

FURNACE
JURNAL TEKNIK METALURGI UNTIRTA

Pengaruh Temperatur Substrat Dan Waktu Deposisi Menggunakan Metode Spray Pyrolysis Terhadap Morfologi, Struktur Kristal Dan Sifat Listrik Lapisan Tipis ZnO

Febri Arnanda ^{1*}, Adhitya trenggono ², Yus Rama Denny ¹

¹ Teknik Metalurgi, Fakultas Teknik, Universitas Sultan Ageng Tirtayasa
Jl. Jenderal Sudirman Km 3 Cilegon, Banten 42435, Indonesia

² Lab Functional Material - Cilegon
Banten, Indonesia

*afebriar8@gmail.com

INFORMASI ARTIKEL

Naskah Disetujui April 2019

ABSTRAK

Transparent Conducting Oxide (TCO) is a Transparent conductor that functions as a low-e windows and transparent front electrode. TCO material has the characteristics of low electrical resistivity and high transparency, the TCO made in this study is a Zinc Oxide (ZnO) material. Process variables used in this study include substrate temperature and deposition time. Making ZnO thin films using the spray pyrolysis (Ultrasonic Nebulizer) method. Characterization used in ZnO thin layer samples includes Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersion (SEM-EDS), X-ray Diffraction (XRD) and I-V Meter (picoammeter). The results showed that the morphology of the ZnO thin layer had been formed fairly evenly on the surface of the glass substrate at a temperature of 500C deposition time of 20 minutes and 1000C at the deposition time of 30 minutes. The higher the temperature of the ZnO thin layer does not form on the surface of the glass substrate. The longer the deposition time of 30 minutes the peak intensity is getting better. ZnO thin layer shows hexagonal structure, intensity of dominant peak at orientation (011), ZnO thin layer resistivity temperature 500C $5.6 \times 10^{-10} \Omega \cdot \text{cm}$ and temperature 1000C $2.69 \times 10^{-10} \Omega \cdot \text{cm}$.

Keywords: transparent Conductive Oxide (TCO), Zinc Oxide (ZnO), Spray Pyrolysis, substrat temperature, deposition time.

1. PENDAHULUAN

Sel surya merupakan sebuah hamparan semikonduktor yang dapat menyerap photon dari sinar matahari dan mengubahnya menjadi energi listrik. Dengan perkembangannya sel surya dibagi menjadi beberapa jenis seperti sel surya a-silicon, sel surya CIGS dan sel surya DSSC. Pada setiap komponen Sel surya terdapat TCO (transparent conductive oxide) yang berfungsi sebagai lapisan low-e windows dan elektroda depan yang transparent. Transparent conductive oxide memegang peranan penting untuk pembuatan film tipis berbasis silikon maupun film tipis untuk sel surya berbasis bahan lain hal ini dikarenakan transparent conductive oxide memiliki sifat konduktifitas listrik dan transmitansi yang baik. Beberapa macam transparent conductive oxide telah dibuat untuk sel surya misalnya

indium tin oxide, tin oxide (SnO₂) dan Zinc Oxide (ZnO). Berbagai teknik telah dibuat untuk pembuatan transparent conductive oxide seperti sol gel, spin coating, sputtering, spray pyrolysis dan lain sebagainya (sulaiman,2008).

Seng oksida adalah salah satu kandidat material semikonduktor yang sangat menjajikan untuk diaplikasikan pada berbagai divais mikroelektronik, transparent thin film transistor dan solar cell. ZnO merupakan material semikonduktor dengan tipe-n dengan nilai mobilitas hole berkisar antara 5 – 30 cm²/(V.s). lapisan tipis ZnO biasanya menunjukkan resistivitas rendah yang disebabkan oleh kekosongan vakansi oksigen dan penyisipan (interstisi) Zn karena komposisinya yang non stoichiometric (katsuya tabuchi, 1993).

Spray pyrolysis adalah metoda yang sangat umum digunakan dibanyak industri. Metoda ini diinisiasi oleh atomizer/penyemprotan larutan dalam bentuk droplet ke dalam pemanas, dan akan menghasilkan partikel padatan. Metoda spray pyrolysis mampu mempabrikasi metal, metal oxides atau non-oxides dan partikel nanokomposit bubuk karena metoda ini mampu menghasilkan partikel dengan komposisi dan morfologi partikel yang terkontrol, kristalinitas yang bagus dan ukuran yang seragam. teknik spray pyrolysis memiliki banyak kelebihan diantaranya yaitu, proses deposisi yang mudah, murah, temperatur aplikasi substrat yang tidak terlalu tinggi, area deposisi yang luas dan hasil yang seragam dengan lapisan yang sangat tipis dengan komposisi spesifik serta sifat adhesi yang baik antara substrat dan lapisan yang terdeposisi. Pada proses menggunakan teknik ini meliputi banyak optimisasi parameter proses seperti efek konsentrasi larutan, waktu deposisi, jarak nozzle ke substrat, kecepatan aliran udara dan temperatur substrat yang tentunya sangat mempengaruhi sifat-sifat dari lapisan tipis (nunes p, 1999).

Lapisan tipis ZnO penelitian Uno isah Dkk peningkatan temperatur substrat 300-4500C dapat meningkatkan ukuran kristal yang menunjukkan kristalinitas yang lebih baik sehingga morfologi lapisan tipis menjadi lebih seragam dan padat. Pada penelitian sebelumnya menggunakan spray pyrolysis lapisan tipis ZnO dengan menggunakan temperatur substrat 50 0C waktu deposisi 3 menit memiliki morfologi permukaan lapisan tipis yang tidak merata, susunan atom dalam kristal yang amorf. sehingga taraf pada penelitian ini dengan menggunakan parameter-parameter yang optimal seperti pengaruh temperatur substrat dan waktu deposisi menggunakan metode spray pyrolysis diharapkan mendapatkan lapisan tipis ZnO dengan morfologi, struktur kristal dan sifat listrik yang lebih baik.

2. METODOLOGI PENELITIAN

Bahan dan alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah serbuk zinc acetate dyhidrat $Zn(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O$, quartz glass, deonized water, alkohol, ultrasonic nebulizer, tube furnace, gelas ukur, spatula, termocouple, hot plate, magnetic stirring, timbangan analitik, SEM-EDS, X-ray Diffraction, I-V Meter (elkahfi 100).

Melakukan preparasi dengan pemotongan quartz glass dengan ukuran 2 x 2 cm, membersihkan quartz glass dengan air sabun dan alkohol, dikeringkan kemudian membuat larutan precursor 0.2 M serbuk $Zn(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O$ ditambahkan Deonized water.

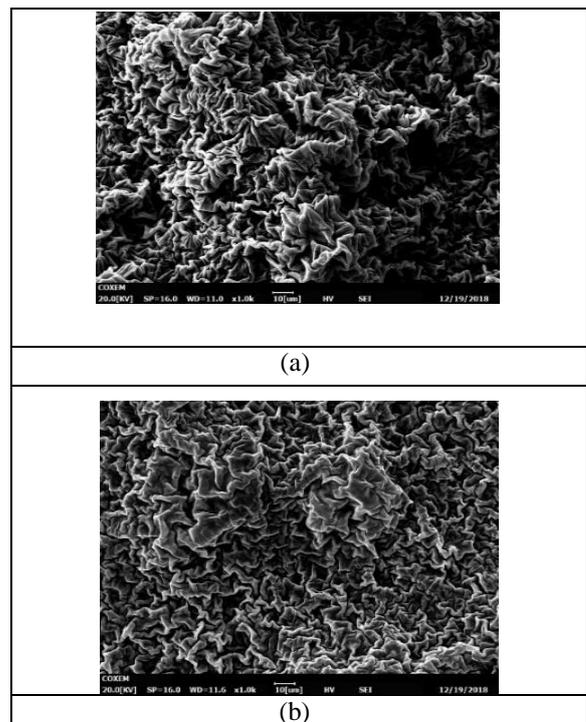
Larutan yang telah dibuat diproses dengan menggunakan metode spray pyrolysis dengan cara disemprotkan, untuk proses deposisi lapisan tipis ZnO ke permukaan quartz glass dengan menggunakan temperatur substrat 50,100, dan 200 0C selama 10,20, dan 30 menit. Kemudian quartz glass yang terlapisi di annealing dengan temperatur 500 0C selama 1 jam di dalam furnace.

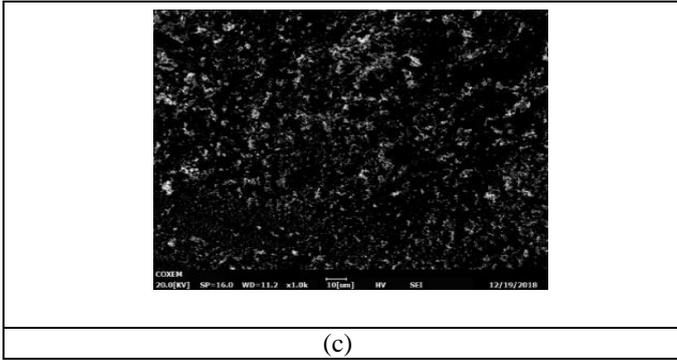
Setelah proses deposisi lapisan tipis ZnO selesai dilakukan dilanjutkan dengan melakukan pengujian morfologi permukaan dengan menggunakan SEM-EDS, struktur Kristal dengan menggunakan X-ray diffraction dan sifat listrik menggunakan I-V meter (picoammeter).

3. HASIL DAN PEMBAHASAN

3.1 Morfologi Lapisan Tipis Zinc Oxide pada Temperatur 500C

Hasil pengamatan dengan SEM-EDS pada gambar 1. dengan temperatur substrat 500C pada variasi waktu deposisi 10,20 dan 30 menit perbesaran 1000X terlihat bahwa lapisan tipis Zinc Oxide pada permukaan substrat telah terbentuk. pada gambar (a) dan (b) mikrostruktur lapisan tipis Zinc Oxide terbentuk seperti mikrostruktur wrinkles yang tidak terputus saling berhubungan, secara keseluruhan gambar (a) dan (b) terlihat bahwa lapisan tipis Zinc Oxide merata, namun berbeda pada gambar (c) dimana morfologi menyerupai struktur nanoparticles yang tidak merata pada permukaan substrat. Pada temperatur substrat 500C waktu deposisi 20 menit hasil lapisan tipis ZnO lebih baik hal ini dapat dikatakan ZnO berdifusi untuk mengisi kekosongan di permukaan lapisan tipis ZnO berbeda halnya pada waktu 10 menit material ZnO masih belum dapat berdifusi dengan baik sehingga masih terlihat adanya gumpalan yang belum merata.

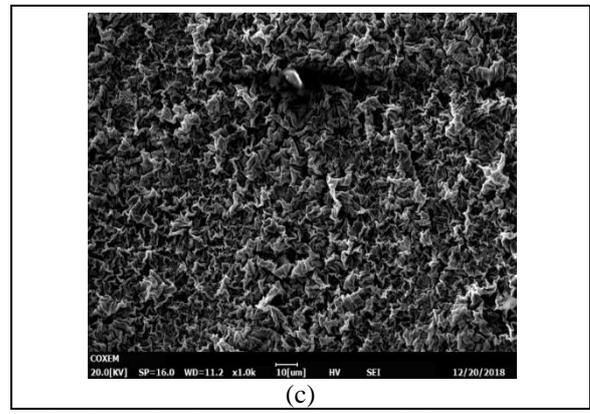
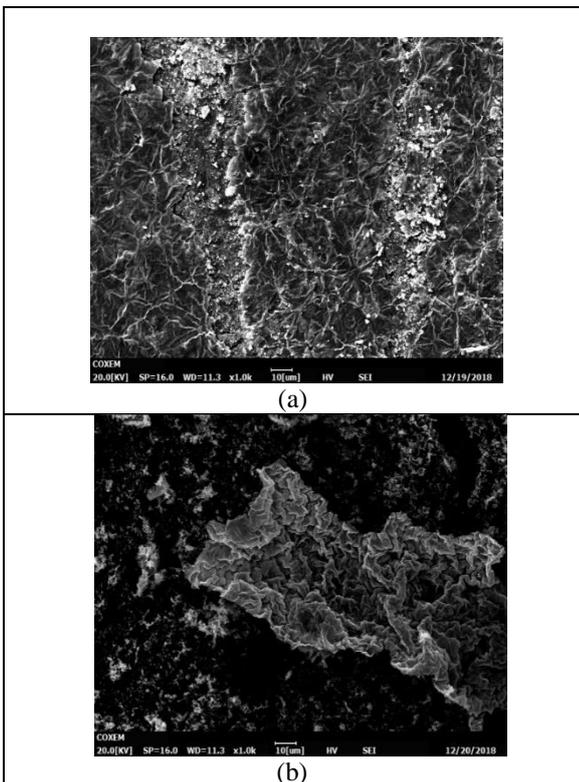




Gambar 1. Morfologi Lapisan Tipis ZnO pada Temperatur 500C dengan waktu deposisi (a)10 menit, (b) 20 menit dan (c) 30 menit

3.2 Morfologi Lapisan Tipis Zinc Oxide pada Temperatur 1000C

Hasil pengamatan dengan SEM EDS dapat dilihat pada gambar 2. dengan temperatur deposisi 1000C pada variasi waktu 10,20 dan 30 menit lapisan Zinc Oxide telah terbentuk di atas permukaan substrat, terlihat bahwa pada gambar (c) dengan variasi waktu 30 menit permukaan morfologi substrat terbentuk mikrostruktur wrinkles yang penyebarannya cukup merata dibandingkan pada gambar (a) dan (b) struktur wrinkles di permukaan tidak merata dimana terlihat jelas masih terdapat porous. pada gambar (b) morfologi tidak merata hal ini bisa saja disebabkan pada saat pendeposisian larutan ke permukaan tidak baik hal ini dapat terjadi kemungkinan larutan pada saat proses deposisi ke permukaan substrat belum tercampur (homogen) dengan baik.

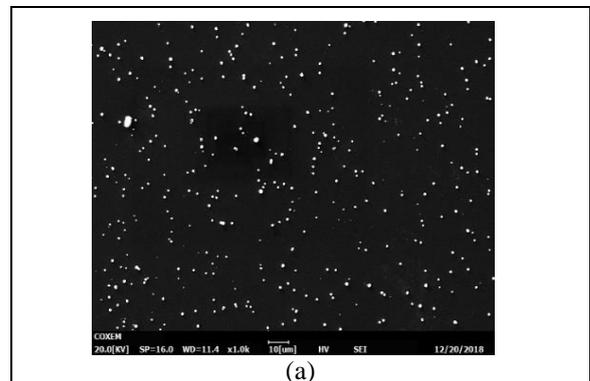


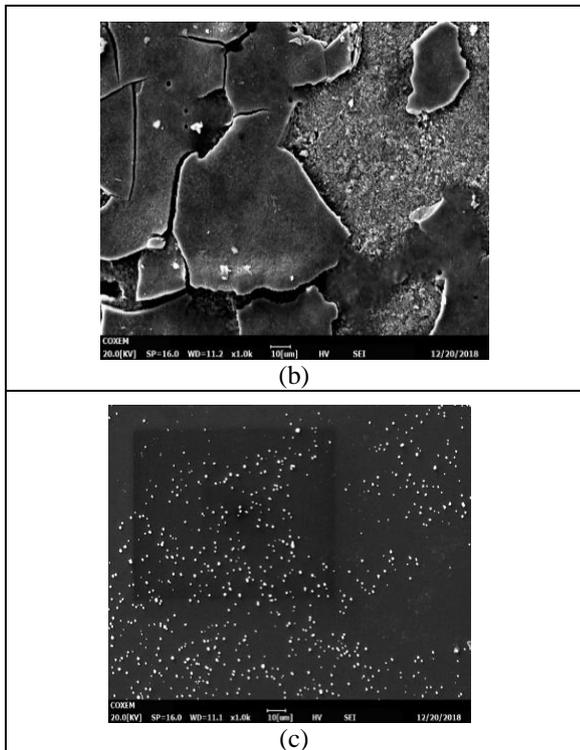
Gambar 2. Morfologi Lapisan Tipis ZnO pada Temperatur 1000C dengan waktu (a) 10 menit, (b) 20 menit dan (c) 30 menit

3.3 Morfologi Lapisan Tipis Zinc Oxide pada Temperatur Substrat 200°C

Hasil pengamatan SEM EDS dengan temperatur substrat 2000C pada waktu deposisi 10,20 dan 30 menit pada perbesaran 1000x. pada gambar (a) dan (c) menunjukkan morfologi lapisan terbentuk seperti bulatan kecil yang tidak merata namun pada gambar (b) morfologi membentuk seperti pulau-pulau hal ini dapat disebabkan karena efek dari *mother droplet*. *Mother droplet* sendiri merupakan peristiwa terjadinya penguapan larutan terlebih dahulu sebelum mencapai ke permukaan substrat selama proses deposisi berlangsung. Sehingga *mother droplet* ini menghasilkan gumpalan-gumpalan yang tidak merata.

(chen,1996). pada temperatur substrat 50⁰C dan 100⁰C dimana lapisan tipis zinc oxide terbentuk, pada gambar 4.4 (a), (b) dan (c) temperatur substrat 200⁰C lapisan tipis zinc oxide tidak terbentuk hal ini didukung dengan hasil grafik SEM EDS pada gambar 4.5 yang menunjukkan bahwa tidak adanya senyawa *zinc oxide* melainkan senyawa SiO yang lebih dominan.

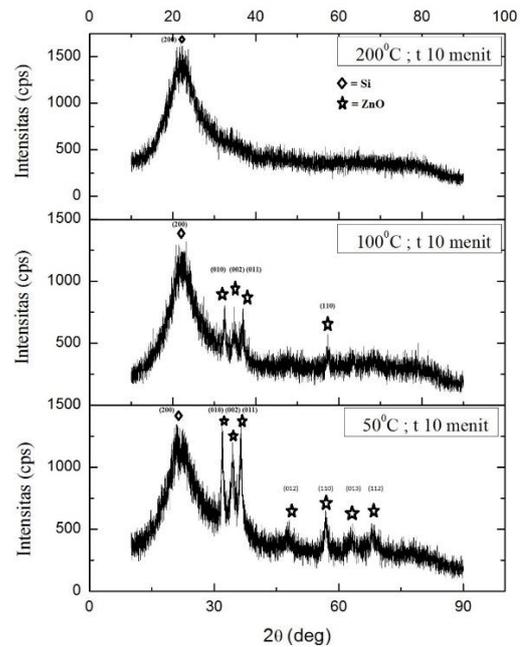




Gambar 3. Morfologi Lapisan Tipis ZnO pada Temperatur 2000C dengan waktu deposisi (a) 10 menit, (b) 20 menit dan (c) 30 menit

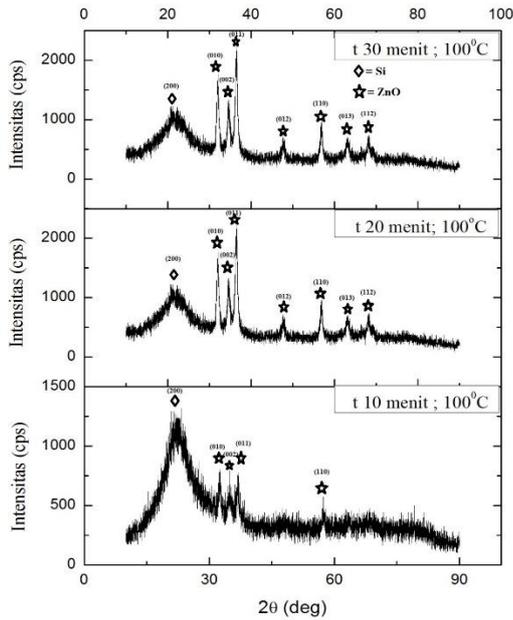
3.4 Hasil Analisa X-ray Diffraction

Analisa XRD untuk lapisan tipis Zinc Oxide telah dilakukan dimana pada gambar 4 menjelaskan pengaruh temperatur deposisi terhadap hasil dari lapisan tipis Zinc Oxide, dari grafik tersebut temperatur yang digunakan 500C, 1000C dan 2000C pada waktu 10 menit menunjukkan bahwa pada temperatur 500C berdasarkan ICSD 98-015-5780 sudut 2-theta 31,930 34,380 36,380, 47,660 56,850 63,040 dan 68,160 dengan orientasi kristal (010),(002),(011),(012),(110), (013) dan (112) menunjukkan peak dari Zinc oxide yang memiliki sistem kristal hexagonal. Pada temperatur 1000C berdasarkan ICSD 98-016-3380 sudut 2-theta 32,510 34,830 36,840 dan 57,310 dengan orientasi kristal 010,002,011 dan 110 menunjukkan peak dari Zinc oxide yang memiliki sistem kristal Hexagonal. Dari grafik hasil x-ray diffraction pada temperatur 500C dan 1000C lapisan tipis ZnO terbentuk di permukaan substrat dengan orientasi kristal yang lebih dominan (011). Namun pada temperatur 2000C berdasarkan ICSD 98-006-2585 sudut 2-theta 21,070 dengan orientasi kristal (200) menunjukkan peak dari Si dari hasil tersebut dapat disimpulkan bahwa semakin tinggi temperatur maka lapisan tipis Zinc Oxide tidak terlalu menempel di permukaan substrat kaca hal ini dapat diakibatkan karena sampel larutan mengalami penguapan sehingga lapisan tipis Zinc Oxide yang di deposisikan tidak menempel dengan baik di permukaan substrat kaca.

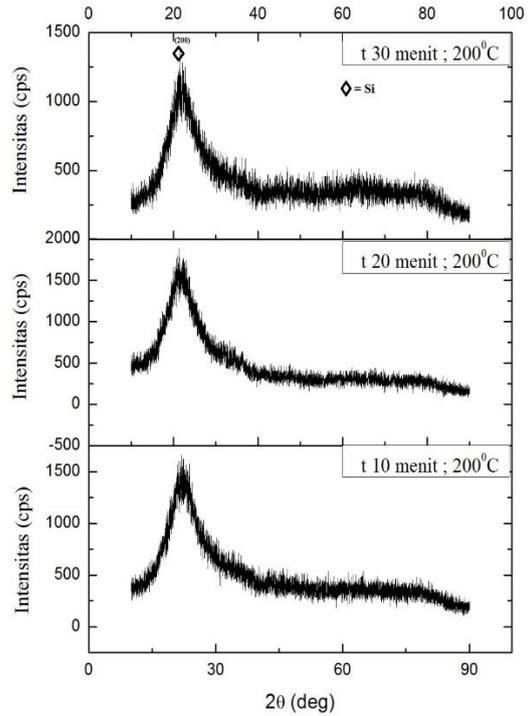


Gambar 4. Hasil Analisa XRD Lapisan tipis ZnO pada Temperatur 500C, 1000C dan 2000C pada Waktu 10 menit

Analisa XRD pada gambar 5 yang menjelaskan pengaruh waktu deposisi terhadap lapisan tipis Zinc Oxide dimana waktu deposisi yang digunakan 10,20 dan 30 menit pada temperatur 1000C. waktu deposisi 10 menit berdasarkan ICSD 98-006-2585 sudut 2-theta 32,510 34,510 36,840 dan 57,310 dengan orientasi kristal (010),(002),(011) dan (110) menunjukkan peak dari Zinc Oxide yang memiliki sistem kristal hexagonal. Waktu deposisi 20 menit berdasarkan ICSD 98-002-9272 sudut 2-theta 32,100 34,760 36,640 48,060 56,920 63,040 dan 68,200 dengan orientasi kristal(010), (002), (011), (012), (110), (013), dan (112) Waktu deposisi 20 menit dari gambar 4.6 temperatur substrat 500C orientasi kristal ZnO lebih dominan pada (011). Waktu deposisi sangat mempengaruhi hasil dari puncak intensitas peak yang menunjukkan semakin banyaknya lapisan tipis ZnO yang telah terbentuk pada permukaan substrat. Berdasarkan penelitian (amma, 2005) variasi spray pyrolysis tidak mempengaruhi pertumbuhan orientasi lapisan, tetapi hanya intensitas puncak peak yang meningkat seiring dengan lamanya waktu deposisi. Pada gambar 5. waktu deposisi mempengaruhi terbentuknya intensitas peak dimana semakin lama waktu deposisi intensitas peak semakin tinggi.



Gambar 5. Hasil Analisa XRD Lapisan tipis ZnO Waktu Deposisi 10,20 dan 30 menit pada Temperatur 1000C



Gambar 6. Hasil Analisa XRD Lapisan tipis ZnO Waktu Deposisi 10,20 dan 30 menit pada Temperatur 200°C

Analisa XRD pada gambar 6. yang menjelaskan pengaruh temperatur substrat 200oC pada waktu deposisi 10,20 dan 30 menit, Berdasarkan ICSD 98-008-5473 sudut 2- theta 21,210 dengan orientasi kristal (200) lapisan tipis ZnO tidak terbentuk di permukaan substrat, menurut (perednius danius 2003) temperatur optimum metode spray pyrolysis dilakukan pada temperatur substrat sekitar 100-5000C untuk menghasilkan lapisan tipis, pada penelitian ini setelah dilakukan variasi temperatur substrat 50,100 dan 2000C menggunakan alat ultrasonic nebulizer dengan metode spray pyrolysis hasil analisa x-ray diffraction pada temperatur 2000C dengan variasi waktu deposisi 10,20 dan 30 menit lapisan tipis ZnO tidak terbentuk di permukaan substrat hal ini berbanding terbalik dengan literatur, setelah dilakukan analisa trial tidak terbentuknya lapisan tipis ZnO pada temperatur 2000C diakibatkan larutan zinc oxide terlebih dahulu mengalami penguapan pada saat dilakukan penyemprotan ke permukaan substrat sehingga lapisan tipis ZnO tidak menempel dengan baik di permukaan substrat.

3.5 Sifat Listrik (resistivitas) Lapisan Tipis ZnO

Lapisan tipis ZnO yang telah di deposisi pada substrat kaca di analisa menggunakan I-V meter untuk menentukan sifat listrik dari hasil sintesis lapisan tipis ZnO. Sifat listrik yang di ukur adalah resistivitas lapisan tipis ZnO. Konduktivitas listrik dalam lapisan tipis ZnO dapat timbul karena komposisi non stoikiometri yang disebabkan oleh kelebihan ion-ion seng (Zn²⁺). Karena kristal bersifat netral, maka kelebihan kation ini akan diimbangi oleh muatan negatif dengan jumlah yang sama yaitu dua elektron. Elektron – elektron ini bebas bergerak di dalam kristal di bawah pengaruh medan luar (wiyanto 1993). Hasil dari penelitian yang di dapat pada temperatur 500C nilai resistivitas lapisan tipis ZnO 5,6 x 10⁻¹⁰ Ω.cm dan pada temperatur 1000C nilai resistivitas lapisan tipis ZnO 2,69 x 10⁻¹⁰ Ω.cm hal ini tidak sesuai dengan literatur yang menyatakan bahwa ZnO memiliki typical resistivitas sebesar 1x10⁻⁴ Ωcm (materion,TCO) untuk itu perlu dilakukan pendoping (dopant) seperti Galium (Ga) dan aluminium (Al).

4. KESIMPULAN

Berdasarkan hasil dari pembahasan dapat disimpulkan bahwa :

1. Morfologi yang di dapatkan lapisan tipis Zinc Oxide cukup merata pada temperatur 500C waktu deposisi 20 menit dan temperatur 1000C waktu deposisi 30 menit
2. Berdasarkan analisa XRD Lapisan tipis Zinc oxide telah terbentuk di permukaan substrat kaca pada temperatur 500C dan 1000C

3. Pengaruh temperatur deposisi terhadap lapisan tipis Zinc Oxide yaitu semakin tinggi temperatur 2000C deposisi lapisan tipis Zinc Oxide tidak terbentuk dengan baik.
4. Pengaruh waktu deposisi terhadap lapisan tipis Zinc Oxide yaitu semakin lama waktu deposisi 30 menit lapisan tipis Zinc Oxide menunjukkan intensitas peak yang semakin baik.
5. Resistivitas lapisan tipis Zinc Oxide yang didapatkan sebesar $5,6 \times 10^{-10} \Omega \cdot \text{cm}$ dan $2,69 \times 10^{-10} \Omega \cdot \text{cm}$

5. SARAN

Adapun saran yang dapat dilakukan pada penelitian lapisan tipis Zinc Oxide :

1. Lapisan tipis Zinc Oxide perlu di lakukan doping seperti Al

6. DAFTAR PUSTAKA

- Arfida Berlina Suryono, Agus purwanto dan dina ratnasari, " Pembuatan nanopartikel Seng Oksida (ZNO) Menggunakan Proses Flame Assisted Spray Pyrolysis (FASP) " Vol 13 No 1 Januari 2014.
- Cahyana and A. Marzuki, "Analisa Sem (Scanning Electron Microscope) Pada Kaca Tzn Yang Dikristalkan Sebagian," No. Isbn 978-602-0960-00-5, 2003.
- Chen, C.H., Kelder, E.M., Van Der Put, P.J.J.M., Schoonman, J.: "Morphology control of thin LiCoO films fabricated using the electrostatic spray deposition (ESD) technique". J. Mater. Chem. 6, 765-771 (1996)
- D. S. D. Amma, V. K. Vaidyan, and P. K Manoj, " Structural Electrical and Optical Studies on Chemically Deposited Tin Oxide Films from Inorganic Precursors", Mater, Chem, Phys 93, no 1, pp 194-201, 2005.
- Eko Juarlin, Paulus Lobo Gareso and Sri Syamsuluri, " Pengaruh Konsentrasi Seng Asetat Dehidrat ($\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) terhadap Sifat Optik dan Struktur Kristal ZnO " Jurusan Fisika, fakultas Matematika dan Ilmu pengetahuan Alam. Universitas Hasanuddin.
- Franz Schrank, J siegert, J Kraft, Dkk, "Modelling Spray Pyrolysis Deposition" Proceeding of the World Congress on Engineering 2013 Vol II, London, U.K.
- Hamedani, H. A., Dahmen, K.-H., Li, D., Peydaye-Saheli, H., Garmestani, H. and Khaleel, M. (2008) Fabrication of gradient porous LSM cathode by optimizing deposition parameters in ultrasonic spray pyrolysis, *Materials Science and Engineering: B*, 153, 1-3, pp. 1-9.
- H. Ruiz, H. Vesteghem, A.R. Di Giampaolo and J. Lira, "Zirconia coatings by spray pyrolysis", *Surface and Coatings Technology*, 89(1-2), p. 77-81, 1997.
- <https://materion.com/-/media/files/advanced-materials-group/me/technicalpapers/transparentconductiveoxidethinfilms.pdf> Transparent Conductive Oxide [Diakses pada 10 Januari 2019]
- Katsuya Tabuchi, wilson W, Wenas, Akira Yamada, optimization of ZnO film for Amorphous Silicon Solar Cells, *jpn, j. Appl. Phys*, Vol 33332,1993, Part 1, No. 9A, 3764-3769.
- Ludwig j Gaucker and Dainius Perednis, "Thin Film Deposition Using Spray Pyrolysis" *Journal of Electroceramics*, 14, 103-111, 2005
- Loffler, J. 2005. "Solar Cells". Tesis. University Utrecht: Belanda.
- M. Hikam, bambang soegijono, erfan handoko Dkk, " Pengaruh Suhu Tumbuh terhadap Sturktur Kristal Lapisan Tipis ZnO 0,02 mol " *Jurnal Fisika dan Aplikasinya*, vol 14 No.1 mei 2013.
- Nunes p, Fernandes b, Fortunato e, Vilarinho p, Martins r. Performances presented by zinc oxide thin films deposited by spray pyrolysis. *Thin Solid Films*. 337: 176-179, 1999.
- Perednis Dainius, "Aplication in Solid Oxide Fuel Cells" Zurich : Dipl. Phys. ETH, 2003
- Sulaiman,syuhada, and dwi bayuwati, "Pembuatan Konduktor Transparan Thin Film SnO2 dengan menggunakan Teknik Spray Pyrolysis" *jurnal Fisika Himpunan Indonesia Volume 8 No 1 juni 2008*.
- Triaminingsih,siti (1998). "Analisa Difraksi Sinar-X pada baja tahan karat austenitik dan feritik".depok: Universitas indonesia
- Wijaya danu (2018), "Pengaruh konsentrasi precursor dan Temperatur Anniling terhadap Struktur Kristal, Morfologi Permukaan Lapisan dan Sifat Optik Lapisan Tipis seng Oksida Melalui Metode Spray Pyrolysis". Cilegon:Banten, Universitas Sultan Ageng Tirtayasa
- Wildan S Nahar. (2015) "Temperatur Controlling on diode characterizat0n" Bandung: Institut Teknologi Bandung.
- Z. . Wang, H. Kawauchi, T. Kashima, and H. Arakawa, " ignificant influence of TiO2 photoelectrode morphology on the energy conversion 27 efficiency of N719 dye-sensitized solar cell," *Coord. Chem*