

**Efek Annealing Pada Penumbuhan Film Tipis  
Ferroelektrik  $\text{PbZr}_{0,625}\text{Ti}_{0,375}\text{O}_3$  (PZT)**

Ngurah Ayu Ketut Umiati<sup>1,2</sup>, Irzaman<sup>1,3</sup>, Maman Budiman<sup>1</sup> dan M. Barmawi<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Laboratorium Fisika Material Elektronika Jurusan Fisika ITB

<sup>2</sup>Jurusan Fisika FMIPA UNDIP, Semarang

<sup>3</sup>Jurusan Fisika FMIPA IPB, Bogor

E-mail : irzaman@student.fi.itb.ac.id

**Abstrak**

Bahan ferroelektrik mempunyai kegunaan yang sangat luas, antara lain sebagai mikroaktuator (dari sifat piezoelektriknya), sebagai kapasitor untuk DRAM (Dynamic Random Access Memory) (dari sifat permitivitas dan polarisabilitas yang tinggi), dan untuk sensor infra merah (dari sifat pyroelektrik). Salah satu bahan ferroelektrik tersebut adalah  $\text{PbZr}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_3$  (PZT), yang dapat pula bersifat piezoelektrik dan pyroelektrik. Dalam penelitian ini dikaji efek annealing dari penumbuhan film tipis  $\text{PbZr}_{0,625}\text{Ti}_{0,375}\text{O}_3$  (PZT) yang menggunakan metode **dc unbalanced magnetron sputtering**.

Film tipis ferroelektrik  $\text{PbZr}_{0,625}\text{Ti}_{0,375}\text{O}_3$  (PZT) dideposisi pada temperatur substrat  $550^\circ\text{C}$ - $650^\circ\text{C}$  di atas substrat kristal silikon (100) pada kondisi annealing dan tanpa annealing. Aliran gas yang digunakan  $\text{Ar}/\text{O}_2 = 50 : 10$ , tekanan awal 0,051 Torr, dan tekanan deposisi 1,3 Torr. Untuk kondisi annealing menggunakan temperatur  $650^\circ\text{C}$  pada tekanan 0,58 Torr.

Dari hasil XRD diketahui bahwa dengan annealing orientasi kristal film tipis akan semakin teratur. Beberapa orientasi kristal yang muncul pada film dengan perlakuan tanpa annealing akan hilang setelah dilakukan annealing. Hal ini dapat dilihat juga pada morfologi bentuk butiran (grain) polikristal PZT dari hasil karakterisasi SEM.

**Kata Kunci** : PZT, film tipis, annealing, sputtering

**Abstract**

Ferroelectric materials have many advantages including microactuator (piezoelectric properties), Dynamic Random Access Memory, DRAM (permittivity and polarisability) and infrared sensor (pyroelectric properties).  $\text{PbZr}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_3$  (PZT) is ferroelectric materials, that can be piezoelectric and pyroelectric materials. In this experiment, annealing effect on growing process of thin films  $\text{PbZr}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_3$  (PZT) using **dc unbalanced magnetron sputtering** is studied.

PZT thin films were deposited at temperature  $550^\circ\text{C} - 650^\circ\text{C}$  on Si (100) substrate with annealing condition and without annealing condition. Ratio of gas flow  $\text{Ar}/\text{O}_2$  was 50 sccm : 10 sccm, basic pressure was 0.051 Torr, and deposition pressure was 1.3 Torr. Annealing temperature was  $650^\circ\text{C}$  at pressure 0.58 Torr.

The XRD results showed that annealing process caused crystal orientation of thin films more ordered. Some orientations that appear in the results without annealing process disappear after annealing process. This can also be seen in the morphological form of grain size PZT obtained from SEM characterization.

**Keywords** : PZT, thin films, annealing, sputtering.

**1. Pendahuluan**

Ferroelektrik merupakan kelompok material elektronik khususnya dielektrik yang mempunyai polarisasi spontan serta mempunyai kemampuan merubah polarisasi internalnya dengan menggunakan medan listrik yang sesuai. Pada perkembangannya, tahun 60-an sampai 70-an bahan ferroelektrik lebih banyak dibuat dalam bentuk kristal tunggal maupun bulk. Namun sepuluh tahun terakhir terjadi paradigma baru dalam fabrikasi, yaitu dalam bentuk lapisan tipis (*thin film*). Penggunaan untuk fabrikasi

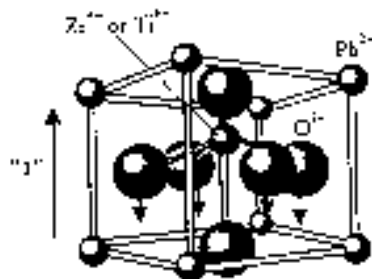
dalam bentuk film tipis sangat luas, karena sifat-sifat bahan ferroelektrik dapat dimodifikasi sesuai kebutuhan serta mudah diintegrasikan dalam bentuk divais<sup>1</sup>. Beberapa aplikasi film tipis ferroelektrik diantaranya sebagai lapisan penyangga (*buffer layer*), transduser, saklar, sensor, kapasitor dan sebagai memori. Penggunaan film tipis ferroelektrik sebagai memori banyak keuntungannya bila dibandingkan sistem magnetik. Sistem magnetik hanya mampu menyimpan  $10^5$  bit/cm<sup>2</sup>, sedangkan memori terbuat dari ferroelektrik mampu menyimpan hingga  $10^8$  bit/cm<sup>2</sup>. Keuntungan lain adalah

sebagai memori permanen yang mampu menekan kehilangan informasi selama proses yang berulang<sup>2,3</sup>.

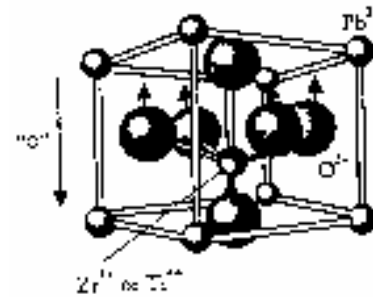
*Lead zirconate titanate*,  $PbZr_{1-x}Ti_xO_3$  (PZT), sangat luas penggunaannya dalam bentuk keramik polikristalin. Dalam divais piezoelektrik PZT digunakan sebagai filter, resonator dan aktuator. Material PZT diketahui sebagai material terbaik piezoelektrik. Sifat-sifat ini pertama kali diselidiki oleh Jaffe dkk (1960)<sup>4</sup>. Material ini memiliki struktur perovskite dengan formula  $ABO_3$ . Di sini oksigen oktahedral memegang peranan penting. A dalam hal ini diisi oleh kation  $Ti^{4+}$  menempati salah satu sudut dari kubus, sedangkan B dalam hal ini diwakili oleh  $Zr^{4+}$  mengisi pusat kubus, sedangkan oksigen mengisi pusat muka dari kubus tersebut. Posisi  $Ti^{4+}$  dan  $Zr^{4+}$  dapat dipertukarkan<sup>5</sup>.

Ketika tegangan negatif dan positif diaplikasikan pada muka-muka berlawanan dari kristal, ion-ion  $Ti^{4+}$  dan  $Zr^{4+}$  berubah posisi di atas atau di bawah, ion-ion  $O^{2-}$  juga turut berputar ke bawah atau ke atas. Pergeseran ion-ion negatif dan positif berhubungan dalam polarisasi bahan-bahan ferroelektrik.

Beberapa metode yang dapat digunakan untuk penumbuhan film tipis PZT di antaranya *Chemical Vapor Deposition* (CVD), *Pulse Laser Ablation Deposition* (PLAD), *Solution gelation* (Sol-gel), *Metalorganic CVD*, dan *sputtering*<sup>6-8</sup>. Keuntungan metode sputtering adalah laju deposisi yang besar, struktur stokiometri yang mudah dikendalikan serta dapat dilakukan dalam temperatur rendah maupun tinggi. Khususnya penggunaan *DC unbalanced magnetron sputtering* di samping mempunyai keuntungan di atas juga mempunyai keuntungan lain yaitu mampu menghindarkan *resputtering* oksigen yang dapat merusak kualitas film yang dihasilkan.



(a)



(b)

Gambar 1. Struktur material ferroelektrik  $PbZr_{1-x}Ti_xO_3$  (PZT)<sup>5</sup> (a) polarisasi ke atas (b) polarisasi ke bawah

Dalam makalah ini akan dibahas efek annealing terhadap struktur film  $PbZr_{1-x}Ti_xO_3$  (PZT), dengan  $x = 0,375$  yang ditumbuhkan dengan metode *DC unbalanced magnetron sputtering* (dc-UBMS) di atas substrat Si(100). Karakterisasi struktur lapisan tipis  $PbZr_{0,625}Ti_{0,375}O_3$  yang dilakukan meliputi struktur kristal dengan metode *X-Ray Diffraction* (XRD) dan morfologi permukaan *Scanning Electron Microscopy* (SEM).

## 2. Eksperimen

Film tipis PZT ditumbuhkan dengan teknik *DC unbalanced magnetron sputtering*. Target dibuat dari campuran  $PbTiO_3$  dan  $PbZrO_3$  yang digerus selama 6-7 jam kemudian ditekan dengan tekanan sebesar  $4,929 \times 10^7$  Pa pada temperatur  $150^0$  C dan sintering pada temperatur  $850^0$  C selama 60 jam. Proses deposisi dan annealing selanjutnya diperlihatkan pada Tabel 1. Film yang dihasilkan mempunyai struktur kristal tetragonal.

Film tipis PZT dianalisa dengan menggunakan difraksi sinar-X pada peralatan XRD merk Diano type 2100E, menggunakan target Cu-K $\alpha$  dengan panjang gelombang 1,5418 Å. Sedangkan karakteristik struktur mikro menggunakan peralatan SEM (*Scanning Electron Microscope*) tipe JEOL seri JSM-35C buatan Jepang.

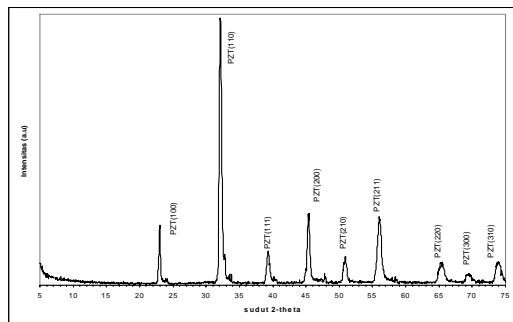
## 3. Hasil dan Pembahasan

Gambar 2 menunjukkan pola XRD serta morfologi permukaan bulk pada PZT(0,375). Puncak-puncak dominan yang tampak (gambar 2a) menunjukkan bulk mempunyai struktur polikristalin. Hal ini terlihat dengan munculnya semua orientasi yang mungkin pada bulk PZT. Dari hasil SEM (gambar 2b) memperlihatkan struktur mikro dari bulk. *Grain size* bervariasi

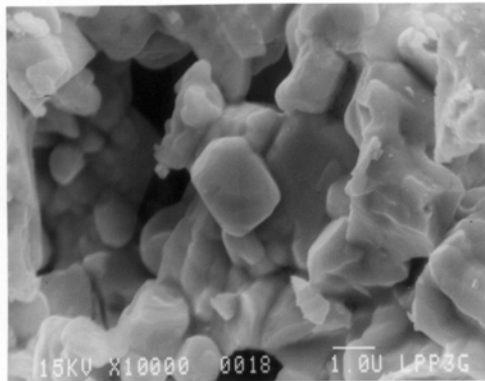
dari ukuran besar sampai kecil. Hal ini mendukung hasil XRD yang menunjukkan bulk mempunyai struktur polikristalin.

Tabel 1. Kondisi deposisi film dengan annealing dan tanpa annealing.

No	T <sub>dep</sub> (°C)	T <sub>ann</sub> (°C)	P <sub>awal</sub> (Torr)	P <sub>dep</sub> (Torr)	P <sub>ann</sub> (Torr)	Ar/O2 (sccm)	Laju Deposisi Å/menit
1	575		0.051	1.3		50/10	1.444 x 10 <sup>-2</sup>
2	575	650	0.051	1.3	0.58	50/10	2.037 x 10 <sup>-2</sup>
3	625		0.051	1.3		50/10	0.452 x 10 <sup>-2</sup>
4	625	650	0.051	1.3	0.58	50/10	1.361 x 10 <sup>-2</sup>



(a)

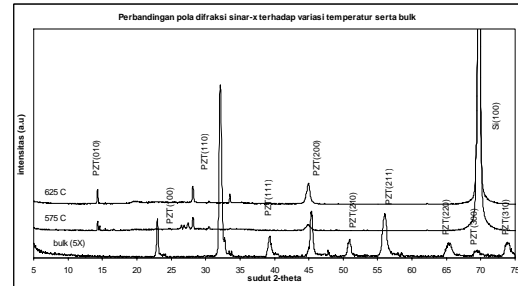


(b)

Gambar 2. Bulk PbZr<sub>0,625</sub>Ti<sub>0,375</sub>O<sub>3</sub> (PZT) (a). Pola Difraksi sinar-X (b) Morfologi permukaan bulk

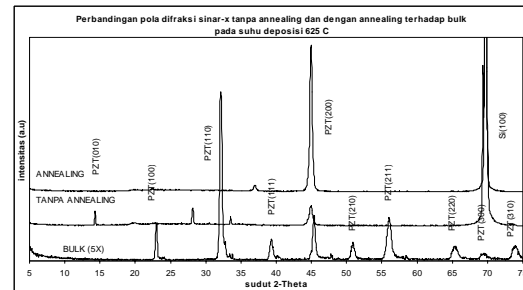
Gambar 3 menunjukkan perbandingan variasi temperatur dari pola difraksi sinar-x PbZr<sub>0,625</sub>Ti<sub>0,375</sub>O<sub>3</sub> (PZT) tanpa annealing yang ditumbuhkan di atas substrat Si(100). Pada kondisi tanpa annealing, puncak-puncak yang dominan terletak di (010), (110) dan (200). Dengan meningkatkan temperatur deposisi intensitas orientasi kristal yang dominan (200) dari film tipis dengan perlakuan tanpa annealing

semakin tinggi. Kristalinitas film diperbaiki seiring dengan peningkatan temperatur deposisi.

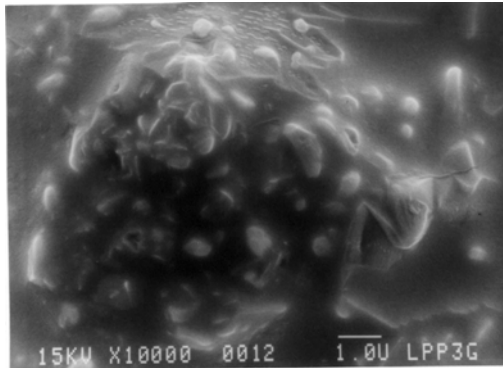


Gambar 3. Pola difraksi sinar-x film tipis PbZr<sub>0,625</sub>Ti<sub>0,375</sub>O<sub>3</sub> (PZT) perlakuan tanpa annealing dengan variasi temperatur penumbuhan.

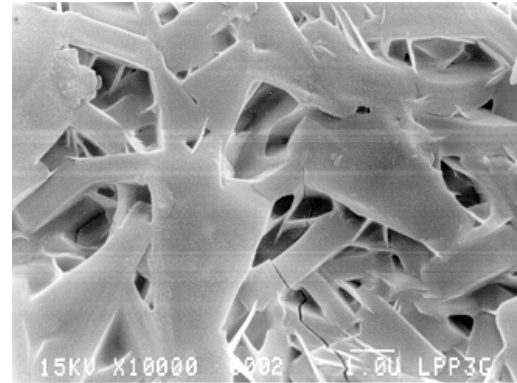
Gambar 4 memperlihatkan perbandingan perlakuan tanpa annealing dengan annealing pada film tipis PbZr<sub>0,625</sub>Ti<sub>0,375</sub>O<sub>3</sub> (PZT) pada temperatur deposisi 625°C. Orientasi (010) dan (110) yang terdapat pada film dengan perlakuan tanpa annealing menjadi hilang setelah dilakukan annealing sedangkan orientasi (200) semakin tinggi intensitasnya. Fungsi annealing pada variasi suhu adalah agar film yang terbentuk menuju kristal yang orientasinya sesuai dengan orientasi kristal substrat dan karena faktor annealing yang menyebabkan orientasi (010) dan (100) menghilang.



Gambar 4. Pola difraksi sinar-x film tipis PbZr<sub>0,625</sub>Ti<sub>0,375</sub>O<sub>3</sub> (PZT) untuk perlakuan tanpa annealing dan annealing pada temperatur 625°C

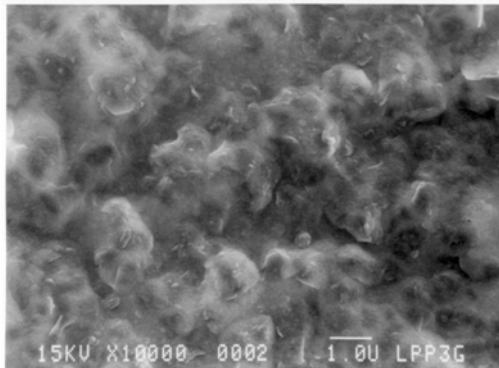


(a)



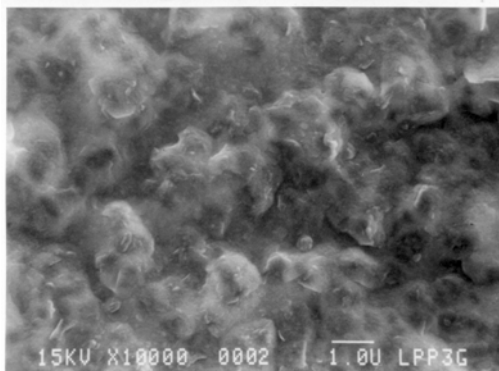
(b)

Gambar 6. Perbandingan morfologi film tipis  $\text{PbZr}_{0.625}\text{Ti}_{0.375}\text{O}_3$  (PZT) pada temperatur deposisi  $625^\circ\text{C}$ . (a). tanpa annealing (b). dengan annealing



(b)

Gambar 5. Perbandingan morfologi film tipis  $\text{PbZr}_{0.625}\text{Ti}_{0.375}\text{O}_3$  (PZT) dengan perlakuan tanpa annealing. (a) temperatur  $575^\circ\text{C}$  (b) temperatur  $625^\circ\text{C}$



(a)

Gambar 5 memperlihatkan variasi temperatur dari struktur mikro permukaan film tipis yang dideposisi tanpa perlakuan annealing. Pada suhu tinggi, ukuran butiran tampak lebih beraturan dibanding dengan suhu yang rendah. Ukuran butiran lebih bervariasi pada suhu rendah. Kenaikan temperatur mempengaruhi bentuk ukuran butiran dari struktur film dengan perlakuan tanpa annealing. Semakin tinggi temperatur deposisi, semakin teratur bentuk ukuran butiran dari kristal film tanpa annealing yang bersangkutan.

Keberadaan annealing mempengaruhi bentuk ukuran butiran dari film serta kerapatan film<sup>9)</sup>. Gambar 6 memperlihatkan morfologi perbandingan perlakuan tanpa annealing dengan annealing pada film tipis  $\text{PbZr}_{0.625}\text{Ti}_{0.375}\text{O}_3$  (PZT) pada temperatur deposisi  $625^\circ\text{C}$ . Perlakuan annealing mempengaruhi ukuran butiran dari film, butiran menjadi lebih rapat/kompak, teratur dan homogen. Dengan demikian keberadaan annealing meningkatkan homogenitas dan kerapatan butiran kristal dalam film.

#### 4. Kesimpulan

Film tipis  $\text{PbZr}_{0.625}\text{Ti}_{0.375}\text{O}_3$  yang ditumbuhkan diatas substrat Si(100) mempunyai struktur kristal tetragonal. Perbaikan kristalinitas film dipengaruhi oleh peningkatan temperatur deposisi. Hal ini ditunjukkan dengan meningkatnya intensitas orientasi kristal yang dominan (200) dari film tipis dengan perlakuan tanpa annealing. Bentuk ukuran butiran dari struktur film dengan perlakuan tanpa annealing juga dipengaruhi oleh peningkatan temperatur, semakin tinggi temperatur deposisi semakin teratur bentuk ukuran butiran dari kristal film.

Intensitas orientasi kristal yang dominan (200) dari film semakin dipertinggi dengan adanya annealing. Peningkatan intensitas puncak menunjukkan peningkatan kristalinitas dalam film. Disamping itu, keberadaan annealing juga mempengaruhi ukuran butiran dari film, butiran menjadi lebih rapat/kompak, teratur dan homogen. Hal ini menunjukkan bahwa dengan adanya annealing homogenitas dan kerapatan butiran kristal dalam film semakin ditingkatkan. Dengan adanya annealing kualitas film khususnya kualitas kristal dalam film tipis akan semakin ditingkatkan.

#### Ucapan Terimakasih

Ucapan terima kasih disampaikan kepada Pimpinan Proyek Center Grant Batch III Laboratorium Fisika Material Elektronik Jurusan Fisika ITB dengan nomor kontrak: 008/C6/III/URGE/1997 dan Pimpinan Proyek Hibah Tim penelitian Pasca sarjana Batch IV tahun 1999 dengan nomor kontrak 019/HTTP-IV/URGE/1999, yang telah membantu fasilitas peralatan dan bahan dalam pelaksanaan penelitian ini.

#### Daftar Pustaka

1. Jack C. Burfoot, *Ferroelectric*, D. Van Norstrand Company, Canada, 1967.
2. M.E. Lines and A.M. Glass, *Principles and Application of Ferroelectric and Related Materials*, Clarendon Press, Oxford, 1979.
3. Franco Jona and G. Shirane, *Ferroelectric Crystals*, Dover, U.S.A, 1993.
4. Takashi Yamamoto, *Ferroelectric Properties of the PbZrO<sub>3</sub>- PbTiO<sub>3</sub> System*, Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 35(1996) pp.5104 – 5108.
5. O. Auciello, J.F. Scott and R Ramesh, *The Physics of Ferroelectric Memories*, Physics Today, July 1998.
6. T Asakura, K Ishikawa, A Sato and M Okada, *Preparation and Pyroelectric Characteristics of Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> Thin Films Grown by Metalorganic Chemical Vapor Deposition*, Jpn J. Appl. Phys. Vol.35 (1996) pp 4886-4889, Part I, No 9B, September 1996.
7. Carloz Pazde Araujo, Jame F. Scott and George W. Taylor, *Ferroelectric Thin Film: Synthesis and Basic Properties*, OPA, Amsterdam, 1996.
8. M. Sayer and V. Chivucula, *Handbook of Thin Film Process Technology*, 1996.
9. Y. Shimakawa and Y. Kuba, *Crystal structure and ferroelectric properties of SrBi<sub>2</sub>Ta<sub>2</sub>O<sub>9</sub> and Sr<sub>0.8</sub>Bi<sub>2</sub>Ta<sub>2</sub>O<sub>9</sub>*, Appl. Phys. Lett., vol. 74, pp 1904 – 1909, March, 1999.