Transistors transparents à films minces d'oxyde d'indium

Florin Gherendi
Laboratoire de Physique des Plasmas et
Fusion Nucleaire
Institut National de Physique des Lasers,
Plasma et Radiation (INFLPR)
Magurele, Roumanie
florin.gherendi@inflpr.ro

Daniela Dobrin

Laboratoire de Physique des Plasmas et
Fusion Nucleaire

Institut National de Physique des Lasers,
Plasma et Radiation (INFLPR)

Magurele, Roumanie
daniela.dobrin@inflpr.ro

Jacques Perrière

Sorbonne Universités, UPMC Univ Paris 06,

UMR 7588, INSP

CNRS, UMR 7588, INSP

F-75005

Paris, France
jacques.perriere@insp.jussieu.fr

Magdalena Nistor

Laboratoire de Physique des Plasmas et
Fusion Nucleaire

Institut National de Physique des Lasers,
Plasma et Radiation (INFLPR)

Magurele, Roumanie
magda.nistor@inflpr.ro

Résumé — Nous avons réalisé des transistors à films mince d'oxyde d'indium sur différents substrats en utilisant la méthode d'ablation par faisceau pulsé d'électrons. Les études réalisées dans le cadre de la coopération franco-roumaine avec le groupe de l'INSP sur la l'accordabilité des propriétés physiques des films minces d'oxyde transparents et conducteurs en fonction des paramètres de croissance constituent la base de la fabrication des transistors. Nous démontrons qu'en utilisant un processus de dépôt en une seule étape, une structure source-canal-drain est obtenue, ce qui permet de fabriquer des transistors transparents en films minces d'oxyde d'indium de haute performance. Les transistors utilisant du papier cellulose comme substrat diélectrique, avec des films minces d'oxyde d'indium comme canal et électrodes déposées sur les deux faces, montrent un effet de mémoire. Nous présentons les méthodes de fabrications utilisées et les caractéristiques électriques de ces transistors pour les applications dans l'éléctronique transparente.

Mot-clés — Ablation par faisceau pulsé d'électrons, PED, transistor, effet de mémoire, étiquettes intelligentes

I. INTRODUCTION

Le silicium s'étant confronté à des limites physiques en termes de réduction de taille selon la loi de Moore, de nouveaux matériaux semi-conducteurs tels que les dichalcogénures de métaux de transition 2D et les semiconducteurs à base d'oxyde sont prometteurs pour atteindre des tailles plus petites/pour une miniaturisation plus avancée du transistor. Les semi-conducteurs à base d'oxyde sont considérés comme les matériaux alternatifs les plus prometteurs en raison de leur mobilité modeste, de leur courant d'arrêt extrêmement faible, de leur grande uniformité et de leur capacité à être traités à basse température avec des méthodes conventionnelles compatibles avec les circuits actuels. Dans la pratique, les oxydes semi-conducteurs sont parvenus à remplacer le Si amorphe hydrogéné dans les dispositifs d'affichage à cristaux liquides haut de gamme, et dans les écrans à diodes électroluminescentes organiques, malgré le peu de temps passé depuis leur invention en 2004 par le Prof. Hosono et ses collaborateurs [1].

C'est ainsi qu'est née l'électronique transparente, qui fait aujourd'hui partie de l'électronique grand public, basée sur un canal semi-conducteur constitué de films minces d'oxyde aux propriétés électriques et à la transmission optique améliorées, dans le cadre d'un processus de fabrication à basse température pour des dispositifs de haute performance [1-5]. L'oxyde de zinc (ZnO), l'oxyde d'indium (In₂O₃) et l'oxyde de gallium (Ga₂O₃) sont des semi-

conducteurs à grand gap représentatifs et prometteurs pour les applications optoélectroniques, en raison de leur transparence dans le domaine visible et de leur dopage de type n. Les transistors à couche mince d'oxyde, en particulier l'oxyde d'indium-gallium-zinc amorphe, ont été utilisés comme dispositifs de commutation depuis leur apparition sur le marché et, dès le début, il y a eu un grand intérêt à les rendre transparents pour les écrans de grande surface avec une haute résolution et une grande flexibilité [1-5].

Parmi les oxydes transparents de type n, les films minces d'oxyde d'indium (In₂O₃) ont suscité beaucoup d'intérêt en tant que film de canal dans les TFT en raison de leur transparence et de leur mobilité optique élevées, de leur stabilité chimique et de l'interface lisse entre le canal et l'isolant de grille obtenue grâce à diverses techniques de croissance [5-8]. L'accordabilité des propriétés électriques et optiques des films minces d'oxyde d'indium est déterminée par l'interaction entre la stœchiométrie et les défauts du matériau, mais ses propriétés fondamentales en font un système modèle pour l'étude des oxydes multiéléments, comme l'oxyde d'indium-gallium-zinc. Les performances des TFT utilisant des films minces de In₂O₃ comme canal se sont améliorées avec la diminution de la température de croissance, ce qui a donné des films amorphes avec des propriétés électriques stables qui permettent de contrôler le fonctionnement des transistors [5-8].

Dans ce contexte, le processus de dépôt en une seule étape et l'auto-alignement ont été démontrés comme des approches très prometteuses pour simplifier les étapes de fabrication des transistors à effet de champ sur différents substrats [7, 9]. En particulier, les films minces de $\rm In_2O_3$ obtenus à température ambiante ont présenté une conductivité métallique ou semi-conductrice en fonction de la pression partielle d'oxygène pendant la croissance [9], ce qui a permis de développer des transistors à effet de champ hybrides flexibles à haute performance en utilisant du papier cellulose comme couche diélectrique et substrat, avec des oxydes semi-conducteurs comme couche de canal et des électrodes déposées sur les deux faces [3, 10].

L'équipe «Plasma-chimie et matériaux fonctionnels avancés» du Laboratoire de Physique des Plasmas et Fusion Nucléaire de l'INFLPR, a développé une technologie de dépôt de films minces par ablation par faisceau pulsé d'électrons (« Pulsed Electron Beam Deposition » - PED),

obtenant des résultats originaux sur les propriétés physiques des films minces épitaxiés d'oxydes transparents et conducteurs dans le cadre d'une collaboration francoroumaine de longue date avec l'Institut de Nanoscience de Paris (INSP), Sorbonne Universités, CNRS, UPMC Univ Paris [12-18].

En effet, les études conjointes avec le groupe de l'INSP, spécialisé dans la croissance de films minces par ablation laser, ont montré que l'ablation par faisceaux pulsés d'électrons est bien adaptée à la formation de films d'oxydes, denses, de stœchiométrie contrôlée, cristallisés et présentant les propriétés du matériau massif et aussi des films nanocomposites (clusters d'un élément donné dans une matrice oxyde) présentant des propriétés physiques totalement originales [12-18].

Cette équipe a été une des premières a démontrer en Roumanie la fabrication au niveau du laboratoire des transistors transparents en films minces avec une structure source-canal-drain obtenue en un seul dépôt (auto-assemblage) [7] et flexibles sur papier [10] pour des applications dans le domaine de l'électronique transparente.

II. METHODES

A. Géométrie des transistors à films minces

Les transistors à films minces utilisés couramment dans les applications sont des transistors à effet de champ dans lesquels on utilise des films avec des propriétés de conducteur, semiconducteur et isolateur, déposés sur un substrat, au lieu de faire des dopages et oxydations dans une plaquette de silicium.

Selon l'ordre de croissance des films composant la structure du transistor, il y a deux géométries possibles:

- « bottom gate top contacts », où l'on dépose d'abord le film conducteur pour le contact de grille, puis le dépot d'un film isolateur. Au dessus de l'isolateur on dépose la structure de films sourcecanal-drain, façonnée avec des masques d'ombre (« shadow mask »); cette géométrie peut nécessiter une couche de passivation, si les propriétés du film canal sont influencées par l'environnement.
- «top gate bottom contacts», où l'on dépose la structure source-canal-drain au début, suivie par l'isolateur de grille et le contact de grille; l'avantage de cette géométrie est l'auto-passivation du canal

B. Méthode de croissance des films minces par ablation par faisceaux pulsés d'électrons (PED)

La PED est une méthode de croissance similaire à la l'ablation par laser pulsé («pulsed laser deposition» - PLD), mais qui utilise un faisceau d'électrons pulsé au lieu d'un laser ultraviolet nanoseconde pour ablater le matériau d'une cible d'oxyde [12-18].

Le faisceau pulsé d'électrons se propage d'une manière auto-focalisée vers la cible, interagit avec la cible à 45 degrés, puis un plasma d'ablation se forme et se propage vers le substrat, conduisant à la formation d'un film mince. La pression du gaz varie autour de 10⁻² mbar.

C. Méthode de fabrication des masques pour les transistors à films minces

Dans le paragraphe A on parlait de la déposition des structures façonnées pour obtenir les géométries des transistors à films minces. Étant donné que la méthode PED permet d'obtenir des films couvrant d'une manière uniforme des surfaces de l'ordre des 10x10mm, alors que les dimensions du transistor sont beaucoup plus petites, on a opté pour façonner la géométrie de chaque film pendant la déposition, en utilisant des masques, plutôt que les traiter ensuite par micro-lithographie. Dans ce but, on utilise un masque pour la géométrie des contacts source-drain (qui donne la longueur et largeur du canal), un autre pour l'isolateur de grille, un pour le film canal et enfin un pour le contact de grille. Les masques sont fabriqués en tôle par coupure laser dans notre institut, mais, pour obtenir des longueurs de canal de 300μm ou moins, la précision du CNC laser n'est pas suffisante.

Nous avons donc opté pour une approche originale, en utilisant l'ombre d'un fil métallique d'un diamètre égal à la longueur du canal pour séparer les deux contacts source-drain. Le fil métallique est soudé sur le masque source-drain, dans la partie inférieure du masque, de telle manière qu'il fasse un contact ferme avec le substrat pour éviter la pénombre. Ainsi on a typiquement réalisé des masques pour 8 transistors.

D. Le principe de la méthode de croissance des films minces avec un obstacle inséré dans le plasma ablation

Pour la croissance des films de In₂O₃ par la méthode PED, si on introduit un obstacle métallique dans le panache du plasma d'ablation, mais pas en contact avec le substrat, on obtient aussi une croissance du film derrière l'obstacle [7]. Cette croissance a lieu à un taux réduit par rapport au dépôt sans obstacle; par contre, nous avons mis en évidence le fait que la résistivité du film résultant est beaucoup plus grande derrière l'obstacle qu'à l'extérieur de l'ombre de celui-ci [7, 19]. Cette propriété permettrait d'obtenir dans un seul dépot un film avec une structure source-canal-drain auto-assemblée, car on peut varier la résistivité d'une valeur très petite au dehors de l'ombre de l'obstacle (contacts source et drain) à une valeur très grande (semiconducteur non-dégénéré) dans l'ombre de l'obstacle. La condition nécessaire est que l'obstacle soit suffisamment petit, de la dimension du canal du transistor.

E. Méthodes de caractérisation des films minces

L'épaisseur et la composition des films minces ont été déterminées par spectrométrie de rétrodiffusion de Rutherford (RBS), en utilisant l'accélérateur Van de Graaff de 2 MeV de l'INSP, Sorbonne Université. La nature, la résistivité, mobilité et la densité des porteurs du film ont été mésurés par la méthode Hall (MMR Technologies, Inc). La transmission optique des films entre 200 et 3200 nm a été mesurée avec un spectrophotomètre Cary 5000.

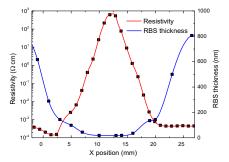
Les propriétés électriques des transistors ont été obtenues avec deux systèmes TSP SourceMeter Keithley 2611A reliés, dans l'air, à température ambiante et dans l'obscurité, à l'aide du logiciel LabView. Des mesures de résistivité à résolution spatiale ont été effectuées à l'aide de deux microprobes Cascade Microtek Ph100 (support magnétique, réglage micrométrique) connectées à un seul SourceMeter Keithley.

III. RESULTATS

A. Propriétés électriques et optiques des films minces

La résistivité électrique des films de In₂O₃ déposés sur un substrat en verre de 12x25mm en utilisant un obstacle métallique de 10mm de largeur dans le plasma d'ablation a été posé dans l'obscurité par mesures en 2 points aux intervalles successifs de 1mm à travers l'ombre de l'obstacle

(Fig. 1). L'épaisseur du film, mesurée par RBS, est aussi présentée dans la figure 1. On peut observer une épaisseur quasi-constante de 20nm sur la largeur de l'obstacle (zone d'ombre totale, pure diffusion du plasma) et une croissance de l'épaisseur jusqu'à 800nm à travers les zones de pénombre jusqu'à la zone où l'obstacle n'a plus d'influence. En mesurant la résistance totale entre les « ailes » conductives sur cette géométrie on obtient une valeur de 36



GΩ.

Fig.1 Profil de résistivité et de l'épaisseur mesurée par RBS

Nous attribuons cela à la contribution de l'oxygène provenant du gaz de travail dans le processus de croissance du film, qui devient plus importante à la même pression quand le taux de déposition est plus petit. Ceci conduit à un enrichissement du film en oxygène. Dans la plupart des méthodes de dépot de couches minces, les films d'oxydes ont la tendance d'être sous-stœchiométriques en oxygène si l'on n'utilise pas d'oxygène dans le gaz de travail. Il a été la résistivité des films d'oxydes montré que semiconducteurs comme In₂O₃ diminue, due aux lacunes d'oxygène (comportement de semiconducteur dégénéré [11, 14]). L'enrichissement en oxygène conduit donc à une résistivité plus grande. Pour vérifier cette hypothese, des films In₂O₃ ont été déposés sur substrat de saphire c-cut 10x10mm à température ambiante et deux pressions d'oxygène typiquement utilisées en PED. Les propriétés électriques de transport mesurées par effet Hall sont présentées dans le table suivant:

TABLE 1

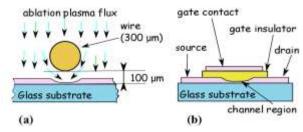
Conditions de croissance	ρ (Ωcm)	μ (cm2/Vs)	n(cm-3)
1.3x10 ⁻² mbar (LP)	9.12 x 10 ⁻⁴	38.84	1.76 x 10 ²⁰
2x10 ⁻² mbar (HP)	33	-	-

On observe qu'une petite augmentation de la pression LP à HP conduit à une importante augmentation de la résistivité du film, les propriétés de transport devenant alors non-mesurables. D'une autre coté, à basse pression (LP), le film contient plus de lacunes d'oxygène, ce qui augmente la mobilité et la densité des porteurs de charge, et est un semiconducteur dégénéré, ce qui le rend idéal pour les contacts d'un transistor.

Les films ont une transparence optique de ~85 % et des valeurs de la bande interdite Eg=3.77 eV à basse pression et 3.69 eV à haute pression [11] en tant que déterminées par la méthode de Tauc.

B. Transistors homojonction obtenus en un seul processus de dépôt avec l'auto-assemblement

En utilisant le masque de déposition décrite dans le paragraphe II.C, on réduit à l'échelle le dépot sous obstacle



pour obtenir une structure auto-assemblée source-canaldrain (Fig. 2a). Le masque est installé avec un distancier de 100µm d'épaisseur, en tant que le fil de 300µm joue le rôle de l'obstacle décrit dans le paragraphe III.A.

Fig. 2 (a) La géometrie de depot et (b) la structure du transistor homojonction auto-assemblé

Les caractéristiques électriques mesurées sur ces transistors sont présentées dans la figure 3. On observe dans la famille de caractéristique de sortie un courant de saturation de 8x10⁻⁴ mA pour une tension de grille de +3V, alors que les caractéristiques de transfert en représentation logarithmique (gauche) et linéaire (droite) permettent de calculer une pente de 0.27V/décade et une tension de seuil de +1V, indiquant un transistor en régime d'enrichissement (« enhanced mode ») de haute performance [6 - 8].

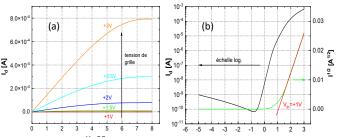


Fig.3. Caractéristiques électriques du transistor homojonction : (a) sortie and (b) transfert

C. Transistors à films minces utilisant le papier comme substrat et isolant de grille

La géométrie utilisée dans ce cas est de type « bottom gate-top contacts ». Le substrat est un papier dont l'épaisseur est de 10µm et joue ainsi le rôle d'isolateur de grille (Fig.4)

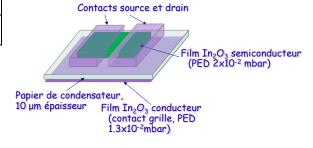


Fig.4. Le transistor à papier

On peut utiliser aussi l'approche homojonction autoassemblée, avec le même masque de dépot du paragraphe III.B. Cependant, comme le papier est très flexible, le contrôle de la distance entre le fil du masque et le substrat devient difficile. L'exemple dans la figure 4 présente un transistor avec le film canal déposé séparément. Le film contact de grille est déposé sans masque sur une face du papier, et la structure source-canal-drain sur l'autre face. Les caractéristiques électriques d'un transistor à papier sont présentées dans la figure 5 a-c. Une particularité de ces transistors est le fait qu'il présente un « effet-mémoire », c'est à dire un changement permanent et réversible du régime de fonctionnement (tension de seuil) déterminé par la tension de grille. Cet effet apparaît sur la caractéristique de transfert comme une courbe d'hystérésis dans laquelle la tension de seuil passe de la valeur 0.4V (régime d'enrichissement, qu'on note « état 0 ») avec une pente de 0.48V/décade à une valeur de -3.2V (régime d'épuisement, qu'on note « état 1 ») avec une pente de 0.33V/décade. Le basculement entre les deux états se fait à ±4V appliqués sur la grille.

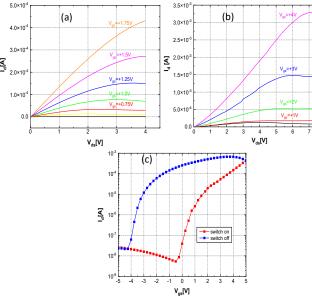


Fig.5 Caractéristiques électriques du transistor à papier : (a) sortie « 0 » ; (b) sortie « 1 » and (c) transfert – mémoire

Correspondant à ces deux états, deux familles de caractéristiques de sortie existent, dont une avec courant de drain maximum de 400µA à une tension de grille de 1.75V (état 0), et l'autre avec un courant de drain de 3mA à une tension de grille de 4V (état 1). Cette propriété peut conduire à des applications dans les circuits numériques et mémoires non-volatiles pour l'électronique « jettable », NFC/RFID et étiquettes intelligentes.

IV. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

La technologie de dépôt de films minces par ablation par faisceau d'électrons pulsé, PED, est une méthode versatile pour obtenir des films minces transparents et conducteurs dont les propriétés physiques peuvent être contrôlées par les paramètres de dépôt. Les études menées dans le cadre de la coopération franco-roumaine avec le groupe INSP sur la l'accordabilité des propriétés physiques des films minces d'oxydes transparents et des conducteurs ont été essentielles pour la fabrication de différents types de transistors. Ainsi la PED permet de fabriquer des transistors en films minces dont les caractéristiques sont adaptées à des applications spécifiques dans le domaine de l'électronique transparente et flexible.

Le processus d'auto-assemblage simplifie fortement la technologie pour les applications, tout en permettant d'obtenir des meilleures caractéristiques comparées aux celles rapportées dans la littérature et peut s'appliquer dans les technologies de l'électronique transparente, affichages etc. Cette approche est très prometteuse pour simplifier les étapes de fabrication des transistors à film minces. L'effet de mémoire du transistor au papier peut se prêter aux applications dans les circuits numériques et mémoires nonvolatiles pour l'électronique « jettable » et étiquettes intelligentes.

Nos études en commun sur les films minces d'oxydes, leurs propriétés physiques et leurs applications se poursuivront avec de nouveaux oxydes et nous espérons que des projets de recherche franco-roumains sur ce thématique seront financés à l'avenir.

Remerciements Ce travail a été réalisé dans le cadre de l'Accord de coopération universitaire entre l'Université Pierre et Marie Curie et INFLPR «Transition – métal semiconducteur dans les films d'oxydes» (2010-2015) et des plusieurs projets: Brancusi no. 14762ZH « «Croissance de films d'oxydes par faisceaux d'électrons pulsés » INFLPR (Dr. M. Nistor) et INSP-Université Paris 6 (Dr. J. Perrière); no. PN-II-ID-PCE-2011-3-0566 - Romanian National Authority for Scientific Research CNCS-UEFISCDI; National Core Program LAPLAS I – V, VI (contract no. 16/2019) and LAPLAS VII (contract no. 30N/2023) du Ministère Roumain de la Recherche, de l'Innovation et de la Numérisation.

REFERENCES

- [1] K. Nomura, H. Ohta, A. Takagi, T. Kamiya, M. Hirano, and H. Hosono, "Room-temperature fabrication of transparent flexible thin-film transistors using amorphous oxide semiconductors," *Nature*, vol. 432, no. 7016, pp. 488–492, 2004.
- [2] J. F. Wager, B. Yeh, R. L. Hoffman, and D. A. Keszler, "An amorphous oxide semiconductor thin-film transistor route to oxide electronics," *Curr. Opin. Solid State Mater. Sci.*, vol. 18, no. 2, pp. 53–61, 2014
- [3] E. Fortunato, N. Correia, P. Barquinha, L. Pereira, G. Goncalves and R. Martins, "High-Performance Flexible Hybrid Field-Effect Transistors Based on Cellulose Fiber Paper," *IEEE Electron Device Letters*, vol. 29, no. 9, pp. 988-990, 2008
- [4] E. Yarali et al., "Recent Progress in Photonic Processing of Metal-Oxide Transistors," Adv. Funct. Mater., vol. 30, no. 20, p. 1906022, 2020
- [5] J. Shi, J. Zhang, L. Yang, M. Qu, D. Qi, and K. H. L. Zhang, "Wide Bandgap Oxide Semiconductors: from Materials Physics to Optoelectronic Devices," *Adv. Mater.*, vol. 33, no. 50, p. 2006230, 2021
- [6] Y. Jiao, X. Zhang, J. Zhai, X. Yu, L. Ding, and W. Zhang, "Bottom-gate amorphous In2O3 thin film transistors fabricated by magnetron sputtering," *Electron. Mater. Lett.*, vol. 9, no. 3, pp. 279–282, 2013
- [7] F. Gherendi, M. Nistor, S. Antohe, L. Ion, I. Enculescu, and N. B. Mandache, "Self-assembled homojunction In 2 O 3 transparent thin-film transistors," *Semicond. Sci. Technol.*, vol. 28, no. 8, p. 085002, 2013
- [8] S. R. Bhalerao, D. Lupo, and P. R. Berger, "Flexible, solution-processed, indium oxide (In₂O₃) thin film transistors (TFT) and circuits for internet-of-things (IoT)," *Mater. Sci. Semicond. Process*, vol. 139, p. 106354, 2022
- [9] A. Lu, J. Sun, J. Jiang, and Q. Wan, "One-Shadow-Mask Self-Assembled Ultralow-Voltage Coplanar Homojunction Thin-Film Transistors," *IEEE Electron Device Lett.*, vol. 31, no. 10, pp. 1137–1139, 2010
- [10] F. Gherendi, M. Nistor, N.B. Mandache, J. Display Technol., vol. 9, no. 9, pp. 760–763, 2013
- [11] M. Nistor, F. Gherendi, and J. Perrière, "Degenerate and nondegenerate In2O3 thin films by pulsed electron beam deposition," *Mater. Sci. Semicond. Process*, vol. 88, pp. 45–50, 2018
- [12] M. Nistor, N.B. Mandache, J. Perrière, "Pulsed electron beam deposition of oxide films, J. Phys. D-Appl. Phys., vol. 41, pp.165205, 2008
- [13] S. Tricot, M. Nistor, E. Millon, C. Boulmer-Leborgne, N.B. Mandache, J. Perrière, W. Seiler, Epitaxial ZnO thin films grown by pulsed electron beam deposition, *Surf. Sci.* vol. 604, pp.2024-2030, 2010

- [14] M. Nistor, J. Perrière, C. Hebert, W. Seiler, Nanocomposite indium tin oxide thin films: formation induced by a large oxygen deficiency and properties, J. Phys. Cond. Matter. vol. 22, pp.04506, 2010
- [15] W. Seiler, M. Nistor, C. Hebert, J. Perrière, Epitaxial undoped indium oxide thin films: structural and physical properties, Solar En. Mat. Solar Cells vol.116, pp. 34-42, 2013
- [16] M. Nistor, L. Mihut, E. Millon, C. Cachoncinlle, C. Hebert, J. Perrière, Tailored electrical and optical properties of Nd-doped ZnO: from transparent conducting oxide to down-shifting thin films, RSC Advances, vol.6, pp. 41465-41472, 2016
- [17] M. Nistor, F. Gherendi, J. Perrière, Tailorable properties of Nd-doped ZnO epitaxial thin films for optoelectronic and plasmonic devices, Opt. Mater. vol. 126, pp. 112154 (2022)
- [18] M. Nistor, F. Gherendi, D. Dobrin, J. Perrière, From transparent to black amorphous zinc oxide thin films through oxygen deficiency control, J. Appl. Phys. vol. 132, pp. 225705, 2022
- [19] F. Gherendi, The influence of an obstacle placed in the ablation plasma on the properties of oxide thin films, J. Optoel. Adv. Mater., vol. 15 (11-12) pp. 1463-1469 (2013)