsS₂ amorphous chalcogenide films prepared by pulsed laser deposition. *Applied Physics A: Materials Science and Processing*, 79(4–6), 1563–1565. <https://doi.org/10.1007/s00339-004-2848-y>

- Wang, H., Wu, Q., Cao, D., Lu, X., Wang, J., Leung, M. K. H., Cheng, S., Lu, L., & Niu, C. (2016). Synthesis of SnSb-embedded carbon-silica fibers via electrospinning: Effect of TEOS on structural evolutions and electrochemical properties. *Materials Today Energy*, 1–2, 24–32. <https://doi.org/10.1016/j.mtener.2016.11.003>
- Wu, H., Yu, G., Pan, L., Liu, N., McDowell, M. T., Bao, Z., & Cui, Y. (2013). Stable Li-ion battery anodes by in-situ polymerization of conducting hydrogel to conformally coat silicon nanoparticles. *Nature Communications*, 4. <https://doi.org/10.1038/ncomms2941>
- Xia, X., Li, Z., Xue, L., Qiu, Y., Zhang, C., & Zhang, X. (2017). The electrochemical performance of SnSb/C nanofibers with different morphologies and underlying mechanism. *Journal of Materials Research*, 32(6), 1184–1193. <https://doi.org/10.1557/jmr.2016.508>
- Xia, X., Li, Z., Zhou, H., Qiu, Y., & Zhang, C. (2016). The effect of deep cryogenic treatment on SnSb/C nanofibers anodes for Li-ion battery. *Electrochimica Acta*, 222, 765–772. <https://doi.org/10.1016/j.electacta.2016.11.034>
- Yi, Z., Han, Q., Geng, D., Wu, Y., Cheng, Y., & Wang, L. (2017). One-pot chemical route for morphology-controllable fabrication of Sn-Sb micro/nano-structures: Advanced anode materials for lithium and sodium storage. *Journal of Power Sources*, 342, 861–871. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2017.01.016>
- Zhang, G., Zhu, J., Zeng, W., Hou, S., Gong, F., Li, F., Li, C. C., & Duan, H. (2014). Tin quantum dots embedded in nitrogen-doped carbon nanofibers as excellent anode for lithium-ion batteries. *Nano Energy*, 9, 61–70. <https://doi.org/10.1016/j.nanoen.2014.06.030>
- Zhang, L., Lu, L., Zhang, D., Hu, W., Wang, N., Li, Y., & Zeng, H. (2016). Dual-buffered SnSe@CNFs as negative electrode without standing lithium storage performance. <http://www.elsevier.com/open-access/userlicense/1.0/>
- Zou, Y., & Wang, Y. (2011). Sn@CNT nanostructures rooted in graphene with high and fast Li-storage capacities. *ACS Nano*, 5(10), 8108–8114. <https://doi.org/10.1021/nn2027159>