

Atmosferik Basınçta Plazma Yöntemiyle Karbon Depolama

Meryem Polat

**YÜKSEK LİSANS TEZİ**

Fizik Anabilim Dalı

Haziran 2008

Carbon Deposition by Using A Plasma Method at Atmospheric Pressure

Meryem Polat

**MASTER OF SCIENCE THESIS**

Department of Physics

June 2008

Atmosferik Basınçta Plazma Yöntemiyle Karbon Depolama

Meryem Polat

Eskişehir Osmangazi Üniversitesi

Fen Bilimleri Enstitüsü

Lisansüstü Yönetmeliği Uyarınca

Fizik Anabilim Dalı

Yüksek Enerji ve Plazma Fiziği Bilim Dalında

YÜKSEK LİSANS TEZİ

Olarak Hazırlanmıştır

Danışman: Prof. Dr. Naci EKEM

Haziran 2008

## ONAY

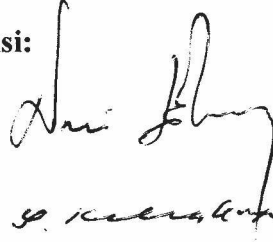
Fizik Anabilim Dalı Yüksek Lisans öğrencisi Meryem Polat'ın YÜKSEK LİSANS tezi olarak hazırladığı "Atmosferik Basıncıta Plazma Yöntemiyle Karbon Depolama" başlıklı bu çalışma, jürimizce lisansüstü yönetmeliğin ilgili maddeleri uyarınca değerlendirilerek kabul edilmiştir.

**Danışman** : Prof.Dr. Naci EKEM

**İkinci Danışman** : -

**Yüksek Lisans Tez Savunma Jürisi:**

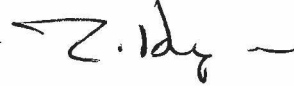
Üye : Prof.Dr. Naci EKEM



Üye : Prof. Selami KILIÇKAYA



Üye : Prof.Dr. Turgay ARMAĞAN



Üye : Yrd.Dç.Dr. Salih KÖSE



Üye : Yrd.Dç.Dr. Şadan KORKMAZ



Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulu'nun ..... tarih ve ..... sayılı kararıyla onaylanmıştır.

Prof. Dr. Nimetullah BURNAK

Enstitü Müdürü



## ÖZET

Plazma günümüzde teknolojinin birçok alanında kullanılmaktadır. Plazma teknolojileri; sanayi, tekstil, iletişim, malzeme bilimi, elektronik başta olmak üzere pek çok alanda etkisini göstermektedir.

Bu alanların yanı sıra plazma teknolojisi nanoteknolojide de önemli bir role sahip hale gelmiştir. Nanoteknolojide önemli yer tutan bir element ise karbon elementidir.

Karbon kovalent bağlarla birbirine bağlanarak pek çok farklı yapıyı oluşturabilme özelliğine sahiptir. Karbonun bu özelliği kullanılarak kimyasal bağlarında değişiklik yapılması yoluyla çok farklı yapıda yeni malzemeler oluşturulması mümkündür. Bu yapılara örnek olarak karbon nanotüpler verilebilir.

Nanoteknoloji için son derece önemli olan bu karbon yapıların elde edilmesi için kullanılan yöntemlerden biri de plazma yöntemiyle metan gazının çeşitli hidrokarbonlara ayrıştırılmasıdır. Bu çalışmada atmosferik basınçta plazma yöntemiyle karbon depolama yapılması amaçlanmış ve metanın suni amorf karbon (Diamond Like Carbon, DLC) yapıya dönüştürülmesi hedeflenmiştir.

Eskişehir Osmangazi Üniversitesi Plazma Fiziği Laboratuvarlarında gerçekleştirilen deneysel çalışmalar sonunda karbon üretimi için yeni bir deneysel sistem geliştirilmiştir. Geliştirilen bu yeni sistemde üretilen karbonlar atmosferik basınçta metan gazından pulslu (atmalı) plazma kullanılarak üretilmiştir. Bu sistem ile ayrıca çeşitli alt taşlar üzerine atmosferik basınçta ve oda sıcaklığında karbon depolama da gerçekleştirilmiştir. Alt taş olarak ise; paslanmaz çelik, nano ölçekli sıfır değerlikli demir kalsit (NZVI-C) ve nano ölçekli sıfır değerlikli magnezit (NZVI-M) kullanılmıştır. Üretilen bu karbon yapıların taramalı elektron mikroskopisi (SEM) ile yüzey görüntüleri alınmış ve değerlendirmeler yapılmıştır.

Anahtar Kelimeler: Plazma, metan çevrimi, Karbon.

## SUMMARY

Plasma has been used lots of area in the technology extensively. Plasma technologies are effective in various areas such as industry, textile, material science, electronic etc... In addition to these areas, plasma technology has an important role in nanotechnology. One of the most important element for nanotechnological application is carbon.

Carbon has lots of suitable properties in order to develop different structures. It is a covalent bonded element. This property makes it very important. Using these properties of carbons, one can make new materials via changing its chemical bonds. Exemplary to this structure; carbonnanotubes can be given.

In order to produce this carbon structure which is extremely important for nanotechnology, a novel method is the conversion of methane to hydrocarbon using a plasma technique. In this study, carbon deposition has been purposed and it has been aimed to make methane conversion to diamond like carbon (DLC) structures at atmospheric pressure with plasma method.

At the end of the realized experimental study, a new experimental system has been developed for carbon producing at Plasma Physics Laboratory in Eskisehir Osmangazi University. At this new system that is improved newly, carbons have been deposited by using methane gas at plasma atmospheric pressure. Also, carbon deposition has been realized on various substrates at atmospheric pressure and room temperature. These substrates are; stainless steel , nano scale zero valent iron-calcite (NZVI-C) and nano scale zero valent iron-magnesite. Surface micrography of these carbon structures have been taken by scanning electron microscopy (SEM) and an analysis has been performed.

Keywords: Plasma, Methane Conversion, Carbon.

## TEŞEKKÜR

Yüksek lisans çalışmalarım esnasında, bana danışmanlık ederek, beni yönlendiren ve her türlü yardımını esirgemeyen değerli hocam sayın Prof.Dr. Naci EKEM'e teşekkürlerimi sunarım.

Tez çalışmam boyunca beni yönlendiren, yardımını esirgemeyen, fikirleriyle beni aydınlatan, değerli bilim insanı sayın hocam Prof.Dr. Geavit MUSA'ya ( National Institute for Laser, Plasma and Radiation Physics, Bucharest / ROMANIA) sonsuz teşekkürler ederim.

Plazma fiziği hakkında pek çok şeyi öğrenmemde bana yardımcı olan, deneyimlerini benimle paylaşan, değerli hocam sayın Arş.Gör.Dr. Suat PAT'a; Arş.Gör. M. Zafer BALBAĞ'a ve Arş.Gör.Dr. M. İlker CENİK'e teşekkür ederim.

Deneyisel verilerimi yorumlamamda en zorlandığım anlarda bana destek veren Arş.Gör.Dr. İdris AKYÜZ ve Doç.Dr. Ferhunde ATAY'a teşekkür ederim.

Elde ettiğimiz numunelerin SEM görüntülerinin alınmasında yardımcı olan İYTE-MAM'dan sayın hocam Doç.Dr. Salih OKUR'a teşekkür ederim.

*Varlıkları ile bugünüme değer katan, yarınlarımı  
aydınlatan, yaşam kaynağım,*

*Ailem'e*

## İÇİNDEKİLER

	<u>Sayfa</u>
<b>ÖZET</b> .....	<b>v</b>
<b>SUMMARY</b> .....	<b>vi</b>
<b>TEŞEKKÜR</b> .....	<b>vii</b>
<b>ŞEKİLLER DİZİNİ</b> .....	<b>xi</b>
<b>ÇİZELGELER DİZİNİ</b> .....	<b>xiv</b>
<b>SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ</b> .....	<b>xvii</b>
<b>1. GİRİŞ</b> .....	<b>1</b>
<b>2. KARBON VE NANO-YAPILARI</b> .....	<b>2</b>
2.1 Karbon Yapılar .....	4
2.2 Karbon Nanoyapılar .....	6
2.2.1 Karbon Nanotüpler .....	6
2.2.2 Karbon Nanofiberler .....	8
2.2.3 Karbon Nanohalkalar .....	8
2.2.4 Karbon Nanoçubuklar .....	9
2.2.5 Suni Amorf Karbon (DLC) Yapılar .....	10
<b>3. KARBON YAPILARIN ÜRETİM YÖNTEMLERİ</b> .....	<b>11</b>
3.1 Ark Deşarj .....	11
3.2 Kimyasal Buhar depolama (CVD) .....	11
3.3 Korona Deşarj .....	12
3.4 Dielektrik Bariyer Deşarj .....	12
<b>4. KORONA DEŞARJ</b> .....	<b>13</b>
4.1 Koronadeşarj .....	13
4.2 Korona Deşarjın Akım-Voltaj Karakteristiği .....	18
4.3 Korona Deşarjın Mekanizması .....	20

## İÇİNDEKİLER (devam)

	<u>Sayfa</u>
4.3.1 Elektron Yığılmaları .....	21
4.3.2 Pozitif Koronalar .....	22
4.3.3 Negatif Koronalar .....	23
4.3.4 Korona Deşarjın Uygulamaları .....	24
4.4 Korona Deşarj Yöntemi Kullanılarak Metan Çevriminin Gerçekleştirilmesi .	24
<b>5. BAZI KARAKTERİZASYON METOTLARI .....</b>	<b>28</b>
5.1 X-Işınları Kırınım Difraksiyonu (XRD).....	28
5.2 Kızıl Ötesi Spektrumları (IR) .....	29
5.3 Nükleer Manyetik Rezonans (NMR) .....	29
5.4 Taramalı Elektron Mikroskobu (SEM) .....	29
5.5 Mor Ötesi (UV) Spektrumları .....	30
5.6 Tünellemeli Elektron Mikroskobu (TEM) .....	30
5.7 Raman Spektrumları .....	31
5.8 Atomik Kuvvet Mikroskobu (AFM) .....	32
<b>6. DENEYSEL BÖLÜM .....</b>	<b>33</b>
6.1 Plazma Odacığı .....	35
6.2 Güç Kaynağı .....	36
6.3 Deney Sonuçları .....	37
<b>7. SONUÇLAR VE TARTIŞMA .....</b>	<b>56</b>
<b>8. KAYNAKLAR DİZİNİ .....</b>	<b>58</b>

## ŞEKİLLER DİZİNİ

<u>Sekil</u>	<u>Sayfa</u>
2.1 $sp^3$ , $sp^2$ , $sp^1$ hibritleşme bağları .....	4
2.2 Karbon elementi .....	5
2.3 Elmasın bağ yapısı .....	5
2.4 Karbonun fulleren yapısı .....	6
2.5 Karbon nanotüp yapısı .....	7
2.6. Tüplerden oluşmuş bir demet .....	7
2.7 Karbon nanofiberin şematik gösterimi .....	8
2.8 Karbon nanohalka yapısının şematik gösterimi .....	9
2.9 Karbon nanoçubuğun şematik gösterimi .....	9
4.1 Korona deşarjın nokta-düzlem elektrot geometrik şekli .....	13
4.2 DC düşük basınçlı elektriksel deşarj tüpünün voltaj-akım karakteristiği .....	19
4.3 Metan çevriminin reaksiyon yolu .....	25
5.1 Elmas, grafit ve bazı düzensiz karbonların Raman spektrası .....	31
6.1 Deneysel düzeneğin şematik gösterimi .....	33
6.2 Karbon yapılar üretmek için kullanılan deneysel sistemin fotoğrafı .....	34
6.3 Plazma odacığının fotoğrafı .....	35
6.4 Güç kaynağının basitleştirilmiş elektronik devre şeması .....	36
6.5 Yumuşak karbonun merkezinde oluşan sert karbonun fotoğrafı .....	38
6.6 Sert karbon numunesinin 8000 X büyütme SEM görüntüsü .....	38
6.7 Sert karbon numunesinin 10000 X büyütme SEM görüntüsü .....	39
6.8 Sert karbon numunesinin 20000 X büyütme SEM görüntüsü .....	39
6.9 Sert karbon numunesinin 20000 X büyütme SEM görüntüsü .....	40
6.10 Sert karbon numunesinin 25000 X büyütme SEM görüntüsü .....	40
6.11 Sert karbon numunesinin 25000 X büyütme SEM görüntüsü .....	41
6.12 Yumuşak karbonun fotoğrafı .....	41
6.13 Yumuşak karbon numunesinin 6500 X büyütme SEM görüntüsü .....	42
6.14 Yumuşak karbon numunesinin 10000 X büyütme SEM görüntüsü .....	42
6.15 Yumuşak karbon numunesinin 15000 X büyütme SEM görüntüsü .....	43

## ŞEKİLLER DİZİNİ ( devam )

<u>Sekil</u>	<u>Sayfa</u>
6.16 Yumuşak karbon numunesinin 15000 X büyütme SEM görüntüsü .....	43
6.17 Yumuşak karbon numunesinin 15000 X büyütme SEM görüntüsü .....	44
6.18 Yumuşak karbon numunesinin 25000 X büyütme SEM görüntüsü .....	44
6.19 Yumuşak karbon numunesinin 25000 X büyütme SEM görüntüsü .....	45
6.20 Yumuşak karbon numunesinin 50000 X büyütme SEM görüntüsü .....	45
6.21 Yumuşak karbon numunesinin 50000 X büyütme SEM görüntüsü .....	46
6.22 Toz karbon numunesinin 25000 X büyütme SEM görüntüsü .....	46
6.23 Tüy şeklinde oluşan karbon numunesinin 25000 X büyütme SEM görüntüsü ...	47
6.24 NZVI-C numunesinin 800 X büyütme SEM görüntüsü .....	47
6.25 NZVI-C numunesinin 2000 X büyütme SEM görüntüsü .....	48
6.26 NZVI-C numunesinin 2000 X büyütme SEM görüntüsü .....	48
6.27 NZVI-C numunesinin 2500X büyütme SEM görüntüsü .....	49
6.28 NZVI-C numunesinin 10000 X büyütme SEM görüntüsü .....	49
6.29 NZVI-C numunesinin 10000 X büyütme SEM görüntüsü .....	50
6.30 NZVI-M numunesinin 2000 X büyütme SEM görüntüsü .....	50
6.31 NZVI-M numunesinin 2500 X büyütme SEM görüntüsü .....	51
6.32 NZVI-M numunesinin 5000 X büyütme SEM görüntüsü .....	51
6.33. NZVI-M numunesinin 5000 X büyütme SEM görüntüsü .....	52
6.34 NZVI-M numunesinin 10000 X büyütme SEM görüntüsü .....	52
6.35 NZVIM numunesinin 10000 X büyütme SEM görüntüsü .....	53
6.36 Paslanmaz çelik üzerine depolanan karbon numunesinin 10000 X büyütme SEM görüntüsü .....	53
6.37 Paslanmaz çelik üzerine depolanan karbon numunesinin 10000 X büyütme SEM görüntüsü .....	54
6.38 Paslanmaz çelik üzerine depolanan karbon numunesinin 20000 X büyütme SEM görüntüsü .....	54
6.39. Paslanmaz çelik üzerine depolanan karbon numunesinin 35000 X büyütme SEM görüntüsü .....	55
6.40 Paslanmaz çelik üzerine depolanan karbon numunesinin 50000 X büyütme SEM görüntüsü .....	55



**ÇİZELGELER DİZİNİ****Çizelge****Sayfa**

2.1	Karbonun temel bazı özellikleri .....	13
-----	---------------------------------------	----

## SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ

<u>Simgeler</u>	<u>Açıklama</u>
A	Amper
$\frac{\circ}{A}$	Angstrom
AC	Alternatif akım
a-C	Amorf karbon
a-C:H	Hidrojenlenenmiş amorf karbon
Ar	Argon
CNT	Carbon nanotube (Karbon nanotüp)
CVD	Chemical vapour deposition (Kimyasal buhar depolama)
d	Elektrotlar arası uzaklık
DBD	Dielektrik bariyer deşarj
DC	Doğru akım
DLC	Suni amorf karbon
E	Elektrik alan
eV	Elektron volt
GHz	Gigahertz
GPa	Gigapaskal
I	Akım şiddeti
IR	Kızılötesi
kV	Kilovolt
kHz	Kilohertz
mTorr	Militorr
nm	Nanometre
NZVI-C	Nano scale zero valent iron-calcite (Nano ölçekli sıfır değerlikli demir-kalsit)
NZVI-M	Nano scale zero valent iron- magnesite (Nano ölçekli sıfır değerlikli demir-magnesit)
pm	Pikometre
R	Silindirin yarıçapı

**SİMGELER VE KISALTMALAR DİZİNİ (devam)**

<b><u>Simgeler</u></b>	<b><u>Açıklama</u></b>
Rf	Radyo frekans
r	Elektrot yarıçapı
V	Voltaj
V <sub>B</sub>	Breakdown voltajı
$\lambda$	Dalga boyu
$\mu\text{m}$	Mikrometre

## BÖLÜM 1

### GİRİŞ

Yalaşık yüzyıl önce Langmuir iyonize olmuş gaza **plazma** adını verdiğiinden beri plazma üzerine pekçok araştırma yapılmıştır. Plazma literatürde maddenin dördüncü hali olarak tanımlanır. Plazma; içerisindeki pozitif ve negatif yüklerin ortak hareketi olarak da ifade edilir. Langmuir'in bu adlandırmasından sonra yapılan çalışmalarla önemli gelişmeler sağlanmış ve plazma, teknolojinin birçok alanında kullanılmaya başlanmıştır. Örneğin; elmas yapımında, tıpta sterilizasyon amaçlı, materyal aşındırma ya da sertleştirme teknolojilerinde, yarıiletken teknolojisinde, elektronik çip yapımında, iletişim teknolojisinde, kaplama teknolojisinde denenmekte ya da kullanılmaktadır (Öksüz, 2001).

Tüm bu alanların yanı sıra plazma teknolojisi, nanoteknoloji alanında da yerini almıştır (Çıracı, 2007). Nanoteknoloji için önemli role sahip olan bir element de karbondur. Son yıllarda yapılan çalışmalarda karbon yapıları oluşturabilmek için hidrokarbonların ve özellikle metanın çevrimine büyük ilgi gösterilmektedir. Bu işlemler, elmas kaplanması ile ilgili çalışmalarda ve metanın daha değerli kimyasallara dönüştürülmesi çalışmalarında meydana gelmektedir (Özen, 2004). Metanın daha değerli kimyasallara çevrim işlemleri korona deşarj, spark deşarj, ark deşarj ya da dielektrik bariyer deşarj metotlarıyla atmosferik basınçta ve termal olmayan plazmalarda gerçekleştirilebilmektedir (Indarto, et al., 2006).

Yapmış olduğumuz bu çalışmamızda ise atmosferik basınçta (1atm) ve oda sıcaklığında (300 K) korona deşarj metoduyla metan gazının plazması oluşturularak metan çevrimi yapılmıştır. Korona deşarj; atmosferik basınçta ve oda sıcaklığında meydana gelmesi sebebiyle diğer metotlara göre avantaj sağlamaktadır. Bu metot sayesinde karbon üretimi en kolay şekilde sağlanmaktadır.

Metan gazından karbon üretimi için yeni bir deneysel düzenek gerçekleştirilmiş ve elde edilen karbon yapılar analiz edilmiştir. Geliştirilen bu yeni sistemde, karbon yapılar atmosferik basınçta metan gazından pulslu (atmalı) plazma kullanılarak üretilmektedir.

Metan gazının plazmasını oluşturarak yapmış olduğumuz bu çalışmamız sonucunda farklı türlerde (sert, yumuşak, toz) karbon yapılarla beraber metan gazı çeşitli hidrokarbonlara çevrilmiştir. Ayrıca paslanmaz çelik, nano ölçekli sıfır değerlikli demir-klasit (NZVI-C) ve nano ölçekli sıfır değerlikli demir-magnezit alt taşlar üzerine karbon depolama yapılmış ve bu karbon yapıların taramalı elektron mikroskopisi ile (SEM) yüzey görüntüleri alınmıştır.

## BÖLÜM 2

### KARBON VE NANO-YAPILARI

Karbon doğadaki en sıra dışı elementtir. Bu özellik, onun pek çok alanda kullanılmasına imkân vermektedir. Örneğin; yumuşak malzeme olarak yapay deri üretimi, toz halinde filtre kaplaması, hava taşıtlarında sert kompozit malzeme yapımına olanak sağlayan geniş bir alanda kullanımı söz konusudur (Attkins and Jones, 1997).

Karbon atomlarının kovalent bağlarla birbirine bağlanarak çok sayıda çeşitli zincir ve halkaları oluşturabilmesi en önemli özelliğidir. Bu özellik, karbon atomunun, sadece yapay malzemeleri oluşturmasını sağlamakla kalmaz; aynı zamanda, çok karışık işlemlerle bize canlılık veren karmaşık molekülleri (DNA zinciri, RNA zinciri vb.) oluşturmasını da mümkün kılar (Attkins and Jones, 1997). Karbona ait temel bazı özellikler Çizelge 2.1’de verilmektedir.

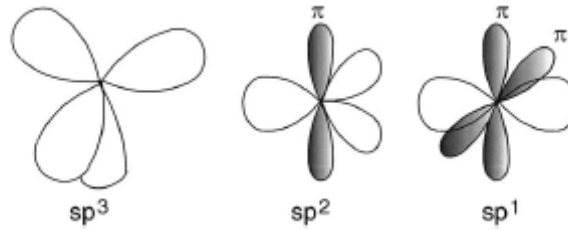
**Çizelge 2.1.** Karbonun temel bazı özellikleri (Morttmer, 1989).

Özellik	Karbon
Sembol	C
Atom numarası	6
Atom ağırlığı	12.0107 g/mol
Erime noktası (°C)	3570
Kaynama noktası(°C)	4827
Atom yarıçapı (pm)	77
Birinci iyonlaşma enerjisi (kJ/mol)	1090
İkinci iyonlaşma enerjisi (kJ/mol)	2350
Üçüncü iyonlaşma enerjisi (kJ/mol)	4620

## 2.1 Karbon Yapılar

Karbon farklı bağ yapıları oluşturarak **amorft karbon, grafit, elmas ve fulleren** adlı dört adet farklı yapıda bulunabilmektedir. Bu yapıları karbonun allotropları denir (kimyaevi, 2008).

Karbon atomunun elektron yörüngelerindeki elektronların bulunuşlarının farklılığı çeşitli konfigürasyonları ortaya çıkarır. Bu çeşitlilik hibritleşme ile meydana gelir. Hibritleşme; farklı enerji düzeylerindeki atom orbitallerinin kaynaşarak, aynı enerji düzeyinde birbiriyle özdeş yeni orbitallere dönüşmesi olarak tanımlanır. Karbonun bu elektron konfigürasyonlarında yaptığı bağlar sonucunda ise  $sp^3$ ,  $sp^2$ ,  $sp^1$  hibritleşmeleri gerçekleşebilir. Bu hibritleşme bağları Şekil 2.1'de görülmektedir (Robertson, 2002).



Şekil 2.1.  $sp^3$ ,  $sp^2$ ,  $sp^1$  hibritleşme bağları (Robertson, 2002).

*i. Amorf karbon;* genellikle düzensiz yapıda olan karbon malzemedir. Hazırlanış şartlarına göre özellikleri değişebilir. Amorf yapıda atomlar birbirleri ile (%90)  $sp^3$  ve (%10)  $sp^2$  hibritleşme bağlarını yaparlar (kimyaevi, 2008).

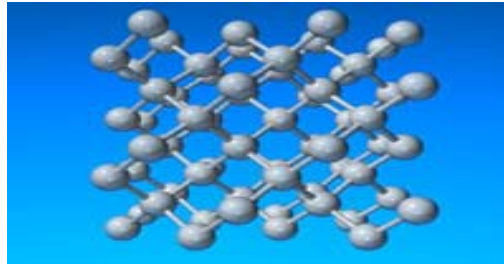
*ii.* Karbon atomları hegzagonal halkalar ve tabakalı bir yapı oluşturuyorsa bu yapıya **Grafit** adı verilir. Grafit yapılarında her bir karbon atomu diğer üç karbon atomu ile  $sp^2$  hibritleşmesi yaparak sigma ( $\sigma$ ) bağları ile bağlanır. Karbon atomlarının dördüncü elektronları pi ( $\pi$ ) bağlarında kullanılır. Grafitin aktif karbon, kömür isi,

kemiğin yanması ile oluşan kömür gibi mikro kristal yapıda pek çok şekli mümkündür. Şekil 2.2’de karbon elementi şematik olarak gösterilmektedir (kimyaevi, 2008).



Şekil 2.2. Karbon elementi (popülerbilgi, 2008).

*iii. Elmas* yapısındaki karbon atomları  $sp^3$  hibritleşmesi yaparak tetrahedral bir düzenleme oluşturmaktadır. Elmas yapısındaki karbon atomları arasındaki bağlar çok kuvvetlidir. Bu nedenle de karbon çok sert ve kararlı bir yapıya sahiptir. Moleküller arasındaki kuvvetli bağlar nedeniyle ısı iletkenliği çok iyidir. Elmasın bağ yapısı şematik olarak Şekil 2.3’de gösterilmektedir (kimyaevi, 2008).

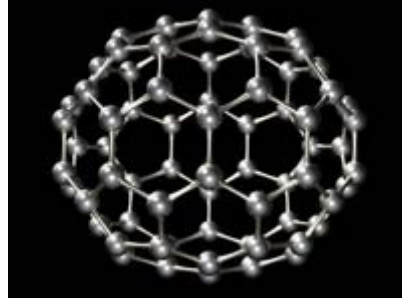


Şekil 2.3. Elmasın bağ yapısı (images, 2008).

*iv. Fulleren*; genellikle 6 karbon atomunun düzlemsel olarak birbiri ile bağlanarak oluşturduğu içi boş küresel, silindirik veya halkasal yapılardır. 5’li veya 7’li halkalar şeklinde birleştiği zaman yapı düzlemsellikten uzaklaşır. En küçük boyutu 60 karbonludur ve yapısı futbol topuna benzemektedir. Fulleren, grafitte benzeyen bağ



kararlılığı nedeniyle reaktif bir madde değildir ve birçok çözücü içerisinde çözünmez (kimyaevi, 2008). Şekil 2.4’de karbonun fulleren yapısı şematik olarak gösterilmektedir (Erkoç, 2001).



Şekil 2.4. Karbonun fulleren yapısı (Erkoç, 2001).

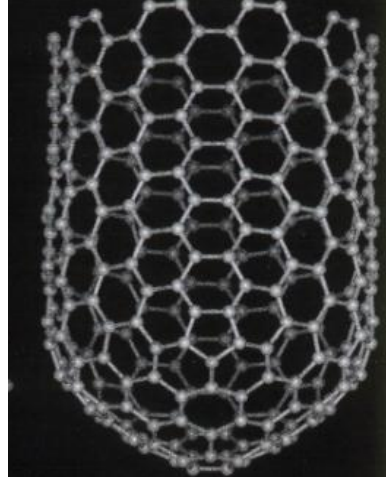
Temel yapı farklılıklarına göre yukarıda bahsedilen dört farklı yapıdan başka çeşitli özellikler gösterebilen ve buna göre isimler alan (camsı karbon, siyah karbon, kabrin-karbolitler ve sıvı karbon vb.) yapılar söz konusudur (Erkoç, 2001).

## 2.2 Karbon Nanoyapılar

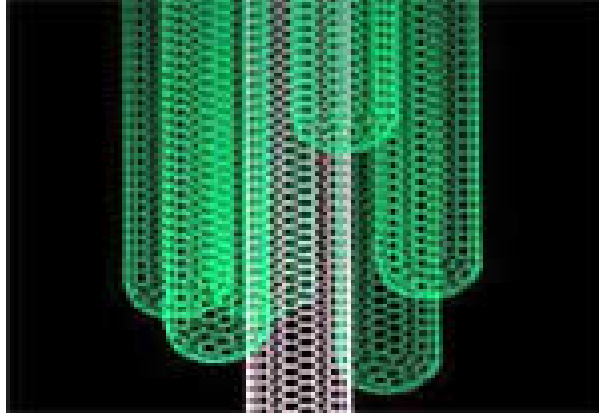
Karbon nanoyapılar sahip oldukları mekanik ve elektriksel özelliklerinden dolayı yeni tip materyallerdir. Bu materyallerin hidrojen depolama, seramik ve polimerlerle kompozitlerin kuvvetlendirilmesi gibi birçok geniş uygulama alanları söz konusudur (Musa, et al., 2006). Bu yapılar **nanotüp**, **nanofiber**, **nanohalka**, **nançubuk** ve **suni amorf karbondur**.

### 2.2.1 Karbon Nanotüpler

Karbon nanotüpler, karbon kristalin grafit yapısındadır. Hegzagonal örgüdedir. Grafitten ark deşarj buharlaştırma yöntemiyle elde edilebilir (Erkoç, 2001). Ayrıca karbon nanotüpler sadece He ve Ar gibi gazlardan değil metan ( $\text{CH}_4$ ) gibi hidrokarbonlardan da meydana getirilebilir (Zhao, et al., 1997). Bazı araştırmacılar çok duvarlı karbon nanotüp üretiminde helyum gibi bazı soy gazlar yerine metan ( $\text{CH}_4$ ) gazının daha etkili olduğunu söylemişlerdir. Çünkü çok duvarlı karbon nanotüp ürünleri fazla oluşurken beraberinde oluşan karbon nanoparçacıklar az miktardadır (Zhao, et al., 1997). Bir karbon nanotüpün şematik gösterimi ve bu nanotüplerden oluşmuş bir karbon yapı demeti sırası ile Şekil 2.5 ve 2.6'da görülmektedir (Erkoç, 2001).



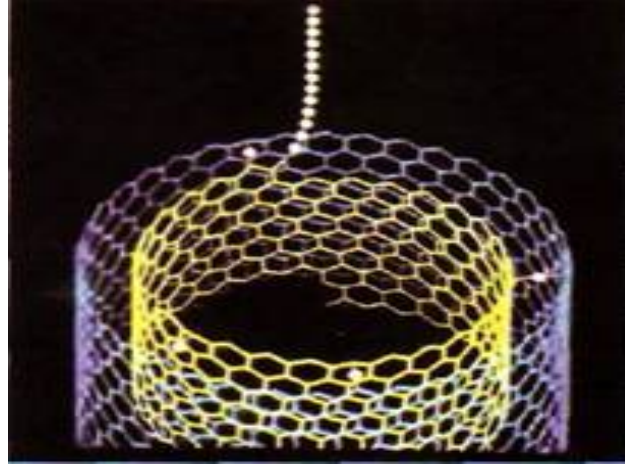
Şekil 2.5. Karbon nanotüp yapısı (Erkoç, 2001).



Şekil 2.6. Tüplerden oluşmuş bir demet (Erkoç, 2001).

### 2.2.2 Karbon Nanofiberler

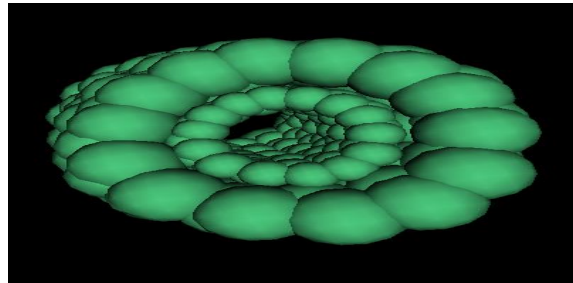
Karbon nanofiber yapılar çok geniş yüzey alanlarına sahiptirler. Bir nanofiberin kütlesiyle alanı arasındaki oran, normal malzemelere göre çok büyüktür. Örneğin kütlesi 1 gr olan bir karbon nanofiberin alanı  $300 \text{ m}^2$  'yi bulabilmektedir. Dolayısıyla bu oran  $300 \text{ m}^2/\text{gr}$ 'dir. Bu ve benzer özellikleri sayesinde nanometre düzeyinde süper kapasitörlerin ve dolayısıyla da yapay kasların üretimi mümkün olabilecektir. Ayrıca hidrojen depolamaya da olanak sağlayan geniş yüzey alanı, karbon nanofiberleri popüler enerji depolama malzemesi konumuna getirmektedir. Şekil 2.7'de bir karbon nanofiberin yapısı şematik olarak görülmektedir (Erkoç, 2001).



Şekil 2.7. Karbon nanofiberin şematik gösterimi (Erkoç, 2001).

### 2.2.3 Karbon Nanohalkalar

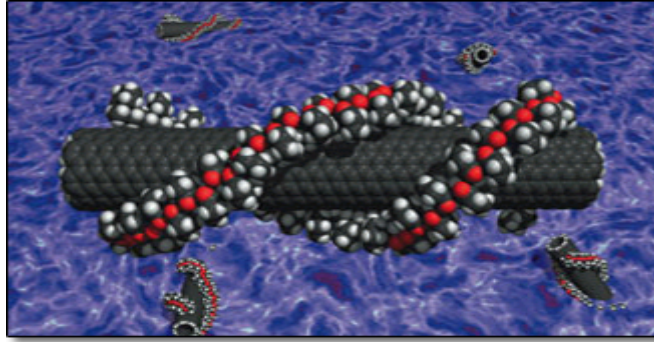
Karbon nanotüplerin iki ucu birleştirilerek halka şeklinde yapıların oluşturulması da mümkündür. Farklı iç ve dış çaptaki halkalarla çok değişik halka modelleri oluşturmak mümkün olabilmektedir. Her farklı halkanın da, farklı özellikler gösterebilmesi mümkündür. Şekil 2.8’de karbon nanohalka yapısı şematik olarak gösterilmektedir (Erkoç, 2001).



Şekil 2.8. Karbon nanohalka yapısının şematik gösterimi (Erkoç, 2001).

### 2.2.4 Karbon Nanoçubuklar

Karbon nanoçubuklar, içi tamamen veya kısmen dolu tüp yapılardan oluşmaktadır. Oluşan bu yapı çubukolarak isimlendirilmektedir. Bu yapıların esnekliği tüplere göre daha azdır (Erkoç, 2001). Bir karbon nanoçubuğun şematik gösterimi Şekil 2.9'da gösterilmektedir (ntvmsnbc, 2008).



Şekil 2.9. Karbon nanoçubuğun şematik gösterimi (ntvmsnbc, 2008).

### 2.2.5 Suni Amorf Karbon

Suni amorf karbon; Diamond Like Carbon (DLC) yapılar, elmas yapılaraya benzer özellikleriyle amorf karbonun (a-C) ya da hidrojenle birleştirilmiş amorf karbonun (a-C:H) yoğun ve kararlı bir formudur. Düşük sürtünme katsayısı, kimyasal kararlılığı, opto-elektronik özelliklerinden dolayı magnetik depolama alanı, IR optik ve bazı özel plastik materyallerin korozyondan koruma kaplamaları olarak kullanılmaktadır (Liu, et al., 2002).

Amorf (a-C) ve hidrojenle birleştirilmiş amorf karbon (a-C:H) filmler yüksek sertlik, düşük sürtünme, elektriksel yalıtım, kimyasal hareketsizlik, optiksel saydamlık, seçilen fotonları absorblama kabiliyeti, pürüzsüzlük ve direnç özellikleri gösterirler. Karbon filmler, çok yüksek sertlikle, yüksek fiziksel özelliklerle ve dielektrik optiksel

özellikleriyle suni amorf karbon olarak tanımlanır (Monaghan, et al., 1993). Bu özellikler DLC’u optik pencere ve fiberler, hard diskler, makine parçası yapımı için koruyucu kaplama yapımında ideal malzeme konumuna getirmiştir. Bunların yanı sıra DLC, biyomedikal kaplamalarda (kalça eklemi, stent) ve biyosensör yapımında da kullanılmaktadır (Zaharia, et al., 2007).

Suni amorf karbon üretmek için yapılan çalışmalarda korona deşarj metodu büyük kolaylıklar sağlamıştır. Bunun sebebi korona deşarj plazma metoduyla düşük sıcaklıkta karbonlar üretilebilmesidir. Örneğin ark deşarj metodunda deşarj sıcaklığı 3000 °C’den yüksekken korona deşarj metodunda bu değer 200 °C’den daha azdır. Farklı deşarj türlerindeki çalışmalar değerlendirildiğinde, yüksek sıcaklık değerlerinin karbon nanoyapı sentezi için uygun olmadığı görülmektedir (Li, et al., 2004).

## BÖLÜM 3

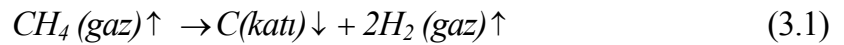
### KARBON YAPILARIN ÜRETİM YÖNTEMLERİ

Karbon yapılar çeşitli teknikler kullanılarak üretilebilmektedir. Bunlardan bazıları; Ark deşarj, Kimyasal buhar depolama (CVD) (Li, et al., 2004), Korona deşarj, Dielektrik bariyer deşarjdır ( Indarto, et al., 2006; Horng, 2006). Bu çalışmamızda, atmosferik basınçta düşük sıcaklıkta atmalı deşarj kullanılarak yeni bir karbon üretim sistemi imal edilmiş ve bu yeni sistem atmosferik basınç karbon kaplama için kullanılarak sonuçlar değerlendirilmiştir.

#### 3.1 Ark Deşarj

Bu sentez tekniğinde d.c ark deşarjın akımı genellikle 30 amperden düşük olduğunda deşarj sabittir ve çok fazla ürün depolanamamaktadır. Bununla beraber ayarlanan basınç ve ark akımıyla yüksek kalitede karbon nanotüpler ve bu yapılarla beraber bir miktar karbon nanoparçacıklar üretilmektedir (Li, et al., 2004).

Metan (CH<sub>4</sub>) aşağıdaki bozunma reaksiyonu tarafından sıcak plazma bölgesinde karbon nanotüpleri çevreleyen katı karbon içerisinde doğrudan ayrıştırılır (Choi, et al., 2006).



#### 3.2 Kimyasal Buhar Depolama

700-1000°C sıcaklıklarda ve 10-40 mTorr basınçlarda CH<sub>4</sub>/H<sub>2</sub> karışımından CVD tekniği ile yarı kararlı ve kristal elmas ince filmleri üretilebilmektedir. Kimyasal

buhar depolama (CVD) tekniğini diğerk bir depolama metodu olan korona deşarjla kıyaslayacak olursak; CVD korona deşarja göre çok daha yüksek sıcaklıkta oluşur (Li, et al., 2004).

### **3.3 Korona Deşarj**

Korona deşarj metodunda düşük sentez sıcaklığı karbon nanotüplerin oluşum mekanizması için yeni bakış açıları açmıştır. Suni amorf karbon üretimde kimyasal buharlaştırma tekniğinden farklı olarak korona deşarj plazma metodu düşük sıcaklıkta oluşabilmektedir. Yapılan çalışmalar yüksek sıcaklığın karbon nanoyapı sentezi için uygun olmadığını göstermektedir (Li, et al., 2004). Bölüm 4’de korona deşarj ayrıntılı olarak anlatılmıştır.

### **3.4 Dielektrik Bariyer Deşarj**

Dielektrik bariyer deşarj bir yalıtıcı yardımıyla atmosferik basınç değeri civarında iki ayrı elektrot arasında oluşan elektriksel bir deşarj tipidir. Sessiz deşarj olarak da bilinmektedir. Ozon üretici deşarjdır. Bu tip bir deşarj yüksek voltaj alternatif akımda ya da radyo frekanslarında meydana getirilir. Son zamanlarda ise mikrodalga seviyelerinde de kullanılmaktadır. Atmosferik basınç değeri civarındaki bazı işlemler yüksek enerjiler gerektirmektedir. Elektrotlar arası boşluk 0.1 mm’den birkaç santimetreye kadar varabilmektedir. Yaygın olarak bilinen dielektrik materyaller cam, seramik ve polimer içermektedir (wikipedia, 2008).

Metan gazı kullanarak dielektrik bariyer deşarjda (DBD), oda sıcaklığında ve 0.4- 4 Torr basınçta, silikon yüzeylerde, 20 GPa sertlikte suni amorf karbon yapıların üretilebildiği araştırmacılar tarafından belirtmişlerdir (Liu, et al., 2002).

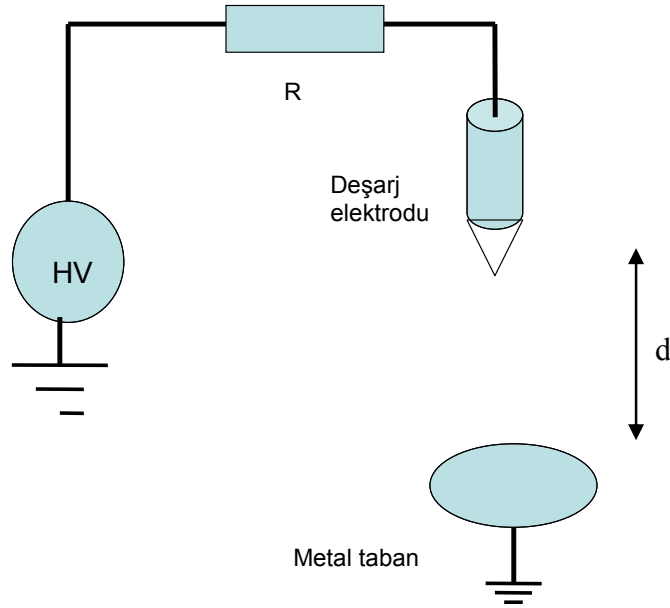


## BÖLÜM 4

### KORONA DEŞARJ

#### 4.1. Korona Deşarj

Korona deşarj atmosferik basınç değeri civarında, düşük elektrik enerjisine sahip elektriksel bir deşarjdır. Korona deşarj yüksek elektrik alan ile küçük eğrilik yarıçaplı bir elektrotta meydana getirilebilir. Korona deşarjın tipi elektrotun şekline bağlıdır. Şekil 4.1’de korona deşarjın nokta- düzlem elektrot geometrik şeklinin şeması verilmektedir (imp, 2007).



Şekil 4.1. Korona deşarjın nokta-düzlem elektrot geometrik şekli (imp, 2007).

Korona kullanılan gazın, iki adet yüksek potansiyelli elektrot arasında bir elektrotun etrafında plazma oluşturmak adına iyonlaşmasıyla ve öteki elektrotlara yük taşıyıcısı olarak plazma işlemlerinde oluşan iyonların kullanılmasıyla gelişen bir işlemdir. Korona deşarj gibi bazı düzensiz plazmalar, atmosferik basınç altında oluşturulur. Korona deşarj, genelde iki asimetric elektrot gerektirir, bunlardan biri, yüksek kıvrım ve diğeri düşük kavislidir. Korona deşarj plazmanın enerjisi genellikle 5 eV'tan yüksektir (Li, et al., 2004).

Koronalar pozitif veya negatif olabilir. Bu durum, yüksek kıvrımlı elektrot üzerindeki voltajın kutuplaşmasıyla belirlenir. Eğer kıvrılmış elektrot, düz elektrota göre pozitifse bu pozitif koronadır, eğer negatifse buna negatif korona denir. Pozitif ve negatif koronaların anlamı birbirlerinden oldukça farklıdır. Bu asimetri, elektronlar ve pozitif şarjlı iyonlar arasındaki büyük kütle farklılıklarının sonucudur (Özen, 2004).

Bazen tek kutuplu deşarj olarak da adlandırılan korona, "Townsend karanlık deşarjı" özelliklerine sahiptir ve elektriksel olarak sıkıştırılmış gazlar içinde plazma oluşumundan önce, keskin noktalarda, uçlarda veya tellerin yakınında yani; "yüksek elektrik alan" bölgelerinde oluşur. Korona akımı yüksek ise, glow deşarj gözlenebilir. Düşük akımlarda, karanlık deşarj sınıfına uygun olarak, koronanın tamamı karanlıktır (Özen, 2004).

Korona deşarj, sadece elektrik alanın önemli ölçüde düzensiz olduğu durumda oluşmaktadır. Elektrotların birinin ya da her ikisinin birden etrafındaki elektrik alan, ikisi arasında ki alandan çok daha güçlü olmalıdır. Bu durum, elektrotların karakteristik boyutu r'nin elektrotlar arası mesafe olan d'den çok daha küçük olduğu zaman gerçekleşir. Eğer  $d/r > 5,58$  ise korona deşarj oluşabilir. Eğer  $d/r < 5,58$  ise, teller arasında voltaj arttıkça, aralarında korona değil de kıvılcım oluşur.

Korona, elektriksel breakdown (bozulma) ile karıştırılmamalıdır. Elektriksel breakdown, genellikle geçici olarak (kısa süreli) belirli bölgelerde yüksek akımlarda

oluşur, fakat korona düşük akımlar süresince devamlılık gösterir ve elektriksel breakdown'a göre akım daha küçüktür (Özen, 2004).

Plazmayı meydana getirmek için gerekli minimum voltaj değeri olan “breakdown voltajı” standart sıcaklık ve basınçta, d mesafesinde olan paralel düzlemsel elektrotlar için kV olarak aşağıdaki gibi verilir;

$$V_B = 3000d + 1,5kV \quad (4.1)$$

Çığ (breakdown) elektrik alanı, (4.1) denkleminin d'ye bölünmesiyle bulunur;

$$E_B = \frac{V_B}{d} = 3000 + \frac{1.5}{d} \text{ kV/m} \quad (4.2)$$

Nokta ya da ince tel etrafındaki elektrik alan, (4.2) denklemindeki eşik alanını aşarsa korona oluşur. Keskin bir noktada ya da ince bir tel etrafında, iç iletkenin yüzeyinde ki elektrik alan maksimum olur ve yarıçap boyunca azalarak dış elektrotta minimum değere ulaşır (Özen, 2004).

Korona deşarjın mekanizması doğru akım (DC) glow (ışıldamalı) deşarjinkine benzerdir. Pozitif iyonlar tele doğru hızlanır ve ikincil elektron emisyonuna neden olurlar. İkincil elektron emisyonu başladıktan sonra elektronlar plazma içerisine doğru hızlanırlar. Yüksek enerjili elektronlar (10 eV civarında) düşük enerjili elektronlara (1 eV civarında) doğru akarlar. Yüksek enerjili elektronlar bu hareket sırasında ağır moleküllerle inelastik çarpışmalar yaparak iyonlaşma, uyarılma ve kimyasal ayrışmaya neden olurlar. Böylelikle radikaller oluşur ve çarpışmalar yoluyla geniş moleküller ayrışır. Bu nedenle plazma oluşurken elektronların kinetik enerjileri ile ağır parçacıkların kinetik enerjileri net bir biçimde birbirinden ayrılır (Özen, 2004).

Plazmayı oluşturmak için uygulanan voltaj değeri  $V_o$ , koronayı boşaltmak için gerekli olan voltajdan daha fazla olduğunda,  $r_o$  aktif yarıçapında elektrik alan (4.1) denkleminde verilen breakdown değerine düşecektir. Aktif yarıçap genellikle korona deşarjın görünür yarıçapı olarak bilinir ve koronanın boşalttığı plazmanın büyük bir kısmı bu aktif bölge içindedir. Bir atmosfere yakın basınçlarda, elektronlar oksijene bağlanırlar, bu yüzden aktif yarıçapla dış elektrot arasındaki akım negatif ya da pozitif iyonlar tarafından taşınır. Uygulanan voltaj pozitifse pozitif iyonlar tarafından, negatifse negatif iyonlar tarafından taşınır (Özen, 2004).

Genellikle, desimetrede mikroamperden miliampere kadar değişen değerde sürekli ya da kesikli akımlar, güç kaynağına doğru akacaktır ve burada pozitif kutuplar sürekli (DC) akıma sebep olurken negatif kutuplar dalgalı akıma sebep olur. Aktif hacim içerisinde elektronlar akıma katılabilirler, ama havada ya da diğer gazlarda hızlı bağlanmış negatif iyonlar şeklindedirler (Özen, 2004).

Korona hem pozitif hem de negatif kutuplarda oluşabildiğinden ve bunların boşalma voltajları ya da korona akımları arasında çok az fark vardır. Elektriksel devresini dolanan korona akımı, iç iletken pozitif iken pozitif iyonlar tarafından taşınır, negatif iken de negatif iyonlar tarafından taşınır. 5 kV gibi düşük voltajlarda korona keskin noktalarda başlayabilir. İnce bir telde korona silindirik bir şekilde gelişir (pozitif kutup) ya da parlatılmış bir tel üzerinde hemen hemen eşit olarak yerleştirilmiş taneciklerden oluşan bir tel şeklindedir (negatif kutup) (Özen, 2004).

Townsend deşarj gibi korona deşarj da karanlık ve kendiliğinden olan deşarjdır. Her iki durumda uygulanan voltajlar, breakdown voltajını aşmaktadır ancak bu deşarjda akım sınırı, akım- voltaj karakteristiğinin Townsend bölgesinde durmaktadır. Her iki durumda voltaj fazlası daha yüksek akım üretir ve lüminesans deşarjın özel yapıda ışık yayınlayan bölgelerini oluştururlar. Bununla birlikte Townsend deşarj durumunda elektrik alan şiddeti düşüktür ve elektrotlar sivri yarıçaplılıkta değildir (Özen, 2004).

Korona deşarj akım-voltaj karakteristiđi Townsend deşarj karakteristiđinin son kısmında bulunmaktadır. Bu karakteristikler korona deşarjın voltaj-akım karakteristiđinde gösterilmiştir. Korona deşarj karakteristiđinin belirgin pozitif eğime sahip olduđu görölmektedir.

Korona deşarj akımının daha da arttırılması ile deşarj, korona rejiminden lüminesans veya ark rejimine dönüşür.

Korona deşarjı daha iyi açıklamak için eş eksenli sonsuz uzunluklu iki silindir durumu düşünülürse, merkezi eksen üzerinde  $r_0$  yarıçaplı bir tel vardır ve silindir yarıçapı  $R$ 'dir. Bu iki elektrot arasına yüksek voltaj uygulanırsa, şiddetli bir elektrik alan oluşur. Bu durumda herhangi bir noktadaki elektrik alan hesaplanabilir. Maksimum elektrik alan elektrotun yüzeyindedir ve

$$E_{max} = \frac{V}{r_0 \ln \frac{R}{r_0}} \quad (4.3)$$

ile verilir. Eş merkezli iki küre durumunda (4.3.) eşitliđi yerine,

$$E_{max} = \frac{V}{r_0} \quad (4.4)$$

yazılabilir (Özen, 2004).

(4.3) ve (4.4) eşitliklerinden göröldüđu gibi elektrik alan,  $r_0$  yarıçapının azalması ile hızlı bir şekilde artmaktadır (Özen, 2004).

Korona deşarjın ateşlenmesi, iyonları üreten çarpışmalar için elektronları gerekli enerjiye hızlandıran ve bu işlemi zincirleme olarak arttıran, güçlü elektrik alan nedeniyledir. Ancak elektrik alan yarıçapla hızlı bir şekilde azaldıđı için aynı zamanda

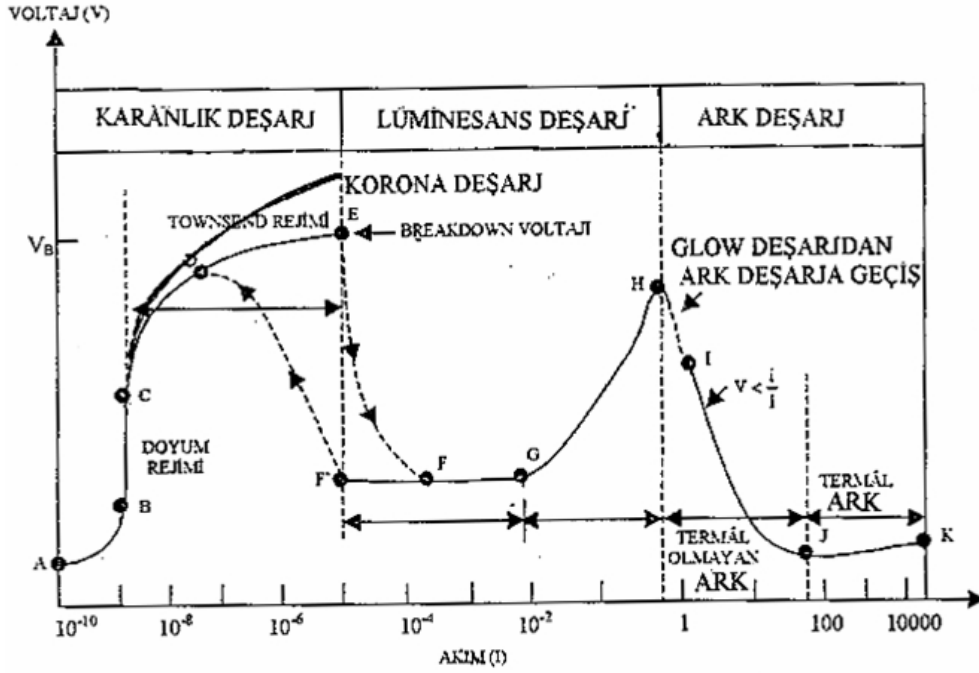
elektrotlar tarafından kazanılan enerjinin bir kısmı çarpışmalarla harcandığından iyonizasyon işlemi, sivri elektrottan belli bir uzaklıkta sona erer. Bu yerde elektrik alanın ateşleme alanına eşit olduğu kabul edilir. Sivri elektrottan iyonizasyonların sona erdiği bu noktaya kadar olan hacim 'aktif bölge' olarak kabul edilir (Özen, 2004).

Ancak elektrik alanı ifade eden (4.3) ve (4.4) eşitliklerinin korona deşarjın ateşlenmesi sırasında geçerliliği sona erecektir. Yani önemli yoğunlukta yüklü parçacıkların ortaya çıkması ile elektrotlar arasındaki güçlü elektrik alanı önemli derecede bozulacaktır (Özen, 2004).

Laboratuvar koşullarında koronanın başlaması; kendi sadece elektrot etrafında parlak bir tabakayla değil, aynı zamanda deşarj akımının  $10^{-6}$  A'e çıkmasıyla da gösterir. Koronanın deşarjı, kendi kendini sürdüren deşarjlar grubuna girer; görüldüğü koşullar, iyonlaşmanın olduğu büyümüş elektrik alan bölgesinde elektronların yeniden üretimi'nin, fiziksel yansımasını ifade eder. Elektronların çoğalma mekanizması temel olarak, koronanın etrafında olduğu elektrotun kutbuna bağlıdır (Özen, 2004).

#### **4.2. Korona Deşarjın Akım- Voltaj Karakteristiği**

DC alçak basınçlı elektrik boşaltımının akım- voltaj karakteristiği Şekil 4.2'de gösterilmiştir. Eğer bir alçak basınç deşarj tüpünde deşarj boyunca akan akım 'I' ölçülürken voltaj "V" ye yükseliyorsa deşarj lineer olmayan bir eğri çizecektir (Şekil 4.2). Çok düşük voltaj değerleriyle başladığımız eğri üzerindeki A ve B noktaları arasındaki bölge doğal yolla radyasyon bölgesi olarak tanımlanır. Böyle bir durumda serbest halde dolaşan elektron ve iyonların oluşturduğu sürekli artan sürtünme nedeniyle voltaj arttırılır (Ekem vd., 2002).



Şekil 4.2. DC düşük basınçlı elektriksel deşarj tüpünün voltaj-akım karakteristiği (Ekem vd., 2002).

Yüksek voltajda başlayan A ve B bölgesi arası, dış etkiler sonucu (background) oluşan iyonizasyon rejimidir. Bu rejimde yükselen voltaj, kozmik ışınlar ve iyonize edilmiş background radyasyonunun diğer formları ile yaratılmış kendine özgü iyon ve elektronların yükselen geniş bir kesrini dışa süpürür (Ekem vd.,2002).

D ve E arasındaki bölge çift kutuplu korona deşarj olacaktır ki bu deşarj elektrotların sivri noktalarında, keskin uçlardaki sert bölgelerin yerel elektrik alan yoğunluğunun büyüklüğü nedeniyle oluşur. Bu güçlü yerel elektriksel alanlar, nötral gazı çevreleyen breakdown değerini aşarlar. Voltaj E noktasında  $V_B$  voltajına kadar arttığında elektriksel çığ oluşacaktır. A ile E arası; "Karanlık Deşarj" olarak adlandırılır. Çünkü sanılanın aksine, korona deşarjları ve elektrik breakdown kıvılcımının kendisi değil, deşarjdan arta kalanların gözle görülen kısmıdır (Ekem vd.,2002).

E noktasında elektriksel breakdown bir kere meydana geldiğinde deşarj, sıcaklık deşarjı rejimine geçiş yapar. Burada akım yeterince yüksek ve background nötral gazı için yeterli derecede büyük olduğundan plazma gözle görülebilir. Daha sonra E'den F'ye devamlı olmayan geçiş, voltaj-akım karakteristiğinin normal glow rejimi olarak adlandırılır. Bunun içinde deşarj boyunca olan voltaj, deşarj akımından hemen hemen bağımsızdır. F ile G arasında akım yükselmiştir. Katot'un işgal edilmesi, plazma artışı ile plazma katot yüzeyini G noktasını da kaplayıncaya kadar sürer. Bu noktada deşarj G'den H'ye doğru anormal glow deşarjına girer. G ile H arasında voltaj, akımın bir fonksiyonudur. Eğer eğri G noktasından başlamak üzere ise voltaj-akım karakteristiğini çizmek yerine voltaj-akım karakteristiğinde histeresizin bir formu olarak incelemek daha uygundur. Deşarj kendisini F noktasına kadar olan normal glow rejiminde sürer. F'ye göre çok küçük akım ve akım yoğunluğuna sahiptir. Yalnızca Townsend rejimine bir geri geçiş yapar (Ekem vd.,2002).

H noktasında, katottaki akım yoğunluğu akkorluk için katodu ısıtmakta yeterli büyük sıcaklığa ulaşabilir hale gelir. Böylece, H ve I arasındaki noktalanmış alanda, noktalanmış şekliyle gösterildiği gibi devam etmeye bir glow-to-ark geçişini tetikler. Bu geçişlerden sonra deşarj I ve K arasında azalır. Bu azalma DC güç kaynağının iç direncindedir. Ark rejimi I'dan K'ya; burada deşarj voltajı, geniş akımlar J noktasında başarılanaya kadar azalıyor. Daha sonra voltaj rejimi (yükselen akımla birlikte) I'dan J'ye; termal olmayan ark rejimidir. Bu rejimde elektron, iyon ve gaz sıcaklığı eşit değildir. J ve K'daki pozitif eğim kısmı termal ark rejimidir. Bu rejimde plazma, termodinamik denge ve sıcaklıkların bütün türlerine tamamen kapalıdır (Ekem vd.,2002).

### **4.3. Korona deşarjın mekanizması**

Pozitif ve negatif türlerdeki korona deşarjlarının ortak olarak belirgin mekanizmaları vardır (Özen, 2004).



\* Etkili saha bölgesi içindeki (yüksek potansiyel eğimli kıvrılmış elektrotun yanında) ortada bulunan nötral atomu, pozitif iyon ve elektron yaratan dış çevresel olaylar yoluyla iyonize edilir.

\* Etkili alan zamanla yüklenmiş partiküller üzerinde çalışır. Onları ayırır ve yeniden kombine olmalarını (birleşmelerini) engeller ve aynı zamanda onlara ivme kazandırarak her birinin kinetik enerjisiyle açığa çıkmasını sağlar.

\* Elektronların enerji kazanımı sonucu (daha yüksek şarj / kütle oranı ve daha kuvvetli ivmelenmesi); daha fazla elektron - pozitif iyon ikilileri nötral atomlarla çarpışmaları ile oluşur. Bunlar, sonradan elektron yığılmasını oluşturan, ayrılma işlemine uğrar.

\* Pozitif ve negatif koronaları farklılaştıran işlemlerde; bu plazma işlemlerinin enerjileri, daha fazla yığılmanın nedenini oluşturan ilk veya başlangıç elektron ayırımlarına dönüştürülür.

\* Bu yükleme serileri ile oluşan iyon türleri (pozitif ve negatif koronaları farklılaştıran) kıvrılmamış elektrotlara doğru çekilir, devreyi tamamlar ve bu durumda geçerli olan akımı güçlendirir.

#### **4.3.1 Elektron Yığılmaları**

Hem pozitif hem negatif koronalar elektron yığılması olarak bilinen işleme dayanır. Korona hava moleküllerinin nadir background iyonlaşması ile birlikte başlar (belki foto-eksidasyonu sonucu). Bu iyonlaşma bir pozitif iyon ve bir serbest elektron yaratır. Eğer bu olay yüksek potansiyel eğimli bir alanda meydana gelirse; pozitif iyon, kuvvetli bir şekilde elektronların zıt yönlere çekilmesindeki gibi kıvrılmış elektroda (koronanın kutuplaşmasına göre değişen) doğru çekilir veya uzaklaştırılır. Bu arada sırada elektronların ve pozitif iyonların yeniden kombinasyonunu engelleyecektir (Özen, 2004).

Alanla ivmelendirilmiş (herhangi bir akım yönünde) bu yüksek enerjili elektronlar genelde nötral atomlarla esnek olmayan bir şekilde çarpışırlar ve aynı zamanda bu atomları iyonize ederler. Bir zincir reaksiyonunda ya da elektron yığılmasında, bu ilave elektronlar güçlü potansiyel gradientlerle kendi pozitif iyonlarından ayrılırlar. Bu olay büyük elektron ve pozitif iyon bulutlarına neden olur (Özen, 2004).

Bir kısım mekanizmalar bu işlemi devam ettirebilir veya güçlendirebilirler. Yığılma yaratırlar ve yığılmadan sonra sabit korona akımı yaratırlar. Korona elektronlarının ikincil kaynağı, bu elektronların her zaman bir doğrultudaki saha ile ivme kazandırılmasıdır (yığılmalar her zaman doğrusal olarak elektroda doğru ya da elektrottan ilerlemesi anlamına gelmektedir). İkincil elektron oluşturulmasında baskın mekanizma koronanın kutupsallığına göre değişir. Her durumda enerji öteki hızlandırılabilen (ivme kazandırılabilen) elektronu meydana getiren molekülü iyonize etmekte kullanılan başlangıç yığılmasıyla beraber foton olarak yayılır. Değişen tek şey bu elektronun kaynağıdır (Özen, 2004).

#### **4.3.2 Pozitif Koronaların Özellikleri**

Pozitif koronalar, iletkenin geçen koronalar olarak belirtilmektedir. Emisyonun büyük kısmı ultraviyole (UV) ışınımda gerçekleşse bile, bu genelde mavi-beyaz ışık verirken görülebilir. Aynı geometri ve voltajla iç ve dış bölgeler arasında iyonlaşmamış plazma kısımlarının eksikliği sebebiyle pozitif koronalar, negatif koronalara göre daha küçük olarak belirir. Negatif koronayla kıyaslandığı zaman pozitif koronada çok az miktarda serbest elektron bulunmaktadır. Kıvrılmış elektrotta, çok yakın olanlar hariç, pozitif koronada elektron yoğunluğu bin ve toplam elektron sayısı yüzdür. Bir negatif korona içinde elektronların çoğu daha dış ve düşük alanlı bölgelerde iken pozitif koronadaki elektronlar, kıvrılmış iletkenin yüzeyine yani yüksek potansiyelli gradientler bölgesinde oldukça yakın yerlerde yoğunlaşmıştır. Bu nedenle, eğer elektronlar yüksek aktivasyon enerjisi gerektiren uygulamalarda

kullanılırsa, pozitif koronalar negatif koronalara nazaran daha büyük reaksiyon sabitlerini destekleyebilirler (Özen, 2004).

Koronalar havadaki etkin ozon üreticileridir. Pozitif korona negatif koronaya göre çok daha az ozon oluşturur. Bu nedenle negatif koronanın çok miktardaki elektronları üretimde artışa yol açar. Plazmanın sınırları dışında tek kutuplu bölgede akış düşük enerjili pozitif iyondan düz elektrota doğrudur (Özen, 2004).

### **4.3.3 Negatif Koronaların Özellikleri**

Negatif korona, yüzey özelliklerine ve kıvrık iletkenlerin düzensizliğine göre farklılaşan, koronalar içinde gösterilir. Negatif korona genellikle sivri kenarlarda kümeler halinde belirir. Kümelerin gücü (etkisi), alanın gücü ve dayanıklılığına göre değişir. Negatif koronalar, ikincil yığılma elektronlarının oluşumunun bir sonucudur. Negatif koronalar çakışan pozitif koronalara göre biraz daha büyük belirir. Elektronlar iyonlaşma bölgesinin dışına doğru sürüklenir. Böylece plazma dışına doğru biraz daha devam eder. Elektronların toplam sayısı ve elektron yoğunluğu çakışan pozitif koronaya göre çok daha fazladır. Fakat bunlar düşük potansiyel eğimli bölgelerde olmaları sebebiyle, daha düşük enerjiye sahiptirler. Bu yüzden birçok reaksiyon elektron yoğunluğunu artırırken, reaksiyon oranını da artıracaktır. Düşük enerjili elektronlar, düşük oranlarda görülebilen yüksek elektron enerjisi isteyen reaksiyonlar anlamına gelmektedir (Özen, 2004).

### **4.3.4 Korona Deşarjın Uygulamaları**

Korona deşarjın ticari ve endüstriyel uygulamaları vardır.

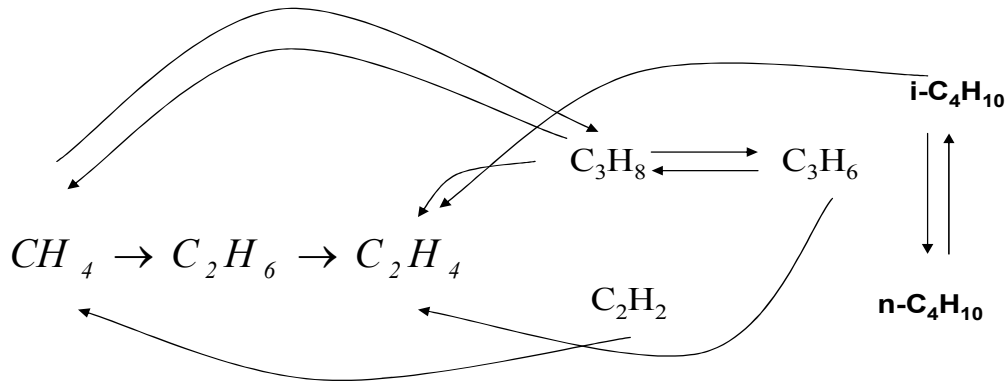
Ozon üretiminde, plazma kimyasal olarak parmak izi bulmada, emisyon kirliliğini azaltmada, istenilmeyen gazı dönüştürülen organiklerin (kimyasal böcek zehirleri, çözeltiler, kimyasal silah araçları) atmosferden yeniden taşınmasında,

fotokopi gibi alanlarda kullanılmaktadır. Koronalar; ilk önce havanın yüklenmesi ile ve sonra deęişerek oluşan kutuplaşmasıyla yüklenmiş akımların geçmesi sonucu parçacıkların hava akımıyla taşınmasında kullanılır ve ayrıca karşılıklı yüklenmiş plakaların üzerinde yüklenmiş parçacıklar bırakır (Özen, 2004). Bunun yanı sıra soğuk plazma kimyası, elektro fotoğrafı, elektrostatik ayırma, hava kirlilięi kontrolü, toksik atıkların ayrışması, dielektrik filmlerin gelişen optik özellikleri, dielektrik şarj, akıcı gaz lazerlerinin yapımında kullanılmaktadır.

Korona reaksiyonlarında oluşan serbest iyonlar, zararlı ve tehlikeli madde içeren havanın temizlenmesinde ve ozon üretiminde de kullanılır. Koronalar, duyulabilirler (Özen, 2004).

#### 4.4 Korona Deşarj Yöntemi Kullanılarak Metan Çevriminin Gerçekleştirilmesi

Korona deşarj yöntemi kullanılarak gerçekleştirilen metan çevrimi ile karbon yapılar kolaylıkla üretilebilmektedir. Yaptığımız çalışmada metan gazının plazması oluşturularak metan çevrimi sağlanmıştır. Bu çevrimi başlatmak için metan gazı içerisindeki çok kuvvetli C-H bağlarını kırmak gereklidir (Diamy, et al., 2001). Korona deşarj yöntemiyle metanın çeşitli hidrokarbonlara ve asetilene çevrilebildiğı bilinmektedir (Yang, 2003). Metan gazının bu kimyasallara çevriminde başlıca ürünleri  $C_2H_2$ ,  $C_2H_4$ ,  $C_2H_6$ , C ve  $H_2$ 'dir (Zhao, et al., 2006) Ayrıca metan çevriminin reaksiyon yolu Şekil 4.3'de verilmektedir (Indarto, et al., 2007)



Şekil 4.3 Metan çevriminin reaksiyon yolu (Indarto, et al., 2007)

Metan çevriminin sonuç reaksiyonları ise;

- i.  $CH_4 \rightarrow C + 2H_2$
- ii.  $CH_4 \rightarrow CH + 4H$
- iii.  $CH_4 \rightarrow \frac{1}{2}C_2H_2 + \frac{3}{2}H_2$
- iv.  $CH_4 \rightarrow \frac{1}{2}C_2H_4 + H_2$
- v.  $CH_4 \rightarrow \frac{1}{2}C_2H_6 + \frac{1}{2}H_2$
- vi.  $2CH_4 \rightarrow C_2H_4 + 2H_2$
- vii.  $CH_4 \rightarrow CH_3 + H$
- viii.  $CH_3 \rightarrow CH_2 + H$
- ix.  $CH_2 \rightarrow CH + H$
- x.  $CH \rightarrow C + H$

şeklinde verilmektedir (Choi, et al., 2006; Zhao, 2006; ,Lin, 2002).

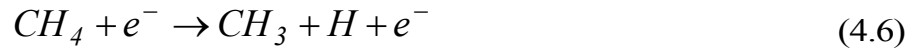
Metan çevrimi gerçekleştirilerek karbon yapılar ve çeşitli hidrokarbonlar elde edilirken dikkat edilmesi gereken bazı deney parametreleri vardır. Bu parametreler; gaz akış oranı, basınç değeri, deşarj gücü vb. olarak belirtilmektedir (Wang and Xu, 2003).

Metan çevrimi için önemli bir parametre olan gaz akış hızınının 5 ml/dak. değeri için %80 [4] ve %90'lık çevrim değerleri yapılan araştırmalarda elde edilmiştir. Yüzdese çevrim değeri denklem (4.5 )

$$X = \left(1 - \frac{CH_{4\text{çıkan}}}{CH_{4\text{giren}}}\right).100 \quad (4.5)$$

ifadesiyle hesaplanabilmektedir (Heintze and Magureanu, 2002). Akış hızının 60-80 ml/dak. olduğu durumda ise metan çevriminin düşük olduğu belirlenmiştir (Wang and Xu, 2003). Bu değerler, metan çevriminden elde edilen verimde gaz akış hızındaki düşüklüğün karbon üretimini, metandan hidrojen ayrıştırılmasını arttırdığını belirlemiştir (Yang, 2003; Wang and Xu, 2003).. Bizim çalışmamız içinse metan çevrimi için çeşitli gaz akış hızlarında karbon üretimi hedef durumundadır.

Korona deşarj yöntemiyle metan çevrimi yapılmasının avantajlarından bir tanesi de, bu deşarj yönteminin atmosferik basınçta karbon üretimine imkân sağlamasıdır. Bu durum karbon üretim çalışmaları için çok büyük kolaylık sağlamaktadır. Yaptığımız çalışmada da karbon üretimi atmosferik basınçta gerçekleştirilmiştir. Bu metot için metan çevrimi enerjistik elektronlarla metan moleküllerinin çarpışması yoluyla da gerçekleştirilmektedir. Bu durum için gerçekleşen reaksiyon ise,



ile verilmektedir (Zhao, et al., 2006).

Deşarj gücü içinse 4 kV deşarj voltaj değeri için metan çevriminin %80 değerlerinde olduğu bildirilmektedir (Indarto, et al., 2006).

Şimdiye kadar yapılmış olan bazı çalışmalarla beraber bizimde yapmış olduğumuz çalışmaları değerlendirdiğimizde karbon üretimi için korona deşarj plazma yönteminin avantajları açıkça görülmektedir. Korona deşarj; atmosferik basınç ve oda sıcaklığında karbon üretiminin yapılabildiği en uygun yöntemdir.

## BÖLÜM 5

### BAZI KARAKTERİZASYON METOTLARI

Günümüzde daha ekonomik ve daha kaliteli malzemeler üretmek için pek çok araştırma ve geliştirme çalışmaları yapılmaktadır. Malzemelerin üretilmesinin yanında yapılarının belirlenmesi ve özelliklerinin incelenmesi de gerekmektedir. Bu amaçla malzeme analizinde kullanılmak üzere pek çok malzeme inceleme tekniği geliştirilmiştir. Bu tekniklere örnek olarak XRD, IR, NMR, SEM, UV, TEM, RAMAN ve AFM verilebilir (Atay , 2002).

#### 5.1 X-Işınları Kırınım Difraksiyonu

Katıların kristal yapıları X-ışını kırınım desenleri (XRD) kullanılarak incelenir. X-ışınları 0.1-100  $\text{\AA}$  aralığındaki dalga boylarına sahip yüksek enerjili elektromagnetik dalgalardır.

X-ışınlarının dalga boyları kristal katılarda atomlar arasındaki mesafe ile kıyaslanabilir merteye olduğundan kristal yapıların incelenmesinde başarılı bir şekilde kullanılmaktadır (Atay , 2002).

Gelişmiş X-ışını cihazlarında X-ışını difraktometreleri kullanılır. X-ışını kırınım (XRD) deseni saçılan ışının şiddetinin kırılma açısı  $2\theta$ 'ya göre değişimini verir. Bragg yasası ( $n\lambda=2d\sin(\theta)$ ) şartı sağlandığında X-ışınları kristalde kırınıma uğrarlar. XRD yöntemi inorganik ve organik kristallerin incelenmesinde yaygın olarak kullanılmaktadır (Atay , 2002).

Filmlerin X-ışını incelemesi kalınlık, kimyasal bileşim, amorflik, tek kristal ya da polikristal durum ve tane büyüklüğü hakkında bilgi verir (Atay , 2002).

## 5.2 Kızıl Ötesi Spektrumları

Dalga sayısı( $1/\lambda$ ) hem enerji ve hem de frekansla doğru orantılı olduğundan, infrared (IR) spektroskopide genellikle doğrusal bir dalgasayısı ölçeği kullanılmaktadır. Dalgasayısı dalgaboyunun tersidir. Titreşim frekansını kullanmak sayısal olarak ölçeklenmeye uygun olmadığından dalgasayısının kullanılması tercih edilmektedir. İnfrared spektroskopisi ile gaz, sıvı ve katı örnekler incelenebilir (IR, 2007).

## 5.3 Nükleer Manyetik Rezonans

Nükleer Magnetik Rezonans (NMR) tarafından  $sp^3$  kesrinin en doğru ölçümü yapılır. NMR'ın avantajı her bir hibritasyon her bir pik için benzer ağırlık faktörüyle ayrı kimyasal değişim pikinde artış verir.  $sp^2$  ve  $sp^3$  pikleri moleküler standartlarda tanımlanır. Bununla beraber, geniş numune hacmi gereklidir (Robertson, 2002).

## 5.4 Taramalı Elektron Mikroskobu

Günümüz teknolojisinde mikroyapılı malzemeleri görüntülemek, analiz etmek ve açıklamak için yaygın olarak kullanılan aletlerden birisi taramalı elektron mikroskobu (SEM)'dur. SEM katı nesnelerin mikroyapısal özelliklerinin belirlenmesi ve yüzey durumlarının incelenmesinde kullanılan çok yönlü bir aygıttır. Bu mikroskop 1963 yılından beri kullanılmaktadır. SEM'de numune yüzeysel olarak incelenmektedir (Atay , 2002).

SEM'in kullanışlı olmasının nedeni hacimsel nesnelerin incelenmesinde elde edilen yüksek çözünürlüktür. SEM'in diğer bir avantajı ise numune yüzeyi incelendiğinden numunenin kalınlığının önemli olmamasıdır (Atay , 2002).



SEM ile elde edilen yüzey görüntülerinde seçilen bir bölge için elemental analiz veya mikroanaliz, enerji dağılımlı x-ışınları spektroskopisi (EDS) ile yapılmaktadır. Bu şekilde hem numunenin yüzey görüntüsü elde edilir hem de numunenin elemental bileşimi belirlenebilir. Numune SEM'in elektron ışığı ile bombardıman edildiğinde, elektronlar numune yüzeyini kapsayan atomlardan kopar. Oluşan elektron boşluğu daha yüksek kabuktaki bir elektron ile doldurulur ve x-ışını ile elektron arasındaki enerji farkını dengelemek için salınır. Dedekte edilen x-ışınlarının bağıl sayılarına göre bir enerji spektrumu elde edilir ve numunede var olan elementlerin kalitatif ve kantitatif analizleri için değerlendirilir (Atay , 2002).

### **5.5 Mor Ötesi Spektrumları**

Morötesi (Ultraviolet, UV) ışınları elektromanyetik spektrumda X-Işınları ile görünür bölge arasında yer alır. UV ışınlarının dalga boyları 100 ile 400 nm aralığındadır. UV ışınlarının soğurulması maddede elektronik geçişlere sebep olur. Soğurulan bu enerji daha sonra ısı, ışın, kimyasal tepkime olarak geri verilir. UV spektrofotometresinde, UV spektrofotometreler genellikle görünür bölge ile birleşik haldedir ve UV-visible olarak adlandırılırlar. Bu tür spektrofotometreler dalga boyları 100 ile 800 nm arasında değişen ışınlarla tarama yapar. Bu sistemde ışık kaynağından çıkan ışık bölücüye kadar gelir. Burada ışık iki eşit parçaya bölünerek uygun optik sistem yardımıyla referans ve örnek küvetine ayrı ayrı gönderilirler. Küvetlerden çıkan ışık dedektörlere gelir ve burada bu ışık şiddetleri ölçülür ve kaydedilir. Daha sonra elde edilen datalar absorbanza karşı dalga boyu grafiğine geçirilir ve gerekli hesaplamalar grafik yardımı ile yapılır (odevsitesi, 2007).

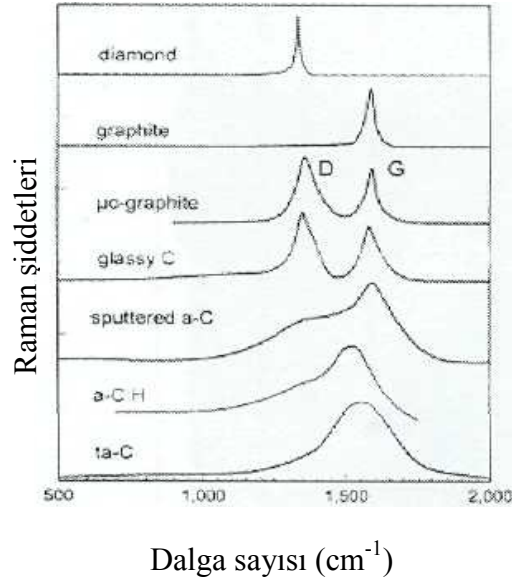
### **5.6 Tünellemeli Elektron Mikroskobu**

Yüksek voltaj altında hızlandırılmış elektronlar bir numune üzerine gönderilirse, elektronlar ile numune atomları arasında çeşitli etkileşimler olur ve

numuneden deęişik enerjide elektronlar ve x-ışınları çıkar. Bu etkileşimlerden yararlanılarak numunenin incelenmesi elektron mikroskopunun prensibini oluşturur. Eęer hızlandırılmış elektronlar ince numune üzerine gönderilmiş ise, elektronların bir kısmı etkileşmeden dięer kısmında Bragg şartları sonucu kırınımına uğrayarak numunenin alt yüzünden dışarı çıkar. Bu tür elektronları kullanarak numunenin iç yapısının incelenmesi geçirim elektron mikroskopunda yapılır. Transmission Electron Microscope veya kısaca (TEM) olarak bilinir (geocities, 2008)

### 5.7 Raman Spektrumları

Raman DLC'ların bağlanmasını anlamak için en iyi yöntemdir. Raman çok kullanılan, rutin olarak uygulanan, elmas, grafit, DLC ve karbon nanotüplerin yapısal kalitesini karakterize etmede en zararsız yöntemdir. Elmas, grafit ve bazı düzensiz karbonların Raman spektrasi Şekil 5.1'de verilmiştir (Raman, 2008)



Şekil 5.1. Elmas, grafit ve bazı düzensiz karbonların Raman spektrasi (Raman, 2008)

Elmas tek raman aktif moda  $1332 \text{ cm}^{-1}$  'de sahip olur. Tek kristal grafit tek raman aktif moda  $1580 \text{ cm}^{-1}$  'de sahip olur. Düzensiz grafit ise ikinci moda  $1350 \text{ cm}^{-1}$ 'de sahip olur (Raman, 2008)

### **5.8 Atomik Kuvvet Mikroskobu**

Atomik kuvvet mikroskobu (AFM), yüzey görüntüleme ve moleküler düzeyde yüzey görüntüleme amacıyla kullanılan ve yakın geçmişte gelişen bir görüntüleme tekniğidir. AFM genellikle moleküler sensör çalışmalarında, kuvvet ölçmeye dayanan bir teknikle kullanılmaktadır. AFM yüzey topografisini angstrom ( $^{\circ}\text{A}$ ) mertebesinde 100 mikrona ( $\mu$ ) kadar görüntüleyebilen bir yeni kuşak mikroskoptur. Mikroskop olarak en önemli avantajı, özel bir hazırlama işlemi uygulamadan örneklerin doğrudan ve hemen hemen her ortamda görüntülenebilmesidir. Bu özellikleri nedeniyle malzemelerin nanometre boyutlarında yüzey özelliklerinin incelenmesi amacıyla, malzemeye ilgili birçok alanda gittikçe yaygınlaşan bir uygulama alanı bulmuştur (Çınar, vd., 2005).

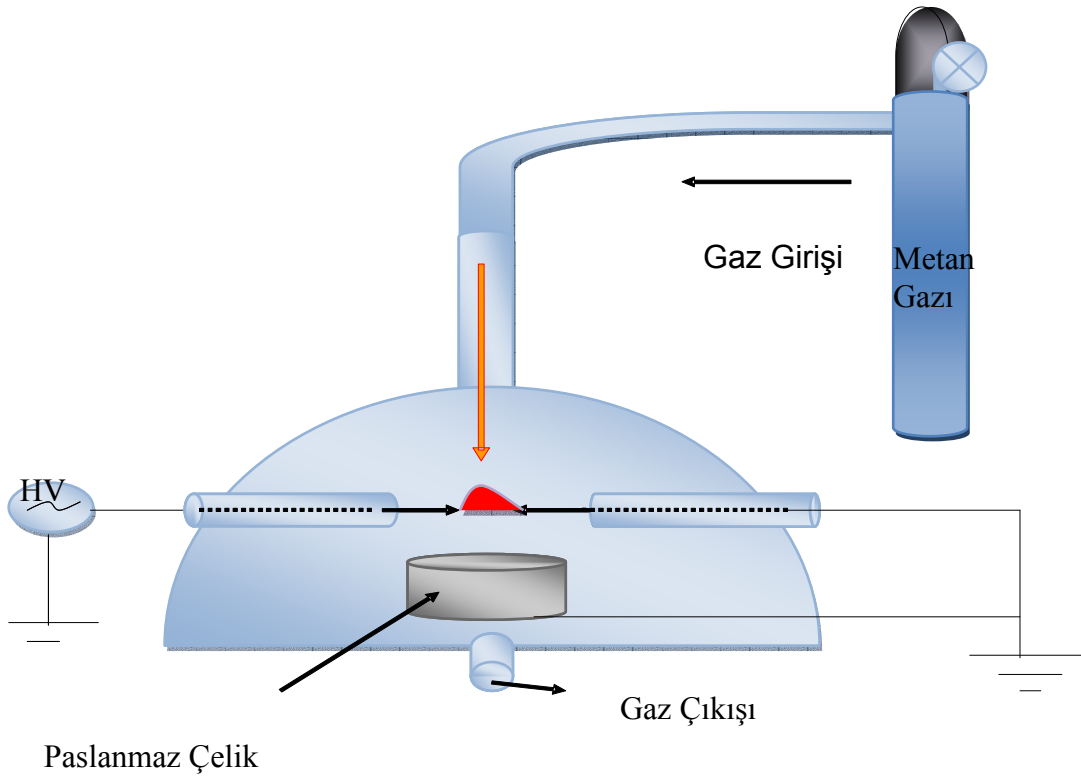
AFM ile incelenen malzemeler, ince ve kalın film kaplamaları, seramikler, alaşımlar, camlar, metaller, polimerler ve yarı iletkenleri içermektedir. Bu metotla aşınma, yapışma, temizleme, çürüme, pürüzlendirme, sürtünme, kayganlaştırma, kaplama ve cilalama gibi işlemlerin materyal üzerindeki sonuçları da incelenebilmektedir (Çınar, vd., 2005).

## BÖLÜM 6

### DENEYSEL BÖLÜM

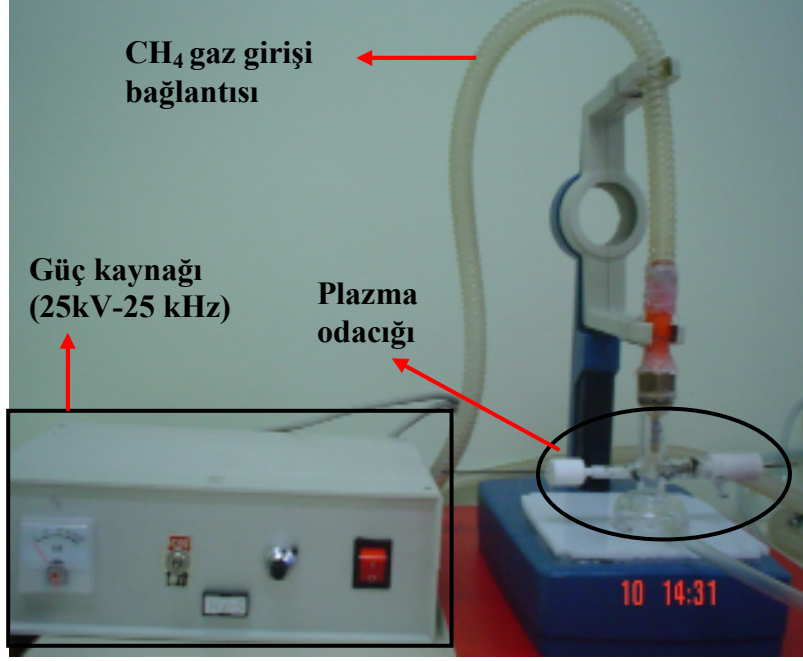
Bu çalışmada metan gazından karbon üretimi için yeni bir deneysel düzenek gerçekleştirilmiş ve elde edilen karbon yapılar analiz edilmiştir. Geliştirilen bu yeni sistemde, karbon yapılar atmosferik basınçta metan gazından pulslu (atmalı) plazma kullanılarak gerçekleştirilmektedir.

Deneysel sistemimiz başlıca plazma odacığı ve güç kaynağından oluşmaktadır. Deneysel sistemin komple şematik gösterimi Şekil 6.1'de görülmektedir.



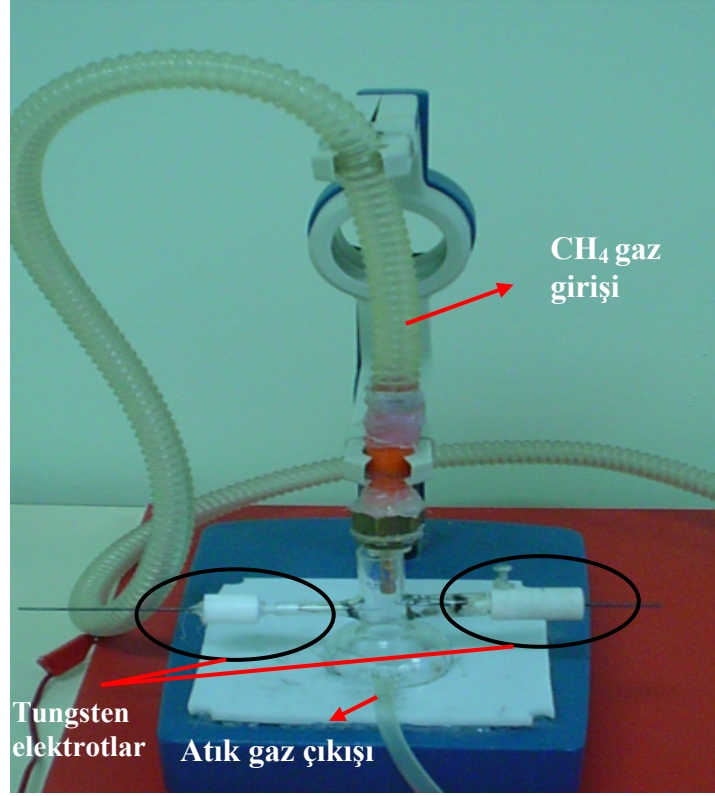
Şekil 6.1. Deneysel düzeneğin şematik gösterimi.

Şekil 6.2’de karbon yapılar üretmek için kullandığımız deneysel sistemin fotoğrafı görülmektedir.



Şekil 6.2. Kullanılan deneysel düzeneğin fotoğrafı.

## 6.1. Plazma Odacıđı

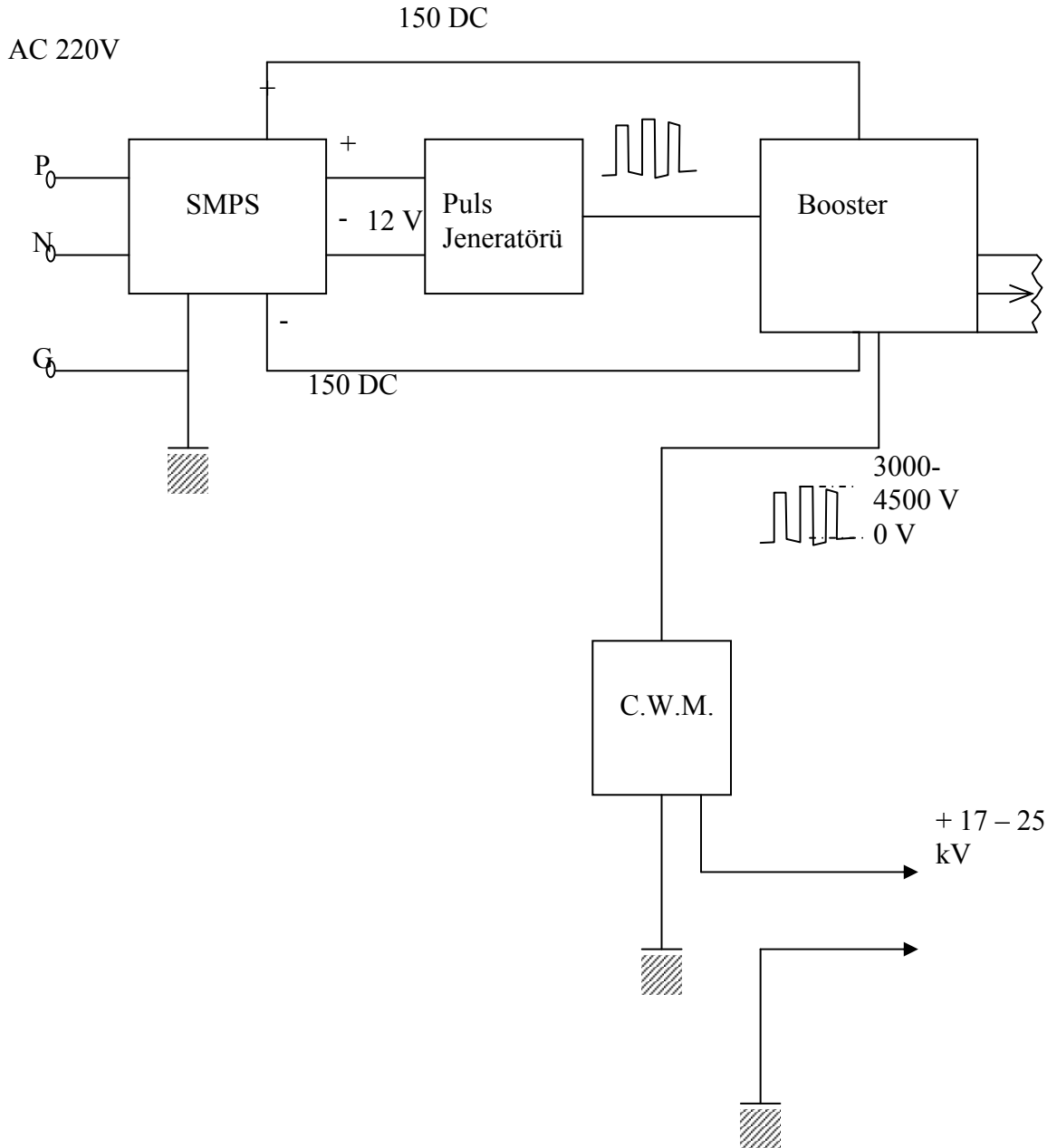


řekil 6.3. Plazma odacıđının fotođrafı.

Plazma odacıđının fotođrafı řekil 6.3'de g3r3lmektedir. Vakum odacıđı 3zerinde d3rt adet giriř mevcuttur. Bu giriřler CH<sub>4</sub> gaz giriři, tungsten elektrotlar ve atık gaz çıkıřı iindir. Kullanılan CH<sub>4</sub> gazı teknik metan gazıdır. Tungsten elektrotlar ise bu deney d3zeneđi iin 3zel olarak sivriltirmiřtir. Sivriltilen elektrotların r sivrilik yarıapı ile d elektrotlar arasındaki mesafe  $d/r > 5.58$  olacak řekilde ayarlanmıřtır. Bunun sebebi ise, plazma odacıđında koronal deřarj oluřturmak iin kullanılmak istenmesidir. Tungsten elektrotlar sivriltilirken 3zellikle sivrilik yarıapı y3ksek olacak řekilde yapılmıřtır. Daha sonra ise tungsten elektrotlar ve eřitli alt tařlar 3zerinde karbon depolanmıřtır.

## 6.2 Güç Kaynağı

Şekil 6.2'de gösterilen güç kaynağı 25kV, 25kHz'lik atmalı güç kaynağıdır ve basit olarak elektronik devresinin şematik çizimi şekil 6.4'deki gibidir.



Şekil 6.4. Güç kaynağının basitleştirilmiş elektronik devre şeması (Özen, 2004).

Güç kaynağı, 220V A.C. ile çalışmaktadır. 220 V, 50 Hz transformatörün çıkışında 3000-4500 V arasında bir çıkışa sahip olur. Daha sonra C.W.M. yükselticisi (Kaskat) ile 17 kV-25 kV'luk bir değere ulaşır.

Metan gazından karbon üretebilmek ve çeşitli alt taşlar üzerine karbon depolayabilmek amacıyla plazma odacığına sürekli olarak sabit akışta metan gazı plastik borular yardımıyla gönderilmiştir. Daha sonra özel olarak sivriltilmiş tungsten elektrotlardan bir tanesine, güç kaynağında üretmiş olduğumuz 17-25 kV, 25 kHz'lik çıkış uygulanmış, diğer tungsten elektrot ve alt taşların konulduğu yer toprak hatta bağlanmıştır. Plazma üretilirken güç kaynağının çıkış voltajı sürekli sabit tutulmuş ve güç kaynağı üzerindeki akım değeri ise 300 mA olarak ölçülmüştür. Deneilerin gerçekleştirilme süresi ise 3-5 dakika aralığındadır.

### 6.3 Deney Sonuçları

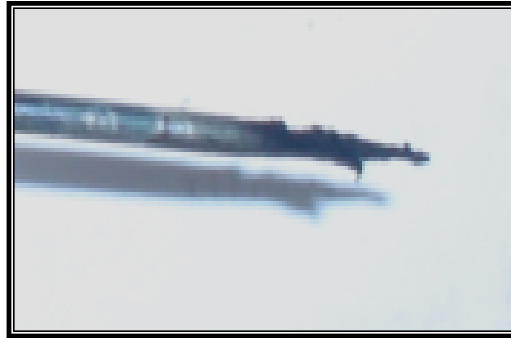
Metan gazının plazması oluşturulduktan sonra tungsten elektrotlarda ve alt taşlar üzerinde karbon yapılar üretildi. Tungsten elektrotlar üzerinde üç farklı tipte karbon elde ettik ve bu karbonları sert yumuşak ve toz karbon olarak isimlendirdik. Bu üç çeşit karbon yapı aynı anda üretilebilmektedir. Üretilen bu karbon yapılar İYTE-MAM'a ait Phillips XL-30 S FEG model taramalı elektron mikroskobu (SEM) ile incelenmiştir. İncelemeler sonucunda sert karbon olarak isimlendirdiğimiz numunelerin kolonsal yapıda olduğu görülmektedir (Musa, 2006, 2007). Şekil 6.9'da bu karbon yapının SEM görüntüsü gösterilmiştir. Ayrıca enerji dağılımlı X-ışınları spektroskopisi (EDS) analizleri sonucunda numuneler üzerinde hiçbir yabancı atomun varlığı tespit edilememiştir (Musa, et al., 2006).

Sert karbon tungsten elektrotun üzerinde oluşmaktadır. Yumuşak karbon ise yine diğer elektrot üzerinde oluşmakta ve fotoğrafı Şekil 7.1'de gösterilmektedir. Yumuşak karbon yaklaşık 10 mm boyunda ve 2-3 mm yüksekliğinde elipsoidal bir yapıdadır. Toz karbon ise plazma odacığının çeşitli bölgelerinde bölgesel olarak



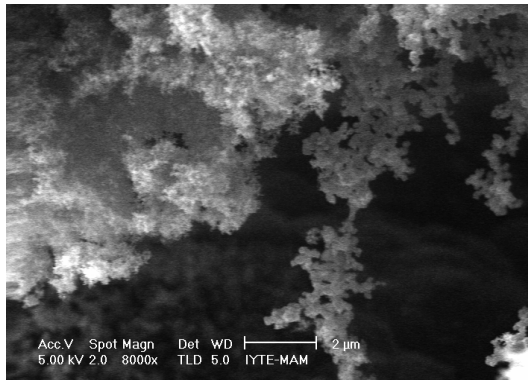
oluşmuştur. Alt taş olarak ise paslanmaz çelik ( $\phi=10$  mm h= 8 mm), nano ölçekli sıfır değerlikli demir kalsit (NZVI-C) ve nano ölçekli sıfır değerlikli demir magnetit (NZVI-M) kullanılmıştır.

### ***i. Sert Karbon ve Analizleri***



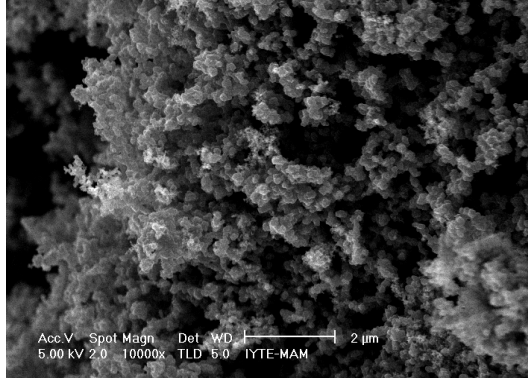
**Şekil 6.5** Yumuşak karbonun merkezinde oluşan sert karbonun fotoğrafı.

Şekil 6.5’de deşarj tüpü içerisine yerleştirmiş olduğumuz tungsten elektrot üzerinde oluşmuş sert karbon numunesinin resmi görülmektedir.



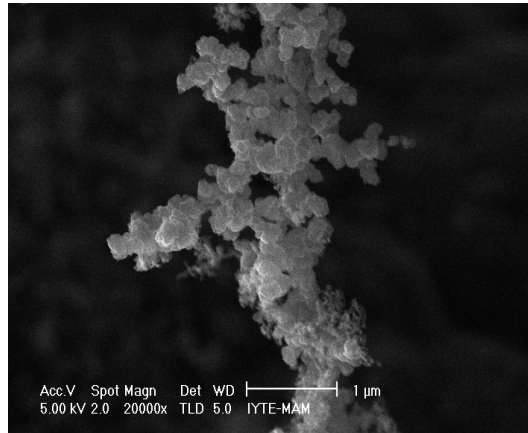
**Şekil 6.6** Sert karbon numunesinin 8000 X büyütme SEM görüntüsü.

Sert karbon numunesinin 8000 büyütmedeki SEM görüntüsünde karbonların yumuşak karbon yapılarına göre daha kuvvetli bağlara sahip olduğu görülmektedir.



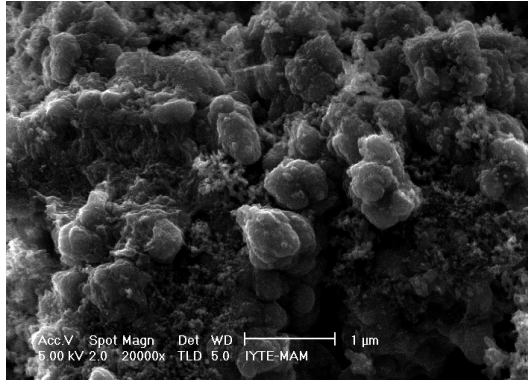
**Şekil 6.7** Sert karbon numunesinin 10000 X büyütme SEM görüntüsü.

Sert karbon numunesinin 10000 büyütmedeki görüntüsünden karbonların belli bölgelerde yoğunlaşmasına rağmen düzenli bir yapı oluşturduğu daha net görülmektedir.



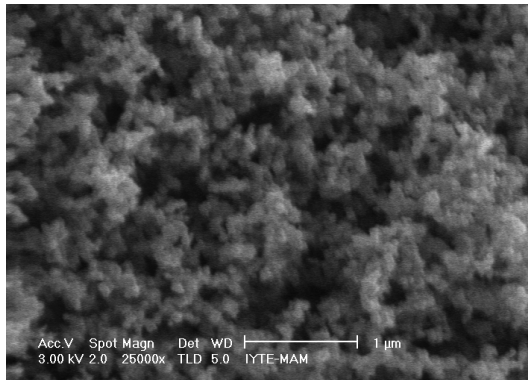
**Şekil 6.8.** Sert karbon numunesinin 20000 X büyütme SEM görüntüsü.

Sert karbon numunesine daha yakından ve kısmi bir bölgesinden bakılan bu görüntüsünde karbonların süngerimsi yapısının kaybolduğu ve daha düzenli bir yapı olduğu görülmektedir.



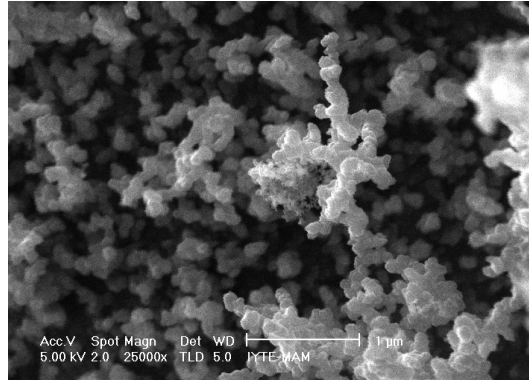
**Şekil 6.9** Sert karbon numunesinin 20000 X büyütme SEM görüntüsü.

Sert karbonun SEM analizinden elde edilen 20000 büyütmedeki görüntülerinden bu yapının boşluk içeren yapıdan uzaklaşıp karbonların birbirine kuvvetli bağlarla bağlandığı görülmektedir.



**Şekil 6.10** Sert karbon numunesinin 25000 X büyütme SEM görüntüsü.

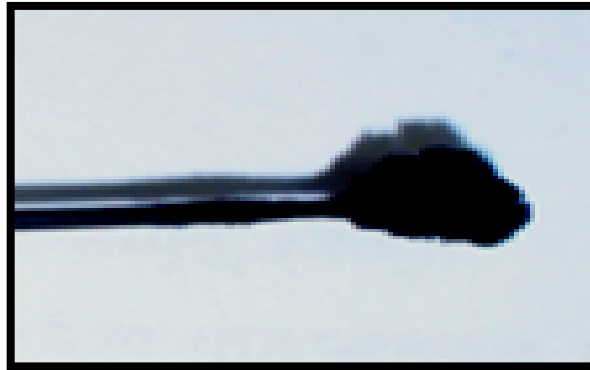
Sert karbon numunesinin 25000 büyütme SEM görüntüsünde toz karbonlara göre karbonların daha sıkı ve düzenli bir yapı oluşturdukları görülmektedir.



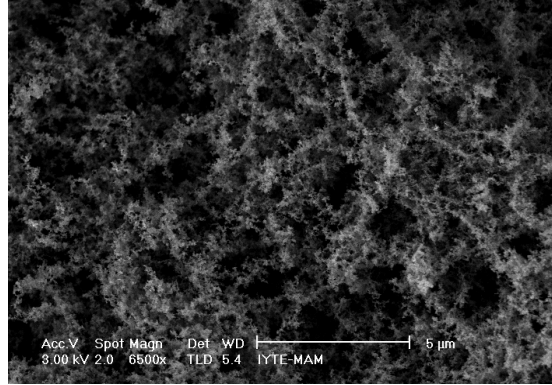
**Şekil 6.11** Sert karbon numunesinin 25000 X büyütme SEM görüntüsü.

Sert karbonun 25000 büyütmedeki farklı bölgelerden çekilmiş yüzey görüntülerinde karbonların birbirlerine daha düzenli yapıda oluştuğu görülmektedir.

## **ii. Yumuşak Karbon ve Analizleri**

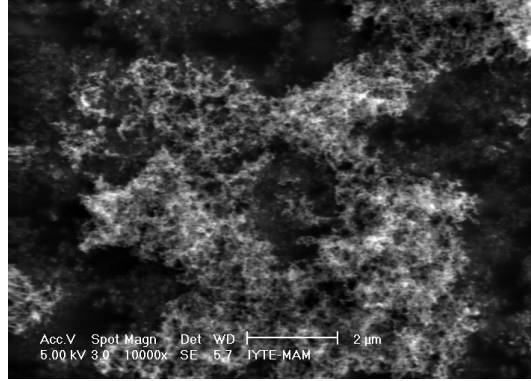


**Şekil 6.12** Yumuşak karbonun fotoğrafı.



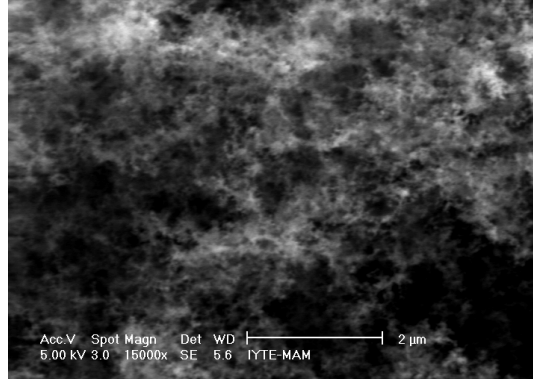
**Şekil 6.13** Yumuşak karbon numunesinin 6500 X büyütme SEM görüntüsü.

Yumuşak karbon numunesinin 6500 büyütmedeki SEM görüntüsünden, karbonların zayıf bağlar oluşturmasından dolayı boşluklu, süngerimsi bir yapı meydana geldiği görülmektedir.



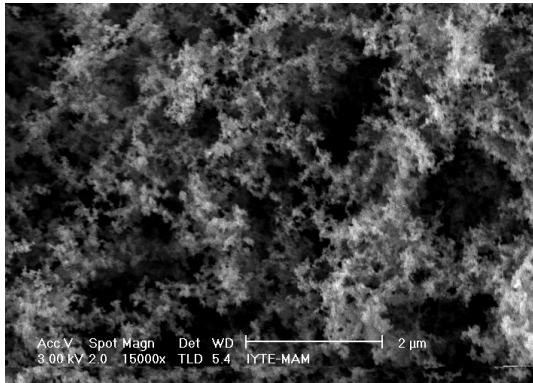
**Şekil 6.14** Yumuşak karbonun 10000 X büyütme SEM görüntüsü.

Deney sonucunda elektrotlar üzerinde elde ettiğimiz yumuşak karbonun 10000 büyütme SEM yüzey analiz görüntülerinden bu karbonların birbirlerine zayıf bağlarla bağlandıkları, ayrıca süngerimsi bir yapı meydana getirdikleri görülmektedir.



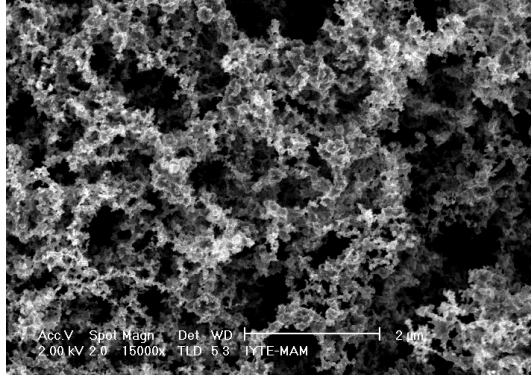
**Şekil 6.15** Yumuşak karbonun 15000 X büyütme SEM görüntüsü.

Yumuşak karbonun 15000 X büyütmedeki SEM görüntüsünde, karbonların süngere benzer kümeler halinde bazı bölgelerde yoğunlaştığı görülmektedir.



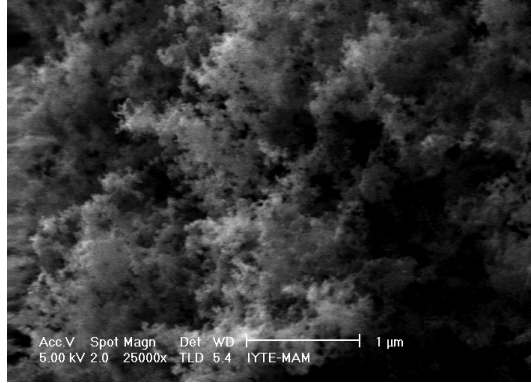
**Şekil 6.16** Yumuşak karbon numunesinin 15000 X büyütme SEM görüntüsü.

Yumuşak karbon numunesinin 15000 büyütme SEM görüntüsünde, karbonların yumuşak karbon yapıdaki gibi bazı bölgelerde yoğunlaşmış süngersi yapıda oluştuğu görülmektedir.



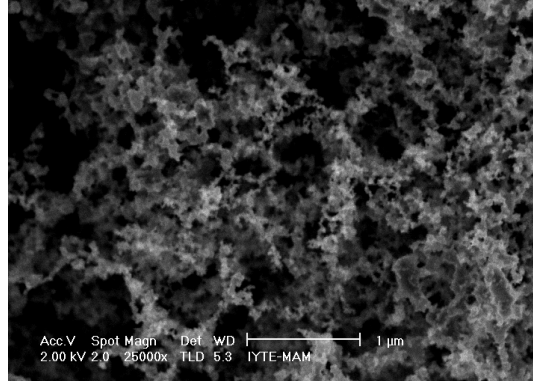
**Şekil 6.17** Yumuşak karbon numunesinin 15000 X büyütme SEM görüntüsü.

Yumuşak karbona 15000 büyütmede bakıldığında, karbonların bazı bölgelerde yoğunlaştığı daha iyi görülmektedir.



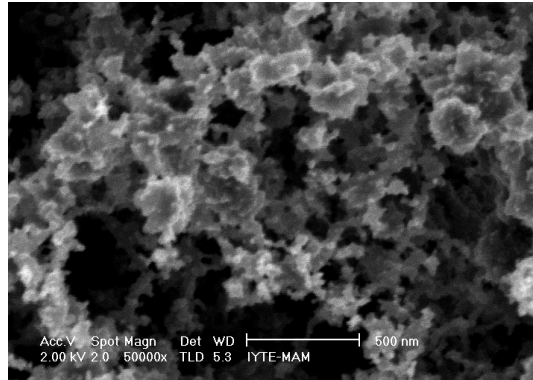
**Şekil 6.18** Yumuşak karbon numunesinin 25000 X büyütme SEM görüntüsü.

Yumuşak karbonun bu SEM görüntülerinden karbonların birbirine zayıf bağlarla bağlandığını görmekteyiz.



**Şekil 6.19** Yumuşak karbon numunesinin 25000 X büyütme SEM görüntüsü.

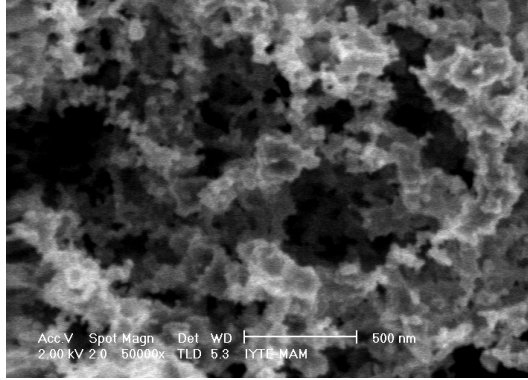
Yumuşak karbon numunesinin 25000 büyütmedeki bu SEM görüntüsünde ise karbonların süngerimsi zayıf bir doku oluşturduğu başka bir açıdan görülmektedir.



**Şekil 6.20** Yumuşak karbon numunesinin 50000 X büyütme SEM görüntüsü.

Yumuşak karbon numunesinin yapısını daha yakından gösteren bu görüntüde ise karbonlar arasındaki zayıf bağlar ve yapıdaki boşluklar net bir şekilde görülmektedir.

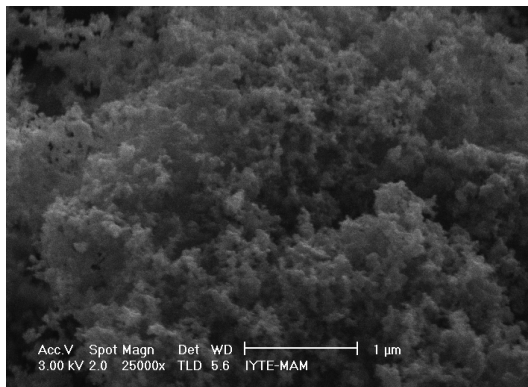




**Şekil 6.21** Yumuşak karbon numunesinin 50000 X büyütme SEM görüntüsü.

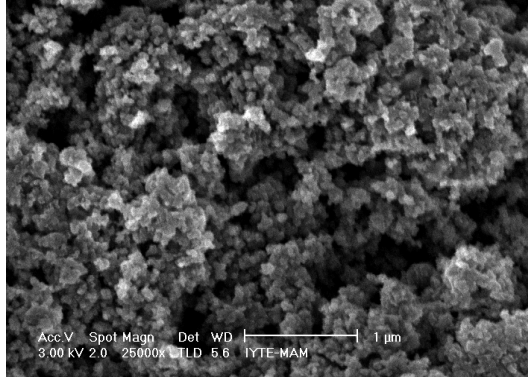
Yumuşak karbonun 50000 büyütmede farklı yönden çekilmiş bu görüntüsünde ise karbonların boşluklar içeren zayıf bir doku halinde olduğu daha net bir şekilde görülmektedir.

### **iii. Toz Karbon ve Analizleri**



**Şekil 6.22** Toz karbon numunesinin 25000 X büyütme SEM görüntüsü.

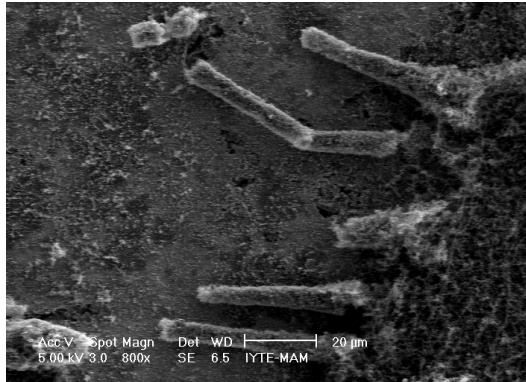
Karbonların toz yapısında da yer yer boşluklar içeren zayıf bağlarla bağlı bir yapı görülmektedir.



**Şekil 6.23** Tüy şeklinde oluşan karbon numunesinin 25000 X büyütme SEM görüntüsü.

Tüy şeklinde oluşan karbonların yüzey görüntüsünde ise karbonların bazı bölgelerde yoğunlaştığı, yumuşak karbona göre daha düzenli bir yapı meydana getirdiği görülmektedir.

#### **iv. NZVI-C Alt Taşı Üzerinde Üretilen Karbon ve Analizleri**



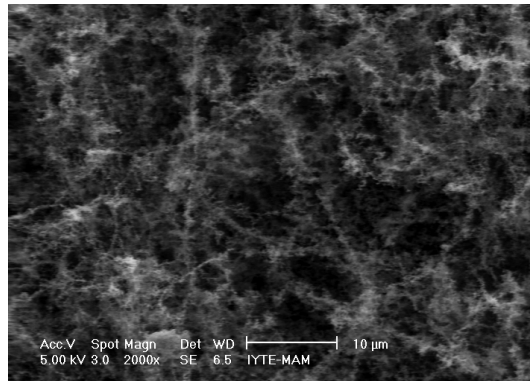
**Şekil 6.24** NZVI-C numunesinin 800 X büyütme SEM görüntüsü.

NZVI-C numunesinin 800 kat büyütülmüş SEM görüntülerinde numunenin tabanına düzgün bir dağılımla yapılmış karbonların yanında kolonlara benzeyen çubuk yapıda karbon yapılar görüldü.



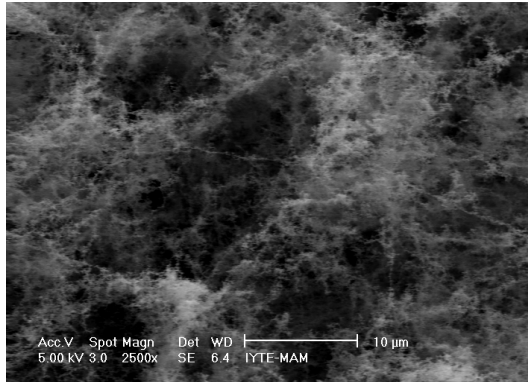
**Şekil 6.25** NZVI-C numunesinin 2000 X büyütme SEM görüntüsü.

Şekil 6.25’de ise NZVI-C numunesinin kolon yapıları daha yakından görüntülenmiştir.



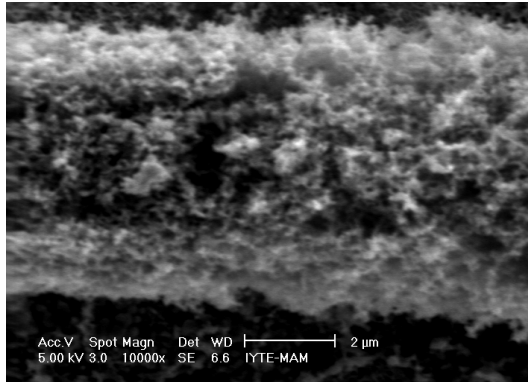
**Şekil 6.26** NZVI-C numunesinin 2000X büyütme SEM görüntüsü.

NZVI-C numunesinin başka bir bölgesinden çekilmiş görüntülerinde ise karbonların numune yüzeyine kısmi boşluklarla düzenli bir yapıda depolandığı görülmektedir.



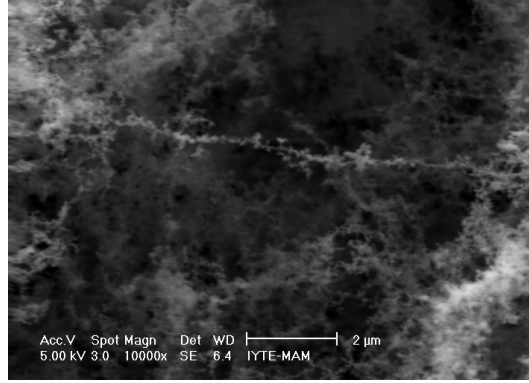
**Şekil 6.27** NZVI-C numunesinin 2500 X büyütme SEM görüntüsü.

Şekil 6.28’de ise NZVI-C numunesi üzerinde depolanan karbonların süngerimsi yapıda meydana geldiği görülmektedir.



**Şekil 6.28** NZVI-C numunesinin 10000 X büyütme SEM görüntüsü.

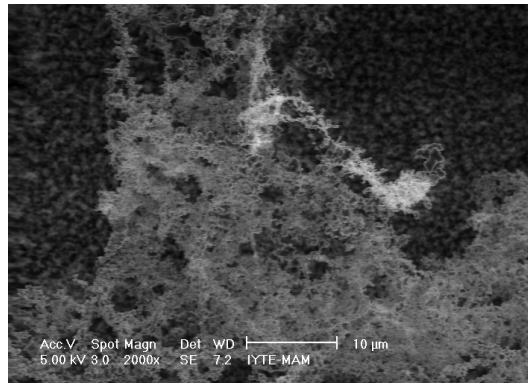
Bu SEM görüntüsünde ise kolon şeklinde oluşan çubuk karbonlardan birinin 10000 kat büyütülmüş hali görülmektedir. Kolon yapıyı oluşturan karbonların birbirine kuvvetli bağlarla bağlandığı söylenebilir.



**Şekil 6.29** NZVI-C numunesinin 10000 X büyütme SEM görüntüsü.

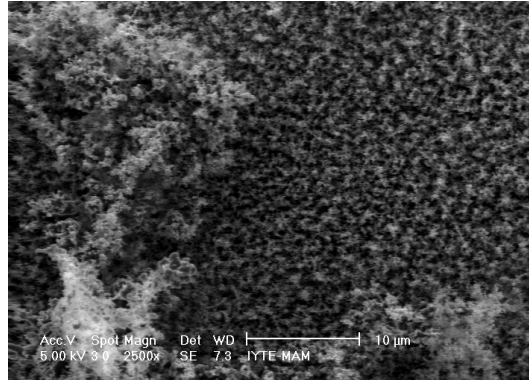
NZVI-C numunesinin bu görüntüsü ise numunenin yüzeyine yakın bölgelerini göstermektedir. Burada oluşan karbon yapılarınsa yine yumuşak karbon yapıda olduğu gibi zayıf bağlarla bağlandığını görmekteyiz.

#### v. NZVI-M Alt Taşı Üzerinde Üretilen Karbon ve Analizleri



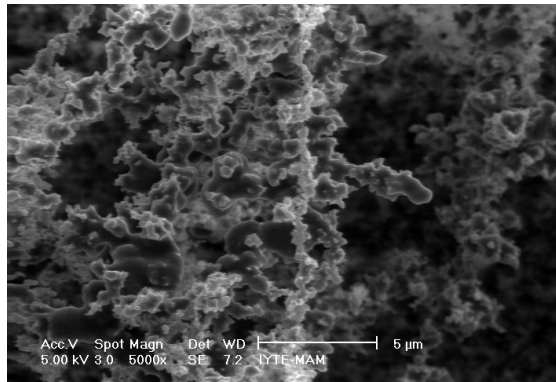
**Şekil 6.30** NZVI-M numunesinin 2000 X büyütme SEM görüntüsü.

NZVI-M numunesinin SEM görüntülerine göre karbonların bu numunenin yüzeyine çok zayıf bağlarla bağlandığını ve süngerimsi yapıya benzer bir yapı oluşturduğunu görmekteyiz.



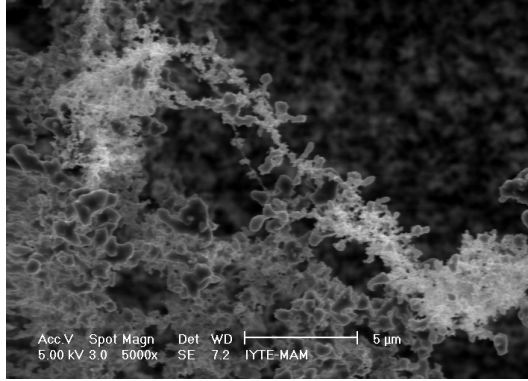
**Şekil 6.31** NZVI-M numunesinin 2500 X büyütme SEM görüntüsü.

Bu numunenin SEM görüntülerine daha geniş bir alanda bakıldığında yüzeye sık ve düzenli şekilde depolanan karbonların yanında başka bir bölgede yoğunlaşmış daha zayıf karbon yapılar görmekteyiz.



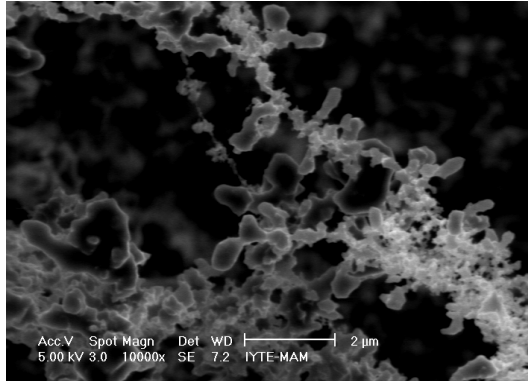
**Şekil 6.32** NZVI-M numunesinin 5000 X büyütme SEM görüntüsü.

Bu SEM görüntüsünde ise numunenin bazı bölgelerinde karbonun yoğun olarak depolandığı görülmektedir.



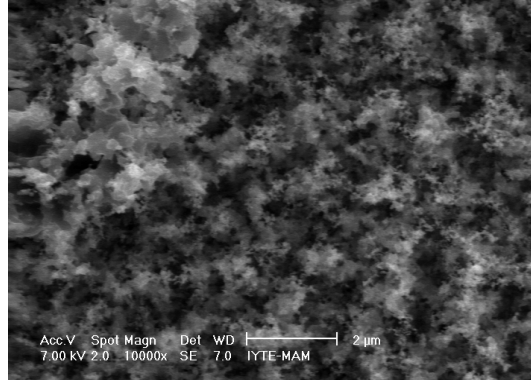
**Şekil 6.33** NZVI-M numunesinin 5000 X büyütme SEM görüntüsü.

NZVI-M numunesine başka bir açıdan bakıldığında bazı bölgelerde karbonların kuvvetli bağlarla düzenli bir yapı oluşturduğu görülmektedir.



**Şekil 6.34** NZVI-M numunesinin 10000 X büyütme SEM görüntüsü.

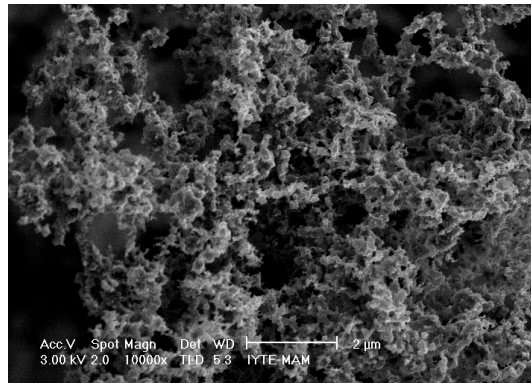
NZVI-M numunesi için alınmış bu görüntüde ise bazı bölgelerde sarmal yapıya benzer bir yapı oluşturan karbonların görüntüsü verilmektedir.



**Şekil 6.35** NZVIM numunesinin 10000 X büyütme SEM görüntüsü.

Şekil 6.35’de NZVI-M numunesinin 10000 büyütmedeki başka bir bölgeden alınmış SEM görüntülerinde oluşan karbon yapıların bazı bölgelerde yoğunlaşmalar gösterdiğini görmekteyiz. Bu da bize depoladığımız karbonların düzensiz yapıda oluştuklarını göstermektedir.

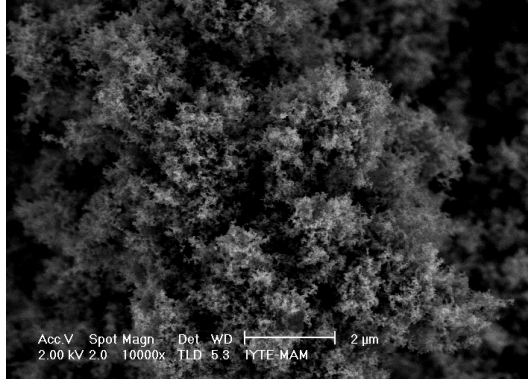
#### **vi. Paslanmaz Çelik Alt Taşı Üzerinde Üretilen Karbon ve Analizleri**



**Şekil 6.36** Paslanmaz çelik üzerine depolanan karbon numunesinin 10000 X büyütme SEM görüntüsü.

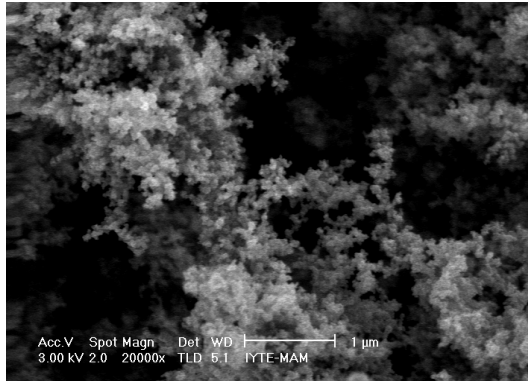
Paslanmaz çelik üzerine depolanan karbon numunesinin 10000 büyütme görüntüsünde karbonların yüzeye boşluklu ve süngerimsi yapıda depolandıkları görülmektedir.





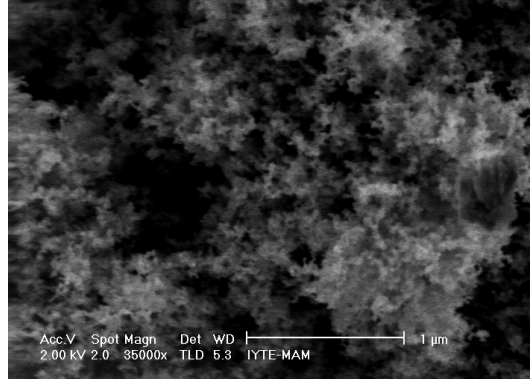
**Şekil 6.37** Paslanmaz çelik üzerine depolanan karbon numunesinin 10000 X büyütme SEM görüntüsü.

Paslanmaz çelik numunesi için alınmış olan yüzey görüntülerinde karbonların yüzeye bazı bölgelerde daha yoğun ve toz karbonlara göre daha düzenli süngerimsi yapıda olduğu görülmektedir.



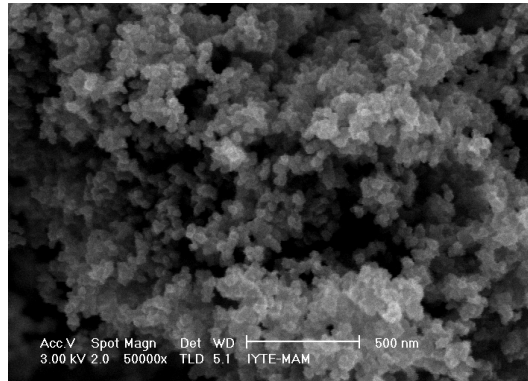
**Şekil 6.38** Paslanmaz çelik üzerine depolanan karbon numunesinin 20000 X büyütme SEM görüntüsü.

Paslanmaz çelik üzerinde depoladığımız karbon yapıların 20000 büyütme görüntüsünde ise karbonların yüzeye düzensiz olarak tutundukları görülmektedir.



**Şekil 6.39** Paslanmaz çelik üzerine depolanan karbon numunesinin 35000 X büyütme SEM görüntüsü.

Paslanmaz çelik üzerine depolanan karbon numunesinin 35000 büyütme SEM görüntüsünde karbonların aralıklarla bazı bölgelerde yoğunlaştığı ve çelik numune üzerinde süngerimsi bir yapıyla depolandığı görülmektedir.

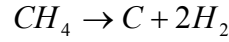


**Şekil 6.40** Paslanmaz çelik üzerine depolanan karbon numunesinin 50000 X büyütme SEM görüntüsü.

Paslanmaz çelik numunesinin daha yakın bir görüntüsüne bakacak olursak numune üzerine depolanan karbonlar arası bağların toz numunelere kıyasla daha sıkı bağ yapısına sahip olduğu görülmektedir.

## SONUÇLAR VE TARTIŞMA

Metanın karbon siyahına ve çeşitli hidrokarbonlara dönüştürülme araştırmaları günümüzde önemli yer tutmaktadır. Bu işlem korona deşarj, spark deşarj, ark deşarj ve dielektrik bariyer deşarj gibi çeşitli deşarj yöntemleriyle yapılabilmektedir. Metanın bu yöntemlerle karbona çevrim reaksiyonlarından en temel bir tanesi de,



şeklinde (Choi, et al., 2006; Zhao, 2006).

Ayrıca, nano yapıda karbon elde edebilmek için kimyasal buhar depolama (CVD), lazer aşındırma ve elektriksel ark gibi metotlarda kullanılmaktadır.

Bu çalışmada atmosferik basınçta plazma kullanarak karbon üretimi ve çeşitli tabanlar üzerine depolama gerçekleştirdik. Elektrotlar arasında 25 kV-25 kHz'lik bir potansiyel farkı metan gazı üzerine uyguladık. Deşarj akımını yaklaşık olarak 300 mA'de tutmaya çalıştık. Elde ettiğimiz deşarj ile sisteme göndermiş olduğumuz metan gazının plazmasından tungsten proplar üzerinde ve deşarj sistemi içerisinde sert, yumuşak, lifli ve toz yapıda karbonlar depoladık. Ayrıca deşarj sistemi içerisine yerleştirdiğimiz paslanmaz çelik, NZVI-C ve NZVI-M numuneleri üzerinde karbon depoladık. Ürettiğimiz karbonlardan sert karbonu yumuşak karbonun merkezinde ve toz karbonu ise deşarj reaktörünün her tarafında elde ettik.

SEM yöntemiyle yüzey görüntülerini aldığımız bu karbonlardan sert karbonun SEM görüntülerinde karbonların bazı bölgelerde yoğunlaşmasına rağmen birbirlerine kuvvetli bağlarla bağlandığını ve kolonsal bir yapıya sahip olduğunu gördük.

Yumuşak karbonun 10 mm'lik küçük bir topa benzer yapıda olduğunu zayıf bağlarla bağlandıklarını ve süngerimsi yapıya sahip olduklarını gözlemledik. Yumuşak karbonun lifli yapısının (tüy) yüzey görüntüsünde ise karbonların bazı bölgelerde yoğunlaştığı ve düzensiz bir yapı meydana getirdiğini gördük.

NZVI-C numunesinin SEM görüntülerinde numune yüzeyine düzenli olarak depolanmış karbonların yanı sıra çubuk halinde karbon yapılar oluştuğunu gördük. NZVI-M numunesinin SEM görüntülerinde ise karbonun yüzeyde homojen olmayan zayıf bağlarla bağlı karbon yapılar depoladığını gözledik.

Paslanmaz çelik numunesi için alınmış olan yüzey görüntülerine bakıldığında karbonların yüzeye düzensiz olarak dağılmasıyla birlikte bu yapıların süngerimsi yapıda olduğu ve kuvvetli bağlarla bağlandığını gözlemledik.

Sonuç olarak, bu çalışmada öncelikle plazma yardımıyla metan çevrimi sonucunda karbon üretimi gerçekleştirilmiş ve bu sistem daha da geliştirilerek atmosferik basınçta çeşitli alt taşlar üzerine karbon kaplama yapan bir sistem geliştirilmiştir. Bu sistem ile üretilen karbon kaplamaların film yüzeyine tutunmaları artırılabilen ve çeşitli tabanlar üzerine karbon büyütme gerçekleştirilebilmektedir. Bugün için elektrotlar üzerinde kolonsal büyümeye sahip karbonlar üretilmektedir. İleriki aşamalarda ise bu tür yapıların alt taşlar üzerinde büyütülmesi hedeflenmektedir. Ayrıca karbon kaplamaların yüzey tutunmalarının da (örneğin, alt taşın ısıtılması ve/veya ters besleme ile) incelenmesi gereklidir.

## KAYNAKLAR DİZİNİ

- Atay, F., 2002, ESOGU Fen Bilimleri Enstitüsü Fizik ABD Doktora Tezi.
- Attkins, P., Jones, L., 1997, Temel kimya ders kitabı, Bilim Yayıncılık, 2. Cilt, 886 s.
- Choi, S.I., Nam, J. S., Lee, C.M., Choi, S.S., Kim, J.L., Park, J. M., Hong, S.H., 2006, High Purity synthesis of carbon nanotubes by methane decomposition using and arc-jet plasma, *Current Applied Physics* 6, 224-229.
- Çınar, M. O., Ülgen, Ş. D., Çubukçu, E., Koçum, İ. C., Molekül algılama amaçlı atomik kuvvet mikroskobu tasarımı ve üretilmesi, *Biyomedikal Mühendisliği Ulusal Toplantısı, BİYOMUT*, 2005.
- Çıracı, S., Şubat 2007, 21. Yüzyılda yeni bir sanayi devrimi: Nanoteknoloji, *Bilim ve Ütopya Dergisi*.
- Diamy, A.-M., Hrach, R., Hrachova, V., Legrand, J.-C., 2001, Influence of Carbon concentration for Acetylene Production in a CH<sub>4</sub>/N<sub>2</sub> Afterglow, *Vacuum* 61, 403-407.
- Ekem, N., Musa, G., Akan, 2002, Plazma Fiziği-Ders Notları, Osmangazi Üniversitesi, Eskişehir.
- Erkoç, Ş., Ocak 2001, Karbon nano yapılar, *Bilim ve Teknik Dergisi*.
- Heintze, M., Magureanu, M., 2002, Methane Conversion into Aromatics in a Direct Plasma-Catalytic Process, *Journal of Catalysis* 206, 91-97.

### KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)

Hornig, R-F., Chang, Y-P., Chung, C-L., 2006, Carbon deposit growth on the electrodes of a plasma converter in the generation of hydrogen from methane, International Journal of Hydrogen Energy 31, 2040-2051.

[http://en.wikipedia.org/wiki/Dielectric\\_barrier\\_discharge](http://en.wikipedia.org/wiki/Dielectric_barrier_discharge), Erişim tarihi: Temmuz 2008

[http://209.85.129.104/search?qcache:t\\_LpCmX\\_0AEJ:w3.gazi.edu.tr/~mkaracan/enstrumental/IR%2520Spektroskopisi.ppt+IR+spektroskopisi&hl=tr&ct=clnk&cd=3&gl=tr&lr=lang\\_tr|lang\\_en](http://209.85.129.104/search?qcache:t_LpCmX_0AEJ:w3.gazi.edu.tr/~mkaracan/enstrumental/IR%2520Spektroskopisi.ppt+IR+spektroskopisi&hl=tr&ct=clnk&cd=3&gl=tr&lr=lang_tr|lang_en), Erişim tarihi: Haziran 2007.

[http://209.85.129.104/search?q=cache:3b\\_di\\_tDFpYJ:w3.gazi.edu.tr/mkaracan/enstrumental/Raman%2520Spektroskopisi.ppt+IR+spektroskopisi&hl^tr&ct=clnk&cd^4&glHr&lr=l ang\\_tr|lang\\_en](http://209.85.129.104/search?q=cache:3b_di_tDFpYJ:w3.gazi.edu.tr/mkaracan/enstrumental/Raman%2520Spektroskopisi.ppt+IR+spektroskopisi&hl^tr&ct=clnk&cd^4&glHr&lr=l ang_tr|lang_en), Erişim tarihi: Haziran 2007.

<http://www.geocities.com/kirikkalemikroskop/tem.htmlM3010>, Erişim tarihi: Mayıs 2007.

<http://images.google.com.tr/imgres?imgurl=http://www.yaklasansaat.com/resimler/EARTH/karbonres6.jpg&imgrefurl>, Erişim tarihi: Nisan 2008

<http://www.imp.gda.pl/ehd/eljiisch.html>, Erişim tarihi: Temmuz 2007

[http://www.odevsitesi.com/default.asp?islem=dok\\_indir&odevno=100492](http://www.odevsitesi.com/default.asp?islem=dok_indir&odevno=100492), Erişim tarihi: Haziran 2007.

Indarto, A., Choi, J.W., Lee, H., Song, H. K., June 2006, Methane conversion Using dielectric barrier discharge: comparison with thermal process and catalyst effects, Journal of Natural Gas Chemistry, Volume 15, Issue 2, 87-92.

**KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)**

- Indarto, A., Coowanitwong, N., Choi, J-w., Lee, H., Song, H. K., 2008, Kinetic Modeling of Plasma Methane Conversion in a Dielectric Barrier Discharge, Fuel Processing Technology 89, 214- 219.
- Li, M-w., Hu, Z., Wang, X-z., Wu, O., Chen, Y., Tian, Y-L., 2004, Low-temperature synthesis of carbon nanotubes using corona discharge plasma at atmospheric pressure, Diamond and Related Materials 13, 111-115.
- Lin, Y-Z., Sun, J., Yi, J., Lin, J. D., Chen, H-B., Liao, D-W., 2002, Energetics of Chemisorption and Conversion of Methane on Transition Metal Surfaces, Journal of Molecular Structure (Theochem) 587, 63-71.
- Liu, D., Xu, Y., Yang, X., Yu, S., Sun, O., Zhu, A., Tengcai, M., 2002, Diagnosis of dielectric barrier discharge CH<sub>4</sub> plasmas for diamond-like carbon film deposition, Diamond and Related Materials 11, 1491-1495.
- Monaghan, D. P., Laing, K.C., Logan, P.A., Teer, P., Teer, D.G., June 1993, Diamond-like carbon coatings, Materials World, Vol.1 No.6 pp. 347-49.
- Morttmer, C.E., 1989, Modern üniversite kimyası ders kitabı, Çaylayan Kitabevi, 464 s.
- Musa, G., Ekem, N., A., Tamer, Pat, S., Balbağ, M.Z., Cenik, M.İ., Vladioiu, R., Tanişli, M., ve Özen, Ö., 2006, Investigation of carbon produced by methane pulsed discharge, Phys. Stat. Sol.(c) 4, No.2, 521-523/ DOI10.1002/pssc.200673313.

**KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)**

Musa, G., Ekem, N., Pat, S., Balbag, M.Z., Cenik, M.I., Akan, T., Ciupina, V., Vladioiu, R., Tanisli, M., Özen, O., Journal of Optoelectronics and Advanced Materials, Vol.9, No : 4, April, 2007.

Öksüz, L., Şubat 2001, Plazma gerçeği, Bilim ve Teknik Dergisi.

Özen, Ö., 2004, Plazma ile metan gazından karbon üretimi, Lisans tezi, OGU Fen Edebiyat Fak.

Robertson, J., 24 May 2002, Diamond like amorphous carbon, Materials Science and Engineering: R: Reports, Volume 37, Issues 4-6, 129-281.

Wang, B., Xu, G., 2003, Conversion of Methane to C<sub>2</sub> Hydrocarbons via Cold Plasma Reaction, Journal of Natural Gas Chemistry 12, 178-182.

[www.kimyaevi.org/elementler/karbon/karbon.asp](http://www.kimyaevi.org/elementler/karbon/karbon.asp), Erişim tarihi: Nisan 2008

[www.ntvmsnbc.com/news/190865.jpg](http://www.ntvmsnbc.com/news/190865.jpg), Erişim tarihi: Nisan 2008

[www.populerbilgi.com/genel/res\\_evren/karbon1.jpg](http://www.populerbilgi.com/genel/res_evren/karbon1.jpg), Erişim tarihi: Nisan 2008

Yang, Y., 2003, Direct Non-oxidative Methane Conversion by Non-thermal Plasma: Experimental Study, Plasma Chemistry and Plasma Processing, Springer, 283-296.

Zaharia, T., Sullivan, J.L., Saied, S.O., Bosch, R.C.M., Bijker, M.D., 2007, Fast deposition of diamond-like hydrogenated carbon films, Diamond and Related Materials 16, 623-629.



**KAYNAKLAR DİZİNİ (devam)**

Zhao, G. B., John, S., Zhang, J. J., Wang, L., Muknahallipatna, S., Hamann, J. C., Ackerman, J. F., Argyle, M. D., Plumb, O. A., 2006, Methane Conversion in Pulsed Corona Discharge Reactors, Chemical Engineering Journal 125, 67-79.

Zhao, X., Ohkohchi, M., Wang, M., Iijima, S., Ichihashi, T., Ando, Y., 1997, Preparation of High-Grade Carbon Nanotubes by Hydrogen Arc Discharge, Elsevier Science Ltd. Carbon Vol. 35, No.6, pp. 775-781.