

## KARAKTERISASI STRUKTUR DAN SIFAT LISTRIK FILM TIPIS ZINC OXIDE DIDOPING GALLIUM DAN ALUMINIUM

Didik Aryanto<sup>1,3</sup>, Sugianto<sup>2,3</sup>, Putut Marwoto<sup>2,3</sup> dan Sulhadi<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Pusat Penelitian Fisika, Lembaga Ilmu Pengetahuan Indonesia  
Kawasan Puspiptek, Serpong 15314, Tangerang Selatan, Indonesia

<sup>2</sup>Jurusan Fisika, FMIPA, Universitas Negeri Semarang

<sup>3</sup>Materials Research Group, Universitas Negeri Semarang

Gunungpati, Semarang 50229 Jawa Tengah, Indonesia

e-mail: [didik\\_phys@yahoo.co.id](mailto:didik_phys@yahoo.co.id)

Diterima: 11 Nopember 2013

Diperbaiki: 8 Januari 2014

Disetujui: 20 Pebruari 2014

### ABSTRAK

**KARAKTERISASI STRUKTUR DAN SIFAT LISTRIK FILM TIPIS ZINC OXIDE DIDOPING GALLIUM DAN ALUMINIUM.** Film tipis Zinc Oxide (ZnO) yang didoping unsur Gallium (Ga) dan Aluminium (Al) telah ditumbuhkan di atas gelas *corning* menggunakan DC Magnetron Sputtering. Efek dari doping Ga dan Al pada struktur dan sifat listrik film tipis ZnO telah dipelajari menggunakan X-Ray Diffractometer (XRD) dan I-V meter. Karakterisasi XRD menunjukkan bahwa film tipis ZnO murni dan ZnO yang telah didoping memiliki struktur polikristal dengan tipe heksagonal *wurtzite*. Kualitas dari film tipis ZnO meningkat dengan didoping unsur Ga, tetapi menurun ketika didoping unsur Al. Resistivitas dari film tipis ZnO berkurang ketika didoping dengan unsur Ga dan bertambah saat didoping unsur Al. Resistivitas terendah ditunjukkan film tipis ZnO yang didoping Ga (1%) sebesar  $0,209 \times 10^7 \Omega\text{cm}$ .

**Kata kunci:** Film Tipis, ZnO, XRD, Resistivitas

### ABSTRACT

**CHARACTERIZATION OF STRUCTURAL AND ELECTRICAL PROPERTIES OF GALLIUM AND ALUMINIUM DOPED ZINC OXIDE THIN FILM.** Zinc Oxide (ZnO) thin film doped with Gallium (Ga) and Aluminium (Al) element was grown on *corning* glass using DC magnetron sputtering. Effect of Ga and Al doping on the structural and electrical properties was studied using X-Ray Diffractometer (XRD) and I-V meter. X-ray diffraction pattern shows that the undoped-ZnO and doped-ZnO thin film have the polycrystalline with hexagonal *wurtzite* type. The quality of ZnO thin film increases with doping of Ga element, but decreases when was doped with Al element. Resistivity of ZnO thin film decreases when was doped with Ga element and increased when was doped with Al element. The lowest resistivity is showed by ZnO thin film that was doped by Ga (1%) around  $0.209 \times 10^7 \Omega\text{cm}$ .

**Keywords:** Thin film, ZnO, XRD, Resistivity

### PENDAHULUAN

Fabrikasi dan karakterisasi material ZnO murni dan ZnO yang didoping Ga dan Al dengan teknik yang berbeda intensif dipelajari. Hal ini dikarenakan material ZnO murni dan ZnO yang didoping berpotensi dalam aplikasi elektronik dan opto-elektronik. ZnO adalah semikonduktor transparan tipe-n dengan *direct bandgap* 3,37 eV pada suhu ruang dan memiliki energi ikat eksitasi

yang besar (60 meV) [1]. Selain itu, material ZnO mempunyai stabilitas panas besar, sifat kimia stabil dan transmitansi optik yang tinggi pada cahaya tampak [2].

Beberapa dekade terakhir ini, material ZnO dipabrikasi dalam bentuk film tipis yang diaplikasikan sebagai sensor kimia, emiter ultra violet dan transduser piezoelektronik [3]. Selain itu, ZnO dapat dijadikan

material alternatif *Transparent Conductive Oxide* (TCO). Jika dibandingkan dengan TCO berbasis *Indium Thin Oxide* (ITO), TCO berbasis ZnO lebih murah harganya, tidak beracun, dapat difabrikasi pada suhu rendah dan memiliki stabilitas yang baik [4]. Namun, dalam aplikasinya film tipis ZnO murni kurang stabil pada lingkungan korosif, dan memiliki sifat listrik yang kurang baik dikarenakan konsentrasi pembawa yang rendah [5].

Oleh sebab itu, *doping* pengotor pada film tipis ZnO diperlukan untuk meningkatkan struktur, sifat listrik dan sifat optik. Group II dan group III ion logam seperti indium (In), aluminium (Al), galium (Ga) tembaga (Cu), kadmium (Cd) dan yang lainnya digunakan sebagai *doping* untuk meningkatkan struktur, konduktivitas listrik, stabilitas kimia dan transmitansi optik [6]. Unsur Ga dan Al digunakan sebagai *doping* pada penumbuhan film tipis ZnO karena tidak mudah teroksidasi dan memiliki jarak atom yang hampir sama dengan Zn. Selain itu, konduktivitas tipe-*n* dari film tipis ZnO biasa diperoleh dengan *didoping* unsur Al dan Ga.

Pada penelitian ini, efek *doping* Ga (1 % atom) dan Al (1 % atom) pada penumbuhan film tipis ZnO dengan DC *magnetron sputtering* dipelajari. XRD dan IV-meter digunakan untuk mengetahui struktur dan sifat listrik film tipis ZnO yang *didoping* Ga dan Al.

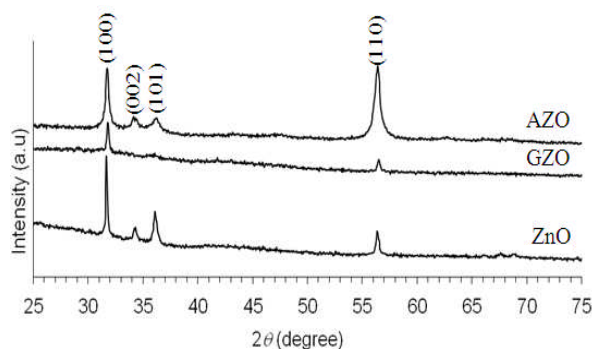
## METODE PERCOBAAN

Film tipis ZnO murni dan film tipis ZnO yang *didoping* Al dan Ga telah ditumbuhkan di atas substrat *corning glass* menggunakan metode *unbalanced dc magnetron sputtering*. Target ZnO murni dibuat dari serbuk ZnO kemurnian tinggi (99,99%), sedangkan target ZnO yang akan *didoping* dibuat dari serbuk ZnO kemurnian tinggi (99,99%) yang *didoping* sesuai jumlah yang diinginkan dengan serbuk  $Al_2O_3$  dan  $Ga_2O_3$  dengan kemurnian tinggi (99,99%). Target berbentuk pelet dengan diameter 3,5 cm.

Pertama kali untuk deposisi, substrat dibersihkan dengan cairan aseton dan metanol menggunakan *ultrasonic bath*, selanjutnya dibilas dengan air demineralisasi dan dikeringkan dengan disemprot oksigen sebelum dimasukkan ke dalam *chamber* reaktor. Selanjutnya, *chamber* vakum dievakuasi ke tekanan dasar penumbuhan yaitu  $1 \times 10^{-4}$  Torr dan tekanan *chamber* pada saat penumbuhan film tipis sekitar 500 mTorr. Film tipis ditumbuhkan pada suhu ruang dengan gas argon kemurnian tinggi (99,999%) sebagai sumber plasma, daya *sputtering* sekitar 32 watt dengan waktu penumbuhan 1 jam. Struktur film tipis ZnO dianalisis dengan XRD Bruker type D8 *Advance system* dengan sumber  $CuK_{\alpha}$  ( $\lambda = 0,1541$  nm). Resistivitas film tipis diukur dengan menggunakan *IV-meter Elkahfi* [7].

## HASIL DAN PEMBAHASAN

Gambar 1 menunjukkan spektrum XRD dari film tipis ZnO murni dan ZnO yang *didoping* dengan unsur Al dan Ga. Seperti ditunjukkan pada gambar, semua film memiliki struktur polikristal dengan tipe heksagonal *wurtzite*. Hasil spektrum XRD dari film tipis ZnO murni terlihat empat puncak difraksi dominan pada orientasi bidang (100), (002), (101) dan (110). Penambahan unsur Ga dan Al pada film tipis ZnO menyebabkan dua puncak difraksi dominan pada orientasi bidang (100) dan (110). Hasil ini mengindikasikan bahwa film memiliki arah orientasi sepanjang sumbu-*a*. Butir kristal lebih dominan tumbuh sejajar dengan permukaan substrat. Hasil yang berbeda ditunjukkan oleh peneliti lain, yang melaporkan bahwa film tipis ZnO yang *didoping* Al dan Ga yang ditumbuhkan dengan *sputtering* memiliki orientasi sepanjang sumbu-*c* [4,8]. Perbedaan arah orientasi kristal disebabkan perbedaan metode dan parameter penumbuhan pada proses deposisi film tipis. Kondisi penumbuhan sangat mempengaruhi proses tumbuhnya film di dalam *sputtering chamber*. Proses nukleasi dari partikel di atas permukaan substrat dipengaruhi oleh perbedaan energi bebas permukaan yang terkumpul pada bidang yang berbeda [9]. Pada penumbuhan film tipis dengan *sputtering*, proses pembentukan kristal sangat erat dipengaruhi oleh suhu, daya plasma, aliran argon dan waktu selama penumbuhan.



**Gambar 1.** Spektrum XRD film tipis ZnO murni, ZnO yang *didoping* Ga (GZO) dan ZnO yang *didoping* Al (AZO).

Perubahan intensitas dan bentuk dari puncak difraksi juga teramati pada Gambar 1, yang menunjukkan perubahan struktur film tipis ZnO ketika *didoping* dengan unsur Ga dan Al. Intensitas puncak bidang (110) meningkat dan puncak bidang (100), (002) dan (101) turun ketika film *didoping* dengan Al. Hasil yang berbeda ditunjukkan film tipis ZnO yang *didoping* Ga yang terjadi penurunan intensitas puncak bidang (100) dan (110) serta tidak terdapat puncak bidang (002) dan (101). Perubahan intensitas puncak difraksi juga diikuti pergeseran sudut  $2\theta$  dari puncak difraksi bidang (100) dan (110) ketika film *didoping* unsur Ga dan Al. Puncak difraksi bidang (100) dan (110) film tipis ZnO yang *didoping* unsur Ga

mengalami pergeseran sudut  $2\theta$  lebih besar dibanding film tipis ZnO yang didoping unsur Al. Pergeseran ke sudut yang lebih besar dikarenakan perbedaan jarak ion dari  $Ga^{3+}$  (0,62 Å),  $Al^{3+}$  (0,54 Å) dan  $Zn^{2+}$  (0,74 Å). Variasi pada nilai  $2\theta$  dari puncak bidang (100) dan (110) dikarenakan ion  $Ga^{3+}$  dan  $Al^{3+}$  menggantikan ion  $Zn^{2+}$  pada struktur film tipis ZnO. Hasil yang sama juga ditunjukkan oleh peneliti sebelumnya [3,5], yang melaporkan bahwa puncak difraksi film tipis ZnO akan bergeser ke sudut yang lebih besar ketika didoping unsur Al dan Ga. Doping unsur Ga dan Al pada film tipis ZnO menyebabkan berkurangnya *d-spacing* dan konstanta kisi pada bidang (100) dan (110) yang dihasilkan, seperti ditunjukkan pada Tabel 1 dan Tabel 2. *d-spacing* dari perbedaan daerah kristal (*h k l*) dihitung menggunakan Persamaan 1 [10], dengan konstanta kisi diperoleh dari Persamaan 2.

$$\frac{1}{d^2} = \frac{4(h^2 + hk + l^2)}{(3a^2)} + \left(\frac{l^2}{c^2}\right) \dots\dots\dots (1)$$

$$a = \frac{\lambda}{\sqrt{3} \sin \theta} \sqrt{h^2 + hk + k^2} \dots\dots\dots (2)$$

Perubahan posisi dan intensitas puncak difraksi juga diikuti perubahan *Full Width Half at Maximum (FWHM)* dari film tipis yang terbentuk (seperti ditunjukkan pada Tabel 1 dan Tabel 2). Lebar *FWHM* menunjukkan kualitas kristal dan perubahan *FWHM* menunjukkan perubahan kualitas kristal dari film tipis ZnO yang terbentuk ketika didoping Al dan Ga. Kualitas kristal yang dideposisikan dengan teknik *sputtering* sangat berkaitan erat dengan perbedaan konstanta kisi antara film tipis dengan substrat. Penambahan doping Al dan Ga pada film tipis ZnO diyakini menyebabkan perubahan perbedaan konstanta kisi antara film dan substrat. Selain itu, penambahan doping Al dan Ga juga mengakibatkan terjadinya *interfacial layer*, cacat kisi dan kekosongan atom [11], sehingga mempengaruhi kualitas kristal film tipis yang terbentuk.

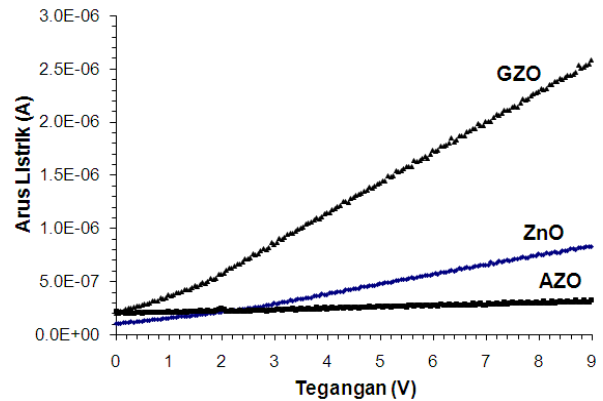
Hasil karakterisasi I-V meter pada suhu ruang dari film tipis ZnO murni, AZO dan GZO ditunjukkan pada Gambar 2.

**Tabel 1.** Parameter karakteristik *d-spacing*, *FWHM*, ukuran kristal, and konstanta kisi dari bidang (100) film

Sampel	$2\theta$ (°)	<i>FWHM</i> (°)	<i>d</i> (Å)	<i>a</i> (Å)
ZnO	31,66	0,16	2,8225	3,2583
GZO	31,77	0,16	2,8163	3,2520
AZO	31,71	0,27	2,8211	3,2575

**Tabel 2.** Parameter karakteristik *d-spacing*, *FWHM*, ukuran kristal, and konstanta kisi dari bidang (110) film

Sampel	$2\theta$ (°)	<i>FWHM</i> (°)	<i>d</i> (Å)	<i>a</i> (Å)
ZnO	56,31	0,28	1,6337	3,2670
GZO	56,37	0,45	1,6325	3,2645
AZO	56,48	0,33	1,6293	3,2586



**Gambar 2.** Karakterisasi I-V dari film tipis ZnO murni, ZnO yang didoping Ga (GZO) dan ZnO yang didoping Al (AZO).

Resistivitas ( $\rho$ ) film tipis ZnO murni ataupun doping Al dan Ga ditentukan berdasarkan kemiringan plot linier dari grafik I-V. Film tipis ZnO murni memiliki resistivitas sebesar  $0,697 \times 10^7 \Omega\text{cm}$ , sedangkan pada film ZnO doping Ga dan Al secara berurutan memiliki resistivitas  $0,209 \times 10^7 \Omega\text{cm}$  dan  $6,280 \times 10^7 \Omega\text{cm}$ . Film tipis ZnO mengalami penurunan resistivitas (konduktivitas meningkat) ketika didoping unsur Ga. Meningkatnya konduktivitas film tipis ZnO yang didoping Ga dikarenakan ion  $Zn^{2+}$  disubstitusi oleh atom trivalent Ga dan setiap atom menghasilkan elektron bebas di pita konduksi, yang hal tersebut menghasilkan peningkatan konsentrasi pembawa. Hasil penelitian yang sama ditunjukkan oleh peneliti sebelumnya [4,12,13], yang melaporkan bahwa doping unsur Ga pada penumbuhan film tipis ZnO dapat meningkatkan konduktivitas.

Hasil yang berbeda didapatkan pada film tipis ZnO yang didoping unsur Al (1 % atom) yang memiliki resistivitas yang lebih besar (konduktivitas menurun) dibanding film tipis ZnO murni dan ZnO didoping Ga seperti ditunjukkan pada Gambar 2. Hasil yang berbeda pada film tipis ZnO doping Al diyakini karena kualitas kristal film tipis menurun ketika didoping unsur Al. Hasil ini diperjelas dari karakterisasi *XRD* seperti ditunjukkan pada Gambar 1, yang memperlihatkan film tipis ZnO doping Al memiliki intensitas puncak difraksi lebih rendah dan *FWHM* yang lebih lebar. Tinggi intensitas puncak difraksi dan lebar *FWHM* menunjukkan kualitas kristal film tipis yang terbentuk. Intensitas puncak dan lebar *FWHM* dari difraksi *XRD* dipengaruhi oleh keseragaman ukuran butir dan cacat kristal pada film tipis. Namun, mobilitas muatan pembawa berkaitan erat dengan kualitas kristal dari film tipis yang terbentuk. Batas butir (*grain boundaries*) dan cacat kristal yang terdapat pada film tipis mempengaruhi hamburan dari muatan pembawa [14].

Hal tersebut konsisten dengan aturan *Matthiessen's* untuk konduktivitas listrik yang mana resistivitas dipengaruhi oleh ketidaksempurnaan dalam kristal, seperti pengotor (*impurity*), kekosongan

(vacancy), batas butir atau dislokasi [15]. Film tipis dengan kualitas kristal yang baik (ukuran butir seragam dan sedikit cacat kristal) memiliki mobilitas yang tinggi dan *scattering carrier* yang rendah sehingga meningkatkan konduktivitas.

## KESIMPULAN

Efek *doping* Ga (1 %atom) dan Al (1 %atom) pada struktur dan sifat listrik film tipis ZnO yang ditumbuhkan di atas *corning glass* menggunakan *unbalanced dc magnetron sputtering* telah dipelajari. Film tipis ZnO murni dan yang *didoping* memiliki struktur polikristal dengan tipe heksagonal *wurtzite*. *Doping* Al dan Ga menyebabkan perubahan kualitas kristal yang terbentuk. Film tipis ZnO yang *didoping* Ga (1 %atom) memiliki struktur kristal dan konduktivitas listrik lebih baik dibandingkan film tipis ZnO murni dan ZnO yang *didoping* Al (1 %atom). Sifat listrik film tipis ZnO murni dan yang *didoping* sangat erat dipengaruhi oleh kualitas kristal film tipis yang terbentuk.

## UCAPAN TERIMAKASIH

Penelitian ini *disupport* oleh kementerian pendidikan Indonesia di bawah Grant No. 028/O06.2/PP/SP/2012. Penulis juga berterimakasih kepada Laboratorium film tipis, Jurusan Fisika, Universitas Negeri Semarang.

## DAFTAR ACUAN

- [1]. V. Tvarozek, I. Novotny, P. Sutta, S. Flickyngerova, K. Schterevea, and E. Vavrinsky. "Influence of sputtering parameters on crystalline structure of ZnO thin films." *Thin Solid Films*, vol.515, pp. 8756-8760, April. 2007.
- [2]. F. Ye, X.-M. Cai, F.-P. Dai, D.-P. Zhang, P. Fan, and L.-J. Liu, "The field emission of indium-doped ZnO films fabricated by room temperature DC magnetron sputtering," *Physica B: Condensed Matter*, vol. 407, no. 1, pp. 64-67, Jan. 2012.
- [3]. X.Y. Li, H.J. Li, Z.J. Wang, H. Xia, Z.Y. Xiong, J.X. Wang, and B.C. Yang, "Effect of substrate temperature on the structural and optical properties of ZnO and Al-doped ZnO thin films prepared by dc magnetron sputtering," *Optics Communications*, vol. 282, no. 2, pp. 247-252, Oktober. 2009.
- [4]. K. U. Sim, S. W. Shin, A. V. Moholkar, J. H. Yun, J.H. Moon, and J. H. Kim. "Effect of dopant (Al, Ga, and In) on the characteristics of ZnO thin film prepared by RF magnetron sputtering system." *Current Applied Physics*, vol. 10, pp. S463-S467, May. 2010.
- [5]. I. A. Buyanova, X. J. Wang, W. M. Wang, C. W. Tu, and W. M. Chen, "Superlattices and Microstructures Effects of Ga doping on optical and structural properties of ZnO epilayers," *Superlattices and Microstructures*, vol. 45, no. 4-5, pp. 413-420, April-May. 2009.
- [6]. V. Khranovskyy, U. Grosser, O. Nilsen, V. Lazorenko, G. V. Lashkarev, B. G. Svensson, and R. Yakimova. "Structural and morphological properties of ZnO:Ga thin films." *Thin Solid Films*, vol. 515, pp. 472-476, October. 2006.
- [7]. Khairurrijal, M. Abdullah, M. M. Munir, A. Surachman, and A. Suhendi. "Low cost and userfriendly electronic components characterization system for undergraduate students." *WSEAS TRANS on Advances in Engineering Education*, vol. 3 pp. 971-976, November. 2006.
- [8]. Y. J. Park, H. N. Kim, and H. H. Shin. "Effect of deposition temperature on the crystallinity of Gadoped ZnO thin films on glass substrates prepared by sputtering method." *Applied Surface Science*, vol. 255, pp. 7532-7536, June. 2009.
- [9]. D. Aryanto, P. Marwoto, E. Sugianto, and Saptaningrum. "Structural analysis of undoped and Aluminium doped ZnO thin film by DC magnetron sputtering." In. *Proc. International Conference on Physics and Applications*. 2012, pp. 29-35.
- [10]. P. P. Sahay and R. K. Nath. "Al-doped ZnO thin film as methanol sensors." *Sensor and Actuator B*, vol. 134, pp. 654-659, September. 2008.
- [11]. B.K. Shin, T.I. Lee, J. P. Kar, M.J. Lee, K.I. Park, K.J. Ahn, K.Y. Yeom, J.H. Cho, and J.M. Myoung. "Effect of deposition power on structural and electrical properties of Al-doped ZnO films using pulsed direct-current magnetron sputtering with single cylindrical target." *Materials Science in Semiconductor Processing*, vol. 14, pp. 23-27, March. 2011.
- [12]. Z.Z. Li, Z.Z. Chen, W. Huang, S.H. Chang, X.M. Ma. "The transparence comparison of Ga- and Al-doped ZnO thin films." *Applied Surface Science*, vol. 257, pp. 8486-8489, August. 2011.
- [13]. X. Z. Qiang, D. Hong, L. Yan, and C. Hang. "Aldoping effects on structure, electrical and optical properties of c-axis-orientated ZnO:Al thin films." *Materials Science in Semiconductor Processing*, vol. 9, pp. 132-135, February-June. 2006.
- [14]. Y.S. Kim, and W.P. Tai. "Electrical and optical properties of Al-doped ZnO thin films by sol-gel process." *Applied Surface Science*, vol. 253, pp. 4911-4916, March. 2007.
- [15]. R. E. Hummel. *Electronic Properties of Materials* 4th Edition. New York: Springer, 2011.