

## Pengaruh Kadar Oksigen, Laju Deposisi dan *Annealing* terhadap Struktur Mikro Lapisan Tipis Indium Tin Oxide

### *The Effects of Oxygen Content, Deposition Rate and Annealing Towards Thin Film of Indium Tin Oxide*

Muslimin

Program Studi Fisika FKIP UNTAD

#### ABSTRACT

Indium tin oxide is one of the materials that has physical properties, rarely seen in other materials. Indium tin oxide properties have the main role in developing the technology of thin film shown through its properties. Therefore, many people study on it since its widespread application to the technological industries. Coating process was carried out by mixing 90 % of  $\text{In}_2\text{O}_3$  and 10 %  $\text{SnO}_2$  on the glass substrate by means of sputtering. During the process of oxygen was added 2.50%, 3.70%, 5,10%, 6.15% and 8.90%. The deposition rate was respectively 4.21 nm/s and 2.25 nm/s. The Indium tin oxide for each condition was annealed at 175°C and 250°C in a vacuum of  $10^{-3}$  mBarr for 60 minutes. and the micro structure using the x-ray diffraction. Oxygen conten, deposition rate and annealing resulted in the changes of microstructure of indium tin oxide. These changes are mostly resulted from the changes in microstructure such as grain size and lattice constant.

Keywords : Deposition rate, oxygen content, annealing, microstructure

#### PENDAHULUAN

Lapisan tipis ITO yang kekurangan oksigen akan membentuk kelompok yang terdiri dari susunan atom-atom bebas In dan Sn maupun oksida hitam InO dan SnO. Terbentuknya kelompok oksida hitam pada lapisan tipis ITO dapat mengakibatkan lapisan kurang transparan. Penambahan oksigen pada saat *sputtering* dan *annealing* setelah pelapisan akan mengakibatkan atom-atom bebas In dan Sn maupun oksida hitam InO dan SnO semakin berkurang yang dapat mengakibatkan lapisan tipis akan menjadi transparan.

Perubahan kristalinitas (Shinich Honda *et al.* 1996), perubahan parameter kisi (Lee *et al.*, 1999) dan pergeseran celah pita energi disebabkan karena perubahan *dopping* Sn (Choi *et al.* 1995). Perubahan kadar oksigen, perlakuan *annealing* dan perubahan laju deposisi akan dapat menghasilkan perubahan struktur mikro lapisan tipis ITO yang terbebtuk.

Pengaruh dari tumbukan ion yang *energetic* selama pertumbuhan atau pengaruh laju deposisi pada saat pembuatan lapisan tipis indium tin oksida akan menghasilkan terbentuknya formasi daerah butiran kecil pada daerah butiran yang lebih besar pada indium tin oksida. Struktur mikro lapisan tipis indium tin oksida dapat diubah sedemikian rupa dari amorf menjadi kristal dengan butiran-butiran

yang agak besar dengan mengontrol kondisi preparasi deposisi Material indium tin oksida yang di deposisi pada temperatur ruang menghasilkan kristal lapisan yang hampir amorf. Material indium tin oksida biasanya terkristalisasi pada temperatur 400 K – 450 K (Hiroshi Orikawa *et al.* 1996).

Meningkatnya temperatur *annealing* akan membuat butiran kristal menjadi lebih besar dan akan mencapai permukaan sehingga bersentuhan satu sama lain pada permukaan dan meninggalkan daerah amorf Anne Legros *et al.* 1995).

Ukuran butir G dari sampel indium tin oksida dapat ditentukan dari lebar puncak difraksi dengan asumsi bahwa pelebaran puncak difraksi hanya disebabkan oleh ukuran butir yang kecil ) melalui metode Scherrer, (Cullity 1987).

$$G = \frac{0,9 \lambda}{B \cos \theta} \quad (1)$$

Perubahan konstante kisi pada lapisan yang terbentuk setelah deposisi *sputtering* dapat ditentukan dengan menggunakan metode Cohen (Cullity 1987). Perubahan konstante kisi tersebut seperti penyusutan lapisan, kesalahan radius, kesalahan pemusatan dan absorpsi maka diperlukan nilai koreksi yaitu,

$$\frac{\Delta d}{d} = \frac{\Delta a}{a} = K \cos \theta \tag{2}$$

dengan  $d$  adalah jarak antar bidang,  $a$  adalah konstante kisi struktur kubus dan  $K$  adalah konstante yang besarnya 0,9. Jarak antar bidang ( $d_{hkl}$ ) adalah jarak tegak lurus antara dua bidang ( $hkl$ ) yang sama. Persamaan untuk struktur kubus adalah,

$$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \tag{3}$$

dengan  $a$  adalah konstante kisi,  $hkl$  adalah arah bidang pelapisan.

Tiap butir pada polikristal biasanya memiliki orientasi kristalografi yang berbeda atau dapat membentuk kelompok antara butir dengan orientasi yang sama. Arah bidang pelapisan atau tekstur secara sederhana dapat diartikan sebagai suatu kondisi dimana distribusi orientasi kristal tidak acak. Orientasi yang menghasilkan intensitas difraksi maksimumlah yang disebut arah bidang pelapisan dari material tersebut.

Arah bidang pelapisan dapat ditentukan dari persamaan (4) yaitu,

$$\sin^2 \theta = \frac{\lambda^2}{4a^2(h^2 + k^2 + l^2)} \tag{4}$$

dengan  $\theta$  adalah sudut hamburan Bragg,  $\lambda$  adalah panjang gelombang sinar-x,  $a$  adalah

konstante kisi kristal,  $hkl$  adalah arah bidang pelapisan.

**METODE**

**Optimasi deposisi**

Deposisi dilakukan dengan beberapa optimasi yaitu:

- a. kadar oksigen. Kadar oksigen yang dimasukkan setiap deposisi yaitu: tanpa oksigen, 2,50%, 3,70%, 5,10%, 6,15% dan 8,9%
- b. pengaturan laju deposisi. Potensial *sputtering* diatur sesuai dengan laju deposisi yaitu :4,21 nm/s dan 2,25 nm/s.
- c. Pengaturan temperatur *annealing*

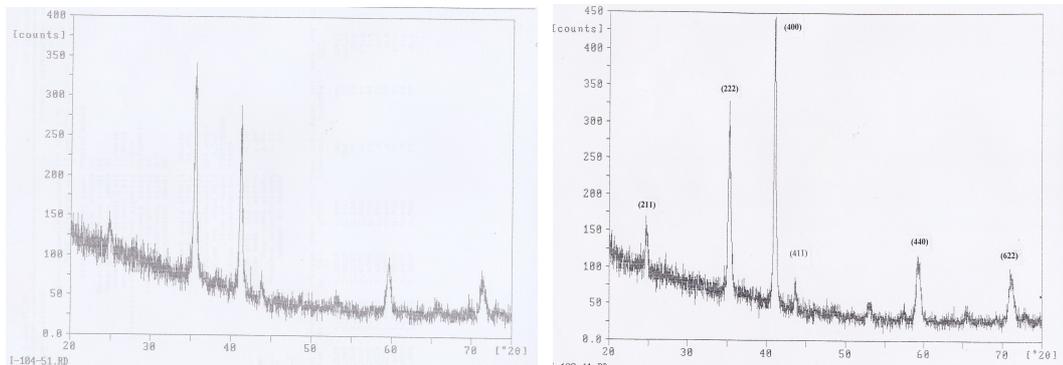
Setelah dilakukan deposisi, maka dilanjutkan dengan *annealing* dalam ruang vakum pada tekanan  $\approx 10^{-3}$  mBarr selama 60 menit dengan temperatur : 0 (tanpa *annealing*), 175 dan 250°C.

**Analisis struktur mikro**

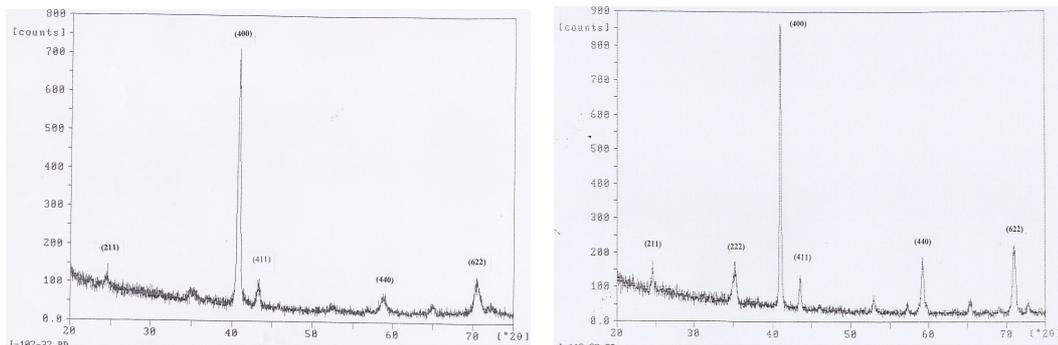
Kristalinitas lapisan tipis indium tin oksida analisis berdasarkan  $2\theta$  ( $20^\circ - 70^\circ$ ). sehingga diperoleh posisi puncak dalam derajat. *Full Width at Half Maximum* (FWHM) yang dikenal sebagai indikator ukuran kristal dan *Lattice distortion*. Dari hasil XRD maka untuk menentukan besar butir dapat digunakan persamaan (1) dan konstante kisi dengan persamaan (4), yang terlebih dahulu ditentukan arah pelapisannya.

**HASIL DAN PEMBAHASAN**

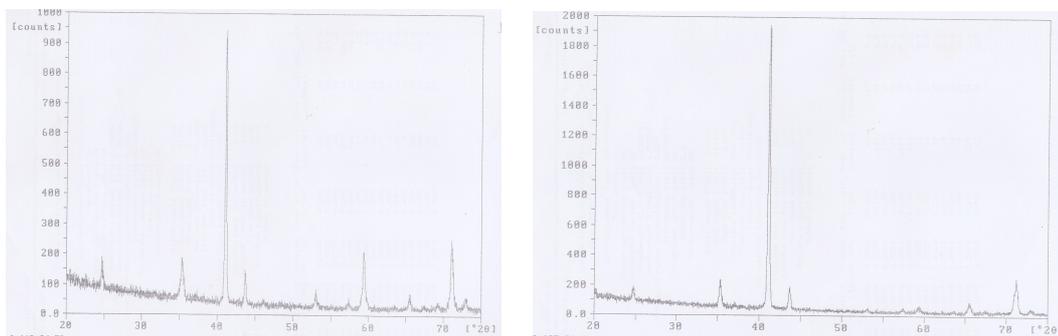
Pola hasil pengukuran XRD yang dilakukan dengan sudut  $2\theta$  ( $20^\circ - 75^\circ$ ) untuk berbagai kadar oksigen dan temperatur *annealing* dapat dilihat pada Gambar 1 - 2.



Gambar 1. Kadar oksigen 2,50% (a) *annealing* 175°C (b) *annealing* 250°C



Gambar 2. Kadar oksigen 3,70% (a) *annealing* 175°C (b) *annealing* 250°C.



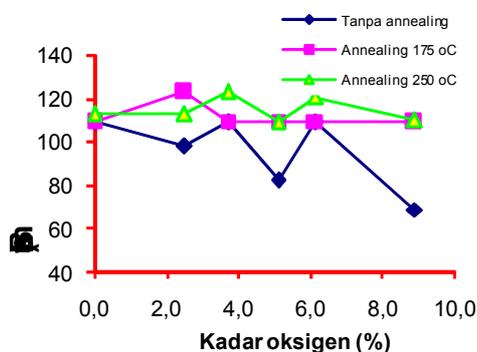
Gambar 3. Kadar oksigen 5,10 % : (a) *annealing* 175°C (b) *annealing* 250°C.

Besar butir dan konstante kisi hubungannya kadar oksigen dan temperatur *annealing* pada laju deposisi 4,21 nm/s seperti pada Gambar 4 dan Gambar 5. Kristal hasil deposisi lapisan tipis ITO pada penelitian ini menunjukkan kecenderungan memiliki *preferred orientation* bidang hkl (400). Dengan demikian perhitungan besar butir G dan konstante kisi a dapat dilakukan pada bidang *preferred orientation* yang maksimum yang terdapat pada sudut  $2\theta$  yakni pada sudut sekitar 40,9 derajat. Hasil pengamatan pola difraksi sinar-x pada penelitian ini, diperoleh *preferred orientation* pada bidang hkl (400). Kecuali sampel kadar oksigen 8,90% tanpa *annealing* memiliki *preferred orientation* pada bidang hkl (222) dengan sudut difraksi 35,45° ( $2\theta$ ).

Perubahan arah pelapisan dan peningkatan intensitas pola difraksi ini terjadi karena kenaikan konsentrasi kekosongan oksigen dan tingkat difusi. Perubahan tersebut disebabkan karena atom bebas In dan impuritas Sn makin berkurang karena teroksidasi oleh oksigen yang dimasukkan pada saat deposisi. Kekurangan oksigen sebelum dimasukkan disebabkan karena pada saat deposisi berlangsung, oksigen dari senyawa  $In_2O_3$  dan  $Sn_2O$  terlebih dahulu

terdeposisi karena titik didih dari oksigen lebih kecil dibandingkan titik didih dari In dan Sn akibatnya terjadi defisiensi oksigen.

Hasil perhitungan ukuran butir (G) diperoleh berdasarkan pola difraksi sinar-x berkisar (68,99 – 120,70) nm. Ukuran butir yang terkecil diperoleh pada kadar oksigen 8,90% tanpa *annealing* sedangkan ukuran butir yang terbesar diperoleh pada kadar oksigen 2,50% dengan *annealing* 250°C. Perubahan ukuran butir tersebut di sebabkan karena makin berkurangnya atom –atom bebas seperti In dan Sn akibat terjadinya oksidasi. Selain hal tersebut juga disebabkan karena lapisan yang terbentuk semakin terkritisasi akibat dilakukannya *annealing* setelah deposisi. Perubahan besar butir makin meningkat seiring dengan naiknya temperatur *annealing* dan konstante kisi menjadi turun seiring dengan naiknya temperatur *annealing* ini diakibatkan karena Sn/In makin kecil. Atom oksigen mempunyai jejari jauh lebih kecil dari jejari atom In dan Sn yang menempati posisi sisipan membentuk senyawa oksida. Perubahan struktur mikro lapisan tipis ITO disebabkan karena perbandingan antara oksigen, In dan Sn yang membentuk senyawa oksida.

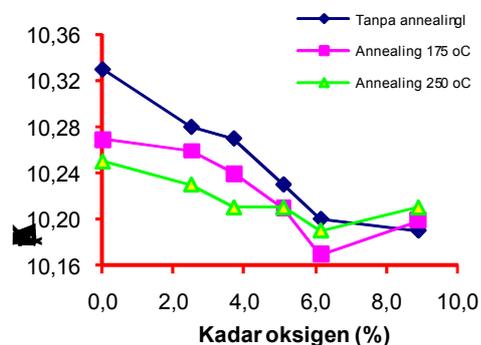


Gambar 4. Besar butir.

Indium oksida amorf biasanya akan mengkristal dengan cepat pada suhu 150°C (Brian *et al.* 2000), karena kristalinisasi semakin berlanjut maka seluruh lapisan dipenuhi dengan butiran-butiran dan hampir menjadi tegak lurus dengan permukaan. *Annealing* dapat membuat kristal tumbuh menjadi lebih besar dan akan mencapai permukaan sehingga bersentuhan satu sama lain pada permukaan dan meninggalkan *area* amorf. Pada sampel yang di *annealing* pada temperatur 175°C dan 250°C tidak terjadi perubahan ukuran butir, ini disebabkan karena sampel sudah terkristalinisasi pada suhu tersebut. Seperti yang ditunjukkan pola hasil difraksi sinar-x pada Gambar 1-3 menunjukkan *WHFL* makin tipis yang menandakan bahwa lapisan tipis sudah terkristalinisasi.

Ukuran besar butir yang diperoleh pada penelitian ini hampir sama dengan yang diperoleh oleh peneliti sebelumnya antara 100 nm – 460 nm pada temperatur 423°K – 473°K (Hiroschi Morikawa *et al.* 1996) dan 35 nm – 50 nm yang dilakukan pada temperatur 350°C dengan donor 5% berat Sn (Shigesato *et al.* 1992).

Konstante kisi yang diperoleh pada penelitian ini berkisar 10,17 nm – 10,33 nm. Konstante kisi terbesar berada pada kadar oksigen 2,50% tanpa *annealing* dan yang terkecil pada 6,15% *annealing* 170°C. Perubahan konstante kisi disebabkan karena kontribusi kekosongan oksigen, efek dari tekanan parsial oksigen pada saat deposisi sangat signifikan dengan perubahan konstante kisi. Hasil yang diperoleh pada penelitian ini menunjukkan ada kesesuaian dengan hasil yang diperoleh oleh peneliti sebelumnya yaitu terjadinya perubahan ukuran besar butir dan



Gambar 5. Konstanta kisi.

konstante kisi akibat karena tingkat kristalinitas lapisan. Kristalinitas dapat ditingkatkan dengan mengoptimalkan kadar oksigen dan temperatur *annealing*. Penurunan ukuran besar butir dan konstante kisi disebabkan karena adanya efek regangan mikro (*microstrain*), tarik dan kompresi (*elastic strain*) akibat adanya cacat kristal yang berupa ketidakmurnian substitusi (impuritas), kekosongan (vakansi) dan adanya interaksi antara impuritas dengan kristal disekitarnya yang akan mengakibatkan perubahan potensial. Interaksi ini terjadi karena ukuran pengotor berbeda dengan dengan ukuran atom induk, sehingga terjadi regangan mekanis lokal yang berupa pengerutan.

Pengaruh kadar oksigen, annealing dan laju deposisi hubungan dengan konstante kisi besar butir ditunjukkan pada Gambar 4 dan Gambar 5 terlihat bahwa kadar oksigen menyebabkan perubahan besar butir dan konstante kisi kristal. Jika kadar oksigen makin meningkat maka ada kecenderungan ukuran besar butir dan konstante kisi menurun. Perubahan ini ada kaitannya dengan tingkat kristalinitas sampel sebagai akibat makin berkurangnya atom-atom bebas seperti Sn, dan In pada akhirnya perbandingan antara Sn dan In makin kecil yang menyebabkan pengerutan.

## KESIMPULAN

Berdasarkan hasil eksperimen yang telah dilakukan pada lapisan tipis ITO yang dibuat secara *sputtering* dengan perlakuan kadar oksigen, laju deposisi dan temperatur *annealing* struktur mikro maka dapat disimpulkan sebagai berikut:

Besar butir diperoleh berkisar (68,99-122,81) nm dan konstanta kisi diperoleh berkisar (10,17-10,33) Å. Temperatur *annealing* dapat menurunkan besar butir dan konstanta kisi karena makin banyaknya atom-atom bebas In dan Sn yang terdifusi menuju kisi induk. Kadar oksigen dan temperatur *annealing* dapat menyebabkan terjadinya perubahan ukuran butir dan konstante kisi. Penurunan ukuran butir dan konstante kisi disebabkan karena adanya efek pengerutan akibat kekosongan oksigen, impuritas dan interaksi antara impuritas dengan kristal disekitarnya.

#### DAFTAR PUSTAKA

- Anne L, Ming KS, Andre M & Amine S. 1995. Effect of Water Impurity on the Crystallization of Vacuum Evaporated. *Journal Applied Physics*. **78**:3048-3051.
- Brian GL & David CP. 2000. Application and Processing of Transparent Conducting Oxides. *MRS. Bulletin.Transparent Conducting Oxides.ISSN.7964*. **25**:22
- Cullity BD. 1987. *Element of X-ray Diffraction*. London: Addison-Wesley Publishing Company.
- Choi DP, Whitson T, Janiac D, Cleva OY & Brian L. 1995. A study of low temperature crystallization of amorphous thin film indium tin oxide. *Journal Applied Physics*. **85**:8447.
- Hirokazu O, Fredrick O, Adurodija & Takahiro K. 1996. Electrical and Structural Properties of Indium Tin Oxide Films Prepared by Pulsed Laser Deposition. *Journal of Applied Physics*. **91**: 1213.
- Lee MH., Shinichiro U, Ryataro N & Kazuhiko Y. 1999. Micrograin Structure Influence on Electrical Characteristics of Sputtered Indium Tin Oxide Films. *Journal Applied Physics*. **74**: 6711-6712.
- Shinich H, Muranaka S, Bando Y & Takada T. 2000. Influence of Substrate Temperature and Film Thickness on the Structure of Reactively Evaporated In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Films. *Thin Solid Films*. **151**: 355-363.
- Shigesato Y, Paine DC & Haynes TE. 1992. Study of the effect ion implantation on the electrical and microstructural properties of tin doped indium oxide thin films. *Journal of Applied Physics*. **73**:3805-3810.