

非晶 IGZO 透明导电薄膜的 L-MBE 制备

王 东, 张景文, 种 景, 王建功, 侯 洵

(西安交通大学 陕西省信息光子技术重点实验室, 陕西 西安 710049)

摘 要: 报道了一种利用等离子辅助激光分子束外延技术 (L-MBE) 在石英衬底上制备 IGZO 透明导电薄膜的新工艺. 该工艺在超高真空中进行, 可以有效避免杂质和污染, 提高薄膜的纯度和光学、电学性能. 通过优化生长时的气体离化功率, 在 300W 射频功率下, 得到光学电学性能优良的非晶态 IGZO 透明导电薄膜, 其可见光范围内透过率超过 80%, 其室温电子迁移率高达 $16.14 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$, 明显优于目前薄膜晶体管 (TFT) 中常用的非晶硅和有机物材料. 测试结果表明, 采用此工艺制备的非晶态 IGZO 透明导电薄膜, 具有优良的光学、电学特性, 能代替非晶硅和有机物, 提高 TFT-LCD 的性能, 实现真正的全透明、高亮度及柔性显示.

关键词: 非晶 IGZO; 透明导电薄膜; L-MBE

中图分类号: O756; O472+.3; O472+.4

文献标识码: A

文章编号: 1000-7180(2009)06-0133-04

Fabrication of IGZO Transparent Conductive Thin Films by L-MBE

WANG Dong, ZHANG Jing-wen, CHONG Jing, WANG Jian-gong, HOU Xun

(Key Laboratory of Photonic Technology for Information of Shaanxi province, Xi'an Jiaotong University, Xi'an 710049, China)

Abstract: A new technology of fabricating amorphous IGZO transparent conductive thin films on quartz substrates by plasma-assisted L-MBE was reported. Because high vacuum can effectively avoid impurities and pollution, the purity, electrical and optical properties can be improved. By optimizing the ionize power of the gas source, high performance IGZO thin film was fabricated at a radio-frequency power of 300W. The sample has a high visible light transmittance of over 80% and a high electron mobility of $16.14 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$. Its performance is obviously superior to the existing thin film transistors (TFT) of amorphous silicon and organic materials. The results indicated that amorphous IGZO transparent conductive thin films can replace amorphous silicon and organic materials, improve the performance of TFT-LCD and realize full-transparent, high brightness and flexible display technology.

Key words: amorphous-IGZO; transparent conductive thin films; L-MBE

1 引言

随着信息技术的飞速发展, 人们对于显示技术提出更高的要求, 比如响应速度更快, 亮度更高, 能耗更小, 成本更低, 全透明以及柔性显示等^[1]. 薄膜晶体管驱动液晶显示技术 (TFT-LCD) 是一种重要的显示技术, 被广泛应用于笔记本电脑、液晶电视和手机中^[2]. TFT 作为 TFT-LCD 中的开关元件, 其性能决定了 LCD 的显示功能. 传统的非晶硅、有机物和多晶硅 TFT 由于器件和电极不透明, 受可见光影响较大或者迁移率低等缺点, 无法满足以上要求. 近

年来, 以 In_2O_3 、 SnO_2 和 ZnO 等透明氧化物半导体材料, 如 ITO 、 ZnO 、 Al 、 ZnO 、 Ga 和 ZnO 、 In 等, 作为电极或者沟道层的透明 TFT 逐渐成为研究的热点^[3-6]

最初人们的研究重点, 主要是制备单晶或多晶的透明氧化物半导体材料, 提高透明氧化物半导体材料的纯度, 以及薄膜的结晶质量, 从而提高透明导电薄膜的场致迁移率和透明性^[7-10]. 然而, 2004 年日本东京理工学院的研究人员通过在 ZnO 中掺杂高浓度的 In_2O_3 和 GaO , 在塑料基底上制备出非晶态的 IGZO 透明导电薄膜, 其迁移率超过

$\sim 10 \text{ cm}^2 \text{ v}^{-1} \text{ s}^{-1}$, 用它制作的晶体管可比目前的塑料晶体管高出 1~3 个数量级^[1]. 这种半导体材料可完全用在许多种柔性性、轻型、耐冲击电子装置中, 包括柔性显示器、电子纸和经久耐用的计算机. 自此, 非晶态 IGZO 透明导电薄膜和以其为沟道层的 TFT 的开始受到关注, 采用不同制备方法和工艺的 IGZO 透明导电薄膜和 TFT 也随之见诸报道^[1, 13, 14]. 但是, 国外关于 IGZO 材料的制备主要采用磁控溅射, 这种工艺由于真空度较低, 制备出的薄膜纯度不高, 而其薄膜中缺陷密度较高, 大大影响了器件的性能和寿命; 而国内关于 IGZO 薄膜的研究仍属于空白. 因此, 研究较高真空度下 IGZO 薄膜的制备工艺具有重要的意义和应用前景.

文中利用等离子辅助 L-MBE 系统, 在石英玻璃衬底上制备了非晶态 IGZO 透明导电薄膜. 通过对所得的薄膜样品结晶性能、表面形貌以及光学、电学性能表征, 讨论了不同气源离化功率对 IGZO 薄膜性能的影响, 优化了 IGZO 透明导电薄膜的 L-MBE 法制备工艺.

2 实验

文中利用等离子辅助 L-MBE, 在石英玻璃衬底上生长了 IGZO 薄膜. 该系统采用 KrF 准分子激光器(德国 Lambda Physik 102 Compex, 波长 248nm, 能量密度 2 J/cm^2 , 5Hz)蒸熔高纯(纯度 > 99.999%) IGZO 靶材(In_2O_3 :GaO:ZnO 摩尔比为 1:1:1). 系统本底真空 $1 \times 10^{-6} \text{ Pa}$, 生长时高纯离化氧(纯度 > 99.995%)的分压为 $1 \times 10^{-3} \text{ Pa}$, 采用射频原子源(英国 Oxford Applied Research HD-25)离化. 先将石英衬底分别用分析纯丙酮、酒精超声清洗 10 分钟; 然后用高纯(纯度 > 99.999%)氮气吹干备用. 放入真空室后先将衬底加热到 700°C , 通入离化氧($1 \times 10^{-3} \text{ Pa}$, 功率 300W)预处理 30min, 以去除表明吸附的杂质和水分; 然后降温至 200°C , 分别在不同离化功率下(100W, 200W, 300W 和 400W)生长 2 小时 IGZO 薄膜, 台阶仪测量薄膜厚度约为 600nm.

原生 IGZO 薄膜的厚度采用台阶仪(美国 Veeco DEKTAK 6M)测量; 其结晶性能采用高分辨衍射仪(荷兰 Philips X'Pert MRD 3040, Cu $\text{K}\alpha 1$, 波长为 0.15406 nm)表征; 其表面形貌的表征采用高分辨场发射扫描电子显微镜(日本 JEOL JSM-7000); 薄膜成分采用能谱仪(英国 Oxford)分析; 电学特性采用国产 Hall 测试系统表征, 其配置为 Van Der Pauw 四探针. 磁场强度为 3000G; IGZO 薄膜的透过率曲

线采用日本日立公司的 U-3010 光谱仪测量; 其室温发光性能采用 He-Cd 激光器(日本 Kimmon, 325nm, 20mW)为激发光源, 单色仪与光电倍增管为探测器来表征.

3 结果与分析

3.1 IGZO 薄膜的 XRD 图样

图 1 为 IGZO 薄膜样品的高分辨 XRD 衍射图样. 可以看出所得的薄膜均呈现明显的非晶形态. 当 2-Theta 角从 20° 扫描到 90° 的范围, 样品的衍射强度很弱, 而 XRD 图样分别在 20° 、 30° 和 60° 附近显示出 3 个非晶包络. 这一结果与目前国际上有关 IGZO 薄膜结晶性能的报道相一致^[1, 1]. 而且即使调整不同的生长条件(不同的射频离化功率和不同的氧气分压), 所得 IGZO 薄膜样品的 XRD 图样变化不大, 也呈现明显的非晶态. 这说明, 用 L-MBE 技术生长的 IGZO 薄膜同样也是非晶态.

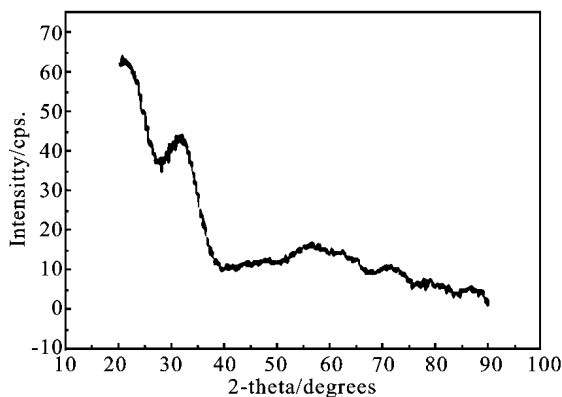


图 1 IGZO 薄膜的 XRD 衍射图样

3.2 IGZO 薄膜的表面形貌和成分

原生的 IGZO 薄膜的表面形貌较差, 图 2 为 300W 射频功率的 IGZO 样品在放大倍率为 20000 倍时的 SEM 图样(其余样品的 SEM 图样无明显区别). 由图中可以明显看出, 样品的表面凹凸不平, 而且在 $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm}$ 范围内均匀分布着岛状的结构, 经 EDS 能谱分析表明, 该结构可能为 In 含量较高的 IGZO.

图 3 分别显示了生长在不同功率下的 IGZO 样品的 EDS 图样(其中最上面的图线为氧气分压 0.1 Pa 时生长的样品). 从图中可以看出, 尽管生长条件不同, EDS 分析的结果差别却不大. 表 1 中还列出了 EDS 分析的原生 IGZO 样品中的主要金属元素原子百分含量之比, 在不同的射频离化功率下生长的样品, 样品基本维持在 In:Ga:Zn 的原子百分比 10:10:3 的水平. 200W 的样品 Ga 元素的含量稍

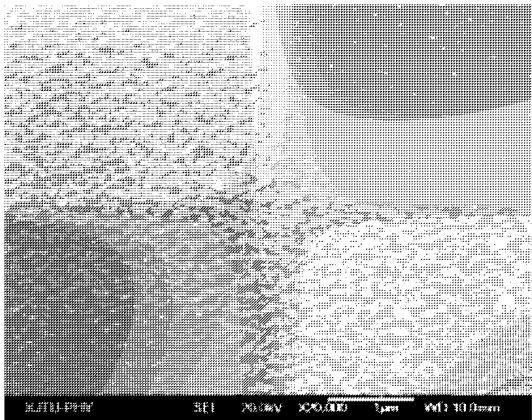


图2 IGZO薄膜的SEM图样

低一些.这些结果表明,生长条件的变化,对于IGZO薄膜的成分影响较小.

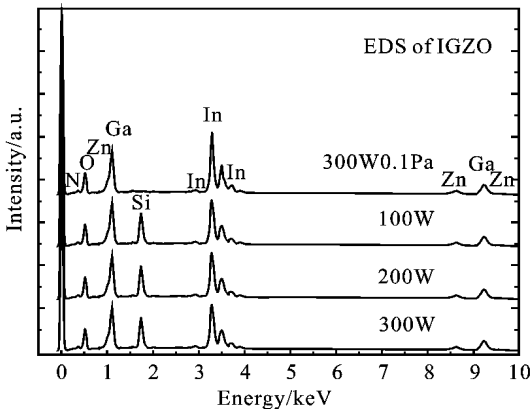


图3 IGZO薄膜的EDS能谱图样

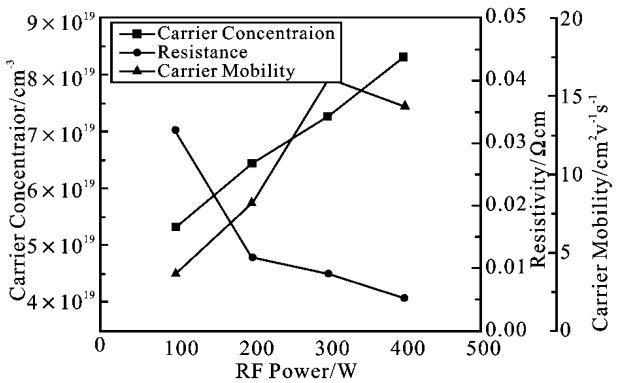


图4 IGZO样品的电学特性随射频功率的变化

3.3 IGZO薄膜的电学性质

对原生的IGZO薄膜进行了室温Hall效应实验,其配置方式为Van Der Pauw四探针,欧姆接触采用金属In,磁场强度为3 000高斯,驱动电流100μA,其测试结果如表1所示.图4所示为原生的IGZO样品的电学特性随生长时的射频离化功率的变化.当射频功率增加的过程中,薄膜的Hall迁移率从100W时的 $3.67\text{ cm}^2\text{ v}^{-1}\text{ s}^{-1}$ 升高到300W时的

$16.14\text{ cm}^2\text{ v}^{-1}\text{ s}^{-1}$ 并达到最大值,当功率继续增加至400W时,Hall迁移率反而下降至 $14.35\text{ cm}^2\text{ v}^{-1}\text{ s}^{-1}$.随着射频功率的增加,IGZO薄膜的载流子浓度呈现明显的增加趋势;而电阻率则呈现减小的趋势.由以上结果可以看出,生长时射频离化氧源的功率对样品的电学特性有着深刻的影响,300W生长的样品具有最高的载流子浓度和迁移率以及比较低的电阻率.

表1 不同生长条件下IGZO薄膜的电学特性

样品	In:Ga:Zn (atom%)	射频功率/W	Hall迁移率/ ($\text{cm}^2\text{ v}^{-1}\text{ s}^{-1}$)	载流子浓度/ cm^{-3}	电阻率/ Ωcm
392#		400	14.35	8.31×10^{19}	5.24×10^{-3}
384#	10.0:9.8:3.0	300	16.14	7.28×10^{19}	9.04×10^{-3}
385#	9.9:9.0:3.1	200	8.20	6.44×10^{19}	1.18×10^{-2}
386#	10.3:10.1:3.2	100	3.67	5.31×10^{19}	3.20×10^{-2}

注:温度:室温;磁场:3 000G;驱动电流:100μA.

3.4 IGZO薄膜的光学特性

图5所示为IGZO薄膜的室温透射谱.从图中可以看出,在波长300nm之前,IGZO薄膜的透过率为0,表明样品对波长小于300nm的光完全吸收.当射频功率较低时,样品的吸收边斜率较小,而且500~800nm范围内的透过率只有70%左右;当射频功率增加到300W时,样品的透明性明显增强,吸收边也随之变得陡峭,400~900nm范围内的透过率达到80%以上;当射频功率增加大至400W,样品透明性却再次变差;对于氧气分压为0.1Pa生长的样品,其吸收波长红移至375nm附近,而其吸收边的斜率也较小,透明性明显变差.

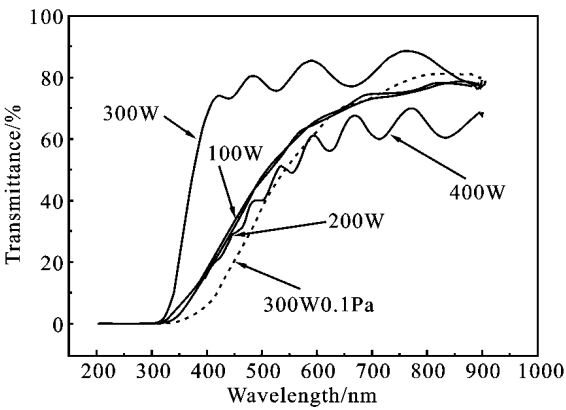


图5 IGZO薄膜样品的室温透射谱

图6所示为IGZO样品室温光致发光光谱.从图中可以看出,所有IGZO均表现出较差的发光性能,发光强度较低,发光峰峰宽也较大.随着射频功率的增大,IGZO样品的发光性能明显加强,功率为400W的样品(392#)带边发光峰强度最高,峰位大致在380~400nm之间.由此可见,光致发光实验的

结果与前面的透射实验规律基本一致^[1],随着生长时的射频离化功率增加,IGZO 薄膜的透明性和发光性能也显著提高.

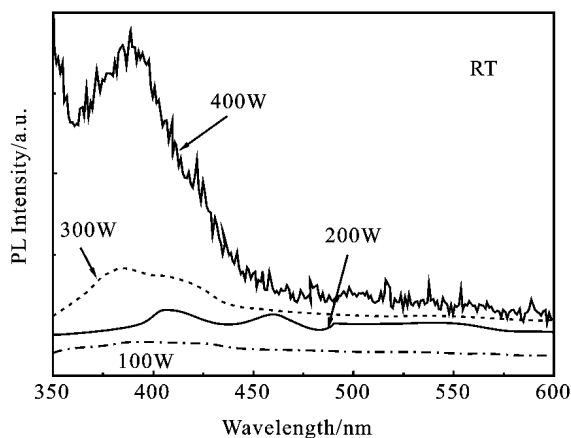


图6 IGZO 薄膜样品的室温光致发光谱

4 结束语

利用等离子辅助 L-MBE 技术在石英衬底上生长了性能优良的高纯度非晶态 IGZO 透明导电薄膜.对原生薄膜样品的结晶性能、光学和电学性能进行的测试表明,随着生长时气源离化功率的增加,薄膜的透明性和电学性能随之增加,其中 300W 时获得的样品具有优良的电学性能(载流子浓度 $8.31 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$,电阻率 $5.24 \times 10^{-3} \Omega \text{ cm}$,迁移率 $16.14 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$),和最高的透明性(可见光范围透过率超过 80%).以上结果表明,等离子辅助 L-MBE 法是一种制备高纯度非晶态 IGZO 透明导电薄膜的可行途径.

参考文献:

- [1] Hoffman R L, Norris B J, Wager J F. ZnO-based transparent thin-film transistors[J]. Appl Phys Lett., 2003, 82(5): 733-735.
- [2] 李瑛,魏廷存,张盛兵,等. 手机用 TFT 彩色液晶显示驱动芯片的可配置接口电路设计[J]. 微电子学与计算机, 2007, 23(5): 46-52.
- [3] Kwon Y, Li Y, Heo Y W, et al. Enhancement-mode thin-film field-effect transistor using phosphorus-doped (Zn,Mg)O channel[J]. Appl Phys Lett, 2004, 84(14): 2685-2687.

- [4] Hoffman R L. ZnO-channel thin-film transistors: Channel mobility[J]. J Appl Phys, 2004, 95(10): 5813-5819.
- [5] Fortunato E M C, Barquinha P M C, Pimentel ACMBG, et al. Fully transparent ZnO thin-film transistor produced at room temperature[J]. Adv Mat, 2005, 17(5): 590-594.
- [6] Masuda S, Kitamura K, Okumura Y, et al. Transparent thin film transistors using ZnO as an active channel layer and their electrical properties[J]. J Appl Phys, 2003, 93(3): 1624-1630.
- [7] Carcia P F, McLean R S, Reily M H, et al. Transparent ZnO thin-film transistor fabricated by rf magnetron sputtering[J]. Appl Phys Lett, 2003, 82(7): 1117-1119.
- [8] Nishii J, Hossain F M, Takagi S, et al. High mobility thin film transistors with transparent ZnO channels[J]. Jpn J. Appl Phys Part 2, 2003, 42(4A): L347-L349.
- [9] Norris B J, Anderson J, Wager J F, et al. Spin-coated zinc oxide transparent transistors[J]. J. Phys D: Appl Phys, 2003, 36(20): L105-L107.
- [10] Volkman S K, Mattis B A, Molesa S E, et al. A novel transparent air-stable printable n-type semiconductor technology using ZnO nanoparticles[J]. 2004 IEEE International Electron Devices Meeting (IEDM), IEDM Technical Digest, 2004(13/15): 769-772.
- [11] Nomura K, Ohta H, Takagi A, et al. Room-temperature fabrication of transparent flexible thin-film transistors using amorphous oxide semiconductors[J]. Nature, 2004, 432(7016): 488-492.
- [12] Takagi A, Nomura K, Ohta H, et al. Carrier transport and electronic structure in amorphous oxide semiconductor, a-InGaZnO₄[J]. Thin Solid Films, 2005, 486(1/2): 38-41.
- [13] Yabuta H, Sano M, Abe K, et al. High-mobility thin-film transistor with amorphous InGaZnO₄ channel fabricated by room temperature rf-magnetron sputtering[J]. Appl Phys Lett, 2006, 89(11): 112-123.
- [14] Ito M, Miyazaki C, Ichizaki M, et al. Application of amorphous oxide TFT to electrophoretic display[J]. J. Non-crystalline Solids, 2008, 354(19/25): 2777-2782.

作者简介:

王东男, (1976-), 博士研究生, 研究方向为 ZnO 基宽带隙半导体材料及相关器件.