

ПОЛЬОВИЙ ТРАНЗИСТОР НА ОСНОВІ ВІДНОВЛЕНОГО ОКСИДУ ГРАФЕНУ

І. Оленич

*Факультет електроніки та комп'ютерних технологій,
Львівський національний університет імені Івана Франка,
вул. Драгоманова, 50, 79005 Львів, Україна
igor.olenych@lnu.edu.ua*

У роботі створено графеновий польовий транзистор шляхом нанесення плівки відновленого оксиду графену (RGO) на поверхню шару SiO₂ на кремнієвій підкладці. Електричні властивості одержаного польового транзистора на основі RGO досліджено в режимах постійного та змінного струму. Виявлено нелінійний характер залежності струму стоку від різниці потенціалів між контактами стік і витік. Досліджено комутаційні характеристики польового транзистора на основі RGO і виявлено лінійні ділянки залежності струму стоку від напруги затвору. На основі аналізу ВАХ і залежності опору RGO від напруги затвору встановлено значний вплив електрично активних дефектів у шарі SiO₂ на процеси перенесення носіїв заряду в плівці RGO.

Ключові слова: графеновий польовий транзистор, відновлений оксид графену, вольт-амперна характеристика, комутаційна характеристика.

1. Вступ

Графен і структури на його основі привертають увагу дослідників завдяки видатним електронним властивостям цього матеріалу. Конусоподібна форма електронного спектру двовимірної гексагональної ґратки sp²-зв'язаних атомів карбону зумовлює унікальні властивості графену як безщілинного напівпровідника [1, 2]. Зокрема, електрони в графені набувають властивостей безмасових частинок Дірака, а їхня рухливість майже на два порядки перевищує рухливість вільних електронів у кремнії [3–5]. Крім того, положенням рівня Фермі й, як наслідок, концентрацією вільних носіїв заряду в графені можна керувати зовнішнім електричним полем [6, 7]. Такий підхід дає змогу інjektувати у графен носії як позитивного, так і негативного заряду та може бути використаний для створення нового типу польових транзисторів, які використовують графен як матеріал провідного каналу [8]. Графенові польові транзистори визнані потенційною альтернативою транзисторам “метал-оксид-напівпровідник” і можуть стати новою елементною базою для електронних пристроїв наступного покоління в “посткремнієву” епоху.

Завдяки високій рухливості носіїв заряду графенові польові транзистори мають вагомий потенціал застосування у радіочастотній електроніці для створення високошвидкісних пристроїв [9]. Іншою потенційною перевагою графену є здатність витримувати значну густину струму, що разом із високою теплопровідністю та омичним контактом з металами робить графенові польові транзистори перспективними для використання у потужних електричних схемах [10–12]. Високий коефіцієнт оптичного

пропускання графену (близько 98 %) ідеально підходить для створення фоточутливих польових транзисторів, а також оптично прозорих електродів у сонячних батареях, гнучких дисплеях та інших оптоелектронних пристроях [13–15].

На основі графенових польових транзисторів розроблено різноманітні сенсорні елементи для фізичних, хімічних та біологічних застосувань [16, 17]. Однак більшість потенційних застосувань графену все ще знаходяться на стадії розробки, перевірки та промислового масштабування. Крім того, далеко не повністю розкритий потенціал практичного використання унікальних властивостей графену. Перш ніж масове виробництво пристроїв на основі графену стане реальністю, необхідно подолати низку перешкод. Зокрема, слабким місцем графенових польових транзисторів є характеристика перемикачності, а саме співвідношення струму у включеному стані до струму у вимкненому стані (I_{on}/I_{off}). Цю недосконалість, зумовлену нульовою шириною забороненої зони моношару графену, можна усунути, якщо використовувати як канал польового транзистора нанострічку графену [18, 19]. Завдяки латеральному квантовому обмеженню такої квазіодновимірної системи в електронній структурі графенової нанострічки утворюється заборонена зона. Крім того, невелика заборонена зона спостерігалася у двошаровому графені [20, 21], що розширює перспективи створення польових транзисторів на основі графену.

З іншого боку, локалізовані стани у діелектричному шарі, на який осаджують плівку графену, та на межі розділу графен/діелектрик мають важливий вплив на рухливість носіїв у графеновому каналі польового транзистора. Зокрема, електрично-активні дефекти в приповерхневому шарі оксиду кремнію можуть заряджатися/розряджатися через плівку графену і бути центрами розсіювання носіїв заряду. Отже, оптимізація інтерфейсу між графеном і діелектричною підкладкою може підвищити ефективність електронних пристроїв [22, 23].

Одним із перспективних методів одержання графену є хімічне відшарування та окиснення графіту для отримання оксиду графену (GO) з подальшим його відновленням. Такий підхід не вимагає складних, тривалих, енерго- та матеріалозатратних технологічних процесів, що забезпечує GO високий потенціал використання як матеріалу-попередника двовимірних нанолістів графену. Відновлений оксид графену (RGO) зазвичай одержують хімічним відновленням наночастинок GO за допомогою гідразину, тетрагідроборату натрію чи інших відновників [24–26]. Тому вивчення особливостей застосування плівки RGO у графенових польових транзисторах може бути перспективним з погляду спрощення технології їх виготовлення.

У роботі створено графеновий польовий транзистор шляхом осадження плівки RGO на поверхню шару оксиду кремнію на кремнієвій підкладці та досліджено його електричні характеристики в режимах постійного та змінного струму.

2. Експеримент

Для одержання графенового польового транзистора як підкладку було використано слабологовану кремнієву пластину товщиною 400 мкм діркового типу провідності з питомим опором 10 Ом·см. Шар діелектрика на поверхні кремнієвої підкладки був одержаний випаровуванням порошку кремнію за допомогою вакуумної системи ВУП-5М із залишковим тиском повітря $\sim 10^{-3}$ мм рт ст та осадженням нестехіометричного SiO_x ($x < 2$), утвореного в результаті реакції пароподібного кремнію із залишковим киснем. Товщина шару SiO_x , виміряна за допомогою мікроінтерферометра МІІ-4, становила

близько 100 нм. Подальша термічна обробка на повітрі при температурі 1050°C упродовж 2 годин забезпечила утворення діелектричного шару діоксиду кремнію.

Для одержання нанолістів RGO використано водну суспензію GO виробництва Sigma-Aldrich (США) з концентрацією 2 мг/мл, яка була відновлена моногідратом гідразину за впливу ультразвуку упродовж 20 хв. Контроль ступеня відновлення GO здійснювався за допомогою спектроскопії оптичного поглинання у діапазоні 220–1000 нм з використанням флуорометра Solar CM2203. Для запобігання агрегації одержаних наночастинок RGO до суспензії був доданий 0,2 М водний розчин додецилбензолсульфонату натрію. Плівкоутворювальна суспензія RGO була нанесена поливом на поверхню оксидного шару. Утворена після висушування на повітрі за кімнатної температури плівка RGO слугувала провідним каналом польового транзистора. Витік і стік польового транзистора були сформовані на поверхні плівки RGO термовакуумним нанесенням срібних контактів на відстані 1 мм один від одного. Затвором польового транзистора слугувала кремнієва підкладка. Схематичне зображення одержаного польового транзистора на основі RGO показано на рис. 1. Лінійні розміри експериментальних зразків становили 3×3 мм.

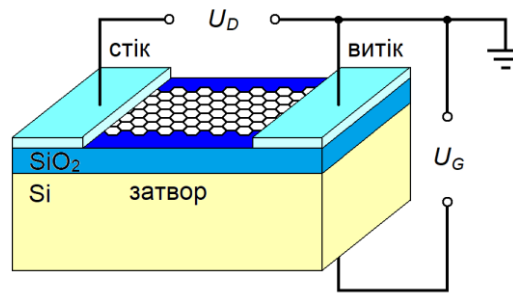


Рис. 1. Схематичне зображення польового транзистора на основі RGO.

Електричні характеристики польового транзистора на основі RGO були досліджені в режимах постійного та змінного струму. Вольт-амперні характеристики (ВАХ) були виміряні у разі проходження струму між контактами витоку і стоку. Залежність опору плівки RGO від напруги між затвором і витоком U_G була досліджена на частоті 1 кГц за допомогою RLC вимірювача E7-20. Усі вимірювання проводились за кімнатної температури.

3. Результати та їх аналіз

Ефективність процесу відновлення GO моногідратом гідразину була досліджена на основі порівняльного аналізу спектрів оптичного поглинання плівок GO та RGO, осаджених на скляній підкладці (рис. 2). Спостережуване зменшення оптичного пропускання плівок GO та RGO порівняно зі скляною підкладкою у всьому дослідженому спектральному діапазоні, ймовірно, зумовлено багаточисловою структурою плівок, яка спричиняє додаткове поглинання і розсіювання світла. Максимум поглинання у діапазоні 240–250 нм може бути пов'язаний із поглинанням УФ світла скляною підкладкою. Тому подальший порівняльний аналіз спектрів поглинання плівок RGO та GO базується тільки на інформації в діапазоні 300–450 нм. У ближній УФ

та синій частині досліджуваного спектрального діапазону виявлено зменшення поглинання світла плівкою RGO порівняно з GO. Оптичне поглинання в цій області зазвичай пов'язують з переходом $n \rightarrow \pi^*$ карбонільних груп GO [27–29]. Це свідчить про високий ступінь відновлення нанолістів GO у плівках RGO, що може забезпечити необхідну для графенових польових транзисторів залежність електропровідності плівки RGO від локального електричного поля.

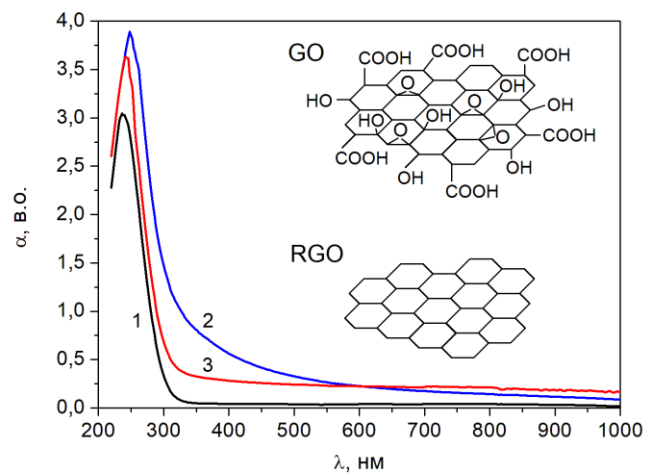


Рис. 2. Спектри оптичного поглинання скляної підкладки (1) і плівок GO (2) та RGO (3) на скляній підкладці.

ВАХ польового транзистора на основі RGO зображені на рис. 3. Виміряні залежності струму стоку I_D від різниці потенціалів між контактами стік і витік U_D є нелінійними, що свідчить про складні процеси перенесення заряду в досліджуваних структурах. Враховуючи, що графен характеризується омичним контактним опором з металами [10], можна припустити, що нелінійні ВАХ польових транзисторів на основі плівки RGO зумовлені як неоднорідністю плівки, так і впливом діелектричного шару.

Зокрема, електричні властивості плівки RGO можуть визначатися не тільки провідністю двовимірних карбонових наноструктур, але й електричними бар'єрами на межах розділу між нанолістами графену. Крім того, структурна недосконалість шару SiO_2 на кремнієвій підкладці, який слугує підзатворним діелектриком у графеновому польовому транзисторі, і пов'язані з нею електрично активні дефекти суттєво впливають на процеси зарядопереносу у плівці RGO. В результаті, спостережуваний характер ВАХ польового транзистора на основі RGO залежить не тільки від інжектованих носіїв з контактів витіку та стоку, але й від електричного поля локалізованих у діелектричному шарі чи на межі SiO_2/RGO зарядів.

Напруга затвору U_G не тільки змінює положення рівня Фермі в конусоподібній енергетичній структурі графену, але також може спричинити перерозподіл носіїв заряду в шарі SiO_2 та кремнієвій підкладці. Зазначені процеси зумовлюють збільшення електропровідності плівки RGO, яка слугує провідним каналом польового транзистора, та зміщення його ВАХ вздовж осі U_D . Причому, більша провідність плівки RGO

спостерігалася у випадку додатної напруги зміщення на контакті стоку незалежно від знаку напруги затвору U_G .

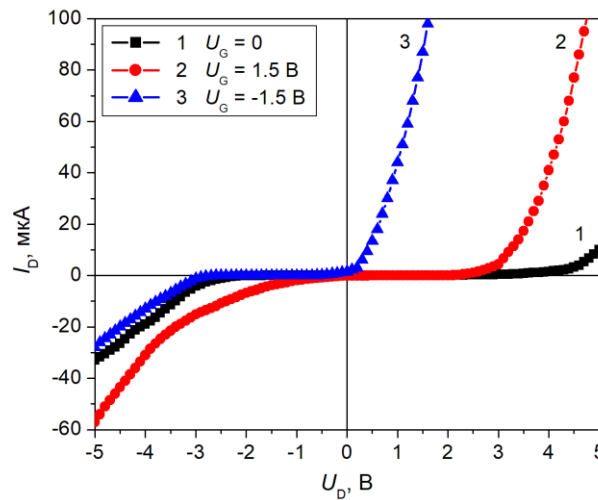


Рис. 3. ВАХ польового транзистора на основі RGO при різних значеннях напруги затвору: 1 – $U_G = 0$, 2 – $U_G = 1,5$ В, 3 – $U_G = -1,5$ В.

Важливою характеристикою графенових польових транзисторів є залежність струму стоку I_D від напруги між затвором і витоком U_G . Подібно до ВАХ польового транзистора на основі RGO, більша залежність I_D від напруги затвору U_G спостерігалася для випадку додатної напруги зміщення U_D (рис. 4).

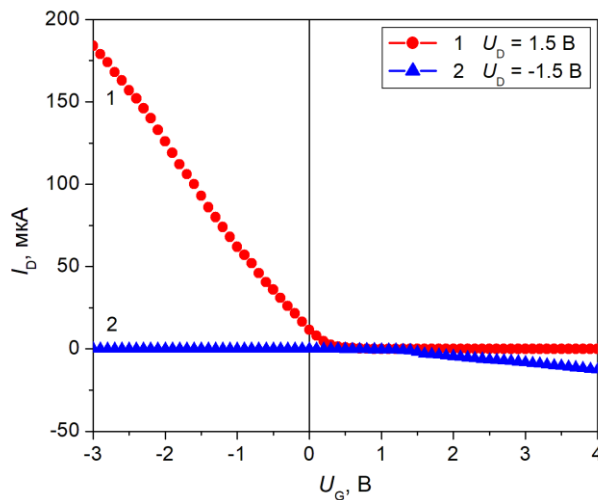


Рис. 4. Залежність струму стоку I_D від напруги затвору U_G польового транзистора на основі RGO при різних значеннях напруги зміщення: 1 – $U_D = 1,5$ В, 2 – $U_D = -1,5$ В.

Виміряні залежності I_D-U_G мають лінійні ділянки, положення яких залежить від знака та величини U_D . Зміною напруги затвору можна змінити провідність каналу польового транзистора на основі RGO більш ніж на два порядки. Можливість керувати провідністю графенового каналу пропорційно напрузі затвору може бути використана в електронних пристроях нового покоління. Варто зазначити, що аналіз одержаних залежностей I_D-U_G не виявив яскраво вираженої точки Дірака, тобто мінімуму провідності плівки RGO у випадку, коли рівень Фермі проходить через точку контакту конусоподібної зони провідності та валентної зони графену. Подібний характер залежності опору R графенового каналу польового транзистора на основі RGO від напруги затвору U_G спостерігався у режимі змінного струму на частоті 1 кГц (рис. 5). Пологий максимум опору плівки RGO, що відповідає точці нейтральності заряду, знаходиться в околі напруги затвору $U_G = 1,2$ В.

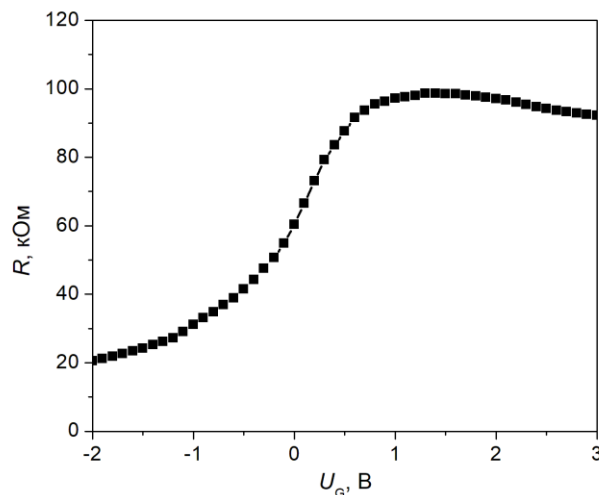


Рис. 5. Залежність опору плівки RGO від напруги затвору U_G в режимі змінного струму на частоті 1 кГц.

Виявлена особливість досліджуваного польового транзистора на основі RGO може бути зумовлена неоднорідністю плівки RGO, сформованої з нанолістів графену, а також електрично активними дефектами в шарі SiO_2 на кремнієвій підкладці, які по різному впливають на перенесення носіїв заряду різного знаку. Нахил лівої (діркової) та правої (електронної) гілок профілю електропровідності (а в цьому випадку – профілю електричного опору) графенового каналу польового транзистора визначається впливом локального електричного поля на мобільність і концентрацію вільних носіїв заряду відповідного знаку[30]. Висока чутливість провідності плівки RGO в околі точки нейтральності заряду до локального електричного поля може бути використана для створення газо- та фоточутливих сенсорних пристроїв на основі графенового польового транзистора.

4. Висновки

У роботі запропоновано нові технічні рішення, пов'язані із розробленням графенових польових транзисторів. Як провідний канал польового транзистора

використано осаджену на поверхню шару SiO₂ на кремнієвій підкладці плівку RGO, одержану висушуванням плівкоутворювальної суспензії хімічно відновлених моногідратом гідразину нанолістів GO. Про високий ступінь відновлення GO свідчить порівняльний аналіз спектрів оптичного поглинання у діапазоні 300–450 нм.

На основі аналізу нелінійних ВАХ одержаного польового транзистора та залежності опору провідного каналу від напруги затвору встановлено значний вплив електрично активних дефектів у шарі SiO₂ на біполярну електропровідність плівки RGO. Аналіз комутаційних характеристик польового транзистора на основі RGO виявив ділянки лінійної залежності струму стоку від напруги затвору з відношенням I_{on}/I_{off} понад два порядки.

Список використаних джерел

- [1] *Chakraborty T.* Graphene: a nanoscale quantum playing field // *Physics in Canada.* – 2006. – Vol. 63. – P. 351–354.
- [2] *Novoselov K.S., Geim A.K., Morozov S.V., Jiang D., Katsnelson M.I., Grigorieva I.V., Dubonos S.V., Firsov A.A.* Two-dimensional gas of massless Dirac fermions in graphene // *Nature.* – 2005 – Vol 438. – P. 197–200.
- [3] *Zhang Y., Tan Y.-W., Stormer H.L., Kim P.* Experimental observation of quantum Hall effect and berry’s phase in graphene // *Nature.* – 2005. – Vol. 438. – P. 201–204.
- [4] *Fratini S., Guinea F.* Substrate-limited electron dynamics in graphene // *Physical Review B.* 2008. – Vol. 77. – P. 195415.
- [5] *Bolotin K.I., Sikes K.J., Jiang Z., Klima M., Fudenberg G., Hone J., Kim P., Stormer H.L.* Ultrahigh electron mobility in suspended graphene // *Solid State Communications.* – 2008. – Vol. 146. – P. 351.
- [6] *Novoselov K.S., Geim A.K., Morozov S.V., Jiang D., Zhang Y., Dubonos S.V., Grigorieva I.V., Firsov A.A.* Electric field effect in atomically thin carbon films // *Science.* – 2004. – Vol. 306. – P. 666–669.
- [7] *Zhu Y., Murali S., Cai W., Li X., Suk J.W., Potts J.R., Ruoff R.S.* Graphene and graphene oxide: synthesis, properties, and applications // *Adv. Mater.* – 2010. – Vol. 22. – P. 3906–3924.
- [8] *Hähnlein B., Händel B., Pezoldt J., Töpfer H., Granzner R., Schwierz F.* Side-gate graphene field-effect transistors with high transconductance // *Appl. Phys. Lett.* – 2012. – Vol. 101. – P. 093504.
- [9] *Moon J.-S.* Graphene Field-effect transistor for radio-frequency applications: review // *Carbon Letters.* – 2012. – Vol. 13. – P. 17–22.
- [10] *Xia F., Perebeinos V., Lin Y.-M., Wu Y., Avouris P.* The origins and limits of metal-graphene junction resistance // *Nature Nanotechnology.* – 2011. – Vol. 6, no. 3. – P. 179–184.
- [11] *Geim A.K.* Graphene: status and prospects // *Science.* – 2009. – Vol. 324. – P. 1530–1534.
- [12] *Shahil K.M.F., Balandin A.A.* Thermal properties of graphene and multilayer graphene: Applications in thermal interface materials // *Solid State Commun.* – 2012. – Vol. 152. – P. 1331–1340.

- [13] Xia F., Mueller T., Lin Y.-M., Valdes-Garcia A., Avouris P. Ultrafast graphene photodetector // *Nature nanotechnology*. – 2009. – Vol. 4. – P. 839–843.
- [14] Kim K.S., Zhao Y., Jang H., Lee S.Y., Kim J.M., Kim K.S., Ahn J.-H., Kim P., Choi J.-Y., Hong B.H. Large-scale pattern growth of graphene films for stretchable transparent electrodes // *Nature*. – 2009. – Vol. 457. – P. 706–710.
- [15] Avouris P. Graphene: Electronic and Photonic Properties and Devices // *Nano Letters*. – 2010. – Vol. 10. – P. 4285–4294.
- [16] Zhan B., Li C., Yang J., Jenkins G., Huang W., Dong X. Graphene field-effect transistor and its application for electronic sensing // *Small*. – 2014. – Vol. 10. – P. 4042–4065.
- [17] Wu S., He Q., Tan C., Wang Y., Zhang H. Graphene-based electrochemical sensors // *Small*. – 2013. – Vol. 9. – P. 1160–1172.
- [18] Lone S., Bhardwaj A., Pandit A.K., Gupta S., Mahajan S. A Review of Graphene Nanoribbon Field-Effect Transistor Structures // *J. Electron. Mater.* – 2021. – Vol. 50. – P. 3169–3186.
- [19] Han M.Y., Ozyilmaz B., Zhang Y., Kim P. Energy band-gap engineering of graphene nanoribbons // *Phys. Rev. Lett.* – 2007. – Vol. 98. – P. 206805.
- [20] Ohta T., Bostwick A., Seyller T., Horn K., Rotenberg E. Controlling the Electronic Structure of Bilayer Graphene // *Science*. – 2006. – Vol. 313. – P. 951–954.
- [21] McCann E., Abergel D.S.L., Fal'ko V.I. The low-energy electronic band structure of bilayer graphene // *Eur. Phys. J. Spec. Top.* – 2007. – Vol. 148. – P. 91–103.
- [22] Nagashio K., Yamashita T., Nishimura T., Kita K., Toriumi A. Electrical transport properties of graphene on SiO₂ with specific surface structures // *J. Appl. Phys.* – 2011. – Vol. 110. – P. 024513.
- [23] Imamura G., Saiki K. Modification of graphene/SiO₂ interface by UV-irradiation: effect on electrical characteristics // *ACS Appl. Mater. Interfaces*. – 2015. – Vol. 7. – P. 2439–2443.
- [24] Li D., Müller M.B., Gilje S., Kaner R.B., Wallace G.G. Processable aqueous dispersions of graphene nanosheets // *Nat. Nanotechnol.* – 2008. – Vol. 3. – P. 101–105.
- [25] Stankovich S., Dikin D.A., Piner R.D., Kohlhaas K.A., Kleinhammes A., Jia Y., Wu Y., Nguyen S.T., Ruoff R.S. Synthesis of graphene-based nanosheets via chemical reduction of exfoliated graphite oxide // *Carbon*. – 2007. – Vol. 45. – P. 1558–1565.
- [26] Chua C.K., Pumera M. The reduction of graphene oxide with hydrazine: elucidating its reductive capability based on a reaction-model approach // *Chem. Commun.* – 2016. – Vol. 52. – P. 72–75.
- [27] Olenych I.B., Aksimentyeva O.I., Monastyrskii L.S., Horbenko Yu.Yu., Partyka M.V. Electrical and photoelectrical properties of reduced graphene oxide – porous silicon nanostructures // *Nanoscale Res. Lett.* – 2017. – Vol. 12. – P. 272.
- [28] Dovbeshko G.I., Romanyuk V.R., Pidgirnyi D.V., Cherepanov V.V., Andreev E.O., Levin V.M., Kuzhir P.P., Kaplas T., Svirko Y.P. Optical properties of pyrolytic carbon films versus graphite and graphene // *Nanoscale Res Lett.* – 2015. – Vol. 10. – P. 234.
- [29] Kazi S.N., Badarudin A., Zubir M.N.M., Ming H.N., Misran M., Sadeghinezhad E., Mehrali M., Syuhada N.I. Investigation on the use of graphene oxide as novel surfactant

- to stabilize weakly charged graphene nanoplatelets // *Nanoscale Res Lett.* – 2015. – Vol. 10. – P. 212.
- [30] *Hayasaka T., Lin A., Copa V.C., Lopez Jr.L.P., Loberternos R.A., Ballesteros L.I.M., Kubota Y., Liu Y., Salvador A.A., Lin L.* An electronic nose using a single graphene FET and machine learning for water, methanol, and ethanol // *Microsystems & Nanoengineering.* – 2020. – Vol. 6. – P. 50.

FIELD-EFFECT TRANSISTOR BASED ON REDUCED GRAPHENE OXIDE

I. Olenych

*Ivan Franko National University of Lviv,
50 Drahomanov St., UA–79005 Lviv, Ukraine
igor.olenych@lnu.edu.ua*

Graphene field-effect transistors are recognized as a potential alternative to metal-oxide-semiconductor transistors and can become a new element base in the post-silicon epoch. Increasing the efficiency of graphene electronic devices and simplifying their manufacturing technology are important R&D areas. New technical solutions related to the development of graphene field-effect transistors are proposed in the paper. A reduced graphene oxide (RGO) film was used as the conducting channel of the field-effect transistor. A film-forming suspension of RGO obtained by the chemical reduction of graphene oxide with hydrazine monohydrate was deposited on the silicon substrate with a SiO₂ layer and air-dried at room temperature. A comparative analysis of ultraviolet and visible absorbance spectra of the graphene oxide and RGO films on a glass substrate indicates the high degree of graphene nanosheet reduction.

The electrical properties of the field-effect transistor based on RGO were studied in DC and AC modes. The nonlinear character of the I_D - V_D curves of the obtained field-effect transistor was revealed. A significant influence of electrically active defects in the SiO₂ layer on the bipolar electrical conductivity of the RGO film was established based on the analysis of current-voltage characteristics and the dependence of the resistance of the field-effect transistor conductive channel on the gate voltage. An analysis of the switching characteristics revealed sections of linear dependence of the drain current I_D on the gate voltage V_G with an I_{on}/I_{off} ratio of more than two orders of magnitude. The high sensitivity of the RGO film conductivity near the point of charge neutrality to the local electric field can be used to create photo- and gas-sensitive sensor devices based on the RGO field-effect transistor.

Key words: graphene field-effect transistor, reduced graphene oxide, current-voltage characteristic, switching characteristic.

Стаття надійшла до редакції 8.02.2023

Прийнята до друку 15.02.2023