

STUDI KEKRISTALAN $PbZr_xTi_{1-x}O_3$ YANG DISIAPKAN DENGAN PELAPISAN PUTAR (*SPIN COATING*)

Muhammad Hikam¹, Irzaman², Hanedi Darmasetiawan¹ dan Teguh Yogaraksa¹

¹Jurusan Fisika FMIPA Universitas Indonesia
Kampus Baru Depok 16424

²Jurusan Fisika FMIPA Institut Pertanian Bogor
Jl. Raya Pajajaran Bogor

ABSTRAK

STUDI KEKRISTALAN $PbZr_xTi_{1-x}O_3$ YANG DISIAPKAN DENGAN PELAPISAN PUTAR (*SPIN COATING*). Telah dibuat lapisan tipis PZT dengan metode pelapisan putar (*spin coating*), dengan berbagai variasi kecepatan putar, konsentrasi pelarut dan dua macam substrat. Hasil eksperimen menunjukkan peningkatan kecepatan putar (rpm) pada *spin coating* mengakibatkan degradasi kualitas kristal pada pembentukan lapisan tipis khususnya untuk substrat Pt(200)/Si(100); sedangkan pengenceran larutan tidak berpengaruh pada substrat Si(100) namun meningkatkan orientasi dominan (200) pada substrat Pt(200)/Si(100). Semua lapisan tipis yang terbentuk memiliki sistem kristal tetragonal dengan *space group* I4mm.

Kata kunci : $PbZr_xTi_{1-x}O_3$, lapisan tipis, *spin coating*, substrat

ABSTRACT

THE STUDIES OF CRYSTAL STRUCTURE OF $PbZr_xTi_{1-x}O_3$ PREPARED BY SPIN COATING. We have prepared PZT thin film by spin coating method, the quality of the film depends on the angular velocity, the mixture concentration, and the substrats. It was found that the faster of the angular velocity has caused a low quality of the thin film especially for Si(100) substrats, whereas the lower of the mixture concentration had no effect for these substrats but it caused highly (200) preferred orientation for Pt(200)/Si(100) substrats. It was obtained that all the films have tetragonal crystal systems, their space groups are I4mm.

Key words : $PbZr_xTi_{1-x}O_3$, thin film, spin coating, substrate.

PENDAHULUAN

Bahan *pyroelectric* $PbZr_{1-x}Ti_xO_3$ (PZT) sangat potensial sebagai kandidat untuk digunakan sebagai bahan sensor infra merah [1,2,3]. Ada beberapa hal penting yang mendasari pemilihan penelitian bahan ini. Pertama, bahan *pyroelectric* $PbZr_{1-x}Ti_xO_3$ memiliki kepekaan (responsivitas) tinggi terhadap panas dibanding dengan bahan *pyroelectric* lain seperti $LiTaO_3$, $BaSr_{1-x}Ti_xO_3$, GaAs/AlGaAs, MCT (Mercury Cadmium Telenide) dan HgCdTe [4]. Kedua, daerah operasi sensor di sekitar suhu kamar dan pembuatannya dapat dilakukan di laboratorium sederhana karena tidak memerlukan pendinginan (seperti HgCdTe yang memiliki daerah operasi pada suhu nitrogen cair).

Grup peneliti ini telah membuat lapisan tipis PZT dengan metode pelapisan putar (*spin coating*) mengingat metode ini cukup sederhana dan dapat dilakukan pada suhu kamar, namun cukup efektif untuk pembuatan lapisan tipis. Parameter-parameter yang dikontrol dalam penelitian pendahuluan ini adalah kecepatan putar dan konsentrasi pelarut. Pada berbagai kombinasi parameter telah

dilakukan pengukuran pola difraksi sinar-x (XRD) untuk mengetahui jenis kristal lapisan tipis yang telah terbentuk.

BAHAN DAN CARA KERJA

Pembuatan bahan $PbZr_{0,525}Ti_{0,475}O_3$ (PZT) yang berupa *bulk*, bubuk, larutan dan lapisan tipis dipersiapkan di jurusan Fisika FMIPA Universitas Indonesia, Depok. Sementara karakterisasi difraksi sinar-x (XRD) dilakukan dengan mesin *Phillips* yang ada di program studi Ilmu Material Universitas Indonesia, Jl. Salemba 4, Jakarta. Hal yang pertama dilakukan adalah pembuatan *bulk* PZT dengan cara sebagai berikut :

1. Campuran 5,302 gram bubuk lead titanat ($PbTiO_3$, 99 %) dan 6,698 gram bubuk lead zirkonat ($PbZrO_3$, 99,7 %) digerus dalam mortar selama 6 jam, diperoleh 12 gram bubuk $PbZr_{0,525}Ti_{0,475}O_3$.
2. Pelet dibuat dengan tekanan 31,43 MPa selama 15 menit.
3. Pada pelet ini dilakukan proses *sintering* dalam

pemanas pada suhu 850°C selama 10 jam, fungsinya agar terjadi ikatan kimia yang kuat dari bubuk $PbTiO_3$ dan bubuk $PbZrO_3$ untuk diperoleh *bulk* $PbZr_{0,525}Ti_{0,475}O_3$ bermutu baik.

Pembuatan bubuk PZT dilakukan dengan mengerus kembali *bulk* PZT yang telah terbentuk. Adapun bahan larutan 0,5 M dan 0,25 M $PbZr_{0,525}Ti_{0,475}O_3$ (PZT) dipersiapkan dengan dengan langkah-langkah sebagai berikut :

1. Larutan 0,5 M $PbZr_{0,525}Ti_{0,475}O_3$ (PZT) dibuat dalam pelarut metoksietanol, dengan proses 1,83 gram $PbZr_{0,525}Ti_{0,475}O_3$ (0,0025 mol $PbZr_{0,525}Ti_{0,475}O_3$) dilarutkan dalam 5 mL metoksietanol,
2. Larutan 0,25 M $PbZr_{0,525}Ti_{0,475}O_3$ (PZT) dibuat dalam pelarut metoksietanol, dengan proses 0,92 gram $PbZr_{0,525}Ti_{0,475}O_3$ (0,00125 mol $PbZr_{0,525}Ti_{0,475}O_3$) dilarutkan dalam 5 mL metoksietanol,
3. Dilakukan pengadukan dengan ultrasonik Model Branson 1210 selama 30 menit dalam atmosfir udara yang siap untuk melakukan penumbuhan film tipis PZT di atas substrat Si (100) dan Pt (200)/Si (100).

Selanjutnya telah dilakukan pembuatan lapisan tipis PZT dengan langkah-langkah sebagai berikut:

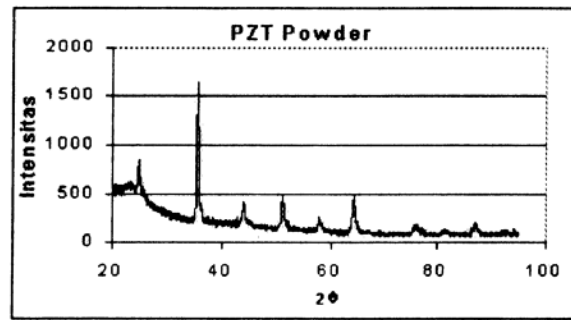
1. Parameter penumbuhan yang dioptimalkan mencakup kecepatan putar, kelarutan bahan, suhu dan lama *annealing* agar diperoleh kualitas kristal film yang baik. Hipotesis yang ada adalah makin tinggi kecepatan putar *spin coating* (dalam rpm) dan makin kecil kelarutan (dalam molar), maka makin tipis ketebalan film yang diperoleh (dalam mikrometer) dan diharapkan dapat dianalisis kualitas film tipis PZT (dengan metode XRD).
2. Dilakukan pembuatan lapisan tipis PZT di atas di atas substrat Si (100) dan Pt (200)/Si (100) dengan metode pelapis putar (*spin coating*) selama 30 detik dalam atmosfir gas nitrogen dengan variasi kecepatan putar (2500 rpm, 3000 rpm dan 3500 rpm) dan kelarutan bahan (0,5 M dan 0,25 M) masing masing dua kali ulangan yang ditabelkan sesuai Tabel 1.
3. Dilakukan proses *annealing* terhadap film dalam Furnace Model Nabertherm S27 pada suhu 750°C selama 3 jam dalam atmosfir gas oksigen (50 sccm). Proses *annealing* ini dimaksudkan agar diperoleh film berkualitas kristal karena terjadinya energi termal pada suhu 750°C untuk membentuk kristal film.
4. Dilakukan proses pengukuran pola difraksi sinar-x (XRD) untuk mengetahui jenis kristal lapisan tipis yang telah terbentuk.

Tabel 1. Perlakuan dan parameter penumbuhan film PZT dengan metoda pelapisan putar

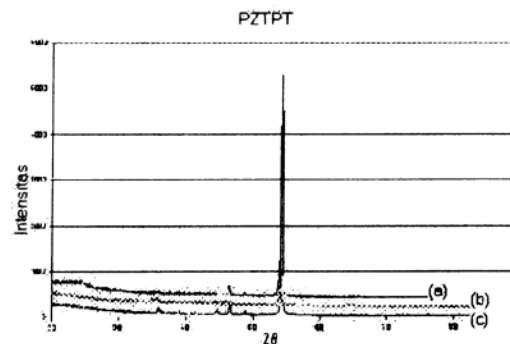
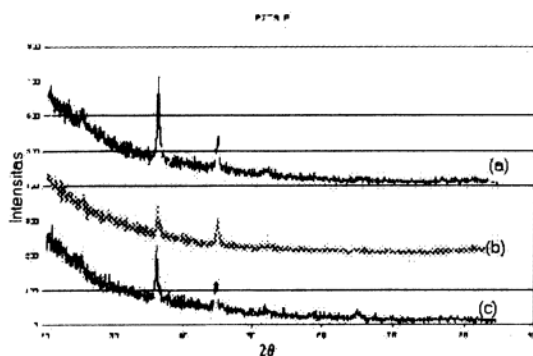
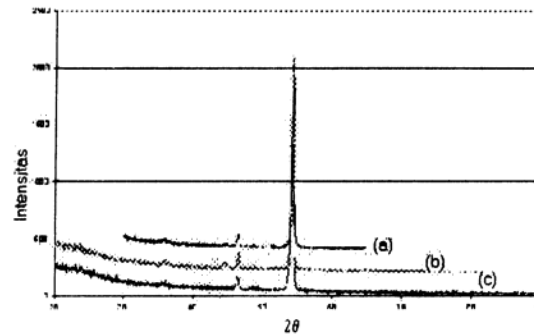
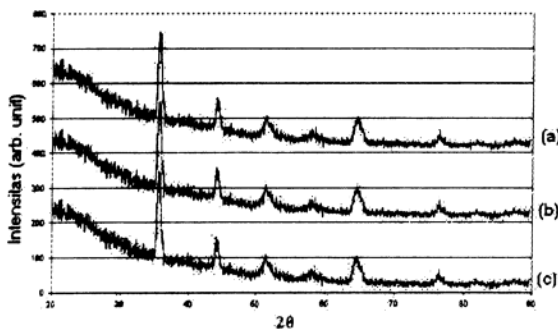
Tahapan				Substrat			
				Si (100)		Pt (200)/Si (100)	
				Kelarutan		Kelarutan	
				0,25 M	0,5 M	0,25 M	0,5 M
Kecepatan putar (rpm)	2500	Ulangan	1	X	X	X	X
			2	X	X	X	X
	3000	Ulangan	1	X	X	X	X
			2	X	X	X	X
	3500	Ulangan	1	X	X	X	X
			2	X	X	X	X

Tabel 2. Sistem penamaan sampel lapisan tipis

Nama	Substrat	Kelarutan	Kecepatan Putar
PZTSI25	Si(100)	0,5 M	2500 rpm
PZTSI30	Si(100)	0,5 M	3000 rpm
PZTSI35	Si(100)	0,5 M	3500 rpm
PZTSIE25	Si(100)	0,25 M	2500 rpm
PZTSIE30	Si(100)	0,25 M	3000 rpm
PZTSIE35	Si(100)	0,25 M	3500 rpm
PZTPT25	Pt(200)/Si(100)	0,5 M	2500 rpm
PZTPT30	Pt(200)/Si(100)	0,5 M	3000 rpm
PZTPT35	Pt(200)/Si(100)	0,5 M	3500 rpm
PZTPTE25	Pt(200)/Si(100)	0,25 M	2500 rpm
PZTPTE30	Pt(200)/Si(100)	0,25 M	3000 rpm
PZTPTE35	Pt(200)/Si(100)	0,25 M	3500 rpm



Gambar 1. PZT bubuk



HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil eksperimen sebagaimana yang diuraikan pada bagian 2 dapat diringkaskan pada Tabel 1 sebagai berikut:

Sesuai dengan hasil percobaan yang telah dilakukan pada Tabel 1, telah dikerjakan analisis lanjut dengan peralatan difraksi sinar-x (XRD) dengan metode *Bragg-Bentano*. Namun terlebih dahulu dicoba PZT dalam bentuk *powder* (bubuk), hasil pola difraksi pada Gambar 1. Selanjutnya dilakukan pengukuran serupa untuk lapisan tipis PZT dengan pengkodean sesuai Tabel 2.

Pola difraksi sinar-x untuk lapisan tipis PZT dapat dilihat masing-masing pada Gambar 2 sampai Gambar 5. Semua pola difraksi menunjukkan bahwa lapisan tipis yang dibuat dengan pelapis putar telah terbentuk, namun

dengan berbagai kualitas. Apabila dibandingkan dengan *data base* PDF-ICDD[5] ternyata telah terbentuk sistem kristal tetragonal, *space group* $I4mm$. Hasil perhitungan parameter kisi untuk bubuk: $a = (4,122 \pm 0,020) \text{ \AA}$ and $c = (4,079 \pm 0,223) \text{ \AA}$, yang tidak jauh berbeda dengan hasil PDF-ICDD yakni $a = 4,036 \text{ \AA}$ dan $c = 4,146 \text{ \AA}$. Hasil perhitungan ini juga tidak jauh berbeda ketika dicek ulang dengan analisis *Rietveld* melalui program GSAS (*General Structure Analysis System*)[6]. Diskusi variasi parameter kisi lapisan tipis bukan bubuk telah dibahas dalam paper kami yang lain[7], namun variasi parameter ini belum diteliti lebih lanjut dengan Analisis *Rietveld*.

Dari hasil pola difraksi dan diskusi pada paper [7] tampak bahwa pada *substrat* Si(100) pola difraksi PZT menyerupai bubuk, berarti telah terbentuk polikristal berorientasi acak, namun pada *substrat* Pt(200)/Si(100)

pola difraksi menunjukkan orientasi dominan (*preferred orientation*) pada bidang 200 (Gambar 3 dan Gambar 5).

Tinjauan tentang efek kecepatan putar pada Gambar 2 dan Gambar 4, pola difraksi keenam sampel dengan substrat Si (100) tidak menunjukkan perbedaan yang signifikan efek kecepatan putar ini, namun apabila diamati secara lebih dekat terdapat indikasi bahwa semakin tinggi kecepatan putar, intensitas relatif pola XRD sedikit berkurang. Hal yang serupa juga terjadi pada pola difraksi PZT dengan substrat Pt(200)/Si(100) (Gambar 3 dan Gambar 5).

Sementara itu tidak ada perbedaan menyolok pola difraksi pada substrat Si(100) akibat pengenceran larutan, namun tampak jelas pada substrat Pt(200)/Si(100) kekristalan mengarah pada suatu orientasi dominan tertentu akibat pengenceran larutan.

KESIMPULAN

Dari hasil dan pembahasan mengenai pembuatan dan proses identifikasi lapisan tipis PZT, dapat disimpulkan bahwa:

1. Lapisan tipis kristal PZT telah terbentuk baik dengan substrat Si(100) maupun Pt(200)/Si(100)
2. Pembentukan kristal lapisan tipis dengan substrat Si(100) merupakan polikristal dengan arah orientasi acak sementara substrat Pt(200)/Si(100) menunjukkan suatu arah orientasi dominan (*preferred orientation*) tertentu.
3. Peningkatan kecepatan putar (rpm) pada *spin coating* secara umum mengakibatkan degradasi pada pembentukan lapisan tipis
4. Pengenceran larutan menghasilkan kekristalan lapisan tipis menjadi kurang baik pada substrat Si(100), namun mengakibatkan kenaikan orientasi dominan pada substrat Pt(200)/Si(100)

UCAPAN TERIMA KASIH

Kami mengucapkan banyak terima kasih kepada Kementerian Riset Dan Teknologi dan Lembaga Ilmu Pengetahuan Indonesia yang telah mengalokasikan dana untuk penelitian ini melalui RUT IX dengan nomor kontrak 097-10/SK/RUT/2002.

DAFTAR ACUAN

- [1]. KIM, J.H. and F.F. LANGE. Epitaxial Growth of $PbZr_{0.5}Ti_{0.5}O_3$ Thin Films on (001) $LaAlO_3$ by The Chemical Solution Deposition Method. *J. Mater. Res.*, **14** (10), (1999) 4004 – 4010
- [2]. CHUNG, S.O, H.C. LEE and W.J. LEE. Effect of Electrodes on The Electric Properties PZT Film Deposited by Electron Cyclotron Resonance Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition. *Jpn. J. Appl. Phys.* **39** (3A), (2000) 1203 – 1209

- [3] SAKAI, K. Preparation and Characteristic of PZT Thin Films on $CeO_2(111)/Si(111)$ Structures. *Jpn. J. Appl. Phys.* **35** (9B), (1996) 4987 – 4990
- [4] FRADEN, J. *Handbook of Modern Sensors : Physics, Designs and Applications*. Springer-Verlag New York, Second Edition (1996).
- [5] PDF-ICDD (Powder Diffraction File, International Centre for Diffraction Data) database, 1998 (CD-ROM)
- [6] ALLEN, L. C. and VON DREELE B. R., *GSAS – General Structure Analysis System*, Lamsce, Ms-H805, Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, NM 87545, 1985-1998.
- [7] H. DARMASETIAWAN, IRZAMAN, MHIKAM dan T. YOGARAKSA, Effect of Angular Velocity for Growing Lead Zirconium Titanate (PZT) Thin Films on Si (100) and Si(100)/Pt (200) Substrates Using Chemical Solution Deposition (CSD) Method, *Seminar Nasional Keramik, Balai Besar Industri Keramik*, (2002)