



Düzce Üniversitesi Bilim ve Teknoloji Dergisi

Araştırma Makalesi

Aynı Anda Buharlaştırma Yöntemiyle Üretilen CIGS İnce Filmlerin Yapısal Özelliklerinin İncelenmesi ve Kutup Figürlerinin Belirlenmesi

Celal Alp YAVRU ^{a,*}, Murat KALELİ ^{b, c}, İsmail Serkan ÜNCÜ ^d

^a Elektrik Elektronik Mühendisliği Bölümü, Lisansüstü Eğitim Enstitüsü, Isparta Uygulamalı Bilimler Üniversitesi, Isparta, TÜRKİYE

^b Fizik Bölümü, Fen Edebiyat Fakültesi, Süleyman Demirel Üniversitesi, Isparta, TÜRKİYE

^c Yenilikçi Teknolojiler Uygulama ve Araştırma Merkezi (YETEM), Süleyman Demirel Üniversitesi, Isparta, TÜRKİYE

^d Elektrik Elektronik Mühendisliği Bölümü, Teknoloji Fakültesi, Isparta Uygulamalı Bilimler Üniversitesi, Isparta, TÜRKİYE

* Sorumlu yazarın e-posta adresi: c.alpyavru@gmail.com

DOI: 10.29130/dubited.1121646

Öz

Bu çalışmada dörtlü element kompozisyonundan oluşan ve elektro-optik uygulamalarda sıkça kullanılan CIGS ince filmler, aynı anda termal buharlaştırma yöntemiyle üretilmiş, yapısal ve elektriksel özellikleri incelenmiştir. SEM ve AFM sistemleri ile yüzey ve kalınlık analizleri, XRD sistemi ile detaylı yapı ve doku analizleri gerçekleştirilmiştir. SEM ve AFM görüntüleri incelenerek histogram eğrileri ve bunlara bağlı Gaussian teğetleri elde edilmiştir. SEM görüntülerinde film yüzeyinde farklı boyutlarda kümelenmelerin olduğu görülmüş ve histogram grafiği incelenerek bu kümelenmelerin homojen şekilde dağıldığı belirlenmiştir. AFM görüntülerinden ortalama yüzey pürüzlülüğünün 4,94 nm olduğu görülmüştür. AFM görüntülerinden elde edilen histogram grafikleri incelendiğinde de pürüzlülüğe sebep olan yapılanmaların yüzeyde homojen dağıldıkları tespit edilmiştir. Üretilen filmlerin 20°- 60° 2θ aralığında XRD ölçümleri alınmış, filmlerin tetragonal Cu(In_{0.5}Ga_{0.5})Se₂ yapısında ve (112), (204/220) ve (312/116) yönelimlerine sahip olduğu belirlenmiştir. Doku analizleri sonucunda elde edilen kutup figürleri çıkarılmış ve deneysel kutup figürleri ile tekrar hesaplanan teorik kutup figürleri karşılaştırılmıştır. Çalışmanın sonucunda deneysel kutup figürleri ile tekrar hesaplanan teorik kutup figürleri arasındaki benzerlik oranlarının, XRD ölçümlerindeki pik şiddetleri ile orantılı olarak değiştiği tespit edilmiştir. Üretilen CIGS filmine ait kristal yönelimlerinin şiddeti ve film düzlemi boyunca dağılımlarının homojenliği kutup figürlerinin analizi ile çalışılmıştır. Literatürde yüksek verimler elde edilmiş çalışmalardaki kristal yapılar ile kıyaslanarak verimli güneş gözellerini üretmede kullanılabilirliği tespit edilmeye çalışılmıştır. Filmlerin Hall etkisi ölçümleri oda sıcaklığında, 1,1 Tesla manyetik alan altında ve 3 µA akım seviyesinde alınmıştır. Üretilen CIGS ince filmin p tipinde olduğu görülmüş ve sırasıyla öz direnci ve taşıyıcı yoğunluğunun $3,33 \times 10^2 \Omega \cdot \text{cm}$ ve $1,36 \times 10^{11} \text{ cm}^{-3}$ olduğu hesaplanmıştır.

Anahtar Kelimeler: CIGS, İnce Film, Kutup Figürleri, Doku Analizi, Hall Etkisi, Histogram, Gaussian

Investigation of Structural Properties and Determination of Pole Figures of CIGS Thin Films Produced by Co-Evaporation Method

ABSTRACT

In this study, CIGS thin films, which consist of quaternary element composition and are frequently used in electro-optical applications, were produced by the thermal co-evaporation method, and their structural and electrical properties were investigated. Surface and thickness analyze were performed with SEM and AFM systems, and

detailed structure and texture analyzes were performed with the XRD system. By examining SEM and AFM images, histogram curves and their associated Gaussian fits were obtained. In SEM images, it was observed that there were clusters of different sizes on the film surface, and by examining the histogram graph, it was determined that these clusters were homogeneously distributed. The average surface roughness was 4.94 nm from the AFM images. When the histogram graphics obtained from AFM images were examined, it was determined that the structures causing the roughness were homogeneously distributed on the surface. XRD measurements of the produced films were taken in the 20°-60° 2θ range, and it was determined that the films had tetragonal Cu(In_{0.5}Ga_{0.5})Se₂ structure and (112), (204/220) and (312/116) orientations. The pole figures obtained as a result of the texture analysis were gained and the experimental pole figures were compared with the recalculated theoretical pole figures. As a result of the study, it was determined that the similarity ratios between the experimental pole figures and the recalculated theoretical pole figures changed in proportion to the peak intensities in the XRD measurements. "The intensity of the crystal orientations of the produced CIGS film and the homogeneity of their distribution along the film plane were studied by the analysis of the polar figures. It has been tried to determine its usability in producing efficient solar cells by comparing it with the crystal structures in the studies in which high yields have been obtained in the literature. Hall effect measurements were taken at room temperature, under a magnetic field of 1.1 Tesla, and at a current level of 3 μA. It was determined that the produced CIGS thin film was of p-type and the resistivity and carrier density were calculated as 3.33×10² Ω.cm and 1.36×10¹¹ cm⁻³, respectively.

Keywords: CIGS, Thin Film, Pole Figures, Hall Effect, Histogram, Gaussian

I. GİRİŞ

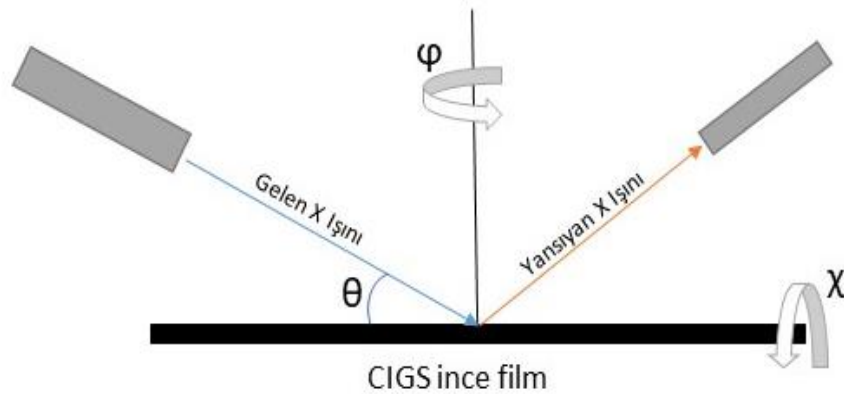
Cu(In_xGa_{1-x})Se₂ (CIGS) dörütlü p-tipi yarıiletken bir malzemedir. Optoelektronik aygıt üretimde, özellikle güneş hücresi çalışmalarında çokça kullanılan, araştırılan ve gelişmeye açık malzemelerdendir [1], [2]. Yapısındaki Ga/(Ga+In) oranı değiştirilerek yasak bant aralığı 1,02-1,68 eV aralığında ayarlanabilmektedir [3], [4]. CIGS birleşik yapısına tellür (Te), sülfür (S) eklenerek CIGSeS veya CIGSTe beşli bileşikleri de elde edilebilmekte ayrıca Ga ve In yerine çinko (Zn) ve tellür (Te) katkılanarak CZTS gibi farklı yarı iletken malzemeler üretilebilmektedir [5]–[8]. CIGS ince filmler, güneş hücresi çalışmalarında üretim kolaylığı ve etkin maliyetleri ile sıklıkla kullanılan n-CdS ve ITO gibi malzemeler ile elektron ilgileri uyusmaktadır. Tüm bu öne çıkan özellikleri nedeniyle CIGS malzemesi heteroeklem yapılarında sıkça tercih edilmektedir [2], [9]. CIGS filmler; sprey proliz, kimyasal sprey proliz, elektro kaplama, saçtırma ve termal buharlaştırma gibi farklı ince film biriktirme yöntemleri ile cam, silikon, esnek polimer gibi alttaşlar üzerine kaplanabilmektedir[10]–[15] CIGS yarıiletken malzemesi kullanılarak üretilen güneş hücreleri, %23,35 ile en yüksek verime sahip polikristal güneş hücrelerindedir [16]. Özellikle son yıllarda güneş hücresi teknolojisinde popüler araştırma konularından olan çok eklemlili hücre (tandem cell) çalışmalarında da sıkça kullanılmaktadır [17]–[21]. Güneş hücresi çalışmaları dışında CIGS yarıiletkeninin literatürde foto sensör, foto detektör ve Schottky diyot gibi uygulamaları da bulunmaktadır [22]–[25].

CIGS ince filmlerin yapısal ve yüzey özelliklerinin ~~incelenmesi~~ iyileştirilmesi filmin kalitesi ve dolayısıyla aygıt uygulamaları üzerinde büyük önem taşımaktadır. Filmin kristal yöneliminin değişiminin takip edilerek istenilen yönelimlerde ve kalitede filmlerin üretilmesi mümkündür [26], [27]. Yapısındaki elementlerin oranına bağlı olarak CIGS ince filmler farklı kristal yönelimlere sahip olmakta veya yönelim tercihleri birbirlerine göre görece artıp azalmaktadır [14]. CIGS ince filmler üzerine kaplandığı alt katman malzemeye (altlık -alttaş- substrat) bağlı olarak da farklı kristal yönelimleri tercih edebilmektedir [28]. Ayrıca üretim parametrelerine bağlı olarak CIGS ince filmlerin yüzeyinde farklı boyutlarda (0,3-2μm) ve yönelimlerde kümelenmeler meydana gelmektedir [29], [30]. İnce filmlerin kristal yapıları ve yapı oluşurken malzemenin tercih ettiği kristal yönelimleri, filmlerin yüzey enerjisi üzerine etki etmektedir. Yüzey enerjisine bağlı olarak katmanlar arası temas dirençleri değişmektedir [31], [32]. Üretilen malzemelerin kristallenme özellikleri incelenerek doku analizleri yapılabilir ve ilgili kutup figürleri belirlenebilir. Kutup figürleri kristal yapı içerisindeki yönelimlerin hangi pozisyonlarda olduğunu göstermektedir. İnce filmlerin yüzey, topoğrafya ve doku analizlerinin beraber değerlendirilmesi sonucu yapının tercih ettiği yönelimler detaylı bir şekilde tespit edilebilmektedir.

Bu çalışmada, aynı anda termal buharlaştırma yöntemi ile üretilen CIGS ince filmlerin taramalı elektron mikroskobu (SEM) ile yüzey, atomik kuvvet mikroskobu (AFM) ile topoğrafya analizleri yapılmıştır. Elde edilen SEM görüntülerinin histogram grafikleri ile bu grafiklerin Gaussian Teğetleri uydurulmuş ve yüzey homojenliği görüntü analizleri ile belirlenmeye çalışılmıştır. Aynı şekilde 2 boyutlu AFM görüntüsünün de histogram grafiği ve Gaussian teğeti elde edilmiş, böylece pürüzlülüğün yüzeyde ne kadar homojen dağıldığı tespit edilmeye çalışılmıştır. Filmlerin X-ışını kırınımı (XRD) sistemi ile $20^\circ - 60^\circ$ 2θ aralığında yapısal analizi yapılmıştır. Bu aralıkta görülen pik yönelimleri için doku analizleri (Texture) gerçekleştirilerek kutup figürleri (Pole Figure) elde edilmiştir. Elektriksel karakterizasyon sistemi ile 1,1 Tesla (T) manyetik alan altında Hall etkisi ölçümleri yapılmıştır. SEM, AFM, XRD ve elektriksel karakterizasyon sonuçları beraber değerlendirilmiş ve literatürde var olan çalışmalar incelenerek üretilen CIGS ince filmlerin tercih ettiği yönelimler ile karşılaştırılmıştır. Sonuç olarak yüksek verimli güneş hücreleri için uygun yönelime sahip CIGS malzemelerinin üretim parametreleri belirlenmeye çalışılmıştır.

II. DENEYSEL PROSEDÜR

CIGS ince filmler VAKSİS Midas 4T1M sisteminde aynı anda termal buharlaştırma yöntemiyle üretilmiştir. Üretim öncesi vakum seviyesi $8,5 \times 10^{-6}$ Pa seviyesine kadar düşürülmüştür. Kaynak element pelletler efüzyon fırınları içerisine sırasıyla Cu (%99,999 Kurt J. Lesker Company, ABD), In (%99,99 Kurt J. Lesker Company, ABD), Ga (%99,9999 Alfa Aesar,) ve Se (%99,999 Kurt J. Lesker Company, ABD), yerleştirilmiştir. Efüzyon fırınları ısıtıldığında ise vakum seviyesinin $5,0 \times 10^{-3}$ Pa' a kadar yükseldiği görülmüştür. Üretim kazanı içerisindeki vakum seviyesi 3×10^{-3} Pa seviyesine geldiğinde efüzyon fırınlarının üzerindeki kapaklar aynı anda açılmış ve cam alttaşlar üzerine üretim işlemi başlamıştır. Selenizasyon işlemine kadar alttaş sıcaklığı 250°C ' de sabit tutulmuştur. Selenizasyon işlemine başlandığında Cu, In, Ga elementlerinin bulunduğu efüzyon fırınlarının kapakları kapatılarak Se gönderilmeye devam edilmiş ve bu işlem süresince alttaş sıcaklığı 400°C ' ye yükseltilmiştir. Üretim boyunca gönderilen malzemelerin buharlaşma miktarları Cu, In, Ga ve Se için sırasıyla $0,9 \text{ \AA/s}$, $1,1 \text{ \AA/s}$, $1,2 \text{ \AA/s}$ ve $8,5 \text{ \AA/s}$ olarak kaydedilmiştir. Üretim işlemi; 50 dakika "eş buharlaştırma" ve takiben 50 dakika selenizasyon ile toplamda 100 dakika sürede tamamlanmıştır. Üretim sonrası filmler oda sıcaklığına gelene kadar sistem içerisinde bekletilmiştir. CIGS ince filmlerin üretim işleminin ardından, AFM, SEM ve XRD ölçümleri gerçekleştirilmiştir. XRD sisteminde CIGS ince filmlerin doku analizi yapılmış ve doku analizi sonucu kutup figürleri elde edilmiştir. Elde edilen kutup figürü sonuçları ile teorik hesaplamalar sonucu olması gereken kutup figürleri karşılaştırılmıştır. Kutup figürleri elde edilirken kullanılan ince film doku analizi yönteminde numune ölçüm boyunca kendi çevresinde ($\phi=360^\circ$) etrafında ve χ kadar yatay eksen etrafında döndürülür. Örnek ölçüm şeması Şekil 1' de gösterilmiştir.

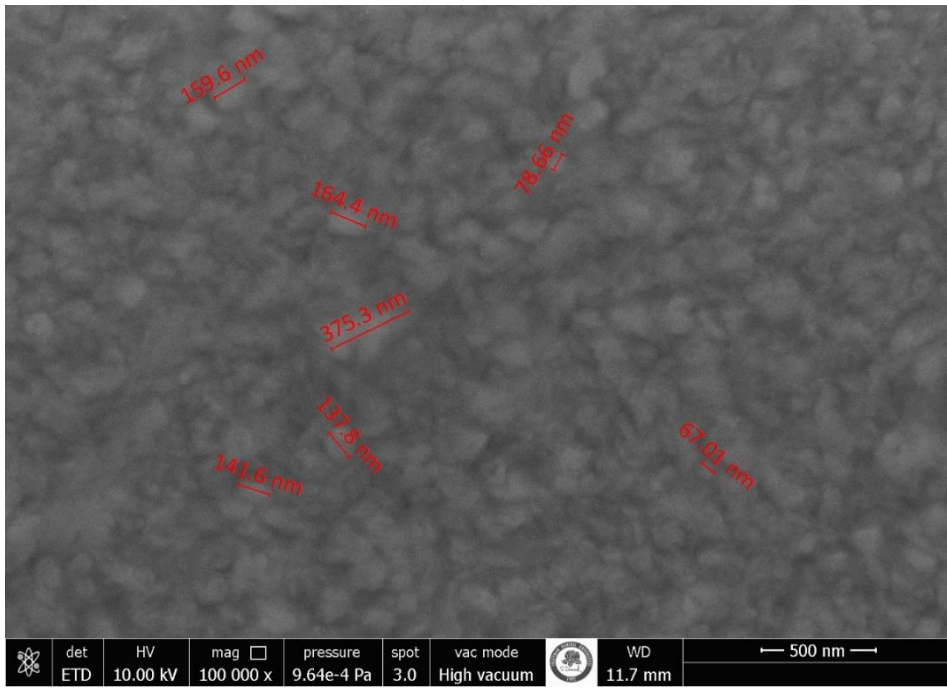


Şekil 1. XRD sisteminde yapılan doku analizinde (texture) kullanılan ölçüm düzeneğinin şematik gösterimi

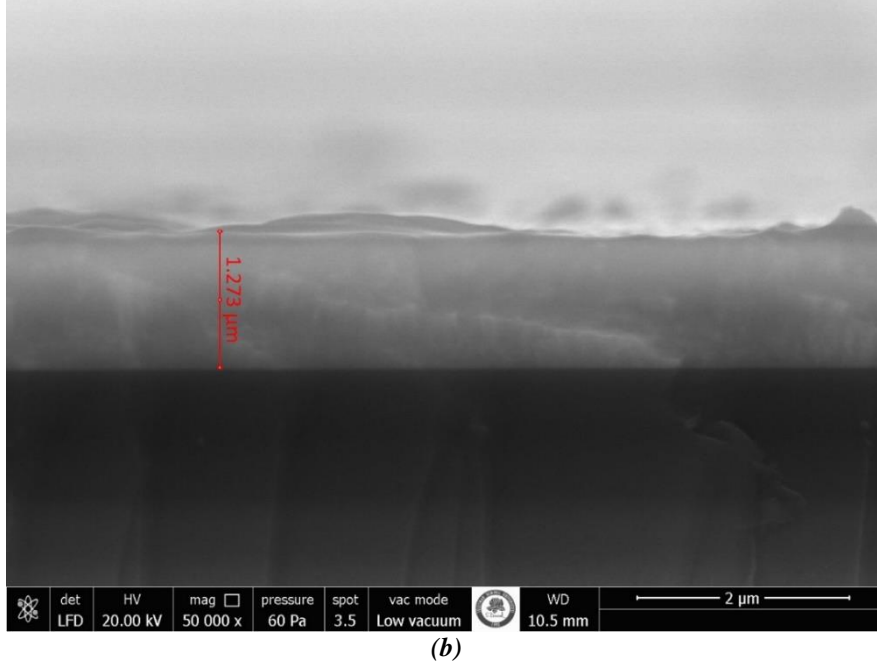
Yüzey ve yapı analizleri yapılan CIGS ince filmin elektriksel özelliklerini belirlemek için Hall Etkisi ölçümleri de alınmıştır. Böylece üretilen filmlerin yüzey, yapı ve elektriksel özellikleri daha önce yapılmış ve yüksek verim elde edilmiş çalışmalar ile kıyaslanmış ve bu çalışmada detayları verilen üretim parametrelerinin, yüksek verimli güneş hücrelerinde olası kullanımı için uygunluğu belirlenmeye çalışılmıştır.

III. BULGULAR ve TARTIŞMA

CIGS ince filmlerin SEM sistemi ile yüzey ve kesit görüntüleri şekil 2 (a) ve (b)' de sırasıyla gösterilmiştir. Yüzey SEM görüntüleri incelendiğinde, film yüzeyinde kümelenmelerin olduğu görülmektedir. Bu kümelenmelerin boyutları yaklaşık olarak 67 nm ile 375 nm aralığında değişmektedir. SEM yüzey görüntülerinde tespit edilen kümelenmelerin 50 nm ve üzeri olduğu takdirde CIGS filmlerin kristallenmelerinin yüksek olacağı ve aygır uygulamaları için iyi bir örnek olarak kabul edilebileceği bilinmektedir [11], [33].

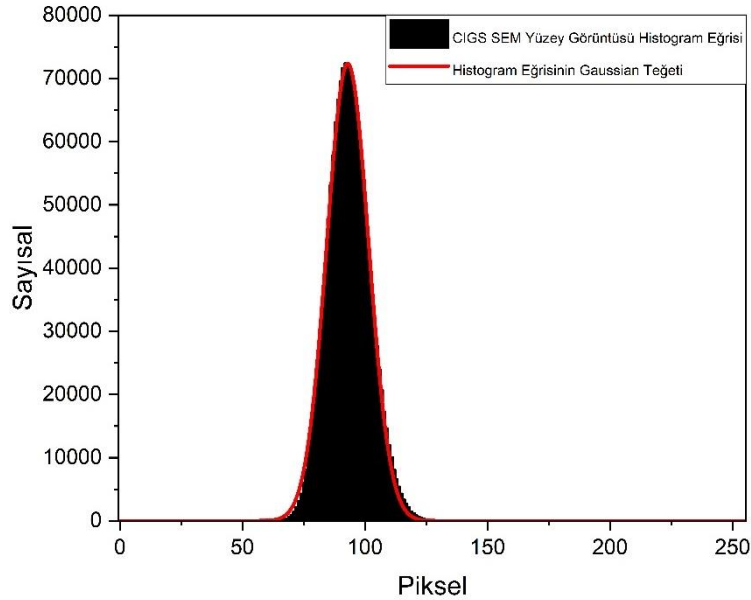


(a)



Şekil 2. a) CIGS ince filmlerin SEM sisteminde alınmış yüzey görüntüsü, **b)** Kesit görüntüsü

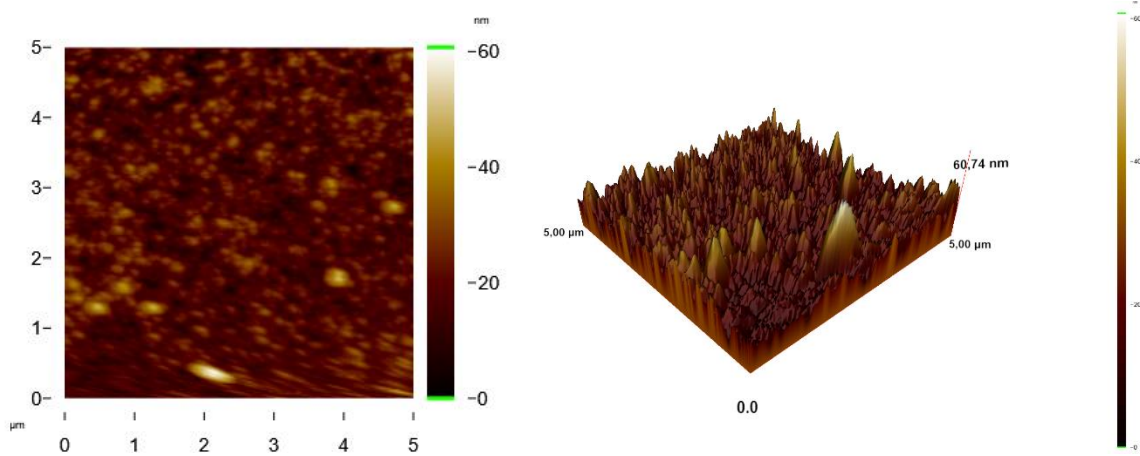
Ayrıca kümelenmelerin yüzey üzerine ne kadar iyi dağıldığının bir niceliği olarak yüzey görüntüsünün görüntü işleme metoduyla gri skala da histogram eğrisi çıkarılmıştır. Histogram eğrisine Gaussian teğeti uydurulmuş ve yüzey homojenliği değerlendirilmiştir. Elde edilen histogram eğrisi ve Gaussian Teğeti, Şekil 3’ de gösterilmiştir.



Şekil 3. CIGS ince filmlerin SEM yüzey görüntüsünün gri skala histogram eğrisi ve Gaussian teğeti

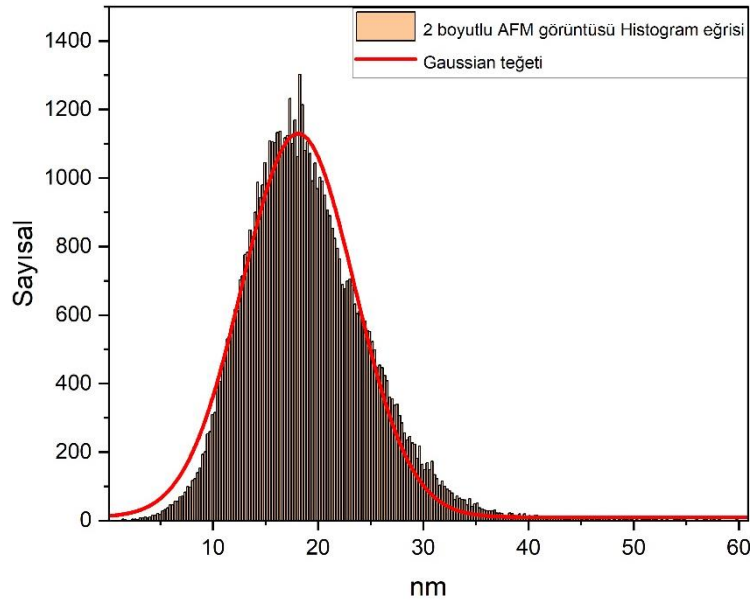
Histogram grafiğinin, Gaussian teğeti ile benzerlik oranı $r^2=0,998$ olarak bulunmuştur. Böylece SEM yüzey görüntülerinde görülen kümelenmelerin boyutları farklı olsa da kabul edilebilir seviyede yüzeyde homojen şekilde dağıldığı söylenebilir. Şekil 2 (b)’ de verilen SEM kesit görüntülerinde ise film kalınlığının yaklaşık $1,273 \mu\text{m}$ olduğu görülmektedir. Ayrıca SEM kesit görüntüsünden filmin farklı kalınlıklarında kontrast farkının olduğu açıkça görülmektedir. Bu kontrast farklılığının film büyürken yüzeye doğru oluşan sütunlu yapılardan kaynaklandığı düşünülmektedir.

Filmlerin AFM görüntüleri $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$ ' lik alandan $3 \mu\text{m/s}$ tarama hızı ile alınmıştır. 2 ve 3 boyutlu AFM görüntüleri sırasıyla, şekil 4 (a) ve 4(b)' de verilmiştir.



Şekil 4. a) CIGS ince filmlerin 2 boyutlu AFM görüntüsü, b) 3boyutlu AFM görüntüsü

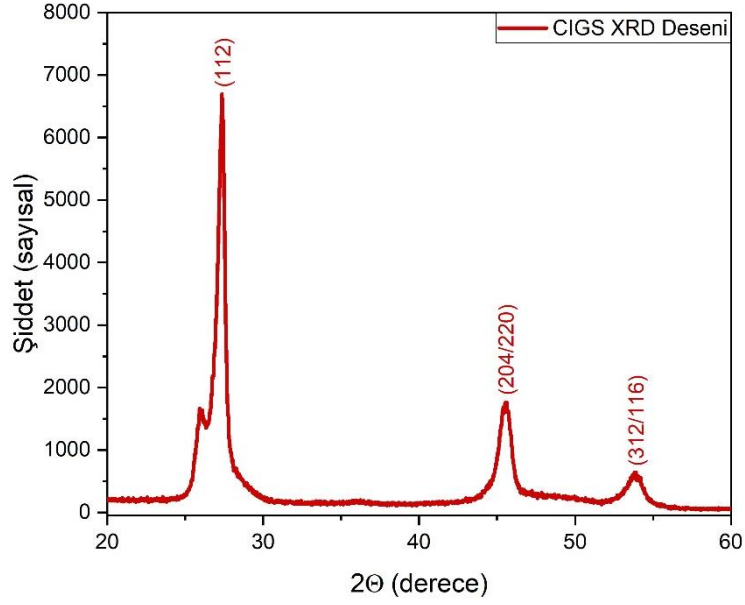
Şekil 4 (a)' da gösterilen 2 boyutlu AFM görüntüsünün analiz sistemine ait “Image Analyzer” programı kullanılarak tepe ve çukur noktaları için 0 ile 60 nm aralığında pürüzlülük histogram grafiği çıkarılmış ve Gaussian teğeti gösterilerek Şekil 5' de verilmiştir. Pürüzlülük için histogram grafiğinin, Gaussian teğeti ile benzerlik oranı $r^2=0,999$ olarak bulunmuştur. Böylece 2 ve 3 boyutlu AFM görüntülerinde görülen tepe ve çukur noktaların yüzeyde ne kadar homojen dağıldığı hakkında grafiksel bir değer elde edilmeye çalışılmıştır. AFM analizlerinde CIGS ince filmlerin ortalama yüzey pürüzlülüğünün (R_{ort}) $4,97 \text{ nm}$ olduğu tespit edilmiştir. Elde edilen SEM ve AFM görüntüleri ile histogram eğrileri ve Gaussian teğetleri birlikte değerlendirilirse film yüzeylerinin homojen oldukları söylenebilir.



Şekil 5. CIGS ince filmlerin 2 boyutlu AFM görüntüsünden elde edilen pürüzlülük değerleri için histogram eğrisi ve uydurulan Gaussian teğeti

Bu çalışmada üretilen CIGS ince filmlerin XRD deseni Şekil 6' da gösterilmektedir. Elde edilen XRD deseni, CIGS ince filmler için standart PDF 00-040-1488 veri kartıyla eşleşmiş ve böylece üretilen filmlerin tetragonal $\text{Cu}(\text{In}_{0.5}\text{Ga}_{0.5})\text{Se}_2$ yapısında olduğu belirlenmiştir. XRD deseni incelendiğinde CIGS malzemesine ait 3 farklı pikin yapıda varlığı görülmektedir. Bu piklerin açıları, açılara ait olan yönelimler ve her bir pik için elde edilmiş olan kristal boyutları tablo 1' de gösterilmektedir. Buna göre $27,2^\circ$ de görülen pik (112) kristal yönelimi, $45,1^\circ$ de görülen pik (204)/(220) yönelimlerini ve $53,4^\circ$

de görülen pik (312)/(116) yönelimlerine karşılık gelmektedir. Ayrıca bu açılarda elde edilen her bir pik için Debye-Scherrer metodu kullanılarak kristal boyutları hesaplanmış ve sırasıyla 19,9, 11,2 ve 10,1 nm olarak elde edilmiştir.

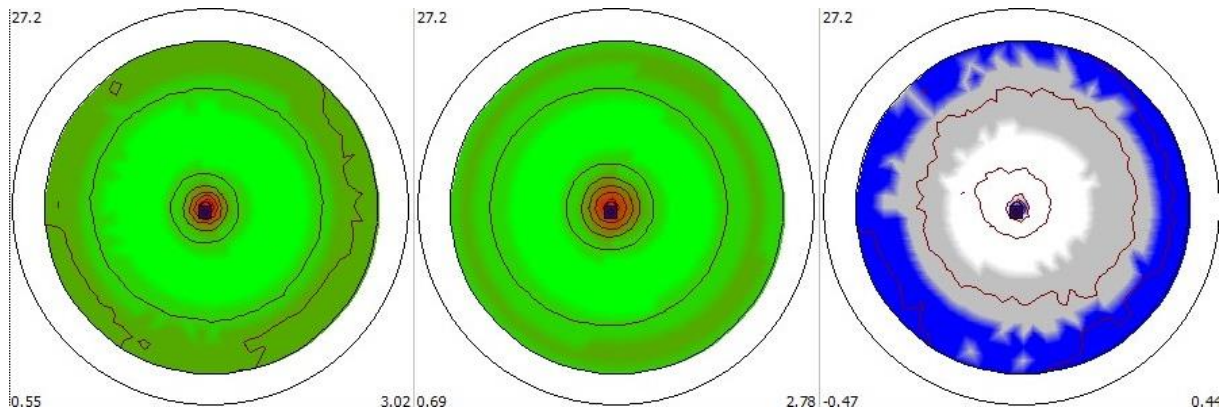


Şekil 6. CIGS ince filmlerin XRD deseni

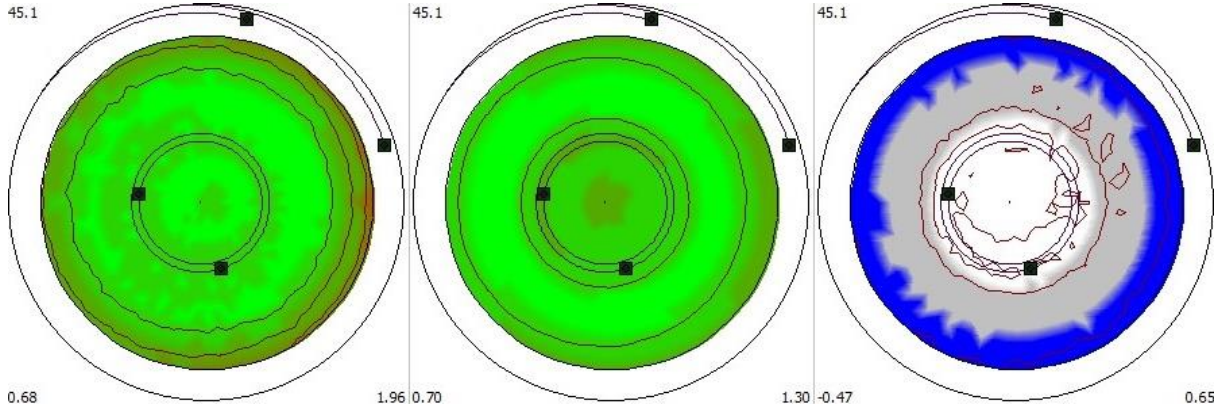
Tablo 1. XRD piklerinin açısı, açılara ait yönelimler ve kristal boyutları

Açı (20°)	Yönelim (h,k,l)	Kristal Boyutu (nm)
27,2	(112)	19,9
45,1	(204) / (220)	11,2
53,4	(312) / (116)	10,1

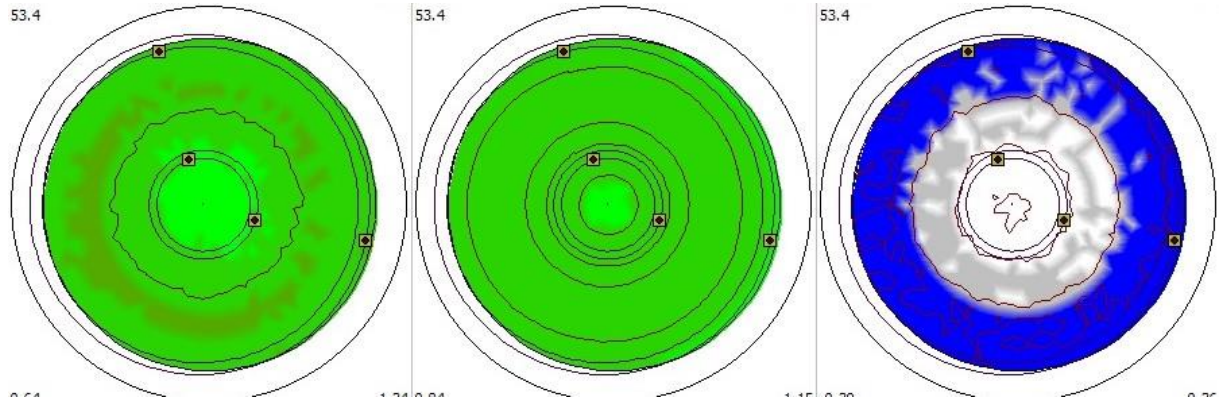
Üretilen CIGS filmlerin XRD analizi sonucu elde edilen her bir yönelimi için doku analizleri gerçekleştirilmiş ve kutup figürleri elde edilmiştir. Şekil 7(a), (b) ve (c)' de, üretilen CIGS ince filmlerinin (112) yönelimi için deneysel, tekrar hesaplanmış doku analizleri ve deneysel ile tekrar hesaplanan analizlerin farkı sırasıyla verilmektedir. (204/220) ve (312/116) yönelimleri için yapılan doku analizleri ve elde edilen kutup figürleri sırasıyla Şekil 8 ve Şekil 9' da gösterilmektedir.



Şekil 7. (112) yönelimi için a) Deneysel kutup figürleri, b) Tekrar hesaplanan kutup figürleri, c) Deneysel ve tekrar hesaplanan kutup figürü sonuçlarının farkı



Şekil 8. (204/220) yönelimi için **a)** Deneysel kutup figürleri, **b)** Tekrar hesaplanan kutup figürleri, **c)** Deneysel ve tekrar hesaplanan kutup figürü sonuçlarının farkı



Şekil 9. (312/116) yönelimi için **a)** Deneysel kutup figürleri, **b)** Tekrar hesaplanan kutup figürleri, **c)** Deneysel ve tekrar hesaplanan kutup figürü sonuçlarının farkı

Yapılan analizlerden görüldüğü üzere; deneysel olarak elde edilen kutup figürleri ile tekrar hesaplanan kutup figürleri yüksek oranda benzerlik göstermektedir. Özellikle ana pik olan (112) yönelimine ait kutup figürlerinin, diğer piklere göre benzerliğinin daha fazla olduğu açıktır. Kutup figürlerindeki görece benzerliğin artması ile kristal boyutlarının ve pik şiddetlerinin de birbirlerine göre orantılı olarak arttığı tespit edilmiştir. Literatürde (204/220) ve (312/116) farklı yönelimleri için tam oryantasyonun belirlenmesi çalışmaları yapılmış ve bu yönelimlerin herhangi bir kristal düzleminin en düşük polaritesini sergilediği, yani eşit sayıda katyon ve anyona sahip olduğu bildirilmiştir [34]. Bu sebeple bu piklere ait yönelimlerin (hkl) indisleri net olarak verilememektedir.

Tablo 2. Üretilen CIGS ince filmlerin Hall etkisi ölçümleri

Sıcaklık (K)	Manyetik Alan (T)	Akım(μ A)	Öz Direnç (Ω .cm)	Hall Gerilimi (V)	Taşıyıcı Yoğunluğu (cm^{-3})	Tip
300	1,1	3	$3,33 \times 10^2$	$1,51 \times 10^{-2}$	$1,36 \times 10^{11}$	P

Üretilen filmlerin Hall etkisi ve direnç ölçümleri van der Pauw geometrisinde, 1,1 Tesla (T) manyetik alan altında, oda sıcaklığında ve 3 μ A akım seviyesinde alınmıştır. Filmlerin Hall etkisi ölçüm sonuçları tablo 2' de gösterilmektedir. Literatürde CIGS ince filmleri için malzemenin yapısı ve elektriksel özellikleri arasındaki bağlantıyı inceleyen pek çok yayın mevcuttur. Bu çalışmalarda üretim parametrelerinin, kullanılan alttaşın, katkılama miktarlarının kristal yönelimleri ve elektriksel özellikleri üzerine etkileri pek çok çalışmada detaylıca incelenmiştir [35]–[40] Üretilen CIGS ince filmlerin elektriksel özelliklerinin literatür ile uyumlu olduğu tespit edilmiştir [41].

IV. SONUC

Aynı anda buharlaştırma yöntemi ile üretilen CIGS ince filmlerin SEM sistemi ile yüzey ve kalınlık analizleri yapılmıştır. Yüzey SEM görüntüsünde farklı boyutlarda homojen dağılmış kümelenmelerin olduğu ve yüksek kristalizasyon sayesinde bu kümelenmelerinin 67- 375 nm aralığındaki boyutlara ulaştığı görülmüştür. Ayrıca film yüzeyine ait SEM görüntülerinin, görüntü işleme ile analizlerinden elde edilen histogram eğrisi incelendiğinde, görüntünün homojen bir dağılıma sahip olduğu tespit edilmiştir. Bu sebeple yüzeydeki kümelenmelerin de film yüzeyi boyunca homojen şekilde dağıldığı sonucu çıkarılmıştır. AFM görüntüleri incelendiği takdirde, ortalama yüzey pürüzlülük değeri 4,97 nm olarak tespit edilmiştir. Benzer şekilde 2 boyutlu AFM görüntüsünün histogram eğrisi incelenirse, ortalama pürüzlülük değerinin yine bütün yüzey boyunca homojen şekilde dağıldığı görülmektedir. XRD analizleri, üretilen filmlerin CIGS'e ait 3 farklı kristal yönelimine sahip olduğunu göstermektedir. Bu yönelimlere ait doku analizleri yapılarak elde edilen kutup figürleri incelendiğinde deneysel sonuçlar ile yeniden hesaplanan teorik sonuçların birbirlerine yakın oldukları görülmüştür. Üretilen CIGS ince filminin kristal yapısındaki bu yönelimlere ait kutup figürlerinin analizi; kristalleşme mertebesini gösteren pik şiddetinin yanında, kristal düzlemlerinin film düzlemine göre ne kadar homojen dağıldığının da bir göstergesidir. Filmlerin elektriksel analizleri değerlendirildiğinde özdirenç ve taşıyıcı yoğunluğu değerlerinin daha önce yapılmış literatür çalışmaları ile mertebe olarak uyumlu olduğu tespit edilmiştir. Bu çalışmada üretim parametreleri verilen CIGS ince filmlerin detaylı yapısal analiz ve elektriksel karakterizasyon sonuçları beraber değerlendirildiğinde ve literatürde var olan çalışmalar ile karşılaştırıldığında, yüksek verime sahip CIGS güneş hücrelerinde kullanımı için uygun olduğu söylenebilir.

TEŞEKKÜR: Makalenin yazarlarından Celal Alp YAVRU' ya 100/2000 Doktora Programı kapsamında destek veren Yükseköğretim Kurulu (YÖK)' na ve 4905-YL1-17 numaralı proje desteği için SDÜ BAP'a teşekkür ederiz.

V. KAYNAKLAR

- [1] S. H. Kang, Y. K. Kim, D. S. Choi, and Y. E. Sung, "Characterization of electrodeposited CuInSe₂ (CIS) film," *Electrochimica Acta*, vol. 51, no. 21, pp. 4433–4438, 2006.
- [2] M. Al-Hattab, L. Moudou, M. Khenfouch, O. Bajjou, Y. Chrafi, and K. Rahmani, "Numerical simulation of a new heterostructure CIGS/GaSe solar cell system using SCAPS-1D software," *Solar Energy*, vol. 227, Elsevier Ltd, pp. 13–22, 2021.
- [3] H. H. Sheu, Y. T. Hsu, S.Y. Jian, and S.C. Liang, "The effect of Cu concentration in the photovoltaic efficiency of CIGS solar cells prepared by co-evaporation technique," *Vacuum*, vol. 131, pp. 278–284, 2016.
- [4] W. Liu, H. Li, B. Qiao, S. Zhao, Z. Xu, and D. Song, "Highly efficient CIGS solar cells based on a new CIGS bandgap gradient design characterized by numerical simulation," *Solar Energy*, vol. 233, pp. 337–344, 2022.
- [5] M. P. Suryawanshi, G. L. Agawane, S. M. Bhosale, S. W. Shin, P. S. Patil, J. H. Kim, and A. V. Moholkar, "CZTS based thin film solar cells: a status review," *Materials Technology*, vol. 28, no. 1–2, pp. 98–109, 2013.
- [6] W. Daranfede, M. S. Aida, N. Attaf, J. Bougdira, and H. Rinnert, "Cu₂ZnSnS₄ thin films deposition by ultrasonic spray pyrolysis," *J Alloys Compd*, vol. 542, pp. 22–27, 2012.

- [7] Y. Atasoy, B. M. Başol, I. Polat, M. Tomakin, M. Parlak, and E. Bacaksiz, “Cu(In,Ga)(Se,Te)₂ pentenary thin films formed by reaction of precursor layers,” *Thin Solid Films*, vol. 592, no. 2, pp. 189–194, 2015.
- [8] Y. Atasoy, “Düşük tellür katkılı CuInGaSe₂ ince filmlerin yapısal özelliklerinin incelenmesi”, *Journal of the Institute of Science and Technology*, vol. 9, no. 4, pp. 2088–2096, 2019.
- [9] U. Rau, D. Braunger, R. Herberholz, and W. Schock, “Oxygenation and air-annealing effects on the electronic properties of Cu(In,Ga)Se₂ films and devices,” *J Appl Phys*, vol. 86, no. 1, pp. 497–505, 1999.
- [10] M. Katerski, A. Mere, V. Kazlauskienė, J. Miskinis, A. Saar, L. Matisen, A. Kikas, M. Krunkš, “Surface analysis of spray deposited copper indium disulfide films,” *Thin Solid Films*, vol. 516, no. 20, pp. 7110–7115, 2008.
- [11] D. Lee, S. Park, and J. Kim, “Structural analysis of CIGS film prepared by chemical spray deposition,” *Current Applied Physics*, vol. 11, no. 1, pp. S88–S92, 2011.
- [12] F. Long, W. Wang, J. Du, and Z. Zou, “CIS(CIGS) thin films prepared for solar cells by one-step electrodeposition in alcohol solution,” *Journal of Physics: Conference Series*, vol. 152, p. 012074, 2009.
- [13] I. L. Repins, D. Fisher, W. K. Batchelor, L. Woods, and M. E. Beck, “A non-contact low-cost sensor for improved repeatability in co-evaporated CIGS,” *Progress in Photovoltaics: Research and Applications*, vol. 13, no. 4, pp. 311–323, 2005.
- [14] M. Kaleli and C. Alp Yavru, “Depth profile crystal orientation determination of Cu(In_{1-x}Ga_x)Se₂ thin films by GIXRD method applying skin depth theory,” *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, vol. 30, no. 22, pp. 20154–20159, 2019.
- [15] J. Piekoszewski, J. J. Loferski, R. Beaulieu, J. Beall, B. Roessler and J. Shewchun, “RF-Sputtered CuInSe₂ thin films”, *Solar Energy Materials*, vol. 2, no. 3, pp. 363–372, 1980.
- [16] M. Nakamura, K. Yamaguchi, Y. Kimoto, Y. Yasaki, T. Kato, and H. Sugimoto, “Cd-Free Cu(In,Ga)(Se,S)₂ thin-film solar cell with record efficiency of 23.35%,” *IEEE Journal of Photovoltaics*, vol. 9, no. 6, pp. 1863–1867, 2019.
- [17] A. Guchhait, H. A. Dewi, S. W. Leow, H. Wang, G. Han, F. B. Suhaimi, S. Mhaisalkar, H. L. Wong, and N. Mathews, “Over 20% Efficient CIGS-Perovskite Tandem Solar Cells,” *ACS Energy Lett*, vol. 2, no. 4, pp. 807–812, 2017.
- [18] T. J. Jacobsson, A. Hultqvist, S. Svanstrom, L. Riekehr, U. B. Cappel, E. Unger, H. Rensmo, E. M. J. Johansson, M. Edoff, G. Boschloo, “2-Terminal CIGS-perovskite tandem cells: A layer by layer exploration,” *Solar Energy*, vol. 207, no. 1, pp. 270–288, 2020.
- [19] C. D. Bailie, M. G. Christoforo, J. P. Mailoa, A. R. Bowring, E. L. Unger, W. H. Nguyen, J. Burschka, N. Pellet, J. Z. Lee, M. Gratzel, R. Noufi, T. Buonassisi, A. Salleo, and M. D. McGehee, “Semi-transparent perovskite solar cells for tandems with silicon and CIGS,” *Energy Environ Sci*, vol. 8, no. 3, pp. 956–963, 2015.

- [20] S. U. Nanayakkara, K. Horowitz, A. Kanevce, M. Woodhouse, and P. Basore, "Evaluating the economic viability of CdTe / CIS and CIGS / CIS tandem photovoltaic modules," *Progress in Photovoltaics*, vol. 25, no.4, 2017.
- [21] S. Gharibzadeh, I. M. Hossain, P. Fassl, B. A. Nejjand, T. Abzieher, M. Schultes, E. Ahlswede, P. Jackson, M. Powalla, S. Schafer, M. Rienacker, T. Wietler, R. Peibst, U. Lemmer, B. S. Richards, U. W. Paetzold, "2D/3D Heterostructure for Semitransparent Perovskite Solar Cells with Engineered Bandgap Enables Efficiencies Exceeding 25% in Four-Terminal Tandems with Silicon and CIGS," *Adv Funct Mater*, vol. 30, no. 19, 2020.
- [22] D. A. Aldemir, M. Kaleli, and A. C. Yavru, "Electrical and photoelectric properties of Yb/CIGS thin film Schottky photodiode," *Sens Actuators A Phys*, vol. 311, pp. 112091, 2020.
- [23] C. A. Yavru, M. Kaleli, İ. S. Üncü, M. Koç, and D. A. Aldemir, "Solar and infrared light sensing comparison of Yb/CIGS photodiode," *Sens Actuators A Phys*, pp. 113973, 2022.
- [24] B. Theys, T. Klinkert, F. Mollica, E. Leite, F. Donsanti, M. Jubault, D. Lincot, "Revisiting Schottky barriers for CIGS solar cells: Electrical characterization of the Al/Cu(InGa)Se₂ contact," *Physica Status Solidi (A) Applications and Materials Science*, vol. 213, no. 9, pp. 2425–2430, 2016.
- [25] S. Fiat, I. Polat, E. Bacaksiz, M. Kompitsas, and G. Çankaya, "The influence of annealing temperature and tellurium (Te) on electrical and dielectrical properties of Al/p-CIGSeTe/Mo Schottky diodes," *Current Applied Physics*, vol. 13, no. 6, pp. 1112–1118, 2013.
- [26] M. Kaleli, C. A. Yavru, M. Koç, S. Akyürekli, A. B. Bayram, "Termal Buharlaştırma Yöntemiyle Hazırlanan Ga Katkılı CuInSe₂ İnce Filmlerin Yapısal Özelliklerinin İncelenmesi," *Süleyman Demirel Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fen Dergisi*, vol. 12, no. 2, pp. 19–32, 2017.
- [27] C. A. Yavru, İ. S. Üncü, M. Kaleli, and S. Akyürekli, "CIGS İnce Film Yüzeyindeki Morfolojik Farklılıkların GLCM Görüntü İşleme Yöntemi ile İncelenmesi," *Süleyman Demirel Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fen Dergisi*, vol. 17, no. 2, pp. 460–477, 2022.
- [28] J. H. Yoon, K. H. Yoon, J. K. Kim, J. K. Park, T. S. Lee, Y. J. Baik, T. Y. Seong, and J. H. Jeong, "Effect of the Mo back contact microstructure on the preferred orientation of CIGS thin films," in *Conference Record of the IEEE Photovoltaic Specialists Conference*, pp. 2443–2447, 2010.
- [29] S. Rozeveld, C. Reinhardt, E. Bykov, and A. Wall, "Measurement of Grain Boundary Properties in Cu(In,Ga)Se₂ Thin Films," *Micros Today*, vol. 26, no. 3, pp. 32–39, 2018.
- [30] G. Hanna, T. Glatzel, S. Sadewasser, N. Ott, H. P. Strunk, U. Rau, and J. H. Werner, "Texture and electronic activity of grain boundaries in Cu(In,Ga)Se₂ thin films," *Appl Phys A Mater Sci Process*, vol. 82, no. 1, pp. 1–7, 2006.
- [31] R. Krishnan, M. Riley, S. Lee, and T. M. Lu, "Formation of biaxially textured molybdenum thin films under the influence of recrystallization conditions," *Thin Solid Films*, vol. 519, no. 16, pp. 5429–5432, 2011.
- [32] M. L. Lobanov, S. V. Danilov, V. I. Pastukhov, S. A. Averin, Y. Y. Khrunyk, and A. A. Popov, "The crystallographic relationship of molybdenum textures after hot rolling and recrystallization," *Materials and Design*, vol. 109, no. July, pp. 251–255, 2016.

- [33] A. B. Jain, Y. R. Toda, and D. N. Gujarathi, "Structural and Electrical properties of Thermally Evaporated Nanostructured CuInSe Thin Films," vol. 9, no. 2, pp. 19–26, 2017.
- [34] M. A. Contreras, B. Egaas, K. Raöanathan, J. Hiltner, A. Swartzlander, F. Hasoon, and R. Noufi, "Progress Toward 20% Efficiency in Cu(In,Ga)Se₂ Polycrystalline Thin-film Solar Cells," *Progress in Photovoltaics: Research and Applications*, vol. 7, no.4, pp. 311–316, 1999.
- [35] A. Slobodskyy, T. Slobodskyy, T. Ulyanenkova, S. Doyle, M. Powalla, T. Baumbach, and U. Lemmer, "In-depth analysis of the CuIn_{1-x}Ga_xSe₂ film for solar cells, structural and optical characterization," *Applied Physics Letters*, vol. 97, no. 25, Dec. 2010.
- [36] Y. M. Xue, B. H. Yang, C. Q. Qu, L. Zhang, C. M. Xu, and Y. Sun, "Structural and electrical properties of co-evaporated In, Ga rich CIGS thin films," *Optoelectronics Letters*, vol. 4, no. 6, pp. 0437–0439, Nov. 2008.
- [37] R. Caballero, C. A. Kaufmann, T. Eisenbarth, T. Unold, S. Schorr, R. Hesse, R. Klenk, and H. W. Schock "The effect of NaF precursors on low temperature growth of CIGS thin film solar cells on polyimide substrates," *Physica Status Solidi (A) Applications and Materials Science*, vol. 206, no. 5, pp. 1049–1053, May 2009.
- [38] D.H. Cho, Y.-D. Chung, K.-S. Lee, J.-H. Kim, S.-J. Park, and J. Kim, "Control of Na diffusion from soda-lime glass and NaF film into Cu(In,Ga)Se₂ for thin-film solar cells," pp. 1–4, 2014.
- [39] H. Wang, Z. Yang, X. L. Kou, Y. A. Cai, W. Liu, T. Yu, J. B. Pang, C. J. Li, and Y. Sun "Effect of substrate temperature on the structural and electrical properties of CIGS films based on the one-stage co-evaporation process," *Semiconductor Science and Technology*, vol. 25, no. 5, 2010.
- [40] D. Abou-Ras, D. Rudmann, G. Kostorz, S. Spiering, M. Powalla, and A. N. Tiwari, "Microstructural and chemical studies of interfaces between Cu(In,Ga)Se₂ and In₂S₃ layers," *J Appl Phys*, vol. 97, no. 8, pp. 084908, 2005.
- [41] B. K. H. Al-Maiyaly, I. H. Khudayer, A. H. A. Alrazak, "Effect of Thickness on the Electrical Conductivity and Hall Effect Measurements of (CIGS) Films" *Ibn Al- Haitham jour. For pure and Appl. Science*, vol.27, no.3, pp. 300-308, 2014.