

**T.C.  
MARMARA ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**SOL-GEL YÖNTEMİYLE HAZIRLANAN WO<sub>3</sub>  
FİLMLERİN ELEKTRİKSEL VE OPTİK  
ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ**

**Aydın Ömür Çelik**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ  
FİZİK ANABİLİM DALI  
FİZİK PROGRAMI**

**DANIŞMAN**

**Doç. Dr. Ahmet ALTINDAL  
Yrd. Doç. Dr. Fatih DUMLUDAĞ**

**İSTANBUL 2009**

**T.C.**  
**MARMARA ÜNİVERSİTESİ**  
**FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**SOL-GEL YÖNTEMİYLE HAZIRLANAN WO<sub>3</sub>**  
**FİLMLERİN ELEKTRİKSEL VE OPTİK**  
**ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ**

**Aydın Ömür Çelik**  
**(141101420060027)**

**YÜKSEK LİSANS TEZİ**  
**FİZİK ANABİLİM DALI**  
**FİZİK PROGRAMI**

**DANIŞMAN**  
**Doç. Dr. Ahmet ALTINDAL**  
**Yrd. Doç. Dr. Fatih DUMLUDAĞ**

**İSTANBUL 2009**

**T.C.**  
**MARMARA ÜNİVERSİTESİ**  
**FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ**

**KABUL ve ONAY BELGESİ**

Aydın Ömür Çelik' in “**Sol-gel Yöntemiyle Hazırlanan WO<sub>3</sub> Filmlerin Elektriksel ve Optiksel Özelliklerinin İncelenmesi**” başlıklı Lisansüstü tez çalışması, M.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulu' nun 01.06.2009 tarih ve 2009/13-07 sayılı kararı ile oluşturulan jüri tarafından Fizik Anabilim Dalı Fizik Programında YÜKSEK LİSANS Tezi olarak kabul edilmiştir.

Danışman : Doç. Dr. Ahmet Altındal, Marmara Üniversitesi  
1.Üye : Doç. Dr. Ayhan Mergen, Marmara Üniversitesi  
2.Üye : Yrd. Doç. Dr. Mustafa Özdemir, Marmara Üniversitesi  
Tezin Savunulduğu Tarih:26.06.2009

**ONAY**

M.Ü Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulu' nun ..... tarih ve ..... sayılı kararı ile Aydın Ömür Çelik ' in Fizik Anabilim Dalı Fizik Programında Y.Lisans (MSc.) derecesi alması onaylanmıştır.

Enstitüsü Müdürü

# TEŐEKKÖR

Tezimde emeđi geen deđerli hocalarım Do. Dr. Ahmet ALTINDAL ve Yrd. Do. Dr. Fatih DUMLUDAĐ' a teŐekkÖr ederim.

Tezi yaptđđım sÖre boyunca her zaman yanımda olan ve hibir zaman desteđini esirgemeyen aileme sonsuz teŐekkÖr ederim.

Mayıs, 2009

Aydın ÖmÖr elik

# İÇİNDEKİLER

	SAYFA
TEŞEKKÜRLER.....	i
İÇİNDEKİLER.....	ii
ÖZET.....	v
ABSTRACT.....	vi
YENİLİK BEYANI.....	vii
SEMBOLLER.....	viii
KISALTMALAR.....	x
ŞEKİLLER.....	xi
TABLolar.....	xiv
BÖLÜM I. GİRİŞ.....	1
I.1 GİRİŞ.....	1
BÖLÜM II. TEORİK BÖLÜM.....	10
II.1 WO <sub>3</sub> ' İN TEMEL ÖZELLİKLERİ.....	10
II.2 SOL-GEL YÖNTEMİ.....	10
II.2.1 Daldırma Yöntemi.....	12
II.3 DOĞRU AKIM (D.C.) VE ALTERNATİF AKIM (A.C.) İLETKENLİK MEKANİZMALARI.....	15
II.3.1 Doğru akım (d.c) İletkenlik Mekanizmaları.....	15
II.3.1.1 Tünelleme Modeli.....	16
II.3.1.2 Değişken Erimli Hoplama Modeli (VRH).....	17
II.3.2 Alternatif akım (a.c) İletkenlik Mekanizmaları.....	18
II.3.2.1 Frekansa Bağlı İletkenlik Kaynağı.....	19
II.3.2.2 Çift Yaklaşımda Durulma Zamanı.....	22
II.3.3 a.c. İletkenlik İçin Önerilen Modeller.....	23

II.3.3.1 a.c. Kuantum Mekaniksel Tünelleme (QMT) Nedeniyle Durulma.....	23
II.3.3.1.1 Elektronik Tünelleme.....	23
II.3.3.1.2 Küçük Polaron Tünellemesi (SPT).....	25
II.3.3.1.3 Büyük Polaron Tünellemesi (LPT).....	26
II.3.3.2 İlişkilendirilmiş Engel Hoplama (CBH).....	27
II.3.3.3 Reider Modeli.....	28
II.4 İNCE FİLM OPTİĞİ.....	29
II.4.1 Soğurucu Ortam.....	29
II.4.2 Saydam Bir Ortamda Işığın Yansıması ve Geçişi.....	30
II.4.3 Soğurucu Bir Ortamın Yüzeyinden Yansıma.....	32
II.4.4 Tek Bir Filmden Işığın Yansıması ve Geçişi (Toplama Metodu)....	33
II.4.5 Optik Bant Aralığı Hesaplanması.....	35
<b>BÖLÜM III. DENEYSEL ÇALIŞMALAR.....</b>	<b>36</b>
III.1 KULLANILAN KAPLAMA MALZEMESİ.....	36
III.2 İNTER DİJİTAL TRANSDUCER (IDT) VE YAPIMI.....	36
III.2.1 Altlık Malzemesinin Seçilmesi ve Temizlenmesi.....	37
III.2.2 Metal Kaplama İşlemi.....	39
III.2.3 Fotorezist Kaplama.....	39
III.2.4 Pozlama ve Banyo.....	39
III.2.5 Metal Aşındırma İşlemi.....	40
III.3 WO <sub>3</sub> İNCE FİMLERİN HAZIRLANMASI.....	40
III.4 YAPISAL KARAKTERİZASYON.....	42
III.5 ELEKTRİKSEL KARAKTERİZASYON.....	42
III.5.1 d.c. Elektriksel Karakterizasyon.....	43
III.5.2 a.c. Elektriksel Karakterizasyon.....	44
III.6 OPTİK ÖLÇÜMLER.....	44
<b>BÖLÜM IV. SONUÇLAR.....</b>	<b>46</b>
IV.1 KATKISIZ VE KATKILI WO <sub>3</sub> İNCE FİMLERİN YAPISAL	

<b>ANALİZLERİ.....</b>	<b>46</b>
<b>IV.2 KATKISIZ VE KATKILI WO<sub>3</sub> İNCE FİMLERİN ELEKTRİKSEL ÖZELLİKLERİ.....</b>	<b>47</b>
<b>IV.2.1 d.c ve a.c Ölçümlerinden Elde Edilen Bulgular.....</b>	<b>46</b>
<b>IV.2.1.1 d.c İletkenlik Ölçümlerinden Elde Edilen Bulgular.....</b>	<b>47</b>
<b>IV.2.1.2 a.c Ölçümlerden Elde Edile Bulgular.....</b>	<b>54</b>
<b>IV.3 KATKISIZ VE KATKILI WO<sub>3</sub> İNCE FİMLERİN OPTİK ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ.....</b>	<b>65</b>
<b>IV.3.1 Katkısız ve Katkılı WO<sub>3</sub> İnce Filmlerin Soğurma Ölçümlerinden     Elde Edilen Bulgular.....</b>	<b>65</b>
<b>IV.3.2 Katkısız ve Katkılı WO<sub>3</sub> İnce Filmlerin Geçirgenlik Ölçümlerinden     Elde Edilen Bulgular.....</b>	<b>69</b>
<b>BÖLÜM V. TARTIŞMA VE DEĞERLENDİRME.....</b>	<b>71</b>
<b>KAYNAKLAR.....</b>	<b>75</b>
<b>ÖZGEÇMİŞ.....</b>	<b>81</b>

## ÖZET

### SOL-GEL YÖNTEMİYLE HAZIRLANAN WO<sub>3</sub> FİMLERİN ELEKTRİKSEL VE OPTİK ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

Tungsten oksit (WO<sub>3</sub>), katot malzemesi olarak elektrokromik aygıtların yapımında birinci derece öneme sahip bir malzemedir ve bugüne kadar n-tip yarıiletkenler arasında görünür bölge ve kızıl ötesi bölgelerdeki elektrokromik özelliklerine bağlı olarak üzerinde en çok çalışılan elektrokromik malzeme olmuştur.

Bu Yüksek Lisans tez çalışmasında, başlangıç maddesi olarak tungsten hekza klorit (WCl<sub>6</sub>) kullanılarak katkısız ve değişik oranlarda Ti katkılanmış WO<sub>3</sub> ince filmler hazırlanmıştır. Filmler, cam altlıklar üzerine fotolitografi tekniği ile oluşturulmuş İnter dijital elektrot yapısı üzerine (IDT) hazırlanmıştır. Bu filmlerin, yapısal, elektriksel ve optik karakterizasyonları yapılmıştır. Filmlerin yapısal özellikleri XRD yöntemiyle belirlenmiş ve WO<sub>3</sub> filmlerin triklinik kristal yapıda oldukları görülmüştür. Filmlerin d.c ve a.c elektriksel özellikler 303-523 K sıcaklık aralığında incelenmiştir. Bu incelemeler sonucunda, gerek katkılı gerekse katkısız filmlerde d.c davranışın ısıl olarak uyarılmış taşıyıcılar tarafından belirlendiği sonucuna varılmıştır. Filmlerde a.c yük iletim mekanizmasının ise Reider tarafından önerilen site enerjilerini, engel yükseklğini siteler arasındaki uzaklığı da göz önünde bulunduran model ile açıklanabileceği sonucuna varılmıştır. Filmlerin optik özellikleri 285-800 nm dalga boyu aralığındaki soğurma ve geçirgenlik özellikleri ölçülmek suretiyle belirlenmiştir. Bu ölçümlerden, gerek katkılı gerekse katkısız filmlerde soğurmanın artan dalga boyu ile azalırken, geçirgenliğin artan dalga boyu ile arttığı belirlenmiştir.

## **Abstract**

### **INVESTIGATION OF ELECTRICAL AND OPTICAL PROPERTIES OF SOL-GEL DERIVED WO<sub>3</sub> THIN FILMS**

Tungsten oxide (WO<sub>3</sub>) has an important cathode material for fabricating electrochromic devices. Until now it has been extensively studied material among n-type semiconductors depending on electrochromic properties in the visible and infrared regions.

In this master thesis, undoped and Ti doped tungsten oxide (WO<sub>3</sub>) thin films were prepared by using tungsten hexa chloride (WCl<sub>6</sub>) as starting material. The films were deposited onto glass substrates which are photolithographically patterned on the interdigitated electrodes structures (IDT). Structural, electrical and optical characterizations of the films were performed. Crystal structure of the films was investigated by means of X-ray diffraction method. X-ray diffraction results showed that the crystal structure of the WO<sub>3</sub> films was triclinic. D.c and a.c electrical properties of the films were investigated in the temperature range of 303-523 K. These results reveal that d.c electrical behavior of undoped and doped films can be represented by thermally stimulated carriers. A.c charge transport mechanism of the films can be explained by the model proposed by Reider. This model suggest a hopping, based on a hopping over barriers, which includes both, a variation of site energies, barrier heights, and of intersite distances. Optical properties of the films were determined by means of absorption and transmission measurements between the wavelengths of 285-800 nm. It was observed from these measurements that, while absorption of undoped and doped films decreases with increase in wavelength transmission increases with increase in wavelength.

# **YENİLİK BEYANI**

## **SOL-GEL YÖNTEMİYLE HAZIRLANAN WO<sub>3</sub> FİLMLERİN ELEKTRİKSEL VE OPTİK ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ**

Bu Yüksek Lisans Tez çalışmasının orijinal noktasını IDT üzerine Sol-gel daldırma yöntemiyle başlangıç maddesi Tungsten heksa klorit (WCl<sub>6</sub>) kullanılarak kaplanan WO<sub>3</sub> ince filmlerin elektriksel karakterizasyonu (doğru akım ve alternatif akım) oluşturmaktadır. Yapılan literatür arařtırmalarında, geniş bir sıcaklık aralığında elektriksel karakterizasyonun yapıldığı ve yük iletim mekanizmalarının tespit edildiđi bir çalışmaya rastlanmamıştır.

**Mayıs,2009**

**Aydın Ömür Çelik**

## SEMBOLLER

$h$	: Filmin kalınlığı
$\eta$	: Solün Viskozitesi
$u$	: altlık malzemesinin sol içine daldırılma hızı
$\rho$	: Solün yoğunluğu
$\chi_{Lv}$	: Sıvı buhar gerilim
$g$	: Yerçekimi sabiti
$\Delta E$	: İki durum arasındaki enerji farkı
$E_n$	: n. enerji seviyesi
$c$	: Işık hızı
$\lambda$	: Dalga boyu
$\theta$	: Örgüye gelen X-ışınları ile örgü yüzeyi arasındaki açı
$d_B$	: Kristal atomları arasındaki mesafe
$n_B$	: Yansıma derecesi
$\sigma_{d.c}$	: d.c iletkenlik
$n$	: İletim elektronlarının konsantrasyonu
$\tau_F$	: Fermi yüzeyindeki bir elektron için ortalama iki çarpışma arasında geçen serbest süre
$m^*$	: Elektronun etkin kütlesi
$v_F$	: Fermi hızı
$g(E_F)$	: Fermi yüzeyindeki durum yoğunluğu
$k_B$	: Boltzman sabiti
$r$	: Hoplama uzaklığı
$\sigma_0$	: Yüksek sıcaklık limiti
$T_0$	: Elektronik dalga fonksiyonlarının yerleşmesinin derecesi ile ilişkili bir büyüklük
$K$	: 1, 2 ve 3 boyutlu sistemler için sırasıyla 1/2, 1/3 ve 1/4 değerlerini alabilen ortamın boyutunu belirleyen bir parametredir.
$\beta$	: Dalga fonksiyonunun azalma oranının tersi
$N(E_F)$	: Fermi enerji seviyelerindeki durum yoğunluğu

$E_A$	: Aktivasyon enerjisi
$\epsilon_0$	: Serbest uzayın dielektrik sabiti
$\chi(\omega)$	: Dielektrik duygunluk
$\tau$	: Durulma zamanı
$\alpha$	: Bir site çiftinin polarizabilitesi
$n(\tau)$	: Durulma zamanına bağlı dağılım fonksiyonu
$W$	: Bariyer yüksekliği
$R$	: İki site arasındaki uzaklık
$\zeta$	: Keyfi değişken
$B$	: Etkileşmelerin detaylarını içeren bir terim
$R_\omega$	: Karakteristik tünelleme uzaklığı
$W_p$	: Polaron enerjisi
$\omega_0$	: Örgü bozukluklarını tanımlayan titreşim frekansı
$r_0$	: Polaron yarıçapı
$W_H$	: Polaron transferi aktivasyon enerjisi
$n$	: Kırma indisi
$\mu_0$	: Serbest uzayın magnetik geçirgenliği
$S$	: Poynting vektörü
$n_0$	: Ortamın kırma indisi
$n_1$	: Filmin kırma indisi
$n_2$	: Altlık malzemesinin kırma indisi
$d$	: Elektrotlar arası mesafe
$l_e$	: Elektronların örtüşme uzunluğu
$n_p$	: Parmak sayısı
$J$	: Akım yoğunluğu
$E$	: Elektrik alan
$I$	: Ölçülen akım
$A$	: Elektrotlar arasının kesit alanı
$h_e$	: Elektrot kalınlığı
$V$	: Uygulanan gerilim değeridir.
$A_\lambda$	: Soğurma
$\alpha$	: Soğurma Katsayısı

## KISALTMALAR

<b>VRH</b>	: Değişken Erimli Hoplama
<b>QMT</b>	: Kuantum Mekaniksel Tünelleme
<b>SPT</b>	: Küçük Polaron Tünellemesi
<b>LPT</b>	: Büyük Polaron Tünellemesi
<b>CBH</b>	: İlişkilendirilmiş Engel Hoplama
<b>IDT</b>	: İnter Dijital Transduser
<b>XRD</b>	: X-Işın Spektroskopisi
<b>CPE</b>	: Sabit faz elemanı
<b>AA</b>	: Asetik asit
<b>DI</b>	: Deiyonize su
<b>EC</b>	: Elektrokromizm
<b>EM dalga</b>	: Elektromagnetik dalga
<b>AR</b>	: Anti-reflective
<b>ITO</b>	: Indium tin oxide
<b>UV</b>	: Mor Ötesi

# ŞEKİLLER

## SAYFA NO

Şekil II.1 WO <sub>3</sub> ' ün kristal yapısı.....	10
Şekil II.2 Daldırma yöntemi aşamaları.....	13
Şekil II.3 Eley tarafından öne sürülen tünelleme modeli.....	16
Şekil II.4 Bir filme gelen ışığın çoklu yansıma ve geçişleri.....	34
Şekil III.1 İnter dijital transduser yapısı.....	37
Şekil III.2 Çözelti ve ince film hazırlanmasının akış diyagramı.....	41
Şekil III.3 Titanyum katkılı tungsten oksit çözelti hazırlanmasının akış diyagramı.....	41
Şekil III.4 Daldırarak ince film kaplama deney düzeneği.....	42
Şekil III.5 d.c. ve a.c. ölçümlerinde kullanılan deneysel düzenek.....	43
Şekil III.6 UV-VIS spektrometresinin yapısı.....	45
Şekil IV.1. Katkısız WO <sub>3</sub> ince filmin XRD spektrumu.....	46
Şekil IV.2 753 K' de tavllanmış katkısız WO <sub>3</sub> ince filmin 303 ve 523 K sıcaklıklarındaki (I-V) grafiği.....	48
Şekil IV.3 %1.7 Ti Katkılı WO <sub>3</sub> ince filmin 303 ve 523 K sıcaklıklarındaki (I-V) grafiği.....	49
Şekil IV.4 Katkısız WO <sub>3</sub> ince filmlerin d.c iletkenliğinin sıcaklıkla değişimi.....	50
Şekil IV.5 Ti Katkılı WO <sub>3</sub> ince filmlerin d.c iletkenliğinin sıcaklıkla değişimi.....	51
Şekil IV.6 Katkısız WO <sub>3</sub> ince filmlerin aktivasyon enerjisinin tavlama sıcaklığına bağlı değişimi.....	52
Şekil IV.7 Ti Katkılı WO <sub>3</sub> ince filmlerin aktivasyon enerjisinin katkı oranına bağlı değişimi.....	52
Şekil IV.8 Katkısız WO <sub>3</sub> ince filmlerin bazı sıcaklılardaki d.c iletkenliğinin tavlama sıcaklığına bağlı değişimi.....	53
Şekil IV.9 Ti Katkılı WO <sub>3</sub> ince filmlerin bazı sıcaklıklardaki d.c iletkenliğinin tavlama sıcaklığına bağlı değişimi.....	54
Şekil IV.10 653 K' de tavllanmış katkısız WO <sub>3</sub> filmi için farklı sıcaklıklarda a.c	

iletkenliğin frekansla değişimi.....	55
<b>Şekil IV.11</b> Farklı sıcaklıklarda tavlanan katkısız WO <sub>3</sub> filmlerde, frekansın üssü olan s' nin sıcaklıkla değişimi.....	56
<b>Şekil IV.12</b> Farklı sıcaklıklarda tavlanan katkısız WO <sub>3</sub> filmlerde, sabit (50 kHz) frekanstaki a.c iletkenliğin sıcaklıkla değişimi.....	57
<b>Şekil IV.13</b> % 6.8 Ti katkılı WO <sub>3</sub> filmi için farklı sıcaklıklardaki a.c iletkenliğin frekansla değişimi.....	57
<b>Şekil IV.14</b> Farklı oranlarda Ti katkılanan WO <sub>3</sub> filmlerde frekansın üssü olan s' nin katkı oranına bağlı değişimi .....	58
<b>Şekil IV.15</b> Farklı oranlarda Ti katkılanmış WO <sub>3</sub> filmlerde sabit (50 kHz) frekanstaki a.c iletkenliğin sıcaklığa bağlılığı.....	59
<b>Şekil IV.16</b> 703 K' de tavllanmış katkısız WO <sub>3</sub> ince filmin farklı sıcaklıklardaki empedansının sanal kısmının, gerçek kısmına bağlı değişimi .....	60
<b>Şekil IV.17</b> 703 K' de tavlanan katkısız WO <sub>3</sub> ince filmin farklı sıcaklıklarda frekansa bağlı olarak kapasite değerlerinin değişimi.....	61
<b>Şekil IV.18</b> % 13.6 Ti katkılı WO <sub>3</sub> ince filmin, farklı sıcaklıklarda empedansının sanal kısmının, gerçek kısmına bağlı değişimi .....	62
<b>Şekil IV.19</b> % 3.4 Ti katkılı filmin farklı sıcaklıklarda frekansa bağlı olarak ölçülen kapasite değerleri.....	63
<b>Şekil IV.20</b> 653 K' de tavllanmış katkısız WO <sub>3</sub> ince filmin farklı sıcaklıklardaki empedansının frekansa bağlı değişimi .....	64
<b>Şekil IV.21</b> % 3.4 Ti Katkılı WO <sub>3</sub> ince filmin, farklı sıcaklıklardaki empedansının frekansa bağlı değişimi.....	65
<b>Şekil IV.22</b> Farklı sıcaklıklarda tavllanmış katkısız WO <sub>3</sub> ince filmlerde soğurmanın dalga boyuna bağlı değişimi.....	66
<b>Şekil IV.23</b> Farklı oranlarda Ti katkılanan WO <sub>3</sub> ince filmlerde soğurmanın dalga boyuna bağlı değişimi.....	67
<b>Şekil IV.24</b> Farklı sıcaklıklarda tavllanmış, katkısız WO <sub>3</sub> ince filmlerin $hv'$ ye bağlı $(\alpha hv)^{1/2}$ grafiği.....	67
<b>Şekil IV.25</b> Farklı oranlarda Ti katkılanmış WO <sub>3</sub> ince filmlerin $hv'$ ye bağlı	

$(\alpha h\nu)^{1/2}$ grafiđi.....	68
<b>Şekil IV.26</b> Farklı sıcaklıklarda tavllanmış katkısız WO <sub>3</sub> ince filmlerde geçirgenliđin dalga boyuna bađlı deđişimi.....	69
<b>Şekil IV.27</b> Farklı oranlarda Ti katkılanan WO <sub>3</sub> ince filmlerde, geçirgenliđin dalga boyuna bađlı deđişimi.....	70

# TABLolar

## SAYFA NO

<b>Tablo II.1</b> Sol-gel yönteminin avantajları ve dezavantajları.....	12
<b>Tablo VI.1</b> Farklı sıcaklıklarda tavlanan katkısız ve farklı oranlarda Ti katkılanan WO <sub>3</sub> ince filmlerin optik bant aralığı değerleri.....	68
<b>Tablo VI.2</b> Farklı sıcaklıklarda tavlanan katkısız ve farklı oranlarda Ti katkılanan WO <sub>3</sub> ince filmlerin kırma indisi ve film kalınlığı değerleri.....	69

# BÖLÜM I

## I.1 Giriş

Günümüzde ince film alanında, alışılmışın dışında fiziksel özelliklere sahip filmlerin geliştirilmesi ve geliştirilen bu filmlerin fiziksel karakterizasyonlarının (elektriksel, optik, manyetik, vb) yapılarak potansiyel uygulama alanlarının belirlenmesi çalışmaları yoğun bir şekilde sürmektedir. İnce film yapıları genelde diyotlarda ve koruyucu tabakalarda [1], güneş kolektörleri ve güneş pillerinde [2], yansıtıcı tabakalarda [3], saydam iletken tabakalarda [4], girişim filtrelerinde [5], elektrokromik, fotokromik, termokromik devre elemanlarında ve teknolojik açıdan önemli alanlarda [6,7] kullanılır. Ayrıca gaz sensörlerinde [8] ve fotovoltaik elemanlarda da [9] kullanılmaktadır.

Optik olarak aktif olan ince film kaplamaları, dış koşullardaki değişim sonucu bazı özelliklerini değiştirebilirler. Hem organik hem de inorganik olabilen bu malzeme grubu kromojenik olarak adlandırılmaktadır. Bir filmin üzerine ışık düşmesiyle filmin renk değiştirmesi olayı fotokromizm, ısıya bağlı olarak filmlerin renklerindeki değişim termokromizm, uygulanan elektrik alanın etkisiyle renklerini değiştirmesi ise elektrokromizm olarak bilinir. Bu süreçlerin hepsi tersinir olarak gerçekleşmektedir.

Işığı soğurma, geçirme, yansıtma ve kırma özelliği kontrol edilebilen maddeler uygulama alanlarının çok geniş olması nedeniyle ilgi çekmektedirler. Bu aygıtların optik davranışları ışık yoğunluğunun, sıcaklığın, gazların ve uygulanan dış elektrik alanın fonksiyonu olarak kontrol edilebilmektedir. Optik olarak aktif filmler arabalarda, güneş gözlüklerinde, araba aynalarında, detektörlerde, yol ve işaret levhaları gibi değişik yansıtıcı sistemlerde kullanılmaktadır [10]. Birçok geçiş metalinin oksit filmlerinin elektrokromik özellik gösterdiği bilinmektedir. Bu tür malzemeler gerek ince film gerekse toz halde, azot oksit [11], hidrojen [12], karbon monoksit [13] ve hidrojen sülfür [14] gibi gazların algılanmasından akıllı pencerelerin [15] yapımına kadar oldukça geniş bir alanda uygulama bulmaktadır.

Bu çalışmaya da konu olan tungsten oksit( $WO_3$ ), katot malzemesi olarak elektrokromik aygıtların yapımında birinci derece öneme sahip bir malzemedir ve bugüne kadar n-tip yarıiletkenler arasında görünür bölge ve kızıl ötesi bölgelerdeki

elektrokromik özelliklerine bağlı olarak üzerinde en çok üzerinde çalışılan elektrokromik malzeme olmuştur [16]. Ayrıca yüksek renklilik verimi ve düşük maliyetli oluşu tungsten oksiti tercih nedeni yapmaktadır. Tungsten oksit filmler termokromizm, fotokromizm, elektrokromizm gibi çeşitli tiplerde kromojenik özellikler göstermekte olup ek olarak bazı tersinir olmayan renklenme süreçleri de gösterirler. Bundan dolayı, kromojenik maddelerden daha detaylı çalışılmışlardır. Optik olarak aktif bir tabaka olan tungsten oksit diğer elektrokromik özellik gösteren metal oksit malzemelerden fiziksel ve kimyasal olarak farklı olduğundan dolayı daha çok çalışılan bir malzeme olmuştur. Tungsten oksidin değişik tipte kristal yapıları sahip ince filmleri ve tozları farklı alanlarda kullanılmaktadır. Elektrokromik filmlerde kristal ve amorf yapılı tungsten oksit malzemelerin ikisi de kullanılmaktadır. Renklenme verimi, döngüsel dayanıklılık, renklenme-beyazlama süreci kinetiği, d.c. ve a.c. elektriksel davranışları, optik özellikleri filmin yapısına, morfolojik özelliklerine ve katkı durumlarına bağlıdır. Amorf filmler görünür bölgedeki iletim modülasyon aygıtları uygulamalarında kullanılırken kristal filmler ise spektrumun kızıl ötesine yakın bölgelerdeki yansıtma özelliklerinin daha iyi olmasına bağlı olarak ısı modülasyon aygıtlarında kullanılır [17-20]. Kristal ve poli kristal tungsten oksit filmler özellikle gaz sensörü uygulamalarında kullanılmaktadır. Gaz sensörü olarak kullanılacak tungsten oksit ince filmlerin elektriksel özelliklerinin belirlenmesi, yüzey morfolojisinin belirlenmesi kadar gereklidir. Tungsten oksit ince filmler, ısı buharlaştırma [21], sputtering [22], kimyasal buhar yığıma [23] gibi değişik yöntemlerle hazırlanabilmektedir. Tungsten oksit filmler ayrıca, sprey yığıma [24], sol-gel [25] ve elektrodepozisyon gibi yöntemlerle de hazırlanabilmektedir.

TiO<sub>2</sub> filmler anti-reflective (AR) özellikleri, yüksek mekanik ve kimyasal kararlılığı ve görünür ışık spektrumundaki yüksek geçirgenlik özellikleri dolayısıyla metal oksit malzemeler arasında en çok çalışılanlardan birisidir [26-27]. Fotovoltaik aygıtların verimini artırdığından dolayı AR filmler güneş pillerinde sıkça kullanılmaktadır. TiO<sub>2</sub>, AR özelliği ile ön plana çıkmıştır. TiO<sub>2</sub> ince filmler elektrokromik özellikte göstermesine rağmen görece uzun renklenme süresi ve düşük verimi dolayısıyla bu özelliği üstünde çalışılmamaktadır [28]. Yukarıda sayılan TiO<sub>2</sub>' in anti-reflective özelliklerinin WO<sub>3</sub> ince film üzerindeki etkilerini incelemek amacıyla bu malzeme katkı malzemesi olarak kullanılmıştır. Sol-gel yöntemiyle hazırlanan WO<sub>3</sub> - TiO<sub>2</sub> kompozit filmlerin optik özelliklerinin incelendiği çalışmalar

sınırlı sayıdadır. Bizim yaptığımız arařtırmalara gre bu yapıların elektriksel zelliklerinin incelendiđi alıřmalara rastlamadık.

Son yıllarda yapılan alıřmalarda  $TiO_2$  katkılanan elektrokromik  $WO_3$  filmlerin, tersinirliđinin arttıđı gzlenmiř buna karřın ise renklenme verimi dřtđ grlmřtir [27-29].  $WO_3 - TiO_2$  kompozit filmler, zellikle elektrokromik sistemler ve sensrler gibi bir ok uygulamada kullanılmaktadır [27]. Hashimoto ve Granqvist' in yaptıđı alıřmada [30], termal buharlařtırılma yntemiyle kaplanan tungsten oksit filmlerin elektrokromik kararlılıđının, tungsten oksit filmin altına %10-15 mol  $TiO_2$  kaplanmasıyla yaklařık 5 kat artırdıđını rapor etmiřlerdir.

Bu alıřmada kullandıđımız sol-gel yntemi, diđer ince film hazırlama metotlarıyla karřılařtırıldıđında bazı avantajlara sahip olduđundan tungsten oksit ince film yapımında yaygın olarak kullanılan bir metottur. Ucuza mal olması, zel kořullar gerektirmemesi, farklı bařlangı malzemelerinin kullanılabilmesi, homojen ince filmlerin elde edilebilmesi, farklı zellik ve boyutlardaki altlıklara kaplanabilmesi, tavlama sıcaklıđı sol-gel ynteminin sađladıđı avantajlar arasındadır [31]. Bu metotta, zelti konsantrasyonu, jel oluřum sresi, tavlama sıcaklıđı ve sresi, deđiřik metallere katkılanabilmesi gibi parametrelerin deđiřtirilerek farklı kalınlık ve fiziksel zelliklerde ince film elde etmek mmkn olmaktadır. İnce film kırma indisi ve film kalınlıđının kontrol edilmesi, optik ve elektriksel uygulamalar iin elveriřli materyali oluřurmada nemlidir [32]. Sol-gel yntemiyle hazırlanan tungsten oksit ince filmler genellikle daldırma ve dndrme yntemiyle kaplanmaktadır.

Bugne kadar, sol-gel yntemiyle hazırlanan tungsten oksit ince filmlerin optik zellikleri, filmlerin katkı tr ve miktarı, film kalınlıđı, kullanılan bařlangı malzemesi ve tavlama sıcaklıđı gibi parametrelere bađlı olarak ayrıntılı bir biimde incelenmiřtir [22-25,31-32]. Fakat tungsten oksit filmlerin elektriksel zellikleri aynı yođunlukta incelenmemiřtir. Daldırma yntemiyle kaplanmış tungsten oksit ince filmlerin yapısal zelliklerine bađlı olarak elektriksel ve optik zelliklerinin incelendiđi alıřmalar daha da azdır.

Filmlerin dođru akım elektriksel zellikleri, her bir sıcaklık iin akım-gerilim karakteristiklerinin llmesi ile belirlenir. Alternatif akım zelliklerinin belirlenmesinde ise yaygın olarak empedans spektroskopisi yntemi kullanılır. Empedans spektroskopisi, frekansın fonksiyonu olarak iletkenlik, kapasite, empedansın gerek ve sanal kısımları vb. parametrelerin llmesi esasına dayanır.

Bu yöntemle yük iletim mekanizması, kimyasal reaksiyon mekanizması, dipol davranış ve dielektrik sabiti hakkında bilgi edinmek mümkündür [33].

Bugüne kadar WO<sub>3</sub> ile ilgili yapılan çalışmalardan bazıları aşağıdaki açıklanmıştır.

A. Cremonesi ve arkadaşlarının yaptıkları çalışmada (2008), sol-gel daldırma yöntemiyle kaplanan WO<sub>3</sub> ince filmlerin elektrokromik uygulamaları incelenmiştir. Bu çalışmada yüksek tavlama ısılarında tavlama tungsten oksit filmlerinde (300 °C), tavlama sırasında filme enjekte edilen çok miktarda Na<sup>+</sup> iyonuna bağlı olarak, daha düşük elektrokromik verim gösterdiği bulunmuştur [34].

Nilgün Özerin yaptığı sol-gel döndürme yöntemiyle kaplanan amorf WO<sub>3</sub> ince filmleri optik özelliklerini inceledikleri başka bir çalışmada (1997) ise, kırma indisi ve elektrokromik renklenmesinin çözeltinin kimyasına bağlı olduğu bulunmuştur. Filmlerin görünür bölgede düşük soğurma ve yüksek geçirgenliklerinin olduğu gözlenmiştir. Kırma indisi  $n = 1.96$ , söndürme katsayısı  $k = 5.6 \times 10^{-3}$  olarak bulunmuştur [35].

Esra Özkan Zaim ve Fatma Tepehan'ın sol-gel döndürme yöntemiyle kaplanan gözenekli WO<sub>3</sub> ince filmlerin yapısal ve optiksel özelliklerini incelemek üzere yaptıkları bir çalışmada (2002) ise, tungsten oksit filmin 350 °C tavlama sıcaklığında kristalleşmeye başladığı gözlenmiş ve yapılan X-ışınları kırınımı analizlerinde ise  $2\theta$  değeri için sırasıyla üç pik tanımlanmıştır bunlar : 23.14°, 23.64° ve 24.36°'dir. Bu pikler triklinik yapıya karşılık geldiği sırasıyla (002), (020) ve (200) kırınımını gösterdiği bulunmuştur. 550 nm dalga boyu değerinde kırma indisini  $n = 2.00$ , 633 nm dalga boyunda ise  $n = 1.97$  olduğunu bulmuştur. Gözenekli yapıların kırma indisi değerlerini azalttığını bulmuştur. 550nm dalga boyunda söndürme katsayısı  $k = 8.8 \times 10^{-5}$  633 nm dalga boyunda ise  $k = 4.11 \times 10^{-3}$  olarak bulunmuştur [36].

Esra Özkan Zaim ve F.Z Tepehan tarafından yapılan başka bir çalışmada (2001) ise, döndürme yöntemiyle kaplanan 6 ve 7 kat kaplanmış tungsten oksit ince filmlerin optik özellikleri 200-1100 nm dalga boyunda incelemiş ve optik geçirgenliğin katman kalınlığı arttıkça düştüğünü bulmuştur. Filmlerin optik geçirgenliği 300 nm-400 nm aralığında %0'dan %60'a arttığı gözlenmiştir, 350 nm civarında geçirgenlikte hızla bir artış görülmüştür. 400-1100 nm aralığında ise %60'tan %80 arttığı görülmüştür. Ayrıca kaplama sayısının artmasının, filmlerin yüzeyindeki pürüzleri daha da arttırdığı görülmüştür. Filmlerin kırma indisleri ve söndürme katsayıları filmin

kimyasal yapısına ve filmin kalınlığına bağılı olduğu bulunmuştur. 6 kat kaplanmış tungsten oksit film için 550 nm dalga boyu 580 nm kalınlıkta  $n = 1.77$  ve  $k = 1.395 \times 10^{-3}$ , 7 kat kaplanmış tungsten oksit film için 550 nm dalga boyu 675 nm kalınlıkta  $n = 1.89$  ve  $k = 0.984 \times 10^{-3}$  olarak bulunmuştur. Optik özellikler ve yapısal özellikler çözeltinin kimyasının değişimiyle kolayca kontrol edilebildiği belirlenerek optik bant aralığı  $3.10 \pm 0.12$  eV olarak bulunmuştur [37].

D. Saygın ve arkadaşlarının sol-gel yöntemi ve döndürme tekniği ile kaplanmış  $WO_3$  ince filmlerin yapısal ve optik özelliklerini inceledikleri bir çalışmada (2008) ise, 250 ve 400 °C tavlama sıcaklıklarında ince filmlerin amorf yapıda kaldıkları gözlenmiştir. Optik ölçümler 300-1000 nm arasında yapılmış olup 550 nm dalga boyunda  $n = 1.96 \pm 0.02$  (250 °C),  $n = 1.94 \pm 0.08$  (400 °C) olarak bulunmuştur. Optik geçirgenlik 300-400 nm dalga boyu aralığında %30' dan %70'e arttığı ve bu aralıkta optik yansıtmanın ise %10' dan %20' ye yükseldiği görülmüştür. 400-1000 nm arasında ise optik geçirgenliğin %70' ten %80' e yükseldiği görülmüş ve optik yansıtmanında %20' den %15' e düştüğü gözlenmiştir. 550nm' de optik geçirgenlik %73 olarak bulunmuştur [38].

Lay Gaik Teoh ve arkadaşlarının yaptıkları çalışmada (2005) ise, sol-gel yöntemiyle kaplanan gözenekli tungsten oksit filmlerin yapısal ve optiksel özellikleri incelenmiştir. Yaptıkları çalışmadaki gözenekli tungsten oksit filmlerin oda sıcaklığı ve 330 °C ısı aralığına monoklinik yapıda olduklarını bulmuşlardır. Ayrıca yaptıkları bu çalışmada gözenekli tungsten oksit ince filmin optik bant aralığının 3.5 eV olduğunu ve buna bağılı olarak dalga boyuna karşı soğurma grafiğini inceleyerek 360nm' nin altında soğurmada artış gözlemlemişlerdir. Ayrıca gözenekli  $WO_3$  ince filmlerin UV ışık etkisi altında fotokromik özellik sergilediklerini bulmuşlardır [39].

P.K Biswas ve arkadaşlarının yaptıkları çalışmada (2003), sol-gel daldırma yöntemiyle 500 nm kalınlığında kapladıkları  $WO_3$  ince filmlerin optik özellikleri incelenmiştir. 400-800 nm arasında yaptıkları incelemelerde optik geçirgenliğin renklenme aşamasında %20-%30 aralığında olduğu, beyazlama aşamasında ise %60-70 olduğunu gözlemlemişlerdir [40].

Esra Zaim Özkan'ın yaptığı çalışmada ise kaplama kalınlığı azaldıkça girişim etkisinin azaldığı görülmüştür [10].

Kai Huang ve arkadaşlarının sol-gel daldırma yöntemiyle kaplanan  $WO_3$  ince filmlerin döngüsel verimini ve uzun süreli döngüsel ölçümlerin meydana getirdiği bozunmayı inceledikleri çalışmada (2007) ise, optik yapısal ve kimyasal özelliklerin

renklenme ve beyazlama döngüsünün bir fonksiyonu olarak ölçmüşlerdir. Filmler renklenme ve beyazlama süreçlerinde 1000 döngü boyunca kararlı bir yapı gösterdiklerini bulmuşlardır. Filmlerin kristal yapıları incelendiğinde ise, 2000 döngüden sonra yapıda çeşitli bozulmalar, çatlaklar görmüşlerdir. Uzun süreli döngüsel ölçümlerin sonucu elektrokromik yapının bozulduğunu bulmuşlardır. Bu bozulmanın ise yüzey ve kristal yapının bozulmasıyla açıklamışlardır [41].

R. Solarska ve arkadaşlarının yaptıkları çalışmada (2006),  $H_2WO_4$  (tungstik asit) başlangıç maddesi kullanarak sol-gel yöntemiyle kaplanan  $WO_3$  ince filmlere organik bileşikler katkılayarak başlangıç malzemesinin ve tavlama sıcaklığının etkisini incelemiştir. Daha iyi fotoelektrokimyasal özelliklere sahip film elde etmek için, filmin kristal yapısının monoklinik olması gerektiğini göstermişlerdir [42].

C.O Avellenado ve arkadaşlarının yaptıkları çalışmada (2003), sol-gel daldırma yöntemiyle kaplanan ve 100-150 °C sıcaklık aralığında tavlanan tungsten oksit filmlerin üstüne ışık düşürerek ve elektrik alan uygulayarak, bunların optik geçirgenlikleri incelenmiştir. 100-150 °C aralığında tavlanan filmlerin amorf yapıda olduklarını tespit etmişlerdir. Kristalleşmenin 450 °C’ de başladığını ve ortaya çıkan piklerin 23 civarında (200), (020) ve (002) kırınımalarını gösterdiklerini tespit etmişlerdir. Filmlerin fotokromik özelliğini incelemek için 300-2100 nm dalga boyu aralığında ölçümler alınmıştır. Filmlerin optik özellikleri 633 nm dalga boyunda kıyaslanmıştır.  $WO_3$  ince filmler için, renklenme-beyazlama süreci arasındaki optik geçirgenlik farkı  $\Delta T$  ile gösterilirse, 415 nm kalınlıktaki filmin 150 °C’ deki  $\Delta T$  değeri 54 % , 410 nm kalınlıktaki filmin 120 °C ‘ deki Ti katkılı  $WO_3$  ince filmlerin  $\Delta T$  değeri 43.39 % , 520 nm kalınlıkta ve 150 °C’ deki filmin  $\Delta T$  değeri 43.73 % , 550 nm kalınlıktaki 120 °C ‘ deki Ti katkılı  $WO_3$  ince filmlerin  $\Delta T$  değerini ise 64.49 % olarak bulmuşlardır. Ayrıca fotokromik etkinin tüm amorf filmler üzerinde gözlemlendiğini vurgulamışlardır [43].

A. Cremonesi ve arkadaşlarının yaptıkları başka bir çalışmada (2004), sol-gel daldırma yöntemiyle kaplanan ve ve bir alkol çözeltisi olan poli etilen glikol (PEG) katkılanarak yapılan ince filmlerin elektrokromik özellikleri incelenmiştir. Elde edilen filmlerin sub-stoichiometric fazda olduğu bulunmuş ayrıca sulu fazda görülmüştür. Bu özellikler, optik durumun dengeli olmasını sağladığını ve elektrokromik süreç boyunca yüksek yük transferine izin veren elektrokromik özellikleri arttırdığını bulmuşlardır. 500 °C’ de tavlanan örnekler daha düşük

sıcaklıklarda tavlanan örnekler ile karşılaştırıldığında verimlerinin, Na<sup>+</sup> iyonlarının soğurulmasına bağlı olarak daha düşük oldukları bulunmuştur [44].

A. Patra ve arkadaşlarının sol-gel daldırma yöntemiyle elektrokromik tungsten oksit ince film kaplayıp bunların yapısal ve optiksel özelliklerini inceledikleri bir çalışmada (2004) ise, tavlama ısıları 60-400 °C arasında değişmekle birlikte en iyi fotokromik etki 200 °C’ de 1 saat süreyle tavladıkları amorf filmde gözlemlenmiştir. Renklenme-beyazlama etkisini gözlemleyebilmek için gerekli tavlama ısısında tavlansak elde edilen filmler ortorombik kristal fazda oldukları ve temel olarak W-O-W şeklinde bağ yapısına sahip olduğunu bulmuşlardır. X-ışınları kırınımı incelemeleri sonucunda 60°C’ de tavlansak örneklerde, piklerin şiddetinin çok düşük olması sebebiyle tam kristalleşme olmadığını, 400 °C’ de tavlansak örneklerde ise açık bir şekilde kristalleşme olduğunu ve kristal fazının ortorombik olduğunu gözlenmiştir [45].

S.A Agnihotry ve arkadaşların yaptıkları çalışmada (2006) ise, sol-gel daldırma yöntemiyle kaplanan tungsten oksit ince filmlerin renklenme-beyazlama döngüsü sonucu optik özelliklerinde meydana gelen değişimleri incelenmiştir. Oksidasyon reaksiyonu sırasında eş zamanlı değişimlerin, filmlerin beyazlamasına neden olduğunu ve optik geçirgenlik spektrumunun 300nm> $\lambda$ >800nm aralığında tüm filmlerde sistematik bir şekilde azaldığını gözlemlenmiştir. Ayrıca indirgenme reaksiyonunun da optik geçirgenlikte değişmeye neden olduğunu bulmuşlardır. 5 beyazlama döngüsünden sonra geçirgenliğin yaklaşık % 17 değiştiğini, 5 renklenme döngüsünden sonra ise geçirgenliğin %1.2 değiştiğini bulmuşlardır. İnceledikleri filmlerin ilk 5 döngüdeki ideal ve tersinir olmayan özellikler sergilediklerini ve bunlara eşlik eden renklenme veriminde düşme meydana geldiğini bulmuşlardır [46].

K.J. Patel ve arkadaşlarının yaptıkları bir çalışmada başlangıç maddesi olarak WO<sub>3</sub> tozu kullanmışlardır. Isıl buharlaştırma yöntemiyle kapladıkları WO<sub>3</sub> ince filmlerin yapısal, elektriksel ve optik özelliklerini (2009) incelemişlerdir. İnce filmlerin 450 °C’ nin altındaki sıcaklıklarda amorf yapıda, bu sıcaklığın üstünde ise tozların kristalleşmeye başladıklarını gözlemlenmiştir. Kristal piklerinin  $2\theta = 23.6^\circ$  derece civarında olduğunu, düzlemler arası mesafe  $d = 3.7605\text{Å}$  ve (0 0 2) kırınımını gösterdiğini bulmuşlardır. Tavlama sıcaklığı arttıkça yüzeydeki pürüzlülüğün arttığı, taşıyıcı konsantrasyonu ve hareketliliği artarken direncin önemli derecede düştüğünü gözlemlenmiştir. Filmlerin saydamlığının ve optik bant aralığının, artan tavlama sıcaklığıyla düştüğünü gözlemlenmiştir. Optik geçirgenlik 350 nm civarında, o

noktadaki temel soğurma etkisine bağlı olarak keskin bir düşüş gösterdiğini bulmuşlardır. Oda sıcaklığında örneğin optik bant enerjisi 3.38 eV, 3500 eV tavlama sıcaklığında örneğin optik bant enerjisi ise 3.05 eV olarak bulunmuştur [20].

A. Ömür Çelik ve arkadaşlarının yaptıkları çalışmada (2009) ise, sol-gel daldırma yöntemiyle kapladıkları ince filmlerin optik ve elektriksel özelliklerini incelemişlerdir. 293-484 K arası yapılan elektriksel ölçümler sonucu I-V karakteristiğinin ohmik yapıda olduğu bulunmuştur. 303 K’ de d.c iletkenlik  $\sigma_{d.c} = 14 \times 10^{-9}$  s/cm ve aktivasyon enerjisi ise 1.15 eV olarak bulunmuşlardır. Optik özelliklerinin incelenmesi sonucu ise maksimum soğurmanın 330 nm’ de gözlemlendiği bulunmuştur [47].

Bu çalışmada, başlangıç maddesi olarak tungsten heksa klorit ( $WCl_6$ ) kullanılarak katkı ve katkısız  $WO_3$  ince filmler cam altlıklar üzerine hazırlanmıştır. Katkı maddesi titanyum (Ti) olup ilk önce  $TiO_2$  çözeltisi hazırlanmıştır daha sonra farklı molar konsantrasyonlarda standart sol katılarak katkı filmler hazırlanmıştır.

Çözeltiler sol-gel tekniği ile hazırlanmış ve cam üzerine yapılmış olan inter dijital transduser (IDT) üzerine daldırma (dip-coating) yöntemi ile kaplanmıştır. Hazırlanan  $WO_3$  ince filmler tavlama sıcaklığına ve Ti katkısı miktarına bağlı olarak yapısal, doğru akım (d.c) ve alternatif akım (a.c) elektriksel özellikleri ile optik özellikleri (soğurma, geçirgenlik ve ışığı kırma indisleri) incelenmiştir. Filmin yapısal özellikleri X-Işınları Kırınımı yöntemiyle (XRD) ile incelenmiş, bu inceleme sonucu filmlerin triklinik yapıda olduğu görülmüştür. Filmlerin doğru akım (d.c) iletkenlikleri, katkı ve katkı filmler  $\pm 1$  Aralığında 50mV’ luk artışlarla akım-gerilim (I-V) ölçümleri yapılmak suretiyle belirlenmiştir. Alternatif akım (a.c) özellikleri 40 Hz ile 100 kHz aralığında, farklı sıcaklıklarda iletkenlik, kapasite, empedans ve direnç gibi parametrelerin frekansa bağlı ölçümlerinin yapılması suretiyle belirlenmiştir. Tüm elektriksel ölçümler katkı ve katkı filmler için 303-523 K sıcaklık aralığında, karanlık ortamda  $3 \times 10^{-3}$  mbar vakum altında yapılmıştır. Daha sonra bu ölçümlerin analizlerinin yapılmasıyla d.c yük iletiminin ısı olarak uyarılmış taşıyıcılar tarafından sağlandığı görülmüş, a.c yük iletim mekanizmasının ise tavlama sıcaklığı ve katkı miktarına bağlı olarak değişim gösterdiği görülmüştür. Filmlerin optik özellikleri ise 285-800 nm dalga boyu aralığındaki soğurma ve geçirgenlik özellikleri ölçülmek suretiyle belirlenmiştir. Filmlerin kalınlıkları ve ışığı kırma indisleri ise PZ-2000 elipsometre ile ölçülmüştür.

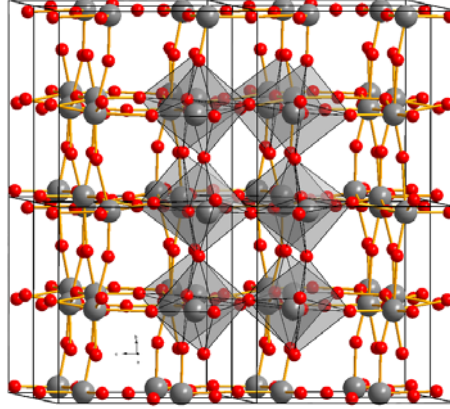
Bu alıřmada, Blm II' de Teorik bilgiler verilmektedir. Bu blmde WO<sub>3</sub> sol-gel yntemi, doęru akım ve alternatif akım iletkenlik mekanizmaları ve ince film optięi yer almaktadır. Blm III ise deneysel kısımdır. Bu blmde ise elektriksel zelliklerin belirlenmesinde kullanılan elektrot yapısı (IDT), tungsten oksit ince filmlerin eldesindeki iřlem basamakları, elektriksel ve optik karakterizasyonda kullanılan deneysel dzenekler tanıtılmıřtır. Blm IV' te ise yapılan lmler sonucunda elde edilen bulguların grafiksel analizleri yapılmıřtır. Blm V' de alıřmanın sonucuyla ilgili yorumlar ve tartıřmalar yer almaktadır.

## BÖLÜM II

### II.1 WO<sub>3</sub>'İN TEMEL ÖZELLİKLERİ

Tungsten oksit (WO<sub>3</sub>) 19. yüzyılda keşfedilen, içerisinde oksijen ve bir geçiş metali olan tungsten içeren kimyasal bir bileşiktir. Tungsten oksit oluşturma prosedürü, tungsten kimyasının kurucusu olarak bilinen Robert Oxland tarafından 1841 yılında bulunmuştur. Tungsten, alkali grubuyla etkileşerek WO<sub>3</sub>' ü oluşturur. Tungsten oksit doğada, su içeren ve genellikle WO<sub>3</sub> .H<sub>2</sub>O , WO<sub>3</sub> .2H<sub>2</sub>O ve H<sub>2</sub>WO<sub>4</sub> şeklindeki hidrat formlarında bulunmaktadır.

Tungsten oksitin kristal yapısı tavlama sıcaklığına bağlıdır. 740°C üstünde tetragonal, 330 - 740 °C arası ortorombik, 17 - 330 °C arası monoklinik, -50 - 17 °C arası triklinik yapıda bulunur. Tungsten oksit sıklıkla monoklinik yapıda görülmektedir. Şekil II.1'de WO<sub>3</sub>' ün kristal yapısı gösterilmiştir.



Şekil II.1 WO<sub>3</sub>' ün kristal yapısı

### II.2 SOL-GEL YÖNTEMİ

Sol-gel yöntemi seramik, cam malzemelerin yapımında ve çeşitli kaplama işlemlerinde ve özellikle organik olmayan ince film kaplamalarında kullanılan oldukça kullanışlı bir yöntemdir. Sol-gel yönteminde başlangıç malzemesi olarak bir çözelti (sol) ve bu çözeltiyi kullanarak jel elde edildiği için “Sol-Gel Yöntemi” adı

altında toplanmıştır. Bu yöntemle birçok seramik malzeme ve cam üretmek mümkündür. Bunlar: oldukça saf ve küresel biçimli tozlar, ince film kaplamalar, seramik fiberler, mikro gözenekli inorganik zarlar, monolitik seramik ve camlar ya da aşırı gözenekli aerojel malzemelerdir [48].

Sol-gel yönteminde ilk adım metal organik bileşiklerin, alkol bazlı çözeltiler içerisinde çözülmesi ile öncü çözeltinin hidrolize edilmesidir. Daha sonra polimerleşme sonucunda oluşan çözelti dehidrolize olur. Elde edilen ince film cam, alimuna, silisyum gibi değişik altlıklar üzerine farklı oranlarda ince, saydam ve çok bileşenli tabakalar olarak oluşturulur. Altlık üstüne kaplanmış film düşük sıcaklıkta kurutulur. Kurutulmuş film zayıf ve gözenekli yapıdadır. Daha sonra 400-800 °C' de tavlansak kristalleşir ve yoğunlaşır. Yoğun film ise sert ve dayanıklıdır. Böylece homojen filmler elde edilmiş olur. Sol gel yöntemiyle hemen hemen her türlü oksit film elde etmek mümkündür. Film kalınlıkları genelde 500-1000 Å kadardır. Daha kalın filmler için sıvı vizkozitesini ve kaplama parametresini değiştirmek gerekmektedir.

Katı maddeler, sıvı içinde dağılmış olarak dururlarsa bu sisteme sol adı verilmektedir. Solde tanecikler dibe çökmemelidir. Van-der Waals ve elektriksel çekim kuvvetleri, yerçekimi kuvvetine oranla baskın olduğu için dibe çökme olmaz. Eğer molekül çözelti içinde genişleyerek büyük bir boyuta ulaşırsa, bu maddeye jel denmektedir. Katı maddenin devamlılığı jelle elastik bir özellik kazandırır.

Teknolojik olarak sol-gel yönteminin en önemli noktası; katılaşmadan önce sıvı sol ve solüsyonun; daldırma (dipping), döndürme (spinning) ve püskürtme (sprey) metotları ile ince filmlerin hazırlanmasında ideal olmasıdır. Sol-gel yönteminin avantajları ve dezavantajları Tablo II.1' de özetlenmiştir

**Tablo II.1** Sol-gel yönteminin avantajları ve dezavantajları

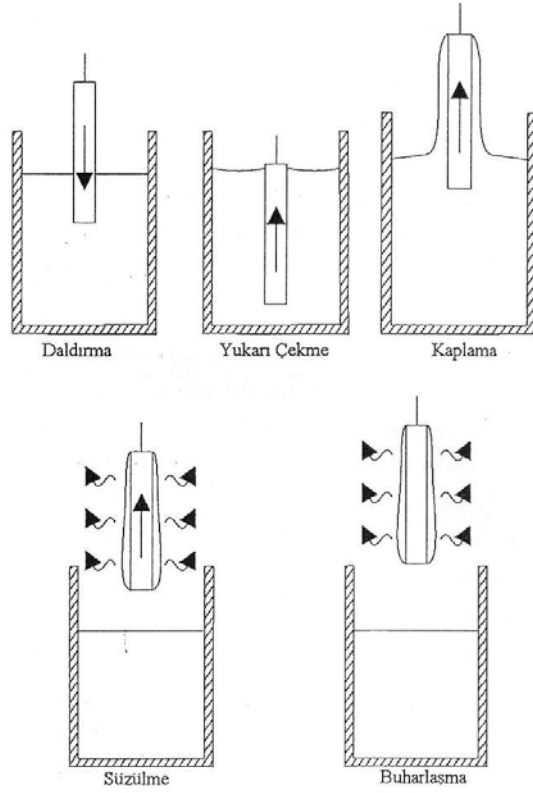
<b>Avantajlar</b>	<b>Dezavantajlar</b>
Kaplanan filmin mikro yapısının kontrol edilmesine olanak sağlar.	Malzeme maliyeti fazladır.
Gerekli alet ve malzeme çok basittir.	Filmlerde karbon çökeltisi kalır.
Kaplanan malzemenin her yerinde aynı kalınlık elde edilir.	Kullanılan malzeme sağlığa zararlı olabilir.
Saf kaplama elde edilebilir.	İşlem sırasında malzeme kaybı fazladır.
Düşük ısılarda hazırlanabilir.	
Hava kirliliğine sebep olmaz ve enerji tasarrufu sağlar.	
Hazırlanan ortamla etkileşimde bulunmaz.	
Yeni malzemelerin bulunabilmesi için uygun bir yöntemdir.	
Gözenekli yapı oluşturur.	
Her türlü geometriye sahip malzemeye uygulanabilir.	

### **II.2.1 Daldırma Yöntemi**

Sol-gel yönteminde kaplama için en çok kullanılan metotlardan birisidir. Genellikle saydam ve iletken tabakaların üretilmesinde kullanılan bir yöntemdir. Bir altlık malzemesinin belli bir hızda çözeltiye daldırılıp aynı hızda geri çekilmesi esasına dayanmaktadır. Bu yöntemin avantajları şunlardır;

- Düzgün kalınlık elde edilir.
- Kalınlık kontrol edilebilir.
- Çok katlı kaplamalara izin verir.
- Fazla miktarda numune aynı anda ekonomik bir şekilde kaplanabilir.
- Farklı geometrilere sahip numuneler kolayca kaplanabilir.

Daldırma yöntemi 5 aşamadan oluşur [10]. Bu aşamalar Şekil II.2’de gösterilmiştir.



**Şekil II.2** Daldırma yöntemi aşamaları

İlk aşama olan daldırma aşamasında altlık malzemesi sabit bir hızla solün içine daldırılır. Daldırma işlemi bitince, altlık malzemesi solün içinde bekletilmeden aynı hız ile yukarı çekilmeye başlanır. Bu ise yukarı çekme aşamasıdır. Kaplama aşamasında altlık malzemesinin solden çıkan kısımları sol ile kaplanmış olur. Süzülme aşamasında ise altlık malzemesinin üstüne kapanan sol altlık malzemesinin kenarlarından damla damla süzülür. Buharlaşma aşamasında ise altlık malzemesinin kenarlarından süzülemeyen fazla sol buharlaşarak uçurur. Bu aşamalar sonucunda, altlık malzemesinin üstünde kalan sol, fırınlama işleminden sonra film elde edilmiş olur.

Alkol gibi uçucu çözeltiler kullanılarak yapılan kaplamalarda süzülme safhasına gerek yoktur. Hareket halinde olan altlık malzemesi, çözeltiliye daldırıldığı an akışkanlar mekaniği gereği kaplama bölgesinden dışarıya çıkarken sıvının bir kısmını dışarıya sürükler ve alan üzerinde çözelti ihtiva eden bir sınır tabaka oluşur. Kaplama ve süzülme aşamasında sözü edilen sınır tabaka iç ve dış tabaka olmak üzere ikiye ayrılır. İç tabaka altlık malzemesiyle beraber dışarı hareket ederken, dış tabaka ters

yöne hareket ederek çözeltiliye geri döner. Kaplanan filmin kalınlığı yukarı ve aşağı hareket eden tabakaları ayıran ana akıntının şiddetine bağlıdır. Film kalınlığı ve ana akıntının durumunu film kaplama bölgesindeki altı kuvvet kontrol eder.

- Viskozite nedeniyle hareketli altlık malzemesinin yukarıya doğru çekme kuvveti.
- Yerçekimi kuvveti
- Sıvının konkav eğrisinde yüzey gerilimi bileşke kuvveti
- Kaplama bölgesine gelen sıvının sınır tabakasının eylemsizlik kuvveti.
- Yüzey gerilim gradyanı
- Ayırma ve birleştirme basıncı ( $\mu m$  ' den ince filmler için çok önemli)  
Daldırarak kaplama yönteminde filmin kalınlığı,

$$h = 0.94 \frac{(\eta u^{2/3})}{\chi_{Lv}^{1/6} (\rho g)^{1/2}} \quad (II.1)$$

şeklinde verilen Landau-Levich bağıntısıyla belirlenebilir [10]. Bu ifadede  $h$ , filmin kalınlığı;  $\eta$ , solün viskozitesi;  $u$ , altlık malzemesinin solü içine daldırılma hızı;  $\rho$ , solün yoğunluğu;  $\chi_{Lv}$ , sıvı buhar gerilimi (Sol, alkol içerdiği için buharlaşır, gaz olur. Sıvı faz ile gaz fazı arasındaki gerilimin ölçüsü  $\chi_{Lv}$  ' dir.);  $g$  ise yerçekimi sabitidir. Daldırarak kaplama yönteminde altlık malzemesinin sol içine daldırma hızı  $u$  ile film kalınlığı  $h$  doğru orantılıdır. Kalınlığı hesaplamaya yarayan Denklem (II.1)' in uygulanabilirliği konusunda yapılan çeşitli deneyler, uygulanabilirliğin zayıf olduğunu göstermektedir. Deney ile teori arasındaki farklar ideal olmayan serbest yüzey davranışlarından meydana gelebilir. Her iki durumda da film teorisinin gösterdiğinden daha kalındır. Bunun başlıca sebebi; pH etkisi, viskozitenin sabit olması, her sıvının Newton sıvısı olmaması ve en önemlisi buharlaşma etkisinin bu formüllerde gösterilmemesi sayılabilir. Bütün bu etkiler filmlerin gerçekte daha kalın olmasına neden olur.

Altlık malzemesi sole ne kadar hızlı daldırılıp çıkartılırsa film o kadar kalın olur, dolayısıyla taşıyıcı daldırma hızı düştükçe film incelik. Kaplanan filmin kalınlığı çözeltilinin bileşenlerine, altlık malzemesinin çekilme hızına ve viskoziteye (sıvının akmaya karşı gösterdiği direnç) bağlıdır. Bu yöntemin üzerinde durulması gereken önemli bir özelliği de film kalınlığının altlık malzemesinin sole daldırılıp çıkarma esnasında zamanla değişmemesidir.

## II.3 DOĞRU AKIM (D.C.) VE ALTERNATİF AKIM (A.C.) İLETKENLİK MEKANİZMALARI

### II.3.1 Doğru Akım (d.c.) İletkenlik Mekanizmaları

Serbest elektron modeline göre doğru akım (d.c.) iletkenliği  $\sigma_{d.c.}$ ,

$$\sigma_{d.c.} = \frac{ne^2\tau_F}{m^*} \quad (\text{II.2})$$

ifadesi ile verilir . Bant modeline göre ise (d.c.) iletkenlik;

$$\sigma_{d.c.} = \frac{1}{3} e^2 v_F \tau_F g(E_F) \quad (\text{II.3})$$

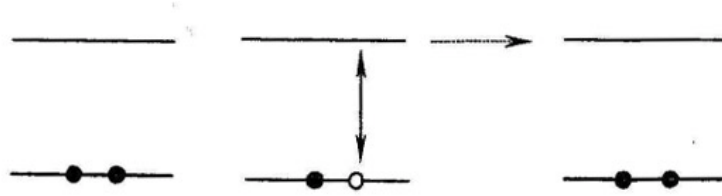
ile ifade edilir [49]. Bu ifadelerde,  $n$  iletim elektronlarının konsantrasyonu,  $\tau_F$  Fermi yüzeyindeki bir elektron için ortalama iki çarpışma arasında geçen serbest süre,  $m^*$  elektronun etkin kütlesi,  $v_F$  Fermi hızı,  $g(E_F)$  de Fermi yüzeyindeki durum yoğunluğudur. Denklem (II.2) ile Denklem (II.3) karşılaştırıldığında iletkenlik, serbest elektron modelinde serbest elektron konsantrasyonu ile, bant modelinde ise durum yoğunluğu  $g(E_F)$  ile belirlenir. Gerçekte, serbest elektron modelinin gösterdiği iletkenlik ifadesi (Denklem (II.2)) bant teorisinin özel bir durumudur [49].

Tek elektron yaklaşımı olarak bilinen bant modelinin gösterdiği iletkenlik ifadesi, periyodik potansiyelde bulunan bir elektron ve elektron-örgü etkileşmelerinin küçük bir pertürbasyonu olarak alınabilen varsayımlardan elde edilir. Bu varsayımlar taşıyıcı hareketliliğinin  $100 \text{ cm}^2/\text{V/s}$ ' den daha büyük olduğu durumlarda geçerlidir [26], Oysa taşıyıcı hareketliliğinin  $100 \text{ cm}^2/\text{V/s}$ ' den daha küçük olduğu ve yük taşıyıcılarının ortalama serbest yolunun ısı elektronların dalga boyundan daha küçük olduğu durumlarda elektron örgü etkileşmeleri çok kuvvetlidir.

Yani, bant modeli yük hareketliliğinin  $100 \text{ cm}^2/\text{V/s}$ ' den daha büyük olduğu durumlarda uygulanabilir. Bu durumda, serbest taşıyıcıların ortalama serbest yolları örgü sabitinden büyüktür ve elektron belirli bir molekül civarında "yerleşmiş bir elektron" değildir. Taşıyıcı hareketliliğinin  $100 \text{ cm}^2/\text{V/s}$ ' den daha küçük olduğu malzemelerde yük taşıyıcıları, farklı etkilerden dolayı örgünün belirli bir sitesine yerleşir ve bu tür malzemelerde elektriksel iletim tünelleme veya hoplama mekanizmalarından birisi ile gerçekleşir.

### II.3.1.1 Tünelleme Modeli

İlk defa Eley [50] tarafından öne sürülen tünelleme mekanizması kuantum mekaniksel bir işlemdir ve iki aşamada gerçekleştiği varsayılır. Birinci aşamaya göre; başlangıçta taban durumunda bulunan bir molekülüne ait iki elektron tarafından işgal edilmiş olan bir orbital örneğin  $N/2$ ' inci orbital, bir boşluk ve  $(N/2 + 1)$ ' in  $\pi$  orbitalinde bir elektron oluşturmak için molekül ısı veya ışık kullanılarak uyarılmasıdır. İkincisi de molekülün uyarılma sonucu  $(N/2 + 1)$ ' inci  $\pi$  orbitalinde oluşan bu elektronun birinci aşamada anlatılan molekülünün komşusu olan moleküldeki aynı orbitale, moleküller arasındaki potansiyel engelden tünelleme ile geçmesidir. Bu aşamalar Şekil II.3' te gösterilmiştir.



Şekil II.3 Eley tarafından öne sürülen tünelleme modeli

Başlangıçta taban durumuna bulunan bir elektron  $\Delta E$  kadar enerji alarak bulunduğu orbitalde bir boşluk bırakarak  $(N/2 + 1)$ ' inci uyarılmış seviyesine çıkar ve oradan tünelleme yaparak komşu moleküle geçer. Bu modelde uyarılmış elektronun spini dikkate alınmaz. Bir molekülün uyarılmış hali singlet veya triplet olabilir ve enerji spine bağlıdır. Ayrıca bu modelde tünelleme esnasında enerjinin korunduğu kabul edilir. Bant modelinde moleküller arasındaki potansiyel engelin açık tanımlı bir ifadesi olmadığından kristal dalga fonksiyonu tek tek moleküllerin dalga fonksiyonundan oluşturulur. Bununla beraber uyarılmış bir elektronun birkaç molekül uzaklığa kadar tünelleme yoluyla gidebileceği kabul edilir. Bu bakımdan, potansiyelin tüm kristal boyunca periyodik olarak değişmesi ve potansiyel engelinin genişliğinin  $10 \text{ \AA}$ ' den daha küçük olması durumunda tünelleme modeli bant modeli olarak düşünülebilir [49].

### II.3.1.2 Değişken Erimli Hoplama Modeli (VRH)

Bu modele göre moleküller arasındaki potansiyel engelden geçebilecek yeterli enerjiyi kazanmayan bir elektronun bu engelden geçebileceği kabul edilir. Bantta yerleşmiş durumlar arasında taşıyıcı hoptaması ya düşük sıcaklıklarda ya da kusur durum yoğunluğunun yüksek olduğu malzemelerde yüksek sıcaklıklarda da gözlenen bir mekanizmadır [51].

Elektronun lokalize bir durumdan daha yüksek enerjili bir başka lokalize duruma hoptama yoluyla geçme ihtimali;  $\Delta E$ , iki durum arasındaki enerji farkı olmak üzere  $\exp(-\Delta E/k_{\beta}T)$ ' ye, fonon spektrumu  $\nu_{ph}$ ' ye ve iki yerleşmiş dalga fonksiyonunun üst üste binmesi gibi durumlara bağlıdır.

Bu modelde sadece Fermi seviyesindeki  $E_F$ ' deki elektronları göz önüne alındığında zayıf alanlar için iletkenlik,

$$\sigma_{d.c} = 2e^2 r^2 \nu_{ph} g(E_F) e^{-2\alpha_L r} \mathbf{exp}(-\Delta E/k_{\beta}T) \quad (\text{II.4})$$

şeklinde verilir.  $\alpha_L r \gg 1$  olduğu durumda sadece en yakın komşuya hoptama beklenir. Zayıf yerleşme durumlarında ise, elektronlar hoptama yapabilmek için daha geniş bir seçeneğe sahip olacaklardır. Bu durumda malzemenin değişken erimli bir hoptama sergilediği söylenir.

Bu durum için hoptama uzaklığı  $r$ , sıcaklık azaldıkça artar. Böylece elektronun daha uzak bir mesafeye hoptama ihtimalinin artacağını gösterir. Bu ihtimalin maksimize edilmesiyle iletkenlik,

$$\sigma_{d.c} = e^2 g(E_F) r^2 \nu_{ph} \mathbf{exp}\left(-\frac{\beta}{T^{1/4}}\right) \quad (\text{II.5})$$

şeklinde ifade edilir. Denklem (II.5) daha genel ifade edildiğinde, iletkenliğin sıcaklığa bağlı değişimini veren

$$\sigma_{d.c} = \sigma_0 \mathbf{exp}\left[-\left(\frac{T_0}{T}\right)^{\kappa}\right] \quad (\text{II.6})$$

denklemini elde edilir. Denklem (II.6)' deki ifade aynı zamanda Mott' un değişken erimli hoptama modeli olarak ta bilinir. Burada  $\sigma_0$  iletkenliğin yüksek sıcaklık limiti,  $T_0$  elektronik dalga fonksiyonlarının yerleşmesinin derecesi ile ilişkili bir büyüklük,  $\kappa$  ise 1, 2 ve 3 boyutlu sistemler için sırasıyla 1/2, 1/3 ve 1/4 değerlerini alabilen ortamın boyutunu belirleyen bir parametredir.

Mott karakteristik sıcaklığı olan  $T_0$  değeri,  $\log \sigma_{d.c}$  (S/m)' nin  $T$  (K)' ye karşı çizilen grafiğin eğiminden ve Denklem (II. 7)' ten bulunur.

$$T_0 = \left( \frac{18.1 \beta^3}{k_\beta N(E_F)} \right) \quad (\text{II.7})$$

Burada  $\beta$  dalga fonksiyonunun azalma oranının tersi,  $k_\beta$  Boltzman sabiti ve  $N(E_F)$  ise Fermi enerji seviyelerindeki durum yoğunluğudur. Ortalama hoplama direnci ve enerjisi sırasıyla Denklem (II.8a) ve Denklem (II.8b) ile ifade edilir [52].

$$R_{ort} = \left\{ \frac{9}{8\pi\beta k_\beta T N(E_F)} \right\}^{1/4} \quad (\text{II.8a})$$

$$W_{ort} = \frac{3}{4\pi R^3 N(E_F)} \quad (\text{II.8b})$$

Bir reaksiyonun olabilmesi için reaksiyona giren atomların, moleküllerin veya iyonların birbirleriyle çarpışmaları ve ayrıca çarpışan taneciklerin belli bir enerjiye sahip olmaları gerekir. Dolayısıyla bir reaksiyonun hızı derişime, sıcaklığa ve basınca bağlıdır. Arrhenius' a göre her molekül çarpışınca reaksiyon vermez, ancak minimum enerjisi aktivasyon enerjisine eşit olan moleküller çarpışınca reaksiyon verebilirler. Reaksiyon için gerekli aktivasyon enerjisine sahip moleküllerin sayısı da sıcaklıkla artar.

d.c iletkenliğin sıcaklığa bağlı deęişimi lineer ise Arrhenius tipi davranış gösterir. Bu davranışı gösteren bir numunenin elektriksel iletkenlięi

$$\sigma_{d.c} = \sigma_0 \mathbf{exp} \left( - \frac{E_A}{k_\beta T} \right) \quad (\text{II.9})$$

ile verilmektedir. Burada  $E_A$  aktivasyon enerjisi,  $a$ , pre-eksponansiyel faktör,  $k_B$  Boltzman sabiti ve  $T$  (K) sıcaklıktır [53].

### II.3.2 Alternatif Akım (a.c.) İletkenlik Mekanizmaları

Eđer bir mekanizmada, a.c ve d.c iletkenlik birbirinden bağımsız olarak davranış gösteriyorsa toplam iletkenlięi,

$$\sigma_T(\omega, T) = \sigma(0, T) + \sigma(\omega, T) \quad (\text{II.10})$$

Burada  $\sigma(0, T)$  d.c. iletkenlik ve  $\sigma(\omega, T)$  a.c iletkenliktir. Kovalent veya iyonik bağılı düzensiz (amorf) katı, organik ve inorganik gibi çeşitli malzemelerle yapılan deneylerde (çok sayıda ölçüm alındığında) iletkenliğin frekansa bağılı değişimi [49].

$$\sigma(\omega, T) = A(T)\omega^{s(T)} \quad (\text{II.11})$$

ifadesi kullanılarak açıklanabilir. Burada  $\omega$  açısal frekans,  $A$  ve  $s$  ise sıcaklığa bağılı parametredir,  $s$  parametresi farklı malzemeler için elektrik iletkenlik mekanizmasını karakterize etmede kullanılır ve polarizasyona katılan bütün yükler arasındaki etkileşimi belirtir,  $s$  parametresinin değeri  $0 < s < 1$  aralığında yer alır ve

$$s = \frac{d \ln \sigma_{a.c}}{d \ln f} \quad (\text{II.12})$$

şeklinde ifade edilir [54].

Frekans değişimine bağılı olarak yük iletim mekanizmasının davranışını açıklamak amacıyla çeşitli modeller geliştirilmiştir. Aşağıda, iletkenliğin Denklem (II.11) ile verilen davranışını açıklamak için geliştirilen modeller kısaca açıklanmıştır.

### II.3.2.1 Frekansa Bağılı İletkenlik Kaynağı

Dielektrik bir malzemeye, harmonik değişen bir  $E(\omega)$  elektrik alanı uygulandığında zamana bağılı olan bir polarizasyon  $P(t)$  oluşur. Frekansın etkisi ile oluşan polarizasyonun alandaki değişim ve uygulanan elektrik alanla ilişkisi,

$$P(\omega) = \varepsilon_0 \chi(\omega) E(\omega) \quad (\text{II.13})$$

şeklinde verilir.

Burada,  $\varepsilon_0$  serbest uzayın dielektrik sabiti ve  $\chi(\omega)$  dielektrik duyunluktur. Dielektrik duyunluk,

$$\chi(\omega) = \chi_1(\omega) - i \chi_2(\omega) \quad (\text{II.14})$$

ifadesiyle verilir. Sanal kısım  $\chi_2(\omega)$  dielektrik kayıp (yani dielektrik katsayısındaki azalma manasında) olarak adlandırılır. Dielektrik geçirgenlik ifadesi ise,

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_1(\omega) - i \varepsilon_2(\omega) \quad (\text{II.15})$$

ile ifade edilir. Dielektrik duygunluğun gerçek ve sanal bileşenleri ile dielektrik geçirgenlik bileşenleri arasındaki ilişki,

$$\varepsilon_1 = 1 + \chi_1(\omega) \text{ ve } \varepsilon_2 = \chi_2(\omega) \quad (\text{II.16})$$

Dielektrik duygunluk ve geçirgenlik arasındaki bu ilişkiden yararlanarak a.c iletkenliğin gerçek ve sanal bileşenleri  $\sigma_1(\omega)$  ve  $\sigma_2(\omega)$  sırasıyla,

$$\sigma_1(\omega) = \varepsilon_0 \omega \varepsilon_2(\omega) \quad (\text{II.17a})$$

$$\sigma_2(\omega) = \varepsilon_0 \omega \varepsilon_1(\omega) \quad (\text{II.18b})$$

ifadeleriyle verilir. Dielektrik geçirgenliğin sanal bileşeninin gerçek bileşenine oranı  $\tan \delta$  ile gösterilir ve kayıp açısı olarak tanımlanır.

$$\tan \delta = (\sigma_1(\omega) / \sigma_2(\omega)) \quad (\text{II.19})$$

Dielektrik duygunluğun gerçel ve sanal bileşenleri arasındaki ilişki Kramer-Krönig (Hilbert) dönüşümleriyle belirlenir.

$$\chi_1(\omega) = \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{x \chi_2(\omega) dx}{x^2 - \omega^2} \quad (\text{II.20})$$

$$\chi_2(\omega) = \frac{-2\omega}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{x \chi_1(\omega) dx}{x^2 - \omega^2} \quad (\text{II.21})$$

a.c iletkenliği hesaplarırken ilk olarak, Debye modelini; ya iki yerelleşmiş siteden birini doldurabilen bir izole yükün ya da eşdeğer olarak iki uzaysal konfigürasyondan sadece birini kabul edilebilen bir dipolün alternatif elektrik alanına dielektrik yanıtı olarak düşünülür.

Debye cevabı, tek, değişmeyen durulma sabiti  $\tau$  ile verilen birinci dereceden polarizasyonun ( $P$ ) durulma zamanı tarafından belirlenir.

$$\frac{dP}{dt} = -\frac{P}{\tau} \quad (\text{II.22a})$$

Denklem (II.22a) çözümlerse,

$$P(t) = P_0 \exp(-t/\tau) \quad (\text{II.22b})$$

elde edilir. Dielektrik duygunluk, polarizasyon azalma fonksiyonu  $-dP/dt$  nin Laplace transformundan elde edilir. Debye modeline göre,

$$\chi(\omega) = \frac{\chi(0)}{1+i\omega\tau} = \chi(0) \left[ \frac{1}{1+\omega^2\tau^2} - \frac{i\omega\tau}{1+\omega^2\tau^2} \right] \quad (\text{II.23})$$

Eğer durulma zamanı  $\tau$  sabit bir değere sahipse,  $\omega\tau/1 + \omega^2\tau^2$  fonksiyonunun  $\omega\tau=1$  de bir piki olmasından dolayı, dielektrik kayıp  $\chi_2(\omega)$  bir pik gösterecek şekilde öngörülür.

$n(\tau)$  sürekli dağılım fonksiyonu için a.c. iletkenliğin gerçek bileşeni  $\sigma_1(\omega)$ ,

$$\sigma_1(\omega) = \int_0^\infty \alpha n(\tau) \frac{\omega^2\tau}{1+\omega^2\tau^2} d\tau \quad (\text{II.24a})$$

şeklinde yazılabilir. Burada  $\alpha$  bir site çiftinin polarizabilitesidir.  $n(\tau)$  ise durulma zamanına bağlı dağılım fonksiyonu olarak tanımlanır.

Amorf yarı iletkenler için dağılım fonksiyonu  $n(\tau) \propto 1/\tau$  ifadesiyle alınabilir. Bu durumda denklem (II.24a),

$$\sigma_1(\omega) \propto \int n(\tau) \frac{d(\omega\tau)}{1+\omega^2\tau^2} \propto \tau \quad (\text{II.24b})$$

şeklinde ifade edilir.

$n(\tau)$ ' nun bu şekildeki tanımı, durulma zamanı  $\tau$  ' nun kendisinin keyfî bir  $\xi$  değişkeninin,

$$\tau = \tau_0 \exp(\xi) \quad (\text{II.25})$$

şeklinde üstel bir fonksiyonu olmasını gerektirir. Burada  $\tau_0$  sabit olup karakteristik durulma zamanıdır. Durulma zamanı  $\tau$  ' nun bu şekilde ifade edilmesine neden olan iki mikroskobik durulma mekanizması vardır. Bunlar:

1. Bir taşıyıcının farklı iki siteyi ayıran potansiyel engelinden klasik olarak hoptlamasıdır. Bu durumda  $\xi$

$$\xi = W/k_B T \quad (\text{II.26a})$$

şeklinde verilir. Burada  $W$  bariyer yüksekliği,  $k_B$  Boltzman sabiti ve  $T(K)$  sıcaklıktır.

2. Bir taşıyıcının iki denge durumunu ayıran engelden fonon yardımıyla kuantum mekaniksel tünelleme ile geçmesidir. Bu durumda da  $\xi$

$$\xi = 2\alpha R \quad (\text{II.26b})$$

şeklinde verilir.

Yukarıda kısaca özetlenen yaklaşımlar düzensiz (amorflar) katılarda iletkenliğin frekansa bağıllığını açıklamak için geliştirilen modellerin temelini oluşturur [51].

### II.3.2.2 Çift Yaklaşımda Durulma Zamanı

Aralarındaki uzaklık  $R$  ve enerji farkı  $\Delta$  olan iki site için polarizabilite, bu iki site arasındaki elektron transfer oranı denklemlerinden hesaplanabilir. Buna göre  $f_1$  ve  $f_2$  sırasıyla 1. ve 2. durumların doldurulma olasılıkları  $w_{ij}$  de geçiş oranı olmak üzere,

$$f_1 = w_{21}f_2 - w_{12}f_1 = f_2 \quad (\text{II.27})$$

şeklinde ifade edilir. Elektrik alanın sisteme uygulanması seviyeleri pertürbe eder ve doluluk değerlerinin denge değerlerinden bir sapmasına sebep olur, alanın küçük olması ( $eER \ll k_B T$ ) cevabın lineer edilebileceğini gösterir.

$$\alpha = \frac{e^2 R^2}{12kT} \frac{1}{\cosh^2(\Delta/2k_B T)} \frac{1}{1+i\omega t} \quad (\text{II.28})$$

Denklem (II.29)' te görülen etkin durulma zamanı  $\tau$ ,

$$\tau = \frac{1}{2} \tau_0 [\cosh(\Delta/2k_B T)]^{-1} \quad (\text{II.29})$$

şeklinde verilir.

Geçiş oranı  $w_{ij}$  ise

$$w_{ij} = \frac{1}{\tau} \exp\left(\frac{\Delta_{ij} + \Delta_{ji}}{2k_B T}\right) \quad (\text{II.30})$$

şeklinde verilir. Burada  $\Delta_{12} = \Delta > 0$  durumu için 2. sitenin enerjisi 1. sitenin enerjisinden büyüktür. Denklem (11.30) Debye enerjisinden daha büyük enerjili

olan çok fonon geçişleri için geçerlidir. Düşük enerjili işlemler, yani tek-fonon geçişleri için geçiş oranı,

$$w_{ij} = \left( \frac{\Delta_{ij}}{B[\exp(\Delta_{ij}/k_B T) - 1]} \right) \quad (\text{II.31})$$

ifadesiyle verilir. Burada  $B$  etkileşmelerin detaylarını içeren bir terimdir. Denklem (II.31) ve Denklem (II.28)'daki gibi bir polarizabiliteye neden olur. Fakat etkin durulma zamanı,

$$\tau = \frac{1}{B\Delta_{12}} \tanh\left(\frac{\Delta_{12}}{2k_B T}\right) \quad (\text{II.32})$$

olarak değişmiştir.

### II.3.3 a.c. İletkenlik için Önerilen Modeller

a.c iletkenliği hesaplamak için 3 temel büyüklüğe ihtiyaç duyulur. Bunlar Denklem (II.24a)'da görüleceği gibi polarizabilite  $\alpha$ , durulma zamanının dağılım fonksiyonu  $n(\tau)$  ve keyfi değişken  $\xi$  cinsinden tanımlanan durulma zamanıdır [51].

#### II.3.3.1 a.c. Kuantum Mekaniksel Tünelleme (QMT) Nedeniyle Durulma

##### II.3.3.1.1 Elektronik Tünelleme

Düzensiz yarı-iletkenlerde gözlenen Dielektrik kayıpların kaynağının dielektrik durulma olduğu düşünülürse bu durumda yük iletiminde kuantum mekaniksel tünellemenin en etkili rol oynadığı kabul edilir. Yük iletiminin kuantum mekaniksel tünelleme yoluyla gerçekleştiği durumda durulma zamanı  $\tau$ , Denklem (II.25) ve Denklem (II.26a)'nın  $\tau \propto \exp(2\alpha R)$  şeklinde veya eşdeğeri olarak Denklem (II.29) ifadesinde  $\tau_0 = 2\tau_{0i} \exp(2\alpha R)$  yazılmasıyla,

$$\tau = \frac{\tau_{0i} \exp(2\alpha R)}{\cosh(\Delta/2k_B T)} \quad (\text{II.33})$$

şeklinde ifade edilir.

Genelde elektron transferinin gerçekleştiği merkezlerin uzayda rastgele dağıldığı kabul edilir ve

$$P(R) dR = 4\pi NR^2 dR \quad (\text{II.34})$$

şeklinde verilir.

Polarizabilite için elde edilen Denklem (II.28), durulma zamanı ifadesi Denklem (II.33) ve merkezlerin uzaysal dağılımını veren Denklem (II.34)' ün birleşmesiyle a.c iletkenliğin gerçek kısmı  $\sigma(\omega)$  için,

$$\sigma_1(\omega) = \frac{\pi N^2 e^2 \omega}{6\alpha k_\beta T} \int_{\max(x)}^{\min(x)} \frac{R^4 d(\omega t)}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad (\text{II.35})$$

Şeklinde bir ifade bulunur. Bu ifade elde edilirken  $\Delta=0$  kabul edilmiştir .

Bu sadece  $\Delta \leq k_\beta T$  olan sitelerin kayıplara katkıda bulunduğu varsayılması demektir. Denklem (II.36)' deki integral bazı yaklaşıklıklar yapılarak hesaplanabilir. Denklem (II.36)' deki  $d(\omega t)/(1 + \omega^2 \tau^2)$  terimi  $\tau$  uzayında keskin bir tepe değerine sahiptir. Dolayısıyla bu bir  $\delta$ -delta fonksiyonu olarak düşünülebilir. Bu durumda integral ifadesindeki  $R^4$  terimi kaldırılabilir. Sonuçta  $R_\omega$  ile verilen bir  $\omega$  frekans için  $R_\omega$  karakteristik tünelleme uzaklığı olmak üzere ve  $R_\omega = (1/2\alpha) \ln 1/\omega\tau_0$  alınmak üzere kuantum mekaniksel tünelleme modeli, QMT' nin öngördüğü iletkenlik ifadesi,

$$\sigma_1(\omega) = \frac{\pi^2 e^2 k_\beta T}{12\alpha} N^2(E_F) \omega R_\omega^4 \quad (\text{II.36})$$

olarak elde edilir. Burada  $N(E_F)$  Fermi seviyesindeki durum yoğunluğu,  $N = k_\beta T N(E_F)$  olmak üzere a.q kayıplara katkıda bulunan durumların sayısıdır.

Kuantum mekaniksel tünelleme modelinin öngördüğü iletkenlik ifadesi Denklem (II.36)' nin frekansa bağlılığı  $\sigma(\omega) = A\omega^s$  formundadır. Bu sonuçlardan frekansın üssü olan  $s$  değeri,

$$s = 1 - \frac{4}{\ln(1/\omega\tau_0)} \quad (\text{II.37})$$

olarak ifade edilir. Denklem (II.37)' ten görüldüğü gibi  $s$ ' nin 1' den küçük değerler aldığı ve sıcaklıktan bağımsız olarak artan frekansla azaldığı görülür [26].

QMT' nin bu başlığı altında a.c. iletkenliğe katkıda bulunan taşıyıcıların hareketliliğiyle ilişkili örgü bozukluklarının olmadığı yani, polaron oluşumu göz önüne alınmaz. Bu nedenle, polaron tünellemesinin a.c. kayıp mekanizmalarına katkısı aşağıda kısaca açıklanacaktır [51].

### II.3.3.1.2 Küçük Polaron Tünellemesi (SPT)

Kovalent katılarda küçük polaronlar bir siteye yük taşıyıcısının ilave edilmesiyle oluşur. Bir küçük polaron oluşmasıyla sistemin toplam enerjisi, polaron enerjisi  $W_p$  kadar azalır. Küçük polaronların bozukluk bulutlarının üst üste binmeyecek şekilde yerleştirilecekleri varsayılır. Bu durumda, polaron transferi için aktivasyon enerjisi,

$$W_H \approx \frac{1}{2} W_p \quad (\text{II.38})$$

ifadesiyle verilir. Denklem (II.33) siteler arasındaki uzaklığa bağlı değildir. Yüksek sıcaklıklarda küçük polaron tünellemesi için durulma zamanı  $\tau$ ,

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{W_H}{k_\beta T}\right) \exp(2\alpha R) \quad (\text{II.39})$$

şeklinde verilir.

Çok düşük sıcaklıklarda ise durulma zamanı ısı uyarılmadan daha ziyade

$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{W_H}{\frac{1}{4}\hbar\omega_0}\right) \exp(2\alpha R) \quad (\text{II.40})$$

şeklinde verilir. Burada  $\omega_0$  örgü bozukluklarını tanımlayan titreşim frekansıdır. Yukarıdaki durulma ifadelerinin her ikisinde de Denklem (II.29)' de görülen  $\Delta$  terimi ihmal edilmiştir.

Bu modelde bir  $\omega$  frekansında tünelleme uzaklığı,

$$R = \frac{1}{2\alpha} \left[ \ln(1/\omega\tau_0) - \frac{W_H}{k_\beta T} \right] \quad (\text{II.41})$$

olarak ifade edilir. Bu durumda a.c. iletkenlik Denklem (II.36)' deki  $R_\omega$  yerine (II.41)' deki değerinin yazılmasıyla elde edilir.

Görüldüğü gibi kuantum mekaniksel tünellemenin aksine küçük polaron tünellemesinde tünelleme uzaklığı ve dolayısıyla frekansın üs değeri  $s$ , sıcaklığa bağlı olur ve  $s$  değeri,

$$s = 1 - \frac{4}{\ln(1/\omega\tau_0) - (W_H/k_\beta T)} \quad (\text{II.42})$$

ifadesiyle verilir [51].

### II.3.3.1.3 Büyük Polaron Tünellemesi (LPT)

Büyük polaron durumunda, polaronların bozukluk bulutlarının üst üste binmesi söz konusudur. Bu tür polaronlar için, Coulomb etkileşmelerinin uzun erimli olmalarından dolayı komşu sitelerin potansiyel duvarları üst üste biner ve bunun sonucu olarak da polaron hoplama enerjisi  $W_H$  azalır.  $r_0$  polaron yarıçapı olmak üzere,  $W_H$

$$W_H = W_{H0} \left(1 - \frac{r_0}{R}\right) \quad (\text{II.43})$$

İle tünelleme uzaklığı  $R_\omega$  da,

$$R_\omega = \frac{1}{4\alpha} \left[ \ln \left( \frac{1}{\omega\tau_0} \right) - \left( \frac{W_{H0}}{k_\beta T} \right) \right] + \left\{ \left[ \ln \left( \frac{1}{\omega\tau_0} \right) - \left( \frac{W_{H0}}{k_\beta T} \right) \right]^2 + \frac{8\alpha r_0 W_{H0}}{k_\beta T} \right\}^{1/2} \quad (\text{II.44})$$

şeklinde verilir [26].

a.c iletkenlik  $\sigma_1(\omega)$  daha önce yapıldığı gibi  $R_\omega$  'nın yukarda gösterilen ifadesinin Denklem (II.36)' de yerine yazılmasıyla,

$$\sigma_1(\omega) = \frac{\pi^4}{12} e^2 (k_\beta T)^2 N^2(E_F) \frac{\omega R_\omega^4}{[2\alpha k_\beta T + (W_{H0} r_0 / R_\omega^2)]} \quad (\text{II.45})$$

olarak bulunur. Büyük polaron tünellemesi durumunda frekans üssü  $s$  hem sıcaklığa hem de frekansa bağlıdır ve  $s$ ,

$$s = 1 - \frac{1}{R_\omega^2} \frac{(4 + 6W_{H0} r_0^2 / k_\beta T R_\omega^2)}{(1 + W_{H0} r_0^2 / k_\beta T R_\omega^2)^2} \quad (\text{II.46})$$

şeklinde verilir. Burada  $R_\omega^2 = 2\alpha R_\omega$  ve  $r_0^2 = 2\alpha r_0$  olmak üzere sırasıyla, indirgenmiş tünelleme ve indirgenmiş polaron yarıçapıdır. Yukarıdaki ifadedden görüleceği  $r_0$  'ın büyük değerleri için  $s$  artan sıcaklıkla azalır.  $r_0$  'ın küçük değerleri için  $s$ , belirli bir sıcaklıkta minimum değere düşer ve daha sonra artan sıcaklıkla artar [51].

### II.3.3.2 İlişkilendirilmiş Engel Hoplama (CBH)

Daha önceki kısımlarda bahsedilen basit hoplama modelinde durulma değişkeni  $W$ 'nin siteler arası uzaklık  $R$ 'den bağımsız olduğu dolayısıyla, hoplama uzaklığının frekanstan bağımsız olduğu kabul edilir. Bu sınırlandırmayı kaldırmak üzere geliştirilen modelde, elektronların iki siteyi ayıran engelden ısıl uyarılmalarla transfer edildiği kabul edilir. Aralarında  $R$  kadar uzaklık bulunan komşu iki sitenin Coulomb potansiyelleri üst üste biner. Bu, etkin engel yüksekliğinin  $W_M$ 'den bir  $W$  değerine düşmesi demektir. Bir tek elektron geçişi için bu büyüklükler arasındaki ilişki,

$$W = W_M - \frac{e^2}{\pi\epsilon\epsilon_0 R} \quad (\text{II.47})$$

ile verilir. Bu durumda a.c. iletkenlik  $\sigma_1(\omega)$ , polarizabilite için Denklem (II.28) ve durulma zamanı  $\tau$  için de,

$$\tau = \frac{\tau_0 \exp(W/k_\beta T)}{\cosh(\Delta/2k_\beta T)} \quad (\text{II.48})$$

ifadesinin kullanılmasıyla ve  $\Delta_0 \ll k_\beta T$  olması koşuluyla,

$$\sigma_1(\omega) = \frac{1}{24} \pi^3 N^2 \epsilon\epsilon_0 \omega R_\omega^6 \quad (\text{II.49})$$

ifade edilir. Bu modelde hoplama uzaklığı  $R_\omega$  ise,

$$R_\omega = \frac{e^2}{\pi\epsilon\epsilon_0 [W_M - k_\beta T \ln(1/\omega\tau_0)]} \quad (\text{II.50})$$

bağıntısıyla verilir [26].

$\Delta_0 \gg k_\beta T$  limitinde ise a.c iletkenlik  $\sigma_1(\omega)$  şeklinde verilir.

$$\sigma_1(\omega) = \frac{1}{12} \pi^3 g_0^2 (k_\beta T)^2 \omega R_\omega^6 \quad (\text{II.51})$$

ifadesine indirgenir.

Burada  $g_0 = N/\Delta_0$  olup bir sabittir. Bu model frekansın üssü olan  $s$ 'nin her iki limit durum için,

$$s = 1 - \frac{6k_\beta T}{W_M - k_\beta T \ln(1/\omega\tau_0)} \quad (\text{II.52})$$

şeklinde ifade edilebileceğini söyler.

Denklem (II.52)' den görülebileceği gibi  $s$ , daha önceki modellerin öngördüğünün aksine en azından  $W_M/k_\beta T$ ' nin küçük değerleri için artan frekansla artar.  $W_M/k_\beta T$ ' nin büyük değerleri için ise  $s$ , 1' e çok yakın bir değer alır ve neredeyse frekanstan bağımsız kalır. Bu model a.c iletkenliğin sıcaklığa bağlılığının  $n$ ,

$$n = (1 - s) \ln(1/\omega\tau_0) \quad (\text{II.53})$$

olmak üzere,  $\sigma_1(\omega) \propto T^n$  şeklinde ifade edilebileceğini söyler. Kusurlar arasında aynı anda iki elektron hoptamasının olması durumunda yukarıdaki ifadeler düzeltme gerektirir. Bu durumda polarizabilite 4 ile, Denklem (II.47) ise 2 ile çarpılmalıdır. Bunlar yapıldığında dar bant limitinde ( $\Delta_0 \ll k_\beta T$ ) a.c iletkenlik bu kez,

$$\sigma_1(\omega) = \frac{1}{12} \pi^3 N^2 \varepsilon \varepsilon_0 \omega R_w^6 \quad (\text{II.54})$$

ve hoptama uzunluğu  $R_w$ ' da,

$$R_w = \frac{e^2}{\pi \varepsilon \varepsilon_0 [W_M - k_\beta T \ln(1/\omega\tau_0)]} \quad (\text{II.55})$$

şeklinde bulunur [51].

### II.3.3.3 Reider Modeli

Denklem (II.52)' nin sıcaklığa bağlı farklı bir formu,

$$\sigma(\omega, T) = ab^{T/Q} \quad (\text{II.56})$$

şeklinde yazılır. Burada  $b = 1/\omega\tau_0$ ' dir. Denklem (II.56) göre  $b$  ve  $Q$  sıcaklıktan bağımsız olduğunda  $T$ ' ye karşı çizilen  $\ln(\sigma, T)$  grafiğinin eğimi sabit olmalıdır. CBH modeli, QMT modelinin aksine, sıcaklığa bağlı bir  $s$  parametresi öngörmektedir.

Denklem (II.56) ifadesine göre a.c iletkenliğin sıcaklıkla doğrusal olarak artması beklenir. Ancak, çoğu durumda ölçülen a.c iletkenliğin sıcaklığa bağlılığının incelenmesinde iletkenliğin artan sıcaklıkla doğrusal olarak artmadığı görülür. Dolayısıyla, sadece  $s$  parametresinin sıcaklıkla değişimine bakarak iletkenliğin hangi modele uygun olarak gerçekleştiğini söylemek mümkün değildir. Aynı zamanda, sabit bir frekanstaki iletkenliğin sıcaklıkla değişimine de bakmak gerekir. Sabit bir frekans değeri için iletkenlik artan sıcaklıkla doğrusal olarak artmıyorsa bu iletim

mekanizmasının CBH modelinin öngörleriyle uyumlu olmadığı anlamına gelir. Bu durumda, iletim mekanizmasını açıklamak için Reider, Eliot tarafından öne sürülen modeli geliştirerek, engellerin üzerinden sıçramayı esas alan hem farklı site enerjilerine, uzunluğuna hem de birbiri arasındaki uzaklığı içeren, bir sıçrama modeli önerisiyle açıklamıştır. Elliot, sadece enerjileri eşit iki site arasındaki sıçramayı göz önünde bulundurmıştır. Siteler arasındaki enerji farklılıklarını hesaba kattığımızda ( $\Delta_0$ ), a.c iletkenlik,

$$\sigma(\omega, t) = T \tanh\left(\frac{\Delta_0}{2k_B T}\right) \frac{\omega^s}{\tau_0^\beta} \quad (\text{II.57})$$

şekline dönüşür. Bu ifade tamamıyla Elliot' un bulmuş olduğu ifadeyle aynı sonucu vermekte fakat farklı olarak  $T \tanh\left(\frac{\Delta_0}{2k_B T}\right)$  ifadesiyle çarpılmaktadır. Böylece site enerjilerinin çeşitliliği onların modeli dahilinde sıcaklığa bağlı iletkenlik artışını içermektedir.

## II.4 İNCE FİLM OPTİĞİ

İnce filmler, kalınlıklarının' den az olan filmler olarak tanımlanmışlardır. Kalınlığın alt sınırı ise, atomların tek tabaka olarak sıralandığı durum olarak tanımlanmıştır. Bu durumda kalınlık yaklaşık 1 nm' dir.

Maxwell eşitlikleri kullanılarak tek katlı veya çok katlı filmlerden yansıyan ve geçen ışık demetlerinin şiddetleri ve genlikleri uygun sınır şartları kullanılarak belirlenebilir. Bu eşitliklerin sonucu karmaşıktır ve filmlerin verilen kombinasyonlarının özelliklerinin değerlendirilmesi oldukça ayrıntılı hesaplar gerektirir.

### II.4.1 Soğurucu Ortam

Saydam ortamda, ışığın yansımaları için kullanılan eşitliklerde kırma indisi  $n$  yerine kompleks kırma indisi  $n$  yazılarak soğurucu ortamda ışığın yayılması açıklanır. İmajiner kısım ortamın enerji soğurmasıyla ilişkilidir [10].

Ortamda dalganın genliğindeki indirgeme, ortamda alınan yola doğrudan bağlıdır. Kırma indisi  $n$  olan soğurucu bir ortamda açılmal frekansı  $\omega$  olan bir dalganın elektrik alan vektörü normal geliş için,

$$E = E_0 \exp \left\{ i\omega \left[ t - \frac{n(\lambda x + \mu y + \nu z)}{c} + \frac{i\beta(\lambda' x + \mu' y + \nu' z)}{c} \right] \right\} \quad (\text{II.58})$$

olarak ifade edilebilir.  $c$  ışığın boşluktaki hızıdır. Burada  $(\lambda', \mu', \nu')$ , maksimum azalma yönüdür. Normal geliş için dalganın ifadesi

$$E = E_0 \exp \left\{ i\omega \left[ t - \frac{(n-ik)n(\lambda x + \mu y + \nu z)}{c} \right] \right\} \quad (\text{II.59})$$

halini alır. Bu durumda maksimum azalma yönü, yayılmanın yönü ile aynıdır. Denklem (II.59)' de  $n$ ; boşluktaki dalga hızının ortamdaki dalga hızına oranıdır. Burada  $k$  enerji soğurmasını temsil eder. Ortamdaki bir vakum dalga boyunun geçişi için dalganın genliğindeki zayıflama miktarı  $e^{(-2\pi k)}$ ' dir. Bunun aynı fazlı genlikli düzlemlere paralel olan dalga için uygulandığı söylenmelidir. Denklem (II.58)' deki  $\beta$  ortamdaki yayılma yönüne ve bundan dolayı geliş açısına bağlıdır.

Gerçekte soğurucu bir ortama giren dalganın yayılma denklemleri; saydam ortamın reel kırma indisi  $n$  yerine, kompleks kırma indisi  $(n-ik)$  yerleştirilmesi ile benzer formda elde edilir [10].

#### II.4.2 Saydam Bir Ortamda Işığın Yansıması ve Geçişi

İzotropik bir ortam için elektromagnetizma kanunları Maxwell denklemleri ile tanımlanır. Elektriksel nicelikler elektrostatik birimlerde ve magnetik nicelikler elektromagnetik birimde ölçülür. Uzay yükü olmayan bir ortam için ortamdaki elektromagnetik dalganın yayılmasını temsil eden

$$\frac{\epsilon\mu}{c^2} \frac{\delta^2 \vec{E}}{\delta t^2} + \frac{4\pi\mu\sigma}{c^2} \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} = \nabla^2 \vec{E} \quad (\text{II.60})$$

$$\frac{\epsilon\mu}{c^2} \frac{\delta^2 \vec{H}}{\delta t^2} + \frac{4\pi\mu\sigma}{c^2} \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} = \nabla^2 \vec{H} \quad (\text{II.61})$$

İletken olmayan ( $\sigma = 0$ ) bir ortamda yayılma için bu denklemler

$$\frac{\epsilon\mu}{c^2} \frac{\delta^2 \vec{E}}{\delta t^2} = \nabla^2 \vec{E} \quad (\text{II.62})$$

$$\frac{\epsilon\mu}{c^2} \frac{\delta^2 \vec{H}}{\delta t^2} = \nabla^2 \vec{H} \quad (\text{II.63})$$

olarak indirgenir. Dalga denkleminin iyi bilinen basit şekli, dalganın  $\frac{c}{\sqrt{\mu\epsilon}}$  ile yayıldığını gösterir. Optik frekanslarda  $n$ 'nin de ğeri tüm malzemeler için 1' den farklıdır. Yayılma hızı  $\frac{c}{\sqrt{\epsilon}}$ ' dir. Kırma indirisi tanımından  $n = \sqrt{\epsilon}$  sonucu elde edilir. İki ortamı ayıran sınırdaki yansıyan ve gelen ışın genliğinin hesaplanması, Maxwell eşitliklerine sınır koşullarının uygulanması ile yapılır. Bu yapıldığında yansıma faktörü (yansıyan ve gelen enerjilerin oranı olarak tanımlanır.)

$$R_P = \frac{(E_{0P}^-)^2}{(E_{0P}^+)^2} = r_{1P}^2 \quad (\text{II.64})$$

$$R_S = \frac{(E_{0S}^-)^2}{(E_{0S}^+)^2} = r_{1S}^2 \quad (\text{II.65})$$

ve geçirme faktörü

$$T_P = \frac{n_1(E_{1P}^+)^2}{n_0(E_{0P}^+)^2} = \frac{n_1}{n_0} t_{1P}^2 \quad (\text{II.66})$$

$$T_S = \frac{n_1(E_{1S}^+)^2}{n_0(E_{0S}^+)^2} = \frac{n_1}{n_0} t_{1S}^2 \quad (\text{II.67})$$

ile verilir. İzotropik bir ortama normal olarak gelen ışın için kırma indisinin terimleri ile ifade edilen yansıma ve geçirme katsayıları;

$$R_P = R_S = \left( \frac{n_0 - n_1}{n_0 + n_1} \right)^2 \quad (\text{II.68})$$

$$T_P = T_S = \frac{4n_0n_1}{n_0 + n_1} \quad (\text{II.69})$$

dır. Burada  $r_{1P}$  ve  $r_{1S}$  Fresnel yansıma katsayıları,  $t_{1P}$  ve  $t_{1S}$  ise Fresnel geçirme katsayılarıdır. Geçiş için Snell kanunlarını kullanarak Fresnel katsayılarını yazabiliriz [10].

$$r_{1P} = \frac{\tan(\varphi_1 - \varphi_0)}{\tan(\varphi_1 + \varphi_0)} \quad (\text{II.70})$$

$$t_{1P} = \frac{2 \sin \varphi_1 \cos \varphi_0}{\sin(\varphi_1 + \varphi_0) \cos(\varphi_1 - \varphi_0)} \quad (\text{II.71})$$

$$r_{1S} = \frac{\sin(\varphi_1 - \varphi_0)}{\sin(\varphi_1 + \varphi_0)} \quad (\text{II.72})$$

$$t_{1S} = \frac{2 \sin \varphi_1 \cdot \cos \varphi_0}{\sin(\varphi_1 + \varphi_0)} \quad (\text{II.73})$$

### II.4.3 Soğurucu Bir Ortamın Yüzeyinden Yansıma

Geçirgen bir ortama gelen ışığın yayılma denklemleri, gerçek kırma indisi yerine kompleks bir terim yerleştirilmesi ile soğurucu ortamda da kullanılabilir.  $n_1$  yerine  $n_1 = n_1 - ik_1$  yerleştirilerek,

$$\sin \varphi_1 = \frac{n_0 \cdot \sin \varphi_0}{n_1 - ik_1} \quad (\text{II.74})$$

olur.  $\varphi_1$  komplekstir,  $\varphi_0 = \varphi_1 = 0$  özel durumu haricinde kırma açısını temsil edemez. Yalnız bu durum fresnel yansıma katsayıları kolayca bulunur (Polarizasyonun her iki bileşeni de aynıdır).

$$r_P = r_S = \frac{n_0 - n_1 + ik_1}{n_0 + n_1 - ik_1} \quad (\text{II.75})$$

yüzeydeki yansıma için

$$R_P = R_S = \frac{(n_0 - n_1)^2 + k_1^2}{(n_0 + n_1)^2 + k_1^2} \quad (\text{II.76})$$

Şeklinde verilir. Normal geliş haricinde yansıma için tam doğru ifadeler çok karmaşık olup, bu tip problemlere bazı kullanışlı yaklaşımlar uygulanır. Birçok soğurucu malzemeler (özellikle metallerde) görünür bölgede  $n^2 + k^2 \gg 1$ ' dir. Bu yaklaşım, yansımalar için

$$R_p = \frac{(n^2 + k^2) \cos^2 \varphi_0 - 2n \cos \varphi_0 + 1}{(n^2 + k^2) \cos^2 \varphi_0 + 2n \cos \varphi_0 + 1} \quad (\text{II.77})$$

$$R_p = \frac{(n^2 + k^2) - 2n \cos \varphi_0 + \cos^2 \varphi_1}{(n^2 + k^2) + 2n \cos \varphi_0 + \cos^2 \varphi_1} \quad (\text{II.78})$$

Denklemlerine indirgenir. Dalganın sönümü, ortamda ilerleme mesafesine bağlı olduğundan Fresnel geçirgenlik katsayılarının soğurucu ortama giren dalga için doğrudan bir önemi yoktur. Kompleks Fresnel yansıtma katsayıları

$$r_{1P} = \sigma_{1P} \cdot e^{i\beta_{1P}} \quad (\text{II.79})$$

$$r_{1S} = \sigma_{1S} \cdot e^{i\beta_{1S}} \quad (\text{II.80})$$

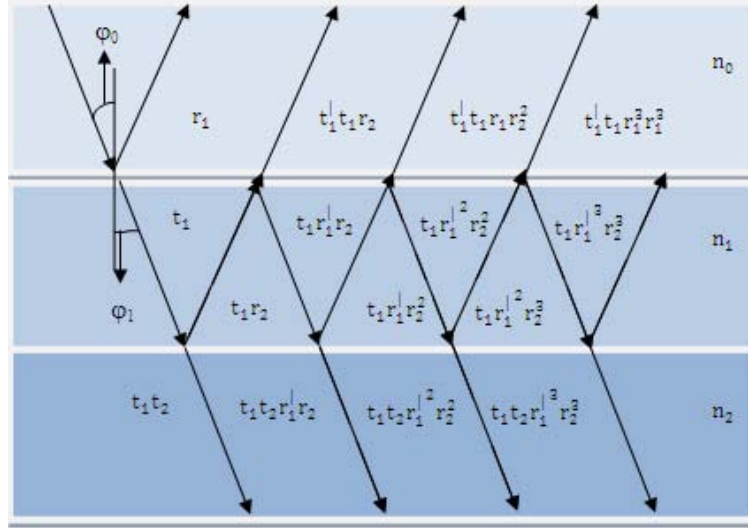
şeklinde yazılabilir.  $\sigma_{1P}$  ve  $\sigma_{1S}$  gelen dalganın genliği için yansıyan dalgaların genlikleri ve  $\beta_{1P}$  ve  $\beta_{1S}$  yüzeydeki faz değişimlerini temsil eder. Polarimetre ile optiksel sabitlerin belirlenmesi metotları ile  $\sigma = \frac{\sigma_{1P}}{\sigma_{1S}}$  oranı  $\beta = \beta_{1P} - \beta_{1S}$  diferansiyel faz değişimi hesaplaması uygun ölçümlerle belirleneceğinden bu form hayli kullanışlıdır.  $\alpha$  ve  $\beta$

$$\frac{1+\sigma.e^{i\beta}}{1-\sigma.e^{i\beta}} = \frac{\sin \varphi_0 \tan \varphi_0}{[(n-ik)^2 - \sin^2 \varphi_0]^{1/2}} \quad (\text{II.81})$$

denklemleri ile geliş açısı ve optik sabitlere bağlıdır [10].

#### II.4.4 Tek Bir Filmden Işığın Yansıması ve Geçişi (Toplama Metodu)

Film üzerine gelen bir ışın için yansıyan ve geçen kısımları ayırabiliriz. Her seferinde ara yüzeye gelen ışın da böyle bir ayırmanın olması ile yansıyan ve gelen ışınlar, çoklu yansıyan ve çoklu geçen elementlerin toplamı ile elde edilir. Tek katlı durum için ve yalnız bu durum için toplama kolayca yapılabilir. Sonuçlar Fresnel katsayılarının uygun terimleri ile ifade edilir. Kırma indisi  $n_2$  olan taşıyıcı üzerinde kırma indisi  $n_1$ , kalınlığı  $d$  olan film bulunur. Sisteme  $\lambda$  dalga boylu ve birim genlikli paralel ışık demeti düşün (Şekil II.4). İlk ortamın kırma indisi  $n_0$  ve ortama geliş açısı  $\varphi_0$  olsun, Fresnel katsayılarına dayanarak artarda gelen yansıyan ve geçen ışın demetlerinin genlikleri yazılabilir. Bu katsayıların tanımından, verilen sınır için  $r$  ve  $t$ ' nin değerlerinin sınıra karşı ışığın yayılma doğrultusuna bağlı olduğu açıktır. Kırma indisleri  $n_0$  ve  $n_1$  olan ortamların ara yüzeyine normal geliş için Fresnel yansıma katsayısı  $n_0$ ' dan gelen ışığın yansıması için  $\frac{n_0-n_1}{n_0+n_1}$  alınır. Geçirmeye karşılık Fresnel katsayıları  $n_0$ ' dan  $n_1$ ' e, geçen yayılma için  $\frac{2n_0}{n_0+n_1}$ , ve  $n_1$ ' den  $n_0$ ' a geçen yayılma için  $\frac{2n_1}{n_0+n_1}$  ' dir [10].



Şekil II.4 Bir filme gelen ışığın çoklu yansıma ve geçişleri

$n_0$  ortamında yansıyan ardışık ışın demetlerinin genlikleri  $r_1, t_1 t_1^l r_2, -t_1 t_1^l r_1 r_2^2, t_1 t_1^l r_1^2 r_2^3, \dots$  ve geçen genlikleri  $t_1 t_2, -t_1 t_2 r_1 r_2, t_1 t_2 r_1^2 r_2^2 \dots$  ile verilir [10]. Filmin bir yanından öbür yana geçen ışığın faz değişimi  $\delta_1$

$$\delta_1 = \frac{2\pi}{\lambda} \cdot n_1 d_1 \cos \varphi_1 \quad (\text{II.82})$$

yansıyan genlik

$$R = r_1 + t_1 t_1^l r_2 e^{-2i\delta_1} - t_1 t_1^l r_2^2 e^{-4i\delta_1} + \dots = \frac{r_1 + t_1 t_1^l r_2 e^{-2i\delta_1}}{1 + r_1 r_2 e^{-2i\delta_1}} \quad (\text{II.83})$$

ile verilir [10].

Zamana bağlı terim ihmal edilir. soğurucu olmayan ortamlar için Fresnel geçirme katsayıları  $r_1$  ve  $r_2$  ile ilgili olarak daha kolay yazılabilir. Enerji korunumundan,

$$t_1 t_1^l = 1 - r_1^2 \quad (\text{II.84})$$

yazılabilir. Böylece Denklem (II.85)

$$R = \frac{r_1 + r_2 e^{-2i\delta_1}}{1 + r_1 r_2 e^{-2i\delta_1}} \quad (\text{II.85})$$

olur. Geçen genlik

$$T = t_1 t_2 e^{-i\delta_1} - t_1 t_2 r_1 r_2 e^{-i3\delta_1} + t_1 t_2 r_1^2 r_2^2 e^{-i5\delta_1} - \dots = \frac{t_1 t_2 e^{-i\delta_1}}{1 + r_1 r_2 e^{-2i\delta_1}} \quad (\text{II.86})$$

ile verilir.

#### II.4.5 Optik Bant Aralığı Hesaplanması

Deneyel yöntemlerle bulunan soğurma katsayısını kullanarak optik bant aralığı hesaplanabilir. Soğurma katsayısına bağımlılık Denklem (II.87)' de verildiği gibidir [10].

$$\alpha(E) = A(E - E_g)^r \quad (\text{II.87})$$

Burada sırasıyla  $E = h\nu$  foton enerjisine ve  $E_g$  ise bant aralığına karşılık gelir. İndirek geçişlerde  $r, 2'$  ye eşittir, direk geçişlerde ise  $r, 1/2'$  ye eşittir. Denklem (II.127) yardımıyla direk ve indirek optik bant aralıkları belirlenebilir. Deneyden elde edilen soğurma katsayıları güçlü soğurucu bölgelerde kırma indisi ekstrapole edilerek o bölgelerdeki soğurma katsayıları hesaplanabilir ve optik bant aralığının ( $E_g^d$ ) belirlenmesi için  $h\nu'$  ye karşı  $(\alpha h\nu)^{1/2}$  ve indirek bant aralığının ( $E_g^{ind}$ ) belirlenmesi için  $h\nu'$  ye karşı  $(\alpha h\nu)^2$  grafikleri çizdirilir. Bu grafikler yardımıyla bant aralıkları hesaplanabilir [20].

## BÖLÜM III

### Deneysel Çalışmalar

Bu bölüm, sol-gel yöntemiyle  $WO_3$  ince filmlerin elde edilmesinde kullanılan başlangıç malzemeleri ile elde edilen filmlerin elektriksel karakterizasyonlarında kullanılan elektrot yapılarının eldesindeki işlem basamakları (IDT) ve elektriksel ve optik karakterizasyonda kullanılan deneysel düzeneklerin tanıtılmasına ayrılmıştır.

#### III.1 KULLANILAN KAPLAMA MALZEMESİ

##### Tungsten Oksit ( $WO_3$ )

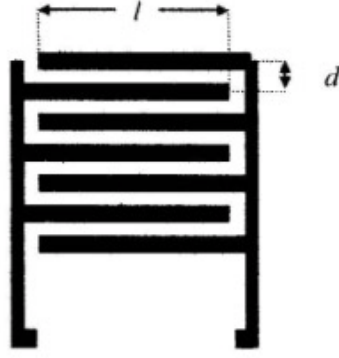
Şimdiye kadar, tungsten oksit filmler elde etmek için çok çeşitli başlangıç maddeleri kullanılmıştır. Bunlar  $WCl_6$  [27,38,48],  $H_2WO_4$  [40],  $WOCl_4$  [55],  $WO_3$  tozu[20] ve Tungsten metal tozudur [56]. Sol-gel yöntemiyle  $WO_3$  ince filmler elde etmek için kullanılan/kullanılacak başlangıç maddesinin seçimi son derece önemlidir.  $WO_3$  filmler hazırlamak için başlangıç maddesinden beklenenler:

- Seçilen maddenin çözünürlüğünün yüksek olması
- Buharlaştırmadan önce ayrışması
- Belirli bir süre kararlı kalması

şeklinde sıralanabilir.

#### III.2 İNTER DİJİTAL TRANSDUSER (IDT) VE YAPIMI

IDT, iç içe geçmiş parmaklı bir yapıya sahip elektrotlardan oluşur. Bu çalışmada kullanılan IDT' nin yapısı Şekil III.1' de gösterilmiştir.



**Şekil III.1** İnter Dijital Transduser Yapısı

IDT' nin geometrik yapısına bağlı olarak ince filmlerin iletkenliği aşağıdaki denklem ile,

$$\sigma = \frac{J}{E} = \frac{I \cdot A}{(V/d)} = \frac{I}{V} \frac{d}{(2n_p - 1) l_e \cdot h_e} \quad (\text{III.1})$$

hesaplanır. Denklem (III.1)' de  $d$  elektrotlar arası mesafe,  $l_e$  elektronların örtüşme uzunluğu ve  $n_p$ ' de parmak sayısı,  $J$  akım yoğunluğu,  $E$  elektrik alan,  $I$  ölçülen akım,  $A$  elektrotlar arasının kesit alanı,  $h_e$  elektrot kalınlığı ve  $V$  uygulanan gerilim değeridir [57].

İnter dijital transduser' in yapımı, yüksek vakum ortamında ince metal film kaplama ve fotolitografi tekniğine dayanır. Bu tekniğe göre, IDT üretiminde izlenecek yollar şunlardır;

- Altlık malzemesinin seçilmesi ve temizlenmesi
- Metal kaplama işlemi
- Fotorezist kaplama
- Pozlama ve banyo
- Metal aşındırma
- Optik ve elektriksel test

### **III.2.1 Altlık Malzemesinin Seçilmesi ve Temizlenmesi**

Altlık malzemeleri, filmin kaplandığı malzemelerdir. Altlık malzemesinin seçilmesinde, malzemenin ısıya ve kimyasal işlemlere dayanıklı olması ve elektriksel olarak yalıtkan olması ve kaplanacak malzeme ile etkileşmemesi gibi özellikler aranır.

Genelde mekanik olarak dayanıklı ve kaplanacak madde hariç diğer maddelere karşı duyarsız olması istenir. Altlık malzemesi olarak 76×26 mm boyutlarında 1mm kalınlığında mikroskop camları kullanılmıştır. Tüm altlık malzemelerinde aranan ortak özellikler aşağıdaki gibi sıralanabilir [10].

1. En az sayıda yüzey kusuru olmalı.
2. Isısal genleşme katsayısı, film ile uyum içinde olmalı
3. Filme oranla daha küçük kristal sabitine sahip olmalı
4. Kimyasal, ısısal ve mekanik açıdan dayanıklı olmalı

Kimyasal çalışmalarda ve özellikle sol-gel yöntemiyle yapılan ince film kaplamalarında kullanılan malzemenin temizliği çok önemlidir ve bu devre elemanlarının karakteristiğini oldukça etkiler [10,26]. Altlık malzemeleri; organik kalıntılar, yağlar, metaller veya iyon haldeki atomlar tarafından kirletilmiş olabilir. Temizliğin amacı, altlık malzemelerinin elektriksel veya optik özelliklerinin kirletici tarafından değiştirilmesini engellemektir. Kirlilik temizlenmediği takdirde deney sonuçlarını etkiler. Temizlik işleminde hangi kimyasalların kullanılacağı kirliliğin tipine göre değişir. Eğer altlık malzemesinin üstü yağ ile kirletilmişse önce yağ temizlenmelidir. Organik yağla, kloroform veya metilen klorit ile temizlenebilir. Eğer altlık malzemesi organik kalıntılar ile kirletilmişse; bu kalıntı organik çözücülerle eritilerek, mor ötesi ışın ile temizlenebilir. Altlık malzemesi anorganik bir malzeme ile veya metalik iyonlar ile kirletilmişse, çözücü olarak HCl-H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> karışımı kullanılabilir. Kirletici metal ise, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>-H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> karışımı kullanılır [10].

IDT yapımında altlık malzemesi olarak kullanılan camlar kullanıma hazır hale getirilmek üzere aşağıdaki temizleme işlemlerine tabi tutulmuştur.

- De iyonize su ve sıvı laboratuvar deterjanı ile 5 dakika yıkama
- Sodyum bikromat dehidrat ile 5dakika yıkama
- De iyonize su ile 1dakika durulama
- Ultrasonik Temizleyici makinede 25 dakika aseton ile yıkama
- Ultrasonik Temizleyici makinede 25 dakika isopropil alkol ile yıkama
- Ultrasonik Temizleyici makinede 25 dakika de iyonize su ile yıkama
- Azot ile kurutma
- Sıcaklığı 95°C ye ayarlanmış etüv de 30-35 dakika kurutma

IDT yapıldıktan sonra üzerine WO<sub>3</sub> film kaplama işlemine geçmeden önce ise son bir kez daha aseton ve DI su ile temizlenmiştir. Daha sonra azot gazı ile kurutulup kullanıma hazır hale getirilmiştir.

### **III.2.2 Metal Kaplama İşlemi**

Bu kaplama işlemi ısı buharlaştırma yöntemiyle gerçekleştirilmiştir. (EDWARDS Model 500 Kaplama Sistemi). Camlar, bir yüzeyi kaplanacak şekilde vakum hücresindeki örnek tutucuya temizlenmiş olarak monte edilmiştir. Ardından bu hücredeki iki ayrı potaya sırasıyla %99.9 saflıklarda 0.05 g krom ve 0.5 g altın metalleri yerleştirilerek, kaplama bölümü vakuma alınmış, vakum seviyesi 10<sup>-6</sup> mbar' a ulaştıktan sonra metal kaplama işlemine geçilmiştir. Camların yüzeyine ilk olarak altının yüzeye sıkı tutunmasını kolaylaştırdığı için 100 Å krom sonrada 1100 Å kalınlıkta altın kaplanmıştır.

### **III.2.3 Fotorezist Kaplama**

Bu işlem sarı ışıklı temiz bir odada ve UV ışığa duyarlı pozitif fotorezist kullanılarak yapılmıştır. Fotorezist kaplama işlemi Speciality Coatings model P6700 spin-coating ince film kaplama cihazıyla yapılmıştır. Bu şekilde fotorezist malzemenin metal kaplı cam üstünde ince, düzgün ve pürüzsüz bir film olarak kaplanması sağlanmıştır. Kaplanan fotorezist ince filmin kurutulması amacıyla, numune 80 °C ye ayarlanmış bir fırında 20-30 dakika muhafaza edilmiştir.

### **III.2.4 Pozlama ve Banyo**

Pozlama işlemi, IDT yapısındaki maskenin fotorezist kaplı cam yüzeyine dikkatli bir şekilde yerleştirilmesi ve 3-5 dakika süreyle 500 Watt' lık bir ultraviyole ışık kaynağına maruz bırakılmasıyla gerçekleştirilmiştir.

Pozlama işlemi bittikten sonra, fotorezist kaplı metal film %6' lık NaOH çözeltisi içerisinde, 3-5 dakika süreyle banyo işlemine tabi tutulmuştur. IDT yapısındaki maskenin saydam bölgelerinden geçen ışığın etkisiyle bozulan fotorezistin, bu çözeltinin içinde çözünmesi sağlanmıştır. Banyo işlemi biten numune metal aşındırma işlemine hazır hale getirilmesi için DI su ile yıkanması ve ardından kurutulması gerekmektedir.

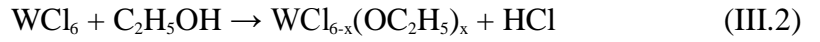
### III.2.5 Metal Aşındırma İşlemi

Cam üzerindeki altın kaplı filmin üzerindeki bozulmamış fotoreziste zarar vermeden, altın ve krom ince filmlerin aşındırılması önemlidir. Metal aşındırma işleminde ilk önce IDT yapıda elektrotların bulunduğu bölgeler dışında kalan altın kaplı ve daha sonra krom kaplı bölgeler özel altın ve krom aşındırıcı çözeltiler kullanılarak aşındırılmıştır. Son olarak, IDT yapının elektrotları üzerindeki bozulmamış fotorezist aseton yardımıyla temizlenerek DI su ile yıkanarak ve ardından basınçlı azot kurutulmuştur.

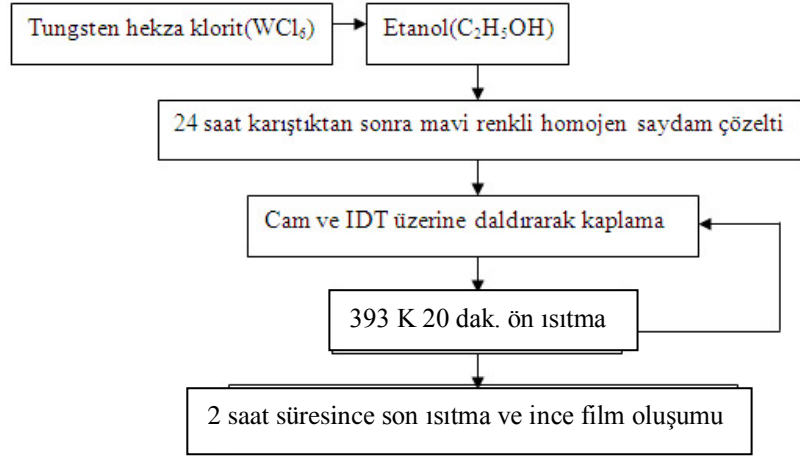
Üretilen IDT' ler, optik mikroskop altında elektrot yapısında kusur olup olmadığına bakıldıktan ve vakum ortamında ( $10^{-3}$  mbar) iletkenlik değerleri analiz edildikten sonra ince film kaplamalarında kullanılmışlardır.

### III.3 WO<sub>3</sub> İNCE FİMLERİN HAZIRLANMASI

Gerek katkılı gerekse katkısız WO<sub>3</sub> ince filmler sol-gel yöntemiyle hazırlanmıştır. Bu amaçla önce çözeltiler (Sol) hazırlanmıştır. Katkısız tungsten oksit çözeltisi hazırlamak için, 1 gr WCl<sub>6</sub> (tungsten hekza klorit) 10 ml Etanol(C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH) de manyetik karıştırıcı da devamlı karıştırılmak suretiyle çözülmüştür. Gerçekleşen reaksiyon denklemi aşağıdaki gibi tanımlanır:

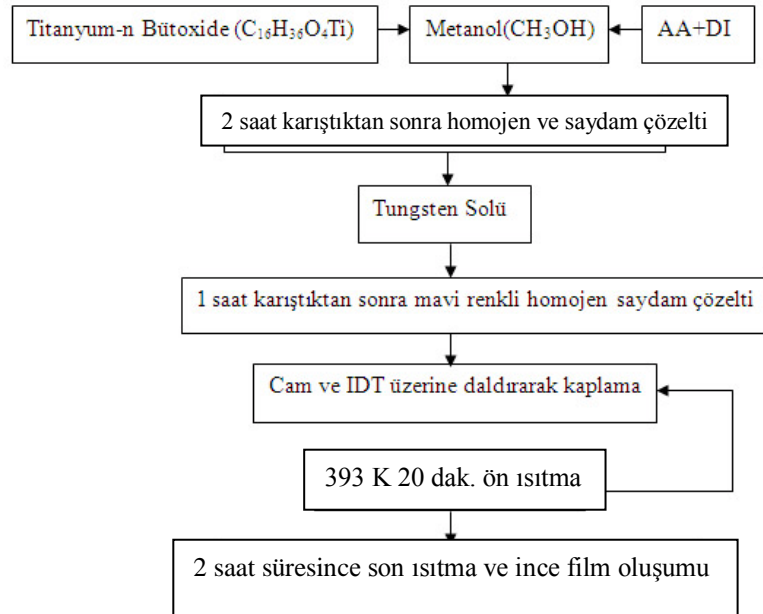


Birkaç grup tarafından bu reaksiyonun mekanizması açıklanmıştır [58-59]. Reaksiyonun ilk 2-3 dakikası içerisinde, Etanol tarafından W<sup>6+</sup> nın W<sup>5+</sup> ' e indirgenmesiyle çözelti hızlıca sarıdan koyu maviye dönmektedir. Reaksiyon yavaş gerçekleşir. Bir süre sonra koyu mavi çözeltinin homojenleştiği ve saydamlaştığı gözlenir. Tungsten oksit solünün ve ince filminin hazırlanmasının diyagramı Şekil III.2' te gösterilmiştir.



**Şekil III.2** Çözelti ve ince film hazırlanmasının akış diyagramı

TiO<sub>2</sub> katkılı WO<sub>3</sub> ince filmi hazırlamak üzere ise uygun miktarda Titanyum-n Bütokside (C<sub>16</sub>H<sub>36</sub>O<sub>4</sub>Ti), Metanol(CH<sub>3</sub>OH) içinde çözülmüştür. Daha sonra çözeltiye glacial Asedik Asit ve DI su bu çözeltiye eklenerek TiO<sub>2</sub> çözeltisi hazırlanmış olur. Ti atomlarının W atomlarına mol sayısı oranları sırasıyla %1.7, %3.4, %6.8 ve %13.6 olacak şekilde WO<sub>3</sub> çözeltisine katkılanarak oluşturulan çözeltiler oda sıcaklığında ve hava ortamında yaklaşık 1-2 saat karıştırılarak kaplamaya uygun hale getirilmiştir. Şekil III.3 ' te Tungsten oksit solünün titanyum oksit solü ile karıştırılıp film yapılmasının akış diyagramı gösterilmektedir.



**Şekil III.3** Titanyum katkılı tungsten oksit çözelti hazırlanmasının akış diyagramı

Katkısız ve katkılı  $WO_3$  ince filmler, Şekil III.4’ de gösterilen deney düzeneğinde “daldırarak kaplama” yöntemiyle 4 kat kaplanarak hazırlanmıştır. Bölüm III.2’ de anlatıldığı gibi temizlenen camlar sabit bir hızla, hazırlanan çözelti içerisine daldırılıp hiç bekletmeden çekilmiştir. Çözelti içerisinden çıkarılan camlar düşey olarak oda koşullarında 2 dakika bekletilerek camın üzerindeki fazlalığın süzülmesi ve homojen bir dağılım elde edilmesi sağlanmıştır.



**Şekil III.4** Daldırarak ince film kaplama deney düzeneği

Her bir kat sonrası filmler 393 K’ de 20 dak. süreyle ara tavlama işlemine tabi tutulmuştur. Hazırlanan tüm katkısız filmler kaplama işleminin tamamlanmasından sonra sırasıyla 603 K, 653 K, 703 K ve 753 K’ de 2 saat tavlama işleme tabi tutulmuşlardır.  $TiO_2$  katkılı  $WO_3$  ince filmler ise 653 K’ de 2 saatlik tavlama işlemine tabi tutulmuştur. Tavlama işlemleri atmosfer ortamında yapılmıştır.

#### **III.4 YAPISAL KARAKTERİZASYON**

Hazırlanan filmlerin, X-ışınları kırınım cihazı (XRD) kullanılarak yapılan yapısal analiz sonucunda triklinik yapıda olduğu görülmüştür. Ölçümler (Rikagu D/Max/2200/PC(ULTİMA II)) marka XRD cihazı kullanarak  $2\theta \leq 60^\circ$  aralığında monokromatik  $Cu/K\text{-}\alpha_1$  ( $\lambda=1.54059 \text{ \AA}$ ) radyasyonu ile gerçekleştirilmiştir.

#### **III.5 ELEKTRİKSEL KARAKTERİZASYON**

Elektriksel karakterizasyon, doğru akım (d.c.) akım-gerilim (I-V) ve alternatif akım (a.c.) iletkenlik, kapasite, empedansın gerçek ve sanal kısımları, sıcaklığın bir

fonksiyonu olarak vakum ortamında ( $3 \times 10^{-3}$  mbar) ölçülmesi ile gerçekleştirilmiştir. Bu çalışmada kullanılan d.c. ve a.c. özellikleri belirlenecek, IDT üstüne kaplanmış katkılı ve katkısız  $WO_3$  ince filmler,  $1 \times 3$  cm boyutlarında kalınlığı ise 1mm olan alüminyum altlık üzerine sabitlenmiştir. Alüminyum altlık üstüne sabitlenen ince filmler alüminyumdan yapılmış ölçüm hücresine yerleştirilmiştir. Örnek ve ölçüm hücresi arasındaki elektriksel kontaklar sıvı gümüş kullanılarak yapılmıştır. Katkılı ve katkısız filmlerin d.c ve a.c ölçümleri 303 – 523 K sıcaklık aralığında 14 farklı sıcaklık değerinde yapılmıştır. Tüm ölçümler IEEE-488 işletim sistemine sahip bilgisayar destekli ölçüm sistemi ile yapılmıştır. d.c. ve a.c. ölçümleri için kullanılan deney düzeneği Şekil III.5’ te gösterilmiştir.



Şekil III.5 d.c. ve a.c. Ölçümlerde Kullanılan Deneysel Düzenek

### III.5.1 d.c. Elektriksel Karakterizasyon

Filmlerin doğru akım iletkenlik (d.c.) ölçümleri, -1 volt ile +1 volt aralığında 50 mV’ luk artış değerleriyle akım-gerilim (I-V) ölçümlerinin yapılması suretiyle gerçekleştirilmiştir. Ölçümlerde, IDT elektrotlar üzerine hazırlanan filmlere bir elektrometre (Keithley 617 Model) yardımıyla -1 volt ile +1 volt arasında periyodik değişen üçgen sinyal uygulanmış ve filmlerden geçen akım ölçülerek kayıt edilmiştir. D.c. ölçümler 303 – 523 K arasında 14 farklı sıcaklıkta yapılmıştır. Elde edilen (I-V) grafiklerinin eğimlerinden, Denklem (III.1) kullanılarak, katkısız ve Ti katkılı filmlerin her bir ölçüm sıcaklığındaki iletkenlikleri hesaplanmıştır. Elde edilen d.c iletkenlik değerlerinin ( $\sigma_{d.c}$ ) sıcaklığın tersine ( $1/T$ ) bağlı grafikleri çizilerek bu grafiklerin eğiminden incelenen filmlerin aktivasyon enerjisi hesaplanmıştır.

### III.5.2 a.c. Elektriksel Karakterizasyon

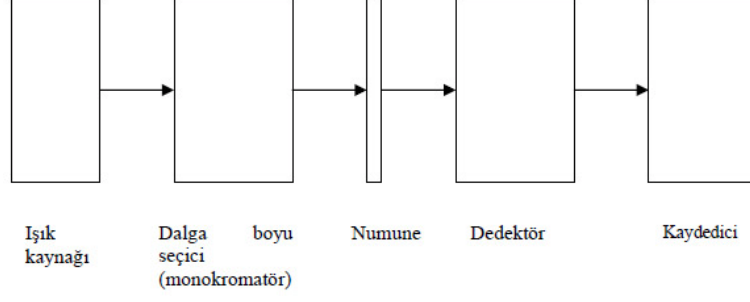
Filmlerin alternatif akım (a.c.) iletkenlik ölçümleri bilgisayar kontrollü Keithley 3330 model LCZ-metre cihazı kullanılarak frekansın ve sıcaklığın fonksiyonu olarak yapılmıştır. Ölçüm sırasında ince filmlere 100 mV genlikli bir sinüs sinyali 40 Hz -100 kHz aralığında uygulanmıştır. Bu ölçümlerde frekansa bağlı olarak empedansın gerçek ve sanal bileşenleri, iletkenlik ve kapasite değerleri ölçülerek, Reel empedans-sanal empedans ( $R_s-X$ ), frekans-iletkenlik ( $f-\sigma_{a.c.}$ ), frekans-kapasitans ( $f-C$ ), ( $f-Z$ ) frekans-empedans grafikleri çizilmek suretiyle filmlerin frekansa bağlı a.c. elektriksel parametrelerinin davranışı incelenmiştir. Ölçümlerden elde edilen sonuçlar değerlendirilerek her bir örnek için frekansa bağlı iletkenliğin kaynağının, Bölüm II.5' de açıklanan frekansa bağlı iletkenlik modellerinden hangisine uyduğu açıklanmıştır. Elde edilen  $\ln \sigma_{a.c} - \ln f$  grafiklerinin doğrusal kısımlarının eğimlerinden Denklem (II.12)' deki s parametresi hesaplanmıştır.

### III.6 OPTİK ÖLÇÜMLER

Soğurulmanın ölçülmesi sırasında ışık kaynağından gelen polikromatik ışıktan tek dalga boylu ışık seçilerek örneğe gönderilir. Polikromatik ışıktan monokromatik ışık elde edilen düzeneğe monokromatör denir [48].

Daha sonra tek dalga boyuna ayrılmış ışık numune üzerine düşer. Eğer bu fotonun enerjisi enerji bant aralığından yüksek ise ışık soğurulur, enerji bant aralığından küçük ise fotonlar soğurulmadan direk geçer. Maddeden geçen ışığın ne kadar soğurulduğunu anlamak için geçen demet şiddetini ölçmek üzere düzeneğe dedektör yerleştirilmiştir [48].

Bir UV-VIS spektrometresi ışık kaynağı, bir monokromatör ve dedektörden oluşur. Dedektörde elektrik sinyaline dönüşen optik sinyal bir kaydedici ile ölçülür. Bu cihazda ışık kaynağı olarak tungsten flamanlı lambalar, xenon ark lambaları, döteryum ve hidrojen lambaları kullanılır. UV-VIS spektrometresinin temel yapısı Şekil III.6' de gösterilmiştir. Optik geçirgenlik ve soğurma ölçümleri Shimadzu UV-1800 Model UV spektrometre yardımıyla yapılmıştır. Filmlerin kalınlığı ve kırma indisleri ise PZ-2000 marka Elipsometre cihazıyla ölçülmüştür.



**Şekil III.6** UV-VIS spektrometresinin yapısı

Bu çalışmada hazırlanan WO<sub>3</sub> ince filmlerin optik ölçümleri, 285-800 nm dalga boyu aralığında soğurma ve geçirgenlik özellikleri incelenerek gerçekleştirilmiştir. Elde Edilen veriler yardımıyla dalga boyuna bağlı geçirgenlik ve soğurma grafikleri çizdirilmiştir. Daha sonra ise soğurma ve kalınlık değerlerini kullanarak Denklem (III.3) yardımıyla;

$$\alpha = \frac{A_\lambda}{h} \quad (III.3)$$

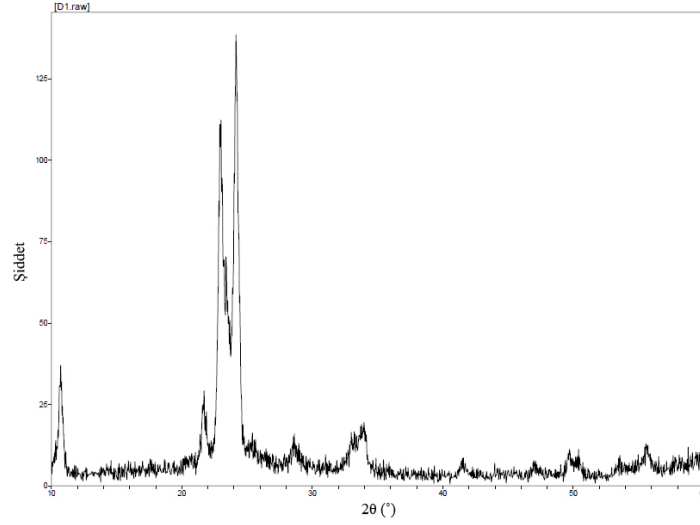
soğurma katsayıları hesaplanmıştır. Denklem (III.3)' de  $\alpha$  soğurma katsayısı,  $A_\lambda$  soğurma (ölçülen değer),  $h$  filmin kalınlığıdır. Katkılı ve katkısız ince filmlerin her biri için optik bant aralığını ( $E_g$ ) belirlemek üzere  $h\nu$ ' ye bağlı  $(\alpha h\nu)^{1/2}$  grafikleri çizdirilmiştir. Bu grafikler yardımıyla optik bant aralıkları hesaplanmıştır.

## BÖLÜM V

### SONUÇLAR

#### IV.1 KATKISIZ VE KATKILI WO<sub>3</sub> İNCE FİLMLERİN YAPISAL ANALİZLERİ

Hazırlanan katkısız ve katkılı WO<sub>3</sub> ince filmlerin yapısal özellikleri Rikagu D/Max/2200/PC(ULTİMA II) marka XRD cihazı kullanarak  $10 \leq \theta \leq 60^\circ$  aralığında, monokromatik Cu/K-alpha1 ( $\lambda=1.54059 \text{ \AA}$ ) radyasyonu ile incelenmiştir. X-ışınları kırınım cihazı (XRD) kullanılarak yapılan, Şekil IV.1' de gösterilen katkısız ince filmin yapısal analiz sonucunda filmlerin triklinik yapıda olduğu görülmüştür.



Şekil IV.1. Katkısız WO<sub>3</sub> ince filmin XRD spektrumu

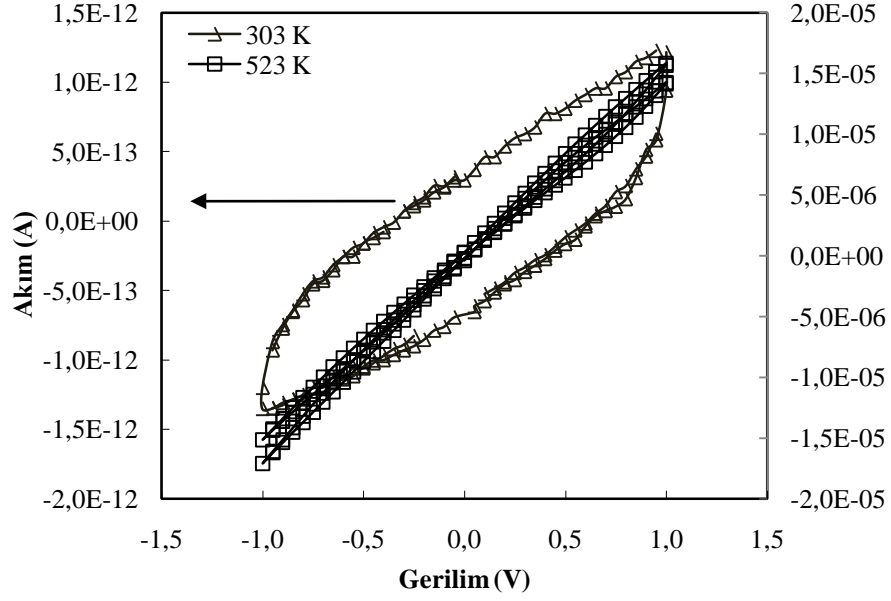
## IV.2 KATKISIZ VE KATKILI WO<sub>3</sub> İNCE FİLMLERİN ELEKTRİKSEL ÖZELLİKLERİ

### IV.2.1 d.c ve a.c Ölçümlerinden Elde Edilen Bulgular

Sol-gel daldırma yöntemiyle hazırlanan tüm katkısız ve katkılı filmlerin elektriksel karakterizasyonu, doğru akım (d.c.) akım-gerilim (I-V) ve alternatif akım (a.c.) iletkenlik, kapasite ve empedans değerleri sıcaklığın bir fonksiyonu olarak vakum ortamında ( $3 \times 10^{-3}$  mbar) ölçülmesi suretiyle yapılmıştır. Frekansa bağlı ölçümler, örneklere frekansı 40 Hz -100 kHz arasında değişen ve genliği 100mV olan a.c sinyali uygulamak suretiyle gerçekleştirilmiştir. Gerek katkılı, gerekse katkısız filmler ortamdaki gaz moleküllerinin ve nemin etkisini ortadan kaldırmak için vakum ortamında ve ayrıca ışığın filmlerin elektriksel iletkenliklerine etkisini ortadan kaldırmak amacıyla karanlık bir ortamda gerçekleştirilmiştir. Her bir örneğin d.c ve a.c ölçümünden elde edilen bulgular aşağıda verilmiştir. Tüm elektriksel ölçümler 303 – 523 K aralığında ölçülmüştür.

#### IV.2.1.1 d.c İletkenlik Ölçümlerinden Elde Edilen Bulgular

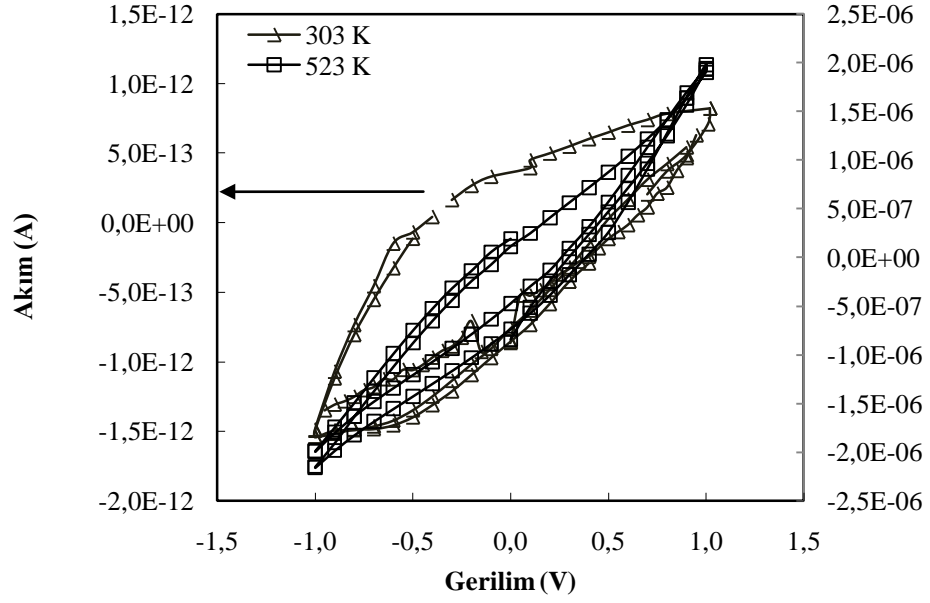
İnce filmlerin d.c iletkenlik ölçümleri 303 – 523 K sıcaklık aralığında 14 farklı sıcaklıkta ölçülmüştür. Bu ölçümlerde örnekler ölçüm sıcaklığına kadar ısıtılmış, örneğin üzerinden geçen akım dengeye geldikten sonra ilgili ölçüm yapılmıştır. Hazırlanan her bir ince filmin d.c elektriksel karakterizasyonu, -1 V ile +1 V arasında akım-gerilim (I-V) değerleri ölçülmek suretiyle yapılmıştır. 753 K' de tavlanmış katkısız WO<sub>3</sub> ince filmin 303 ve 523 K sıcaklıklarındaki (I-V) grafiği Şekil IV.2' de gösterilmiştir.



**Şekil IV.2** 753 K' de tavlanmış katkısız WO<sub>3</sub> ince filmin 303 ve 523 K sıcaklıklarındaki (I-V) grafiği

Şekil IV.2' den görüleceği gibi düşük sıcaklıklarda histerezis etkisi gözlenirken, yüksek sıcaklıklara çıkıldıkça histerezis etki ortadan kalkmıştır. Histerezis etkisinin yasak bant aralığındaki tuzak seviyelerinden kaynaklanabileceği düşünülmektedir. Diğer bütün katkısız WO<sub>3</sub> ince filmler de benzer davranış göstermişlerdir. Bütün katkısız WO<sub>3</sub> ince filmler ohmik davranış göstermişlerdir.

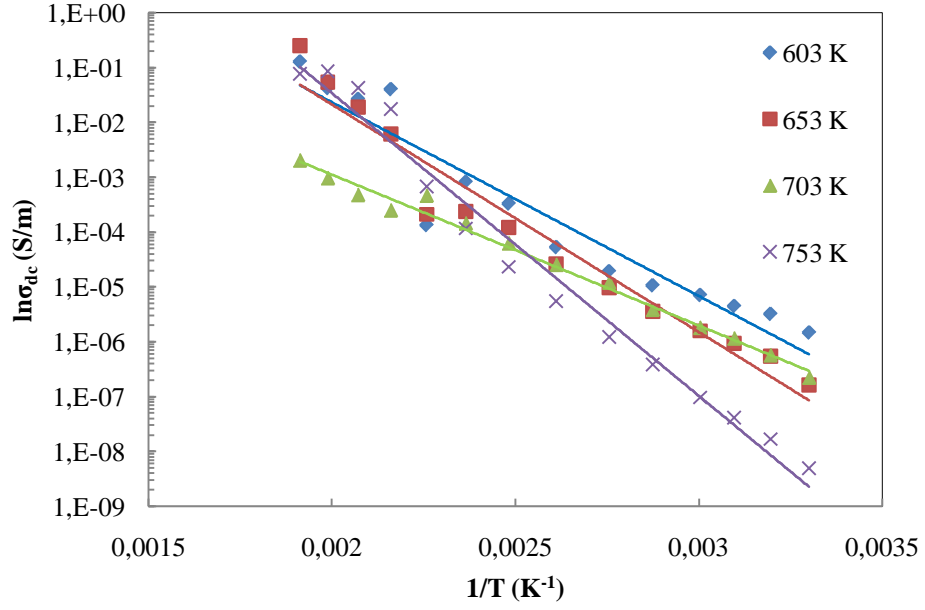
% 1.7 Ti katkılı WO<sub>3</sub> ince filmin 303 ve 523 K sıcaklıklarındaki (I-V) grafiği Şekil IV.3' de gösterilmiştir.



**Şekil IV.3** %1.7 Ti Katkılı WO<sub>3</sub> ince filmin 303-523 K sıcaklıklarındaki (I-V) grafiği

Şekil IV.3' den de görüleceği gibi % 1.7 Ti katkılı WO<sub>3</sub> ince filmde düşük sıcaklıklarda histerezis etkisi gözlenirken, yüksek sıcaklıklarda histerezis etkisinin azaldığı görülmüştür. Katkılı diğer filmlerde benzer davranış sergilerken, tümü ohmik davranış göstermiştir.

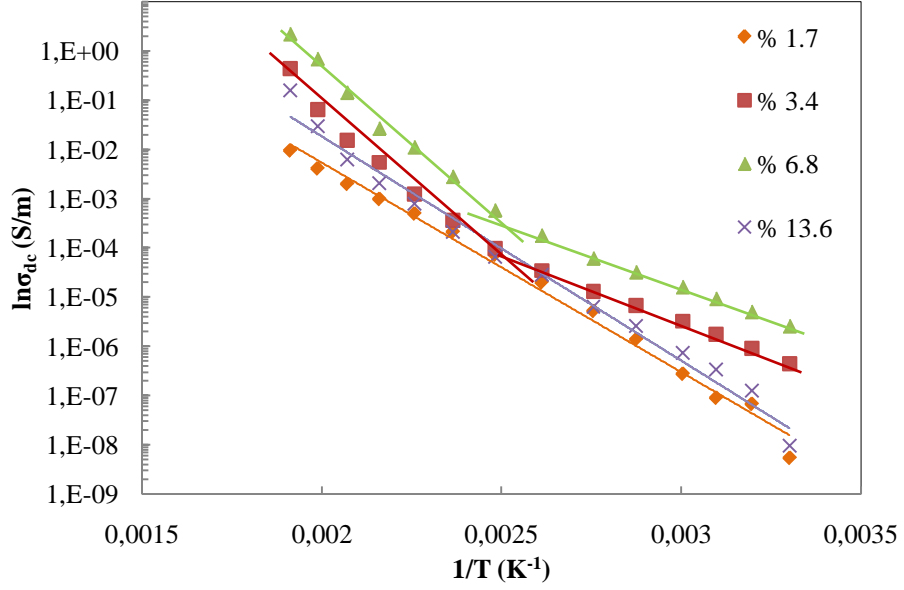
603 K, 653 K, 703 K ve 753 K olmak üzere 4 farklı sıcaklıkta tavlanan katkısız WO<sub>3</sub> ince filmlerin d.c iletkenliklerinin sıcaklığa bağlı değişimi Şekil IV.4' te verilmiştir.



**Şekil IV.4** Katkısız WO<sub>3</sub> ince filmlerin d.c iletkenliğinin sıcaklıkla değişimi

Katkısız WO<sub>3</sub> ince filmlerin (I-V) grafiğinin eğimi ve Denklem (III.1) yardımıyla hesaplanan d.c iletkenlikleri, Şekil IV.4' te görüleceği gibi 1/T ile doğrusal olarak değişmektedir. Sıcaklık arttıkça iletkenlik değerlerinin doğrusal olarak arttığından dolayı bu filmlerin yarıiletken davranışı gösterdikleri söylenebilir.

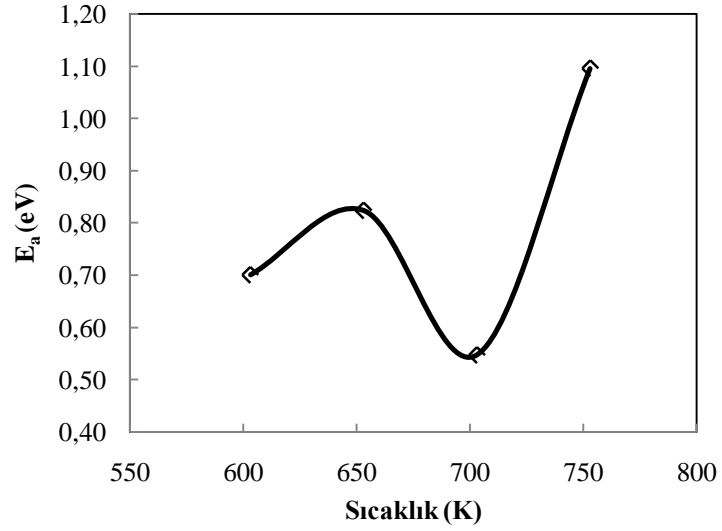
% 1.7, % 3.4, % 6.8 ve % 13.6 olmak üzere 4 farklı katkı oranda Ti katkılanan WO<sub>3</sub> ince filmlerin d.c iletkenliklerinin sıcaklığa bağlı değişimi ise Şekil IV.5' de verilmiştir.



**Şekil IV.5** Ti Katkılı WO<sub>3</sub> ince filmlerin d.c iletkenliğinin sıcaklıkla değişimi

Katkılı ince filmlerin (I-V) grafiğinin eğimi ve Denklem (III.1) yardımıyla hesaplanan d.c iletkenlikleri, Şekil IV.5’ de gösterilmiştir. Şekil IV.5’ den açıkça görüleceği gibi %3.4 ve %6.8 oranında Ti katkılanmış filmlerin  $\ln \sigma_{dc}-1/T$  grafikleri eğimleri farklı olan iki doğrusal bölgeden oluşurken %1.7 ve %13.6 oranında Ti katkılanmış filmlerde bu tek eğimli bir doğrudan oluştuğu görülmüştür.

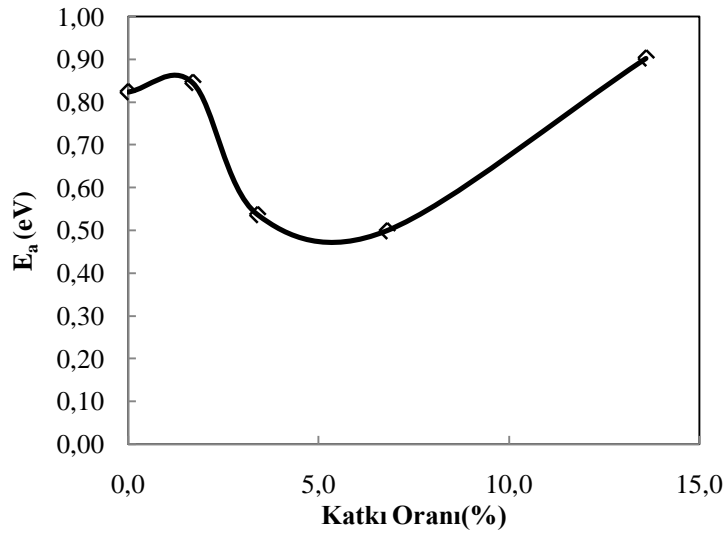
Katksız WO<sub>3</sub> ince filmlerin Denklem (II.9) ile hesaplanan aktivasyon enerjisinin tavlama sıcaklığına bağlı değişimi Şekil IV.6’ da verilmiştir.



**Şekil IV.6** Katkısız WO<sub>3</sub> ince filmlerin aktivasyon enerjisinin tavlama sıcaklığına bağlı değişimi

Şekil IV.6' den görüleceği gibi genelde tavlama sıcaklığının artışı aktivasyon enerjisinde de bir artışa neden olurken 703 K' de tavlamanın aktivasyon enerjisinde bir azalmaya neden olduğu görülmüştür.

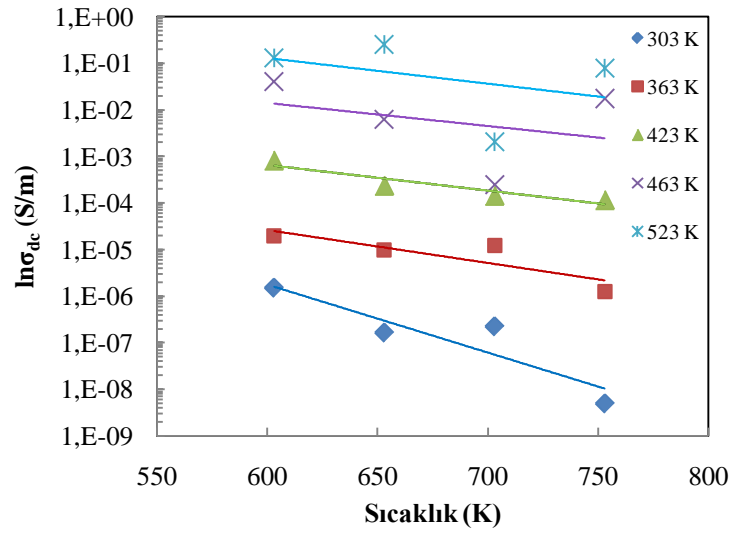
Ti katkılı WO<sub>3</sub> ince filmlerin Denklem (II.9) kullanılarak hesaplanan aktivasyon enerjisinin katkı oranına bağlı olarak değişimi Şekil IV.7' de verilmiştir.



**Şekil IV.7** Ti Katkılı WO<sub>3</sub> ince filmlerin aktivasyon enerjisinin katkı oranına bağlı değişimi

Şekil IV.7' den görüleceği gibi %1.7 oranında Ti katkılama aktivasyon enerjisinde bir artışa neden olurken % 3.4 ve % 6.8 katkı oranları aktivasyon enerjisinde bir azalmaya neden olmuş % 13.8 oranında Ti katkılama ise aktivasyon enerjisinde artışa neden olmuştur. %3.4 ve %6.8 Ti katkılı filmlerin  $\ln \sigma_{dc}-1/T$  grafikleri, eğimleri farklı olan iki doğrusal bölgeden oluştuğu için her ikisinde de yalnızca 1. bölgelerinin eğiminden aktivasyon enerjisi hesaba katılmıştır.

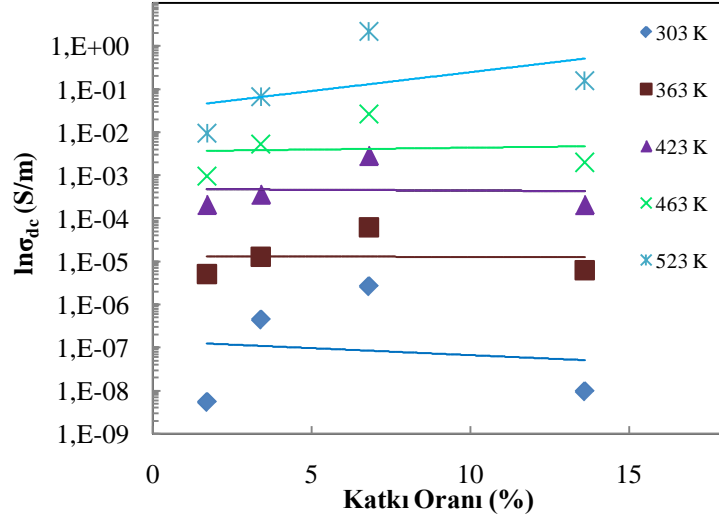
Katkısız  $WO_3$  filmlerin tavlama sıcaklığına bağlı olarak 303 K, 363 K, 423 K, 463 K ve 523 K sıcaklıklarındaki iletkenliklerinin değişimi Şekil IV.8' de verilmiştir.



**Şekil IV.8** Katkısız  $WO_3$  ince filmlerin bazı sıcaklıklardaki d.c iletkenliklerinin tavlama sıcaklığına bağlı değişimi

Şekil IV.8' den açıkça görüleceği gibi tavlama sıcaklığındaki artış ile birlikte bütün örneklerin iletkenlik değerlerinde azalma görülmüştür.

Ti katkılı  $WO_3$  film için katkı miktarına bağlı iletkenlikteki değişim ise Şekil IV.9' da verilmiştir.



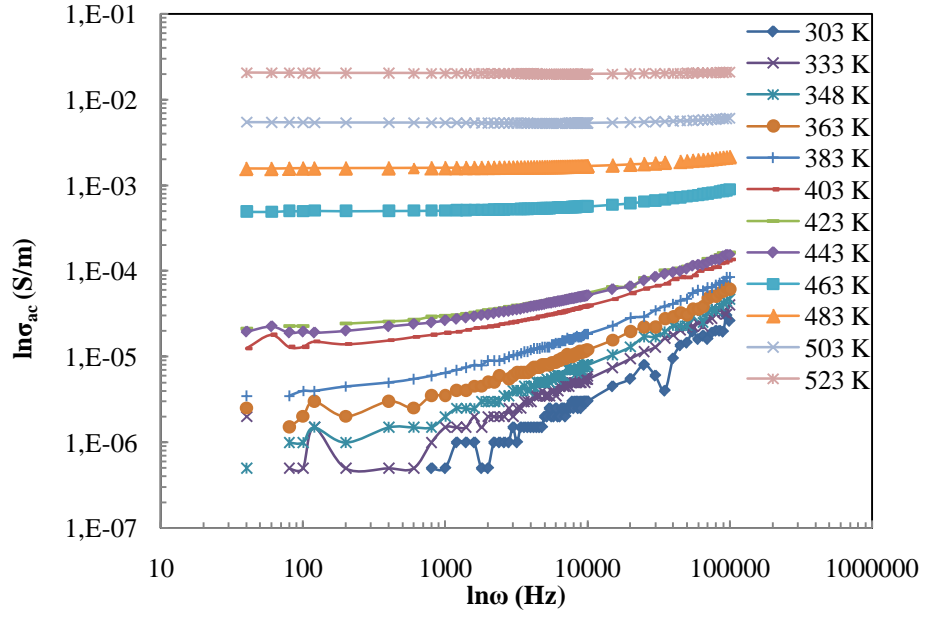
**Şekil IV.9** Ti katkılı WO<sub>3</sub> ince filmlerin bazı sıcaklıklardaki d.c iletkenliğinin katkı oranına bağlı değişimi

Şekil IV.9' dan görülebileceği üzere katkı oranındaki artış, iletkenlik değerlerinde anlamlı bir değişikliğe sebep olmamıştır. Bununla beraber % 6.8 katkılı filmin iletkenlik değerlerinde tüm ölçüm sıcaklıklarında incelenen katkı oranı aralığında bir maksimum olduğu görülmüştür.

#### IV.2.1.2 a.c Ölçümlerden Elde Edilen Bulgular

Filmlerin a.c ölçümleri 303 – 523 K sıcaklık aralığında yapılmıştır. Her bir örnek için toplam 14 farklı sıcaklık değerinde ve her bir sıcaklıkta örneklerden geçen akımların dengeye gelmesinden sonra ölçümler yapılmıştır. a.c ölçümlerde örneklere 40 Hz – 100 kHz frekans aralığında genliği 100 mV olan sinüzoidal bir sinyal uygulanarak empedansın reel ve sanal bileşenleri, iletkenlik, kapasite değerleri ölçülmüştür. Elde edilen verilerden ( $R_s-X$ ), ( $f-\sigma_{ac}$ ), ( $f-C$ ), ( $f-Z$ ) grafikleri çizilerek filmlerin elektriksel davranışları incelenmiştir. Elde edilen  $\ln \sigma_{ac} - \ln f$  grafiklerinin doğrusal kısımlarının eğimlerinden Denklem (II.12)' deki  $s$  parametresi hesaplanmıştır.

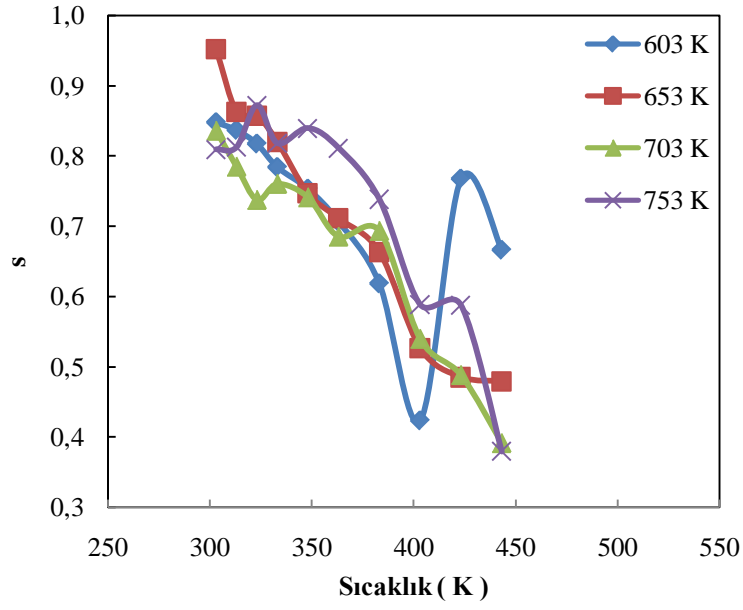
Şekil IV.10' da 653 K' de tavllanmış katkısız WO<sub>3</sub> filmi için farklı sıcaklıklardaki a.c iletkenliğin, frekansla değişimi verilmiştir.



**Şekil IV.10** 653 K' de tavllanmış katkısız WO<sub>3</sub> filmi için farklı sıcaklıklarda a.c iletkenliğin frekansla değişimi

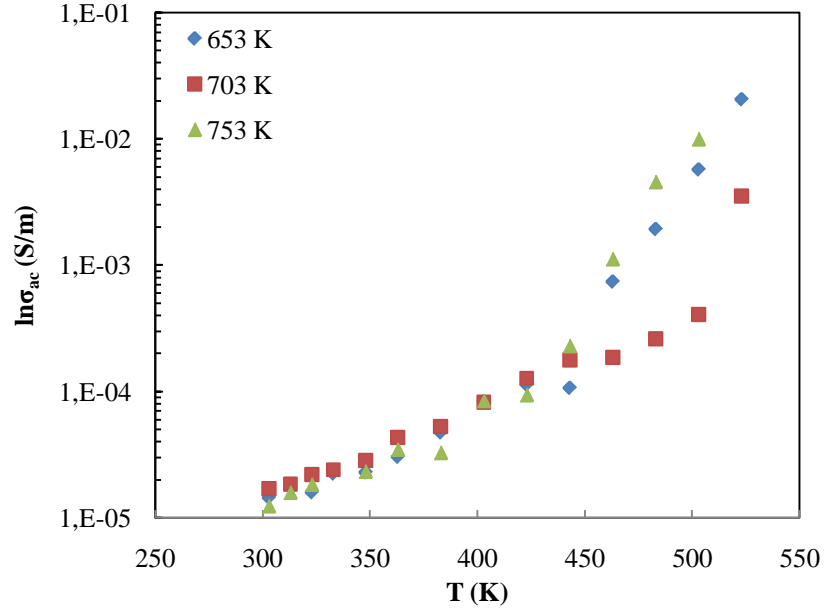
Şekil IV.10' dan açıkça görüleceği filmde a.c iletkenliğin, düşük sıcaklıklarda artan frekansla doğrusal olarak artarken, sıcaklıktaki artışla birlikte düşük frekanslarda nerdeyse frekanstan bağımsız, yüksek frekanslarda ise frekansla arttığı görülmüştür. Yaklaşık olarak 463 K' den daha yüksek sıcaklıklardaki ölçümlerde ise iletkenliğin ölçülen tüm frekans aralığında frekanstan bağımsız olduğu görülmüştür. Diğer katkısız örnekler de benzer davranışı göstermiştir.

Filmlerdeki a.c yük iletim mekanizmasını anlamak için Şekil IV.10' daki grafiklerin doğrusal kısımlarının eğiminden Denklem (II.12) kullanılarak frekansın üssü olan  $s$  parametresinin değeri hesaplanmıştır. Yapılan hesaplamalar frekansın üssü olan  $s$  parametresinin sıcaklığın bir fonksiyonu olduğunu ve genel olarak, artan sıcaklıkla azalma eğiliminde olduğunu göstermiştir. Şekil IV.11 farklı sıcaklıklarda tavlanan WO<sub>3</sub> filmlerde  $s$  parametresinin sıcaklıkla değişimini göstermektedir.  $s$  parametresinin sıcaklığa bu şekildeki bağlılığı filmlerde yük iletim mekanizmasının ilişkilendirilmiş engel hoplama modeline uygun olarak gerçekleştiği izlenimini vermektedir. Bu model,  $s$  parametresinin sıcaklığa bağlılığının  $s=1-6(kT/W_m)$  şeklinde olması gerektiğini söyler [60]. Ancak sadece  $s$  parametresinin sıcaklığa bağlılığına bakarak a.c yük iletim mekanizmasının hangi modele uygun olarak gerçekleştiğini söylemek imkansızdır.



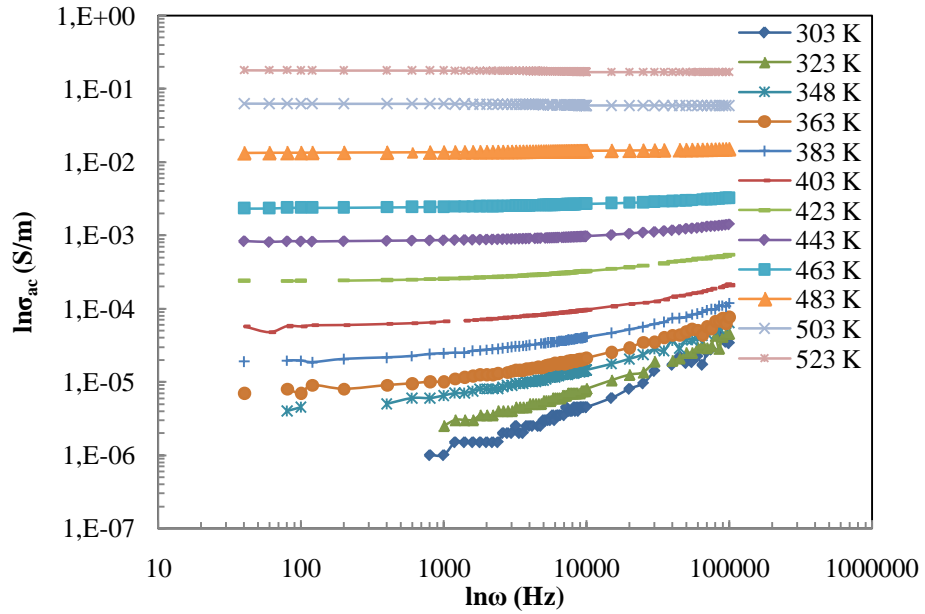
**Şekil IV.11** Farklı sıcaklıklarda tavlanan katkısız WO<sub>3</sub> filmlerde, frekansın üssü olan s' nin sıcaklıkla değişimi

Yük iletim mekanizmasının tam olarak söylenebilmesi için sabit bir frekans değeri için a.c iletkenliğin sıcaklıkla değişimine bakmak gerekir. Şekil IV.12' de sabit (50 kHz) frekans değeri için a.c iletkenliğin sıcaklıkla değişimi gösterilmiştir. Şekil IV.12' den görüleceği gibi, 653, 703 ve 753 K' de tavlanmış katkısız WO<sub>3</sub> filmlerde a.c iletkenliğin sıcaklıkla değişimi farklı eğimlere sahip iki doğrusal bölgeden oluşmaktadır. Sabit frekanstaki a.c iletkenliğin sıcaklığa bağlılığının bu şekilde olması ilişkilendirilmiş engel hoplama (CBH) modelinin öngörülerıyla uyuşmamaktadır (CBH modeli a.c iletkenliğin artan sıcaklıkla doğrusal olarak artması gerektiğini belirtir).



Şekil IV.12 Farklı sıcaklıklarda tavlanan katkısız WO<sub>3</sub> filmlerde, sabit (50 kHz) frekandaki a.c iletkenliğin sıcaklıkla değişimi

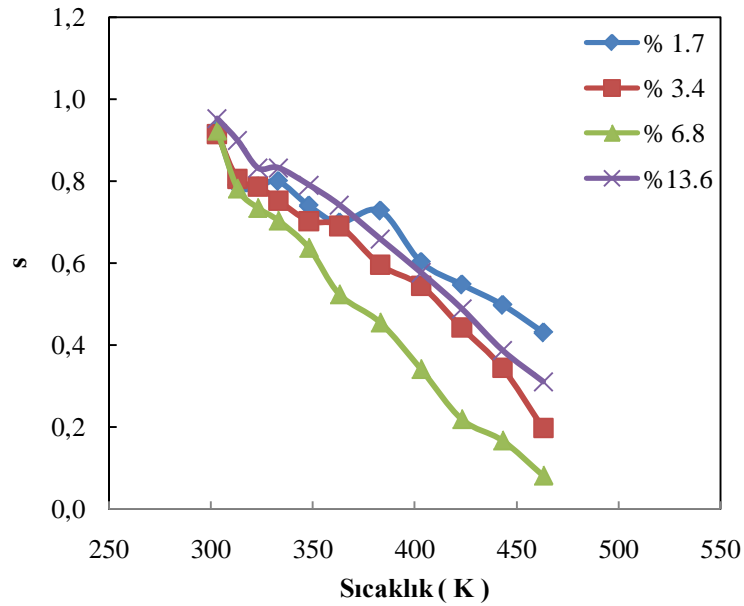
Şekil IV.13’ de % 6.8 Ti katkılı WO<sub>3</sub> filmi için farklı sıcaklıklardaki a.c iletkenliğin, frekansla değişimi verilmiştir.



Şekil IV.13 % 6.8 Ti katkılı WO<sub>3</sub> filmi için farklı sıcaklıklardaki a.c iletkenliğin frekansla değişimi

Şekil IV.13' ün dikkatlice incelenmesinden açıkça görüleceği gibi % 6.8 Ti katkılı filmde a.c iletkenliğin frekansa bağlı olarak değişimi düşük sıcaklık bölgesi ve yüksek sıcaklık bölgesi olarak iki kısma ayrılabilir. Düşük sıcaklıklarda a.c iletkenlik artan frekansla doğrusal olarak artarken yüksek sıcaklıklara doğru çıkıldıkça iletkenliğin frekansa bağlılığı değişmektedir. Yüksek sıcaklıklara çıkıldıkça, düşük frekans değerleri için iletkenliğin nerdeyse frekanstan bağımsız iken yüksek frekanslara çıkıldığında iletkenliğin doğrusal olarak artmaya başladığı görülmüştür. Yaklaşık olarak 350 K' den sonra ise ac iletkenliğin tüm frekans değerleri için tamamen frekanstan bağımsız hale geldiği görülmüştür. % 6.8 Ti katkılı filmde gözlemlenen bu davranış diğer katkı oranlarındaki filmlerde de gözlemlenmiştir.

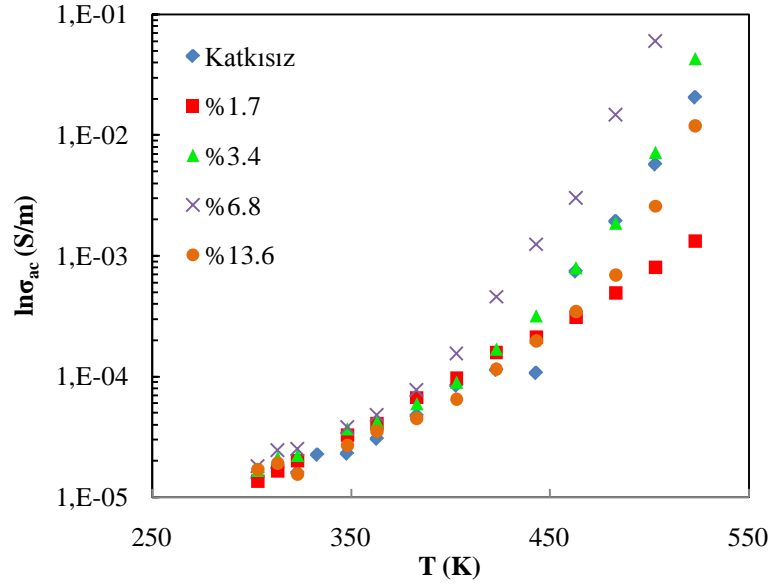
Değişik oranlarda Ti katkılanmış filmler içinde s parametreleri hesaplanmış ve bulunan s değerleri sıcaklığın fonksiyonu olarak Şekil IV.14' de gösterilmiştir.



**Şekil IV.14** Farklı oranlarda Ti katkılanan WO<sub>3</sub> filmlerde frekansın üssü olan s' nin katkı oranına bağlı değişimi

Şekil IV.14' den açıkça görüleceği gibi s parametresi tamamıyla sıcaklığın bir fonksiyonu olup, sıcaklık arttıkça azalmaktadır. Ti katkılı filmlerdeki a.c yük iletim mekanizmasının anlaşılabilmesi için bu grup filmler içinde, sabit frekanstaki

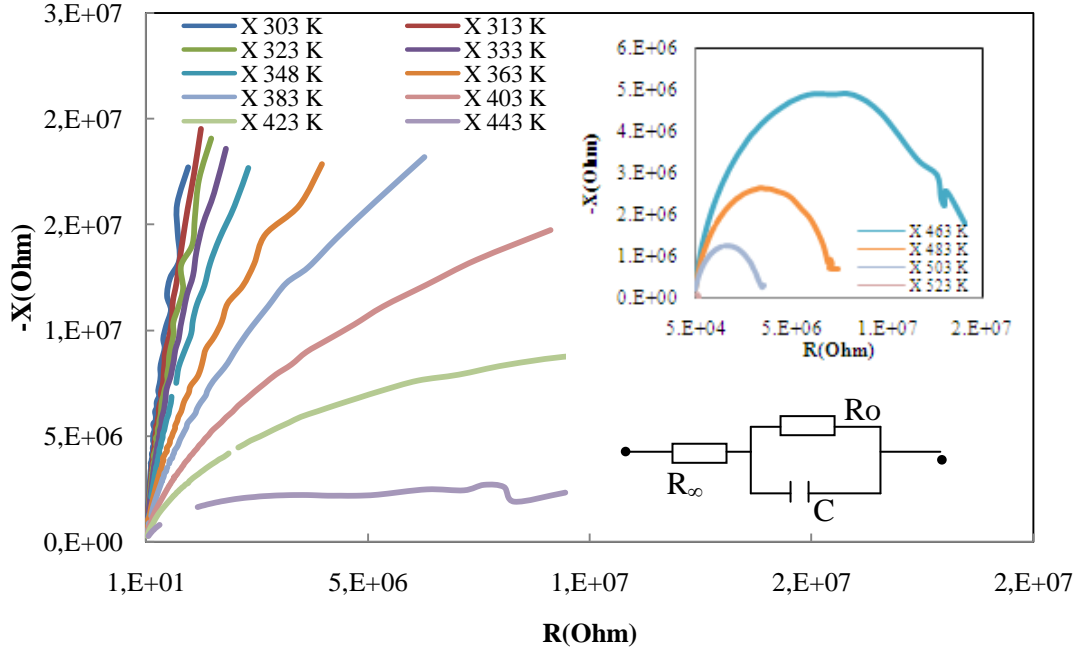
iletkenliğin sıcaklığa bağlılığı incelenmiş ve elde edilen sonuçlar Şekil IV.15’ de gösterilmiştir. Değişik oranlarda Ti katkılanmış WO<sub>3</sub> filmlerde de iletkenliğin sıcaklığa karşı grafiğinin farklı eğimlere sahip iki doğrusal bölgeden oluştuğu gözlemlenmiştir. Bu filmlerdeki a.c iletkenliğin sıcaklığa bağlılığı yük iletim mekanizmasının sadece CBH modeli ile açıklanamayacağını göstermektedir.



**Şekil IV.15** Farklı oranlarda Ti katkılanmış WO<sub>3</sub> filmlerde sabit (50 kHz) frekanstaki a.c iletkenliğin sıcaklığa bağlılığı

Gerek katkılı gerekse katkısız filmlerde sıcaklığa bağlı olarak empedans ölçümleri yapılmıştır. 703 K’ de tavlanan katkısız filmin değişik sıcaklıklarda ölçülen empedans spektrumları (empedansının sanal kısmının, gerçek kısmına bağlı değişimi) Şekil IV.16’ de gösterilmiştir. Şekil IV.16’ dan açıkça görüleceği gibi filmlerin empedans spektrumu sıcaklıktan kuvvetli bir şekilde etkilenmektedir. Filmlerin özellikle 423 K’ e kadar olan grafikleri doğrusal bir davranış göstermektedir. Bu tip bir davranış empedansın daha çok kapasitif olduğunu göstermektedir. Bu tip empedans spektrumunun eşdeğer devresi, bir kondansatör ve dirençten oluşmuş paralel bir devreye, seri bağlanmış bir direnç ile ifade edilir. Eşdeğer devredeki paralel bağlı olan kondansatör ve direnç IDT yapı üzerinde kaplanan WO<sub>3</sub> filmin direncini, seri bağlı direnç ise, kontak dirençleri ile

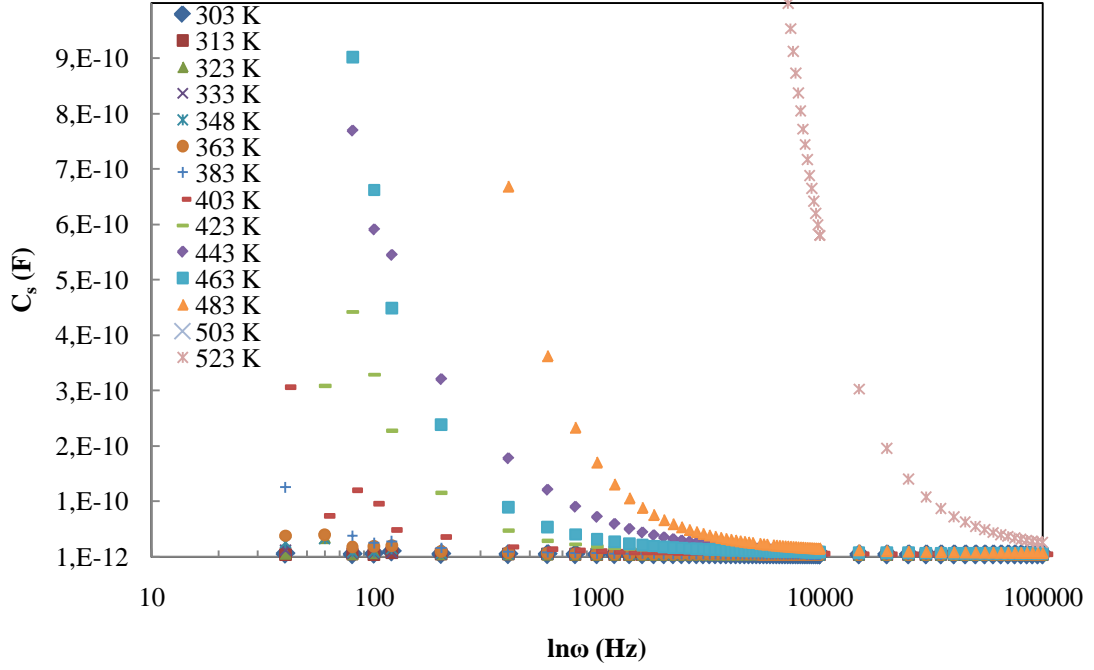
kablolardaki kayıpları göstermektedir. Filmlerin 463 K' den sonraki grafikleri yarım daire oluşturma eğilimindedir. Bu değişim elektriksel eşdeğer devrede de değişiklik olduğunu söyler. Bu halde, devrede bulunan kondansatör sabit faz elemanı (CPE) ile yer değiştirir.



**Şekil IV.16** 703 K' de tavllanmış katkısız  $WO_3$  ince filmin farklı sıcaklıklardaki empedansının sanal kısmının, gerçek kısmına bağlı değişimi

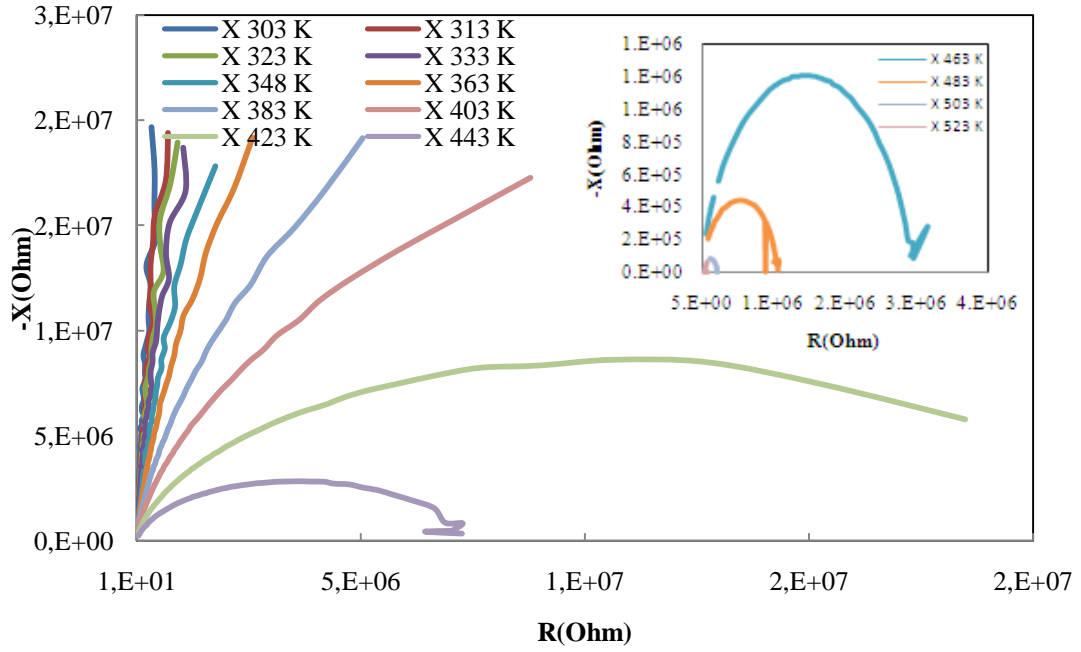
Ayrıca, 443 K' den sonra yarım dairelerin yarıçapında da bir azalma gözlenmiştir. Bu durum, durulma zamanının etkisinden kaynaklanmaktadır. Bu tip empedans spektrumlarında, durulma zamanının tek değerli olmasından ziyade belirli bir değer aralığında yer aldığı söylenir.

Şekil IV.17'da 703 K' de tavllanmış filmin farklı sıcaklıklarda ölçülen kapasite değerlerinin frekansa bağlılığı gösterilmiştir. Grafiğin dikkatlice incelenmesinden hemen görülecektir ki, düşük frekans değerleri için kapasite artan frekansla hızla azalmakta yüksek frekanslar için ise kapasite, frekanstan bağımsız hale gelmektedir. Ölçülen kapasite değerlerinin sıcaklığa bağlılığının incelenmesinde ise kapasitenin, artan sıcaklıkla arttığı görülmüştür. Kapasitedeki bu artışın özellikle düşük frekanslarda daha belirgin halde olduğu yüksek frekanslar için ise, kapasitenin nerdeyse sıcaklıktan bağımsız hale geldiği görülmüştür.



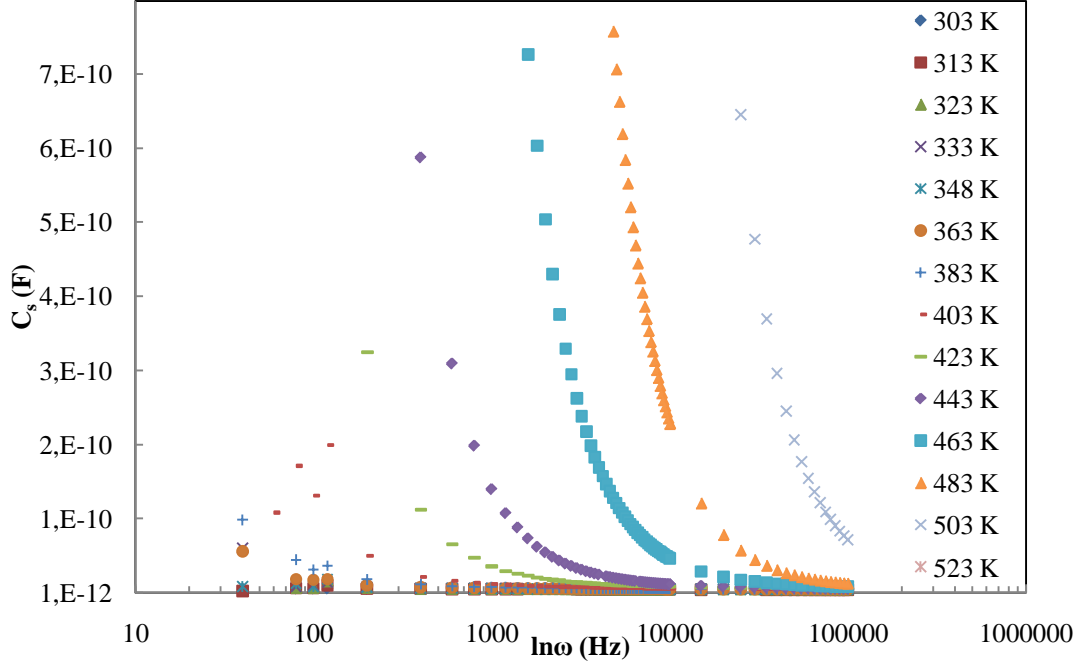
**Şekil IV.17** 703 K’ de tavlanan katkısız WO<sub>3</sub> ince filmin farklı sıcaklıklarda frekansa bağlı olarak kapasite değerlerinin değişimi

Şekil IV.18 % 13.6 Ti katkılı WO<sub>3</sub> ince filmin, farklı sıcaklıklarda empedansının sanal kısmının, gerçek kısmına bağlı değişimi gösterilmiştir. Şekil IV.18’ deki grafikte de Şekil IV.16’ daki benzer davranışlar gözlenmiştir. Katkılı filmlerin empedans spektrumu da katkısız filmlerdeki gibi sıcaklıktan kuvvetli bir şekilde etkilenmiştir. Filmin empedans spektrumu 463 K’ den sonra yarım daireye dönüş eğilimi göstermiştir. Bu filmin empedans spektrumu da 423 K’ e kadar olan doğrusal bir davranış göstermiş olduğundan dolayı daha çok kapasitif özellik göstermiştir. Doğrusal olan davranışlar aynı zamanda Warburg empedansının da varlığını gösterir. Ayrıca, sıcaklık arttıkça oluşan yarım daireler, yüksek sıcaklıklarda malzemenin bulk özelliklerinin etkin olmaya başladığını gösterir. Eşdeğer devreler katkısız filmlerde verilen eşdeğer devreler ile ifade edilebilir. Diğer katkılı filmlerin  $-X-Re|Z|$  grafikleri de benzer davranış göstermişlerdir.



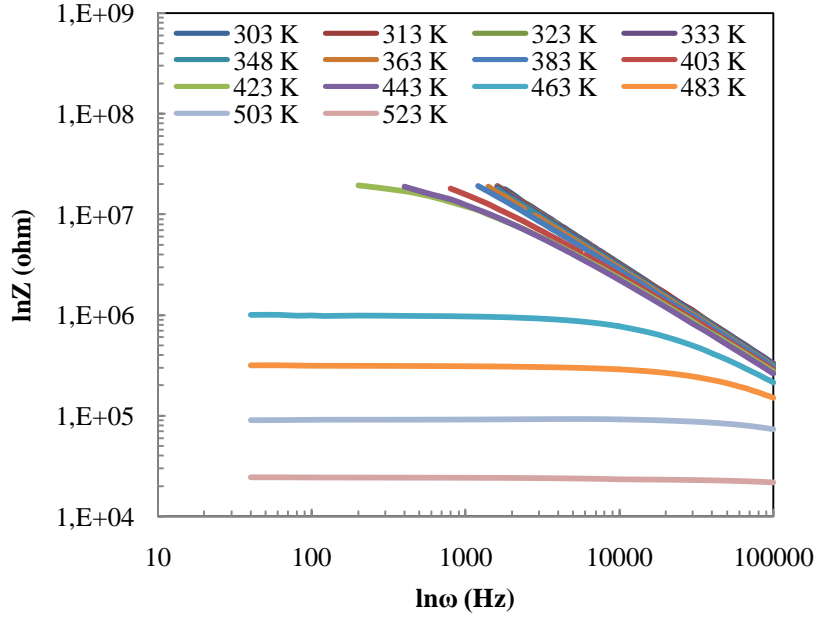
**Şekil IV.18** % 13.6 Ti katkılı  $WO_3$  ince filmin, farklı sıcaklıklarda empedansının sanal kısmının, gerçek kısmına bağlı değişimi

Şekil IV.19 % 3.4 Ti katkılı filmin farklı sıcaklıklarda frekansa bağlı olarak ölçülen kapasite değerleri gösterilmiştir. Ti katkılı filmlerde de kapasitenin frekansa bağlılığını katkısız filmlerdekine benzediği görülmüştür. Düşük frekans bölgesinde kapasite artan frekansla hızla azalırken yüksek frekans bölgesinde frekanstan bağımsız hale gelmiştir. Kapasite değerlerinin sıcaklıkla değişiminin incelenmesinde ise katkısız filmlerde olduğu gibi düşük frekans kapasite değerlerinin artan sıcaklıkla hızlı bir şekilde arttığı yüksek frekans kapasite değerlerinin ise sıcaklıktan bağımsız olduğu görülmüştür.



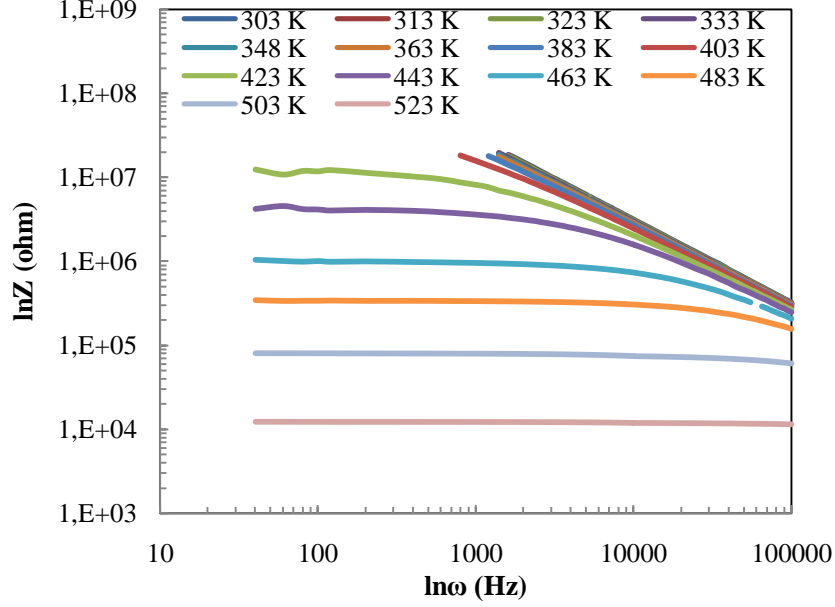
**Şekil IV.19** % 3.4 Ti katkılı filmin farklı sıcaklıklarda frekansa bağlı olarak ölçülen kapasite değerleri

Şekil IV.20' de 653 K' de tavllanmış katkısız  $WO_3$  ince filmin, farklı sıcaklıklardaki empedansının frekansa bağlı değişimi gösterilmiştir. Şekil IV.20' deki (Bode plot) eğrilerde sıcaklığın filmin  $\log |Z| - \log |\omega|$  grafiği üzerinde 463 K' den sonra etkili olduğu gözlenmiştir. 463 K sıcaklığına kadar eğrilerde dikkate değer bir değişiklik gözlenmemiştir. 463 K' e kadar olan eğrilerin ölçüm frekansı aralığındaki eğimi  $\sim 0.95$  olarak hesaplanmıştır. Bu ise empedansın 463 K' e kadar saf kapasitif olduğunu göstermektedir. Bu sonuç,  $-X-Re|Z|$  (Cole-cole plot) grafiklerinin sonuçlarıyla uyum içindedir. 463 K' den sonra 463 ve 483 K sıcaklıklarında eğim ( $10^3 \text{ Hz} - 10^5 \text{ Hz}$  aralığında)  $\sim 0.5$  olarak hesaplanmıştır. Bu ise, Warburg empedans bileşeninin varlığını gösterir ki, bu sonuç da yine  $-X-Re|Z|$  grafiklerinden elde edilen sonuç ile uyum içindedir.



**Şekil IV.20** 653 K’ de tavllanmış katkısız WO<sub>3</sub> ince filmin farklı sıcaklıklardaki empedansının frekansa bağlı değişimi

Şekil IV.21’ de % 3.4 Ti Katkılı WO<sub>3</sub> ince filmin, farklı sıcaklıklardaki empedansının frekansa bağlı değişimi gösterilmiştir. Şekil IV.21’ verilen grafikte sıcaklığın her ne kadar 423 K’ den sonra etkisini göstermeye başladığı gözlenmiş olsa da dikkate değer etki yine 463 K’ de başlamaktadır. Bu grafikteki eğim değerleri de katkısız filmlerdeki eğim değerleriyle uyum içindedir. Dolayısıyla bu filmde de, 463 K sıcaklığına kadar saf kapasitif bir etkiden 463 K sıcaklığından sonra ise empedansın Warburg bileşeninden bahsedebiliriz. Bu sonuçlar da yine Cole-cole grafikleri ile uyum içindedir.



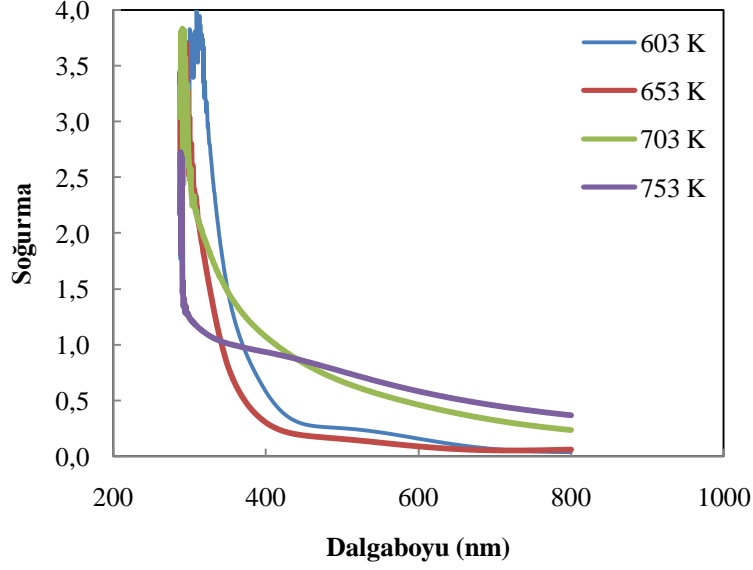
**Şekil IV.21** % 3.4 Ti Katkılı WO<sub>3</sub> ince filmin, farklı sıcaklıklardaki empedansının frekansa bağlı değişimi

### IV.3 KATKISIZ VE KATKILI WO<sub>3</sub> İNCE FİMLERİN OPTİK ÖZELLİKLERİNİN İNCELENMESİ

Katkılı ve katkısız WO<sub>3</sub> ince filmlerin optik özellikleri 285-800 nm dalga boyu aralığında soğurma ve geçirgenlik özellikleri ölçülerek incelenmiştir. Daha sonra dalga boyuna karşı soğurma ve geçirgenlik grafikleri çizilmiştir. Elde edilen soğurma değerlerini kullanarak katkısız ve katkılı ince filmler için optik bant aralıklarını belirlemek üzere  $h\nu'$  ye karşı  $(\alpha h\nu)^{1/2}$  grafikleri çizdirilmiştir. Ayrıca tüm katkılı ve katkısız ince filmlerin kalınlıkları ve kırma indisleri ölçülmüştür.

#### IV.3.1 Katkısız ve Katkılı WO<sub>3</sub> İnce Filmlerin Soğurma Ölçümlerinde Elde Edilen Bulgular

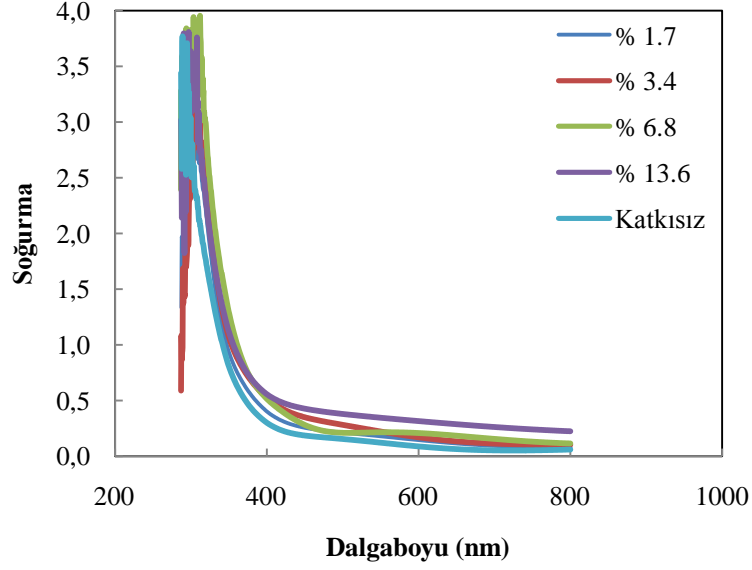
Farklı sıcaklıklarda tavllanmış katkısız WO<sub>3</sub> ince filmlerde, 285 nm ile 800 nm dalga boyu aralığında ölçülen soğurma grafiği Şekil IV.22' de gösterilmiştir.



**Şekil IV.22** Farklı sıcaklıklarda tavllanmış katkısız WO<sub>3</sub> ince filmlerde soğurmanın dalga boyuna bağlı değişimi

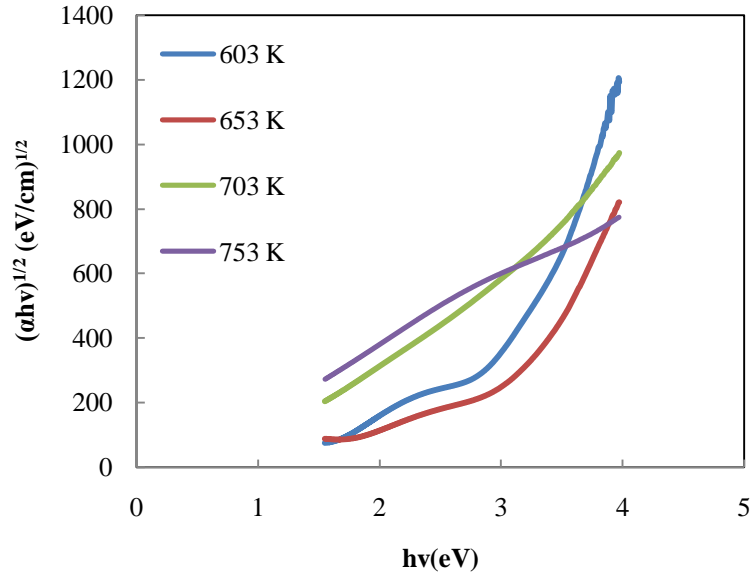
Bu ölçümlerden filmin soğurmasının düşük dalga boyları için hızla azalırken artan dalga boyu ile, soğurmanın nerdeyse dalga boyundan bağımsız hale geldiği gözlemlenmiştir. Soğurmanın dalga boyundan bağımsız hale geldiği dalga boyu değerinin de tavlama sıcaklığı ile değişim gösterdiği görülmüştür. Filmlerin soğurmalarının dalga boyuna bağlılığında, soğurması en fazla değişen filmin 653 K’de tavlanan film iken soğurması en az değişen filmin 753 K’de tavlanan film olduğu görülmüştür.

Farklı oranlarda Ti katkılanan WO<sub>3</sub> ince filmler ve bunlarla aynı sıcaklıkta (653 K) tavlanan katkısız WO<sub>3</sub> ince filmde, soğurmanın dalga boyuna bağlı değişimi Şekil IV.23’ de gösterilmiştir. Şekil IV.23’ den açıkça görüleceği gibi dalga boyu arttıkça soğurma azalmıştır. Hemen her dalga boyu için en düşük soğurma değeri katkısız filmde elde edilmiştir. Yine Şekil IV.23’den görülmektedir ki Ti katkılama filmlerin soğurma özelliklerini çok fazla etkilememiştir.

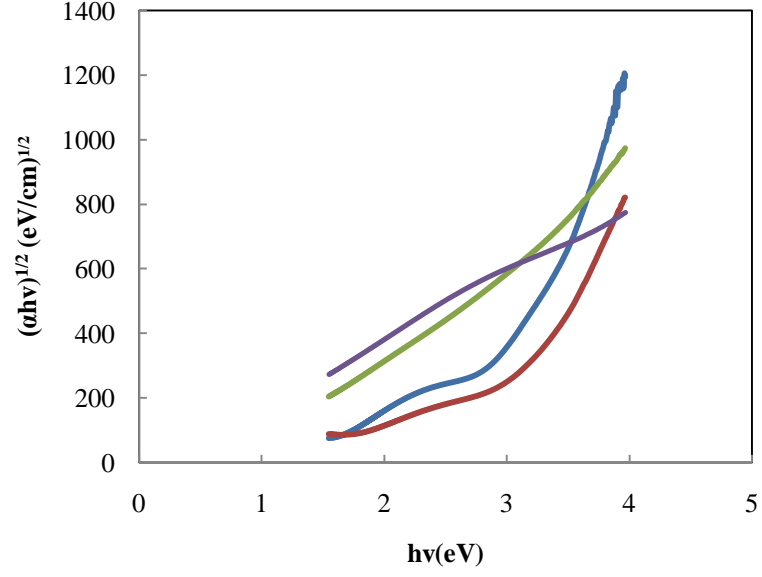


**Şekil IV.23** Farklı oranlarda Ti katkılanan WO<sub>3</sub> ince filmde soğurmanın dalga boyuna bağlı değişimi

Elde edilen soğurma verileri ve Denklem (III.3) yardımıyla soğurma katsayıları hesaplanmıştır. Katkılı ve katkısız ince filmler için  $h\nu$ ' ye bağlı  $(\alpha h\nu)^{1/2}$  grafikleri Şekil IV.24 ve Şekil IV.25' de gösterilmiştir. Şekil IV.24 ve Şekil IV.25 yardımıyla hesaplanan optik bant aralıkları ( $E_g$ ) Tablo IV.1' de gösterilmiştir.



**Şekil IV.24** Farklı sıcaklıklarda tavllanmış, katkısız WO<sub>3</sub> ince filmlerin  $h\nu$ ' ye bağlı  $(\alpha h\nu)^{1/2}$  grafiği



**Şekil IV.25** Farklı oranlarda Ti katkılanmış WO<sub>3</sub> ince filmlerin  $hv$ ' ye bağlı  $(\alpha hv)^{1/2}$  grafiği

**Tablo IV.1** Farklı sıcaklıklarda tavlanan katkısız ve farklı oranlarda Ti katkılanan WO<sub>3</sub> ince filmlerin optik bant aralığı değerleri

	Katkısız				Katkılı			
	603K	653 K	703 K	753 K	% 1.7	% 3.4	% 6.8	%13.6
<b>E<sub>g</sub>(eV)</b>	2.950	2.951	1.982	0.913	3.085	3.501	2.973	2.951

Tablo IV.1' den açıkça görülebileceği üzere katkısız WO<sub>3</sub> ince filmlerin optik bant aralığı değerleri artan sıcaklıkla azalmıştır, Ti katkılı WO<sub>3</sub> ince filmlerin optik bant aralığı değerleri artan katkı miktarıyla azalmıştır.

Tablo IV.2' de farklı sıcaklıklarda tavlanan katkısız ve farklı oranlarda Ti katkılanan WO<sub>3</sub> ince filmlerin kırma indisi ve film kalınlığı değerleri verilmiştir.

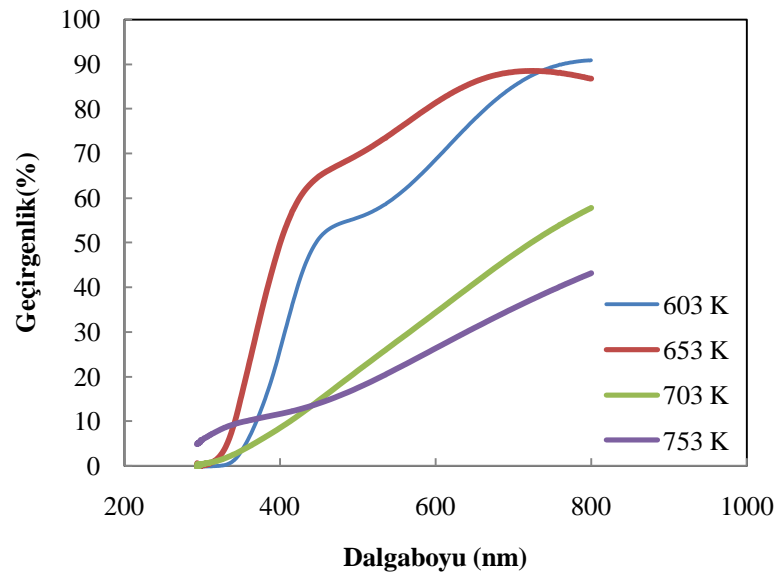
**Tablo IV.2** Farklı sıcaklıklarda tavlanan katkısız ve farklı oranlarda Ti katkılanan WO<sub>3</sub> ince filmlerin kırma indisi ve film kalınlığı değerleri

	Katkısız				Katkılı			
	603K	653 K	703 K	753 K	% 1.7	% 3.4	% 6.8	%13.6
<b>n</b>	1.844	1.845	1.817	1.779	1.890	1.909	2.002	2.090
<b>h(nm)</b>	107.86	122.26	88.10	76.09	108.10	106.88	100.93	70.16

Tablo IV.2' den görüleceği gibi katkısız WO<sub>3</sub> ince filmlerde tavlama sıcaklığı arttıkça, filmlerin kırma indisi ve film kalınlığı düşmektedir. Ti Katkılı WO<sub>3</sub> ince filmlerde ise, katkı oranı arttıkça kırma indisi artmakta, kalınlık ise düşmektedir.

#### IV.3.2 Katkısız ve Katkılı WO<sub>3</sub> İnce Filmlerin Geçirgenlik Ölçümlerinde Elde Edilen Bulgular

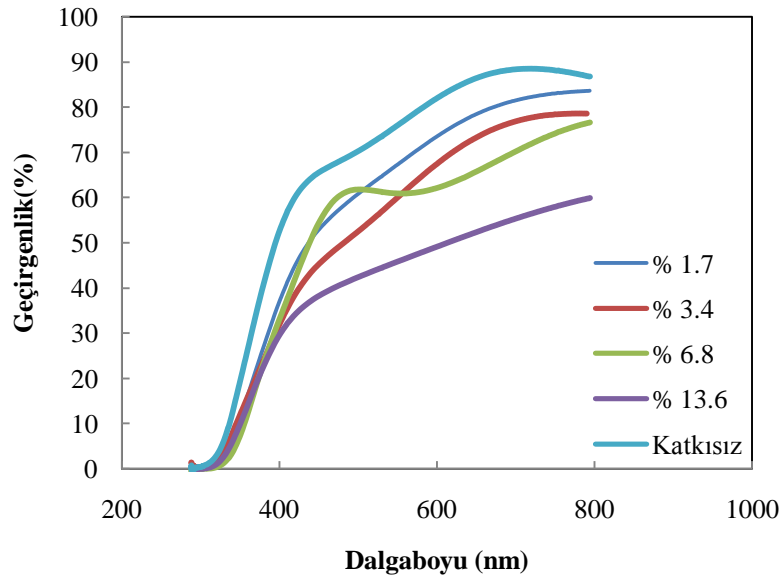
Farklı sıcaklıklarda tavllanmış katkısız WO<sub>3</sub> ince filmlerde, geçirgenliğin dalga boyuna bağlı değişimi Şekil IV.26' de gösterilmiştir.



**Şekil IV.26** Farklı sıcaklıklarda tavllanmış katkısız WO<sub>3</sub> ince filmlerde geçirgenliğin dalga boyuna bağlı değişimi

Şekil IV.26' dan açıkça görüleceği gibi dalga boyu arttıkça geçirgenlik artmaktadır. 603 ve 653 K' de tavlanan filmlerde büyük dalga boylarındaki geçirgenliğin bir doyum durumuna gitme eğiliminde olduğu 703 ve 753 K' de tavlanan filmlerde ise geçirgenliğin artan dalga boyu ile doğrusal olarak arttığı görülmüştür.

Farklı oranlarda Ti katkılanan ve bunlarla aynı sıcaklıkta (653 K) tavlanan katkısız WO<sub>3</sub> ince filmlerde, geçirgenliğin dalga boyuna bağlı değişimi Şekil IV.27' de gösterilmiştir.



**Şekil IV.27** Farklı oranlarda Ti katkılanan WO<sub>3</sub> ince filmlerde geçirgenliğin dalga boyuna bağlı değişimi

Şekil IV.27' den açıkça görüleceği gibi, düşük dalga boylarındaki ışık için geçirgenlik artan dalga boyu ile hızla artarken yüksek dalga boylarına doğru çıkıldıkça geçirgenliğin artış hızının yavaşladığı görülmüştür. Bu ölçümlerde özellikle yüksek dalga boylarındaki geçirgenliğin artan katkı oranı ile azaldığı yani, en büyük geçirgenlik katkısız filmde gözlemlenirken en düşük geçirgenlik değeri %13.6 oranında katkılanmış filmde gözlemlenmiştir.

## BÖLÜM IV

### TARTIŞMA VE DEĞERLENDİRME

Sol-gel daldırma yöntemiyle hazırlanan katkısız ve katkılı WO<sub>3</sub> ince filmlerin yapısal, elektriksel (a.c ve d.c) ve optik ölçümlerinden elde edilen bulguların değerlendirilmesiyle aşağıdaki sonuçlara ulaşılmıştır:

- Yapısal analiz sonucu WO<sub>3</sub> ince filmlerin triklinik yapıda oldukları görülmüştür.
- Katkısız ve katkılı WO<sub>3</sub> ince filmlerin 303 – 523 K sıcaklık aralığında yapılan I-V ölçümlerinden düşük sıcaklıklarda histerezis etkinin görüldüğü, yüksek sıcaklıklarda ise bu etkinin kaybolduğu görülmüştür. Düşük sıcaklıklarda gözlemlenen histerezis etkisinin nedeninin yasak enerji aralığında yerleşmiş derin tuzak seviyelerinden kaynaklandığı düşünülmektedir. Ayrıca tüm örneklerde yüksek sıcaklık I-V karakteristiklerinin ohmik karakterde olduğu görülmüştür.
- 603 K, 653 K, 703 K ve 753 K olmak üzere 4 farklı sıcaklıkta tavlanan katkısız WO<sub>3</sub> ince filmlerin d.c iletkenliklerinin sıcaklığa bağlılığının incelenmesinde d.c iletkenliğin, artan sıcaklıkla doğrusal olarak arttığı görülmüştür. Bu sonuç, WO<sub>3</sub> ince filmlerde d.c yük iletiminin ısı olarak uyarılmış taşıyıcılar tarafından sağlandığının göstergesi olarak yorumlanmıştır. Ayrıca, sonuçlar göstermiştir ki bu filmlerde yük iletim mekanizması tavlama sıcaklığına bağlı değildir. Değişik oranlarda Ti katkılanmış filmlerin d.c iletkenliklerinin sıcaklıkla değişiminin incelenmesinde ise, iletkenlikteki artışın katkı oranına bağlı olarak değişimler gösterdiği bulunmuştur. %3.4 ve %6.8 oranında Ti katkılanmış filmlerin  $\ln \sigma_{dc}-1/T$  grafikleri eğimleri farklı olan iki doğrusal bölgeden oluşurken %1.7 ve %13.6 oranında Ti katkılanmış filmlerde bu tek eğimli bir doğrudan oluştuğu görülmüştür. Bu sonuç Ti katkı oranının ara değerlerinin film yüzeyinde O<sub>2</sub>, nem gibi bazı moleküllerin adsorplanmasını kolaylaştırdığı dolayısıyla da özellikle düşük sıcaklıklarda ölçülen iletkenliğe

bu adsorplanmış gaz moleküllerinden de bir katkı geldiği şeklinde yorumlanmıştır. Artan sıcaklıkla adsorplanmış olan gaz molekülleri yüzeyden atılmaya başlamakta (desorpsiyon) ve ölçülen iletkenlik değerlerinin artış hızında değişim (eğimi farklı olan bölge oluşmaktadır) oluşmaktadır.

- Katkısız ince filmlerde aktivasyon enerjisinin, 703 K' de tavlanan örnek dışında, tavlama sıcaklığı ile arttığı görülmüştür. Aktivasyon enerjisinin artan tavlama sıcaklığı ile artması yasak enerji aralığındaki tuzak, safsızlık vb. seviyelerin konumlarının değişmesinden kaynaklanabileceği düşünülmektedir. Katkı miktarının aktivasyon enerjisine etkisinin incelenmesinde ise, katkılamanın ara değerleri aktivasyon enerjisini azaltırken en düşük ve en yüksek katkılama oranlarının aktivasyon enerjisini artırdığı görülmüştür. Gözlemlenen bu sonuç, katkılanan Ti safsızlığının işgal ettiği seviyelerin gerek Ti-Ti gerekse Ti-WO<sub>3</sub> etkileşmelerinden dolayı konsantrasyona bağlı olarak değişmesinden kaynaklandığı şeklinde yorumlanmıştır.
- Gerek katkılı gerek katkısız WO<sub>3</sub> filmlerde a.c yük iletim mekanizmasını anlamak amacıyla yapılan hesaplama ve ölçümlerde, frekansın üssü olan s parametresinin sıcaklığa bağlılığının CBH modelinin öngörülerıyla uyum içinde olduğu fakat a.c iletkenliğin, sabit bir frekans değeri için, sıcaklığa bağlılığının bu modelin öngörülerıyla uyuşmadığı sonucuna varılmıştır. Elde edilen sonuçların topluca değerlendirilmesinde, katkılı ve katkısız filmlerdeki a.c yük iletiminin Reider tarafından [61] önerilen site enerjilerini, engel yüksekliğini siteler arasındaki uzaklığı da göz önünde bulunduran model ile açıklanabileceği sonucuna varılmıştır.
- İncelenen katkılı ve katkısız filmlerde değişik sıcaklıklarda ölçülen empedans spektrumlarının (empedansının sanal kısmının, gerçek kısmına bağlı değişimi) incelenmesi sonucu filmlerin empedans spektrumunun sıcaklıktan kuvvetli bir şekilde etkilendiği bulunmuştur. Filmlerin özellikle 423 K' e kadar olan grafikleri doğrusal bir davranış göstermektedir. Bu tip bir davranış empedansın daha çok kapasitif olduğunu göstermektedir. Bu tip empedans spektrumunun eşdeğer devresi, bir kondansatör ve dirençten oluşmuş paralel bir devreye, seri bağlanmış bir direnç ile ifade edilir. Eşdeğer devredeki paralel bağlı olan kondansatör ve direnç IDT yapı üzerinde kaplanan WO<sub>3</sub> filmin direncini, seri bağlı direnç ise, kontak dirençleri ile kablolardaki kayıpları göstermektedir. Filmlerin 463 K' den sonraki grafikleri yarım

daire oluşturma eğilimindedir. Bu değişim elektriksel eşdeğer devrede de değişiklik yapılması gerektiğini söyler. Bu halde, devrede bulunan kondansatör sabit faz elemanı (CPE) ile yer değiştirir. Ayrıca, 443 K' den sonra yarım dairelerin yarıçapında da bir azalma gözlenmiştir. Bu durum, durulma zamanının etkisinden kaynaklanmaktadır. Bu tip empedans spektrumlarında, durulma zamanının tek değerli olmasından ziyade belirli bir değer aralığında yer aldığı söylenir. Filmlerin farklı sıcaklıklarda ölçülen kapasite değerlerinin frekansa bağıllığı incelendiğinde ise düşük frekans değerleri için kapasite artan frekansla hızla azalmakta iken yüksek frekanslar için ise kapasite, frekanstan bağımsız hale geldiği gözlenmiştir. Yüksek sıcaklıklarda kapasitenin frekanstan bağımsız hale gelmesi yük taşıyıcıların frekans değişimlerini takip edememelerinden kaynakladığı dolayısıyla, sabit bir yük gibi davrandığı şeklinde açıklanmıştır. Ölçülen kapasite değerlerinin sıcaklığa bağıllığının incelenmesinde ise kapasitenin, artan sıcaklıkla arttığı görülmüştür. Bunun nedeninin de artan sıcaklıkla serbest hale geçen taşıyıcı sayısındaki artış olduğu düşünülmektedir.

- Katkısız  $WO_3$  ince filmlerde farklı sıcaklıklardaki empedansının frekansa bağlı değişimi incelendiğinde, (Bode plot) eğrilerde sıcaklığın filmlerin  $\log |Z|$ - $\log |\omega|$  grafiği üzerinde 463 K' den sonra etkili olduğu gözlenmiştir. 463 K sıcaklığına kadar eğrilerde dikkate değer bir değişiklik gözlenmemiştir. 463 K' e kadar olan eğrilerin ölçüm frekansı aralığındaki eğimi  $\sim 0.95$  olarak hesaplanmıştır. Bu ise empedansın 463 K' e kadar saf kapasitif olduğunu göstermektedir. Bu sonuç,  $-X-Re|Z|$  (Cole-cole plot) grafiklerinin sonuçlarıyla uyum içindedir. 463 K' den sonra 463 ve 483 K sıcaklıklarında eğim ( $10^3\text{Hz}$ - $10^5\text{Hz}$  aralığında)  $\sim 0.5$  olarak hesaplanmıştır. Bu ise, Warburg empedans bileşeninin varlığını gösterir ki, bu sonuç da yine  $-X-Re|Z|$  grafiklerinden elde edilen sonuç ile uyum içindedir. Katkılı  $WO_3$  ince filmler için ise farklı sıcaklıklardaki empedansının frekansa bağlı değişiminin incelenmesi sonucu sıcaklığın her ne kadar 423 K' den sonra etkisini göstermeye başladığı gözlenmiş olsa da dikkate değer etki yine 463 K' de başladığı gözlenmiştir. Katkılı filmlerin grafiklerindeki eğim değerleri de katkısız filmlerdeki eğim değerleriyle uyum içindedir. Dolayısıyla bu filmde de, 463 K sıcaklığına kadar saf kapasitif bir etkiden 463 K sıcaklığından sonra ise empedansın Warburg bileşeninden bahsedebiliriz. Bu sonuçlar da yine

Cole-cole grafikleri ile uyum içindedir.

- Farklı sıcaklıklarda tavllanmış katkısız  $WO_3$  ince filmlerde, 285 nm ile 800 nm dalga boyu aralığında, dalga boyuna bağlı ölçülen soğurma grafiği incelendiğinde artan dalga boyu ile filmlerin soğurmasının azaldığı görülmüştür. Bu ölçümler sonucu filmlerin soğurmasının, düşük dalga boyları için hızla azalırken artan dalga boyu ile soğurmanın nerdeyse dalga boyundan bağımsız hale geldiği gözlemlenmiştir. Soğurmanın dalga boyundan bağımsız hale geldiği dalga boyu değerinin de tavlama sıcaklığı ile değişim gösterdiği görülmüştür. Ti katkılı filmler için ise dalga boyu arttıkça soğurma azalmıştır. En düşük soğurma katkısız filmde gözlenmiştir. Ayrıca Ti katkılamanın filmlerin soğurma özelliklerini çok fazla etkilemediği gözlemlenmiştir. Katkısız ve katkılı ince filmlerin soğurma özelliklerine bağlı hesaplanan optik bant aralıkları için ise, katkısız  $WO_3$  ince filmlerde optik bant aralığı değerleri artan sıcaklıkla azaldığı, Ti katkılı  $WO_3$  ince filmlerde ise optik bant aralığı değerleri artan katkı miktarıyla azaldığı görülmüştür.
- Katkısız  $WO_3$  ince filmlerde tavlama sıcaklığı arttıkça, filmlerin kırma indisi ve film kalınlığı düştüğü görülmüş olup, Ti Katkılı  $WO_3$  ince filmlerde ise, katkı oranı arttıkça kırma indisi artmakta, kalınlığın ise düşmekte olduğu görülmüştür.
- Katkısız ince filmlerde dalga boyuna bağlı geçirgenlik grafikleri incelendiğinde dalga boyu arttıkça geçirgenlik arttığı görülmüştür. 603 ve 653 K' de tavlanan filmlerde büyük dalga boylarındaki geçirgenliğin bir doyum durumuna gitme eğiliminde olduğu 703 ve 753 K' de tavlanan filmlerde ise geçirgenliğin artan dalga boyu ile doğrusal olarak arttığı görülmüştür. Katkılı filmlerde ise düşük dalga boylarındaki ışık için geçirgenlik artan dalga boyu ile hızla artarken yüksek dalga boylarına doğru çıkıldıkça geçirgenliğin artış hızının yavaşladığı görülmüştür. Bu ölçümlerde özellikle yüksek dalga boylarındaki geçirgenliğin artan katkı oranı ile azaldığı yani, en büyük geçirgenlik katkısız filmde gözlemlenirken en düşük geçirgenlik değeri %13.6 oranında katkılanmış filmde olduğu görülmüştür.

## Kaynaklar

- [1] T. Minami.; N Katata.; K Tadanaga.: “ Formation process of super-water-repellent  $\text{Al}_2\text{O}_3$  coating films with high transparency by the sol-gel method “ *Journal of American Ceramic Society* 3136 (1997) 168-175.
- [2] P.W. Wang.; S. Sui.; W. Wang.; W. Durrer.: “ Aluminum nitride and alumina composite film fabricated by DC plasma processes “ *Thin Solid Film* 295 (1997) 142-146.
- [3] O.F. Schirmer.; V. WittwerBaur.; G. Brandt.: “ Structure and electronic properties of amorphous  $\text{WO}_3$  ” *J. Electrochem. Soc* 124 (1977) 749.
- [4] H.J. Möller.: *Semiconductors for Solar Cells*, Artech House Inc., Norwood (1993).
- [5] B.E. Yoldas.; T.W. O’ Keeffe.: “ Antireflective coatings applied from metal-organic derived liquid precursors ” *Applied Optics* 18 (1975) 3133-3138.
- [6] H. Demiryont.; L.R. Thompson.; G.J. Collins.: ” Optical properties of aluminum oxynitrides deposited by laser-assisted CVD “ *Applied Optics*, 25, 8, (1986) 1311-1317.
- [7] C.G. Granqvist.; A. Azens.; J. Isidorsson.; M. Kharazi.; L. Kullman.;T. Lindström.; G.A. Niklasson.; C-G. Ribbing.; D.Rönnow.;M. Stromme Mattsson.;V. Veszele.: “ Towards the smart window: progress in electrochromics ” *Journal of Non-Crystalline Solids* 218 (1997) 273-279.
- [8] K. D. Benkstein.; S. Semancik.: " Mesoporous nanoparticle  $\text{TiO}_2$  thin films for conductometric gas sensing on microhotplate platforms " *Sensors and ActuatorsB-Chemica* 113 (2006) 445-453.
- [9] Y. Djaoued.; S. Pria.; S. Balaji.: “Low temperature synthesis of nanocrystalline  $\text{WO}_3$  films by sol-gel process ” *Journal of Non-Crystalline Solids* 354 (2008) 673-679.
- [10] E.Özkan Zayim.: “Tungsten oksit ve katkılı tungsten oksit ince filmlerin hazırlanması ve karakterizasyonu” *Doktora Tezi*, İstanbul Teknik Üniv. Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul , Türkiye, (2002) 22-23.
- [11] C.S. Rout.; K. Ganesh.; A. Govindaraj.; CNR. Rao.: ” Sensors for the nitrogen oxides,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{NO}$  and  $\text{N}_2\text{O}$ , based on  $\text{In}_2\text{O}_3$  and  $\text{WO}_3$  nanowires “ *Appl. Phys. A* 85 (2006) 241-246.

- [12] H. Huang.; O.K. Tan.; Y.C. Lee.; T.D. Tran.; M.S. Tse, X. Yao.: “ Semiconductor gas sensor based on tin oxide nanorods prepared by plasma-enhanced chemical vapor deposition with postplasma treatment “ *Appl. Phys. Lett.* 87 (2005) 163123-163125
- [13] J.X. Wang.; X.W. Sun.; Y. Yang.; H. Huang.; Y.C. Lee.; O.K. Tan.; L. Vayssieres.: “ Hydrothermally grown oriented ZnO nanorod arrays for gas sensing applications ” *Nanotechnology* 17 (2006) 4995-4998.
- [14] R. Ionescu.; A. Hoel.; C.G. Granqvist.; E. Llobet.; P. Heszler.: “ Low-level detection of ethanol and H<sub>2</sub>S with temperature-modulated WO<sub>3</sub> nanoparticle gas sensors “ *Sens.Actuators B* 104 (2005) 132-139.
- [15] M. Vasilopoulou.; I. Raptis.; P. Argitis.; I. Aspiotis.; D. Davazoglou.: “ Fabrication of WO<sub>3</sub>-based electrochromic displays using solid or gel-like organic electrolytes “ *Microelectron. Eng.* 83 (2006) 1414
- [16] M.Z. Najdoski.; T. Todorovski.; “ A simple method for chemical bath deposition of electrochromic tungsten oxide films ” *Materials Chemistry and Physics* 104 (2007) 483-487
- [17] H. Kamal.; A.A. Akl.; K. Abdel-hady.: “ Influence of proton insertion on the conductivity, structural and optical properties of amorphous and crystalline electrochromic WO<sub>3</sub> films “ *Physica B* 349 (2004) 192.
- [18] M.G. Hutchins.; N.S. Butt.; A.J. Topping.; J. Gallego.; P. Milne.; D. Jeffrey.; I. Brotherston.: “ Infrared reflectance modulation in tungsten oxide based electrochromic devices “ *Electrochimica Acta* 46 (2001) 1983.
- [19] A. Bessiere.; J. J. Badot.; M. C. Certiat.; J. Livagne.; V. Lucas.; N. Baffier.: ” Sol-gel deposition of electrochromic WO<sub>3</sub> thin film on flexible ITO/PET substrate ” *Electrochimica Acta* 46 (2001) 2251-2256.
- [20] K.J. Patel.; C.J. Panchal.; V.A. Kheraj.; M.S. Desai.: “Growth, structural, electrical and optical properties of the thermally evaporated tungsten trioxide (WO<sub>3</sub>) thin films” *Materials Chemistry and Physics* 114 (2009) 475–478
- [21] L. Lozzi.; L. Ottaviano.; H. Passacantando.; S. Santucci.; C. Cantalini.: “ The influence of air and vacuum thermal treatments on the NO<sub>2</sub> gas sensitivity of WO<sub>3</sub> thin films prepared by thermal evaporation ” *Thin Solid Films* 391 (2001) 224–8.

- [22] A. Monterio.; M.F. Costa.; B. Almedia.; V. Teixeira.; J. Gago.;E. Roman.: “ Structural and optical characterization of WO<sub>3</sub> deposited on glass and ITO ” *Vacuum* 64 (2002) 287–91.
- [23] A.D. Kuypers.; C.I. Spee.; J.L. Linden.; G. Kirchner.; J.F. Forsyth.; A. Mackor.: “ The effect of temperature on the preparation of electrochromic nickel oxide by an electroless method ” *Surf Coat Technol*, 74/75 (1995) 1033–7.
- [24] M. Regragui.; V. Jousseau.; M. Addou.;A. Outzourhit.; J.C Bernede.;B. El Idrissi.: “ Electrical and optical properties of WO<sub>3</sub> thin films ” *Thin Solid Films* 397 (2001) 238–43.
- [25] M. Tong.; G. Dai.; D. Gao.: “ V<sub>2</sub>O<sub>5</sub> based materials prepared by sol-gel process and their applicatios ” *Mater Chem Phys* 69 (2001) 176–9.
- [26] D. Taşkın.: ”Sol-gel Metoduyla Hazırlanan Metaloksit Filmlerin Yapısal ve Elektriksel Karakterizasyonu” *Yüksek Lisans Tezi*, Marmara Üniv. Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul, Türkiye, (2006) 31-34.
- [27] Esra Ozkan Zayim.: “ Optical and electrochromic properties of sol-gel made anti-reflective WO<sub>3</sub>-TiO<sub>2</sub> films ” *Solar Energy Materials & Solar Cells* 87 (2005) 695-703.
- [28] C.S Hsu.; C.K. Lin.; C.C. Chan.; C.C. Chang.; C.Y. Tsay.: ” Preparation and characterization of nanocrystalline porous TiO<sub>2</sub>/WO<sub>3</sub> composite thin films “ *Thin Solid Films* 494 (2006) 288-233.
- [29] J. Shieh.; H.M. Feng.; M.H. Hon.; H.Y. Juang.: ” WO<sub>3</sub> and W-Ti-O thin-film gas sensors prepared by sol-gel dip-coating “ *Sensors and Actuators B* 86 (2002) 75-80.
- [30] C.G. Granqvist.: *Handbook of Inorganic Electrochromic Materials*, Elsevier, New York (1995).
- [31] M. Keshmiri.; M. Mohseni.; T. Troczynski.: " Development of novel TiO<sub>2</sub> sol-gel-derived composite and its photocatalytic activities for trichloroethylene Oxidation " *Applied Catalysis B: Environmental* 53 (2004) 209-219.
- [32] S.K. Poznyak.; D.V. Talopin.; A.I. Külah.: “ Optical properties and charge transport in nanocrystalline TiO<sub>2</sub>-In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> composite films ” *Thin Solid Films* 405 (2002) 35-41.
- [33] F. Josse.; R. Lukas.; R. Zhou.; S. Schneider.; D. Everhart.: " AC-impedance-based chemical sensors for organic solvent vapors " *Sensors and Actuators B* 35-36 (1996) 363-369

- [34] A. Cremonesi.; Y. Djaoued.; D. Bersani.; P.P. Lottici.: “ Micro-Raman spectroscopy on polyethylene-glycol assisted sol-gel meso and macroporous WO<sub>3</sub> thin films for electrochromic application ” *Thin Solid Films* 516 (2008) 4128-4131.
- [35] N. Özer.: “Optical and electrochemical characteristics of sol-gel deposited tungsten oxide films: a comparison” *Thin Solid Films* 304 (1997) 310-314.
- [36] E.Z. Özkan.; F. Z. Tepehan.: ” Standart ve gözenekli WO<sub>3</sub> filmlerin hazırlanması ve kıyaslanması ” *itü fenbilimleri dergisi* 1 (2002) 11-12.
- [37] E.Z. Özkan.; F.Z. Tepehan.: ” Optical and structural characteristics of sol-gel deposited tungsten oxide and vanadium-doped tungsten oxide films ” *Solar Energy Materials & Solar Cells* 68 (2001) 265-277.
- [38] D.Saygin.; M. Hinczewski.; I. Sorar.; F.Z. Tepehan.; G.G. Tepehan.: “ Modeling the optical properties of WO<sub>3</sub> and WO<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> thin films ” *Solar Energy Materials & Solar Cells* 92 (2008) 821-829.
- [39] Lay Gaik Teoh.; Jiamm Shieh.; Wei Hao Lai.; I Ming Hung.; Min Hsinung Hon .: “ Structure and optical properties of mesoporous tungsten oxide ” *Journal of Alloys and Compounds* 396 (2009) 251-254.
- [40] P.K. Biswas.; N.C. Pramanik.; M.K. Mahapatra.; D. Ganguli.; J. Livage.: “ Optical and electrochromic properties of sol-gel WO<sub>3</sub> films on conducting glass ” *Materials Letters* 57 (2003) 4429-4432.
- [41] K. Huang.; J. Jia.; Q. Pan.; F. Yang.; D. Yang.; D. He.: ” Optical, electrochemical and structural properties of long-term cycled tungsten oxide films prepared by sol-gel ” *Pysica B* 396 (2007) 164-168.
- [42] R. Solarska.; B.D. Alexander.; J. Augustynski.: ” Electrochromic and photoelectrochemical characteristic of nanostructured WO<sub>3</sub> films prepared by sol-gel method” *C.R. Chimie* 9 (2006) 301-306.
- [43] C.O. Avellaneda.; L.O.S Bulhoes.: ” Photochromic properties of WO<sub>3</sub> and WO<sub>3</sub>:X (X=Ti, Nb, Ta and Zr) thin films ” *Solid State Ionics* 165 (2003) 117-121.
- [44] A. Cremonesi.; D. Bersani.; P.P. Lottici.; Y. Djaoued.; P.V Ashrit.: “ WO<sub>3</sub> thin films by sol-gel for electrochromic applications ” *Journal of Non-Crystalline Solids* 345&346 (2004) 500-504.
- [45] A. Patra.; K. Auddy.; D. Ganguli.; J. Livagne.: “ Sol-gel electrochromic WO<sub>3</sub> coatings on glass ” *Materials Letters* 58 (2001) 2251-2256.

- [46] S.A. Agnihotry.; R. Sharma.; M. Kar.; T.K. Saxena.: “ Towards electrochromic stability in sol-gel-derived tungsten oxide films: cyclic voltmetric and spectrophotometric investigations ” *Solar Energy Materials & Solar Cells* 90 (2006) 15-24.
- [47] A. Ömür Çelik.; F. Dumludağ.; A. Altındal.: “ Investigation of electrical, optical and gas sensing properties of sol-gel derived WO<sub>3</sub> thin films ” *Balkan Physics Letter* 15(1) (2009) 151007.
- [48] Ö.Hasançebi.: “ Sol-gel yöntemiyle hazırlanan bakır oksit ince filmlerin elektriksel, yapısal ve optiksel özelliklerinin incelenmesi ” *Yüksek Lisans Tezi*, Ankara Üniv. Fen Bilimleri Enstitüsü, Ankara, Türkiye, (2006) 27-28.
- [49] K. C. Kao.; W. Huang.: " Electronical Transport in Solids " (1981).
- [50] F.Gutmann.; L. E. Lyons.: “ Organic Semiconductors “ *Wiley* (1967) 425-427
- [51] N. F. Mott.; A. Davis.; " Electronic Processes in Non-Crystalline Materials ", Calerondon Press, Second Edition, (1979).
- [52] A. Altındal.; Ş. Abdurrahmanov.; M. Bulut.; Ö.Bekaroğlu.: “ Charge Transport mechanism in bis(double-decker lutetium(III) phthalocyanine) (Lu<sub>2</sub>Pc<sub>4</sub>) thin film ” *Shynthetic Metals* (2005).
- [53] B. Bilen.; Y. Skarlatos.; G. Aktas.: " Frequency-dependent conductivity in As<sub>2</sub>Se<sub>3</sub> and As<sub>2</sub>Te<sub>3</sub> thin films " *Journal of Non-Crystalline Solids* 351 (2005) 2153-2158.
- [54] M. Okutan.; E. Başaran.; H.I. Bakan .; F. Yakuphanoğlu.: ”AC conductivity and dielectric properties of Co-doped TiO<sub>2</sub>“ *Physica B* 364 (2005) 300-305.
- [55] A. Rougier.; A. Blyr.; J. Garcia.; Q. Zhang.; S.A. Impey.: “ Electrochromic W–M–O (M=V, Nb) sol-gel thin films: a way to neutral colour ” *Solar Energy Materials & Solar Cells* 71 (2002) 343–357.
- [56] M. Deepa.; A.K. Srivastava.; S.N. Sharma.; Govind.; S.M. Shivaprasad.: “ Microstructural and electrochromic properties of tungsten oxide thin films produced by surfactant mediated electrodeposition “ *Applied Surface Science* 254 (2008) 2342–2352.
- [57] C. Taştaltın.: " Quartz Kristal Mikrobalans (QCM) ve İnterdigital Transduser (IDT)' lerde Arayüzey Film Preparasyon Parametrelerinin Gaz Algılama Özelliklerine Etkisinin İncelenmesi ", *Yüksek Lisans Tezi*, Marmara Üniv. Fen Bilimleri Enstitüsü, İstanbul, Türkiye, (2000) 23-25.

- [58] K. Nishio.;T. Sei.; T. Tsuchiya.; “ Preparation and electrical properties of ITO thin films by dip-coating process ” *J. Ceram. Soc. Jpn.* 107 (1999) 199.
- [59] O.J. Klejnot.: “ Chloride alkoxides of pentavalent tungsten ” *Inorg. Chem.* 4 (1965) 1668;
- [60] S.R. Eliot.: “ dc conduction in amorphous chalcogenide and pnictide semiconductor ” *Adv. Phys.* 36, 135 (1987).
- [61] G. Reider.: “ Frequency-dependent dielectric behavior of amorphous silicon thin films ” *Phys. Rev. B* 20 (2) (1979) 607–615.

## ÖZGEÇMİŞ

11 Nisan 1983' de İstanbul' da doğdum. İlk, orta ve lise öğrenimimi İstanbul' da tamamladım. Yüksek öğrenimime 2001 senesinde Kocaeli Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fizik Bölümünü kazanarak başladım, 2004 senesinde Yatay geçişle Marmara Üniversitesi Fizik bölümüne geçtim ve 2006 yılında mezun oldum. Aynı yıl Marmara Üniversitesi Fen Bilimleri Enstitüsü Fizik Anabilim dalında Yüksek Lisans öğrenimine başladım.

Yüksek Lisans öğrenimim süresinde 2008 yılının Ağustos ayında Bodrum'da düzenlenen 25. Uluslararası Fizik Kongresinde, "Investigation of electrical,optical and gas sensing properties of sol-gel derived WO<sub>3</sub> thin films" isimli çalışmam sunuldu. Çalışma aynı zamanda "Balkan Physics Letter" dergisinde yayınlandı (BPL, 15, (1) 2009)



T.C.  
MARMARA ÜNİVERSİTESİ  
FEN BİLİMLERİ ENSTİTÜSÜ

**KABUL ve ONAY BELGESİ**

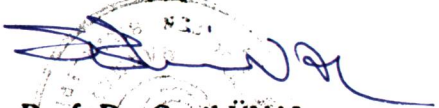
Aydın Ömür Çelik' in “Sol-Gel Yöntemiyle Hazırlanan WO<sub>3</sub> Filmlerin Elektriksel ve Optik Özelliklerinin İncelenmesi” başlıklı Lisansüstü tez çalışması, M.Ü. Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulu' nun 01.06.2009 tarih ve 2009/13-07 sayılı kararı ile oluşturulan jüri tarafından Fizik Anabilim Dalı Fizik Programında YÜKSEK LİSANS Tezi olarak kabul edilmiştir.

Danışman : Doç. Dr. Ahmet Altındal, Marmara Üniversitesi  
1.Üye : Doç. Dr. Ayhan Mergen, Marmara Üniversitesi  
2.Üye : Yrd. Doç. Dr Mustafa Özdemir, Marmara Üniversitesi  
Tezin Savunulduğu Tarih:26.06.2009

**ONAY**

M.Ü Fen Bilimleri Enstitüsü Yönetim Kurulu' nun 14.07.2009 tarih ve 2009/16-03 sayılı kararı ile Aydın Ömür Çelik ' in Fizik Anabilim Dalı Fizik Programında Y.Lisans (MSc.) derecesi alması onaylanmıştır.

Enstitüsü Müdürü

  
Prof. Dr. Sevil ÜNAL  
Müdür  
