

## Grafen Katkılı PVA Ara Yüzey Tabakalı Metal/Yarı İletken Yapıların Hazırlanması ve Dielektrik Özelliklerinin İncelenmesi

Seçkin Altındal Yerişkin<sup>1</sup>, Yasemin Şafak Asar<sup>2\*</sup>

<sup>1</sup> Gazi Üniversitesi, Mühendislik Fakültesi, Kimya Mühendisliği Bölümü, Ankara, Türkiye

<sup>2</sup> Gazi Üniversitesi, Fen Fakültesi, Fizik Bölümü, 06500, Ankara, Türkiye

### Öne Çıkanlar

- Grafen katkılı PVA (Gr-PVA) yapıların hazırlanması ve dielektrik özelliklerinin belirlenmesi.
- Geleneksel metal-oksid-yarıiletken (MOS) kapasitörler yerine Al(%5 Gr-PVA)/p-Si (MPS) kapasitörlerin kullanılması.
- (Gr-PVA) için elde edilen dielektrik parametrelerin ( $\epsilon'$  ve  $\epsilon''$ ) değerlerinin klasik SiO<sub>2</sub> ve SnO<sub>2</sub> gibi yalıtkanlardan çok büyük olması, onun gelecekte onlar yerine başarıyla kullanılabilceğini gösterir.
- Katkılı polimer ara-yüzey tabaka, geleneksel metotlarla büyütülen geleneksel yalıtkanlara göre ucuz, esnek ve daha basit yöntemlerle (sol-jel, spin-kaplama) yüksek sıcaklık ve basınç gerektirmeden büyütülebilmesi.

### Makale Bilgileri

Geliş: 01/12/2020

Kabul: 20/12/2020

### Anahtar Kelimeler

Al(%5 Gr-PVA)/p-Si (MPS) yapılar/kapasitörler, C-V ve G/ω-V ölçümleri, Seri direnç ve arayüzey durumlarının dielektrik karakteristikleri üzerine etkisi

### Özet

Bu çalışmada, Al(%5 Gr-PVA)/p-Si (MPS) kapasitörler hazırlanarak dielektrik özellikleri, oda sıcaklığında ve geniş bir voltaj aralığında ölçülen kapasitans-voltaj (C-V) ve kondüktans-voltaj (G/ω-V) ölçümleri kullanılarak yeterince düşük (1 kHz) ve yüksek (1 MHz) olmak üzere iki farklı frekansta incelendi. Ölçülen C-V ve G/ω-V eğrilerinden elde edilen ε'-V ve ε''-V eğrilerinin de tıpkı onlar gibi sırasıyla yığılım (-6V/-2V), tükenim (-2V/2V), ve terlenim (1.5V/6V) bölgelerine sahip olduğu gözlemlendi. Kompleks dielektrik sabitinin gerçek (ε') ve sanal (ε'') kısımlarının hem frekansa hem de voltaja bağlı olduğu ve bu bağlılığın özellikle tükenim ve yığılım bölgelerinde daha belirginleştiği saptandı. Hem ε' hem de ε'' değerlerinde frekans ve voltaja bağlı saptanan değişimler, özellikle hazırlanan aygıtın seri direncine (R<sub>s</sub>), (%5 Gr-PVA)/p-Si oluşan arayüzey durumlarına (N<sub>ss</sub>) ve yüzey/dipol polarizasyonuna atfedildi. Bu N<sub>ss</sub> değerleri ve polarizasyon, düşük-orta frekanslarda ölçülen C ve G değerlerine ve dolayısıyla da ε' ile ε'' değerlerine ilave bir katkı getirmektedir. Özellikle düşük frekanslarda elde edilen yüksek ε' ve ε'' değerleri, bize, kullanılan (Gr-PVA) polimer arayüzey tabakanın geleneksel yalıtkanlar yerine başarıyla kullanılabilceğini ve MPS kapasitörlerde daha fazla yük/enerji depolanabileceğini göstermektedir.

## Preparation of Metal/Semiconductor Structures with Graphene Doped PVA Interfacial Layer and Investigation of Their Dielectric Properties

### Highlights

- Obtaining graphene-doped PVA (Gr-PVA) structure and demonstrating its dielectric properties.
- Using Al(5% Gr-PVA) p-Si (MPS) capacitors instead of traditional metal-oxide-semiconductor (MOS) capacitors.
- The fact that the values of dielectric parameters (ε' and ε'') obtained for (Gr-PVA) are much higher than those of conventional insulators such as SiO<sub>2</sub> and SnO<sub>2</sub> indicates that it can be used successfully instead of them in the future.
- The doped polymer interface layer can be grown with cheaper, flexible and simpler methods (sol-gel, spin-coating) without requiring high temperature and pressure compared to traditional insulators grown by traditional methods.

### Article Info

Received: 01/12/2020

Accepted: 20/12/2020

### Keywords

Al(%5 Gr-PVA)/p-Si (MPS) structures/capacitors, C-V and G/ω-V measurements, Series resistance and interface trap effects on the dielectric properties

### Abstract

In this study, Al(%5 Gr-PVA)/p-Si (MPS) capacitors were fabricated and their dielectric properties investigated in the wide range of voltage at enough low (1 kHz) and high (1 MHz) frequencies at room temperature. The real and imaginary components of complex dielectric constant (ε' and ε'') were calculated from the experimental capacitance/conductance-voltage (C/G-V) data. Both the ε' and ε'' versus V plots have accumulation (-6V/-2V), depletion (-2V/2V), and (1.5V/6V) regimes, respectively. The obtained ε' and ε'' values were found both the function of frequency and voltage, but this dependence becomes more effective especially in depletion and accumulation region due to the effects of surface states (N<sub>ss</sub>) and series resistance (R<sub>s</sub>) of the capacitor. In addition, the values of N<sub>ss</sub> and dipole polarization leads to a contribution to the measured values of them especially at low-intermediate frequencies. The obtained higher values of ε' and ε'' in low frequencies show that, the prepared (Gr-PVA) organic interlayer can be successfully used instead of traditional insulator layers and so can be more charges/energy storage in MPS type capacitors.



Makale, Creative Commons 4.0 (CC BY NC SA) uluslararası lisansı altında açık erişim olarak yayımlanmaktadır.

## 1. GİRİŞ

Arayüzey tabakasız ve tabakalı metal-yarıiletken (MS ve MIS) tipi yapıların elektrik ve dielektrik özellikleri yüzyıldan fazladır inceleniyor olmasına rağmen, özellikle M/S ara-yüzeyinde oluşan engelin biçimi ve iletim mekanizmaları henüz yeterince aydınlığa kavuşturulmamıştır [1-5]. Bu yarıiletken aygıtların performansı özellikle aygıt sıcaklığı, frekans, uygulanan voltaj, M/S arasında oluşan arayüzey tabakası ile engelin homojenliğine, katkı atomlarının yoğunluğuna, yasak enerji aralığında farklı nedenlerle oluşan ara-yüzey durumlarına ( $N_{ss}$ ), yapının seri ve kısa devre dirençleri ( $R_s$  ve  $R_{sh}$ ) gibi birçok faktöre bağlıdır [1-9]. M/S arasında oluşan engelin yüksekliği/biçimi kullanılan metal ile yarıiletkenlerin iş fonksiyonlarına ve fabrikasyon işlemine de bağlıdır [3, 10-12]. Günümüzde elektronik aygıtların temel teknik ve bilimsel problemi, performansı artırmak ve maliyeti düşürmektir. Bu ancak geleneksel düşük-dielektrikli yalıtkan tabakalar yerine daha düşük maliyetli ve yapımı kolay yüksek dielektrikli katkılı polimerler veya ferro-elektrik ara-yüzey tabaklar kullanmakla mümkündür [11-15].

Son zamanlarda,  $SiO_2$  gibi geleneksel yalıtkanlar yerine daha ucuz ve esnek olan, yüksek sıcaklık ve enerji tüketimi gerektirmeyen basit yöntemlerle büyütülebilen organikler kullanılmaya başlanmıştır [12-17].  $SiO_2$  kararlı yapıda olmasına rağmen, düşük dielektrik sabitine ( $\approx 3,8$ ) sahip oluşu, kaçak akımlara yol açan çok sayıda oksijen boşlukları ile safsızlıklar içerir [1-3]. Bu noktada, M/S arasına yüksek dielektrikli bir tabakanın büyütülmesi, M/S arasında oluşan engelin yüksekliğini (BH) kontrol ederek, istenmeyen çoğu arayüzey durumlarını pasivize ederek, doğrultma oranını ( $RR=I_f/I_r$ ) artırır [15-20]. Arayüzey tabakası yeterince kalın ise ( $\geq 50$  nm), bu MIS veya MPS yapılar/diyotlar MOS veya MPS kapasitörlere dönüşür.

Organikler/polimerler arasında, polivinil alkol (PVA) ve polyvinyl-pyrrolidone (PVP) ışığa duyarlı, su ve alkolde kolayca çözülebilen, toksik olmayan, yüksek dielektrik dirençli, iyi yük depolama kapasiteli, OH grupları ile ilginç fiziksel özelliklere sahip ve kolaylıkla hidrojen bağı oluşturabilen polimerlerdir [21-23]. Genelde, kapasitörün iki temel işlevinden birisi elektriği depolama ve boşaltma diğeri ise dc akışını engellemektir. 1745 yılında Leyden Jar'ın [23] buluşu, kapasitör teknolojisinin başlangıcı oldu. Kapasitörler endüstriyel uygulamalardan; otomobil, uçak, uzay, tıp, bilgisayar, oyun ve güç kaynağı devrelerine kadar birçok kullanım alanına sahiptir.

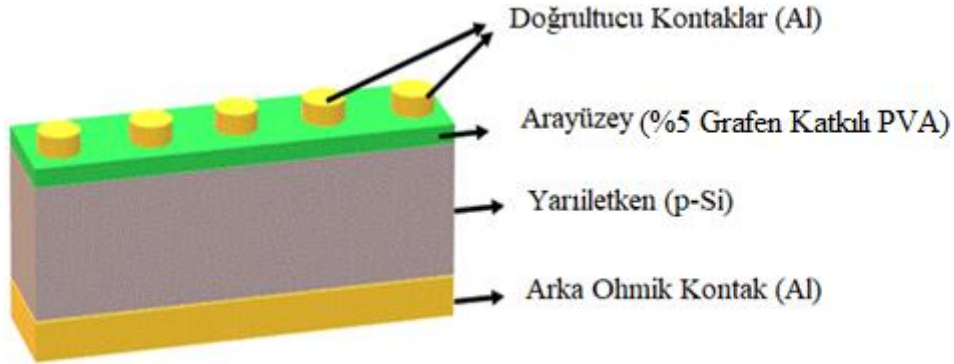
Burada kullanılan PVA içine katılan grafen, grafit ile aynı yapıya sahip olup tek kat karbon atomlarından oluşmaktadır. Grafen hem sağlam hem de iyi elektrik tutmakta ve dolayısıyla pil teknolojisinde devrim yaratması beklenmektedir. Silikona göre mobilitesi en az 10 kat daha yüksek, çok elastik ve kararlı yapısıyla karbon temelli elektronikte yeni bir çığır açmaktadır. Grafen, 2004'te Rus kökenli İngiliz Fizikçi bilim adamları Andre Geim ve Konstantin Novoselov tarafından keşfedildi ve bu yüzden 2010'de Nobel ödülü kazandılar [24]. Grafenden üretilmiş kapasitörlerin çok hızlı dolmaları ve şarjlarının uzun sürmesi, teknoloji firmalarının dikkatini grafen malzemeli piller üzerine yoğunlaştırmıştır.

Kapasitans ( $C=\epsilon_i\epsilon_0A/d_i$ ), elektrotların alanı (A) ve arayüzey tabakanın dielektrik sabiti ( $\epsilon_i$ ) ile doğru orantılı, arayüzey tabakanın kalınlığı ( $d_i$ ) ile ters orantılıdır. Kapasitörlerde verimi veya enerji depolamayı artırmanın yolu,  $\epsilon_i$ 'nin yüksek ve kalınlığının çok ince olmasıyla mümkündür. Ayrıca, MS ve MIS tipi yapılarda, kalitenin bir ölçüsü olan idealite faktörünün (n) ideale yaklaşması ( $\sim 1$ ) gerekir. Yani; ( $n=1+(d_i/\epsilon_i)(\epsilon_s/W_d+qN_{ss})$ ) eşitliğinden görüldüğü gibi, ara-yüzeyin dielektrik sabitinin ( $\epsilon_i$ ) çok yüksek, tüketim tabaka kalınlığının ( $W_d \sim 1(N^{0.5})$ ) yüksek veya katkı atomların yoğunluğunun (N) düşük ve arayüzey durum yoğunluklarının da ( $N_{ss}$ ) aynı şekilde düşük olmasıyla mümkündür [1-5]. Özetle çok özel bir hazırlama tekniği kullanılmadığı sürece, ideal bir diyot, pil veya kapasitör hazırlamak ve kararlılığını artırmak neredeyse imkânsızdır.

Bu çalışmanın amacı, MIS/MOS tipi kapasitörler yerine performansını ve sığayı artırmak amacıyla Al/p-Si arasına yüksek-dielektrikli (%5 Gr-PVA) polimer film elektron-eğirme (electrospining) metoduyla büyütülmüştür. Hazırlanan Al/(%5 Gr-PVA)/p-Si yapının C-V ve G/ $\omega$ -V ölçümleri geniş voltaj aralığında ( $\pm 6V$ ) ve hem düşük (1kHz) hem de yüksek frekansta (1 MHz) oda sıcaklığında ölçüldü. Sonuçlar, (Gr-PVA) tabakasının geleneksel yalıtkanlar yerine başarıyla kullanılabileceğini, yüksek sığa ile dielektrik sabitine sahip olması da MPS kapasitörlerde daha fazla yük/enerji depolanabileceğini göstermiştir.

## 2. MATERYAL VE YÖNTEM

Bu çalışmada, Al/(%5 Gr-PVA)/p-Si (MPS) kapasitörler, 2 inch (5,08 cm) çaplı, (100) yönelimli, ~300 µm kalınlıkta ve 0,1 Ω.cm öz dirençli bor katkılı (p-Si) kristal üzerinde oluşturuldu. Gerek Kristal temizlenme gerekse de numunelerin oluşturulmasında kullanılan tüm cımbız ve beher gibi malzemeler Aldrich marka asetonla temizlendi ve yüksek dirençli (18 MΩ) de-iyonize suda durulandıktan sonra 80°C de etüde sterilize edildi. P-Si yapraklar ammonium peroxide içinde 1 dakika süreyle ultrasonik banyoda çalkalanarak yüzeyindeki doğal oksit tabakası temizlendi ve de-iyonize suda 5 dakika süreyle ultrasonik banyoda durulandı. Sonra, sırasıyla (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>:H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>:H<sub>2</sub>O=3:1:1) çözeltisinde 1 dakika ve hemen arkasından da (HCl:H<sub>2</sub>O=1:1) çözeltisinde 1 dakika süreyle ultrasonik olarak temizlendi. On dakika süreyle de-iyonize suda durulandıktan sonra kuru nitrojen (N<sub>2</sub>) gazıyla iyice kurulanıp arka ohmik kontakların oluşturması için hemen metal buharlaştırma sitemine yerleştirildi. Yaklaşık 10<sup>-6</sup> Torr basınç altında p-Si yaprağın arka yüzeyine ~150 nm kalınlığında Al (~99,995 % saflıkta) buharlaştırıldı. Düşük dirençli iyi bir ohmik kontak sağlamak amacıyla p-Si yarıiletken nitrojen ortamında yaklaşık 450°C de 5 dakika süreyle tavlandı. PVA arayüzey tabakasını oluşturmasında kullanılan PVA-Mw 130,000 g/mol polivinil alkol Sigma Aldrich firmasından temin edildi. Grafen toz ise "Grafen Chemical Industries Co" firmasından temin edildi. Deiyonize su ve asetik asit (100 %, Merck) çözücü olarak kullanıldı. Hazırlanan (Gr-PVA) çözeltisi, electron-eğirme yöntemiyle p-Si yaprağın ön yüzeyine kaplandı. Son adım olarak da, yine aynı sistemde ve aynı basınç altında, 1 mm çaplı ve 150 nm kalınlıkta doğrultucu kontaklar (Gr-PVA) tabakası üzerine kaplandı. Hazırlanan (Gr-PVA) ara-yüzey tabakanın kalınlığı Veeco Dektak 6M profilometresi ile 40 nm bulundu. Hem C-V hem de G/ω-V ölçümleri HP 4192A LF empedans analizör yardımıyla oda sıcaklığında gerçekleştirildi. Hazırlanan Al/(%5 Gr-PVA)/p-Si kapasitörün şematik diyagramı Şekil 1'de verildi.



Şekil 1. Al/(%5 Gr-PVA)/p-Si MPS yapısının şematik gösterimi

## 3. BULGULAR

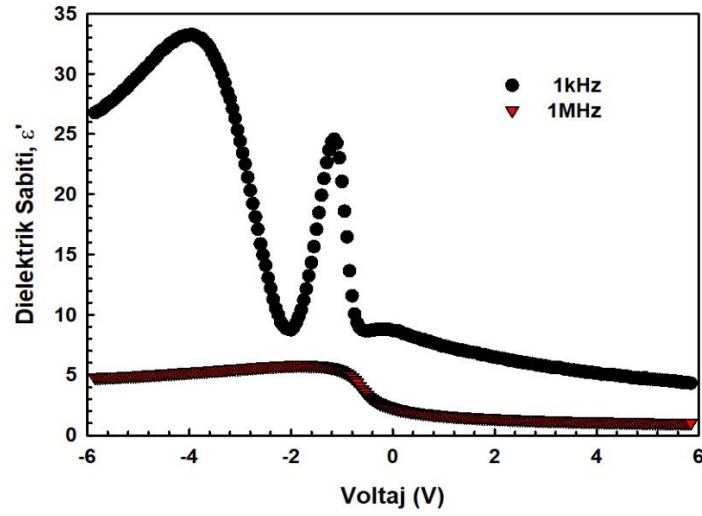
Dielektrik bir madde, elektrik alanla etkileştiğinde, pozitif ve negatif yük merkezleri elektrostatik kuvvet etkisinde zıt yönlerde küçük yer değiştirmeler yaparlar ve bunun sonucunda dipol momentleri oluşur. Elektrik alan etkisi ortadan kaldırıldığında ise bu yük merkezleri eski konumlarına dönerler ve net dipol moment sıfır olur. Dielektrik maddelerin elektrik alan altındaki bu yer değiştirme davranışları dielektrik sabitleri cinsinden ifade edilir. Pek çok dielektrik maddenin dielektrik sabiti etkileştiği elektrik alan şiddetinden bağımsızdır. Ancak değişken elektrik alan etkisinde hem frekansa hem de sıcaklığa bağlıdır.

Hazırlanan Al/(%5 Gr-PVA)/p-Si (MPS) kapasitörün hem frekans hem de voltaja bağlı dielektrik özelliklerini incelemek için C-V ve G/ω-V ölçümleri 1 kHz ve 1 MHz için ±6V aralığında incelendi. Metal ile yarıiletken arasına sandviçlenen bir ince filmin veya tabakanın kompleks dielektrik sabiti  $\epsilon^* = \epsilon' - j\epsilon''$  şeklinde ifade edilir ve burada  $\epsilon'$  kompleks dielektrik sabitinin gerçek kısmı,  $\epsilon''$  ise sanal kısmı olup sırasıyla ölçülen sığa C ve G/ω değerlerinden voltaja bağlı elde edilebilir. Dolayısıyla, hazırlanan kapasitörün yeterince düşük (1 kHz) ve yüksek frekanslarda (1 MHz) ölçülen C-V ve G/ω-V kullanılarak sırasıyla aşağıdaki eşitliklerden elde edildi [25-30].

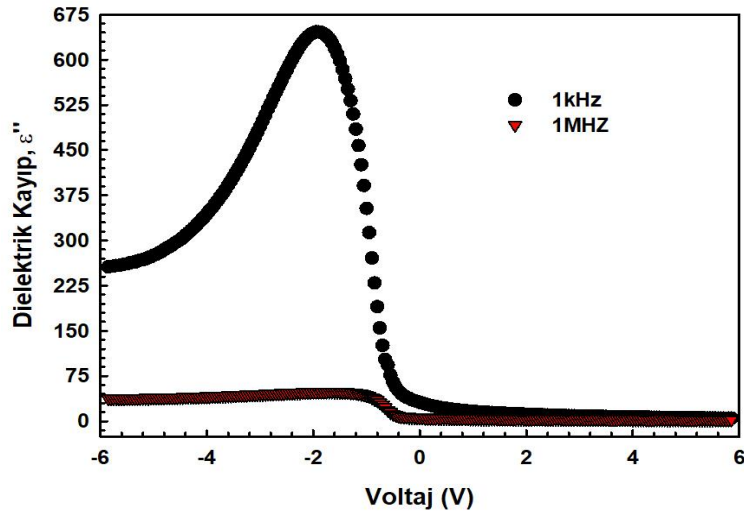
$$\varepsilon' = \frac{C_m}{C_i} = \frac{C_m d_i}{\varepsilon_0 A} \quad (1)$$

$$\varepsilon'' = \frac{G_m}{\omega C_i} = \frac{G_m d_i}{\varepsilon_0 \omega A} \quad (2)$$

İdeal durumda, MIS veya MPS tipi bir aygıtın veya kapasitörün C ve G/ω değerlerinin frekandan bağımsız olması ve artan voltaj ile artması beklenir. Bu durum, Eş. (1) ve Eş. (2)'den de görüldüğü gibi ε' ve ε'' değerleri için de geçerlidir. Ancak uygulamalarda bu durum oldukça farklıdır. Çünkü bu aygıtlarda hem R<sub>s</sub> hem de N<sub>ss</sub> değerlerini sıfıra indirmek oldukça zordur. C-V ve G/ω-V ölçümlerinden Eş. (1) ve Eş. (2)'den yararlanarak, hem 1 kHz hem de 1 MHz için elde edilen voltaja bağlı ε' ve ε'' grafikleri sırasıyla Şekil 2 ve 3'de verildi.



Şekil 2. Al/(%5 Gr-PVA)/p-Si MPS kapasitör için 1 kHz ve 1 MHz için elde edilen ε'-V grafiği



Şekil 3. Al/(%5 Gr-PVA)/p-Si MPS kapasitör için 1 kHz ve 1 MHz için elde edilen ε''-V grafiği

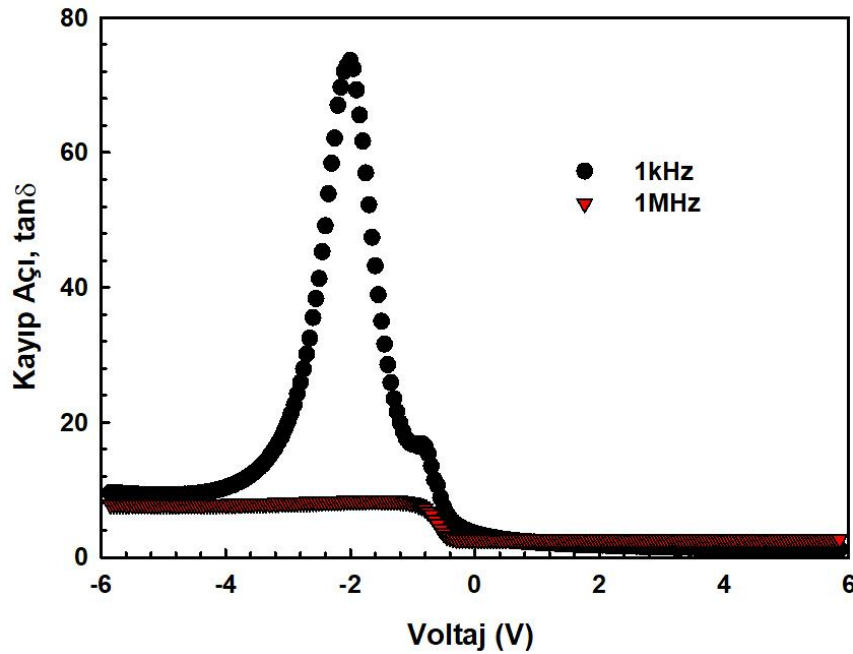
Şekil 2 ve 3'de görüldüğü gibi ε' ve ε'' değerleri hem frekansa hem de voltaja oldukça bağlıdır. Bu sapmalar özellikle hazırlanan aygıtın R<sub>s</sub>, N<sub>ss</sub> ve yüzey veya dipol polarizasyonuna atfedildi [12, 19, 25-28]. Yine bu iki şekilden de açıkça görüldüğü gibi hem ε'-V hem de ε''-V eğrileri sırasıyla yığılım (-6V ile -2V), tüketim

(-2 V ile 2 V), ve terslenim (1,5-6V) bölgelerine sahiptir. Şekil 2’de görüldüğü gibi, küçük frekans (1 kHz) için C-V eğrisi iki tane belirgin pik vermektedir. Bu piklerden ilki yaklaşık -4 V veya yığılım bölgesinde yerleşmiş olup  $R_s$  değerinden kaynaklanmaktadır. Ancak diğer pik ise -1V veya tüketim bölgesinde yerleşmiş olup  $N_{ss}$  durumları ve dipol polarizasyonundan kaynaklanmaktadır. Çünkü düşük frekanslarda, periyot ( $=1/f$ ) tuzaktaki yüklerin ömründen yüksek olduğu için tuzaklardaki yükler rahatlıkla uygulanan ac sinyali takip edebilir ve dipollerde elektrik alan yönünde rahatlıkla dönebilir [1-3, 12, 19, 25]. Arayüzey tabaka ile yarıiletken arasında ve yasak enerji aralığında özel bir dağılıma sahip olan bu arayüzey durumları, uygulanan bir dış elektrik alan veya sıcaklık etkisinde yeniden yapılanıp düzenlenirler. Düşük ve orta frekanslarda, hem polarizasyon hem de arayüzey durumlarından dolayı ölçülen C ve G değerlerine veya  $\epsilon'$  ile  $\epsilon''$  değerlerine ilave bir katkı getirmektedir. Ancak bu katkı özellikle tüketim bölgesinde daha yüksektir. Yeterince yüksek frekanslarda ( $f \geq 1\text{MHz}$ ), hem arayüzey durumlarından hem de yüzey veya dipol polarizasyonundan dolayı ölçülen  $\epsilon'$  ve  $\epsilon''$  değerlerine gelen katkı ihmal edilecek kadar küçüktür [1, 2, 7, 8, 25-31].

Dielektrik kayıp numune üzerindeki a.c. gerilim etkisi nedeniyle, dielektrik bir maddenin davranışında ifade edilmiş olan periyodik elektrik alan ile onunla aynı fazda olmayan elektrik yer değiştirme arasındaki faz kayması olarak tanımlanır.  $\tan\delta$  ise, sıgasal olarak numunede depolanan enerjinin bir periyot kayıp miktarı biçiminde kayıp tanjant yada kayıp açısı olarak ifade edilir. Dielektrik maddenin iletkenliği arttıkça kayıp akımı artacağından kayıp açısı büyüyecektir. Önemli bir dielektrik parametresi olan tanjant kayıp ( $\tan\delta$ ) değeri, yine frekans ve voltaj için elde edilen  $\epsilon'$  ve  $\epsilon''$  değerleri kullanılarak aşağıdaki eşitlikten her iki frekans için hesaplandı ve Şekil 4’ de verildi [25-31].

$$\tan\delta = \frac{\epsilon''}{\epsilon'} \quad (3)$$

Şekil 4’den görüldüğü gibi, 1 kHz için elde edilen  $\tan\delta$ -V grafiği -2V civarında net keskin bir pik vermektedir. Bu grafikten de anlaşılacağı gibi, hem arayüzey durumları hem de arayüzey/uzay yük veya dipolar/yönelimli polarizasyon düşük frekanslarda ve zayıf yığılım bölgesi ile zayıf terslenim bölgeleri arasında çok etkilidir.

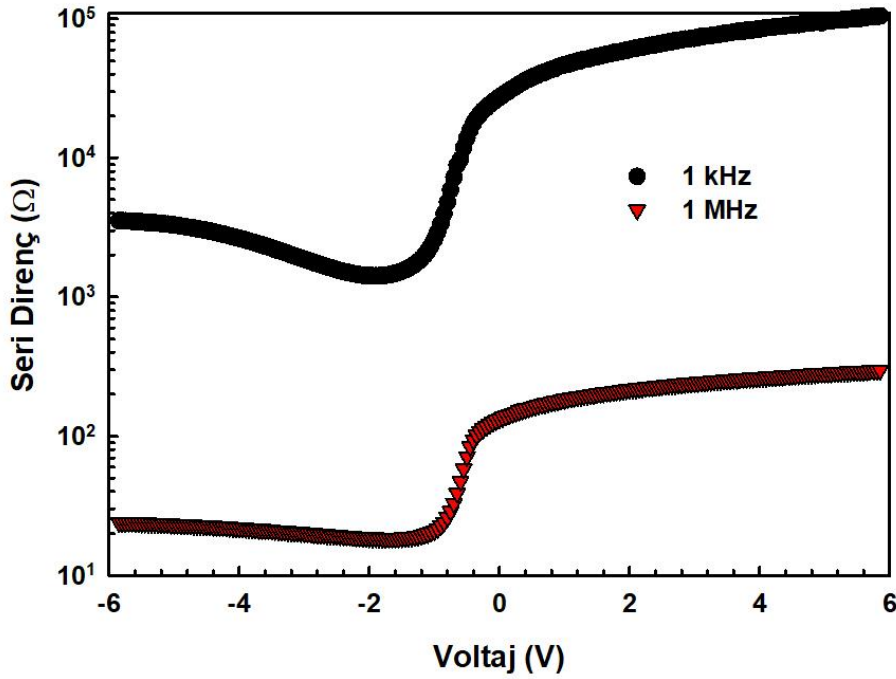


Şekil 4. Al/(%5 Gr-PVA)/p-Si MPS kapasitör için 1 kHz ve 1 MHz için elde edilen  $\tan\delta$ -V grafiği

Seri direnç değeri ise sadece yüksek frekanslarda ve tersinim bölgesinde etkilidir. Düşük frekanslarda, seri direncin C-V eğrilerine katkısı ihmal edilebilecek kadar küçüktür. Ancak yüksek frekans empedans ölçümleri için elde edilen elektrik ve dielektrik hesaplamalarda  $R_s$  etkisi dikkate alınmadığı takdirde hesaplanan parametrelerin doğruluğu ve güvenilirliği tartışmalı hale gelir.

Bir MPS yapının seri direncinin farklı kaynakları olabilir. Bunlar; (i) kontakların alındığı iletken kablolar, (ii) yarıiletkenin omik kontağı, (iii) alt taş ile omik kontak arasında büyütme esnasında veya öncesinde oluşabilen toz, yağ vb. kirlilikler (iv) quasinötr yarıiletkenin direnci ve (v) yarıiletkenin düzensiz bir şekilde katkılanmış olması olarak listelenebilir [8]. Seri direnç değerleri hesaplanırken akım-voltaj (I-V) ve empedans (Z) (C-V,  $G_m/\omega$ -V) karakteristikleri üzerinden hesaplanan değerlerin farklı oluşu bu ölçümlerin farklı doğalara sahip olmalarından kaynaklanmaktadır. Bu açıdan, seri direncin admitans ( $Y = 1/Z = G + j\omega C$ ) verileri kullanılarak hesaplanması gerekmektedir. Seri direncin hesaplanmasında en sık kullanılan ve daha hassas olan Nicollian ve Brews'in [8] yöntemidir. Bu yöntemde göre  $R_s$  değeri, ölçülen C ve G verileri kullanılarak aşağıda verilen formülden hesaplanır.

$$R_s = \frac{G_m}{G_m^2 + (\omega C_m)^2} \quad (4)$$



**Şekil 5.** Al/(%5 Gr-PVA)/p-Si MPS kapasitör için 1 kHz ve 1 MHz için elde edilen seri direncin uygulanan voltaja göre değişim grafiği

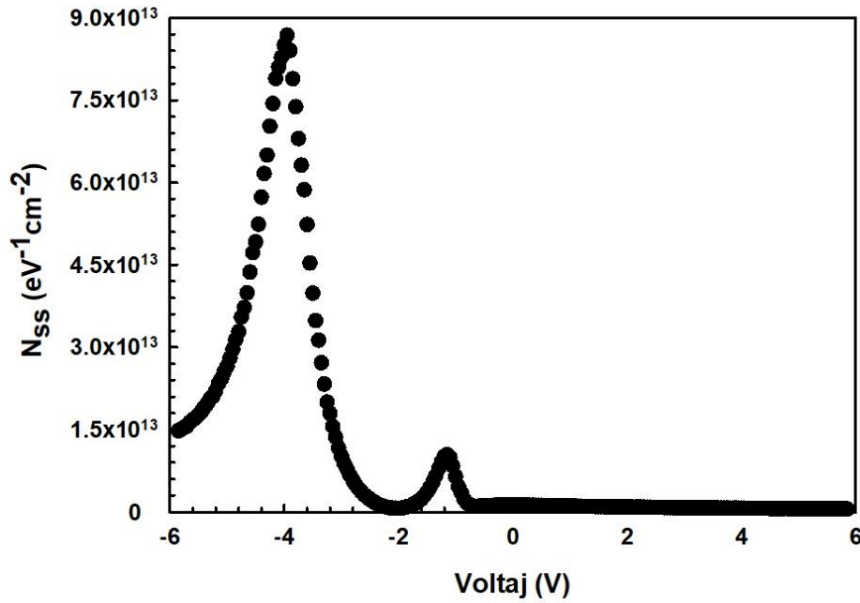
Şekil 5'te, Al/(%5 Gr-PVA)/p-Si MPS kapasitör için 1 kHz ve 1 MHz için elde edilen seri direncin uygulanan voltaja göre değişim grafiği verilmiştir. Şekil 5'te görüldüğü gibi,  $R_s$  değeri hem voltaja hem de oldukça frekansa oldukça bağlıdır. Ancak en gerçekçi  $R_s$  değeri, yeterince yüksek frekans da ( $f \geq 1$  MHz) ve kuvvetli yığılma bölgesinde ölçülen değerdir. Al/(%5 Gr-PVA)/p-Si MPS kapasitör için  $R_s$  değeri, 1 MHz de 6 V değeri için yaklaşık 24  $\Omega$  olarak hesaplandı. Ancak 1 kHz için aynı voltajda ölçülen değer çok daha yüksektir. Çünkü düşük frekanslarda hem ara-yüzey durumlarından hem de polarizasyondan dolayı ölçülen C ve G değerlerine oldukça büyük bir katkı gelmektedir.

Teorik olarak ara-yüzey durumları, kısa bir zaman aralığında yarıiletkenle yük değiştirebilen ve yalıtkan/yarıiletken ara yüzeyinde yasak bant aralığı içinde yer alan girilebilir enerji seviyeleri olarak tanımlanır. Arayüzey durumları verici veya alıcı tipte olabilirler. Alıcı, enerji seviyesi dolu ise negatif yüklü, boş ise yüksüzdür. Verici, enerji seviyesi dolu ise yüksüz, boş ise pozitif yüklüdür. Bir gerilim uygulandığında, ara-yüzey tuzak seviyeleri, Fermi seviyesi ( $E_F$ ) geride sabit kalırken valans/değerlik ve iletkenlik bantları ile beraber aşağı ve yukarı hareket ederler. Arayüzey tuzaklarındaki yükün değişimi, arayüzey tuzaklarının iletkenlik ve valans bandı ile yük alışverişi yapmasıyla meydana gelir. Bu yükün değişimi MIS/MPS kapasitansına katkıda bulunur ve ideal MIS eğrisini değiştirir [8].

Yüzey durumlarının hesaplanmasında ve uygulanan voltaja göre değişim dağılımının elde edilmesinde düşük-yüksek frekans ( $C_{LF}$ - $C_{HF}$ ) kapasitans yöntemi kullanıldı. Bu yöntemde  $N_{ss}$  değerlerini hesaplamak için her bir voltajda ölçülen kapasite değerleri kullanılarak aşağıdaki formüle göre hesaplanır [1-3, 8].

$$N_{ss} = \frac{1}{qA} \left( \left( \frac{1}{C_{LF}} - \frac{1}{C_i} \right)^{-1} - \left( \frac{1}{C_{HF}} - \frac{1}{C_i} \right)^{-1} \right) \quad (5)$$

Burada,  $C_i$  yalıtkan tabaka kapasitansını temsil etmektedir. Bu yöntemin avantajı, yalıtkan tabakanın birçok özelliğinin belirlenmesine olanak sağlaması gerçeğinden kaynaklanmaktadır. Şekil 6, Al/(%5 Gr-PVA)/p-Si (MPS) kapasitör için voltaja bağlı elde edilen  $N_{ss}$ 'in yoğunluk dağılımı verildi.



Şekil 6. Al/(%5 Gr-PVA)/p-Si MPS kapasitör için düşük-yüksek (1 kHz ve 1 MHz) frekans metodu kullanılarak hesaplanan  $N_{ss}$  değerlerinin uygulanan voltaja göre değişim grafiği

Bu yöntemde,  $N_{ss}$  değerleri uygulanan sinyalin frekansındaki değişim ile kapasite değerlerinde meydana gelen ilave katkıdan elde edilir. Yeterince yüksek frekanslarda (1 MHz), ara yüzey durumları a.c. uyarımına cevap veremez. Başka bir deyişle, yeterince yüksek frekanslarda hemen hemen hiçbir yük uygulanan dış ac sinyalini takip edemez iken, yeterince düşük (1 kHz) frekanslarda ise neredeyse hepsi ac sinyalini rahatlıkla takip edebilmektedir. Dolayısıyla bu düşük ve yüksek kapasitans değerleri arasındaki yarıma, kuvvetli yığılma bölgesinde  $R_s$ 'den kaynaklanırken, tükenim ve terslenim bölgesinde ara yüzey durumları ve polarizasyondan kaynaklanmaktadır. Şekil 6'dan da görüldüğü gibi,  $N_{ss}$ -V grafiği net iki pik vermektedir ve büyük pik yığılma bölgesine karşılık gelirken, küçük pik ise tükenim bölgesine karşılık gelmektedir. Gözlemlenen bu iki pik, arayüzey durumlarının eklemdeki yasak enerji aralığındaki özel bir dağılımına atfedildi [1-3, 7, 8].

Sonuç olarak Şekil 2 ve 3'den görüldüğü gibi, 1 kHz'de Al/(%5 Gr-PVA)/p-Si kapasitör için elde edilen  $\epsilon'$  ve  $\epsilon''$  değerleri tüm voltaj bölgesinde bu frekansta klasik yalıtkanlar ( $\text{SiO}_2$ ,  $\text{SnO}_2$ ) için elde edilenlerden çok daha yüksektir. Ayrıca Şekil 5 ve 6'dan görüleceği gibi  $R_s$  ve  $N_{ss}$  değerlerinin ve voltaja göre dağılım profiline hazırlanan yapının bir MOS kapasitör yapısı için literatür ile uyumlu olduğunu göstermektedir. Elde edilen bu sonuçlar, bize Al ile p-Si arasına elektro-eğirme yöntemiyle büyütülen (%5 Gr-PVA) polimer tabakanın hem başarıyla farklı klasik yalıtkanlar/dielektrikler yerine kullanılabileceğini hem de yüksek oranda yük/enerji depolayabileceğini göstermektedir.

#### 4. TARTIŞMA

Bu çalışmada, performansı artırmak amacıyla klasik MOS kapasitörler yerine, Al/(%5 Gr-PVA)/p-Si (MPS) tipi kapasitörler hazırlandı. Bu yapıların dielektrik özellikleri, oda sıcaklığında ve geniş bir voltaj aralığında ölçülen kapasitans-voltaj (C-V) ve kondüktans-voltaj ( $G/\omega$ -V) ölçümleri kullanılarak hem yeterince düşük (1 kHz) hem de yüksek (1 MHz) olmak üzere iki farklı frekansta incelendi. Elde edilen  $\epsilon'$ -V ve  $\epsilon''$ -V eğrilerinin de tıpkı bir MOS kapasitör gibi sırasıyla yığılım (-6V/-2V), tükenim (-2V/2V), ve terslenim (1.5V/6V) bölgelerine sahip olduğu gözlemlendi. Hem  $\epsilon'$  hem de  $\epsilon''$  değerlerinin frekansa ve voltaja oldukça bağlı olduğu ve bağlılığın özellikle tükenim ile yığılım bölgelerinde daha belirginleştiği saptandı. Hem  $\epsilon'$  hem de  $\epsilon''$  değerlerinde özellikle düşük frekansta voltaja bağlı olarak büyük değişimler, hazırlanan kapasitörün seri direncine ( $R_s$ ), (Gr-PVA)/p-Si arayüzeyinde lokalize olan  $N_{ss}$  ve arayüzey/uzay yük veya dipolar/yönelimli polarizasyona atfedildi. Çünkü hem  $N_{ss}$  değerleri hem de polarizasyon, düşük frekanslarda ölçülen C ve G ve dolayısıyla da  $\epsilon'$  ile  $\epsilon''$  değerlerine ilave bir katkı sağlamaktadır ve bu katkı yüksek frekanslarda ihmal edilecek kadar küçüktür. Ancak yüksek frekanslarda özellikle yığılım bölgesinde  $R_s$  etkisi ve düşük frekanslarda ise tükenim bölgesinde  $N_{ss}$  etkisi hem elektrik hem dielektrik özelliklerinin de dikkate alınması gerekmektedir. Aksi takdirde hesaplanan parametrelerin doğruluğu ve güvenilirliği tartışılır hale gelir. Bu sebeple çizilen  $R_s$  ve  $N_{ss}$  değerlerinin voltaja bağlı değişim grafiklerinden sonuçların büyüklük ve davranış olarak literatür ile uyumlu olduğu görülmüştür. Düşük frekanslarda elde edilen yüksek  $\epsilon'$  ve  $\epsilon''$  değerleri, bize, kullanılan (Gr-PVA) polimer arayüzey tabakanın geleneksel yalıtkanlar yerine başarıyla kullanılabileceği ve MPS kapasitörlerde daha fazla yük/enerji depolanabileceğini göstermektedir.

#### TEŞEKKÜR

Bu çalışma, Gazi Üniversitesi Bilimsel Araştırma Projeleri (BAP) tarafından desteklenmiştir (Proje No: GÜ-BAP.05/2019-26).

#### ÇIKAR ÇATIŞMASI/ÇAKIŞMASI BİLDİRİMİ

Yazarlar arasında çıkar çatışması/çakışması bulunmamaktadır.

#### KAYNAKLAR

- [1] Sze, S. M. and Kwok, K. N. (2007). Physics of Semiconductor Devices (3<sup>rd</sup> ed.). New Jersey: John Wiley & Sons, 362-390.
- [2] Rhoderick, E. H. and Williams, R. H. (1988). Metal Semiconductor Contacts (2<sup>nd</sup> ed.). Oxford: Oxford Press, 257-264.
- [3] Sharma, B. L. (1984). Metal-Semiconductor Schottky Barrier Junctions and Their Applications (1<sup>st</sup> ed.). New York: Plenum Press, 55-175.
- [4] Mott, N. F. (1938). Note on the contact between a metal and an insulator or semiconductor. *Proceedings of the Cambridge Philosophical Society*, 34, 568-572.
- [5] Cowley, A. M. and Sze, S. M. (1965). Surface state and barrier height of metal semiconductor systems. *Journal of Applied Physics*, 36(10), 3212-3221.



- [6] Tung, R. T. (2001). Recent advances in Schottky barrier concepts. *Materials Science & Engineering R-Reports*, 35 (1-3), 1-138.
- [7] Card, H. C. and Rhoderick, E. H. (1973). The effect of an interfacial layer on minority carrier injection in forward-biased silicon Schottky diodes. *Solid-State Electronics*, 16 (3), 365-374.
- [8] Nicollian, E. H. and Brews, J. R. (1982). *Metal Oxide Semiconductor (MOS) Physics and Technology*. New York: Wiley, 186-330.
- [9] Parlakturk, F., Altındal, Ş., Tataroglu, A., Parlak, M., and Agasiev, A. (2008). On the profile of frequency dependent series resistance and surface states in Au/Bi<sub>4</sub>Ti<sub>3</sub>O<sub>12</sub>/SiO<sub>2</sub>/n-Si (MIS) structures. *Microelectronic Engineering*, 85, 81-88.
- [10] Türk, Ç. G., Tan, S. O., Altındal, Ş., İnem, B. (2020). Frequency and voltage dependence of barrier height, surface states, and series resistance in Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/p-Si structures in wide range frequency and voltage. *Physica B: Physics of Condensed Matter*, 582, 411979.
- [11] Akın, B. and Altındal, Ş. (2020). On the frequency and voltage-dependent main electrical parameters of the Au/ZnO/n-GaAs structures at room temperature by using various methods. *Physica B: Physics of Condensed Matter*, 594, 412274.
- [12] Kaya, A., Alialy, S., Demirezen, S., Balbaş, M., Yerişkin, S. A. and Aytimur, A. (2016). The investigation of dielectric properties and ac conductivity of Au/GO-doped PrBaCoO nanoceramic/n-Si capacitors using impedance spectroscopy method. *Ceramics International*, 42, 3322-3329.
- [13] Altındal Yerişkin, S. (2019). The investigation of effects of (Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>-PVP) organic interlayer, surface states, and series resistance on the electrical characteristics and sources of them. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 30, 17032-17039.
- [14] Demirezen, S. (2019). The role of interface traps, series resistance and (Ni-doped PVA) interlayer effects on electrical characteristics in Al/p-Si (MS) structures. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 30 19854-19861.
- [15] Lee, J. S., Choi, K. H., Ghim, H. D., Kim, S. S., Chun, D. H., Kim, H. Y., and Lyoo, W. S. (2004). Role of molecular weight of atactic poly(vinyl alcohol) (PVA) in the structure and properties of PVA nanofabric prepared by electrospinning. *Journal of Applied Polymer Science*, 93, 1638-1646.
- [16] Bilkan, Ç. Altındal, Ş., and Azizian-Kalandaragh, Y. (2017). Investigation of frequency and voltage dependence surface states and series resistance profiles using admittance measurements in Al/p-Si with Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-PVA interlayer. *Physica B: Condensed Matter*, 515,28-33.
- [17] Demirezen, S. Orak, I., Azizian-Kalandaragh, Y., and Altındal, Ş. (2017). Series resistance and interface states effects on the C-V and G/ω-V characteristics in Au/(Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-doped PVA)/n-Si structures at room temperature. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 28, 12967-12976.
- [18] Alptekin, S. and Altındal, Ş. (2020). Electrical characteristics of Au/PVP/n-Si structures using admittance measurements between 1 and 500 kHz. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 31, 13337-13343.
- [19] Sharma, M. and Tripathi, S. K. (2016). Frequency and voltage dependence of admittance characteristics of Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/PVA:n-ZnSe Schottky barrier diodes. *Materials Science and Semiconductor Process*, 41, 155-161.
- [20] Altındal Yerişkin, S., Balbaş, M. and Orak, İ. (2017). The effects of (graphene doped-PVA) interlayer on the determinative electrical parameters of the Au/n-Si (MS) structures at room temperature. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 28, 14040-14048.
- [21] Karadaş, S., Altındal Yerişkin, S., Balbaş, M., and Azizian-Kalandaragh, Y. (2021). Complex dielectric, complex electric modulus, and electrical conductivity in Al/(Graphene-PVA)/p-Si (metal-polymer-semiconductor) structures. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 148, 109740.
- [22] Özdemir, A.F., Kotan, Z., Aldemir, D.A., and Altındal, S. (2009). The effects of the temperature on I-V and C-V characteristics of Al/P<sub>2</sub>ClAn(C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>COOH)/p-Si/Al structure. *The European Physical Journal Applied Physics*, 46, 20402.
- [23] Jayalakshmi, M. and Balasubramanian, K. (2008). Simple capacitors to supercapacitors-an overview. *International Journal Electrochemistry Science*. 3, 1196-1217.
- [24] Novoselov, K.S., Geim, A.K., Morozov, S.V., Jiang, D., Zhang, Y., Dubonos, S.V., Grigorieva, I.V., and Firsov, A.A. (2004). Electric field effect in atomically thin carbon films. *Science*, 306, 666-669.
- [25] Macedo, P.B., Moynihan, C.T., and Bose, R. (1972). Role of ionic diffusion in vitreous ionic conductor. *Physics and Chemistry of Glasses*, 13, 171-179.
- [26] Sattar, A.A., and Rahman, S.A., (2003). Dielectric properties of rare earth substituted Cu-Zn ferrites. *Physica Status Solidi (A)*, 200, 415-422.
- [27] Chelkowski, A., (1980). *Dielectric Physics*. Amsterdam; New York: Elsevier Scientific Pub. Co, 20-45.
- [28] Dutta, P., Biswas, S., and De, S. K., (2002). Dielectric relaxation in polyaniline-polyvinyl alcohol composites. *Materials Research Bulletin*, 37, 193-200.
- [29] Şafak Asar, Y., Asar, T., Altındal, Ş., and Özçelik, S. (2015). Dielectric spectroscopy studies and ac electrical conductivity on (AuZn)/TiO<sub>2</sub>/p-GaAs(110) MIS structures. *Philosophical Magazine*, 35, 2885-2898.

- [30] Yıldız, D. E., Yıldırım, M., and Gökçen, M., (2014). Investigation on dielectric properties of atomic layer deposited Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dielectric films. *Journal of Vacuum Science Technology A*, 32, 2014031509.
- [31] Şafak Asar, Y., Asar, T., Altındal, and Ş., Özçelik, S. (2015). Investigation of dielectric relaxation and ac electrical conductivity using impedance spectroscopy method in (AuZn)/TiO<sub>2</sub>/p-GaAs(110) schottky barrier diodes. *Journal of Alloys and Compounds*, 628, 442-449.