

**Pengaruh Tekanan Dan Komposisi Massa Pereaksi II-VI Terhadap Penumbuhan Lapisan Tipis ZnO Dengan Metode MOCVD**

M. Thamrin\*) dan Wilson W. Wenas

Laboratorium Riset Semikonduktor

Jurusan Fisika FMIPA –ITB, Jl. Ganesha 10 Bandung - Indonesia

\*) Fisika Universitas Mulawarman Samarinda

**Abstrak**

Dalam penelitian ini telah berhasil dikaji dalam bentuk pemodelan dan eksperimen pengaruh tekanan dan komposisi massa pereaksi II-VI terhadap penumbuhan lapisan tipis ZnO dengan metode Metalorganic chemical vapor deposition (MOCVD) menggunakan untuk pertama kalinya gas sistem pereaksi DMZn/H<sub>2</sub>O. Hasil dari pemodelan dan eksperimen menunjukkan kesesuaian yang baik. Dari analisa laju penumbuhan lapisan tipis ZnO terhadap tekanan deposisi didapatkan bahwa laju penumbuhan meningkat secara eksponensial, sedangkan terhadap komposisi massa pereaksi II-VI, laju penumbuhan cenderung menjadi saturasi di atas nilai stoichiometri.

**Kata kunci :** MOCVD, Model penumbuhan lapisan tipis ZnO, Tekanan chamber dan massa pereaksi

**Abstract**

Effects of the growth pressure and II-VI mass ratio on the deposition of ZnO thin film by metalorganic chemical vapor deposition (MOCVD) method have been studied. It was shown that the obtained experimental data was in a good agreement with the model developed in this study. Its was also found that the growth rate of ZnO thin film increased exponentially with the growth pressure, while with the II-VI mass ratio the growth rate increased and then saturated near its stoichiometry composition.

**Keywords :** MOCVD, Deposition model of ZnO thin film, Chamber pressure and reactant mass

**1. Pendahuluan**

Zinc oxide (ZnO) merupakan bahan semikonduktor II-VI yang mempunyai sifat: konduktansi tinggi, struktur atomnya beraturan, morfologi permukaan bergerigi, mempunyai struktur kristal *hexagonal, non-stoichiometri*, kekurangan atom *oxygen* atau kelebihan atom *zinc (interstitial)*, resistivitas rendah dikontrol dengan *native defect, bandgap direct*, arah polarisasi *uniaxial* dan mempunyai transmitansi tinggi pada daerah sinar tampak sampai pada sinar infra-merah (400 – 1300) nm<sup>1)</sup>.

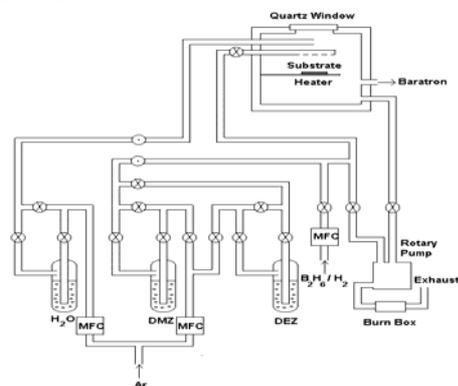
Lapisan tipis ZnO telah diaplikasikan pada divais-divais elektronika, optoelektronika, sensor pandu gelombang optik, *light emitting diode (LED)*<sup>2)</sup>, Laser UV<sup>3)</sup>, display kristal cair<sup>4)</sup>, *transducer piezoelectric*<sup>5)</sup> dan lapisan anti refleksi<sup>1,2,5)</sup>.

Walaupun lapisan tipis ZnO telah dapat ditumbuhkan dengan metode MOCVD dan telah dipelajari sifat optik dan listriknya, mekanisme penumbuhannya belum optimal. Oleh karena itu pada penelitian ini dicoba untuk mempelajari pengaruh dari tekanan dan komposisi massa pereaksi II-VI terhadap penumbuhan lapisan tipis ZnO. Hal ini dilakukan karena untuk menganalisa penumbuhan lapisan tipis semikonduktor biasanya yang digunakan hanyalah parameter temperatur

penumbuhan, sedangkan parameter komposisi massa pereaksi tidak banyak dilakukan.

**2. Eksperimen**

Penumbuhan lapisan tipis ZnO pada penelitian ini menggunakan metode *Metalorganic Chemical Vapor Deposition (MOCVD)* yang dilakukan di Laboratorium Riset Semikonduktor Jurusan Fisika ITB. Skematik sistem deposisi lapisan tipis ZnO yang digunakan dalam penelitian ini seperti pada Gambar 1.



Gambar 1. Skematik sistem deposisi MOCVD.

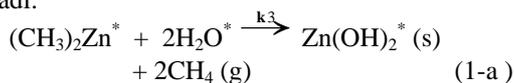
Molekul yang digunakan sebagai pereaksi *dimethylzinc* (DMZn) dan H<sub>2</sub>O. Gas pembawa argon (Ar) dialirkan melalui *bubbler dimethylzinc* dan *bubbler H<sub>2</sub>O*, sedangkan temperatur *bubbler* yang dilalui gas dikontrol, sehingga molekul pereaksi menguap pada tekanan tertentu. Temperatur *bubbler* pereaksi DMZn dan H<sub>2</sub>O masing-masing 4°C dan 26°C pada kondisi konstan, dan laju aliran gas pembawa masuk ke *chamber* dapat dikendalikan dengan *Mass Flow Control*, serta tekanan sistem (DMZn, H<sub>2</sub>O) dikontrol dengan *oriffice* pada 760 torr.

Tahap pengambilan data sebagai berikut:

(1) Tekanan *chamber* dibuat bervariasi yaitu 0,1-10 torr pada temperatur substrat 120°C, laju aliran gas pembawa DMZn dan H<sub>2</sub>O masing-masing 2 sccm dan 30 sccm, sehingga diperoleh laju aliran molekul peraksi masuk ke dalam *chamber* masing-masing 19,65 dan 38,03 μmol/menit. (2) Gas pembawa pada DMZn 2 sccm, sedang pada H<sub>2</sub>O 10 - 40 sccm sehingga laju aliran molekul gas pereaksi DMZn yang masuk ke dalam *chamber* diperoleh 19,65 μmol/menit dan untuk H<sub>2</sub>O bervariasi 12,68-50,71 μmol/menit. Pada *chamber* terdapat substrat pada temperatur 140°C, dengan tekanan satu torr tetap dipertahankan selama proses berlangsung. Di atas substrat terdapat gelas *Corning 7059* sebagai tempat deposisi lapisan tipis ZnO. Pada tekanan satu torr dan komposisi massa pereaksi II-VI adalah 0,52. Untuk menentukan ketebalan lapisan tipis ZnO diukur dengan menggunakan DEKTAK di Laboratorium Fisika Material ITB Bandung. Sedangkan struktur kristal lapisan tipis ZnO yang ditumbuhkan diukur dengan menggunakan sinar-X Laboratorium Teknik Kimia ITB.

### 3. Hasil dan Pembahasan

*Precursor dimethylzinc* (DMZn) adalah sumber atom *zinc* (Zn). Atom ini terdapat pada kelompok II dalam system periodik berkala, yang kelebihan dua elektron pada sistem orbitalnya sehingga memperlihatkan bahwa atom tersebut sangat reaktif, dan sebaliknya atom *oxygen* (VI) pada molekul H<sub>2</sub>O kekurangan dua elektron. Bila (DMZn, H<sub>2</sub>O) direaksikan, maka reaksi yang terjadi:



Reaksi dekomposisi Zn(OH)<sub>2</sub><sup>\*</sup> (s)



Reaksi kimia untuk *precursor* (DMZn) dan H<sub>2</sub>O dari pada persamaan (1-a) konstanta kesetimbangan reaksi diungkapkan sebagai berikut:

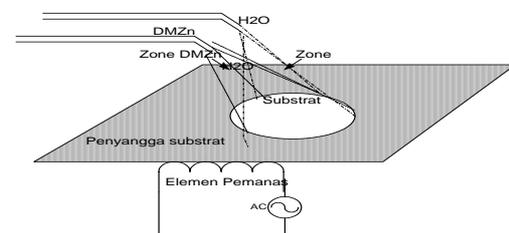
$$K_C = \frac{[Zn(OH)]^1 [(CH_4)]^2}{[Zn(CH_3)_2]^1 [H_2O]^2} \quad (2)$$

$$K_P = K_C (RT)^{\Delta \nu}$$

$\Delta \nu = \nu_4 + \nu_3 - \nu_2 - \nu_1 = 0$ , merupakan bilangan *stoichiometri*. K<sub>P</sub> disebut sebagai konstanta kesetimbangan reaksi sebagai fungsi tekanan P.

Selanjutnya model penumbuhan II-VI pada MOCVD dianggap bahwa reaksi kimia berlangsung spontan seperti yang ditunjukkan pada Gambar 2. Komposisi massa pereaksi II-VI bergantung pada jumlah mol gas pereaksi. Bila komposisi mol massa pereaksi antara *precursor* dengan oksidan sama, maka probabilitas terjadinya penumbuhan yang paling besar terjadi pada perbandingan massa pereaksinya sama dengan satu. Untuk memperoleh reaksi yang maksimal, maka komposisi massa pereaksi pada DMZn/H<sub>2</sub>O adalah 0,5. Ungkapan ini didukung oleh *Theorema Gibbs* menyatakan bahwa "*entropi campuran adalah sama dengan jumlah entropi persial, sedang perubahan entropi yang ditimbulkan oleh campuran gas*" diungkapkan :

$$\Delta S^* = -R \sum n_k \ln x_k^* \quad (3)$$



Gambar 2. Skema proses penumbuhan lapisan tipis ZnO dengan metode MOCVD.

Hubungan antara massa pereaksi II-VI (DMZn, H<sub>2</sub>O) dengan tekanan yang dinyatakan sebagai energi aktivasi  $E^*$ :

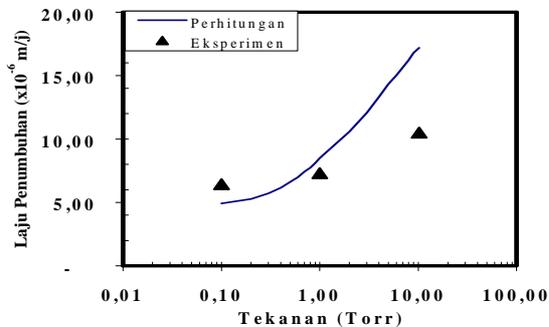
$$E^* = \Delta S^* T - RT \ln K_P$$

Dengan estimasi dari persamaan di atas, laju penumbuhan ZnO ( $G_d$ ) diungkapkan sebagai berikut:

$$G_d = 1,5392 \times 10^{-3} [T]^{3/2} \exp \left[ -\frac{E^*}{RT} \right] (x_k) [\mu m / j] \quad (4)$$

Berikut ini ditunjukkan pengaruh tekanan terhadap penumbuhan II-VI dapat dilihat pada Gambar 3. Parameter tekanan yang menentukan penumbuhan adalah tekanan persial *dimethylzinc* (DMZn) dan H<sub>2</sub>O, tekanan sistem

(*orifice*) dan tekanan penumbuhan lapisan tipis ZnO.

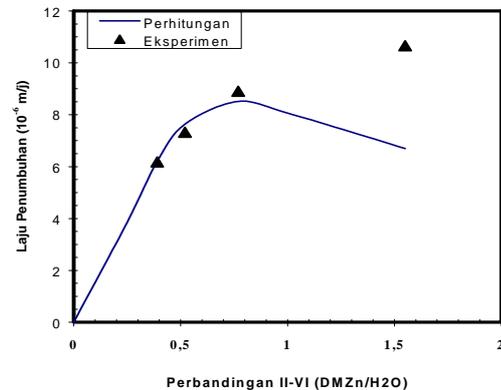


Gambar 3. Pengaruh tekanan terhadap penumbuhan.

Komposisi massa pereaksi (DMZn/H<sub>2</sub>O) = 0.52, temperatur penumbuhan T=120°C, tekanan parsial (DMZn =148 torr dan H<sub>2</sub>O=24 torr), sedang tekanan penumbuhan adalah 0,1-10 torr. Analisis grafik ini diperoleh dari persamaan (4) yang menggambarkan bahwa pengaruh tekanan terhadap laju penumbuhan lapisan tipis ZnO meningkat secara eksponensial.

Dari analisis pada tekanan rendah didapatkan hasil antara perhitungan dan eksperimen dianggap sama karena reaksi berlangsung sempurna dan faktor pengganggu (gas asing) diabaikan. Sementara pada tekanan tinggi perhitungan lebih besar dari eksperimen karena adanya reaksi lain yang disebabkan oleh gas asing sehingga interaksi yang terjadi antara pereaksi tidak sempurna. Dengan demikian penumbuhan lapisan lebih rendah dari hasil perhitungan. Adapun gas asing yang diperkirakan yang terdapat dalam *chamber* pada tekanan tinggi antara lain CO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O dan NH<sub>2</sub>.

Salah satu parameter yang sangat menentukan laju penumbuhan lapisan tipis ZnO adalah komposisi massa pereaksi. Dari hasil eksperimen dengan temperatur penumbuhan 140°C, diperoleh hasil seperti pada Gambar 4.



Gambar 4. Pengaruh komposisi massa pereaksi terhadap laju penumbuhan lapisan tipis ZnO.

Pada Gambar 4 dilihat pengaruh dari komposisi massa pereaksi, terlihat bahwa laju penumbuhan meningkat tajam di sekitar *stoichiometri* dan di atas *stoichiometri* perhitungan tidak sesuai dengan eksperimen, dimana perhitungan menunjukkan penurunan sedangkan eksperimen meningkat dan mencapai nilai saturasi. Hal ini disebabkan oleh penumbuhan ZnO yang selalu cenderung bersifat *non-stoichiometri*.

#### 4. Kesimpulan

1. Pemodelan pengaruh tekanan dan komposisi massa pereaksi terhadap penumbuhan lapisan tipis ZnO dengan metode MOCVD telah berhasil dilakukan.
2. Diperoleh bahwa laju penumbuhan lapisan tipis ZnO terhadap tekanan meningkat secara eksponensial sedangkan terhadap komposisi massa pereaksi juga meningkat dan kemudian cenderung menjadi saturasi di atas nilai *stoichiometri*.
3. Dari hasil analisa data diperoleh perbedaan antara perhitungan dan eksperimen pada tekanan tinggi karena reaksi kimia berlangsung tidak sempurna akibat adanya gas asing yang ikut bereaksi. Terhadap komposisi massa pereaksi juga ada perbedaan yang terjadi di atas nilai *stoichiometri* karena lapisan tipis ZnO cenderung bersifat *non-stoichiometri*.

**Daftar Pustaka**

1. Wilson W.Wenas, *Electrical and properties of boron-doped ZnO thin films for solar cell grown by Metalorganic chemical vapor deporition*, *J.Appl.Phys.* 70(11), December 01, 1991, p.7119-7123.
2. Ohkawa, K., *Moleculer-beam epytaxial growth of p-and n-type ZnSe homo-epytaxial layer*, *Jurnal of Crystal growth* 117(1992), North Holland, pp.375-384.
3. Takashi, Sekiguchi, *Effect of Hydrogenetion on ZnO luminescence*, *Jpn.J.Appl.Phys.* Vol 36(3A), Part 2., March 01 1997, pp.L286-L291.
4. Suzuki, Akio, *Surface flatness of transparent conducting ZnO: Ga thin films grown by pulsed laser deposition*, *Jpn.J.Appl.Phys.* 35(10), October 1996, pp.5457-5461.
5. Jooste, B.R., and Viljoen, H.J., *Experimental and theoretical study vibrations of a centivered beam using a ZnO piezoelectric sensor*, *J.vac.Sci. Technol A*, Vol 14(3) May/Jun 1996, pp.714-719.