

退火温度对 ZnO 薄膜晶体管电特性的影响*

刘玉荣^{1,2} 任力飞¹ 杨任花¹ 韩静¹ 姚若河^{1,2} 温智超¹ 徐海红³ 许佳雄¹

(1. 华南理工大学 电子与信息学院, 广东 广州 510640;

2. 华南理工大学 广东省短距离无线探测与通信重点实验室, 广东 广州 510640;

3. 华南理工大学 物理系, 广东 广州 510640)

摘要: 针对非晶硅和有机薄膜晶体管的低迁移率问题, 以高纯 Zn 为靶材, 反应磁控溅射沉积、且在不同温度下退火的 ZnO 薄膜作为半导体活性层, 成功地制备出基于 ZnO 材料的薄膜晶体管(ZnO-TFT), 研究了退火温度对 ZnO-TFT 电特性的影响. 结果表明: ZnO-TFT 的载流子迁移率随退火温度的升高而明显增大, 700℃ 退火的样品迁移率为 $8.00 \text{ cm}^2 / (\text{V} \cdot \text{s})$, 阈值电压随退火温度的升高而明显减小, 在较高温度下退火处理制备的 ZnO-TFT 呈现出较低的关态电流. 结合 X 射线衍射谱、原子力显微镜和 X 射线光电子能谱对 ZnO 薄膜的微结构及组分的分析, 发现 ZnO-TFT 性能随退火温度升高的改善来源于退火温度的升高使 ZnO 薄膜的晶粒尺寸增大且更均匀、外形更规整、表面更光滑, 氧含量更少.

关键词: 薄膜晶体管; 氧化锌; 电特性; 退火温度

中图分类号: TN321+.5

doi: 10.3969/j.issn.1000-565X.2011.09.018

薄膜晶体管(TFT)因在平板及柔性显示、集成传感器等领域具有广阔的应用前景而受到广泛的关注^[1-3]. 目前, TFT 器件主要包括非晶硅 TFT^[4]、多晶硅 TFT^[5]、有机 TFT^[6-7] 和氧化物 TFT^[8]. 非晶硅 TFT 具有制备温度低、成本低廉等特点, 但其载流子迁移率相对较低(小于 $1 \text{ cm}^2 / (\text{V} \cdot \text{s})$). 多晶硅 TFT 的载流子迁移率虽通常比非晶硅 TFT 高近两个数量级, 但因其较高的工艺温度而导致其在玻璃或柔性塑料基底上成膜困难, 从而使得器件的制备成本相对昂贵. 在有机 TFT 中, 基于可溶性有机材料的 TFT 因具备机械性能好、热稳定性高、成膜方法简单经济以及特别适合于制备大面积器件等特点而更具应用潜力, 但其载流子迁移率通常小于 $1 \text{ cm}^2 / (\text{V} \cdot \text{s})$, 而且有机器件目前还存在稳定性较差、寿命短、环境不友好等缺陷, 从而限制了其实际应用. 另外, 硅基 TFT 和有机 TFT 普遍对可见光较为敏感, 在显示技

术领域应用中影响开口率, 且会增加工艺的复杂性. 与硅基 TFT 和有机 TFT 相比, ZnO 基 TFT 因具有高迁移率、可见光透明、环境友好等优势而在平板显示的应用中可获得更大的驱动电流和更高的开口率. ZnO 有源层的制备及特性对 ZnO 基 TFT 器件性能起决定性作用. 目前 ZnO 有源层的制备方法包括脉冲激光沉积法^[9]、射频磁控溅射法^[10-11]、原子层沉积法^[12]、化学气相沉积法^[13] 和反应电子束蒸发法^[14] 等. 其中采用磁控溅射法制备出的有源半导体层因能兼顾高迁移率、面积大等优点而被广泛采用. 然而, 目前采用 ZnO 作溅射靶沉积的 ZnO 薄膜普遍存在大量的氧穴位, 导致 ZnO-TFT 呈现出不稳定性.

文中以高纯 Zn 作溅射靶, 采用反应溅射法生长 ZnO 薄膜制备底栅顶接触型 ZnO-TFT 器件, 在不同温度下对 ZnO 薄膜进行退火处理, 研究退火温度

收稿日期: 2011-02-24

* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(61076113); 广东省自然科学基金资助项目(8451064101000257); 华南理工大学中央高校基本科研业务费专项资金资助项目(2011ZM0027); 广东省大学生创新实验项目(S1010561035)

作者简介: 刘玉荣(1968-), 男, 博士, 副教授, 主要从事半导体器件与物理研究. E-mail: phlyr@scut.edu.cn

(*t*) 对 ZnO-TFT 器件性能的影响及其机理.

1 实验

以电阻率为 $0.6 \sim 1.2 \Omega \cdot \text{cm}$ 、晶向为 (100) 的 n^+ 型单晶硅片作衬底和栅(G)电极,采用标准硅平面工艺清洗硅片后,用 20% (体积分数) 的 HF 溶液除去硅片表面的自然氧化层,然后采用热氧化法生长 SiO_2 薄膜作为栅介质层,用稀释的 HF 溶液擦去硅片背面的氧化层后,采用磁控溅射法在 SiO_2 层上沉积一层 ZnO 薄膜作为半导体活性层. 溅射时采用高纯 Zn (纯度为 99.99%) 作为靶材,射频功率为 60 W,基底温度为 300°C ,Ar 与 O_2 的流量比为 6:5,溅射前反应室真空度为 4×10^{-4} Pa,溅射时反应室气压为 0.5 Pa,溅射时间为 80 min. ZnO 沉积后将基片置于 N_2 保护气氛下退火处理 1 h,退火温度分别为 500°C 、 600°C 和 700°C ,最后采用真空镀膜技术通过掩膜版,在真空度为 2×10^{-3} Pa 条件下蒸发 Al 形成源(S)、漏(D)电极,制备出底栅顶接触型 ZnO-TFT,器件结构剖面如图 1 所示. ZnO-TFT 器件的沟道长度(L)与宽度(b)由所用掩膜版图形来确定,分别为 30 和 $400 \mu\text{m}$. 利用 BX51M 金相显微镜(日本奥林巴斯公司)测量电极面积,Agilent 4284A 电容分析仪(美国安捷伦公司)测量 Al/ZnO/ SiO_2 /Si 结构的电容-电压特性,从而计算出单位面积栅介质电容(C_{ox}),为 $2.6 \times 10^{-8} \text{F}/\text{cm}^2$. ZnO-TFT 器件的电特性利用 Agilent 4156C 半导体参数分析仪(美国安捷伦公司)及 CASCADE RF-1 探针台(美国 CASCADE 公司)组成的测试系统进行测试,器件特性测试在室温无光照的普通空气环境下实现.

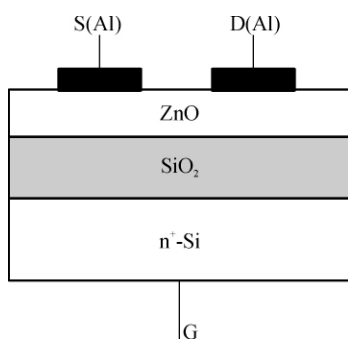


图 1 ZnO-TFT 器件结构剖面图

Fig. 1 Cross section view of ZnO-TFT device

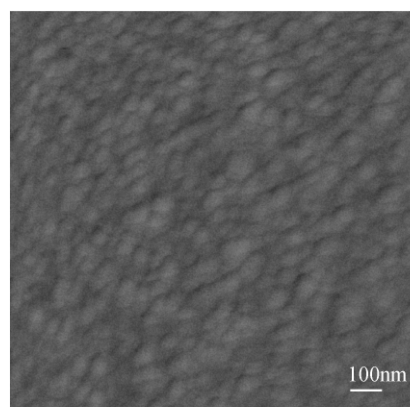
文中采用 CPSM4000S 型原子力显微镜 (AFM, 广州本原纳米仪器有限公司) 观察 ZnO 薄膜的表面形貌,分析晶粒大小;用 D8 Advance 型 X 射线衍射仪 (XRD, 德国布鲁克公司) 分析 ZnO 薄膜的结晶状况;运用 Axis uHru DCD 型 X 射线光电子能谱仪

(XPS, 英国克雷斯托公司) 分析 ZnO 薄膜中的元素组分.

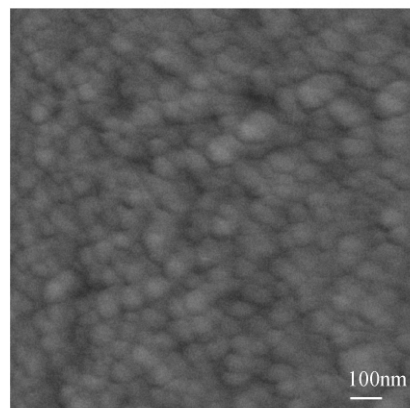
2 结果与讨论

2.1 ZnO 薄膜的特性

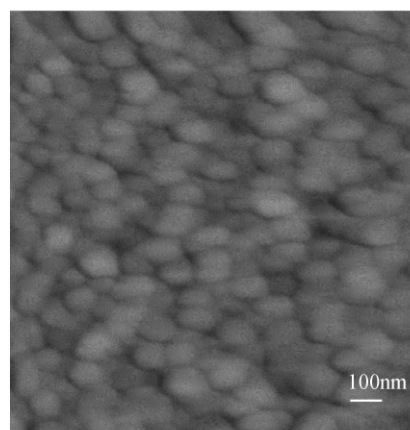
不同温度下退火处理后 ZnO 薄膜的 AFM 形貌如图 2 所示,退火时间为 1 h. 从图 2 可知,随着退火



(a) 500°C



(b) 600°C



(c) 700°C

图 2 不同温度下退火处理后的 ZnO 薄膜的 AFM 形貌
Fig. 2 AFM images of the surface of ZnO films annealed at different temperatures

温度的升高 ZnO 薄膜的晶粒直径逐渐增大,由原子力显微镜的相应软件分析得到平均晶粒直径先由 500 °C 的 61.7 nm 增加到 600 °C 的 73.8 nm,然后增加到 700 °C 的 98.1 nm. 由图 2 还可看出,随着退火温度的升高,晶粒外形更为规整,颗粒尺寸更加均匀,表面变得更为光滑.

图 3 给出了不同温度下退火处理后 ZnO 薄膜的 XRD 谱图. 由图 3 可明显看出: 500 °C 下退火处理后的 ZnO 薄膜的 XRD 谱存在一个很强的 (100) 晶面衍射峰,而 (002) 晶面衍射峰相对较弱; 当退火温度升高时, (100) 晶面衍射峰变弱甚至消失,而 (002) 衍射峰明显增强. 这说明低温下退火处理 ZnO 薄膜主要以 (100) 方向作为择优取向晶面,高温下退火处理则主要以 (002) 方向为择优取向晶面. 随着退火温度的升高, (002) 衍射峰的半高峰宽逐渐减小,说明 ZnO 薄膜中的晶粒尺寸随退火温度的升高而增大.

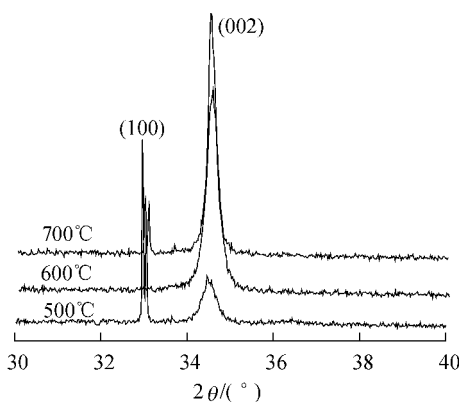


图 3 不同温度退火处理后 ZnO 薄膜的 XRD 谱图

Fig. 3 XRD spectrums of ZnO films annealed at different temperatures

2.2 ZnO 薄膜晶体管的电特性

图 4 给出了 3 种不同温度下退火处理的 ZnO-TFT 器件的输出特性曲线,退火时间为 1 h. 从图 4 可知: 栅电压 (U_{GS}) 和漏电压 (U_{DS}) 均为正偏压,说明所沉积 ZnO 薄膜为 n 型半导体层; 不同温度下退火处理的样品的饱和行为存在一定的差异,700 °C 下退火处理的样品的饱和行为明显优于 500 和 600 °C 下处理的样品. 这可以解释为: 对工作于积累状态下的 ZnO-TFT 在开态下漏电流 (I_{DS}) 由沟道电流和本体电流两部分构成,所以本体电阻增大有利于改善漏电流的饱和特性,由图 5 可知,较高温下退火的样品,在零栅电压下漏电流明显减小,即 ZnO 薄膜的本体电阻增大,故饱和特性有所改善. 从图 4 还可以看出,在相同的栅电压下饱和区漏电流随退火温度的升高而明显增加. 在栅电压为 50 V 时,对于 500 °C

下退火的样品,其饱和区漏电流仅为 100 μ A; 而对于 700 °C 下退火的样品,其饱和区漏电流高达 915 μ A. 这主要是由于 ZnO 薄膜质量改善而引起迁移率提高所致的.

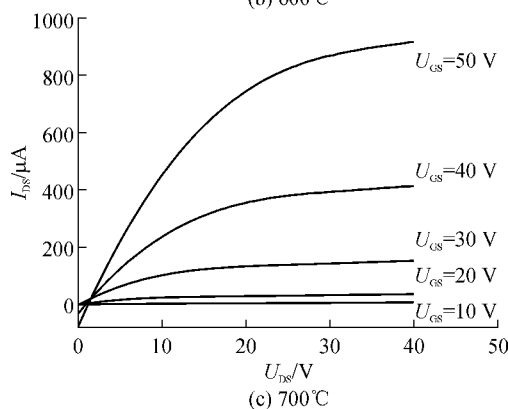
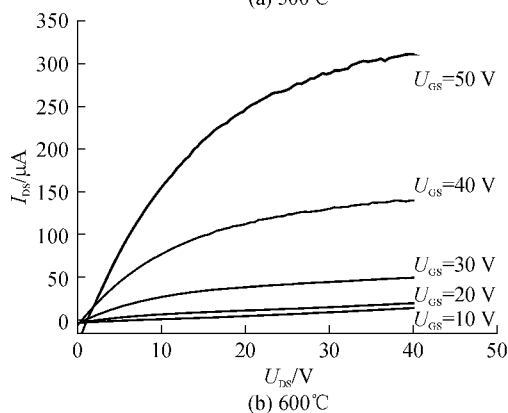
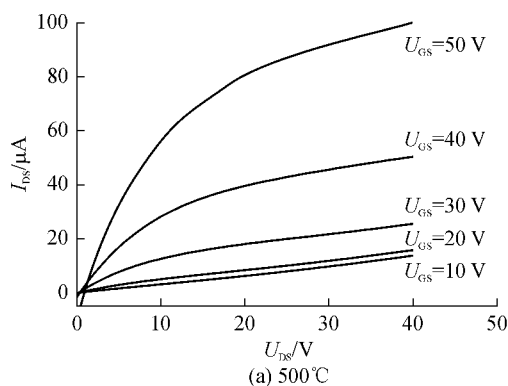


图 4 不同温度下退火处理的 ZnO-TFT 的输出特性曲线

Fig. 4 Output characteristics of ZnO-TFT devices subjected to annealing at different temperatures

为进一步分析退火温度对 ZnO-TFT 器件性能参数的影响,图 5 给出了 3 种不同温度下退火处理的 ZnO-TFT 器件的转移特性曲线. 由图 5 可知,晶体管呈现出开关特性,栅电压能控制漏电流的变化,当栅偏压加负向电压且不断增加时,漏电流无明显增加,晶体管处于关断状态,而当栅偏压加正向电压且不断增加时,晶体管进入开通状态. 对于薄膜晶体管而言,晶体管处于饱和状态时的饱和电流 $I_{D,sat}$

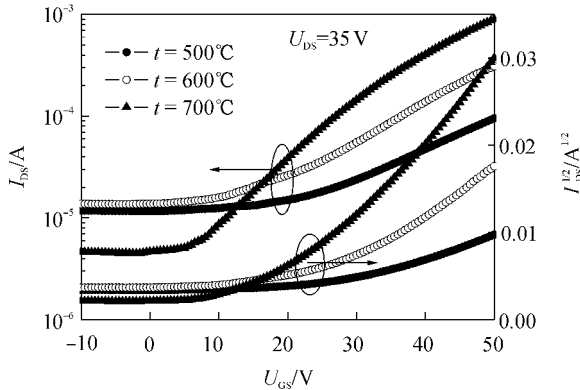


图5 不同温度下退火处理的 ZnO-TFT 的转移特性曲线
Fig. 5 Transfer characteristics of ZnO-TFT devices subjected to annealing at different temperatures

通常可表示为

$$I_{D,sat} = \frac{b}{2L} \mu_{eff} C_{ox} (U_{GS} - U_T)^2 \quad (1)$$

式中 μ_{eff} 为薄膜晶体管的饱和区载流子有效场效应迁移率, U_T 为阈值电压. 因此, 器件的有效场效应迁移率可从 $I_{DS}^{\frac{1}{2}}$ 与 U_{GS} 变化关系并通过式(2)求得:

$$\mu_{eff} = \frac{2LB^2}{bC_{ox}} \quad (2)$$

式中, $B = \partial I_{DS}^{\frac{1}{2}} / \partial U_{GS}$, 是转移特性实验曲线 ($I_{DS}^{\frac{1}{2}}$ 与 U_{GS} 关系曲线) 中饱和区的曲线斜率. 根据式(2), 由图5给出的 $I_{DS}^{\frac{1}{2}}$ 与 U_{GS} 关系曲线可计算出在漏电压为 35 V 时 ZnO-TFT 器件的饱和区载流子有效场效应迁移率. 不同温度下退火处理 ZnO-TFT 的有效场效应迁移率、阈值电压和开关电流比 (I_{on}/I_{off}) 如表1所示.

表1 不同温度退火处理后 ZnO-TFT 的主要性能参数
Table 1 Main performance parameters of ZnO-TFT devices subjected to annealing at different temperatures

$t/^\circ\text{C}$	$\mu_{eff}/(\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$	U_T/V	I_{on}/I_{off}
500	0.46	25.0	13.5
600	1.25	23.5	150.0
700	8.00	16.5	250.0

从表1可知, 随着 ZnO 薄膜退火温度的升高, ZnO-TFT 的有效场效应迁移率明显提高. 结合前文分析可知, 这主要是因为随着退火温度的升高, ZnO 薄膜的晶粒尺寸增大以及晶粒表面更为光滑. 另外还发现, 尽管 500 °C 下退火处理的 ZnO 薄膜出现较强的 (100) 衍射峰, 呈现出较强的 (100) 方向的结晶择优取向 (见图3), 但对应的 ZnO-TFT 的有效场效应迁移率却相对较低, 这表明控制 ZnO 薄膜沿 (002) 方向择优生长有利于提高 ZnO-TFT 迁移率. 从表1还可知, 随着退火温度的升高, 阈值电压明显减小, 在测量范围内的开关电流比明显提高. 通过

XPS 分析发现, 700 °C 下退火处理后的 ZnO 薄膜中的 O、Zn 原子比 (2:1) 明显小于 500 °C 下退火处理后的 ZnO 薄膜中的 O、Zn 原子比 (4:1). 这些偏离化学计量比的过剩氧在 ZnO 薄膜中引入缺陷态, 从而引起阈值电压和关态电流的增加, 致使阈值电压随退火温度升高而减小. 开关电流比之所以随退火温度的升高而增加, 一方面是由于迁移率的增大, 另一方面是由于关态电流的减小.

值得注意的是, 从图5可知, 3种退火温度所制备的 ZnO-TFT 的关态电流都相对过大, 最小的关态电流高达 4.4 μA . 过大的关态电流一方面来源于 ZnO 薄膜中的过剩氧所引入的缺陷态, 另一方面与沟道区之外 ZnO 薄膜的寄生电阻效应有关. 当晶体管处于关断状态时, 沟道区之外的寄生电阻与耗尽状态下的沟道电阻并联, 此时这个寄生电阻对沟道电阻起到短路作用, 从而呈现出相对高的关态电流. 因此, 可以通过减小 ZnO 薄膜中的缺陷态和对沟道区之外的 ZnO 薄膜进行刻蚀处理来实现 ZnO-TFT 关态电流的减小.

3 结语

文中以硅单晶片作衬底, 采用磁控溅射沉积 ZnO 薄膜成功地制备出了 ZnO-TFT, 在不同温度下对 ZnO 薄膜进行退火处理来改善 ZnO-TFT 的电特性. 结果表明, 随着退火温度的升高, 阈值电压减小, 开关电流比升高, 迁移率增大, 700 °C 退火的样品迁移率达 8.00 $\text{cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$. 这是因为随退火温度的升高, ZnO 薄膜的晶粒尺寸增大且更均匀, 晶粒外形更规整, 晶粒表面更光滑, 氧含量更少. 然而, 较高的退火温度与玻璃和塑料基底不兼容, 不利于低成本的应用需要, 因此低温下制备高性能 ZnO-TFT 将是下一步研究的重点.

参考文献:

- [1] Nathan A, Kumar A, Sakariya K, et al. Amorphous silicon back-plane electronics for OLED displays [J]. IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics, 2004, 10(1): 58-69.
- [2] Drury C J, Mutsaers C M J, Hart C M, et al. Low-cost all-polymer integrated circuits [J]. Applied Physics Letters, 1998, 73(1): 108-110.
- [3] Kato Y, Sekitani T, Noguchi Y, et al. Large-area flexible ultrasonic imaging system with an organic transistor active matrix [J]. IEEE Transactions on Electron Devices, 2010, 57(5): 995-1002.
- [4] Hekmatshoar B, Cherenack K H, Kattamis A Z, et al. Highly stable amorphous-silicon thin-film transistors on clear plastic [J]. Applied Physics Letters, 2008, 93(3): 032103-1-032103-3.

- [5] El-Mohri Y, Antonuk L E, Koniczek M, et al. Active pixel imagers incorporating pixel-level amplifiers based on polycrystalline-silicon thin-film transistors [J]. *Medical Physics* 2009, 36(7): 3340-3355.
- [6] 彭俊彪, 兰林锋, 杨开霞, 等. Ta₂O₅ 的氢热处理对有机薄膜晶体管性能的影响 [J]. *华南理工大学学报: 自然科学版* 2006, 34(10): 105-108.
Peng Jun-biao, Lan Lin-feng, Yang Kai-xia, et al. Influence of thermal treatments of Ta₂O₅ gate insulator in H₂ atmosphere on performance of organic thin-film transistors [J]. *Journal of South China University of Technology: Natural Science Edition* 2006, 34(10): 105-108.
- [7] 刘玉荣, 左青云, 彭俊彪, 等. 聚 3-己基噻吩聚合物薄膜晶体管的稳定性 [J]. *华南理工大学学报: 自然科学版* 2010, 38(5): 65-70.
Liu Yu-rong, Zou Qing-yun, Peng Jun-biao, et al. Stability of polymer thin-film transistors based on poly(3-hexylthiophene) [J]. *Journal of South China University of Technology: Natural Science Edition* 2010, 38(5): 65-70.
- [8] Zhang L, Li J, Zhang X W, et al. High performance ZnO-thin-film transistor with Ta₂O₅ dielectrics fabricated at room temperature [J]. *Applied Physics Letters* 2009, 95(7): 072112-1-072112-3.
- [9] De Souza M M, Jejurikar S, Adhi K P. Impact of aluminum nitride as an insulator on the performance of zinc oxide thin film transistors [J]. *Applied Physics Letters* 2008, 92(9): 093509-1-093509-3.
- [10] 唐立丹, 张跃. NH₃ 气氛处理制备 p 型 ZnO 薄膜及性能表征 [J]. *物理学报* 2008, 57(2): 1145-1149.
Tang Li-dan, Zhang Yue. Preparation and characteristics of p-type ZnO by treated gaseous ammonia annealing [J]. *Acta Physica Sinica* 2008, 57(2): 1145-1149.
- [11] Matthew G M, Jan G H. Influence of channel stoichiometry on zinc indium oxide thin-film transistor performance [J]. *IEEE Transactions on Electron Devices*, 2009, 56(2): 343-347.
- [12] Bang S, Lee S, Jeon S, et al. Al₂O₃ buffer in a ZnO thin film transistor with poly-4-vinylphenol dielectric [J]. *Semiconductor Science and Technology*, 2009, 24(2): 025008-1-025008-6.
- [13] 张威, 李梦珂, 魏强, 等. ZnO 纳米线场效应管的制备及 I-V 特性研究 [J]. *物理学报* 57(9): 5887-5892.
Zhang Wei, Li Meng-ke, Wei Qiang, et al. Fabrication and I-V characteristics of ZnO nanowire-based field effect transistors [J]. *Acta Physica Sinica*, 2008, 57(9): 5887-5892.
- [14] Wu H, Liang J, Jin G, et al. Transparent thin-film transistors using ZnMgO as dielectrics and channel [J]. *IEEE Transactions on Electron Devices* 2007, 54(11): 2856-2859.

Effects of Annealing Temperature on Electrical Properties of ZnO Thin-Film Transistors

Liu Yu-rong^{1,2} Ren Li-fei¹ Yang Ren-hua¹ Han Jing¹
Yao Ruo-he^{1,2} Wen Zhi-chao¹ Xu Hai-hong³ Xu Jia-Xiong¹

- (1. School of Electronic and Information Engineering, South China University of Technology, Guangzhou 510640, Guangdong, China;
2. Guangdong Key Laboratory of Short-Range Wireless Detection and Communication, South China University of Technology, Guangzhou 510640, Guangdong, China;
3. Department of Physics, South China University of Technology, Guangzhou 510640, Guangdong, China)

Abstract: Aiming at the low mobilities of the thin film transistors respectively based on amorphous silicon and organic semiconductor, ZnO thin-film transistors (ZnO-TFTs) were successfully prepared by means of the reactive magnetron sputtering from a high-purity Zn metal target, with the ZnO thin-films annealed at different temperatures as the active layer. The effects of the annealing temperature on the electrical properties of the ZnO-TFTs were investigated. The results show that the carrier mobility of the ZnO-TFTs obviously increases with the annealing temperature, which is up to 8.00 cm²/(V·s) at 700 °C, while the threshold voltage obviously decreases with the increase of the annealing temperature, and that ZnO-TFTs with the annealing treatment at a higher temperature is of lower OFF-state current. Moreover, according to the microstructure and compositions of the ZnO thin-films characterized by means of XRD, AFM and XPS, it is concluded that the performance improvement of the ZnO-TFTs with the increase of the annealing temperature is attributed to the facts that the increase of the temperature results in larger and more uniform grain size, lower surface roughness and lower oxygen content.

Key words: thin film transistors; zinc oxide; electrical properties; annealing temperature

责任编辑: 张娜娜