

## การเตรียมสารประกอบออกไซด์ของอินเดียมเจือด้วยดีบุกสำหรับประยุกต์ใช้ในการเตรียมฟิล์ม บางตัวนำโปร่งแสงอินเดียมทินออกไซด์

ณรงค์ชัย บุญโญปรณ์<sup>1,2\*</sup>

<sup>1</sup>สาขาวิชาวิทยาศาสตร์และฟิสิกส์ คณะวิทยาศาสตร์และเทคโนโลยี มหาวิทยาลัยราชภัฏนครปฐม

<sup>2</sup>หน่วยวิจัยการเคลือบฟิล์มบางในสุญญากาศ สถาบันวิจัยและพัฒนา มหาวิทยาลัยราชภัฏนครปฐม

\*ผู้รับผิดชอบบทความ: nb\_narongk@yahoo.com

### บทคัดย่อ

ในงานวิจัยชิ้นนี้เป่าสารเคลือบออกไซด์ของอินเดียมเจือด้วยดีบุกถูกเตรียมขึ้นโดยการผสมผงออกไซด์ของอินเดียมที่ถูกเจือด้วยผงออกไซด์ของดีบุก 3, 5 และ 10 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก อัดและอบผนึกที่อุณหภูมิ 1,300 องศาเซลเซียสเป็นเวลานาน 3 ชั่วโมง ในบรรยากาศปกติ จากผลการวิเคราะห์โครงสร้างผลึกด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์แสดงให้เห็นโครงสร้างผลึกของสารประกอบอินเดียมออกไซด์ มีพีคเด่นของระนาบ (222), (400), (440) และ (622) และนำเป่าสารเคลือบออกไซด์ของอินเดียมที่ถูกเจือด้วยออกไซด์ของดีบุก 10 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก มาประยุกต์ใช้เป็นเป่าสารเคลือบสำหรับเคลือบฟิล์มบางตัวนำโปร่งแสงอินเดียมทินออกไซด์ด้วยเทคนิค อาร์-เอฟ แมกนีตรอนสปัตเตอริง มีค่าสภาพต้านทานไฟฟ้า  $2.97 \times 10^{-3}$  โอห์ม-เซนติเมตร

**คำสำคัญ** ฟิล์มบางตัวนำโปร่งแสง, ออกไซด์ของอินเดียมเจือด้วยดีบุก, อาร์-เอฟ แมกนีตรอนสปัตเตอริง

## Preparation of indium oxide doped with tin oxide compounds for application in preparation of indium tin oxide transparent conducting films

Narongchai Boonyopakorn<sup>1,2\*</sup>

<sup>1</sup>Field of study of science and physics, Faculty of science and technique, Nakhon Pathom Rajabhat University

<sup>2</sup>Unit research of thin films coating in vacuum, Institute of research and development, Nakhon Pathom Rajabhat University

\*Corresponding author: nb\_narongk@yahoo.com

### Abstract

In this research, targets of tin-doped indium oxide were prepared by mixing powder of indium oxide doped with powder of tin oxide 3, 5 and 10 weight percent which were pressed and sintered at 1,300 degree Celsius for 3 hours in normal atmosphere. From crystal structure analysis by X-ray diffraction technique, the crystal structure of indium oxide has been shown obviously with dominant peaks of (222), (400), (440) and (622) planes. The target of indium oxide doped with tin oxide 10 weight percent has been used for preparations of indium tin oxide transparent conducting thin films by RF magnetron sputtering technique with electrical resistivity of  $2.97 \times 10^{-3}$  Ohm-cm.

**Keywords** : transparent conducting thin film, indium oxide doped with tin, RF magnetron sputtering

### 1. บทนำ

ฟิล์มบางตัวนำโปร่งแสงมีการประยุกต์อย่างมากในปัจจุบันได้แก่ หน้าจอแสดงผลสำหรับโทรศัพท์มือถือ คอมพิวเตอร์พีซี/โน้ตบุ๊ก โซลาร์เซลล์ และขั้วไฟฟ้าสำหรับเซนเซอร์ฟิล์มบาง เป็นต้น ฟิล์มบางตัวนำโปร่งแสงที่นิยมใช้มากที่สุดคือ ฟิล์มบางตัวนำโปร่งแสงออกไซด์ของอินเดียมเจือด้วยดีบุก หรือนิยมเรียกว่า อินเดียมทินออกไซด์ (Indium Tin Oxide, ITO) โดยนิยมเตรียมฟิล์มบางด้วยเทคนิคแมกนีตรอนสปัตเตอริง (magnetron sputtering) เนื่องจากฟิล์มบางที่เตรียมได้มีความสม่ำเสมอในบริเวณที่กว้าง มีเปอร์เซ็นต์การส่องผ่านของแสงในช่วงที่ตามองเห็นมากกว่า 80 เปอร์เซ็นต์ และมีสภาพต้านทานไฟฟ้าอยู่ในช่วง  $10^{-4}$  โอห์ม-เมตร

การเตรียมฟิล์มบางด้วยเทคนิคแมกนีตรอนสปัตเตอร์ริงดังกล่าวจะมีเป้าสารเคลือบ (target) ITO เป็นสารตั้งต้น (โดยปกติจะเจือด้วยออกไซด์ของดีบุก 10 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก) มีราคาค่อนข้างสูง ยกตัวอย่างเช่น เป้าสารเคลือบ ITO เจือด้วยออกไซด์ของดีบุก 10 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก รูปทรงกระบอกเส้นผ่านศูนย์กลาง 50 มิลลิเมตร หนา 6 มิลลิเมตร จะมีราคาไม่ต่ำกว่า 30,000 บาท และจะมีราคาสูงขึ้นเมื่อเส้นผ่านศูนย์กลางมีค่าเพิ่มขึ้น อย่างไรก็ตามการเตรียมเป้าสารเคลือบ ITO (J.-O. Park et. al., 2005: 127) หรือ ผงฟลักทินาโน ITO (B.C. Kim et. Al., 2005: 395) มีรายงานการวิจัยค่อนข้างน้อยซึ่งจะทำการเผาผนึกที่อุณหภูมิไม่ต่ำกว่า 1,500 องศาเซลเซียส ภายใต้บรรยากาศปกติหรือแก๊สออกซิเจน

ด้วยเหตุผลดังกล่าวงานวิจัยชิ้นนี้ได้ศึกษาการเตรียมเป้าสารเคลือบ ITO จากผงออกไซด์ของอินเดียมเจือด้วยออกไซด์ของดีบุกสำหรับประยุกต์ใช้ในการเตรียมฟิล์มบางตัวนำโปร่งแสงด้วยเทคนิค อาร์-เอฟ แมกนีตรอนสปัตเตอร์ริง ภายใต้ข้อจำกัดของเครื่องมือและอุปกรณ์ที่มีภายในหน่วยวิจัยการเคลือบฟิล์มบางในสุญญากาศ

## 2. ขั้นตอนการทำวิจัย

ในงานวิจัยนี้สารประกอบออกไซด์ของอินเดียมเจือด้วยออกไซด์ของดีบุกถูกเตรียมขึ้นจากผงออกไซด์ของอินเดียมความบริสุทธิ์ 99.99 เปอร์เซ็นต์ (Liche Opto Group Co., Ltd, China) และผงออกไซด์ของดีบุกความบริสุทธิ์ 99.99 เปอร์เซ็นต์ (Liche Opto Group Co., Ltd, China) ดังแสดงในภาพที่ 1(a) และ (b) ตามลำดับ



(a)



(b)

ภาพที่ 1 (a) ผงออกไซด์ของอินเดียม และ (b) ผงออกไซด์ของดีบุก

การเจือผงออกไซด์ของดีบุกลงในผงออกไซด์ของอินเดียมจะมีปริมาณ 3, 5 และ 10 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก โดยผสมให้เข้ากันด้วยเครื่องผสมเป็นเวลานาน 3 ชั่วโมง หลังจากนั้นนำมาอัดด้วยเครื่องอัดไฮดรอลิกด้วยความดันประมาณ 100 เมกะปาสคาล เป็นรูปทรงกระบอกเส้นผ่านศูนย์กลาง 1.6 และ 7.5 มิลลิเมตร หนา 2 และ 6 มิลลิเมตร สำหรับเป็นตัวอย่างในการวิเคราะห์โครงสร้างผลึกและทำสารเคลือบเป้าออกไซด์ของอินเดียมเจือด้วยออกไซด์ของดีบุก ตามลำดับ หลังจากนั้นนำไปอบผนึก (sintering) ที่อุณหภูมิ 1,300 องศาเซลเซียส เป็นเวลานาน 3 ชั่วโมง ในบรรยากาศปกติ

เมื่ออบผนึกเสร็จนำตัวอย่างที่เตรียมได้ไปวิเคราะห์โครงสร้างผลึกด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนด้วยรังสีเอกซ์ (X-ray diffraction technique) หลังจากนั้นนำเป้าสารเคลือบ ITO ที่เตรียมได้ไปทดลองเตรียมฟิล์มบางตัวนำโปร่งแสงอินเดียมทินออกไซด์ด้วยเทคนิค อาร์-เอฟ แมกนีตรอนสปัตเตอริง ลงบนกระจกหนา 2 มิลลิเมตรที่หาซื้อได้ทั่วไป โดยนำมาตัดให้มีขนาด  $1 \times 1$  ตารางเซนติเมตร ทำความสะอาดในเครื่องอัลตราโซนิคในน้ำยาล้างจาน และ เอทานอล เป็นเวลานานอย่างละ 10 นาที แล้วเป่าให้แห้งด้วยลมจากเครื่องอัดอากาศ นำไปวางในถังสุญญากาศโดยกระจกวางห่างจากเป้าสารเคลือบเป็นระยะ 6 เซนติเมตร และกระจกวางห่างจากจุดศูนย์กลางของที่วางตัวอย่าง (sample holder) เป็นระยะ 5 เซนติเมตร ตามแนวรัศมี

หลังจากนั้นปั๊มถึงสุญญากาศด้วยระบบปั๊มที่ประกอบด้วยปั๊มโรตารี (rotary pump) และปั๊มแบบกระจายไอ (diffusion pump) จนมีความดันพื้นฐานที่ประมาณ  $2.0 \times 10^{-5}$  มิลลิบาร์ จึงปล่อยแก๊สอาร์กอนเข้าไปภายในถังสุญญากาศจนความดันขึ้นมาที่ประมาณ  $2.5 \times 10^{-2}$  มิลลิบาร์ จึงป้อนสัญญาณคลื่นวิทยุความถี่ 13.56 เมกะเฮิร์ตซ์ เพื่อจุดพลาสมาเริ่มกระบวนการเคลือบฟิล์ม โดยค่อยๆ เพิ่มกำลังไฟฟ้าขึ้นไปจนถึงระดับ 120 วัตต์ แล้วทำการลดความดันลงมาที่  $5.0 \times 10^{-3}$  มิลลิบาร์ แล้วจึงทำการเคลือบฟิล์มเป็นเวลานาน 80 นาที ที่อุณหภูมิห้อง ซึ่งจะได้ความหนาฟิล์มประมาณ 750 นาโนเมตร หลังจากนั้นนำฟิล์มที่ได้ไปวิเคราะห์โครงสร้างผลึก และคุณสมบัติทางไฟฟ้า ด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนด้วยรังสีเอกซ์ และปรากฏการณ์ฮอลล์ (Hall effect measurement) ตามลำดับ

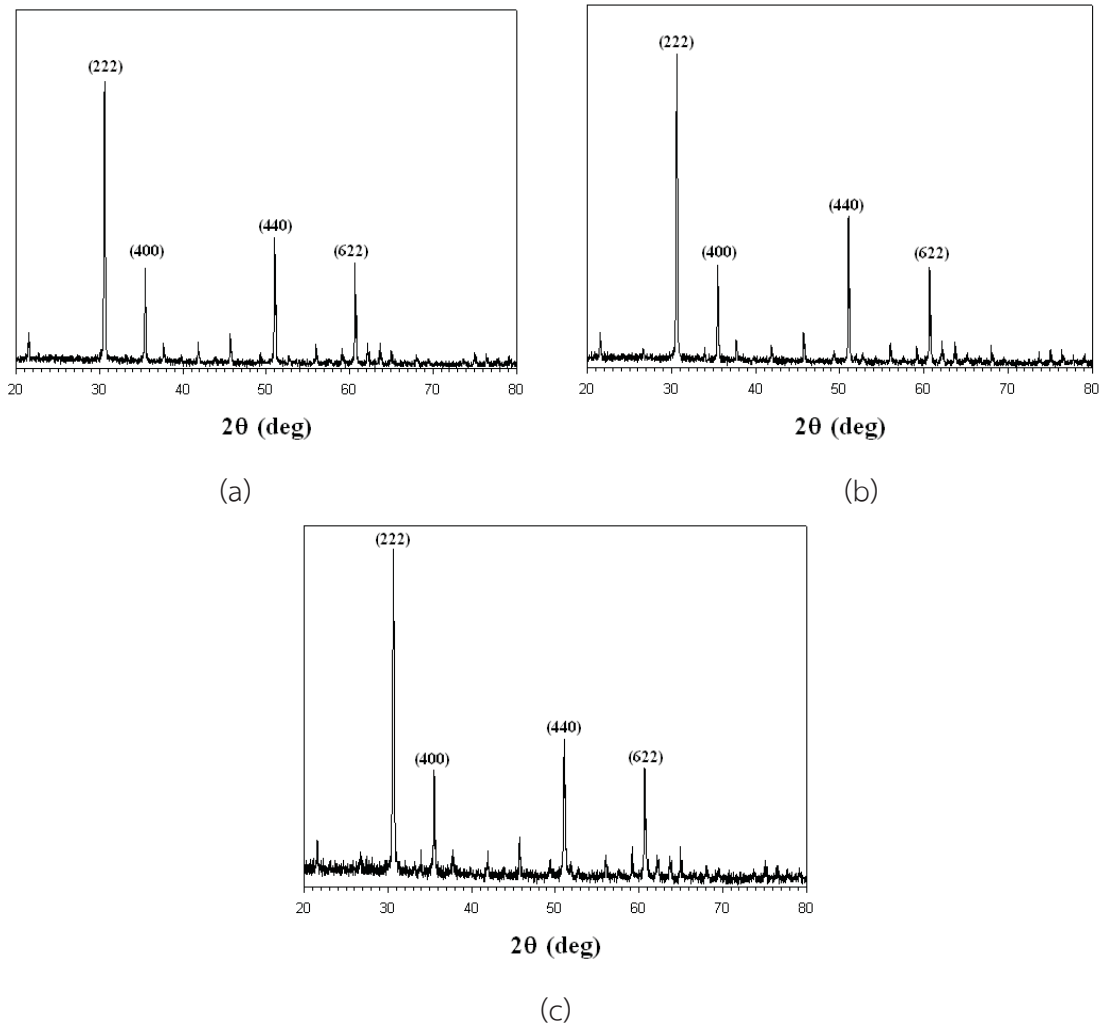
### 3. ผลการวิจัยและการอภิปรายผล

ตัวอย่างสารประกอบออกไซด์ของอินเดียมเจือด้วยออกไซด์ของดีบุก 10 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก ที่ผ่านการอบผนึกที่อุณหภูมิ 1,300 องศาเซลเซียส เป็นเวลานาน 3 ชั่วโมง ในบรรยากาศปกติ มีลักษณะแข็งและมีสีเขียวอ่อนแสดงในภาพที่ 2 ในขณะที่โครงสร้างผลึกของตัวอย่างที่วัดได้จากเทคนิคการเลี้ยวเบนด้วยรังสีเอกซ์แสดงได้ในภาพที่ 3



ภาพที่ 2 สารประกอบออกไซด์ของอินเดียมเจือด้วยออกไซด์ของดีบุก 10 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก ที่ผ่านการอบผนึกที่อุณหภูมิ 1,300 องศาเซลเซียส เป็นเวลานาน 3 ชั่วโมง

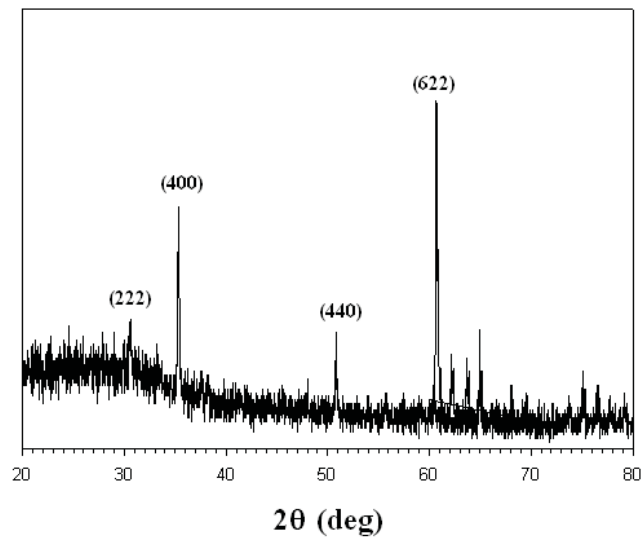
จากภาพที่ 3 จะเห็นได้ว่าสเปกตรัมของการเลี้ยวเบนด้วยรังสีเอกซ์แสดงให้เห็นโครงสร้างผลึกสารประกอบออกไซด์ของอินเดียมเจือด้วยออกไซด์ของดีบุก 3, 5 และ 10 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก โดยมีพีคเด่นของระนาบผลึกจำนวน 4 พีค ได้แก่ พีคของระนาบ (222), (400), (440) และ (622) ดังนั้นจะเห็นได้ว่าการอบผิวกที่อุณหภูมิ 1,300 องศาเซลเซียส เป็นเวลานาน 3 ชั่วโมง ทำให้เกิดโครงสร้างผลึกของสารประกอบออกไซด์ของอินเดียมได้ที่ถูกเจือด้วยเปอร์เซ็นต์การเจือด้วยออกไซด์ของดีบุกที่แตกต่างกัน สอดคล้องกับตัวอย่างที่เตรียมได้ที่เปลี่ยนสภาพจากผงเคมีกลายเป็นก้อนเซรามิกส์แข็ง โดยมีข้อสังเกตว่าเปอร์เซ็นต์การเจือที่แตกต่างกันดังกล่าวไม่มีผลต่อการเปลี่ยนแปลงโครงสร้างผลึกของสารประกอบที่เตรียมได้



ภาพที่ 3 สเปกตรัมของการเลี้ยวเบนด้วยรังสีเอกซ์ของสารประกอบออกไซด์ของอินเดียมเจือด้วยออกไซด์ของดีบุก (a) 3, (b) 5 และ (c) 10 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก

จากภาพที่ 4 แสดงสเปกตรัมของการเลี้ยวเบนด้วยรังสีเอกซ์ของฟิล์มบาง ITO ที่เตรียมจากเป่าสารเคลือบออกไซด์ของอินเดียมเจือด้วยออกไซด์ของดีบุก 10 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก ที่เตรียมได้ จะเห็นได้ว่าฟิล์มที่

เตรียมได้มีความเป็นผลึกโดยมีการเรียงตัวของอะตอมสารประกอบส่วนใหญ่อยู่ในระนาบ (400) และ (622) แตกต่างจากสเปกตรัมของการเลี้ยวเบนด้วยรังสีเอกซ์ของเป่าสารเคลือบที่การเรียงตัวอยู่ในระนาบ (222) มากที่สุด ผลดังกล่าวอาจเป็นผลมาจากการวางกระจกที่ตำแหน่งห่างจากแนวศูนย์กลางเป็นระยะ 5 เซนติเมตร มีผลทำให้เกิดช่องว่างของออกซิเจน (oxygen vacancy) ในโครงสร้างผลึก ทำให้พีคของระนาบ (400) มีความโดดเด่นกว่าพีคของระนาบ (222) (E. Terzini et. Al., 1999: 3448) อย่างไรก็ตามมีข้อสังเกตว่า ในการวิจัยนี้ สามารถเตรียมฟิล์มบางตัวนำโปร่งแสงอินเดียมทินออกไซด์ที่มีความเป็นผลึกได้ที่อุณหภูมิห้อง ซึ่งโดยปกติจำเป็นต้องให้ความร้อนแก่วัสดุฐานรองระหว่างการเคลือบฟิล์ม



ภาพที่ 4 สเปกตรัมของการเลี้ยวเบนด้วยรังสีเอกซ์ของฟิล์มบาง ITO ที่เตรียมจากเป่าสารเคลือบออกไซด์ของอินเดียมเจือด้วยออกไซด์ของดีบุก 10 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก

ตารางที่ 1 แสดงคุณสมบัติทางไฟฟ้าของฟิล์มบาง ITO ที่เตรียมจากเป่าสารเคลือบออกไซด์ของอินเดียมเจือด้วยออกไซด์ของดีบุก 10 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก

ตารางที่ 1 คุณสมบัติทางไฟฟ้าของฟิล์มบาง ITO ที่เตรียมได้

Carrier concentration ( $\text{cm}^{-3}$ )	$1.82 \times 10^{20}$
Mobility ( $\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}$ )	11.6
Electrical resistivity ( $\rho$ .cm)	$2.97 \times 10^{-3}$

จากตารางที่ 1 จะเห็นได้ว่าสภาพต้านทานไฟฟ้ามีขนาดเท่ากับ  $2.97 \times 10^{-3}$  โอห์ม—เซนติเมตร มีค่าใกล้เคียงกับงานวิจัยจากคณะวิจัยอื่นที่เตรียมฟิล์มบาง ITO ด้วยเทคนิค อาร์-เอฟ แมกนีตรอนสเปตเตอริงที่อุณหภูมิห้อง อย่างไรก็ตามค่าสภาพความต้านทานดังกล่าวเพียงพอต่อการประยุกต์ใช้งานเพื่อเป็นตัวนำโปร่งแสง นอกจากนั้นเนื่องจากการเตรียมฟิล์มบางที่อุณหภูมิห้อง ดังนั้นอาจยังสามารถเตรียมฟิล์มบาง ITO ลงบนวัสดุฐานรองที่เป็นพลาสติกที่สามารถโค้งงอได้ ทำให้สามารถประยุกต์ใช้งานได้หลากหลายยิ่งขึ้น

#### 4. สรุป

จากผลการวิจัยที่ผ่านมา การเตรียมเป่าสารเคลือบออกไซด์ของอินเดียมเจือด้วยออกไซด์ของดีบุก 3, 5 และ 10 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก สามารถเตรียมได้จากการเจือผงออกไซด์ของอินเดียมด้วยผงออกไซด์ของดีบุกอัดเป็นก้อนทรงกระบอก และอบพนักที่อุณหภูมิ 1,300 องศาเซลเซียส เป็นเวลานาน 3 ชั่วโมง ในบรรยากาศปกติ สเปกตรัมการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์แสดงให้เห็นถึงโครงสร้างผลึกอย่างชัดเจน และนำมาใช้ในการเตรียมฟิล์มบาง ITO ด้วยเทคนิค อาร์-เอฟ แมกนีตรอนสเปตเตอริง ที่อุณหภูมิห้อง มีค่าสภาพต้านทานไฟฟ้า  $2.97 \times 10^{-3}$  โอห์ม—เซนติเมตร ซึ่งเพียงพอต่อการนำไปประยุกต์ใช้งาน

#### 5. กิตติกรรมประกาศ

ผู้วิจัยขอขอบพระคุณ ดร.สุริยงค์ พงศ์ไพบุลย์กุล ภาควิชาฟิสิกส์ คณะวิทยาศาสตร์ จุฬาลงกรณ์มหาวิทยาลัย ในการเอื้อเฟื้อสารเคมีตั้งต้นที่ใช้ในงานวิจัยนี้

#### เอกสารอ้างอิง

- Park, J.-O., Lee, J.-H., Kim, J.-J., Cho, S.-H., & Cho, Y. K. (2005). Crystallization of indium tin oxide thin films prepared by RF-magnetron sputtering without external heating. *Thin Solid Films*, 474, 127-132.
- Kim, B.-C., Lee, J.-H., Kim, J.-J., Lee, H. Y., & Lee, J.-S. (2005). Densification of nanocrystalline ITO powders in fast firing: effect of specimen mass and sintering atmosphere. *Materials Research Bulletin*, 40, 395-404.
- Terzini, E., Nobile, G., Loreti, S., Minarini, C., Polichetti, T., & Thilakan, P. (1999). Influences of sputtering power and substrate temperature on the properties of RF magnetron sputtering Indium Tin Oxide Thin Films. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 38, 3448-3452.
- Tominaga, K., Yuasa, T., Kume, M., & Tada, O. (1985). Influence of Energetic Oxygen bombardment on conductive ZnO films, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 24 no. 8, 944-949.

- Rodríguez, R. C., Oliva, A. I., Sosa, V., Briones, F. C., & Pena, J. L. (2000). **Effect of indium tin oxide substrate roughness on the morphology, structural and optical properties of CdS thin films** *Appl. Surf. Sci.*, 161, 340-346.
- Chung, C. H., Ko, Y. W., Kim, Y. H., Sohn, C. Y., Chu, H. Y., Park, S. H. K., & Lee, J. H. (2005). **Radio frequency magnetron sputter-deposited indium tin oxide for use as a cathode in transparent organic light-emitting diode**. *Thin Solid Films*, 491, 294–297.
- Hsu, C. M., Lee, J. W., Meen, T. H., & Wu, W. T. (2005). **Preparation and characterization of Ni-indium tin oxide cosputtered thin films for organic light-emitting diode application**. *Thin Solid Films*, 474, 19–24.
- Ota, R., Seki, S., Sawada, Y., Ogawa, M., Nishide, T., Shida, A., & Ide, M. (2003). **Indium-tin-oxide films prepared by dip coating using an ethanol solution of indium chloride and tin chloride**. *Sur. & Coat. Tech.*, 169-170, 521-524.
- Sawada, Y., Kobayashi, C., Seki, S., & Funakubo, H. (2002). **Highly-conducting indium-tin-oxide transparent films fabricated by spray CVD using ethanol solution of indium (III) chloride and tin (II) chloride**. *Thin Solid Films*, 409, 46-50.
- Purica, M., Iacomi, F., Baban, C., Prepelita, P., Apetroaei, N., Mardare, D., & Luca, D. (2007). **Investigation of structural properties of ITO thin films deposited on different substrates**. *Thin Solid Films*, 515, 8674-8678.
- Jung, Y.S., Lee, D.W., & Jeon, D.Y. (2004). **Influence of dc magnetron sputtering parameters on surface morphology of indium tin oxide thin films**. *Appl. Surf. Sci.*, 221, 136-142.