



Araştırma Makalesi

CIGS İnce Film Yüzeyindeki Morfolojik Farklılıkların GLCM Görüntü İşleme Yöntemi ile İncelenmesi

Celal Alp YAVRU*¹, İsmail Serkan ÜNCÜ², Murat KALELİ^{3,4}, Salih AKYÜREKLİ⁴

¹*Isparta Uygulamalı Bilimler Üniversitesi, Lisansüstü Eğitim Enstitüsü, Elektrik Elektronik Mühendisliği, 32200, Isparta, Türkiye*

²*Isparta Uygulamalı Bilimler Üniversitesi, Teknoloji Fakültesi, Elektrik Elektronik Mühendisliği, 32200, Isparta, Türkiye*

³*Süleyman Demirel Üniversitesi, Fen Edebiyat Fakültesi, Fizik Bölümü, 32260, Isparta, Türkiye*

⁴*Süleyman Demirel Üniversitesi, YETEM, Malzeme Üretimi ve Karakterizasyonu Birimi, 32260, Isparta, Türkiye*

*yazılan yazar e-posta: c.alpyavru@gmail.com

(Alınış / Received: 02.06.2022, Kabul / Accepted: 18.10.2022, Yayınlanma / Published: 25.11.2022)

Öz: Çalışmada Mo folyolar ve cam üzerine DC saçırma yöntemiyle kaplanmış Mo ince filmler üzerine aynı anda termal buharlaştırma metoduyla CIGS yarıiletken malzemesi biriktirilmiştir. İki grup Mo alt katmanların AFM cihazı ile topoğrafyaları ve ortalama yüzey pürüzlülükleri elde edilmiştir. CIGS ince filmlerin kalınlıkları SEM cihazı ile kesit görüntüleri alınarak, 1,122 µm olarak tespit edilmiştir. Numunelerin XRD ölçümleri alınarak yapısal farklılıkları belirlenmiştir. Mo folyo ve ince film alt katmanı üzerine biriktirilen CIGS ince filmlerin yüzeyinden 5000, 10000, 25000 ve 50000 büyütmelede SEM görüntüleri alınmıştır. Elde edilen SEM görüntülerinin GLCM metodu ile Haralick doku özellikleri incelenmiş, elde edilen sonuçlar değerlendirilerek alt katman Mo topoğrafyasının CIGS ince filmlerin morfolojisi üzerine etkisi araştırılmıştır. Hesaplanan Haralick doku özelliklerinin görece geniş alanlardan daha küçük alanlara doğru değişimleri değerlendirilmiştir. A grubu numunelerden elde edilen görüntülerde enerji değerinin 0,21 ile 0,54 arasında, karışıklık değerinin 0,15 ile 0,35 arasında, korelasyon değerinin 0,66 ile 0,65 arasında ve homojenite değerinin 0,82 ile 0,92 arasında değiştikleri tespit edilmiştir. B grubunda aynı doku özelliklerinin farklılık gösterdiği görülmüştür. Alttaş farklılığının yapı ve morfoloji üzerine etkisi, SEM görüntülerinin doku özellikleri farklılıkları ile açıklanmıştır.

Anahtar kelimeler: İnce Film, SEM, AFM, GLCM, Haralick Doku Özellikleri

Investigation of Morphological Differences on CIGS Thin Film Surface by GLCM Image Processing Method

Abstract: In the study, CIGS semiconductor material was deposited on Mo foils and Mo thin films coated with DC sputtering method on glass by co-evaporation method. The topography and average surface roughness of the two groups of Mo substrates were obtained by the AFM device. The thickness of the CIGS thin films was determined as 1.122 µm from the cross-section SEM image. The structural differences of the samples were determined by taking XRD measurements. SEM images were taken at 5000, 10000, 25000, and 50000 magnifications from the surface of CIGS thin films deposited on Mo foil and thin film substrates. Haralick texture features of the obtained SEM images were examined by GLCM method, the results obtained were evaluated and the effect of substrate Mo topography on the morphology of CIGS thin films was investigated.

According to the calculated Haralick features, the changes from large areas to smaller areas were evaluated. In the images obtained from group A samples, it was determined that the energy value in the range of 0.21 and 0.54, the contrast value between 0.15 and 0.35, the correlation value between 0.66 and 0.65 and the homogeneity value between 0.82 and 0.92. It was observed that the same features differed in group B. The effect of substrate difference on structure and morphology is explained by the differences in Haralick texture features of SEM images.

Key words: Thin Film, SEM, AFM, GLCM, Haralick Texture Features

1. Giriş

Bir alttaş (cam, silikon plaka, polimer plaka, metal plaka, kumaş...) üzerine birkaç nanometre (nm) ile birkaç mikrometre (μm) arasında kalınlıklarda kaplanan, farklı kimyasal ve fiziksel özelliklere sahip malzemelere ince film adı verilmektedir [1]. Nanoteknoloji çalışmalarında sıkça kullanılan ince film teknolojisi, son yıllarda araştırma geliştirme çalışmaları arasında önemli bir ivme kazanmış ve özellikle elektronik dünyasının temel sorunlarına cevap verir hale gelmiştir [2]. Malzemelerin elektriksel özellikleri kullanılarak diyot, transistör, güneş hücreleri, ince film bataryalar, dokunmatik ekranlar gibi elektronik aygıtlar üretilebildiği gibi, optik özellikleri kullanılarak mercekler, soğurucu katmanlar ve yansıtıcı katmanlar da üretilmektedir.

Üretilen bir ince filmin yüzey ve topoğrafya analizleri taramalı elektron mikroskobu (SEM), geçirimsiz elektron mikroskobu (TEM), atomik kuvvet mikroskobu (AFM) ve optik mikroskop (OM) gibi cihazlar ile gerçekleştirilmektedir [3–6]. Böylece ince filmlerin yüzey özellikleri araştırılmakta ve kullanım alanlarına göre film yüzeyleri geliştirilmektedir [5,7–12]. Özellikle film yüzeyinin homojen şekilde kaplanması ince film uygulamalarında oldukça önemlidir [13–17]. Çünkü homojen şekilde kaplanmış olan bir ince filmin hemen her bölgesinde kimyasal ve fiziksel özellikleri benzerdir. Bu da üretilen ince filmin kalitesi üzerinde önemli bir etkiye sahiptir [18–20].

Literatürdeki çalışmalar incelendiğinde film yüzeyinden elde edilen görüntülerin değerlendirilmesinin yoruma dayalı şekilde yapıldığı görülmektedir. Bununla beraber görüntü işleme tekniklerinden biri olan gri seviye eş oluşum matrisi (GLCM) yöntemi görüntülerin doku özelliklerinin belirlenmesinde ve elde edilen sonuçlar göz önünde bulundurularak görüntülerin sınıflandırılmasında sıkça kullanılan yöntemlerden biridir [21]. Sağlık alanında MR görüntülerinin doku özelliklerinin belirlenmesi tümör gibi görüntüde farklılıklar oluşturan yapıların tespitinde ve sınıflandırılmasında sıkça kullanılmaktadır. GLCM yöntemi ile MR görüntüleri üzerine yapılan çalışmalara benzer şekilde, ince filmlerin SEM görüntüleri üzerinde doku özelliklerinin araştırılması sıkça çalışılan konulardan biri haline gelmektedir [22].

$\text{Cu}(\text{In}_x\text{Ga}_{1-x})\text{Se}_2$ (CIGS) malzemesi dört elementin bileşiminden oluşan bir yarı iletkenidir [23]. İçerisindeki element oranlarına bağlı olarak yasak bant aralığının değiştirilebilmesi [24], esnek alttaşlar üzerine üretilebilmesi gibi özellikleri sayesinde farklı elektronik aygıt uygulamalarında kullanılmaktadır [25, 26]. CIGS malzemesi termal buharlaştırma, saçtırma, kimyasal buhar biriktirme gibi farklı yöntemler ile üretilebilmektedir [27–30]. Üretim parametrelerindeki değişiklikler, alttaş farklılığının CIGS yapısı üzerine etkisi, element oranının CIGS üzerine etkisi gibi yapısal karakterizasyon çalışmalarının yanında literatürde CIGS Schottky diyot, detektör, güneş hücresi gibi aygıt çalışmaları da mevcuttur [31, 32]. Özellikle güneş hücresi çalışmalarında sıkça çalışılan bir soğurucu katman malzemesidir ve son yıllarda tandem güneş hücresi çalışmalarında tercih edilir hale gelmiştir [33, 34].

Bu çalışmada, CIGS ince filmler hem Mo folyolar üzerine hem de Mo ince filmler üzerine aynı üretim parametrelerinde biriktirilerek sırasıyla A ve B grubu olarak isimlendirilmiştir. Üretilen A ve B grubu numunelerin XRD (BRUKER D8 Advance/XRD), SEM (FEI Quanta Feg 250/FE-SEM), AFM (NanoMagnetics ez-AFM) cihazları ile yapısal ve morfolojik karakterizasyonları yapılmıştır. Ayrıca enerji dağılımı spektrometresi (Bruker Edax/EDS) cihazı ile element oranları tespit edilmiştir. Numunelerin yüzey ve kesitinden SEM görüntüleri alınmıştır. SEM kesit görüntülerinden CIGS katmanının kalınlığı belirlenmiş ayrıca yüzey SEM görüntüleri GLCM metodu ile incelenmiştir. GLCM yöntemi sonucunda farklı büyütmelelerdeki SEM görüntülerinin Haralick doku özellikleri MATLAB® programı kullanılarak hesaplanmıştır. Görüntülerdeki doku özelliklerinin değişimi birbirleri ile kıyaslanmıştır. Böylece CIGS ince filmlerin üretildiği alttaş pürüzlülüğünün ve yapısal farklılıkların, CIGS malzemesinin SEM görüntülerindeki morfolojik farklılıklar üzerine etkisi araştırılarak GLCM görüntü işleme metodu ile değerlendirilmiştir. Çalışmadaki uygulanan bu GLCM metodunun, SEM analizlerinin görsel yorumlanmasının yanında matematiksel sonuçlar ile de değerlendirilerek, farklılıklarının tespit edilmesi için bir yöntem olarak kullanılabileceği gösterilmiştir.

2. Materyal ve Metot

2.1 Numunelerin Üretimi

A grubu CIGS ince filmler, %99.95 saflıkta Mo plakalar üzerine aynı anda termal buharlaştırma yöntemi ile biriktirilmiştir. B grubu CIGS ince filmlerin üretiminde ise öncelikle mikroskop camı üzerine DC saçırma metoduyla %99.95 saflıkta hedef malzeme kullanılarak Mo kaplanmış, ardından ince film Mo üzerine CIGS malzemesi biriktirilmiştir. B grubu numuneler için cam üzerine kaplanan Mo ince filmlerin üretim parametreleri Tablo 1’de verilmiştir.

Tablo 1. Cam üzerine kaplanan Mo ince filmlerin üretim parametreleri

Parametre	Değer
DC Güç	120 W
Vakum Seviyesi	4×10^{-3} Pa
Alttaş Sıcaklığı	250 °C
Döndürme	12 rpm

CIGS ince filmlerin üretimi sırasında alttaş sıcaklığı selenizasyon işlemine kadar 250 °C’de sabit tutulmuş selenizasyon sırasında 450 °C’ye yükseltilmiştir. Buharlaştırma işlemi sırasında yapıyı oluşturacak kaynak elementlerin birim zamanda buharlaşma miktarları Cu, In, Ga ve Se için sırasıyla 1.3, 1.1, 1.2 ve 8.2 Å/s olarak kaydedilmiştir.

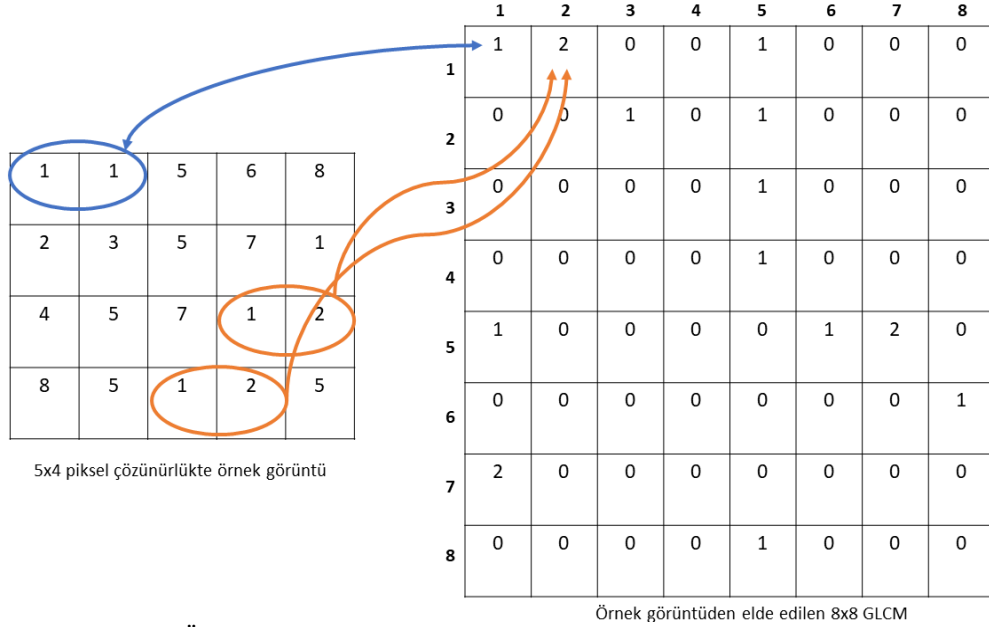
Üretilen A ve B grubu numunelerin XRD (BRUKER D8 Advance/XRD), SEM (FEI Quanta Feg 250/FE-SEM), AFM (NanoMagnetics ez-AFM) cihazları ile yapısal ve morfolojik karakterizasyonları yapılmıştır. Ayrıca enerji dağılımı spektrometresi (Bruker Edax/EDS) cihazı ile element oranları tespit edilmiştir.

2.2 Gri Düzey Eş Oluşum Matrisleri (GLCM)

Elde edilen herhangi bir görüntü çözünürlüğüne bağlı olarak satırlardan ve sütunlardan oluşan bir matris olarak tanımlanabilir. Böyle bir matrisin gri seviye incelemesinde her bir matris elemanı 0 ile 255 aralığında değişen 256 adet değerden birine karşılık gelmektedir [35]. Bu değerlerin bir araya gelmesi sonucuyla görüntü olarak nitelendirilen

bir desen oluşmaktadır. Elde edilen farklı desenlerin her biri farklı niteliklere (ince, kaba, pürüzsüz, rastgele, vb.) sahip olabilmektedirler.

Bu niteliklerin belirlenmesi, görüntünün doku analizi olarak tanımlanabilir ve ikinci dereceden bir istatistik türü olan gri seviye eş oluşum matrisi (GLCM) metoduyla belirlenebilmektedir. Örnek bir GLCM'nin elde edilmesi Şekil 1'de gösterilmiştir. Burada görüntüyü oluşturan matrisin elemanının komşu matris elemanları ile olan benzerlik durumları ele alınmakta ve bu şekilde görüntünün GLCM'si elde edilmektedir.



Şekil 1. Örnek bir görüntü ve örnek görüntünün elde edilen GLCM'si

İncelenen bir desenin GLCM'sinin elde edilmesi ile beraber Haralick tarafından 1973 yılında tanımlanmış olan [36] enerji, karşıtlık, korelasyon, homojenlik ve entropi gibi doku özellikleri matematiksel olarak aşağıdaki denklemler ile hesaplanabilmektedir [37]:

Enerji ifadesi Denklem 1'de gösterilmiştir. GLCM'den elde edilen enerji özelliği görüntünün homojenliğinin bir ölçüsüdür ve tekdüzelik ifade edilir. Bu değer, görüntüyü oluşturan piksellerin değeri ile komşusu olan piksellerin değerleri arasındaki yakınlığı göstermektedir.

$$\text{Enerji: } \sum_{i,j} P_{ij}^2 \quad (1)$$

Karşıtlık ifadesi Denklem 2'de verilmiştir. Bu özellik görüntüde bulunan yerel değişimlerin ne seviyede olduğuna dair bilgi vermektedir ve bir piksel ile komşusu arasındaki yoğunluğun ne kadar zıt olduğunu ifade etmektedir. Karşıtlık özelliği sabit olan görüntülerde 0'dır.

$$\text{Karşıtlık: } \sum_{i,j} |i - j|^2 P_{ij} \quad (2)$$

Korelasyon özelliği piksel ve komşusunun birbirleriyle ne kadar ilişkili olduğuna dair bilgi vermektedir. Değer aralığı +1 ile -1 arasında değişmektedir ve denklem 3 ile

hesaplanmaktadır. Bu denklemdeki μ_x , μ_y , σ_x ve σ_y değerleri, olasılık yoğunluk fonksiyonu P_{ij} 'nin satırları ve sütunlarının ortalaması ve standart sapmasıdır.

$$\text{Korelasyon: } \frac{\sum_{i,j} (ij)P_{ij} - \mu_x\mu_y}{\sigma_x\sigma_y} \quad (3)$$

Homojenlik özelliği GLCM' deki elemanların dağılımının, çapraz şekilde oluşacak olan GLCM' deki elemanların dağılımına yakınlığının bir ölçüsüdür ve denklem 4' de verilmiştir.

$$\text{Homojenlik: } \sum_{i,j} \frac{P_{ij}}{1+|i-j|} \quad (4)$$

Entropi özelliği ise, görüntüdeki gri seviyelerin düzensizliği hakkında bilgi vermektedir ve Denklem 5'de gösterildiği şekilde hesaplanmaktadır.

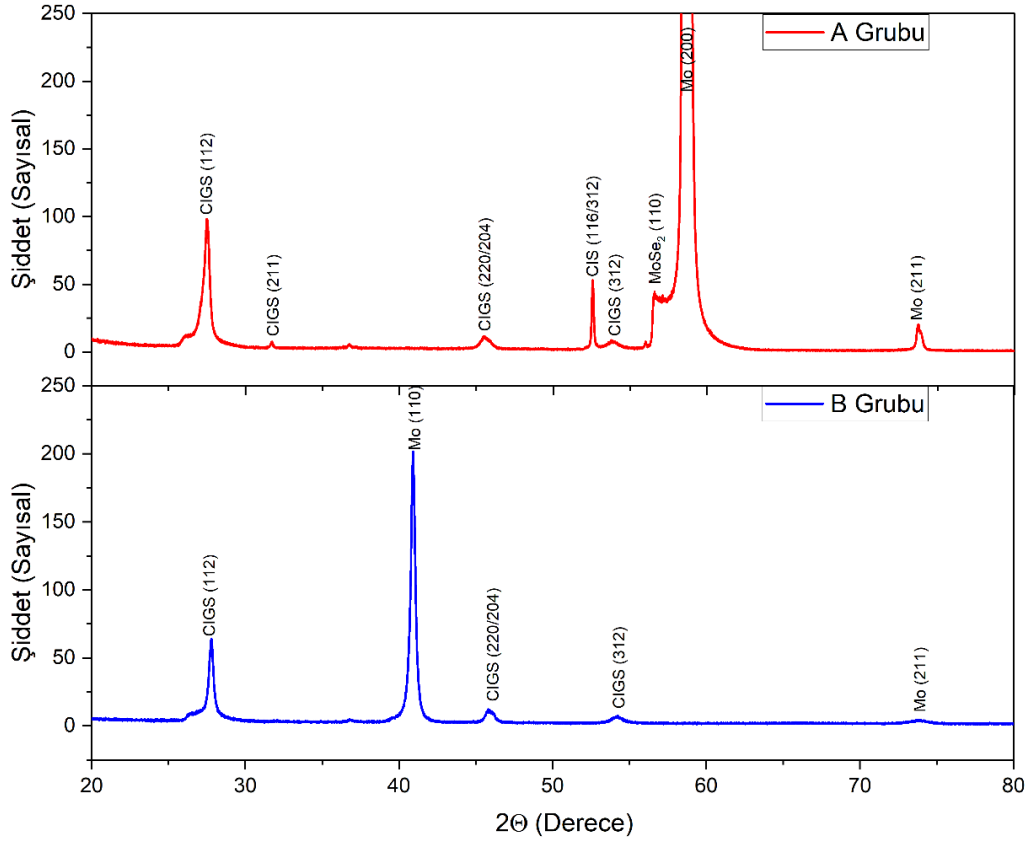
$$\text{Entropi: } - \sum_{i,j} P_{ij} \log P_{ij} \quad (5)$$

Bu çalışmada; CIGS ince filmlerin kaplandığı iki farklı Mo altlığın AFM cihazı ile yüzey topoğrafyaları incelenmiş ortalama yüzey pürüzlülükleri elde edilmiştir. A ve B grubu CIGS ince filmlerin 4 farklı büyütmede SEM görüntüleri alınarak elde edilen görüntülerin GLCM yöntemiyle Haralick doku özellikleri araştırılmıştır. Elde sonuçlar A ve B grubu numuneler arasında karşılaştırılmıştır. Böylece alt katman Mo topoğrafyasının ve ortalama yüzey pürüzlülüğünün küçük alanlardan daha geniş alanlara doğru CIGS filmlerin SEM görüntülerindeki doku özellikleri üzerine etkisi belirlenmeye çalışılmıştır.

3. Bulgular

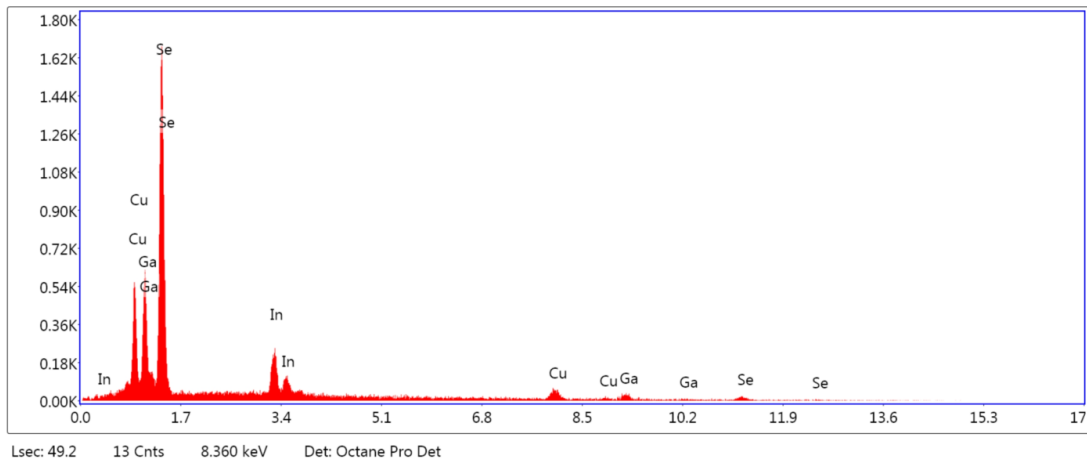
A ve B grubu numunelerin XRD sonuçları Şekil 2'de verilmiştir. XRD sonuçları incelendiği takdirde A grubu numunelerde Mo folyo için literatürde daha önce gösterildiği gibi (200) yöneliminin en yüksek şiddet değerine sahip olduğu görülmektedir [38]. Aynı grup numunelerde CIGS fazının (112) yönelimini temsil eden pikin ana pik olduğu bununla beraber CIGS fazının dışında CIS ve MoSe₂ fazının var olduğu tespit edilmiştir. Elde edilen sonuçlar önceki çalışmalarda belirtilen XRD sonuçları ile uyumludur [32, 39–41].

B grubu numunelerde ise Mo için, A grubunda kullanılan Mo folyolardan farklı olarak (110) yöneliminin en yüksek şiddete sahip olduğu belirlenmiştir. İnce film formunda büyütülen Mo malzemesi için bu yönelimin ana pik olması yüksek verimli güneş hücresi çalışmalarında da görülmektedir. B grubu numunelerde A grubu numunelerde olduğu gibi CIGS fazı için (112) yönelimini temsil eden pikin en yüksek şiddete sahip olduğu görülmektedir. B grubu numunelerin XRD sonuçlarında başka bir faz oluşu görülmemektedir. Bu sonuçlar daha önceki çalışmalar ile uyumludur [29, 32].



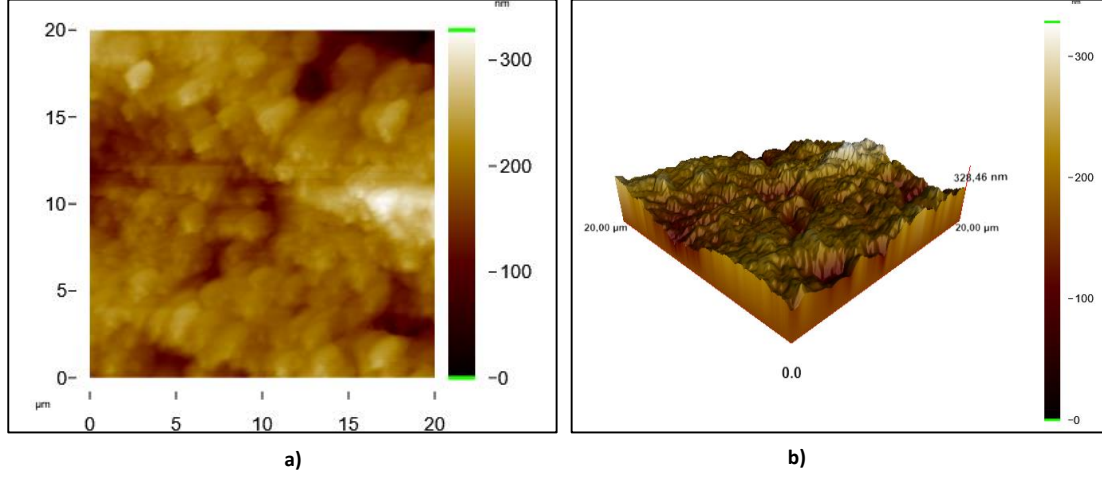
Şekil 2. A ve B grubu numunelerin XRD grafikleri

A ve B grubu numunelerin CIGS katmanı üretilirken cam üzerine kaplanan CIGS ince filmlerin EDS analizi Şekil 3'te verilmiştir. EDS analizi sonuçlarında CIGS dördü bileşiğindeki element oranları Cu, In, Ga, Se için sırasıyla yüzde olarak 14.62, 15.45, 21.25 ve 48.67 olarak bulunmuştur. Aynı üretim parametrelerinde üretim gerçekleştiği için A ve B grubu filmlerde de aynı element oranlarının geçerli olduğu söylenebilir. Element oranları literatürdeki CIGS ince filmlerin yapısal özellikleri üzerine yapılan diğer çalışmalar ile yakınlık göstermektedir [42, 43]. CIGS ince filmler için Ga oranının artması ile beraber ana pik (112) yöneliminin 2θ karşılığının 26° 'den 28° 'ye doğru kaydığı bilinmektedir. XRD sonuçları EDS sonuçlarıyla beraber değerlendirilirse, (112) yönelimindeki pozisyonun daha önceki çalışmalar ile uyumlu olduğu görülmektedir [44].



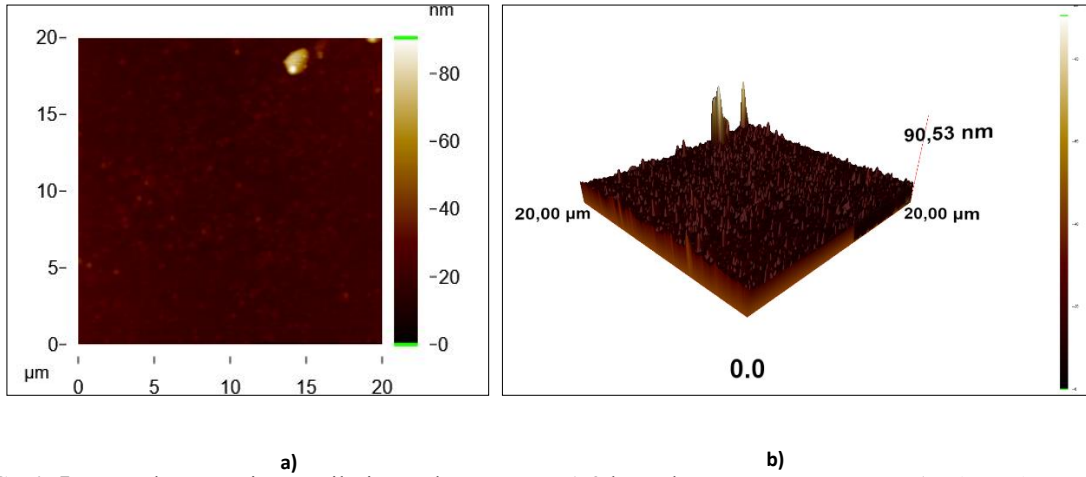
Şekil 3. Cam üzerine kaplanmış CIGS ince filmlerin EDS analizi

A ve B grubu numunelerde kullanılan folyo ve ince film Mo alt katmanların yüzey topoğrafyaları $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ alanlar için AFM cihazı kullanılarak elde edilmiştir. Hazır Mo plakaların 2 ve 3 boyutlu AFM görüntüleri sırasıyla Şekil 4a ve b' de gösterilmektedir. Mo plakaların AFM verileri incelendiğinde ortalama yüzey pürüzlülüğünün 29.20 nm olduğu hesaplanmıştır. Ayrıca Mo plakaların 3 boyutlu AFM görüntüsünden plaka yüzeyince kılcal çiziklerin olduğu görülmektedir.



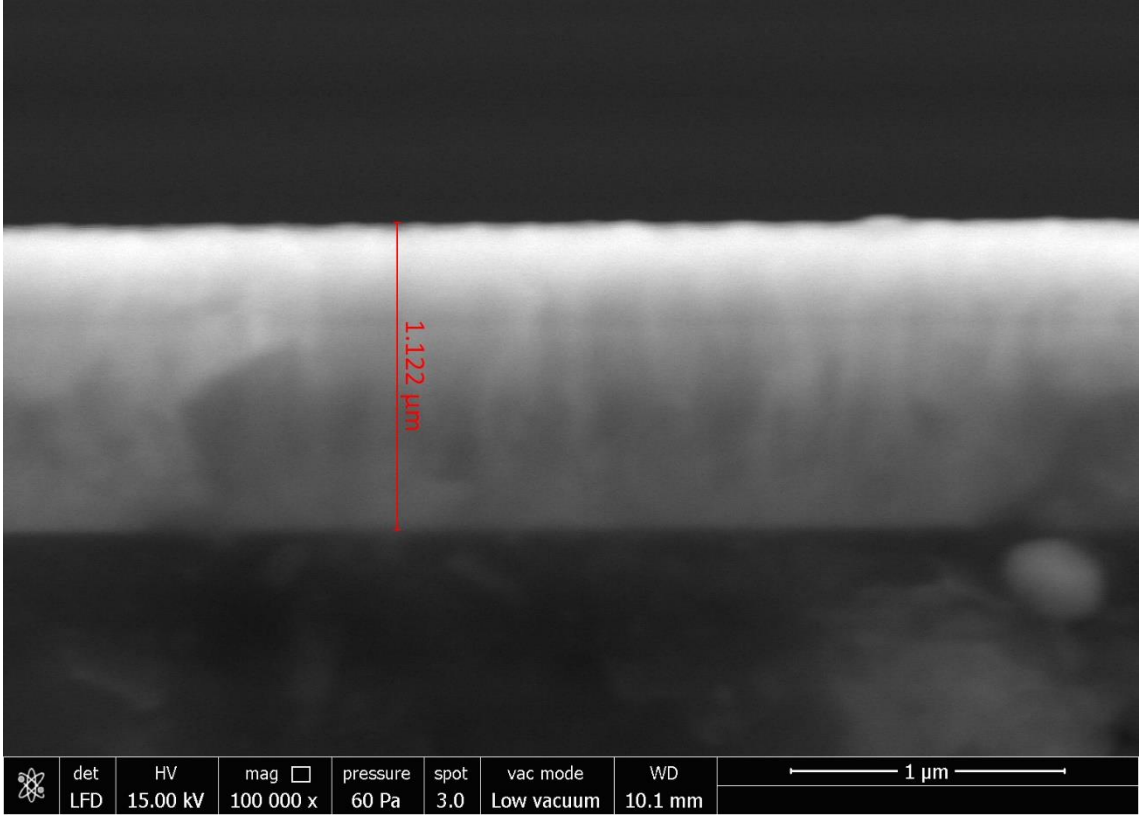
Şekil 4. Mo folyoların a) 2 boyutlu AFM görüntüsü ve b) 3 boyutlu AFM görüntüsü

Cam üzerine kaplanan Mo ince filmlerin 2 ve 3 boyutlu AFM görüntüleri ise sırasıyla Şekil 5a ve b' de verilmiş ve ortalama yüzey pürüzlülüğünün 2,35 nm olduğu belirlenmiş böylece Üretilen Mo ince filmlerin, Mo folyolardan çok daha düşük olduğu tespit edilmiştir.



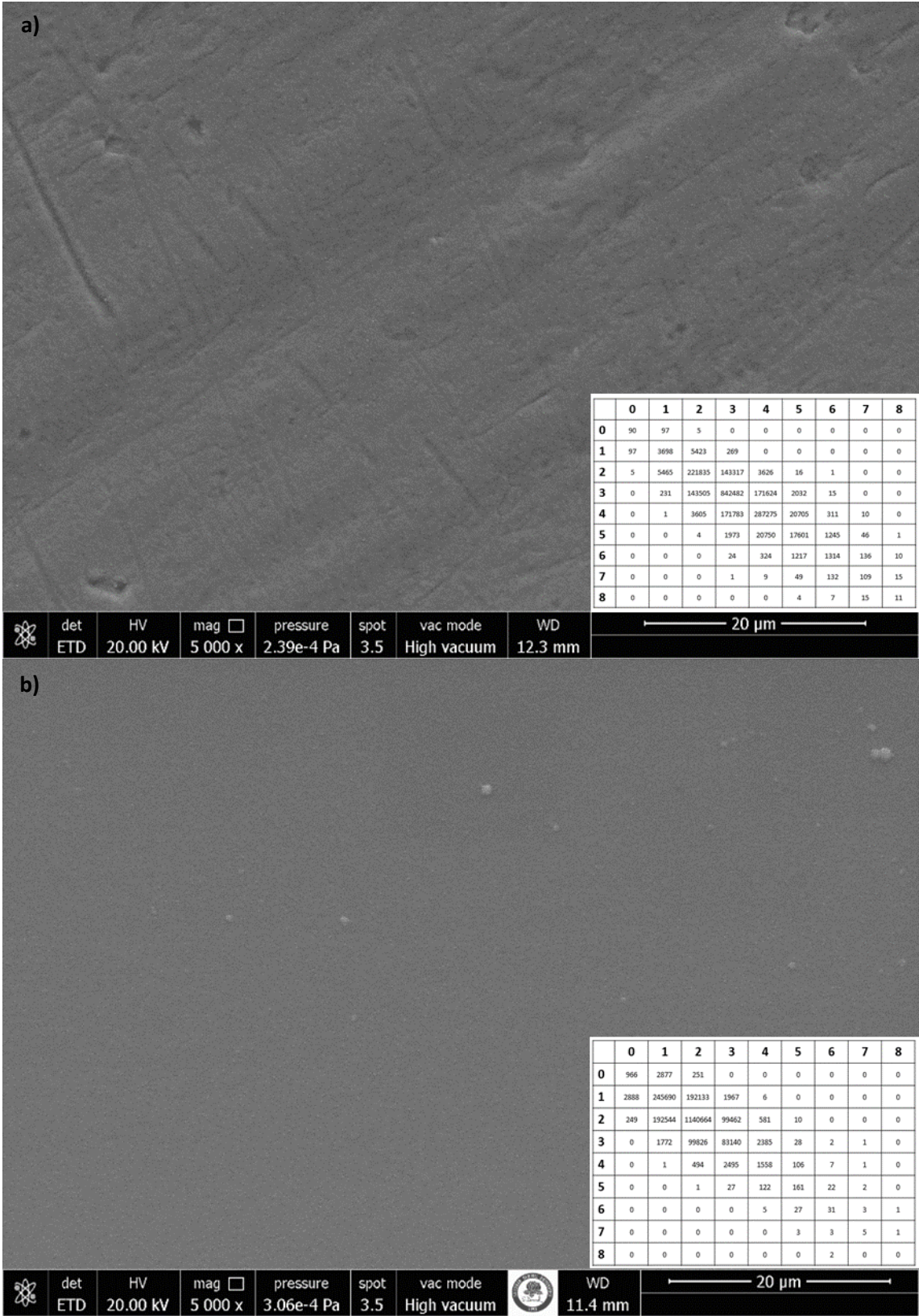
Şekil 5. Cam alttaş üzerine üretilmiş Mo katmanının a) 2 boyutlu AFM görüntüsü ve b) 3 boyutlu AFM görüntüsü

Üretilen CIGS ince filmin kalınlığının belirlenmesi için A ve B grubu ile beraber üretilen cam üzerine üretilen CIGS ince filmin kesitinden SEM görüntüsü alınmış ve Şekil 6' da gösterilmiştir. İncelenen SEM kesit görüntüsünde üretilen CIGS katmanının kalınlığının $1.122 \mu\text{m}$ olduğu belirlenmiştir. Özellikle folyo alttaşlar üzerine biriktirilen ince filmlerde karşılaşılan problemlerin ortadan kaldırılması için, film kalınlığı önemlidir.



Şekil 6. Cam alttaş üzerine üretilmiş CIGS ince filmin kesitinden alınmış SEM görüntüsü

Alt katmanın yüzey pürüzlülüğü ile olan ilişkisini belirlemek amacıyla A ve B grubu CIGS ince filmlerin SEM görüntüleri her iki grup için de 5000, 10000, 25000 ve 50000 büyütmelerde alınmıştır. Görüntülere yapılan büyütmelerde, bir önceki büyütmenin sonucunda elde edilen görüntünün orta bölgesine yakınlaşmıştır. Elde edilen bütün görüntüler 1920×1080 piksel çözünürlükte incelenmiştir. Her piksel için elde edilen sonuçlar gri seviye için 0 ile 8 aralığında toplam 9 değere ayrılarak görüntülerin 9×9 GLCM'leri elde edilmiştir. A ve B grubuna ait numunelerin 5000 büyütmede alınmış SEM görüntüleri ve bu görüntülerden elde edilen 9×9 büyüklüğündeki GLCM'leri sırasıyla Şekil 7a ve b'de gösterilmiştir.



Şekil 7. Mo/CIGS ince filmlerin 5000 büyütmede alınmış SEM görüntüsü ve görüntüden elde edilen 9×9 GLCM matrisleri a) A grubu numuneler ve b) B grubu numuneler

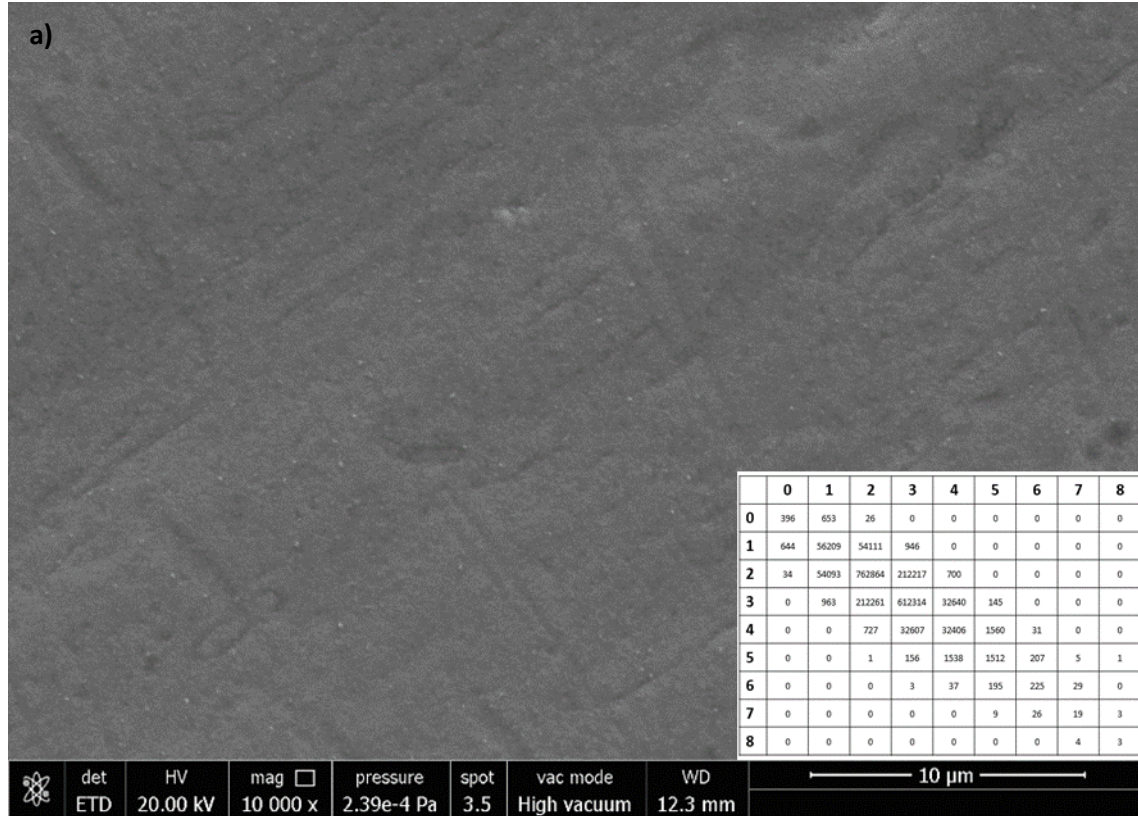
Şekil 7a ve b incelendiği takdirde B grubu numunelere ait SEM görüntülerinin A grubu numunelerden daha pürüzsüz olduğu görülmektedir. Bu sonuç AFM' den elde edilen ortalama yüzey pürüzlülüklerini desteklemektedir. Ayrıca A grubuna ait SEM

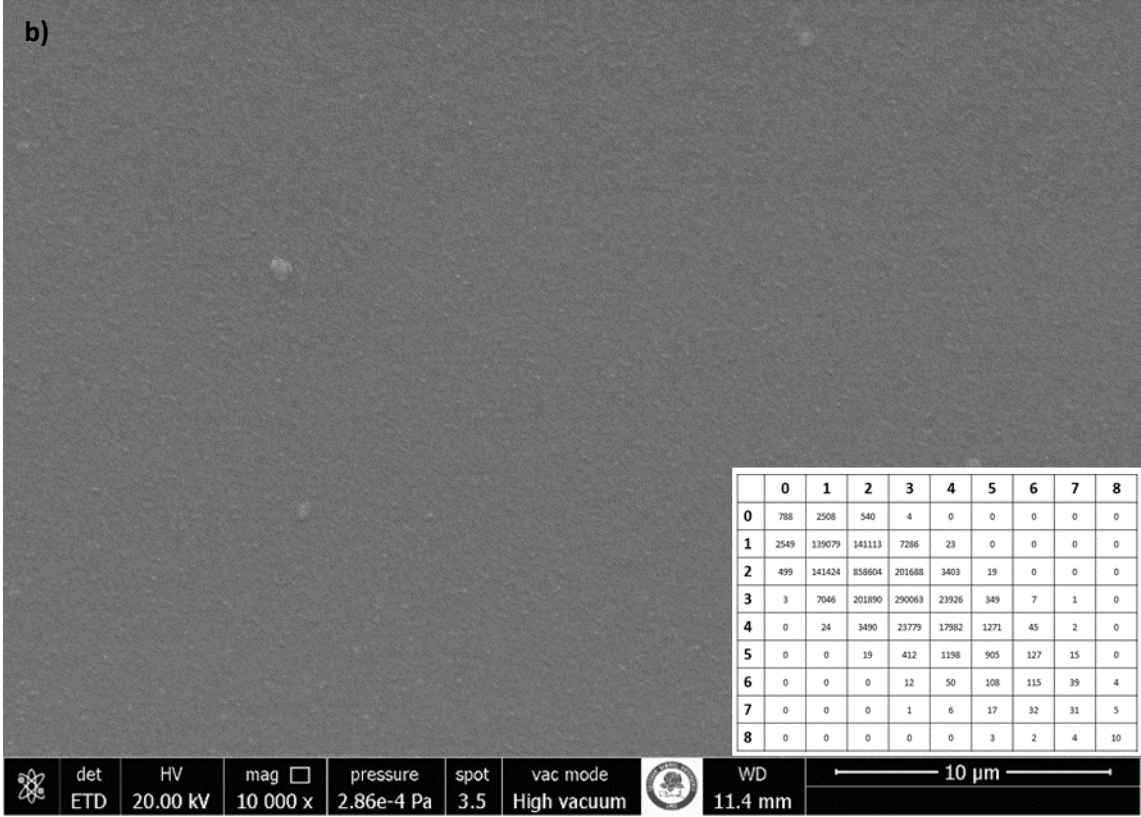
görüntülerinde B grubuna göre yüzeyde kılcal çiziklerin ve görece büyükdeşiklerin olduğu açıkça görülmektedir. Bu yapılar A grubu numunelerde Mo plakaların ortalama pürüzlülüğün fazla olmasına sebep olmaktadır. A ve B grubu numunelerin SEM görüntülerinin 5 farklı Haralick doku özellikleri Tablo 2’de gösterilmiştir.

Tablo 2. A ve B grubu numunelere ait 5000 büyütmede alınmış SEM görüntülerinin Haralick doku özellikleri

Özellik	A Grubu	B Grubu
Enerji	0.219515	0.340433
Karşıtlık	0.355261	0.297539
Korelasyon	0.65947	0.51708
Homojenite	0.829756	0.854391
Entropi	2.73378	2.17657

Tablo 2 incelendiğinde; 5000 büyütmede alınan SEM görüntülerinde A grubu numunelerde enerji (tekdüzelik) seviyesinin daha düşük olduğu görülmektedir. Aynı şekilde gri seviyeler arasında karşıtlık oranının fazla olması A grubu numunelerde açıkça görülmektedir. A grubu numunelerde tekdüzeliğin düşük ve karşıtlığın yüksek olması, SEM görüntülerinde açıkça görülen ve yüzey pürüzlülüğünü artıran çiziklerin varlığından kaynaklandığı düşünülmektedir. Aynı şekilde bu çizikler görüntüdeki piksellerin komşuları ile olan ilişkisinin yakınlığının (korelasyon) yüksek çıkmasına sebep olmaktadır. Çünkü kılcal çiziklerin etrafındaki yakın bölgelerde de renk tonunu koyulaştırdığı görülmektedir. Renk tonundaki bu koyulaşmalar görüntüdeki homojenlik doku özelliğinin B grubuna oranla düşük olmasına sebep olmaktadır. Ayrıca bu çiziklerin Şekil 4a’da rastgele şekilde dağıldığı açıkça görülmekte bu da düzensizliğin (entropi) B grubu numunelere göre fazla olmasına sebep olmaktadır. A ve B grubu numunelerin 10000 büyütmede SEM görüntüleri elde edilmiş ve bu görüntüler ile görüntülerden elde edilen GLCM’ ler sırasıyla Şekil 5a ve b’de gösterilmiştir.





Şekil 8. Mo/CIGS ince filmlerin 10000 büyütmede alınmış SEM görüntüsü ve görüntüden elde edilen 9×9 GLCM matrisleri a) A grubu numuneler ve b) B grubu numuneler

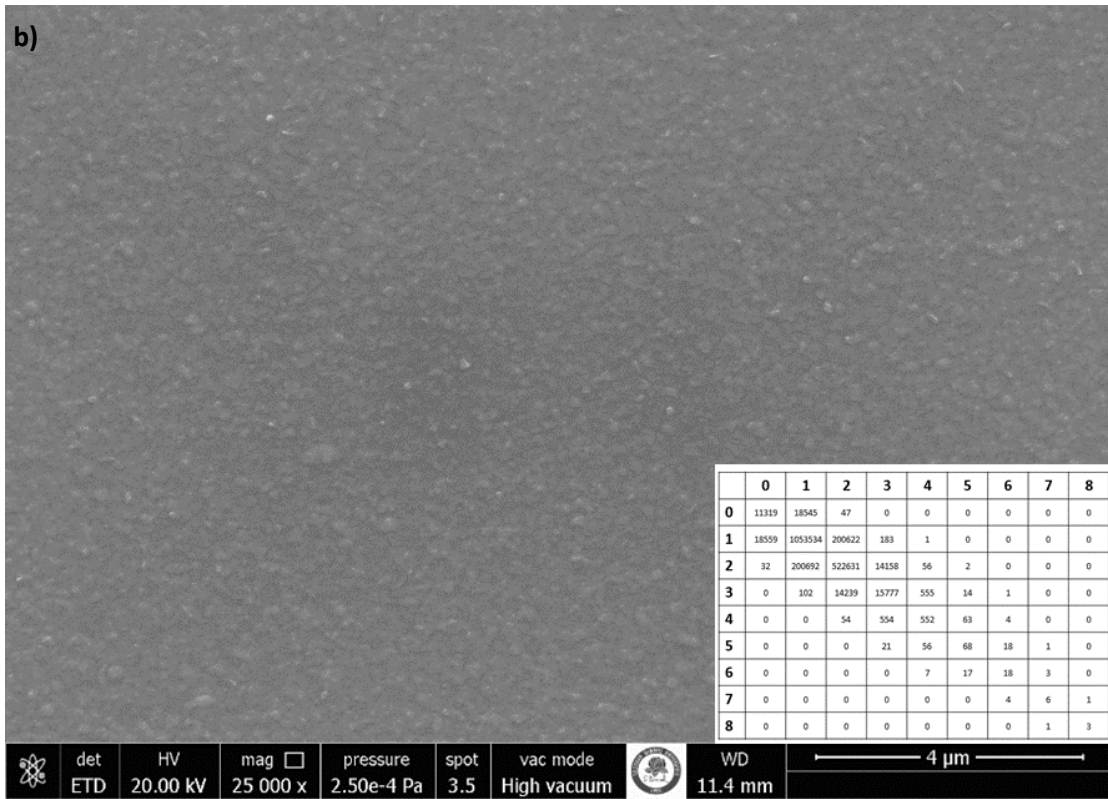
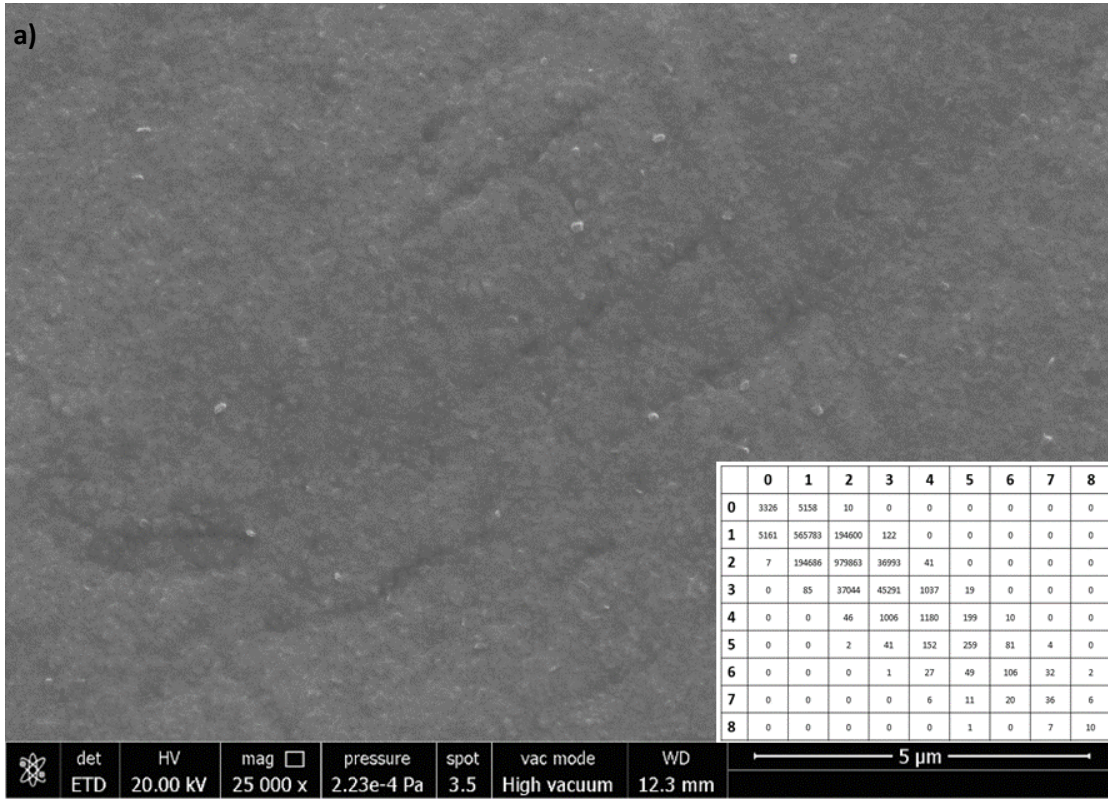
Ortalama yüzey pürüzlülüğü düşük olan Mo katmanını üzerine üretilen CIGS numunelerinin (B grubu) 10000 büyütmede alınan görüntüleri dikkate alındığında yüzeydeki kümelenmelerin belirgin hale gelmeye başladığı görülmektedir. Bununla beraber A grubu numunelerin aynı büyütmede alınan SEM görüntülerinde ise kümelenmeleri görmek için 10000 büyütmenin yeterli olmadığı anlaşılabılır. Bu durumun görüntünün doku özelliklerine etkisini anlamak için Şekil 8’de verilen her iki SEM görüntüsünün de Haralick doku analizleri gerçekleştirilmiş ve Tablo 3’te verilmiştir.

Tablo 3. A ve B grubu numunelere ait 10000 büyütmede alınmış SEM görüntülerinin Haralick doku özellikleri

Özellik	A Grubu	B Grubu
Enerji	0.246589	0.224345
Karşıtlık	0.298163	0.403095
Korelasyon	0.656952	0.580293
Homojenite	0.853115	0.81208
Entropi	2.48064	2.72433

Kümelenmelerin belirgin hale gelmesi ile beraber B grubu numunelerde görüntünün tekdüzeliği A grubu numunelere oranla düşük çıkmaktadır. Ayrıca kümelenmelerin oluşturduğu renk farklılıkları karşıtlık değerinin yüksek olmasına sebep olmuştur. Korelasyon değeri için ise yüzeydeki çiziklerin etkisi 10000 büyütmede kümelenmelerin etkisinden daha fazladır. Bundan dolayı korelasyon değeri B grubu numunelerde 5000 büyütmedeki SEM görüntüsü ile benzer olarak A grubuna göre düşüktür. Homojenlik seviyesi ise kümelenmelerin görülmeye başlaması ile beraber Tablo 2’nin tam tersine A grubuna göre düşüktür. Kümelenmelerin düzensizliği ise çiziklerin düzensizliğinden beklendiği gibi daha fazla olduğu için entropi değeri B grubunda, A grubuna göre daha yüksek çıkmıştır. Şekil 9a ve b’de gösterilen 25000 büyütmede alınmış SEM görüntüleri

incelendiği takdirde A grubu numuneler için film yüzeyindeki kümelenmelerin belirgin hale gelmeye başladığı, B grubu numunelerde ise 10000 büyötmeye göre daha belirgin hale geldiği görölmektedir.



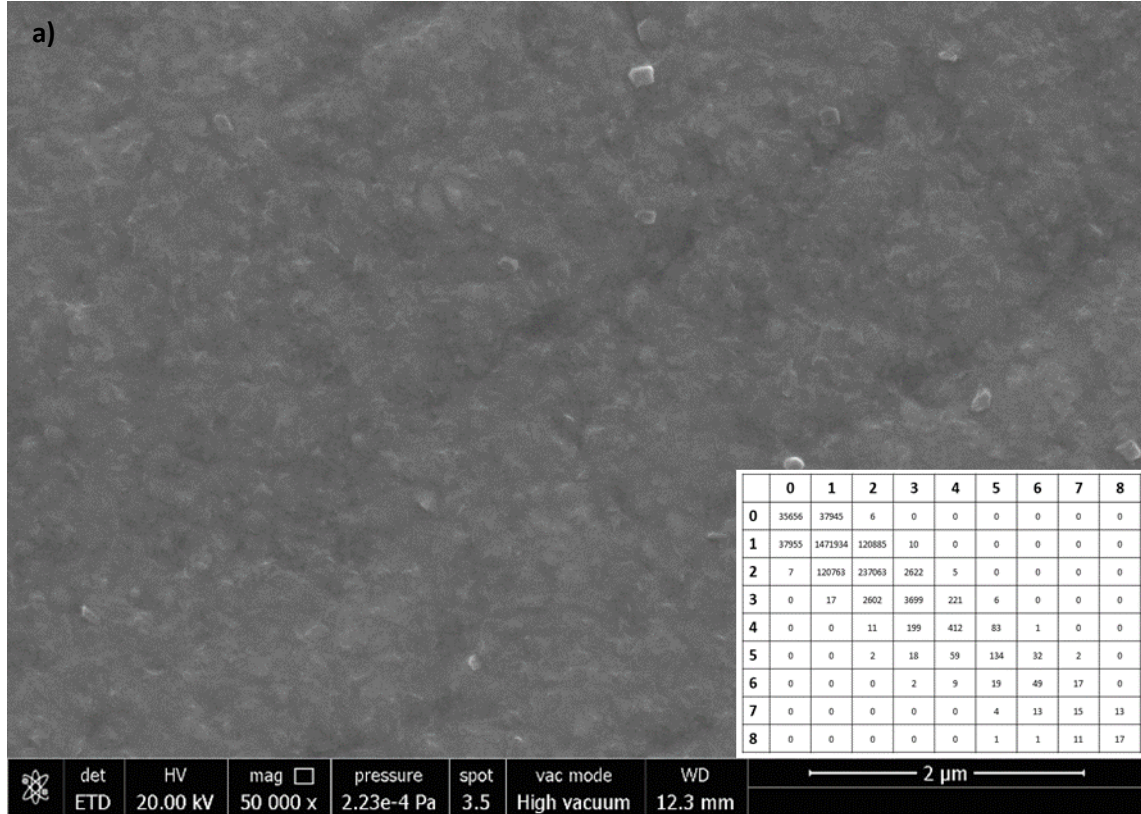
Şekil 9. Mo/CIGS ince filmlerin 25000 büyötmeye alınmış SEM görüntüsü ve görüntüden elde edilen 9×9 GLCM matrisleri a) A grubu numuneler ve b) B grubu numuneler

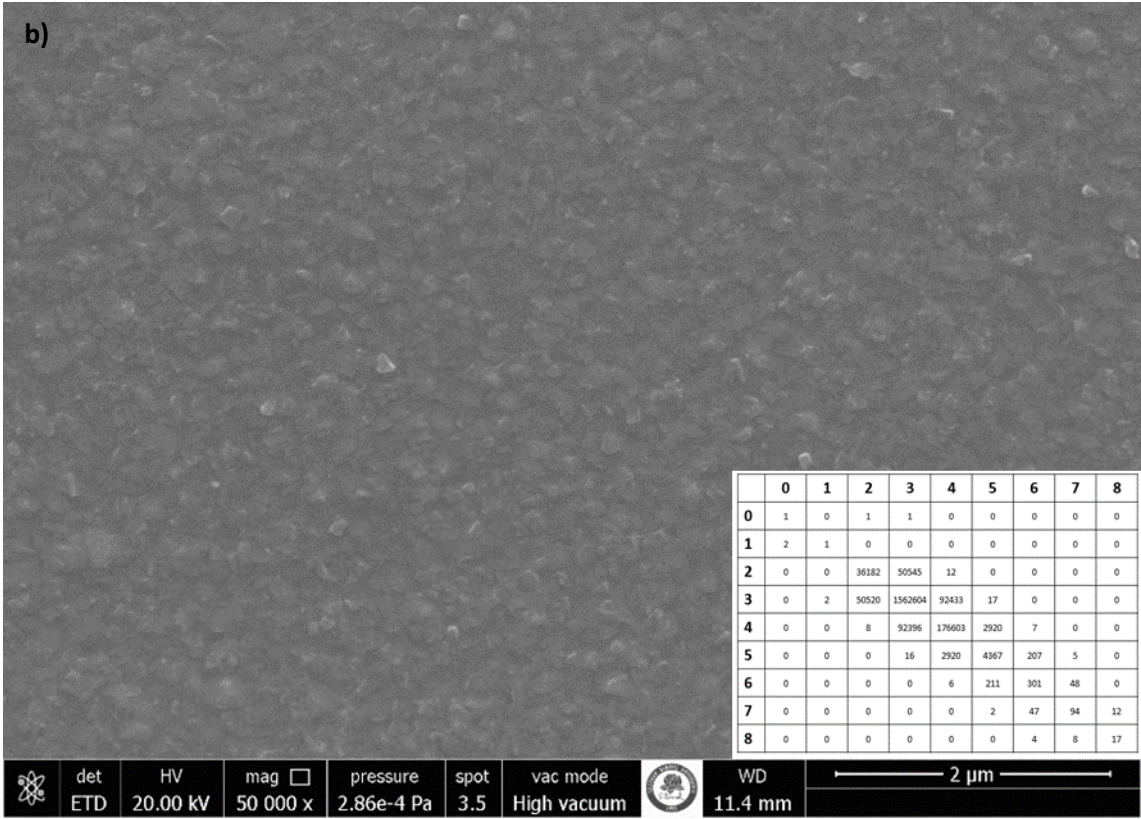
Tablo 4. A ve B grubu numunelere ait 25000 büyütmede alınmış SEM görüntülerinin Haralick doku özellikleri

Özellik	A Grubu	B Grubu
Enerji	0.316825	0.341084
Karşıtlık	0.230647	0.226876
Korelasyon	0.644976	0.618833
Homojenite	0.884939	0.886870
Entropi	2.07587	1.977982

Her iki grup numune için 25000 büyütmede alınmış SEM görüntülerinin Haralick doku özellikleri hesaplanmış ve Tablo 4’de gösterilmiştir. Tablo 4 incelendiğinde, her iki grup için de 10000 büyütme göre daha belirgin hale gelen kümelenmelerin yine görüntüde tekdüzeliği arttırdığı görülmektedir. A grubu numunelerde karşıtlık değeri hem yüzeydeki kılcal çizikler hem de kümelenmelerin görülmeye başlaması ile beraber B grubuna göre daha fazladır. Korelasyon değeri için ise alt katman pürüzlülüğünün etkisi 25000 büyütmede kümelenmelerin etkisinden daha yüksektir. Fakat A grubu numuneler için hem kümelenmelerin belirgin olmaya başlaması ile ortaya çıkan düzensizlik hem de pürüzlülüğün yüksek olmasına sebep olan kılcal çizgilerden kaynaklı düzensizlik görüntünün entropi değerinin daha yüksek çıkmasına sebep olmaktadır.

Şekil 10’da A ve B grubu numunelerin 50000 büyütmede alınmış SEM görüntüleri gösterilmiştir. Her iki numune grubu için kümelenmeler 50000 büyütmede açıkça görülmekte bununla beraber A grubunda Mo levhadan gelen çizikler halen belirginliğini devam ettirmektedir. GLCM matrisleri incelendiğinde ise görüntüdeki koyu bölgeleri temsil eden düşük seviye gri tonların, yüksek seviye gri tonlardan A grubu için belirgin şekilde daha fazla olduğu görülmektedir. Böylece Haralick doku özelliklerine görüntülerdeki çizgilerin doku özelliklerine üzerine kümelenmelerden daha fazla etki ettiği anlamı çıkarılmaktadır.



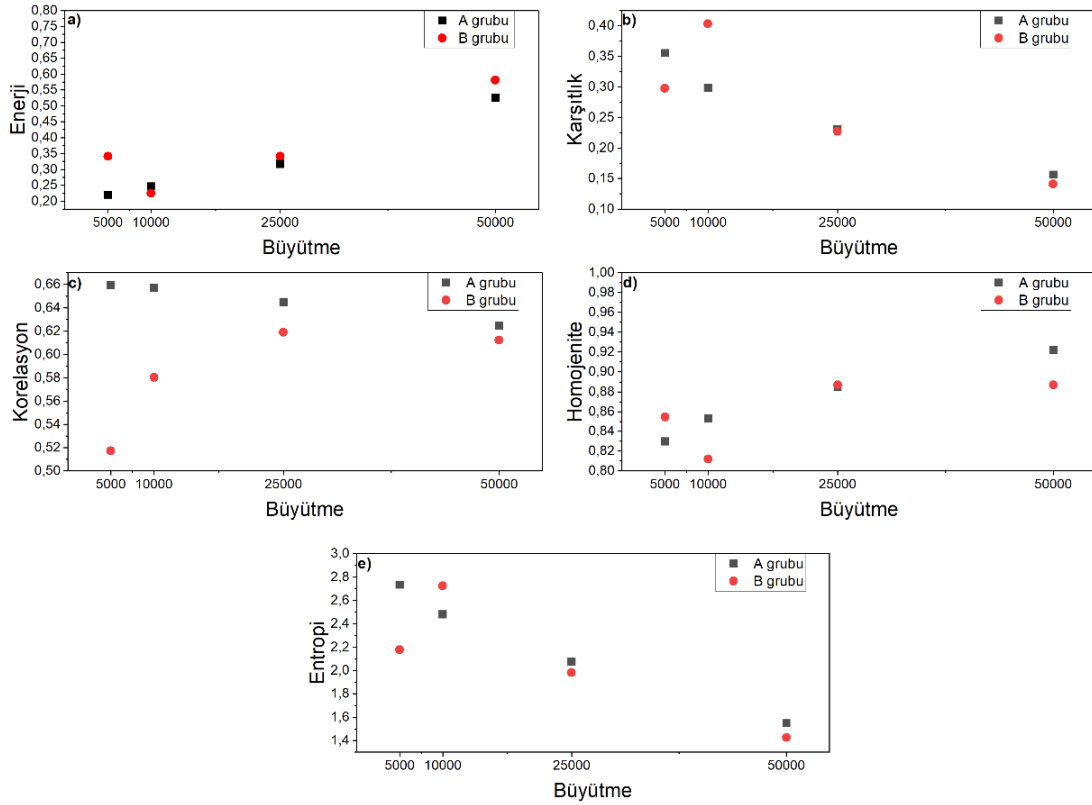


Şekil 10. Mo/CIGS ince filmlerin 50000 büyütmede alınmış SEM görüntüsü ve görüntüden elde edilen 9×9 GLCM matrisleri a) A grubu numuneler ve b) B grubu numuneler

Tablo 5. A ve B grubu numunelere ait 50000 büyütmede alınmış SEM görüntülerinin Haralick doku özellikleri

Özellik	A Grubu	B Grubu
Enerji	0.525258	0.581200
Karşıtlık	0.156269	0.141179
Korelasyon	0.624716	0.612200
Homojenite	0.921930	0.886870
Entropi	1.54866	1.42569

Tablo 5'te verilmiş olan 50000 büyütmedeki Haralick doku özellikleri karşılaştırılırsa, A ve B gruplarından alınan SEM görüntülerinin, 25000 büyütmedeki SEM görüntüleri ile benzer şekilde değiştikleri görülmektedir. A ve B grubu numunelerin SEM görüntülerindeki Haralick doku özelliklerinin farklı büyütmelelerdeki değişimini veren grafikler, enerji, karşıtlık, korelasyon, homojenite ve entropi özellikleri için sırasıyla Şekil 11a, b, c, d ve e'de gösterilmiştir.



Şekil 11. SEM görüntülerinden hesaplanan Haralick doku özelliklerinden a) enerji, b) karşıtlık, c) korelasyon, d) homojenite ve e) entropinin farklı SEM büyütme miktarlarına göre değişim grafikleri

Şekil 8’de verilmiş olan grafikler incelendiği zaman özellikle yüksek büyütme miktarlarında doku özelliklerinin kendi içinde görüntüdeki büyütme miktarına bağlı olarak bir uyum içerisinde değiştiği görülmektedir. Fakat yapılan çalışma kapsamında en küçük büyütme olan 5000 büyütmede B grubu numunelerde alınan SEM görüntülerindeki Haralick doku özelliklerinin A grubu ile karşılaştırıldığı takdirde bu uyumluluğu bozduğu görülmektedir. Bunun sebebinin küçük büyütme miktarlarında kümelenmelerin açıkça görülmemesi fakat yüzey pürüzlülüğünü kılcak çiziklerin küçük büyütme miktarlarında dahi açıkça görülmesi olduğu düşünülmektedir. Ayrıca entropi özelliği ile karşıtlık özelliğinin ve enerji özelliği ile homojenite özelliğinin birbirleri ile benzer uyumluluklarda artış veya azalış gösterdikleri tespit edilmiştir.

4. Sonuç ve Yorum

Yapılan bu çalışmada farklı pürüzlülük seviyelerine ait Mo alttaşlar üzerine aynı üretim parametreleri ile biriktirilmiş CIGS ince filmlerin farklı büyütme miktarlarındaki SEM görüntüleri kullanılarak Haralick doku analizleri gerçekleştirilmiştir. Doku analizi sonuçlarında SEM büyütme miktarı arttıkça enerji, karşıtlık, korelasyon, homojenlik ve entropi değerleri kısmen farklılık gösterebilir de entropi ve karşıtlık özellikleri (büyütme miktarı ile orantılı azalış) ile enerji ve homojenite özelliklerinin (büyütme miktarı ile orantılı artış) birbirleri ile uyumlu olacak şekilde değiştiği belirlenmiştir. Ayrıca film yüzeyindeki kümelenmelerin tam olarak belli olmadığı, yüzey pürüzlülüğü yüksek numunelerin görüntülerinin doku özelliklerinin uyumluluğu bozduğu belirlenmiştir. Bu nedenle sağlıklı morfolojik analiz yapılabilmesi için araştırılan ince filmlerin büyütüldüğü alttaş veya alt katmanların yüzey pürüzlülüklerine bağlı olarak farklı büyütme miktarlarında SEM görüntülerinin alınması gerektiği belirlenmiştir. Ayrıca farklı büyütme miktarlarında alınan SEM görüntülerinin görsel yorumlanmasının ötesinde Haralick doku analizleri ile takip edilebilir kantitatif değerler elde ederek film yüzeyinin genel kalitesinin /homojenliğinin tespit edilebileceği görülmüştür.

Bu çalışmanın devamı olarak planlanan çalışmada seçilecek bir yarıiletken malzeme ile biriktirilmiş ince film yüzeylerinin Haralick doku özellikleri araştırılarak bir veri seti oluşturulacak ve makine öğrenimi yöntemleri kullanılarak ince filmlerin SEM görüntülerinin incelemesi yapılacaktır. Böylece film yüzeyleri hakkında detaylı bilgi edinilerek, üretim parametrelerinin filmlerin yüzey özellikleri üzerine etkisi tespit edilecek ve istenilen yüzey özelliklerinde ince filmlerin üretilebilmesi için bir yaklaşım belirlenmeye çalışılacaktır.

Araştırmacıların Katkı Oranı Beyanı

Celal Alp YAVRU: Metodoloji, Orijinal Taslak Yazımı, Yazılım, Veri İyileştirme

İsmail Serkan ÜNCÜ: Kavramsallaştırma, Denetim/Gözlem/Tavsiye, Metodoloji.

Murat KALELİ: Kaynak/Materyal/Malzeme Temini, Denetim/Gözlem/Tavsiye, Metodoloji.

Salih AKYÜREKLİ: İnceleme ve Düzenleme, Görselleştirme, Veri İyileştirme.

Destek ve Teşekkür Beyanı

Bu makalenin yazarlarından Celal Alp YAVRU' ya 100/2000 Doktora Programı kapsamında destek veren Yükseköğrenim Kurumu (YÖK)' na teşekkür ederiz.

Çatışma Beyanı

“Bu çalışmanın yazarları olarak herhangi bir çatışma beyanımız bulunmadığını bildiririz.”

Kaynakça

- [1] H. Endo, M. Mitsuishi, and T. Miyashita, “Free-standing ultrathin films with universal thickness from nanometer to micrometer by polymer nanosheet assembly,” *J. Mater. Chem.*, 18 (12), 1302–1308, 2008.
- [2] P. Heremans, A. Tripathi, A. de Jamblinne de Meux, C. P. E. Smiths, B. Hou, G. Pourtois, and H. G. Gelinck, “Mechanical and electronic properties of thin-film transistors on plastic, and their integration in flexible electronic applications,” *Adv. Mater.*, 28 (22), 4266–4282, 2016.
- [3] A. Moldovan, M. Enăchescu, A. A. Popescu, M. Mihăilescu, C. Neagu, I. Baschir, G. C. Vasile, D. Savastru, M. S. Iovu, V. I. Verlan, O. T. Bordian, I. M. Vasile, and N. N. Puşcaş, “Characterization of As₂S₃ thin surface films using sem and afm methods,” *U.P.B. Sci. Bull., Series A*, 76 (2), 215-222, 2014
- [4] M. C. Baykul and A. Balcioglu, “AFM and SEM studies of CdS thin films produced by an ultrasonic spray pyrolysis method,” *Microelectron. Eng.*, 52 (1), 703–713, 2000.
- [5] B. R. Kumar ve T. S. Rao, “AFM studies on surface morphology, topography and texture of nanostructured zinc aluminum oxide thin films,” *Dig. J. Nanomater.*, 7 (4), 1881-1889, 2012.
- [6] M. Kaleli, D. A. Aldemir, A. B. Bayram, ve C. A. Yavru, “Ultrasonik sprej piroliz ile üretilen flor katkılı kalay oksit ince filmlerin yapısal, morfolojik, optiksel ve elektriksel analizleri,” *Düzce Üniversitesi Bilim ve Teknoloji Dergisi*, 7 (3), 2107–2115, 2019.
- [7] T. Wada, Y. Hashimoto, S. Nishiwaki, T. Satoh, S. Hayashi, T. Negami, H. Miyake, “High-efficiency CIGS solar cells with modified CIGS surface,” *Sol. Energ. Mat. Sol. C.*, 67 (14), 305–310, 2001.
- [8] T. P. Kumar, S. Saravanakumar, and K. Sankaranarayanan, “Effect of annealing on the surface and band gap alignment of CdZnS thin films,” *Appl. Surf. Sci.*, 257 (6), 1923–1927, 2011.
- [9] N. E. I. Boukourt, S. Patanè, M. Adouane, and R. AlHammadi, “Numerical optimization of ultrathin CIGS solar cells with rear surface passivation,” *Sol. Energy*, 220 (1), 590–597, 2021.
- [10] S. W. Meeks, W. E. Weresin, and H. J. Rosen, “Optical surface analysis of the head-disk-interface of thin film disks,” *Transactions of the ASME*, 117 (1), 112-118, 1995.
- [11] S. Fiat, E. Bacaksiz, M. Kompitsas, and G. Çankaya, “Temperature and tellurium (Te) dependence of electrical characterization and surface properties for a chalcopyrite structured schottky barrier diode,” *J. Alloy. Compd.*, 585 (1), 178–184, 2014.

- [12] S. Aksay, M. Polat, T. Özer, S. Köse, and G. Gürbüz, "Investigations on structural, vibrational, morphological and optical properties of CdS and CdS / Co films by ultrasonic spray pyrolysis," *Appl. Surf. Sci.*, 257 (23), 10072–10077, 2011.
- [13] A. A. Ivanov, S. G. Galkin, A. V. Kuznetsov, and A. P. Menushenkov, "Physica smooth homogeneous HTSC thin films produced by laser deposition with flux separation," *Physica C*, 180 (1), 69-72, 1991.
- [14] V. Smirnov, C. Das, T. Melle, A. Lambertz, M. Hülsbeck, R. Carius and F. Finger, "Improved homogeneity of microcrystalline absorber layer in thin-film silicon tandem solar cells," *Mater. Sci. Eng. B Solid. State. Mater. Adv. Technol.*, 159 (1), 44–47, 2009.
- [15] V. K. Jayaraman, Y. M. Kuwabara, A. M. Álvarez, and M. D. L. L. O. Amador, "Importance of substrate rotation speed on the growth of homogeneous ZnO thin films by reactive sputtering," *Mater. Lett.*, 169 (1), 1–4, 2016.
- [16] E. Manev, R. Tsekov, and B. Radoev, "Effect of thickness non-homogeneity on the kinetic behaviour of microscopic foam films," *J. Dispers. Sci. Technol.*, 18 (6), 769–788, 1997.
- [17] M. Marudachalam, H. Hichri, R. Klenk, R. W. Birkmire, W. N. Shafarman and J. M. Schultz, "Preparation of homogeneous Cu(InGa)Se₂ films by selenization of metal precursors in H₂Se atmosphere", *Appl. Phys. Lett.*, 3978(1995), 23–26, 2013.
- [18] O. Tuna, Y. Selamet, G. Aygun, and L. Ozyuzer, "High quality ITO thin films grown by dc and RF sputtering without oxygen," *Journal of Physics D: Applied Physics*, 43 (1), 1-7, 2010.
- [19] D. H. Kim, M. R. Park, and G. H. Lee, "Preparation of high quality ITO films on a plastic substrate using RF magnetron sputtering," *Surf. Coat. Tech.*, 201 (3), 927–931, 2006.
- [20] J. C. Lee, K. H. Kang, S. K. Kim, K. H. Yoon, I. J. Park, and J. Song, "RF sputter deposition of the high-quality intrinsic and n-type ZnO window layers for Cu(In,Ga)Se based solar cell applications," *Sol. Energ. Mat. Sol. C.*, 64 (1), 185–195, 2000.
- [21] T. Löfstedt, P. Brynolfsson, T. Askund, T. Nyholm, and A. Garpebring, "Gray-level invariant Haralick texture features," *PLoS ONE*, 14 (2), 2019.
- [22] A. Khan, K. Nivana, T. Poonacha, A. Britt, B. Mcsweeney, N. Santos, G. Donovan, V. Yurk, T. Scully, "Statistical Analysis of GLCM texture features and microstructures in SEM images of *crossostrea virginica* exposed to atrazine," *Epic Series in Computing*, 60 (1), 170-180, 2019.
- [23] S. H. Kang, Y. K. Kim, D. S. Choi, and Y. E. Sung, "Characterization of electrodeposited CuInSe₂ (CIS) film," *Electrochim. Acta*, 51 (21), 4433–4438, 2006.
- [24] 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*, 131, 278–284, 2016.
- [25] J. Ramanujam, D. M. Bishop, T. K. Todorov, O. Gunawan, J. Rath, R. Nekovei, and E. Artegiani, "Flexible CIGS, CdTe and a-Si:H based thin film solar cells: A review," *Prog. Mater. Sci.*, 110, 100619, 2020.
- [26] S. V. Desarada, P. U. Londhe, S. Chaure, and N. B. Chaure, "CuInGaSe₂ (CIGS) thin film on flexible Mo substrates from non-aqueous one-step electrodeposition process," *J. Mater. Sci-Mater. El.*, 33 (1,) 203–216, 2022.
- [27] F. Long, W. Wang, J. Du, and Z. Zou, "CIS (CIGS) thin films prepared for solar cells by one-step electrodeposition in alcohol solution," *J. Phys. Conf. Ser.*, 152, 012074, 2009.
- [28] P. A. Jones, A. D. Jackson, P. D. Lickiss, R. D. Pilkington, and R. D. Tomlinson, "The plasma enhanced chemical vapour deposition of CuInSe₂," *Thin Solid Films*, 238 (1), 4–7, 1994.
- [29] M. Kaleli and C. A. Yavru, "Depth profile crystal orientation determination of Cu(In_{1-x}Ga_x)Se₂ thin films by GIXRD method applying skin depth theory," *J. Mater. Sci-Mater. El.*, 30 (22), 20154–20159, 2019.
- [30] M. Katerski, A. Mere, V. Kazlauskine, J. Miskinis, A. Saar, L. Matisen, A. Kikas and M. Krunks, "Surface analysis of spray deposited copper indium disulfide films," *Thin Solid Films*, 516 (20), 7110–7115, 2008.
- [31] 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," *Curr. Appl. Phys.*, 13 (6), 1112–1118, 2013.

- [32] D. A. Aldemir, M. Kaleli, and A. C. Yavru, "Electrical and photoelectric properties of Yb/CIGS thin film Schottky photodiode," *Sensor. Actuat. A Phys.*, 311, 112091, 2020.
- [33] A. Guchhait, H. A. Dewi, S. W. Leow, H. Wang, G. Han, F. B. Suhaimi, S. Mhaisalkar, L. H. Wong and N. Mathews, "Over 20% Efficient CIGS-Perovskite Tandem Solar Cells," *ACS Energy Lett.*, 2 (4), 807–812, 2017.
- [34] T. J. Jacobsson, A. Hulqvist, S. Svanström, 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," *Sol. Energy*, 207 (1), 270–288, 2020.
- [35] W. Z. W. Ismail and K. S. Sim, "Contrast enhancement dynamic histogram equalization for medical image processing application," *Int. J. Imaging. Syst. Technol.*, 21 (3), 280–289, 2011.
- [36] R. M. Haralick, K. Shanmugam, I. Dinstein, "Textural Features for Image Classification", *IEEE T. Syst. Man. Cyb.*, 3(6), 610-321, 1973.
- [37] A. Demirhan ve İ. Güler, "Özörgütlemeli harita ağları ve gri düzey eş oluşum matrisleri ile görüntü bölütleme," *Gazi Üniversitesi Mühendislik ve Mimarlık Fakültesi Dergisi*, 25 (2), 285-291, 2010.
- [38] S. Naghdi, K. Y. Rhee, M. T. Kim, B. Jaleh, and S. J. Park, "Atmospheric chemical vapor deposition of graphene on molybdenum foil at different growth temperatures," *Carbon Lett.*, 18 (1), 37–42, 2016.
- [39] P. Fan, G. X. Liang, Z. H. Zheng, X. M. Cai, and D. P. Zhang, "Adjustment of the selenium amount during ion beam sputtering deposition of CIS thin films," *J. Mater. Sci-Mater. El.*, 21 (9), 897–901, 2010.
- [40] X. Yang, Z. Zhang, Y. Fu, and Q. Li, "Porous hollow carbon spheres decorated with molybdenum diselenide nanosheets as anodes for highly reversible lithium and sodium storage," *Nanoscale*, 7 (22), 10198–10203, 2015.
- [41] M. Kaleli, C. A. Yavru, M. Koç, S. Akyürekli, ve A. B. Bayram, "Termal Buharlaştırma Yöntemiyle Hazırlanan Ga Katkılı CuInSe₂ İnce Filmlerin Yapısal Özelliklerinin İncelenmesi," *Süleyman Demirel Üniversitesi Fen Edebiyat Fakültesi Fen Dergisi*, 12 (2), 19–32, 2017.
- [42] M. Venkatachalam, M. D. Kannan, S. Jayakumar, R. Balasundaraprabhu, and N. Muthukumarasamy, "Effect of annealing on the structural properties of electron beam deposited CIGS thin films," *Thin Solid Films*, 516 (20), 6848–6852, 2008.
- [43] H. Wang, Z. Hang, X. L. Kou, Y. A. Cai, W. Liu, 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," *Semicond. Sci. Technol.*, 25 (5), 055007, 2010.
- [44] D. Y. Lee, S. Park, and J. Kim, "Structural analysis of CIGS film prepared by chemical spray deposition," *Curr. Appl. Phys.*, 11 (1), 88-92, 2011.