

PENUMBUHAN DAN KARAKTERISASI FILM TIPIS ZnO YANG DIDEPOSISI DENGAN TEKNIK SPIN COATING DI ATAS SUBSTRAT SILIKON

Andi Suhandi dan Yuyu R. Tayubi

Program Studi Fisika FPMIPA, Universitas Pendidikan Indonesia

Jl. Dr. Setiabudhi 229, Bandung 40154

e-mail: a_bakrie@yahoo.com

Diterima: 15 Nopember 2013

Diperbaiki: 20 Januari 2014

Disetujui: 21 Pebruari 2014

ABSTRAK

PENUMBUHAN DAN KARAKTERISASI FILM TIPIS ZnO YANG DIDEPOSISI DENGAN TEKNIK SPIN COATING DI ATAS SUBSTRAT SILIKON. Telah dilakukan deposisi film tipis ZnO di atas substrat Si (001) dengan teknik *spin coating*, sebagai kandidat lapisan anti refleksi sel surya silikon. *Zinc acetate dehydrate*, *2-methoxyethanol* dan *monoethanolamine* berturut-turut digunakan sebagai material dasar, pelarut dan penstabil. Kekristalan film tipis ZnO hasil deposisi dikarakterisasi menggunakan *X-Ray Diffractometer (XRD)*. Hasil karakterisasi *XRD* menunjukkan bahwa puncak intensitas pola difraksi sinar-X terjadi pada 2-theta sekitar 34,40 derajat, bersesuaian dengan orientasi bidang kristal (002). Hal ini menunjukkan bahwa film tipis ZnO hasil deposisi memiliki orientasi kristal tunggal ke arah sumbu-c, vertikal terhadap permukaan silikon. Kualitas kekristalan film tipis ZnO ditentukan berdasarkan nilai *Full Width at Half Maximum (FWHM)* puncak intensitas pola difraksi sinar-X dan ukuran rata-rata butir kristal. Nilai *FWHM* ditentukan dengan bantuan *software Microcal Origin* sedangkan ukuran rata-rata kristal dihitung dengan menggunakan formula *Debye-Scherrer* berdasarkan data hasil karakterisasi *XRD*. Hasil perhitungan menunjukkan bahwa *FWHM* film tipis ZnO yang dideposisi pada temperatur 700 °C nilainya relatif kecil yaitu sekitar 0,39 nm dan ukuran rata-rata kristalnya sekitar 21,33 nm. Hal ini menunjukkan bahwa dari segi kekristalan film tipis ZnO hasil deposisi memiliki kualitas yang cukup baik. Nilai *FWHM* dan ukuran rata-rata butir kristal film tipis ZnO nilainya berubah ketika temperatur deposisi (T) diubah.

Kata kunci: Film tipis ZnO, *FWHM*, Ukuran butir, *Spin coating*, Temperatur deposisi

ABSTRACT

GROWTH AND CHARACTERISTICS OF ZnO THIN FILMS DEPOSITED BY SPIN COATING TECHNIQUE ON THE SILICON SUBSTRATE. Deposition of ZnO thin films on the silicon (001) substrate by spin coating technique, as a material candidate for anti-reflection coating of silicon solar cells have been done. *Zinc acetate dehydrate*, *2-methoxyethanol* and *monoethanolamine* used as a base material, solvent and stabilizer, respectively. Crystallinity of deposited ZnO thin film was characterized using *X-Ray Diffraction (XRD)*. The results showed that the peak intensity of X-Ray diffraction pattern occurs at 2-theta approximately 34.40 degrees, corresponding to the orientation of the crystal planes (002). This indicates that the deposited ZnO thin film has a single crystal orientation in c-axis direction vertical to the silicon surface. Crystalline quality of ZnO thin films is determined by the value of *FWHM* (Full Width at Half Maximum) peak intensity of X-ray diffraction pattern and the average of grain size. *FWHM* values determined with *Microcal Origin* software whereas the average grain size calculated using *Debye-Scherrer* formula based on the *XRD* data. The results showed that the *FWHM* value of ZnO thin films that was deposited at a temperature of 700 °C is relatively small at around 0.39, and the average grain size is about 21.33. This result shows that the deposited ZnO thin film have a good crystalline quality. The *FWHM* value and the average of grain size of the ZnO thin film change when the temperature of deposition (deposition temperature) is changed.

Keywords: ZnO thin film, *FWHM*, Grain size, Spin coating, Deposition temperature

PENDAHULUAN

Sel surya yang saat ini beredar di pasaran dan banyak digunakan untuk berbagai keperluan, sebagian besar dibuat dari bahan silikon. Bahan ini menjadi pilihan karena harganya relatif murah, serta ketersediannya di alam cukup melimpah. Kendala utama yang menyebabkan penggunaan sel surya sebagai sumber energi saat ini masih sangat terbatas dan kalah kompetitif dengan sumber energi lain adalah masalah rendahnya efisiensi konversi energi. Rendahnya efisiensi konversi telah menyebabkan harga pemasangan panel surya menjadi jauh lebih mahal dibanding dengan biaya untuk penggunaan sumber energi lain. Secara teoritis, potensi efisiensi konversi maksimum yang dapat dicapai surya silikon adalah sekitar 29%. Namun pada kenyataannya efisiensi konversi sebesar ini tidak pernah dicapai.

Selama bertahun-tahun efisiensi konversi sel surya silikon yang tersedia dan dijual secara komersial tidak berubah pada angka 14% hingga 15%. Keterbatasan ini terjadi akibat adanya berbagai mekanisme kehilangan energi foton pada saat konversi energi berlangsung. Pertama, kehilangan energi foton akibat sebagian foton datang dipantulkan kembali oleh permukaan depan sel surya. Kedua, kehilangan foton yang energinya di atas *bandgap* silikon berubah menjadi energi panas. Ketiga, kehilangan energi foton yang energinya di bawah *bandgap* silikon yang sel surya bersifat transparan terhadap foton ini tidak dikonversi menjadi energi listrik. Kemudian yang keempat, kehilangan energi akibat terjadinya rekombinasi radiatif dan *Auger*. Energi yang hilang akibat pemantulan foton datang oleh permukaan sel surya silikon diperkirakan sekitar 3,6%, kemudian energi yang hilang akibat rekombinasi pembawa muatan diperkirakan sekitar 2%, dan energi yang hilang akibat rekombinasi pada kontak-kontak metal dan kerugian resistif diperkirakan sekitar 8,6%. Kuantitas foton yang dipantulkan kembali oleh permukaan depan sel surya silikon cukup besar yaitu bisa mencapai 35% dari keseluruhan foton yang datang [1].

Sejumlah konsep untuk mereduksi kehilangan tersebut telah diajukan dengan tujuan meningkatkan efisiensi konversi sel surya silikon hingga mendekati nilai efisiensi konversi teori (29%). Salah satunya adalah konsep penggunaan lapisan antirefleksi pada permukaan sel surya untuk mereduksi foton yang dipantulkan kembali ke atmosfer [2]. Lapisan antirefleksi yang biasa digunakan pada industri sel surya berbasis silikon adalah titanium oksida (TiO_2). TiO_2 dipilih karena harganya murah dan pelapisannya dapat dilakukan dengan teknik yang sederhana yaitu menggunakan teknik *screen printing* sehingga mudah diterapkan untuk industri [3]. Namun kekurangannya bahan ini bersifat racun (toksik). Sebagai alternatif seng oksida (ZnO) berpotensi sebagai lapisan antirefleksi pada sel surya silikon karena memiliki indeks bias sekitar 2, celah pita energi yang lebar yaitu antara 3,3 hingga 3,7 eV, bersifat

transparan pada cahaya tampak serta memiliki sifat adhesi dan kekerasan yang kuat. Kelebihan antirefleksi berbahan dasar ZnO dibanding TiO_2 yaitu sifat toksisitasnya yang lebih rendah dan lebih mudah diperoleh di pasaran dengan harga yang relatif lebih murah [4,5].

Hingga saat ini film tipis ZnO banyak dipabrikasi dengan berbagai teknik/metode deposisi yang kompleks dan biayanya mahal, seperti teknik *Chemical Vapor Deposition (CVD)*, *Pulsed Laser Deposition (PLD)*, *Molecular Beam Epitaxy (MBE)*, dan *Sputtering* [6-8]. Selain itu tahun terakhir ini telah dikembangkan teknik deposisi sederhana dan berbiaya murah, seperti *spray pyrolysis*, *dip coating*, *screen printing* dan *spin coating* [9-13]. Diantara teknik-teknik tersebut teknik *spin coating* memiliki keuntungan dapat menghasilkan lapisan tipis dalam area yang cukup luas, adanya kemudahan dalam mengontrol tingkat *doping*, konsentrasi dan kehomogenan larutan, dan dalam prosesnya tidak menggunakan peralatan yang kompleks dan mahal.

Salah satu persyaratan film tipis untuk aplikasi piranti adalah memiliki kualitas kekristalan yang cukup baik. Orientasi, homogenitas bidang kristal, dan ukuran butir kristal harus memadai. Kualitas kekristalan film tipis yang dideposisi dengan *spin coating* bergantung pada kondisi dan parameter deposisi. Salah satu parameter deposisi adalah temperatur deposisi yang berperan sebagai penyedia energi pada proses pembentukan butir kristal. Penelitian ini dilakukan untuk mendapatkan gambaran tentang pengaruh temperatur deposisi *spin coating* terhadap kualitas kekristalan film tipis ZnO yang dideposisi di atas substrat silikon. Kekristalan film tipis ZnO yang dianalisis meliputi *FWHM* puncak intensitas bidang orientasi dan ukuran butir kristal yang didasarkan pada data hasil karakterisasi *XRD*.

Penelitian ini memaparkan hasil-hasil analisis karakteristik kekristalan film tipis ZnO yang dideposisi dengan teknik *spin coating* pada temperatur yang bervariasi. Analisis kekristalan meliputi nilai *Full Width at Half Maximum (FWHM)* puncak intensitas bidang orientasi dan ukuran butir kristal. Unsur kebaruan dalam penelitian ini adalah terletak pada penggunaan substrat kristal tunggal silikon (001). Pada penelitian-penelitian yang telah dilaporkan sebelumnya, digunakan gelas dan gelas *Fluorine Doped Tin Oxide (FTO)* sebagai substrat untuk deposisi film tipis ZnO dengan teknik *Spin coating*.

METODE PERCOBAAN

Bahan dan Alat

Bahan-bahan yang digunakan dalam deposisi film tipis ZnO dengan teknik *spin coating* adalah *zinc acetate dehydrate* ($\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COOH})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$), *2-methoxy ethanol* dan *monoethanolamine* yang masing-masing berperan

sebagai material dasar, pelarut dan penstabil. Sebagai substrat digunakan kristal tunggal silikon dengan orientasi (001).

Peralatan yang digunakan untuk deposisi film tipis ZnO antara lain alat *spin coater* di laboratorium Fisika Material prodi Fisika FPMIPA UPI (Gambar 1), pengaduk magnetik, *hot plate*, dan *furnace*. Sedangkan untuk karakterisasi kekrystalan film tipis ZnO hasil deposisi digunakan alat *X-Ray Diffractometer (XRD)* merek Phillips *analytical PW1710* dengan sumber radiasi Cu $K\alpha$ ($\lambda = 1.54056 \text{ \AA}$).



Gambar 1. Alat spin coating

Cara Kerja

Mula-mula *zinc acetate dehydrate* dilarutkan dalam campuran *2-methoxy ethanol* dan *monoethanolamine* pada temperatur ruang (300 K). Sol disiapkan dengan cara melarutkan 8,23 gram (0,75 mol) *zinc acetate dehydrate* dengan rasio molar *monoethanolamine* terhadap *zinc acetate dehydrate* ditetapkan dengan perbandingan sebesar 1:1 [13]. Larutan yang dihasilkan kemudian diaduk dengan menggunakan pengaduk magnetik selama 1 jam pada temperatur 333 K untuk mendapatkan larutan yang homogen, bening dan transparan. Larutan ini yang digunakan untuk deposisi lapisan tipis ZnO dengan teknik *spin coating* di atas substrat kristal tunggal silikon (001).

Substrat silikon diletakkan di atas *spin coater*. Satu hingga dua tetes larutan diletakkan di atas substrat dan kemudian substrat diputar dengan laju putar 1500 rpm selama 30 detik hingga terbentuk lapisan tipis cair. Untuk mendapatkan lapisan tipis kering, lapisan tipis cair tersebut kemudian dipanaskan pada suhu 100 °C hingga 150 °C di atas *hot plate* untuk menguapkan bahan pelarut. Lapisan tipis kering yang dihasilkan selanjutnya dipanaskan lagi pada suhu 350 °C dalam *furnace* selama 15 menit untuk mengurai dan menghilangkan komponen organik pada lapisan. Setelah itu lapisan tipis yang diperoleh kemudian dipanaskan pada suhu 600 °C pada *furnace* selama 3 jam untuk mendeposisi lapisan tipis ZnO di atas substrat silikon. Dalam prosesnya *furnace* dinaikkan suhunya secara bertahap dari suhu ruang hingga temperatur deposisi (600 °C) dengan laju kenaikan

suhu 10 K/menit. Setelah mencapai suhu deposisi (600°C), suhu ditahan selama 3 jam. Setelah proses deposisi selesai, temperatur *furnace* diturunkan kembali hingga mencapai temperatur ruang secara perlahan-lahan. Untuk menyelidiki pengaruh temperatur deposisi terhadap kualitas kekrystalan film tipis ZnO, temperatur deposisi divariasikan pada 600°C, 650°C, dan 700°C.

Pengaruh temperatur deposisi terhadap kualitas kekrystalan film tipis ZnO ditinjau dari perubahan nilai *Full Width at Half Maximum (FWHM)* puncak intensitas difraksi sinar-X untuk bidang orientasi tertentu dan perubahan ukuran butir kristal. Nilai *FWHM* dihitung dengan bantuan *software Origin*, sedangkan rata-rata ukuran butir kristal dihitung dengan menggunakan formula *Debye-Scherrer* seperti Persamaan (1) [14].

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

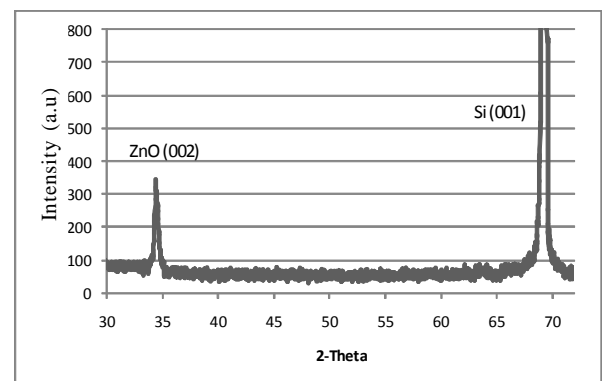
Dimana:

- D = Rata-rata ukuran butir kristal
- λ = Panjang gelombang radiasi sinar-X (0.15406 nm)
- θ = Sudut difraksi *Bragg* dan
- B = Nilai *FWHM* dalam satuan radian

Kualitas kristal yang baik ditandai dengan nilai *FWHM* yang kecil dan ukuran butir yang cukup besar.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Gambar 2 menunjukkan pola difraksi sinar X dari sampel film tipis ZnO yang dideposisi pada temperatur 700°C. Tampak bahwa puncak pola difraksi pada 2θ sebesar 34,40°.

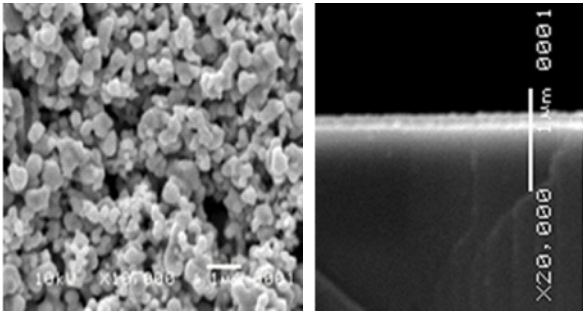


Gambar 2. Pola difraksi Sinar-X lapisan tipis ZnO yang dideposisi di atas silikon pada temperature 700°C.

Hal ini menunjukkan bahwa film tipis ZnO yang dideposisi di atas substrat silikon memiliki orientasi bidang kristal tunggal. Puncak difraksi ZnO pada $2\theta = 34,40^\circ$ bersesuaian dengan orientasi bidang kristal (002) yaitu orientasi sepanjang sumbu-c vertikal terhadap

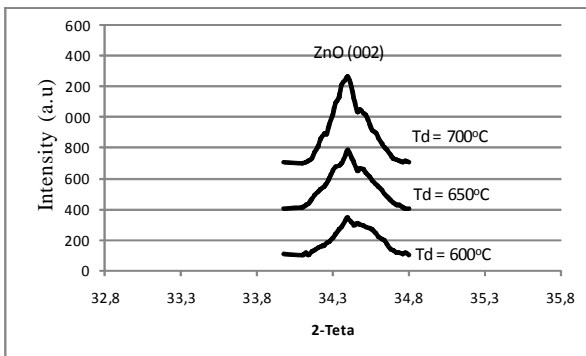
permukaan silikon. Hasil ini lebih baik dibandingkan yang diperoleh peneliti sebelumnya, yang mendapatkan orientasi polikristal meskipun dominan pada bidang (002) [14].

Gambar 3 menunjukkan citra SEM morfologi permukaan dan penampang lintang film tipis ZnO yang dideposisi di atas silikon pada temperatur 700 °C. Tampak bahwa morfologi permukaan ZnO berisi butiran-butiran kecil dan berpori (*granular and porous character*) yang merupakan karakter morfologi permukaan film ZnO. Dari citra penampang lintang, ketebalan film cukup merata sekitar 0,2 µm.



Gambar 3. Citra SEM morfologi permukaan dan penampang lintang film tipis ZnO/Si yang dideposisi pada temperatur 700°C.

Gambar 4 menunjukkan puncak pola difraksi sinar-X bidang (002) untuk film tipis ZnO yang dideposisi pada temperatur yang berbeda-beda. Tampak bahwa dalam rentang temperatur deposisi yang digunakan, puncak intensitas difraksi sinar-X untuk bidang (002) makin tinggi ketika temperatur deposisi ditingkatkan.



Gambar 4. Puncak difraksi XRD bidang (002) film tipis ZnO/Si yang dideposisi pada temperatur yang bervariasi.

Berdasarkan hasil perhitungan dengan menggunakan *software Microcal Origin*, diperoleh nilai *FWHM* untuk setiap puncak difraksi sinar X bidang (002) untuk setiap temperatur deposisi seperti ditunjukkan pada Tabel 1. Tampak bahwa nilai *FWHM* puncak difraksi sinar X bidang (002) nilainya bertambah kecil ketika temperatur deposisi ditingkatkan. Hal ini menunjukkan bahwa ketika temperatur deposisi ditingkatkan maka kualitas kristal film tipis ZnO yang dihasilkan bertambah baik.

Tabel 1. Nilai *FWHM* sebagai fungsi temperatur deposisi

No Sampel	Temperatur Deposisi (°C)	Nilai <i>FWHM</i> (2-Theta)
#1	600	0,50
#2	650	0,44
#3	700	0,39

Nilai *FWHM* puncak XRD film ZnO pada Tabel 1 dapat dinyatakan dalam satuan radian. Nilai *FWHM* dalam radian untuk puncak difraksi bidang (002) film tipis ZnO yang dideposisi pada temperatur 600 °C, 650 °C, dan 700 °C berturut-turut sebesar $8,72 \times 10^{-03}$, $7,67 \times 10^{-03}$ dan $6,80 \times 10^{-03}$ radian. Sehingga dengan menggunakan formula Debye-Scherrer dapat dihitung ukuran butir kristal film tipis ZnO sebagai fungsi temperatur deposisi seperti ditunjukkan pada Tabel 2.

Tabel 2. Ukuran butir kristal ZnO sebagai fFungsi temperatur deposisi

No Sampel	Temperatur Deposisi (°C)	Ukuran Butir Kristal (nm)
#1	600	16,71
#2	650	18,99
#3	700	21,33

Tampak bahwa ketika temperatur deposisi ditingkatkan ukuran butir kristal juga membesar. Peningkatan ukuran butir kristal film tipis ZnO ketika temperatur deposisi ditingkatkan erat kaitannya dengan menurunnya porositas (ukuran pori) pada film tipis ZnO. Dalam proses deposisi film tipis, temperatur memegang peranan penting, yaitu sebagai penyedia energi dalam koalisi pembentulan pulau-pulau (butir) kristal dari bulir-bulir kristal. Bulir-bulir kristal yang ukurannya kecil-kecil berkoalisi membentuk butir kristal yang ukurannya lebih besar. Ketika temperatur deposisi ditingkatkan maka suplai energi untuk koalisi bulir menjadi cukup besar sehingga dengan demikian akan lebih banyak lagi bulir kristal yang dapat berkoalisi, yang selanjutnya ukuran butir kristal yang terbentuk menjadi lebih besar. Ukuran butir kristal yang diperoleh dengan teknik *spin coating* ini sedikit lebih besar dari yang diperoleh K.A. Salman, dkk, yang berkisar 17,06 dan 17,94 nm [15], namun lebih kecil dari yang diperoleh P. Sewanthi dkk., yang berkisar antara 25-32 nm [16], dan yang diperoleh K. Balachandra dkk., sekitar 43 nm [13].

KESIMPULAN

Telah dilakukan deposisi film tipis ZnO di atas substrat silikon dengan menggunakan teknik *spin coating* dari bahan *zinc acetate dehydrate*, *2-methoxy ethanol* dan *monoethanolamine*. Film tipis ZnO hasil deposisi memiliki orientasi bidang kristal tunggal pada arah (002) searah sumbu-c. Kualitas kekristalan film tipis ZnO bergantung pada temperatur deposisi. Dalam rentang temperatur deposisi yang digunakan dalam penelitian ini, semakin tinggi temperatur deposisi semakin

baik kualitas kekristalan film tipis ZnO yang dihasilkan. Hal ini ditandai dengan bertambah kecilnya nilai *Full Width at Half Maximum (FWHM)* dan bertambah besarnya ukuran butir kristal ZnO ketika temperatur deposisi ditingkatkan.

UCAPAN TERIMAKASIH

Ucapan terimakasih disampaikan kepada penyelenggara Program BANGDOS UPI Tahun 2013 yang telah mendanai kegiatan penelitian ini melalui proyek penelitian Penguatan Kompetensi.

DAFTAR ACUAN

- [1]. S. Eglash. "PHOTOVOLTAICS: Competition improves silicon-based solar cells." Internet: www.laserfocusworld.com/articles/print/volume-45/issue-12/features/photovoltaics-competitionimproves-silicon-based-solar-cells.html. 2009.
- [2]. Y.J. Lee, D.S. Ruby, D.W. Peters, B.B. Mckenzie, and J.W.P. Hsu. "ZnO Nanostructures as efficient antireflection layers in solar cells." *Nano Lett.*, vol. 8, pp. 1501–1505, Apr. 2008.
- [3]. D. Chen. "Anti Reflection (AR) Coatings Made by Sol-gel Process." A Review, *Solar Energy Materials and Solar Cells*, vol. 68, pp. 313-336, jun. 2001.
- [4]. M.H. Aslan, A.Y. Oral, E. Mensur, A. Gul, and E. Basaran. "Preparation of c-Axis-Oriented Zinc-Oxide Thin Films and the Study of Their Microstructure and Optical Properties." *Solar Energy Material and Solar Cells*, vol. 82, pp. 543-552, May 2004.
- [5]. T. Mizuta, T. Ishibasi, T. Minemoto, H. Takakura, and Y. Hamakawa. "Chemical Deposition of Zinc Oxide Thin film on Silicon Substrat." *Science Direct, Thin Solid Films*, vol. 515, pp. 2458-2463, Dec. 2006.
- [6]. N. Nishimoto. "Growth of ZnO Thin Films by Using MOCVD with a High-Speed Rotating Disk Reactor." *Journal of the Korean Physical Society*, Vol. 53, pp. 2951-2954, Nov. 2008.
- [7]. F.Xiua, Z.Yanga, D. Zhaoa, J. Liua, K.A. Alimb, A.A. Balandinb, M.E. Itkisc, R.C. Haddonc. "ZnO growth on Si with low-temperature ZnO buffer layers by ECR-assisted MBE." *Journal of Crystal Growth*, vol. 286, pp. 61–65, 2006.
- [8]. K. Saravanakumar. "Columnar Growth of Nanocrystalline ZnO Thin Films Prepared through RF Magnetron Sputtering." *Adv. Studies Theor. Phys.*, Vol. 5, pp. 143 – 154, Apr. 2011.
- [9]. E.Kärber, T. Raadik, T. Dedova, .Krustok, A. Mere, V. Mikli and M. Krunks. "Photoluminescence of spray pyrolysis deposited ZnO nanorods." *Nanoscale Research Letters*, vol. 6, pp. 1-7, Apr. 2011.
- [10]. N. V. Kaneva, C. D. Dushkin. "Preparation of nanocrystalline thin films of ZnO by sol-gel dip coating." *Bulgarian Chemical Communications*, Vol. 43, pp. 259–26, Apr. 2011.
- [11]. K.Hasan, O.Nur and M.Willander. "Screen printed ZnO UV photoconductive sensor on pencil drawncircuitry over paper." *Applied Physics Letters*, Vol.100, pp. 211104-1 – 211104-3, May 2012.
- [12]. S. Ilican, Y. Caglar, M. Caglar. "Preparation and characterization of ZnO thin films deposited by sol-gel spin coating method." *Journal of Optoelectronic and Advanced Materials*, Vol. 10, pp. 2578 – 2583, Oct. 2008.
- [13]. K. Balachandra Kumar and P. Raji. "Synthesis and Characteristic of Nano Zinc Oxide by Sol Gel Spin Coating." *Recent Research in Science and Technology*, vol. 3, pp. 48-52, 2011.
- [14]. D. B. Cullity. *Elements of X-ray Diffraction*. London : Addison-Wesley, 1959.
- [15]. K. A. Salman, K. Omar, and Z. Hassan. "Effective conversion efficiency enhancement of solar cell using ZnO/PS antireflection coating layers." *Solar Energy* vol. 86, pp. 541–547, Jan. 2012.
- [16]. P. Sewanathi, A. Claude, C. Jayanthi and A. Poiyamozhi. "Instrumentation for fabricating an indigenous spin coating apparatus and growth of zinc oxide thin films and their characterizations." *Advances in Applied Science Research*, vol. 3, pp. 573-3580, 2012.