การเตรียมเป้าสารเคลือบออกไซด์ของสังกะสีเจือด้วยอลูมิเนียมสำหรับการเคลือบฟิล์มบางระบบ อาร์-เอฟ แมกนีตรอนสปัตเตอริ่ง

Preparation of Aluminium-Doped Zinc Oxide Target for Thin Film Coating in Magnetron Sputtering System

ประสิทธิ์ ทองดี[1], ธิดารัตน์ ฮึงวัฒนา[2], สมบัติ หทัยรัตนานนท์[3,4], วิโรจน์ บัวงาม[3],
หฤทัย ดิ้นสกุล[3,4] และณรงค์ชัย บุญโญปกรณ์[1,4]

[1]โปรแกรมวิชาวิทยาศาสตร์ คณะวิทยาศาสตร์และเทคโนโลยี มหาวิทยาลัยราชภัฏนครปฐม
[2]โรงเรียนสาธิตมหาวิทยาลัยราชภัฏนครปฐม
[3]กลุ่มโปรแกรมวิชาวิศวกรรมและเทคโนโลยี คณะวิทยาศาสตร์และเทคโนโลยี มหาวิทยาลัยราชภัฏนครปฐม
[4]หน่วยวิจัยการเคลือบฟิล์มบางในสุญญากาศ มหาวิทยาลัยราชภัฏนครปฐม
nb_narongk@yahoo.com

บทคัดย่อ

เป้าสารเคลือบของสารประกอบออกไซด์ของสังกะสีเจือด้วยอลูมิเนียม 2 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนักถูกเตรียมขึ้นโดยกระบวนการปฏิกิริยาของของแข็ง โดยสารตั้งต้นเป็นสารประกอบออกไซด์ของสังกะสีและออกไซด์ของอลูมิเนียมซึ่งถูกผสมและบด ก่อนถูกอัดเป็นแผ่นกลมขนาดเส้นผ่านศูนย์กลาง 63 เซนติเมตร หนา 8 มิลลิเมตร และถูกเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1,400 องศาเซลเซียส ในบรรยากาศนาน 5 ชั่วโมง หลังจากนั้นนำเป้าสารเคลือบที่เตรียมได้ไปวิเคราะห์โครงสร้างความเป็นผลึกโดยใช้เทคนิคการเลี้ยวเบนด้วยรังสีเอกซ์ พบว่ามีโครงสร้างผลึกที่ดี และนำมาทดลองเคลือบฟิล์มบางด้วยเทคนิคแมกนีตรอนสปัตเตอริ่ง โดยใช้เวลาในการเคลือบ 1 และ 2 ชั่งโมง และเผาในสุญญากาศที่อุณหภูมิ 500 องศาเซลเซียส นาน 1 ชั่วโมง แล้วนำมาวิเคราะห์โครงสร้างความเป็นผลึกของฟิล์ม พบว่ามีโครงสร้างของสารประกอบออกไซด์ของสังกะสีเจือด้วยอลูมิเนียมโดยความเป็นผลึกจะเพิ่มมากขึ้นเมื่อเวลาในการเคลือบฟิล์มเพิ่มมากขึ้น

คำสำคัญ: ออกไซด์ของสังกะสีเจือด้วยอลูมิเนียม, ระบบ อาร์-เอฟ แมกนีตรอน สปัตเตอริ่ง

Abstract

Compounds target of 2 percents by weight aluminium-doped zinc oxide were prepared by mixing and milling raw materials of zinc oxide and aluminium oxide. After that mixed materials were pressed into disk in diameter of 63 centimeters and thick of 8 millimeters and were sintered at 1,400°C in air for 5 hours. Target prepared were then analyzed crystalline structure by using x-ray diffraction technique. It was found that the target has good crystalline structure. The target was then used in thin film coating by using RF magnetron sputtering technique at room temperature for deposition times of 1 and 2 hours. After that deposited films were annealed at 500°C in vacuum for 1 hour and measured crystalline structure. It was found that the deposited films have the crystalline structure which increases with the deposition time.

Keywords: aluminium-doped zinc oxide, RF magnetron sputtering system

1. บทนำ

สารประกอบออกไซด์ของสังกะสีโดยธรรมชาติจัดเป็นสารกึ่งตัวนำชนิดเอ็น (n-type semiconductor) มีช่องว่างแถบพลังงานตรง 3.37 อิเล็กตรอนโวลต์ และมีพลังงานยึดเหนี่ยวเอกซิตอน 60 มิลลิอิเล็กตรอนโวลต์ สารประกอบออกไซด์ของสังกะสีสามารถนำไปประยุกต์ใช้งานทางด้านแสงหลายชนิดได้แก่ เซ็นเซอร์ตรวจจับแก๊ส เซลล์สุริยะ จอแสดงผลแบบเปล่งแสง เป็นต้น โดยการประยุกต์ใช้งานส่วนใหญ่จะอยู่ในรูปแบบฟิล์มบาง ซึ่งสามารถเตรียมได้หลายวิธีทั้งกระบวนการทางเคมีและฟิสิกส์ สารประกอบออกไซด์ของสังกะสีมีโครงสร้างผลึกแบบเวิร์ตไซต์ (wurtzite structure) แต่ละไอออนของสังกะสีและออกซิเจนต่างก็ล้อมรอบด้วยไอออนชนิดตรงข้ามสี่ไอออนในลักษณะทรงสี่หน้า การปรับปรุงคุณสมบัติทางไฟฟ้าของสารประกอบออกไซด์ของสังกะสีเพื่อให้มีคุณสมบัติทางไฟฟ้าดีขึ้นสามารถทำได้โดยการเติมสารชนิดอื่นลงไปผสมในจำนวนที่น้อยทำหน้าที่เป็นสิ่งเจือปน (impurity) ภายในโครงสร้าง ซึ่งอาจจะเข้าไปแทนที่อะตอมสังกะสีหรือออกซิเจน หรืออาจแทรกอยู่ในตำแหน่งช่องว่างของโครงสร้างผลึก สิ่งเจือปนที่สามารถนำมาใช้ได้แก่ อลูมิเนียม (Al) และ อินเดียม (In) เป็นต้น

โครงการวิจัยนี้จะได้ทำการศึกษาการเตรียมสารประกอบออกไซด์ของสังกะสีที่เจือด้วยอะตอมอลูมิเนียมเพื่อประยุกต์เป็นเป้าสารเคลือบสำหรับการเคลือบฟิล์มบาง โดยเจืออะตอมอลูมิเนียมที่ปนลงในโครงสร้างผลึกของสารประกอบออกไซด์ของสังกะสีปริมาณ 2 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนักเพื่อให้มีสมบัติเป็นสารกึ่งตัวนำชนิดเอ็นที่เหมาะสมสำหรับนำไปเป็นเป้าสารเคลือบในการเคลือบฟิล์มบางด้วยเทคนิคแมกนีตรอนสปัตเตอริ่ง โดยจะมุ่งเน้นที่โครงสร้างผลึกของเป้าสารเคลือบและของฟิล์มที่เตรียมได้ ซึ่งเป็นคุณสมบัติพื้นฐานที่สำคัญของเนื้อฟิล์มก่อนที่จะนำไปวิเคราะห์คุณสมบัติทางแสงและทางไฟฟ้าในลำดับต่อไป

2. วิธีการดำเนินการวิจัย

วิธีการดำเนินการวิจัยแบ่งออกได้เป็น 2 ขั้นตอนดังนี้

2.1 ขั้นตอนการเตรียมเป้าสารเคลือบ

การเตียมเป้าสารเคลือบเริ่มต้นด้วยการเตรียมสารตั้งต้นได้แก่ ออกไซด์ของสังกะสี (ZnO) ความบริสุทธิ์ 99.7 เปอร์เซ็นต์และออกไซด์ของอลูมิเนียม (Al_2O_3) ความบริสุทธิ์ 99.7 เปอร์เซ็นต์ โดยทำการชั่งน้ำหนักออกไซด์ของอลูมิเนียม 2 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก หลังจากนั้นนำมาผสมกันด้วยเครื่องปั่นสารนานประมาณ 5 ชั่วโมง แล้วจึงนำเข้าเครื่องบดเพื่อบดให้สารละเอียดมากขึ้น และนำสารที่ผสมและบดแล้วไปอัดความดันประมาณ 100 เมกะปาสคาล ให้เป็นแผ่นกลมขนาดเส้นผ่านศูนย์กลางประมาณ 63 เซนติเมตร มีความหนาประมาณ 8 มิลลิเมตร แล้วจึงนำไปเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1,400 องศาเซลเซียส เป็นเวลานาน 5 ชั่วโมง ในบรรยากาศปกติ หลังจากนั้นนำเป้าสารเคลือบที่เตรียมได้ไปทำการตรวจวิเคราะห์โครงสร้างผลึกด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์

2.2 ขั้นตอนการเคลือบฟิล์ม

เริ่มต้นด้วยการทำความสะอาดวัสดุฐานรองซึ่งในที่นี้ใช้ กระจกสไลด์ และแผ่นเวเฟอร์ผลึกเดี่ยวของซิลิกอน วัสดุฐานรองถูกทำความสะอาดด้วยการล้างด้วยน้ำยาล้างจาน แล้วฉีดล้างด้วยน้ำกลั่น หลังจากนั้นนำไปเขย่าด้วยคลื่นอุลตร้าโซนิคในแอลกอฮอลล์และเป่าให้แห้งด้วยไนโตรเจน ก่อนนำเข้าใส่ในถังสุญญากาศและปั๊มด้วยเซตของปั๊มโรตารี่และปั๊มเทอร์โบ จนมีความดันพื้นฐานประมาณ 1.0×10^{-6} ทอร์ หลังจากนั้นเติมแก๊สอาร์กอนความบริสุทธิ์สูง (99.995 %) เข้าไปในถังสุญญากาศจนความดันขึ้นมาที่ประมาณ 5.0×10^{-3} ทอร์ แล้วทำการเคลือบฟิล์มที่กำลังไฟฟ้า 60 วัตต์ โดยใช้เครื่องกำเนิดสัญญาณวิทยุความถี่ 13.56 เมกะเฮิรตซ์เป็นเวลานาน 1 และ 2 ชั่วโมงตามลำดับ หลังจากนั้นนำฟิล์มที่เตรียมได้ไปเผาในสุญญากาศที่อุณหภูมิ 500 องศาเซลเซียส เป็นเวลานาน 1 ชั่วโมง แล้วนำไปวิเคราะห์โครงสร้างผลึกด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์

3. ผลการดำเนินงาน

สารผสมระหว่างออกไซด์ของสังกะสีเจือด้วยอลูมิเนียม 2 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนักที่ผ่านการบดอัดเป็นเม็ดเส้นผ่านศูนย์กลาง 63 เซนติเมตร หนา 8 มิลลิเมตร แสดงได้ดังรูปภาพที่ 1 (a) จะสังเกตได้ว่ามีลักษณะเป็นผงละเอียดสีขาว และเมื่อผ่านการเผาที่อุณหภูมิ 1,400 องศาเซลเซียส เป็นเวลานาน 5 ชั่วโมง พบว่ากลายสภาพเป็นเซรามิกแข็งสีเขียว ซึ่งมีขนาดเล็กลงกว่าเดิม วัดเส้นผ่านศูนย์กลางได้ประมาณ 51 เซนติเมตร หนาประมาณ 5 มิลลิเมตร ผลการทดลองดังกล่าวสอดคล้องกับ

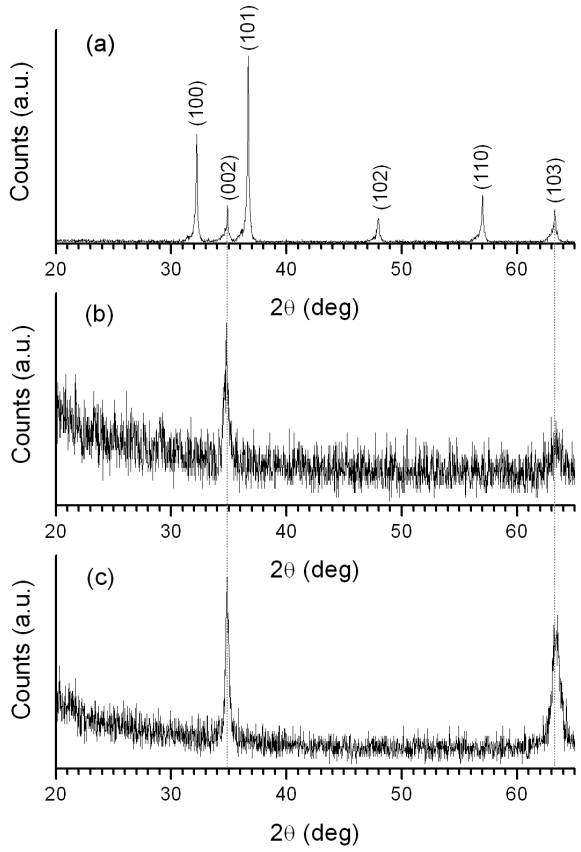
รายงานการวิจัยของ C. P. Liu และคณะ [4] ซึ่งทำการเตรียมเป้าสารเคลือบออกไซด์ของสังกะสีเจือด้วยอลูมิเนียม 2 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนักด้วยวิธีการตกตะกอนของสาร (grouting method) โดยทำการเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1,500 องศาเซลเซียส นาน 3 ชั่วโมง ทำให้ได้เป้าสารเคลือบเซรามิกสีเขียวเช่นเดียวกัน

(a) (b)

รูปภาพที่ 1 (a) สารผสมระหว่างออกไซด์ของสังกะสีเจือด้วยออกไซด์ของอลูมิเนียม 2 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนักอัดเป็นเม็ดเส้นผ่านศูนย์กลาง 63 เซนติเมตร หนา 8 มิลลิเมตร และ (b) เมื่อผ่านการเผาผนึกที่ที่อุณหภูมิ 1,400 องศาเซลเซียส เป็นเวลานาน 5 ชั่วโมง

สเปกตรัมการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ของเป้าสารเคลือบแสดงได้ดังรูปภาพที่ 2 ซึ่งจะเห็นได้ว่าเป้าสารเคลือบมีโครงสร้างผลึกหลายระนาบ (polycrystalline structure) ได้แก่ ระนาบ (100), (002), (101), (102), (110) และ (103) เป็นต้น ซึ่งสอดคล้องกับโครงสร้างผลึกแบบเวิร์ตไซต์ (wurtzite structure) ของ ออกไซด์ของสังกะสีที่รายงานโดย C.M. Muiva และคณะ [7] ศึกทำการเกี่ยวกับเปอร์เซ็นต์ของอลูมิเนียมที่เจือในโครงสร้างผลึกของสารประกอบออกไซด์ของสังกะสี ซึ่งพบว่าเมื่อเป็นสารประกอบออกไซด์ของสังกะสีบริสุทธิ์ ระนาบ (002) ในโครงสร้างผลึกจะมีความโดดเด่นกว่าระนาบอื่นมาก แต่เมื่อเพิ่มเปอร์เซ็นต์การเจืออลูมิเนียมลงในโครงสร้างผลึก จะพบว่ามีผลทำให้ระนาบ (002) ในโครงสร้างผลึกลดลง แต่ในทางกลับกันจะช่วยให้ระนาบ (100) และ (101) ในโครงสร้างผลึกเพิ่มสูงขึ้น

อย่างไรก็ตามจะเห็นได้ว่าสำหรับฟิล์มที่มีเวลาการเตรียม 1 ชั่วโมง จะพบว่ามีการเรียงตัวส่วนใหญ่อยู่ในระนาบ (002) โดยจะพบระนาบ (103) เพียงเล็กน้อยเท่านั้น และเมื่อเวลาการเตรียมเพิ่มเป็น 2 ชั่วโมง จะพบว่าโครงสร้างผลึกในฟิล์มจะมีระนาบ (002) เพิ่มขึ้นสังเกตได้จากความสูงของพีคที่เพิ่มขึ้น และในทำนองเดียวกันพบว่ามีการจัดเรียงตัวในระนาบ (103) เพิ่มมากขึ้น การเพิ่มขึ้นของระนาบ (002) และ (103) แสดงให้เห็นว่าเปอร์เซ็นต์อลูมิเนียมที่เจือลงในโครงสร้างผลึกของฟิล์มของสารประกอบออกไซด์ของสังกะสีมีค่าลดลงเมื่อเทียบกับในเป้าสารเคลือบ ผลการทดลองดังกล่าวสอดคล้องกับผลการทดลองของ D. Miao และคณะ [8] ที่ศึกษาผลของความหนาต่อคุณสมบัติของฟิล์มออกไซด์ของสังกะสีเจือด้วยอลูมิเนียม



รูปภาพที่ 2 สเปกตรัมการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ (a) เป้าสารเคลือบผ่านการเผาผนึกที่ที่อุณหภูมิ 1,400 องศาเซลเซียส เป็นเวลานาน 5 ชั่วโมง, (b) ฟิล์มบางออกไซด์ของสังกะสีเจือด้วยออกไซด์ของอลูมิเนียมเคลือบนาน 1 ชั่วโมง และ (c) ฟิล์มบางออกไซด์ของสังกะสีเจือด้วยออกไซด์ของอลูมิเนียมเคลือบนาน 2 ชั่วโมง

4. บทสรุป

จากผลการทดลองแสดงให้เห็นว่า เป้าสารเคลือบของสารประกอบออกไซด์ของสังกะสีเจือด้วยอลูมิเนียม 2 เปอร์เซ็นต์โดยน้ำหนัก สารเตรียมได้ด้วยกระบวนการปฏิกิริยาของแข็งจากสารตั้งต้น ออกไซด์ของสังกะสีและออกไซด์ของอลูมิเนียม โดยเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1,400 องศาเซลเซียส เป็นเวลานาน 5 ชั่วโมง และสามารถนำมาเป็นเป้าสารเคลือบสำหรับการเคลือบฟิล์มบางด้วยเทคนิค อาร์-เอฟ แมกนีตรอน สปัตเตอริ่ง ซึ่งฟิล์มบางที่เตรียมได้แสดงให้เห็นถึงโครงสร้างผลึกแบบเวิร์ตไซต์ของสารประกอบออกไซด์ของสังกะสี หลังจากที่เผาในสุญญากาศเป็นเวลานาน 1 ชั่วโมง ซึ่งการแสดงถึงโครงสร้างผลึกของฟิล์มที่เตรียมได้จะเป็นหลักฐานเพียงอย่างเดียวที่จะยืนยันความเป็นสารประกอบออกไซด์ของสังกะสีเจือด้วยอลูมิเนียม และจะสามารถนำไปศึกษาคุณสมบัติอื่นได้แก่ คุณสมบัติทางแสงและทางไฟฟ้าได้ต่อไป

5. กิตติกรรมประกาศ

คณะผู้วิจัยขอขอบคุณ ผศ.ดร. ธนากร โอสถจันทร์ ภาควิชาฟิสิกส์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยมหิดล สำหรับความเอื้อเฟื้อเครื่องวัดโครงสร้างผลึกด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ และขอขอบคุณ ดร. มติ ห่อประทุม สำหรับความเอื้อเฟื้อระบบเคลือบฟิล์มบางเทคนิค อาร์-เอฟ แมกนีตรอน สปัตเตอริ่ง ที่ศูนย์เทคโนโลยีอิเล็กทรอนิกส์และคอมพิวเตอร์แห่งชาติ (NECTEC)

6. เอกสารอ้างอิง

[1] J.-H. Lee, B.-O. Park. Materials Science and Engineering B 106 (2004) 242–245

[2] S.T. Shishiyanu, T.S. Shishiyanu, O. I. Lupan. Sensors and Actuators B 107 (2005) 379–386.

[3] V. Sittinger, F. Ruske, W. Werner, B. Szyszka, B. Rech, J.Hüpkes, G. Schöpe, H. Stiebig. Thin Solid Films 496 (2006) 16 – 25.

[4] C.P. Liu and G.R. Jeng. Journal of Alloys and Compounds 468 (2009) 343–349.

[5] M.H. Mamat, M.Z. Sahdan, Z. Khusaimi, A.Zain Ahmed, S. Abdullah, M. Rusop. Optical Materials 32 (2010) 696–699.

[6] C. P. Liu and G. R. Jeng. Thin Solid Films 468 (2008) 343-349.

[7] C.M. Muiva, T.S. Sathiaraj and K. Maabong. Ceramics International 37 (2011) 555–560.

[8] D. Miao, S. Jiang, S. Shang and Z. Chen. Solar EnergyMaterials&SolarCells127(2014)163–168.

[9] V. Devi, M. Kumar, R. Kumar and B.C. Joshi. Surface & Coatings Technology 271 (2015) 141–147.