

## ANALISIS STRUKTUR KRISTAL LAPISAN TIPIS $BaZr_{0,2}Ti_{0,8}O_3$ YANG DITUMBUHKAN DENGAN METODE SOL GEL

Yofentina I.<sup>1</sup>, Viska I.V.<sup>1</sup>, M. Hikam<sup>2</sup>, Bambang S.<sup>2</sup>, Alfian M.<sup>1</sup> dan Wahyu P<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Jurusan Fisika FMIPA - Universitas Sebelas Maret

Jl. Ir.Sutami 36A, Surakarta

<sup>2</sup>Departemen Fisika FMIPA - UI

Kampus UI, Depok 16424

e-mail: yopen\_2005@yahoo.com

### ABSTRAK

**ANALISIS STRUKTUR KRISTAL LAPISAN TIPIS  $BaZr_{0,2}Ti_{0,8}O_3$  YANG DITUMBUHKAN DENGAN METODE SOL GEL.** Penumbuhan lapisan tipis  $BaZr_{0,2}Ti_{0,8}O_3$  menggunakan metode sol gel yang disiapkan dengan *spin coater* telah berhasil ditumbuhkan di atas substrat Si. Barium asetat, zirconium isoproponol, titanium isopropoksida digunakan sebagai bahan pembuat BZT dan asam asetat serta etilen glicol digunakan sebagai pelarut. Ada tiga prinsip dasar pembentukan lapisan tipis menggunakan metode sol gel yaitu proses kimia (pembuatan larutan), penumbuhan lapisan menggunakan *spin coater*, dan proses termal (*annealing*). Variasi jumlah lapis dilakukan untuk mendapatkan lapisan yang diinginkan. Sedangkan kecepatan dan waktu putar, suhu *annealing*, waktu *annealing* dibuat sama yaitu 3000 rpm selama 30 detik dengan 800 °C selama 3 jam. Karakterisasi yang dilakukan meliputi uji menggunakan alat X-Ray Fluorescence (XRF) untuk mengetahui komposisi lapisan tipis BZT dan X-Ray Diffraction (XRD) untuk mengetahui struktur kristal. Hasil karakterisasi menggunakan XRF menunjukkan bahwa unsur-unsur pembentuk BZT telah terdeposit di atas substrat Si. Makin banyak jumlah lapisan maka makin banyak unsur-unsur pembentuk BZT. Hasil karakterisasi menggunakan XRD menunjukkan kekristalan lapisan tipis BZT. Hal ini ditunjukkan dengan munculnya beberapa puncak yang teridentifikasi sebagai milik BZT setelah dicocokkan dengan ICDD database. Hal ini diperkuat dengan penghalusan menggunakan program General Structure Analysis System (GSAS). Makin banyak jumlah lapis makin tinggi intensitas pada suatu orientasi bidang tertentu.

**Kata kunci :** Sol gel, BZT, XRD, XRF, GSAS

### ABSTRACT

**ANALYSIS CRYSTAL STRUCTURE OF THIN FILMS  $BaZr_{0,2}Ti_{0,8}O_3$  WHICH HAVE DEPOSITED BY SOL GEL METHOD.** Fabrication of  $BaZr_{0,2}Ti_{0,8}O_3$  thin film on Si substrate by sol gel method use spin coater has been done successfully. Barium asetat, zirconium isoproponol, titanium isopropoksida were used as deposition components BZT thin film. Asetat acid and etylen glycol were used as solvent. There are three basic principles of thin film fabrication by sol gel method, i.e. chemical process (Solvent fabrication), thin film deposition use spin coater, and thermal process (annealing). The layers number variation has done to get layer which become target in this research. Speed and duration of spin coater rotation were set at 3000 rpm for 30 seconds, while annealing temperature and duration were set in 8000 °C for 3 hours. Characterization that we have done i.e. X-Ray Fluorescence (XRF) test to observe the composition of thin film BZT and X-Ray Diffraction (XRD) test to observe crystal structure. The XRF characterization results show that deposition components of BZT thin film have deposited on Si substrate. The implication of more layers number which have formed is more components BZT thin film which have deposited. The XRD characterizations results show that crystallinity of BZT thin film because raise some peaks which have been cross check by ICDD database and conclude that the owner of some peaks is BZT. The conclusions have strength by smoothing results by General Structure Analysis System (GSAS) software. The implication of more layers number is more high intensity on certain oriented plane.

**Key wods:** Sol gel, BZT, XRD, XRF, GSAS

## PENDAHULUAN

Perkembangan penelitian tentang penumbuhan lapisan tipis semakin. Hal ini juga terjadi pada kegunaannya sebagai piranti elektronika. Lapisan dikatakan lapisan tipis jika mempunyai ketebalan yang berkisar antara orde  $10^{-6}$  meter sampai dengan orde  $10^{-9}$  meter sehingga ketebalan lapisan ini tidak dapat dilihat dengan mata biasa. Lapisan tipis feroelektrik merupakan salah satu kandidat yang sangat baik untuk digunakan pada aplikasi bidang elektronika. Feroelektrik merupakan material elektronik khususnya material dielektrik yang terpolarisasi spontan dan memiliki kemampuan untuk mengubah arah listrik internalnya. Polarisasi yang terjadi merupakan hasil dari penerapan medan yang mengakibatkan adanya ketidaksimetrisan struktur kristal pada material feroelektrik.

Barium zirconium titanat atau  $BaZrTiO_3$  (*BZT*) merupakan salah satu komposisi penting untuk dielektrik dalam *multi layer capacitor* (*MLC*). Peningkatan perbandingan Zr sampai 25 % dalam *BZT* akan muncul sifat relaxor yang kuat dan suhu *Curie* ( $T_c$ ) menjadi lebih rendah [1]. Barium zirconium titanat biasanya diperoleh dengan menggantikan ion di posisi B dari struktur *perovskite*  $ABO_3$  atau Ti dalam senyawa  $BaTiO_3$  dengan Zr. Hal ini dimungkinkan karena ion  $Zr^{4+}$  memiliki ukuran ion yang lebih besar (0,087 nm) dari  $Ti^{4+}$  yang hanya (0,068 nm). Barium zirconium titanat adalah alternatif pengganti yang mungkin untuk BST dalam fabrikasi kapasitor keramik karena  $Zr^{4+}$  secara kimiawi lebih stabil dari  $Ti^{4+}$  [2].

Penumbuhan lapisan tipis *BZT* ada berbagai jenis diantaranya *Metalorganic Chemical Vapor Deposition* (*MOCVD*) [3], *Pulsed Laser Deposition* atau (*PLD*) [4], *Radio-Frequency Magnetron Sputtering* [5] dan *Chemical Solution Deposition*, atau metode sol gel dan disiapkan dengan *spin coating* [6]. Pada makalah ini penumbuhan lapisan tipis *BZT* menggunakan metode *sol gel* yang disiapkan dengan *spin coater* dengan variasi jumlah lapis yaitu 5 lapis, 10 lapis, dan 15 lapis. Lapisan tipis *BZT* kemudian dikarakterisasi menggunakan *X-Ray Fluorescence* (*XRF*) untuk mengetahui komposisi lapisan tipis dan *X-Ray Diffraction* (*XRD*) untuk mengetahui struktur kristal lapisan yang selanjutnya dihaluskan menggunakan *software EXPGUI GSAS*.

## METODE PERCOBAAN

Bahan-bahan yang digunakan pada penelitian ini adalah barium asetat, zirconium isopropanol, titanium isopropoxide. Bahan pelarut yang digunakan adalah asam asetat dan *ethylene glycol*. Metode sol gel yang digunakan pada penumbuhan lapisan tipis *BZT* yang disiapkan dengan *spin coater*. Ada tiga hal yang mendasar pada metode ini yaitu pembuatan larutan (proses kimia), proses penumbuhan lapisan tipis dengan metode *spin coating* serta termal proses (*annealing*).



Gambar 1. Diagram alir penelitian

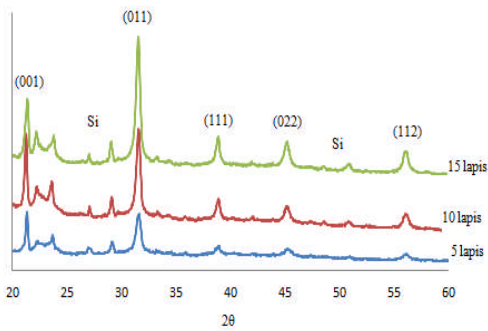
Larutan *BZT* dibuat dengan 0,5 M. Jumlah lapis divariasikan dengan kecepatan 3000 rpm selama 30 detik dan dipanaskan pada suhu 800 °C selama 3 jam. Lapisan tipis *BZT* yang terbentuk di atas substrat Si kemudian dikarakterisasi menggunakan *XRF* untuk mengetahui komposisinya dan *XRD* untuk mengetahui struktur kristal. Selanjutnya *data raw* dari karakterisasi menggunakan *XRD* dihaluskan menggunakan *software EXPGUI GSAS* untuk mengetahui apakah puncak-puncak yang muncul milik *BZT*. Bagan penelitian secara terperinci seperti disajikan pada Gambar 1.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

Variasi jumlah lapis dibuat adalah 5 lapis, 10 lapis, dan 15 lapis yang dipanaskan menggunakan *furnace* dengan suhu *annealing* tetap yaitu 800 °C selama 3 jam. Lapisan tipis *BZT* yang ditumbuhkan dengan metode sol gel yang disiapkan dengan *spin coater* di atas substrat Si dikarakterisasi menggunakan *XRF* untuk mengetahui komposisi lapisan tipis. Pada Tabel 1 adalah

Tabel 1. Hasil *XRF* (wt%) lapisan tipis *BZT* untuk variasi jumlah lapis

3000 rpm	Unsur			
	Si	Ba	Zr	Ti
5 lapis	83,1131	12,1608	0,0324	4,6937
10 lapis	55,7490	31,0885	0,0778	13,0847
15 lapis	30,8191	48,1145	0,1816	20,8849



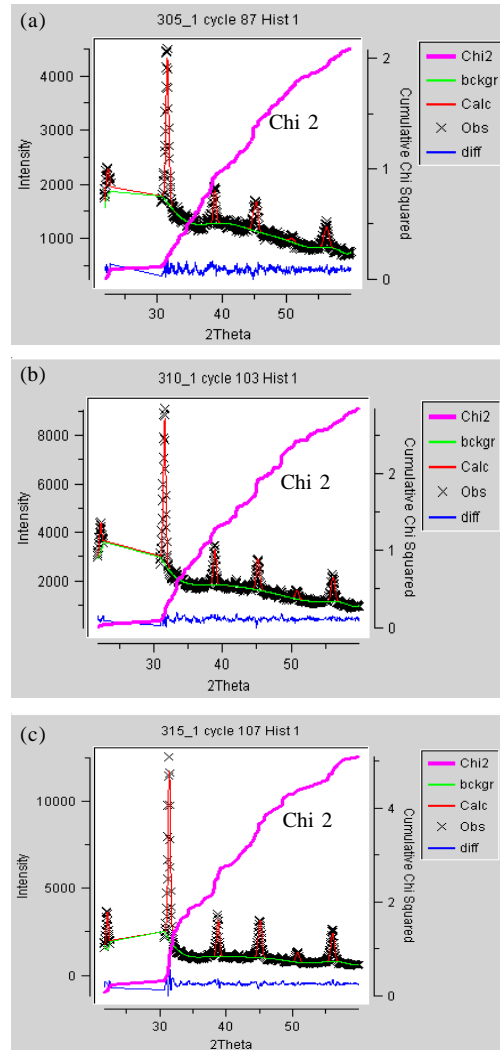
**Gambar 2.** Pola difraksi lapisan tipis BZT variasi jumlah lapis

hasil karakterisasi menggunakan XRF untuk persen berat masing masing unsur. Teridentifikasi ada empat unsur yang muncul yaitu Si (Silikon), Ba (Barium), Zr (Zirconium), dan Ti (Titanium). Si adalah substrat yang digunakan pada penelitian ini. Sedangkan tiga unsur yang lain adalah unsur pembentuk BZT, sehingga dapat dikatakan bahwa unsur-unsur pembentuk BZT telah terdeposit di atas substrat Si. Nampak bahwa makin banyak jumlah lapisan makin banyak unsur-unsur pembentuk BZT (Ba, Zr, dan Ti) yang terdeposit di atas substrat Si. Kenaikan ini seiring disemua unsur pembentuk BZT dan diikuti penurunan persen berat Si.

Karakterisasi XRD untuk mengetahui kristal tidaknya lapisan tipis yang telah dibuat. Muncul puncak-puncak pada pola difraksi karena atom-atom suatu bahan tertentu akan terdifraksi pada sudut tertentu dan susunan atom ini harus teratur pada rentang yang panjang. Hal inilah yang disebut kristal. Gambar 2 adalah pola difraksi lapisan tipis BZT untuk variasi jumlah lapis. Beberapa puncak muncul dan setelah dicocokkan dengan ICDD data base puncak-puncak ini milik BZT dan susbtrat Si. Lapisan tipis BZT yang dibuat bisa dikatakan telah kristal. Lima puncak yang muncul teridentifikasi sebagai milik lapisan tipis BZT yaitu bidang (001), (011), (111), (022) dan (112).

Pola difraksi menunjukkan bahwa makin banyak jumlah lapis intensitas pada masing-masing orientasi bidang tertentu makin tinggi. Hal ini dapat dijelaskan bahwa makin banyak lapisan makin banyak unsur-unsur pembentuk BZT yang terdeposit di atas substrat Si dan hal ini sudah dibuktikan dari karakterisasi menggunakan XRF, sehingga probabilitas membentuk BZT pada orientasi bidang tertentu makin besar.

Puncak-puncak yang teridentifikasi sebagai milik BZT setelah dicocokkan dengan ICDD data base [7], kemudian diolah (*refinement*), *difitting* menggunakan software EXPGUI GSAS kebenaran dari dugaan awal. Software ini memerlukan beberapa input data diantaranya data raw dari instrument XRD yang digunakan, data panjang gelombang sumber Sinar-X dalam bentuk *prm*, parameter kisi, dan *space grup* dari material. Metode ini selain mencocokkan kurva antara hasil percobaan dengan kalkulasi hasil perhitungan General Structure Analysis



**Gambar 3.** Hasil penghalusan menggunakan software EXPGUI GSAS

System (GSAS), juga untuk menghaluskan parameter kisi. Hasil penghalusan menggunakan software ini seperti ditampilkan pada Gambar 3.

Hasil *refinement* menunjukkan dugaan awal benar bahwa puncak-puncak itu milik BZT. Hasil penghalusan menunjukkan kurva kalkulasi (garis tegas) sudah menyesuaikan dengan kurva hasil percobaan (tanda silang). Hal ini ditunjukkan dengan kurva paling bawah (*diff*) yang merupakan kurva selisih antara kurva kalkulasi dengan eksperimen dan nampak mendekati garis lurus. Garis Chi2 (*chi square* kuadrat terkecil) mendekati linier dan menunjukkan hasil *refinement*.

Hasil parameter kisi dari penghalusan software EXPGUI GSAS seperti disajikan pada Tabel 2. Parameter kisi yang didapat dari hasil penghalusan menggunakan software EXPGUI GSAS mengalami perubahan dari parameter kisi awal yaitu  $a=b=3,998$  nm;  $c = 4,052$  nm. Secara keseluruhan disemua variasi kecepatan  $a$  dan  $b$  mengalami perbesaran dan  $c$  mengalami penurunan. Parameter kisi mengalami sedikit perubahan pada variasi jumlah lapisan pada variasi jumlah lapisan. Parameter

yang dihasilkan dari penghalusan menggunakan software *EXPGUI GSAS* menunjukkan bahwa lapisan tipis *BZT* mempunyai struktur tetragonal karena memiliki parameter kisi  $a=b \neq c$  dan sudut  $\alpha=\beta=\gamma=90^\circ$ .

## KESIMPULAN

Pembuatan lapisan *BZT* di atas substrat Si dengan variasi jumlah lapisan telah berhasil dilakukan. Hal ini dibuktikan dengan karakterisasi menggunakan *XRF* dan *XRD* yang dilanjutkan dengan software *EXPGUI-GSAS* (*analisis Rietveld*). Makin banyak jumlah lapisan makin banyak unsur-unsur pembentuk *BZT* yang terdeposit di atas substrat Si dan makin banyak puncak muncul yang diikuti makin tingginya intensitas pada orientasi bidang tertentu.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terimakasih kepada Kementerian Riset dan Teknologi, atas pendanaan sebagian penelitian ini yang berasal dari Proyek Hibah Insentif Riset Terapan 2011.

## DAFTAR ACUAN

- [1]. L. DAOCHENG, D. Shihua, C. TAO, S. TIANHU, et al, 2009, *Ferroelectric*, **385** (2009) 169-176
- [2]. J. ZHAI, X. YAO, L. ZHANG and B. SHEN, *Applied Physics Letters*, **84** (2004) 3136
- [3]. C. GAO, J. ZHAI, X. YAO, *Integrated Ferroelectrics*, **74** (2005) 147-153
- [4]. X. H. ZHU, D. N. ZHENG, W. PENG, J. LI, Y. F. CHEN, *Materials Letters*, **60** (2006) 1224-1228.
- [5]. M. S. TSAI, S. C. SUN and T. Y. Chen, *Journal of Applied Physics*, **82**(7) (1997)
- [6]. O. AUCIELL, J. F. SCOTT, R. RAMESH, *Physics Today*, (1998) 22-27.
- [7]. PDF-ICDD Database (CD ROM), (1998)