

光生载流子 FN 隧穿的范德华垂直异质结光电探测特性

刘 苹^{1,2}, 徐 威^{1,2}, 熊 峰^{1,2}, 江金豹^{1,2}, 黄先燕^{1,2}, 朱志宏^{1,2*}

(1. 国防科技大学 前沿交叉学科学院&新型纳米光电信息材料与器件湖南省
重点实验室, 湖南 长沙 410073;
2. 国防科技大学 南湖之光实验室, 湖南 长沙 410073)

摘要: 过渡金属硫族化合物及其范德华异质结在光电探测方面具有重要的应用前景。近年来, 基于光电导效应、光诱导栅控效应、光伏效应、光-热电效应等机理的器件被提出并广泛研究。其中, 基于光诱导栅控效应的过渡金属硫族化合物平面型光电器件因其与晶体管相近的器件结构、工艺兼容性以及较高的光电探测响应率而备受关注, 然而往往存在响应速度慢、不施加栅压时暗电流大等缺点, 制约了器件性能的进一步提升。因此, 针对过渡金属硫族化合物光诱导栅控型光电器件, 如何提高其响应速度、降低暗电流成为亟需解决的重要问题。该研究通过实验构建石墨烯/MoS₂/h-BN/石墨烯垂直异质结构, 在传统石墨烯/MoS₂ 异质结中插入宽禁带 h-BN 势垒层以抑制器件暗电流, 同时利用光照条件下光生载流子的 FN 隧穿效应提升器件的光电响应速度。该研究成功实现了皮安量级的暗电流以及相对较快的光电探测响应速度(响应时间约为 0.3 s), 相比于传统石墨烯/MoS₂ 异质结器件(响应时间约为 20 s) 有近两个数量级的提升, 同时验证了基于 FN 隧穿效应的范德华垂直异质结构对于增强光电探测性能的积极作用。

关键词: 光电探测器; 范德华垂直异质结; FN 隧穿; MoS₂; h-BN; 石墨烯

中图分类号: O472.8 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA20230217

0 引 言

相比于传统半导体材料, 二维层状材料(如过渡金属硫族化合物)因其本征的面外方向量子限域效应, 具有较大的激子结合能、较强的光与物质相互作用及层数相关的能带结构^[1]。基于其独特的光学及光电子学特性, 二维层状材料有望应用于高性能的光电探测器件^[2-4]。

近年来, 大量基于二维材料(如石墨烯^[5]、MoS₂^[6]、WS₂^[7]、WSe₂^[8]、GaS^[9]等)及其异质结(如石墨烯/MoS₂^[10]、MoS₂/WSe₂^[11]、ReS₂/Te^[12]、石墨烯/MoS₂/石墨烯^[13]等)的高性能光电探测器被报道出来, 其工作原理主要包括光电导效应^[7]、光诱导栅控效应^[6, 14]、光伏效应^[15]、光-热电效应^[16]等。其中, 基于光诱导栅控效应的二维半导体平面型光电器件因其具有与晶体管相近的器件结构及工艺兼容性而备受关注。

这些器件往往具有较高的响应度($R = I_{ph}/p_{ph}$, 其中 I_{ph} 为光电流, p_{ph} 为辐照光功率), 但因受到高暗电流的限制而导致比探测率低($D = R\sqrt{A}/\sqrt{2qI_{dark}}$, 其中 A 为器件的有效面积, q 为单位电荷, I_{dark} 为暗电流)。

为了进一步追求光电探测性能的提升, 2017 年, 成均馆大学 Young Hee Lee 课题组构建了 MoS₂/h-BN/石墨烯垂直异质结构, 通过调节载流子隧穿实现具有超高探测率的光电探测器, 响应度达到 $180 \text{ A}\cdot\text{W}^{-1}$, 比探测率达到 2.6×10^{13} Jones^[17]。2021 年, 哈尔滨工业大学胡平安教授课题组利用石墨烯/h-BN/SnS₂ 垂直异质结亦实现了较高的光电探测性能^[18]。此后, 北京理工大学刘瑞斌教授课题组构建了 WSe₂/石墨烯/h-BN/MoS₂ 范德华垂直异质结构, 并在零偏压状态下得到了 $3.6 \text{ A}\cdot\text{W}^{-1}$ 的光响应度和 1.2×10^5 的开关比^[19]。在范德华半导体异质结中(如上述 MoS₂/石墨烯或

收稿日期: 2023-04-12; 修订日期: 2023-05-12

基金项目: 国家自然科学基金(62204262)

作者简介: 刘苹, 女, 讲师, 博士, 主要从事纳米光电子技术方面的研究。

通讯作者: 朱志宏, 男, 教授, 博士, 主要从事纳米光电子技术方面的研究。

SnS₂/石墨烯) 插入 h-BN 绝缘层构建隧穿型光电探测器,可以有效抑制暗电流,实现高性能的光电探测。

在前述研究的基础上,文中进一步构建石墨烯/h-BN/MoS₂/石墨烯垂直异质结构,提出并验证一种基于光生载流子 FN 隧穿的范德华垂直异质结构光电探测器,以实现暗电流的抑制和响应速度的提升。

1 石墨烯/MoS₂/h-BN/石墨烯光电探测器件结构与表征

石墨烯/MoS₂/h-BN/石墨烯范德华垂直异质结器

件结构如图 1(a) 所示,其中 MoS₂ 作为光吸收层,石墨烯 (Gra) 作为 MoS₂ 层的隧穿电极,在石墨烯与 MoS₂ 间插入的 h-BN 为其提供了一个有效的、厚度可调的隧穿势垒。器件测试时底部石墨烯 (BGra) 接地,顶部与 MoS₂ 直接相连的石墨烯 (TGra) 接电源的输出端,主要测量器件从 TGra 到 BGra 的隧穿电流。

实际器件结构如图 1(b) 中光学图片所示,其中石墨烯、MoS₂ 及 h-BN 皆采用机械剥离单晶方法获取。文中以 14 nm 厚度的 h-BN 垂直异质结为代表性器件展开研究, h-BN 厚度利用原子力显微镜表征确

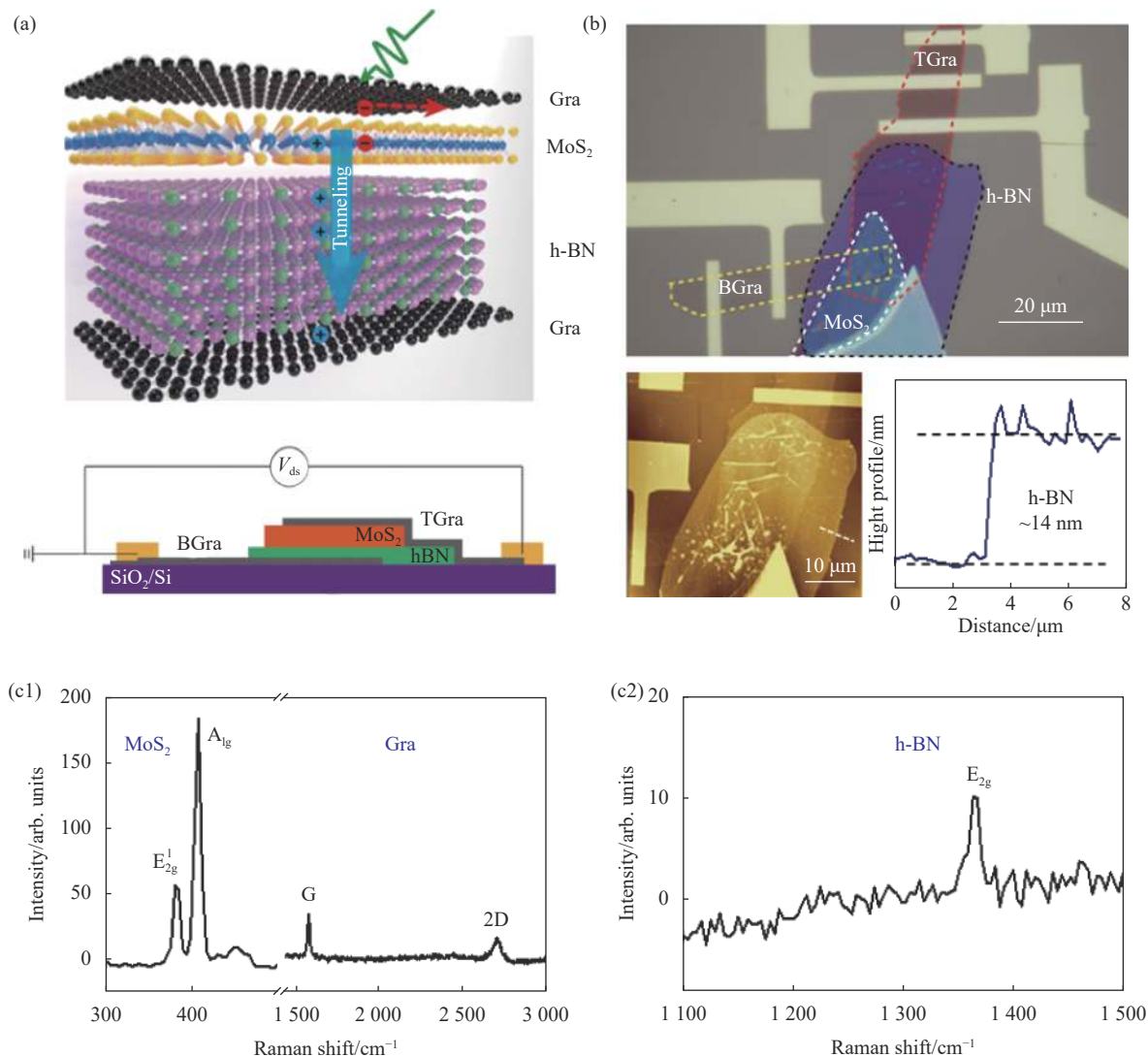


图 1 石墨烯/MoS₂/h-BN/石墨烯垂直异质结器件结构与表征。(a) 器件结构示意图;(b) 器件光学图片及原子力显微镜表征;(c1), (c2) 结区 MoS₂、Gra 拉曼光谱图及 h-BN 拉曼光谱图

Fig.1 Structure and characterization of the graphene/MoS₂/h-BN/graphene vertical heterostructure photodetector device; (a) Schematic of the device structure; (b) Corresponding optical microscopy image and AFM characterization of the real fabricated heterostructure device; (c1), (c2) Raman spectra of MoS₂, graphene and h-BN

定。图 1(c) 分别为石墨烯、MoS₂ 及 h-BN 的拉曼光谱表征, 从图中可以看出, MoS₂ 的特征峰 E_{2g}¹ 和 A_{1g} 分别位于 383 cm⁻¹ 和 408 cm⁻¹ 处, 石墨烯的 G 峰和 2D 峰分别位于 1582 cm⁻¹ 和 2713 cm⁻¹ 处, h-BN 的 E_{2g} 峰位于 1364 cm⁻¹ 处, 与文献报道情况相符^[17]。

2 基于光生载流子 FN 隧穿机理的光-电输运特性

为了研究器件的光-电隧穿输运特性, 分别测试

了器件在暗场条件及光照条件下的输出曲线, 如图 2(a)、(b) 所示。考虑到 MoS₂ 的光学带隙小于 2 eV, 在此选用实验室较为常用的波长 532 nm (能量 2.33 eV) 激光作为辐照光源, 激光强度为 1.48 μW。在 *I-V* 曲线中, 不管是施加正向偏压还是负向偏压, 都能明显观测到两个特征段, 这与理论设计中石墨烯/MoS₂/h-BN/石墨烯范德华垂直异质结在低偏压下的直接隧穿以及高偏压下的 FN 隧穿输运机理相符。

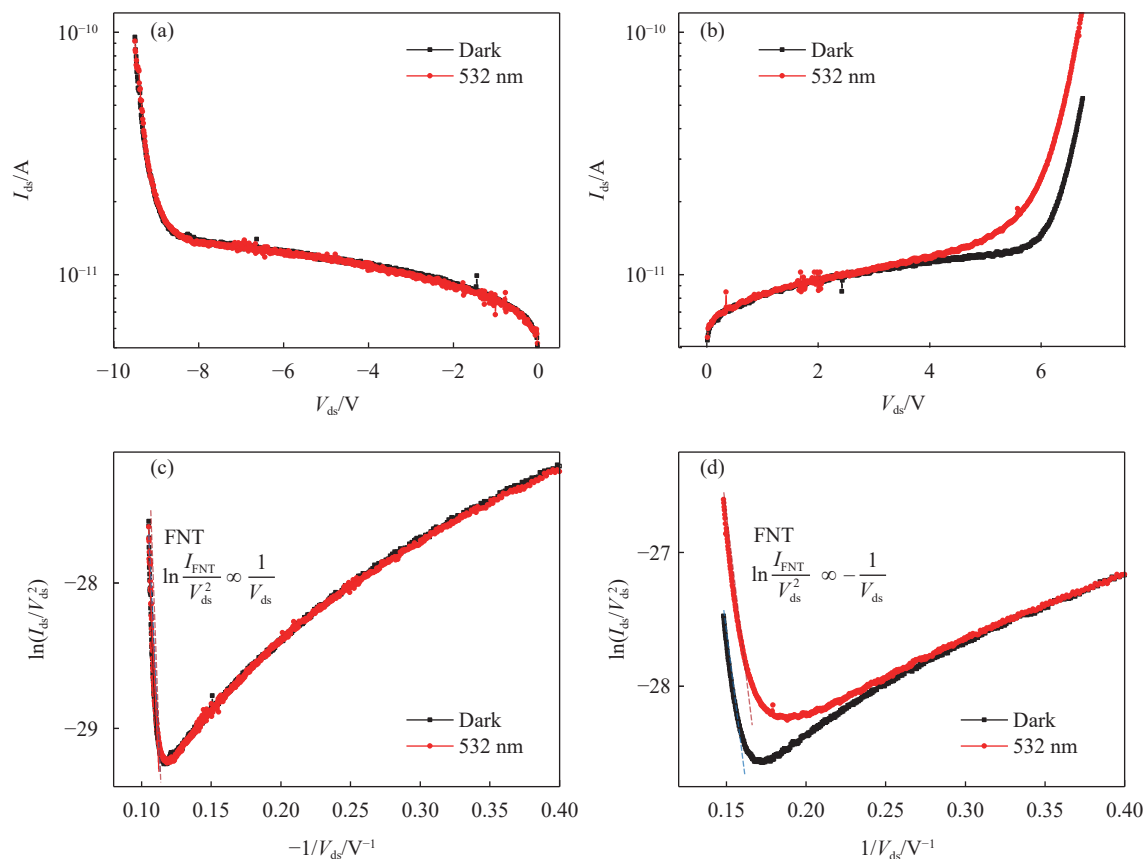


图 2 石墨烯/MoS₂/h-BN/石墨烯垂直异质结器件的光电输运特性。(a) 施加负向偏压和 (b) 正向偏压时, 器件在暗场和 532 nm 光照下的电流-电压特性; (c) 施加负向偏压和 (d) 正向偏压时, 器件在暗场和 532 nm 光照下的 FN 特性曲线

Fig.2 Photocurrent characteristics of the graphene/MoS₂/h-BN/graphene vertical heterostructure photodetector device. The *I-V* characteristics of the device under dark and 532 nm laser illumination with applied (a) negative bias and (b) positive bias; FN tunneling fitting curves of the device under dark and 532 nm laser illumination with applied (c) negative bias and (d) positive bias

为了进一步证明石墨烯/MoS₂/h-BN/石墨烯垂直异质结器件的输运机理, 对器件的 *I-V* 曲线进行 FN 隧穿模型分析 (图 2(c)、(d))。在大偏压状态下的 Fowler-Nordheim 隧穿 (FNT) 满足以下模型:

$$I_{\text{FNT}} = \frac{A_{\text{eff}} q^3 m V_{\text{ds}}^2}{8\pi h \varphi_B d^2 m^*} \exp \left[\frac{-8\pi \sqrt{2m^*} \varphi_B^{\frac{3}{2}} d}{3h q V_{\text{ds}}} \right] \quad (1)$$

式中: A_{eff} 、 q 、 m 、 V_{ds} 、 h 、 φ_B 、 d 、 m^* 分别为有效接触面积、电子电荷、自由电子质量、施加偏压、普朗克常

数、势垒高度、势垒宽度和有效电子质量。对公式 (1) 进行变化, 得到:

$$\ln \frac{I_{\text{FNT}}}{V_{\text{ds}}^2} = \ln \frac{A_{\text{eff}} q^3 m}{8\pi h \varphi_{\text{B}} d^2 m^*} - \frac{8\pi \sqrt{2m^*} \varphi_{\text{B}}^{\frac{3}{2}} d}{3hq} \frac{1}{V_{\text{ds}}} \quad (2)$$

根据公式 (2), 将器件的输出特性以 $-1/V_{\text{ds}}$ 或 $1/V_{\text{ds}}$ 为横坐标、 $\ln(I_{\text{ds}}/V_{\text{ds}}^2)$ 为纵坐标重新绘制, 得到图 2(c)、(d) 所示的结果。从图中可以明显观察到, 随着 $|V_{\text{ds}}|$ 的增大, 曲线的斜率从正变为负, 并且在较大偏压时, $\ln(I_{\text{ds}}/V_{\text{ds}}^2)$ 与 $|V_{\text{ds}}^{-1}|$ 呈现较好的线性关系, 符合 FN 隧穿模型规律, 证明了器件的载流子输运机理是从小偏压时的直接隧穿主导转变为大偏压时的 FN 隧穿主导, 其中转变电压记为 $V_{\text{D-FN}}$ 。从图 2(c)、(d) 中可以分别

得到器件在施加负 (正) 向偏压时的转变电压 $V_{\text{N-D-FN}}(V_{\text{P-D-FN}})$, 同时利用 FN 隧穿曲线的拟合斜率可以得到势垒高度 φ_{B} 。考虑到与 h-BN 直接接触的石墨烯以及 MoS_2 的能带结构更加靠近 h-BN 的价带, 相比于电子隧穿, 空穴隧穿的势垒高度更低, 更容易发生 FN 隧穿。其中, 当施加负向偏压时, 主要考虑 h-BN 一侧石墨烯中空穴的直接隧穿或 FN 隧穿对电流的贡献, 此时从 FN 曲线的拟合斜率可以得到石墨烯一侧空穴的隧穿势垒高度 $\varphi_{\text{h-Gra}}$; 而当施加正向偏压时, 主要考虑 MoS_2 中空穴的直接隧穿或 FN 隧穿对电流的贡献, 此时从 FN 曲线的拟合斜率可以得到 MoS_2 一侧空穴的隧穿势垒高度 $\varphi_{\text{h-MoS}_2}$ 。具体结果如表 1 所示。

表 1 石墨烯/ MoS_2 /h-BN/石墨烯垂直异质结器件在 532 nm 光照时的转变电压和势垒高度

Tab.1 The transition bias and barrier height of the graphene/ MoS_2 /h-BN/graphene vertical heterostructure photodetector device under 532 nm laser illumination

	$V_{\text{N-D-FN}}/\text{V}$	$\varphi_{\text{h-Gra}}/\text{eV}$	$V_{\text{P-D-FN}}/\text{V}$	$\varphi_{\text{h-MoS}_2}/\text{eV}$
BNM-14	-8.4	2.4 eV	5.3	1.6

另一方面, 在图 2 中, 对比暗场 $I-V$ 曲线及光照下的 $I-V$ 曲线, 可以观察到在施加正向偏压时 (图 2(b)) 存在明显的光电响应, 光电流相比暗电流有明显提升; 而在施加负向偏压时, 光电响应不明显 (图 2(a))。表明光照对施加负向偏压时 MoS_2 中空穴的直接隧穿或 FN 隧穿有显著影响, 而对施加正向偏压时石墨烯中空穴的直接隧穿或 FN 隧穿影响不明显。

根据表 1 中的势垒绘制了器件的能带结构图 (图 3), 以下结合能带结构图对上述现象进行详细阐述。

如图 3(a) 所示, 在不施加偏压时, h-BN 为矩形势垒, 并且整体能带结构更加偏向于 h-BN 的价带。

在暗场条件下, 如图 3(b) 中左图所示, 施加大负偏压时, BGr/h-BN 处的势垒从梯形变成三角形, 输出电流主要是由 BGr 中的空穴 FN 隧穿所贡献的; 而在施加大正偏压时, 如图 3(c) 中左图所示, MoS_2 中空穴 FN 隧穿通过 MoS_2 /h-BN 处的三角形势垒形成

的隧穿电流占据主导地位。由于石墨烯中的空穴密度明显高于 MoS_2 中的空穴密度, 在暗状态下当施加大负偏压时器件暗电流较施加大正偏压时更大, 这与图 2(a)、(b) $I-V$ 曲线中的实验结果是相符的。

在光照条件下, 石墨烯中产生热载流子, MoS_2 中产生光生载流子和热载流子。如图 3(b) 中右图所示, 在大负偏压状态下, BGr 中会产生一定量的热载流子, 但由于石墨烯中本征载流子密度很高, 热载流子并不能引起载流子浓度的明显提升, 因而光照条件下隧穿电流变化不大。此外, 具有较高能量的热载流子也能参与热载流子发射过程, 但较宽的势垒能够有效抑制热载流子发射, 使得热载流子发射对器件总电流的贡献较小, 也不会引起光电流的明显变化。而在大正偏压下, 如图 3(c) 中右图所示, 光照条件下光生载流子使得 MoS_2 中的载流子浓度显著提升, 提高了隧穿通过势垒的载流子数目, 总体光电流以空穴的 FN 隧穿电流为主, 得到显著提高。

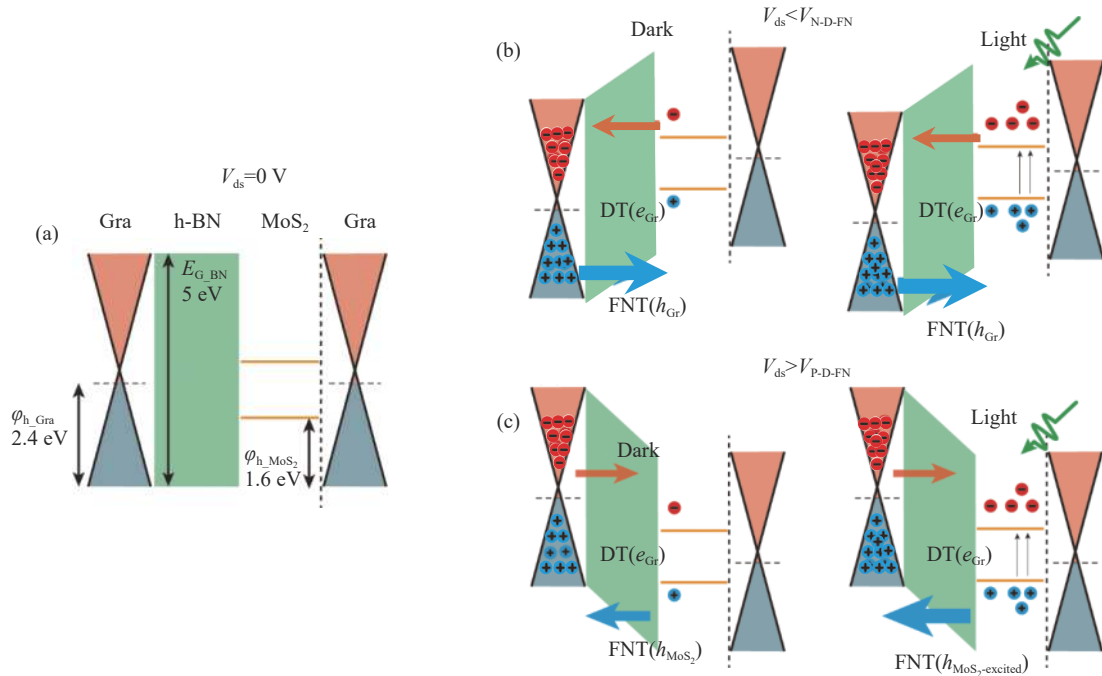


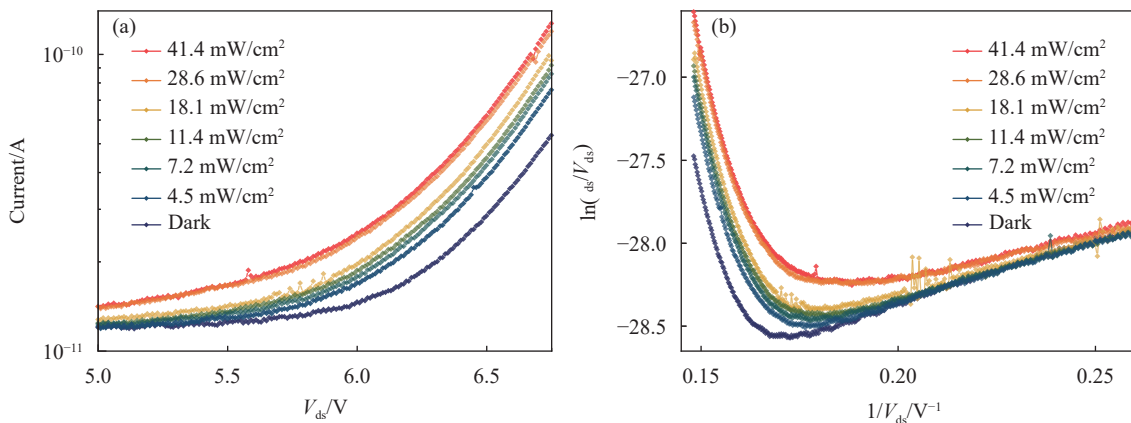
图 3 石墨烯/MoS₂/h-BN/石墨烯垂直异质结器件能带示意图。(a) 不施加偏压时器件能带结构图；(b) 偏压小于负向转变偏压时，器件在暗场和 532 nm 光照时的能带结构图；(c) 偏压大于正向转变偏压时，器件在暗场和 532 nm 光照时的能带结构图

Fig.3 Energy band diagrams of the graphene/MoS₂/h-BN/graphene heterostructure. (a) Energy band diagram of the device with zero bias. (b) Energy band diagrams of the device under dark and 532 nm laser illumination at $V_{ds} < V_{N-D-FN}$; (c) Energy band diagrams of the device under dark and 532 nm laser illumination at $V_{ds} > V_{P-D-FN}$

3 石墨烯/h-BN/MoS₂/石墨烯光电探测性能

为了进一步研究器件的光电探测性能，在不同功率的 532 nm 波长激光照射下，测量了正向偏压下器件的输出特性。如图 4(a) 所示，随着光功率密度的增加，电流值也随之提高。从图 4(b) 中的 FN 特性曲线可以看出，直接隧穿转变成 FN 隧穿的拐点也随着入

射光功率的增大而提前。对不同光功率下的光生电流进行拟合，可见器件的光电响应在该功率范围内呈现一定的线性关系 (图 4(c))。如图 4(d) 所示，器件的响应度随着光功率的增加而减小，在 4.5 mW/cm² 功率密度的光照射下，器件的响应度达到~140 mA/W；器件的光开关比随着光功率的增加而增大，在 41.4 mW/cm² 时达到~2.3。



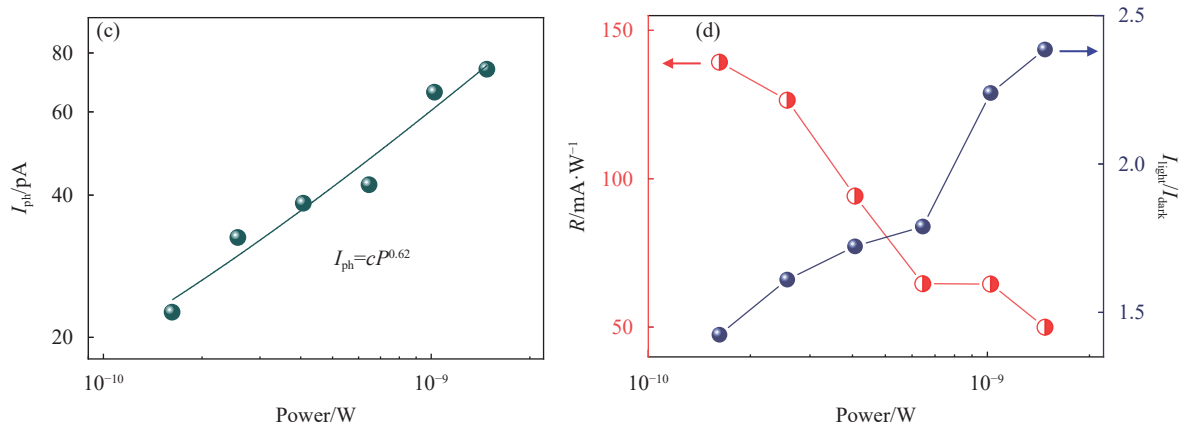


图 4 石墨烯/MoS₂/h-BN/石墨烯垂直异质结器件光电探测特性。(a) 器件在暗场和不同强度 532 nm 激光光照下 I - V 特性曲线; (b) 器件在暗场和不同强度光照下的 FN 特性曲线; (c) $V_{ds} = 6.75$ V 时, 光生电流随激光功率的变化关系曲线; (d) 响应度和光开关比随激光功率的变化关系曲线

Fig. 4 Optoelectronic properties of the graphene/MoS₂/h-BN/graphene vertical heterostructure device. (a) The I - V characteristics of the device under dark and 532 nm laser illumination with different power densities; (b) $\ln(I_{ds}/V^2)-1/V_{ds}$ curves of the device under dark and 532 nm laser illumination with different power densities; (c) Power-dependent photocurrent of the device at $V_{ds} = 6.75$ V; (d) Responsivity and $I_{\text{light}}/I_{\text{dark}}$ ratio along with illumination intensities

为了测试石墨烯/h-BN/MoS₂/石墨烯异质结光电探测器的响应速度, 对器件进行了开-关循环测试, 如图 5(a) 所示。器件工作在正偏压范围内, 保持以 MoS₂ 中的空穴作为隧穿过程的主要载流子。上升时间(下降时间)通过测量器件在激光开启(关闭)后从最大光生电流的 10% 上升到 90% 的时间(从 90% 下降到 10%) 获得。结果表明, 石墨烯/h-BN/MoS₂/石墨烯异质结器件的上升时间和下降时间均约为 0.3 s, 与文献报道的 MoS₂/h-BN/石墨烯异质结 0.23 s (0.25 s) 的上升(下降)时间相近^[17]。作为对比, 单独对器件中石墨烯(TGra)/MoS₂ 异质结部分也进行了开-关循环测试。如图 5(b) 所示, 单独石墨烯/MoS₂ 异质结器件性能的循环稳定性较差, 输出电流整体呈现上升的趋势, 利用 $y = y_0 + Ae^{-t/\tau}$ 公式进行拟合, 得到上升时间和下降时间约为 20 s^[20]。可见基于光生载流子 FN 隧穿效应的石墨烯/h-BN/MoS₂/石墨烯垂直异质结光电探测器的响应速度相比于传统石墨烯/MoS₂ 异质结器件有近两个数量级的提升。

表 2 总结了不同异质结构光电探测器性能, 将

上述石墨烯/h-BN/MoS₂/石墨烯垂直异质结光电探测器以及作为对比例的石墨烯/MoS₂ 异质结与文献中已报道的类似器件结构进行对比, 可见基于光生载流子 FN 隧穿效应的石墨烯/h-BN/MoS₂/石墨烯垂直异质结光电探测器对暗电流的抑制以及响应速度的提升都有显著的改善。需要指出的是, 由于机械堆叠的范德华异质结在加工过程中界面间常常存在有机残留(如图 1 中 AFM 图所示), 同时范德华材料本身也可能存在一定的缺陷, 这两类杂质或缺陷相关的陷阱态引起的存储效应会在很大程度上影响器件的性能, 这也是该研究中器件的光电响应速度相比于成熟的商用器件仍旧较大的原因。然而, 相比于文献中已经报道的以存储效应为主导的光电探测器, 如石墨烯/岛状 MoS₂ 异质结器件(响应时间~1.5 s)^[22], 该研究中基于光生载流子 FN 隧穿效应的石墨烯/h-BN/MoS₂/石墨烯垂直异质结光电探测器的响应速度有近 5 倍的提升。今后器件性能的进一步提升将着手于范德华界面的优化以及减少范德华材料中的缺陷。

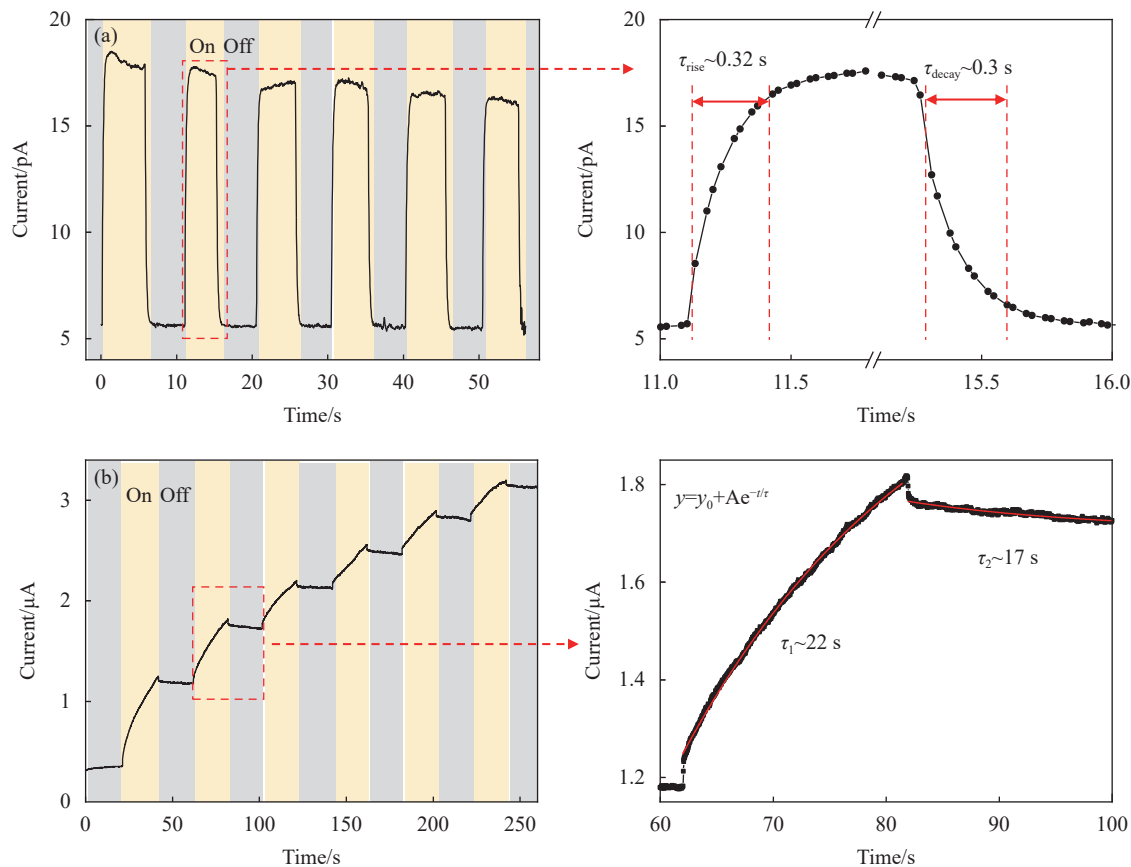


图 5 石墨烯/MoS₂/h-BN/石墨烯垂直异质结与石墨烯/MoS₂ 异质结光电响应速度及稳定性的对比。(a) 石墨烯/MoS₂/h-BN/石墨烯垂直异质结器件的开-关循环测试, 右图为 11~16 s 间的局部放大图; (b) 石墨烯/MoS₂ 异质结器件的开-关循环测试, 右图为 60~100 s 间的局部放大图

Fig.5 Comparison of the response time and cyclic stability between graphene/MoS₂/h-BN/graphene vertical heterostructure and graphene/MoS₂ heterostructure devices. (a) The dynamic temporal photoresponse of the graphene/MoS₂/h-BN/graphene heterostructure device with the enlarged current profile between 11 s and 16 s; (b) The dynamic temporal photoresponse of the graphene/MoS₂ heterostructure device with the enlarged current profile between 60 s and 100 s

表 2 不同异质结构光电探测器性能对比

Tab.2 Comparison between the performances of typical vertical heterostructure photodetector devices

Device structure	Dark current/A	Response time/s	Laser wavelength/nm	Reference
Gra/h-BN/MoS ₂ /Gra	~10 ⁻¹²	~0.3	532	This work
Gra/MoS ₂	~10 ⁻⁶	~20	532	This work
Gra/h-BN/MoS ₂	~10 ⁻¹⁴	~0.25	405	[17]
Gra/h-BN/SnS ₂	~10 ⁻¹²	~2	300	[18]
WSe ₂ /Gra/h-BN/MoS ₂	~10 ⁻¹⁴	~0.4	532	[19]
Gra/MoS ₂	~10 ⁻⁵	1.2	632.8	[21]
Gra/MoS ₂ island	~10 ⁻⁵	1.5	632.8	[22]
Gra/MoS ₂ /Gra	~10 ⁻⁴	0.59	405-2 000	[23]

4 结 论

制备了石墨烯/h-BN/MoS₂/石墨烯垂直异质结,研究了器件的光电响应特性,并分析了器件在不同状态、不同偏压情况下的工作机理。得益于 h-BN 的存在,器件暗电流得到了很好地抑制。通过合理选择工作偏压,可以使器件保持在以 MoS₂ 中空穴的 FN 隧穿为主导的工作状态。在此状态下,器件具有皮安量级的暗电流,响应时间约为 0.3 s。实验结果验证了利用范德华垂直异质结中光生载流子 FN 隧穿效应实现高性能光电探测器件的可行性。

参考文献:

- [1] Wang Qinghua, Kalantar-Zadeh Kourosh, Kis Andras, et al. Electronics and optoelectronics of two-dimensional transition metal dichalcogenides [J]. *Nature Nanotechnology*, 2012, 7(11): 699-712.
- [2] Kin Fai Mak, Jie Shan. Photonics and optoelectronics of 2D semiconductor transition metal dichalcogenides [J]. *Nature Photonics*, 2016, 10(4): 216-226.
- [3] Chen Hongfu, Luo Man, Shen Niming, et al. Research progress of two-dimensional layered materials-based heterojunction photodetectors [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2021, 50(1): 20211018. (in Chinese)
- [4] Xu Hangyu, Wang Peng, Chen Xiaoshuang, et al. Research progress of two-dimensional semiconductor infrared photodetector [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2021, 50(1): 20211017. (in Chinese)
- [5] Lee E J H, Balasubramanian K, Weitz R T, et al. Contact and edge effects in graphene devices [J]. *Nature Nanotechnology*, 2008, 3(8): 486-490.
- [6] Yin Zongyou, Li Hai, Li Hong, et al. Single-layer MoS₂ phototransistors [J]. *ACS Nano*, 2012, 6: 74-80.
- [7] Perea-López N, Elías A L, Berkdemir A, et al. Photosensor device based on few-layered WS₂ films [J]. *Advanced Functional Materials*, 2013, 23(44): 5510.
- [8] Zou Yixuan, Zhang Zekun, Yan Jiawen, et al. High-temperature flexible WSe₂ photodetectors with ultrahigh photoresponsivity [J]. *Nature Communications*, 2022, 13: 4372.
- [9] Hu Pingan, Wang Lifeng, Yoon Mina, et al. Highly responsive ultrathin GaS nanosheet photodetectors on rigid and flexible substrates [J]. *Nano Letters*, 2013, 13(4): 1649-1654.
- [10] Roy K, Padmanabhan M, Goswami S, et al. Graphene-MoS₂ hybrid structures for multifunctional photoresponsive memory devices [J]. *Nature Nanotechnology*, 2013, 8(11): 826-830.
- [11] Lee Chul-Ho, Lee Gwan-Hyoung, Zande A M, et al. Atomically thin p-n junctions with van der Waals heterointerfaces [J]. *Nature Nanotechnology*, 2014, 9(9): 676-681.
- [12] Tao Jijia, Jiang Jinbao, Zhao Shinuan, et al. Fabrication of 1D Te/2D ReS₂ mixed-dimensional van der Waals p-n heterojunction for high-performance phototransistor [J]. *ACS Nano*, 2021, 15(2): 3241-3250.
- [13] Yu Woo Jong, Liu Yuan, Zhou Hailong, et al. Highly efficient gate-tunable photocurrent generation in vertical heterostructures of layered materials [J]. *Nature Nanotechnology*, 2013, 8(12): 952-958.
- [14] Fang Hehai, Hu Weida. Photogating in low dimensional photodetectors [J]. *Advanced Science*, 2017, 4: 1700323.
- [15] Furchi Marco M, Pospischil Andreas, Libisch Florian, et al. Photovoltaic effect in an electrically tunable van der Waals heterojunction [J]. *Nano Letters*, 2014, 14(8): 4785.
- [16] Buscema Michele, Barkelid Maria, Zwiller Val, et al. Large and tunable photo-thermoelectric effect in single-layer MoS₂ [J]. *Nano Letters*, 2013, 13(2): 358-363.
- [17] Vu Quoc An, Lee Jin Hee, Nguyen Van Luan, et al. Tuning carrier tunneling in van der Waals heterostructures for ultrahigh detectivity [J]. *Nano Letters*, 2017, 17(1): 453-459.
- [18] Gao Feng, Chen Hongyu, Feng Wei, et al. High-performance van der Waals metal-insulator-semiconductor photodetector optimized with valence band matching [J]. *Advanced Functional Materials*, 2021, 31(35): 2104359.
- [19] Guo Shuai, Chen Zhuo, Weller Dieter, et al. Toward high-performance self-driven photodetectors via multistacking van der Waals heterostructures [J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2021, 13(47): 56438-56445.
- [20] Ghimire Mohan Kumar, Ji Hyunjin, Gul Hamza Zad, et al. Defect-affected photocurrent in MoTe₂ FETs [J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2019, 11(10): 10068-10073.
- [21] Li Xiaobo, Wu Juanxia, Mao Nannan, et al. A self-powered graphene-MoS₂ hybrid phototransistor with fast response rate and high on-off ratio [J]. *Carbon*, 2015, 92: 126-132.
- [22] Xu Hua, Wu Juanxia, Feng Qingliang, et al. High responsivity and gate tunable graphene-MoS₂ hybrid phototransistor [J]. *Small*, 2014, 10(11): 2300-2306.
- [23] Gao Shan, Wang Ziqian, Wang Huide, et al. Graphene/MoS₂/graphene vertical heterostructure -based broadband photodetector with high performance [J]. *Advanced Materials Interfaces*, 2021, 8(3): 2001730.

Photodetection properties of van der Waals vertical heterostructures based on photogenerated carrier-dominated FN tunneling

Liu Ping^{1,2}, Xu Wei^{1,2}, Xiong Feng^{1,2}, Jiang Jinbao^{1,2}, Huang Xiyan^{1,2}, Zhu Zhihong^{1,2*}

(1. College of Advanced Interdisciplinary Studies & Hunan Provincial Key Laboratory of Novel Nano-Optoelectronic Information Materials and Devices, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China;

2. Nanhu Laser Laboratory, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China)

Abstract:

Objective Compared with traditional 3D bulk semiconductors, 2D layered semiconductors (e.g. transition metal dichalcogenides) have the features of large exciton binding energy, strong light-matter interaction and layer-dependent band structure, due to the intrinsic quantum confinement effect in the out-of-plane direction. Owing to such special photonic and photo-electronic properties, transition metal dichalcogenides and their van der Waals heterostructures have great potential for high-performance photodetector applications. In recent years, photodetector devices based on mechanisms such as photogating effect, photoconductive effect, photovoltaic effect, and photothermoelectric effect have been proposed and widely studied. Transition metal dichalcogenides planar optoelectronic devices based on photogating effect have similar device structures with transistors and compatible fabrication, together with high responsivity, but suffer from slow response speed and large dark current without applying gate bias, which limits the improvement of the device performance. Therefore, improving the response speed and reducing the dark current of transition metal dichalcogenides optoelectronic devices becomes an urgent issue.

Methods With mechanical exfoliation and dry transfer methods, van der Waals photodetectors with a graphene/MoS₂/h-BN/graphene vertical heterostructure are constructed (Fig.1). In the devices, MoS₂ performs as the photoabsorber with graphene as both top and bottom electrodes. The h-BN insulating layer is inserted between MoS₂ photoabsorber and the bottom graphene electrode as an effective and tunable barrier. Both AFM and Raman characterizations are taken to confirm the thickness of the materials and the device structures. The tunneling current from the top graphene electrode to the bottom graphene electrode through MoS₂ and h-BN under dark and laser illumination is measured with the home-built photocurrent measurement system.

Results and Discussions Based on the I - V characteristics of the vertical heterostructure device under both dark and laser illumination, together with the Fowler-Nordheim (FN) tunneling fitting of the I - V curves, the transport mechanism of FN tunneling is verified in the graphene/MoS₂/h-BN/graphene vertical heterostructure device (Fig.2). With the inserted wide bandgap h-BN insulating layer between the graphene electrode and MoS₂ photoabsorber, dark current was highly suppressed, while photogenerated carriers (holes in MoS₂) contributed effectively to the photocurrent through FN tunneling (Fig.3), which matches well with the observation of clear photocurrent when applying positive bias (Fig.2(b)). Detailed measurement of the photocurrent under laser illumination with various powers reveals the responsivity of the device of ~ 140 mA/W at laser power of 4.5 mW/cm² and $I_{\text{light}}/I_{\text{dark}}$ ratio of ~ 2.3 at laser power of 41.4 mW/cm² (Fig.4) are achieved. A low dark current in

the order of picoamperes and relatively high photodetection response speed with the response time of ~ 0.3 s are achieved, which is nearly two orders of magnitude higher than that of traditional graphene/MoS₂ heterostructure with the response time of ~ 20 s (Fig.5). The achieved low dark current and high response speed confirm the principle design of van der Waals vertical heterostructures based on FN tunneling effect in promoting the photodetection performance of the devices.

Conclusions A novel van der Waals vertical heterostructure with graphene/MoS₂/h-BN/graphene is developed to achieve high-performance photodetector properties with a low dark current and relatively high photodetection response speed, which verifies the significance of FN tunneling of photogenerated carriers for the development of van der Waals heterostructure photodetectors based on 2D materials.

Key words: photodetector; van der Waals vertical heterostructure; FN tunneling; MoS₂; h-BN; graphene

Funding projects: National Natural Science Foundation of China (62204262)