

University of Groningen

Charge transport and trap states in lead sulfide quantum dot field-effect transistors

Nugraha, Mohamad Insan

IMPORTANT NOTE: You are advised to consult the publisher's version (publisher's PDF) if you wish to cite from it. Please check the document version below.

Document Version

Publisher's PDF, also known as Version of record

Publication date:
2017

[Link to publication in University of Groningen/UMCG research database](#)

Citation for published version (APA):

Nugraha, M. I. (2017). *Charge transport and trap states in lead sulfide quantum dot field-effect transistors*. [Thesis fully internal (DIV), University of Groningen]. University of Groningen.

Copyright

Other than for strictly personal use, it is not permitted to download or to forward/distribute the text or part of it without the consent of the author(s) and/or copyright holder(s), unless the work is under an open content license (like Creative Commons).

The publication may also be distributed here under the terms of Article 25fa of the Dutch Copyright Act, indicated by the "Taverne" license. More information can be found on the University of Groningen website: <https://www.rug.nl/library/open-access/self-archiving-pure/taverne-amendment>.

Take-down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

Downloaded from the University of Groningen/UMCG research database (Pure): <http://www.rug.nl/research/portal>. For technical reasons the number of authors shown on this cover page is limited to 10 maximum.

Samenvatting

Elektronica is niet meer weg te denken uit ons dagelijks leven. Grote technologische vooruitgangen hebben een opmerkelijke invloed gehad op veel gebieden, zoals energie, gezondheidszorg, sensor- en verlichtingsindustrie, etc. Tot op heden zijn de meeste elektronische apparaten op de markt gemaakt van silicium en andere hoogkristallijne halfgeleiders. Deze materialen zijn hoofdzakelijk gefabriceerd met behulp van epitaxiale groei, wat een ultrahoog vacuüm, hoge temperatuur en veel energie vereist. Dit resulteert weer in hoge productiekosten.

In de afgelopen jaren zijn colloïdale Quantum Dots (QDs) ontsproten tot veelbelovende toekomstige halfgeleidende elementen voor elektronische apparatuur. Deze materialen hebben het potentieel om te kunnen concurreren met epitaxiaal-gebaseerde halfgeleiders, omdat ze vanuit oplossing als vloeistof verwerkt kunnen worden. Dit is verenigbaar met een lage verwerkingstemperatuur en met verwerking op plastic substraten. Dankzij kwantumopsluiting is hun bandkloof in grootte te variëren, met een bereik van ultraviolet tot nabij-infrarood waardoor ze potentiële kandidaten zijn voor goed afgestemde elektronica en hoog-efficiënte opto-elektronische apparaten. Onder de verschillende types QDs, is loodsulfide (PbS) een van de meest veelbelovende omdat het een sterke kwantumopsluiting vertoont in een relatief groot deeltje (<20 nm). Het onderzoek naar PbS QD synthese is goed ontwikkeld; het bereik in deeltjesgrootte kan geregeld worden alsmede precieze controle over vorm, chemische samenstelling en oppervlakte-eigenschappen.

QDs hebben een groot oppervlak-tot-volume ratio, een typisch kenmerk van nano-objecten. Daarom hebben QDs defecttoestanden op hun oppervlak, die verantwoordelijk zijn voor gevangen ladingsdragers in deze materialen. Deze ladingsvallen zijn één van de voornaamste hindernissen voor verder gebruik van deze materialen voor brede elektronische en opto-elektronische toepassingen. Bijvoorbeeld bij gebruik van velleffecttransistoren (FETs) gebaseerd op QDs is het ladingstransport nog begrensd. Een ander probleem doet zich voor als enkele additionele defecten op het oppervlak van *gate*-isolatoren verschijnen, een van de hoofdcomponenten in FET apparaten, waardoor de mobiliteit van de ladingsdragers in de gefabriceerde apparaten afneemt. Er zijn verschillende methodes gepubliceerd om de oppervlakte-eigenschappen van isolatoren en de eigenschappen van halfgeleidende laagjes te verbeteren. Dit zijn belangrijke strategieën om ladingstransport in FETs gebaseerd op PbS QDs te begrijpen en verder te verbeteren. De studie van deze strategieën is de focus van dit proefschrift.

De oppervlakte-eigenschappen van *gate*-isolatoren zijn doorslaggevend voor de elektrische eigenschappen en prestaties van de FETs. In **hoofdstuk twee** introduceren we moleculaire dipolen op het oppervlak van SiO₂ *gate*-diëlektrica met behulp van zelf-geassembleerde monolagen (SAMs). Met behulp van SAMs worden de drempelspanningen van de apparaten verschoven en wordt een lineaire relatie vertoond met de SAM doteringsconcentratie, hetgeen een mogelijkheid geeft om de eigenschappen van de FET richting n-type of p-type te modificeren afhankelijk van de gebruikte SAM. De SAMs blijken ook de ladingsval-dichtheid te verminderen, wat weer leidt tot een elektron mobiliteit die tot wel drie keer zo hoog is.

Het gebruik van *gate*-diëlektrica met betere oppervlakte-eigenschappen samen met een uitgebreide kennis over de aard van ladingsvallen in de FETs is een noodzakelijke stap om het ladingstransport in PbS QD-FETs te verbeteren. In **hoofdstuk drie** neutraliseren we het SiO₂ oppervlak door middel van hexamethyldisilazaan (HMDS) en gebruik te maken van het hydroxyl-vrije Cytop diëlektricum. De HMDS behandeling blijkt de QD-assemblageorganisatie te verbeteren en neutraliseert inderdaad de bungelende bindingen op het SiO₂ oppervlak, wat leidt tot een verbetering van elektronmobiliteit met een factor van drie. Het gebruik van Cytop-*gate*-diëlektricum verbetert de mobiliteit verder met een ordegrrootte. Met behulp van een simulatie hebben we laten zien dat een significante vermindering van de toestandsdichtheid van ladingsvallen (trap DOS), met bijna twee orders van grootte, verantwoordelijk is voor de verbetering van de mobiliteit in de apparaten.

In **hoofdstuk vier** presenteren we een analyse van de toestandsdichtheid van ladingsvallen in PbS QD-FETs gebruikmakend van verscheidene polymeer *gate*-diëlektrica met een breed scala aan permittiviteiten (2-41). We merken op dat het aantal ladingsvallen in het sub-drempelregime afneemt bij vergroting van de permittiviteit van de *gate*-isolatoren. Een consistent resultaat is verkregen door analyse met een computersimulatie, waar het vermeerderen en verbreden van de ladingsvaltoestandsdichtheid in de apparaten is opgemerkt bij vergroting van de permittiviteit van de isolatoren. Deze resultaten suggereren aanwezigheid van verhoogde wanorde door polaronische interactie op de halfgeleider/isolator interface in PbS QD-FETs met verhoogde diëlektrische polarisatiesterkte.

Dotering is een effectief middel om de mobiliteit van ladingsdragers in halfgeleiders te verbeteren. In **hoofdstuk vijf** beschrijven we een strategie om PbS QDs zwaar te doteren, door gecombineerd gebruik van benzyl-viologen (BV) doteermiddel en de aanpassing van QD energieniveaus door verscheidene afdekkende liganden. Met deze dotering is de elektron mobiliteit verbeterd met een ordegrrootte. Uit geleidbaarheidsmetingen, in een vier-terminal transistorconfiguratie, is gebleken dat de BV dotering van de PbS QD films

resulteert in een elektronmobiliteit zo groot als $0.64 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ in apparaten gebruikmakend van SiO_2 *gate*-diëlektricum.

De modulatie van inter-QD afstanden met behulp van mechanische belasting zal naar verwachting het transport van ladingsdragers in PbS QD-FETs bepalen. In **hoofdstuk zes** demonstreren we het effect van mechanische belasting op de elektrische eigenschappen van flexibele ion-gel *gate* PbS QD-FETs. Gebruikmakend van ion gel *gates* is een elektronmobiliteit van $2.1 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ in de apparaten verkregen. De toepassing van drukspanning leidt tot het buigen van de afdekkende liganden en reduceert inter-QD afstanden, wat leidt tot een verbetering van de mobiliteit tot 45% ($3 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$) bij 2% rek. Ondertussen leidt de tegengesteld aangebrachte spanning tot een verhoging van inter-QD afstanden, wat resulteert in een verlaging van elektronmobiliteit in de apparaten. Daarnaast merken we op dat de drukspanning de drempelspanning van de apparaten vermindert, wat een efficiënte vulling van ladingsvallen verklaard. In plaats daarvan wordt een verhoging van drempelspanning geobserveerd met de aanbrenging van trekbelasting, hetgeen het aantal ladingsvallen in de apparaten vergroot. Verder hebben we gevonden dat de trekbelasting ook resulteert in de activatie van ligandketens, hetgeen het tunnelbarrièrepotentiaal tussen QD vaste stoffen verhoogd.

Ter samenvatting: we hebben ladingstransport in PbS QD-FETs onderzocht en verbeterd door het modifieren van oppervlakte-eigenschappen van *gate*-isolatoren, dotering van PbS QDs door gebruik van organische moleculen en aanbrenging van mechanische belasting op de apparaten. We hebben FETs gebaseerd op PbS QDs met hoge mobiliteit gedemonstreerd, die het belang van deze materialen demonstreren als colloïdale inkten voor toekomstige elektronica met lage kosten en hoge prestaties.

