

# Studi Penumbuhan Lapisan Tipis PZT dengan Metode *Spin Coating*

Muhlis<sup>1</sup>, Imam Fathoni<sup>1</sup>, S.J. Iswarin<sup>1</sup>, Rahmat Triandi<sup>2</sup>, Masrurroh<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Jurusan Fisika, Fakultas MIPA, Universitas Brawijaya, Jl. Veteran Malang 65145, Indonesia

<sup>2</sup>Jurusan Kimia, Fakultas MIPA, Universitas Brawijaya, Jl. Veteran Malang 65145, Indonesia

Email: muhlis22@yahoo.com atau ruroh@ub.ac.id

## Abstrak

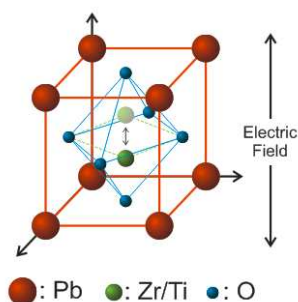
Telah dilakukan sintesis PZT dengan tehnik *sol-gel* dan penumbuhan lapisan tipis PZT dengan metode *spin coating*. Lapisan tipis PZT dibuat dengan tehnik *sol-gel* dengan menggunakan larutan penyetabil PEG 400 serta ditumbuhkan di atas substrat silikon dengan metode penumbuhan *spin coating*. Penggunaan tehnik *sol-gel* dan metode *spin coating* diharapkan mampu menghasilkan lapisan tipis dengan tingkat kehomogenan yang tinggi. Struktur lapisan tipis dipelajari dengan menggunakan difraksi sinar-x (XRD) untuk mengetahui struktur serta puncak kristal yang terbentuk. Hasil XRD menunjukkan bahwa terbentuk lapisan perovskit PZT dengan orientasi bidang kristal (100), (101), (111), (200), (102), (112) dan (022) yang mengindikasikan kristal yang terbentuk adalah polikristal. Orientasi bidang kristal yang lebih dominan terletak pada bidang (101).

Kata kunci: Lapisan Tipis PZT, Tehnik *Sol-Gel*, Metode *Spin Coating*.

## Pendahuluan

PZT (*Lead Zirconium Titanium*) merupakan suatu material keramik yang memiliki sifat piezoelektrik. Sifat piezoelektrik PZT umumnya dapat dimanfaatkan dalam pembuatan sensor maupun aktuator. Sensor yang dapat dibuat dengan keramik PZT berupa sensor tekanan yang biasa dikenal sebagai *micro electro-mechanical systems* (MEMS). Prinsip kerja dari material piezoelektrik yaitu apabila terjadi perubahan bentuk (deformasi) ketika material diberikan tekanan maka akan menghasilkan pergerakan muatan listrik (efek piezoelektrik). Efek piezoelektrik yang muncul merupakan fungsi turunan dari ketebalan keramik PZT [1]. Sampai saat ini PZT sudah diaplikasikan pada beberapa devais elektronika seperti resonator keramik, sensor inframerah, transduser USG, pengatur cahaya dan modulator pada kamera, *non-volatile* memori FET, kapasitor *multi-layer*, dan lain sebagainya [2].

PZT mempunyai struktur perovskit dengan rumus kimia  $Pb(Zr_x/Ti_{1-x})O_3$  seperti yang ditunjukkan oleh gambar 1.1. Sisi sudut *unit cell* perovskit PZT ditempati oleh timbal ( $Pb^{2+}$ ), pusat permukaan bidang diisi oleh oksigen ( $O^{2-}$ ), dan zirkonium ( $Zr^{4+}$ )/titanium ( $Ti^{4+}$ ) menempati pusat *unit cell* yang dapat terpolarisasi akibat pengaruh medan listrik eksternal [3].



Gambar 1. Struktur perovskit kristal PZT

Hingga saat ini penelitian PZT telah banyak dilakukan oleh beberapa peneliti dengan berbagai macam teknik antara lain: *Metal Organic chemical vapor deposition* (MOCVD) [4,5], *pulse laser ablation deposition* (PLAD) [6], *solution gelation* (*Sol-Gel*) [7], dan *sputtering* [8]. Tehnik yang paling sederhana dan mudah dari beberapa tehnik tersebut yaitu tehnik *sol-gel*. *Sol-gel* merupakan salah satu tehnik dalam pembuatan lapisan tipis yang melibatkan proses kimia berupa reaksi hidrolisis dan kondensasi. Biaya pembuatan lapisan tipis dengan tehnik *sol-gel* relatif murah, akan tetapi dalam pengadaan bahannya dibutuhkan biaya yang cukup mahal [9]. Keuntungan lain dari tehnik *sol-gel* yaitu dapat menghasilkan material dengan tingkat kehomogenan tinggi dan komposisi material yang bisa dikontrol sesuai keinginan [10].

*Sol* adalah suspensi koloid dari partikel padat di dalam cairan, sedangkan koloid merupakan suspensi yang fase terdispersinya cukup kecil (~1-1000 nm). Gaya gravitasi dari koloid dapat diabaikan dan interaksi atom didominasi oleh gaya antar atom terdekat, seperti gaya Van Der Waals atau gaya antar muatan permukaan. *Gelation* adalah proses penumbuhan melalui kondensasi polimer atau pengelompokan partikel [11].

Penumbuhan lapisan tipis PZT dilakukan dengan menggunakan metode penumbuhan *spin coating*. Metode *spin coating* merupakan metode yang paling mudah dan cepat dalam penumbuhan lapisan tipis. Lapisan tipis yang dihasilkan dengan metode ini memiliki tingkat kehomogenan yang cukup tinggi. Ketebalan lapisan yang diinginkan bisa dikontrol berdasarkan waktu dan kecepatan putaran dari alat *spin coater* [12]. Proses *spin coating* meliputi 4 tahapan yang terdiri dari deposisi, *spin up* dan *spin off* serta tahap evaporasi yang menentukan ketebalan akhir dari lapisan

tipis [13].

Lapisan tipis yang dihasilkan dari tehnik *sol-gel* dengan metode *spin coating* akan menghasilkan lapisan tipis dengan kualitas yang cukup tinggi dan juga biaya pembuatan yang relatif murah. Berdasarkan uraian di atas, maka pada penelitian ini akan dilakukan sintesis larutan PZT dengan tehnik *sol-gel* dan studi penumbuhan lapisan tipis dengan metode *spin coating* serta analisis pengaruh ketebalan lapisan terhadap kristalisasi lapisan tipis PZT yang terbentuk.

## Metode Penelitian

Pembuatan larutan PZT dilakukan dengan menggunakan tehnik *sol-gel*. Larutan PZT dibuat dengan campuran prekursor serbuk timbal asetat trihidrat ( $\text{Pb}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ ), larutan zirkonium propoksida ( $\text{Zr}(\text{OC}_3\text{H}_7)_4$ ), dan larutan titanium propoksida ( $\text{Ti}(\text{OC}_3\text{H}_7)_4$ ) serta beberapa pelarut seperti asam asetat, n-propanol dan PEG 400. Perbandingan molar Pb:Zr:Ti yang digunakan dalam pembuatan larutan PZT yaitu sebesar 1:0,53:0,47. Serbuk timbal asetat ditimbang sebanyak 3,42 gr dengan menggunakan neraca. Serbuk timbal asetat yang telah ditimbang kemudian dimasukkan ke dalam labu destilasi untuk dipanaskan melalui proses refluks agar terbentuk larutan timbal asetat. Kemudian larutan zirkonium, titanium dan n-propanol dengan perbandingan 1:0,53:0,47 dicampurkan ke dalam labu pada suhu ruang. Campuran larutan diaduk dengan menggunakan *magnetic stirrer* selama 1 jam. Larutan PEG 400 ditambahkan ke dalam labu sebagai penyetabil laju kondensasi dan hidrolisis lalu dipanaskan lagi melalui proses refluks selama 2 jam pada suhu 60 °C. Larutan PZT yang dihasilkan dalam bentuk *wet gel* diletakkan dalam keadaan tertutup untuk dipersiapkan pada proses pelapisan.

Silikon yang digunakan sebagai substrat direndam dalam metanol dan dimasukkan ke dalam *sonicator* selama 10 menit. Proses pengeringan silikon dengan oven dilakukan selama kurang lebih 15 menit pada suhu 100 °C. Silikon yang telah kering kemudian diletakkan di atas *spin coater*.

Kecepatan *spin coater* diatur untuk masing-masing SPD1 (kecepatan putaran pertama) dan SPD2 (kecepatan putaran kedua) sebesar 500 rpm dan 3000 rpm. Waktu *spin coater* diatur untuk masing-masing T1 (waktu putaran pertama) dan T2 (waktu putaran kedua) sebesar 10 s dan 60 s. Pengaturan SPD1 dan T1 dimaksudkan untuk memberikan percepatan pada substrat agar larutan PZT yang diteteskan terdistribusi homogen (rata) diseluruh permukaan substrat.

Larutan PZT dalam fase *wet gel* dilapiskan di atas substrat silikon (*silicon wafer*) dengan menggunakan *spin coater* untuk volume larutan

sebesar 200  $\mu\text{L}$ . Larutan PZT diteteskan di atas substrat silikon sebanyak 100  $\mu\text{L}$ , kemudian *spin coater* dijalankan. Hasil dari lapisan tipis PZT dalam fase *dry gel* didiamkan selama 2 menit dan ditambahkan lagi dengan larutan PZT sebanyak 100  $\mu\text{L}$ , kemudian di-*spin* sehingga diperoleh lapisan tipis PZT dengan jumlah volume larutan 200  $\mu\text{L}$ . Lapisan tipis PZT yang dihasilkan, diletakkan pada tempat terbuka (udara bebas) agar unsur pelarut yang terkandung di dalamnya dapat terbuang melalui proses evaporasi.

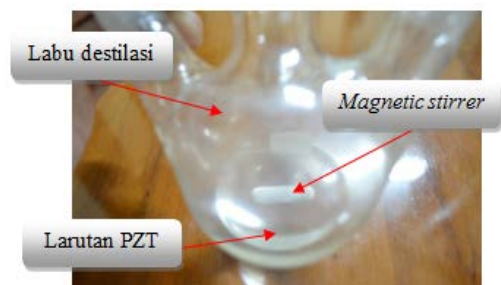
Lapisan tipis PZT yang terbentuk di atas substrat silikon dipanaskan dengan tungku pemanas agar terbentuk struktur kristal. Lapisan dengan jumlah volume larutan 200  $\mu\text{L}$  dimasukkan ke dalam tungku pemanas pada suhu ruang. Suhu tungku pemanas diatur pada suhu 600 °C. Proses *Annealing* dilakukan selama 2 jam ketika suhu tungku tepat berada pada 600 °C.

Sampel atau lapisan yang sudah dipanaskan kemudian dikarakterisasi dengan menggunakan XRD untuk mengetahui kristal yang terbentuk. XRD yang digunakan memiliki sumber berupa material tembaga (Cu) sebagai katoda dengan panjang gelombang  $K\alpha$  sebesar 1,5406 Å serta arus dan tegangan masukan masing-masing sebesar 30 mA dan 40 kV. Posisi sudut  $2\theta$  diatur pada sudut 20,01° sampai 79,99° dengan waktu *scan* tiap step sebesar 0,5 s untuk tiap sudut sebesar 0,02°. Hasil yang diperoleh berupa puncak-puncak kristal dengan perbandingan intensitas dan besar sudut  $2\theta$  untuk masing-masing volume larutan yang berbeda.

## Hasil dan Pembahasan

### Proses Sol-Gel

Hasil dari proses *sol-gel* memperlihatkan fase larutan dalam bentuk *wet gel*. *Wet gel* terbentuk pada saat proses refluks selama 2 jam setelah ditambahkan larutan PEG 400. Indikator terbentuknya *wet gel* yaitu larutan terlihat lebih jernih (transparan) tanpa adanya endapan yang dapat membuat larutan terlihat tidak homogen. Walaupun koloid-koloid tidak dapat dilihat secara langsung tanpa alat bantu mikroskop, namun dalam fase *wet gel* dimungkinkan banyak terdapat koloid-koloid yang saling berikatan antar satu dengan yang lainnya. Ruang antara koloid diisi oleh beberapa cairan *volatile* (mudah menguap).



## Gambar 2. Larutan PZT dalam fase *wet gel*

Larutan PZT pada gambar 2 memperlihatkan fase larutan dalam bentuk cairan (*wet gel*). Apabila *wet gel* disimpan dalam kondisi terbuka (udara bebas) maka cairan *volatile* yang terjebak di dalamnya akan mudah terlepas dan jika proses ini berlangsung lama dapat menyebabkan perubahan fase menjadi padatan (*xerogel*).



Gambar 3. Fase padatan (*xerogel*) setelah proses pengeringan atau penguapan cairan *volatile*

Gambar 3 menunjukkan bentuk padatan dari larutan PZT tampak seperti serat-serat yang menyerupai kristal. Padatan tersebut cukup keras dan kaku serta mempunyai warna yang transparan dan sedikit terlihat putih.

## Pelapisan dengan Metode *Spin Coating*

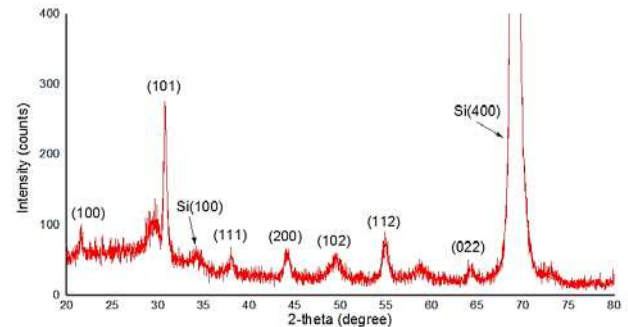
*Spin coating* dilakukan pada saat fase larutan PZT mendekati fase *dry gel* dengan harapan agar larutan dapat terlapisi dengan baik di atas substrat silikon. Berdasarkan hasil penelitian fase tersebut terbentuk setelah larutan didiamkan pada tempat terbuka (udara bebas) selama 5 jam dari fase *wet gel*. Penggunaan PEG 400 sebagai penyetabil laju hidrolisis dan kondensasi tidak cukup baik karena memakan waktu yang cukup lama. Selama proses transisi berlangsung, terjadi proses penguapan cairan *volatile* yang menyebabkan kontraksi struktur *gel*.

## Proses *Annealing*

*Annealing* (pemanasan) dapat mempengaruhi kekuatan lapisan ataupun kemampuan suatu lapisan untuk deformasi (berubah bentuk) ketika diberikan tekanan. Intensitas dari masing-masing bidang kristal dapat berubah jika suhu pemanasan juga mengalami perubahan. Pemilihan temperatur pemanasan pada 600 °C memperlihatkan puncak-puncak kristal yang cukup baik sehingga memberikan kemudahan dalam analisis data.

## Analisis Data XRD

Hasil XRD disajikan dalam bentuk grafik berupa nilai perbandingan antara  $2\theta$  dan intensitas dari masing-masing bidang kristal yang terbentuk. Nilai  $2\theta$  menunjukkan posisi bidang kristal terhadap sudut Bragg dan intensitas menunjukkan jumlah sinar-x yang mengenai bidang kristal dengan orientasi bidang yang sama. Lapisan tipis PZT yang ditumbuhkan di atas substrat kristal silikon dengan jumlah volume larutan 200  $\mu\text{L}$  menghasilkan intensitas yang berbeda-beda untuk setiap bidang kristal seperti pada gambar 5.



Gambar 5. Spektrum XRD lapisan tipis PZT

Pada grafik lapisan tipis PZT dengan volume larutan 200  $\mu\text{L}$  menunjukkan adanya pola difraksi yang terbentuk. Apabila dibandingkan dengan data JCPDS no. 41-1111, pola difraksi yang dihasilkan merupakan sebaran orientasi bidang kristal PZT (100), (101), (111), (200), (102), (112) dan (022). Intensitas puncak pada orientasi bidang kristal (101) lebih dominan dibandingkan yang lainnya. Orientasi bidang kristal dengan pola yang berbeda-beda menjelaskan bahwa kristal yang terbentuk merupakan polikristal berorientasi acak. Puncak kristal silikon yang dihasilkan mempunyai orientasi bidang (100) dan (400) yang berarti bahwa kristal silikon merupakan monokristal dengan satu arah bidang kristal.

## Kesimpulan

Telah dilakukan sintesis PZT dengan tehnik *sol-gel* dan penumbuhan lapisan tipis PZT dengan metode *spin coating* di atas substrat silikon. Dari hasil XRD, lapisan tipis PZT membentuk orientasi bidang kristal yang terdistribusi secara acak. Orientasi bidang kristal yang terbentuk terdiri dari (100), (101), (111), (200), (102), (112), dan (022) yang mengindikasikan polikristal. Orientasi bidang kristal yang lebih dominan terletak pada bidang (101).

## Daftar Pustaka

- [1] Shin, K.Y., dkk. 2006. Methodology for Force Measurement Using Piezoelectric Ceramic. *World Congress on Medical Physics and Biomedical Engineering 2006 (Proceedings)*. Vol. 2 Track 06. COEX Seoul. hal. 853.
- [2] Pandey, S.K., dkk. 2005. *Structural, Ferroelectric and Optical Properties of PZT Thin Films*. Pilani Goa Campus. India. hal. 135.
- [3] Giurgiutiu, V. 2008. *Structural Health Monitoring with Piezoelectric Wafer Active Sensors*. Elsevier. USA. hal. 29.
- [4] Masruroh dan M. Toda. 2011. Asymmetric Hysteresis Loops, Leakage Current and Capacitance Voltage Behaviors in Ferroelectric PZT Films Deposited on a Pt/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub>/Si Substrate by MOCVD method with a vapor-deposited Gold Top Electrode. *International Journal of Applied Physics and Mathematics*. Vol. 1(2): 144-148.
- [5] Masruroh, M. Umeda dan M. Toda. 2012. Influence of Temperature Annealing on the Crystallization, Hysteresis Loops and Leakage Current in Au/PZT/Pt/TiO<sub>2</sub>/Si(100) Films Grown by Low Temperature MOCVD Method. *International Journal of Applied Physics and Mathematics*. Vol. 2(6): 454-457.
- [6] Lappalainen, J., J. Frantti dan V. Lantto. 1998. Particulate Formation in PZT Thin Films during Pulsed Laser Ablation Deposition. *Journal of the Korean Physical Society*. Vol. 32: S1183-S1186.
- [7] Yi-Chu Hsu. 2006. *1-10 μm PZT Films Grown by Modified Sol-Gel Method*. Southern Taiwan University of Technology. Taiwan.
- [8] Azizahwati. 2002. Studi Morfologi Permukaan Film Tipis PbZr<sub>0,525</sub>Ti<sub>0,475</sub>O<sub>3</sub> yang Ditumbuhkan dengan Metode DC Unbalanced Magnetron Sputtering. *Jurnal Natur Indonesia*. Vol. 5(1): 50-56.
- [9] Sutanto, H., dkk. 2008. Penumbuhan Lapisan Tipis Semikonduktor GaN Di Atas Substrat Silikon dengan Metode Sol-Gel. *Rekayasa Kimia dan Proses 2008 (Proceedings)*. hal. H-008-1.
- [10] Bhushan, B. 2007. *Handbook of Nanotechnology*. Ohio State University. Columbus USA. hal. 316.
- [11] Brinker, C.J. 1990. *Sol-Gel Science*. Academic Press, Inc. London. hal. 2.
- [12] Luurtsema, G.A. 1997. *Spin Coating for Rectangular Substrates (Thesis)*. University of California. Barkeley. hal. 4-7.
- [13] Hellstrom, S.L. 2007. Basics Models of Spin Coating. *Submitted As Coursework For Physics 210*. Stanford University.