

## 喷墨打印高迁移率铟锌锡氧化物薄膜晶体管\*

赵泽贤<sup>1)2)</sup> 徐萌<sup>2)</sup> 彭聪<sup>2)</sup> 张涵<sup>2)</sup> 陈龙龙<sup>2)</sup> 张建华<sup>2)</sup> 李喜峰<sup>2)†</sup>

1) (上海大学材料科学与工程学院, 上海 200072)

2) (上海大学, 新型显示技术及应用集成教育部重点实验室, 上海 200072)

(2024年3月14日收到; 2024年5月4日收到修改稿)

采用喷墨打印工艺制备了铟锌锡氧化物 (indium-zinc-tin-oxide, IZTO) 半导体薄膜, 并应用于底栅顶接触结构薄膜晶体管 (thin-film transistor, TFT). 研究了墨水的溶剂成分以及溶质浓度对打印薄膜图案轮廓的影响. 结果表明二元溶剂 IZTO 墨水中乙二醇溶剂可有效平衡溶质向内的马兰戈尼回流与向外的毛细管流, 避免了单一溶剂墨水下溶质流动不平衡造成 IZTO 薄膜的咖啡环状沉积轮廓图案, 获得均匀平坦的薄膜图案轮廓和良好接触特性, 接触电阻为 820  $\Omega$ , 优化后 IZTO TFT 器件的饱和迁移率达到 16.6  $\text{cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ , 阈值电压为 0.84 V, 开关比高达  $3.74\times 10^9$ , 亚阈值摆幅为 0.24 V/dec. 通过打印薄膜凝胶化模型解释了 IZTO 墨水溶剂成分、溶质浓度与最终薄膜形貌的关系.

**关键词:** 喷墨打印, 金属氧化物半导体, 咖啡环效应, 薄膜晶体管**PACS:** 85.30.Tv, 81.05.Gc, 77.22.Ch**DOI:** 10.7498/aps.73.20240361

## 1 引言

近年来, 氧化物薄膜晶体管 (thin film transistor, TFT) 由于具有低漏电流、高迁移率以及大面积均匀性等特点, 在平板显示产业得到了广泛的应用<sup>[1,2]</sup>. 随着印刷显示技术的发展, 喷墨打印无需真空工艺或光刻直接形成图案, 可显著降低成本而受到越来越多的关注<sup>[3-5]</sup>. 然而, 喷墨打印法制备的非晶氧化物薄膜形貌不均匀, 特别是咖啡环效应 (coffee ring effect) 影响下<sup>[6]</sup> 导致 TFT 器件性能的恶化, 阻碍印刷显示技术的发展. 此外, 喷墨打印 TFT 的研究主要集中在开发新材料, 提升迁移率等方面<sup>[7]</sup>. 例如, Li 等<sup>[8]</sup> 利用喷墨打印技术制备自对准底栅氧化物 TFT, 表现出 4.63  $\text{cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$  的最大饱和迁移率. Ryu 等<sup>[9]</sup> 则探究了退火温度对打印 ZTO TFT 的影响, 其迁移率达 2.71  $\text{cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ .

此外, Gillan 等<sup>[10]</sup> 通过打印制备掺聚乙烯亚胺  $\text{In}_2\text{O}_3$  界面电荷注入层, 实现器件饱和迁移率从 0.41  $\text{cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$  提升至 1.30  $\text{cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ . 但对于成膜形貌, 尤其是消除咖啡环效应的研究相对较少. 印刷墨水表面挥发促使溶质从中心不断向边缘沉积是造成薄膜咖啡环形貌的原因. 为了消除咖啡环效应, 需降低墨滴内外张力不均所造成向外的毛细管流动<sup>[11]</sup>. 基于氧化物前驱体体系而言, 通常通过添加大分子高黏度聚合物<sup>[12,13]</sup>、表面活性剂<sup>[14,15]</sup> 或者是使用混合溶剂<sup>[16-18]</sup> 改变墨滴的表面张力抑制咖啡环效应. 混合溶剂由于易挥发分解且有机残留较少, 成为主流改善墨水的方法. Kim 等<sup>[19]</sup> 认为添加乙二醇用作二元溶剂和形成表面张力梯度并促进向内的马兰戈尼回流, 改善了印刷表面轮廓. 此外, 铟锌锡氧化物 (IZTO) 本身具有很高的载流子迁移率, 作为有源层制备的 TFT 迁移率高达 100  $\text{cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ <sup>[20,21]</sup>. 但打印制备 IZTO TFT 研

\* 国家重点研发计划 (批准号: 2022YFB3603805) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: [lixifeng@shu.edu.cn](mailto:lixifeng@shu.edu.cn)

究,特别是对于 IZTO 前驱体墨水与打印法薄膜形貌的问题较少 [22], 因此研究 IZTO 墨水配制与打印薄膜图案的关系对于打印制备高迁移率 IZTO TFT 具有较强的应用价值和理论意义.

基于此, 本文对比研究了单一溶剂、二元溶剂墨水对印刷 IZTO 薄膜图案轮廓的影响, 从理论上阐明墨水性能与印刷图案的关系, 并研究不同沟道宽长比 ( $W/L$ ) 对 IZTO TFT 器件性能的影响, 最终实现高迁移率 IZTO TFT 的喷墨打印制造.

## 2 实验

### 2.1 溶液配制

将六水合硝酸铟 ( $\text{InNO}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ )、二水合醋酸锌 ( $\text{Zn}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) 和五水氯化物 ( $\text{SnCl}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ ) 按照一定的摩尔比 ( $\text{In}:\text{Zn}:\text{Sn} = 4:1:4$ ) 溶解在不同溶剂中配置 IZTO 前驱体墨水, 采用乙二醇甲醚 (2-MOE) 溶剂配制 0.2 mol/L 的单一溶剂 IZTO 前驱体墨水; 同时采用一定体积比 (1:1) 的乙二醇 (EG) 和乙二醇甲醚分别配制 0.2 和 0.4 mol/L 的二元溶剂 IZTO 前驱体墨水. 最后在室温条件下搅拌老化 24 h, 最终获得 IZTO 前驱体打印墨水. 将八水二氯化铪 ( $\text{HfCl}_4 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ , Alfa-Aesar, 98%) 和三仲丁醇铝 ( $\text{Al}(\text{OC}_4\text{H}_9)_3$ , Sigma Aldrich, 97%) 按照摩尔比 2:1 分别溶解在乙二醇甲醚中, 配置浓度为 0.3 mol/L 的铪铝氧化物 ( $\text{HfAlO}$ , HAO) 溶液.

### 2.2 薄膜及器件制备

经丙酮、酒精、和去离子水超声清洗的 4 in (1 in = 2.54 cm) 玻璃. 首先在此玻璃基板上直流溅射 50 nm 厚的铟锡氧化物 (ITO) 并光刻形成栅电极, 接着采用 HAO 前驱体溶液经 0.22  $\mu\text{m}$  的聚四氟乙烯过滤器过滤后, 多次旋涂达到要求的厚度, 并经 270  $^\circ\text{C}$  固化形成 HAO 栅绝缘层薄膜, 光刻后进行退火. 之后在绝缘层薄膜上打印有源层, 将 IZTO 溶液同样经过滤后注入 10 pL 的墨盒中, 打印后以 270  $^\circ\text{C}$  退火 1 h 得到 IZTO 薄膜, 作为 TFT 器件的有源层. 然后溅射 35 nm 的 ITO 导电层, 并通过光刻形成源漏电极图案, 最终制备出 IZTO TFT 器件. 图 1 给出了制备 IZTO TFT 器件的截面示意图以及光学显微镜图像.

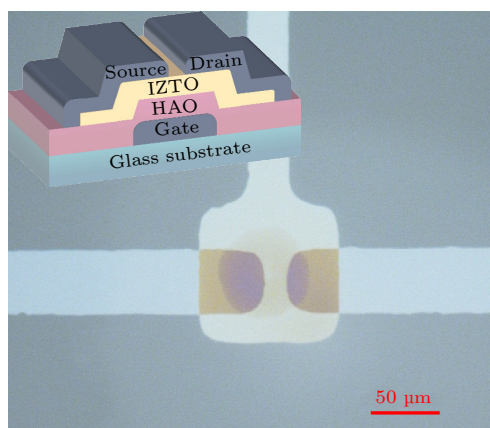


图 1 IZTO TFT 器件的光学显微镜图像, 插图显示截面示意图

Fig. 1. Microscope images of the IZTO TFT device, where the inset shows the schematic cross section.

### 2.3 IZTO 薄膜表面轮廓表征及 TFT 器件电学性能

IZTO 薄膜打印采用压电式喷墨打印机 (Dimatix-2850), 其墨盒 (DMC-11610) 的喷口直径为 21  $\mu\text{m}$ ; 采用热重分析仪 (TGA, Q5000 IR) 来分析墨水的吸热放热和失重行为; 使用表面张力仪 (KRUSS, K20) 测量墨水的物理性质 (密度、黏度和表面张力), 采用台阶仪 (Kosaka, ET-150) 测试打印 IZTO 的薄膜轮廓; 采用半导体特性分析系统 (4200-SCS, Keithley) 测试器件的转移、输出曲线.

## 3 结果与讨论

图 2 所示为 3 种 IZTO 前驱体墨水 TG-DTG (热重-微分热重) 曲线. 可以看出, 单溶剂 (single solvent) 墨水在 90, 330  $^\circ\text{C}$  左右出现两处尖峰, 分别对应于乙二醇甲醚溶剂以及羟基、硝酸盐的热分解造成的质量损失; 而在二元溶剂 (binary solvents) 的热重分析中的 DTG 曲线显示在 150  $^\circ\text{C}$  附近多出了第 3 处尖峰, 这里可以理解为使用二元溶剂中添加的乙二醇挥发所造成的. 此外, 单位体积下高浓度溶质相比低浓度在热分解及缩合过程中失去更多质量, 因此高浓度 (0.4 mol/L) 墨水的 TG 曲线中第 3 处 TG 下降台阶比低浓度 (0.2 mol/L) 明显; 再后续的升温过程中, 前驱体的重量保持不变, 表明添加的乙二醇溶剂未在前驱体墨水体系中残留, 并形成稳定的 IZTO 金属氧化物薄膜.

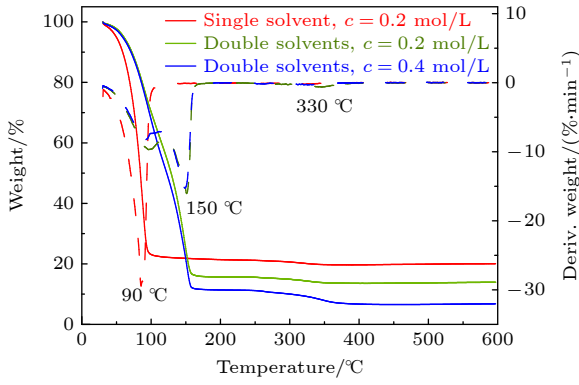


图 2 IZTO 前驱体墨水的热重曲线(实线)和热重微分曲线(虚线)

Fig. 2. The TGA curve (solid lines) and DTG curve (dotted lines) of IZTO precursor ink.

为了在压电喷墨打印中实现连续稳定地喷墨,需要特定的墨水物理特性(即密度、黏度、表面张力).文献[23]中使用 Ohnesorge 数的倒数( $Z$ )来评价压电喷墨打印的墨滴稳定性,可打印墨水的值应在 1—10 的范围内,墨水的  $Z$  数根据以下公式计算:

$$Z = \frac{\sqrt{a\rho\gamma}}{\eta}, \quad (1)$$

其中  $a$  (喷嘴内径) 为  $21 \mu\text{m}$ ,  $\rho$  是密度,  $\gamma$  是表面张力,  $\eta$  是油墨的黏度,表 1 总结了制备的 3 种墨水样品的物理参数. 3 种墨水样品所计算的  $Z$  值分别为 6.59, 4.14 和 3.48, 所有这些都可在可打印范围内.

表 1 不同浓度、溶剂下对应的 IZTO 墨水的物理参数  
Table 1. Structural parameters of IZTO ink of different concentration and solvents.

| IZTO 墨水样品                             | $\rho/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$ | $\eta/\text{cP}$ | $\gamma/(\text{mN}\cdot\text{m}^{-1})$ | $Z$  |
|---------------------------------------|--------------------------------------|------------------|--|------|
| $c = 0.2 \text{ mol/L}$ ,<br>2-MOE    | 1.04                                 | 4.05             | 34.4                                   | 6.59 |
| $c = 0.2 \text{ mol/L}$ ,<br>2-MOE+EG | 1.07                                 | 6.90             | 38.1                                   | 4.14 |
| $c = 0.4 \text{ mol/L}$ ,<br>2-MOE+EG | 1.10                                 | 8.44             | 39.1                                   | 3.48 |

为了探究溶剂的类型以及溶质的浓度对印刷后 IZTO 薄膜沉积形态的影响,图 3 显示了 3 种墨水印刷的 IZTO 薄膜的表面轮廓图.图 3 中单一溶剂墨水打印薄膜图案呈中间低、两边高的环状轮廓图案;而采用二元溶剂低浓度(binary solvents,  $0.2 \text{ mol/L}$ )墨水打印的薄膜图案则呈现平坦的轮廓表面;采用二元溶剂高浓度(binary solvents,  $0.4 \text{ mol/L}$ )墨水打印的薄膜图案则呈现凸起状轮廓表面.显然当浓度提升后,在凝胶化过程中不能维持平坦表面,即溶质进一步往中间堆积并最终形成中间成凸面拓扑结构.

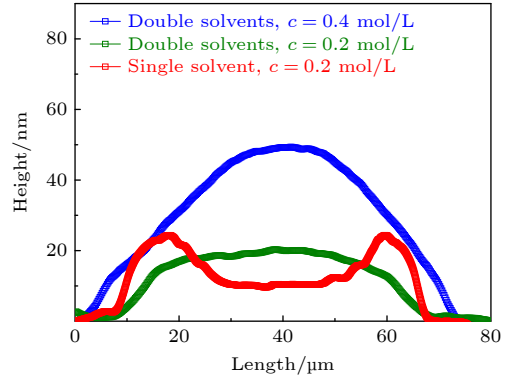


图 3 不同溶剂、不同浓度下的 IZTO 薄膜的表面轮廓图

Fig. 3. Surface profiles of IZTO films with different solvents and concentrations.

蒸发过程中向内马兰戈尼回流和向外毛细管流之间的平衡是决定最终沉积图案的生成[24].为了更好地理解溶剂成分以及溶质浓度对印刷后 IZTO 薄膜沉积形态的影响,图 4 给出了印刷薄膜在凝胶化过程中溶质扩散的物理机制示意图.其中横坐标( $x$ )表示溶质向内的迁移,纵坐标( $y$ )表示向外.采用单一溶剂打印时,液滴边缘(三相接触线)挥发相对于中间更激烈,会促进液滴内部往外毛细管流动(inward capillary flow),并伴随溶质在液滴边缘的堆叠;进一步导致中间浓度低,边缘浓度高,所形成的张力差促使液滴表面形成向外的马兰戈尼流动(outward Marangoni flow),这导致溶质进一步往液滴边缘堆积[25],在凝胶后形成咖啡环状轮廓.而添加的 EG 用作二元溶剂时,由于 2-MOE 的沸点与张力均比 EG 高,因此富含 2-MOE 的溶剂优先出现在三相接触线处,而 EG 则富含在液滴中央,富含 2-MOE 的接触线的界面张力比墨滴中央的界面张力低,这意味着从而沿着液滴的气液界面产生局部界面张力梯度,并诱导出向内马兰

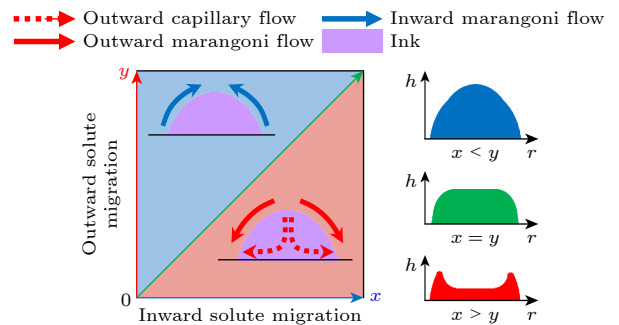


图 4 印刷薄膜的凝胶化过程机理

Fig. 4. Mechanism about gelation process of the printing film.

戈尼回流<sup>[26]</sup>(inward Marangoni flow), 将溶质有效地从液滴边缘运输至中心; 随着溶剂挥发, EG 的高黏度也会限制往外的毛细管流动, 最终在凝胶后形成平坦表面. 此外, 进一步提高浓度也就意味着黏度上升, 有效抑制毛细管流动<sup>[27]</sup>, 同时在墨滴中央留下了较高比例的溶质, 并导致凸表面拓扑结构的形成.

为探究二元溶剂墨水中添加了乙二醇 (EG) 对打印形成 IZTO 薄膜是否会增加氧相关缺陷问题, 对 IZTO 墨水打印薄膜进行 XPS 测试. 图 5(a), (b) 分别显示了单溶剂、二元溶剂下两种 IZTO 墨水印刷薄膜的 O 1s 光谱. 光谱的结合能由 C 1s(284.8 eV) 进行校准, O 1s 峰在  $(530.0 \pm 0.2)$  eV,  $(530.8 \pm 0.2)$  eV 和  $(531.7 \pm 0.2)$  eV 结合能上的 3 个子峰分别对应金属-氧化物键 ( $O_I$ , M—O)、氧空位 ( $O_{II}$ , OV) 与金属-氢氧化物键 ( $O_{III}$ , M—OH). 根据 XPS 的结果推测出, 当在原有单一溶剂 2ME 的基础上添加 EG 溶剂时,  $O_I$ ,  $O_{II}$ ,  $O_{III}$  键的百分比值无明显变化, 表明 EG 溶剂的添加在金属氧化物成键后不会引入额外的氧相关缺陷.

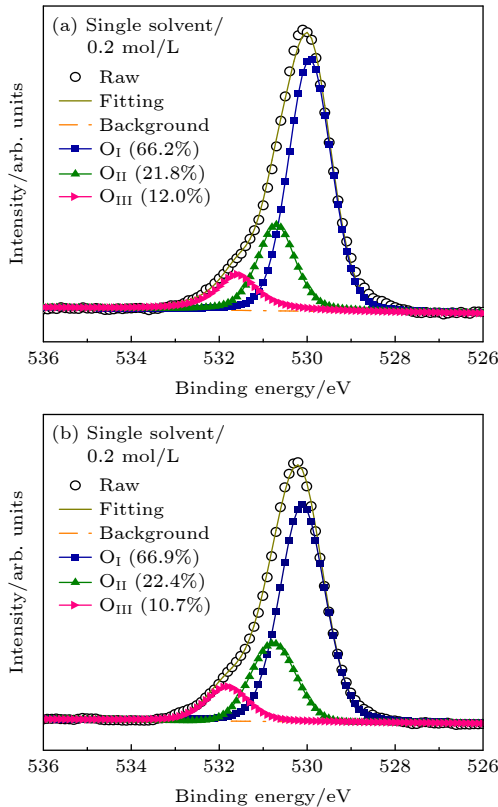


图 5 (a) 单溶剂和 (b) 二元溶剂制备 IZTO 薄膜的 O 1s 峰的 XPS 光谱

Fig. 5. XPS spectra of O 1s peaks of IZTO films prepared with (a) single solvent and (b) binary solvents.

图 6 是采用 3 种 IZTO 墨水打印并制备出的 TFT 三组转移特性曲线. 其中漏极电压 ( $V_{DS}$ ) 恒定在 1 V, 栅极电压 ( $V_{GS}$ ) 设定范围从  $-2$ — $5$  V. 薄膜轮廓形貌对半导体内载流子传输影响是造成电学特性的差异的原因.

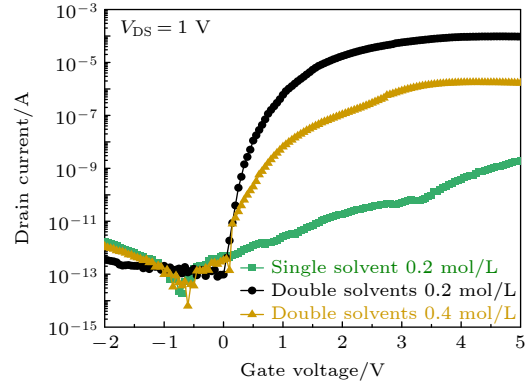


图 6 IZTO TFT 器件转移特性曲线

Fig. 6. Transfer characteristic curves of IZTO TFT devices.

咖啡环状轮廓对应器件中, 边缘厚度高于有效沟道厚度, 造成电子注入后, 在源漏电极附近需要穿过更厚的高电阻半导体层, 导致源漏电极接触电阻  $R_c$  较大; 此外有源层中间厚度过薄, 造成沟道电阻  $R_{ch}$  过大, 并在施加电压下抑制了开态电流, 使得最终 TFT 器件表现出纯电阻特性<sup>[12]</sup>. 凸状轮廓图案薄膜边缘同样由于厚度过高, 并造成高接触电阻, 如图 7(a) 所示表现出的饱和电流仅为  $1.5 \mu\text{A}$ , 此外沟道中间厚度增大导致电路路径增加, 使得载流子输运过程受到散射作用的影响, 造成器件迁移率减小 ( $\mu_{\text{sat}} = 2.3 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ ). 均匀平坦轮廓图案 IZTO 薄膜能够为载流子提供充足的传输路径, 且均匀薄膜厚度能有效减少接触电阻带来的影响; 图 7(b) 输出曲线显示出在线性区没有电流拥挤, 且表现出夹断和饱和行为, 表明形成良好欧姆接触特性, 并实现低接触电阻, 饱和电流提升到  $110 \mu\text{A}$ , 器件开关比从  $2.8 \times 10^7$  提升至  $1.21 \times 10^9$ , 饱和迁移率提升至  $16 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ . 从表 2 可以看出, 与以往的喷墨打印法制备 TFT 有源层薄膜相比, 本实验制备的 TFT 器件具有高迁移率、高开关比和低阈值电压的优点, 喷墨打印法制备 IZTO 有源层的 TFT 器件具有在平板显示产业中应用的潜力.

为验证喷墨打印 IZTO TFT 阵列中器件性能的均匀性. 采用优选的 IZTO 墨水制备 TFT 阵列并测试其中的 10 个器件, 转移特性曲线如图 8

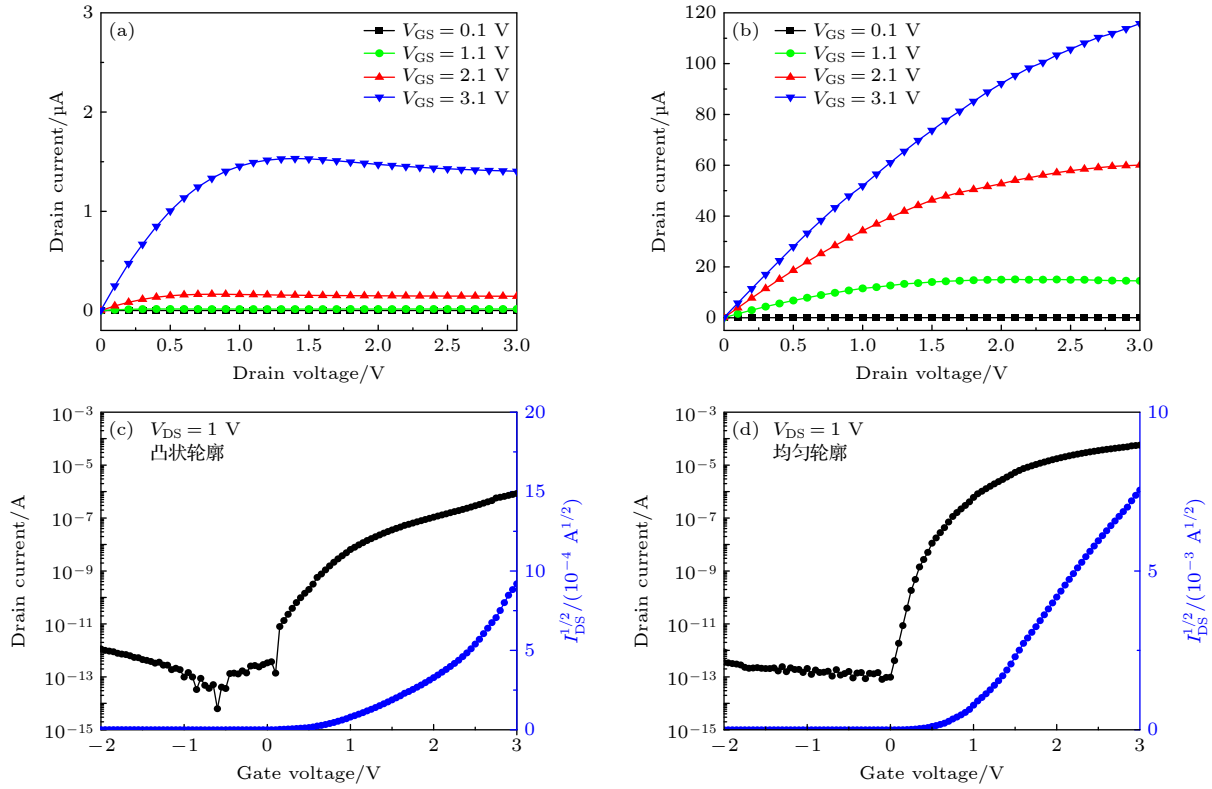


图 7 IZTO TFT 器件的 (a), (b) 输出与 (c), (d) 转移曲线 (a), (c) 凸状轮廓; (b), (d) 平坦轮廓

Fig. 7. (a), (b) Output and (c), (d) transfer curves of IZTO TFT device: (a), (c) Convex profile and (b), (d) uniform flat profile.

表 2 喷墨打印法制备 TFT 器件的性能对比

Table 2. Performance comparison of TFT devices prepared by inkjet printing method.

| 成膜方式 | $\mu_{\text{sat}}/(\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$ | $V_{\text{TH}}/\text{V}$ | S.S./ $(\text{V} \cdot \text{dec}^{-1})$ | $I_{\text{on}}/I_{\text{off}}$ | 关态电流/A              | 文献   |
|------|--|--------------------------|--|--------------------------------|---------------------|------|
| 喷墨打印 | 4.63   | -1.44                    | 0.18                                     | $>10^7$                        | $<10^{-12}$         | [8]  |
| 喷墨打印 | 1.3  | 0.14                     | 0.44                                     | $2.3 \times 10^4$              | $<10^{-9}$          | [10] |
| 喷墨打印 | 4.6  | 0.9                      | —  | $>10^5$                        | $1 \times 10^{-10}$ | [28] |
| 喷墨打印 | 3.0  | -0.51                    | 0.21                                     | $1.59 \times 10^7$             | $5 \times 10^{-13}$ | [29] |
| 磁控溅射 | 13.6   | 1.04                     | 0.18                                     | $5.65 \times 10^6$             | $2 \times 10^{-12}$ | [30] |
| 喷墨打印 | 16.6   | 0.84                     | 0.24                                     | $1.21 \times 10^9$             | $\leq 10^{-13}$     | 本文   |

所示, 被测 TFT 器件沟道的宽长比 ( $W/L$ ) 为  $50 \mu\text{m}/10 \mu\text{m}$ . 阈值电压  $V_{\text{TH}}$ 、迁移率  $\mu$ 、亚阈值摆幅 S.S. 的平均值汇总于表 3 中. 结果表明, 在优选印刷工艺下, 可在大面积制备下实现均匀性良好的 IZTO TFT 阵列.

表 3 喷墨打印 IZTO TFT 的电性能参数平均值

Table 3. Average electrical performance parameters of inkjet printed IZTO TFT.

|               | $\mu/(\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$ | $V_{\text{TH}}/\text{V}$ | S.S./ $(\text{mV} \cdot \text{dec}^{-1})$ |
|---------------|---|--------------------------|---|
| Average value | $11 \pm 2$  | $0.6 \pm 0.15$           | $90 \pm 15$                               |

图 9 所示是沟道宽长比 ( $W/L$ ) 分别为 50/30, 50/20, 50/10 时的打印 IZTO TFT 器件的转移特性曲线. 其中, 沟道宽度  $W$  均为  $50 \mu\text{m}$ ,  $V_{\text{DS}}$  恒定

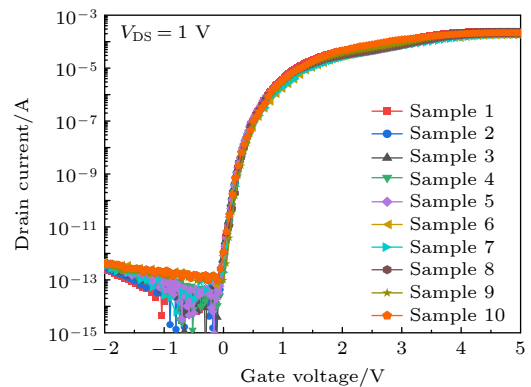


图 8 喷墨打印 10 个 IZTO TFT 器件的转移特性曲线汇总图

Fig. 8. Summary of transfer characteristic curves of 10 IZTO TFT devices fabricated by inkjet printing.

在 1 V, 通过计算并提取器件电学参数列于表 4 中, 结合饱和迁移率

$$\mu_{\text{sat}} = \frac{2L}{C_i W} \left( \frac{\partial \sqrt{I_{\text{DS}}}}{\partial V_{\text{DS}}} \right)^2, \quad (2)$$

其中  $I_{\text{DS}}$  为漏电流,  $C_i$  为单位电容, 如图 9 可知, 器件的性能与器件宽长比有紧密关系, 即随沟道宽长比增大, 开关比在增加; 此外, 固定的沟道宽度下, 沟道长度变化也会影响到沟道电阻大小, 从而器件的传输性能, 即饱和迁移率、亚阈值摆幅以及阈值电压在降低。

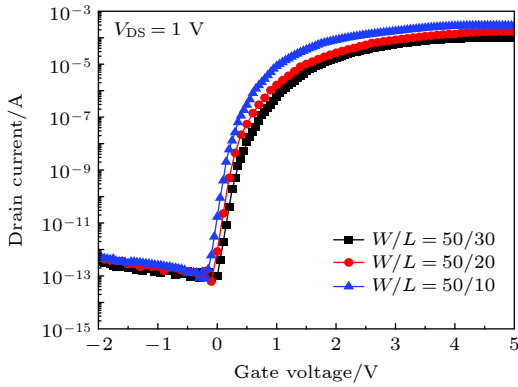


图 9 不同沟道宽长比的 IZTO TFT 器件的转移特性曲线  
Fig. 9. Transfer characteristic curves of IZTO TFT devices with different aspect ratios.

表 4 不同沟道宽长比的 IZTO 有源层 TFT 器件性能对比  
Table 4. Structural parameters of IZTO TFT devices with different aspect ratios.

| $W/L$ | $\mu_{\text{sat}}/(\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$ | $V_{\text{TH}}/\text{V}$ | $S.S./(\text{V} \cdot \text{dec}^{-1})$ | $I_{\text{on}}/I_{\text{off}}$ |
|-------|--|--------------------------|---|--------------------------------|
| 50/30 | 16.6   | 0.84                     | 0.24                                    | $1.21 \times 10^9$             |
| 50/20 | 14.9   | 0.73                     | 0.15                                    | $2.79 \times 10^9$             |
| 50/10 | 11.5   | 0.57                     | 0.10                                    | $3.74 \times 10^9$             |

为了进一步评估印刷制备 IZTO TFT 中有源层/电极间接触电阻对器件性能的影响. 这里采用传输线方法 (transmission line method, TLM) 来评估喷墨印刷制备的 IZTO TFT 中有源层/电极接触特性. 在 TFT 的导电路径中, 除了沟道电阻  $R_{\text{ch}}$  外还存在源漏极接触电阻  $R_{\text{C}}$ , 因此总电阻  $R_{\text{T}}$  可以表示为

$$\begin{aligned} R_{\text{T}} &= \frac{V_{\text{DS}}}{I_{\text{DS}}} = R_{\text{ch}} + 2R_{\text{C}} \\ &= R_{\text{ch}} + \frac{L + 2\Delta L}{\mu_{\text{FE}} C_{\text{OX}} (V_{\text{GS}} - V_{\text{TH}})}, \end{aligned} \quad (3)$$

其中,  $\mu_{\text{FE}}$  表示本征场效应迁移率,  $C_{\text{OX}}$  是单位电

容,  $\Delta L$  表示沟道长度的调变值<sup>[31]</sup>, 根据 3 组不同沟道长度  $L$  的器件, 通过计算得到如图 10 所示的  $R_{\text{T}}-L$  关系图. 根据 (3) 式所有拟合的直线汇聚于一点  $(-2\Delta L, 2R_{\text{C}})$ , 并通过交点, 结合沟道宽度 ( $W$ ) 提取出接触电阻 ( $R_{\text{C}}$ ) 约为 820  $\Omega$ . 因此, 较低的接触电阻是实现高开态电流 ( $>10^4$ ) 的原因之一<sup>[32]</sup>. 此外, 由于本实验采用菲林版光刻的源漏电极存在一定的光刻偏差, 即实际光刻电极沟道长度相较于理想沟道长度短 2—3  $\mu\text{m}$  (如图 1 所示), 这也是导致  $\Delta L \neq 0$  的原因。

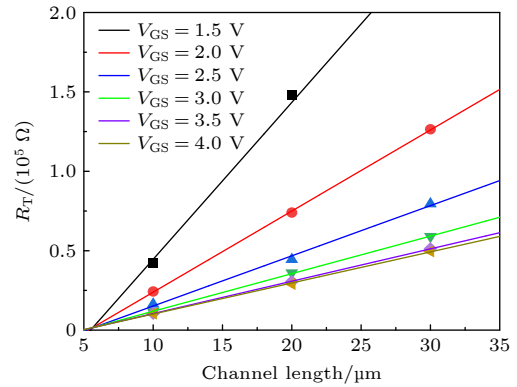


图 10 沟道长度为 10—30  $\mu\text{m}$  时 IZTO TFT 获得的总电阻与沟道长度 ( $R_{\text{T}}-L$ ) 图  
Fig. 10. Total resistance vs. channel length ( $R_{\text{T}}-L$ ) plots obtained from IZTO TFTs with a channel length of 10—30  $\mu\text{m}$ .

## 4 结 论

本文采用喷墨打印法打印 IZTO 有源层薄膜并制备了 IZTO TFT, 研究了溶剂种类以及溶质浓度对于薄膜沉积形态的影响, 相较于单一溶剂, 二元溶剂印刷的 IZTO 薄膜表面平坦是由于添加乙二醇有效抑制向外溶质堆积以及促进往内的马兰戈尼回流, 进而完全消除咖啡环效应; 此外进一步提高溶质浓度也会造成薄膜凸状表面轮廓的形成. 平坦的 IZTO 薄膜可有效降低与电极间接触电阻, 提高电荷载流子在电极与有源层之间输运效率, 实现迁移率提升. 得到的 IZTO TFT 具有更佳的性能, 饱和迁移率为  $16.6 \text{ cm}^2/(\text{V} \cdot \text{s})$ 、电流开关比高达  $1.21 \times 10^9$ 、阈值电压为 0.84 V、亚阈值摆幅为 0.24 V/dec. 因此, 优化墨水溶剂的配比来改善打印薄膜图案是实现高性能打印薄膜晶体管的关键。

## 参考文献

- [1] Jing B, Xu M, Peng C, Chen L L, Zhang J H, Li X F 2022

- Acta Phys. Sin.* **71** 138502 (in Chinese) [荆斌, 徐萌, 彭聪, 陈龙, 张建华, 李喜峰 2022 物理学报 **71** 138502]
- [2] Chu S, Hollberg L, Bjorkholm J E, Bolot S, Fuchs P, Knobelspies S, Temel O, Sevilla G T, Gilshtein E, Andres C, Shorubalko I, Liu Y, Troester G, Tiwari A A N, Romanyuk Y E 2019 *Adv. Electron. Mater.* **5** 1800843
- [3] Song O, Rhee D, Kim J, Jeon Y, Mazánek V, Söll A, Kwon Y A, Cho J H, Kim Y H, Kang J, Sofer Z 2022 *npj 2D Mater. Appl.* **6** 64
- [4] Liang K, Li D W, Ren H H, Zhao M M, Wang H, Ding M F, Xu G W, Zhao X L, Long S B, Zhu S Y, Sheng P, Li W B, Lin X, Zhu B W 2021 *Nano-Micro Lett.* **13** 164
- [5] Kwon J, Baek S, Lee Y, Tokito S, Jung S 2021 *Langmuir* **37** 10692
- [6] Deegan R D, Bakajin O, Dupont T F, Huber G, Nagel S R, Witten T A 1997 *Nature* **389** 827
- [7] Lan L F, Chen B Z, Peng J B, Cao Y 2021 *Polym. Mater. Sci. Eng.* **37** 150 (in Chinese) [兰林峰, 陈宝中, 彭俊彪, 曹镛 2021 高分子材料科学与工程 **37** 150]
- [8] Li Y Z, Lan L F, Gao P, He P H, Dai X, Cao H, Liang L, Peng J B 2019 *IEEE Electron Device Lett.* **40** 228
- [9] Ryu S O, Ha C H, Jun H Y, Ryu S O 2020 *J. Electron. Mater.* **49** 2003
- [10] Gillan L, Li S, Lahtinen J, Chang C H, Alastalo A, Leppäniemi J 2021 *Adv. Mater. Interfaces* **8** 2100728
- [11] Matavz A, Ursic U, Mocičnik J, Richter D, Humar M, Copar S, Malic B, Bobnar V 2022 *J. Colloid Interface Sci.* **608** 1718
- [12] Sun D W, Chen C H, Zhang J, Wu X M, Chen H P, Guo T L 2018 *Appl. Phys. Lett.* **112** 012102
- [13] Zhu Z N, Zhang J H, Zhou Z W, Ning H L, Cai W, Wei J L, Zhou S X, Yao R H, Lu X B, Peng J B A 2019 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **11** 5193
- [14] Zhu Z N, Ning H L, Cai W, Wei J L, Zhou S X, Yao R H, Lu X B, Zhang J H, Zhou Z W, Peng J B A 2018 *Langmuir* **34** 6413
- [15] Still T, Yunker P J, Yodh A G 2012 *Langmuir* **28** 4984
- [16] Hu H L, Zhu J G, Chen M S, Guo T L, Li F S 2018 *Appl. Surf. Sci.* **441** 295
- [17] Zhong X, Duan F 2016 *Eur. Phys. J. B* **39** 18
- [18] Oh G, Jeong W, Jung N, Kang S H, Weon B M 2022 *Phys. Rev. Appl.* **17** 024010
- [19] Kim D, Jeong S, Park B K, Moon J 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 264101
- [20] Kim M G, Kim H S, Ha Y G, He J Q, Kanatzidis M G, Facchetti A, Marks T J 2010 *J. Am. Chem. Soc.* **132** 10352
- [21] Zhu L Y, Gao Y N, Zhang J H, Li X F 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 168501 (in Chinese) [朱乐永, 高娅娜, 李喜峰, 张建华 2015 物理学报 **64** 168501]
- [22] Choi S, Kim K T, Park S K, Kim Y H 2019 *Materials* **12** 852
- [23] Friederich A, Binder J R, Bauer W 2013 *J. Am. Ceram. Soc.* **96** 2093
- [24] Ishizuka H, Fukai J 2018 *Exp. Fluids* **59** 4
- [25] Li Y Z, He P H, Chen S T, Lan L F, Dai X Q, Peng J B 2019 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **11** 28052
- [26] Park J, Moon J 2006 *Langmuir* **22** 3506
- [27] Huang H, Hu H L, Zhu J G, Guo T L 2017 *J. Electron. Mater.* **46** 4497
- [28] Tao H, Luo H D, Ning H L, Yao R H, Cai W, Zheng X F, Wang Y, Wang B, Cao H, Peng, J B 2021 *Chin. J. Liq. Cryst. Disp.* **36** 663 (in Chinese) [陶洪, 罗浩德, 宁洪龙, 姚日晖, 蔡炜, 郑喜凤, 汪洋, 王铂, 曹慧, 彭俊彪 2021 液晶与显示 **36** 663]
- [29] Chen S T, Li Y Z, Lin Y L, He P H, Long T, Deng C H, Chen Z, Chen G S, Tao H, Lan L F, Peng J B 2020 *Coatings* **10** 425
- [30] Fan C L, Hsin T C, Yu X W, Lin Z C 2024 *Mater. Sci. Semicond. Process.* **172** 1396
- [31] Weber C, Oberberg M, Weber D, Bock C, Pham D V, Kunze U 2014 *Adv. Mater. Interfaces* **1** 1400137
- [32] Lin Y L, Chen S T, Wu Y B, Lan L F, Peng J B A 2021 *Chin. J. Liq. Cryst. Disp.* **36** 1239 (in Chinese) [林奕龙, 陈思婷, 吴永波, 兰林峰, 彭俊彪 2021 液晶与显示 **36** 1239]

# Inkjet printing high mobility indium-zinc-tin oxide thin film transistor<sup>\*</sup>

Zhao Ze-Xian<sup>1)2)</sup> Xu Meng<sup>2)</sup> Peng Cong<sup>2)</sup> Zhang Han<sup>2)</sup>  
Chen Long-Long<sup>2)</sup> Zhang Jian-Hua<sup>2)</sup> Li Xi-Feng<sup>2)†</sup>

1) (*School of Materials Science and Engineering, Shanghai University, Shanghai 200072, China*)

2) (*Key Laboratory of Advanced Display and System Application of Ministry of Education, Shanghai University, Shanghai 200072, China*)

( Received 14 March 2024; revised manuscript received 4 May 2024 )

## Abstract

Metal oxide thin film transistor has been widely used in flat panel display industry because of its low leakage current, high mobility and large area uniformity. Besides, with the development of printed display technology, inkjet printing process can fabricate the customizable patterns on diverse substrates with no need of vacuum or lithography to be used, thus significantly reducing cost and receiving more and more attention. In this paper, we use inkjet printing technology to prepare a bottom gate bottom contact thin film transistor (TFT) by using indium-zinc-tin-oxide (IZTO) semiconductor. The surface morphology of the printed IZTO film is modified by adjusting the solvent composition and solute concentration of the printing precursor ink. The experimental result show that the use of binary solvents can effectively overcome the coffee ring shape caused by the accumulation of solute edge in the volatilization process of a single solvent, ultimately presenting a uniform and flat contour surface. Further increase in solute concentration is in favor of formation of convex surface topology. The reason for the formation of the flat surface of the oxide film is the balance between the inward Marangoni reflux of the solute and the outward capillary flow during volatilization. In addition, IZTO thin film transistor printed with binary solvents exhibits excellent electrical properties. The ratio of width/length = 50/30 exhibits a high on-off ratio of  $1.21 \times 10^9$ , a high saturation field-effect mobility is  $16.6 \text{ cm}^2/(\text{V}\cdot\text{s})$ , a low threshold voltage is 0.84 V, and subthreshold swing is 0.24 V/dec. The uniform and flat active layer thin film pattern can form good contact with the source leakage electrode, and the contact resistances of TFT devices with different width-to-length ratios are less than  $1000 \ \Omega$ , which can reach the basic conditions of high mobility thin film transistors prepared by inkjet printing. Therefore, using solvent mixture provides a universal and simple way to print oxide films with required surface topology, and present a visible path for inkjet printing of high-mobility thin film transistors.

**Keywords:** inkjet printing, metal oxide semiconductor, coffee ring effect, thin film transistor

**PACS:** 85.30.Tv, 81.05.Gc, 77.22.Ch

**DOI:** [10.7498/aps.73.20240361](https://doi.org/10.7498/aps.73.20240361)

<sup>\*</sup> Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2022YFB3603805).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [lixifeng@shu.edu.cn](mailto:lixifeng@shu.edu.cn)



## 喷墨打印高迁移率铟锌锡氧化物薄膜晶体管

赵泽贤 徐萌 彭聪 张涵 陈龙龙 张建华 李喜峰

### Inkjet printing high mobility indium–zinc–tin oxide thin film transistor

Zhao Ze-Xian Xu Meng Peng Cong Zhang Han Chen Long-Long Zhang Jian-Hua Li Xi-Feng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 128501 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20240361

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240361>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

## 您可能感兴趣的其他文章

### Articles you may be interested in

#### $N_2O$ 处理对背沟刻蚀金属氧化物薄膜晶体管性能的影响

Effect of  $N_2O$  treatment on performance of back channel etched metal oxide thin film transistors

物理学报. 2022, 71(5): 058503 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211350>

#### 镨掺杂铟镓氧化物薄膜晶体管的低频噪声特性分析

Analysis of low frequency noise characteristics of praseodymium doped indium gallium oxide thin film transistor

物理学报. 2021, 70(16): 168501 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210368>

#### 溶胶–凝胶法制备氧化锡基薄膜及薄膜晶体管的研究进展

Research progress of tin oxide–based thin films and thin–film transistors prepared by sol–gel method

物理学报. 2020, 69(22): 228102 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200653>

#### 适用于喷墨打印制备发光二极管的ZnO量子点配体研究

Study on ZnO quantum dot ligands for inkjet printing of light–emitting diodes

物理学报. 2023, 72(13): 137301 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230312>

#### 低温快速制备基于溶液工艺的高性能氧化铟薄膜及晶体管

Low–temperature rapid preparation of high–performance indium oxide thin films and transistors based on solution technology

物理学报. 2024, 73(9): 096802 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240082>

#### 短沟道金属–氧化物半导体场效应晶体管的散粒噪声模型

Shot noise model of the short channel metal–oxide–semiconductor field–effect transistor

物理学报. 2020, 69(17): 177102 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200497>