光电器件

DOI：10.16818/j.issn1001－5868.2022050601

# 水基溶液法IGZO-TFT的电学特性研究

崇　乐[1]，栗旭阳[1]，蔡长龙[1*]，梁海锋[1]，裴旭乐[1]，弥　谦[1]，喻志农[2*]

（1. 西安工业大学 光电工程学院，西安 710021；2. 北京理工大学 光电学院，北京 100081）

**摘　要：** 采用水基溶液法制备铟镓锌氧化物薄膜晶体管(IGZO-TFT)，研究了在有无紫外光辅助退火条件下，不同后退火温度(270，300，330，360和400 ℃)对IGZO-TFT器件电学性能的影响。研究发现，IGZO-TFT在后退火温度为360 ℃时器件电学性能最佳，从而证明了水基溶液法在小于400 ℃的低温下可以制备IGZO-TFT。同时，研究表明，在后退火温度为360 ℃时，与无紫外光辅助退火IGZO-TFT相比，经紫外光辅助退火IGZO-TFT的饱和迁移率从1.19 $cm^2$/Vs增加到1.62 $cm^2$/Vs，正栅偏压偏移量从8.7 V降低至4.6 V，负栅偏压偏移量从－9.7 V降低至－4.4 V，从而证明了紫外光辅助退火对IGZO薄膜具有激活与钝化作用，可以优化IGZO-TFT器件的电学性能。

**关键词：** IGZO-TFT；水基溶液法；紫外光辅助退火；偏压稳定性

**中图分类号：** O484；TN304.055　**文章编号：** 1001－5868(2022)05－0861－06

## Study on Electrical Properties of IGZO-TFT by Aqueous Solution Method

CHONG Le[1]，LI Xuyang[1]，CAI Changlong[1]，LIANG Haifeng[1]，PEI Xule[1]，MI Qian[1]，YU Zhinong[2]

（1. School of Optoelectronic Engineering，Xi'an Technological University，Xi'an 710021，CHN；
2. School of Optics and Photonics，Beijing Institute of Technology，Beijing 100081，CHN）

**Abstract：** Indium gallium zinc oxide thin film transistors (IGZO-TFT) were prepared by aqueous solution method，and the effects of different post-annealing temperatures (270，300，330，360 and 400 ℃) on the electrical properties of IGZO-TFT devices with and without UV-assisted annealing conditions were investigated. It is found that the IGZO-TFT exhibites the best device electrical properties at the post-annealing temperature of 360 ℃，thus demonstrating that the aqueous solution method can prepare IGZO-TFTs at low temperatures of less than 400 ℃. Meanwhile，it is shown that at a post-annealing temperature of 360 ℃，compared with the non-UV-assisted annealed IGZO-TFT，the saturation mobility of the UV-assisted annealed IGZO-TFT increases from 1.19 to 1.62 $cm^2$/Vs，and the positive gate bias offset decreases from 8.7 to 4.6 V and the negative gate bias offset decreases from －9.7 to －4.4 V，thus demonstrating that UV-assisted annealing has activating and passivating effects on IGZO films，which can optimize the electrical properties of IGZO-TFT devices.

**Key words：** IGZO-TFT；aqueous solution method；UV-assisted annealing；bias stability

**收稿日期：**2022－05－06.

**基金项目：**国家自然科学基金项目(61874009，11975177)；兵器工业联合基金项目；陕西省重点研发计划项目(2020GY-045).

* **通信作者：**蔡长龙，喻志农

**E-mail：** 879867254@qq.com；znyn@bit.edu.cn.

## 0 引言

铟镓锌氧化物薄膜晶体管(IGZO-TFT)凭借高可见光透过率、高载流子迁移率、好的大面积制备均匀性,以及可低温制备等优点,成为实现大尺寸柔性显示的关键 TFT 技术[1-2]。IGZO 薄膜作为 IGZO-TFT 的核心功能层,其制备方法有磁控溅射、分子束外延、原子层沉积、激光脉冲沉积、化学气相沉积等真空法,以及旋涂、喷墨打印、滚对滚、提拉等溶液法,其中磁控溅射法凭借较高的技术成熟度成为目前商用 IGZO-TFT 的主要制备方式。但是,以磁控溅射为代表的真空制备方法普遍依赖高昂的真空设备,且不易于 IGZO 薄膜的大面积均匀性制备,从而限制了其在低成本、大尺寸显示器件方面的应用[3-4]。

与真空法制备技术相比,溶液法凭借纳米量级均匀混合、成分及合成过程可控、设备及工艺简单、低成本、高产出,以及易于大面积制备的优点引起了业界的广泛关注[5]。为了促进 IGZO 薄膜成膜反应的进行以及残余杂质的有效分解,溶液法制备技术通常需要大于 400 ℃的高温热退火过程[6],但是该退火温度高于大多数有机塑料衬底的玻璃化转变温度,存在柔性基板不兼容的问题,限制了其在柔性显示技术中的应用。为此,研究人员通过优化前驱液,创新后退火处理过程,以及结构设计,先后提出包括光化学激活法、燃烧法、水基溶液法在内的多种低温制备技术[7-10]。

本文基于水基溶液法 $In_2O_3$-TFT 已有的研究[11],在不添加任何稳定剂的前提下,获得水基 IGZO 前驱液,首先通过对比研究不同后退火温度对 IGZO-TFT 器件性能的影响,论证了水基溶液法程中引入紫外光辅助退火工艺,优化了 IGZO-TFT 的器件性能,从而在较低的制备温度下获得器件性能良好的环境友好型 IGZO-TFT。该方法简单、环保、低价,对实现 IGZO-TFT 的低温溶液法制备,构建印刷 IGZO-TFT 阵列技术体系,实现印刷显示与柔性显示技术的结合具有重要意义。

## 1 薄膜与器件制备

### 1.1 前驱液配制

以 In∶Ga∶Zn 摩尔比为 3∶1∶1 称取相应的水合硝酸铟[$In(NO_3)_3 \cdot xH_2O$]、水合硝酸镓[$Ga(NO_3)_3 \cdot xH_2O$]与二水合乙酸锌[$Zn(CH_3COO)_2 \cdot 2H_2O$]粉末,在不添加任何稳定剂的情况下,将称取的粉末依次添加到 15 MΩ 的去离子水(DIW)中,60 ℃磁力搅拌 2 h 后,静置老化 24 h,获得 0.3 mol/L 清澈、无色、均匀的水基 IGZO 前驱液,整个前驱液配制过程在大气环境中完成。

### 1.2 IGZO 薄膜与 IGZO-TFT 的制备

采用具有 100 nm 热生长 $SiO_2$ 层的重掺杂 p 型 Si 片($SiO_2/p^{++}$-Si)作为 IGZO 薄膜的生长基片。首先将裁切好的 $SiO_2/p^{++}$-Si 基片依次在 DIW、丙酮、异丙醇和 DIW 中超声清洗 10 min,经氮气吹干后置于等离子清洗机中 $O_2$ 等离子清洗 10 min,以增强基片表面浸润性。接着将清洗后的 $SiO_2/p^{++}$-Si 基片放置于匀胶机吸盘上,使用移液枪转移 100 μL 经 0.22 μm 水系过滤头过滤的 IGZO 前驱液均匀滴涂在 $SiO_2/p^{++}$-Si 基片上,以 5 000 r/min 的转速旋涂 30 s 后,如图 1 所示,获得预沉积 IGZO 薄膜。然后将预沉积 IGZO 薄膜置于 100 ℃的加热台上预退火 10 min。

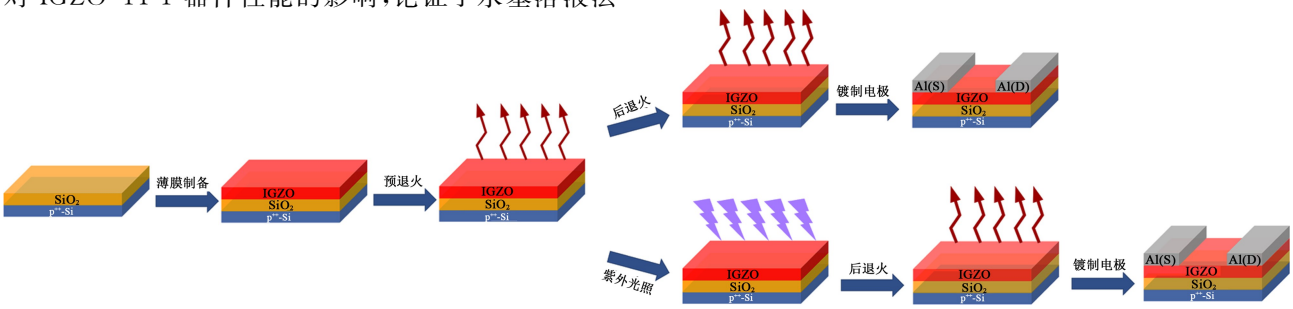


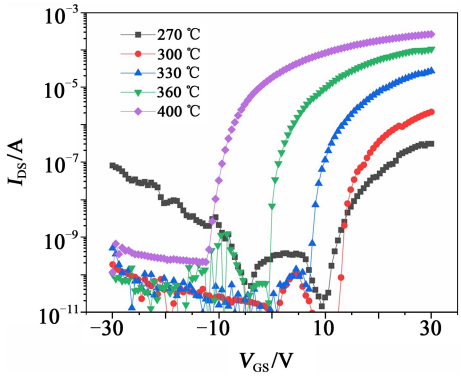

图 1 IGZO-TFT 的工艺流程示意图

IGZO-TFT 的工艺流程如图 1 所示,将预退火后的 IGZO 薄膜分为两组。组 1 作为对比组,仅进行后退火,在马弗炉中分别在 270,300,330,360 和 400 ℃下退火 2 h,对应的样品略写为 S1-IGZO。组 2 先采用 365 nm,1 kW 的高功率紫外光源照射 15 min,然后在马弗炉中分别以 270,300,330,360

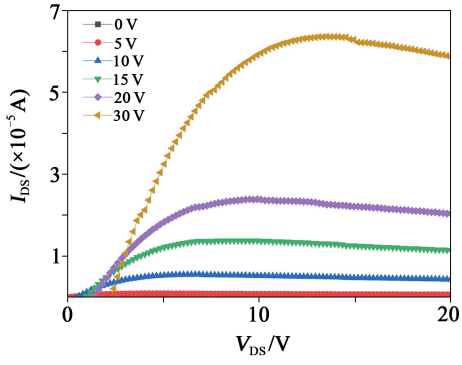
和 400 ℃退火 2 h，相应的样品略写为 S2-IGZO。然后在制备好的 IGZO 薄膜上借助掩膜版采用热蒸发镀制 100 nm 沟道宽长比为 1 000 μm∶100 μm 的铝电极，获得底栅顶接触型 S1-IGZO-TFT 与 S2-IGZO-TFT。其中 $p^{++}$-Si，100 nm-$SiO_2$，IGZO 薄膜和铝电极分别作为 IGZO-TFT 的栅电极、栅绝缘层、沟道层和源漏电极。最后在室温下采用 Keithley-2612A 半导体参数分析仪采集与分析 IGZO-TFT 的电学特性。

## 2　实验结果与讨论

在不同后退火温度下制备的 S1-IGZO-TFT 的转移特性曲线如图 2(a)所示，相应的电学特性参数见表 1。由图 2(a)与表 1 可知，随着后退火温度的升高，S1-IGZO-TFT 的开态电流($I_{on}$)增加，阈值电压($V_{th}$)负向漂移，亚阈值摆幅($SS$)先减小后增大。其中，270 与 300 ℃后退火温度对应 S1-IGZO-TFT 的转移特性曲线随着 $V_{GS}$ 的增加，$I_{DS}$ 出现抖动现象，这与 270 ℃与 300 ℃后退火温度下 IGZO 薄膜凝结与致密化反应程度较低、稳定的金属氧键结构占比较少、残余羟基含量较高有关；360℃后退火温度对应 S1-IGZO-TFT 展现出最佳器件性能，饱和迁移率($\mu_{sat}$)达 1.19 $cm^2/Vs$，$V_{th}$ 为 2.23 V，SS 为 0.37 V/dec，开关比($I_{on}/I_{off}$)为 $6\times10^6$，从而展现出水基溶液法在小于 400 ℃低温下制备 IGZO-TFT 的能力。




(a)　不同后退火温度 S1-IGZO-TFT 的转移特性曲线




(b)　360 ℃-S1-IGZO-TFT 的输出特性曲线

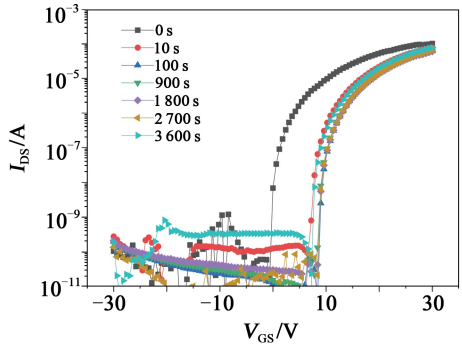
图 2　不同温度下 S1-IGZO-TFT 的转移、输出特性曲线

然而，如图 2(b)所示，360 ℃-S1-IGZO-TFT 虽然在 $V_{DS}$ 的作用下出现明显夹断，使 $I_{DS}$ 达到饱和，但是在饱和区，$I_{DS}$ 随 $V_{DS}$ 的升高而下降，这主要源于 360 ℃后退火温度下制备的 IGZO 薄膜中仍包含一定量充当散射中心的缺陷态[12]，使得 360 ℃-S1-IGZO-TFT 随着 $V_{DS}$ 的升高，电子散射的几率增加，从而造成 $I_{DS}$ 饱和后随 $V_{DS}$ 的升高而下降。此外，当 $V_{DS}$ 较小时，$I_{DS}<0$ A，具有明显的电流拥堵现象，表明 360 ℃-S1-IGZO 薄膜与源漏电极之间存在明显的界面缺陷，增加了接触电阻。

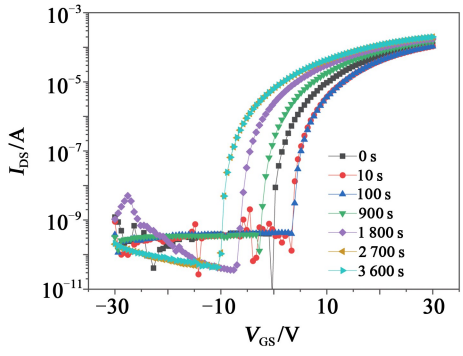
**表 1　S1-IGZO-TFT 的电学特性参数**

| 样品 | $\mu_{sat}$/($cm^2\cdot V^{-1}\cdot s^{-1}$) | $V_{th}$/V | SS/(V/dec) | $I_{on}/I_{off}$ |
|---|---|---|---|---|
| 270 ℃ | 0.01 | 12.26 | 1.09 | $10^4$ |
| 300 ℃ | 0.07 | 13.83 | 0.61 | $10^6$ |
| 330 ℃ | 0.53 | 9.80 | 0.53 | $10^5$ |
| 360 ℃ | 1.19 | 2.23 | 0.37 | $10^6$ |
| 400 ℃ | 1.61 | −0.78 | 1.15 | $10^4$ |

360 ℃-S1-IGZO-TFT 在正栅与负栅偏压作用下对应的转移特性曲线如图3所示。由图3可知，




(a)　正栅

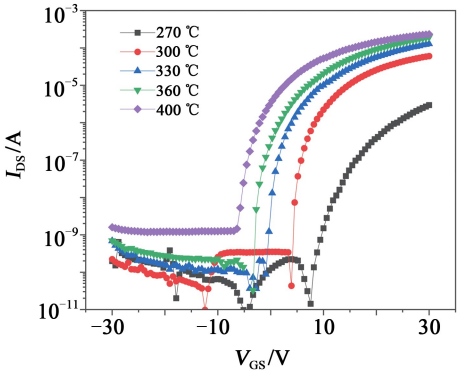



(b)　负栅

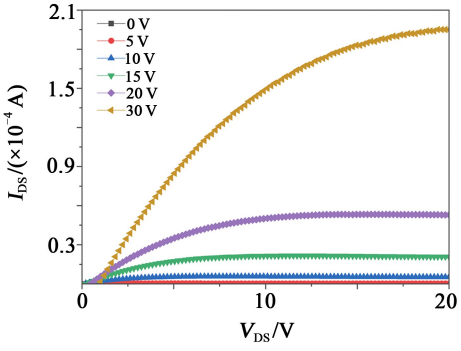
图 3　360 ℃-S1-IGZO-TFT 在正栅与负栅偏压作用下对应的转移特性曲线

在 $V_{GS}=\pm10$ V 的偏压作用下，360 ℃-S1-IGZO-TFT 分别出现明显的正向与负向偏移。其中，SS 没有明显变化，所以360℃-S1-IGZO-TFT的正向与负向偏移主要源于 IGZO 薄膜的电荷俘获[13]。在正栅偏压作用下，松散束缚的氧离子向界面聚焦，导致 $V_{th}$ 正向偏移；在负栅偏压作用下，氧空位向界面聚焦，导致 $V_{th}$ 负向偏移。

在不同后退火温度下制备的 S2-IGZO-TFT 的转移特性曲线如图 4(a)所示。由图 4(a)可知，S2-IGZO-TFT 即使在 270 ℃的后退火温度下，转移特性曲线也相对平滑，表明紫外光辅助退火有助于改善 IGZO 薄膜质量，降低缺陷态。当后退火温度为 360 ℃时，由图 4(b)可知，经紫外光辅助退火得到的 360 ℃-S2-IGZO-TFT，出现明显的夹断，并且 $I_{DS}$ 饱和后趋于稳定，展现出良好的栅压调控作用；此外，$V_{DS}$ 较小时没有明显的电流拥堵现象，说明 S2-IGZO 薄膜与源漏电极之间具有良好的欧姆接触。



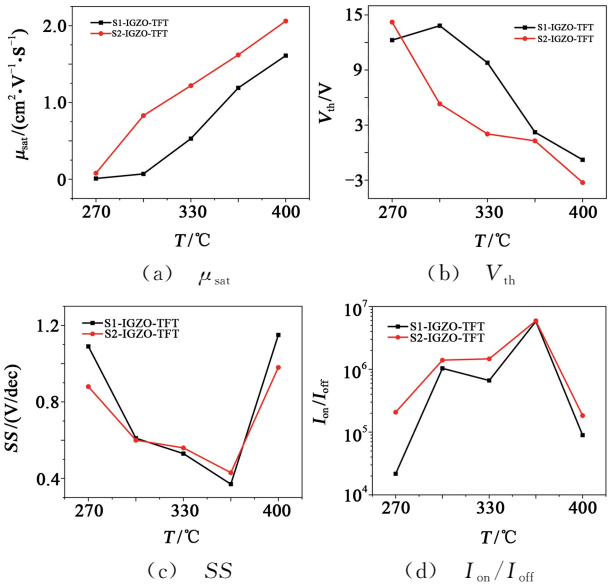

(a) 不同后退火温度 S2-IGZO-TFT 的转移特性曲线




(b) 360 ℃-S2-IGZO-TFT 的输出特性曲线

图 4 不同温度下 S2-IGZO-TFT 的转移、输出特性曲线

如图 5 所示，随着退火温度的变化，S2-IGZO-TFT 电学特性参数与 S1-IGZO-TFT 具有相似的变化趋势。其中，随着退火温度的升高，$\mu_{sat}$ 增加、$V_{th}$ 负向移动、SS 先减少后增加、$I_{on}/I_{off}$ 先增加后减少。IGZO-TFT 电学特性的变化趋势源于退火温度的升高而促进 IGZO 薄膜凝结与致密化反应的进行，使得 IGZO 薄膜内原子团重新排列组合，形成稳定的金属氧键，在增加金属氧键占比的同时，载流子浓度升高，缺陷态减少，从而使得陷阱捕获与载流子散射几率降低。当载流子浓度过高时，$I_{off}$ 升高，TFT 开启速度降低，从而当后退火温度升高到 400 ℃时，SS 增加、$I_{on}/I_{off}$ 减少。因此，S1-IGZO-TFT 与 S2-IGZO-TFT 均在 360 ℃的后退火温度下展现出最佳的电学性能。与 360 ℃-S1-IGZO-TFT 相比，360 ℃-S2-IGZO-TFT 的 $\mu_{sat}$ 从 1.19 cm$^2$/Vs 增加到 1.62 cm$^2$/Vs，$V_{th}$ 从 2.2 V 降低到 1.3 V。由此表明，紫外光辅助退火对 IGZO 薄膜具有一定的激活作用，有助于提高 IGZO 薄膜中金属氧键占比和载流子浓度，降低 IGZO 薄膜中缺陷态密度，从而提高 IGZO-TFT 的电学性能。

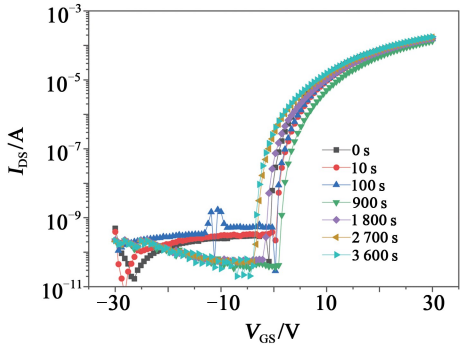



(a) $\mu_{sat}$ (b) $V_{th}$ (c) SS (d) $I_{on}/I_{off}$

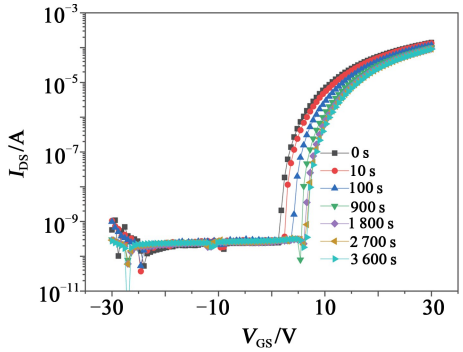
图 5 在不同后退火温度下制备的 S1-IGZO-TFT 与 S2-IGZO-TFT 的电学特性参数

为进一步验证紫外光辅助退火对 IGZO-TFT 偏压稳定性的影响。在 $V_{GS}=\pm10$ V 的偏压作用下，持续 3 600 s，对 360 ℃-S2-IGZO-TFT 进行正栅与负栅偏压稳定性测试，结果如图 6 所示。由图 6 可见，在正栅与负栅偏压的作用下，360 ℃-S2-IGZO-TFT 分别出现明显的正向与负向偏移。但是，相对 360 ℃-S1-IGZO-TFT，如图 7 所示，360 ℃-S2-IGZO-TFT 的正栅偏压偏移量($\Delta V_{th}$)从 8.7 V 降低至 4.6 V，负栅偏压偏移量 $\Delta V_{th}$ 从 −9.7 V 降低至−4.4 V，表明紫外光辅助退火有助于优化 IGZO-TFT 的偏压稳定性。紫外光辅助退

火对 IGZO 薄膜具有一定的表面钝化作用，降低表面缺陷及表面吸附氧占比，综合 IGZO 薄膜金属氧键占比提高以及缺陷态密度降低，使 IGZO-TFT 偏压稳定性得到显著改善。

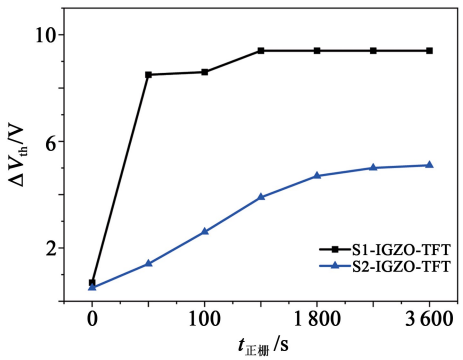



（a）　正栅

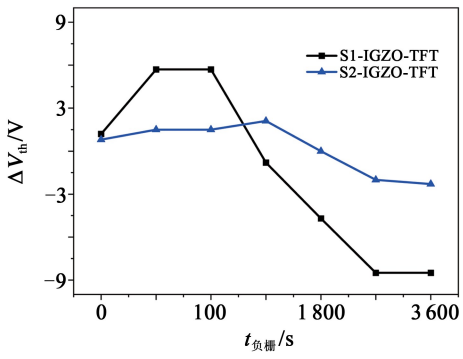



（b）　负栅

图 6　360 ℃-S2-IGZO-TFT 的正栅与负栅偏压作用下对应的转移特性曲线




（a）　正栅




（b）　负栅

图 7　360 ℃-S2-IGZO-TFT 的正栅与负栅偏压作用下对应的转移特性曲线

## 3　结论

本文采用水基溶液法制备了底栅顶接触型 IGZO-TFT，基于无稳定剂的水基 IGZO 前驱液，对比研究了不同后退火温度对 IGZO-TFT 器件电学性能的影响。研究发现，采用水基溶液法制备的 IGZO-TFT 表现出良好的低温（小于 400 ℃）制备属性，当后退火温度在 360 ℃时，器件表现出最佳的电学性能，但其具有较差的输出特性和偏压稳定性。为进一步优化 IGZO-TFT 的电学性能，在后退火过程中引入紫外光辅助退火，借助紫外光辅助退火对 IGZO 薄膜进行激活与表面钝化作用，提高了 IGZO 薄膜中金属氧键占比和载流子浓度，降低了 IGZO 薄膜中缺陷态密度以及 IGZO 薄膜表面缺陷和表面吸附氧占比，从而使得 IGZO-TFT 的电学特性和偏压稳定性均提高。与仅后退火的 IGZO-TFT 相比，经紫外光辅助退火后的 IGZO-TFT 表现出更高的 $\mu_{sat}$ 以及更小的偏压偏移量 $\Delta V_{th}$，其中 $\mu_{sat}$ 从 1.19 $cm^2$/Vs 增加到 1.62 $cm^2$/Vs，$\Delta V_{th}$ 从 2.2 V 降低到 1.3 V，正栅偏压 $\Delta V_{th}$ 从 8.7 V 降低至 4.6 V，负栅偏压 $\Delta V_{th}$ 从−9.7 V 降低至−4.4 V。

**参考文献：**

[1] 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.

[2] Shi J, Zhang J, Yang L, et al. Wide bandgap oxide semiconductors: from materials physics to optoelectronic devices[J]. Advanced Materials, 2021, 33(50): 2006230.

[3] Fortunato E, Barquinha P, Martins R. Oxide semiconductor thin-film transistors: a review of recent advances [J]. Advanced Materials, 2012, 24(22): 2945-2986.

[4] Petti L, Münzenrieder N, Vogt C, et al. Metal oxide semiconductor thin-film transistors for flexible electronics[J]. Appl. Phys. Rev., 2016, 3(2): 021303.

[5] Fukuda K, Someya T. Recent progress in the development of printed thin-film transistors and circuits with high-resolution printing technology[J]. Advanced Materials, 2017, 29(25): 1602736.

[6] Myny K. The development of flexible integrated circuits based on thin-film transistors[J]. Nature Electronics, 2018, 1(1): 30-39.

[7] Park J W, Kang B H, Kim H J. A review of low-temperature solution-processed metal oxide thin-film transistors for flexible electronics[J]. Advanced Functional Materials, 2020, 30(20): 1904632.

[8] Kim M G, Kanatzidis M G, Facchetti A, et al. Low-temperature fabrication of high-performance metal oxide thin-film electronics via combustion processing[J]. Nature Materials, 2011, 10(5): 382-388.

[9] Hwang Y H, Seo J S, Yun J M, et al. An 'aqueous route' for the fabrication of low-temperature-processable oxide flexible transparent thin-film transistors on plastic substrates [J]. NPG Asia Materials, 2013, 5(4): e45.

[10] Kim Y H, Heo J S, Park S, et al. Flexible metal-oxide devices made by room-temperature photochemical activation of sol-gel films[J]. Nature, 2012, 489(7414): 128-132.

[11] Li X, Cheng J, Chen Y, et al. Low-temperature aqueous route processed indium oxide thin-film transistors by $NH_3$ plasma-assisted treatment[J]. IEEE Trans. on Electron Devices, 2019, 66(3): 1303-1307.

[12] Zhang W P, Chen S, Qian S B, et al. Effects of thermal annealing on the electrical characteristics of In-Ga-Zn-O thin-film transistors with $Al_2O_3$ gate dielectric[J]. Semiconductor Science and Technology, 2015, 30(1): 15003.

[13] Chen W T, Lo S Y, Kao S C, et al. Oxygen-dependent instability and annealing/passivation effects in amorphous In-Ga-Zn-O thin-film transistors[J]. IEEE Electron Device Lett., 2011, 32(11): 1552-1554.

## 作者简介：

**崇　乐**(1997—)，女，陕西省渭南市人，硕士研究生，主要从事半导体薄膜与器件的研究；

**蔡长龙**(1972—)，男，重庆市人，博士，教授，博士生导师，主要从事薄膜技术、光电器件及测试等方面的研究；

**喻志农**(1968—)，男，湖北省潜江市人，博士，教授，博士生导师，主要从事薄膜技术、显示技术，以及新型光电材料与器件的研究。