

引用格式: HE Lihua, LI Enlong, YU Rengjian, et al. Multistage Photosynaptic Transistor Based on the Regulation of Ferroelectric P(VDF-TrFE)[J]. Acta Photonica Sinica, 2021, 50(9):0904002

何立铎,李恩龙,俞初坚,等.基于铁电材料P(VDF-TrFE)调控的多级光突触晶体管[J].光子学报,2021,50(9):0904002

基于铁电材料 P(VDF-TrFE) 调控的多级光突触晶体管

何立铎¹,李恩龙¹,俞初坚¹,陈惠鹏¹,张国成^{1,2}

(1 福州大学 平板显示技术国家地方联合工程实验室,福州 350102)

(2 福建工程学院 微电子技术研究中心,福州 350108)

摘要:利用有机材料 PDVT-10 中固有的持续光电导效应,结合铁电材料 P(VDF-TrFE)提供的极化电场,通过调整铁电材料的极化强度来实现对光突触器件弛豫特性的调控。模拟了突触的短期可塑性、双脉冲易化性等基本功能,并进一步实现了多级、可调光突触。此外,持续光电导效应的弛豫现象与生物突触中 Ca^{2+} 的流动特性相类似,可以更好地模拟生物突触行为。研究结果为开发可调光突触提供了一个新的思路。

关键词:有机薄膜晶体管;多级突触;溶液法;光输入;P(VDF-TrFE)

中图分类号:TN321+.5

文献标识码:A

doi:10.3788/gzxb20215009.0904002

Multistage Photosynaptic Transistor Based on the Regulation of Ferroelectric P(VDF-TrFE)

HE Lihua¹, LI Enlong¹, YU Rengjian¹, CHEN Huipeng¹, ZHANG Guocheng^{1,2}

(1 National & Local United Engineering Lab of Flat Panel Display Technology, Fuzhou University, Fuzhou 350102, China)

(2 Research Center for Microelectronics Technology, Fujian University of Technology, Fuzhou 350108, China)

Abstract: The persistent photoconductivity of organic material PDVT-10 combined with the polarization field provided by ferroelectric material P(VDF-TrFE), was used to control the relaxation characteristics of the photosynaptic device by adjusting the polarization intensity of ferroelectric material. The basic functions such as short-term plasticity and paired pulse facilitation of synapses are simulated, and the multilevel dimmable optical synapses are further realized. Moreover, the relaxation phenomenon of continuous photoconductance effect is similar to the flow characteristics of Ca^{2+} in biological synapses, which can better simulate the synaptic behavior of biological synapses. This study provides a new idea for the development of adjustable photosynapses.

Key words: Organic thin film transistor; Multistage synapses; Solution method; Optical input; P(VDF-TrFE)

OCIS Codes: 040.5160; 040.5150; 040.1880; 040.5250; 250.5230

基金项目:福建省自然科学基金(Nos.2017J05097, 2018J01535),科研启动基金(No.GY-Z20041)

第一作者:何立铎(1996—),男,硕士研究生,主要研究方向为薄膜晶体管。Email:604885825@qq.com

通讯作者:陈惠鹏(1981—),男,研究员,博士,主要研究方向为薄膜晶体管。Email:hpchen@fzu.edu.cn

张国成(1981—),男,副教授,博士,主要研究方向为薄膜晶体管。Email:zgc@fjut.edu.cn

收稿日期:2021-02-05;录用日期:2021-03-25

<http://www.photon.ac.cn>

0 引言

在过去的几十年里,基于冯·诺依曼架构的计算机得到了巨大的发展,在促进人类进入信息社会方面提供了显著的帮助。但是随着科技发展以及现代社会信息复杂性的增加,冯·诺依曼计算机在中央处理器和内存之间的信息传输大大增加,这会导致大量额外的功耗,而且随着器件体积的不断减小,其制备成本和制备难度将大大提高,所以冯·诺依曼理论已经逐步趋于极限^[1-4]。与传统冯·诺依曼架构下的存算分离不同,大脑中突触所具备的突触可塑性使大脑能够高效地处理信息,并进行并行操作,所以人脑中处理信息的方式是存算一体的,这种并行式信息处理方式赋予了人脑惊人的计算速度、超高的效率以及超低功耗。受到人脑计算的启发,模拟人脑神经系统的神经形态计算受到了大量关注,神经形态计算在信息处理方面具备高效性和数据并行处理的高复杂性。而对于以数据为中心的应用,如实时图像识别、数据分类和自然语言处理等,神经形态计算将更具备优势。

近年来,人们提出了许多类似神经形态计算的装置来模拟人脑计算^[5-12],其中有两端的忆阻器^[13]、电阻随机存储器^[14]、相变存储器^[15]、三端的突触晶体管等。其中两端器件虽然可以有效模拟突触行为,但其在传输信号与处理信号上存在时间差,所以不能同时实现信息传递和学习。而三端突触晶体管器件可以通过调节栅极电压对信号进行调控,使其表现更接近生物突触,同时突触晶体管器件由于与COMS类似,可以更好地匹配现有的集成电路技术。

相对于电突触而言光突触具有宽宽带、低串扰、低功耗等优点。所以,很多研究人员试图利用光刺激来模拟突触行为,并利用碳纳米管^[16-17]、氧化物半导体^[18-19]、钙钛矿量子点^[20]、2D材料^[21-22]和杂化钙钛矿^[23]等多种材料实现了光突触装置。这些器件表现出突触功能,如短期可塑性(Short-term Plasticity, STP)、双脉冲易化性(Paired Pulse Facilitation, PPF)、长期可塑性(Long-term Plasticity, LTP)、STP到LTP的过渡以及通过光刺激产生的依赖于尖峰时间的可塑性。然而目前的光突触大多只有单个状态的单级突触,而人脑大约有 10^{11} 个神经元连接着约 10^{15} 个神经突触^[24],即平均每个神经元需要连接 10^4 个神经突触,这样对于单级器件来说集成难度较大。对于多级器件,如一个具备三级的光突触,则一个器件可以取代三个,大大提高集成度。

本文制备了以P型有机半导体材料PDVT-10为有源层的突触晶体管,利用PDVT-10本身所具备的持续光电导效应(Persistent Photoconductivity, PPC)来产生光生载流子,通过铁电层P(VDF-TrFE)所产生的极化电场来促进PPC效应中被陷阱态捕获电子的释放,成功在此晶体管上实现了兴奋性突触后电流(Excitatory Post Synaptic Current, EPSC),双脉冲异化等突触性能。同时,通过进一步调控铁电层P(VDF-TrFE)的极化程度来调节晶体管的光突触可塑性,可实现多级稳定可区分的光突触性能。

1 实验

1.1 材料与测试

有机铁电材料P(VDF-TrFE)购买自武汉甲基科技有限公司;有机半导体聚合物材料PDVT-10:poly[2, 5-bis(alkyl) pyrrolo-[3, 4-c]pyrrole-1, 4(2H, 5H)-dione-alt-5, 50-di(thiophen-2-yl)-2, 20-(E)-2-(2-(thiophen-2-yl)vinyl) thiophene]购买自加拿大1-Materials公司,其结构式如图1所示。在旋涂前, P(VDF-TrFE)以60 mg/mL的浓度溶解于溶剂二甲基甲酰胺(DMF)中,然后利用磁子搅拌12 h使其充分溶解。PDVT-10以5 mg/mL的浓度溶解于氯苯溶液中,并静置于60°C的恒温加热台上12 h,以使其充分溶

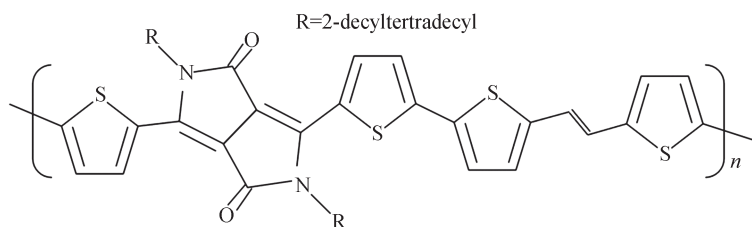


图1 PDVT-10结构式

Fig.1 Schematic illustration of chemical materials PDVT-10

解。硅片购买自苏州晶矽电子科技有限公司。

器件转移特性曲线等晶体管性能和光存储性能的测试均在半导体参数分析仪(Keysight B2912A)完成。光源系统包含一个氙灯(Solar-500)、一个单色仪(Omno501)和一个光快门,均购买自北京纽比特科技有限公司(NBeT Group Corp.)。材料的UV-VIS吸收谱图采用UV3600测试获取。

1.2 有机薄膜晶体管的制备

制备的有机薄膜晶体管采用底栅顶接触结构。基底为重掺杂硅片,硅片上带有一层100 nm厚的二氧化硅。硅基底和二氧化硅层分别作为有机薄膜晶体管的底部栅电极和栅极绝缘层使用。硅片依次在丙酮、异丙醇中进行清洗,然后使用去离子水多次冲洗去除杂质,最后使用高纯度(纯度为99.999%)氮气吹干。在氮气环境的手套箱中,在洗好的硅片上采用旋涂的方式沉积铁电材料P(VDF-TrFE),旋涂参数为2 000 r/min,60 s。随后,在手套箱中进行80°、12 h,130°、2 h的退火。之后通过原子层沉积(Atomic Layer Deposition, ALD)的方法在P(VDF-TrFE)上沉积10 nm的氧化铝。在ALD完的硅片上采用旋涂的方式沉积PDVT-10薄膜,旋涂转速和旋涂时间分别为1 000 r/min和60 s。旋涂完成后,将硅片放置于130°C的恒温加热台10 min完成退火操作。退火后采用专用掩膜版($L=30\ \mu\text{m}$, $W=1\ 000\ \mu\text{m}$)以热蒸发的方式在器件上蒸镀50 nm厚的源漏电极。

2 结果与讨论

2.1 有机薄膜晶体管光响应特性的表征

实验采用的底栅顶接触的结构如图2(a)所示,图2(b)为器件实物图。由于采用的有机半导体材料PDVT-10为P型有机半导体材料,所以其多数载流子为空穴。采用PDVT-10是因为其本身具备PPC效应,因此不需要添加额外的吸光层,可以减小器件结构复杂性。而采用有机铁电材料P(VDF-TrFE)的原因

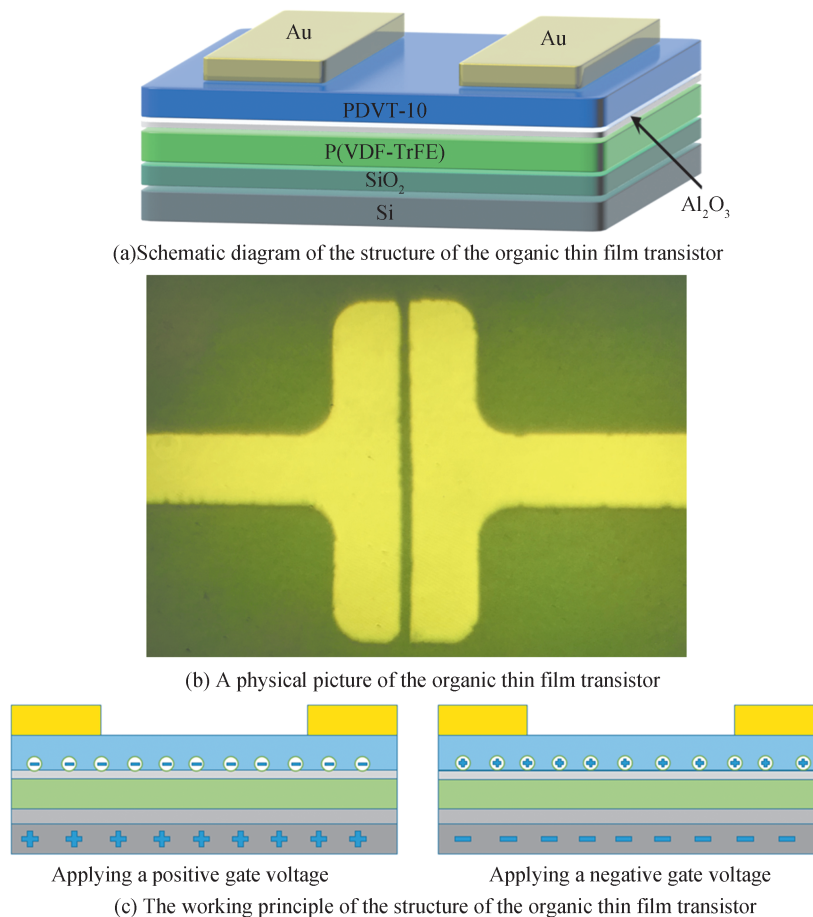


图2 突触晶体管器件结构以及工作原理
Fig.2 The structure and working principle of synaptic transistor device

是,相比于无机铁电材料,有机铁电聚合物具有优异的柔韧性、质轻可溶液加工、成本低、剩余极化高、制备温度低、稳定性高等优点。随着铁电薄膜制备工艺的发展,聚合物铁电薄膜已经成为最有前途的铁电材料之一,其中P(VDF-TrFE)是目前应用最广泛的有机聚合物铁电材料^[25-26]。其具体的工作机理如图2(c)所示,当在栅极施加正栅压时电子被吸引到沟道处,使晶体管处于关断状态;当在栅极施加负栅压时空穴被吸引到沟道处,使晶体管开启。由于沟道的形成是在半导体层与绝缘层的界面,所以半导体材料的成膜质量会影响载流子的传输,成膜质量越好载流子传输越好,晶体管的开关比、迁移率、阈值电压等性能也就越好。此外由于P(VDF-TrFE)成膜结晶较大,表面比较粗糙,因此通过在其上方ALD沉积了一层10 nm的氧化铝来改善界面质量,从而提高晶体管性能。如图3所示,为了进一步探究氧化铝对界面的影响,测试了ALD氧化铝前后P(VDF-TrFE)的表面粗糙度(AFM图),从两者对比可以看出ALD氧化铝之后,P(VDF-TrFE)薄膜上的结晶整体变大,减少了晶界,提高了界面质量。通过软件分析计算结果得出,ALD氧化铝之后P(VDF-TrFE)的表面粗糙度由2.8 nm降低到了1.9 nm。因此,ALD氧化铝能改善P(VDF-TrFE)和PDVT-10界面。

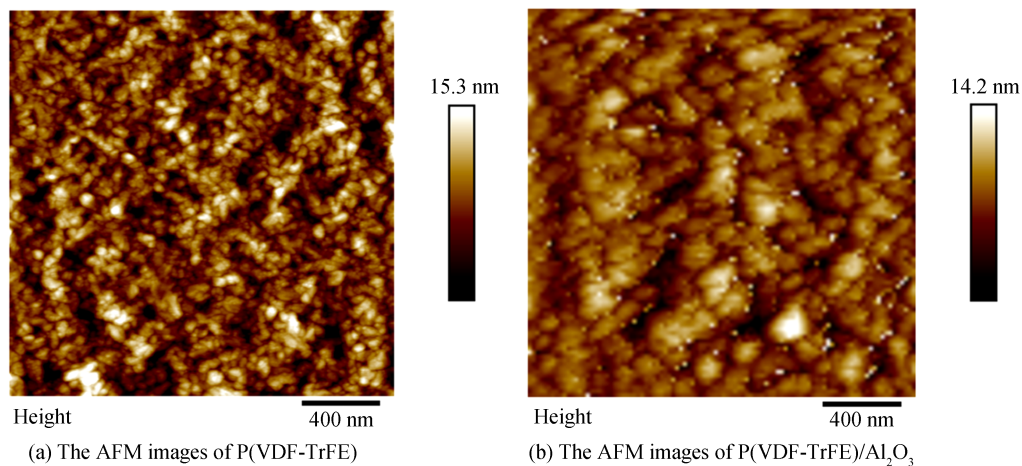


图3 ALD氧化铝前后P(VDF-TrFE)层AFM图
Fig3 AFM images of P(VDF-TrFe) layer before and after ALD

在利用半导体作为吸光层时,其光吸收特性决定了有机薄膜晶体管的光响应特性。图4展示了PDVT-10薄膜在300~1 000 nm范围内的光吸收图谱,如图可见从300~800 nm,PDVT-10薄膜对光的吸收整体呈现一个上升的趋势,并且在450 nm和800 nm有两个吸收峰。为了提高器件的光响应,采用波长为700 nm、光功率为5m W/cm²的单色光作为光源,这样能使光照时半导体层中产生大量的光生载流子,促使沟道中载流子浓度增加,提高光响应。

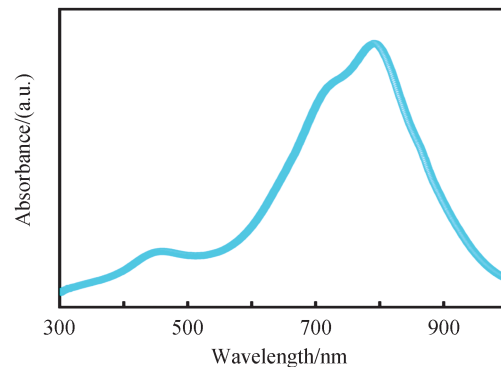


图4 PDVT-10吸收图谱
Fig.4 The absorption spectrum of the PDVT-10

2.2 有机薄膜晶体管的光突触性能测试

有机突触晶体管可通过溶液法低温大面积制备,具备半导体层材料多样性,可根据不同需求进行设计,能与传统CMOS兼容,被认为是构建类脑神经网络计算基本单元的有力竞争者。但是目前多数突触器件都基于电刺激来调节载流子的捕获和释放,在高密度集成时容易使器件受到串扰以及接触,具有破坏性。而光信号利用光生载流子来控制阈值电压的漂移,相对于电信号具有带宽高、操作无破坏性并且运行速度快等优点。

图5(a)展示了突触结构示意图,在大脑中神经元之间通过突触连接,突触在记忆和计算方面有着重要作用。大脑的功能是由突触可塑性来完成的,它允许突触连接强度在对刺激的反应中发生变化。当刺激到达突触前膜并引起 Ca^{2+} 内流时,会产生动作电位;随后释放的神经递质可以加强或削弱突触的过程。由于光生载流子的运动和 Ca^{2+} 的运动类似,有机薄膜突触晶体管可以模拟生物突触的重要功能。然而,如图5(b)所示,有机材料PDVT-10所产生的PPC效应是由于光照时半导体层材料中产生的光生电子被材料自身的深陷阱捕获所导致的,所以电流需要很长时间才能恢复到初态,而增加了铁电层之后,铁电材料提供的正向极化电场可以促进陷阱中的电子出来和空穴复合,从而使沟道中的电流更快恢复。图5(c)展示了铁电材

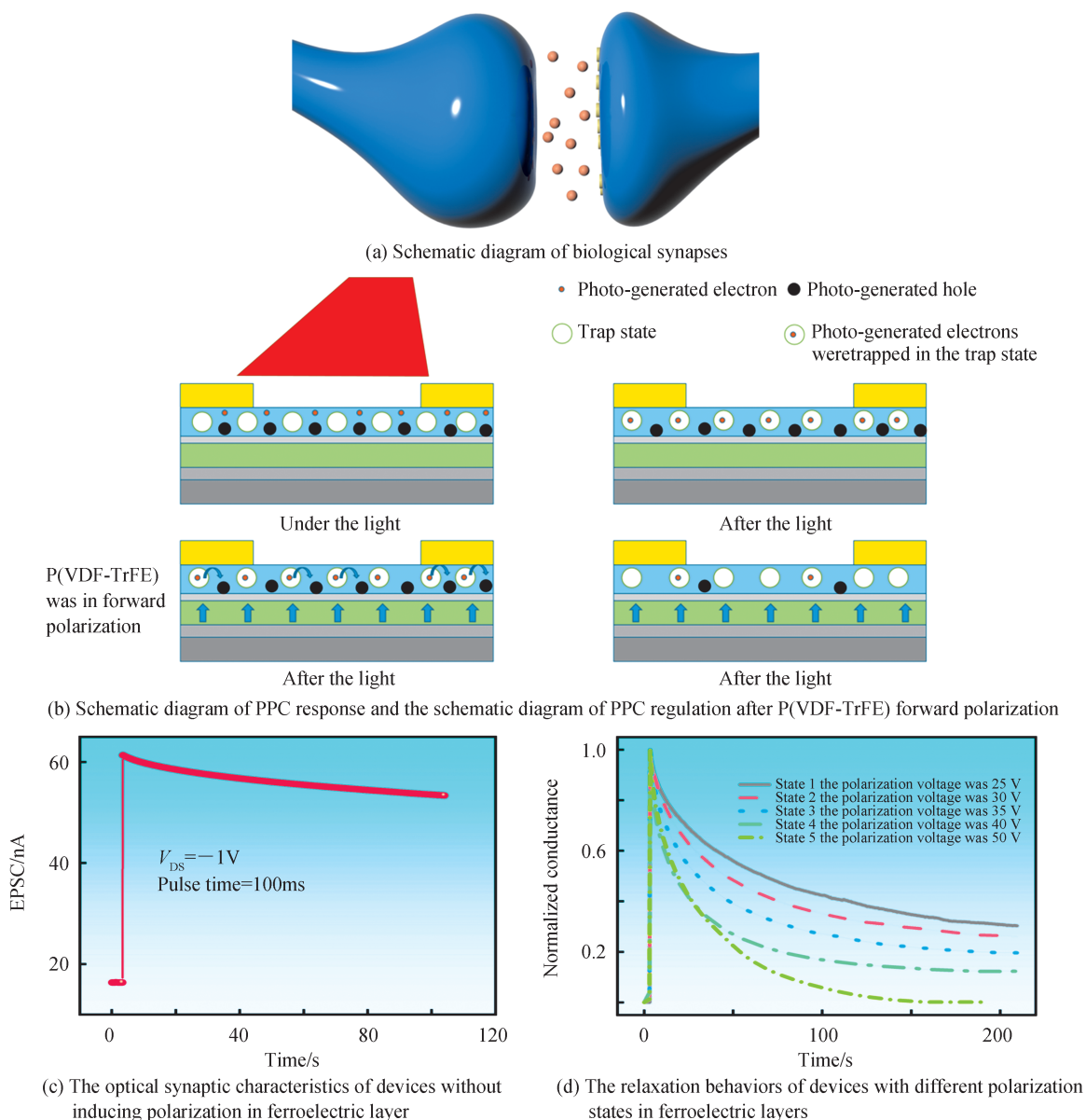


图5 突触示意图及其基本性能
Fig.5 Synaptic structures and its basic performance

料未极化状态下利用 700 nm 光照射 100 ms 后器件的电流,从图中可以看出在撤去光照之后电流下降十分缓慢,其突触可塑性很难调节。为了对器件的突触可塑性进行调节,引入铁电材料 P(VDF-TrFE),利用铁电材料所产生的剩余极化电场来调控其突触可塑性。为了体现铁电层中不同极化对沟道电流的影响,利用 100 ms 的光脉冲照射来研究不同极化状态沟道中的电流响应。在光照之前分别施加 25 V、30 V、35 V、40 V 和 50 V 的电压让其处于不同的正向极化状态,由 P(VDF-TrFE)所产生的正向极化电场可以使被捕获到深陷阱中的电子更快地被释放出来。如图 5(d)所示,在不同极化状态下光照之后 PVDT-10 所产生的衰减行为不同。随着正向极化的增强,在相同时间内沟道中的电流会更快地恢复。因此,铁电层所产生的极化电场可以用来调控基于有机半导体材料中的突触可塑性。

双脉冲易化(Paired Pulse Facilitation, PPF)是突触特性中的一个重要指标。以极化状态 1 为例,如图 6(a)所示,PPF 是指在连续施加两个脉冲刺激时,可以观察到第二个脉冲的响应大于第一个脉冲的响应的现象。PPF 指数可以量化 PPF 的变化,定义为第二次脉冲响应(A_2)与第一次脉冲响应(A_1)的比值。造成这种现象的原因是第一次光脉冲刺激所产生的光生电子没有被完全释放就受到第二次光脉冲刺激,导致更多的电子被捕获,沟道中电导增加。如图 6(b)所示,进一步研究了不同脉冲间隔时间 Δt_{pre} 对 PPF 指数的影响,从图中可以看出,随着脉冲间隔从 1 s 增加到 3 s,PPF 指数由 136.5% 下降至 117.6%,这与生物突触中随着 Δt_{pre} 增加 PPF 指数下降的现象相吻合^[27-28]。

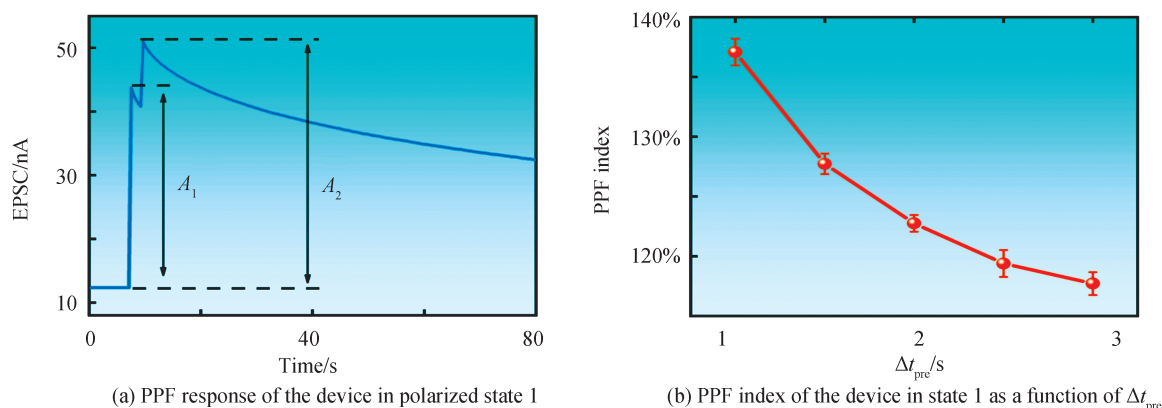


图 6 突触晶体管极化状态 1 下的 PPF 性能
Fig.6 PPF performance of synaptic transistors in polarized state 1

2.3 有机薄膜晶体管的多级光突触功能

近年来,突触器件的研究取得了很大的进展,从基本的模拟突触静态可塑性到模拟复杂的动态可塑性都已经被实现。这些研究的最终目标是利用突触器件来模拟人类大脑的各种突触状态、行为和功能,从而构建一个更有效的人工智能类脑网络。但是,生物神经网络十分庞大、复杂,人脑中包含了大约 $10^{14} \sim 10^{16}$ 个神经突触,这些突触的行为、状态等会随调节因素(如多巴胺等)的变化而变化,如果利用单个突触器件去模拟很难达到这种效果。这意味着对于构建一个人工神经网络,数量庞大的元件和复杂电路是不可避免的,对突触设备的尺寸、规模和微电子制造技术提出了挑战。因此,多级突触有望在降低神经网络的复杂性和涉及计算的设备数量方面起到重要作用。

如图 7(a)、(b)所示,器件在不同极化状态下受到相同的光脉冲(700 nm, 100 ms)所产生的突触态不同,说明其具备多级突触的功能。随着正向极化程度的增加,器件的初始电流、脉冲尖峰电流和脉冲后稳定电流都呈现下降趋势。这是由于随着正向极化程度的增加,铁电层所提供的正向极化电场增强,被陷阱所捕获的电子会更多、更快地被释放到沟道中所导致的。由此可见,器件的光电导会随不同极化状态而变化,呈现出 5 种稳定的、可区分的突触状态。

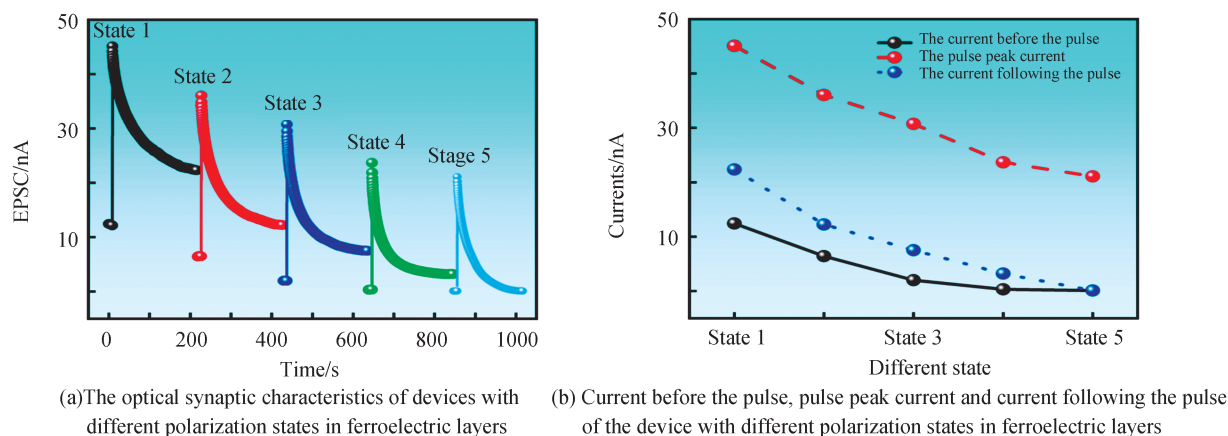


图7 多级光突触性能

Fig.7 Multi-level photosynaptic properties

3 结论

本文研究以PDVT-10为有源层材料、P(VDF-TrFE)为铁电层材料制备了具有可调节突触功能的有机铁电薄膜突触晶体管,并研究了该器件在700 nm波长的光照下,不同极化状态下的单脉冲、PPF等光响应性能。这些功能是通过铁电材料P(VDF-TrFE)提供的极化电场来调控有机材料PDVT-10的PPC效应所实现的。此外通过铁电材料的调节使该器件展现出四种稳定的、可区分的突触状态,而将其运用到基于光输入的神经形态系统中时,不同的突触功能可通过铁电层的不同极化状态来调节。报道的多级光突触可为将来制备低功耗、高密度、可大面积制备的神经网络系统提供了一条新的思路。

参考文献

- [1] ZIDAN M A, STRACHAN J P, LU W D. The future of electronics based on memristive systems[J]. *Nature Electronics*, 2018, 1(1): 22-29.
- [2] WANG Zhongrui, JOSHI S, SABEL'EV S E, et al. Memristors with diffusive dynamics as synaptic emulators for neuromorphic computing[J]. *Nature Materials*, 2017, 16(1): 101-108.
- [3] CHOI S, TAN S H, LI Zefan, et al. SiGe epitaxial memory for neuromorphic computing with reproducible high performance based on engineered dislocations[J]. *Nature Materials*, 2018, 17(4): 335-340.
- [4] PREZIOSO M, MERRIKH-BAYAT F, HOSKINS B D, et al. Training and operation of an integrated neuromorphic network based on metal-oxide memristors[J]. *Nature*, 2015, 521(7550): 61-64.
- [5] JO S H, CHANG T, EBONG I, et al. Nanoscale memristor device as synapse in neuromorphic systems[J]. *Nano Letters*, 2010, 10(4): 1297-1301.
- [6] FULLER E J, GABALY F E, LEONARD F, et al. Li-ion synaptic transistor for low power analog computing[J]. *Advanced Materials*, 2017, 29(4): 1604310.
- [7] ESQUEDA I S, YAN Xiaodong, RUTHERGLEN C, et al. Aligned carbon nanotube synaptic transistors for large-scale neuromorphic computing[J]. *ACS Nano*, 2018, 12(7): 7352-7361.
- [8] SHARBATI M T, DU Yanhao, TORRES J, et al. Low-power, electrochemically tunable graphene synapses for neuromorphic computing[J]. *Advanced Materials*, 2018, 30(36): 1802353.
- [9] YAN Xiaobin, ZHAO Jianhui, LIU Sen, et al. Memristor with Ag-cluster-doped TiO₂ films as artificial synapse for neuroinspired computing[J]. *Advanced Functional Materials*, 2018, 28(1): 1705320.
- [10] KIM M K, LEE J S. Ferroelectric analog synaptic transistors[J]. *Nano Letters*, 2019, 19(3): 2044-2050.
- [11] ZHAO Lei, FAN Zhen, CHENG Shengliang, et al. An artificial optoelectronic synapse based on a photoelectric memcapacitor[J]. *Advanced Electronic Materials*, 2019, 6(2): 1900858.
- [12] LI Bang, WEI Wei, YAN Xin, et al. Mimicking synaptic functionality with an InAs nanowire phototransistor [J]. *Nanotechnology*, 2018, 29(46): 464004.
- [13] SHI Chenyang, LAN Jinling, WANG Jingjuan, et al. Flexible and insoluble artificial synapses based on chemical cross-linked wool keratin[J]. *Advanced Functional Materials*, 2020, 30(45): 2002882.
- [14] BERCO D. Rectifying resistive memory devices as dynamic complementary artificial synapses [J]. *Frontiers in Neuroscience*, 2018, 12: 755.

-
- [15] KUZUM D, JEYASINGH R G, LEE B, et al. Nanoelectronic programmable synapses based on phase change materials for brain-inspired computing[J]. *Nano Letters*, 2012, 12(5): 2179-2186.
- [16] AGNUS G, ZHAO Weisheng, DERYCKE V, et al. Two-terminal carbon nanotube programmable devices for adaptive architectures[J]. *Advanced Materials*, 2010, 22(6): 702-706.
- [17] SHAO Lin, WANG Hailu, YANG Yi, et al. Optoelectronic properties of printed photogating carbon nanotube thin film transistors and their application for light-stimulated neuromorphic devices[J]. *ACS Applied Materials Interfaces*, 2019, 11(12): 12161-12169.
- [18] YANG Yi, HE Yongli, NIE S, et al. Light stimulated IGZO-based electric-double-layer transistors for photoelectric neuromorphic devices[J]. *IEEE Electron Device Letters*, 2018, 39(6): 897-900.
- [19] KWON S M, CHO S W, KIM M, et al. Environment-adaptable artificial visual perception behaviors using a light-adjustable optoelectronic neuromorphic device array[J]. *Advanced Materials*, 2019, 31(52): 1906433.
- [20] WANG Kai, DAI Shilei, ZHAO Yiwei, et al. Light-stimulated synaptic transistors fabricated by a facile solution process based on inorganic perovskite quantum dots and organic semiconductors[J]. *Small*, 2019, 15(11): 1900010.
- [21] AHMED T, KURIAKOSE S, MAYES E L H, et al. Optically stimulated artificial synapse based on layered black phosphorus[J]. *Small*, 2019, 15(22): 1900966.
- [22] SEO S, JO S H, KIM S, et al. Artificial optic-neural synapse for colored and color-mixed pattern recognition[J]. *Nature Communications*, 2018, 9(1): 5106.
- [23] SUN Yilin, QIAN Liu, XIE Dan, et al. Photoelectric synaptic plasticity realized by 2D perovskite [J]. *Advanced Functional Materials*, 2019, 29(28): 1902538.
- [24] KIM M K, LEE J S. Synergistic improvement of long-term plasticity in photonic synapses using ferroelectric polarization in hafnia-based oxide-semiconductor transistors[J]. *Advanced Materials*, 2020, 32(12): 1907826.
- [25] ZHANG Chen, YE Wenbin, ZHOU Kui, et al. Bioinspired artificial sensory nerve based on nafion memristor [J]. *Advanced Functional Materials*, 2019, 29(20): 1808783.
- [26] WU Xiaofeng, JIA Ruofei, JIE Jiansheng, et al. Air effect on the ideality of p-type organic field-effect transistors: a double-edged sword[J]. *Advanced Functional Materials*, 2019, 29(51): 1906653.
- [27] HE Yongli, YANG Yi, NIE Sha, et al. Electric-double-layer transistors for synaptic devices and neuromorphic systems [J]. *Journal of Materials Chemistry C*, 2018, 6(20): 5336-5352.
- [28] BORNSCHEIN G, ARENDT O, HALLERMANN S, et al. Paired-pulse facilitation at recurrent Purkinje neuron synapses is independent of calbindin and parvalbumin during high-frequency activation[J]. *Journal of Physiology-London*, 2013, 591(13): 3355-3370.