光电器件

DOI：10.16818/j.issn1001－5868.20250415003

基于新型钽掺杂HfO_2介质层TFTs的制备及机理研究

刘　雨[1*]，胡梦真[1]，宋增才[1]，张　东[2]

（1. 华北水利水电大学 电子工程学院，郑州 450046；2. 武汉大学 物理科学与技术学院，湖北 武汉 430072）

摘　要： 文章采用脉冲激光沉积法制备钽（Ta）掺杂二氧化铪（HfO_2，THO）栅介质层，并系统研究了其介电性能及基于该介质层的非晶态铟镓锌氧（α-IGZO）薄膜晶体管（TFT）的电学特性。通过在不同氧分压（0%，10%，25%和50%）下制备THO薄膜，电容-电压测试结果表明，当氧分压为25%时制备的THO薄膜展现出最优异的介电性能，其电容等效厚度最低（6.5 nm），等效介电常数最高（23.7）。与纯HfO_2栅介质层相比，Ta掺杂显著提升了介电特性。进一步制备基于该THO（25%，O_2）介质层的α-IGZO TFTs表现出优异的器件性能：阈值电压低至0.57 V，饱和迁移率高达22.5 $cm^2/(V\cdot s)$，电流开关比达2.5×10^9。这些性能参数均显著优于基于纯HfO_2介质层的对比器件。

关键词： 栅介质层；薄膜晶体管；钽掺杂二氧化铪；铟镓锌氧；脉冲激光沉积

中图分类号： TN304.55；TN321.5　**文章编号：** 1001－5868(2025)04－0624－06

Preparation and Mechanism of Thin-Film Transistors Based on a New Tantalum-Doped HfO_2 Dielectric Layer

LIU Yu[1], HU Mengzhen[1], SONG Zengcai[1], ZHANG Dong[2]

(1. School of Physics and Electronics, North China University of Water Resources and Electric Power, Zhengzhou 450046, CHN; 2. School of Physics and Technology, Wuhan University, Wuhan 430072, CHN)

Abstract: Tantalum (Ta)-doped hafnium dioxide (HfO_2, THO) gate dielectric layers were fabricated using pulsed laser deposition (PLD). The dielectric properties of these layers and the electrical characteristics of amorphous indium gallium zinc oxide (α-IGZO) thin-film transistors (TFTs) incorporating them were systematically investigated. Capacitance-voltage measurements of THO films deposited under varying oxygen partial pressures (0%, 10%, 25%, and 50%) revealed that the film prepared at 25% oxygen partial pressure exhibited the optimal dielectric performance, demonstrating the lowest capacitance equivalent thickness of 6.5 nm and the highest equivalent dielectric constant of 23.7. Ta doping significantly enhanced the dielectric properties compared to pristine HfO_2 gate dielectrics. Furthermore, α-IGZO TFTs employing this optimized THO (25%, O_2) gate dielectric demonstrated excellent device performance: a low threshold voltage of 0.57 V, a high saturation mobility of 22.5 $cm^2/(V\cdot s)$, and a high on/off current ratio of 2.5×10^9. These key performance metrics are significantly superior to those of control devices utilizing pure HfO_2 gate dielectrics.

Key words: gate dielectric layer; thin-film transistor; tantalum-doped hafnium dioxide; indium gallium zinc oxide; pulsed laser deposition

收稿日期：2025－04－15.

基金项目：国家自然科学基金项目（61904054）.

*通信作者：刘　雨

0　引言

透明导电薄膜晶体管(Thin Film Transistors, TFTs)作为有源矩阵液晶显示(Active Matrix Liquid Crystal Display, AMLCD)和有机发光二极管(Organic Light Emitting Diodes, OLED)等显示技术的核心驱动元件[1-2],近年来受到广泛关注。其中,非晶态氧化物半导体(AOS),特别是非晶铟镓锌氧(α-IGZO),因具有高迁移率、优异的均匀性、可见光透过性、低温加工兼容性以及成本低潜力,已成为极具前景的沟道层材料[3-13]。

在TFTs器件结构中,栅介质层扮演者至关重要的角色。其介电性能(尤其是介电常数κ)以及有源层与介质层的界面质量,直接决定了器件的关键性能指标,例如阈值电压(V_{th})、亚阈值摆幅(SS)和载流子迁移率(μ)。为降低工作电压、抑制漏电流并提升栅控能力,采用高介电常数材料代替传统的SiO_2作为栅介质层已成为重要研究方向。Al_2O_3[14]、ZrO_2[15-16]、HfO_2[17-19]和Ta_2O_5[20-22]等高κ材料已被用作TFTs的栅绝缘氧化层。研究表明,通过元素掺杂(在HfO_2中掺入少量的Ta、在Ta_2O_5中掺入少量的Ti),可进一步优化其介电性能,获得比纯相材料更优异的综合特性。

脉冲激光沉积(Pulsed Laser Deposition, PLD)是一种重要的薄膜制备技术,以其良好的化学计量比控制、高沉积速率和相对较低的工艺温度等优势,在高κ介质薄膜沉积中具有应用潜力。但利用PLD技术制备Ta掺杂HfO_2(Ta doped HfO_2, THO)介电薄膜并系统研究其介电性能及在TFTs中应用的研究报道相对较少。

基于此,本文研究提出一种在n型硅衬底上利用PLD制备THO介电薄膜的策略。在PLD靶材的选用上,将一个矩形的Ta片直接绑定到HfO_2靶材上来实现Ta离子的掺杂,这一方法相比制备一个全新的掺Ta的HfO_2靶材更加简便,为使用PLD制备金属离子的掺杂薄膜材料提供了新的思路。实验发现,在氧分压为25%下沉积得到的THO薄膜用在Al/THO薄膜/n^+硅/Al结构的电容器中表现出最小等效电容厚度为6.5 nm,最大等效介电常数为23.7。然后,利用此高介电常数的THO薄膜制备了倒置结构的非晶IGZO TFTs,作为对照同时制备了基于纯HfO_2介质层的器件,并比较了它们的电学特性。结果表明,THO/α-IGZO TFTs的阈值电压为0.75 V,饱和迁移率为6.7 $cm^2/(V\cdot s)$,电压为2 V时的开关电流比为2×10^5,这些参数均比对照器件HfO_2/α-IGZO TFTs性能优异。

1　实验部分

1.1　电容器的制备

本研究采用n型重掺杂的硅片作为衬底,并将其作为器件的底栅。首先,使用美国无线电公司的RCA清洗方法去除n^+硅衬底表面的自然氧化层,即依次在丙酮、乙醇和去离子水中超声清洗。随后,在硅衬底上使用脉冲激光沉积法制备40 nm厚的Ta掺杂HfO_2介质薄膜,所用靶材是部分覆盖Ta箔纯度为99.9%的HfO_2靶材,激光器是发射248 nm激光的KrF激光器。为比较氧分压对薄膜性质的影响,分别在0%,10%,25%和50%的氧分压下沉积了标称厚度为40 nm的THO薄膜。接着,利用射频磁控溅射法,借助金属掩膜技术,在THO薄膜表面和硅衬底上沉积金属铝电极,制备出结构为Al/THO/n^+-Si/Al的电容器,同时制备Al/HfO_2/n^+-Si/Al结构的电容器作为对照。

1.2　非晶IGZO薄膜晶体管的制备

在硅衬底上使用脉冲激光沉积法制备40 nm厚的Ta掺杂HfO_2介质薄膜后,用相同方法原位沉积标称厚度为50 nm的非晶IGZO薄膜,其有效掺杂浓度和电阻率分别为2.3×10^{14} cm^{-3}和540 Ω•cm。为形成顶部源极/漏极(S/D)接触,先进行传统的光刻,然后结合剥离技术,并在图案化的非晶IGZO表面和Si衬底的背面采用射频磁控溅射法沉积金属Al电极,在溅射过程中通入流量为10 sccm的氩气。这样基于高介电常数THO薄膜和Al源漏电极接触的非晶IGZO薄膜晶体管得以制备完成。另外,还制备了基于纯HfO_2介质层的非晶IGZO薄膜晶体管作为对比器件。

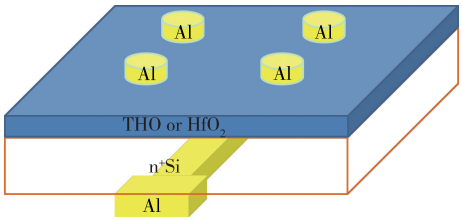
1.3　性能测试和表征

电容器的电容-电压(C-V)特性通过一台精密电感电容电阻测量仪(型号为HP4294A)测定。使用X射线光电子能谱仪(X-ray Photoelectron Spectroscopy, XPS)研究了THO薄膜的组成和化学状态,所使用XPS的型号是Thermo Scientific Escalab 250Xi,X射线源能量$h\lambda$=1 486.68 eV,在150 eV的能量和500 meV的沟道宽度条件下探测光电子。为确保准确性,以284.6 eV的表面碳信号

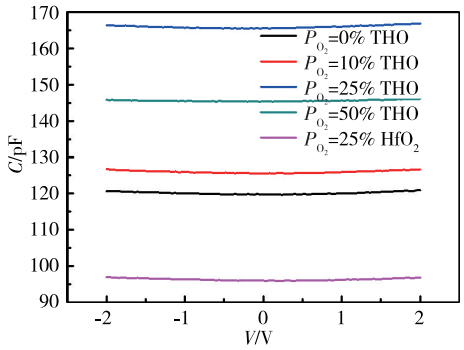
作为内标。为去除XPS室中的大气污染，用较低能量的Ar离子对样品进行约30 s的溅射清洗，且Ar离子枪在0.5 kV电压下工作，压强为1×10^{-7} Pa。最后，利用keithley4200半导体参数分析仪测量了非晶IGZO薄膜晶体管的输出特性和转移特性。

2 分析与讨论

为表征THO介质薄膜的介电特性，制备了结构为Al/THO/n^+-Si/Al和Al/HfO_2/n^+-Si/Al的电容器，其结构示意图如图1(a)所示。图中Al电极的面积为3.14×10^{-6} m^2。THO介电薄膜在频率为1 MHz条件下测得的*C-V*特性如图1(b)所示，通过该图可以得到电容器的单位面积累积电容(C_{ox})。



(a) 电容器结构示意图



(b) *C-V*特性曲线

图1 电容器结构示意图及其*C-V*特性曲线

电容等效厚度(CET，t_{CE})可由公式(1)计算得到：

$$t_{CE}=\varepsilon_{SiO_2}\varepsilon_0/C_{ox} \quad (1)$$

式中，ε_{SiO_2}和ε_0分别是SiO_2和真空的介电常数。在氧分压分别为0%，10%，25%，50%气氛下制备的THO薄膜的电容等效厚度分别是9.0 nm，8.6 nm，6.5 nm，7.5 nm。进而可以由公式(2)计算出它们的介电常数分别为17.3，18.1，23.9和20.9。

$$\kappa=\varepsilon_{SiO_2}\times\frac{t_{ox}}{t_{CE}} \quad (2)$$

式中，t_{ox}是介质层的厚度为40 nm。图2显示了CET和介电常数随氧分压变化的规律，随着氧分压的升高CET的值先下降到6.5 nm又增大到7.5 nm，而介电常数展示了相反的变化规律：随着氧分压增多介电常数先增大后减小。当氧分压为25%时，CET的值最小为6.5 nm，介电常数最大为23.9，这个值和高介电常数材料Ta_2O_5的介电常数(约为25)比较接近。作为对照，纯HfO_2薄膜的介电特性较差，其CET值高达11.9 nm，介电常数也较低仅为13.9。由此可以看出，在HfO_2材料中掺入适量的Ta离子可以显著改善其介电特性，提高其介电常数。这个实验现象可以解释为：当氧分压较低时，Ta离子没有被完全氧化，部分Ta离子以金属离子的形式存在于HfO_2分子之间，导致介质层的介电性能较差；随着氧分压的增加，Ta离子被完全氧化，介质层的介电性能显著提高；然而，过高的氧含量可能对介质层膜的质量产生不利影响，进而使介电性能下降。

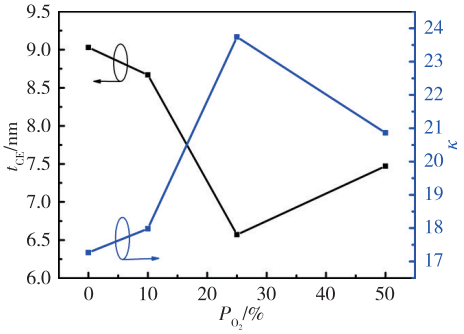
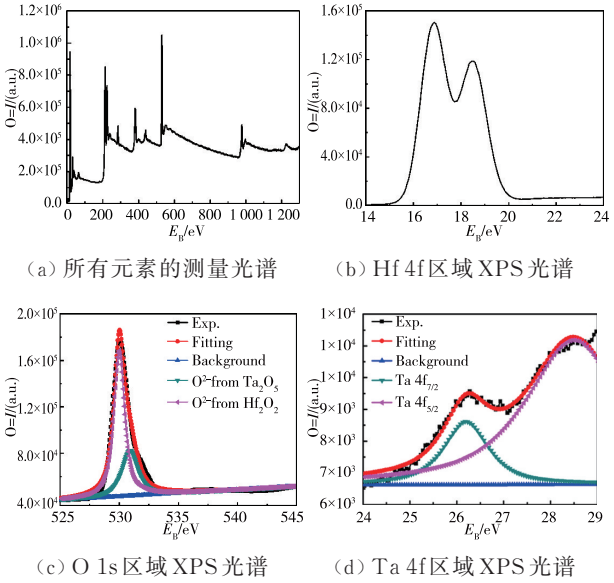


图2 THO介质薄膜的等效电容厚度(t_{CE})和介电常数κ随氧分压的变化曲线

为进一步研究介质薄膜的结构和组分，利用XPS对在氧分压为25%氛围沉积的THO薄膜进行表征，结果如图3所示。从图3(b)可以看出，Hf原子$4f_{7/2}$和$4f_{5/2}$两个轨道的电子结合能双峰值位于16.8 eV和18.4 eV处，这是HfO_2的四价Hf原子的典型值。在图3(c)中，O 1s区域中结合能位于530.0 eV和530.8 eV处的两个峰分别对应于HfO_2和Ta_2O_5两种金属氧化物的2价氧负离子的典型值。图3(d)是Ta 4f的光电子能谱图，该图中Ta 4f电子能谱有两个峰，结合能低一点的峰位于26.2 eV处，对应的是Ta $4f_{7/2}$轨道电子；结合能高一点的峰位于28.5 eV处，对应Ta $4f_{5/2}$轨道电子，这两个峰值是金属氧化物Ta_2O_5的五价Ta阳离子的典型特征。在XPS结果分析中并没有发现金属Ta离子的存在证据。由此可以看出，当氧分压为25%时，THO介质

薄膜中已经掺入了一定量的 Ta 元素，这些 Ta 元素是以金属氧化物的形式存在，这一结果与上述解释相符。



（a）所有元素的测量光谱　（b）Hf 4f 区域 XPS 光谱

（c）O 1s 区域 XPS 光谱　（d）Ta 4f 区域 XPS 光谱

图 3　在氧分压为 25% 条件下制备的 THO 介质薄膜的光电子能谱图

基于以上分析可以发现，在氧分压为 25% 气氛下制备的 THO 介质薄膜具有最佳的介电性能，因此将其用于制备非晶 IGZO 薄膜晶体管。同时，在相同条件下制备了基于 HfO_2 介质层的非晶 IGZO 薄膜晶体管，与 THO 薄膜晶体管进行比较。这两种器件均采用底栅结构，源漏电极（铝电极）接触位于顶部，其结构示意图如图 4 所示，器件沟道的宽度（W）为 200μm，长度（L）为 50μm。

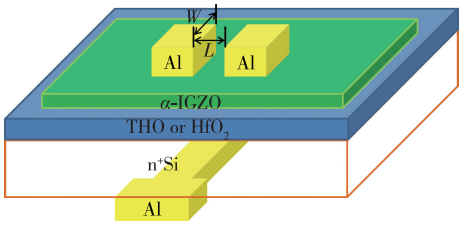
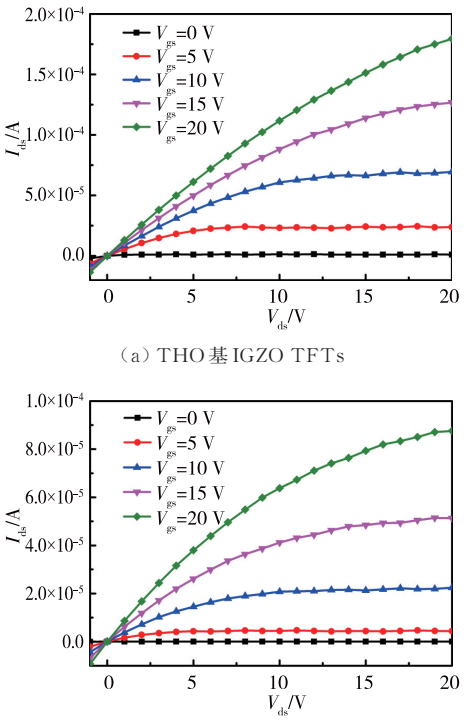


图 4　非晶 IGZO TFT 器件结构示意图

基于 THO 介质层和基于 HfO_2 介质层的 TFTs 的输出特性曲线（漏极电流-漏极电压关系，I_{ds}-V_{ds}）分别如图 5(a)和(b)所示。实验中所有的薄膜晶体管都表现出了 n 型晶体管的特性。在图 5(a)中，当漏极电压（V_{ds}）和栅极电压（V_{gs}）均为 20 V 时，基于 THO 介质层的器件的饱和电流为 0.18 mA；同样条件下基于 HfO_2 介质层的器件的饱和电流为 8.8×10^{-2} mA，仅为前者的 1/2，如图 5(b)所示。



（a）THO 基 IGZO TFTs

（b）HfO_2 基 IGZO TFTs

图 5　器件输出特性曲线

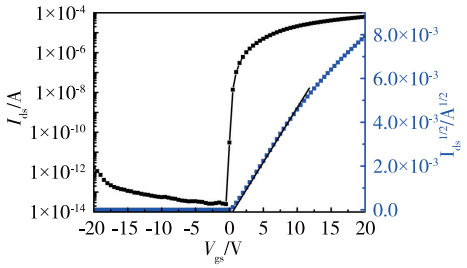
图 6 是器件的转移特性曲线（漏极电流-栅极电压关系，I_{ds}-V_{gs}），图 6(a)和(b)分别展示了当漏极电压为 10.1 V 时基于 THO 介质层和基于 HfO_2 介质层的 TFTs 的转移特性曲线。从图 6(a)可以看出，当栅极电压和漏极电压分别为 20 V 和 10.1 V 时，基于 THO 介质层的非晶 IGZO TFTs 的开态电流为 6.3×10^{-5} A，关态电流为 2.5×10^{-14} A，由此计算出其开关电流比为 2.5×10^{9}。从图 6(b)可以看出，在相同测试条件下基于基于 HfO_2 介质层的非晶 IGZO TFTs 的开态电流为 9.5×10^{-6} A，关态电流为 6.2×10^{-13} A，因此其开关电流比为 1.5×10^{7}。最大关态电流是一个重要指标，因为在显示器中使用的工作 TFTs 大部分时间处于关断状态。较小电流有利于降低功耗，而功耗的主要原因是栅极漏电流。器件的饱和载流子迁移率（μ_{sat}）可由以下表达式计算得出：

$$I_{ds}=\left(\frac{\mu_{sat}C_{ox}W}{2L}\right)\left(V_{gs}-V_{th}\right)^2 \quad (3)$$

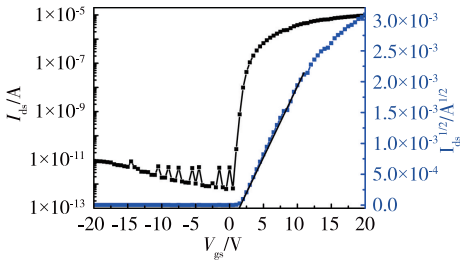
$$V_{ds}>V_{gs}-V_{th}$$

式中，W 和 L 分别是 TFTs 器件沟道的宽度和长度，C_{ox} 是介质层单位面积电容，V_{gs} 和 V_{ds} 分别是栅源电压和漏源电压，V_{th} 是器件的开启电压。图 6(a)和(b)同时给出了 $I_{ds}^{1/2}$-V_{gs} 关系曲线，对该曲线线性部

分做切线与横坐标轴的交点就是器件的开启电压，从图中看出基于THO介质层和基于HfO_2介质层的非晶IGZO TFTs器件的开启电压分别为0.57 V和1.43 V。由此可见，与基于HfO_2介质层的非晶IGZO TFTs器件相比，基于THO介质层的非晶IGZO TFTs器件具有更低的开启电压，这是由于THO介质层具有更小的电容等效厚度，表明载流子在沟道层传导时栅极电压的控制能力增强。通过公式(3)可以计算出基于THO介质层的非晶IGZO TFTs器件的饱和载流子迁移率分别为22.5 $cm^2/(V\cdot s)$。另一方面，基于HfO_2介质层的非晶IGZO TFTs器件的饱和载流子迁移率退化至8.6 $cm^2/(V\cdot s)$，这主要归因于HfO_2介质层具有更多的界面态和更大的漏电流导致空穴散射增强。



(a) THO基IGZO TFTs



(b) HfO_2基IGZO TFTs

图6 器件转移特性曲线

3 结论

本文使用脉冲激光沉积法制备并研究了以IGZO为沟道层，以Ta掺杂HfO_2为介质层的薄膜晶体管。实验结果表明，在氧分压为25%气氛下沉积的THO介质薄膜具有最好的介电特性，其电容等效厚度低至6.57 nm，等效介电常数高达23.9。与纯HfO_2介质材料相比，掺入一定量的Ta离子可以很显著的改善薄膜材料的介电特性。此外，基于THO介质薄膜制备了非晶IGZO TFTs，其开启电压为0.57 V，饱和载流子迁移率为22.5 $cm^2/(V\cdot s)$，电流开关比为2.5×10^9。与基于HfO_2介质层的器件相比，这些电学特性参数均有很大提高。因此，高κ THO栅介质是实现高性能α-IGZO基TFTs的潜在候选材料。然而，本研究虽然发现了可以通过Ta掺杂实现薄膜介电特性和器件电学特性的显著提升，但是在Ta掺杂的定量分析上还有待更深入的研究。

参考文献：

[1] Yu E K, Zhang R, Bie L, et al. Dynamic response of a-InGaZnO and amorphous silicon thin-film transistors for ultra-high definition active-matrix liquid crystal displays[J]. Journal of Display Technology, 2015, 11(5): 471-479.

[2] Choi M, Bae S R, Hu L, et al. Full-color active-matrix organic light-emitting diode display on human skin based on a large-area MoS_2 backplane[J]. Science Advances, 2020, 6(28): eabb5898.

[3] 李鑫飞，张巧云. 一种压电半导体纳米线的热电耦合性能研究[J]. 半导体光电，2020，41(3)：384-388，394.
Li Xinfei, Zhang Qiaoyun. Study on thermoelectric coupling characteristics of a piezoelectric semiconductor nanofiber[J]. Semiconductor Optoelectronics, 2020, 41(3): 384-388, 394.

[4] Rim Y S, Ahn B D, Park J S, et al. Manifestation of reversal conductivity on high pressurizing of solution-processed ZnSnO thin-film transistors at low temperature[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2014, 47(4): 045502.

[5] 陆清茹，李 帆，黄晓东. 非晶铟镓锌氧化物薄膜晶体管的制备及其光敏特性研究[J]. 半导体光电，2019，40(4)：480-483.
Lu Qingru, Li Fan, Huang Xiaodong. Fabrication and photosensitive properties of amorphous indium gallium zinc oxide thin film transistors[J]. Semiconductor Optoelectronics, 2019, 40(4): 480-483.

[7] Zhou S, Zhang J, Guo X, et al. Inkjet printing of homogeneous and green cellulose nanofibril dielectrics for high performance IGZO TFTs[J]. Journal of Materials Chemistry C, 2020, 8(36): 12578-12586.

[8] 魏 力，王鑫池，牟鹏霖，等. 基于溅射氧化铝的铟镓锌氧双电层薄膜晶体管[J]. 半导体技术，2020，45(1)：37-42，83.
Wei Li, Wang Xinchi, Mu Penglin, et al. IGZO electric double-layer thin film transistors based on sputtered alumina[J]. Semiconductor Technology, 2020, 45(1): 37-42, 83.

[9] Ramírez-Como M, Balderrama V S, Sacramento A, et al. Fabrication and characterization of inverted organic PTB7: PC70BM solar cells using Hf-In-ZnO as electron transport layer[J]. Solar Energy, 2019, 181: 386-395.

[10] Ho C H, Tsai D S, Lu C, et al. Device process and circuit application interaction for harsh electronics: Hf - In - Zn - O thin film transistors as an example[J]. IEEE Electron Device Letters, 2017, 38(8): 1039-1042.

[11] Gao Y N, Xu Y L, Lu J G, et al. Solution processable

amorphous hafnium silicate dielectrics and their application in oxide thin film transistors[J]. Journal of Materials Chemistry C, 2015, 3(43): 11497-11504.

[12] Kim S, Gil Y, Choi Y, et al. Carrier transport at metal/amorphous hafnium - indium - zinc oxide interfaces[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2015, 7(40): 22385-22393.

[13] Pons-Flores C A, Mejia I, Hernandez I, et al. High performance, low temperature processed Hf-In-Zn-O/HfO_2 thin film transistors, using PMMA as etch-stop and passivation layer [J]. Microelectronic Engineering, 2019, 205: 1-5.

[14] Shao Y, Wu X, Zhang M N, et al. High-performance a-InGaZnO thin-film transistors with extremely low thermal budget by using a hydrogen-rich Al_2O_3 dielectric [J]. Nanoscale Research Letters, 2019, 14(1): 122.

[15] Park B E, Lee Y, Oh I K, et al. Structural and electrical properties of Ge-doped ZrO_2 thin films grown by atomic layer deposition for high-k dielectrics [J]. Journal of Materials Science, 2018, 53(21): 15237-15245.

[16] Bhanu J U, Thangadurai P. Surface analysis, gate leakage currents and electrical characteristics of Mn ions incorporated into ZrO_2 gate dielectric layer in silicon MOS capacitors[J]. Materials Science in Semiconductor Processing, 2020, 119: 105171.

[17] Luo M, Xie H, Wei M, et al. High-performance partially printed hybrid CMOS inverters based on indium-zinc-oxide and chirality enriched carbon nanotube thin-film transistors [J]. Advanced Electronic Materials, 2019, 5(5): 1900034.

[18] Ma P, Sun J, Liang G, et al. Half-volt operation of IGZO thin-film transistors enabled by ultrathin HfO_2 gate dielectric [J]. Applied Physics Letters, 2018, 113(6): 063501.

[19] Wu Z, Yao Z, Liu S, et al. Tuning the electrical performance of metal oxide thin-film transistors *via* dielectric interface trap passivation and graded channel modulation doping[J]. Journal of Materials Chemistry C, 2017, 5(5): 1206-1215.

[20] Bhatt D, Kumar N, Panda S. Stacked top gate dielectrics in dual gate ion sensitive field effect transistors: role of interfaces [J]. ACS Applied Electronic Materials, 2019, 1(8): 1465-1473.

[21] Hota M K, Alshammari F H, Salama K N, et al. Transparent flash memory using single Ta_2O_5 layer for both charge-trapping and tunneling dielectrics [J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2017, 9(26): 21856-21863.

[22] Le Y, Shao Y, Xiao X, et al. Indium - tin - oxide thin-film transistors with *in situ* anodized Ta_2O_5 passivation layer[J]. IEEE Electron Device Letters, 2016, 37(5): 603-606.

作者简介：

刘　雨(1988—)，女，河南省开封市人，博士，讲师，主要从事半导体光电器件及图像方面的研究。