

氢气气氛中后续退火处理对 ZnO:Al 薄膜光电性能的影响

甘柳忠, 吴炳俊, 黄 烽, 李 明, 谢 斌

(中国科学技术大学合肥微尺度物质科学国家实验室, 安徽合肥 230026)

摘要: 利用自由基辅助磁控溅射法在载玻片衬底上制备了透明导电 ZnO:Al 薄膜(简称 AZO 薄膜)。研究了氢气气氛中后续退火处理对 Al 掺杂效率以及 AZO 薄膜性能的影响。研究表明, 退火处理提高 Al 的掺杂效率、降低中性杂质浓度, 从而提高了 AZO 薄膜的导电性能。AZO 薄膜 550 °C 下在 H₂ 气氛中退火处理后, 其电阻率为 $6.5 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$, 550 nm 波长的透射率为 85.7%, 载流子浓度为 $3.3 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$, 迁移率为 $29.7 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ 。

关键词: AZO 薄膜; 自由基辅助磁控溅射; 中性杂质散射; 掺杂效率; 后退火处理

中图分类号: O472; O484 **文献标识码:** A doi:10.3969/j.issn.0253-2778.2010.07.007

Effects of post-annealing in hydrogen atmosphere on the properties of Al-doped ZnO films

GAN Liuzhong, WU Bingjun, Huang Feng, LI Ming, XIE Bin

(Hefei National Laboratory for Physical Sciences at Microscale, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

Abstract: Transparent conductive ZnO:Al (AZO) films were deposited on glass substrates by radical assisted magnetron sputtering. The effects of post-annealing in hydrogen atmosphere on the Al doping efficiency and properties of AZO films were investigated. It was found that post-annealing treatment improves the Al doping efficiency and reduces the concentration of neutral impurity scattering centers. These two factors together improve the conductivity of AZO films. The resistivity and the transmittance at 550 nm of the AZO films annealed in H₂ at 550 °C were $6.5 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ and 85.7%, respectively, with carrier concentration being $3.3 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ and mobility of $29.7 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$.

Key words: AZO films; radical assisted magnetron sputtering; neutral impurity scattering; doping efficiency; post-annealing treatment

0 引言

铝掺杂氧化锌(ZnO:Al, 简称 AZO) 透明导电薄膜因其优异的光电性能而在太阳能电池^[1]、平板

显示^[2]及有机发光二极管^[3]等领域有重要应用。当今主流的透明导电材料是锡掺杂氧化铟(简称 ITO), 然而 ITO 中原材料金属铟储量很低^[4]且具有毒性^[5], 相比之下金属锌原材料丰富且无毒

收稿日期:2009-05-26; 修回日期:2009-10-21

基金项目:国家自然科学基金(50772109)资助。

作者简介:甘柳忠,男,1982年生,硕士。研究方向:透明导电 AZO 膜的工艺研究。E-mail: ganlz@mail.ustc.edu.cn

通讯作者:李明,助理工程师。E-mail: seagull@ustc.edu.cn

性^[6-7],因此 AZO 是取代 ITO 成为下一代透明导电材料的最佳候选者^[5,8].

磁控溅射是工业上常用的制备透明导电薄膜的方法.用磁控溅射法制备 AZO 透明导电膜时,使用的靶材有陶瓷靶(包括导电 AZO 陶瓷靶^[6])、金属靶和合金靶.使用陶瓷靶的一个缺点是沉积速率小^[9],因此不利于薄膜的工业化生产;另外,陶瓷靶比较脆,在溅射过程中容易开裂^[10].而使用合金靶、金属靶可以避免上述问题.另外,陶瓷靶制备工艺复杂,而金属靶或合金靶制备简单、成本低.

一般认为制备透明导电 AZO 薄膜时,AZO 薄膜的最佳 Al 含量在 0~3%(质量分数)之间.例如 Lu 等^[7]利用直流反应磁控溅射制备的 AZO 薄膜 Al 含量为原子数分数 4%(约为质量分数 2.56%)时有着最低的电阻率 $8.21 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$; Chen 等^[9]利用直流反应磁控溅射制备的 AZO 薄膜 Al 质量分数为 1.5% 时有着最低的电阻率 $4.23 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$; Kim 等^[11]利用射频磁控溅射制备的 AZO 薄膜 Al 质量分数为 3% 时有着最低的电阻率 $4.7 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$.但是,在 Al 质量分数 0~3% 含量范围内,并不是掺杂的 Al 越多,AZO 薄膜的导电性越好,同时还取决于 Al 掺杂效率的高低.例如, Lu、Chen 和 Kim 制备的 Al 质量分数分别为 2.56%,1.5%,3% 的 AZO 膜,根据 Al 的掺杂效率公式^[15]计算得到的掺杂效率分别为 37%,63% 和 26%.这说明除了 Al 的掺杂量外,Al 的掺杂效率也是影响 AZO 薄膜导电性能的重要因素.另外,一些文献报道了氢气气氛中退火处理可降低 AZO 薄膜的电阻率^[12-14].但目前的文献对 Al 的掺杂效率与 AZO 薄膜中的 Al 含量之间的关系、氢气气氛中退火处理对 Al 的掺杂效率和薄膜迁移率的影响的报道比较少.

本文就是利用金属锌靶、铝靶,通过反应共溅射法制备了不同 Al 含量的 AZO 薄膜样品,讨论了 Al 的掺杂效率与 Al 含量之间的关系,研究了氢气气氛中后续退火处理对 Al 掺杂效率的提高作用及其对载流子迁移率的影响机理.

1 实验方法

本文中的 AZO 薄膜样品全部是利用日本 SHINCRO 公司生产的中频孪生靶自由基辅助磁控溅射镀膜设备 RAS-1100C(简称 RAS)制备.RAS 是一种新型的磁控溅射镀膜机,使用金属 Zn 靶和

Al 靶共溅射可以把不同比例的 Al 含量掺杂到 ZnO 薄膜中,其结构及工作原理可参考本实验室前期发表的文章^[16].溅射靶材是纯度为 99.95% 的 Zn 靶和 Al 靶,靶材表面与衬底的距离为 65 mm,溅射真空室的本底真空为 $2.0 \times 10^{-4} \text{ Pa}$,衬底是尺寸为 $25.4 \times 76.2 \times 1 \text{ mm}^3$ 的普通载玻片.

镀膜过程中,衬底温度保持在 $150 \text{ }^\circ\text{C}$.固定溅射区的氩流速为 175 sccm,Zn 靶的溅射功率和氧化枪(RF)的电源功率都为 2 kW,在 Al 靶溅射功率分别为 0,500,900,1 030 W 的条件下,同时改变氧化区氩流速和氧流速,保持氧化区总气体流速不变(分别为 255,255,500,500 sccm),沉积得到不同 Al 含量的 AZO 薄膜样品.

取 4 个 Al 的质量分数分别为 0,0.50%,1.08%,2.47% 的 AZO 薄膜样品常压下在 H_2 气氛中进行退火处理,氢气流速为 25 sccm.退火程序为:以 $3 \sim 5 \text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ 的速度升温至设定的温度后保温 2 h,之后自然冷却.

薄膜的透射光谱和反射光谱由紫外-可见-近红外分光光度计(U4100,Hitachi Co. Ltd.)测量得到.薄膜厚度由测量的透射和反射光谱通过包络法^[17]计算得出.AZO 薄膜的结构特征采用 18kW X 射线衍射仪(MXPAHF, Mac Science)表征.薄膜的 Zn/Al 成分比例由一台日本岛津公司生产的型号为 XRF-1800 的 X 射线荧光光谱仪(XRF)测量得出.薄膜的电学性能使用范德堡法(Van der Pauw)测量得到.

2 结果与讨论

2.1 不同 Al 含量 AZO 薄膜的电学性能

图 1 给出了 4 个不同 Al 含量的 AZO 薄膜样品

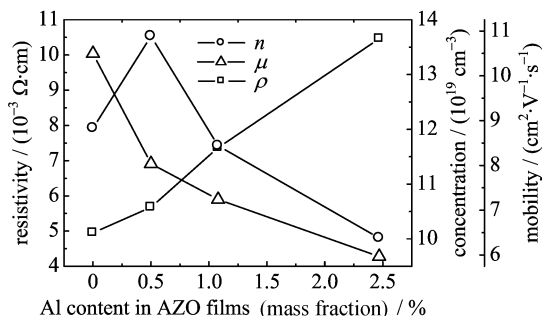


图 1 不同 Al 含量 AZO 薄膜的电阻率、载流子浓度和迁移率

Fig. 1 The resistivity, carrier concentration and mobility of as-deposited AZO films with different Al contents

退火处理前的电阻率(ρ)、载流子浓度(n)和迁移率(μ)。

AZO 薄膜的 Al 质量分数从 0 逐渐增加到 2.47% 时,薄膜电阻率变大,载流子浓度先增加而后减少,迁移率逐渐变小. Al 质量分数为 0.50% 的 AZO 薄膜的电阻率、载流子浓度和迁移率分别为 $5.6 \times 10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}$, $1.4 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$ 和 $8.0 \text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$.

2.2 退火处理后 AZO 膜的电学性能及微结构

将上述 4 个样品在氢气气氛中进行退火处理. 退火处理后薄膜样品的电学性能随着退火温度的变化如图 2 所示.

氢气气氛中退火处理后的薄膜样品,其电阻率均随着退火温度的升高而逐渐降低,迁移率和载流子浓度则逐渐变大,如图 2 所示. 例如,未掺杂 Al 的 ZnO 薄膜,其电阻率降低为 $4.67 \times 10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}$, 而 Al 质量分数为 0.50% 的 AZO 薄膜经 550°C 退火处理后,其方阻、电阻率、载流子浓度和迁移率分别为 $12.1 \Omega/\square$ (膜厚为 532 nm), $6.45 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$,

$3.3 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$ 和 $29.7 \text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$. 这说明了 Al 掺杂起着重要作用.

图 3 给出了未退火及退火处理后的 AZO 薄膜的 X 射线衍射图和根据 Scherrer 公式^[7]计算的晶粒尺寸. RAS 制备的 AZO 膜具有良好的(002)取向性,经退火处理后,薄膜的晶粒变大. 如图 3(b) 所示, 550°C 氢气气氛中退火处理的薄膜,其晶粒大小从未退火处理的 36 nm 增大为 43 nm. 退火处理使薄膜的结晶性能得到了改善.

2.3 载流子散射机制和 Al 的掺杂效率公式

载流子浓度和迁移率是主导薄膜电阻率的两大因素. 对于多晶 AZO 薄膜而言,自由载流子的主要散射机制包括以下四个:离子杂质散射、中性杂质散射、晶粒边界散射和声子散射^[18]. 对于晶粒边界散射,根据高度简并电子气模型来计算自由载流子的平均自由程^[15]:

$$l = (3\pi^2)^{1/2} (he^{-2}) \rho^{-1} n^{-2/3} \quad (1)$$

将图 1 中 Al 质量分数为 0.50% 的 AZO 样品的电

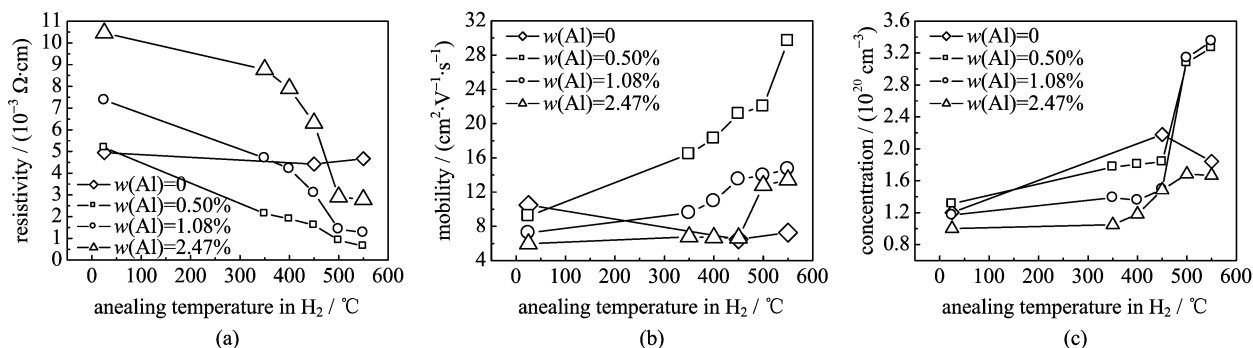


图 2 不同温度下退火处理后 AZO 样品的电阻率(a)、迁移率(b)、载流子浓度(c)

Fig. 2 The resistivity (a), mobility (b), carrier concentration (c) of AZO samples annealed in H_2 at different temperatures

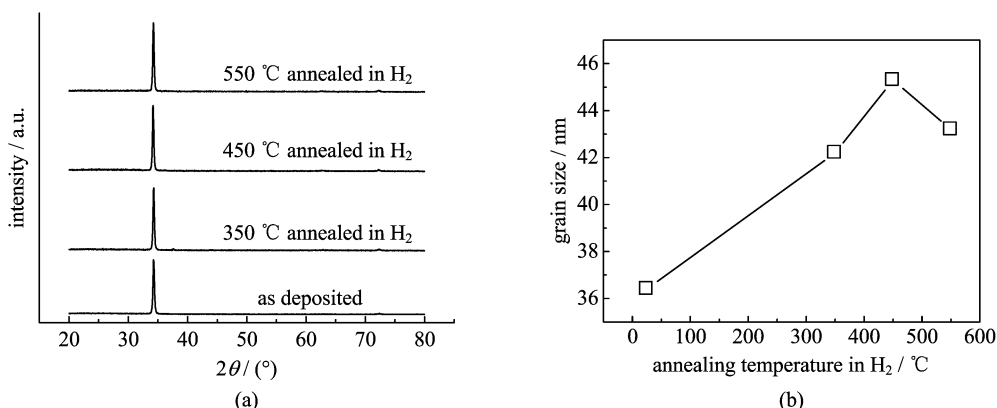


图 3 Al 质量分数为 0.5% 的 AZO 薄膜在氢气中退火后的 XRD 图(a)及其薄膜晶粒大小(b)

Fig. 3 XRD patterns (a) and grain size (b) of AZO films ($w(\text{Al})=0.50\%$) annealed at different temperatures in H_2

阻率 $5.6 \times 10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}$ 和载流子浓度 $1.4 \times 10^{20} \text{cm}^{-3}$ 代入式(1), 计算出 RAS 沉积的 AZO 薄膜的自由载流子平均自由程为 $l=5 \text{ nm}$. 而从图 3(b) 可知薄膜的晶粒尺寸大于 36 nm , 因此对于 RAS 制备的多晶 AZO 薄膜而言, 其晶粒边界散射对迁移率的影响可以忽略^[15].

常温下薄膜的晶格振动对 AZO 薄膜的迁移率影响可以忽略^[18], 故 AZO 薄膜的迁移率公式可以表达为

$$\mu = \left[\frac{1}{\mu_I} + \frac{1}{\mu_N} \right]^{-1} \quad (2)$$

式中, μ_I 和 μ_N 分别代表与离化杂质散射和中性杂质散射相对应的迁移率. 离化杂质散射和中性杂质散射是影响 AZO 薄膜迁移率的两个主要因素.

目前, 关于中性杂质散射的讨论是基于由 Frank 和 Kostlin^[19]、Erginsoy^[20] 等发展的理论之上的. 在简并半导体中, 离化杂质散射和中性杂质散射对应的迁移率公式可如下表示:

$$\mu_I = \frac{24\pi^3 (\epsilon_0 \epsilon_r)^2 \hbar^3 n}{e^3 m^{*2} g(x) Z^2 n_I} \quad (3)$$

$$\mu_N = \frac{m^* e^3}{20\epsilon_0 \epsilon_r \hbar^3 n_N} \quad (4)$$

由式(4)得到

$$n_N = \frac{m^* e^3}{20\epsilon_0 \epsilon_r \hbar^3 \mu_N} \quad (5)$$

其中屏蔽函数(screen function) $g(x)$ 由下式给出:

$$g(x) = \ln(1 + 4/x) - (1 + x/4)^{-1} \quad (6)$$

式中,

$$x = \frac{4e^2 m^*}{4\pi\epsilon_0 \epsilon_r \hbar^2 (3\pi^2)^{1/3} n^{1/3}}$$

这里 n 是载流子浓度, Z 和 n_I 是离化杂质散射中心的电荷和浓度, n_N 是中性杂质散射中心的浓度, ϵ_0 和 ϵ_r 分别是真空介电常数和低频相对介电常数, m^* 是自由电子的有效质量, e 是电子电荷, $\hbar = h/2\pi$, h 是普朗克常数.

对于 ZnO:Al 薄膜而言, m^* 和 ϵ_r 的数值可以分

别取为 $0.28 m_0$ ^[21-22] 和 8.0 ^[22], m_0 是电子质量. 对 Al 掺杂而言, 式(3)中的 $n = n_I$, $Z = 1$, 即 $n/(Z^2 n_I) = 1$ ^[15]. 将 $g(x)$ 代入式(3), 可得到 μ_I . 根据式(3)和式(2), 可以计算得到 μ_N . 将 μ_N 代入式(5), 最后计算得到中性杂质浓度 n_N .

薄膜中载流子浓度的大小可以用 Al 的掺杂效率 η 来表征, 其表达式为^[15]

$$\eta = \frac{n \times 100}{C_{\text{Al}} \times 4.2 \times 10^{20}} \quad (7)$$

C_{Al} 是薄膜中的 Al 含量(原子数分数).

将实验测量的 AZO 薄膜的电阻率、载流子浓度和迁移率代入式(1)~(7), 可以得到 AZO 薄膜样品的各项电学数据, 例如中性杂质浓度和 Al 的掺杂效率等.

2.4 磁控溅射制备的 AZO 膜的掺杂效率和中性杂质浓度

由图 1 可知, AZO 薄膜的 Al 质量分数从 0 逐渐增加到 2.47% 时, 薄膜电阻率变大, 载流子浓度先增大后减小, 迁移率逐渐变小. 引起这种现象的一个重要原因是 Al 的掺杂效率问题. 表 1 列出了未经退火处理的 AZO 薄膜的掺杂效率和中性杂质浓度等数据.

未退火处理 AZO 薄膜电阻率随着 Al 含量增加而逐渐变大, 有两方面的原因. 一方面, Al 的掺杂效率随着 Al 含量的增大而逐渐减小, 分别为 28%、12% 和 4%, 载流子浓度相应地也逐渐减小. 掺杂效率减小的可能原因是: 由于氧化铝的形成焓 ($\Delta G_{298}^0 = -1492 \text{ kJ/mol}$) 比氧化锌的形成焓 ($\Delta G_{298}^0 = -324 \text{ kJ/mol}$) 要小得多, 掺杂到 ZnO 中的部分 Al 形成了 Al_2O_3 ^[23], 而并未形成有效掺杂. 另一方面, 由表 1 可知, 离化杂质散射引起的迁移率 (μ_I) 比中性杂质散射对应的迁移率 (μ_N) 大了一个数量级. 根据式(2)可知, 中性杂质散射对应的迁移率决定了 AZO 膜的迁移率大小. 随着 Al 含量的提高, 中性杂质浓度增大, 中性杂质散射效应增强, 降

表 1 不同 Al 含量的未退火处理 AZO 薄膜的电学性能

Tab. 1 The electrical properties of as-deposited AZO films with different Al content

$w(\text{Al})$ /%	ρ / $(10^{-3} \Omega \cdot \text{cm})$	$n(=n_I)$ / (10^{20}cm^{-3})	μ / $(\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$	μ_I / $(\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$	μ_N / $(\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1})$	n_N / (10^{20}cm^{-3})	η /%
0.50	5.6	1.4	8.0	130	8.6	7.3	28
1.08	7.4	1.2	7.2	134	7.7	8.2	12
2.47	10.5	1.0	6.0	138	6.2	10.0	4

【注】 ρ : 电阻率; n : 载流子浓度; μ : 迁移率; μ_I : 由离化杂质散射引起的迁移率; μ_N : 由中性杂质散射引起的迁移率; n_I : 离化杂质浓度; n_N : 中性杂质浓度; η : 掺杂效率.

表 2 Al 质量分数为 0.50% 的 AZO 薄膜在 H₂ 气氛中退火处理后的电学性能 (T_{Anneal} 是退火温度)

Tab. 2 The electrical properties of AZO films with w(Al)=0.50% annealed in H₂ (T_{Anneal} is the annealing temperature)

T _{Anneal} / °C	ρ / (10 ⁻³ Ω·cm)	n(=n _i) / (10 ²⁰ cm ⁻³)	μ / (cm ² ·V ⁻¹ ·s ⁻¹)	μ^i / (cm ² ·V ⁻¹ ·s ⁻¹)	μ^N / (cm ² ·V ⁻¹ ·s ⁻¹)	n _N / (10 ²⁰ cm ⁻³)	η / %
25	5.6	1.4	8.0	130	8.6	7.3	28
350	2.1	1.8	16.5	123	18.9	3.3	36
400	1.9	1.8	18.3	123	21.5	2.9	36
450	1.6	1.8	21.2	122	25.6	2.5	36
500	0.92	3.1	22.0	111	27.5	2.3	62
550	0.65	3.3	29.7	109	40.7	1.5	65

低了 AZO 膜的迁移率。

2.5 退火处理对掺杂效率和迁移率的影响

对于 RAS 沉积的 AZO 薄膜而言,退火处理提高了 Al 的掺杂效率和降低了薄膜中中性杂质浓度,这是薄膜电阻率减小的原因。

如表 2 所示,氢气气氛中退火处理后,掺杂效率得到了提高,薄膜的载流子浓度变大。例如,未退火时,Al 质量分数为 0.50% 的薄膜样品的掺杂效率为 28%,经 550 °C 退火处理后,其掺杂效率增大为 65%,变为原来的 2 倍多。

另外,氢气气氛中退火处理提高了 AZO 薄膜的迁移率,这是薄膜电阻率降低的另一个重要因素。从前面的讨论可知,薄膜的迁移率主要来源于中性杂质散射对应的迁移率。退火处理后,薄膜中的中性杂质浓度降低,中性杂质散射效应减弱,其对应的迁移率变大,如图 4 所示。

在 H₂ 气氛中退火处理,对 AZO 薄膜导电性能有利的方面还包括:退火处理可增大本征缺陷的浓度^[14,24-25],减少晶粒边界的吸附氧^[14]等。

2.6 退火处理对 AZO 膜光学性能的影响

Al 质量分数为 0.50% 的 AZO 薄膜在氢气气

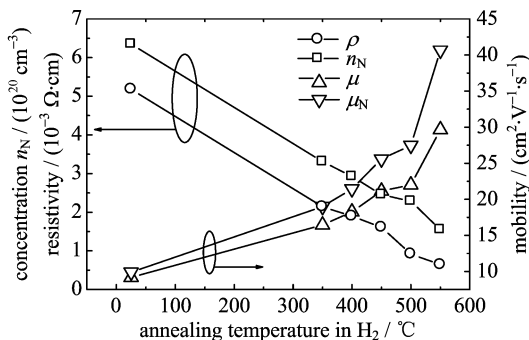


图 4 氢气气氛中退火处理后的 AZO 膜 (Al 质量分数为 0.50%) 的电阻率、中性杂质浓度、中性杂质散射对应的迁移率和薄膜迁移率

Fig. 4 The resistivity, concentration of neutral impurity scattering centers, mobility caused by neutral impurity scattering and total mobility of AZO films with w(Al)=0.50% after annealing in H₂

氛中退火处理前后的透射光谱,如图 5 所示。

H₂ 气氛中退火处理后的薄膜,其透射率变大,薄膜光学性能得到改善,如图 5(a)所示。薄膜样品经退火处理后,其吸收边发生 Burstein-Moss 蓝移^[11,14]。在 H₂ 气氛中退火处理后,Chang 等^[14]也

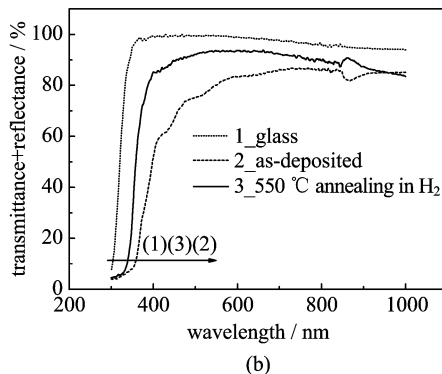
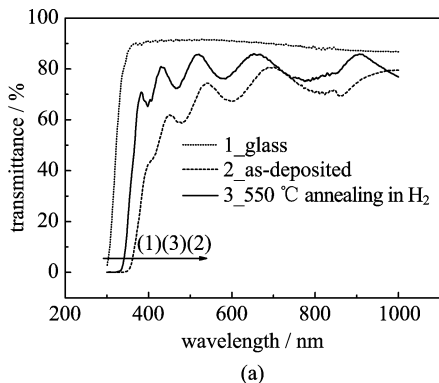


图 5 Al 质量分数为 0.50% 的样品在氢气气氛中退火处理前后的透射光谱 (a) 以及透射加反射光谱 (b)

Fig. 5 The transmittance patterns (a) and transmittance plus reflectance patterns (b) of AZO films(w(Al)=0.50%) before and after 550 °C annealing in H₂

发现了光学性能得到改善的实验结果. 退火处理后薄膜的反射率加上透射率($R+T$)变大,如图 5(b)所示. 薄膜中的中性杂质的减少,使得其对光的吸收减弱,这可能是氢气气氛中退火处理后的 AZO 薄膜可见波段光学透射率变大的原因.

3 结论

本文利用氧自由基辅助反应磁控溅射方法在玻璃衬底上制备了透明导电 AZO 薄膜,研究了不同 Al 含量 AZO 膜的 Al 掺杂效率以及氢气气氛中后续退火处理对 Al 掺杂效率和载流子迁移率的影响. 实验发现,氢气气氛中退火处理提高了 Al 的掺杂效率,降低了 AZO 薄膜的中性杂质浓度,从而改善了 AZO 膜的导电性能. 自由基辅助磁控溅射制备的 AZO 薄膜在氢气气氛中经 550 °C 退火处理后,薄膜方阻为 $12.1 \Omega/\square$ (膜厚 532 nm),电阻率为 $6.5 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$,载流子浓度为 $3.3 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$,迁移率为 $29.7 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$,550 nm 波长的透射率为 85.7%.

致谢 感谢实验室的王海千教授、日本 Shincron 公司的姜友松博士、宋亦周博士对本文的指导和建设性建议.

参考文献(References)

- [1] Gupta A, Compaan A D. All-sputtered 14% CdS/CdTe thin-film solar cell with ZnO:Al transparent conducting oxide[J]. *Applied Physics Letters*,2004,85(4):684-686.
- [2] Oh B Y, Jeong M C, Moon T H, et al. Transparent conductive Al-doped ZnO films for liquid crystal displays[J]. *Journal of Applied Physics*,2006,99(12):124505-1-4; doi: 10.1063/1.2206417.
- [3] Jiang X, Wong F L, Fung M K, et al. Aluminum-doped zinc oxide films as transparent conductive electrode for organic light-emitting devices[J]. *Applied Physics Letters*,2003,83(9):1 875-1 877.
- [4] Ellmer K. Magnetron sputtering of transparent conductive zinc oxide: relation between the sputtering parameters and the electronic properties[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*,2000,33(4):R17-R32.
- [5] Minami T. Substitution of transparent conducting oxide thin films for indium tin oxide transparent electrode applications[J]. *Thin Solid Films*,2008,516(7):1 314-1 321.
- [6] Fang G J, Li D J, Yao B L. Fabrication and characterization of transparent conductive ZnO:Al thin films prepared by direct current magnetron sputtering with highly conductive ZnO(ZnAl_2O_4) ceramic target [J]. *Journal of Crystal Growth*,2003,247:393-400.
- [7] Lu J G, Ye Z Z, Zeng Y J, et al. Structural, optical, and electrical properties of (Zn,Al)O films over a wide range of compositions[J]. *Journal of Applied Physics*,2006,100(7):073714-1-11;doi: 10.1063/1.2357638.
- [8] Chen M, Pei Z L, Sun C, et al. ZAO: an attractive potential substitute for ITO in flat display panels[J]. *Materials Science and Engineering B*,2001,85:212-217.
- [9] Chen M, Pei Z L, Wang X, et al. Structural, electrical, and optical properties of transparent conductive oxide ZnO:Al films prepared by dc magnetron reactive sputtering[J]. *Journal of Vacuum Science and Technology A*,2001,19(3):963-970.
- [10] Ellmer K, Wendt R. Dc and rf (reactive) magnetron sputtering of ZnO:Al films from metallic and ceramic targets: a comparative study [J]. *Surf Coat Tech*,1997,93(1):21-26.
- [11] Kim K H, Park K C, Ma D Y. Structural, electrical and optical properties of aluminum doped zinc oxide films prepared by radio frequency magnetron sputtering [J]. *J Appl Phys*,1997,81(12):7 764-7 772.
- [12] Noh J H, Jung H S, Lee J K, et al. Reversible change in electrical and optical properties in epitaxially grown Al-doped ZnO thin films[J]. *J Appl Phys*,2008,104(7):073706-1-5; doi: 10.1063/1.2987472.
- [13] Oh B Y, Jeong M C, Kim D S, et al. Post-annealing of Al-doped ZnO films in hydrogen atmosphere [J]. *Journal of Crystal Growth*,2005,281:475-480.
- [14] Chang J F, Lin W C, Hon M H. Effects of post-annealing on the structure and properties of Al-doped zinc oxide films[J]. *Applied Surface Science*,2001,183:18-25.
- [15] Tahar R B H, Tahar N B H. Mechanism of carrier transport in aluminum-doped zinc oxide[J]. *J Appl Phys*,2002,92(8):4 498-4 501.
- [16] Song Q M, Wu B J, Xie B, et al. Resputtering of zinc oxide films prepared by radical assisted sputtering[J]. *J Appl Phys*,2009,105(4):044509; doi: 10.1063/1.3082039.
- [17] Swanepoel R. Determination of the Thickness and Optical-Constants of Amorphous-Silicon[J]. *Journal of Physics E: Scientific Instruments*,1983,16(12):1 214-1 222.
- [18] Hong R J, Jiang X, Szyszka B, et al. Comparison of the ZnO:Al films deposited in static and dynamic modes by reactive mid-frequency magnetron sputtering

- [J]. *Journal of Crystal Growth*, 2003, 253: 117-128.
- [19] Frank G, Kostlin H. Electrical properties and defect model of tin-doped indium oxide layers[J]. *Appl Phys A*, 1982, 27: 197-206.
- [20] Erginsoy C. Neutral Impurity Scattering in Semiconductors[J]. *Physical Review*, 1950, 79 (6): 1 013-1 014.
- [21] Taga N, Odaka H, Shigesato Y, et al. Electrical properties of heteroepitaxial grown tin-doped indium oxide films[J]. *J Appl Phys*, 1996, 80(2): 978-984.
- [22] Sernelius B E, Berggren K F, Jin Z C, et al. Band-gap tailoring of ZnO by means of heavy Al doping [J]. *Physical Review B*, 1988, 37: 10 244-10 248.
- [23] Kuo S Y, Chen W C, Lai F I, et al. Effects of doping concentration and annealing temperature on properties of highly-oriented Al-doped ZnO films[J]. *Journal of Crystal Growth*, 2006, 287(1): 78-84.
- [24] Studenikin S A, Golego N, Cocivera M. Carrier mobility and density contributions to photoconductivity transients in polycrystalline ZnO films [J]. *J Appl Phys*, 2000, 87(5): 2 413-2 421.
- [25] Exarhos G J, Rose A, Windisch C F. Spectroscopic characterization of processing-induced property changes in doped ZnO films[J]. *Thin Solid Films*, 1997, 308: 56-62.

(上接第 685 页)

- [15] Kong A, Gudbjartsson D F, Sainz J, et al. A high-resolution recombination map of the human genome [J]. *Nature Genetics*, 2002, 31: 241-247.
- [16] Castresana J. Genes on human chromosome 19 show extreme divergence from the mouse orthologs and a high GC content[J]. *Nucleic Acids Research*, 2002, 30 (8): 1 751-1 756.
- [17] Crombach A, Hogeweg P. Chromosome rearrangements and the evolution of genome structuring and adaptability[J]. *Molecular Biology and Evolution*, 2007, 24(5): 1 130-1 139.
- [18] Chamary J V, Parmley J L, Hurst L D. Hearing silence: non-neutral evolution at synonymous sites in mammals [J]. *Nature Reviews Genetics*, 2006, 7: 98-108.
- [19] Schattner P, Diekhans M. Regions of extreme synonymous codon selection in mammalian genes[J]. *Nucleic Acids Research*, 2006, 34(6): 1 700-1 710.
- [20] Resch A M, Carmel L, Marino-Ramirez L, et al. Widespread positive selection in synonymous sites of mammalian genes [J]. *Molecular Biology and Evolution*, 2007, 24(8): 1 821-1 831.
- [21] Wilson D J, McVean G. Estimating diversifying selection and functional constraint in the presence of recombination[J]. *Genetics*, 2006, 172 (3): 1 411-1 425.
- [22] Schmegner C, Hoegel J, Vogel W, et al. The rate, not the spectrum, of base pair substitutions changes at a GC-content transition in the human NF1 gene region: implications for the evolution of the mammalian genome structure[J]. *Genetics*, 2007, 175: 421-428.
- [23] Gilbert N, Boyle S, Fiegler H, et al. Chromatin architecture of the human genome: Gene-rich domains are enriched in open chromatin fibers[J]. *Cell*, 2004, 118(5): 555-566.
- [24] Zhang L, Li W H. Mammalian housekeeping genes evolve more slowly than tissue-specific genes [J]. *Molecular Biology and Evolution*, 2004, 21 (2): 236-239.
- [25] Payseur B A, Nachman M W. Gene density and human nucleotide polymorphism[J]. *Molecular Biology and Evolution*, 2002, 19: 336-340.
- [26] Prendergast J G, Campbell H, Gilbert N, et al. Chromatin structure and evolution in the human genome[J]. *BMC Evolutionary Biology*, 2007, 7: 72.