

# Pengaruh Temperatur Deposisi Terhadap Kualitas Film Tipis Ferroelektrik $Ba_{0,3}Sr_{0,7}TiO_3$

Awitdrus<sup>1</sup>, A. Fuad<sup>2</sup>, M. Barmawi<sup>3</sup>

1. Jurusan Fisika FMIPA Universitas Riau, Pekanbaru

2. Jurusan Fisika PMIPA Universitas Negeri Malang, Malang

3. Jurusan Fisika ITB, Bandung

## Abstrak

Deposisi film tipis ferroelektrik  $Ba_{0,3}Sr_{0,7}TiO_3$  di atas substrat  $Pt/SiO_2/Si$  dan  $Si$  dengan temperatur deposisi 650 °C, 675 °C dan 700 °C dengan metode *Pulse Laser Deposition*. Preparasi target ferroelektrik  $Ba_{0,3}Sr_{0,7}TiO_3$  dimulai dari campuran  $BaCO_3$ ,  $SrCO_3$  dan  $TiO_2$  dengan reaksi padatan, kalsinasi pada temperatur 1100 °C selama 2 jam dan *sintering* pada temperatur 1350 °C selama 4 jam. *In-situ* dan *ex-situ annealing* film tipis ferroelektrik  $Ba_{0,3}Sr_{0,7}TiO_3$  dalam lingkungan oksigen dilakukan pada temperatur 700 °C selama 30 menit dan 850 °C selama 5 jam.

Karakterisasi film tipis ferroelektrik  $Ba_{0,3}Sr_{0,7}TiO_3$  meliputi karakterisasi difraksi sinar X dan *Scanning Electron Microscopy* (SEM). Hasil difraksi sinar X menunjukkan bahwa kualitas film tipis ferroelektrik  $Ba_{0,3}Sr_{0,7}TiO_3$  semakin baik dengan kenaikan temperatur deposisi dan temperatur *annealing* yang diindikasikan dengan munculnya puncak baru, meningkatnya intensitas puncak pada orientasi bidang (200) dan menurunnya nilai *Full Width at Half Maximum*. Hasil karakterisasi SEM menunjukkan adanya butiran-butiran partikel yang semakin berkurang baik ukuran maupun jumlah butiran dengan kenaikan temperatur deposisi.

**Kata Kunci** : Temperatur deposisi, Ferroelektrik  $Ba_{0,3}Sr_{0,7}TiO_3$ , XRD, SEM

## PENDAHULUAN

Ferroelektrik merupakan suatu grup material elektronik yang khusus dengan dielektrik yang terpolarisasi secara spontan dan memiliki kemampuan untuk mengubah arah polarisasi listrik internalnya. Polarisasi yang terjadi merupakan hasil dari penerapan medan yang mengakibatkan adanya ketidaksimetrian struktur kristal pada suatu material ferroelektrik.<sup>1</sup>

Penerapan material ferroelektrik berdasarkan sifat-sifatnya meliputi sifat histeresis dan tetapan dielektrik yang tinggi dapat diterapkan sebagai *Dynamic Random Access Memory* (DRAM), sifat piezoelektrik dapat digunakan sebagai mikroaktuator dan sensor, sifat *polaryzability* dapat diterapkan sebagai *Non Volatile Ferroelectric Random Access Memory* (NVRAM), sifat pyroelektrik dapat diterapkan pada sensor infra merah dan sifat elektro-optik dapat diterapkan pada *switch* termal infra merah.<sup>2</sup>

Material ferroelektrik  $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$  merupakan suatu material yang memiliki tetapan dielektrik yang tinggi. Dengan tetapan dielektrik yang tinggi ini maka material ferroelektrik  $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$  sangat menjanjikan untuk diterapkan sebagai *Ultra Large Scale Integrated Dynamic Random Access Memory* (ULSI-DRAM)<sup>3</sup> dan sebagai *By Pass Capacitor*.<sup>4</sup>

Metode deposisi film tipis material ferroelektrik  $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$  dengan nilai  $x$  yang berbeda atau perbandingan antara  $BaTiO_3$  dan  $SrTiO_3$  di atas substrat yang berbeda telah banyak dilakukan oleh para peneliti, seperti *Metal Organic Decomposition* (MOD)<sup>4</sup>, *Metalorganic Chemical Vapor Deposition* (MOCVD)<sup>5</sup>, *Sputtering*<sup>6,7</sup>, *Molecular Chemical Vapor Deposition* (MCVD)<sup>8</sup>, *Low Pressure Chemical Vapor Deposition* (LPCVD)<sup>9</sup>, *Solution Gelation* (sol-gel)<sup>10</sup>, dan *Pulse Laser Deposition* (PLD).<sup>11-15</sup>

Secara konsep dan eksperimen, PLD adalah suatu metode

deposisi film tipis yang sangat sederhana. Deposisi dengan PLD sangatlah menguntungkan disamping laju penumbuhan yang sangat tinggi, kualitas film yang dihasilkan sangat baik, dapat dibuat film tipis yang multi lapisan dan dapat mendeposisi film tipis secara merata dengan luas area substrat yang besar.<sup>16</sup>

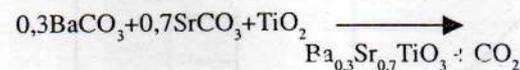
Temperatur deposisi film tipis ferroelektrik  $Ba_{0,3}Sr_{0,7}TiO_3$  dengan menggunakan metode PLD memegang peranan yang sangat penting terhadap kualitas film tipis yang dihasilkan. Temperatur deposisi yang baik berkisar antara 800 °C – 900 °C.<sup>11-16</sup>

## METODE PENELITIAN

Pada dasarnya penelitian ini memiliki 3 (tiga) proses utama, yaitu pembuatan bulk atau target, deposisi film tipis dan karakterisasi film tipis ferroelektrik  $Ba_{0,3}Sr_{0,7}TiO_3$ .

### 1. Preparasi Target Ferroelektrik $Ba_{0,3}Sr_{0,7}TiO_3$

Target ferroelektrik  $Ba_{0,3}Sr_{0,7}TiO_3$  dibuat dari campuran bahan-bahan  $BaCO_3$ ,  $SrCO_3$  dan  $TiO_2$  dengan menggunakan reaksi padatan mengikuti persamaan reaksi



Ketiga bahan dicampur dan digerus agar diperoleh homogenitas yang tinggi. Bahan campuran dikalsinasi pada temperatur 1100 °C selama 2 jam agar terjadi dekomposisi untuk menghilangkan gas karbonat yang terbentuk. Proses *sintering* pada temperatur 1350 °C selama 4 jam.<sup>19</sup>

## 2. Proses Deposisi

Deposisi film tipis ferroelektrik  $Ba_{0.3}Sr_{0.7}TiO_3$  dengan menggunakan metode PLD, yang terdiri dari dua perangkat utama, yaitu sumber laser dan *ultra high vacuum chamber* (UHV Chamber). Sumber laser yang digunakan adalah laser Nd:YAG dengan panjang gelombang 355 nm dan laju repetisi 10 pulsa per detik.

Sedangkan UHV chamber dilengkapi dengan seperangkat instrumen pendukung, yaitu : *Rotary holder*, Pompa Vakum, *Pressure meter*, *Heater*, *Temperature controller*, *Mass Flow Controller* dan *shutter*.

Proses deposisi film tipis ferroelektrik  $Ba_{0.3}Sr_{0.7}TiO_3$  mengikuti langkah-langkah sebagai berikut :

### 1. Pra deposisi.

Pra deposisi dimulai dengan pemanasan substrat dan *chamber* divakumkan. Setelah derajat temperatur dan kevakuman telah tercapai maka gas oksigen dialirkan hingga tekanan dinamik *chamber* terpenuhi.

### 2. Deposisi.

Jika parameter-parameter deposisi telah tercapai maka proses deposisi film tipis ferroelektrik  $Ba_{0.3}Sr_{0.7}TiO_3$  dapat dimulai dengan menghidupkan aksi laser pulsa. Sinar laser Nd:YAG akan mengenai permukaan target yang berputar membentuk plasma atau plume.

Tabel 1. Parameter Deposisi.

| Parameter        | Deposisi 1              | Deposisi 2              | Deposisi 3              |
|------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|
| Tekanan Deposisi | $2 \times 10^{-4}$ Torr | $2 \times 10^{-4}$ Torr | $2 \times 10^{-4}$ Torr |
| Temperatur       | 650 °C                  | 675 °C                  | 700 °C                  |
| Aliran $O_2$     | 35 sccm                 | 35 sccm                 | 35 sccm                 |
| Waktu            | 10 menit                | 10 menit                | 10 menit                |

### 3. Annealing.

*In-situ annealing* dalam lingkungan oksigen dilakukan pada temperatur 700 °C selama 30 menit dengan laju aliran oksigen 35 sccm. Setelah *annealing*, aliran gas dihentikan dan dilakukan *cooling down* dengan laju penurunan temperatur -5 °C/menit.

## 3. Karakterisasi

Karakterisasi film tipis ferroelektrik  $Ba_{0.3}Sr_{0.7}TiO_3$  meliputi Difraksi sinar X, dan *Scanning Electron Microscopy* (SEM).

### 1. Difraksi Sinar X.

Dari hasil karakterisasi difraksi sinar X ini dapat ditentukan parameter kisi dengan persamaan :<sup>20</sup>

$$\frac{1}{d^2(hkl)} = \frac{h^2}{a^2} + \frac{k^2}{b^2} + \frac{l^2}{c^2} \quad (1)$$

dengan a, b dan c adalah parameter kisi dan h, k dan l adalah indeks Miller serta d adalah jarak antar bidang yang dapat ditentukan dari hukum Bragg, yaitu :

$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad (2)$$

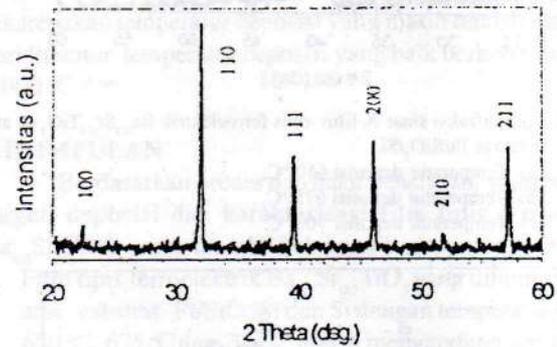
### 2. Scanning Electron Microscopy (SEM).

Karakterisasi SEM dilakukan untuk melihat morfologi permukaan yang meliputi ukuran, bentuk dan kerapatan butiran.

## HASIL PENELITIAN

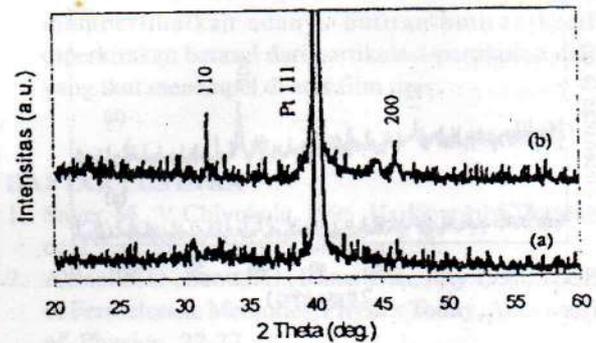
### 1. Difraksi Sinar X

Hasil karakterisasi difraksi sinar X terhadap target ferroelektrik  $Ba_{0.3}Sr_{0.7}TiO_3$  setelah disintering pada suhu 1350 °C ditunjukkan pada gambar 1 di bawah ini.



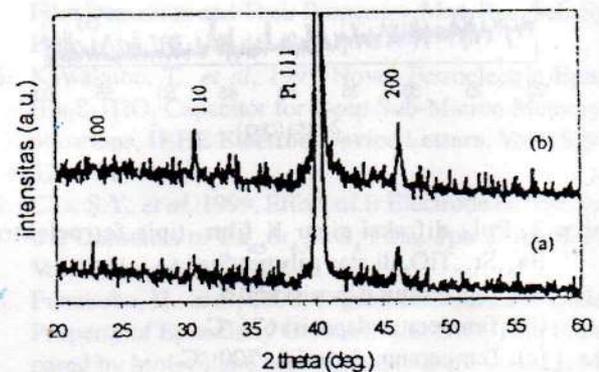
Gambar 1. Pola difraksi sinar X target ferroelektrik  $Ba_{0.3}Sr_{0.7}TiO_3$ .

Hasil karakterisasi difraksi sinar X film tipis ferroelektrik  $Ba_{0.3}Sr_{0.7}TiO_3$  yang ditumbuhkan di atas substrat Pt/SiO<sub>2</sub>/Si ditunjukkan pada gambar 2, sedangkan penumbuhan di atas substrat Si ditunjukkan pada gambar 3. Pada masing-masing gambar di atas dilakukan : (a). *in-situ annealing* 700 °C selama 30 menit dan (b). *ex-situ annealing* 850 °C selama 5 jam.



### 2. Morfologi Permukaan

Hasil karakterisasi *Scanning Electron Microscopy* (SEM) target ferroelektrik  $Ba_{0.3}Sr_{0.7}TiO_3$  diperlihatkan pada gambar 4, sedangkan film tipis ferroelektrik  $Ba_{0.3}Sr_{0.7}TiO_3$  ditunjukkan pada gambar 5.





## PEMBAHASAN

Dari hasil karakterisasi difraksi sinar X terhadap target ferroelektrik  $\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{TiO}_3$  diperoleh enam buah puncak dengan puncak dominan pada sudut  $2\theta$   $32,15^\circ$  dengan orientasi bidang (110). Nilai *full width at half maximum* (FWHM) orientasi bidang (110) adalah  $0,252^\circ$ . Analisis terhadap enam buah puncak yang dihasilkan pada target ferroelektrik  $\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{TiO}_3$  menghasilkan struktur kristal berbentuk kubik yang ditandai dengan nilai-nilai  $h^2 + k^2 + l^2$  dari masing-masing puncak berturut-turut 1,2,3,4,5,6 dan parameter kisinya 3,9303 Å.

Pada film tipis ferroelektrik  $\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{TiO}_3$  yang ditumbuhkan di atas substrat Pt/SiO<sub>2</sub>/Si dan Si dengan temperatur deposisi yang  $650^\circ\text{C}$  masing-masing muncul satu buah puncak dengan orientasi bidang (200). Pada temperatur deposisi  $675^\circ\text{C}$  memiliki satu buah dengan orientasi bidang (200) hanya muncul di atas substrat Pt/SiO<sub>2</sub>/Si, sedangkan pada temperatur deposisi  $700^\circ\text{C}$  hanya muncul satu puncak dengan orientasi bidang (200) baik pada substrat Pt/SiO<sub>2</sub>/Si maupun Si.

Setelah dilakukan *ex-situ annealing* pada  $850^\circ\text{C}$  selama 5 jam, film tipis ferroelektrik  $\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{TiO}_3$  yang ditumbuhkan di atas substrat Pt/SiO<sub>2</sub>/Si dengan temperatur deposisi  $700^\circ\text{C}$  muncul tiga buah puncak dengan orientasi bidang (110), (200) dan (210), sedangkan pada film tipis ferroelektrik  $\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{TiO}_3$  yang lainnya hanya ada dua buah puncak dengan orientasi bidang (110) dan (200).

Kualitas film tipis ferroelektrik  $\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{TiO}_3$  yang dihasilkan bertambah baik setelah dilakukan *ex-situ annealing*. Dari data difraksi sinar X, *ex-situ annealing* meningkatkan kualitas puncak dominan serta memunculkan puncak yang baru. Munculnya puncak yang baru ini mengindikasikan bahwa film tipis ferroelektrik  $\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{TiO}_3$  masih mengandung unsur amorf. Indikasi lain yang menyatakan meningkatnya kualitas film tipis ferroelektrik  $\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{TiO}_3$  ditunjukkan oleh makin mengecilnya nilai FWHM pada substrat Pt/SiO<sub>2</sub>/Si. Nilai FWHM dengan temperatur deposisi  $650^\circ\text{C}$ ,  $675^\circ\text{C}$  dan  $700^\circ\text{C}$  masing-masing bernilai 0,573, 0,510 dan 0,447.

Parameter kisi film tipis ferroelektrik  $\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{TiO}_3$  yang dideposisi pada temperatur  $650^\circ\text{C}$ ,  $675^\circ\text{C}$  dan  $700^\circ\text{C}$  di atas substrat Pt/SiO<sub>2</sub>/Si berturut-turut adalah 3,9579; 3,970 dan 3,9701 Å, dan di atas substrat Si berturut-turut adalah 3,9399; 3,9380 dan 3,9399 Å. Nilai parameter kisi antara target dan film tipis terdapat perbedaan yang signifikan. Perbedaan ini kemungkinan disebabkan oleh penambahan atau kenaikan stoikiometri oksigen untuk film tipis atau terjadinya reduksi tegangan.<sup>11</sup>

Dari hasil karakterisasi SEM terhadap target ferroelektrik  $\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{TiO}_3$  memperlihatkan ukuran butiran sekitar 1 – 2 µm dan cenderung berbentuk kubik. Disamping itu tampak juga adanya porositas. Porositas ini terjadi karena ikatan-ikatan antar partikel belum kuat dan kompak serta belum memiliki kerapatan yang tinggi. Hal ini kemungkinan disebabkan oleh kurangnya tekanan yang diberikan pada saat pengepresan atau temperatur dan waktu sintering yang masih rendah.

Morfologi permukaan film tipis ferroelektrik  $\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{TiO}_3$  yang diperlihatkan seperti pada gambar 5. Gambar 5(a) memberikan informasi terdapatnya butiran-butiran berwarna keputih-putihan dengan ukuran berkisar 0,5 – 2 µm. Gambar 5(b) juga memperlihatkan butiran-butiran yang sama. Sedangkan pada gambar 5(c) masih terdapat butiran-butiran kecil dengan ukuran berkisar 0,5 – 1 µm. Butiran-butiran ini kemungkinan

merupakan butiran-butiran partikulasi dari target yang ikut menempel di atas film tipis. Ini dapat terlihat oleh mata dan berkurang setelah dilakukan *ex-situ annealing*. Bentuk butiran-butiran seperti ini juga dijumpai oleh Chen.<sup>16</sup>

Dari gambar-gambar di atas ukuran maupun bentuk film tipis ferroelektrik  $\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{TiO}_3$  yang terdapat di bawah butiran-butiran belum dapat diprediksi. Hal ini disebabkan oleh butiran film tipis yang sangat kecil dan rapat ini kemungkinan dikarenakan temperatur deposisi yang masih rendah sedangkan dari literatur temperatur deposisi yang baik berkisar antara  $800 - 900^\circ\text{C}$ .<sup>11-16</sup>

## KESIMPULAN

Berdasarkan proses dan hasil penelitian, yaitu preparasi target, deposisi dan karakterisasi film tipis ferroelektrik  $\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{TiO}_3$  maka diambil beberapa kesimpulan, yaitu :

1. Film tipis ferroelektrik  $\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{TiO}_3$  yang ditumbuhkan di atas substrat Pt/SiO<sub>2</sub>/Si dan Si dengan temperatur deposisi  $650^\circ\text{C}$ ,  $675^\circ\text{C}$  dan  $700^\circ\text{C}$  masih mengandung unsur amorf. Hal ini dapat terlihat dari puncak yang muncul hanya dua buah dan intensitasnya masih rendah.
2. Analisis difraksi sinar X diperoleh bahwa struktur kristal berbentuk kubik dengan parameter kisi target sebesar 3,9302 Å dan film tipis ferroelektrik  $\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{TiO}_3$  dengan temperatur deposisi  $650^\circ\text{C}$ ,  $675^\circ\text{C}$  dan  $700^\circ\text{C}$  di atas substrat Pt/SiO<sub>2</sub>/Si berturut-turut 3,9579 Å; 3,9701 Å dan 3,9701 Å sedangkan di atas substrat Si berturut-turut 3,9399 Å; 3,9380 Å dan 3,9399 Å.
3. Morfologi permukaan film tipis ferroelektrik  $\text{Ba}_{0.3}\text{Sr}_{0.7}\text{TiO}_3$  dengan temperatur deposisi  $650^\circ\text{C}$ ,  $675^\circ\text{C}$  dan  $700^\circ\text{C}$  memperlihatkan adanya butiran-butiran kecil yang diperkirakan berasal dari partikulasi-partikulasi dari target yang ikut menempel di atas film tipis.

## DAFTAR PUSTAKA

1. Sayer, M., V. Chivukula, 1995, Handbook of Thin Film Process Technology, IOP Publishing Ltd.
2. Auciello, O., Scott, J.G., Rameh, R., July 1998, The Physics of Ferroelectric Memories, *Physics Today*, American Institut of Physics, 22-27
3. Hwang, C.S., et al., 1998, A Comparative Study on the Electrical Conduction Mechanisms of  $(\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5})\text{TiO}_3$  Thin Film on Pt and IrO<sub>2</sub> Electrode, *Journal of Applied Physics*, Vol. 83 No. 7, 3703-3713
4. Baumert, B.A., et al, 1998, A Study of Barium Strontium Titanate Thin Film for Use in By Pass Capacitors, *J. Mater. Res.*, Vol. 13 No.1, 197-204
5. Gilbert, S.R., et al, 1994, Preparation of  $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$  Thin Film Depositon and Their Properties, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, Vol.335, 41-46
6. Kawakubo, T., et al, 1997 Novel Ferroelectric Epitaxial  $(\text{Ba,Sr})\text{TiO}_3$  Capacitor for Deep Sub-Micron Memory Applications, *IEEE Electron Device Letters*, Vol. 18 No.11, 529-531
7. Cha, S.Y., et al, 1999, Effect of Ir Electrode on The Dielectric Constants of  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$  Film, *Jpn J. Appl. Phys.*, Vol.38 No. 1A/B, L49-L51
8. Funakubo, H., et al, 1998, Crystal Structure and Dielectric Property of Epitaxially Grown  $(\text{Ba,Sr})\text{TiO}_3$  Thin Film Prepared by Molecular Chemical Vapor Deposition, *J. Mater.*

9. Joo, J.H., *et al*, 1997, Improvement of Leakage Current of Pt/(Ba,Sr)TiO<sub>3</sub>/Pt Capacitors, **App. Phys. Lett.**, Vol. 70 No. 22, 3053-3055
10. Wang, F., *et al*, 1998, Ba<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>TiO<sub>3</sub> Ferroelectric Film Prepared with Sol-Gel Process and its Dielectric Performance in Planar Capacitor Structur, **J. Mater. Res.**, No. 5, 1243-1248
11. Knauss, L.A., *et al*, 1996, The Effect of Annealing on The Structure and Dielectric Properties of Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>TiO<sub>3</sub> Ferroelectric Thin Film, **Appl. Phys. Lett.**, 69 (1), 25-27
12. Chen, C.L., *et al*, 1999, Epitaxial of Ferroelectric Ba<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>TiO<sub>3</sub> Thin Film for Room Temperature Tunable Element Applications, **Appl. Phys. Lett.**, 75 (3), 412-414
13. Qadri, S.B., *et al*, 1995, X-Ray Characterization of Extremely High Quality (Ba,Sr)TiO<sub>3</sub> Films Grown by Pulse Laser Deposition, **Appl. Phys. Lett.**, 66 (13),
14. Harkness, S.D., *et al*, 1994, Pulsed Laser Deposition of Epitaxial Ba<sub>x</sub>Sr<sub>1-x</sub>TiO<sub>3</sub>/Yb<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> Bilayers on LaAlO<sub>3</sub> Substrate, **Journal of Electronic Materials**, 23 (9), 875-878
15. Slycke, P., 1999, Growth Study of Pulsed Laser Deposition of Thin Film with Time Resolved RHEED, Thesis, Twente University, Holland,
16. Chisey, D.B., and Hubler, G.K., 1994, Pulsed Laser Deposition of Thin Film, John Wiley & sons, New York.
17. Parker, L.H., and A.F. Tasch, 1990, Ferroelectric Material for 64 MB and 256 MB DRAMs, **IEEE Circuits and Device Magazine**, January Edition
18. Hench, L.L. and J.K. West, 1990, Principle of Electronic Ceramics, John Wiley & sons, Singapore, 237-281.
19. Lemanov, V.V., *et al*, 1996, Phase Transitions and Glasslike Behavior in Sr<sub>1-x</sub>Ba<sub>x</sub>TiO<sub>3</sub>, **Physical Review B**, 54 (5), 3151-3157.
20. Suryanarayana, C. and M.G. Norton, 1998, X-Ray Diffraction: A Practical Approach, Plenum Press, New York.