# Kuantum Hall Etkisi Ve Kırılmasının Asılı Grafende Araştırılması

**Program Kodu:** 1001

**Proje No:** 112T990

Proje Yürütücüsü:

**Doç. Dr. İsmet İ. Kaya**

Bursiyerler:

Dr. Yaser Vaheb

Cenk Yanık

M. Hadi Khaksaran

Mayıs 2016

İstanbul

# Önsöz

Tübitak Matematik-Fizik Araştırma Grubu tarafından 1001 programı kapsamında desteklenen bu araştırma projesi Sabancı Üniverisitesi Mühendislik ve Doğa Bilimleri Fakültesinin de desteğiyle ve Sabancı Üniversitesi Nanoteknoloji Araştırma ve Uygulama Merkezi SUNUM'da gerçekleştirilmiştir. Yürütücünün yanı sıra bir doktora sonrası araştırmacı ve bir doktora öğrencisinin projede tam zamanlı olarak görev aldığı proje 1 Nisan 2013 tarihinde başlamış ve 36 ayda tamamlanmıştır.

# İÇİNDEKİLER

**Tablo ve şekil listeleri** ..... **v**

**Özet** ..... **viii**

**Abstract** ..... **ix**

**1. GİRİŞ** ..... **1**

**2. LİTERATÜR ÖZETİ** ..... **2**

**Asılı grafende yük taşınımı ve kuantum Hall etkisi** ..... **2**

**3. GEREÇ VE YÖNTEM** ..... **6**

**3.1 Asılı grafenin üretimi** ..... **6**

3.1.1 Alttaş hazırlama ..... 6

3.1.2 Grafenin mekanik ayrıştırma ile elde edilmesi ..... 8

3.1.3 Optik ve Raman Analizleri ..... 9

**3.2 Aygıt fabrikasyonu** ..... **11**

3.2.1 Aygıt tasarımı ..... 11

3.2.2 Kontakların Yerleştirilmesi ..... 13

3.2.3 Öntestler ..... 15

3.2.4 Grafen aygıtın askıya alınması ..... 15

3.2.5 Alternatif kurutma yöntemi Kritik Nokta Kurutucusu ..... 16

3.2.6 Örnek tutucuya yerleştirme ve tel bağlama ..... 18

Proje kapsamında üretilen ve/veya ölçümü yapılan aygıtların listesi Ek-1'de verilmiştir. ..... **19**

**3.3 Aygıtların elektriksel karakterizasyonu** ..... **19**

3.3.1 Akım ile tavlamayla asılı grafenin temizliği ..... 20

3.3.2 Çok terminalli aygıtların temizlik problemi ..... 25

3.3.3 Grafenin Hidrojen/Argon atmosferinde organik kalıntılardan temizlenme prosedürü ..... 28

3.3.4 Çok kaynaklı akım ile tavlama tekniği ..... 29

**3.4 Grafen Nanomekanik Rezonatörleri** ..... **30**

**4. BULGULAR** ..... **31**

**4.1 Grafen aygıtın yük hareketliliğinin belirlenmesi** ..... **31**

4.1.1 Shubnikov-de Haas salınımları ve kuantum yük hareketliliği ..... 34

**4.2 Tek katman grafende kuantum Hall platolarının gözlemlenmesi..... 36**
4.2.1 Yük yoğunluğunun taranmasıyla kuantum Hall platolarının gözlemlenmesi ..... 36
4.2.2 Manyetik alan taramasıyla kuantum Hall platolarının gözlemlenmesi ..... 37
**4.3 Ultra saf asılı grafende kuantum taşınımı ve minimum iletkenlik..... 39**
4.3.1 Ultra saf asılı grafen elde edilmesi..... 39
4.3.2 Ultra saf grafende kuantum taşınım ölçümleri..... 41
4.3.3 Asılı grafende kuantum Hall etkisinin kırılması..... 49
4.3.4 Grafende iletkenlik salınımları ve zayıf yerelleşme ..... 50
**5. TARTIŞMA/SONUÇ .....57**
**KAYNAKLAR .....58**

# Tablo ve şekil listeleri

Şekil 1. Literatürdeki yüksek kalite balistik askıda grafen aygıtlarının direnç değerleri. Gözlenen öz direnç değerleri balistik kuramın öngördüğü gibi ρ ≈ 20.3 kOhm değerinin altındandır. ..... 4
Şekil 2. Yalıtkanlık durumunun gözlemlendiği hBn üzerinde grafen aygıtlar..... 5
Şekil 3. Güncellenmiş işaretleme/hizalayacı sistemi. ..... 7
Şekil 4. Temizleme işlemleri yapılmış, üzerinde grafen aytrıştırmaya hazır $SiO_X$ alt taşlar. 8
Şekil 5. Mekanik ayrıştırma yöntemi ile grafen elde edilme basamakları. ..... 9
Şekil 6. Alttaş üzerine aktarılmış tek katman grafen tabakası (işaretli) ve kalın grafit parçası. 10
Şekil 7. Çeşitli kalınlıklardaki grafen tabakalarının Raman spektrumları..... 11
Şekil 8. Layout_Editor tasarım programı ile aygıt tasarımı. ..... 12
Şekil 9. a) Tasarım, b) rezist geliştirme ve c) metal kaplama sonrası optik mikroskop görüntüleri verilen bir 6 kontaklı (Source-Drain ve 4 adet Hall uçları) bir Hall aygıtı. ..... 14
Şekil 10. Örnek direnç testlerinde kullanılan DC kontak istasyonu ..... 15
Şekil 11. Terminal askıda grafenlerin elektron mikroskobu görüntüleri. ..... 16
Şekil 12. Quorum K850 Kritik Nokta Kurutucu ve Sıvı karbondioksit tüpü..... 17
Şekil 13. Örnek taşıyıcıya yerleştirilip altın tel ile kontakları tamamlanmış ölçüme hazır bir örnek. ..... 18
Şekil 14. 2 terminalli askıda grafen için elektronik ölçüm şematiği..... 19
Şekil 15. a) Isıl tavlama öncesi, ara basamağı ve sonrası için 2K'deki kapı gerilimine karşı direnç değerleri [Bolotin vd., 2009] b ) Askıda grafenin farklı sıcaklıklarda kapı gerilimine karşı direnç değerleri [Mayorov vd., 2012]..... 21
Şekil 16. BCG_1582014_S1-4'ün akım ile tavlama işlemi öncesi (a) ve sonrası (b) direnç-kapı gerilimi eğrileri..... 23
Şekil 17. GC_2832015_Sub1-2 numaralı örneğin a) ısıl tavlama sonucu direnç eğrileri b) ısıl tavlama sonrası farklı sıcaklıklarda direnç değerleri. ..... 24
Şekil 18. Çok terminalli askıda grafenin farklı sıcaklıklar için 14-16 kontakları arasındaki öz direnç değerleri ..... 25
Şekil 19. CY_17052015_SUB1-1 nolu örenğin a) Isıl tavlama işlemi basamkları sonucu direnç eğrileri b) 8-7 kontakları arasındaki askıda grafenin kapı gerilimine karşılık direnç eğrilerinin sıcaklık ile değişimi..... 26

Şekil 20. CY_1752016_S2-1 örneğin akım ile tavlama öncesi ve sonrasında farklı sıcaklıklar için kapı gerilimine karşılık direnç değerleri. ..... 27
Şekil 21. Grafen temizliği için kullanılacak olan H2/Ar organik kalıntı arındırma sistemi. 28
Şekil 22. a) Yeni kontak tasarımı ile üretilmiş CY_07092015_SUB1-2 numaralı örneğin optik mikroskop görüntüsü b) Çok kaynaklı akım ile tavlama tekniğinin uygulanacağı elektronik ölçüm şematiği ..... 29
Şekil 23. CY_1752015_S1_1 numaralı örneğin, kapı gerilimine karşılık Direnç değerinin sıcaklık ile değişimi. ..... 31
Şekil 24. a) Kuantum Hall ölçümlerindeki dolum faktörlerinden elde edilerek hesaplanan bağlanma faktörü "α" b) Boşluk hareketliliği değerinin bulunması için uygulanan fit eğrisi c) hareketliliği değerinin bulunması için uygulanan fit eğrisi ..... 33
Şekil 25. a) CY_1752015_S1_1 numaralı örneğin 0 - 100 mT manyetik alan altında kapı gerilimine karşılık direnç eğrileri b) ± 100 mT manyetik alan altında dolum faktörü fan diyagramı. ..... 35
Şekil 26. CY_1752015_S1_1 numaralı örneğinin 0'dan1.2 Tesla'ya kadar 100'er mT manyetik alan aralığıyla kapı gerilimine karşılık iletkenlik değerlerinin nicemlenmesi. ..... 37
Şekil 27. a) Manyetik alanın taranmasıyla birlikte boşluklar( mavi) ve elektronlar (kırmızı) için direnç değerlerinde nicemlenme basamakları b) -8V ve -4V sabit kapı gerilimi ile farklı boşluk yoğunluğu durumda manyetik alan altında SdH salınımları ve dirençteki nicemlenme değerleri. ..... 38
Şekil 28. CY_792015_SUB1_2 isimli askıda grafen örneğin aşındırma sonrası optik mikroskop görüntüsü ve örnek taşıyıcıya bağlanan kontak numaraları konfigürasyonu ..... 39
Şekil 29. CY_792015_SUB1_2 nolu örnekte a) Grafene b) kontaklara c) kontaklar ve grafene ısıl tavalama uygulanması sonucu kapı gerilimine karşılık direnç değerleri. 40
Şekil 30. CY_792015_SUB1_2 nolu örneğin yük yoğunluğuna karşı 0 Tesla manyetik alanda direnç (siyah), iletkenlik (kırmızı) ve 300 mT manyetik alan altında iletkenlik nicemlenmeleri (mavi) gösterilmektedir. ..... 42
Şekil 31. Termal dönüşüm deneyleri sırasında 10 nA AC kaynak akımı ile farklı sıcaklıklar değerlerinde kapı gerilimine karşı direnç eğrileri. ..... 43
Şekil 32. a) $V_S$ = 4 μV voltaj uyarımlarıyla 0.02 - 30 K sıcaklıkları arasında direncin kapı gerilimine karşı değerleri. Yüzey grafiğindeki renk, skaladaki direnç

değerlerine tekabül etmektedir. b) Dirac noktalarına tekabül eden minimum iletkenlik noktalarının sıcaklıkla davranışı. ..... 44
Şekil 33. a) T= 15K ve T= 20 mK sıcaklık değeleri için kapı gerilimine karşılık iki terminalli iletkenlik eğrisi. Fit eğrisi , G α $G \alpha Vg$ ile gösterilip, balistik taşınım durumunu göstermektedir..... 47
Şekil 34. 2 terminal iletkenliğin manyetik alan ve kapı gerilimi altında 2 boyutlu renkli grafiği 350 mT değerinde ( kesikli beyaz düz çizgi) yalıtkanlık durumundan kuantum Hall durumuna geçiş görülebilir. Dolum faktörleri olan v = ± 1, ± 2 grafik üzerinde beyaz kısa aralıklı çizgiler dahilinde gösterilmiştir. ..... 48
Şekil 35. Yeni ayrık kontak tasarımı ve Hall-bar şekli verilerek üretilen aşındırma sonrası çökmüş Aygıt'ın elektron mikroskobu görüntüsü. ..... 50
Şekil 36. 2-terminal iletkenliğin farklı sıcaklıklarda kapı gerilimine karşı fonksiyonu. Belirginlik için farklı sıcaklıklardaki tarama eğrileri belirli bir kaydırmayla yığın haline getirilmiştir. 10 K'in altında dalgalanmalar ortaya çıkıyor. ..... 52
Şekil 37. Düzgün değişen arka plan etrafında iletkenlik dalgalanmaları. Dalgalanmalar düşük sıcaklıklarda ve Dirac noktası civarında güçleniyor. ..... 53
Şekil 38. Farklı manyetik alanlarda ve kuantum Hall sınırının altında iletkenliğe karşı kapı gerilimi grafiği..... 54
Şekil 39. Kuantum Hall rejiminde, 2-terminal iletkenliğin sıcaklık altında davranışı. 55
Şekil 40. İletkenliğin varyansının sıcaklığa göre değişimi. ..... 56

# Özet

Grafen karbon atomlarının $sp^2$ bağlarıyla altıgen örgü düzeninde bağlandığı tek atom kalınlığında iki boyutlu bir kristaldir. Doğrusal enerji-momentum bağlılığı nedeniyle çok yüksek yük hareketliğine sahip olabilen grafenin, elektronik ve opto-elektronik başta olmak üzere pek çok alanda uygulama potansiyeli vardır. Grafen malzemesinin önemli handikaplarından birisi elektronik olarak çevresel etkilere açık olmasıdır. Grafen yüzeyine tutunan moleküler düzeyde kirlilikler ya da grafenin üzerine yerleştirildiği alttaş dahi elektronik özelliklerini çarpıcı biçimde etkilemektedir. Bu projede ultra saf grafenin elektronik özelliklerinin incelenebilmesi için vakumda asılı durumda grafen aygıtlar üretilmiş ve 0.02-30 Kelvin aralığındaki sıcaklıklarda ve 12 Tesla'ya varan manyetik alan altında elektriksel ölçümleri yapılmıştır.

Proje kapsamında asılı grafen aygıtların üretimi ve ultra saflık düzeyinde temizlenme süreçleri geliştirilmiştir. Geliştirilen tekniklerle yük hareketliliği $10^6$ $cm^2$/V-s'nin üzerinde değerlere ulaşan grafen aygıtların üretilmesi başarılmıştır. Bu aygıtlarda grafenin Dirac noktası civarındaki en düşük iletkenliğinin kuramsal olarak öngörülen 4/π(e2/h) değerinin altına inebildiği gözlemlenmiştir. Ayrıca gerçekleştirilen iki-uçlu manyeto-taşınım ölçümlerinde tek katman grafende beklenen 2(2n+1) kuantum Hall dolum faktörlerinin yanı sıra vadi veya spin yozlaşmasının ortadan kalkması sonucunda ± 1. dolum faktörlerinin belirginleştiği saptanmıştır.

Düşük sıcaklıklarda ve ultra yüksek vakumda elektronik durumunu aylarca koruyabildiği gözlemlenen bu ultra saf asılı grafen aygıtlardan birisi düşük oranda çevresel gazlara maruz bırakılarak üzerinde rastgele konumlarda düşük potansiyelli saçılma merkezleri yaratılmıştır. Bu durumdaki grafen aygıtta yüksek genlikli iletim dalgalanmaları oluştuğu gözlemlenmiştir. Bu dalgalanmaların grafenin iletkenliğinde kapı gerilimiyle $10^3$ mertebesinde direnç kontrolünü sağlayabildiği ortaya konmuştur. Elde edilen sonuçlar grafenin sayısal elektronik alanında uygulanabilirliğine yönelik ipuçları vermesi açısından son derece heyecan vericidir.

Proje kapsamında ayrıca asılı grafen aygıtların nanomekanik rezonatör olarak çalıştırılmasına yönelik öncül araştırmalar yapılmıştır.

Anahtar kelimeler: Asılı grafen, kuantum Hall etkisi, iletkenlik dalgalanmaları.

# Abstract

Graphene is a two dimensional crystal formed by hexagonally arranged carbon atoms attached with $sp^2$ bonds. Due to its linear energy-momentum dispersion relation graphene can reach very high charge mobility values and has a potential to be utilized in electronics and opto-electronics applications. One of the major drawbacks of graphene as a material its vulnerability to environmental effects. Even the molecular level contaminants or the substrate that graphene resides on it can dramatically modify its electronic properties. In this project to be able to probe the electronic properties of ultra clean graphene, suspended graphene devices in vacuum were fabricated and electrically characterized at temperatures in between 0.02-30 Kelvin and magnetic fields up to 12 Tesla.

Within the scope of the project the various techniques have been develop to fabricate suspended graphene devices and treat them to reach ultra cleanliness. These lead us to produce devices with charge mobility values in excess of $10^6$ $cm^2$/V-s. We have observed that in these devices the minimum conductivity around the Dirac point can exceed the theoretically predicted value of $4/\pi(e2/h)$. In addition, in such monolayer graphene devices quantum Hall filling factors ± 1 has also emerged in the magneto-transport measurements in addition to the expected 2(2n+1) plateaus. The presence of these plateaus indicates the lifting of the valley or spin degeneracy in these devices.

One of the ultra clean suspended devices was briefly exposed to environmental gasses to generate randomly located low potential scattering centers. Such devices can keep their electronic state for months at cryogenic temperatures and ultra high vacuum. It has been observed that graphene device acquired large amplitude conductance fluctuations. These giant conductance fluctuations provided a gate control of graphene device resistance up to the range of $10^3$. These results are quite exciting to demonstrate the possibility of utilizing graphene in digital electronics.

In addition, suspended graphene devices have been used to perform preliminary observations to utilize them as nanomechanical resonators.

Keywords: Suspended graphene, quantum Hall effect, conductance fluctuations.

# 1. GİRİŞ

Yeni nesil iki boyutlu malzemelerin öncüsü olan grafen sıra dışı elektronik bant yapısı nedeniyle kuantum taşınımında yeni olguların gözlenmesi için ideal bir sistemdir. Özelliklerinin iyileştirilmesiyle ulaşılabilecek yeni deneysel gözlem imkanları, yeni fiziksel olayların ortaya konmasına ve yoğun madde fiziğinde yeni açılımlara yol açmasına neden olabilecektir. Bunun yanı sıra özellikle yüksel elektron hareketliliği nedeniyle elektronik endüstrisinde yeni bir malzeme olarak kullanıma da uygundur. Bunun aşılması gereken üretim sorunları olduğu bilinmektedir. Bunun yanı sıra grafenin niteliğinin geliştirilmesi de gerekmektedir. Üstün nitelikli ve çok saf grafen elde edebilmek önemli bir teknolojik problemdir. Bunun için denenen yöntemlerden birisi de grafeni tüm çevresel şartlardan olabildiğince soyutlamak için vakumda asılı hale getirmek ve çeşitli yöntemlerle her türlü kalıntıdan temizlemektir. Bu şekilde elde edilebilecek grafenlerde düşük sıcaklıklarda ve manyetik alan varlığında yapılacak deneyler grafenin temel özelliklerine ışık tutacaktır.

# 2. LİTERATÜR ÖZETİ

**Asılı grafende yük taşınımı ve kuantum Hall etkisi**

Mekanik ayrıştırma yöntemi ile grafitten ayrılarak ilk olarak SiOx alt taş üzerinde izole edilen tek katman grafen, 2004 yılından beri oldukça yoğun deneysel ve kuramsal çalışmaların ilgi odağı olmuştur [Novoselov vd., 2004]. Yüksek elektriksel ve ısıl iletkenlik, yüksek mekanik dayanıklılık, optik geçirgenlik gibi önemli özellikleriyle grafen günümüzde pek çok alanda geleceğin malzemesi olarak görülmektedir. Bunların yanı sıra iki boyutlu iletkenlik özelliğini ve yüksek taşıyıcı hareketliliğini oda sıcaklığına kadar koruyabilmesi nedeniyle uygulama potansiyeli konvansiyonel iki boyutlu elektron gazlarına göre çok yüksektir. Grafen ayrıca temel fizikte de yeni buluş ve gözlemlere konu olmuştur. Bunlardan ilki anormal kuantum Hall olayının gözlemlenmesidir. Kuantum Hall etkisinin gözlenebilirliği grafen gibi iki boyutlu iletkenlerin en çarpıcı özelliğidir. Yük taşıyıcıları iki boyutta sıkıştırıldığında Hall direnci nicemlenmektedir ve nicem değeri (quantized resistance) malzeme özelliklerinden bağımsız olarak sadece elektron yükü ve Plank sabitine bağlı olması ve yüksek hassasiyetle ölçülebilmesi (<1 ppb) nedeniyle günümüzde Kuantum Hall etkisi uluslararası direnç standardı olarak kullanılmaktadır.

Kuantum Hall etkisi grafende iki boyutlu elektron gazından biraz farklı olarak ortaya çıkmaktadır. Dirak noktasının varlığının yanısıra spin ve vadi yozlaşmaları nedeniyle grafende kuantum Hall olayı Hall direncinin $\sigma_{xy} = \pm 4(n+1/2)e^2/h$ şeklinde nicemlenmesiyle ortaya çıkar [Novoselov vd., 2005].

Hall aygıtı üzerinden geçen akım kritik bir değerin üzerine çıktığında kuantum Hall etkisinin aniden kırıldığı (breakdown) bilinen bir olgudur [Ebert vd., 1983]. Bu kırılma direnç standardının geliştirilebilmesinin önündeki en büyük engeldir. Deneysel olarak erişilen kritik akım değeri olgusal olarak farklı modellerle açıklanmakla birlikte [Komiyama vd., 1985] mikroskopik ölçekte kırılmanın nasıl oluştuğu üzerinde ortak yaygın bir görüş oluşamamıştır. Landau seviyelerinin $B^{1/2}$ düzeninde aralıklarla sırlandığı grafende kuantum Hall etkisi ile direnç standardının daha yüksek hassasiyette ölçülebileceği öngörülmektedir (Tzalenchuk vd., 2011). Ancak bunun

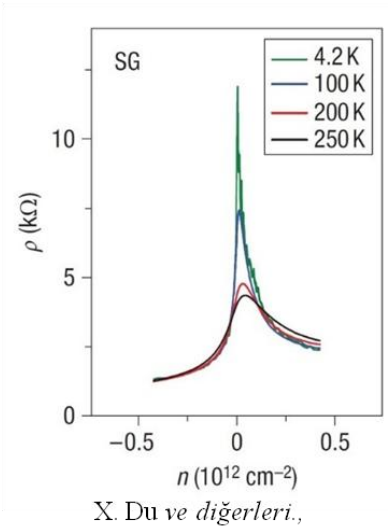
için yüksek nitelikli grafen Hall aygıtlarının üretim teknolojilerinin geliştirilmesi gerekmektedir.

Grafenin öz elektronik özellikleri, fabrikasyon sırasında oluşan ya da bir takım dış nedenli kirlenmelerin ortadan kaldırılmasıyla olarak ortaya çıkabilmektedir. Dış etkilerden kaynaklı kirlilikler, örneğin taşıyıcı yoğunluğunda homojensizliklere yol açarak, özellikle nötr yük noktası (Charge Neutrality Point, CNP, Dirac Noktası) civarında beklenen ilginç özelliklerin gözlemlenebilmesini zorlaştırmaktadır [Das vd., 2008; Chen vd., 2008; Nomura vd., 2006]. Ayrıca grafen üzerinde elektron-boşluk adacıklarının oluşumu tam anlamıyla Dirac noktasına erişilmesini örtüleyerek, düşük taşıyıcı yoğunluklarında homojensizliklere yol açmaktadır [Cho vd., 2008; Hwang vd., 2007; Martin vd., 2008; Guinea vd., 2008].

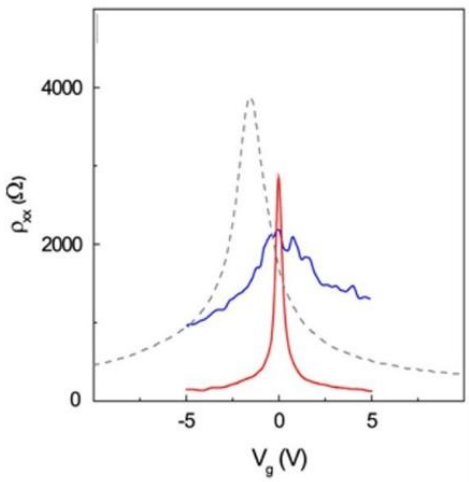
Bu dış etkilerin en aza indirilmesi için izlenen iki temel yöntem, grafen aygıtların askıda bırakılarak [Du vd., 2008; Bolotin vd., 2008] ya da atomik seviyede düzgün yüzeye sahip altıgen boron nitrit (hBN) alt taşlar üzerine konularak [Dean vd., 2010] yüksek kalite grafen aygıtlar üretmektir. Askıda grafen aygıtları üretildikten sonra özellikle ısıl tavlama yöntemleri kullanılarak temizlenmesiyle oldukça yüksek taşıyıcı hareketliliğe sahip aygıtlar elde edilebilmiştir [Du vd., 2008; Bolotin vd., 2008; Du vd., 2009; Bolotin vd., 2009; Mayorov vd., 2012; Elias vd., 2011].

Grafenin Dirac nokrası civarındaki iletkenliği kuramsal olarak ilginç bir problem olarak uzun süre tartışılmıştır. Balistik taşınım kuramına göre Dirac noktasındaki öz iletkenlik değeri en düşük $g_{CNP} \approx 4e^2/\pi h$ ($\rho \approx 20.3$ kOhm) değerine kadar inebilir [Tworzydo vd., 2006]. Bugüne kadar literatürde raporlanmış yüksek nitelikli askıda grafenler için minimum iletkenlik değeri bu kurama uyumlu olarak $4e^2/\pi h$ sınırın üzerinde kalmıştır [Şekil 1].

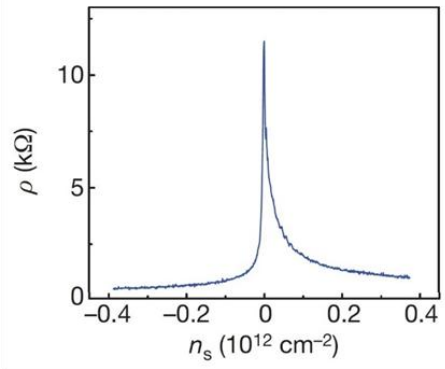
Öte yandan hBN alttaş üzerine aktarılan grafen bir aygıtta [Şekil 2a, Amet vd., 2013)] ve iki grafen yapı arasında hBN yalıtkan malzemesi kullanılarak tasarlanan bir hetero yapıda [Şekil 2b, Ponomarenko vd., 2011] bu kuramsal minimum iletkenlik değerinin çok altına ulaşılarak, yalıtkanlık davranışı gözlemlenmiştir. Bu sonuçların açıklanması henüz kuramsal olarak tartışma konusudur.



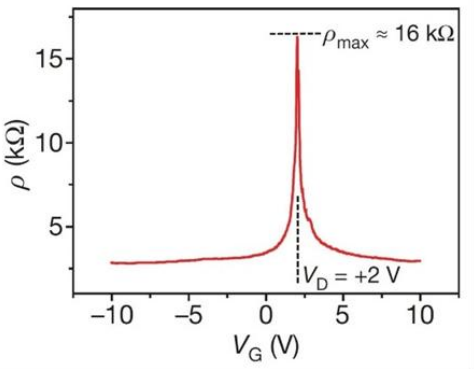

X. Du *ve diğerleri.*,
Nat. Nano **3**, 491 (2008).



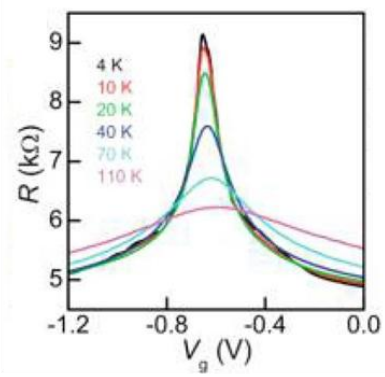

K. I. Bolotin *ve diğerleri.*,
Solid State Commun. **146**, 351 (2008).




X. Du ve diğerleri., Nature **462**, 192 (2009).



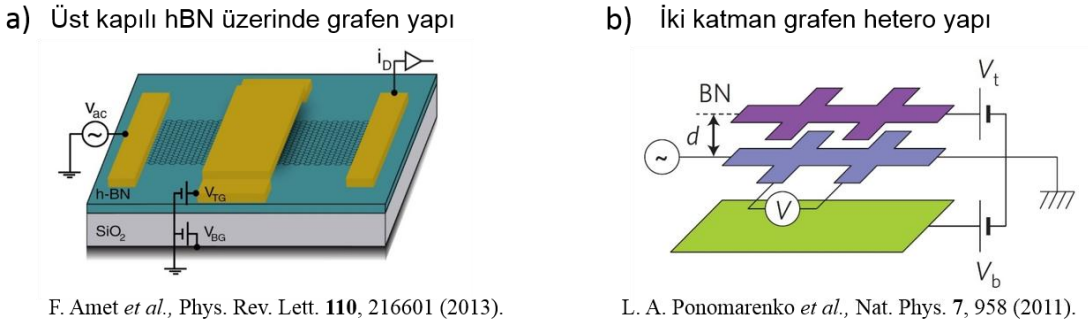

K. I. Bolotin ve diğerleri., Nature **462**, 196 (2009).




A. S. Mayorov ve diğerleri., Nano Lett. **12**, 4629 (2012).

Şekil 1. Literatürdeki yüksek kalite balistik askıda grafen aygıtlarının direnç değerleri. Gözlenen öz direnç değerleri balistik kuramın öngördüğü gibi ρ ≈ 20.3 kOhm değerinin altındandır.

Literatürde ultra temiz grafen için sadece iki deneyde gözlemlenen bu durum, hBN üzerinde grafenin vadi simetrisi kırılması sonuncu dolum faktörünün sıfır olduğu kuantum Hall durumuna gelerek, yalıtkan davranış gözlemlendiği (Amet vd., 2013), ikili grafen yapısında ise grafenin ultra saflığı (çok düşük taşıyıcı homojensizliği) göz önüne alınarak, normalde düzensiz (disordered) yapılarda gözlenen Anderson yerelleşmesine (localization) atfedilmiş ve grafenin Anderson yalıtkanı olabileceği tahmini ortaya atılmıştır (Ponomarenko vd., 2011).




F. Amet *et al.,* Phys. Rev. Lett. **110**, 216601 (2013). L. A. Ponomarenko *et al.,* Nat. Phys. **7**, 958 (2011).

Şekil 2. Yalıtkanlık durumunun gözlemlendiği hBn üzerinde grafen aygıtlar.

Sıcaklığa bağlı yalıtkanlık durumunun ortaya çıktığı önerilen ikili grafen yapısında, üstteki katmanın kapı görevi görerek alttaki katmandaki taşıyıcı konsantrasyonun kontrol etmesiyle taşıyıcı konsantrasyonlarında oldukça düşük homojensizlik elde edilmiştir. Deneyleri açıklamaya yönelik önerilen kuramsal modellerde yarı-klasik Boltzmann taşınım kuramı kullanarak "düzene bağlı düzensizlik" (disorder by order) olgusu ortaya konmuştur. Düşük sıcaklıklarda düşük taşıyıcı homojensizliğine (yüksek düzenliliğe) sahip olan grafen için taşıyıcı yoğunluk kontrollü metal-yalıtkan geçişi olabileceği diğer bir deyişle eğer örnek çok temiz ise taşıyıcı konsantrasyonu kontrol edilerek gerçek Dirac noktasına ulaşılarak normalde gözlenen direnç değerlerinden çok daha yüksek değerlere ulaşılabileceği iddia edilmiştir [Das Sarma vd., 2012]. Anderson yerelleşmesi durumunda beklenen, iletkenliğin sıcaklığa bağlılığının üstel olarak değişmesi iken, gözlemler direncin sıcaklığı bağımlılığının kuvvet yasasıyla değiştiğini göstermektedir ve bu durum da önerilen düzene bağlı düzensizlik kuramı ile uyumludur. Deneysel gözlemleri açıklamaya yönelik olarak Landauer formalizmi içinde elektron–elektron etkileşimleri göz önünü alınarak yapılan hesaplamalarda, ultra temiz grafen için minimum iletkenlik değerinin $e^2/h$ değerinin çok daha altına düşebileceği tahmin edilmiştir (Guinea vd., 2014).

# 3. GEREÇ VE YÖNTEM

## 3.1 Asılı grafenin üretimi

Sabancı Üniversitesi Nanoteknoloji Araştırma ve Uygulama Merkezi'nde 2013 Nisan ayı itibariyle kabul testleri tamamlanıp, uygulamaya hazır hale gelen Vistec EBPG 5000 plus ES 100kV elektron demeti litografi (EBL) sisteminde bir kaç ay sistem eğitimine zaman harcanmış ve daha sonrasında sistem aktif bir şekilde kullanılmaya başlanmıştır.

Alttaş'a işaretleyicilerin yerleştirilmesi ve hazırlanan aygıt kontak dizaynlarının yerleştirilmesi gibi litografi basamaklarının tamamı Vistec EBL sistemi kullanılarak gerçekleştirilmiştir.

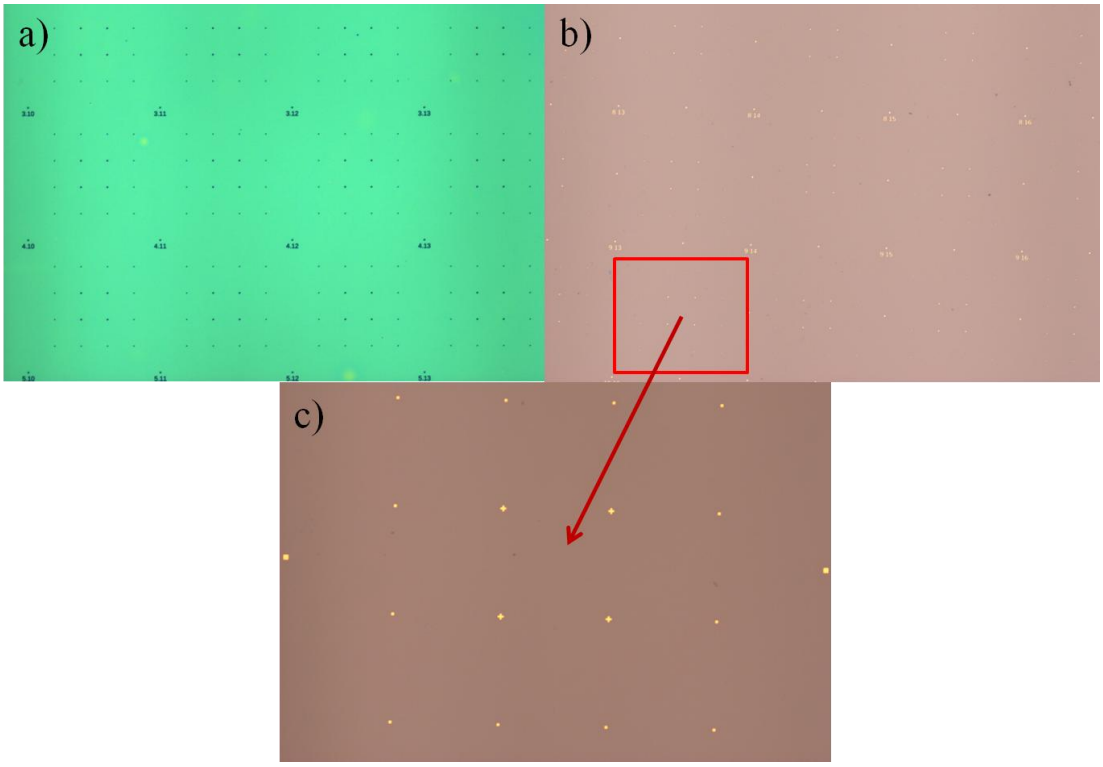
### 3.1.1 Alttaş hazırlama

Öncelikle alt taş ($SiO_x$) üzerine, detaylı bir işaretleyici - referans sistemi oluşturulmuştur. Daha öncesinde optik litografi ile koyulan numaralar - işaretleyiciler geliştirilip belli periyodik yapıya sahip küçük "artı " ve " kareler" elektron demeti litografisi ile çok yüksek çözünürlükte uygulanmıştır. Bütün yapı 1cm x 1cm periyoda sahip olup 4" $SiO_x$ alt taş üzerinde bütün alana uygulanmıştır. [Şekil 3.(a)] bu yapıların bir bölümünün elektron demeti litografisi uygulanıp rezist geliştirilmesinden (development) sonraki görüntüsüdür. Alt taşa işaretleyici tasarımlarının yerleştirilmesi prosesinde alt taş üzerine tek katman 950 PMMA A4 rezist'i kullanılmıştır.

Bu aşamada gerçekleştirilen reçete şöyle özetlenebilir;

- 4" $SiO_x$ alt taş, 5000 rpm ile dönrürülerek, 950 PMMA A4 rezist'i kaplanır.
- Rezist kapalanan alt taş 170 $^oC$' de 5 dakika ısıtılır.
- Alt taşa, elektron demeti litografisi ile tasarlanan işaretleyici sistemi 800 $\mu C/cm^2$ elektron doz değeri ile uygulanır.

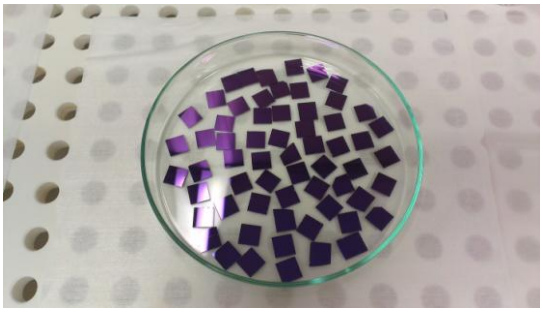
- EBL sonrası alt taş üzerindeki rezist 1:3 (MIBK:IPA) karışımı ile 1 dakika boyunca geliştirilerek, paternleme işlemi tamamlanır. Alttaş metal buharlaştırma basamağına hazır hale getirilir.




Şekil 3. Güncellenmiş işaretleme/hizalayacı sistemi.

Rezist geliştirme işleminden sonra alttaş termal buharlaştırma yönetmiyle ( SUNUM bünyesinde bulundan TORR marka e-beam ve termal metal buharlaştırıcı sistemi ) 5 nm krom - 100 nm altın kaplananır. Sonrasında alt taş asetona koyularak metal kaldırma "lift-off" işlemi uygulanır [Şekil 3.(b)]. Periyodik olarak dizilmiş yapıların merkezlerinin daha iyi anlaşılması açısından merkez etrafında " artı" şeklinde işaretleyiciler kullanılmıştır [Şekil 3. (c)].

Sonrasında, alt taş kesici "Disco - Dicer" ile 4" alttaş, 1 cm x 1 cm boyutlarında alt taşlara ayrılmıştır. Kesme işlemi tamamlandıktan sonra alt taşlar sırasıyla aseton, alkol, de-iyonize su ve en son da kuvvetli bir organik temizleyici çözeltisi "pirana" ($H_2SO_4$+$H_2O_2$–3:1) kullanılarak temizlenmiştir. Temizleme işleminden sonra, mekanik ayrıştırma yöntemi ile grafen elde edilip, optik ve Raman karakterizasyonu yapılan örneğin optik mikroskop ile alınan görüntüleri ile aygıt tasarımına geçilmektedir.



Şekil 4. Temizleme işlemleri yapılmış, üzerinde grafen aytrıştırmaya hazır $SiO_X$ alt taşlar.

### 3.1.2 Grafenin mekanik ayrıştırma ile elde edilmesi

2004 yılında Manchester Üniversitesi'nden Andre Geim ve K. Novoselov oldukça basit ve sonrasında Nobel ödülü getirecek olan bir yöntemle, grafeni izole etmeyi başarmışlardır. Grafitin tek katman tabakası diyebileceğimiz karbon atomlarının 2 boyutlu olarak bal peteği örgü yapısında dizilmiş haline "grafen" denip bu yapıyı elde etmek için gerekli olan malzemeler selobant, alttaş ve doğal grafittir.

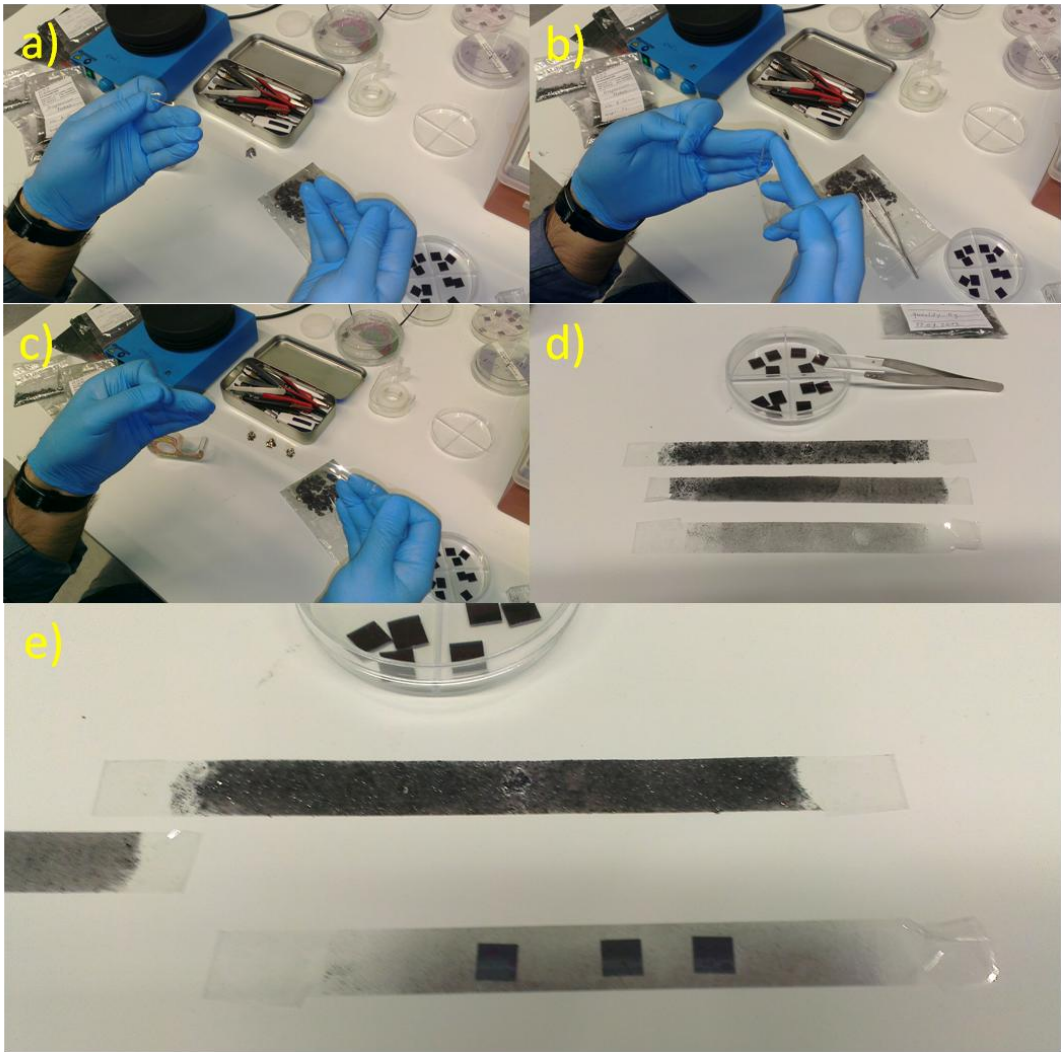
Uygulanan mekanik ayrıştırma yöntemi her laboratuvarda farklılıklar göstermektedir. Literatür, kişisel görüşmeler ve kendi deneyimlerimiz sonucunda elde ettiğimiz en başarılı yöntemi şöyle özetleyebiliriz:

Yaklaşık 15-20 cm uzunluğunda bant kesilir ve bantın yapışkan olan kısmının ortasına cımbızla bütün büyük bir parça ya da bir kaç küçük parça grafit yaprakları konulur [Şekil 5.(a)]. Grafit yaprakları NGS firmasından (2-5 mm, 5-10 mm, 10-20 mm büyüklüklerinde) satın alınmıştır.

Daha sonra bantın grafit olmayan temiz yüzleri grafit olan bölgelere yapıştırılıp ayrıştırılır [Şekil 5.(b)]. Bu işlem ardı ardına tekrarlanarak, birçok katman olan grafit tabakası katman katman inceltilmiş olunur [Şekil 5.(c)]. Bu yönteme mekanik olarak ayrıştırma yöntemi denilmektedir. Bu yöntemde tek katman grafenin alt taş üzerine yapıştırmadan elde edilip edilemeyeceğini anlamak bant üzerindeki grafit kontrastının rengi baz alınan bir tecrübeye dayanmaktadır [Şekil 5.(d)]. Zaman içinde tecrübe kazanılmasına rağmen aygıt yapılabilecek ebatlarda uygun tek katman grafen bulmak biraz da şansa dayalı olarak ortalama %30-40 olasılıkla elde edinilebilir.

Tek bant üzerinde yapılan ayrıştırma sonunda uygun kontrast elde edilmediyse, yeni bir bantın bu bant üzerinde küçük bir bölüme yapıştırılıp-çekilmesi suretiyle

ayrıştırma ve incelteme işine devam edilebilinir. Ayrıştırma işlemi tamamlandıktan sonra inceltilmiş grafit bölgesi temizlenmiş olan alt taş üzerinde yapıştırılır [Şekil 5.(e)]. Kalın uçlu plastik bir cımbız ile hava kabarcığı ve boşluk kalmaması açısından bantın alt taşa iyice temas ettirilmesi sağlanır. Daha sonrasında bant yavaşça kaldırılır. Örnek optik mikroskop altında incelenmeye hazır olup, mekanik ayrıştırma tekniği tamamlanır.

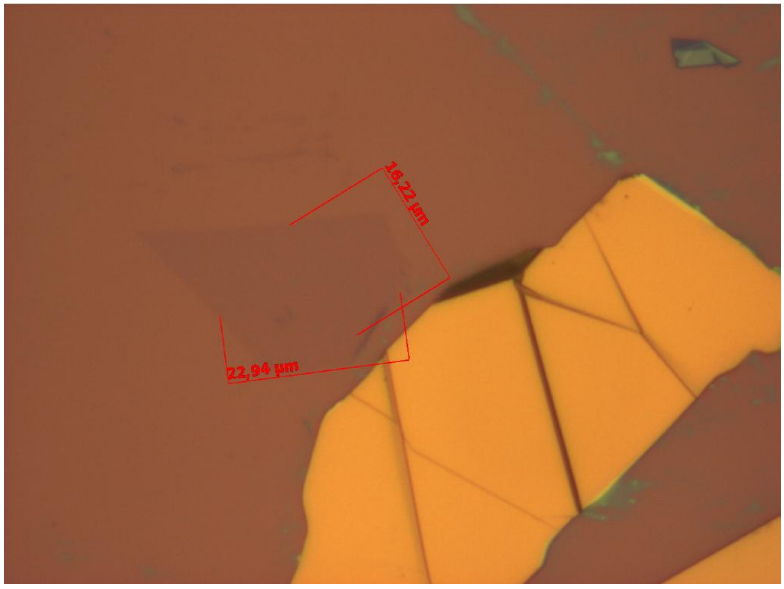



Şekil 5. Mekanik ayrıştırma yöntemi ile grafen elde edilme basamakları.

### 3.1.3 Optik ve Raman Analizleri

Mekanik ayrıştırma işlemi tamamlanmış olan örnekler optik mikroskop altında incelenir. 1, 2 ya da daha çok katmanlı grafen parçaları 300 nm $SiO_x$ nedeniyle kendine has renk tonları verirler. Bu tabakalar gözle optik mikroskop altında aranarak uygun boyut ve kalınlıkta olanlar belirlenir ve alt taş üzerinde işlenmiş olan

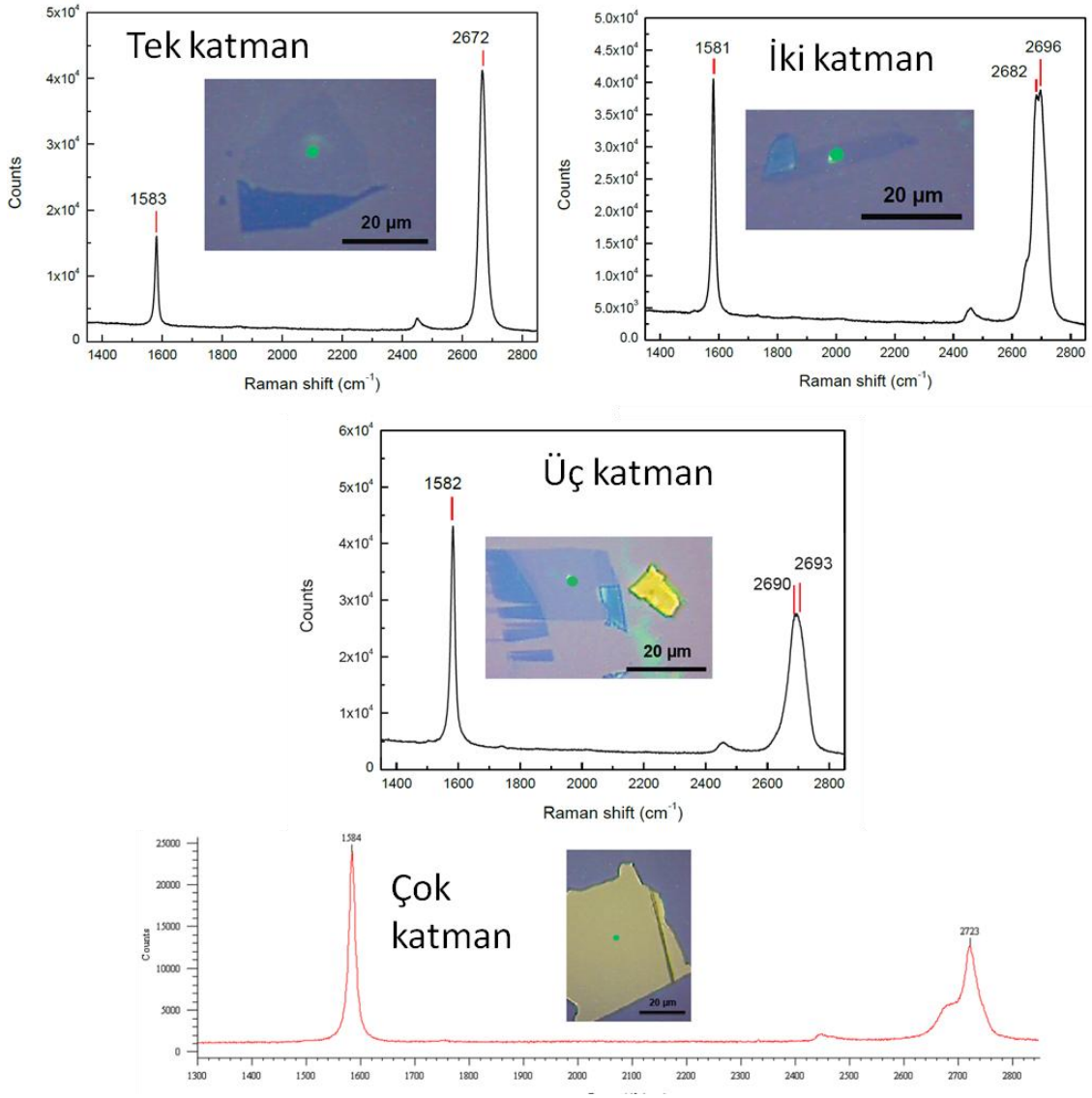
işaretleyiciler yardımıyla grafenin koordinatları belirlenmiş olup, bellirli büyütmeler altında (5X, 10X, 20X, 50X, 100X) opitk fotoğrafları alınır. Şekil 6'da optik mikroskop altında sarı olarak gözüken en kalın grafit tabakasının yanında neredeyse alt taş ile aynı kontrasta sahip olan tek katman grafen tabakası görülmektedir. Tek atom kalınlığında bir yapıyı optik mikroskop altında görebilmenin ilginç olmasının yanı sıra buradaki alt taş üzerindeki oksit kalınlığının büyük rolü vardır. 300 nm haricinde oksit kalınlığına sahip alt taşlar üzerinde grafen kontrastı beyaz ışık altında farklı olup, optik mikroskop ile karakterize işlemi yapılması mümkün değildir.




Şekil 6. Alttaş üzerine aktarılmış tek katman grafen tabakası (işaretli) ve kalın grafit parçası.

Elde edilen grafenin katman sayısını kesin olarak belirlemek için Raman Spektroskopisi yöntemi kullanılmaktadır. Bunun için SUNUM'da bulunan 532 nm dalga boyuna sahip "Renishaw" Raman sistemi kullanılmıştır. Şekil 7'de görüldüğü üzere spektrumların her birinde iki baskın çizgi ön plana çıkmaktadır. Bunlardan birisi G çizgisi (~1580 $cm^{-1}$) diğeri ise G′ veya 2D çizgisi (~2700 $cm^{-1}$) olarak adlandırılmaktadır. Tek tabaka grafende çok tabakalı grafen'e göre G′ çizgisinin her zaman daha keskin ve daha dar olduğu ve sinyal şiddetinin G çizgisinden yaklaşık 3-4 kat daha yüksek olduğu görülür. Grafen tabaka sayısı arttıkça G çizgi şiddetinin arttığı ve G′ çizgi şiddetinin azaldığı gözlenir. Grafen tabaka sayısı arttıkça 2700 $cm^{-1}$'de gözlemlenen Raman çizgisinin genişlediği, sinyal maksimumunun düşük dalga

boylarına doğru kaydığı bilinmektedir. Farklı kalınlıklarda grafenler için yapılan Raman analiz detayları Şekil 7'de verilmiştir.



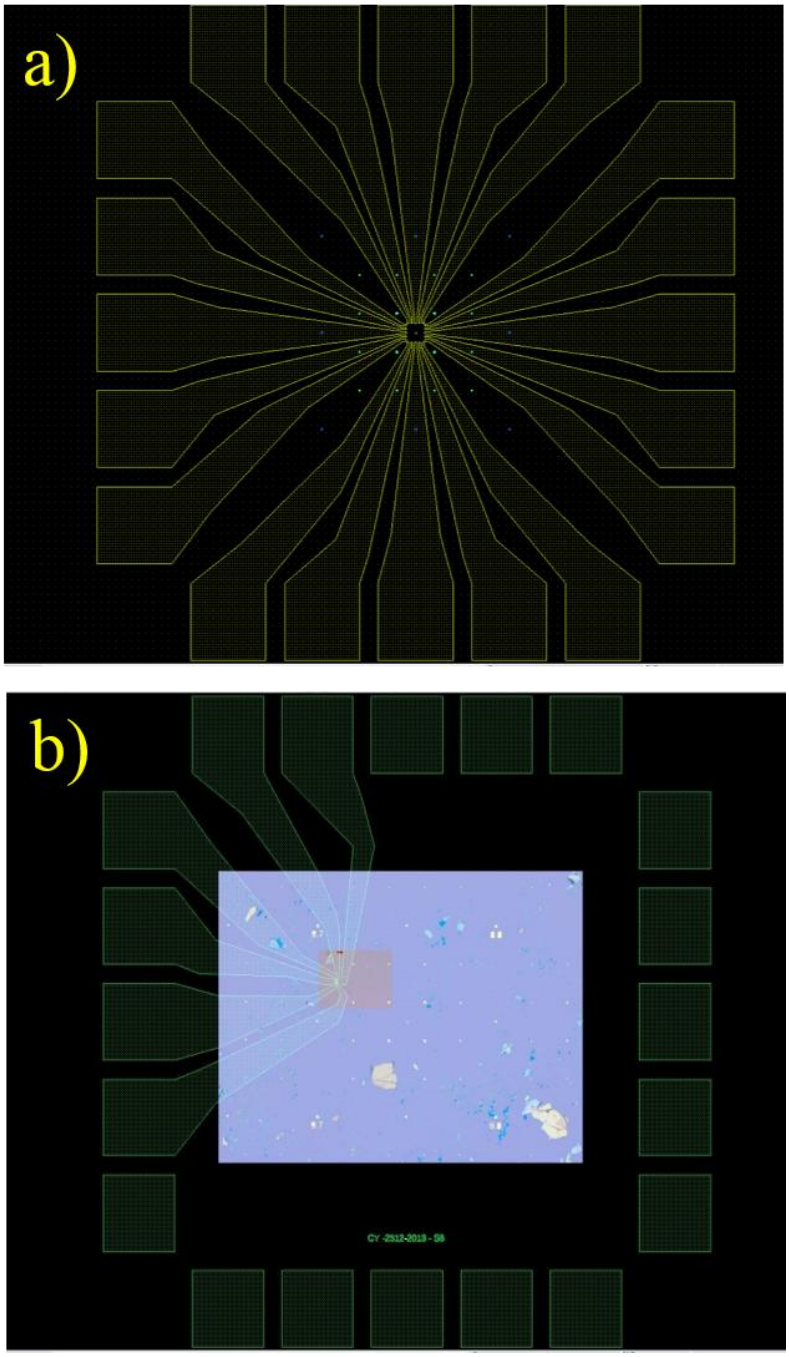

Şekil 7. Çeşitli kalınlıklardaki grafen tabakalarının Raman spektrumları.

## 3.2 Aygıt fabrikasyonu

### 3.2.1 Aygıt tasarımı

Aygıt tasarımları için Vistec EBL sistemi ile uyumlu olan "Layout Editor" adlı bilgiayar destekli tasarım (CAD) programı kullanılmıştır. Şekil 8.(a)'da alt taş üzerinde periyodik yapıya sahip olan kare ve artıların bir kısmı gösterilmektedir. Bu yapı

merkez alınarak bütün kontak tasarımı çizime eklenir. Daha sonrasında önceden farklı büyütmelerde alınan optik mikroskop fotoğrafları çizime yüklenir ve alt taş üzerindeki işaretleyiciler ile çizimdeki işaretleyiciler hizalanarak, grafenin konumu otomatik olarak belirlenmiş olunur [Şekil 8.(b)]. İstenilen kontak tasarımı yapılıp çizim programında farklı bir katmana atılarak çizdirilmek istenen kontaklar belirlenir.

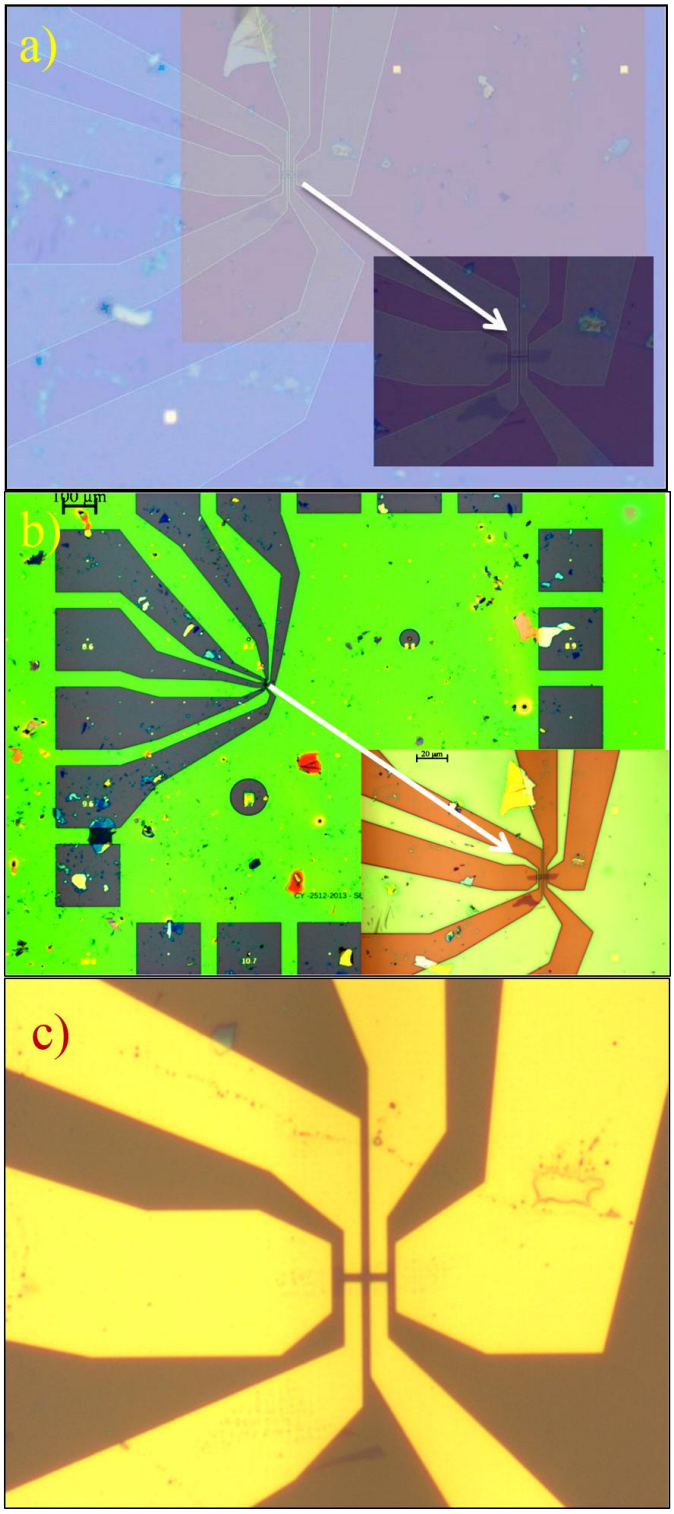



Şekil 8. Layout_Editor tasarım programı ile aygıt tasarımı.

### 3.2.2 Kontakların Yerleştirilmesi

Kontak tasarımları yapılan grafenler, rezist kaplandıktan sonra Vistec elektron demeti litografisi ile alttaş üzerine daha önceden konulmuş hizalayıcı kare işaretleyicileri buldurulup, istenilen tasarım oldukça düşük bir hata payı ( Vistec örnek taşıycının interferometrik sistemi ile kayma hata payı 20 nm'den azdır) ile yazdırılır. Şekil 9'da görüldüğü üzere uygulanan tasarım ile, rezist geliştirme (develop) sonrası çekilen optik mikroskop görüntüsünde kontakların pozisyonlarındaki kayma hata payı optik mikroskop altında fark edilemeyecek boyuttadır. Bu prosesde metal kaldırma işleminin [Şekil 9.(c)] kolay olmasını sağlayan negatif rezist profili elde edilmesi açısından iki katman (bilayer) rezist prosesi kullanılmıştır. Metal kaldırma işleminin oldukça kolay şekilde gerçekleştirilebilmesinin önemi, örneği hiçbir şekilde ultrasonik banyoda metal kalkmamalarından dolayı titreştirmeye maruz bırakmamaktır. Aksi taktirde titreştirme sonrası grafenin katlanabilmesi, yüzeyden ayrılması gibi problemler ile karşılaşabilinir.

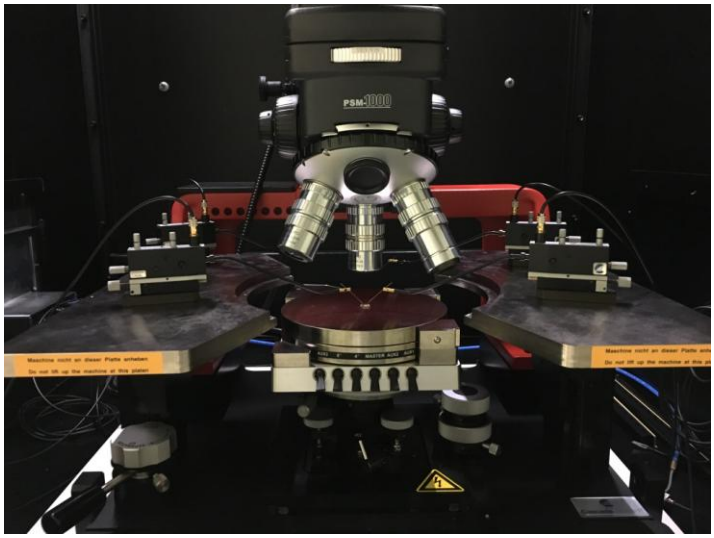
Elektron demeti litografi reçetesi şöyle özetlenebilir;
Alttaş önce düşük moleküler ağırlığa sahip MMA EL 11 rezisti ile 5000 rpm'de kaplanır. 170 °C'de sıcak tabaka (hot plate) üzerinde 5 dakika ısıtılır. Daha sonrasında üzerine yüksek moleküler ağırlıkta fakat daha ince ve yüksek çözünürlüğe sahip 950 PMMA A2 rezisti 5000 rpm'de döndürülerek kaplanıp, 170 °C'de 5 dakika ısıtılır. Düşük moleküler ağırlığa sahip rezist, litografi sonrası hazırlanan kimyasal içinde aynı süre geliştirildiğinde daha fazla çözündüğünden, negatif profil elde edilmiş olunur. Uygun elektron-demeti dozunun bulunması için yapılan testlerde oluşturulan reçetede 1 dakika MIBK:IPA (1'e 3 oranında) sonrasında 5 saniye MIBK:IPA (1'1 oranında) geliştirme süreleri için 650 $\mu C/cm^2$ alan dozu, 100 kV elektron enerjisi için uygun bulunmuştur. Geliştirme işlemi tamamlanan örnek metal buharlaştırma yöntemiyle 2.5-3 nm krom ve 100 nm altın kaplanıp, asetona konularak metal kaldırmanın gerçekleşmesi için en az birkaç saat beklenir.




Şekil 9. a) Tasarım, b) rezist geliştirme ve c) metal kaplama sonrası optik mikroskop görüntüleri verilen bir 6 kontaklı (Source-Drain ve 4 adet Hall uçları) bir Hall aygıtı.

### 3.2.3 Öntestler

Metal kaldırma işlemi tamamlanmış olan örnekte koyulan metal kontaklarıntest edilmesi amacıyla askıda bırakma işlemi öncesi DC kontak istasyanu (Probe Station) kullanılarak direnç değerleri test edilir [Şekil 10]. Bir kaç kOhm değerine sahip olan olan örnekler için askıda bırakma prosedürüne geçilir.



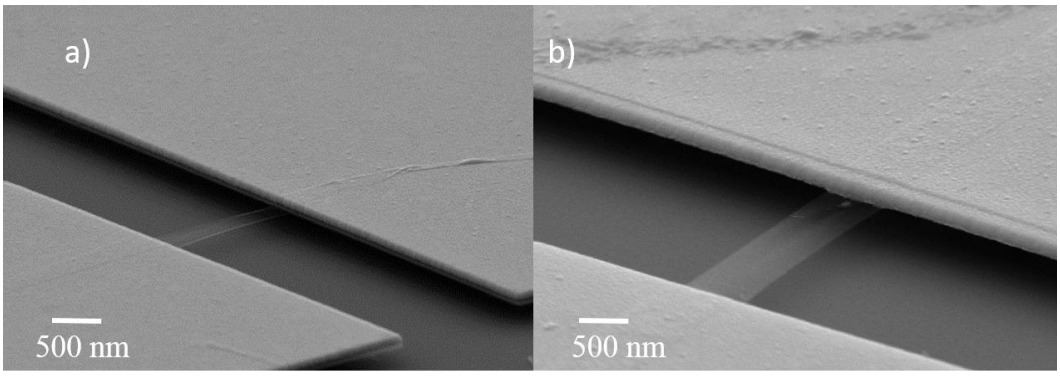

Şekil 10. Örnek direnç testlerinde kullanılan DC kontak istasyonu

### 3.2.4 Grafen aygıtın askıya alınması

Grafen aygıtların askıya alınması için SiOx tabakasının ıslak aşındırmayla yaklaşık 200 nm derinlikte aşındırılması gerekir. Yaklaşık 85-100 nm oksit, grafenin silikon yüzeyine değmemesi veya herhangi bir yerde kalan grafit parçalarının kontaklar üzerinden silikon yüzeyine değerek, kapı gerilimini kısa devre yapmasını engellemek açısından bırakılmaktadır. Böylece kalan SiOx miktarı yalıtkan görevini görüp, arka kapı gerilimi sorunsuzca silicon üzerinden grafene uygulanabilir.

Aşındırma prosedürüne geçmeden önce 1 cm x 1 cm üzerinde herhangi bir yerde fabrikasyonu yapılmış örnek, en son aşamada örnek taşıyıcıya yerleştiriliceği göz önünde bulundurularak, 4 mm x 4 mm'den daha küçük alana sığacak şekilde uygun ölçülerde elmas uçlu kalem ile kesilir.

Aşındırma işleminde örnek yaklaşık 3 dakika boyunca BOE (Buffered Oxide Etcher) içinde küçük dairesel hareketlerle döndürülerek aşındırılır. Bu aşındırma süresi, yaklaşık 200 nm oksit yapısını aşındırmak için yeterlidir. BOE'den çıkarılan örnek de-iyonize suya daldırılıp birkaç dakika beklendikten sonra hassas bir şekilde çıkartılır ve daha düşük yüzey gerilimine sahip sıcak IPA içerisine daldırılır. Birkaç dakika IPAda kalan örnek çıkartılıp çok kısık akış hızına sahip nitrojen gazı ile kurutulur. Şekil 11'de fabrikasyonları tamamlanmış, 2- terminal askıda grafen örneklerin elektron mikroskobu görüntüleri gösterilmiştir.



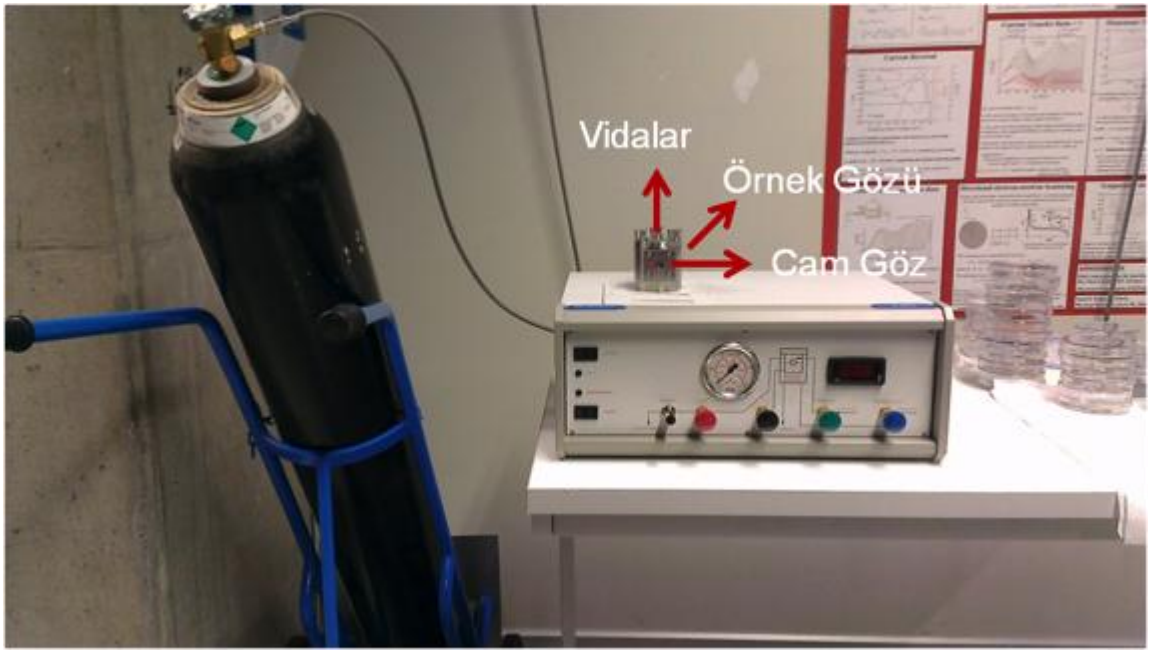

Şekil 11. Terminal askıda grafenlerin elektron mikroskobu görüntüleri.

### 3.2.5 Alternatif kurutma yöntemi Kritik Nokta Kurutucusu

Uzun yapıların (L > 1 μm) kurutma esnasında yüzey geriliminden dolayı askıda bırakılması, kritik nokta kurutucusu [ Şekil 12] kullanılmadan oldukça güçtür.
Kritik Nokta Kurutucusu (KNK) kullanım basamakları şöyle özetlenebilir;

- Buffered Oxide Etcher ile (BOE) aşındırılan örnek, distile suya daldırıldıktan sonra kullanılacak olan solvent (aseton veya ethanol) içine konulur.
- KNK'nın örnek gözü aynı solvent ile bir miktar ( 15-20 ml) doldurulur ve örnek içeri transfer edilir.
- Sonrasında örnek gözü, özel vidalar ile sıkıştırılıp kapanır ve $CO_2$ tüpünün gazı ile soğutulmaya başlanır.
- Örnek gözü $2^oC$ civarına gelince içeriye sıvı $CO_2$ transferine başlanır.

- Solvent , sıvı $CO_2$ den daha ağır olduğundan alt tarafta bulunan egzoz deliğinden dışarı atılır. Eş zamanlı olarak $CO_2$ transferine devam edilip, örneğin her zaman sıvının içinde kalması sağlanmalıdır.
- Solventin atıldığından emin olunduktan sonra, örnek gözü belirlenen seviyeye kadar sadece sıvı $CO_2$ ile doldurulur.
- Sistemin ısıtıcısı çalıştırıp içerde basıncın artması beklenir. Yaklaşık 45 dakikada göz 31$^{o}$C ve 1072 psi basınç değerine gelip kritik noktaya ulaşılır ve kuruma gerçekleştirilir. İçerdeki Sıvının tamamen boşaldığı, örnek gözünde bulundan camdan görülebilir.
- Sistem basıncı yavaşça düşürülerek, kuruyan örnek çıkartılır.




Şekil 12. Quorum K850 Kritik Nokta Kurutucu ve Sıvı karbondioksit tüpü

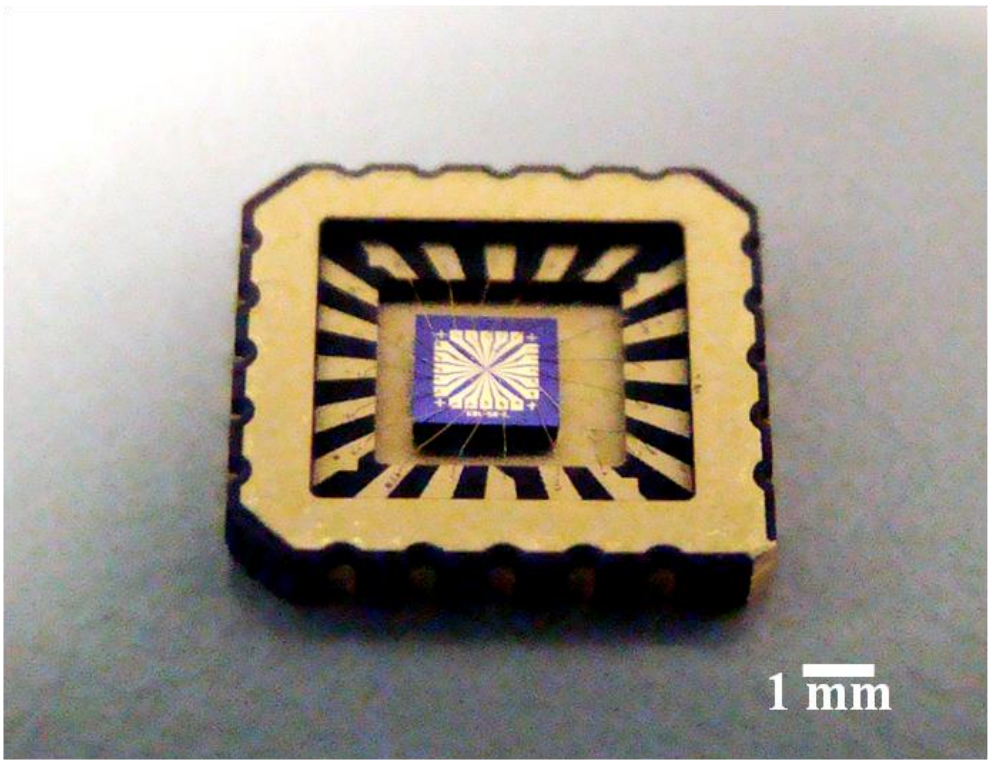
Fakat deneyler sonucunda KNK'ın kullanımı sonucu alttaş ve grafen üzerinde optik mikroskop altında görülür derecede lekeler bıraktığı fark edilmiştir. Literatürde de ayrıca KNK kullanılarak kurutulan askıda grafen aygıtlarının elektronik ölçüm sonuçlarını olumsuz etkilediği tartışılmıştır [Bolotin vd., 2008].

Grafenin daha efektif bir şekilde akım ile tavlama uygulanabileceği ve mekanik olarak daha dayanakllı olacağı düşünülün en – boy oranı önerileri göz önüne alınarak; $W \geq L$ durumunda grafenin çökme ihtimali daha az olduğundan kritik nokta kurutucu kullanmadan, aşındırma sonrası düşük akış hızında nitrojen gazı ile kurutma işlemi

yapılmıştır. Yeni tasarımlarda uzunluk  L ≤ 1 μm olarak tasarlanarak yüksek kalite askıda grafenler kritik nokta kurutucu kullanılmadan başarıyla üretilmiştir.

### 3.2.6 Örnek tutucuya yerleştirme ve tel bağlama

Uygun ölçülerde elmas uçlu kalem ile 1 cm x 1 cm boyutlarındaki alt taştan kesilen örnek, ıslak aşındırma işleminin ardından, örnek taşıyıcıya iletken gümüş yapıştırıcı yardımı ile yapıştırılır. Örnek taşıyıcının alt tabanı da altın ile kaplı olduğunan silikon yüzeyine kontak sağlanmış olunur. Örneğin kontak bölgeleri üzerinden, örnek taşıyıcı kenarlarında bulununa altın bölgelere, SUNUM bünyesinde bulunan Kulicke&Soffa altın tel bağlama cihazı (Wire bonder) ile bağlantılar yapılır. Ayrıca örnek taşıyıcı üzerindeki altın kontak bölgelerinden bir tanesi, taşıyıcının alt yüzeyine bağlanır. Böylece örneğin silikon tabanına değilerek arka kapı gerilimi için kontak alınmış olunur.



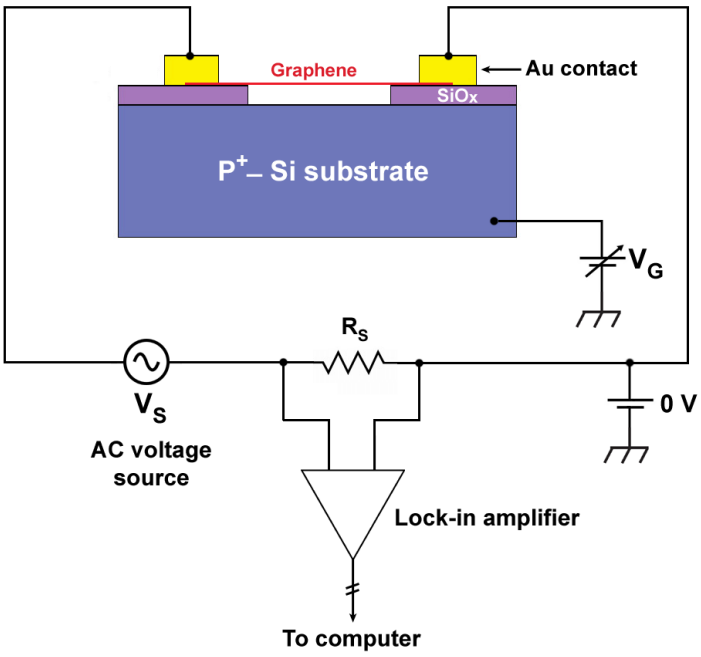

Şekil 13. Örnek taşıyıcıya yerleştirilip altın tel ile kontakları tamamlanmış ölçüme hazır bir örnek.

Proje kapsamında üretilen ve/veya ölçümü yapılan aygıtların listesi Ek-1'de verilmiştir.

### 3.3 Aygıtların elektriksel karakterizasyonu

Elektriksel karakterizasyonları için SUNUM bünyesinde bulunan Oxford Instruments $He^4$ ıslak kryostat (1.5-200 Kelvin; 12 Tesla) ve Triton 400 kapalı devre $He^3/He^4$ kryostatı (0.01-30 Kelvin; 12 Tesla) kullanılmıştır. Testler için aşağıda listelenen elektriksel ölçüm cihazları kullanılmıştır:

- SRS SR830 Lock-in amplifier
- Agilent B2912A SMU
- Agilent B2962A PSU
- Yokogawa GS200 DC source
- Yokogawa GS610 SMU
- Keithley 2182A Nanovoltmeter
- Keithley 7001 Switch-box




Şekil 14. 2-terminalli askıda grafen için elektronik ölçüm şematiği

Askıda bırakılan grafen için tipik elektronik ölçüm şematiği Şekil 14'te gösterilmiştir. DC ölçümler için Lock -in yükselticisi yerine DC Ölçüm ünitesi kullanılmaktadır. Altın kontaklar arasında askıda bırakılan grafende kontaklar, kaynak ve gider olarak kullanılırak, Lock-in yükselticiye farklı büyüklüklerde dirençler bağlanıp (1V Lock-in voltajına karşılık - 1 MΩ direnç ile 1 nA kaynak akımı) uygulanan voltaj ile istenilen akım, kaynak üzerinden gidere gönderilerek, buradaki voltaj düşmesi ölçülür. Kaynağa voltaj uygulanmak istenildiğinde 4 mV'luk voltaj, voltaj bölücüyle (1/1000) 1 μV'a düşürülerek, giderden çıkan akım ölçülür. Aynı zamanda boşluk katkılı silikon alt taşa arka kapı gerilimi uygulanarak grafenin taşıyıcı yoğunluğu modüle edilir.

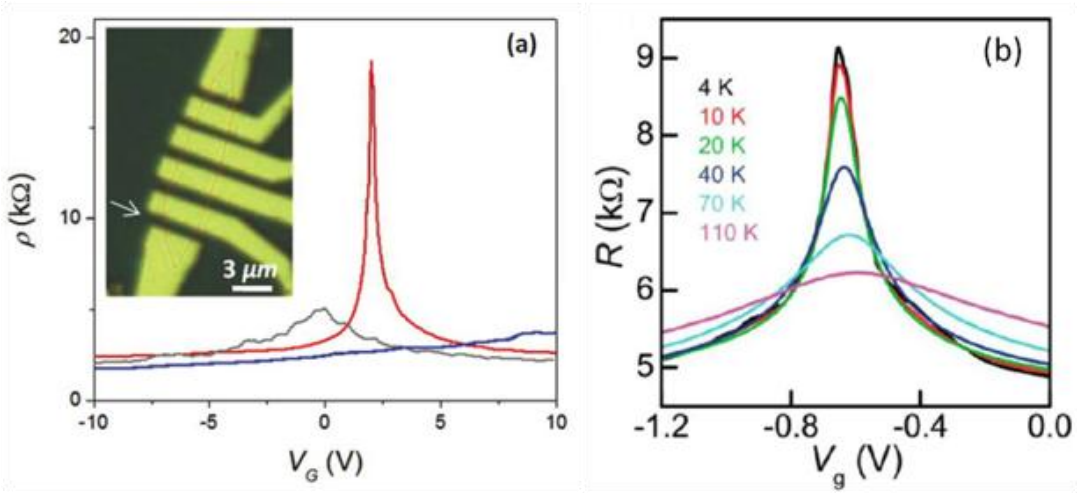
### 3.3.1 Akım ile tavlamayla asılı grafenin temizliği

Grafende "kapı" (Gate) gerilimi ile taşıyıcı konsantrasyonu değiştirilebilmektedir. Uygun aralıkta taranan kapı gerilimi ile özdirencin en yüksek olduğu nokta taşıyıcı yoğunluğunun en az olduğu (charge neutrality point) nokta olup, burası "Dirac noktası" olarak adlandırılır. İdeal grafenin "0" kapı voltajında direncinin maksimum olması beklenirken, fabrikasyon basamakları sırasında kullanılan rezist ve diğer kimyasallar ve ortamdaki su buharından kaynaklı olarak istenmeyen bir katkılama görülmektedir (unintentional doping). Bu katkılamalar Dirac noktasının pozitif ya da negatif bir kapı gerilim değerine kaymasına neden olur. Ayrıca örneğin yük hareketliliği (mobility) ve homojenliğini de olumsuz etkiler.

İstenmeyen katkılanmayı ortadan kaldırmak ya da en aza indirmek için çeşitli yöntemlerle grafen temizlenmeye çalışılır. Bu yöntemlerden bazıları: örneği vakum ortamında dışarıdan ısıtma, hidrojen ve argon ortamında ısıtma ve akım ile kendiliğinden ısıtmadır. Akım ile ısıtma askıda olmayan grafenler için çok iyi sonuç vermeyebilir. Bunun nedeni $SiO_x$ tabakası ile grafen arasında kalan kontaminasyonun burada hapsolması ve ısıl işlemle dahi atılamamasıdır.

Ancak grafenin asılı olması durumunda hem alt hem de üst kısmı boşlukta olduğundan "akım ile ısıtma" (current annealing) işlemi harketliliği ve homojenliği arttırmak için zorunlu bir aşamadır. Bu işlemin ardından Dirac eğrisi çok daha dar ve keskin bir yapıya kavuşturabilinir. Öte yandan akımla tavlama çok hassas ve örneğe zarar verme riski yüksek bir işlemdir. Literatürde görülen ve laboratuvarımızda da deneyimlediğimiz gibi bu işlem sonucu grafenin bozulması, yanması çok yüksek

olasılıktır. Kısaca Dirac noktasının $V_G$ = 0 V civarında olması, FWHM genişliğinin az ve tepe noktasının yüksek olması grafenin niteliği ve saflığına işaret eder. Şekil 15'te literatürden alınan dikkat çekici iki sonuç görülmektedir. Şekil 15 a'daki grafikte mavi eğri aygıtın fabrikasyon sonrası, yeşil eğri ısıl ısıtma işlemi sırasında ara durumu ve kırmızı eğri de ısıtma işlemi sonrası 2 K sıcaklığında grafenin kapı gerilimine karşı direnç grafiğini göstermektedir. Şekil 15.b'de başka bir örnek için akım ile ısıtma işleminden sonra, soğutulan örnekte direnç eğrisinin daralıp ve tepe noktasının arttığı gösterilmiştir. Askıda grafen için akımla tavlama işlemi yapılıp üzerindeki kalıntıların atılması sağlanmadan grafen ideal duruma gelemez ve sıcaklığın düşmesiyle direnç eğrisinde keskinlik ve tepe noktasında artış gözlemlenemez. Bu durum askıda olmayan grafen ve askıda olup "ısıl tavlama " yapılmamış grafen için de geçerlidir.



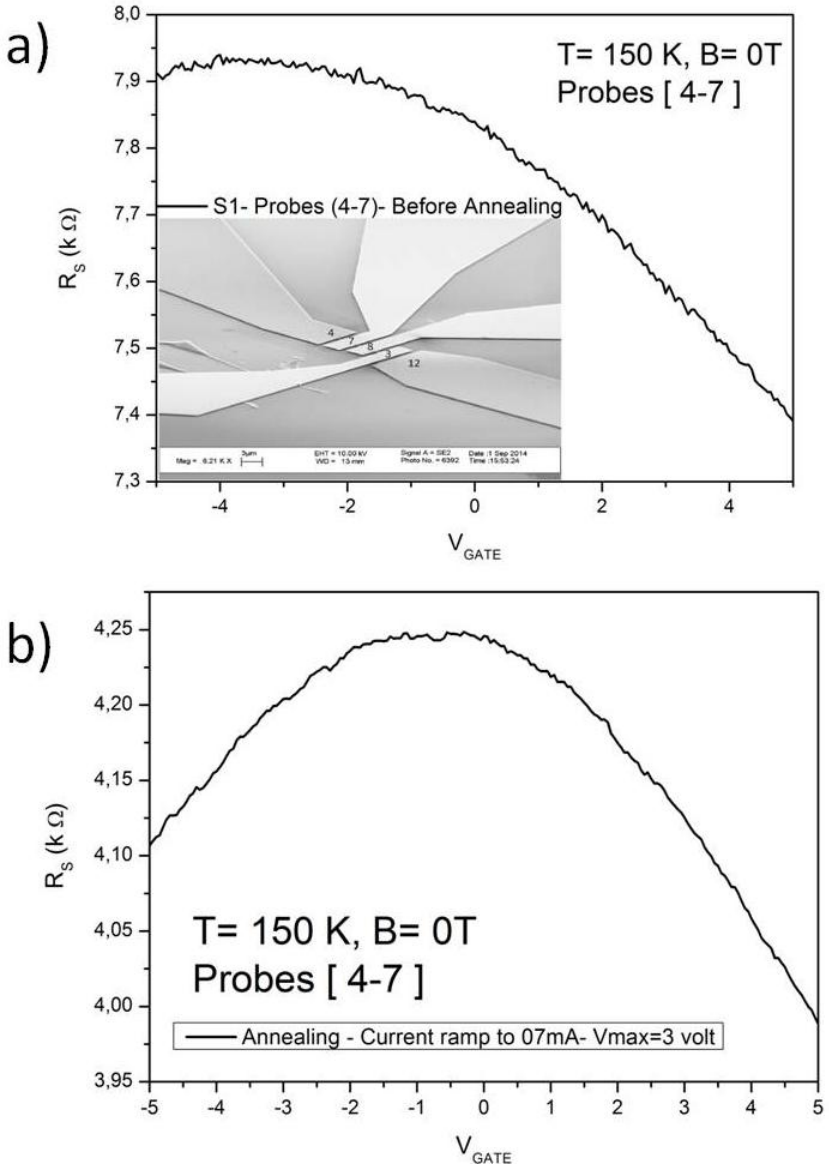

Şekil 15. a) Isıl tavlama öncesi, ara basamağı ve sonrası için 2K'deki kapı gerilimine karşı direnç değerleri [Bolotin vd., 2009] b ) Askıda grafenin farklı sıcaklıklarda kapı gerilimine karşı direnç değerleri [Mayorov vd., 2012].

Şekil 16'da gösterilen örnek (BCG_1582014_S1-4) üzerinde işaretli kontaklar arasında yapılan 2 - terminalli (2 Probe) direnç ölçümleri akımla tavlama öncesi ve sonrası olarak gösterilmiştir [Şekil 16 (a), (b)]. Buradan da görüleceği üzere akımla tavlama öncesinde tepe noktası belli değilken sonrasında tepe noktası görülmeye başlanmıştır. Tavlama sonucunda Dirac eğrisi 0 V kapı gerilimine yakın bir yerde tepe yapan bir eğri olarak ortaya çıkmaya başlamıştır. Tepenin $V_{GATE}$ = 0 V'a yakın olması her zaman elektronik açıdan çok ideal olduğunu göstermez. Grafenin kendi üzerindeki bir takım kalıntılar yük taşıyıcılarının (elektron, boşluk) saçılmasına neden olup, hareketliliği olumsuz etkilemektedir. Bu nedenle akım ile ısıtma işlemine devam edilip bu eğrinin "0" volt civarında çok keskin ve dar hale getirilmesi hedeflenir.

Buradaki kritik nokta; aygıta zarar verebilecek sıcaklara çıkmadan taşıyabileceği en yüksek akım değerlerine çıkabilmek (~$10^8$ A/$cm^2$) ve bu akımda yeterince bekleyerek ısıl tavlama sonucu üzerindeki kalıntılardan kurtulmaktır. Temizleme işleminin gelişimi Dirac eğrisinin keskinliğinin ve tepe noktasının konumunun değişimi ile gözlenir. Bu şekilde işlem tekrarlanarak ve akım artırılarak örnek ideal duruma getirilmeye çalışılır.

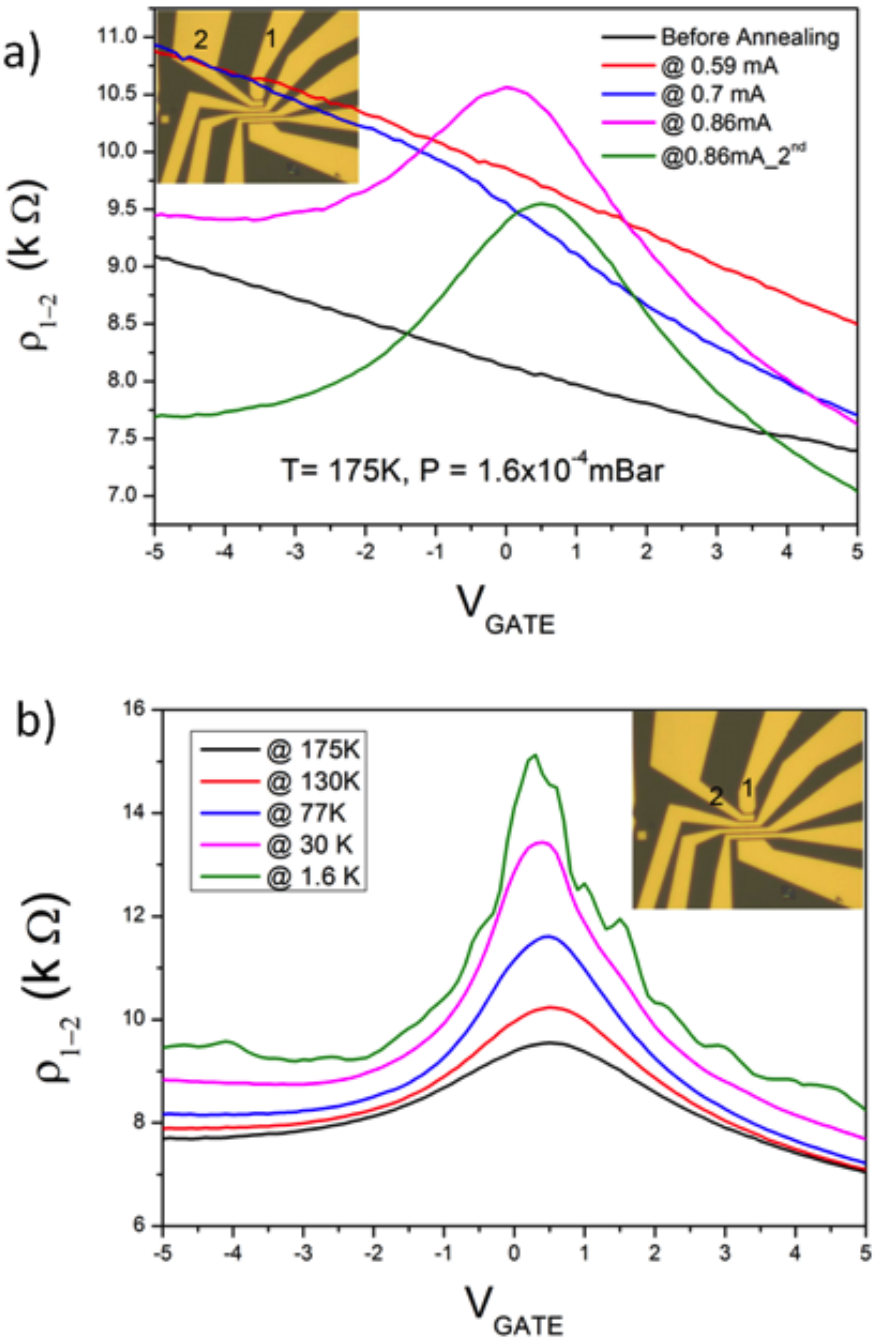
Bu örnekte (BCG_1582014_S1-4) akım değeri önce I = 0.7 mA'e kadar yükseltilerek direnç değerinde bir değişme gözlenene kadar beklendikten sonra akım sıfıra indirilip R-$V_{GATE}$ ölçümü tekrarlanmıştır. Bu bekleme örneğe göre bir kaç dakika ya da saatler mertebesinde olabilir. Bir sonraki adımda I = 0.8 mA'de tavlama yapılırken gerilim koruması uygulanmasına rağmen iletkenlik kaybolmuştur. Bu işlemler sırasında grafen-alttaş arasındaki elektrostatik kuvvetleri sınırlamak ve grafenin çökmesini engellemek için ilk etapta $V_{GATE}$ = ±5 V ile sınırlandırılmıştır.

Dönem içinde bir çok aygıt yapılmış ve yüksek kalite grafenin elde edilmesine yönelik oldukça tecrübe kazanılmıştır. Bir başka örnek olan Şekil 17'de "GC_2802015_Sub1-2" numaralı örnek için uygulanan ölçümler verilmiştir.. Şekil 17.a'da örneğin ısıl tavlama öncesi ve sonrası özdirenç eğrileri gösterilmektedir.



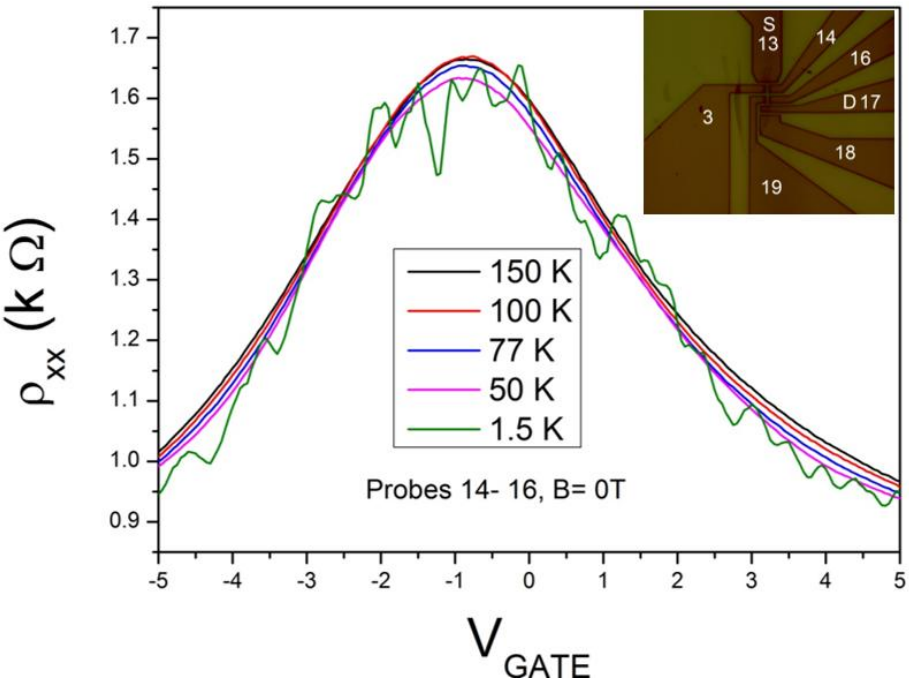

Şekil 16. BCG_1582014_S1-4'ün akım ile tavlama işlemi öncesi (a) ve sonrası (b) direnç-kapı gerilimi eğrileri.

Isıl tavlama öncesi oldukça kötü durumda olan örnek daha sonrasında düzgün duruma getirilmiş, elde edilen iyileştirme sonrası, ısıtma işlemine daha fazla devam edilmeyip Şekil 17.b'de görüldüğü üzere farklı sıcaklıklarda ölçümler alınmıştır. Burada sıcaklığın düşürülmesiyle beraber, direnç eğrisinde daralma ve tepe noktasında artma gözlenmektedir. Bu durumdan ısıl tavlamanın etkisiyle örneğin temizlendiği ve askıda olduğu anlaşılmaktadır. Fakat burada sıcaklığın düşmesiyle birlikte gözlenen direnç tepe noktasındaki artma ve eğride elde edilen daralma yukarda literatürden örnek gösterilen yüksek kalite askıda grafenler için yeterli değildir.




Şekil 17. GC_2832015_Sub1-2 numaralı örneğin a) ısıl tavlama sonucu direnç eğrileri b) ısıl tavlama sonrası farklı sıcaklıklarda direnç değerleri.

### 3.3.2 Çok terminalli aygıtların temizlik problemi



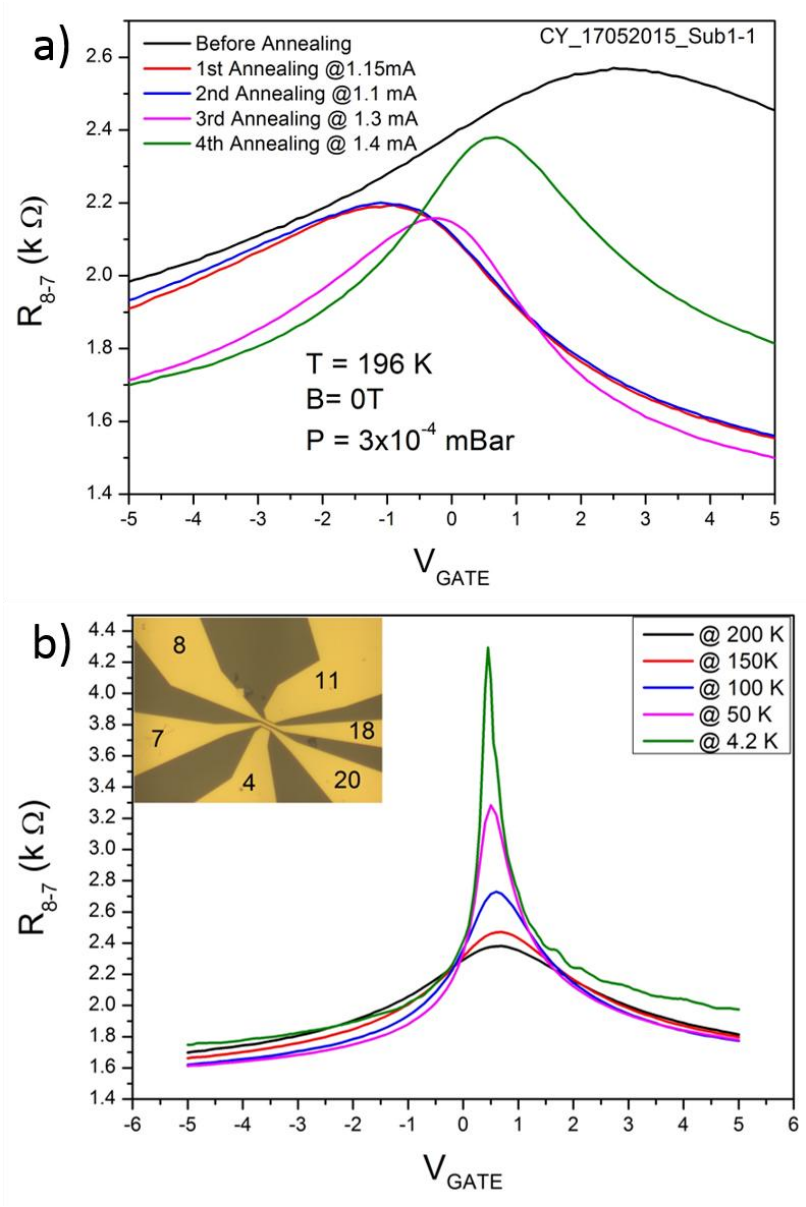

Şekil 18. Çok terminalli askıda grafenin farklı sıcaklıklar için 14-16 kontakları arasındaki öz direnç değerleri

Çok terminalli aygıtlarda akımla tavlama uygulayarak tüm kontak konfigürasyonları için ideal temizliği yakalamak daha zordur. Bunun nedeni ise, Kaynak-Gider arasında geçen akımın diğer gerilim uçlarında ısıtma etkisinin az olmasıdır [Ki vd., 2013]. Bu uçlardaki metal bağlantıların ısı rezervuarı olarak davranmasından ötürü grafen örneğin tümünün homojen olarak ısıtılmasına engel olurlar.

Asılı olmayan ya da akım ile temizleme işlemi yapılmamış grafende direnç eğrisi sıcaklık ile kayda değer bir değişim göstermezken Literatürde de elde edilen yüksek kalite askıda grafenler 2 terminalli olarak tasarlanarak ayrıca akımla tavlamada örnek genişliğinin, uzunluğundan daha büyük olması (W > L) durumunda daha etkin bir ısıtma oluşturulabileceği öngörülmekte ve tasarımlar bu şekilde yapılmaktadır. Bizim aygıtlarımızda da bu durum göz önünde bulundurulmuştur.

Şekil 18'de BCG_1582014_S3 numaralı çok terminalli örnek için T = 1.5–150 K aralığında çeşitli sıcaklık değerlerinde uzunlamasına direncin değişimini gösterilmektedir. Görüldüğü üzere akım ile tavlama öncesi sıcaklığın düşmesiyle

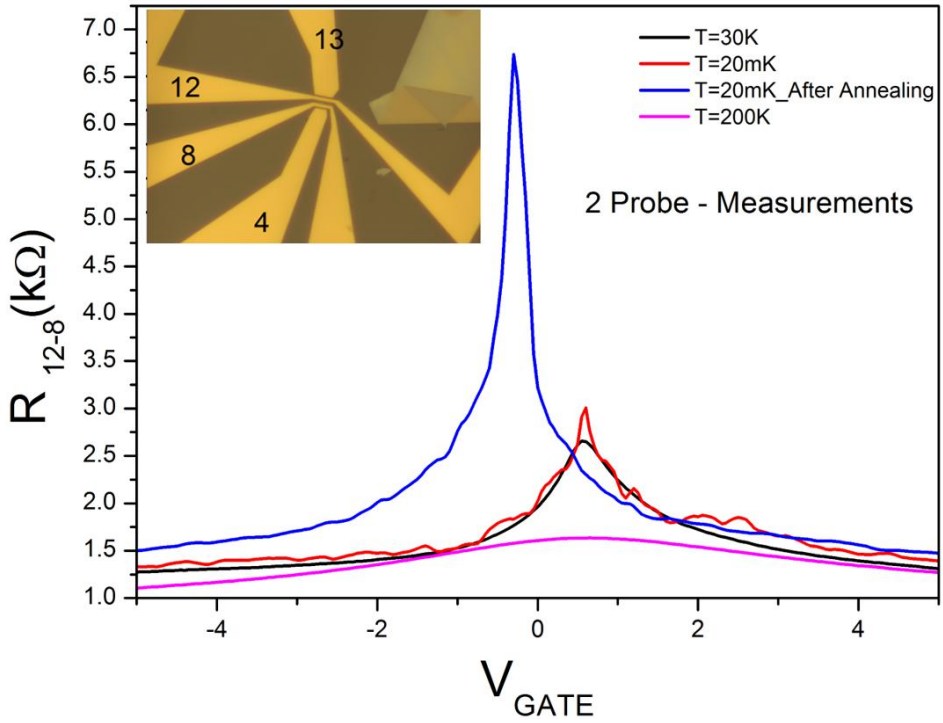
birlikte eğride bir düzelme görülmemiştir, sonrasında kaynak ve gider (13 - 17) kontakları arasında akım ile tavlama yapılmak istenmiş fakat etki görülemeden aygıt kaybedilmiştir. Akım ile tavlama tekniği başka çok terminalli aygıtlar üzerinde de uygulanmış, fakat eğrilerde istenilen etkiler elde edilemeyip, grafenler temizlenememiştir.




Şekil 19. CY_17052015_SUB1-1 nolu örenğin a) Isıl tavlama işlemi basamkları sonucu direnç eğrileri b) 8-7 kontakları arasındaki askıda grafenin kapı gerilimine karşılık direnç eğrilerinin sıcaklık ile değişimi.

Şekil 19 a'da CY_1752015_S1_1 nolu başka bir 2- terminal tasarımlı örnek için 4. Isıl tavlama işlemi sonrası düzgün eğri elde edildiği gösterilmiştir. Şekil 19 b'de 8 ve 7 kontakları arasında bulunan grafen için direncin sıcaklık ile değişimi ölçülmüştür. Görüldüğü üzere literatürdeki eğrilere benzer eğriler elde edilmiştir. Sıcaklığın düşmesiyle birlikte direnç eğrisinde daralma ve tepe noktasında keskin artışlar gözlenerek, görece yüksek saflıkla askıda grafen başarıyla elde edilmiştir.

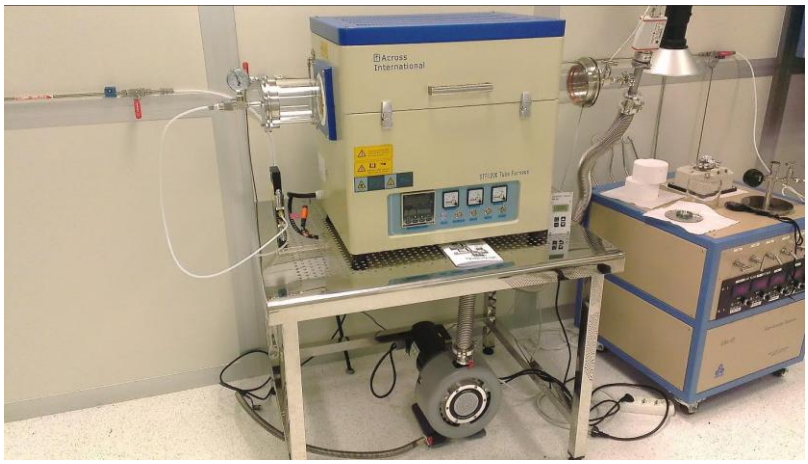
Şekil 20'de bir başka örneğin "CY_1752016_S2-1" akım ile tavlama sonrası elde edilen kapı gerilimine karşı direnç eğrisi gösterilmiştir. Bu örnekte de başarılı bir şekilde uygulanan akım ile tavalama tekniği, oldukça temiz yüksek kalite askıda grafen elde edilmesini sağlamıştır. Burada akım ile tavlama işlemi 20 mK sıcaklığına inildikten sonra yüksek vakum ortamında ( ≈ $10^{-6}$ mBar) uygulanmıştır. Kırmızı eğri akım ile tavlama öncesinde 20 mK sıcaklığında eğriye karşılık gelirken, Mavi eğri tavlama sonrasına karşılık gelmektedir.




Şekil 20. CY_1752016_S2-1 örneğin akım ile tavlama öncesi ve sonrasında farklı sıcaklıklar için kapı gerilimine karşılık direnç değerleri.

### 3.3.3 Grafenin Hidrojen/Argon atmosferinde organik kalıntılardan temizlenme prosedürü

Asılı grafen aygıtının, Hdirojen/Argon atmosferi altında ısıtılarak organik kalıntılardan arındırılmasına yardımcı olabileceği düşünülüp SUNUM temiz oda bünyesinde bulunan fırın [Şekil 21] kullanılarak denemler yapılmıştır. Yapılan gözlemler sonucu Hidrojen - Argon ortamında temizliğin örnek üzerinde optik ve elektron mikrobu altında fark edilebilecek seviyede bir iyileştirme yaratmayışının yanı sıra, elektronik ölçüm karakterizasyonu öncesinde de direnç değerlerinde kayda değer bir fark görülmemiştir. Yüksek kalite aygıt elde edilmesinde akım ile tavlama tekniğinin en etkili yol olduğu deneyimlenerek, $H_2$/Ar temizliği basamağı fabrikasyon sürecinde zaman kaybını minimuma indirmek amacıyla fabrikasyon basamağından çıkarılmıştır.

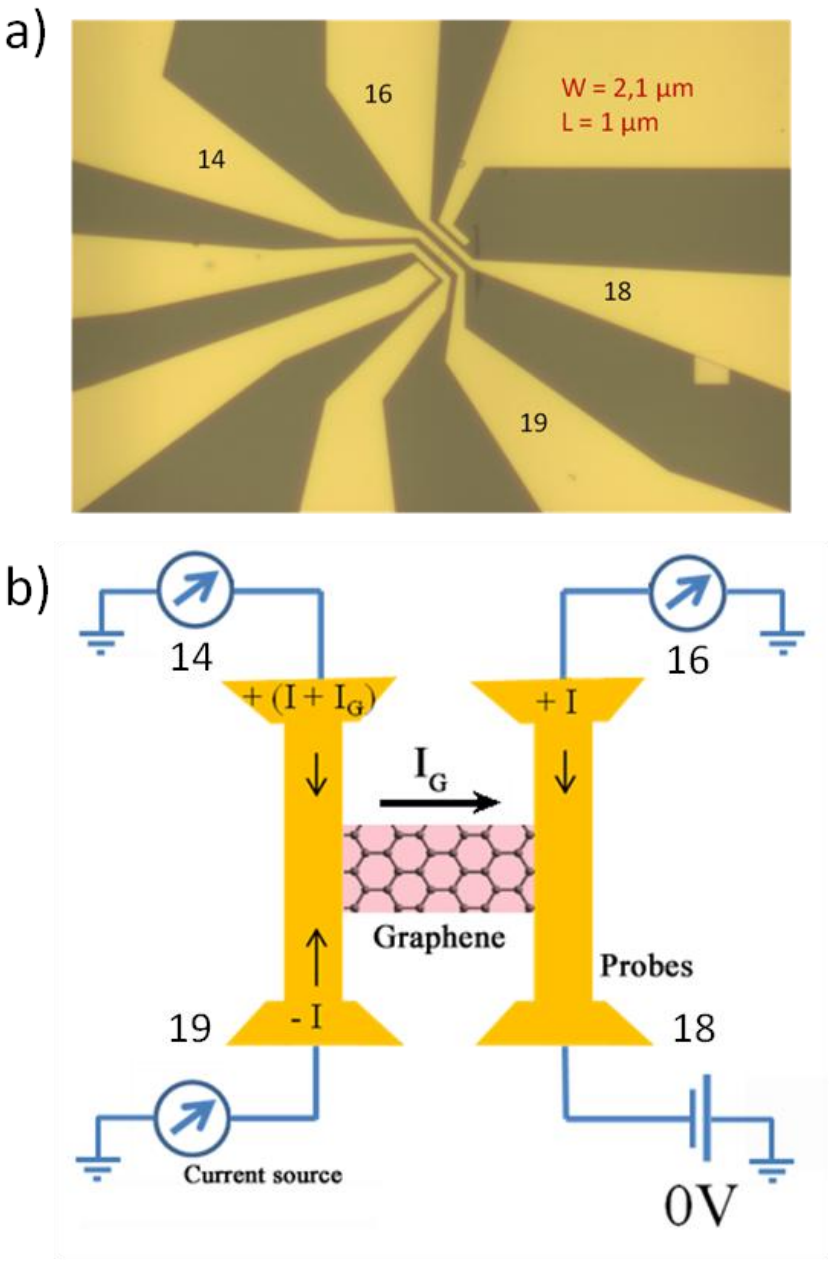



Şekil 21. Grafen temizliği için kullanılacak olan H2/Ar organik kalıntı arındırma sistemi.

Organik kalıntıların giderilmesi için oluşturulan reçete şu şekildedir,

- Öncelikle kuru pompa çalıştırılarak $1x10^{-2}$ mBar'a gelmesi beklenir
- Hazır olarak satın alınan 1:9 - ($H_2$:Ar) gaz karışımı 300 sccm olarak tüpten geçirilir kısa bir süre beklenip, basınç 2 mBar civarında sabitlendikten sonra ısıtma işlemi başlatılır.
- 1 saat içinde oda sıcaklığından 200 $^{O}$C 'ye çıkılır
- 200 $^{o}$C de 1 saat beklenir.
- 200 $^{o}$C den 340 $^{o}$C'ye 1 saatte çıkılır.
- 340 $^{o}$C de 3 saat beklenir.
- 340 $^{O}$C'den oda sıcaklığına 2 saatte inilir.

### 3.3.4 Çok kaynaklı akım ile tavlama tekniği




Şekil 22. a) Yeni kontak tasarımı ile üretilmiş CY_07092015_SUB1-2 numaralı örneğin optik mikroskop görüntüsü b) Çok kaynaklı akım ile tavlama tekniğinin uygulanacağı elektronik ölçüm şematiği

Yukarıda bahsedilen literatürdeki uygulamalarda verilen örneklerdeki yapıların tamamı 2-terminal tasarım olup, grafene iki kontak arasında ısıtma işlemi yapılıp,

ölçüm alınır. Bu durumda dahi grafende ortadan kenarlara doğru bir sıcaklık yayılımı (gradient) oluşur ve aktif alan temiz olmasına rağmen kontaklara yakın kısımlarda kirlerin giderilmesi mümkün olmayabilir. Bu duruma çözüm olabileceğini düşündüğümüz, ideal grafen elde etmeye yönelik olarak yeni 2-terminal aygıt tasarımları hazırlanmıştır.

Öncelikli olarak standart akımla tavlama yönteminin 2-terminal aygıtlar üzerinde denenip yüksek kalite grafen elde edilmesine çalışılarak ve daha sonrasında bu kalitenin arttırılmasına katkı sağlayabileceği düşünülmüş yeni kontak tasarımları ile grafen aygıtlar üretilmiş böylece kontakların da ısıtılması düşünülmüştür.

Şekil 22 a'da yeni kontak tasarımlarıyla fabrikasyonu başarıyla tamamlanmış CY_792015_SUB1_2 isimli örnek üzerinde uygulanan çok kaynaklı akım ile tavlama tekniğinin detayları şöyle özetlenebilir;

Şekil 22 b'de verilen çok kaynaklı akım ile tavlama şematiğinde 14, 16, 19 numaralı kontaklar akım kaynağına bağlanmış, 18 numaralı kontağa ise " 0 Volt" DC gerilim uygulanarak gider kontağı olarak kullanılmıştır. Tavlama tekniği şekilden görüleceği üzere 14 numaralı kontaktan, ( I + $I_G$ ) akımı geçirilirken tam karşında bulunan kontağın devamında ” – I” akımı geçirilir.

Burada “I” akımı kontakları ısıtan akım olmakla birlikte karşılıklı kontaklar arasındaki "$I_G$" akım farkı grafenden geçerek gider kontağına ulaşmakta ve bu akım ile grafenin ısıtılması sağlanmaktadır. Aynı şekilde 16 numaralı kontaktan" – I" akımı geçirilerek direk gidere gönderilen akım kontağı ısıtmaya yaramaktadır. Örneğin aynı zamanda 14 – 16 veya 19- 18 kontakları üzerinden direnç değişimi gözlenip, bir fark olması durumunda kapı gerilimine karşılık direnç eğrisinin ölçümü yapılarak kontrollü bir şekilde iyileşme olup olmadığı kontrol edilir. Bu yöntem sonuncunda oldukça yüksek saflıkta grafen elde edilmiş, detayları "Ultra saf asılı grafende kuantum taşınımı ve minimum iletkenlik" başlığı altında verilmiştir.

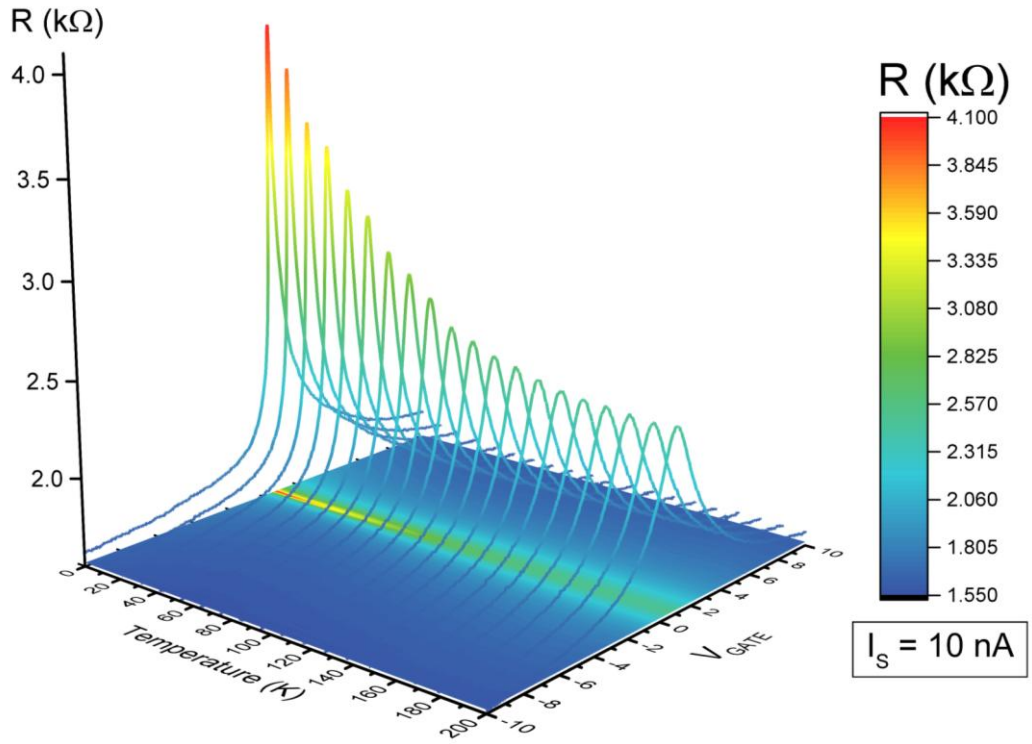
### 3.4 Grafen Nanomekanik Rezonatörleri

Proje kapsamında grafen nanomekanik rezonatörler üretimi ve karakterizasyonu konusunda çalışmalar da yapılmıştır. Bu çalışmalarla ilgili çalışmalar ayrıntılı olarak Ek-2'de verilmiştir.

# 4. BULGULAR

## 4.1 Grafen aygıtın yük hareketliliğinin belirlenmesi

Şekil 23'de ısıl tavlama sonrası temizlenerek elde edilen örneğin (CY_1752015_S1_1) Lock-in yükselticisi kullanılarak, 10 nA AC akım uygulanmasıyla, 1.5 – 200 K sıcaklığı aralığındaki direnç eğrisindeki değişimi yüzey grafiği ( surface plot) ile gösterilmiştir. Direnç eğrisinin sıcaklıkla birlikte artarak arttığı, eğri genişliğinin ise azaldığı açıkça görülmektedir.




Şekil 23. CY_1752015_S1_1 numaralı örneğin, kapı gerilimine karşılık Direnç değerinin sıcaklık ile değişimi.

Elde edilen direnç eğrisi aşağıdaki formül ile verilen modele fit edilerek, manyetik alandan bağımsız örnek mobilitesi hesaplanabilinir.

$$R_{tot} = R_C + \frac{L}{We\mu\sqrt{n_{res}^2 + n^2}}$$

$$n(V_G) = \alpha(V_G - V_D)$$

Burada sırasıyla ; $R_C$ : kontak direnci, L: Örneğin kontak orta noktaları arasında uzunluğu, W: Örneğin genişliği, e: elektron yükü, μ: yük hareketliliği, $r_{res}$ : Kirlilik katkısından gelen konsantrasyon, n: Kapı gerilimi ile yüklenen konsantrasyonu göstermektedir. α değeri kapı gerilimi ile indüklenen taşıyıcı konsantrasyonu arasındaki bağlanma (coupling) faktörüdür. Bu değer kısmen aşındırılmış alttaş üzerinde grafen için seri kapasitans formülünden hesaplanabilmekle birlikte;

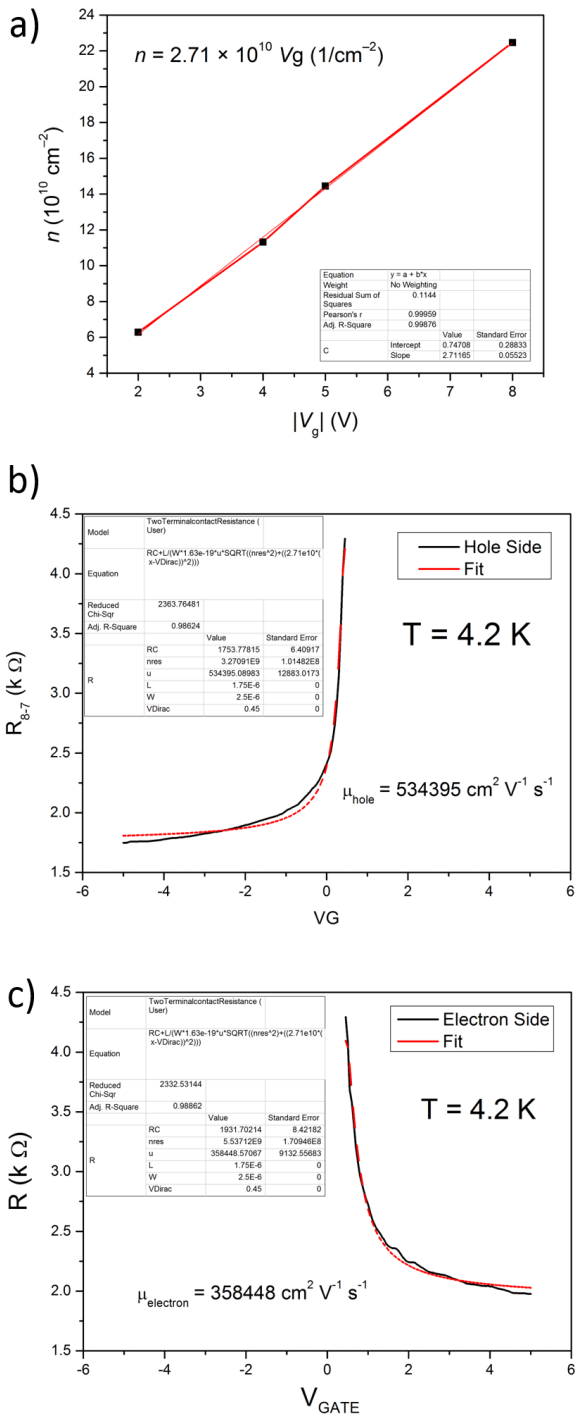
$$C_g = 1 \Big/ \left( \frac{1}{\frac{\varepsilon_0}{t_{vakum}}} + \frac{1}{\frac{\varepsilon_0 \varepsilon}{t_{oksit}}} \right)$$

kuantum Hall ölçümlerinden daha hassas hesaplanabilir [ Şekil 24 (a)].

Şekil 24.b ve Şekil 24.c'de sırasıyla boşluk ve elektronlar için fit grafikleri gösterilmiştir. Burada örneğin boyu L = 1.75 μm, genişliği W = 2.5 μm, Dirac noktası = 0.45 V ve α değeri sabit alınıp kalan parametler serbest bırakılarak en uygun fit oluşturulmuş ve neticede oldukça yüksek kaliteye sahip olan askıda grafenin boşluklar için yaklaşık ≈ 535000 $cm^2V^{-1}s^{-1}$ ve elektronlar içn ≈ 360000 $cm^2V^{-1}s^{-1}$ gibi olukça yüksek taşıyıcı hareketlilik değerleri elde edilmiştir. Ayrıca elde edilen fit değerleri sonucu kirlilik konsantrasyonları salınımları elektronlar için $\delta n_e \approx 5.5 \times 10^9$ $cm^{-2}$ ve boşluklar için $\delta n_h \approx 3.3 \times 10^9$ $cm^{-2}$ olarak elde edilmiştir. Taşıyıcı konsantrasyonundaki bu homojensizlik değerleri örneğin 4.2 K sıcaklığı için kapı gerilimine karşılık direnç grafiğinde yarı yükseklikte ful genişlik (FWHM) göz önüne alındığında, birbirleriyle tutarlıdır.

Örneğin FWHM değeri 4.2 K sıcaklığında $\Delta V_G$ = 0.49 Volt değerine tekabül edip bu değere karşılık gelen taşıyıcı konsantrasyon değerleri $\Delta n = \alpha \Delta V_G$ ( $\alpha = 2.71 \times 10^{10}$ ) ilişkisi kullanılarak ve eğrinin simetrik olduğu varsayılarak elektron ve boşluklar için yaklaşık $\delta n \approx 6 \times 10^9$ $cm^{-2}$ bulunmuştur. Bu değer kirli askıda grafenler veya askıda olmayıp alt taş üzerinde bulunan grafen aygıtlar için elde edilen n ≈ $10^{11}$ $cm^{-2}$ değerinden oldukça düşüktür. Grafende fabrikasyonlar süreçlerinden gelen rezist vs kirlilikler ve elektron-boşluk adacıkları taşıyıcı konsantrasyonunda homojensizliğe neden olmakta ve kendini direnç tepe noktasında zayıf artma veya iletkenlik değerinde beklenen minimum değerden uzak bir değere ulaşarak gösterir ve $k_BT$ ( $k_B$ = Boltzmann sabiti) değeri Fermi enerji salınmlarından düşük olmasıyla $k_BT < \overline{h}\, v_F \sqrt{\pi n}$ doyuma ulaşır. Taşıyıcı yoğunluğunda n ≈$10^{11}$ $cm^{-2}$ civarındaki değere karşılık gelen sıcaklık değeri $T = \overline{h}\, v_F \sqrt{\pi n} / k_B \sim 400\ K$ tekabül ettiğinden sıcaklığa

bağlı olarak (Oda sıcaklığından düşük sıcaklıklara) direnç değerinde artma ve iletkenlik değerinde azalma gözlenemez.




Şekil 24. a) Kuantum Hall ölçümlerindeki dolum faktörlerinden elde edilerek hesaplanan bağlanma faktörü "α" b) Boşluk hareketliliği değerinin bulunması için uygulanan fit eğrisi c) hareketliliği değerinin bulunması için uygulanan fit eğrisi

### 4.1.1 Shubnikov-de Haas salınımları ve kuantum yük hareketliliği

Isıl tavlama sonrası elde edilen örneğin kalitesini anlamanın diğer bir yolu da Shubnikov-de Haas (SdH) salınımlarının gelişmesiyle başlayan dolum faktörü değerlerinin, kendilerini öncesinde direnç $R(V_G)$ eğrisinde oluşan minumum ve yanlarında oluşan tepe eğrileri ile göstermesidir.Bu tepecikler daha sonrasında kuantum Hall rejimine girerek artan manyetik alan ile birlikte ilk dolum faktörü olan v = ± 2 değerlerine gitmektedir.

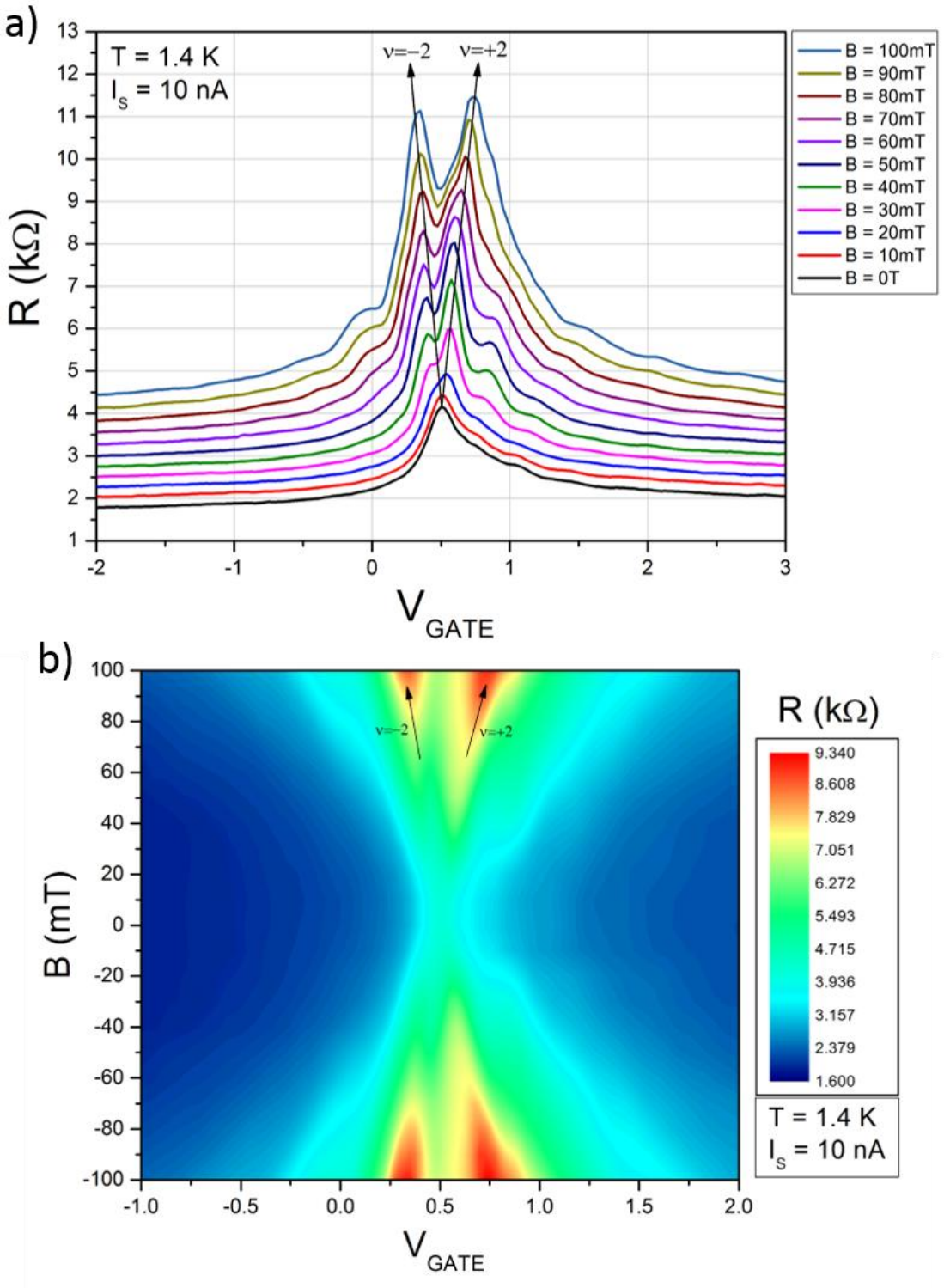
Taşıyıcıların manyetik alan altında siklotron yörüngelerini saçılmadan tamamlamaları için oluşması gereken şart ;

$$\mu_Q B_q \equiv \omega_c \tau_q = 1$$

Burada $B_q$ : SdH salınımlarının ortaya çıktığı en düşük manyetik alan değeri, $\omega_C$ siklotron frekansı, $\tau$ saçılma zamanı, $\mu_Q$ kuantum hareketliliği (quantum mobility) olarak adlandırılır.

Şekil 25 a'da 0- 100 mT aralığında 10'ar mT aralıklarla kapı gerilimine karşılık direnç değerleri gösterilmiştir. Grafikten görüldüğü üzere $B_q$ = 30 mT olarak belirlenmiştir. Bu manyetik alan değerinde Dirac noktasındaki direnç değerinde bir minimum ve yanlarında tepeler oluşmaktadır. Oklarla gösterilen tepelerin artan manyetik alanla birlikte 2. dolum faktörlerini oluşturdukları açıkça görülmektedir.

$B_q$ = 30 mT değeri yaklaşık $\mu_Q \approx 330.000$ $cm^2V^{-1}s^{-1}$ kuantum yük hareketliliğine karşılık gelmektedir. Bu değer Şekil 22de elde edilen taşıyıcı hareketliliği ile uyum göstermekle beraber, kuantum hareketlilik göstergesinin, yüksek kalite askıda grafenler için daha sağlıklı bir değerlendirme olduğu düşünülmektedir. Bunun nedeni normal taşıyıcı hareketliliği hesaplama yolları "Drude" denklemlerine yani dağınık (diffusive) taşınım teorisine dayanmaktadır. Dağınık hesaplamalar balistik taşınıma geçebilecek olan yüksek kalite askıda grafenler için doğru sonuç vermez. Şekil 25.b'de örneğin -100 mT – 100mT aralığında 10 nA AC kaynak akımı ile 1.4 K sıcaklığında kapı gerilimine karşılık direnç değerlerinin 2 boyutlu diyagramı gösterilmiştir. Oldukça düşük manyetik alan aralığında dahi ilk dolum faktörlerinin v = ± 2 nicemlendiği açıkça görülmektedir.



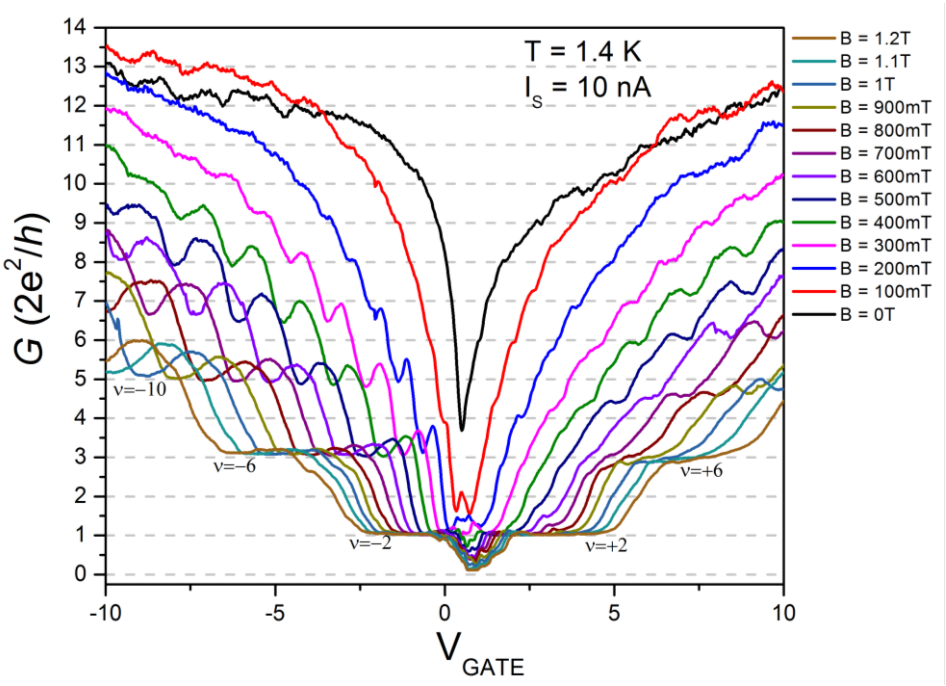

Şekil 25. a) CY_1752015_S1_1 numaralı örneğin 0 - 100 mT manyetik alan altında kapı gerilimine karşılık direnç eğrileri b) ± 100 mT manyetik alan altında dolum faktörü fan diyagramı.

### 4.2 Tek katman grafende kuantum Hall platolarının gözlemlenmesi

Kuantum Hall etkisi, 2 boyutlu elektron sistemlerinin düşük sıcaklık ve yüksek manyetik alan altında boyuna direncin hemen hemen "0" ($\rho_{XX} \sim 0$) olması ve Hall iletkenliğinin $R_{XY}^{-1} = ne^2/h$ değerlerinde nicemlendiği (quantization) durumdur. Tek katman grafende orbital (2) ve spin (2) dejenerasyonlarından dolayı iki boyutlu elektron gazından (2DEG) farklı olarak yarım-sayı-nicemlenme (half integer quantization) görülür, $R_{xy}^{-1} = \pm 4(n+1/2)\, e^2/h$.

#### 4.2.1 Yük yoğunluğunun taranmasıyla kuantum Hall platolarının gözlemlenmesi

Şekil 26'da örneğin farklı manyetik alanlar altında kapı gerilimine karşılık iletkenlik değerleri gösterilmiştir. Grafikte açıkça görülmektedir ki iletkenliğin nicemlenme değerleri tek katman grafene özgü olan $\nu = \pm 2, \pm 6, \pm 10$ değerlerinde olmaktadır. Burada grafenin 200 mT manyetik alan değerinde bile doğru iletkenlik değerine tekabül ederek oldukça düzgün nicemlenmenin olduğu görülmektedir. Bu durum askıda grafenin yüksek hareketlilik ve düşük taşıyıcı homojensizliğine sahip olduğunun açık bir kanıtıdır. Alttaş üzerinde böyle bir nicemlenme değerlerini görülebilmesi için örneğin sahip olduğu taşıyıcı homojensizliğine bağlı olarak en iyi ihtimalle bir kaç Tesla manyetik alanın uygulanması gerekmektedir.

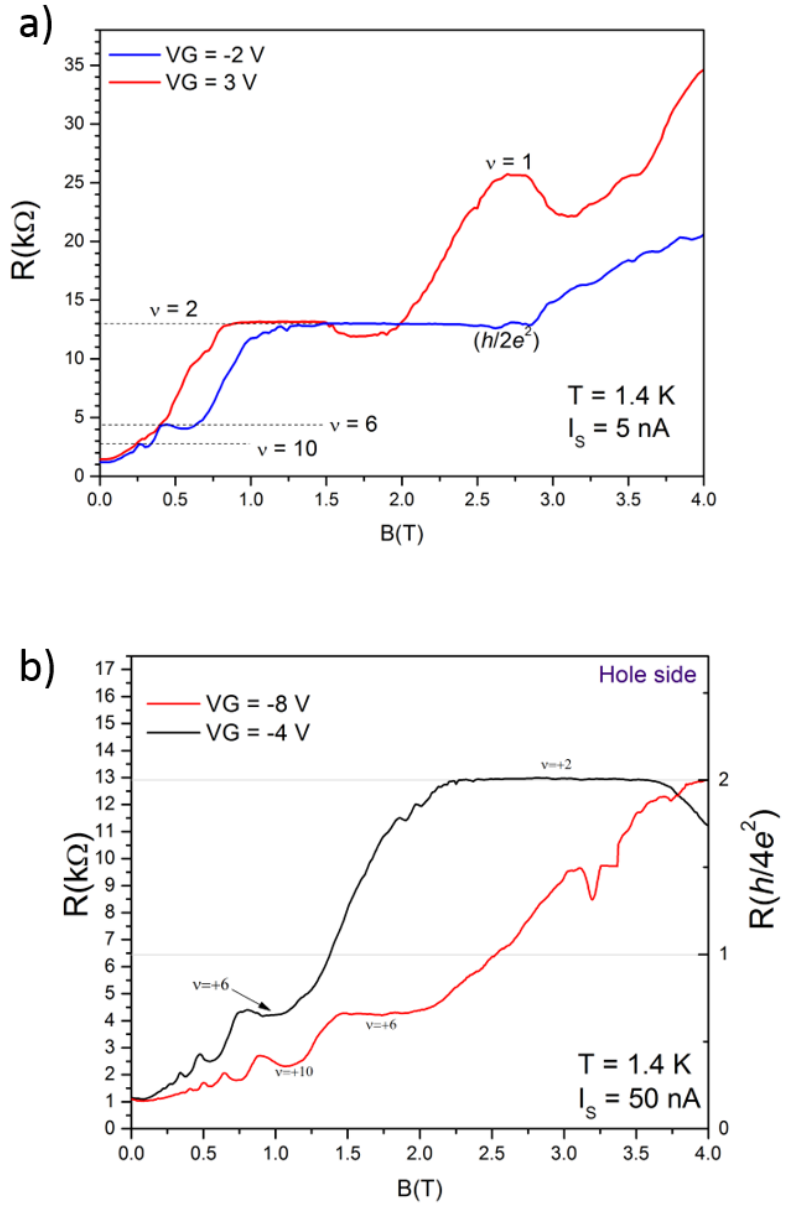



Şekil 26. CY_1752015_S1_1 numaralı örneğinin 0'dan1.2 Tesla'ya kadar 100'er mT manyetik alan aralığıyla kapı gerilimine karşılık iletkenlik değerlerinin nicemlenmesi.

### 4.2.2 Manyetik alan taramasıyla kuantum Hall platolarının gözlemlenmesi

Şekil 27.a'da sabit kapı gerilimi altında buna tekabül eden taşıyıcı konsantrasyonları elektronlar (3V) ve boşluklar ( - 2V) için manyetik alan 0 – 4 Tesla arasında taranarak, 1.4 Kelvin sıcaklıkta ve 5 nA kaynak akımı ile direnç değerleri gösterilmiştir. Burada da tek katman grafene özgü nicemlenme değerleri görülmekle birlikte, normal nicemlenme serisi dışında kalan simetri kırılması ile ortaya çıkan v = ± 1 değeri, etkileşmeyen kuazi parçacıklar çerçevesinde beklenmeyen bir durum olup elektron- elektron etkileşmelerine işaret etmektedir Ayrıca bu durum alttaş üzerindeki grafen aygıtlarda oldukça yüksek (30-45T) manyetik alanlarda spin ya da vadi (valley) dejenerasyonun kaldırılması (degeneracy lifting) ile gözlemlenmiştir [Jiang vd., 2007]. Örneğin boşluklar için yük hareketliliği ve taşıyıcı konsantrasyonun homojenliği elektronlara göre biraz daha yüksektir. Bu durum kendini düşük manyetik alan altında SdH osilasyonlarının daha açık görülmesi ile görülebilir. Şekil 27.b' de boşluk tarafına tekabül eden sabit kapı gerilimleri altında manyetik alanın taranmasına ile direnç değerleri gösterilmiştir. Düşük manyetik alanlar için Shubnikov-de Hass (SdH) osilasyonları açıkça görülmektetir. Ayrıca Şekil 26'da farklı

manyetik alanlar için iletkenlik değerindeki nicemlenme değerlerinin boşluk tarafında çok daha net olduğu görülebilir. Bu durum direnç eğrinin tam simetrik olmamasından kaynaklı olup literatürde de benzer sonuçlar gözlenmiş çoğu zaman sonuçların en iyi olduğu taşıyıcı tarafına tekabül eden değerler gösterilmektedir.



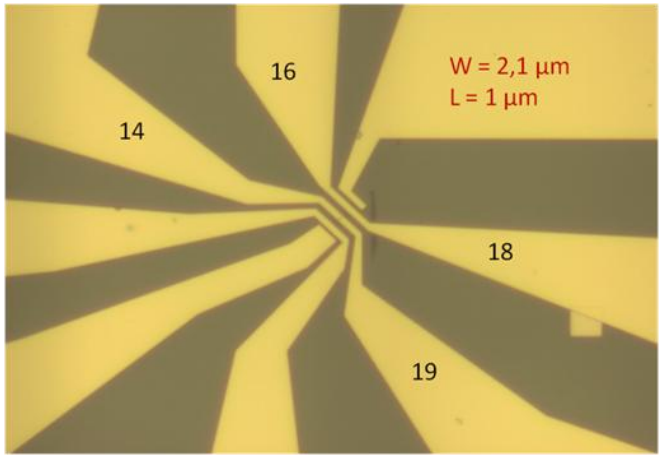

Şekil 27. a) Manyetik alanın taranmasıyla birlikte boşluklar( mavi) ve elektronlar (kırmızı) için direnç değerlerinde nicemlenme basamakları b) -8V ve -4V sabit kapı gerilimi ile farklı boşluk yoğunluğu durumda manyetik alan altında SdH salınımları ve dirençteki nicemlenme değerleri.

### 4.3 Ultra saf asılı grafende kuantum taşınımı ve minimum iletkenlik

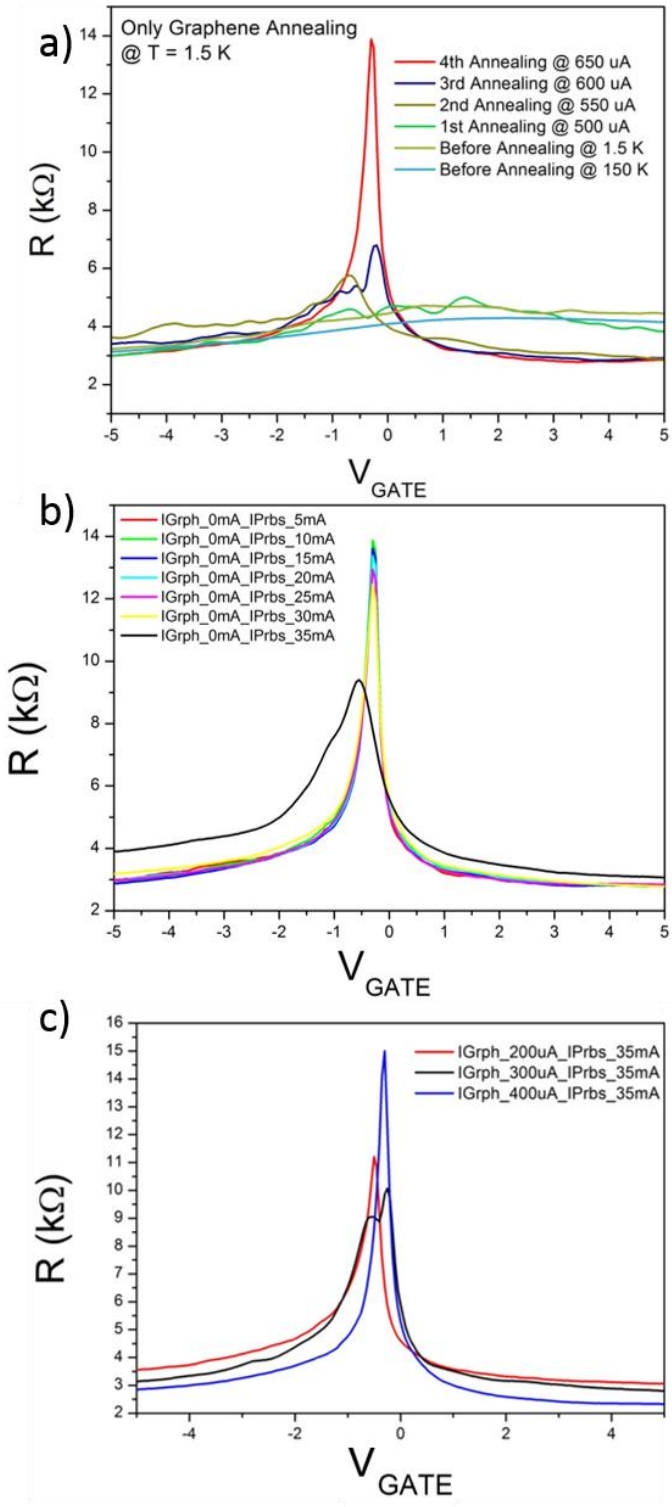
2 terminalli askıda grafen aygıtlarda, akım ile ısıtma işleminin uygulanıp, yüksek kalite aygıt elde edilme olasılığı çok terminal aygıtlara kıyasla, yukarda anlatılan sebeplerden ötürü daha fazladır. Fakat 2 terminal tasarım için de geçerli olan, grafenin ortasından kenarlara doğru olan ısı yayılmasından ötürü kenarlarda birikebilecek kalıntıların da temizlenip, grafen kalitesinin daha da arttırılması düşünülerek geliştirdiğimiz aygıt dizaynlarında başarılı deneyler yapılmış ve literatürde elde edilen en yüksek kalite askıda grafenin elde edildiği görülmekle birlikte, bunun neticesinde oldukça ilginç sonuçlar gözlemlenmiştir.

#### 4.3.1 Ultra saf asılı grafen elde edilmesi

CY_792015_SUB1_2 isimli aygıtın [Şekil 28] fabrikasyonu yeni kontak tasarımı ile tamamlanmış ve "Çok kaynaklı akım ile tavlama tekniği" altbaşlığı altında detayları verilen geliştirmiş olduğumuz yeni tavlama tekniği başarılı bir şekilde uygulanmıştır. Şekil 26'da sırasıyla, sadece grafenin akım ile tavlanması, sonrasında sadece kontakların akım ile tavlanması son olarak da kontaklar ve grafenin birlikte akım ile tavlanması gösterilmiştir. CY_792015_SUB1_2 numaralı askıda grafen aygıtın ölçümleri 14- 16 kontakları arasında ya da eş olarak 19-18 kontakları arasında yapılmıştır. Burada grafenin genişliği W = 2.1 μm iken uzunluğu ise L = 1 μm' dir.




Şekil 28. CY_792015_SUB1_2 isimli askıda grafen örneğin aşındırma sonrası optik mikroskop görüntüsü ve örnek taşıyıcıya bağlanan kontak numaraları konfigürasyonu



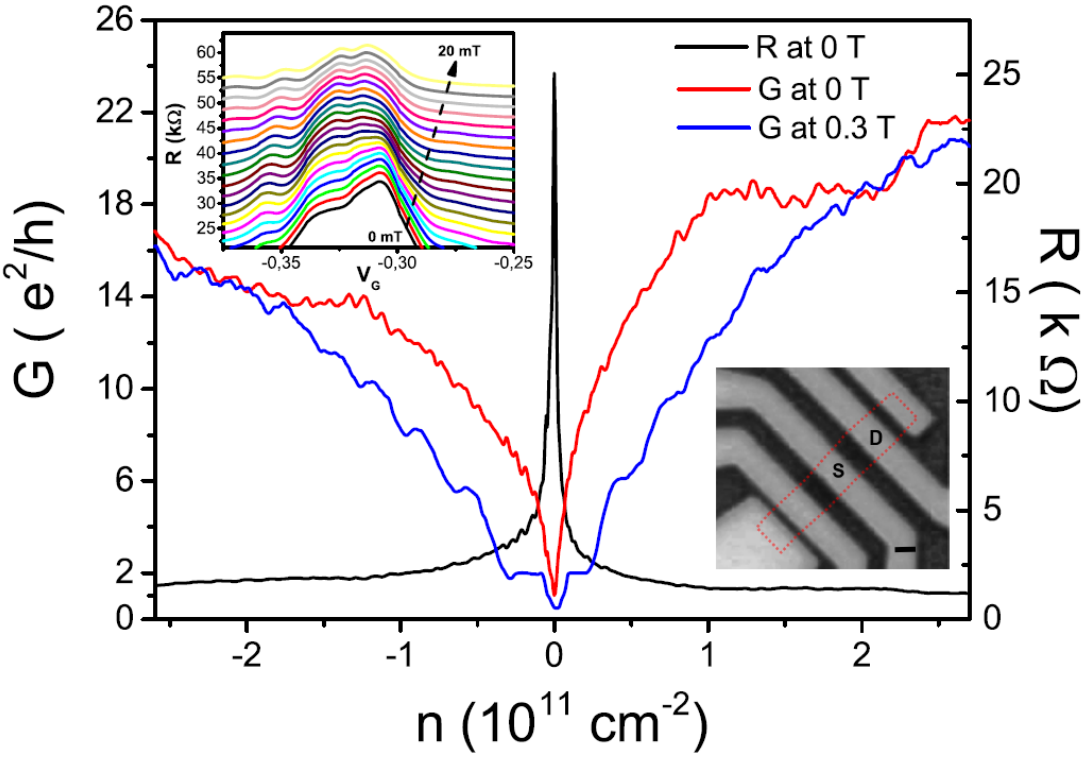

Şekil 29. CY_792015_SUB1_2 nolu örnekte a) Grafene b) kontaklara c) kontaklar ve grafene ısıl tavalama uygulanması sonucu kapı gerilimine karşılık direnç değerleri.

Şekil 29.a'da 14 ve 16 kontakları arasında 150 K ve 1.5 K sıcaklığında akım ile tavlama öncesi kapı gerilimine karşı direnç eğrisi gösterilmiştir. Sonrasında artan akımla birlikte 4. Denemede $I_S$ = 650 μA akımı geçirildikten sorna istenilen şekilde oldukça düzgün, tepe noktası "0 V" kapı gerilimine yakın simetrik ve keskin bir eğri yakalanmıştır. Örnek bu durumdayken sadece kontakların ısıtılması ile eğride ne gibi bir değişim olacağı merak edilerek denemeler yapılmıştır. Şekil 29 b'de , öncesinde Şekil 22'de verilen ölçüm şematiği dahilinde kontaklardan I = 5 mA – 35 mA arasında akım geçirilmiştir. Bu esnada aynı zamanlı olarak ölçülen direnç değişimi için $I_G$ = 10 μA sabit akım geçiriilmiş ve gözlenen değişimler için, akımlar 0'a indirilerek $I_S$ = 1 μA kaynak akımıyla kapı gerilimine karşılık direnç eğrisi ölçülmüştür. 35 mA akım değerine kadar eğride sadece tepe noktasında bir kaç kOhm değerlerinde azalmalar görülüp eğrinin genel profilinde bir değişim gözlenmezken, 35 mA akım değerinde eğrinin tepe nokasında oldukça fazla azalma ve genişliğinde artma gözlemlenmiştir. Bu durum kontak bölgesi civarında var olan kirliliklerin daha soğuk olan grafenin orta kısımına doğru taşınabileceği senaryosonu düşündürmektedir. Uygulanan 35 mA akım değerinde kontakların yeterince ısındığı ve grafen üzerine etkisi olduğu kanıtlanmıştır. Kontaklar için bu akım değeri sabit tutularak efektif bir ısıtma işlemi için aynı zamanda grafenden de akım geçirilerek sonuç Şekil 29.c'de gösterilmiştir. Görüldüğü üzere kontaklar için sabit tutulan I = 35 mA akımı yanı sıra $I_G$ = 400 uA akımı geçirilirek, oldukça kaliteli eğri elde edilmesi başarılmıştır. Grafenin genişliğine göre daha düşük akım ile temizliğe ulaşılmasının kontaklarla birlikte uygulanan kollektif ısıtmadan kaynaklandığı düşünülmektedir.

### 4.3.2 Ultra saf grafende kuantum taşınım ölçümleri

Şekil 30'da taşıyıcı konsantrasyonunun Direnç (R) ve İletkenliğe ($G(e^2/h)$) göre 1.5 K sıcaklıkta ve IS = 10 nA kaynak akımı ile grafiği gösterilmiştir. Burada siyah eğri 0 T manyetik alanda direnç eğrisine ve kırmızı eğri ise 0T manyetik alanda iletkenlik eğrisine tekabül ederken, mavi eğri iletkenliğin 300 mT manyetik alandaki değeridir. Burada taşıyıcı konsantrasyonun kapı gerilimi ile değişim değeri de kuantum Hall ölçümlerinden hesaplanarak $n(V_G) = \alpha V_G$ ilişkisi ile kapling faktörü paralel tabaka kapasitör modeli ile uyumlu olarak, $\alpha \approx 2.7 \times 10^{10}$ $cm^{-2}$ bulunmuştur. Örneğin tek katman grafen olduğu ayrıca iletkenlik değerlerinin v = ±2, ±6, ±10 dolum faktörlerinde nicemlenmesinden görülmektedir. İlk dolum faktörleri olan v = ±2 için 300 mT manyetik alan altında dahi oldukça düzgün gelişmiş olması örneğin çok yüksek kalite grafen olduğunun ilk göstergeleridir. Burada siyah eğriyle gösterilen

taşıyıcı konsantrasyonuna karşı direnç eğrisinin literatüre kıyasla gözlenen en temiz askıda grafen olduğunu düşünmekteyiz. Örnek rezistans eğrisinin FWHM değeri Δn ≈ 4 x $10^9$ $cm^{-2}$ gibi oldukça düşük salınımlara denk gelmekte olup Dirac noktasına daha da yaklaşıldığı aralıkta, taşıyıcı konsantrasyonundaki homojensizlik değerlerinin δn ≤ $10^8$ $cm^{-2}$ gibi oldukça düşük değere ulaşılabildiği görülebilir. Şekil 30 üst-içerdeki grafik 0 – 20 mT manyetik alan aralığında 1 mT aralıklarla direnç eğrisini göstermektedir. Eğriler açık görülmesi nedeniyle üste doğru kaydırılarak çizilmiştir. Buradan görüleceği üzere 8 mT manyetik alanında Shubnkiov-de Hass osilasyonları için kritik başlangıç manyetik alan değeri ile direnç minimumu görülmekte bu da hareketlilik değerinde milyon değerinin üzerine çıkıldığını göstermektedir. Alt-içerdeki fotoğrafta askıda grafenin kenarları kırmızı kesikli çizgiler ile gösterilip, skala çizgisi 1 μm'ye tekabül etmektedir.

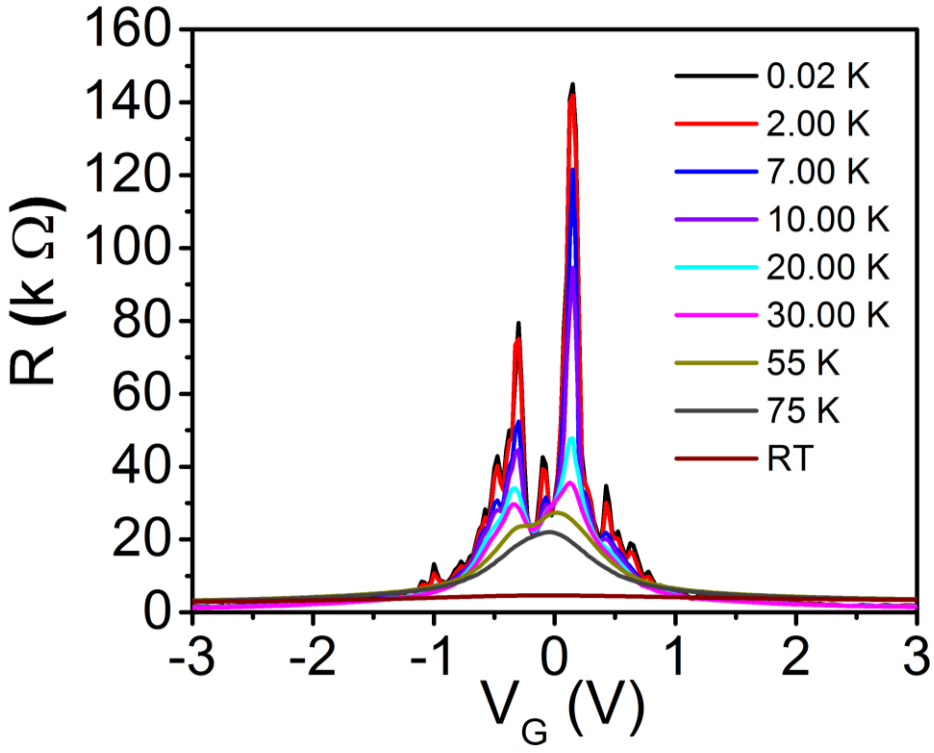



Şekil 30. CY_792015_SUB1_2 nolu örneğin yük yoğunluğuna karşı 0 Tesla manyetik alanda direnç (siyah), iletkenlik (kırmızı) ve 300 mT manyetik alan altında iletkenlik nicemlenmeleri (mavi) gösterilmektedir.

Örneğin genişlik/ Uzunluk oranı göz önünde alındığında ( W/L = 2.1 μm), öz direnç tepe noktası değerinin 50 kOhm'u geçmekte yani grafende teorik olarak beklenen

minimum iletkenliğe $\sigma \sim 4e^2/\pi$h tekabül eden direnç değeri olan $\rho \sim 20.3\ k\Omega$ ' un çok üzerinde olduğu görülmekte ve bunun literatürde de tartışılan ultra temizlik ile Dirac noktasına daha da erişebilirliğin sağlanması sonucu bir bakıma yalıtkanlık davranışı durumuna geçiş olabileceği düşünülmektedir.

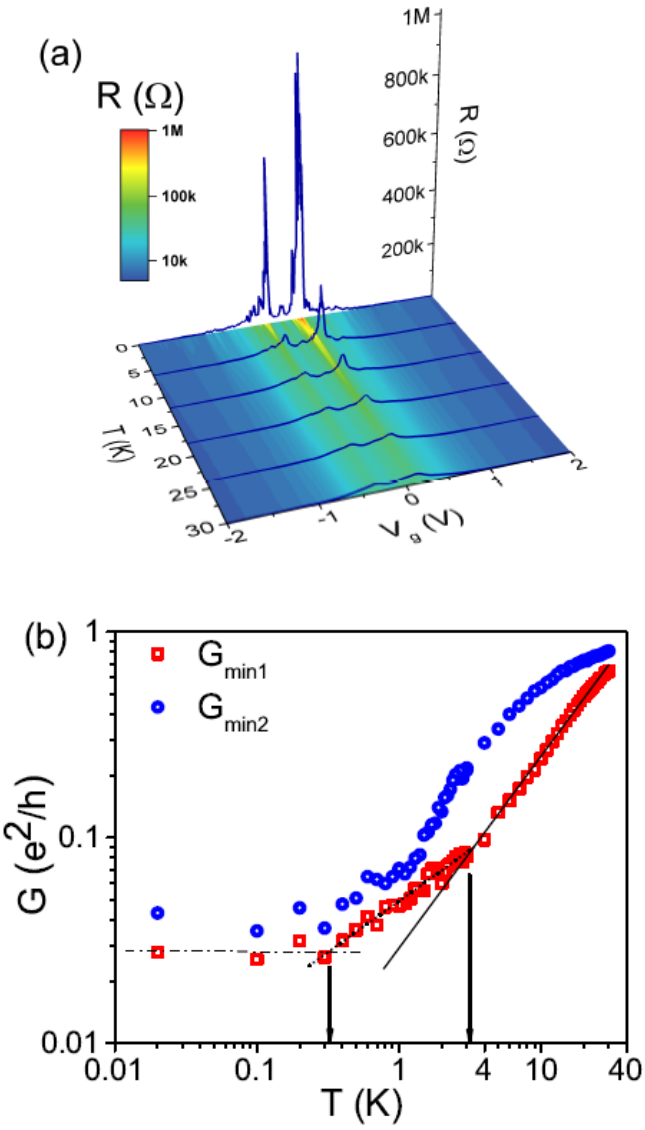
Vakum altında (P < 1Pa) oda sıcaklığından düşük sıcaklığa termal dönüşüm deneyleri süresinde, örnek Dirac noktası çervesinde iki ayrı yüksek direnç tepesine bölünerek (her ikisi de h/e$^2$ değerinin çok üstünde) fenomenal bir yüksek direnç (düşük iletkenlik) durumunun geliştiği gözlenmiştir.




Şekil 31. Termal dönüşüm deneyleri sırasında 10 nA AC kaynak akımı ile farklı sıcaklıklar değerlerinde kapı gerilimine karşı direnç eğrileri.

Şekil 31.a'da 0 Tesla manyetik alanda uygulanan kapı gerilimine karşı direnç değerlerinin oda sıcaklığında 20 mK sıcaklığa kadar değerleri gösterilmiştir. Sıcaklığın düşmesiyle birlikte yaklaşık 75 K sıcaklığın altında tepe noktasının ikiye ayrılmaya başladığı ve sıcaklığın daha da azalmasıyla birlikte her bir tepe noktasının 10 K sıcaklık civarı yalıtkan duruma ( > h/e2) geçtiği gözlenmiştir. Deneyler sırasında oldukça düşük sıcaklık değerlerinde genel olarark Lock-in yükseltici ile uygulanan 10

nA akım değerinin örnek üzerinde kendini ısıtma (self-heating) durumunun var olabiliceği düşünülerek, daha düşük uyarımlarla Lock-in yüskelticisi ile voltaj uygulamalarına geçilmiş ve VS = 4 μV voltaj uyarımları uygulanmıştır. IS = 10 nA akım ile örnek üzerinde tahmini olarak pico-Watt seviyelerinde bir güç dağılması (power dissipation) mevcut iken bu durumun 4 μV voltaj uyarımlarıyla güç dağılımında femto-Watt sevilerine inildiği düşünülmektedir. Literatürde de alttaş üzerinde grafen aygıtlar için birkaç pico-watt güç dağılımı neticesinde, grafenin ısınmasına neden olduğu gerçek tepe noktası değerlerinin 30 % kadar düşük değerlerde gözlemlendiği bulunmuşutur [Checkelsky vd., 2008].



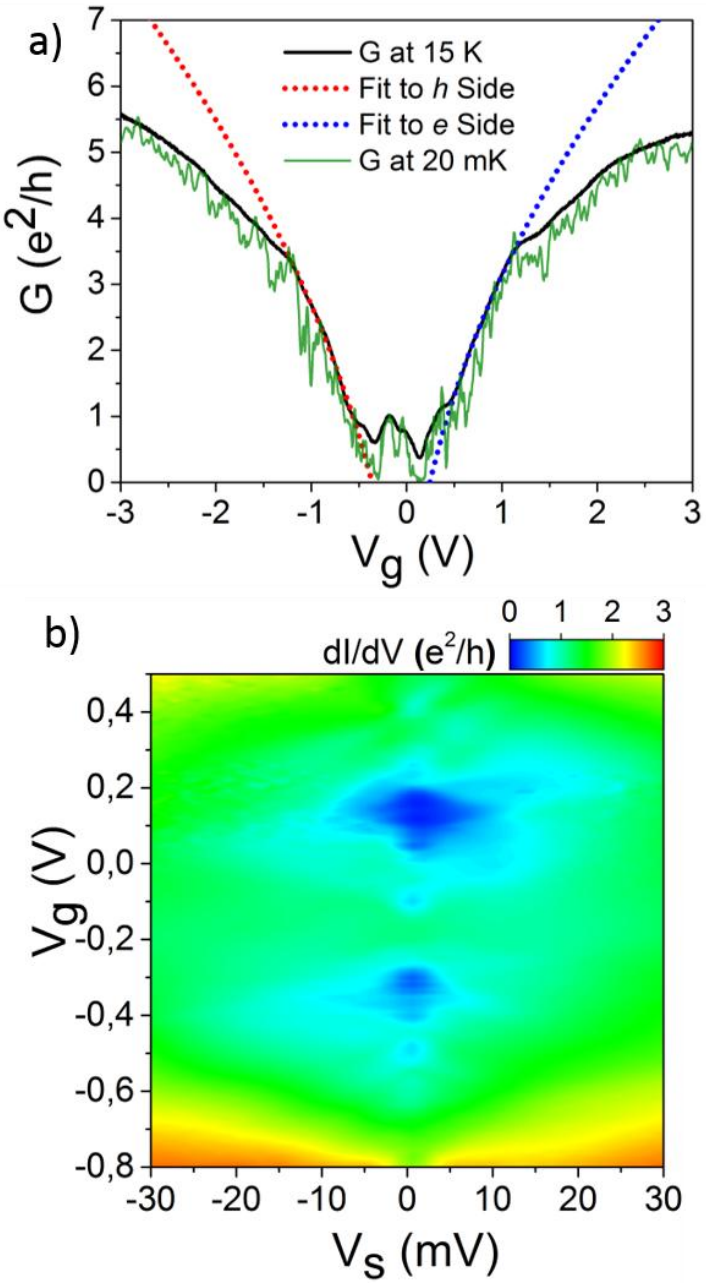

Şekil 32. a) $V_S$ = 4 μV voltaj uyarımlarıyla 0.02 - 30 K sıcaklıkları arasında direncin kapı gerilimine karşı değerleri. Yüzey grafiğindeki renk, skaladaki direnç

değerlerine tekabül etmektedir. b) Dirac noktalarına tekabül eden minimum iletkenlik noktalarının sıcaklıkla davranışı.

Örnek minimum sıcaklığa (20 mK) ulaştıktan sonra termal dönüşüm deneyleri 20 mK – 30 K aralığında sınırlandırılmış, elde edilen sonuçlar tekrarlanarak gözlenen değerlerinin tekrarlanabilir ve tutarlı olduğu anlaşılmıştır. Şekil 32.a'da kapı gerilimine karşılık direnç değerlerinin sıfır manyetik alan altında farklı sıcaklıklar için V = 4 μV AC voltaj uyarımlarıyla grafikleri gösterilmiştir. Direnç değerlerinin çok güçlü bir şekilde sıcaklığa bağlılığı görülmekte ve Direnç tepe noktaları M-Ohm seviyelerine ulaşmaktadır. Direnç eğrilerinin 20 mK sıcaklık için değerlerinde eğri genişliklerinin (FWHM) oldukça düşük aralığa sahip olduğu $\Delta V_g \approx 0.07$ V dikkate alınmalıdır. Grafikteki renkli skala yüzey grafiğine tekabül etmektedir. İlektenliğin sıcaklığa bağlılığı sistem içindeki homojensizlik hesaplamalarında kullanılabilir. Temiz örnekler, sıcaklığın düşmesiyle birlikte yüksek direnç (düşük iletkenlik) değerleri gösterip sistemin Fermi eneri salınımları inilen sıcaklığa tekabül eden enerji seviyelerinde olduğunda direnç artışı ya da iletkenlik azalışında saturasyon oluşmaktadır. Lokal iletkenlik minumum değerlerinin sıcaklıkla ile davranışı Şekil 32.b' de gösterilmiştir. Bu arada düşük AC voltaj uyarımlarıyla, görece yüksek AC akım uyarımları sonucu gözlenen direnç tepe noktaları arasındaki büyük fark sistemin kendi kendine ısınma (self heating) durumuna bağlanmıştır, sistemin gerçek durumunun düşük uyarımlarla ölçümü sonucu ortaya çıktığı düşünülmüştür. İletkenlik minimumlarında biri $G_{min}$ üstel bir davranış gösterip, $G_{min} \alpha T^{\beta}$ yaklaşık 3K değerine kadar lineer $\beta = 1$ davranış göstermekte bu sıcaklık değerinin altında lineer davranışında daha zayıf bir bağlılıkla ( $\beta = 0.5$ ) devam etmekte ve $T \approx 0.3$ K sıcaklığı civarında satürasyona uğramaktadır. İkinci iletkenlik minimumu da düşük sıcaklıklar için benzer davranışı göstermekle beraber yüksek sıcaklıklar değerleri için üstel bağımlılığından sapmaktadır. Her iki minimum iletkenlik değerinin saturasyon sıcaklığı değerinden örnek içinde Fermi enerji salınım değerlerinin $\delta E_F \approx 30$ μeV değerinde olduğu ve bu enerji salınımlarına tekabül eden taşıyıcı konsantrasyondaki homojensizlik değerlerinin $\delta n \approx 10^5$ $cm^{-2}$ gibi literatürde gösterilen en temiz grafen aygıtlardan daha temiz aygıt elde edildiğini göstermektedir. Nerdeyse sıfırlanan iletkenlik değerinin sebebinin bant aralığı açılmasından kaynaklandığı düşünülemez, aksi taktirde bu durum iletkenlik değerinde üstel ($T^{\beta}$) değil eksponansiyel ($e^{T}$) aktivasyona neden olurdu. Her iki iletken davranışı için de bu durum söz konusu değildir.

Her iki iletkenlik minimumu local Dirac noktaları ile kendini elektron (n) ve boşluk (p) bölgelerinde göstermektedir. İletkenlik eğrisinde lineer-altı (sublinear) davranış, kapı gerilimine karşı olarak Şekil 33.a'da gösterilmiştir. Bu davranışın balistik grafene özgü olduğu bilinmektedir. Balistik eğriler G = 0 çizgisini 2 farklı kapı voltajında ( ≈ -0.35 V ve ≈ 0.25 V) değerlerinde kesip her bir bölgeye ait 2 farklı lokal Dirac noktasının varlığını göstermektedir. Bu lokal noktalar arası mesafe göz önüne alındığında p ve n bölgeleri arası potansiyel farkın yaklaşık ≈ 20 meV olduğu hesaplanmıştır. Lokal Dirac noktaları çervresinde gözlemlenen güçlü yalıtkan davranış her bir bölge için düşük taşıyıcı konsantrasyonlarında Klein tünelleme olayının güçlü bir şekilde bastırılmasıyla ilintili olabilir. İlektenlik değerlerinin beklenmedik şekilde $e^2/h$ değerinden oldukça düşük seviyelere ulaşmasının nedenlerinden birinin, uniform olmayan bir potansiyel bariyeri ile ya da rastgele şekillenmiş p-n sınırları dahilinde lokalize saçılma olaylarının, saçılma bölgelerinde elektron dalga boylarının kıyaslanabilir ya da büyük olması durumuyla Klein tünellemesinin azalması sonucu olabileceği düşünülmektedir [Walls vd., 2015].

Örneğin I–V karakteristiği de incelenmiştir. Local nötr yük nokttaları (Charge neutrality points) çevresindeki iletkenlik etkileşim ile indüklenen lineer olmayan davranışın kendini göstermesi ile değerlendirebilir. Şekil 33.b'de diferansiyel iletkenliğin kapı gerilimine ve uygulanan DC bias voltajına karşılık grafiği gösterilmiştir. Kolayca görülebilir ki local Dirac noktaları için gözlemlenen yalıtkan davranış ≈ 20 -30 mV bias voltajı aralığında var olmakta bu da bizim 20 meV olarak estime ettiğimiz p – n bariyer değeri ile tutarlıdır.

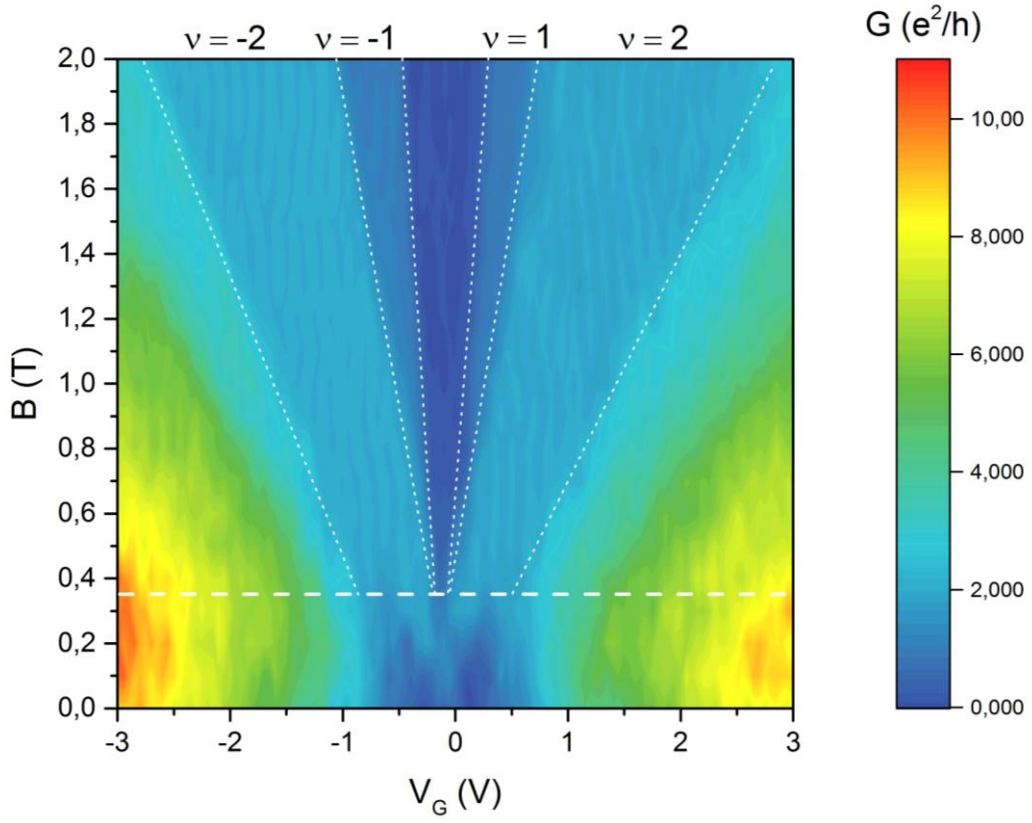



Şekil 33. a) T= 15K ve T= 20 mK sıcaklık değeleri için kapı gerilimine karşılık iki terminalli iletkenlik eğrisi. Fit eğrisi , G α $G \alpha \sqrt{|V_g|}$ ile gösterilip, balistik taşınım durumunu göstermektedir.

Ayrıca manyetik alan varlığında, local nötr noktalarında düşük taşıyıcı yoğunlukları için bulk transmisyon, skletron çapı örneğin boyutlarından düşük olması durumunda baskılanabilir. Bu taşıyıcıların kenarlarda yol alınmasını zorlayarak bulk bölgenin daha da yalıtkan olmasına neden olur.

Manyeto-taşınım ölçümleri sonucu yalıtkan durumdan direk olarak kuantum Hall durumuna yaklaşık ≈ 0.35 Tesla manyetik alan ile geçişin ve kuntum Hall rejimini gösteren $\nu = \pm 2$ dolum faköterlerinin gözlemlenmesi bu durumun bant boşluğunun açılmasından daha çok bir girişim etkisi olduğunu göstermektedir. Aksi taktirde yalıtkanlık durumunun artan manyetik alanla artması beklenirdi.

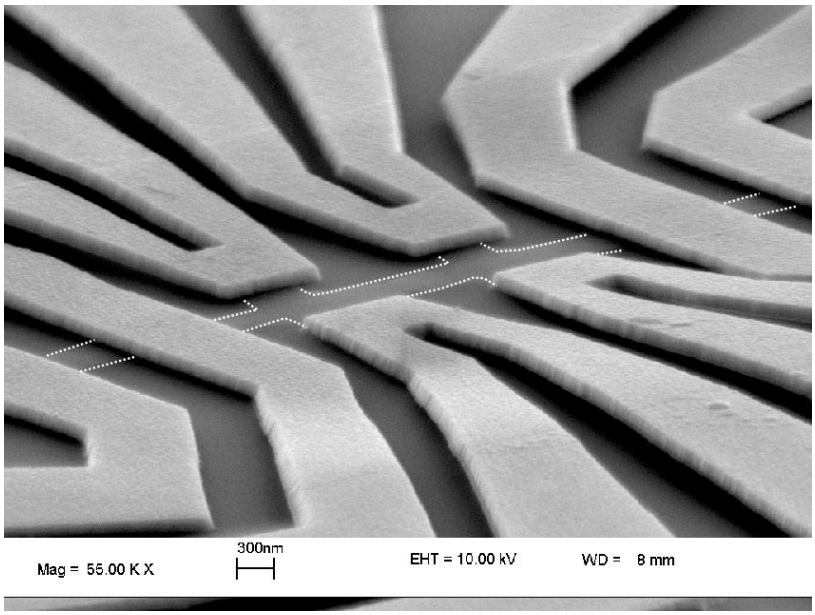
Şekil 32' de ayrıca tek katman için beklenen dolum faktörleri haricinde $\nu = \pm 1$ simetri kırılması sonucu gözlemlenen dolum faktörleri oldukça düşük manyetik alan değerlerinde ≈ 0.8 T gelişmeye başlamıştır. Bu durum daha önceden de bahsedilen etkileşmeyen kuazi- parçacık modeliyle beklenen bir durum olmamakta, elektron – elekron etkileşmeleri dahilinde n = 0 Landau seviyesinde tepe (valley) bölünmeleriyle ilintilidir [Jiang vd., 2007; Young vd., 2012].




Şekil 34. 2 terminal iletkenliğin manyetik alan ve kapı gerilimi altında 2 boyutlu renkli grafiği 350 mT değerinde ( kesikli beyaz düz çizgi) yalıtkanlık durumundan kuantum Hall durumuna geçiş görülebilir. Dolum faktörleri olan $\nu = \pm 1, \pm 2$ grafik üzerinde beyaz kısa aralıklı çizgiler dahilinde gösterilmiştir.

### 4.3.3 Asılı grafende kuantum Hall etkisinin kırılması

Proje önerisinde öngörülen kuantum Hall etkisinin yüksek akımda kırılması deneyleri iki terminalli örneklerin deneyler sırasında bozulması nedeniyle gerçekleştirilememiştir. Kırılma deneylerinin ancak çok terminalli aygıtlarda $R_{xx}$ boyuna ve $R_{xy}$ dirençlerinin ölçülmesiyle iyi sonuç vereceği bilinmektedir. Fakat bunun için gerekli çok terminalli asılı grafen aygıtların üretimi gerçekleştirilememiştir. Literatürde de bu tür aygıtların askıda bırakılsa bile standart kontak tasarımlarıyla temizlemenin neredeyse imkansız olduğu ortaya konmuştur [Ki vd., 2013]. Geliştirdiğimiz çok kaynaklı ısıl tavlama tekniğini, uygun kontak tasarımları çerçevesinde Hall-bar biçimindeki çok terminalli askıda aygıt fabrikasyon denemeleri yapılmıştır. Örneğin Şekil 35'te şekillendirilmiş bir grafen Hall aygıtının sınırları beyaz çizgilerle çizilmiştir. Gerilim kontakları üzerine konumlandırılan ayrık tasarım kontakları üzerinden yüksek akım geçirilerek metal ısı rezervuarlarının da ısıtılması, bu şekilde etkin bir ısıl tavlama ile yüksek saflıkta grafen elde edileceği çok terminalli askıda grafen üretimi teknikleri denenmiştir. Grafen uzunluğunu ve etkin bir ısıtma için tasarlanan ayrık kontakların boyutları minimum ölçülerde tasarlanmış fakat aşındırma sırasında böyle bir yapının mekanik olarak çok kararlı olmayacağı görülmüştür. Şekil 35'te çöken kontak yapıları görülmektedir. Böyle bir yapının uygun ölçülerde mekanik olarak daha dayanıklı olabilmesi için yeni tasarımlar ve fabrikasyon çalışmaları gelecekte devam ettirilecektir. Bunun sonucunda literatürde henüz elektronik ölçümü yapılamamış olan ultra saf çok terminalli askıda Hall-bar biçiminde grafende kuantum Hall ölçümlerinin yapılmasının önümüzdeki aylarda tamamlanabileceği öngörülmektedir. Bununla ilgili sonuçlar yayınlandığında Tübitak'ın bu proje ile verdiği destek anılacaktır.




Şekil 35. Yeni ayrık kontak tasarımı ve Hall-bar şekli verilerek üretilen aşındırma sonrası çökmüş Aygıt'ın elektron mikroskobu görüntüsü.

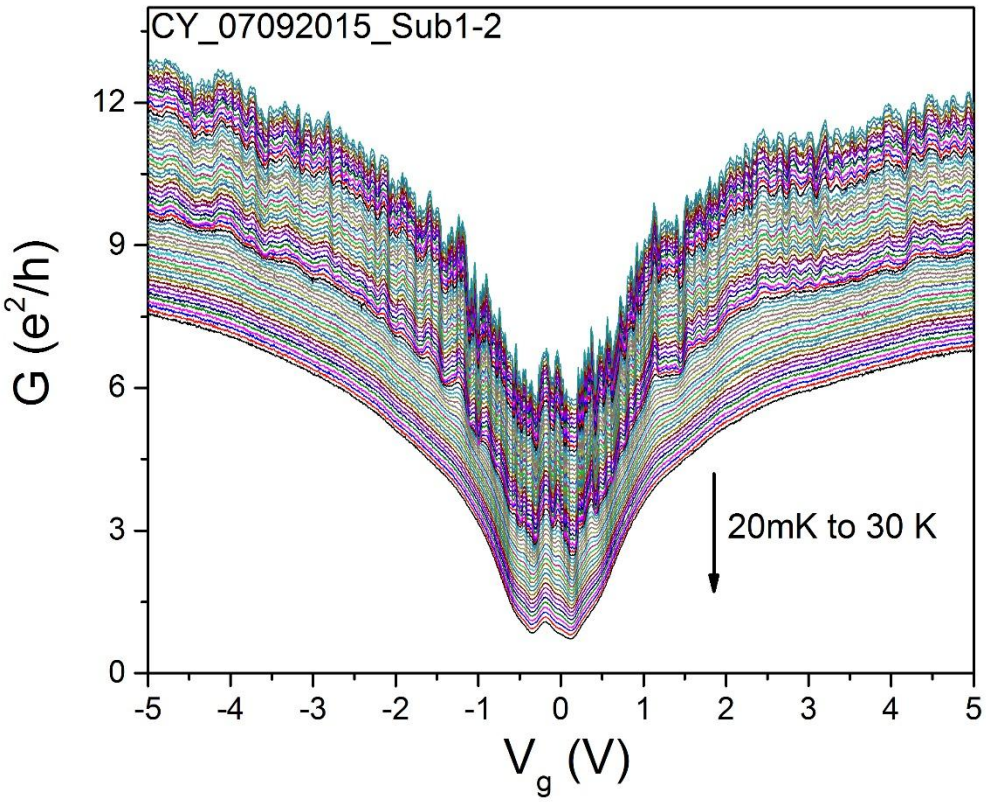
### 4.3.4 Grafende iletkenlik salınımları ve zayıf yerelleşme

Kuantum taşınımında mezoskopik aygıtlarda görülen iletkenlik dalgalanmaları, metal ve yarı-iletken malzemelerde yaygın bir şekilde çalışılan, temel bir problemdir [Beenakker vd., 1991]. Bu dalgalanmaların kaynağı, eş-fazlı (coherent) elektronların olası bütün yörüngelerden hareket etmesi sebebiyle girişime uğramasıdır. Bunlar evrensel veya evrensel-olmayanlar olmak üzere, elektronların Fermi enerjisinin veya aygıttan geçen manyetik akının değişmesiyle, iletkenliğin belirli dalgalanmalar göstermesine sebep olur. Dağınık (diffusive) eş-fazlı elektron sistemlerinde, ortalama dalgalanmanın genliği $e^2/h$ mertebesindedir ve aygıtın ortalama iletkenliğinden bağımsızdır. Bu tür dalgalanmalara evrensel iletkenlik dalgalanmaları (Universal Conductance Fluctuations - UCF) denir [Lee vd., 1985; Altsuhler vd., 1985].

Sıradan yarı-iletkenlerde ve metallerde, bu dalgalanmaların ortalama genliği evrensel bir sayıya denk denk gelir ve UCF'e sebep olur. Ancak özgün bant yapısıyla ve Dirac-vari enerji tayfıyla, düzensiz bir sistemde grafendeki dalgalanmalar, aygıtın geometrisine [Ying vd., 2012], saçılma potansiyellerinin yüzeydeki dağılımına [Borunda vd., 2011] ve gücüne [Rossi vd., 2012; Horsell vd., 2009; Kharitonov vd., 2008] yüksek derecede bağlıdır. Bu tür kuantum problemlerine karşılık gelen klasik

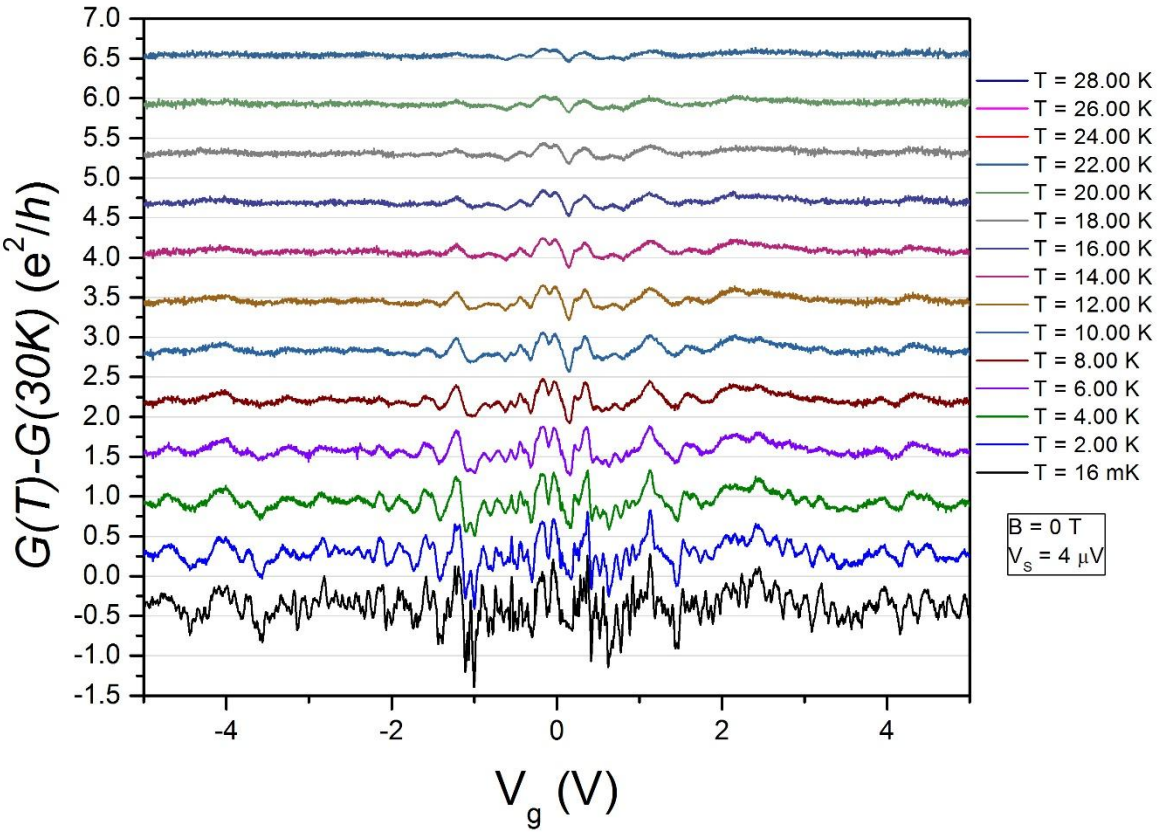
saçılma dinamiğinin doğasının, gözlemlenen iletkenlik dalgalanmalarının desenini belirlediği gösterilmiştir. Örneğin, klasik saçılma dinamiği düzenli olduğunda oldukça keskin dalgalanmalar gözlemlenirken, sistem tamamen kaotik olduğunda iletkenlik dalgalanmaları daha pürüzsüz ve süreklidir. Öte yandan, iletkenlik dalgalanmaları, elektron dalgalarının düzensizliklerden saçılarak girişime uğramasının bir sonucu olduğu için, bu dalgalanmalar aynı zamanda düzensizliğin gücüne, menziline ve yüzeydeki dağılımına bağlıdır [Borunda vd., 2011; Rossi vd., 2012; Horsell vd., 2009; Kharitonov vd., 2008; Liu vd., 2016]. Dolayısıyla, parabolik bant yapısına sahip bilindik 2 boyutlu elektron sistemlerinin aksine, grafendeki iletkenlik dalgalanmaları, aygıtın geometrik boyutları ve düzensizliğin gücüne bağlı olarak, evrensel veya evrensel-olmayan iletkenlik dalgalanmaları gösterebilir. Grafen aygıtının çok geniş ve düzensizlik gücünün fazla olduğu sistemlerde iletkenlik dalgalanmaları evrenselken, daha gerçekçi ve küçük aygıtlarda bu dalgalanmaların evrensel-olmayan rejime girdiği literatürde gösterilmiştir [Borunda vd., 2011].

Sıcaklık düşürüldükçe, elektronların kuantum taşınımları eş-fazlı hale gelir ve iletkenlikte kuantum girişiminden kaynaklanan düzeltmelere sebebiyet verir. Şekil 36'da iletkenlik dalgalanmalarının sıcaklık düşürüldükçe daha güçlü hale geldiği ve en düşük sıcaklıkta $\sim e^2/h$ mertebesinde genliklere ulaştığı gösterilmiştir. Bu dalgalanmalar aynı zamanda yüksek sıcaklıklarda da tekrarlanabilirdir ve düşük sıcaklıklarda öyle güçlü hale gelirler ki, yük taşıyıcılar grafende tamamen sınırlandırılmış olduğunda, Dirac noktası civarındaki iletkenliği bile baskılayarak, aygıtı yalıtkan bir hale getirirler.



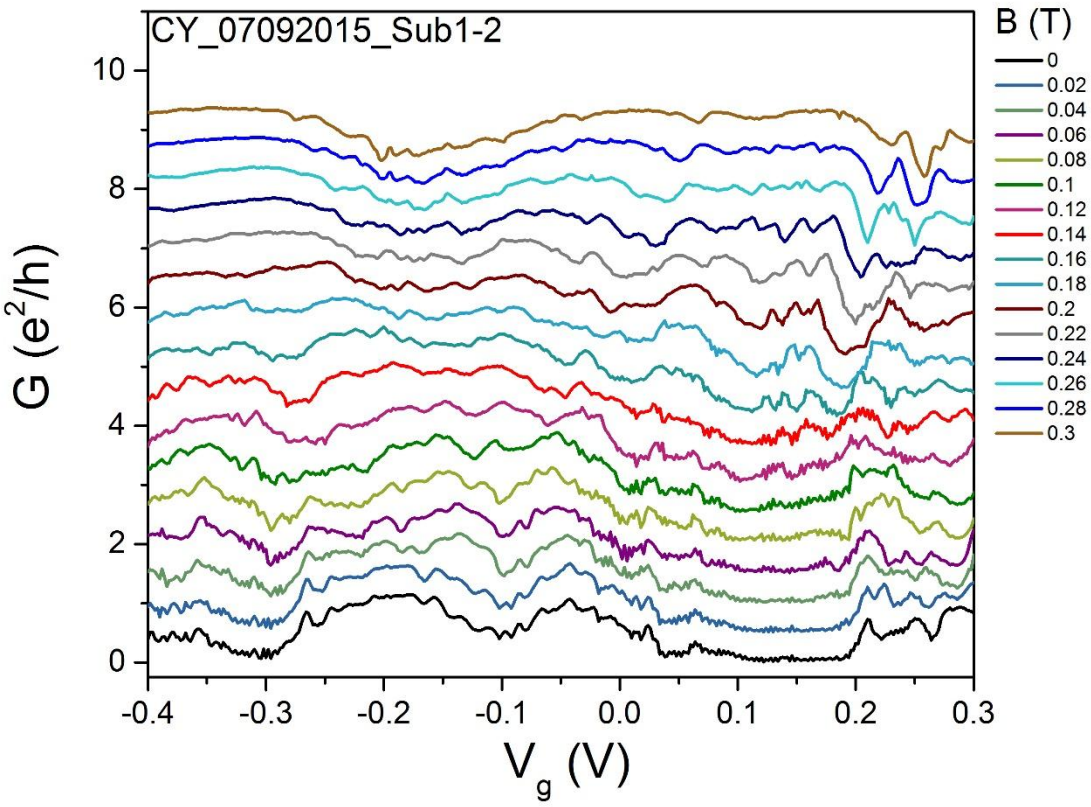

Şekil 36. 2-terminal iletkenliğin farklı sıcaklıklarda kapı gerilimine karşı fonksiyonu. Belirginlik için farklı sıcaklıklardaki tarama eğrileri belirli bir kaydırmayla yığın haline getirilmiştir. 10 K'in altında dalgalanmalar ortaya çıkıyor.

Grafendeki uzun-menzil düzensizlik potansiyelleri için, iletkenlik dalgalanmalarının yüksek yük taşıyıcı yoğunluklarında ve manyetik alanlarda baskılanması beklenir. Gerçekten de, Fermi enerjisinin veya manyetik alanının değişmesiyle perdelenen düzensizlikler, yavaşça ve düzgün değişen bir arka plan potansiyeline sebep olur [Liu vd., 2016]. Şekil 37'de CY07092015SUB1-2 örneğinden alınan ölçümler verilmiştir. 30 K'deki düzgün değişen arka plan iletkenliğinin, düşük sıcaklıklarda alınmış verilerden çıkarıldığındaki iletkenlik dalgalanmaları gösterilmiştir. İletkenlik dalgalanmalarının kapı gerilimine, dolayısıyla yük taşıyıcı yoğunluğuna, oldukça duyarlı olduğu ve yük tarafsızlık noktası civarında (Vg= -0.3V) genliğinin şiddetle arttığı görülebilir. Ancak daha yüksek yük yoğunluğunda, düzensizlik noktaları perdelendiği için, girişim etkileri azalır ve dolayısıyla iletkenlik dalgalanma genlikleri düşer.



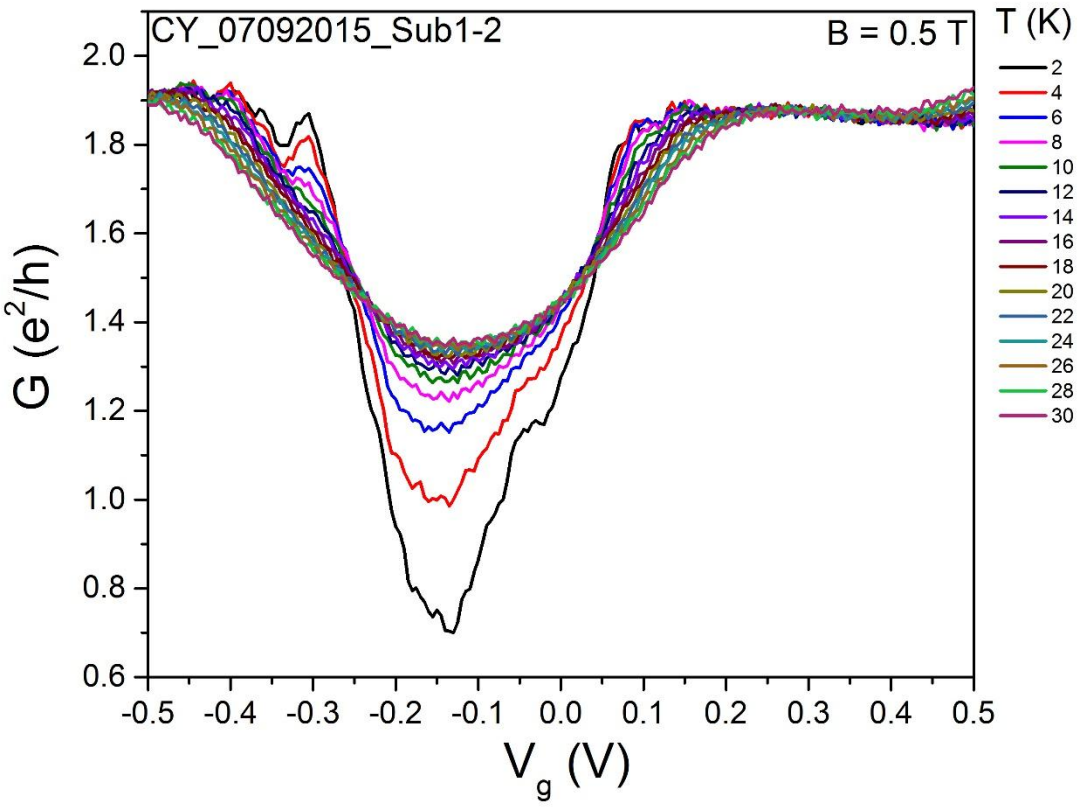

Şekil 37. Düzgün değişen arka plan etrafında iletkenlik dalgalanmaları. Dalgalanmalar düşük sıcaklıklarda ve Dirac noktası civarında güçleniyor.

Asılı grafen örnek üzerinde ölçülen iletkenliğin manyetik alan altındaki gelişimi Şekil 38'de gösterilmiştir. Burada, iletkenlik kapı geriliminin bir fonksiyonu olarak, sistemin kuantum Hall rejimine 0.4 T civarında girmeden önceki manyetik alanlarda çizilmiştir. Burada iletkenlik dalgalanmalarının manyetik alanla görece baskılandığı görülebilmektedir. Manyetik alan, yayılmakta olan elektron dalgalarının fazlarını değiştirir ve dolayısıyla girişim desenini, zayıf lokalizasyon etkisine oldukça benzer bir şekilde bozar [Horsell vd., 2009].



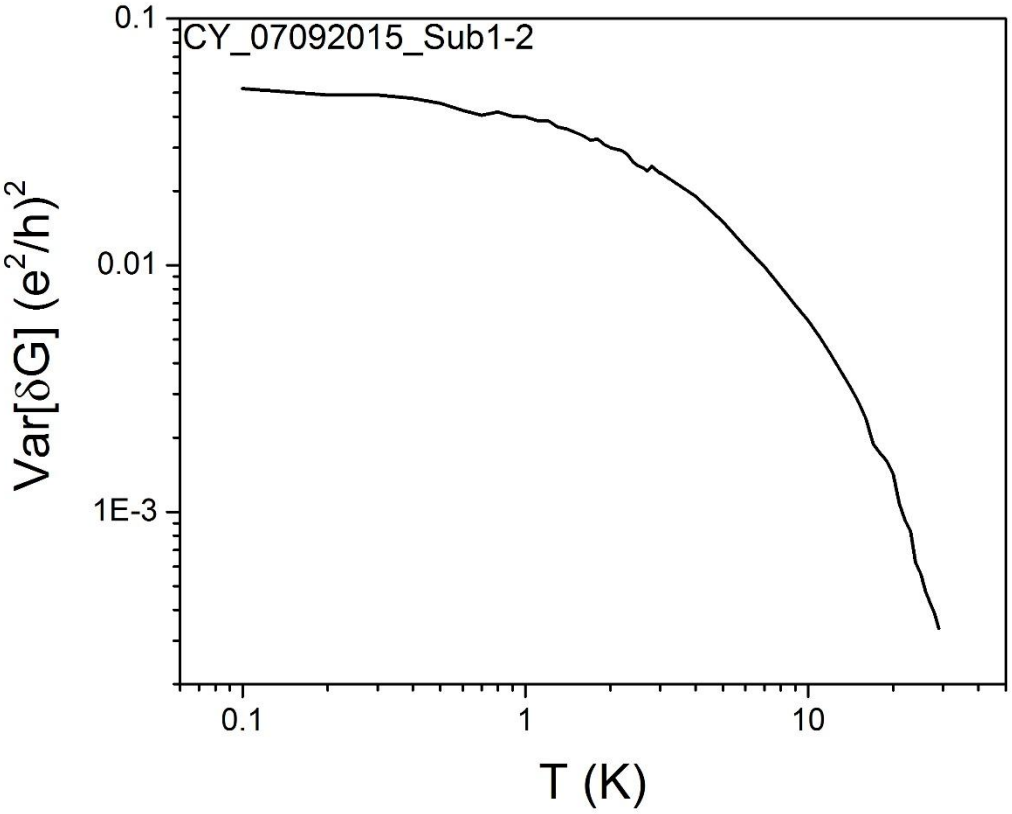

Şekil 38. Farklı manyetik alanlarda ve kuantum Hall sınırının altında iletkenliğe karşı kapı gerilimi grafiği.

Kuantum Hall rejiminde, Hall platoları yüksek sıcaklıklara dirençlidir. Şekil 39'da gösterildiği üzere, iletkenlik platoları, görece küçük olan 0.5 T manyetik alanda, deneylerin yapıldığı en yüksek sıcaklık olan 30 Kelvinde bile kalıcı bir şekilde gözlemlenmektedir. Üstelik bu platolarda iletkenlik dalgalanmaları neredeyse tamamen yok olmuştur.




Şekil 39. Kuantum Hall rejiminde, 2-terminal iletkenliğin sıcaklık altında davranışı.

Son olarak, iletkenliğin varyansı farklı sıcaklıklarda (20 mK – 30 K) kapı gerilimine karşı hesaplanmıştır. Şekil 40'da gösterildiği üzere, iletkenliğin varyansı düşen sıcaklığa karşı monotonik bir şekilde artmakta ve 2 K'in altında doygunluğa ulaşmaktadır. Grafendeki mezoskopik iletkenlik dalgalanmalarının bir niteliği olmak üzere, gözlemlenen bu davranış hem deneysel hem de teorik gözlemlerle uyum içindedir [Horsell vd., 2009].




Şekil 40. İletkenliğin varyansının sıcaklığa göre değişimi.

Sonuç olarak, oldukça temiz olan bu aygıtta termal bir döngüden sonra açığa çıkan kuvvetli iletkenlik dalgalanmaları gösteriyor ki, elektron taşınımı daha çok kuantum girişim etkileri ile yönlendiriliyor. Bu iletkenlik dalgalanmalarının genliği sıcaklık düştükçe artıyor ve çok düşük sıcaklıklarda iletkenlik kuantumu ($e^2/h$) mertebesine yaklaşıyor. Gözlemlenen iletkenlik dalgalanmalarının büyüklüğü yüksek yük yoğunluklarında ve manyetik alan altında baskılanıyor ve bu da grafendeki mezoskopik kuantum dalgalanmalarının teorik analizleriyle ve diğer deneysel gözlemlerle örtüşüyor. Akım ile tavlanmış bu aygıt, termal döngüden önce Dirac noktasında iletkenlik kuantumundan daha yüksek bir iletkenliğe sahipken, termal döngüden sonra zayıf düzensizlikler yüzünden önemli derecede mezoskopik iletkenlik dalgalanmaları göstermeye başlamıştır. Öyle ki, iletkenlik kuantumu mertebesindeki bu dalgalanmalar, birçok yerden saçılan elektronların yıkıcı girişiminden dolayı enerji uzayındaki bazı noktalarda neredeyse sıfırlanan iletkenliğe sebep oldu ve aygıtı belirli noktalarda yalıtkan bir hale getirdi.

# 5. TARTIŞMA/SONUÇ

Proje kapsamında asılı grafen aygıtların üretilme teknikleri geliştirilmiş ve çeşitli alternatif teknikler denenerek iyileştirilmiştir. Projenin önemli bir teknik başarısı akım ile geliştirilen "çok kaynaklı akım ile tavlama tekniği" kullanılarak çok yüksek saflıkta 2 terminalli askıda grafenler üretilmesidir. Asılı grafen üretimi yüksek nitelikli aygıt yapımı için çok iyi bir teknik olmasına rağmen üretim verimi hala bir handikap olmaktadır. Bunun üzerine ölçümler sırasında, örneklerin elektrostatik boşanım sonucu yanması, kontakların termal dönüşüm deneyleri sırasında bozulması ve kaybedilmesi gibi nedenlerle kayıp oranı da oldukça yüksektir. Bunlara rağmen projede ultra saf grafen aygıtların üretimi ve 0.02-30 Kelvin aralığındaki sıcaklıklarda ve 12 Tesla'ya varan manyetik alan altında elektriksel karakterizasyonları ve kuantum Hall ölçümleri başarıyla yapılmıştır.

Proje kapsamında asılı grafen aygıtların üretimi ve ultra saflık düzeyinde temizlenme süreçleri geliştirilmiştir. Geliştirilen tekniklerle yük hareketliliği $10^6$ $cm^2/V\text{-}s$'nin üzerinde değerlere ulaşan grafen aygıtların üretilmesi başarılmıştır. Bu aygıtlarda grafenin Dirac noktası civarındaki en düşük iletkenliğinin kuramsal olarak öngörülen $4/\pi(e^2/h)$ değerinin altına inebildiği gözlemlenmiştir. Ayrıca gerçekleştirilen iki-uçlu manyeto-taşınım ölçümlerinde tek katman grafende beklenen $2(2n+1)$ kuantum Hall dolum faktörlerinin yanı sıra vadi yozlaşmasının ortadan kalkması sonucunda ± 1. dolum faktörlerinin belirginleştiği saptanmıştır.

Düşük sıcaklıklarda ve ultra yüksek vakumda elektronik durumunu aylarca koruyabildiği gözlemlenen bu ultra saf asılı grafen aygıtlardan birisi düşük oranda çevresel gazlara maruz bırakılarak üzerinde rastgele konumlarda düşük potansiyelli saçılma merkezleri yaratılmıştır. Bu durumdaki grafen aygıtta yüksek genlikli iletim dalgalanmaları oluştuğu gözlemlenmiştir. Bu dalgalanmaların grafenin iletkenliğinde kapı gerilimiyle $10^3$ mertebesinde direnç kontrolünü sağlayabildiği ortaya konmuştur. Elde edilen sonuçlar grafenin sayısal elektronik alanında uygulanabilirliğine yönelik ipuçları vermesi açısından son derece heyecan vericidir.

Proje kapsamında ayrıca asılı grafen aygıtların nanomekanik rezonatör olarak çalıştırılmasına yönelik öncül araştırmalar yapılmıştır. Bu sonuçlar Ek kısmında verilmiştir.

# KAYNAKLAR


Amet, F., Williams, J. R., Watanabe, K., Taniguchi, T. ve Goldhaber-Gordon, D. Phys. Rev. Lett. 110, 216601 (2013).

Bolotin, K. I., Sikes, K. J., Jiang, Z., Klima, M., Fudenberg, G., Hone, J., Kim, P. ve Stormer, H. L., Solid State Communications 146, 351 (2008).

Bolotin, K. I., Ghahari, F., Shulman, M. D., Stormer, H. L. ve P. Kim, Nature 462, 196 (2009).

Checkelsky, J. G., Li, L. ve Ong, N. P. Phys. Rev. B 79, 115434 (2009).

Chen, J. H., Jang, C., Adam, S., Fuhrer, M. S., Williams, E. D. ve Ishigami, M. Nature Physics 4, 377 (2008).

Cho, S. ve Fuhrer, M. S. Phys. Rev. B 77, 081402 (2008).

Das, H., Waghmare, U. V., Saha-Dasgupta, T. ve Sarma, D. D., Phys Rev Lett 100, 186402 (2008).

Das Sarma, S., Hwang, E. H. ve Li, Q. Phys. Rev. B 85, 195451 (2012).

Dean, C. R., Young, A. F., Meric, I., Lee, C., Wang, L., Sorgenfrei, S., Watanabe, K., Taniguchi, T., Kim, P., Shepard, K. L. ve Hone, J., Nat Nano 5, 722 (2010).

Du, X., Skachko, I., Barker, A. ve Andrei, E. Y., Nat Nano 3, 491 (2008).

Du, X., Skachko, I., Duerr, F., Luican, A. ve Andrei, E. Y., Nature 462, 192 (2009).

Ebert G. , Klitzing K., Ploog K., Weimann G., J. Phys. C. 16 (1983) 5441.

Elias, D. C., Gorbachev, R. V., Mayorov, A. S., Morozov, S. V., Zhukov, A. A., Blake, P., Ponomarenko, L. A., Grigorieva, I. V., Novoselov, K. S., Guinea, F. ve Geim, A. K. Nat Phys 7, 701 (2011).

Guinea, F., Katsnelson, M. I. ve Vozmediano, M. A. H. Phys. Rev. B 77, 075422 (2008).

Guinea, F. ve Katsnelson, M. I. Phys. Rev. Lett. 112, 116604 (2014).

Komiyama S. , Takamasu T., Hiyamizu S., Sasa S., Solid State Commun. 54 (1985) 479.

Ki, D. ve Morpurgo, A.F. *Nano Letters* 2013 *13* (11), 5165-5170

Hwang, E. H., Adam, S. ve Das Sarma, S. Phys. Rev. Lett. 98, 186806 (2007).

Martin, J., Akerman, N., Ulbricht, G., Lohmann, T., Smet, J. H., Von Klitzing, K. ve A. Yacoby, Nature Physics 4, 144 (2008).

Mayorov, A. S., Elias, D. C., Mukhin, I. S., Morozov, S. V., Ponomarenko, L. A., Novoselov, K. S., Geim, A. K. ve R. V. Gorbachev, Nano Letters 12, 4629 (2012).

Nomura, K. ve MacDonald, A. H. Phys Rev Lett 96, 256602 (2006).

Novoselov, K. S., Geim, A. K., Morozov, S. V., Jiang, D., Zhang, Y., Dubonos, S. V., Grigorieva, I. V. ve Firsov, A. A.  Science 306, 666 (2004).

Novoselov vd., Nature 438 197 (2005).

Ponomarenko, L. A., Geim, A. K., Zhukov, A. A., Jalil, R., Morozov, S. V., Novoselov, K. S., Grigorieva, I. V., Hill, E. H., Cheianov, V. V., Fal'ko, V. I., Watanabe, K., Taniguchi, T. ve Gorbachev, R. V. Nat Phys 7, 958 (2011).

Tworzydo, J., Trauzettel, B., Titov, M., Rycerz, A. ve Beenakker, C. W. J. Physical Review Letters 96, 246802 (2006).

Tzalenchuk vd., Solid State Communications, 151, 1094 (2011).

Young A. F., Dean C. R., Wang L., Ren H., Cadden-Zimansky P.,Watanabe K., Taniguchi T., Hone J., Shepard K. L. ve Kim P., Nat. Phys. 8, 550 (2012).

Jiang, Z., Zhang, Y., Stormer, H. L. ve Kim, P. Phys. Rev. Lett. 99, 106802 (2007).

Walls, J. D.  ve Hadad, D. Sci. Rep. 5, 8435 (2015)

.

# TÜBİTAK
# PROJE ÖZET BİLGİ FORMU

| | |
|---|---|
| Proje Yürütücüsü: | Doç. Dr. İSMET İNÖNÜ KAYA |
| Proje No: | 112T990 |
| Proje Başlığı: | Kuantum Hall Etkisi Ve Kırılmasının Asılı Grafende Araştırılması |
| Proje Türü: | Uluslararası |
| Proje Süresi: | 36 |
| Araştırmacılar: | |
| Danışmanlar: | |
| Projenin Yürütüldüğü Kuruluş ve Adresi: | SABANCI Ü. MÜHENDİSLİK VE DOĞA BİLİMLERİ F. FİZİK B. |
| Projenin Başlangıç ve Bitiş Tarihleri: | 01/04/2013 - 01/04/2016 |
| Onaylanan Bütçe: | 438690.0 |
| Harcanan Bütçe: | 383198.11 |
| Öz: | Tübitak Matematik-Fizik Araştırma Grubu tarafından 1001 programı kapsamında desteklenen bu araştırma projesi Sabancı Üniverisitesi Mühendislik ve Doğa Bilimleri Fakültesinin de desteğiyle ve Sabancı Üniversitesi Nanoteknoloji Araştırma ve Uygulama Merkezi SUNUM?da gerçekleştirilmiştir. Yürütücünün yanı sıra bir doktora sonrası araştırmacı ve bir doktora öğrencisinin projede tam zamanlı olarak görev aldığı proje 1 Nisan 2013 tarihinde başlamış ve 36 ayda tamamlanmıştır. |
| Anahtar Kelimeler: | Asılı grafen, kuantum Hall etkisi, iletkenlik dalgalanmaları |
| Fikri Ürün Bildirim Formu Sunuldu Mu?: | Hayır |

TÜBİTAK