

# 基于柔性显示器件的氧化铝介电层室温制备

姚日晖, 郑泽科, 曾 勇, 胡诗霖, 刘贤哲, 陶瑞强, 陈建秋, 蔡 炜,  
宁洪龙\*, 徐 苗, 王 磊, 兰林锋, 彭俊彪

华南理工大学材料科学与工程学院高分子光电材料与器件研究所, 发光材料与器件国家重点实验室, 广东 广州 510640

**摘要** 在室温环境下采用射频磁控溅射方法制备了氧化铝( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )薄膜, 通过调节溅射气压实现了对薄膜特性的优化控制。当溅射功率为 120 W、Ar 气压强为 0.13 Pa 时, 制备的  $\text{Al}_2\text{O}_3$  薄膜具有最好的厚度均匀性, 薄膜中 Al 和 O 的原子比为 1:1.67, 密度为  $3.21 \text{ g/cm}^3$ , 粗糙度为 0.62 nm。这种平滑、致密的薄膜结构能够有效地减少缺陷的形成, 获得高击穿电压、高相对介电常数和低漏电等性能。利用优化后的  $\text{Al}_2\text{O}_3$  薄膜作为栅极绝缘层, 在聚酰亚胺树脂 (PI) 基板上室温制备了柔性非晶态铟镓锌氧化物-薄膜晶体管 ( $\alpha$ -IGZO-TFT), 其迁移率为  $2.19 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ , 开关比达到  $10^5$ , 亚阈值摆幅为  $0.366 \text{ V/decade}$ , 阈值电压为 3.01 V。

**关键词** 薄膜; 柔性薄膜晶体管; 氧化铝; 介电层; 射频磁控溅射; 室温制备

**中图分类号** O484 **文献标识码** A

**doi:** 10.3788/AOS201737.0331001

## Preparation of $\text{Al}_2\text{O}_3$ Dielectric Layers at Room Temperature Based on Flexible Displays

Yao Rihui, Zheng Zeke, Zeng Yong, Hu Shibin, Liu Xianzhe, Tao Ruiqiang, Chen Jianqiu,  
Cai Wei, Ning Honglong, Xu Miao, Wang Lei, Lan Linfeng, Peng Junbiao  
*Institute of Polymer Optoelectronic Materials & Devices, State Key Laboratory of Luminescent Materials & Devices,  
School of Materials Science and Engineering, South China University of Technology,  
Guangzhou, Guangdong 510640, China*

**Abstract** Aluminum oxide ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) thin films are prepared by radio frequency magnetron sputtering at room temperature, and the optimal control of the properties of these films is realized by adjusting the sputtering pressure. The prepared films with the best thickness uniformity are obtained under the sputtering power of 120 W and Ar pressure of 0.13 Pa, whose ratio of aluminum atoms to oxygen atoms is 1:1.67, density is  $3.21 \text{ g/cm}^3$ , and surface roughness is 0.62 nm. This smooth and compact  $\text{Al}_2\text{O}_3$  thin film can significantly reduce the defects, and it also possesses the characteristics of high breakdown voltage, high relative dielectric constant and low leakage current. The flexible  $\alpha$ -IGZO-TFTs are prepared on a polyimide (PI) substrate at room temperature by utilizing the optimized  $\text{Al}_2\text{O}_3$  films as the gate insulation layer, and exhibit electrical performance with a mobility of  $2.19 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ , an on/off current ratio of  $10^5$ , a sub-threshold swing of  $0.366 \text{ V/decade}$ , and a threshold voltage of 3.01 V.

**Key words** thin films; flexible thin film transistor;  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ; dielectric layer; radio frequency magnetron sputtering; preparation at room temperature

**OCIS codes** 310.6845; 310.6870; 310.1860

## 1 引 言

柔性显示是显示技术发展的一个重要方向, 而柔性薄膜晶体管 (TFT) 是实现柔性显示器件应用的关

**收稿日期:** 2016-09-14; **收到修改稿日期:** 2016-11-11

**基金项目:** 国家重点研发计划 (2016YFB0401504, 2016YFF0203603)、国家 973 计划 (2015CB655004)、广东省自然科学基金资助项目 (2016A030313459)、广东省科技计划 (2014B090915004, 2016B090907001)、中央高校基本科研业务费专项资金 (2015ZP024, 2015ZZ063)、发光学及应用国家重点实验室开放基金 (SKLA-2016-11)

**作者简介:** 姚日晖 (1981—), 男, 博士, 副教授, 主要从事光电材料与器件方面的研究。E-mail: yaorihui@scut.edu.cn

\* **通信联系人.** E-mail: ninghl@scut.edu.cn

键。聚合物塑料(如聚酰亚胺树脂 PI、聚对苯二甲酸乙二醇酯 PET 等)具有成本低、质量轻、透明及柔性佳等特点,在柔性基板的应用中得到了广泛关注。柔性 TFT 的制备可以与传统玻璃基板的工艺制程相兼容,但其工艺温度要求小于  $180\text{ }^{\circ}\text{C}$ <sup>[1]</sup>,以降低热效应对塑料基板变形、电学不稳定性的影响。氧化铝( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )作为一种宽带隙、高介电常数<sup>[2]</sup>的氧化物,具有良好的绝缘性<sup>[3]</sup>,能作为一种绝缘层材料在氧化物薄膜晶体管中替代传统的  $\text{SiO}_2$ <sup>[4]</sup>,有利于强化器件的可靠性<sup>[5-6]</sup>和稳定性,提升对沟道电流的控制能力<sup>[7]</sup>,从而实现低开启电压<sup>[4]</sup>、低能耗和高迁移率的 TFT 器件。在传统工艺中, $\text{Al}_2\text{O}_3$  薄膜的主要制备方法有阳极氧化法、等离子体增强型化学气相沉积法(PECVD)和溶胶-凝胶法等,通常需要进行高温处理,不利于其在柔性 TFT 中的应用。因此,在柔性基板上实现  $\text{Al}_2\text{O}_3$  薄膜的低温制备显得尤为重要<sup>[8]</sup>。

本文在室温下通过对  $\text{Al}_2\text{O}_3$  陶瓷靶进行射频磁控溅射,分别在玻璃和氧化铟锡(ITO)基板上沉积  $\text{Al}_2\text{O}_3$  薄膜,系统地研究了不同溅射条件下  $\text{Al}_2\text{O}_3$  的薄膜特性与介电性能。通过优化实验条件,制备了具有良好介电性能的  $\text{Al}_2\text{O}_3$  薄膜,并最终实现在 PI 基板上室温制备柔性 TFT。相关研究结果表明,所制备的  $\text{Al}_2\text{O}_3$  薄膜在柔性显示器件研究中具有良好的应用前景。

## 2 实 验

在室温下的纯 Ar 环境中对  $\text{Al}_2\text{O}_3$  靶进行射频磁控溅射,首先在玻璃基板上沉积  $\text{Al}_2\text{O}_3$  薄膜,溅射功率为 120 W,并通过调节溅射压强,优化参数。然后在 ITO 基板上采用 Al- $\text{Al}_2\text{O}_3$ -ITO 结构制备金属-绝缘体-金属(MIM)电容器(图 1),其中 Al 采用热蒸镀法沉积,掩模半径为  $200\text{ }\mu\text{m}$ 。最终, $\text{Al}_2\text{O}_3$  薄膜作为栅极绝缘层被应用在柔性 TFT 上,并对柔性 TFT 的器件特性进行了测试分析。

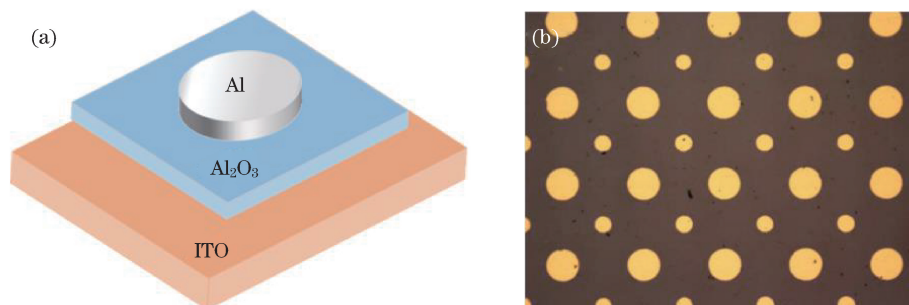


图 1 (a) Al- $\text{Al}_2\text{O}_3$ -ITO 电容器结构示意图;(b) Al- $\text{Al}_2\text{O}_3$ -ITO 电容器光学显微照片

Fig. 1 (a) Schematic of Al- $\text{Al}_2\text{O}_3$ -ITO capacitor structure; (b) optical microscopic image of Al- $\text{Al}_2\text{O}_3$ -ITO capacitor

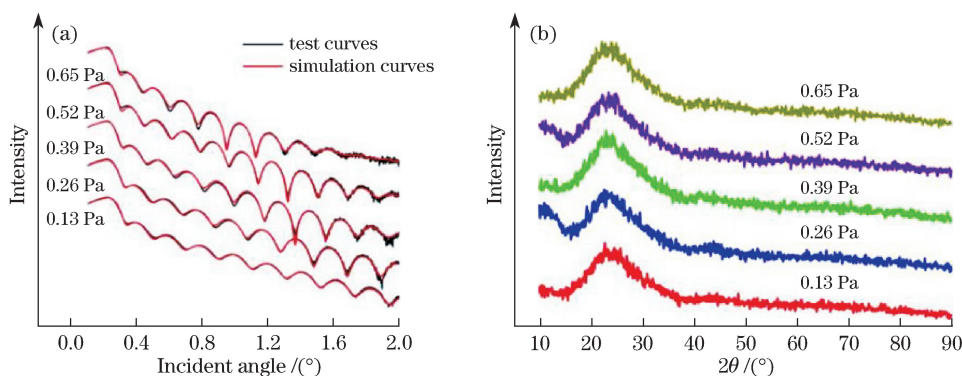
采用 PANalytical 锐影 X 射线反射(XRR)系统测试薄膜的物相、厚度、密度和粗糙度等;Multimode8 原子力显微镜(AFM)用于观察薄膜的表面形貌;ESCALAB 250Xi X 射线光电子能谱(XPS)用于进行薄膜成分分析;Agilent E4980A 和 Agilent B1500A 分别用于测试 MIM 器件的电容-电压特性、电流-电压特性,测试中 ITO 与 Al 分别作为电极与探针接触。

## 3 结果与分析

### 3.1 薄膜状态与分析

在溅射气压为  $0.13\sim 0.65\text{ Pa}$  的纯 Ar 气环境下在玻璃基板上沉积  $\text{Al}_2\text{O}_3$  薄膜。其中,溅射功率均为 120 W,溅射时间均为 30 min。图 2(a)、(b)分别为玻璃基板上  $\text{Al}_2\text{O}_3$  薄膜的 X 射线反射测试模拟曲线以及物相扫描曲线,其中  $2\theta$  为衍射角。

如图 2(a)所示,随着溅射气压的下降, $\text{Al}_2\text{O}_3$  薄膜的 XRR 测试波形趋于均匀平整,这表明  $\text{Al}_2\text{O}_3$  薄膜的厚度均匀性随着溅射气压的下降变得更好。材料的相对介电常数往往与其结晶状态有关<sup>[9]</sup>,如图 2(b)所示,利用 XRR 对  $\text{Al}_2\text{O}_3$  薄膜进行物相扫描,可以发现所有条件下的薄膜均呈非晶相<sup>[10]</sup>,这有利于避免晶界的产生,减少缺陷态,提高薄膜的相对介电常数。溅射速率随溅射气压的变化趋势如图 3 所示。可以看出, $\text{Al}_2\text{O}_3$  的溅射速率较慢(小于  $0.8\text{ nm/min}$ ),但在  $0.13\sim 0.65\text{ Pa}$  的气压范围内,随着溅射气压的增大,速率有所加快。Ar 原子对靶材的轰击作用和对溅射粒子的散射作用是影响  $\text{Al}_2\text{O}_3$  的溅射速率的两个重要因

图2 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜的 XRR(a)测试结果和(b)物相扫描曲线Fig. 2 (a) Test results and (b) phase scanning curves of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin film by XRR

素<sup>[11]</sup>。在 0.13~0.65 Pa 的气压范围内,随着 Ar 气压强的增大,Ar 原子对靶材的轰击作用增强,溅射粒子的数目增多;Ar 原子对靶材的轰击作用比其对溅射粒子的散射作用更明显,从而使溅射速率有所提高。若继续增大溅射气压,Ar 原子对溅射粒子的散射作用效果增强,这将逐渐抑制 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的溅射速率。

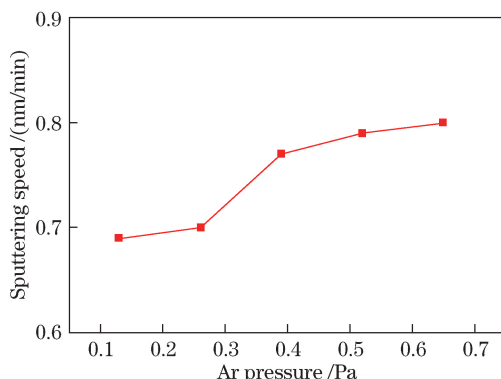


图3 溅射速率随气压的变化趋势

Fig. 3 Change trend of sputtering speed with Ar pressure

薄膜的密度和粗糙度对抑制缺陷<sup>[12]</sup>和界面特性<sup>[13]</sup>有十分重要的影响,可以通过 XRR 的模拟结果得到薄膜的密度和粗糙度等信息<sup>[14]</sup>。图 4(a)是厚度为 20 nm 的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜的密度和粗糙度随溅射气压的变化趋势。从图 4(a)可以看出,随着溅射气压的下降,Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜的密度增大而粗糙度减小(0.13 Pa 时密度最高为 3.21 g/cm<sup>3</sup>,粗糙度最低为 0.62 nm)。结合图 2(a)可以发现,当溅射压强为 0.13 Pa 时,Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的薄膜质量最好,即可以获得高密度、低粗糙度、厚度均匀的薄膜。这是因为当 Ar 气压强下降时,Ar 原子对溅射粒子的散射作用减弱,粒子飞行状态的一致性和稳定性得到提高,这使得沉积的膜层更均匀致密,薄膜的表面更光滑。图 4(b)是溅射气压为 0.13 Pa 的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜的原子力显微镜扫描图像,由图可以得到薄膜的均方根粗糙度( $R_q$ )为 0.77 nm,与相同条件下样品的 XRR 测试结果相近,且图中没有看到明显的晶粒。致密光滑的薄膜表面与非晶相的薄膜结构有助于抑制表面缺陷引起的漏电流,提升 TFT 沟道载流子的迁移率。

通过 X 射线光电子能谱分析 0.13 Pa 溅射气压下制备的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜,薄膜中的 Al 和 O 的原子比为 1:1.67,接近于 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的标准化学计量比(1:1.5)。图 5(a)、(b)分别为 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜 Al<sub>2p</sub> 和 O<sub>1s</sub> 的 XPS 谱线。由图 5(a)可知,Al<sub>2p</sub> 谱线为一个对称、均匀的单峰,峰位中心位于 74.1 eV。而图 5(b)所示的 O<sub>1s</sub> 谱线可分为 531.4 eV 和 532.3 eV 峰位的两个峰,其中 531.4 eV 峰位的氧来自于 Al—O 键;532.3 eV 峰位的氧来自于 OH<sup>-</sup> 和 H<sub>2</sub>O<sup>[7]</sup>,且其峰强占整体峰强的比例非常低。故 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜成分偏析小,有良好的耐击穿性能。

### 3.2 电学性能分析

为了研究不同条件下 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜的介电性能,根据上述的实验条件,将 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 介电层沉积在 ITO 玻璃基板上,Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的厚度为 20 nm。并蒸镀沉积厚度为 100 nm 的 Al 电极,半径为 200 μm(图 1)。薄膜的相对

介电常数可以表示为

$$\epsilon_r = Cd / (\epsilon_0 A), \tag{1}$$

式中  $C$  为电容,  $d$  为厚度,  $\epsilon_0$  为真空介电常数,  $A$  为电容面积。

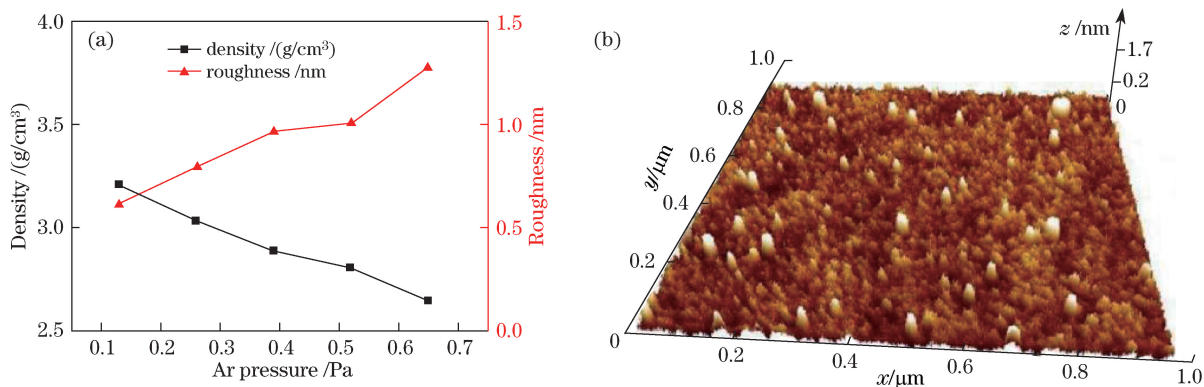


图 4 (a) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜密度和粗糙度随气压的变化趋势; (b) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜原子力显微镜照片  
Fig. 4 (a) Change trend of density and roughness with Ar pressure; (b) AFM picture of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin film

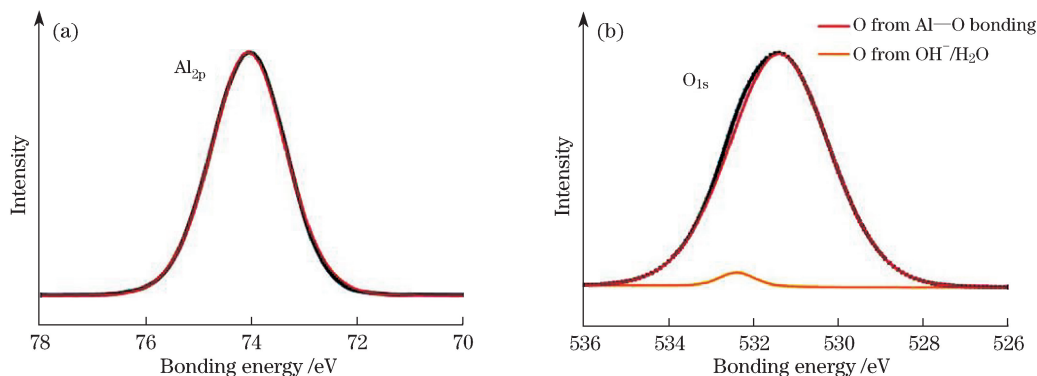


图 5 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜的 XPS 轮廓。(a) Al<sub>2p</sub>; (b) O<sub>1s</sub>  
Fig. 5 (a) XPS profiles of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin film. (a) Al<sub>2p</sub>; (b) O<sub>1s</sub>

图 6 为 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 溅射气压与电学性能之间的关系。从图 6 可知,随着溅射气压的下降,Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 介电层的漏电流(偏压为 5 V)逐渐减小,而其击穿电压增大。当溅射气压下降到 0.13 Pa 时,Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜的漏电流为  $2 \times 10^{-6}$  A/cm<sup>2</sup>,击穿电压为 14 V,相对介电常数为 8.6,电学性能较好。实验结果表明,在低溅射气压下可以制备低漏电、高击穿电压和高相对介电常数的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜。其原因是:薄膜的多孔性会引起其内部产生永久电荷俘获效应<sup>[15]</sup>,从而使漏电流增大,降低薄膜的介电性能。而溅射气压的降低能有效提高薄膜的致密性,减少空洞和孔隙的产生,有效地抑制缺陷态的出现<sup>[16]</sup>,从而提升薄膜的介电性能。

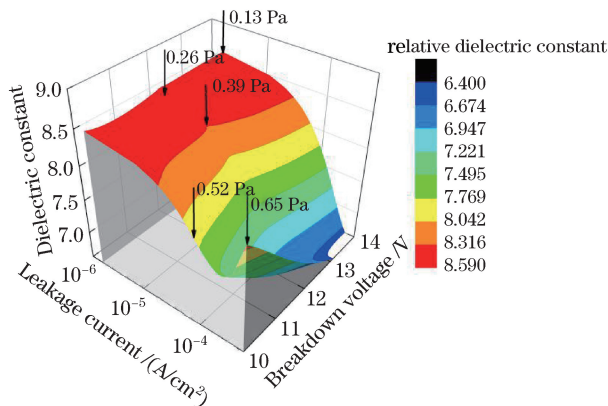


图 6 溅射气压与 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜电学性能之间的关系  
Fig. 6 Relationship between sputtering pressure and electrical properties of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin film

### 3.3 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜在柔性薄膜晶体管中的应用

选用厚度为 100 nm 的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜作为栅极绝缘层,在 PI 柔性基板上制备了非晶态铟镓锌氧化物 ( $\alpha$ -IGZO)薄膜晶体管,其结构如图 7(a)所示,其中 Al 栅极及源漏电极的厚度分别为 50 nm 和 100 nm,  $\alpha$ -IGZO沟道层的厚度为 8 nm,所有的沉积工艺均在室温下进行。薄膜晶体管的输出特性和转移特性如图 7(b)、(c)所示,其中  $I_D$ 为漏极电流, $V_D$ 为漏极电压, $V_G$ 为栅极电压。室温下制备的柔性  $\alpha$ -IGZO-TFT 的沟道宽长比为 500:600(单位为  $\mu\text{m}$ ),迁移率为  $2.19 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ ,开关比( $I_{\text{on}}/I_{\text{off}}$ )达到  $10^5$ ,亚阈值摆幅( $V_{\text{ss}}$ )为  $0.366 \text{ V/decade}$ ,阈值电压( $V_{\text{th}}$ )为  $3.01 \text{ V}$ 。

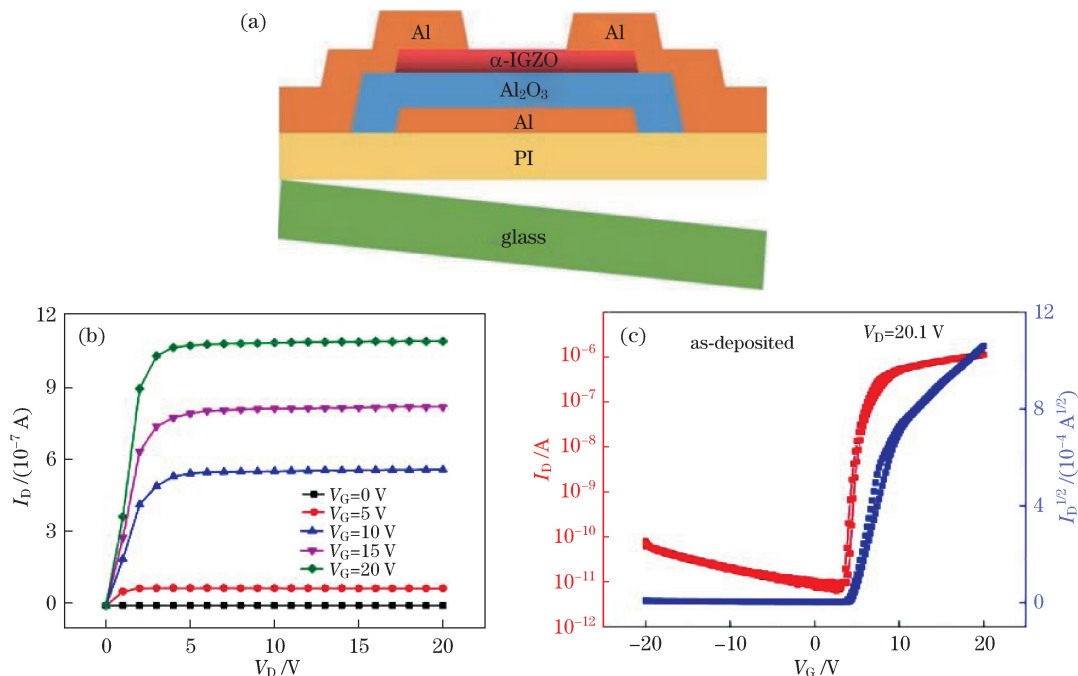


图 7 基于 PI 基板的  $\alpha$ -IGZO-TFT 的(a) 结构示意图,(b) 输出特性曲线和(c) 转移特性曲线  
Fig. 7 (a) Schematic, (b) output characteristic curves and (c) transfer characteristic curves of  $\alpha$ -IGZO-TFT based on PI substrate

表 1 为不同曲率半径下柔性  $\alpha$ -IGZO-TFT 的器件性能测试结果。实验表明,该器件在弯曲状态下仍能保持较稳定的性能,可以应用于柔性显示器件。

表 1 不同曲率半径下柔性  $\alpha$ -IGZO-TFTs 的器件性能

Table 1 Device performance of flexible  $\alpha$ -IGZO-TFTs with different curvature radii

Radius /mm	Mobility / [ $\text{cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ ]	$I_{\text{on}}/I_{\text{off}}$	$V_{\text{th}} / \text{V}$	$V_{\text{ss}} / (\text{V/decade})$
Flat	2.19	$10^5$	3.01	0.366
30	2.18	$10^5$	3.05	0.368
10	2.13	$10^5$	3.04	0.374
5	2.11	$10^5$	3.12	0.382

## 4 结 论

在室温条件下利用射频磁控溅射制备了 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜,通过分析不同溅射气压下 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜的形貌、成分、物相及电学特性,可以发现:1)所获得的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 为非晶结构,薄膜中的 Al 和 O 的原子比为 1:1.67,接近于 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 的标准化学计量数之比(1:1.5);2)随着气压的下降,薄膜的厚度均匀性上升,密度增大,粗糙度降低;3)低溅射气压下制备的 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜,具有高的致密性,能够很好地抑制薄膜中缺陷的产生,实现低漏电、高击穿电压和高相对介电常数。

通过优化溅射条件发现,当溅射功率为 120 W、溅射压强为 0.13 Pa 时,可获得高密度、低粗糙度、低漏

电和高相对介电常数的  $\text{Al}_2\text{O}_3$  介电层。实现了在 PI 基板上制备柔性  $\alpha$ -IGZO-TFT 器件,其迁移率为  $2.19 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ ,开关比达到  $10^5$ ,亚阈值摆幅为  $0.366 \text{ V/decade}$ ,阈值电压为  $3.01 \text{ V}$ 。由此可见, $\text{Al}_2\text{O}_3$  介电层的室温制备工艺在柔性显示器件中具有巨大的应用潜力。

## 参 考 文 献

- [1] Peng J, Sun Q, Wang S, *et al.* Low-temperature solution-processed alumina as gate dielectric for reducing the operating-voltage of organic field-effect transistors[J]. Applied Physics Letters, 2013, 103(6): 061603.
- [2] Lee W H, Oh S Y, Ahn C G, *et al.* Application of  $\text{HfO}_2$  high- $k$  gate insulator for excimer laser annealed poly-Si TFT[J]. Journal of Electroceramics, 2009, 23(2): 137-140.
- [3] Sang Y L, Chang S, Lee J S. Role of high- $k$  gate insulators for oxide thin film transistors[J]. Thin Solid Films, 2010, 518(11): 3030-3032.
- [4] Ko J B, Yeom H I, Park S H K. Plasma-enhanced atomic layer deposition processed  $\text{SiO}_2$  gate insulating layer for high mobility top-gate structured oxide thin-film transistors[J]. IEEE Electron Device Letters, 2016, 37(1): 39-42.
- [5] Choi J H, Mao Y, Chang J P. Development of hafnium based high- $k$  materials—A review[J]. Materials Science and Engineering: R: Reports, 2011, 72(6): 97-136.
- [6] Ribes G, Mitard J, Denais M, *et al.* Review on high- $k$  dielectrics reliability issues[J]. IEEE Transactions on Device and Materials Reliability, 2005, 5(1): 5-19.
- [7] Lee J, Cha J J, Barron S C, *et al.* Material and electrical characterization of stackable planar polysilicon TFT flash memory cell with metal nanocrystals and high- $k$  dielectrics[C]. 2008 IEEE International SOI Conference Proceedings, 2008: 39-40.
- [8] Xu W, Wang H, Xie F, *et al.* Facile and environmentally friendly solution-processed aluminum oxide dielectric for low-temperature, high-performance oxide thin-film transistors[J]. ACS Applied Materials & Interfaces, 2015, 7(10): 5803-5810.
- [9] Robertson J, Wallace R M. High- $k$  materials and metal gates for CMOS applications[J]. Materials Science and Engineering: R: Reports, 2015, 88: 1-41.
- [10] Wu J L, Lin H Y, Su B Y, *et al.* X-ray reflectivity and surface energy analyses of the physical and electrical properties of  $\alpha$ -IGZO/GZO double active layer thin film transistors[J]. Ceramics International, 2014, 40(1): 2419-2425.
- [11] Åstrand M, Selinder T I, Fietzke F, *et al.* PVD- $\text{Al}_2\text{O}_3$ -coated cemented carbide cutting tools[J]. Surface and Coatings Technology, 2004, 188: 186-192.
- [12] Lu D Y, Peng Y Y, Yu X Y, *et al.* Dielectric properties and defect chemistry of La and Tb co-doped  $\text{BaTiO}_3$  ceramics[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2016, 681: 128-138.
- [13] Chen S B, Lai C H, Chin A, *et al.* High-density MIM capacitors using  $\text{Al}_2\text{O}_3$  and  $\text{AlTiO}_x$  dielectrics[J]. IEEE Electron Device Letters, 2002, 23(4): 185-187.
- [14] Zhao Jiaoling, He Hongbo, Wang Hu, *et al.* Influence of deposition rate on microstructure and optical properties of Mo films fabricated by direct current pulse sputtering[J]. Acta Optica Sinica, 2016, 36(9): 0931001.  
赵娇玲, 贺洪波, 王 虎, 等. 沉积速率对直流脉冲溅射钼薄膜微结构与光学性能的影响[J]. 光学学报, 2016, 36(9): 0931001.
- [15] Shamala K S, Murthy L C S, Rao K N. Studies on optical and dielectric properties of  $\text{Al}_2\text{O}_3$  thin films prepared by electron beam evaporation and spray pyrolysis method[J]. Materials Science and Engineering: B, 2004, 106(3): 269-274.
- [16] Prasanna S, Jayakumar S, Kannan M D, *et al.* Dielectric properties of DC reactive magnetron sputtered  $\text{Al}_2\text{O}_3$  thin films[J]. Thin Solid Films, 2012, 520(7): 2689-2694.