

# Pengaruh Dadah Ti Terhadap Sifat Optik Lapisan Tipis $In_{2-2x}Ti_{2x}O_3$ yang Ditumbuhkan dengan Teknik *Metal Organic Chemical Vapor Deposition* (MOCVD)

Horasdia Saragih

Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam  
Universitas Advent Indonesia  
Jl. Kolonel Masturi No. 288 Parongpong, Bandung Barat, Indonesia, 40559

[horas@unai.edu](mailto:horas@unai.edu)

## Abstrak

Penumbuhan lapisan tipis  $In_{2-2x}Ti_{2x}O_3$  di atas substrat gelas telah dilakukan dengan teknik metal organic chemical vapor deposition (MOCVD). Prekursor yang digunakan adalah  $In(TMHD)_3$ , Titanium(IV)isopropoxide (TTIP) dan gas  $O_2$ . Parameter optimum penumbuhan dan lapisan tipis  $In_{2-2x}Ti_{2x}O_3$  dengan berbagai ketebalan dan konsentrasi Ti, diperoleh. Sifat optik lapisan dan morfologi butir penyusun lapisan, dianalisis. Seluruh lapisan dengan konsentrasi Ti sampai 5% dan dengan ketebalan sampai 531 nm, transparan pada rentang panjang gelombang sinar tampak dengan transmitansi  $\geq 80\%$ . Elemen dadah Ti memberi pengaruh terhadap tingkat transmitansi, morfologi permukaan dan lebar celah pita optik lapisan. Lapisan tipis  $In_{2-2x}Ti_{2x}O_3$  dengan konsentrasi Ti yang lebih tinggi menghasilkan transmitansi yang lebih rendah, morfologi permukaan yang lebih kasar dan celah pita optik yang lebih besar.

*Kata kunci: Dadah Ti, sifat optik, lapisan tipis,  $In_{2-2x}Ti_{2x}O_3$ , MOCVD*

## PENDAHULUAN

Konduktor lapisan tipis oksida transparan (*transparent conductive oxide*, TCO) telah banyak digunakan sebagai elektroda transparan pada berbagai terapan, seperti pada pembuatan *flat panel display* dan sel surya [1]. Pengembangan penelitian lapisan tipis TCO diarahkan untuk menghasilkan lapisan dengan konduktivitas listrik yang tinggi sekaligus memiliki transparansi yang tinggi pada spektrum sinar tampak. Lapisan tipis TCO dengan konduktivitas listrik dan transparansi optik yang tinggi sangat diperlukan untuk mengembangkan perangkat display dan sel surya yang lebar yang saat ini sangat dibutuhkan. Di lain pihak, pengembangan TCO juga diarahkan untuk meningkatkan transparansi optiknya pada rentang panjang gelombang *near infrared* (NIR) untuk memenuhi kebutuhan pengembangan perangkat *NIR-optoelectronic*.

Lapisan tipis  $In_2O_3$  telah banyak digunakan sebagai TCO pada berbagai aplikasi [2,3].  $In_2O_3$  memiliki transparansi yang tinggi pada spektrum sinar tampak dan dapat dipabrikasi meskipun pada temperatur yang relatif rendah. Untuk meningkatkan konduktivitas listriknya,  $In_2O_3$  selama ini didadah dengan elemen Sn karena dapat meningkatkan jumlah muatan pembawanya [2]. Selain bergantung pada jumlah muatan pembawa, konduktivitas listrik  $In_2O_3$  juga bergantung pada mobilitas muatan pembawa, sementara mobilitas muatan pembawa sangat dipengaruhi oleh kehadiran titik-titik hamburan di dalam material.

Koida dan Kondo [3] melaporkan bahwa pendadahan Sn pada lapisan tipis  $In_2O_3$  menghasilkan jumlah cacat kisi yang sangat besar pada struktur kristal  $In_{2-2x}Sn_{2x}O_3$  karena kehadiran posisi interstisial atom Sn dan atom O yang tak terkendali meskipun ditumbuhkan dengan teknik yang berbeda. Penumbuhan dengan teknik *sputtering* dan *pulsed laser deposition* (PLD) menghasilkan karakteristik yang hampir sama. Jumlah interstisial

atom Sn dan atom O meningkat ketika jumlah atom dadah Sn ditingkatkan sehingga membuat sifat fisis lapisan sulit dikendalikan. Konstanta kisi lapisan tipis  $\text{In}_{2-2x}\text{Sn}_{2x}\text{O}_3$  yang ditumbuhkan dengan metode PLD berkurang ketika nilai  $x$  ditambah dari 0 sampai 0,02 dan kemudian bertambah ketika nilai  $x$  ditambah dari 0,02 sampai 0,07. Kerapatan muatan pembawa berkurang ketika  $x$  lebih besar dari 0,05. Mobilitas muatan pembawa pun menurun ketika nilai  $x$  lebih besar dari 0,005. Hal ini disebabkan oleh titik-titik interstisial yang terbangun di dalam material berperan sebagai pusat-pusat penghambur.

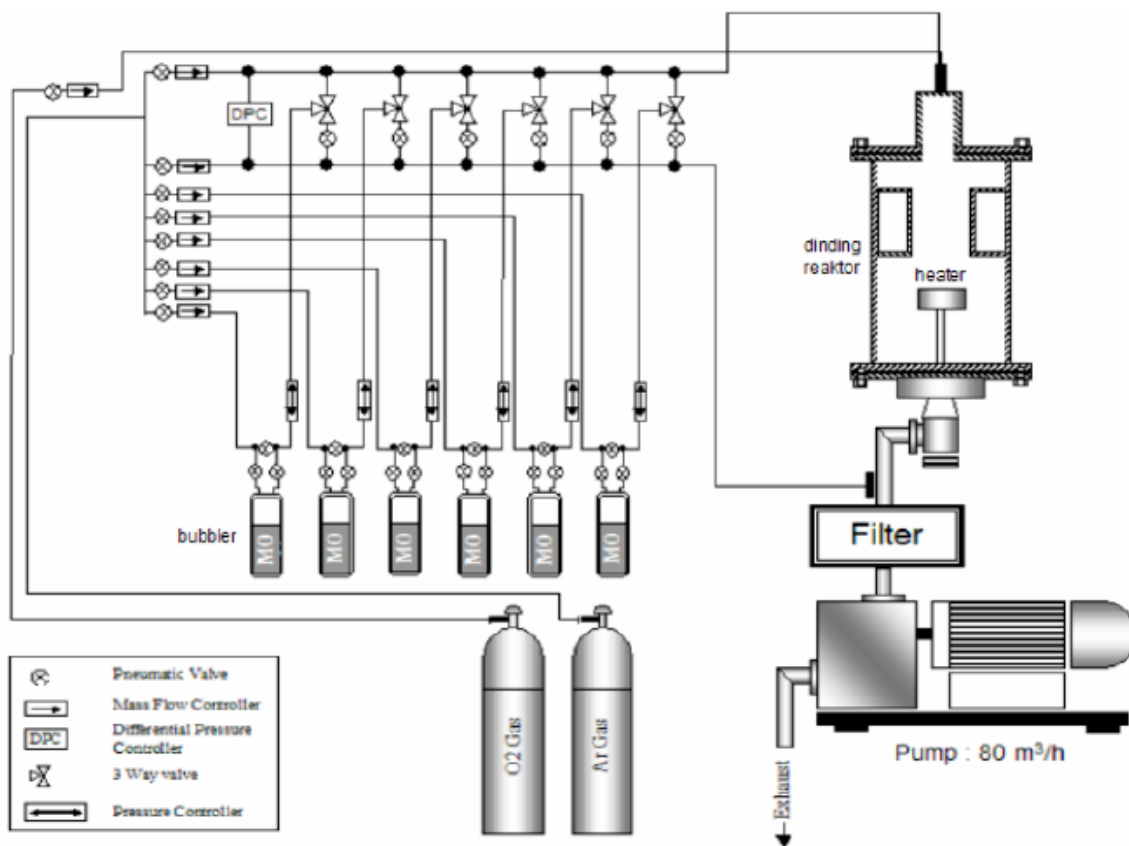
Hashimoto et al. [4] telah mendadah lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$  dengan elemen Ti sebagai alternatif pengganti Sn dengan menggunakan teknik penumbuhan *rf magnetron sputtering*. Mobilitas elektron lapisan diperoleh menjadi lebih besar, yaitu:  $105 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ . Transmittans optiknya  $\geq 80\%$  pada panjang gelombang 400-800 nm. Mengacu kepada keseluruhan hasil karakteristik lapisan tipis yang diperoleh, Hashimoto et al. menyimpulkan bahwa sifat listrik dan optik lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$  terperbaiki secara signifikan ketika didadah dengan elemen Ti dibanding dengan elemen Sn. Heo et al. [5] juga telah mendadah lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$  dengan elemen Ti dengan teknik *rf magnetron sputtering*. Dilaporkan bahwa resistivitas listrik lapisan tipis dapat diperendah menjadi  $1,25 \times 10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}$ . Transmittans optik bertambah dari 80% (pada panjang gelombang 450 nm) ke 90% (pada panjang gelombang 700 nm). Pendadah yang sama juga dilakukan oleh Gupta et al. [6] dengan teknik penumbuhan *pulsed laser deposition* (PLD). Konduktivitas listrik, konsentrasi muatan pembawa, dan mobilitas listrik lapisan, meningkat dan masing-masing diperoleh:  $10858 \Omega^{-1} \cdot \text{cm}^{-1}$ ;  $4,3 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  dan  $159 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ . Di lain pihak, Koida dan Kondo [3] melaporkan bahwa sifat listrik dan optik lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$  sangat bergantung pada teknik penumbuhan yang digunakan. Hal ini karena jumlah muatan pembawa yang menentukan sifat listrik lapisan yang dibangkitkan oleh elemen dadah (donor ekstrinsik) dan atau oleh cacat kisi kristal yang membentuk donor instrinsik (oleh kekosongan oksigen dan posisi interstisial elemen dadah) dan cacat kisi kristal yang menentukan karakteristik optik lapisan, keduanya sangat bergantung pada teknik dan parameter penumbuhan.

Dari hasil-hasil laporan penelitian di atas menunjukkan bahwa elemen Ti adalah elemen dadah yang potensial untuk meningkatkan kualitas TCO  $\text{In}_2\text{O}_3$ . Sifat listrik dan sifat optik lapisannya dapat diperbaiki. Di lain pihak, sifat listrik dan optik lapisan tipis sangat bergantung pada teknik penumbuhan yang digunakan. Dari hasil telusuran kami, penumbuhan lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$  yang didadah dengan elemen Ti yang ditumbuhkan dengan teknik MOCVD belum ada dilaporkan di literatur. Oleh karena itu pada artikel ini penggunaan Ti sebagai elemen dadah pada lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$  yang ditumbuhkan dengan teknik MOCVD dan sifat-sifat fisis yang dihasilkan, dilaporkan.

## EKSPERIMEN

Lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$  ditumbuhkan di atas substrat gelas dengan menggunakan reaktor MOCVD tipe *cold-wall cylindrical vertical*. Skema sistem reaktornya ditunjukkan pada gambar 1. Prekursor *metal organic*  $\text{In}(\text{TMHD})_3$  (99,99%; Strem) dan gas  $\text{O}_2$  masing-masing digunakan sebagai sumber In dan O untuk membentuk stoikiometri  $\text{In}_2\text{O}_3$ . Prekursor Titanium(IV)isopropoxide (TTIP) (99,99%; Sigma Aldrich) dalam wujud cair digunakan sebagai sumber elemen dadah Ti untuk membentuk stoikiometri  $\text{In}_{2-2x}\text{Ti}_{2x}\text{O}_3$ . Tetrahydrofuran (THF) (Sigma Aldrich) digunakan sebagai pelarut bahan *metal organic* yang digunakan. Serbuk  $\text{In}(\text{TMHD})_3$  dilarutkan ke dalam THF dengan konsentrasi 1 mol per liter. TTIP dan larutan  $\text{In}(\text{TMHD})_3$  masing-masing dimasukkan ke dalam tabung penguap (*bubbler*) yang telah terhubung dengan suatu sistem perpipaan ke ruang penumbuhan. Gas  $\text{O}_2$  dengan kemurnian 99,99% juga dihubungkan dengan suatu sistem perpipaan ke ruang penumbuhan. Sebelum digunakan, substrat gelas dicuci dengan *acetone* selama 5 menit, kemudian dengan *methanol* selama 5 menit dan diakhiri dengan 10% HF dicampur dengan air (*de-ionized water*) selama 2 menit. Setelah pencucian selesai dilakukan, substrat disemprot dengan gas  $\text{N}_2$ . Substrat ditempel dengan suatu pasta perak yang konduktif terhadap panas di permukaan plat pemanas di dalam ruang penumbuhan.

Sebelum proses penumbuhan dilakukan, ruang penumbuhan divakumkan sampai ke tekanan sekitar  $10^{-3}$  Torr. Seiring proses pemvakuman, substrat yang terdapat di ruang penumbuhan dipanaskan sampai ke temperatur yang diperlukan ( $T_s$ ). Masing-masing *bubbler* dimana larutan prekursor ditempatkan kemudian dipanaskan sampai ke titik uap masing-masing prekursor ( $T_b$ ). Uap yang dihasilkan dipandu mengalir dengan laju tertentu menuju ruang penumbuhan dimana substrat gelas ditempatkan. Gas  $\text{O}_2$  secara bersamaan juga dialirkan menuju ruang penumbuhan dengan laju yang diperlukan. Untuk meragamkan ketebalan lapisan tipis yang akan ditumbuhkan, waktu ( $t$ ) penumbuhan diubah-ubah, dan untuk meragamkan kandungan Ti pada stoikiometri  $\text{In}_{2-2x}\text{Ti}_{2x}\text{O}_3$ , laju aliran uap prekursor TTIP diatur.



Gambar 1. Skema reaktor MOCVD tipe *cold-wall cylindrical vertical* yang digunakan dalam menumbuhkan lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$ . (MO = metal organic).

Lapisan tipis yang dihasilkan selanjutnya diinvestigasi melalui pengukuran *scanning electron microscope* (SEM) (Jeol JSM 6360LA) untuk mendapatkan informasi tentang ketebalan dan morfologi permukaan. Stoikiometri kimia lapisan diukur dengan *energy dispersive spectroscopy* (EDS) (Jeol JSM 6360LA), dan sifat optiknya dianalisis dari pengukuran transmitansi optik pada panjang gelombang 190 nm sampai 820 nm dengan alat Spectrophotometer UV-VIS HP 8452 Diode Array.

## HASIL DAN DISKUSI

### Lapisan tipis $\text{In}_2\text{O}_3$

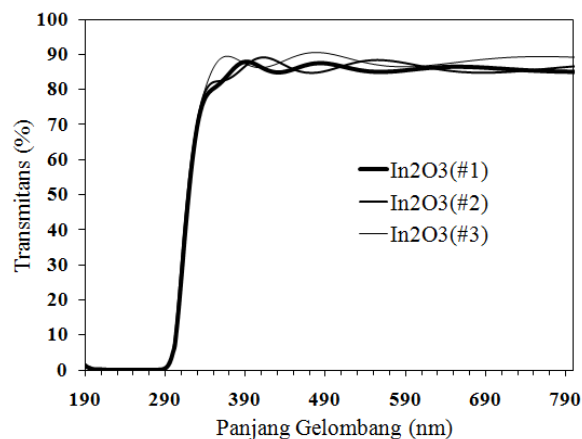
Lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$  ditumbuhkan dengan menggunakan prekursor larutan  $\text{In}(\text{TMHD})_3$  dan gas  $\text{O}_2$ . Parameter penumbuhannya didaftarkan pada Tabel 1. Dengan menggunakan lama waktu penumbuhan masing-masing 180, 150, dan 120 menit, tiga lapisan tipis dihasilkan ( $\text{In}_2\text{O}_3\#1$ ,  $\text{In}_2\text{O}_3\#2$ ,  $\text{In}_2\text{O}_3\#3$ ). Karakteristik respon transmitansi ketiga lapisan pada rentang panjang gelombang 190 sampai 820 nm ditunjukkan pada gambar 2. Dengan menggunakan perumusan Swanepoel [7], ketebalan lapisan ( $d$ ) dapat dihitung menggunakan karakter pola interferensi respon transmitansi optiknya, dan hasilnya masing-masing adalah  $\text{In}_2\text{O}_3\#1 = 531$  nm,  $\text{In}_2\text{O}_3\#2 = 434$  nm, dan  $\text{In}_2\text{O}_3\#3 = 404$  nm.

Tabel 1. Parameter penumbuhan lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$  menggunakan prekursor  $\text{In}(\text{TMHD})_3$  dan gas  $\text{O}_2$  dengan teknik MOCVD.

Parameter Penumbuhan	Besaran Satuan
Temperatur <i>bubbler</i> $\text{In}(\text{TMHD})_3$ ( $T_b$ )	200°C
Tekanan di dalam <i>bubbler</i> ( $P_b$ )	260 Torr
Temperatur substrat ( $T_s$ )	300°C
Laju aliran gas Ar untuk membawa uap $\text{In}(\text{TMHD})_3$	50 sccm
Laju aliran gas $\text{O}_2$	50 sccm
Tekanan total penumbuhan ( $P_{\text{Tot}}$ )	$2 \times 10^{-3}$ Torr
Waktu penumbuhan (t)	(120,150,180) Menit

Dari hasil transmitans yang diperoleh, lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$  yang tumbuh sangat transparan pada rentang panjang gelombang sinar tampak (400 sampai 800 nm) dengan transmitans rata-rata di atas 80%. Suatu kenaikan persen transmitans yang tajam terjadi pada panjang gelombang sekitar 300 nm yang menunjukkan karakter absorpsi energi foton yang unik dari lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$ . Peningkatan persen transmitans yang tajam ini menunjukkan bahwa lapisan tipis disusun oleh material dengan stoikiometri kimia yang relatif homogen dan relatif murni [8].

Teramati adanya pola interferensi maksimum dan minimum pada spektrum yang terjadi pada rentang panjang gelombang 300-820 nm. Terbentuknya interferensi ini sebagai akibat dari adanya pengaruh pantulan ganda (*multiple reflection*) gelombang oleh permukaan lapisan tipis. Pola interferensi hanya terjadi bila permukaan lapisan yang tumbuh cukup halus dan rata sebagaimana diharapkan dari lapisan yang ditumbuhkan dengan teknik MOCVD sehingga tidak terjadi kehilangan gelombang oleh peristiwa hamburan di permukaan lapisan [7].

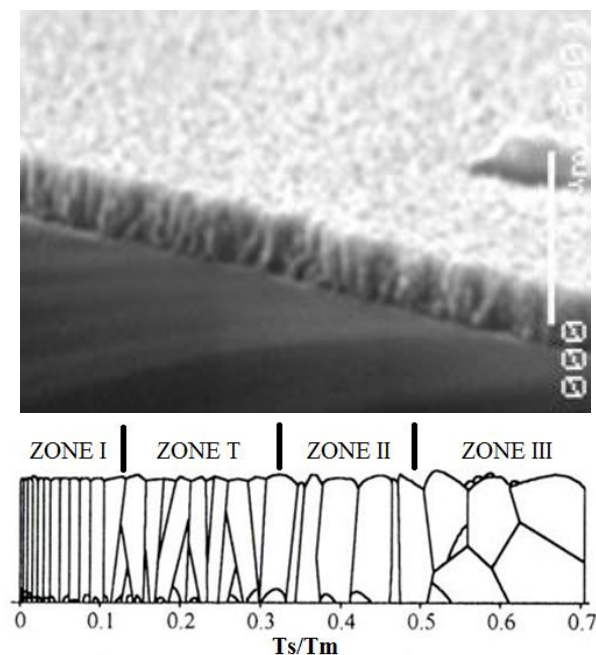


Gambar 2. Spektrum transmitans optik lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$  dengan ragam ketebalan (d) sebagai fungsi panjang gelombang.  $\text{In}_2\text{O}_3\#1 = 531$  nm,  $\text{In}_2\text{O}_3\#2 = 434$  nm, dan  $\text{In}_2\text{O}_3\#3 = 404$  nm.

Mengacu pada hasil spektrum transmitans yang diperoleh (gambar 2), persen transmitans rata-rata pada rentang panjang gelombang sinar tampak (400 nm sampai 800 nm) untuk setiap lapisan tipis, tidak berbeda secara signifikan. Yu et al. [9] dan Negishi et al. [10] melaporkan bahwa pada lapisan tipis  $\text{TiO}_2$  yang ditumbuhkan di atas substrat gelas dengan teknik *pulsed laser deposition* (PLD), transmitans optik lapisan pada rentang panjang gelombang sinar tampak akan berkurang dengan bertambahnya ketebalan lapisan. Dengan menginvestigasi morfologi lapisan yang tumbuh, Yu et al. [9] dan Negishi et al. [10] menemukan bahwa pada saat ketebalan lapisan bertambah, diameter butir penyusun lapisan juga turut bertambah. Bertambahnya diameter butir penyusun lapisan ini mengakibatkan meningkatnya kekasaran permukaan, yang selanjutnya meningkatkan hamburan gelombang foton pada permukaan lapisan. Hal yang sama dilaporkan oleh Yakuphanoglu et al. [11] pada lapisan tipis  $\text{ZnO}$  yang ditumbuhkan dengan teknik *spray pyrolysis*.

Pada eksperimen ini, lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$  yang ditumbuhkan dengan teknik MOCVD pada beda ketebalan sekitar 127 nm menghasilkan transmitans optik yang hampir sama pada rentang panjang gelombang sinar tampak. Artinya, pada batas ketebalan tersebut lapisan tipis tidak menghasilkan penambahan hamburan

foton yang berarti. Lapisan tipis bertumbuh tanpa menambah kekasaran permukaan yang berarti. Ini dibuktikan oleh hadirnya pola interferensi maksimum dan minimum pada spektrum transmitansi yang menunjukkan secara tidak langsung bahwa lapisan tipis tumbuh dengan permukaan yang relatif halus.



Gambar 3. Potret SEM penampang lintang lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$ #2 dengan ketebalan 434 nm (atas). Model ril zona struktur lapisan tipis yang dipengaruhi oleh konsentrasi pengotor di bawah 0,5% (bawah) [12].  $T_s$  = temperatur penumbuhan lapisan,  $T_m$  = temperatur leleh material lapisan.

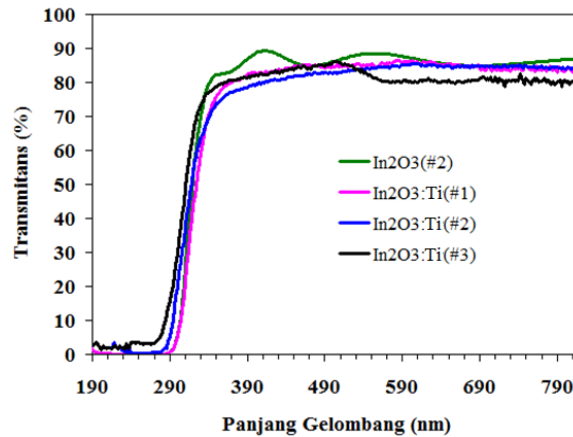
Potret SEM penampang lintang lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$ #2 dengan ketebalan 434 nm ditunjukkan pada gambar 3. Morfologi permukaan menunjukkan suatu struktur yang relatif halus tanpa ditemukan butiran-butiran yang tumbuh secara abnormal. Dengan mata telanjang, permukaan lapisan tipis terlihat berwarna bening kekuning-kuningan dan mengkilap (*mirror-like*). Dilihat dari sisi penampang lintang, lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$  yang tumbuh disusun oleh butiran-butiran yang bentuknya menyerupai batang, namun dekat di daerah antar-muka lapisan tipis-substrat, butiran mendekati bentuk V. Mengacu kepada model ril zona struktur lapisan tipis (Matacotta dan Ottaviani [12]), bentuk butiran  $\text{In}_2\text{O}_3$  yang tumbuh menyerupai bentuk butiran yang terletak pada daerah perbatasan zona T dan zona I berkonsentrasi pengotor lebih rendah dari 5% (gambar 2 bawah; model ril zona struktur lapisan tipis berkonsentrasi pengotor rendah).

Dari hasil pengukuran EDS, unsur pengotor C ditemukan pada lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$  rata-rata pada konsentrasi 2%. Unsur C ini berasal dari ligan TMHD yang terjebak di dalam lapisan [13]. Temperatur leleh ( $T_m$ ) material  $\text{In}_2\text{O}_3$  adalah  $1910^\circ\text{C}$  [14], sementara temperatur penumbuhan adalah  $300^\circ\text{C}$ , maka nilai  $T_s/T_m = 300^\circ\text{C}/1910^\circ\text{C} = 0,16$ . Pada zona ini, penumbuhan kristal bersifat kompetitif oleh karenanya pertumbuhan kristal untuk membentuk butiran sangat bergantung pada proses difusi permukaan atom-atom prekursor. Muka kristal yang lebih reaktif menghasilkan muka butir yang lebih lebar yang akhirnya membentuk butiran berbentuk V yang akibatnya akan mereduksi penumbuhan butiran tetangganya. Namun, sebagaimana ditunjukkan pada gambar 3, hal ini hanya dominan di daerah permukaan substrat. Penumbuhan ke arah ketebalan lapisan menghasilkan butiran yang mendekati bentuk batang. Ini menunjukkan bahwa kompetisi pertumbuhan muka kristal mengalami pengurangan seiring bertambahnya ketebalan lapisan.

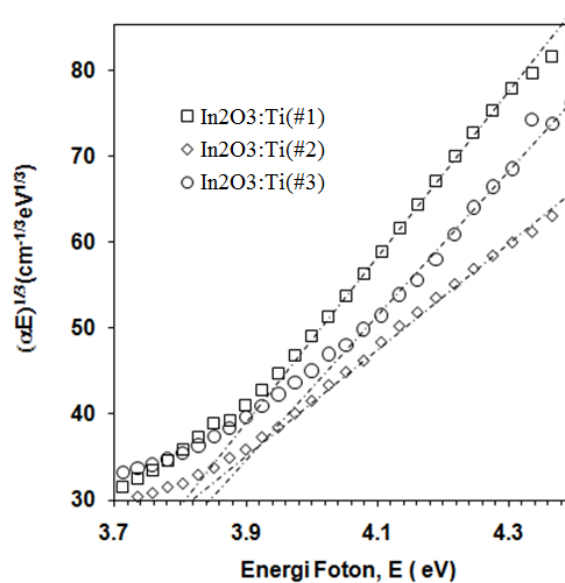
Terjadinya penumbuhan kompetisi di dekat permukaan substrat (di daerah antar-muka) disebabkan oleh ragamnya orientasi kristal dari nuklei-nuklei yang terikat di permukaan substrat di awal penumbuhan [15]. Keragaman ini berkurang setelah atom-atom prekursor lain yang menghujani muka kristal terikat dan menemukan keadaan keseimbangan yang ditentukan oleh minimisasi energi batas butir sehingga membentuk muka kristal butir dalam arah normal permukaan substrat yang kereaktifannya hampir sama. Penumbuhan butiran yang menyerupai batang seiring dengan bertambahnya ketebalan lapisan menjadi bukti terjadinya proses tersebut [16]. Pada zona T kerapatan nuklei relatif tinggi. Rapat nuklei yang tinggi akan menghasilkan morfologi permukaan lapisan yang halus [15,17].

### Lapisan tipis $\text{In}_{2-2x}\text{Ti}_{2x}\text{O}_3$

Lapisan tipis  $\text{In}_{2-2x}\text{Ti}_{2x}\text{O}_3$  ditumbuhkan dengan menggunakan parameter sebagaimana diuraikan pada table 1 dengan prekursor tambahan TTIP. *Bubbler* yang di dalamnya terdapat TTIP dipanaskan pada temperatur  $50^\circ\text{C}$  pada tekanan 260 Torr untuk menghasilkan uap. Untuk mengubah kandungan Ti di dalam lapisan yang tumbuh, laju aliran gas Ar yang membawa uap prekursor TTIP ke dalam ruang penumbuhan untuk setiap penumbuhan, divariasikan. Dengan menggunakan laju aliran gas Ar = 10, 20, dan 30 sccm, tiga lapisan tipis  $\text{In}_{2-2x}\text{Ti}_{2x}\text{O}_3$ , dihasilkan. Persentasi kandungan Ti pada setiap lapisan diinvestigasi dengan EDS dan diperoleh hasilnya masing-masing:  $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ti}(\#1) = 2\%$ ,  $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ti}(\#2) = 3\%$ , dan  $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ti}(\#3) = 5\%$ . Selanjutnya karakteristik spektrum respon transmitansi ketiga lapisan diukur dengan *UV-Vis spectrometer* dan hasilnya ditunjukkan pada gambar 4.



Gambar 4. Spektrum transmitansi optik lapisan tipis  $\text{In}_{2-2x}\text{Ti}_{2x}\text{O}_3$  ( $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ti}$ ) dengan berbagai persentasi kandungan Ti sebagai fungsi panjang gelombang.  $\text{In}_2\text{O}_3(\#2) = 0\%$ ;  $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ti}(\#1) = 2\%$ ;  $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ti}(\#2) = 3\%$ ;  $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ti}(\#3) = 5\%$ .



Gambar 5. Grafik hubungan  $(\alpha E)^{1/3}$  sebagai fungsi energi foton  $E$  yang diturunkan dari respon transmitansi lapisan tipis  $\text{In}_{2-2x}\text{Ti}_{2x}\text{O}_3$  dengan ragam persentasi kandungan Ti.  $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ti}(\#1) = 2\%$ ;  $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ti}(\#2) = 3\%$ ;  $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ti}(\#3) = 5\%$ .



Melihat hasil respon transmitans lapisan, sebagaimana ditunjukkan pada gambar 4, seluruh lapisan yang tumbuh dengan berbagai persentasi kandungan Ti adalah transparan pada rentang panjang gelombang sinar tampak. Namun, nilai persentasi transmitans rata-rata masing-masing lapisan pada rentang panjang gelombang ini, berbeda. Lapisan dengan kandungan Ti yang lebih tinggi, menghasilkan persentasi transmitans rata-rata yang lebih rendah. Fenomena yang sama juga diperoleh oleh Koida dan Kondo [3] yang menggunakan teknik penumbuhan PLD. Menurunnya transparansi pada rentang panjang gelombang sinar tampak ini, menurut Lai et al. [2] dan Koida dan Kondo [3], erat kaitannya dengan semakin tingginya konsentrasi muatan pembawa yang hadir di dalam lapisan, dimana muatan pembawa ini memiliki kecenderungan untuk mengabsorpsi energi panjang gelombang sinar tampak dan *infrared*. Mengacu pada fenomena ini secara tidak langsung dapat dinyatakan bahwa kehadiran Ti pada lapisan tipis  $\text{In}_{2-2x}\text{Ti}_{2x}\text{O}_3$  yang ditumbuhkan pada penelitian ini menghasilkan peningkatan konsentrasi muatan pembawanya. Meskipun demikian, pendedahan Ti pada lapisan tipis  $\text{In}_{2-2x}\text{Ti}_{2x}\text{O}_3$  sampai pada konsentrasi 5% sebagaimana ditunjukkan pada gambar 4 masih memiliki transparansi sinar tampak sekitar 80%.

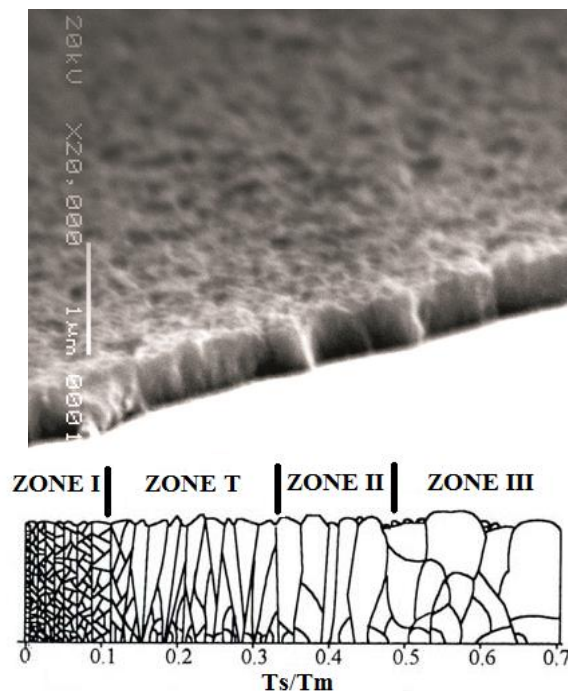
Dengan menggunakan data transmitans optik, sebagaimana ditunjukkan pada gambar 4, besar celah pita energi (*band gap energy*,  $E_g$ ) lapisan tipis  $\text{In}_{2-2x}\text{Ti}_{2x}\text{O}_3$  dapat dicari dengan menggunakan hubungan [18,19]:

$$\alpha = \frac{B(E - E_g)^p}{E}, \quad (1)$$

dimana  $\alpha$  adalah koefisien absorpsi yang dapat diperoleh dari data transmitans dengan menggunakan hubungan [7]:

$$\alpha = -\frac{1}{d} \ln(T), \quad (2)$$

dengan  $T$  adalah besarnya transmitans.  $E$  adalah energi foton dan  $B$  adalah suatu konstanta yang bergantung pada probabilitas transisi.  $p$  adalah suatu indeks yang mencirikan proses absorpsi optik lapisan yang secara teoritik memiliki nilai: 2 untuk proses transisi tidak langsung (*indirect transition*),  $\frac{1}{2}$  untuk proses transisi langsung (*direct transition*), 3 untuk proses transisi tidak langsung ke pita terlarang (*indirect forbidden transition*), dan  $\frac{3}{2}$  untuk proses transisi langsung ke pita terlarang (*direct forbidden transition*). Dari hasil perhitungan diperoleh bahwa nilai  $p$  untuk lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$  yang ditumbuhkan pada penelitian ini adalah 3.



Gambar 6. Potret SEM penampang lintang lapisan tipis  $\text{In}_{2-2x}\text{Ti}_{2x}\text{O}_3$  dengan persentasi kandungan Ti 5% [ $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ti}(\#3)$ ] (atas). Model ril zona struktur lapisan tipis yang dipengaruhi oleh konsentrasi pengotor ( $> 0,5\%$  dan  $< 10\%$ ) (bawah) [12].  $T_s$  = temperature penumbuhan lapisan,  $T_m$  = temperature leleh material lapisan.

Dengan mengekstrapolasi grafik linier hubungan  $(\alpha E)^{1/p}$  terhadap energi foton  $E$  pada persamaan 1, besar celah pita energi  $E_g$  dapat diperoleh sebagaimana ditunjukkan pada gambar 5. Energi gap ( $E_g$ ) masing-masing lapisan adalah  $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ti}(\#1) = 3,81$  eV;  $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ti}(\#2) = 3,82$  eV;  $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ti}(\#3) = 3,85$  eV. Dibandingkan dengan besar celah pita energi lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$  tanpa elemen dadah Ti (tidak ditunjukkan), yaitu sebesar 3,76 eV, besar celah pita energi  $\text{In}_{2-2x}\text{Ti}_{2x}\text{O}_3$  mengalami peningkatan. Ditemukan bahwa semakin tinggi konsentrasi Ti pada  $\text{In}_2\text{O}_3$ , lebar celah pita energinya juga semakin besar. Sebagaimana diuraikan oleh Burstein [20], hal ini terjadi sebagai efek pergeseran Burstein-Moss (*Burstein-Moss shift*).

Memperhatikan karakteristik transmitans lapisan tipis  $\text{In}_{2-2x}\text{Ti}_{2x}\text{O}_3$  (gambar 4), terlihat bahwa pola interferensi tidak dihasilkan oleh lapisan yang mengandung elemen dadah Ti sebagaimana terjadi pada lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$ . Seperti telah diuraikan sebelumnya, hal ini dapat disebabkan oleh keadaan permukaan lapisan yang kasar sehingga terjadi kehilangan gelombang oleh peristiwa hamburan di permukaan lapisan [7]. Gambar 6 menunjukkan potret SEM penampang lintang lapisan  $\text{In}_{2-2x}\text{Ti}_{2x}\text{O}_3$  dengan kandungan Ti = 5%. Membandingkan gambar 6 dengan potret SEM lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$  (gambar 3), teramati secara visual bahwa pengasaran permukaan terjadi setelah Ti didadahkan pada lapisan tipis  $\text{In}_2\text{O}_3$ . Jika diidentifikasi ke model ril zona struktur lapisan tipis [12], bentuk butiran  $\text{In}_{2-2x}\text{Ti}_{2x}\text{O}_3$  yang tumbuh menyerupai bentuk butiran yang terletak pada daerah perbatasan zona T dan zona I berkonsentrasi pengotor lebih besar dari 5% dan lebih kecil dari 10% (gambar 6 bawah). Unsur C sebagaimana dijelaskan sebelumnya (sekitar 2%) dan unsur Ti (5%) pada kasus ini berperan sebagai pengotor. Oleh karena gabungan kedua jenis pengotor ini membangun struktur permukaan lapisan menjadi lebih kasar.

## KESIMPULAN

Lapisan tipis  $\text{In}_{2-2x}\text{Ti}_{2x}\text{O}_3$  dengan berbagai konsentrasi elemen dadah Ti telah ditumbuhkan dengan teknik MOCVD dengan menggunakan prekursor  $\text{In}(\text{TMHD})_3$ , TTIP dan gas  $\text{O}_2$ . Lapisan tipis dengan konsentrasi dadah Ti: 0% ( $\text{In}_2\text{O}_3$ ); 2% ( $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ti}(\#1)$ ); 3% ( $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ti}(\#2)$ ); dan 5% ( $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Ti}(\#3)$ ) telah dihasilkan dan memiliki transparansi optik yang tinggi pada rentang panjang gelombang sinar tampak. Peningkatan konsentrasi dadah Ti menurunkan persentase transmitans lapisan tipis pada rentang panjang gelombang sinar tampak, namun tidak signifikan. Seluruh lapisan tipis yang tumbuh, baik yang didadahkan sampai pada konsentrasi 5% masih memiliki transmitans  $\geq 80\%$  pada rentang panjang gelombang sinar tampak. Penurunan transmitans yang terjadi pada lapisan oleh karena meningkatnya konsentrasi Ti disebabkan oleh meningkatnya jumlah muatan pembawa yang dibangkitkan di dalam lapisan yang mengabsorpsi energi foton sebagai salah satu efek pendadahan.

## REFERENSI

1. S. Calnan dan A.N. Tiwari, *High mobility transparent conducting oxides for thin film solar cells*, Thin Solid Films **518** (2010) 1839-1849.
2. F. Lai, L. Lin, R. Gai, Y. Lin dan Z. Huang, *Determination of optical constants and thicknesses of  $\text{In}_2\text{O}_3:\text{Sn}$  films from transmittance data*, Thin Solid Films **515** (2007) 7387-7392.
3. T. Koida, dan M. Kondo, *Comparative studies of transparent conductive Ti-, Zr- and Sn-doped  $\text{In}_2\text{O}_3$  using a combinatorial approach*, Journal of Applied Physics **101** (2007) 063713.
4. R. Hashimoto, Y. Abe dan T. Nakada, *High Mobility Titanium-Doped  $\text{In}_2\text{O}_3$  Thin Films Prepared by Sputtering/Post-Annealing Technique*, Appl. Phys. Express **1** (2008) 015002 (1-3).
5. J.H. Heo, K.Y. Jung, D.J. Kwak, D.K. Lee dan Y.M. Sung, *Fabrication of Titanium-doped Indium Oxide Films for Dye-Sensitized Solar Cell Application Using Reactive RF Magnetron Sputter Method*, IEEE Transactions on Plasma Science **39**(10) (2009) 1586 – 1592.
6. R.K. Gupta, K. Ghosh, S.R. Mishra dan P.K. Kahol, *High mobility Ti-doped  $\text{In}_2\text{O}_3$  transparent conductive thin films*, Materials Letters **62**(6-7) (2008) 1033-1035.
7. R. Swanepoel, *Determination of thickness and optical constants of amorphous silicon*, Journal Physics E: Science and Instrument **16** (1983) 1214.
8. G.I. Rusu, P. Prepelita, N. Apetroaei dan G. Popa, *On the electronic transport and optical properties of ZnTe thin films*, Journal of Optoelectronics and Advanced Materials **7**(2) (2005) 829-835.
9. J. Yu, X. Zhao dan Q. Zhao, *Effect of surface structure on photocatalytic activity of  $\text{TiO}_2$  thin films prepared by sol-gel method*, Thin Solid Films **379** (2000) 7.
10. N. Negishi, T. Iyoda, K. Hashimoto dan A. Fujishima, *Preparation of transparent  $\text{TiO}_2$  thin film photocatalyst and its photocatalytic activity*, Chemistry Letters **24**(9) (1995) 841.



11. F. Yakuphanoglu, S. Ilican, M. Caglar dan Y. Caglar, *The determination of the optical band and optical constants of non-crystalline and crystalline ZnO thin films deposited by spray pyrolysis*, Journal of Optoelectronics and Advanced Materials **9**(7) (2007) 2180-2185.
12. F.C. Maticotta dan G. Ottaviani, *Science and technology of thin film*, World Scientific Pub. Co., New Jersey, U.S.A. (1995).
13. H. Saragih, *Penumbuhan film tipis semikonduktor  $Ti_{1-x}Co_xO_2$  rutil feromagnetik dengan metode metal organic chemical vapor deposition dan karakterisasinya*, Disertasi Doktor, Institut Teknologi Bandung, Bandung, Indonesia (2006).
14. J.T. Taul, P. Burk dan A. Tuulmets, *Theoretical study of magnesium compounds: The schlenk equilibrium in the gas phase and in the presence of  $Et_2O$  and THF molecules*, J. Phys. Chem. A **108** (2004) 133.
15. P.B. Barna dan M. Adamik, *Fundamental structure forming phenomena of polycrystalline films and the structure zone models*, Thin Solid Films **317** (1998) 27.
16. A.G. Dirks dan H.J. Leamy, *Columnar microstructure in vapor-deposited thin films*, Thin Solid Films **47** (1977) 219.
17. I. Petrov, P.B. Barna, L. Hultman dan J.E. Greene, *Microstructural evolution during film growth*, J. Vac. Sci. Technol. A **21** (2003) S117.
18. J.I. Pankove, *Optical Processes in Semiconductors*, New Jersey, Prentice-Hall, USA (1971).
19. J. Tauc, *Amorphous and Liquid Semiconductors*, New York, Plenum, USA (1974).
20. E. Burstein, *Anomalous Optical Absorption Limit in InSb*, Phys. Rev. **93** (1954) 632-633.