



# Sol-Gel Döner Kaplama Yöntemiyle Oluşturulmuş Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> İnce Film Kondansatörün Düşük Sıcaklık Bölgesi Dielektrik Özellikleri ve AC İletkenlik Davranışı

Saffettin YILDIRIM<sup>1,\*</sup>

<sup>1</sup>*Istanbul Üniversitesi, Fen Fakültesi, Fizik Bölümü, 34134, Vezneciler, Fatih/İSTANBUL*

## Öz

Kalınlığı 75 nm olan tantal penta oksit (Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) ince film kondansatör Sol-Gel döner kaplama işlemi ile Corning cam taşıyıcılar üzerinde elde edildi ve film kondansatörün dielektrik sabiti  $\epsilon'$ , dielektrik kayıp faktörü  $\epsilon''$  ve AC iletkenlik davranışı 193–293 K sıcaklık aralığında, 10 Hz–100 kHz frekans değerlerine bağlı olarak incelendi. Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ince film kondansatörün dielektrik sabitinin, 1 kHz standart frekans değerinde, artan sıcaklığa bağlı olarak 7 ve 9 arasında değiştiği bulundu. Dielektrik sabitinin artan frekansla azalmakta ve artan sıcaklıkla artmakta olduğu belirlendi. Maksimum engel yüksekliği  $W_m$ , farklı sıcaklıklarda dielektrik kayıp faktörü  $\epsilon''$  nün frekansa bağlılığından hesaplandı ve değeri sırasıyla 10 Hz–2 kHz ve 2 kHz–12 kHz frekans aralığı için 0,14 eV ve 0,093 eV olarak bulundu. Bu tip dielektrik özellikler taşıyıcı zıplama, yüzeylerarası ve dipolar polarizasyon mekanizmaları ile ilişkilendirildi. Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ince film kondansatörün deneysel sonuçları, AC iletkenliğinin frekansa ve sıcaklığa bağlı olduğunu gösterdi. AC iletkenlik davranışının  $\omega^s$  kuvvet yasasına uyduğu ve artan sıcaklıkla  $s$  üstel ifadesinin azalmakta olduğu bulundu. AC iletkenliğin düşük frekans bölgesinde sıcaklığa bağlılığının engel üzerinden zıplamayla ilişkilendirilmiş (CBH) modeli ile uyumlu olduğu belirlendi.

## Makale Bilgisi

Başvuru: 30/05/2018

Düzeltilme: 02/08/2018

Kabul: 14/08/2018

## Anahtar Kelimeler

Sol-Gel

İnce Film Kondansatör

Dielektrik Özellikler

AC iletkenlik

## Keywords

Sol-Gel

Thin Film Capacitor

Dielectric Properties

AC Conductivity

## Low Temperature Range Dielectric Properties and AC Conductivity Behavior of Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> Thin Film Capacitor Formed with Sol-Gel Spin Coating Method

### Abstract

The dielectric constant  $\epsilon'$  and the dielectric loss factor  $\epsilon''$  and AC conductivity of 75 nm thickness tantalum pentaoxide (Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) thin film capacitor, produced by sol-gel spin coating process on Corning glass substrates, have been investigated in the frequency range of 10 Hz – 100 kHz and the temperature range of 193–293 K. It was found that dielectric constant of the Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> thin film capacitor changes between 7 and 9 with increasing temperature at 1 kHz standart frequency value. The dielectric constant was found to decrease with increasing frequency and to increase with increasing temperature. The maximum barrier height  $W_m$  is calculated from the frequency dependence of the dielectric loss  $\epsilon''$  at different temperatures. Its value obtained 0.14 eV and 0.093 eV at 10 Hz–2 kHz and 2 kHz–12 kHz frequency range respectively. This type of dielectric properties was associated with a carrier hopping process, interfacial and dipolar polarization processes. The experimental results of the Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> thin film capacitor indicate that the AC conductivity depend on the frequency and temperature. The AC conductivity behaviour was found to obey the power law  $\omega^s$  with the frequency exponent  $s$  decreasing with increasing temperature. It has been determined that the temperature dependence of AC conductivity in the low frequency range is compatible with the Correlated Barrier Hopping (CBH) model.

## 1. GİRİŞ (INTRODUCTION)

Tantal penta oksit (Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) ince filmleri hazırlanış koşullarına bağlı olarak yüksek dielektrik sabiti, düşük sızıntı akımları, optik açıdan şeffaf, ışığı yansıtmayan, UV ve görünür bölgedeki dalga boylarında yüksek

\*İletişim yazarı, e-mail: safyield@istanbul.edu.tr

mertebeden geçirgenlik özellikleri onun elektronik devrelerde, güneş hücrelerinde oldukça sık kullanılan bir malzeme olmasına neden olmuştur [1-3]. Özellikle elektronik devrelerde yüksek voltaj dayanımına sahip, dinamiksel keyfi erişimli hafıza devrelerinde (DRAM) depolama kapasitörü olarak kullanılması, SiO<sub>2</sub> göre dielektrik sabitinin 5-6 kat daha yüksek olması, çok katmanlı mikro elektronik yapılarda ve metal oksit yarı iletken yapılar üzerinde dielektrik materyali olarak kullanılması, malzemenin önemini gittikçe arttırmıştır [4-7]. Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ince filmlerinin hazırlanmasında günümüzde bir çok farklı yöntem kullanılmaktadır. Vakum ortamında fiziksel, kimyasal buharlaştırma yöntemleri, elektron ışınımı, iyon destekli, reaktif magnetron sıçratma, lazer ve Sol-Gel gibi yöntemler alttaşlar üzerinde bu tip ince filmlerin üretimlerinde sıklıkla kullanılan uygulamalardır [8-14]. Bu çalışmada amaç elektronikte yalıtkan bir malzeme olarak kullanılan, yüksek dielektrik özelliklerine sahip Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ince filmlerinin fazla masraf gerektirmeyen hazırlanması kolay Sol-Gel döndürme tekniği ile üretilmesini sağlamak ve oda sıcaklığı ile daha düşük sıcaklıklardaki eksik olduğunu düşündüğümüz dielektrik özelliklerini, AC iletkenlik davranışını ortaya koymaktır. Bu doğrultuda, Sol-Gel döner kaplama metodu ile vakum ortamı gerekmeksizin oda sıcaklığında alttaş üzerinde metal elektrotlar arasında homojen ve belirli bir kalınlıkta ince film, Metal-Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Metal sandviç yapıda kapasitör örnekler elde edildi. Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ince film kondansatörün dielektrik özellikleri ve AC iletkenlik davranışı 193-293 K düşük sıcaklık bölgesinde 10 Hz-100 kHz frekans aralığında incelendi.

## 2. MATERYAL VE METOT (MATERIAL AND METHODS)

Tantal penta oksit (Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) ince filmler için Corning marka 75x25 mm cam alttaşlar kullanıldı. Cam alttaşlar ilk olarak sulu sıvı deterjan emdirilmiş pamuk vasıtasıyla mekanik olarak ovalandı ve akan su altında ve saf su içinde çalkalama işlemine tabi tutularak temizlendi. Alttaşlar sonrasında ultrasonik temizleyici kullanılarak 10 dakika süreyle sırasıyla asetona, saf su, izopropil alkol, saf su şeklinde temizleme işlemine tabi tutuldu ve son olarak 125°C fırında 15 dakika bekletilerek desikatör ortam içerisine alındı. Cam alttaşlar üzerine alt ve üst kontaklar için %99,99 saflıkta Alüminyum (Al) tel malzemesi 10<sup>-5</sup> Torr vakumda tungsten flaman pota üzerinden termal olarak buharlaştırıldı. Buharlaştırma işlemi için Edwards 16E4 model difüzyon tip vakum sistemi kullanıldı. Alttaş sıcaklığı oda sıcaklığında tutularak kalınlığı 500 nm olan Al elektrot elde edildi ve buharlaştırma hızı kuvarz kristal monitörü ile izlendi.

Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ince filmleri alt Al kontak elektrodu üzerinde Sol-Gel metodu uygulanarak oluşturuldu. Sol-Gel yönteminde Tantal penta oksit çözeltisi %99,999 tantal ethoksit Ta(CH<sub>3</sub>CH<sub>2</sub>O)<sub>5</sub>, çözücü olarak yüksek saflıkta etanol içerisine hidrolize edilerek hazırlandı. Tantal ethoksit 0,5 Molar olarak etanol içerisine çözdürüldü. Çözelti 30 dakika karıştırıldıktan sonra etanol ve az miktarda saf su ile seyreltildi. Çözelti buzlu asetik asit ile katalize edildi ve 18 saat süreyle karıştırıldı. Şeffaf, geçirgen özellikli bir tantal penta oksit çözeltisi elde edildi. Daha önceki aşamada hazırlanmış Al alt elektroda sahip alttaş cam taşıyıcılar döner başlık üzerine yerleştirildi ve tantal penta oksit çözeltisi mikro pipet vasıtasıyla alt Al elektrot üzerine damlatıldı. Döndürme hızı olarak 2000 rpm (dakika başına devir sayısı) seçilerek bu hızın 60 s süreyle uygulanması dahilinde Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ince film Al alt elektrot üzerinde hazırlandı. Tantal penta oksit ince filmi hava ortamında yavaşça artan sıcaklıkla 150°C ye çıkararak tavlandı ve yavaşça soğutuldu. Film kalınlığının 2000 rpm döndürme hızlarında yapılan kaplama için ortalama 75 nm mertebesinde olduğu profilometre kullanılarak belirlendi. Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ince film üzerine üst Al elektrot yüksek vakum ortamında alt Al elektrodun kaplanmasındaki benzer yöntem dikkate alınarak oluşturuldu. Cam alttaş üzerinde 14 mm<sup>2</sup> etkin kontak yüzey alanına sahip paralel plakalı Al-Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Al ince film kondansatör özellikli sandviç yapılar elde edildi. Alt ve üst Al metal elektrotların kenar bağlantı noktaları üzerine gümüş pasta kullanılarak bakır teller tutturuldu ve dielektrik ölçümler için örnek hazır hale getirildi.

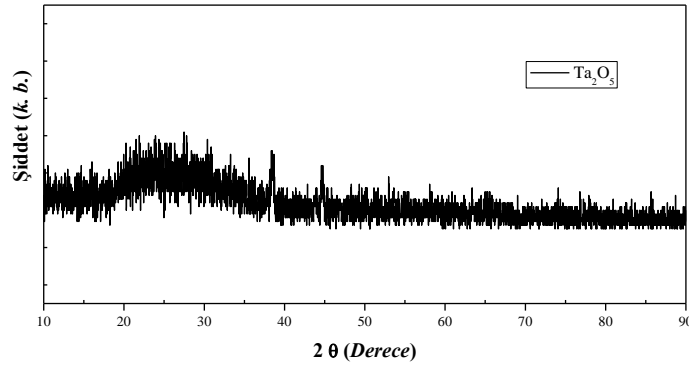
Filmin yapısal özellikleri Philips PW3710 model X-ışınları kırınımı difraktometresi (XRD) Cu K $\alpha_1$  dalga boyuna karşılık gelen ışınımı kullanarak 10 ila 90 derece aralığında 0,02 derecelik adımlarla belirlendi. Dielektrik özelliklerinin belirlenmesi amacıyla cam alttaş üzerinde yer alan örnek 10<sup>-3</sup> Torr vakum altında tutulan kreostat içerisine, sıcaklığı kontrol edilebilir bir taşıyıcı metal blok üzerine yerleştirildi. Alttaş sıcaklık kontrolü Lake Shore, model 325 cihazı ile sağlanırken örneklerin kapasite, C ve kayıp faktörü, tan $\delta$  değerleri Hewlett-Packart 4192A empedans analiz cihazı ile ölçüldü. Empedans analiz cihazı ayarlarından örnek üzerine uygulanan DC voltaj değeri 0 Volt ve uygulanan AC sinyalin etkin voltaj değeri, V<sub>rms</sub> 0,1 Volt seçildi. Ölçümler LabVIEW yazılım programı ile bilgisayar kontrollü olarak

193–293 K sıcaklık bölgesinde, empedans analiz cihazının kararlı davranış gösterdiği 10 Hz–100 kHz frekans aralığında elde edildi. Dielektrik ölçümler için karanlık ortam ve Faraday kafesi özellikleri sağlandı.

### 3. DENEYSEL BULGULAR (EXPERIMENTAL RESULTS)

Şekil 1’de görüldüğü üzere 75 nm kalınlıklı Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ince film yapısının XRD taramasında herhangi bir şiddetli kırınım piki elde edilmedi. Film formasyonunda belirgin bir kristalleşmenin olmadığı anlaşıldı ve XRD, 2 θ taraması filmin tamamen amorf bir fazda olduğunu ve daha önce yapılan çalışmaların sonuçları ile uyum içerisinde olduğunu bize gösterdi [15-19].

Tavlama sıcaklığı 600°C değerinin altında olduğu sürece ince filmlerin yapısında dikkate değer bir kristalleşmenin olmadığı daha önce Kimura tarafından bildirilmiştir [18]. Benzer şekilde Nishioka ve grubunun yapmış olduğu çalışmada da 20nm kalınlıklı Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ince filmler 1000°C derecede 30 dakika tavlansa bile amorf yapısının bozulmadan kaldığı gözlenmiştir [20-21].



Şekil 1. 75 nm kalınlıklı Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ince filmine ait XRD deseni.

Kalınlığı 75nm, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ince filminden oluşan Al-Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Al sandviç kondansatörün dielektrik davranışını incelemek için HP 4192A empedans analiz cihazı kullanıldı. Filmin dielektrik davranışı genellikle kompleks dielektrik fonksiyonu ifadesi 3.1 ile verilir.

$$\varepsilon^* (\omega, T) = \varepsilon' - j\varepsilon'' \quad 3.1$$

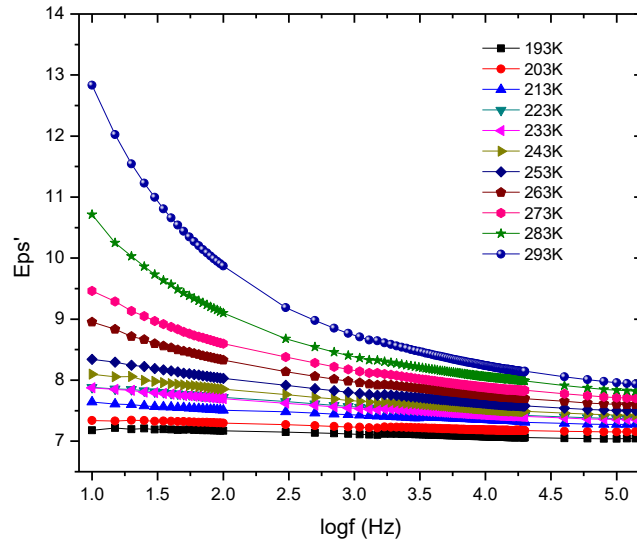
Burada  $\varepsilon^*$ ; kompleks dielektrik geçirgenliği,  $\varepsilon'$ ; kompleks dielektrik geçirgenliğin reel kısmını (Dielektrik sabiti, Eps'),  $\varepsilon''$ ; kompleks dielektrik geçirgenliğin sanal kısmını (Dielektrik kayıp, Eps'') ifade etmektedir. Al-Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Al sandviç tip paralel plakalı kondansatörün kompleks dielektrik geçirgenliğinin  $\varepsilon'$  reel ve  $\varepsilon''$  sanal kısmı, 193–293 K sıcaklık aralığında 10 Hz–100 kHz frekans bölgesine bağlı olarak belirlendi. Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ince filminin dielektrik sabiti  $\varepsilon'$ , 3.2 bağıntısı kullanılarak bulundu.

$$\varepsilon' = \frac{C d}{\varepsilon_0 A} \quad 3.2$$

Bu ifade içerisinde C; empedans analiz cihazı tarafından ölçülen kapasite (Sığa) değeri, d; ince filmin kalınlığı,  $\varepsilon_0$ ; vakum ortamının dielektrik geçirgenliği, A; kondansatörün film yüzeyine olan Al metal kontak yüzey alanıdır. Şekil 2, 75 nm kalınlıklı Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ince filminin  $\varepsilon'$  dielektrik sabitinin farklı sıcaklık değerleri için frekansa bağlılığını göstermektedir.

Şekil 2’de dielektrik sabiti 263–293 K sıcaklık değerlerinde artan frekans değerlerine bağlı olarak belirgin bir şekilde azalmaktadır. Dielektrik sabitinin düşük frekans mertebelerindeki yüksek değeri yapı içinde muhtemel daha fazla sayıda dipollerin uygulanan alternatif alanın yaratmış olduğu kuvvete

zamansal olarak rahatlıkla uyarak tam yönelmesi sonucunda elektrodalarda ayrıca daha fazla yük biriktirmesine neden olmasından kaynaklanmaktadır [22-26]. Yüksek frekanslara doğru gidildikçe alternatif alanın değişim hızı dipollerin yönelimine zamansal olarak yeterince imkan sağlayamadığından yapı içerisinde toplam elektriksel polarizasyon etkisi azalmakta sonuç olarak filmin dielektrik sabiti azalmaktadır. Ayrıca Sıcaklık değeri azaldıkça düşük frekans bölgesindeki dielektrik sabiti değeri azalmaktadır. Bu durum iki şekilde açıklanabilir.



**Şekil 2.** Farklı sıcaklıklarda 75 nm kalınlıklı Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ince filminin dielektrik sabiti  $\epsilon'$ 'nin frekansa bağlılığı.

Dipollerin yönelimi, sıcaklığa bağlı hareketi sıcaklık azaldıkça azalmakta dolayısıyla yönelimsel polarizasyon durumu yavaşça ortadan kalkmaktadır. Düşük sıcaklık değerlerine doğru artık polarizlenme durumu tüm ölçülen frekans aralığında değişmeden kalmaktadır [16]. Diğer bir yaklaşımla; düşen sıcaklık durumunda yapının örgü sabitinde meydana gelecek küçülme bazı yük taşıyıcılarının hareketini etkileyecek olması sonucu yapı içerisinde toplam polarizlenmede bir azalma meydana gelecektir [27]. Düşük sıcaklık mertebelerinde özellikle 193 K değerinde dielektrik sabiti  $\epsilon'$  frekansa bağlı olmaksızın 7-8 mertebesinde sabit kalmaktadır.

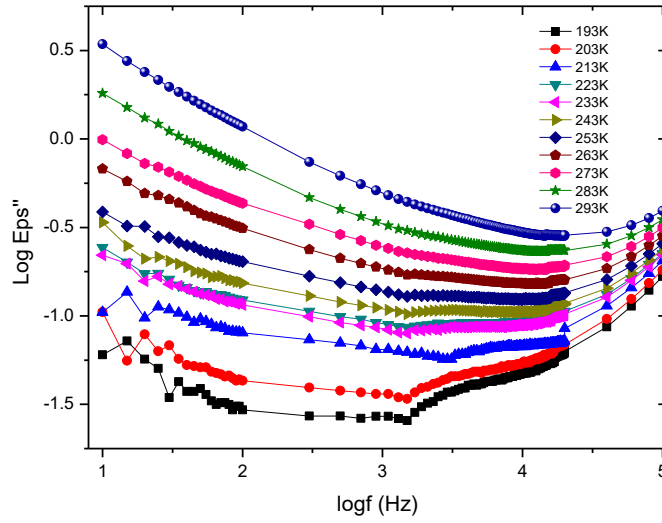
Dielektrik sabiti  $\epsilon'$  değeri; 75 nm kalınlıklı Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ince filmi için oda sıcaklığı civarında 1 kHz mertebesindeki frekans değeri için 9-10 mertebesinde elde edildi. Bu bulunan sonuç literatür çalışmalarında bulunan 20-25 değerlerine göre düşüktür [28]. Önceki çalışmalarda ince film üretimi olarak başta Sol-Gel olmak üzere, diğer farklı üretim yöntemleride dahil olmak üzere ince filmlerin hazırlanış şartlarında farklılıklar söz konusudur. Atanassova tarafından yapılan çalışmada sıçratma yöntemiyle oda sıcaklığında tutulan p-tip Si altaş üzerinde oluşturulan 25 nm kalınlıklı Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ince film için dielektrik sabiti 12-14 aralığında bulunmuştur [30].

Filmin hazırlanış şartları, hazırlanış yöntemlerinin farklılığı, altaş cinsi ve tavlama sıcaklığının farklılığı gibi bir çok parametre dielektrik sabiti değerinin değişmesine neden olmaktadır [29-31]. Bu çalışmada elde etmiş olduğumuz sonucun düşük olmasının nedeni tavlama sıcaklığından ve film hazırlanış şartlarından kaynaklandığı anlaşılmıştır.

Dielektrik kayıp  $\epsilon''$  ifadesi, deney sistemimizde HP 4192A empedans analiz cihazı tarafından ölçülen kayıp faktörü,  $\tan\delta$  kullanılarak 3.3 bağıntısından bulunur.

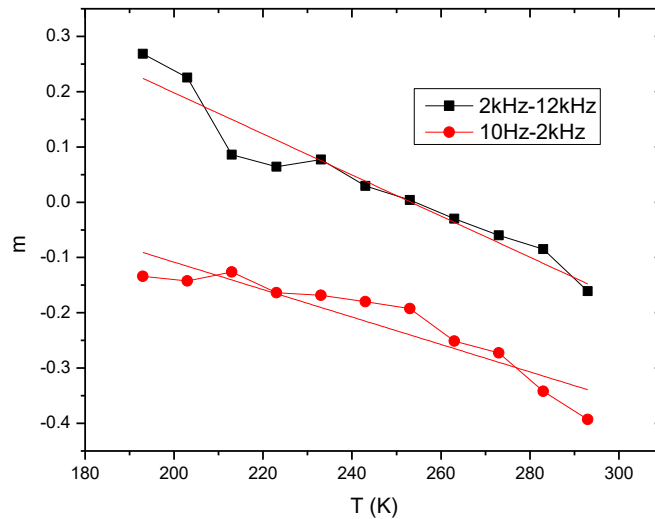
$$\epsilon'' = \epsilon' \tan \delta$$

3.3



**Şekil 3.** Farklı sıcaklıklarda 75nm kalınlıklı  $Ta_2O_5$  ince filminin dielektrik kayıp  $\epsilon''$  nün frekansa bağlılığı.

Bağıntıda  $\delta = 90 - \Phi$  olmak üzere  $\Phi$  kondansatörün yüklem akımı ve kayıp akımı arasındaki faz farkıdır. Kalınlığı 75 nm olan  $Ta_2O_5$  ince filminin dielektrik kayıp  $\epsilon''$  nün farklı sıcaklık değerleri için frekansa bağlılığı Şekil 3'de logaritmik olarak gösterilmektedir. Dielektrik kayıp  $\epsilon''$  nün frekansa bağlılığı düşük frekans bölgesinde sıcaklık artışından belirgin etkilenmektedir. Yüksek frekans bölgesinde sıcaklığa bağlı kayıp artışı daha yavaş olmaktadır. İnce film yapısı içerisinde dipol yönelimleri sıcaklığa belirgin bir şekilde bağlıdır. Sıcaklık düştükçe yapı içerisinde dipoller rahatlıkla yönlerini değiştiremez ve sonuçta moleküllerin termal hareketiyle ilişkili yönelimsel polarizasyon adını verdiğimiz olay rahatlıkla oluşmaz [16, 32].



**Şekil 4.** 75 nm kalınlıklı  $Ta_2O_5$  ince filminin farklı iki frekans bölgesinde  $m$  parametresinin sıcaklığa bağlılığı.

Şekil 3'de grafik iki ayrı frekans bölgesi dikkate alınarak incelendi. Frekans bölgesi 10 Hz–2 kHz olan birinci bölge ve 2 kHz–12 kHz aralığındaki ikinci frekans bölgesinde, farklı sıcaklık değerlerindeki eğriler  $\epsilon'' = A \omega^m$  şeklinde bir doğru denklemi ile karakterize edilebilir niteliktedir. Bu ifade içerisinde A bir sabit ve  $\omega$  açısal frekans ( $\omega = 2\pi f$ ) olmak üzere m üssel ifadesi Şekil 3 üzerinden ilgili frekans

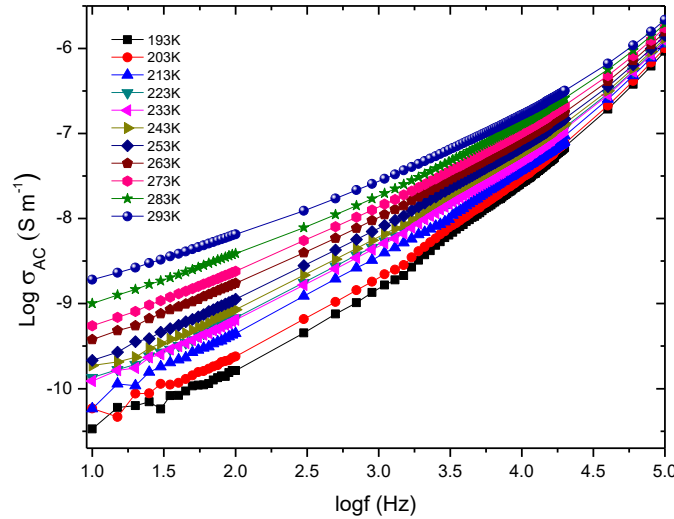
bölgelerinde farklı sıcaklık değerleri için gözlemlenen doğruların eğimlerinden rahatlıkla bulunur ve üssel ifade m Giuntini denklemi 3.4 ifadesiyle verilir [33].

$$m = -\frac{k_B T}{W_m} \quad 3.4$$

Bu denklem içerisinde yer alan  $W_m$ ; maksimum engel yüksekliği ve  $k_B$ ; Boltzmann sabiti olmak üzere ilgili frekans bölgeleri için m üssel parametresinin değerinin sıcaklık artışına bağlı olarak lineer azalmakta olduğu Şekil 4'den görüldü.

Maksimum engel yüksekliği  $W_m$  sayısal değeri Şekil 4'deki eğrilerin eğiminden faydalanarak 10 Hz–2 kHz frekans bölgesinde 0,14 eV ve 2 kHz–12 kHz aralığında 0,093 eV olarak bulundu. Elde edilen değerler Elliott tarafından önerilen yük taşıyıcılarının bir potansiyel engeli üzerinden hoptaması ile ilgili teori ile uyum içerisinde olduğunu gösterdi [34,35].

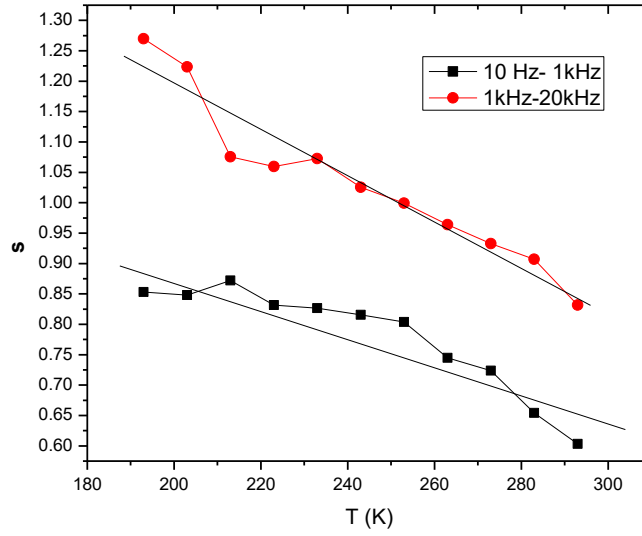
Bu çalışmada AC iletkenlik,  $\sigma_{AC}(\omega) = \omega \epsilon_0 \epsilon' \tan \delta$  ilişkisine göre ölçülen dielektrik verilerden elde edildi.  $Ta_2O_5$  ince filmi için farklı sıcaklık değerlerinde AC iletkenliğinin frekansa bağlılığı Şekil 5'de görülmektedir.



**Şekil 5.** 75nm kalınlıklı  $Ta_2O_5$  ince filminin farklı sıcaklık değerlerinde AC iletkenliğinin frekansa bağlı değişimi.

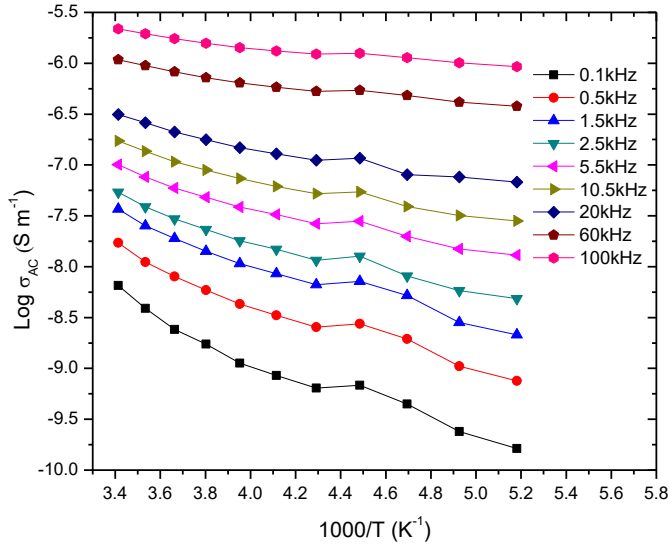
Şekil 5'de  $\sigma_{AC}(\omega)$ , AC iletkenliğinin, frekansa bağlı olduğu doğrusal bölgeler vardır. Bu doğrusal bölgelerin karakteristik biçimi  $\sigma_{AC}(\omega) = A \omega^s$  ilişkisi ile dikkate alınabilir ve eğrilerin eğimi s ile gösterilmek üzere bu ( $0 < s < 1$ ) parametre AC iletkenlik mekanizmasını belirlemek açısından önemlidir. Şekil 5'de s parametresi için iki ayrı frekans bölgesinde inceleme yaparsak s değerinin sıcaklık artışına bağlı olarak 10 Hz – 1 kHz düşük frekans bölgesinde 0,9 ila 0,60 aralığında, 1 kHz–20 kHz frekans aralığında 1,3 ila 0,85 aralığında azalmakta olduğu Şekil 6'dan ayrıntılı olarak görülmektedir.

Üssel s parametresinin  $0 < s < 1$  aralığında olması, sıcaklık arttıkça azalması durumu Elliott tarafından engel üzerinden yüklü varlıkların hoptama iletkenliği modeli (CBH) ile ilişkilendirilmiştir [30,31].  $Ta_2O_5$  ince filminin AC iletkenlik mekanizmasını s parametresinin 10 Hz–1 kHz düşük frekans bölgesinde aldığı değerlerin 1 den küçük olmasından dolayı elektronların hoptaması, zıplaması ile rahatlıkla açıklayabiliyoruz. 1 kHz–20 kHz yüksek frekans bölgesinde s parametresinin değerinin 1 in üzerine çıkmış olması bu bölgede mekanizmanın zıplama tip olması konusunda tam bir açıklama getirmemekle birlikte eğrinin düşük sıcaklık bölgesinde 1 den küçük değerler alması bu frekans bölgesinde de zıplama tip iletkenliğin olabileceğini kuvvetlendirmektedir.



**Şekil 6.** Farklı iki frekans bölgesinde 75 nm kalınlıklı  $Ta_2O_5$  ince filminin  $s$  parametresinin sıcaklığa bağlılığı.

$Ta_2O_5$  ince filmin AC iletkenliğinin farklı sıcaklık ve farklı frekanslardaki davranışını açıklamak için Şekil 7’de verilen grafik dikkate alınmıştır.



**Şekil 7.** Farklı frekans değerlerinde 75 nm kalınlıklı  $Ta_2O_5$  ince filminin AC iletkenliğinin sıcaklığın tersiyle değişimi.

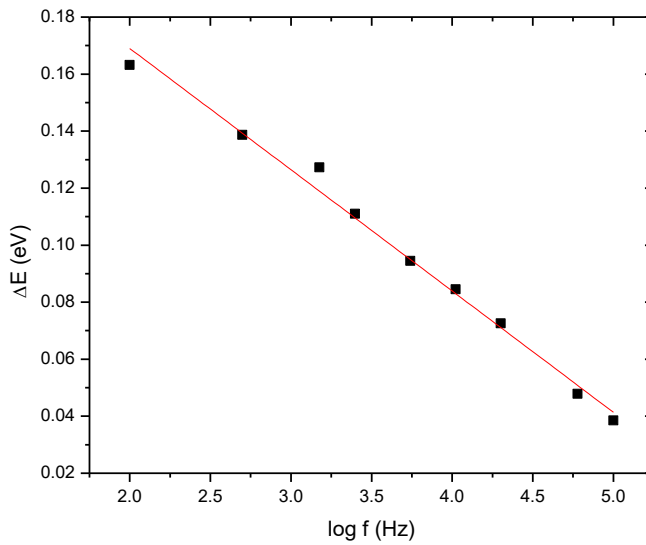
Şekil 7’de görüldüğü gibi AC iletkenlik yüksek frekans değerlerinde sıcaklığa bağlı olarak belirgin bir değişim içinde değildir. Sıcaklığa bağlı dikkate değer değişim oldukça düşük frekans değerlerinde meydana gelmekte, AC iletkenlik 0,1kHz frekansında 193-293K sıcaklık artışına bağlı olarak yaklaşık 100 katı artmaktadır. Uygulanan alanın frekansının artışı sonucunda AC iletkenliğin sıcaklığa bağlılığı belirgin bir şekilde azalmakta hatta sabit kalmaktadır.

Şekil 7’den faydalanarak  $Ta_2O_5$  ince filminin AC iletkenliğinin,  $\sigma_{AC}(\omega)$ , farklı frekans değerlerinde sıcaklığın tersine bağlı eğimleri dikkate alınarak Şekil 8’de gösterilen aktivasyon enerjisinin frekansa bağlılığı elde edildi. Bu davranış AC iletkenliğin, yasak enerji aralığı içerisindeki yerel durumlardan sıcaklık etkisine bağlı olarak taşıyıcıların kazanacağı enerji hakkında bir fikir vermektedir. Aktivasyon

enerjisi  $\Delta E$ , iletkenliğin aktivasyon enerjisine bağlı iyi bilinen ve oldukça sık kullanılan 3.5 denkleminde hesaplanır.

$$\sigma = \sigma_0 \exp\left(-\frac{\Delta E}{k_B T}\right) \quad 3.5$$

Şekil 7’de görülen her bir frekanstaki değişim eğrilerinin eğimlerinden faydalanarak  $\Delta E$  aktivasyon enerjisi belirlenebilir. Belirlenen aktivasyon enerjisi  $\Delta E$  nin frekansa bağlı olarak değişimi Şekil 8’de görüldüğü gibi elde edilmiştir. Düşük sıcaklık bölgesi 193–293 K aralığı için aktivasyon enerjisinin 100 Hz frekansında 0,17 eV ve 100 kHz frekansında 0,03 eV mertebesinde olduğu görülmektedir.



**Şekil 8.** 75 nm kalınlıklı  $Ta_2O_5$  ince filminin aktivasyon enerjilerinin frekansa bağlılığı.

$Ta_2O_5$  ince filmin AC iletkenliğinin farklı sıcaklık ve farklı frekanslardaki davranışını açıklamak için Şekil 7’de verilen grafik dikkate alınmıştır. Frekansın artmasına bağlı olarak aktivasyon enerjisindeki bu azalma zıplama iletkenlik mekanizması ile ilişkilendirilmiştir. Uygulanan alanın frekansının artışı, yerel durumlar arasındaki elektronik zıplamayı artırır ve sonuç olarak aktivasyon enerjisi artan frekans ile azalır. Aktivasyon enerjisinin bu şekildeki değişimi ilk olarak Sullivan ve Card [36] ve Sze [37] un çalışmaları ile ortaya konulmuştur.  $Ta_2O_5$  ince filminin aktivasyon enerjisinin frekansa bağlılığı sonuçları son yıllarda yapılan oksit yarı iletken malzemeler için elde edilen sonuçlardaki benzer davranış içerisinde [38].

#### 4. SONUÇ (CONCLUSION)

Bu çalışmada; Sol-Gel döner kaplama yöntemiyle oda sıcaklığında cam alttaşlar üzerinde oluşturulan amorf 75nm kalınlıkta  $Ta_2O_5$  ince film, Al- $Ta_2O_5$ -Al sandviç tip paralel plakalı kondansatörün dielektrik sabiti, dielektrik kayıp faktörü ve AC iletkenlik davranışı 193–293 K düşük sıcaklık aralığında ve 10 Hz–100 kHz frekans değerlerine bağlı olarak incelendi.  $Ta_2O_5$  ince filminin dielektrik sabiti 1kHz standart frekans değeri için 293K oda sıcaklığında 9, düşük sıcaklık değeri 193 K’de 7 mertebesinde bulundu. Literatürde genellikle dielektrik sabiti değerinin 20-25 aralığında verildiği dikkate alındığında bizim değerimizin düşük olmasında başlıca faktörün film kalınlığı ve film tavlama sıcaklığı gibi hazırlama şartlarının olabileceği düşünüldü. Dielektrik sabiti  $\epsilon'$  nün düşük sıcaklıkta 10 Hz–100 kHz frekans aralığında oldukça kararlı bir değere sahip olduğu gözlemlendi. Dielektrik kayıp  $\epsilon''$  değerinin tüm frekans değerleri için düşen sıcaklık ile azalmakta olduğu belirlendi ve bu azalma yapının polarizlenmesinde meydana gelen azalma ile açıklandı. Hem frekansa hem de sıcaklığa bağlı dielektrik sonuçları yöneldi polarizasyon ve yüzeyler arası polarizasyon mekanizmasının etkin olduğunu bize gösterdi. Dielektrik kayıp  $\epsilon''$  ifadesinin frekansa bağlılığından faydalanarak maksimum engel yüksekliği ( $W_m$ ) belirlendi ve bulunan değerler taşıyıcıların bir engel üzerinden zıplama yaparak aştığını ifade eden klasik zıplama



teorisi ile uyumlu olduğu gösterdi. Sıcaklığa bağlı AC iletkenliğinin ve sonuçta  $s$  parametresinin irdelenmesi sonucu AC iletkenlik mekanizmasında hoplama tip iletkenlik modelinin (CBH) etkin olduğu belirlendi.

### TEŞEKKÜR (ACKNOWLEDGEMENTS)

Bu çalışma İstanbul Üniversitesi Araştırma Fonu tarafından B.Y.P-698/24052005 Nolu proje ile desteklenmiştir. Sol-Gel çalışmalarında ve XRD ölçümlerinde desteğini aldığım Prof.Dr. Esra Özkan Zayim'e teşekkür ederim.

### KAYNAKLAR (REFERENCES)

- [1] C.T. Wu, F.H. Ko, and C.H. Lin, "Self-organized tantalum oxide nanopyramidal arrays for antireflective structure", *Applied Physics Letter*, 90: (2007) 171911-171913.
- [2] L. Chen, H. Nishimura, K. Fukumi, J. Nishii, K. Hirao, Fabrication of multilayer thin film filters by hydrofluoric acid bonding, *Applied Surface Science*, 253: (2007) 4906-4910.
- [3] M. Kadoshima, M. Hiratani, Y. Shimamoto, K. Torii, H. Miki, S. Kimura, T. Nabatame, "Rutile-type  $TiO_2$  thin film for high-k gate insulator", *Thin Solid Films*, 424: (2003) 224-228.
- [4] K.W. Kwon, I.S. Park, D.H. Han, E.S. Kim, S.T. Ahn, M.Y. Lee, "Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> capacitors for 1Gbit DRAM and beyond", *IEEE International Electron Device Meeting*, 94: (1994) 835-838.
- [5] Y.Takaishi, M. Sakao, S. Kamiyama, H. Suzuki, W.Watanable, "Low-temperature integrated process below 500°C for thin Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> capacitor for giga-bit DRAMs", *IEEE International Electron Device Meeting*, 94: (1994) 839-842.
- [6] H. Fujikawa, Y. Taga, "Effects of additive elements on electrical properties of tantalum oxide films", *Applied Physics.*, 75: (1994) 2538-2542.
- [7] R.F.Cava, W.F. Peck Jr., J.J. Krajewski, "Enhancement of the dielectric constant of Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> through substitution with TiO<sub>2</sub>", *Nature*, 377: (1995) 215-217.
- [8] N. Arshi, J. Lu, C.G. Lee, B.H. Koo, F. Ahmed, "Effect of substrate temperature on the properties of electron beam deposited tantalum films", *Thin Solid Films*, 546: (2013) 22-25.
- [9] S.Temel, M. Nebi, D. Peker, "Deposition and Characterization of Transparent conductive oxide ZnO Thin Films by Sol-Gel spin coating Technique" *GU J Sci, Part C*, 5(3): (2017) 51-59
- [10] M.S. Farhan, E. Zalnezhad, A.R. Bushroa, "Properties of Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> thin films deposited by dc reactive magnetron sputtering", *Materials Research Bulletin*, 48: (2013) 4206-4209.
- [11] S.C. Wang, K. Y. Liu, J.L. Huang, "Tantalum oxide film prepared by reactive magnetron sputtering deposition for all-solid-state electrochromic device", *Thin Solid Films*, 520: (2011) 1454-1459.
- [12] G. Stanciu, M. Filipescu, V. Ion, E. Andronescu, M. Dinescu, "Optical properties of Tantalum oxide thin films obtained by laser deposition techniques", *UPB Scientific Bulletin, Series B: Chemistry and Materials Science*, 75: (2013) 15-22.
- [13] M. Oubaha, S. Elmaghrum, R. Copperwhite, B. Corcoran, C. Mcdonagh, A. Gorin, "Optical properties of high refractive index thin films processed at low-temperature", *Optical Materials*, 34: (2012) 1366-1370.
- [14] F.E. Ghodsi, F.Z. Tepehan, G.G. Tepehan, "Optical properties of Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> thin films deposited using the spin coating process", *Thin Solid Films*, 295: (1997) 11-15.

- [15] F.Z. Tepehan, F.E. Ghodsi, N. Ozer and G.G. Tepehan, "Optical properties of sol-gel dip-coated Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> films for electrochromic applications", *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 59: (1999) 265-275.
- [16] S. Yildirim, K. Ulutas, D. Deger, E.O. Zayim, I. Turhan, "Dielectric properties of sol-gel derived Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> thin films", *Vacuum*, 77: 3 (2005) 329-335.
- [17] S.I. Kimura, Y. NI Shioka, A. Shintani and K. Mukai, "Leakage-Current Increase in Amorphous Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> Films Due to Pinhole Growth during Annealing Below 600°C", *Journal of Electrochemical Society*, 130: (1983) (2414-2418).
- [18] T. Aoyama, S. Saidu, Y. Okayama, M. Fujisaki, K. Imai and T. Arikado, "Leakage Current Mechanism of Amorphous and Polycrystalline Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> Films Grown by Chemical Vapor Deposition", *Journal of Electrochemical Society*, 143: (1996) 977-983.
- [19] F. C. Chiu, J. J. Wang, J. Y. Lee and S. C. Wu, "Leakage currents in amorphous Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> thin films", *Journal of Applied Physics*, 81: (1997) 6911-6915.
- [20] Y. Nishioka, N. Homma, H. Shinriki, K. Mukai, K. Yamaguchi, A. Uchida, K. Higeta and K. Ogiue, "Ultra thin Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> dielectric film for high-speed bipolar", *IEEE Transaction Electron Devices*, 34: (1987) 1957-1962.
- [21] S. Roberts, J. Ryan and L. Neshi T, "Selective studies of Crystalline Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> films", *Journal of Electrochemical Society*, 133: (1986) 1405-1410.
- [22] D. Deger, K. Ulutas, S. Yildirim, N. Kalkan, "Relaxation spectrum of the TlSbSe<sub>2</sub> thin films", *Physica B: Physics Condensed Matter*, 404: (2009) 5231-5233.
- [23] A. Sharma, N. Mehta, A. Kumar, "Dielectric relaxation in Se<sub>80-x</sub>Te<sub>20</sub>Sn<sub>x</sub> chalcogenide glasses", *Journal of Material Science*, 46: (2011) 4509-4516.
- [24] K. Mageshwari, R. Sathyamoorthy, P. Sudhagar, Y.S. Kang, "Dielectric and relaxation properties of thermally evaporated nanostructured bismuth sulfide thin films", *Applied Surface Science*, 257: (2011) 7245-7253.
- [25] K. Shimakawa, "On the temperature dependence of a.c. conduction in chalcogenide glasses", *Philosophical Magazine*, 46: (1982) 123-135.
- [26] L.S. Palatnik et al., "Structure of TlSbS<sub>2</sub> thin films", *Vacuum*, 24: (1974) 142.
- [27] D. Matsushita, Y. Nishikawa, N. Satou, M. Yoshiki, T. Schimizu, T. Yamaguchi, H. Satake, N. Fukushima, "Enhancement of dielectric constant due to expansion of lattice spacing in CeO<sub>2</sub> directly grown on Si(111)", *Japanese Journal Applied Physics*, 43: (2004) 1795-1798.
- [28] C. Chaneliere, J.L. Autran, R.A.B. Devine, B. Balland, "Tantalum pentoxide (Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) thin films for advanced dielectric applications", *Materials Science and Engineering*, R22: (1998) 269-322.
- [29] Y. Kavanagh, M.J. Alam, D.C. Cameron, "The characteristic of thin film electroluminescent displays produced sol-gel produced tantalum pentoxide and zinc sulfide", *Thin Solid Film*, 447-448: (2004) 85-89.
- [30] E. Atanassova, A. Paskaleva, R. Konakova, D. Spassov, V.F. Nitin, "Influence of  $\gamma$  radiation on thin Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Si structures", *Microelectronics Journal*, 32: (2001) 553-562.
- [31] A. Poporati, S. Roitti, O. Sbaizero, "Metallorganic chemical vapor deposition of Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> films", *Journal of the European Ceramic Society*, 23: (2003) 247-251.
- [32] B. Tareev, (1975). *Physics of dielectric materials*. Moscow: MIR Publishers, P107.

- [33] J.C. Giuntini, J.V. Zancheha, "Use of conduction models in the study of low temperature carbons", *Journal of Non-Crystalline Solids*, 34: (1979) 419-424.
- [34] S.R. Elliott, "A theory of a.c. conduction in chalcogenide glasses", *Philosophical Magazine B*, 36: (1978) 1291-1304.
- [35] S.R. Elliott, "Temperature dependence of ac conductivity of chalcogenide glasses", *Philosophical Magazine*, 37: (1978) 553-560.
- [36] L. Sullivan, H.C. Card, "Conduction in amorphous thin films of silicon nitride under non-uniform electric fields", *Journal of Physics D: Applied Physics*, 7: (1974) 1531-1539.
- [37] S.M. Sze, "Current transport and maximum dielectric strength of silicon nitride films", *Journal of Applied Physics*, 38: (1967) 2951-2956.
- [38] R.D. Gould, S.A. Awan, "Dielectric properties of RF-sputtered silicon nitride thin films with gold electrodes", *Thin Solid Films*, 433: (2003) 309-314.