



中国科学院大学
University of Chinese Academy of Sciences

博士学位论文

基于低维材料的高增益光电探测器研究

作者姓名: 骆文锦

指导教师: 陆 卫 研究员 中国科学院上海技术物理研究所

胡伟达 研究员 中国科学院上海技术物理研究所

学位类别: 工学博士

学科专业: 微电子学与固体电子学

培养单位: 中国科学院上海技术物理研究所

2019 年 6 月

**The study of high gain photodetector based on low dimensional
materials**

**A dissertation submitted to
University of Chinese Academy of Sciences
in partial fulfillment of the requirement
for the degree of
Doctor of Microelectronics and Solid Electronics**

By

Wenjin Luo

Supervisor Professor Wei Lu and Weida Hu

**Shanghai Institute of Technical Physics,
Chinese Academy of Sciences**

June 2019

中国科学院大学

研究生学位论文原创性声明

本人郑重声明：所呈交的学位论文是本人在导师的指导下独立进行研究工作所取得的成果。尽我所知，除文中已经注明引用的内容外，本论文不包含任何其他个人或集体已经发表或撰写过的研究成果。对论文所涉及的研究工作做出贡献的其他个人和集体，均已在文中以明确方式标明或致谢。

作者签名：

日 期：

中国科学院大学

学位论文授权使用声明

本人完全了解并同意遵守中国科学院有关保存和使用学位论文的规定，即中国科学院有权保留送交学位论文的副本，允许该论文被查阅，可以按照学术研究公开原则和保护知识产权的原则公布该论文的全部或部分内容，可以采用影印、缩印或其他复制手段保存、汇编本学位论文。

涉密及延迟公开的学位论文在解密或延迟期后适用本声明。

作者签名：

日 期：

导师签名：

日 期：

摘 要

近十几年来, 纳米材料光电探测器被广泛研究, 主要集中在各种新颖的低维材料, 如一维材料和二维材料。低维材料在三维空间至少有一维的尺寸与电子的平均自由程可比拟, 所以表现出一些新奇的物化特性, 如量子限域效应、弹道输运、内禀各向异性等, 为实现高灵敏、宽光谱、快速以及偏振成像提供了一种新途径。红外偏振探测能够从复杂的背景辐射中有效地识别被探测目标, 因此在肿瘤医疗、地质勘探和气象监测等方面具有广阔的应用前景, 尤其是在量子通信领域红外偏振光子探测意义非凡。本论文主要从低维材料出发, 着重研究高增益光电探测器在单光子探测领域的实际应用, 主要内容如下:

1. 研究了基于二硫化钨 (WS_2) 和二硫化钼 (MoS_2) 浮栅结构光电探测器。利用 1 nm 厚度金纳米颗粒充当电子捕获层, 浮置于沟道材料 WS_2 之上。在顶栅 ITO 透明电极的调控下, 实现自由电子在浮栅与沟道 WS_2 之间来回隧穿并存储。器件表现出长时间的“编程”状态和“擦除”状态, 利用编程状态形成的低暗电流 (10^{-11} A) 进行光响应, 得到 1090 A/W 的光电响应率和 3.5×10^{11} Jones 的探测率。此外, 实验中制作了同样结构的 MoS_2 浮栅光电探测器, 被证明同样具有极强的光探测能力。
2. 实现了基于一维纳米线的室温单光子探测器。基于 photogating 增益机制, 设计并制备具有核壳结构的 CdS 纳米线场效应晶体管, 在室温下成功探测到了单光子并实现 1~3 光子的分辨。探测效率达到了 23%, 暗计数率为 1.87×10^{-3} Hz。此外, 得益于纳米线的一维特性, 器件对线偏振光子显示出了选择吸收特性。同时, 建立了静电场放大模型, 结果表明理论与实验一致。
3. 基于 photogating 高增益概念与整流特性相结合思路, 设计并制备了一种非对称 (电极和面积) InP 纳米线同质结场效应晶体管。器件在室温下的整流比可达 10^6 (± 6 V), 77 K 下可达 10^8 (± 5 V)。此外, 利用表面态完全耗尽纳米线形成的极低暗电流, 可实现 6 光子/秒的探测。
4. 根据能带工程概念, 设计并制备了一种黑磷 (BP) 与二硒化钨 (WSe_2) 垂直堆垛范德华异质结。利用 BP 与 WSe_2 不同带隙, 使得器件表现出了双波段探

测能力。利用异质结形成的内建电场快速有效分离光生载流子，同时利用 BP 充当光 photogating 层提供极大增益，使得器件在可见光和红外光波段的光响应率分别高达 10^3 A/W 和 0.5 A/W，探测率分别高达 10^{14} 和 10^{10} Jones，响应速度均达 800 μ s。此外，利用 BP 的内禀偏振敏感特性，使得器件对 1550 nm 波长光表现出了偏振选择吸收特性。

关键词：光电探测器，一维纳米线，二维材料，单光子探测器，红外偏振

Abstract

In the past decade, nanomaterial photodetectors have been extensively studied, mainly focusing on various novel low-dimensional materials, such as one-dimensional materials and two-dimensional materials. Low-dimensional materials have at least one dimension in three-dimensional space comparable to the mean free path of electrons, so they exhibit some novel physicochemical properties, such as quantum confinement effect, ballistic transport, intrinsic anisotropy, etc., which is improving a new approach to achieve high sensitivity, wide spectrum, high speed response and polarized imaging. Infrared polarization detection can effectively identify the detected target from complex background radiation, so it has broad application prospects in tumor medical, geological exploration and meteorological monitoring. Especially in the field of quantum communication, infrared polarized photon detection is of great significance. This thesis mainly focuses the practical application of high-gain photodetectors based on low-dimensional materials in the field of single-photon detection. The main contents are as follows:

1. Photodetectors based on WS₂ and MoS₂ floating gate structures have been studied. The gold nanoparticles of 1 nm thickness are used as a floating gate electron-trapping layer, floating upon the channel material WS₂. Under the control of the top gate ITO transparent electrode, free electrons are tunneled back and forth between the floating gate and the channel WS₂. The device exhibits a long "program" state and an "erase" state, and using a very low dark current (10^{-11} A) under the programmed state for light responding results the responsivity of 1090 A/W and detectivity of 3.5×10^{11} Jones. In addition, the MoS₂ floating-gate photodetector in the same structure was fabricated, which also proved to have extremely strong light detection capability.
2. A room temperature single-photon detector based on one-dimensional nanowires was studied. Based on the photogating gain mechanism, a core-shell CdS nanowire field-effect transistor was constructed. Single photon was successfully detected at

room temperature and the detector can resolve 1~3 photons. The detection efficiency is 23% and the dark count rate is 1.87×10^{-3} Hz. In addition, benefiting from the one-dimensional structure of nanowires, the device exhibits selective absorption characteristics of polarized photons. Meanwhile, an electrostatic field amplification model was established, showing that the theoretical values are in good agreement with the experimental values.

3. Combining of photogating effect concept and rectification characteristics, an asymmetric (electrode and area) InP nanowire field-effect transistor was designed and fabricated. The device has a rectification ratio of $10^6 @ \pm 6$ V at room temperature and $10^8 @ \pm 5$ V at 77 K. In addition, after the nanowire was completely depleted by surface state, where 6 photons/s is detected.

4. According to the energy band engineering concept, a stacking structure of black phosphorus (BP) vertical WSe₂ was designed and studied. Due to the different band gaps between BP and WSe₂, the device exhibits dual-band detection capability. The built-in electric field quickly and efficiently separates the photo-generated carriers. BP acts as a photogating layer to provide huge gain. The responsibilities in the visible and infrared ranges are as high as 10^3 A/W and 0.5 A/W, respectively, and the detectivities are as high as 10^{14} and 10^{10} Jones, respectively and the response speeds are 800 μ s. In addition, due to the intrinsic polarization sensitivity of BP, the device exhibits polarization selectivity for wavelength at 1550 nm.

Key words: photodetector, one-dimensional nanowire, two-dimensional material, single-photon detector, infrared polarization

目 录

摘 要.....	I
Abstract.....	III
第 1 章 绪论.....	1
1.1 引言.....	1
1.2 单光子探测技术.....	2
1.2.1 高驱动电压单光子探测器.....	2
1.2.2 低温工作单光子探测器.....	3
1.2.3 量子点类单光子探测器.....	5
1.3 一维半导体纳米线.....	7
1.3.1 半导体纳米线发展简介.....	7
1.3.2 半导体纳米线光电探测器.....	9
1.3.3 半导体纳米线表面态增强光探测机制.....	13
1.4 二维纳米材料.....	15
1.4.1 二维材料简介.....	15
1.4.2 二维材料光电探测器.....	19
1.4.3 photogating 效应.....	23
1.4.4 浮栅结构.....	24
1.5 本论文的研究内容及章节安排.....	25
第 2 章 基于浮栅效应的二维材料存储型光电探测器.....	27
2.1 引言.....	27
2.2 基于浮栅效应的 WS_2 和 MoS_2 存储型光电探测器的制作.....	28
2.3 基于浮栅结构器件及其基本物理模型.....	30
2.4 WS_2 浮栅存储器件的光响应性能.....	34
2.5 MoS_2 的浮栅存储结构光电晶体管.....	37
2.6 本章小结.....	40

第 3 章 基于一维纳米线的室温单光子探测器研究	41
3.1 引言	41
3.2 CdS 纳米线的合成	43
3.3 CdS 纳米线场效应晶体管的制作	45
3.4 CdS 纳米线场效应晶体管的光电表征	45
3.4.1 器件结构及理论模型	45
3.4.2 暗场情况下的电学性能	47
3.4.3 光子入射后的影响	47
3.4.4 photogating 效应存在的证据	51
3.4.5 器件的最佳响应区域	54
3.4.6 单光子源校验	57
3.4.7 器件的偏振光子选择性	60
3.5 本章小结	61
第 4 章 InP 纳米线光电探测器	63
4.1 引言	63
4.2 非对称金属及非对称接触面积器件制作	64
4.3 高整流比 InP 纳米线器件	65
4.4 完全耗尽态	67
4.5 InP 纳米线器件的光响应研究	68
4.5.1 InP 纳米线器件的全光谱响应图	68
4.5.2 InP 纳米线器件的光响应稳定性和光响应速度	69
4.5.3 InP 纳米线器件的光子数响应测试	70
4.6 InP 纳米线器件的转移特性曲线理论解释	71
4.7 本章小结	73
第 5 章 BP/WSe ₂ 二维材料垂直结偏振探测器	75
5.1 引言	75
5.2 BP/WSe ₂ 垂直结器件的制作	76
5.3 BP/WSe ₂ 垂直结器件的电学性能和能带理论	77
5.4 BP/WSe ₂ 垂直结器件的光学性能和能带理论	79
5.5 本章小结	85

第 6 章 总结与展望	87
6.1 论文总结	87
6.2 后期展望	88
参考文献	91
致谢	99
作者简历及攻读学位期间发表的学术论文与研究成果	101

第 1 章 绪论

本章主要分别介绍了单光子探测器的种类及其工作原理、一维纳米线的发展简介、二维材料简介以及由低维材料制作的光电探测器的独特优势。

1.1 引言

1984 年量子通信^[1]概念的提出,促进了单光子探测器的研究和发展。时至今日,经过多年的发展,各种各样的单光子探测器已经得到了广泛的研究和应用。单光子探测器在量子通信领域不可或缺,量子通信当中对光子这一量子单元进行编码和操控,接收端则需依靠单光子探测器极为灵敏的探测能力来探测和识别单个光子信息。除此之外,单光子探测器还在其他多个领域发挥着重要的作用,如非破坏性物质分析、生物发光、高能物理、天文测距、大气测污、非线性光学和量子计算等领域。

光子的能量极低,在可见和红外波段的光子能量约为 10^{-19} J,要探测到如此低的一个能量单元,单光子探测器需要具有极高的光电响应灵敏度。使用普通光敏器件来探测单个光子还难以达到,因为光敏器件捕获一个光子所产生的光电流是低于室温下的热噪声水平 (10^{-14} W)。所以单光子探测器需要借助了一些增益放大机制才能实现单光子的探测。当前的单光子探测器种类繁多,当前主流种类主要有雪崩二极管单光子探测器、光电倍增管单光子探测器、上转换单光子探测器、可见光光子计数器、超导纳米线单光子探测器、超导转变边沿单光子探测器、共振隧穿二极管单光子探测器和量子点场效应晶体管单光子探测器这 8 大类^[2],以及他们的衍生产品。尽管如此,为了满足各个领域日益增长的需求,尤其是量子密钥分配领域的严苛要求,研究人员除了努力改进已有的单光子探测器,也在不断研究和发展各种新型单光子探测器。

随着科学技术的快速发展,纳米技术在电子、光电子、能源和医疗等多种领域进行革命性进步。实现这些进步的核心因素是纳米材料和相应领域的纳米器件。一维纳米线^[3, 4]和二维材料^[5, 6]正在成为影响科学和技术发展的关键性、多样化、

功能性纳米材料。这些纳米材料在至少某一维度上具有纳米级别尺寸，接近于电子的平均自由程，因此常常表现出一些新奇的物理特性和光学特性。由这些纳米材料制作的纳米光电器件，在一定程度上，完全不逊色于传统材料制作的光电器件，如低成本、大面阵和集成化方面，有望成为下一代电子功能元器件的核心元素。

1.2 单光子探测技术

单光子探测器经过多年发展在各种领域已经具有不可替代的作用，单光子探测器主要包括传统的雪崩二极管单光子探测器和光电倍增管单光子探测器和新兴的超导型单光子探测器和基于量子点的单光子探测器等。各种单光子探测器的工作原理相差很大，应用领域也不尽相同。这其中除了发展较晚的量子点型单光子探测器，其他的类型已在实际应用中发挥着重要作用。

1.2.1 高驱动电压单光子探测器

由于工作原理限制，光电倍增管单光子探测器和雪崩二极管单光子探测器^[7-10]的驱动电压往往较高，最低几十伏，最高可达几千伏。光电倍增管（PMT）单光子探测器是最成熟的单光子计数器，其最早在 1949 年成功实现，当时的这一举动表明了时间相关单光子计数领域的诞生。如图 1.1（a）所示分别是光电倍增管和雪崩二极管工作示意图。PMT 主要由光电阴极、打拿极、阳极和真空管壳组成^[11]。其中光电阴极充当吸收光层，使用能量大于阴极材料功函数的光子照射光阴极上，通过外光电效应激发出电子。该电子在加速电压驱动下，撞击到管壁上的打拿极产生二次电子，二次电子在加速电压的驱动下，撞击到下一级打拿极产生更多的二次电子，如此反复，最后倍增出的电子被阳极收集并输出电流或电压信号。光电管两端加载的驱动电压大约在千伏级，而且在一定范围内，输出信号强度正比于光子入射强度。因此，某些类型的 PMT 具有光子数可分辨能力。

与光电倍增管的外光电效应不同，雪崩光电二极管（APD）是利用内光电效应和电离碰撞来实现单光子探测的，如图 1.1（b）所示。雪崩光电二极管的本质是 pn 结，其工作在反向偏电压下，当反向偏压足够大，耗尽层中的光生电子空穴对被加速获得极大动能，与晶格碰撞，使晶格电离出二次电子空穴对，新生电

子空穴对在加速电场作用下，获得动能产生更多的二次电子空穴对，如此反复，会在收集端产生足够大的光生电流，这种放大机制称为“雪崩”倍增机制。APD 有两种工作模式，分别为线性模式和盖革模式^[12, 13]。线性模式工作电压低于雪崩电压，产生的增益不足以探测到单个光子，盖革模式工作电压则高于雪崩电压，能够探测到单个光子，缺点是雪崩效应不能立即自行终止。为了解决这一问题并快速响应下一个光子，往往需依靠淬灭电路使雪崩效应立即终止，并恢复到初始状态。现有的 APD 主要采用 Si-APD，受带隙所限，其只能响应到 1100 nm。需要探测到更长波长的光子，可以采用窄带隙 Ge、InGaAs 和 HgCdTe 作为光敏元。另外，虽然雪崩过程的过度噪声太高而难以实现固有的光子数分辨能力，但已经努力通过其他方案如定时效应、空间或时间多路复用方法来间接地实现光子数分辨能力。

除了单一的探测机制，还有一个重要的发展方向是将两者结合起来，形成一种新的混合型光电探测器^[14, 15]：即将光电阴极与低电容雪崩光电二极管结合在一起。相较于单一光电倍增管，该混合光电探测器的偏置电压较低，大约 400 V，时间抖动较快可达 61 ps^[15]。

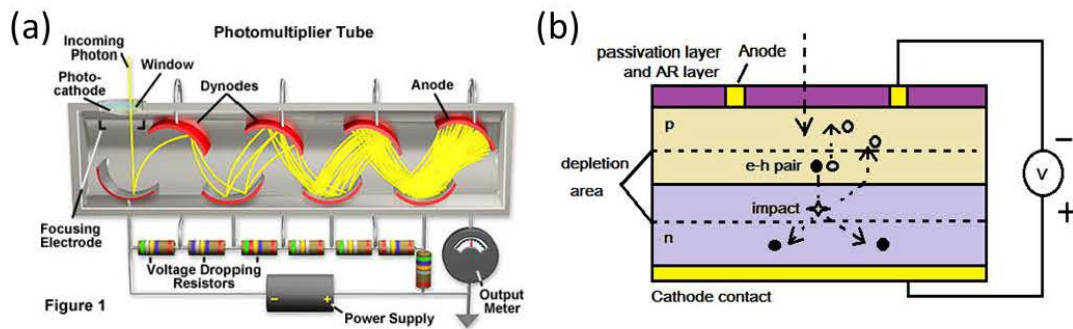


图 1.1 (a) 光电倍增管工作原理示意图^[11], (b) 雪崩二极管工作原理示意图

Figure 1.1 (a) Schematic diagram of the working principle of PMT; (b) Schematic diagram of the working principle of APD

1.2.2 低温工作单光子探测器

随着量子信息技术的发展，对单光子探测器的要求越加严苛，需要单光子探测器的探测效率接近 100%，同时具备光子数分辨能力和极低的暗计数率，而这几对于传统单光子探测器来说难以实现。除了加速电子使其获得动能增殖出更

多的二次电子，还有一种思路是将器件的工作温度降低，使其热噪音水平低于单光子信号水平。这一类低温单光子探测器的优异性能具有满足量子信息技术领域要求的潜力。它们包括超导转变边沿单光子探测器（图 1.2 (a)）、超导纳米线单光子探测器（图 1.2 (b)）和可见光光子计数器（图 1.2 (c)）。

超导转换边沿单光子探测器主要是利用超导材料对温度波动及其敏感特性来探测单光子^[16-18]。超导状态转变为正常状态存在一个温度临界点，在这个临界点附近存在一个非常小的窗口称为跃迁宽度，通常只有几个 mK 范围。将超导材料降至极低温，使其在临界点之下，且处于跃迁宽度之内。当一个光子入射，产生的微小热量能使得超导材料的温度升高，越过临界点，迅速进入导体状态。实验中只需监测探测器的阻抗变化，就能识别出单个光子的入射。

与超导转换边沿单光子探测器类似的是超导纳米线单光子探测器^[19-23]。同样需要将超导材料（纳米线）降至极低温之下，使其处于超导态，它的临界点是其临界电流。超导纳米线单光子探测器会被施加于一恒流源，当一个光子入射，会在局部产生一个小热点，改变该区域的超导态进入正常状态，从而使流过其他超导区域的电流增加，使得整个纳米线逐渐进入正常态。通过检测探测器的电阻率变化，可以识别到单个光子的入射。

而可见光光子计数器^[23-25]是从雪崩倍增管概念演变过来的，不同的是其在低温（~ 6 K）下工作，且只发生一次载流子倍增过程，由于温度足够低，因此可以探测到单个光子信号。其雪崩电压较小约 7 V 左右，且具有良好的光子数可分辨能力。

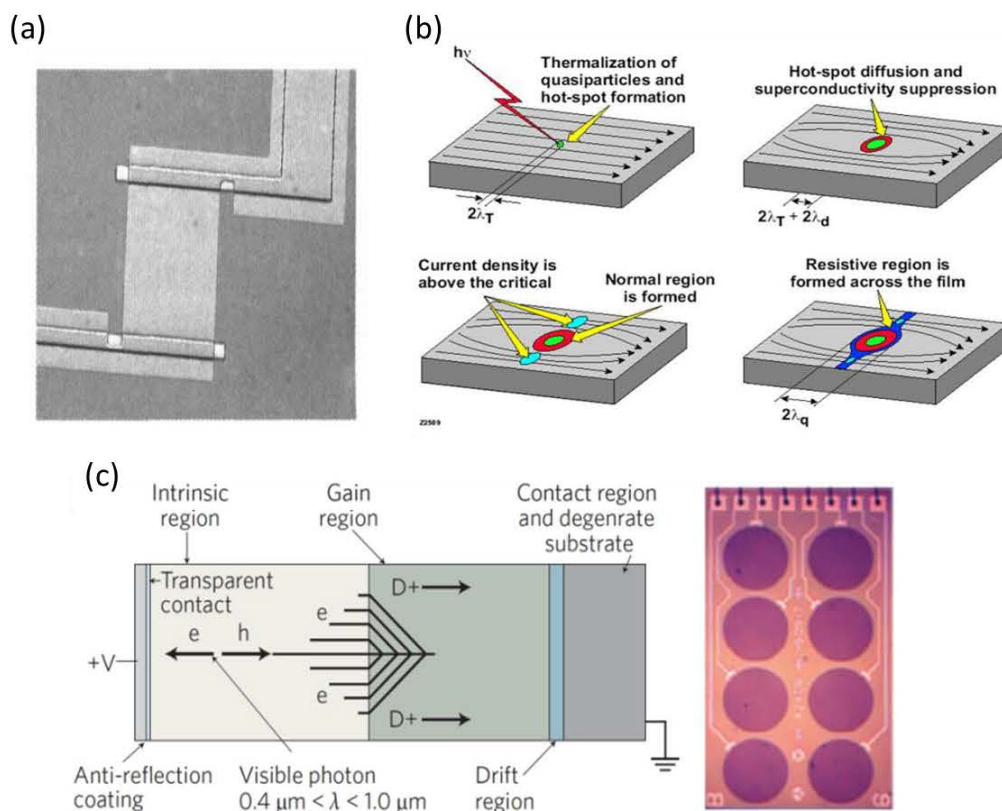


图 1.2 (a) 超导转变边沿单光子探测器^[16]; (b) 超导纳米线单光子探测器; (c) 可见光子计数器^[23]

Figure 1.2 (a) Superconducting transition edge single photon detector^[16], (b) superconducting nanowire single photon detector, (c) visible light photon counter^[23]

1.2.3 量子点类单光子探测器

量子点类单光子探测器起步较晚，直到 1999 年才开始被提出和研究。共分为三大类，第一种是场限制量子点单光子探测器，第二种是掺杂量子点单光子探测器，第三种是自组装量子点单光子探测器。虽然目前的量子点类单光子探测器必须工作在低温环境下，时间抖动较大，但是这一类探测器具有其独特的潜在价值，比如具备室温工作的潜力、量子效率高、低工作驱动电压以及能够保留信号的完整性等优点。

场限制量子点单光子探测器主要是将量子点与单电子器件进行组合的光电探测器，其在 2000 年由 Komiyama 等人^[26]首次提出。如图 1.3 (a) 所示，是该探测器的 SEM 图，中间为二维电子气。对栅极施加负电压，可以在二维电子气中形成量子点。整个器件置于强磁场之中，使其形成朗道能级 (LL1 和 LL2)。

在外场调控下，源漏之间出现电导共振峰，当光子照射器件时，电导峰会出现偏移，所以通过检测器件的电导峰偏移可以实现光子的探测。在 2002 年 Astafiev 等人^[27]对该器件进行了改进，设计了一种双量子点结构，且器件不必外加磁场也能实现光子的探测和分辨。

掺杂量子点单光子探测器是 Tabe 在 2011 年提出的^[28]。如图 1.3 (b) 所示，他通过将硅颗粒场效应晶体管与掺杂的量子点相结合实现单个光子的探测。器件主要依靠电子在这些掺杂量子点之间的隧穿来导通器件和探测光子。

自组装量子点单光子探测器则主要分为两大类。一种是量子点场效应晶体管，在 1999 年由剑桥大学 A.J.Shields 等人提出^[29, 30]；另一种是量子点共振隧道二极管单光子探测器，其由 Blakesley 等人在 2005 年提出^[31, 32]。第一种量子点场效应晶体管的结构如图 1.3 (c) 所示，该结构主要基于场效应晶体管和浮栅结构相结合而成，其中浮栅部分采用的是 MBE 生长的 InAs 量子点，该量子点可以高效地捕获光生电子或空穴。当有一个光子入射，会在沟道中产生电子空穴对，空穴被激发到浮栅量子点中且被捕获，并长时间存储下来。被捕获空穴对沟道载流子产生一种增益放大作用，从而有效地增大了沟道电流，产生足够强的可探测电流信号。该结构由 E. J. GANSEN 在 2007 年进行了改进，可以实现 1~3 个光子数分辨。第二种量子点共振隧道二极管单光子探测器，该结构主要是基于电子共振隧穿机制工作。如图 1.3 (d) 所示，双势垒中间存在一个势阱，当发射极一侧的电子或空穴能量与势阱中束缚能级相等时，空穴（或电子）发生共振隧穿行为。光入射之前量子点一般被电子填充，当有光子入射时，光生空穴发生隧穿，被量子点捕获，显著改变器件的源漏电流大小，从而输出一个可测量的电流信号。

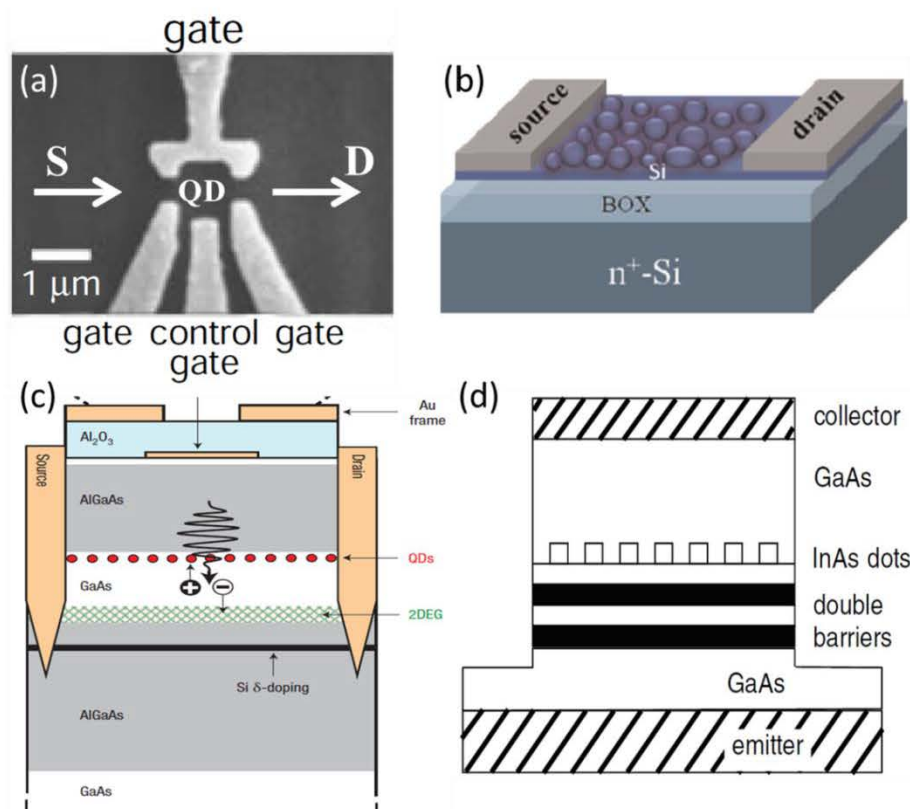


图 1.3 (a) 场限制量子点单光子探测器^[26], (b) 掺杂量子点单光子探测器^[28], (c) 量子点场效应晶体管^[29], (d) 量子点共振隧道二极管单光子探测器^[31]

Figure 1.3 (a) Field-limited quantum dot single photon detector^[26], (b) Doped quantum dot single photon detector^[28], (c) Quantum dot field effect transistor^[29], (d) Quantum dot resonant tunnel diode single photon detector^[31]

1.3 一维半导体纳米线

纳米器件的研究对纳米科学领域的发展具有推进式作用, 纳米材料的研究是发展纳米器件的根本所在, 尤其是高性能的纳米器件更具核心竞争力。在纳米材料当中, 一维半导体纳米线的研究和发展具有举足轻重的意义。与体材料相比, 纳米线的直径通常在数百纳米以下, 使其具有体材料所不具备的独特电学、机械、化学和光学特性^[3], 使其在电子学、光子学、生物医学和通信领域等领域具有非常广阔的应用前景, 且在当前国际的前沿研究热点中始终占据着一席之地。

1.3.1 半导体纳米线发展简介

1965 年, 学者 R. S. Wagner 给出等式 $R_{\min} = \frac{2V_l}{RT \ln s} \sigma_{lv}$, 用于气-液-固晶须 (晶体纤维) 的生长, 其中 $R_{\min}$ 是最小晶须半径, V_l 是金属液滴的摩尔体积, σ_{lv} 是液-气表面能, s 是蒸汽的过饱和度^[33]。大约三十多年后, 一类在某一维度上具有纳米级尺寸的半导体材料成为了当时的热门研究领域之一。其中, 在 20 世纪 90 年代早期, 日本科学家将这种生长技术应用于 III-V 族纳米晶须的生长^[34], 实现了纳米晶须良好的位置控制和取向生长, 甚至生长出了第一个 pn 异质结纳米晶须^[35]。随后在 90 年代中期, 华盛顿大学的 William Buhro 小组提出了一种新的生长机制, 即溶液-液-固相方法合成了 III-V 纳米晶须^[36]。而哈佛大学的 Charles Lieber 小组则进行了无机纳米棒的研究。随后另两类纳米产品--碳纳米管^[37]和氧化物纳米棒^[38]也随之出现了。在接下来的十年中, 纳米晶须和纳米棒的研究工作逐渐演化为纳米线。到了 90 年代后期, 半导体纳米线领域有了重大进步, 成为了当时科学研究中最活跃的领域之一。从图 1.4 每年发表的纳米线论文来看, 经过了接近 30 年的发展, 纳米线的研究热度依然只增不减。

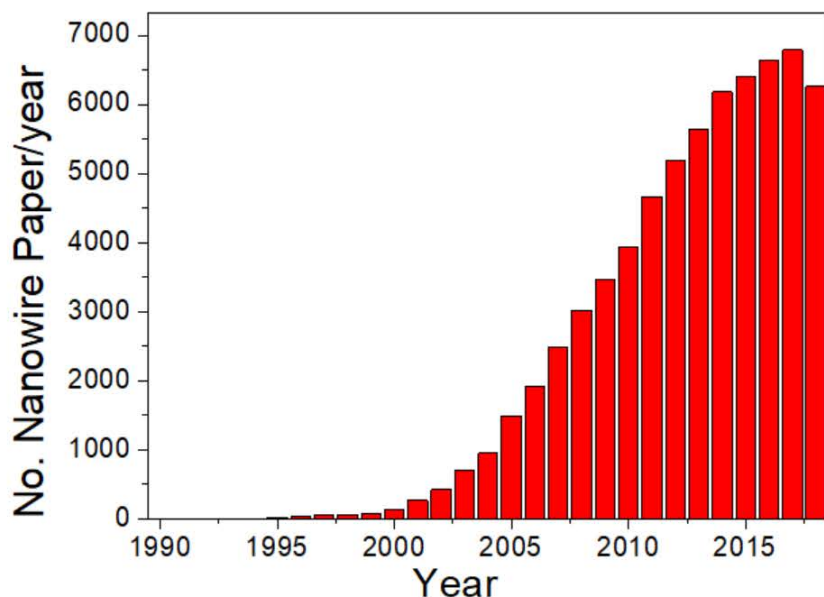


图 1.4 有关纳米线论文每年的发表数量随年数递增而逐年递增

Figure 1.4 Number of publications about nanowire papers is increasing year by year

从图 1.5 可以看出, 当前纳米线领域的论文主要涉及材料科学、工程学、物理、化学、光学等学科, 涉猎范围宽广, 应用领域广泛。当前纳米线的研究领域主要分为 4 个子领域, 分别为纳米线电子学、纳米线光子学、纳米线能量转换和

存储，以及纳米线生物学应用。半导体纳米线通常具有可以从 2-200 nm 调节的横截面尺寸，其长度从数百纳米到数百毫米不等。这些纳米级别尺寸的半导体具有亚波长结构，可用于研究光的产生、传播、检测、放大和调制。经过几十年的研究，纳米线可以通过特定的成分进行合成和组装。由此产生了许多纳米线光子器件，包括光电探测器、化学和气体传感器、波导、发光二极管（LED）、微腔激光器、太阳能电池和非线性光学转换器等。纳米线作为连接纳米世界与宏观世界的桥梁枢纽，已被证明是不同能量之间转换的重要材料，尤其是其出色的光电转换能力，使得各种各样纳米线被成功生长合成并被制作成不同结构的光电探测器。当前具有优秀光电转换能力的纳米线主要包括III-V族半导体纳米线 InAs、GaAs、GaN、InP 以及它们的多元化合物 AlGaAs、InGaAs、GaAsAlTe 等，II-VI 族的 CdS、CdSe、CdTe、ZnTe、ZnSe 等纳米线，IV族的 Si 和 Ge 纳米线，VI族的 Se、Te 纳米线以及金属氧化物纳米线 V_2O_5 、 In_2O_3 、ZnO、CdO、 SnO_2 等等。

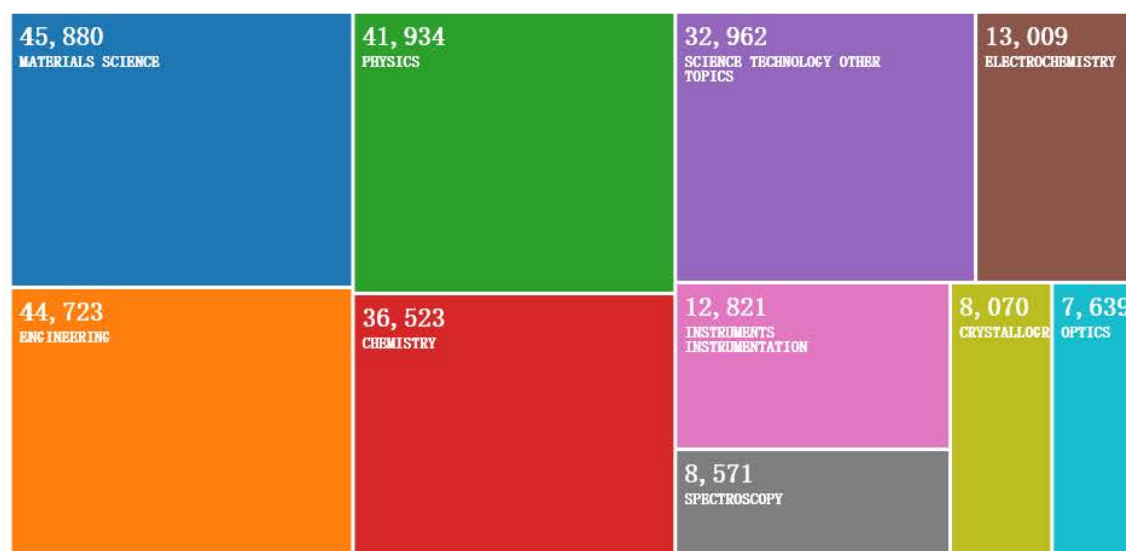


图 1.5 已发表的纳米线论文主要涉及的学科

Figure 1.5 The main subject of the published nanowire paper

1.3.2 半导体纳米线光电探测器

纳米线凭借其极大比表面积特性，在光电转换方面展现出了天然优势，因而大受追捧。此外，使用纳米线构建高密度光电探测器和利用一维纳米线的本征光偏振响应是纳米线探测的另两大优势。在纳米线被研究之初，传统光电探测器的光电探测机制已被研究多年，其中的一些探测机制可以直接运用到纳米线光电探

测器领域当中,如光电导机制、异质结构、同质结构等。基于这些传统探测手段,纳米线光电探测器的取得指标性能较高,除此之外,一些特殊的结构、机制被运用到纳米线光电探测器当中,更加增添了纳米线光电探测器的多功能性并提高了它们的指标性能。这些特殊结构包括:肖特基结纳米探测器、纳米线光晶体管探测器、超导纳米线探测器、金属-金属介质纳米线探测器等。

(1) 纳米线光电二极管。二极管是一大类家族,它们的核心是结配置,包括:同质结、异质结和肖特基结^[39, 40]。如图 1.6 所示,展示的是沿轴向或径向的结、金半接触肖特基结,以及由空间上构造的交叉结或分支结,或由直接垂直生长在各种衬底上的纳米线阵列垂直结,各种各样的构建为实现纳米线光电探测器提供了大量素材。

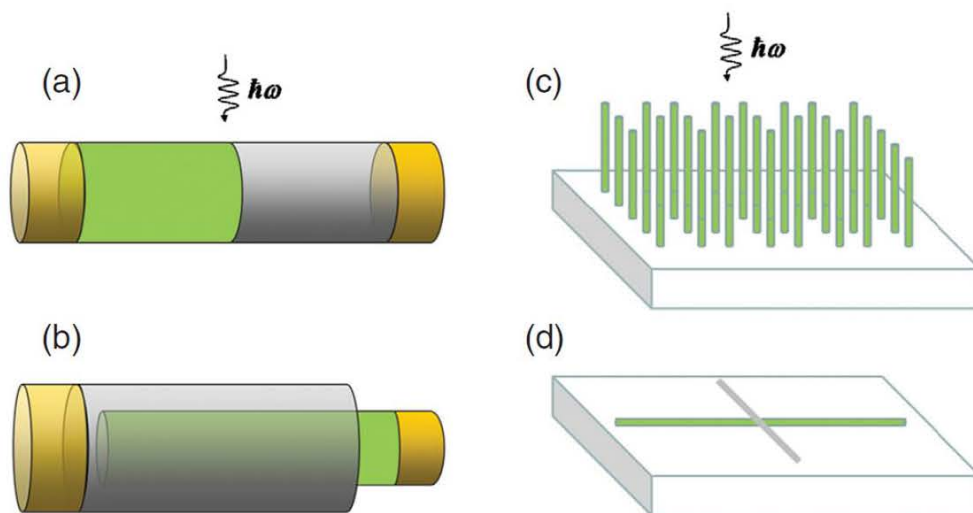


图 1.6 各种具有结功能的纳米线光电探测器^[41] (a) 轴向结纳米线; (b) 径向结纳米线; (c) 纳米线与衬底的垂直结; (d) 空间分布的交叉结

Figure 1.6 Various nanowire photodetectors with junction function^[41] (a) axial junction nanowires; (b) radial junction nanowires; (c) vertical junctions of nanowires and substrates; (d) crosses junction on spatial distribution

但是在这其中有两点值得注意:一,用来描述稳态下结区的载流子扩散的连续性方程的边界条件受光入射的方向(垂直入射、平行入射)的影响较大。二,当光照平行入射到结区的时候,结区对光的非均匀性吸收应当值得考虑。基于单根纳米线的同质结和异质结的研究比较新颖,且已可在多种纳米线中直接生长,它们

的原理主要是基于光伏效应^[42-44]。例如，在 GaN 纳米线中，已经实现了具有整流特性的轴向 pn 同质结其在紫外光电探测范围显示出了较快的光响应。其中，pn 结整流公式如下：

$$I = I_s \left[\exp\left(\frac{eV}{k_B T}\right) - 1 \right] \dots\dots\dots (1-1)$$

I_s 是饱和电流， e 是元电荷， V 是器件两端偏压， k_B 是玻尔兹曼常数， T 是器件工作温度。与此类似，基于单根纳米线 InAs/InAsP 异质结的红外光电探测器，由于结区的能带错位，使得探测器在 77 K 下显示出非常低的暗电流，又由于一维量子结构，探测器显示出了强烈的偏振光依赖性。有趣的是，利用单根纳米线结效应还可以实现雪崩效应^[7, 45, 46]。与 Si 体材料雪崩二极管单光子探测器结构一样，纳米线也可以构建成 pn 或 p-i-n 结构（或类似结构），在其较大反向偏压下，光生载流子产生碰撞电离引起雪崩效应，从而形成内部极大增益，增加了探测器的有效响应灵敏度。对于金半接触结而言，可以将其用作光电二极管^[47-49]，它们的光电流主要来源于两部分，一部分来源于半导体中光生电子空穴对，另一部分则来源于金属中内光电效应激发出的电子。这类探测器的一大优点就是它们的响应速度快，这是因为结区的反向电压可以快速分离光生电子空穴对，使得载流子的传输寿命极短。与异质结和同质结相似，公式（1-1）依然适用，其中金半接触结的饱和电流如下：

$$I_s = A^* T^2 \exp\left(-\frac{e\phi_b}{kT}\right) \dots\dots\dots (1-2)$$

A^* 是理查森常数， ϕ_b 是肖特基势垒高度，则肖特基结器件的整流公式如下：

$$I = I_s \left[\exp\left(\frac{e(V - V_{th})}{nk_B T}\right) - 1 \right] \dots\dots\dots (1-3)$$

其中 V_{th} 是正向偏置阈值电压， n 是理想因子。当电流成分主要是肖特基势垒的热电子发射主导时， $n = 1$ 。另外，实验中经常遇到金半接触的界面问题，而这一点通常是借助扫描光电流显微镜（SPCM）来进行有效剖析^[50, 51]。

（2）纳米线光电晶体管^[52, 53]。通过在两端纳米线器件之外再构筑一种栅极电极（顶栅、背栅或侧栅）来达到双极型或单极型晶体管结构，以此增强光电探测能力。入射光照射到基极，产生光生载流子，这些载流子能够调制基极-集电

极结，引起电流放大效应，从而产生较大光响应率。这类纳米线晶体管的栅极可以通过两种方式构建，一种是将纳米线物理转移或直接生长在覆盖有介质层的衬底上，形成背栅晶体管；一种是在纳米线两端器件做好之后再通过传统光刻方法进行构图，制作顶栅或者侧栅结构。实验证明使用夹层双栅结构的硅纳米线晶体管具备非常灵敏的光或电探测能力^[54]。其通过非常窄的栅极实现，该栅极充当一种载流子陷阱态，如图 1.7 所示。先用一束光照射器件，引起少量光生空穴（或电子）被局域在栅极下方，通过监测器件的电导率的突然降低可以判断出被局域的空穴（或电子）与沟道中的载流子发生了复合，从而达到识别单电子（或空穴）的测量。

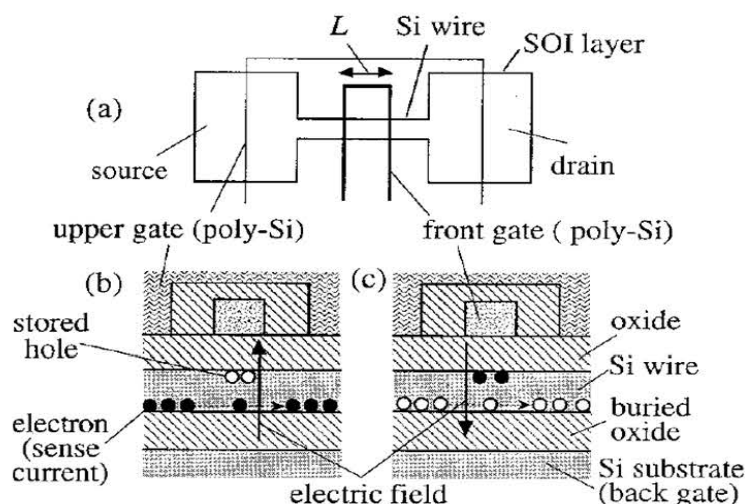


图 1.7 硅纳米线双栅结构示意图^[54] (a) 夹层双栅结构示意图，其中栅极宽度 $L = 40\text{nm}$ ，(b) n 型沟道 MOSFET 的原理图，(c) p 型沟道 MOSFET 的原理图

Figure 1.7 Schematic diagram of Si nanowire double-gate structure^[54] (a) Schematic diagram of sandwich double gate structure, where gate width $L = 40\text{nm}$, (b) Schematic diagram of n-channel MOSFET, (c) Schematic diagram of p-channel MOSFET

(3) 另外有一种有趣的纳米线光探测机制目前还不能完全被解释清楚。通常这类纳米线光电探测器使用直径为几纳米的金属纳米线^[55]（类似于超导纳米线宽度）。例如，当这种窄宽度 Au 纳米线受到光脉冲照射时，可以观察到光电导约 100 倍的增加，且其电导率通过脉冲照射时的量化增量而增加，光照激发后的上升和弛豫时间为毫秒级。虽然这些现象的起源还尚未完全清楚，但引起这种现

象的因素暂时归因于光局部加热引起的纳米线的直径增加。这也不失为一个大胆猜测的合理性解释。

1.3.3 半导体纳米线表面态增强光探测机制

由上一小节的纳米线探测器结构引申出的一些复合型探测结构也具有非常优秀的探测性能，其中有一种借助纳米线表面态进行光辅助的探测器件，其增强作用甚至可以达到单个光子的探测水平。由于纳米线具有大的比表面积，使其具有极高的表面态密度。再加上纳米线表面上的费米能级钉扎，致使纳米线表面出现了一层空间电荷区，该空间电荷区有利于电子空穴对的有效分离，并且产生持续光电导现象，使得光生载流子寿命显著增强。由于纳米线内的载流子分布主要由表面电势和费米能级钉扎决定，而这两点主要取决于纳米线的几何尺寸，因此纳米线中的暗电流和光电流受其尺寸的影响极大。有相关文献对 InP 纳米线的理论计算表明^[56]，直径较小的纳米线其空间电荷区会导致纳米线完全耗尽，此时的能带弯曲最小，从而产生最小的暗电流，而直径较大的纳米线，具有明显的能带弯曲，阻碍了光生载流子复合几率从而实现持续光电导现象。在其他报道的 SnO₂ 纳米线和 GaN 纳米线中观察到了同样的结果。如图 1.8 所示，表面态对 n 型不同直径的纳米线中能带弯曲和光生载流子的影响示意图。

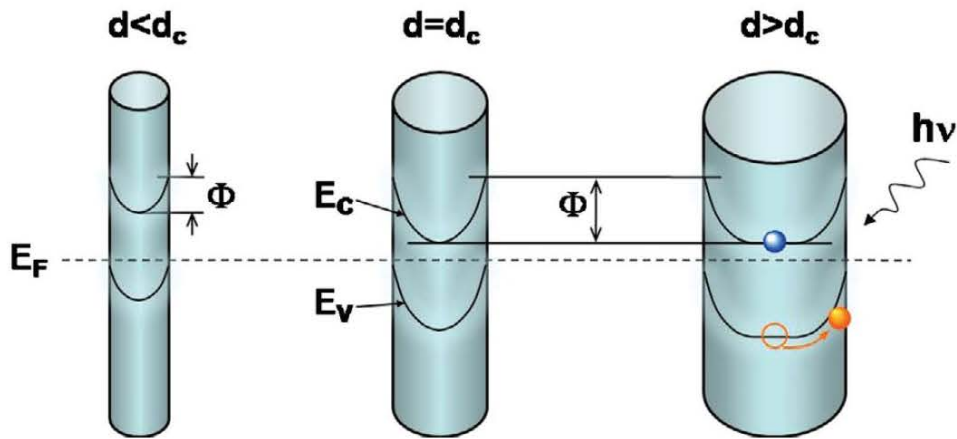


图 1.8 表面态形成的空间电荷区对不同直径的纳米线的能带弯曲程度影响示意图^[56]

Figure 1.8 Schematic diagram of the influence of the space charge region formed by the surface state, inducing the band bend of nanowires of different diameters^[56]

利用纳米线的表面态进行光探测，显示出了极大的光响应潜力。Guo 等人^[57]生长和制备了一种具有核壳结构纳米线 InAs 光电探测器（图 1.9a），实现了一种负的光电导效应。当有光照的时候，纳米线的表面态捕获光生电子，空间电荷区的存在使得被捕获的电子长时间停留在表面态之中，这些被捕获的电子对沟道内多子（电子）是一种耗尽作用，使得沟道之中的载流子浓度极大降低，即形成一种负光电导机制，如图 1.9（b）所示。而光生空穴留在沟道中与原有的载流子（电子）进行复合进一步降低沟道中载流子浓度，从而使得沟道电流被耗尽到最低状态，基本与绝缘体无异，即 $I_{ds} \approx 0$ ，如图 1.9（c）所示。通过这种负光电导作用，该器件可以实现弱光探测。

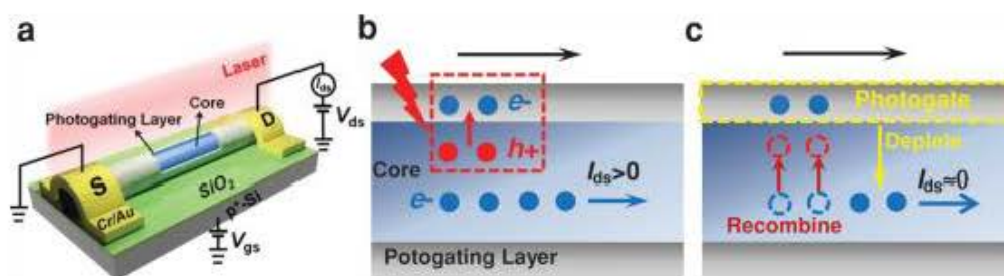


图 1.9 InAs NW 光晶体管工作原理示意图^[57] (a) InAs 纳米线晶体管的示意图，(b) 光生电子空穴对的过程，(c) 空穴与核中的自由电子重新复合

Figure 1.9 Schematic diagram of the working principle of the InAs NW phototransistor^[57]. (a) Schematic representation of InAs nanowire transistors. (b) The process of photogenerated electron-hole pairs. (c) The majority of carriers dominate the process of photodetection

Fang 等人^[58]利用 InAs 的表面态作用以及金属-半导体-金属结构制作成 InAs 纳米线光电探测器，将 InAs 纳米线的响应波长扩展到 2000 nm。由于 InAs 纳米线表面态捕获的光生电子长时间不释放，所以可以先用可见光（450nm）引起负光电导效应，如图 1.10（a）和（b）所示，使纳米线与金属电极形成了较高接触势垒，再用红外光（2000nm）进行响应，金半接触势垒可以顺利分离光生空穴进入电极，形成可探测的光电流，如图 1.10（c）和（d）所示。

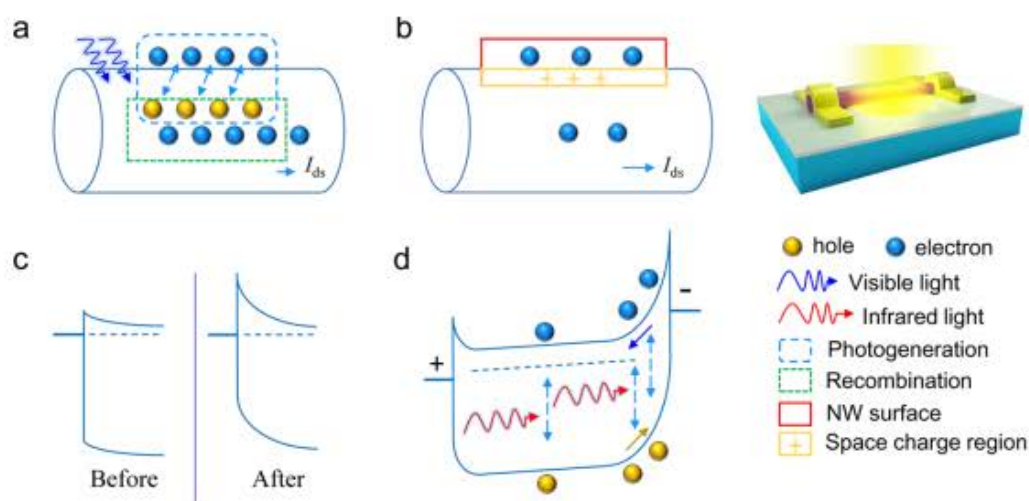


图 1.10 单一 InAs NW MSM 光电二极管的形成和工作原理在 77K 的示意图^[58] (a) 在 450nm 光照时引起的负光响应, (b) 表面态捕获的电子引起的空间电荷区, (c) 金属-半导体接触能带图和光照之前和之后的势垒高度的比较, (d) 低偏压下红外光检测的工作原理。

Figure 1.10 Schematic diagram of the formation and operation of a single InAs NW MSM photodiode at 77K^[58]. (a) Negative photoresponse process induced by 450 nm illumination, (b) A space charge region caused by electrons trapped in the surface state, (c) Metal-semiconductor contact band diagram and comparison of barrier heights before and after illumination, (d) The working principle of infrared detection under low bias voltage.

1.4 二维纳米材料

自从 2004 年石墨烯的发现以来, 由石墨烯引领的二维材料的研究热潮一直高涨, 经久不息。二维材料以石墨烯为代表, 包括过渡金属硫化物 (MoS_2 、 WS_2 、 WSe_2 等)、层状过渡氧化物 (MoO_3 、 La_2CuO_4)、拓扑半导体 (Bi_2Te_3 , Sb_2Se_3 和 Bi_2Se_3)、六方氮化硼 (h-BN)、黑磷 (BP)、硅烯、锗烯等逐渐进入人们的视野并得到了广泛关注和研究。

1.4.1 二维材料简介

2004 年英国曼彻斯特大学的 K. S. Novoselov 和 A. K. Geim 等报道了世界上第一个原子级薄膜石墨晶体管^[59] (图 1.11a), 迅速在全球引发了一场石墨烯的研究热潮, 在短短几年时间里石墨烯的研究与应用得到了蓬勃发展, 尤其在光电子

学领域的应用备受关注。

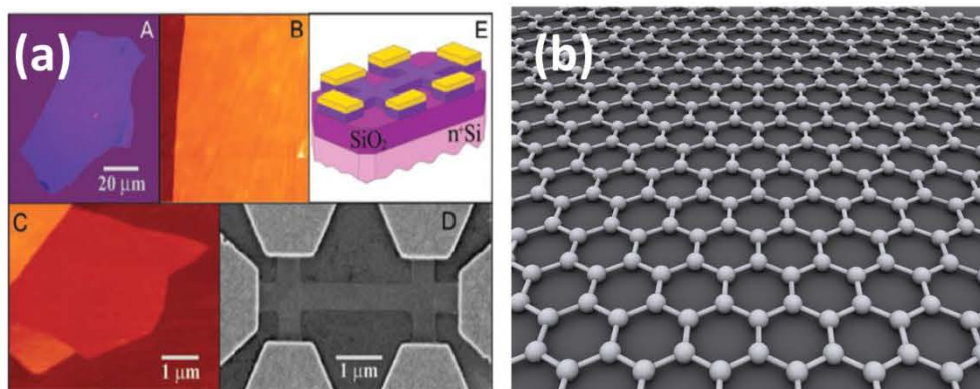


图 1.11 (a) 石墨烯晶体管，石墨烯光学照片和器件的示意图^[59] (b) 石墨烯结构示意图

Figure 1.11 (a) Schematic of graphene transistors, graphene optical photographs and devices^[59],

(b) Schematic diagram of graphene structure

石墨烯是由碳原子经 sp^2 杂化堆垛而成的二维蜂窝状网络结构^[60]，如图 1.11 (b) 所示。独特的二维结构赋予其优异的机械、电学、光学和热学等性能^[61-63]。从电子学研究角度看，石墨烯具有超高的室温载流子迁移率 ($2 \times 10^4 \text{ cm}^2/\text{V} \cdot \text{s}$)，极高的电流承载能力^[64] ($10^8 \text{ A}/\text{cm}^2$)，和极高的面内热导率^[63] ($5000 \text{ W}/\text{mK}$)。然而其零带隙特性，限制了其电子学器件的广泛应用，如由石墨烯制作的 FET 不能产生大的电流开关比。但是，随着石墨烯能够以单层原子结构稳定存在的事实被证实后，一系列原来以块状形式存在的晶体结构逐渐被发现能够以单层稳定结构存在。目前被发现或被合成的二维材料已经有上千种了。本小节主要介绍目前正在广泛研究当中的一些代表性材料。

h-BN 是一种与石墨烯的碳原子排列类似的晶格结构，其由相同数量的硼和氮原子交替组成。h-BN 是宽带半导体^[65, 66] (约 5.9 eV)，由于其良好的电绝缘性使其经常被用于电子器件结构中充当电荷的泄露阻挡层。h-BN 还因为稳定的化学性能和内在绝缘性，被用作栅极介质层、二维材料器件惰性基底层，以此来减少基底散射，显著提高器件性能。实验人员通过对比在 SiO_2 衬底和 h-BN 衬底上的石墨烯器件输运性能，结果表明 h-BN 衬底降低了石墨烯的载流子不均匀性，使石墨烯表现出较强的迁移率^[67]。通过使用与石墨烯相同的晶格常数和六边形结构，h-BN 能够提高石墨烯的稳定性和质量，增强器件的电子和光子性能。此外，

使用 h-BN 用作其他二维材料 (BP、WSe₂)^[68, 69]也能达到相似功能。

层状过度金属硫化物 (TMD) 是一类二维材料的总称, 这类材料已经包含了 40 多种材料, 它们具有一个通用的化学式 MX₂, 其中 M 是通常处于 IV 族到 VII 族的过渡金属元素, X 则是硫族元素 (S, Se 或 Te)^[70-72]。TMD 当中比较常见是有 MoS₂、WS₂、WSe₂ 等。其中作为典型材料的 MoS₂ 是 Kis 等人^[73]在 2011 年首次通过机械剥离方法制得。如图 1.12 所示, 是 MoS₂ 的原子结构示意图。图中显示的是三层 MoS₂ 材料, 层与层之间依靠范德华力结合; 而层内是由单独的三层原子组成, 过渡金属原子 (Mo) 被两层硫族原子 (S) 夹在中间。MoS₂ 的层内结合力强于层间的范德华力, 所以可以通过机械剥离方法得到单层 MoS₂。此外, 由于 S 原子是饱和的, 因此 MoS₂ 不易与外界材料发生反应。另外, 由于单层 MoS₂ 内电子的跃迁方式是竖直跃迁 (价带至导带), 所以其单层是直接带隙半导体 (1.8 eV)。而双层或多层时, 它是间接带隙材料 (块体带隙 1.2 eV)。单层或少层过度金属硫化物由于在垂直面内方向没有相互作用力, 并且载流子被限制在二维面内, 从而显示出了与块状金属硫化物明显的性质区别, 使得他们在催化、电子学和光子学等领域具有广泛的应用前景^[74]。

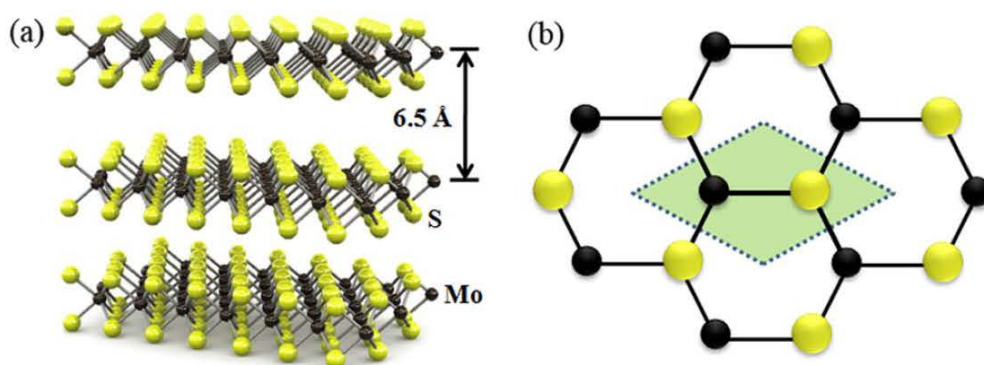


图 1.12 (a) 金属硫化物 MoS₂ 晶格结构示意图^[73], (b) 单层 MoS₂ 原子排列俯视示意图^[73]

Figure 1.12 (a) Schematic diagram of the lattice structure of the MoS₂^[73], (b) Schematic diagram of the single-layer MoS₂ atomic arrangement^[73]

BP 作为二维材料之中的“明星”材料, 一直受到人们的广泛关注和研究^[75-77]。BP 是 Zhang 等人^[75]在 2013 年通过机械剥离方法首次制得。BP 具有极高的室温载流子迁移率, 其带隙随层数变化从单层 (2 eV) 到多层 (0.3 eV), 与 TMD 不

同的是, BP 的单层至多层都是直接带隙材料, 这是 TMD 所无法比拟的。由于其双极性物理特性, 实验中, 可以通过外电场控制其 p 和 n 型之间的转换。如图 1.13 (a) 所示, 是 BP 的原子结构示意图, 每个磷原子与三个相邻原子以 sp^3 杂化轨道结合, 形成蜂巢晶格结构^[75]。每个磷原子有五个价电子 ($3s^23p^3$), 其中都含有一对孤对原子, 因此 BP 在空气中十分不稳定。另外, 从图中可以看出黑磷的原子排列结构特殊, 沿水平方向的磷链是一种高低起伏结构, 我们称之为“扶手椅”结构, 这是由于磷原子 sp^3 杂化结合所致, 其与沿垂直纸面的方向在载流子有效质量和速度上的表现截然不同, 因而他们对光子吸收、电子输运表现出极大的行为差异^[78]。该特殊结构对不同方向入射的偏振光具有选择吸收性, 利用黑磷材料制备的光电探测器具有偏振敏感性。

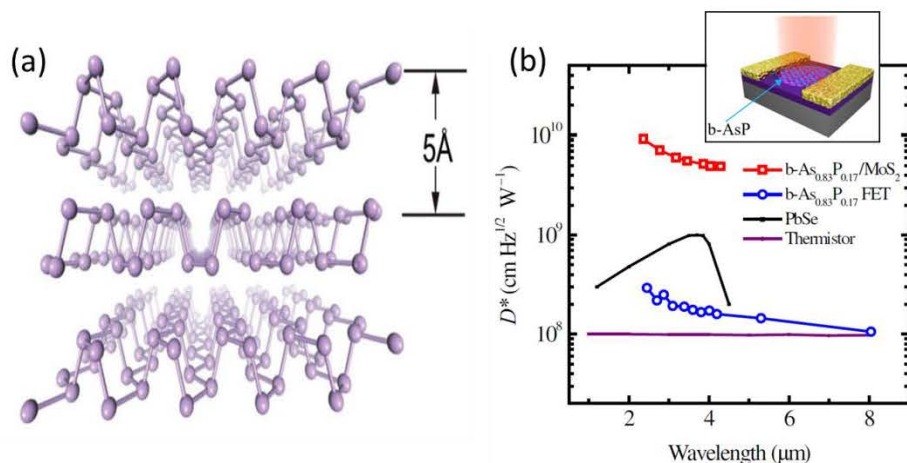


图 1.13 (a) 二维材料 BP 的晶格结构示意图^[75], (b) b-AsP 响应到 $8\mu\text{m}$ ^[79]

Figure 1.13 (a) Schematic diagram of the lattice structure of black phosphorus^[75], (b) b-AsP can response to $8\mu\text{m}$ wavelength light^[79]

值得一提的是与 BP 类似的一种材料--黑砷磷 (b-AsP)^[80]。它是一种 BP 与 As 原子以 $\text{As}_x\text{P}_{1-x}$ 形式存在的合金, 相比于 BP, b-AsP 具有更加优异的性能。通过改变磷的组成比例 x , 带隙相应地从 0.3 变化到 0.15eV, 表明 b-AsP 可以探测到长达 $8.5\mu\text{m}$ 波长光, 如图 1.13 (b) 所示。该探测范围不仅完全覆盖了第一个大气波长的红外波段 ($3 \sim 5\mu\text{m}$), 而且还扩展到了第二大气窗口 ($8 \sim 14\mu\text{m}$) 长波红外, 使得 b-AsP 在超宽谱光电探测方向极具吸引力。此外, 由于 b-AsP 与 BP 晶格结构类似, 用 b-AsP 制作的光电器件也表现出了良好的偏振选择性^[79, 81]。

1.4.2 二维材料光电探测器

利用二维材料的优秀性能,如室温高迁移率、宽波段响应、低电压工作、范德华力堆叠特性等制作的光电探测器具备非制冷、响应中波红外等优势^[6, 82, 83]。虽然二维材料具有非常强的光电转换能力,但是由于二维材料的尺度太薄,导致其总体吸收性能受到限制。为了提高二维材料探测器的响应率和探测率,一些特殊结构被提出,这些结构包含了二维材料与各种半导体材料(二维材料、体材料、纳米颗粒、量子点、硅波导等)结合的耦合结构,本节按照不同的工作机制或结构分别介绍一些高性能的探测结构,共包括9种,分别为光伏效应、光热电效应、辐射热效应、等离子体共振波辅助、金属-二维材料-金属结构、微腔或波导或等离子体基元增强、异质结、石墨烯辐射热计、太赫兹探测器

(1) 光伏效应、光热电效应和辐射热效应这三种机制在传统材料中已经被广泛研究和应用。光伏效应利用在光敏材料形成结区的内建电场有效分离光生电子空穴对,其内建电场可以是局域掺杂、栅极调控、金半接触、金属覆盖层等构建。如图 1.14 (a) 所示,对石墨烯两边分别进行 p 和 n 区掺杂,形成的 pn 结快速分离光生载流子,结果显示该器件在红外光的全照射下显示出~5%的电导调制^[84]。光热电效应也就是塞贝克效应,指的是光生热电子可以产生光伏电压 V_{PTE} , 通过以下公式得到: $V_{PTE} = (S_1 - S_2) \Delta T_e$, 其中 S_1 和 S_2 是不同材料的塞贝克系数, ΔT_e 是不同区域之间电子温度差。所以采用不同塞贝克系统的材料制作光电探测器,在光照下可以实现光伏信号输出,如图 1.14 (b) 所示。由于热电子不是晶格产生的,所以石墨烯光热电器件可以实现高带宽探测^[85]。光辐射热效应是指入射光子引起光敏材料的温度升高产生电导变化的现象^[82]。由于这种光电探测机制是基于辐射热诱导的电导变化,而不是依赖光电效应产生光电流,因此它需要外部施加偏压并均匀地作用在光敏元上,从而驱动光生载流子的输出。由入射光引起的电导变化可归因于两种机制:(1) 由于相关的温度变化引起的载流子迁移率的变化(2) 对当前有贡献的载波数量发生变化。基于光辐射效应的器件主要用于亚毫米 (THz) 波长探测。

(2) 等离子体共振波辅助探测机制最早由 Dyakonov 和 Shur 于 1993 年提出,它是通过使用 FET 结构响应振荡辐射场从而产生一个直流电压信号进行探测^[86]。

如图 1.14 (c) 第四幅图所示它是通过将承载二维电子气的 FET 充当等离子体波微腔来实现的。当从源极发射的等离子体波能够在动量弛豫时间之内更快地到达漏极, 则会在腔内形成等离子体波相干干涉, 形成一个共振增强反应, 这就是所谓的等离子体波光电探测器的共振方式, 该方式产生的信号比宽带非共振信号强 5-20 倍。

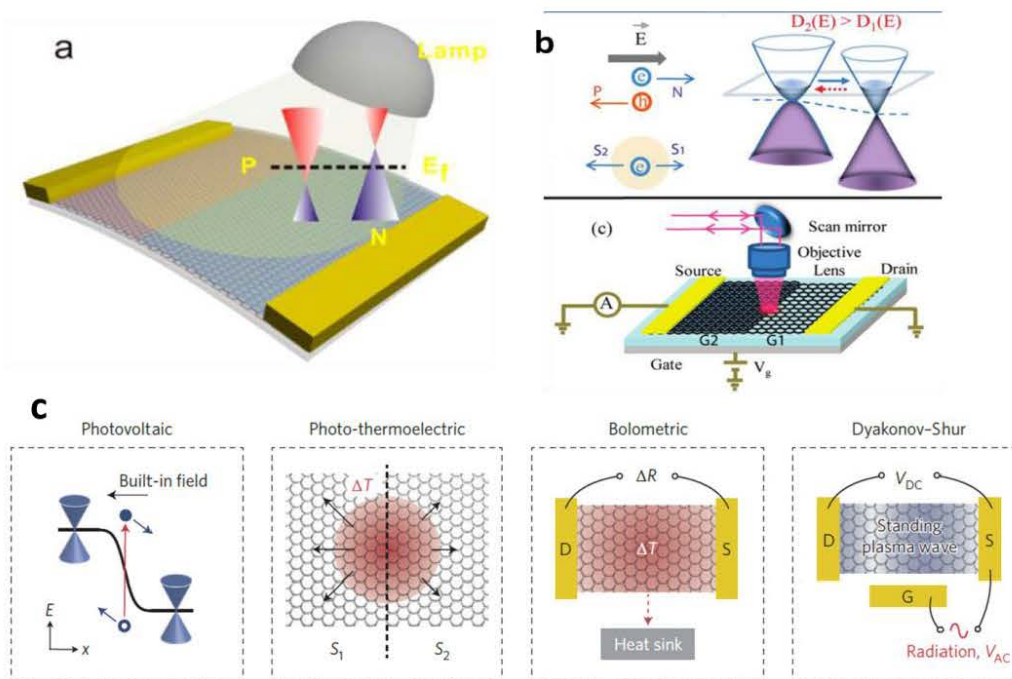


图 1.14 (a) 基于石墨烯的光伏型光电探测器^[84], (b) 基于单双层石墨烯的光热电效应器件^[85], (c) 四种探测机制的工作原理图^[82]

Figure 1.14 (a) Graphene photovoltaic photodetectors^[79], (b) Photo-thermoelectro devices based on single and bilayer graphene^[85], (c) Working principle diagram of four detection mechanisms^[82]

(3) 金属-二维材料-金属结构光电探测器^[87, 88]。该结构主要是利用金属跟二维材料的接触结的光伏效应有效分离光生载流子来进行光电探测。与光热电效应不同的是, 利用这种光伏效应产生的光生电流方向与之恰好相反, 这也是辨别光伏效应与光热电效应的一种有效手段。由于利用这种金半接触产生的光电流仅仅发生在结区附近亚微米长度范围内, 因此可以采用一种“交叉指”结构来增加有效光电探测面积, 如图 1.15 (a) 所示^[89]。这种想法首先在石墨烯上实现, 由于利用同种金属源漏电极“交叉指”结构难以破坏半金属石墨烯的镜像对称性(反而会带来大的暗电流), 因此实验中采用不同金属材料构建源漏电极方案(需满足

能带匹配原则)，得到零偏压下无暗电流的高效光电探测。

(4) 通过在两端器件外部构建光学元素可以增强光探测能力，比如表面等离子体激元、波导、光学微腔等。如图 1.15 (b) 所示，是在 MoS_2 材料上制作的一层表面等离子体基元结构，这些结构主要由一些特殊图案的金属纳米结构构成^[90]。他们通过入射光场引起金属纳米结构中的表面局域等离子体增强来增强光探测。值得一提的是，该纳米结构的尺寸决定了何种波段范围的光被增强，因此这种器件具有光波长选择性放大功能，实现光的过滤和检测。另外，一些特殊结构可以为其带来偏振光的选择吸收功能^[91]。如图 1.15 (c) 所示，是石墨烯与硅波导的共面集成图，其中硅波导中的光学模式通过其尾部逐渐耦合到其上的光敏材料（石墨烯）当中^[92]。该结构在光学通信窗口上几乎没有下降的趋势，其探测范围也远远超过了锗探测器，并且表现出了高速传输数据的潜力。如图 1.15 (d) 所示的光学微腔，是利用四分之一波长厚度的材料交替叠加而成的分布式布拉格反射器^[93]。入射光在微腔内被多次反射，因此多次经过光敏材料（石墨烯）被多次吸收，从而提高了响应率和探测率，该文献报道 60% 以上的光被吸收，远高于单层石墨烯的吸收上限（2.3%）。

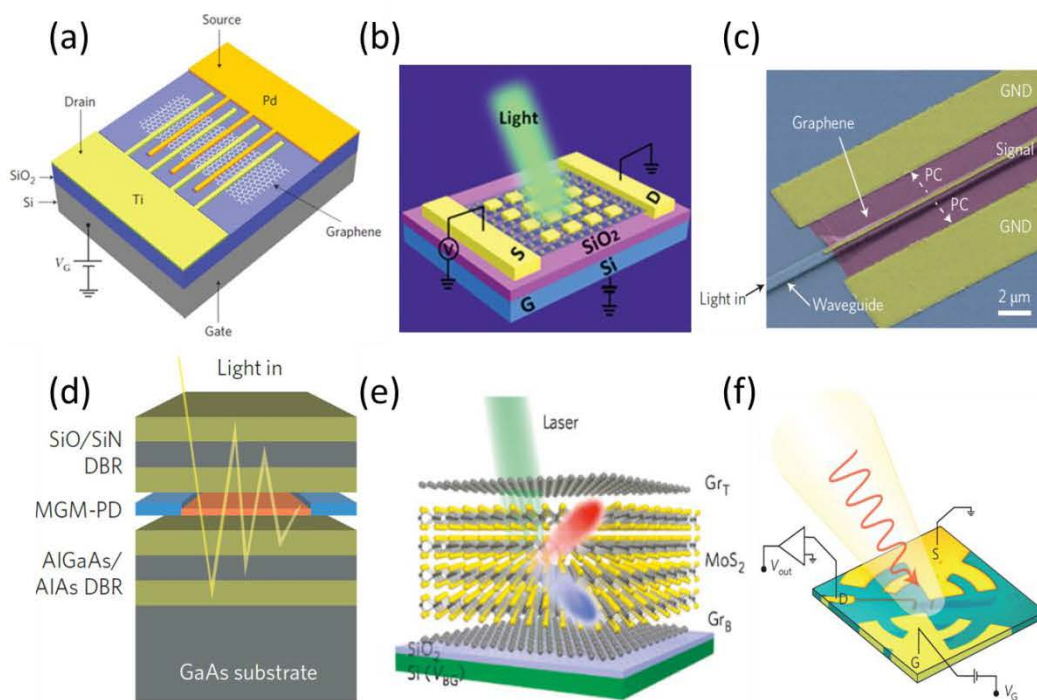


图 1.15 (a) 基于非对称电极“交叉指”状石墨烯光电探测器^[89]，(b) 基于表面等离子体基元增强的 MoS_2 光电探测器^[90]，(c) 硅波导与石墨烯耦合光电探测器^[92]，(d) 基于谐振腔增

强的光电探测器^[93], (e) 二维材料异质结光电探测器^[94], (f) 二维材料太赫兹光电探测器^[95]

Figure 1.15 (a) Based on an asymmetric electrode "interdigitated" graphene photodetector^[89], (b) a surface plasmon-based enhanced MoS₂ photodetector^[90], (c) a Si waveguide and graphene-coupled photodetector^[92], (d) Photodetector based on cavity enhancement^[93], (e) 2-dimensional heterojunction photodetector^[94], (f) two-dimensional material THz photodetector^[95]

(5) 二维材料异质结器件。因为二维材料的表面没有悬挂键, 意味着它们可以不受晶格匹配的限制随意堆叠, 可以用来构建多层堆垛结构的范德华异质结。因此目前已经有大量的二维材料异质结被研制出来, 这些异质结主要分为面内和垂直异质结两大类。如图 1.15 (e) 所示, 是一种 Graphene-MoS₂-Graphene 结构, 该结构中具有两个 Graphene/MoS₂ 肖特基势垒, 在背栅的调控下可以形成能带单调倾斜的结构, 进一步通过双栅调控, 该光探测器实现最大的内量子效率和外量子效率分别高达 85% 和 55%^[94]。二维材料堆垛器件所能实现的功能远不如此, 还有很多^[96-98]。

(6) 此外, 由于石墨烯具有极高的载流子迁移率, 使得其在太赫兹光电探测器 (0.1-10 THz, 30-300 μm) 领域很有前景。如图 1.15 (f) 所示, 是一种利用天线耦合增强太赫兹探测的石墨烯器件^[95]。还有一些拓扑绝缘体 (如 Bi₂Se₃) 也适合太赫兹光电探测^[99]。

(7) 基于石墨烯的辐射热测量计。通过给单层石墨烯两端加载偏置电压, 可以在室温下测量热辐射响应^[100, 101], 辐射热测量计是当前光探测器中最敏感的一种。在石墨烯辐射热测量计中, 存在两种相互竞争的探测机制, 它们可以产生方向相反的光电流: 一种是光激发的载流子导致的电导增强 (光伏效应), 另一种是受温度影响迁移率变化 (光热电效应) 从而导致的电导减少。通过改变石墨烯的费米能级, 可以控制哪种机制占主导地位。在石墨烯的狄拉克点附近, 载流子密度低, 此时光伏效应占主导地位, 而在远离狄拉克点的位置光热电效应占主导地位^[100]。为了成功发挥石墨烯辐射热测量计的优势, 可以通过两种方法来打开石墨烯的带隙来满足这一要求: 一种是制作具有光学透明顶栅的双栅调控 (顶栅和背栅) BLG 器件^[101], 另一种方法是通过添加无序结构使得石墨烯的电子系统进入强局域范围, 这种配置结构需要在低温下进行探测^[102]。

1.4.3 photogating 效应

除了上一小节介绍的增强探测方法和结构外,还有两种具有极大增益的探测结构。本小节主要介绍其中一种: photogating 效应^[103-106]。要实现这种效应,需要结构上存在 photogating 层(与沟道层分开的一种结构)。当光照射器件时,引起 photogating 层或沟道层中产生光生载流子,在 photogating 层与沟道层之间的内建电场作用下,光生电子空穴对被快速分离,且其中一种载流子被 photogating 层捕获并长时间局域住,另一种载流子则留在沟道层中。在 photogating 层中被捕获的载流子对沟道层产生强局域作用,从而产生极大增益,可以对外输入较大电流信号。在这种器件中,其光电流 I_{ph} 由以下公式决定:

$$I_{ph} = g_m \times \Delta V_g \dots\dots\dots (1-4)$$

其中 g_m 是器件的跨导, ΔV_g 是入射光引起的额外“栅”电压。另一方面,光电流可表示为:

$$I_{ph} = N \cdot \alpha \cdot \eta \cdot e \cdot G \dots\dots\dots (1-5)$$

其中 N 是入射的光子个数, α 是材料的吸收系数, η 是内量子效率, e 是单位电荷, G 是光电导增益。其中可表示为 G :

$$G = \tau_r / \tau_T = (\tau_r \mu / L^2) V_{bias} \dots\dots\dots (1-6)$$

其中 τ_r 是载流子寿命, τ_T 是载流子的渡越时间, L 是沟道长度, μ 是载流子迁移率, V_{bias} 是器件两端的偏压。很显然,可以通过延长载流子寿命 τ_r 来获得较高的光电导增益 G , 从而获得大的光电流 I_{ph} , 但是同时带来的缺点就是器件的响应速度变慢。因此,在 photogating 结构器件中,光电增益与响应速度不可兼得。由此,在不将响应速度列为重点追求指标时, photogating 结构的高响应率和高探测率优势大受欢迎。例如,2012 年 Gerasimos Konstantatos 等人^[107]通过将 PbS 量子点与石墨烯相结合的方式,构造了一种 photogating 结构器件,实现了 $\sim 10^8$ 的光增益, $\sim 10^7$ A/W 的响应率和 7×10^{13} Jones 的探测率。如图 1.16 (a) 所示, PbS 量子点充当 photogating 层和吸收层,石墨烯充当沟道层。当入射光照到 PbS 时,产生电子空穴对,在 PbS 量子点与石墨烯界面处的内建电场作用下,空穴被分离到石墨烯之中,电子留在量子点中。这些留在量子点中的电子对沟道石墨烯

形成一种强局域场（photogating 效应），产生极大增益和高响应率和探测率。二维材料也可以充当 photogating 层，如图 1.16（b）所示，双层石墨烯结构，上层石墨烯充当 photogating 层，下层石墨烯是沟道材料，中间是 5 nm 的 Ta_2O_5 ，充当隧穿层^[104]。由于该器件依靠上层石墨烯充当吸收层，所以具有一个宽光谱吸收特性，且在中波波长达到 1A/W 的高响应率。

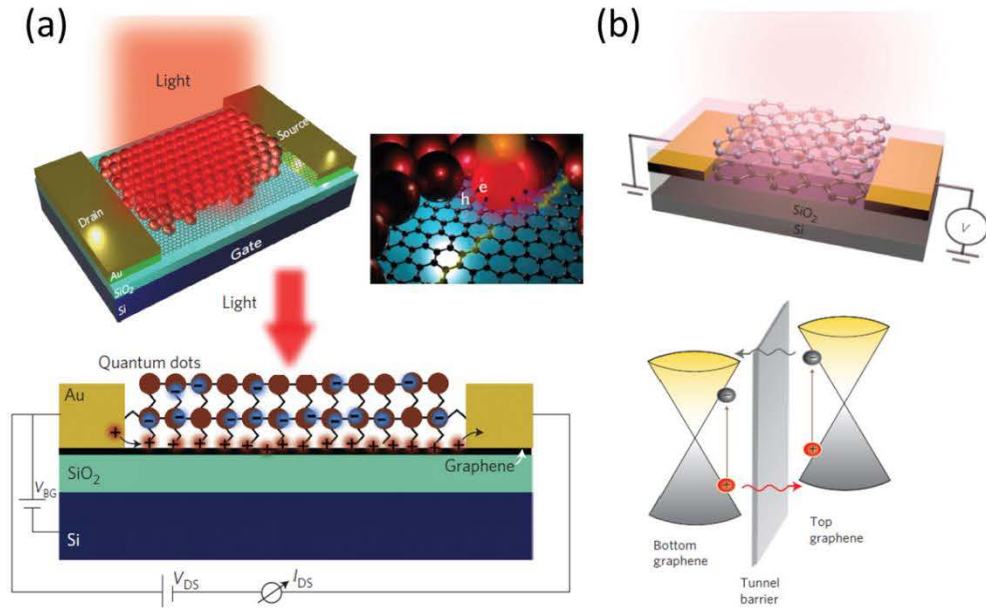


图 1.16 photogating 型光电探测器 (a) PbS 量子点与石墨烯相结合光电探测器^[107], (b) 双层石墨烯 photogating 型光电探测器^[104]

Figure 1.16 photogating photodetector (a) PbS quantum dot combined with graphene photodetector^[107], (b) bilayer graphene photogating photodetector^[104]

1.4.4 浮栅结构

为了获得稳定和快速的数据存储，在 1967 年 Kahng 和 Sze^[108]提出了一种浮栅结构，该结构类似于 FET 结构，是在栅极与沟道层之间构建一层额外的栅极，该额外栅极通常用来捕获电荷，充当电荷捕获层。二维材料利于浮栅存储结构器件往体积更小、能耗更小、存储密度更高方向发展，因此基于二维材料的浮栅结构器件大量涌现，并且具有非常优秀的光电探测性能。早在 2010 年，基于氧化还原的石墨烯浮栅结构被制作，如图 1.17（a）所示，其中 Au 纳米线颗粒充当浮栅，氧化还原石墨烯充当沟道。该器件表现出了良好的存储特性^[109]。如图 1.17

(b) 所示, 利用 Al_2O_3 与 HfO_2 之间界面处的表面态实现器件的存储功能^[110]。浮栅结构不仅具有存储功能, 还具有光检测功能。如图 1.17 (c) 所示, 利用柔性衬底制作的浮栅结构光电探测器表现出了良好的光探测性能^[111]。

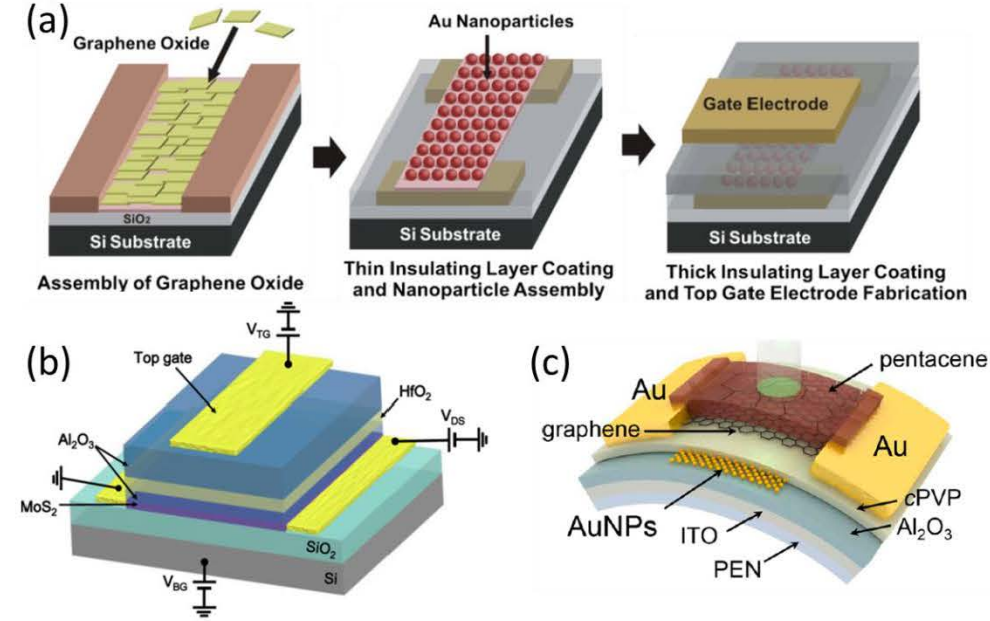


图 1.14 (a) Au 纳米线颗粒充当浮栅捕获层的存储结构^[109], (b) 氧化物界面态充当浮栅捕获层^[110], (c) 柔性浮栅存储结构光电探测器^[111]

Figure 1.14 (a) Au nanowire particles act as a floating gate memory structure^[109], (b) oxide interface state acts as a floating gate^[110] (c) flexible floating gate memory photodetector^[111]

1.5 本论文的研究内容及章节安排

本论文致力于设计增益型高灵敏光电探测器, 以实现单光子探测功能。利用低维材料领域的光电探测增益机制实现信号放大, 为实现单个光子的探测、室温工作、偏振敏感的单光子探测器件进行了深入的研究, 并探究了光与增益器件作用的物理机制。本论文各个章节内容安排如下:

第一章首先阐述了量子通信领域对单光子探测器的重要需求, 以及当前单光子探测器存在的种类和他们的工作机理, 接着介绍了一维材料纳米线的发展简况以及纳米线光电探测器的种类, 随后简单介绍了二维材料存在的种类和基于二维材料制作的不同探测机理的光电探测器。最后, 介绍了在二维材料之中具有高增益放大效应的两种探测机制。

第二章介绍了为实现高灵敏的光电探测器，构建了基于二维材料 WS_2 和 MoS_2 浮栅储存结构的光电探测器，其中利用 Au 纳米颗粒充当浮栅电子捕获层，来降低沟道材料 WS_2 （或 MoS_2 ）的暗电流（噪声的最大来源）达到存储器件的编程状态，利用这种编程状态进行光探测，极大提高了探测器的响应率和探测率。

第三章介绍了为实现更高灵敏的光电探测器件，制作基于 photogating 增益机制的 CdS 纳米线光电探测器。该纳米线具有核壳结构，核层充当 photogating 层，当光入射引起 photogating 放大效应，成功实现室温下单个光子的探测，并分辨出入射的 1~3 个光子。另外，得益于一维纳米线结构，该单光子探测器同时具备偏振敏感特性，为量子通信领域的集成化单光子探测器提供了新思路。

第四章为实现高灵敏的红外光子探测器，构建了基于非对称金属和非对称面积接触的 InP 纳米线红外光电探测器。利用 photogating 效应和肖特基势垒双重作用，器件在 140 K 下探测到 6 个光子/秒。此外归功于非对称结构，器件表现出了高整流比、光/电开关等多功能特性。

第五章为实现高灵敏、偏振探测的红外通讯波段的高灵敏光电探测器，利用 photogating 放大机制，基于二维材料堆垛结构 (BP/WSe_2)，实现了室温下高灵敏探测。由于上层采用黑磷充当吸光层和 photogating 层，而黑磷具有较窄直接带隙 ($2\text{ eV}\sim 0.3\text{ eV}$) 和固有偏振敏感特性，因此该器件表现出高灵敏性和偏振光选择吸收特性，为实现集成化功能的单光子探测器提供了一条有效途径，为片上集成的单光子探测器提供了一条有效思路。

第六章总览全文，对各章的研究内容和成果进行了总结，并对本论文课题研究进行了展望。

第2章 基于浮栅效应的二维材料存储型光电探测器

为实现高响应率、高探测率的二维材料光电探测器，本章介绍了一种增强二维材料 WS_2 （或 MoS_2 ）探测方法的存储型光电探测器。通过在沟道材料 WS_2 或 MoS_2 上制作栅电极降低暗电流，同时在栅电极与沟道材料之间制作一些类量子点的金颗粒（浮栅层），研究发现，这些金颗粒可以有效地捕获隧穿电子，从而强烈、高效、稳定地抑制暗电流。在光入射状态下可以快速恢复到原始状态，从而大幅度提高光响应率和探测率。 WS_2 器件在低源极/漏极和零栅极电压下可以获得 10^{-11} A 的低暗电流，在 520 nm 波长光入射下，可以获得 1090 A/W 的高光响应率以及 3.5×10^{11} Jones 的高探测率。这些结果表明浮栅存储器结构是实现高性能光电探测器的一种有效结构配置。

2.1 引言

在过去的几年中，二维层状材料中石墨烯已被广泛用作高载流子迁移率的活性材料和超宽带光电晶体管、光学调制器、等离子体器件以及超快激光器^[104, 112-114]。除了石墨烯之外，由层状结合的 S-W-S 原子构成的二硫化钨（ WS_2 ）也得到了广泛的关注^[115-118]。 WS_2 是典型的 2D 半导体材料，带隙范围从 1.3 到 2.05 eV，具体带隙取决于材料的层数，层数越薄，带隙越大。它具有独特的性质，包括低有效质量、超过 $1000 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ 的高理论载流子迁移率，高量子效率和热稳定性。基于少层 WS_2 的场效应晶体管具有 4×10^6 的高 ON/OFF 电流比， $380 \mu\text{A}/\mu\text{m}$ 的漏极电流密度，以及 $60 \text{ cm}^2\text{V}^{-1}\text{s}^{-1}$ 的峰值场效应迁移率。由于这些独特的特性， WS_2 已成为未来电子和光电应用的潜在候选材料。然而据报道，化学气相沉积（CVD）合成的单层 WS_2 的光响应性在真空中仅为 18.8 mA/W ^[119]。且该实验条件采取了相当高的栅极电压（60 V）和源漏偏压（ $V_{\text{ds}} = 20 \text{ V}$ ），这些高电压不仅导致高能耗，而且还导致制造器件的漏电流显著增加，从而降低了器件的探测灵敏度 D^* 。对于机械剥离的 WS_2 ，目前制备的光电探测器仍然表现出低的响应率，但是已经比 CVD 生长的高两个数量级^[120, 121]。然而，高工作电压仍然会导致相当高的漏电流。为了实现高响应率、高探测率的二维材料光电探测器，本节设计和制备了一种基于浮栅存储结构的 WS_2 光电晶体管，并获得了优异的光电性能。

为了抑制器件沟道中的暗电流，在隧穿层和阻挡介电层之间生长金纳米颗粒（AuNP）用作浮栅电荷捕获层。以这种方式，被捕获的电子将耗尽沟道 WS_2 的本征载流子浓度。更重要的是，器件可以在低 V_{ds} （20 mV）和零栅极电压下实现高探测率（ 3.5×10^{11} Jones）和响应率（1090 A/W）以及低暗电流（ 10^{-11} A）。为了进一步证明所提出的浮栅存储结构的普适性，同种还设计了浮栅 MoS_2 光电晶体管，其光响应率为 59.2 A/W，探测率为 3.8×10^{10} Jones。

2.2 基于浮栅效应的 WS_2 和 MoS_2 存储型光电探测器的制作

实验中首先采用机械剥离方法得到少层的 WS_2 二维晶体，如图 2.1（a）所示。在二维材料制作中，往往容易得到少层与多层材料结合在一起的特殊结构，这是二维材料的层间范德华力导致的。在本实验中，我们使用图中薄层材料，图中十字架长度为 50 μm ，所以 WS_2 材料长宽约为 30 μm * 10 μm 。实验之前往往需要通过实验手段确定其物质成分，比如拉曼、光致发光等。本实验中，采用了拉曼测试手段。如图 2.1（b）所示，其拉曼峰分别为 352.31 和 317.65 cm^{-1} ，分别对应于振动峰 $\text{E}_{2\text{g}}^1$ 和 $\text{A}_{1\text{g}}$ ，这与之前文献报道是一致的。

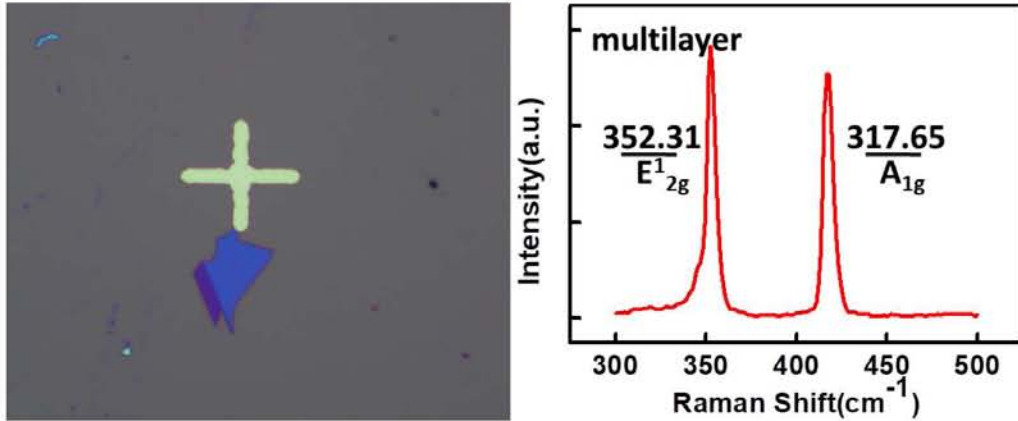


图 2.1 （a） WS_2 二维材料光学显微镜图，（b） WS_2 二维材料的拉曼测试图

Figure 2.1 (a) Optical microscopy of WS_2 , (b) Raman spectrum of WS_2

随后采用电子束光刻方法在二维材料两端分别自定义源漏电极。首先，样品被机械剥离到带有 285 nm 厚度 SiO_2 氧化层的低阻硅衬底上，在显微镜下借助之前做好的金属十字架标记找出 WS_2 材料所在位置并标记，然后利用软件 Design CAD 在光学照片里的 WS_2 材料两端自定义源漏电极；在样品表面旋涂 PMMA

胶, 4000 转/分钟, 烘烤 5 分钟。然后利用电子束曝光系统按照 Design CAD 软件自定义的源漏电极在基底纳米线的两端光刻出对应的图形。随后, 利用 PMMA 显影液进行显影。将样品放入热蒸镀系统中进行蒸金, 金属分别为铬/金, 厚度为 15/45 nm。将蒸上金属的样品放入丙酮液体中, 以 50 度加热浸泡 30 分钟, 去胶效果更好。至此器件的源漏电极制作完毕。

本实验中的浮栅结构是在简单的源漏电极基础上继续加工制作完成的。由于二维材料的空间自洽性, 其边缘处没有悬挂键, 不利于其与氧化物物质紧密结合。实验中, 首先在做好了源漏电极的 WS_2 二维材料上沉积一层厚度为 1 nm 的金属铝作为种子层, 使用热蒸镀或者电子束蒸发蒸镀金属铝, 实验中需要精确控制其厚度。由于 1 到 2 nm 的 Al 纳米颗粒不会形成薄膜, 只在材料表面形成一些种子颗粒, 所以对沟道材料的导电性没有影响。接着, 使用热型原子沉积系统 (ALD) 在样品表面沉积一层二氧化铪 (HfO_2) 薄膜, 厚度为 6.5 nm, 该厚度的 HfO_2 可以使得室温下的自由电子顺利隧穿。随后, 在该样品表面蒸镀 1 nm 厚度的 Au 纳米颗粒, 采用电子束蒸发或热蒸镀蒸发, 严格控制厚度, 1 nm 的 Au 不会形成薄膜, 形成颗粒状量子点, 该 Au 颗粒在本实验中起着关键性作用。如图 2.2 (a) 所示, 为 1 nm Au 颗粒的 SEM 图, 从图中可以看到类量子点的 Au 颗粒。在此样品基础之上, 继续使用 ALD 沉积 20 nm 厚度的 HfO_2 , 此时 HfO_2 的作用则是充当顶栅的栅介质。最后在材料上方制作栅电极, 本实验中因为主要测试器件的光响应性能, 所以顶栅电极需要透光, 实验中采用的是透明电极氧化铟锡 (ITO), 使用磁控溅射在室温下溅射得到。使用磁控溅射生长的 ITO 材料的生长温度与 ITO 材料的导电性有很大关系, 室温时生长的 ITO 导电性相较于高温 300 度生长时的导电性要低, 但在本实验中 ITO 只是用来施加栅极电压, 不需要良好导电性, 因此室温下生长的 ITO 依然能很好地充当栅极电极。最后做成的器件的 SEM 图如图 2.2 (b) 所示。图 2.2 (b) 中的标度尺为 5 μm , 器件的沟道长度约为 1.1 μm , ITO 的厚度为 100 nm, 从图中可以看出 ITO 的透光性良好, 所以 ITO 将不会影响本实验器件的光响应性能。

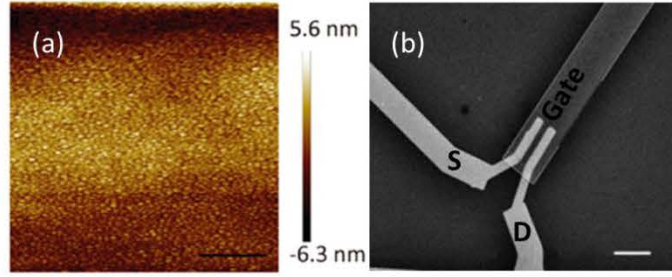


图 2.2 (a) 1nm 厚度 Au 纳米颗粒 SEM 图, (b) WS_2 浮栅晶体管 SEM 图

Figure 2.2 (a) SEM of 1 nm thick Au nanoparticles, (b) SEM of WS_2 floating gate transistor

实验中除了源漏电压施加偏压, 还在背栅与顶栅施加电压, 背栅是 Si 基底, 因为实验中 Si 是采用重掺杂的 Si 基底, 所以具有良好的导电率; 顶栅则是透明的 ITO 电极。本实验器件的三维立体展示图如图 2.3 所示。

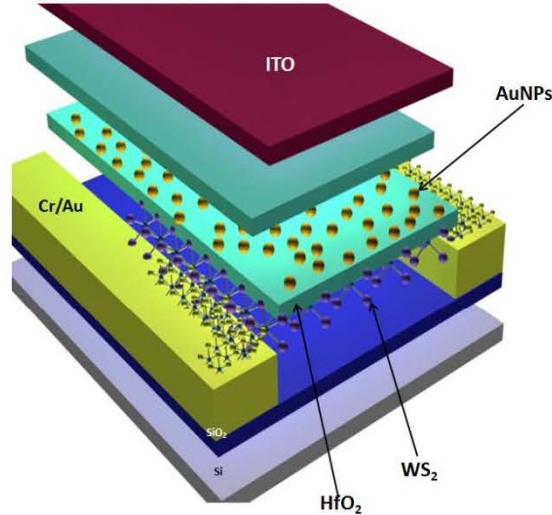


图 2.3 WS_2 浮栅存储器件的三维立体展示图

Figure 2.3 Three-dimensional schematic of the WS_2 floating gate memory device

2.3 基于浮栅结构器件及其基本物理模型

如图 2.4 (a) 所示, 展示了在无光照, 室温情况下, 器件的沟道电流随顶栅电压变化的转移特性曲线。器件两端加载的源漏偏压 $V_{ds}=10 \text{ mV}$ 。顶栅电压首先从-10 伏扫描到+10 伏, 然后从+10 伏扫描到-10 伏, 从图中可以看到转移特性曲线的回滞非常大, 存储器的窗口宽度约为 9 伏, 这与器件内部捕获电子的过程有关。另外, 从图中可以看出当顶栅电压 $V_g = 0\text{V}$ 时, 器件电流的开关比大于 10^3 。如图 2.4 (b) 所示, 分别给顶栅施加一个

正电压或负电压脉冲，可以看到器件能够保持高电流和低电流状态较大时间，在 600 秒时间内，器件能够稳定地保持住两种电流状态，且其高电流/低电流状态始终稳定在 10^3 差距，该结果表明浮栅结构的电荷漏电现象可以忽略不计。其中，我们把高电流状态定义为擦除状态，在此状态下，器件的电流较大，与没有浮栅结构时的电流一致；我们把低电流状态定义为编程状态，该低电流的获得主要归功于浮栅中特殊的电子捕获层——类量子点的金颗粒这种特殊结构。

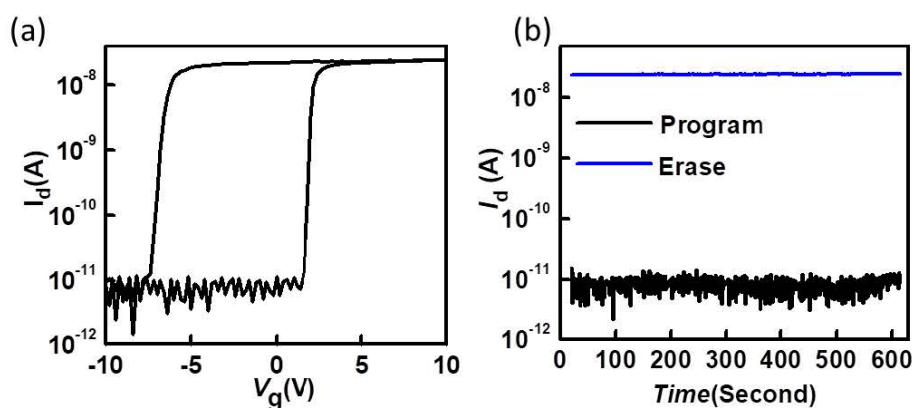


图 2.4 (a) 室温无光照情况下，器件在顶栅作用下的转移特性曲线，(b) 器件在正负两种顶栅触发作用下维持的长时间工作状态，包括编程和擦除两种状态

Figure 2.4 (a) The transfer characteristic curve of the device under the action of the top gate at room temperature without light, and (b) The long-term operation state of the device under the action of the positive and negative top gate triggers, including programming and erasing states

作为对照实验，在本工作中，同时制作了没有金颗粒的顶栅 ITO-WS₂ 器件。如图 2.5 所示，器件在顶栅电压为 0V 时，高电流与低电流之间没有太大区别，而是表现出跟普通背栅电压一样的转移特性曲线，即器件并没有表现出存储器件的擦除和编程状态。

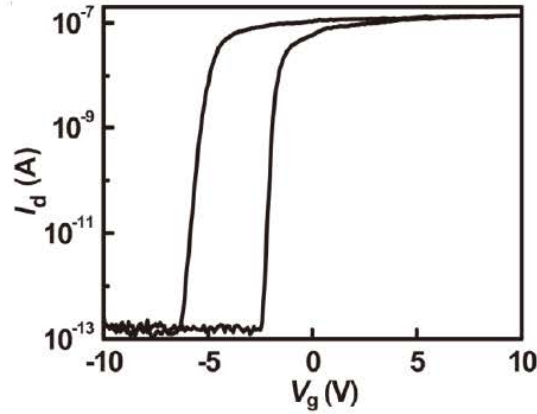


图 2.5 没有金颗粒的顶栅 ITO-WS₂ 器件的转移特性曲线

Figure 2.5 Transfer characteristics of top-gate ITO-WS₂ devices without Au particles

通过能带理论，我们可以详细解释浮栅存储结构的工作机制。如图 2.6 (a)所示，为浮栅存储结构的能带图。从左至右分别为顶栅 ITO、20 nm HfO₂、1 nm 金颗粒、6.5 nm HfO₂，二维材料 WS₂。在栅电极与金颗粒之间是 20 nm 厚度的氧化层，该氧化层的作用是栅电极调控金颗粒中载流子浓度，20 nm 厚度的氧化层不利于电子的隧穿，从前面的实验结果也可以看出这一点。在金颗粒与 WS₂ 之间的是 6.5nm 厚度的氧化层，该厚度氧化层在室温下非常利于电子的隧穿作用。二维材料 WS₂ 则是主要沟道材料，用于传输电子和光响应。图 2.6 (b)~(e) 给出了不同顶栅电压下工作机制的物理解释。

1) 当栅极电压 <0 时，对使得金颗粒里面的电子极为容易隧穿到 WS₂ 材料里面。在这种擦除状态中，当有光入射时，光生电流产生的基数相对于暗电流没有较大区别，因此，此时的器件光响应能力跟没有浮栅结构的传统晶体管器件没有明显区别。

2) 当栅极电压 >0 时，WS₂ 里面的电子隧穿到金颗粒里面，并进行长时间储存。因此，在这种编程状态下，流过沟道的电流较小，一方面来源于 WS₂ 本身自由电子隧穿到了金颗粒，另一方面，电子穿过隧穿氧化物的势垒高度是 WS₂ 和 HfO₂ 之间的电子亲和力差异。一旦施加合适的正栅极电压（例如 10 V），隧道氧化物能带将向下倾斜，从而使阻挡层变薄。因此，由于 Fowler-Nordheim 隧道效应，从 WS₂ 的导带通过 HfO₂ 氧化物到 Au 颗粒的电子隧穿将充当大的负电压，导致 WS₂ 的导带向上弯曲，从而

导致体内载流子内在耗尽。因此，编程状态下的暗电流水平很低，本实验中的编程状态暗电流为 10^{-11} A。当有光入射到器件上时，会产生足够大的光生电流，同时包括热电子和隧穿电流，加上暗电流一起构成总电流。需要注意的是，这些热电子和隧道电流几乎与光电导晶体管的光生电流处于同一水平，因此它们不可被忽略^[122]，这也是大多数光电导晶体管遭受低信噪比以及低灵敏度的主要原因。在这种情况下，光电流变得显著且占优势。

重要的是，这两种状态可以通过合适的栅极电压独立切换，主要是通过浮栅金颗粒层和 WS_2 器件之间来回隧穿的电子完成。

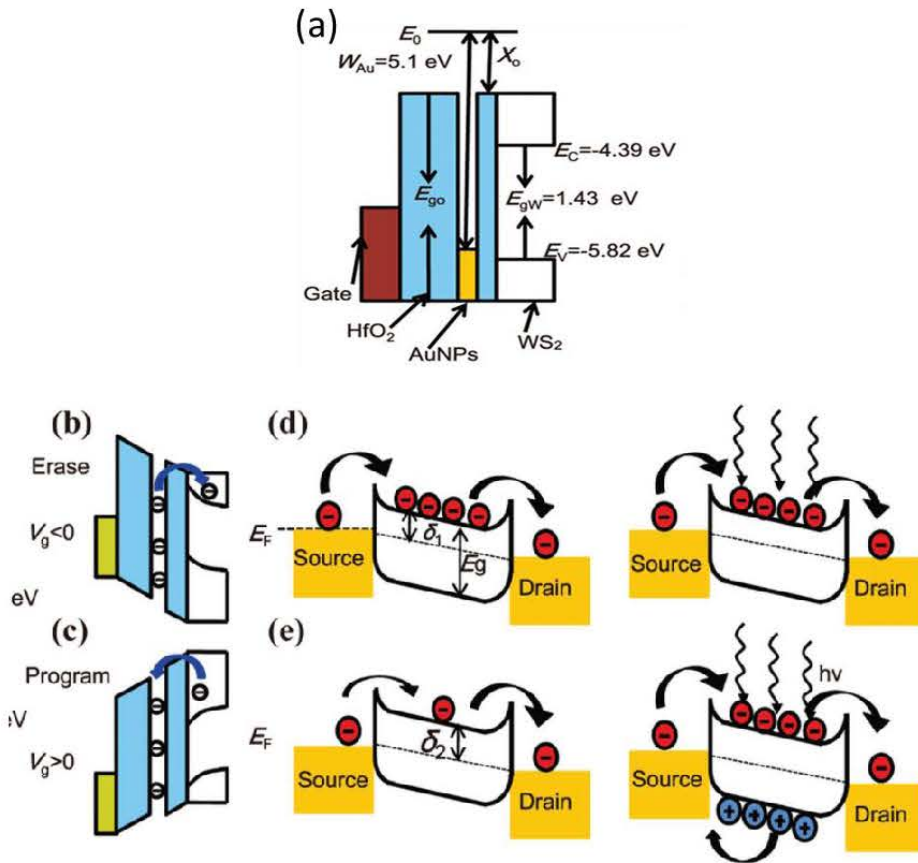


图 2.6 (a) 浮栅存储结构 WS_2 器件能带示意图，(b)(c) 和 (d)(e) 在没有照明的两种不同栅压状态下的简化能带图。 E_F 是费米能级， δ 表示费米能级到导带底部的高度。 W ， E_g ，

E_0 和 X_0 分别代表功函数，带隙，电子亲和力和真空能级。

Figure 2.6 (a) Band diagram of the WS_2 floating-gate memory structures, (b)(c) and (d)(e)

Simplified band diagrams for two different gate-voltage states without illumination. E_F is the Fermi level and δ represents the height of the Fermi level to the bottom of the conduction band. W , E_g , E_0 and X_0 represent work function, band gap, electron affinity and vacuum level, respectively.

2.4 WS₂ 浮栅存储器件的光响应性能

为了验证 WS₂ 浮栅存储器件的光响应能力，我们对器件进行了一系列光响应测试。如图 2.7 (a) 所示，在 520 nm 波长激光照射下器件的输出特性曲线，在此之前已经将器件设置在编程状态（即极低的暗电流状态）。图中黑线代表光入射之前的暗电流，当有光入射时，可以看到光电流与暗电流的叠加（红线），但是暗电流与光电流相差 $I_{\text{light}}/I_{\text{dark}} \approx 10^3$ ，因此暗电流可以忽略不计。器件获得的电流显著增加，这意味着对入射光高度灵敏。同时，实验中将浮栅结构设置到擦除状态，然后测试光响应，从图 2.7 (a) 的插图可以看到，红线与黑线重合到了一起，难以区分暗电流和光生电流。这些发现清楚地表明，基于我们的浮栅存储器结构的光电晶体管具有比传统器件更好的性能。

图 2.7 (b) 给出了器件在编程状态下在相同波长下具有不同照射功率的输出特性曲线。随着入射光强度的增加，更多的电子被激发到导带中，然后被源漏电极提取，形成大的沟道电流。图 2.7 (c) 显示了相应的光电流与入射功率的关系曲线，其从图 2.7 (b) 中提取，所用条件为 $V_{\text{ds}} = 20 \text{ mV}$ 。光电流随着入射功率的增加而上升并呈非线性关系，这符合 $I_p = cP^k$ 函数关系，其中 c 是一个比例常数， P 是入射光强， k 是经验值。这可以用光生载流子的多方面过程来解释，相关文献已经报道，其类似于基于 MoS₂ 的光电晶体管^[122]。根据图 2.7 (c)，在 $10 \text{ } \mu\text{W/mm}$ 的低光功率密度下，器件的响应率 (R) 和探测率 (D^*) 分别接近 1090 A/W 和 $3.5 \times 10^{11} \text{ Jones}$ ，其中 V_{ds} 为 20 mV ， P 为 $10 \text{ } \mu\text{W/mm}$ ， R 由以下公式给出：

$$R = \frac{I_{\text{ph}}}{PA} \dots\dots\dots (2-1)$$

I_{ph} 表示浮栅探测器中的光电流，而 P 则表示光入射功率密度， A 是有效面积。值得注意的是， 1090 A/W 在 WS₂ 光电器件中名列前茅。此外，假设噪声是暗电流的主要因素，则探测率 D^* 可以通过以下公式计算：

$$D^* = RA^{1/2} (2I_{\text{dark}})^{-1/2} \dots\dots\dots (2-2)$$

其中 R 是光响应率， A 是有效面积， e 是单位电荷， I_{dark} 是暗电流。在本工作中，我们已经实现了 $3.5 \times 10^{11} \text{ Jones}$ 的高探测率，表明所提出的浮栅结构储存器件是有效的，对入射光极其敏感。

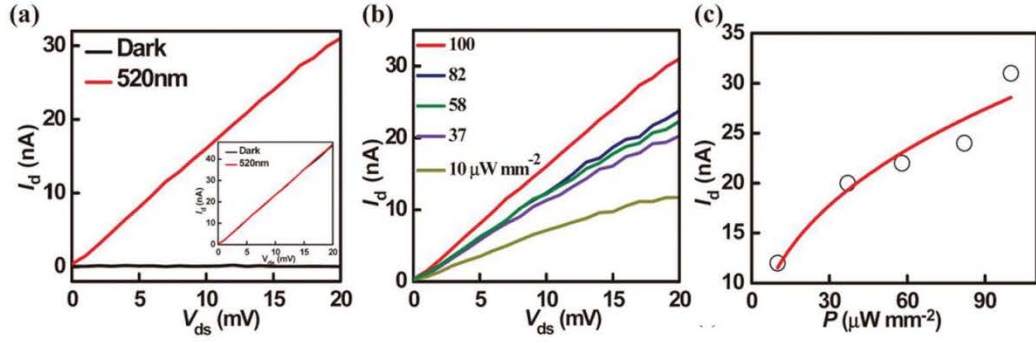


图 2.7 (a) 浮栅器件在编程状态下的光响应图，插图显示了在擦除状态下的光响应图，其中照明功率密度为 $100 \mu\text{Wmm}^{-2}$ ，(b) 器件在编程状态下的对不同功率入射光的响应图，(c) 相应的光电流与入射功率的关系曲线。

Figure 2.7 (a) Photoresponse diagram of the floating gate device in the programmed state, the inset shows the photoresponse diagram in the erased state, where the illumination power density is $100 \mu\text{Wmm}^{-2}$, and (b) Response diagram of incident light when the device response to different powers light at program state. (c) Corresponding photocurrent versus incident power.

如图 2.8 所示， WS_2 浮栅结构存储器件的噪声功率谱。该曲线通过噪声测量系统 (Platform-DA, NC 300A) 在 1 至 1000 Hz 的真空中测量的，该曲线表明了 WS_2 浮栅结构存储器件的噪声电流相对较低。普适的探测率公式如下：

$$D^* = (AB)^{1/2} R / \langle i \rangle^2 \dots\dots\dots (2-3)$$

$$\langle i \rangle^2 = \int S(f) d(f) \dots\dots\dots (2-4)$$

其中 B 是带宽， A 是器件的面积， R 是器件的光响应率， $S(f)$ 是噪声功率谱， f 是频率。因此，可以通过对噪声功率密度进行积分来确定 $\langle i \rangle^2$ 。计算出的 D^* 是 1.3×10^{11} Jones，这与前文中通过暗电流推算的实验值相当。

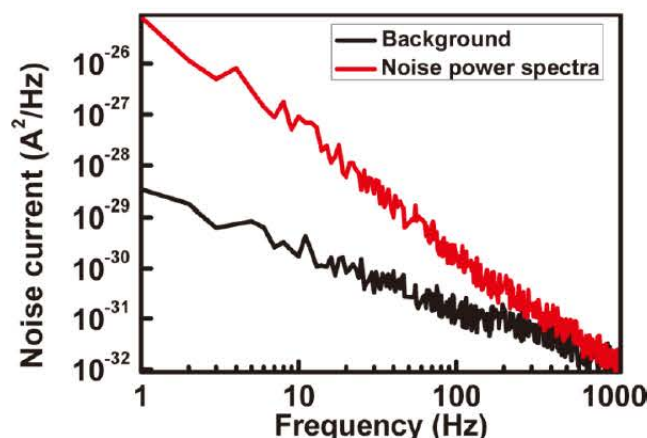

 图 2.8 WS₂ 浮栅结构存储器件的噪声功率谱

 Figure 2.8 Noise power spectrum of WS₂ floating gate structure memory device

除稳态行为外，瞬态响应是高性能光电晶体管的另一个重要特性。器件在多个光开关循环下沟道电流的行为表现如图 2.9 (a) 所示。可以看出，探测器的光响应速度并不是非常快，但是可以接受。为了理解整个过程以及工作机制，测试了器件的瞬态光响应，即一个周期内的开/关表现，如图 2.9 (b) 所示。沟道电流随着激光的照射而增加，并且 $I_{\text{light}}/I_{\text{dark}}$ 的比值约为 10^3 。然而，当关掉激光时，可以发现暗电流并没有立即完全回到其初始状态，而是缓慢地减小。该现象说明，当有光照射时，会将金颗粒的电子激发到沟道里，因此，表现出暗电流增加，（其实由于这些隧穿电子的作用，在一定程度上对编程状态有一定破坏作用）。

实际上这些隧穿电子与光照时间有关，时间越长隧穿回沟道的电子越多。此外，WS₂ 里面的缺陷会对器件的响应时间产生重大影响。解释如下：光生电子被激发到一些缺陷状态并且被捕获相当长的时间，这导致 WS₂ 中光生空穴 τ 的寿命非常长。如图所示，器件的响应上升沿和下降沿可以通过单指数函数进行拟合，得到的上升沿时间 $t_{\text{rise}} = 6.98 \text{ s}$ 和下降沿时间 $t_{\text{decay}} = 10.73 \text{ s}$ ，器件的测试条件为 $V_{\text{ds}} = 0.01 \text{ V}$ 和 $V_{\text{g}} = 0 \text{ V}$ 。这样的结果与之前的文献报道，如单层 MoS₂ 晶体管、石墨烯/量子点复合器件和非晶氧化物光电晶体管中观察到的现象类似，都是由陷阱态引起的^[107, 123]。

为了解决光响应恢复时间慢这一问题，可以在光照结束的时候施加一正向脉冲电压，如图 2.9 (c) 所示。很明显，随着脉冲电压的结束，沟道电流 I_{ds} 迅速

减小。这其中载流子复合率与暗电流下的载流子浓度存在如下关系： $|dn/dt| = n/\tau$ ，其中 n 是载流子浓度， τ 是少数载流子的寿命， $|dn/dt|$ 是载流子复合率。解释如下：栅极正电压可以使导带向下弯曲，从而增加载流子浓度。载流子的瞬时增加使得复合速率迅速增加，从而加速了被捕获电荷的释放时间并导致器件的光电流衰减时间的减少。同时，可以再次将器件设置到编程状态，避免周期测量时出现的不同暗电流值。该实验结果表明基于浮栅存储结构的 WS_2 光电晶体管可以实现传统的电-光-电操作模式。

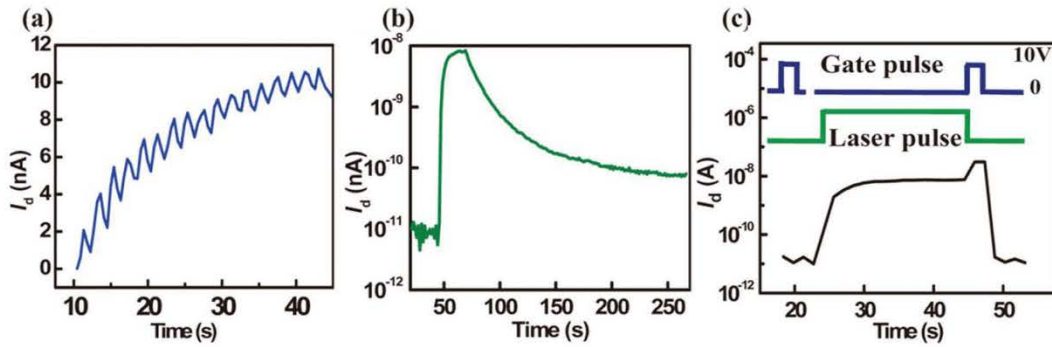


图 2.9 (a) 浮栅存储结构器件响应循环光开关时的电流响应，光照时间和无光时间都为 1 秒，(b) 器件在一个光开关周期内的时间分辨光响应，(c) 通过栅极正电压使器件复位（编程状态）的操作图

Figure 2.9 (a) The current response of the device in response to a cyclic optical switch, both the illumination time and the matte time are 1 second, (b) the time-resolved optical response of the device during an optical switching period, (c) An operational diagram in which the gate positive voltage causes the device to be reset (programmed state).

2.5 MoS_2 的浮栅存储结构光电晶体管

为了进一步探索浮栅存储结构对二维材料的普适性，我们制作了基于二维材料 MoS_2 的浮栅存储结构光电晶体管。如图 2.10 (a) 所示，显示了 MoS_2 浮栅存储结构光电晶体管的两种不同工作状态，其中在编程状态同样可以显著抑制暗电流。图 2.10 (b) 给出了在同一波长但不同光照功率下器件的输出特性曲线。而图 (c) 和 (d) 也是采用类似的方法，在光照结束之后，使用栅极正栅压将器件快速设置到编程状态，值得注意的是，此时的源漏电压为 20 mV 的低偏压、零栅极电压和 0.55 mW/mm 的功率密度，在 520 nm 波长下的光

响应率高达 59.2 A/W。

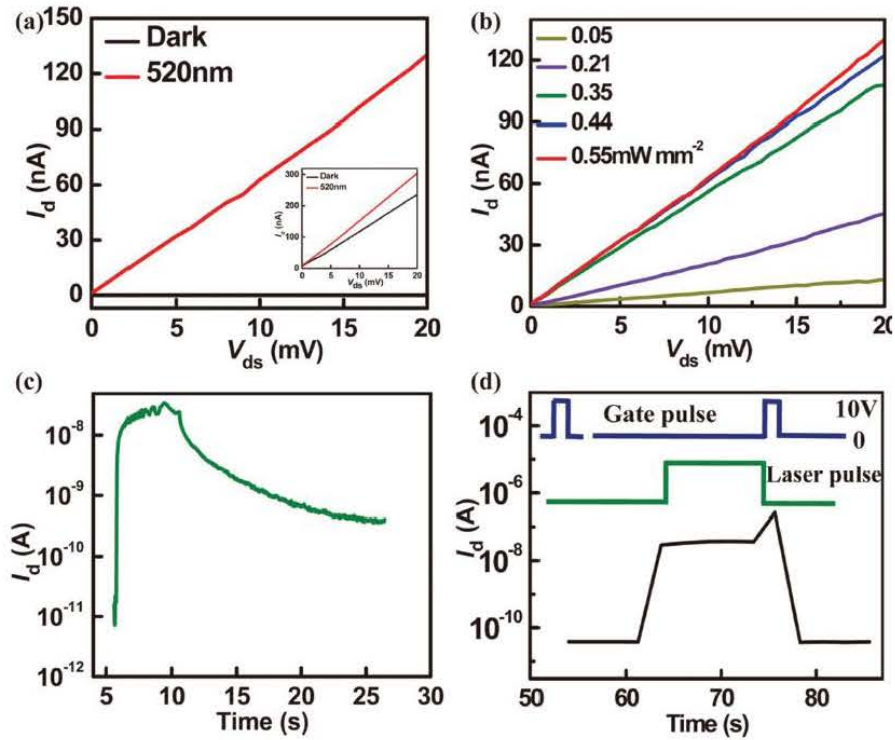


图 2.10 基于浮栅存储结构的少层 MoS_2 光电晶体管的光电特性 (a) 在编程状态下有光和无光照的器件的输出特性曲线。插图显示了擦除状态下的输出特性, (b) 在同一波长, 不同入射功率下器件的输出特性曲线, (c) 器件一个光照开关周期内的电流响应, (d) MoS_2 浮栅存储光电晶体管的时间响应测量, 采用的是与 WS_2 晶体管相同的操作手段进行处理

Figure 2.10 Photoelectric characteristics of a few-layer MoS_2 phototransistor (a) Output characteristics of a device with and without illumination in a programmed state. The inset shows the output characteristics in the erased state, (b) the output characteristic of the device at the same wavelength, at different incident powers, and (c) the current response of the device during one illumination switching period. (d) The time response measurement of the MoS_2 floating gate memory phototransistor is processed using the same operation method as the WS_2 phototransistor

图 2.11 则是 MoS_2 的浮栅存储结构光电晶体管的传输特性曲线和保持时间响应。可以看到基于 MoS_2 构建的的浮栅存储结构光电晶体管的实验结果与基于 WS_2 构建的的浮栅存储结构光电晶体管的实验结果高度一致, 说明本工作中的基于二维材料构建的的浮栅存储结构光电晶体管是一种普适结构, 可以用来极大增强二维材料的光响应率和探测率。

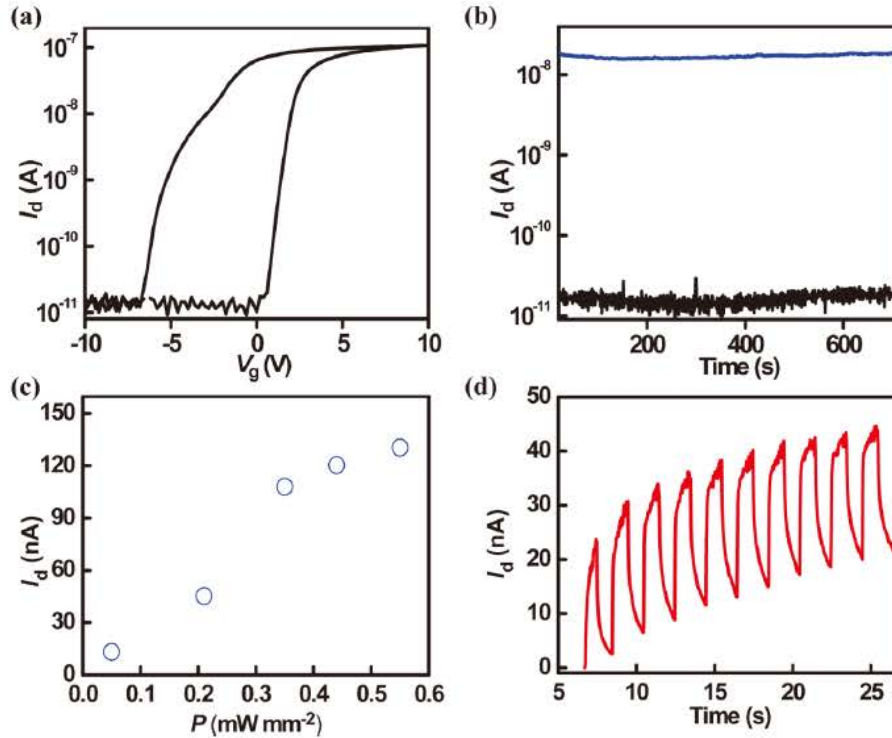


图 2.11 基于浮栅存储结构的少层 MoS_2 光电晶体管的电学和光学测量 (a) MoS_2 器件在室温下, 无光照条件的输出特性曲线, (b) 在 600 s 时间内编程与擦除状态的稳定性展示, (c) 光电流随着入射光功率的变化曲线, (d) 器件在光开关周期循环下电流响应曲线。其中 (a) 和 (b) 的数据由另一个 MoS_2 器件获得。

Figure 2.11 Electrical and optical measurements of few layer MoS_2 phototransistor. (a) Output characteristics of a MoS_2 device at room temperature without illumination, (b) The stability of the programming and erasing state during 600s, (c) the curve of photocurrent with incident light power, (d) the current response curve of the device during the optical switching cycle. The data in (a) and (b) are obtained by another MoS_2 device, and the channel length.

可以发现 MoS_2 器件的响应率相较于之前的 WS_2 器件低一个数量级, 这可以通过这两种材料的不同厚度来解释, 因为材料厚度影响光吸收^[104], 并且, 即使具有相同的厚度, MoS_2 的吸收率是小于 WS_2 的^[124]。如图 2.12 所示, 分别是两种浮栅存储结构器件所使用的二维材料的 AFM 厚度图。 MoS_2 的厚度为 1.6 nm, WS_2 的厚度为 4.2 nm, 此时 MoS_2 的厚度比 WS_2 的薄, 则造成 MoS_2 更低的吸收率, 故而同样的浮栅存储结构, 所采用沟道材料 MoS_2 相比于 WS_2 所得到的响应率小一个数量级是在合理的范围之内。因此, 本工作所展示的浮栅存储器结构确实适用于各种用于高性能光电晶体管的二维材料。

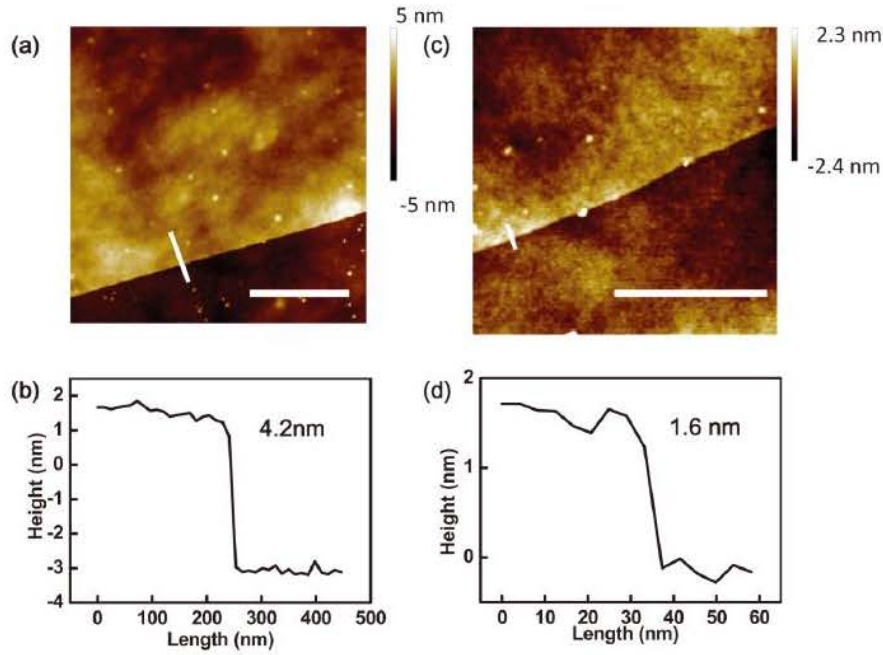


图 2.12 WS₂ 和 MoS₂ 的厚度 (a) WS₂ 的 AFM 图像，比例尺为 1 μm，(b) WS₂ 的厚度为 4.2 nm，(c) MoS₂ 的 AFM 图像，比例尺为 0.5 μm，(d) MoS₂ 的厚度为 1.6 nm，显然 MoS₂ 的厚度比 WS₂ 的薄

Figure 2.12 Thickness of WS₂ and MoS₂ (a) AFM image of WS₂, scale bar is 1 μm, (b) thickness of WS₂ is 4.2 nm, (c) AFM image of MoS₂, scale bar is 0.5 μm, (d) thickness of MoS₂ is 1.6 nm, the thickness of MoS₂ is thinner than WS₂

2.6 本章小结

本章设计并制作了一种基于二维材料（WS₂ 和 MoS₂）的浮栅存储结构的光电晶体管探测器。其中浮栅结构采用热蒸发装置获得的 1 nm 的金颗粒，这些金颗粒具有与量子点类似的功能，能够有效地捕获光生电子，从而达到存储效果。浮栅存储结构和二维材料组合在一起并用于实现高灵敏度和节能的光电晶体管。WS₂ 浮栅存储结构光电晶体管不仅具有可观的存储器特性，包括大的存储器窗口和较长的可保持时间，而且在编程状态下还具有出色的光电检测能力。在零栅压和小的源漏极偏压下实现 1090 A/W 的高光响应率和 3.5×10^{11} Jones 的探测率。重要的是，本工作同时制备了另一种基于 MoS₂ 二维材料的浮栅结构光电晶体管也被证明具有极强的光电检测性能，说明了本工作研究的浮栅存储器结构具有普适性。这些令人印象深刻的结果表明了基于 WS₂ 和 MoS₂ 的浮栅存储器结构，对于开发未来的新型光电晶体管器件具有很好的参考作用。

第3章 基于一维纳米线的室温单光子探测器研究

为实现室温下高灵敏探测器甚至探测单个光子,本章研究了一种基于硫化镉(CdS)单根纳米线场效应晶体管的单光子探测器。它由一个具有核壳结构的纳米线与场效应晶体管结构组成。其中,纳米线的壳既能引导 photogating 效应,又能屏蔽栅极负电压,从而产生一个持续光电流。值得一提的是,由于该器件的光敏材料是一维纳米线,其具有内禀各项异性,对入射光具有偏振选择性。因此该探测器具有对入射光子偏振敏感特性,我们实现了一种新型室温工作的单光子探测器,此工作标志着室温可分辨的单光子探测器上向前迈了重要一步。

3.1 引言

当前主流的单光子探测器按照工作温度来分主要有2大类^[2],如表3.1所示。第1类是工作在室温下的雪崩二极管、光电倍增管、上转换单光子探测器等以及它们的衍生产品。此类探测器受限于工作模式,需要几十伏到千伏的加速电压,致使这一类单光子探测器的暗计数率较大,使得探测信号的真实度难以保障,限制了其在量子通信领域的应用。第2类是工作在低温环境下的可见光光子计数器、超导型、量子点型单光子探测器。而这类探测器由于极低温工作条件的限制,配套制冷使其重量、体积剧增,使得探测组件可靠性与稳定性降低并难以实现集成化。其次,量子通信协议要求单光子探测器具备光子数可分辨能力,为探测信号的真实度提供保障,而当前具有光子数分辨能力的单光子探测器比较有限(如表1所示)。此外,当前单光子探测材料需通过分子束外延、液相外延等苛刻条件生长且成品率低,使得光敏材料制备工艺复杂且成本高昂,极大的限制了高性能单光子探测器技术的发展。综上所述,针对量子通信终端对单光子探测技术的需求,发展具有光子数分辨能力、低成本、室温工作的单光子探测器技术是量子信息与量子调控领域的重要发展方向。

表 3.1 单光子探测器的种类及其性能指标^[2]

Table 3.1 Types of single photon detectors and their performances^[2]

Detector type	Operation temperature (K)	Detection efficiency, η	Jitter time, Δt (FWHM)	Dark count rate, D (ungated)	Figure of merit	Max. count rate	Resolves photon number?	Class of report
PMT (visible-near-infrared) ²¹	300	40% @500 nm	300 ps	100 Hz	1.33×10^7	10 MHz	Yes	†
PMT (infrared) ²²	200	2% @1,550 nm	300 ps	200 kHz	3.33×10^2	10 MHz	Yes	†
Si SPAD (thick junction) ²⁸	250	65% @650 nm	400 ps	25 Hz	6.5×10^7	10 MHz	No	†
Si SPAD (shallow junction) ⁴¹	250	49% @550 nm	35 ps	25 Hz	5.6×10^8	10 MHz	No	†
InGaAs SPAD (gated) ⁵⁵	200	10% @1,550 nm	370 ps	91 Hz	2.97×10^5	10 kHz	No	‡
InGaAs SPAD (self-differencing) ⁵⁷	240	10% @1,550 nm	55 ps	16 kHz	1.14×10^5	100 MHz	Yes	‡
Frequency up-conversion ⁶⁵	300	9% @1,550 nm	400 ps	13 kHz	1.7×10^4	10 MHz	No	‡
Frequency up-conversion ⁶⁵	300	2% @1,550 nm	40 ps	20 kHz	2.5×10^4	10 MHz	No	‡
VLPC ⁶⁹	6	88% @694 nm	—	20 kHz	—	—	Yes	\$
VLPC*	6	34% @633 nm	270 ps	7 kHz	1.83×10^5	—	Yes	\$
TES ⁷⁶	0.1	50% @1,550 nm	100 ns	3 Hz	1.67×10^6	100 kHz	Yes	‡
TES ⁷⁰	0.1	95% @1,550 nm	100 ns	—	—	100 kHz	Yes	\$
SNSPD (meander) ⁹⁰	3	0.7% @1,550 nm	60 ps	10 Hz	1.16×10^7	100 MHz	No	‡
SNSPD (new) ⁸⁷	1.5	57% @1,550 nm	30 ps	—	—	1 GHz	No	\$
QD (resonant tunnel diode) ⁹⁶	4	12% @550 nm	150 ns	2×10^{-3} Hz	4×10^9	250 kHz	No	\$
QD (field-effect transistor) ⁹³	4	68% @805 nm	—	—	—	1 Hz	Yes	\$

The class of report indicates the conditions under which the detector characteristics were measured: † represents a commercial product specification, ‡ represents the use of the detector in a practical experiment and \$ represents a measurement of device performance. *Unpublished data, Burn Baek, NIST, USA, 2009.

另一方面，在当前的量子通讯领域，光子的偏振解码首先通过单光子探测器前置的偏振分析仪来进行初步判别，其后再利用单光子探测器来检测其强度信息，这使得探测系统体积庞大、构造复杂，降低了探测系统稳定性与可靠性。因此，发展一种具有光子强度与偏振信息同步识别的单光子探测器可以为偏振解码新技术提供保障。近年来，国内外关于实现或提高单光子探测器偏振敏感度的研究进展颇快。荷兰莱顿大学 E.F.C. Driessen 等人在 2009 年通过制备 NbN 超导单光子探测器并测量偏振对比度，得出器件对入射光从 488 nm 到 1550 nm 的偏振对比度从 5% 变化到 30%^[125]。匈牙利塞格德大学 Maria Csete 等人在 2017 年通过理论模拟计算超导纳米线单光子探测器在纳米微腔中的偏振对比度能够超过 100^[126]。尽管这类超导纳米线器件能够实现一定的偏振对比度，但极低温的工作条件使得超导纳米线单光子探测器在集成化进程上停滞不前。因此，研制一种易于集成（室温工作、低偏压）的偏振敏感的单光子探测器是目前的当务之急。

半导体纳米线是准一维的量子结构，拥有较大的表面积/体积比，具备特殊的光、电、磁等物理化学性质。近年来，诸多研究工作报导了通过操控纳米线的表面态可以实现探测器性能的提升。其中，photogating 效应被广泛关注。该效应是在准一维的量子结构中比较特殊的一种光电导增益，可以帮助纳米线探测器在

室温下获得高响应率。其中, CdS 纳米线是一种具有强烈光电效应的半导体材料^[127-130], 通过化学气相沉积(CVD)方法生长的 CdS 具有核壳结构, 为 photogating 效应提供了有力的条件, 甚至使得该体系在室温下对单个光子的入射敏感。

3.2 CdS 纳米线的合成

本章实验当中所用的 CdS 纳米线是采用 CVD 方法合成。实验设备采用的双温区管式炉加热, 生长之前将基底硅片放入热蒸镀设备中, 蒸镀 1nm 厚度的金颗粒作为种子, 随后将该基底放置在管式炉的下游温区; 同时将 CdS 粉末放入石英舟中置于管式炉上游温区。用机械泵抽掉管中空气, 当气压达到 1×10^{-3} mbar, 通入氩氢混合气体(氩氢比例为 100: 20, 总流量为 50 sccm), 逐渐加热 CdS 粉末至 700°C, 并且维持在 100 mbar 50 分钟。生长结束后, 让设备自然降温到室温状态。基底上则会发现大量纳米线。

在这个生长过程当中, 需要长出具有核壳结构的 CdS 纳米线则需要注意以下两点: 首先前驱体处温度需到达 700°C, 因为在此温度下足够的前驱体蒸汽被带到下游温区, 过量的饱和的蒸汽能引导纳米线表面的一致均匀性; 另外, 100 毫巴的高气压, 能减小前驱体蒸汽的平均自由程, 从而在纳米线表面引起足够多的缺陷。

图 3.1 所示的是在典型单根 CdS 纳米线的 SEM 图, 衬底为带有 300 nm SiO₂ 的 Si 基底。从图中可以看出, 纳米线的表面并不光滑, 而是凹凸不平的, 这代表纳米线表面具有非常丰富的无序晶格缺陷, 这些缺陷态(表面态)将会有利于器件实现 photogating 效应。反观纳米线的内部晶格结构, 非常平整, 则纳米线的迁移率将会很高, 将有利于器件的响应速度。这一点从图 3.2 也可以清晰看出, 高分辨的 TEM 表明纳米线的晶体质量非常好, SAED 图像表明纳米线有着很好的单晶结构。晶格间距为 0.32 nm, 其对应于 CdS 材料的 002 面。而 EDS 能谱表明, 纳米线材料仅仅含有 Cd 和 S 元素(C 和 Cu 峰来源于 Cu 网的污染), 晶体质量非常纯净。

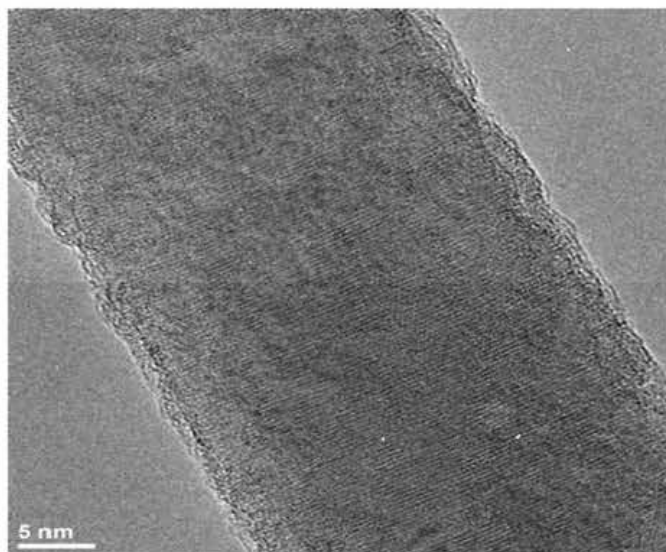


图 3.1 CdS 纳米线的 SEM 图

Figure 3.1 SEM image of CdS nanowires

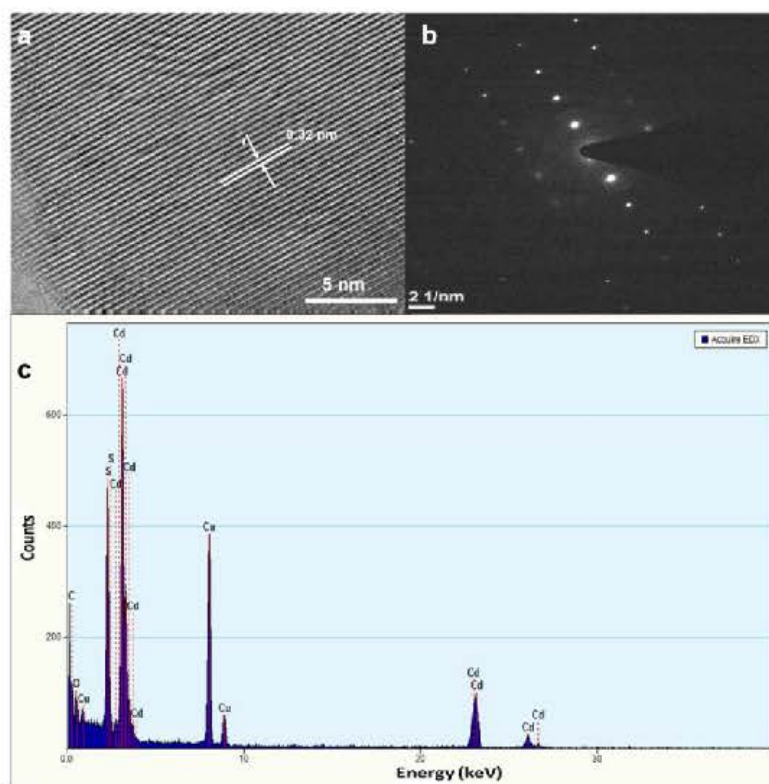


图 3.2 典型的单个纳米线的 (a) HR-TEM 图像, (b) SAED 图案, (c) EDS 光谱, 从纳米线材料的一个核心区域获得能量色散 X 射线 (EDX) 光谱。

Figure 3.2 (a) HR-TEM image of a typical single nanowire, (b) SAED pattern, (c) EDS spectrum, energy dispersive X-ray (EDX) spectra obtained from a core region of the nanowire.

3.3 CdS 纳米线场效应晶体管的制作

本章实验当中所制作的 CdS 探测器主要运用电子束光刻的方法结合传统剥离工艺制备金属电极作为源极和漏极，形成纳米线半导体场效应晶体管。首先将 CVD 方法生长的 CdS nm 线物理转移到带有 300 nm SiO_2 绝缘层的硅基底上，然后利用光学显微镜找到纳米线所在的具体位置并且标记下来。旋涂 PMMA 胶，4000 转/分钟，烘烤 5 分钟。利用 Design CAD 软件在光学照片里的纳米线两端自定义源漏金属电极。然后利用电子束曝光系统按照 Design CAD 软件自定义的源漏电极在基底纳米线的两端光刻出对应的图形。随后，利用 PMMA 显影液进行显影。将样品放入热蒸镀系统中进行蒸金，金属分别为铬/金，厚度为 15/65 nm。将蒸上金属的样品放入丙酮液体中，以 50 度加热浸泡 30 分钟，去胶效果更好。器件的沟道长度约为 $3\text{ }\mu\text{m}$ ，直径在 100 nm 左右，实验中除了源漏电压施加偏压，同时也在背栅施加栅极电压，背栅是 SiO_2/Si 的 Si 基底，因为实验中 Si 是采用重掺杂的 Si 基底，具有良好的导电率。

3.4 CdS 纳米线场效应晶体管的光电表征

3.4.1 器件结构及理论模型

CdS 纳米线的 FET 结构三维图如图 3.3 (a) 所示，源漏电极都是铬金，纳米线具有核壳结构，壳层厚度约 2 nm，核层直径约 100 nm。在实验当中源漏两端加偏压为 0.1 V 小电压，而背栅电压则加载在硅片背面，约 -3 V 左右，如图 3.3 (b) 所示。

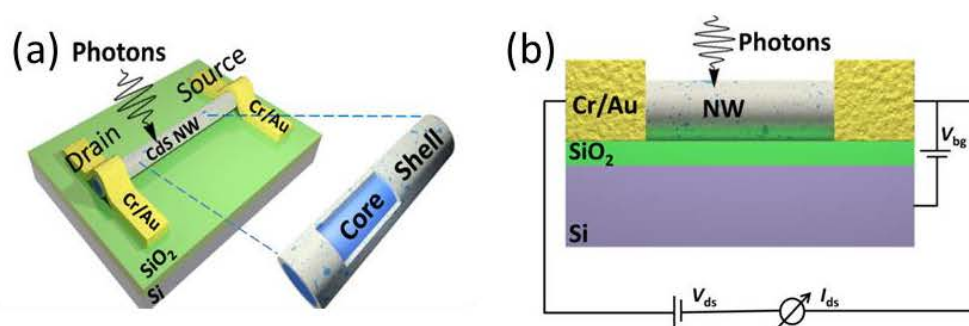


图 3.3 (a) CdS 纳米线的 FET 结构三维示意图；(b) FET 结构所加电压示意图

Figure 3.3 (a) Three-dimensional schematic diagram of the FET structure based on CdS nanowire;

(b) Schematic diagram of the voltage applied to the FET structure

图 3.4 (a) 为器件的前视图, 由于背栅所加电压是负电压, 所以电场线是从纳米线处指向背栅方向。我们知道, 电场作用下, 空穴沿着电场方向运动, 而电子则沿着电场反方向运动。因此, 在我们的实验模型当中, 有光子入射时, 产生的光生电子会留在核层当中, 光生空穴则会向纳米线下表面运动, 最终被下表面的表面态所捕获。将我们的模型进行 90 度转置, 得到如图 3.4 (b) 所示, 并在空间上建立直角坐标系。

假设有一个空穴被表面态捕获, 将 Si 背栅与 SiO₂ 的接触界面看作无穷大面板, 运用镜像电荷原理, 得出该被捕获的空穴对背栅的电势微扰大小如下:

$$d\varphi = \frac{dq}{4\pi\epsilon_2} \frac{1 - \frac{\epsilon_1 - \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2}}{W + r(1 + \sin\theta)} \dots\dots\dots (3-1)$$

假设有很多空穴均匀分布在纳米线的下表面, 则这些空穴对背栅造成的平均电势如下:

$$\varphi = \int_0^\pi \frac{dq}{4\pi\epsilon_2} \frac{1 - \frac{\epsilon_1 - \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2}}{W + r(1 + \sin\theta)} = \int_0^\pi \frac{\frac{Q}{\pi r l} r l d\theta}{4\pi\epsilon_2} \frac{1 - \frac{\epsilon_1 - \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2}}{W + r(1 + \sin\theta)} = \frac{QW}{\pi r l} \frac{3.65}{\pi\epsilon_2} \quad (3-2)$$

公式中, $r=50$ nm 是纳米线的半径, $W=100$ nm 是 SiO₂ 的厚度, $l=500$ nm 是探测器光敏元的沟道长度, ϵ_1 是 SiO₂ 的相对介电常数, ϵ_2 真空相对介电常数, A 沟道面积, N 是被捕获的空穴个数, 因此 $\epsilon_2 = 3.9\epsilon_1$ 。

最后得出:

$$\Delta I_{ds} = g_m \frac{NeW}{\epsilon_2 A} \times 1.16 \dots\dots\dots (3-3)$$

其中, 1.16 是器件模型的修正因子。

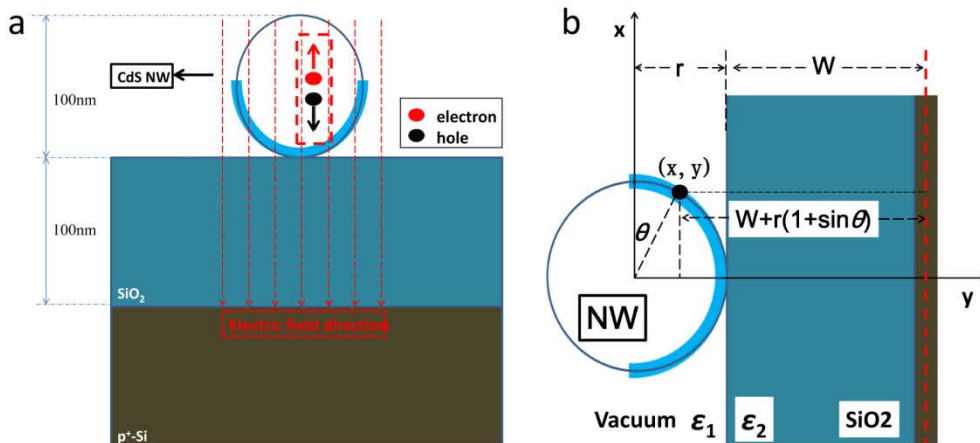


图 3.4 (a) 光生电子空穴对的运动方向; (b) 探测器的捕获原理示意图

Figure 3.4 (a) The direction of motion of photogenerated electron-hole pairs; (b) Schematic diagram of the capture principle of detector

3.4.2 暗场情况下的电学性能

在源漏两端加上偏置电压, 得出电流输出特性曲线, 如图 3.5 (a)。测试条件是室温无光照环境下, 从图中可以看出电流曲线非常线性对称, 表明纳米线与金属电极具有非常好的欧姆接触。这一点非常利于后面的载流子输运, 属于测试单光子响应存在的必要条件。插图是器件的 SEM 图, 器件的沟道长度是 $0.5\ \mu\text{m}$, 纳米线直径为 $100\ \text{nm}$, 其中标度尺为 $1\ \mu\text{m}$ 。图 3.5 (b) 为器件的转移特性曲线, 测试条件是源漏电流大小固定为 $0.1\ \text{V}$, 室温无光照环境下。从图中可以看出, SiO_2 背栅可以很好地调控纳米线中载流子浓度。值得一提的是, 当背栅电压在 $-3\ \text{V}$ 左右时, 曲线的斜率是最大的, 也就是说, 此时沟道电流受背栅的调控影响是最明显, 最敏感的。

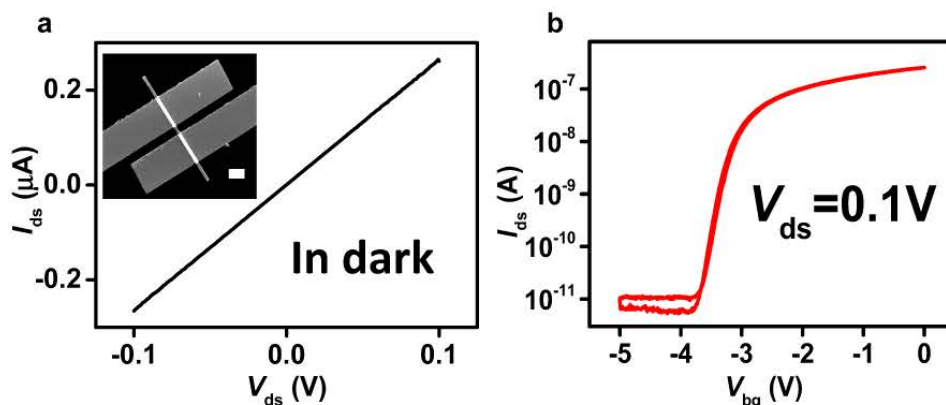


图 3.5 (a) 线性的输出电流特性曲线; (b) 对数坐标下的转移特性曲线

Figure 3.5 (a) Linear output characteristic of current curve; (b) Transfer characteristic curve in logarithmic coordinates.

3.4.3 光子入射后的影响

如前所述, 在实验当中维持背栅电压为 $-3\ \text{V}$, 有两点优势, 其一, 此时的沟道电流大小相较于没有加载背栅电压 ($0\ \text{V}$) 时, 明显小一个数量级, 即电流背景噪声要小很多; 其二, 此时的沟道电流对背栅的电势扰动最为明显, 且被捕获的空穴对其有一定的屏蔽作用, 会引起沟道中载流子的浓度增加, 抵消此张, 这

将有利于对小电流信号的识别,甚至在宏观上可以观测到一个光生空穴引起的电流增加变化。实验中,所使用的光源采用的是具有 457 nm 中心波长的 LED 灯珠,因此省去了激光对准的不必要麻烦。此时从 LED 灯珠中发出的光子没有偏振态。在灯珠与器件之间放置高倍率的衰减片,同时将 LED 灯珠的输入功率调到极低,则此时可以实现每秒钟只有个位数的光子到达器件上。如图 3.6 所示,在光子入射情况下的电流随时间的变化曲线。在这些过程中可以观测到 0.33 nA, 0.48 nA, 0.52 nA, 0.62 nA, 0.73 nA, 0.99 nA 和 1.2 nA 的量子化台阶值。根据等式(3.3),结合相关参数($g_m=7.26\times 10^{-8}$ A/V, $W=100$ nm, $A=0.0785\mu\text{m}^2$, $\varepsilon(\text{SiO}_2)=3.9\times 8.85\times 10^{-12}$ F/m, $e=1.6\times 10^{-19}$ C 和 $\eta=1.16$),可以计算出一个空穴引起的电流值大小是 0.5 nA,两个空穴引起的是 1 nA。显然,这与观测到的实验值一致,观测值围绕着 0.5 nA 波动,而 0.99 nA 和 1.2 nA 则围绕着 1 nA 波动。至于那些负值,如-0.4 和-0.55 nA,是由于空穴有一定几率逃离表面态坠入沟道中,引起探测光子的逆过程。而导致这一过程的原因,是因为整个探测过程是在室温下进行的。

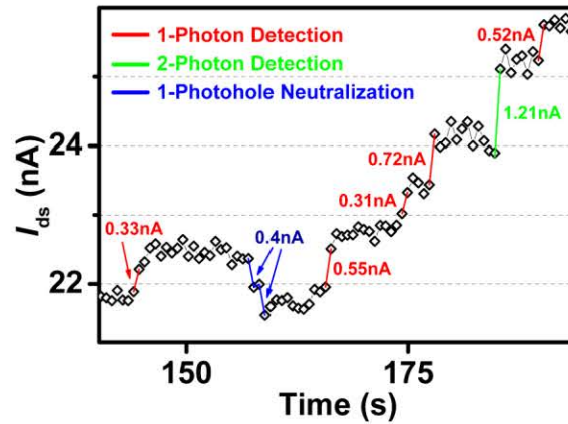


图 3.6 单光子响应图。测量是在 0.73 光子/秒, $V_{ds}=0.1$ V, $V_{bg}=-3$ V 下进行的。

Figure 3.6 Single-photon response diagram. Measurements were carried out at 0.73 photons/s, $V_{ds} = 0.1$ V, and $V_{bg} = -3$ V.

图 3.7 是纳米线探测单光子的探测原理图,纳米线外壳是光栅层,主要是由天然氧化层,非故意掺杂和缺陷等引起的表面态,其具有捕获光生空穴的能力。在光照之前,由于偏压的驱动作用,形成暗电流。当光子入射到内芯时,引起电子空穴对的产生,在背栅电压的作用下,空穴与电子的运动方向相反,空穴被表面态捕获,电子留在内芯中。由于空穴与内芯层相隔足够近,且空穴被表面态局

域住，电子无法与其复合。因此，在该空穴的附近内芯中会感应出大量的自由电子，这些自由电子将会参与导电，导致沟道载流子浓度急剧增加，因此可以在沟道电流中表现出一个宏观增量。

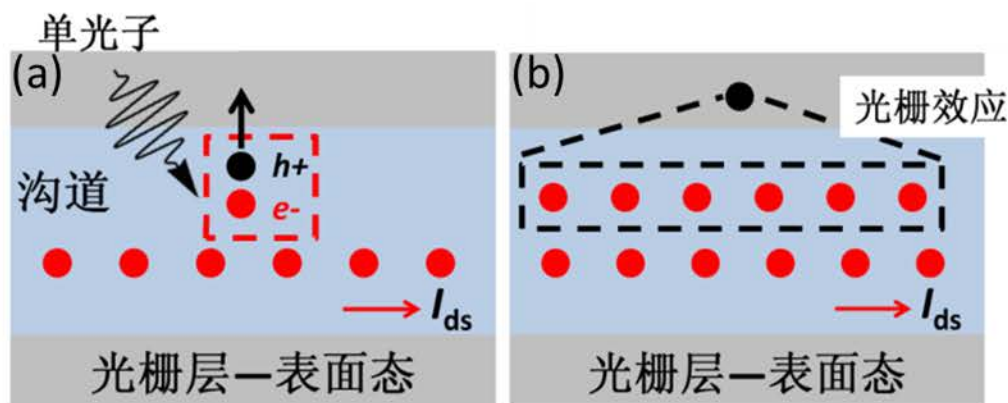


图 3.7 (a) 光生电子空穴对，电子留在沟道中，空穴被表面态捕获，(b) 被捕获的空穴引起 photogating 效应

Figure 3.7 (a) Photogenerated electron hole pairs, electrons remain in the channel, and holes are trapped by the surface state, (b) The trapped holes cause a photogating effect

为了进一步表达探测器分辨光子的能力，我们将光源调成不同功率，使得单位时间内到达器件的光子数有所区别，然后在每一光强下做了图 3.6 那样大量重复性测试工作，最后在每一光强下分别做出电流变化值与跳跃个数的统计图，如图 3.8 所示。其中 $\bar{N}$ 是单位时间内入射到器件上的平均光子数。图中红线是光子响应被高斯分布拟合的对应曲线，每一个高斯拟合可以与曲线完美拟合，而绿线是高斯曲线的总和。当没有光入射时，只有一个很高的高斯峰，这是由于噪音和探测到 0 个光子引起的。当有少量光子到达器件时，很明显有一个附加的高斯峰出现在右边，对应于探测到 1 个光子。但是由于噪音的高斯峰过高，我们将纵坐标拉至底部，可以看到随着入射光子数的增多，右边第二个的高斯峰也出现了，这对应于探测到的 2 个光子。至于噪音峰左边的高斯峰则是由于坠落的那些空穴所引起的，对应于图 3.6 中的那些负值。但是不管怎样，这都不会阻碍我们的探测器能够探测单个光子。值得一提的是，从最后一张图中，我们可以看出，探测器可以探测到 3 个光子。至此，探测器可以在室温下探测出 1, 2 和 3 个光子，并且能够分辨出来。

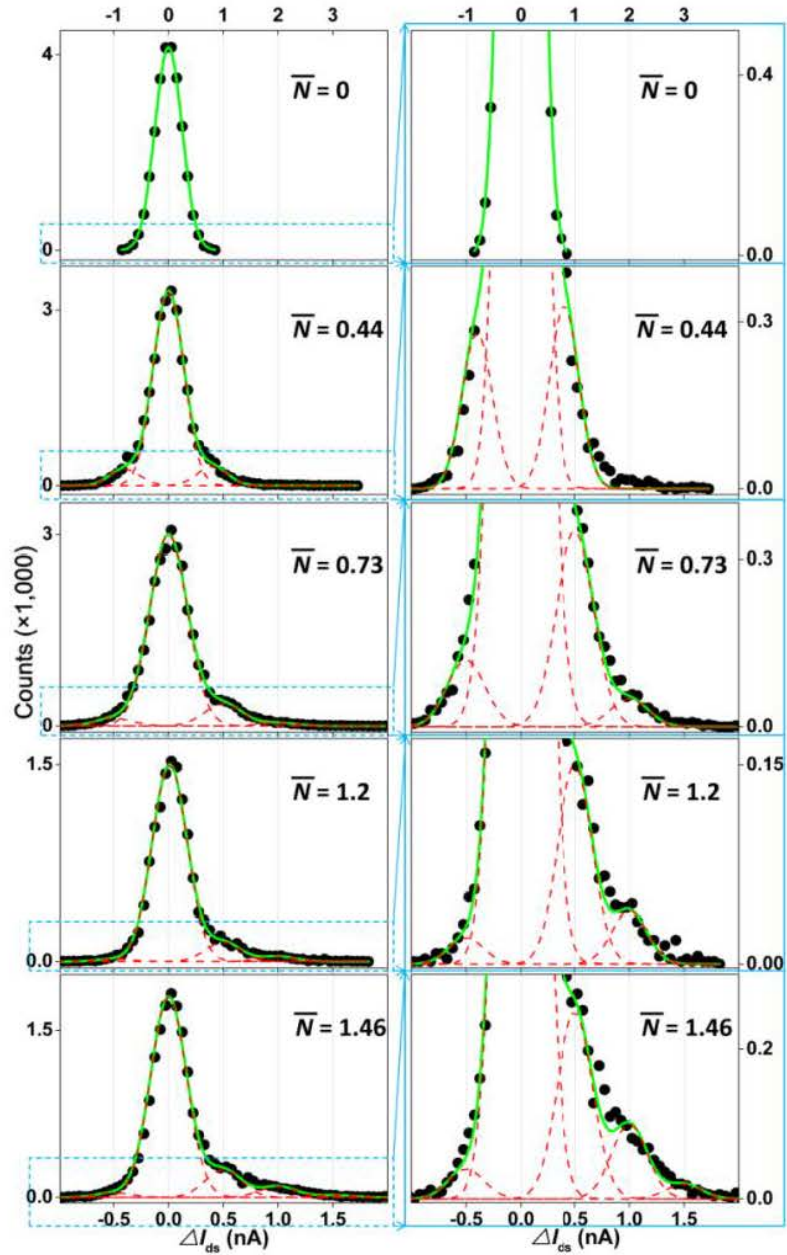


图 3.8 光子响应统计图。入射平均光子数在每个图中都有标出，测量是在 $V_{ds}=0.1\text{V}$ ， $V_{bg}=-3\text{V}$ 下进行的。每个图中的总计数从上到下依次是 25,631, 29,227, 32,786, 14,706 和 20,444。

Figure 3.8 Photon response statistics. The number of incident mean photons is indicated in each figure and the measurement is performed at $V_{ds}=0.1\text{ V}$ and $V_{bg}=-3\text{ V}$. The total count in each figure is 25, 631, 29, 227, 32, 786, 14, 706 and 20, 444 from top to bottom.

一个理想的单光子探测器应该是具有 100% 分辨光子能力，然而在实际中探测器会遭遇各种各样的不确定因素，导致判别 N 时有一些不确定性。针对这种情况有一个适当的方法来解决——配置置信度：首先，我们需要一个决策区域，

这个区域应该是前一个高斯峰与后一个高斯峰的相交点决定，然后，在这个区域内，找出光子数所对应的确定高斯峰的面积，用该面积除以在这个区域内所有高斯峰面积的总和，即光子数分辨率的置信度。通过该方法，可以算出探测器在 $\bar{N}=1.46$ 时的置信度，如表 3.2 所示。其中 $N=1$ 的置信度是 82%，已经可以与分子束外延半导体单光子探测器在 4 K 的能力下相比拟。

表 3.2 $\bar{N}=1.46$ 入射光子的置信度

Table 3.2 Probabilities of Correctly Determining the Number of Photons at $\bar{N}=1.46$

入射光子数	决策区域	置信度
0	$\Delta I_{ds} \leq 0.35 \text{ nA}$	98
1	$0.35 \text{ nA} < \Delta I_{ds} \leq 0.79 \text{ nA}$	82
2	$0.79 \text{ nA} < \Delta I_{ds} \leq 1.34 \text{ nA}$	90
≥ 3	$\Delta I_{ds} > 1.34 \text{ nA}$	94

3.4.4 photogating 效应存在的证据

在本实验中，探测器主要是依靠纳米线的表面态形成的 photogating 效应来探测到单个光子的。实验中，有四点证据表明纳米线存在 photogating 效应。如图 3.9 所示，器件的测试操作过程，电流在背栅电压、光照开关情况下随时间的变化曲线。测试条件是 $V_{ds} = 0.1$ 伏，入射光子速率是 $N = 0.72$ 光子/秒。在 $t = 0$ 时， $V_{bg} = 0$ ，此时的 I_{ds} 是初始暗电流（区别于后期的暗电流）。100 秒后，我们将 V_{bg} 改变为 -3 伏，此时，从图中可以看出沟道电流突然下降到一个低值状态，这是因为背栅电压将沟道载流子调控到一个低浓度状态，此时的电流大小约 11nA。经过 180 秒，我们看到这个过程中电流一直维持在 11nA 附近，没有光照的时候电流并没有上涨。此时打开 LED 光源，使得单光子到达探测器的光敏元上。可以看到此时电流开始上涨，并且曲线也会呈现出图 3.6 所示量子化台阶值。在长时间光子照射器件情况下，探测器可以一直工作，其检测光子数可以从一个光子一直到几 mW 的光子数。这主要归因于纳米线表面的大量丰富无定形缺陷态，它们可以捕获大量的光生空穴。凭借这种宽线性动态范围优势，该探测器在光子成像应用中具有重要的研究价值。

接着，在 $t = 580\text{s}$ 时关闭 LED 光源，从图中可以看出，此时 I_{ds} 并没有上升，

而是维持在刚关闭光源的电流值。这说明纳米线表面态成功捕获住了光生空穴，且没有释放，测试中发现该器件的表面态可以捕获空穴从几个小时到几天不等。这是 photogating 效应存在的第一个证据。

再经过 100 秒后，将背栅电压调回到 0 伏，此时由于没有背栅电压的耗尽作用， I_{ds} 则立即回到暗电流状态。然而，此时的暗电流却是略大于初始暗电流，其差值为 10 nA，如图 3.9 中插图所示。这也是由于表面态捕获住光生空穴并没有释放导致的。这是 photogating 效应存在的第二个证据。

随后，在背栅施加约 3.5 V 正电压 10 秒左右，然后恢复背栅电压到 0 V，从图中可以看到，此时的暗电流跟初始暗电流水平一样。该过程说明，由于纳米线表面态捕获的是光生空穴，其带正电荷，而当往背栅施加正向电压时，则可使得表面态释放被捕获的空穴，使其落回到沟道电流中。此时的状态则与器件测试之初的状态是一致的。而使用正电压释放光生空穴的操作，被称之为“电复位”，此前在其他文献中已经被报道过^[131-133]。所以，这是 photogating 效应存在的第三个证据。

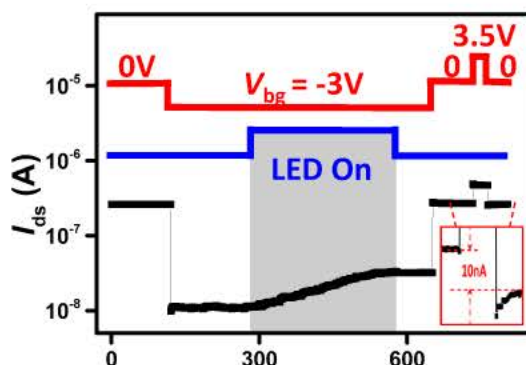


图 3.9 探测器在背栅电压与光照条件的变化下随时间的变化关系

Figure 3.9 Variation of the detector over time as a function of back-gate voltage and illumination conditions

除此之外，我们还做了一种对比实验来验证 photogating 效应是否存在。如图 3.10 所示是不同条件下测试的输出特性曲线。其中，黑线代表的是原始情况即测试之初在无光照的条件下测得的 I_{ds} - V_{ds} 曲线，随后进行如图 3.9 那样的操作，但是最后不进行“电复位”操作。此时，再次在无光照射条件下测试器件的 I_{ds} - V_{ds} 曲线，如图中红线所示，可以明显发现，两条曲线不重合，具有明显的差值。用第二次值（红线）减去第一次值（黑线）所得曲线如图中蓝线所示，在 ± 0.1 V 处，

有一个约 ± 10 nA 的电流差值，这一点与图 3.9 中的差值 10 nA 是一致的。这是由于在光照后，如果不进行“电复位”操作，导致纳米线的表面态一直捕获光生空穴很长时间不释放，由于 photogating 效应沟道电流会在宏观上表现出一个长时间稳定的涨幅。而且这个现象可以不断重复。这是 photogating 效应存在的第四个证据。

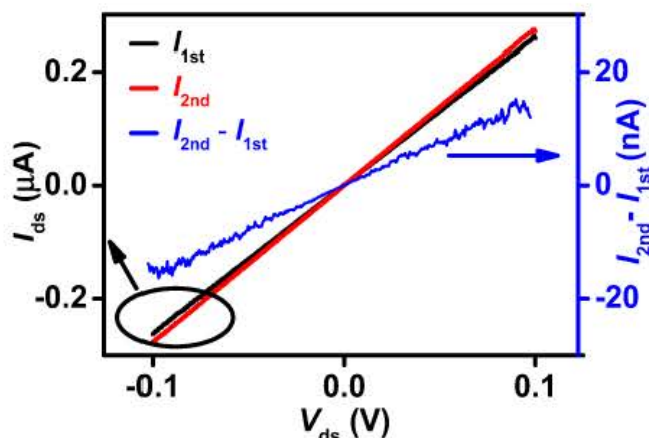


图 3.10 探测器在光照前后的 I_{ds} - V_{ds} 曲线和它们之间的差值关系

Figure 3.10 I_{ds} - V_{ds} curve of before and after illumination and the difference between them

同时，我们使用示波器测试出相邻量子化台阶之间的跳跃时间在 4 ms 左右，也就是说探测器的光子响应速度约为 4 ms，如图 3.11 (a) 所示。使用相同功率，但是不同波长的激光分别照射器件，可以得出的探测器对不同波长的光响光电流不一样大，如图 3.11 (b) 所示，该探测器的峰值响应波长在 480 nm 左右，这跟以前的 CdS 报道是一致的。

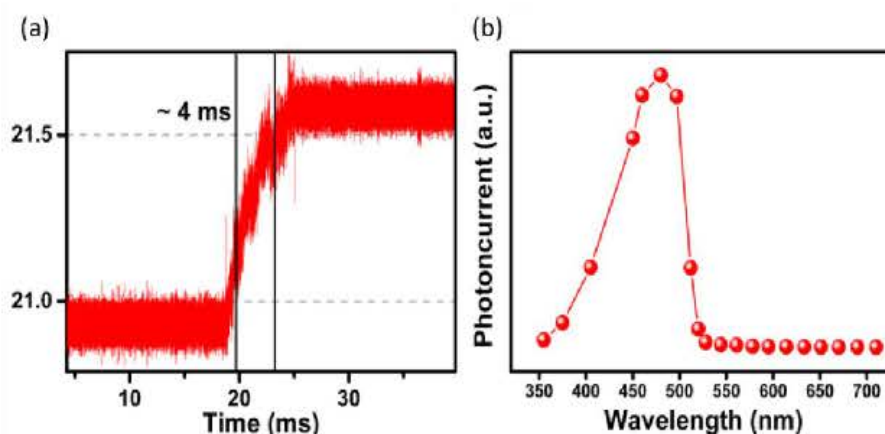


图 3.11 (a) 探测器的光谱响应图，(b) 探测器对光子的响应速度

Figure 3.11 (a) Spectral response of the detector, (b) Response speed of the detector

3.4.5 器件的最佳响应区域

于一个探测器而言最优状态是探测效率最高的状态。如前所述，我们一直将探测器的背栅固定在 -3 V ，本小节工作尝试变换到不同背栅电压下，测试器件的工作状态。如图 3.12 所示，是器件的 g_m - V_{bg} 曲线。该曲线是通过 I_{ds} - V_{bg} 曲线中提取出来的， g_m 是器件的电流对栅极电压的跨导，代表的是电流对不同栅压电压的敏感程度。图中有 5 个红色五角星标注，实验中将背栅电压分别维持在这五个电压处，然后进行单光子响应测试。

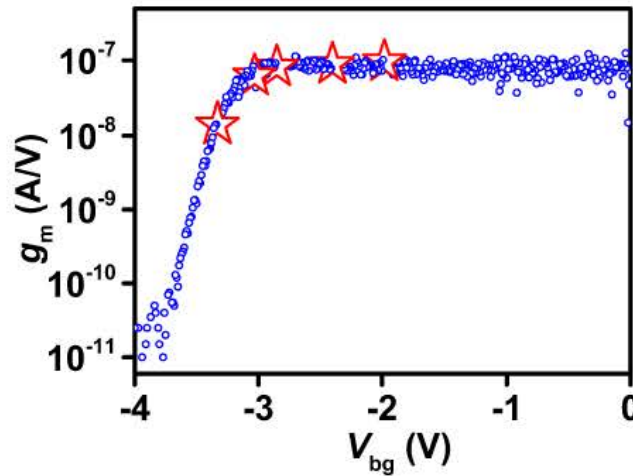


图 3.12 器件的跨导 g_m 与背栅 V_{bg} 的关系曲线

Figure 3.12 Transconductance g_m of the device versus back gate V_{bg}

将背栅电压分别维持在 $V_{bg} = -3.5\text{ V}$ ， $V_{bg} = -2.6\text{ V}$ 和 $V_{bg} = -2\text{ V}$ 三处，分别进行图 3.6 所示的单光子响应实验，与之前一样，重复多次操作，后提取每张图中光子响应的量子化台阶值，统计成如图 3.7 所示的直观图，得到图 3.13，上面三张图是统计后得到的全貌图，由于噪音峰过高，将纵坐标拉低到底部，得到下面三张的局部图。从图中可以看出，不同的背栅电压所测得的单光子响应峰各不相同。在 $V_{bg} = -3.5\text{ V}$ 时，峰值是 0.12 nA ；在 $V_{bg} = -2.6\text{ V}$ 时，峰值是 0.55 nA ； $V_{bg} = -2\text{ V}$ 时，峰值是 0.57 nA 。可以看出，随着栅压往正方向逐渐变大，得到的单光子峰值响应则逐渐增大。这很好理解，因为从图 3.12 中可以看出，随着栅压往正方向改变，器件的跨导 g_m 则逐渐变大。由前面的公式 (3-3) 推导过程可知，最后的公式与背栅电压没有相互制约关系，也就是在不同背栅电压下，公式 (3-3) 同样适用。且 ΔI_{ds} 是正比于 g_m 的。所以 g_m 越大， ΔI_{ds} 则越大。

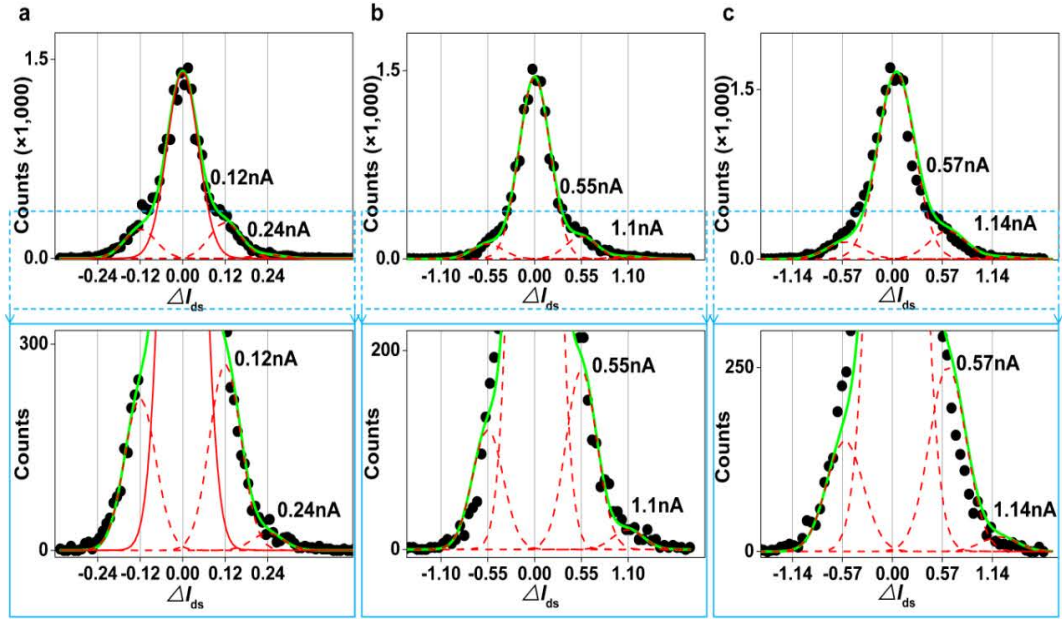


图 3.13 在不同背栅条件下的光子响应统计图。在室温下 $V_{ds}=0.1\text{V}$ ，光子入射速率是 0.73 个/秒，(a) (b) (c) 分别是 $V_{bg} = -3.5\text{V}$ ， $V_{bg} = -2.6\text{V}$ 和 $V_{bg} = -2\text{V}$ 。而单光子峰值分别是 0.12nA，0.55nA 和 0.57nA。每个图中的总计数从坐到右依次是 21,262, 16,073 和 21,206。

Figure 3.13 The photon response statistics for different back gate conditions. The test conditions were $V_{ds} = 0.1\text{ V}$ at room temperature and the photon incidence rate of 0.73 photon/s. (a) (b) (c) were $V_{bg} = -3.5\text{ V}$, $V_{bg} = -2.6\text{ V}$ and $V_{bg} = -2\text{ V}$, respectively. The single photon peaks are 0.12 nA, 0.55 nA and 0.57 nA, respectively. The total count in each figure is 21,262, 16,073 and 21,206 from left to right.

将全部参数代入公式 (3-3) 进行校验理论值与实验值是否吻合。如表 3.3 所示,表中包含了在不同的背栅电压下分别对应的跨导 g_m 和计算得到的 ΔI_{ds} 值。从表中可以看出,最后两栏分别是 ΔI_{ds} 的计算值和实验值,在实验误差范围内两者高度一致吻合。至此,我们的实验与理论完全吻合。

表 3.3 理论值与实验值对比

Table 3.3 Comparison of theoretical and experimental values

Back-gated voltage (V)	Starting -ending current (nA)	Intermediate current (nA)	g_m (A/V) $\times 10^{-8}$	Corresponding Back-gated voltage (V)	Calculated ΔI_{ds} (nA) ± 0.05	Experimental ΔI_{ds} (nA)
-2	100-110	100	$9.59 (\pm 0.5) \times 10^{-8}$	-2	0.57 ± 0.05	0.57
-2.5	50-70	60	$9.26 (\pm 0.4) \times 10^{-8}$	-2.4	0.55 ± 0.03	0.55
-3	11-40	25	$8.42 (\pm 0.5) \times 10^{-8}$	-2.88	0.5 ± 0.05	0.5
-3	11-16	13	$6.9 (\pm 0.5) \times 10^{-8}$	-2.97	0.4 ± 0.04	0.4
-3.5	2-4	3	$2 (\pm 0.3) \times 10^{-8}$	-3.3	0.12 ± 0.03	0.12

根据前面得到的不同背栅条件下的 ΔI_{ds} 值（图 3.14 中红线），结合在每个背栅条件下实验中所观测到的电流噪声，可以得到器件的信噪比（ $\Delta I_{ds}/I_n$ ）随背栅电压的变化关系，如图 3.14 中蓝线所示。从图中可以看出，在 $V_{bg}=-3$ V 时，器件的信噪比是最高的（4.5）。这与前面一直强调的背栅电压在-3 V 处器件状态最好相吻合，由此可得该探测器具有最佳工作状态且在-3 V 处。在本实验中，可以理解为器件的跨导 g_m 与噪声之间的一种博弈，在探测状态最佳区域主要是跨导占主导因素，因为在此时的信号强度被放大到最大，能够从本底噪声中脱离出来；而在其他情况下，由于跨导的放大倍数不够大，信号容易被电流本底噪声淹没。

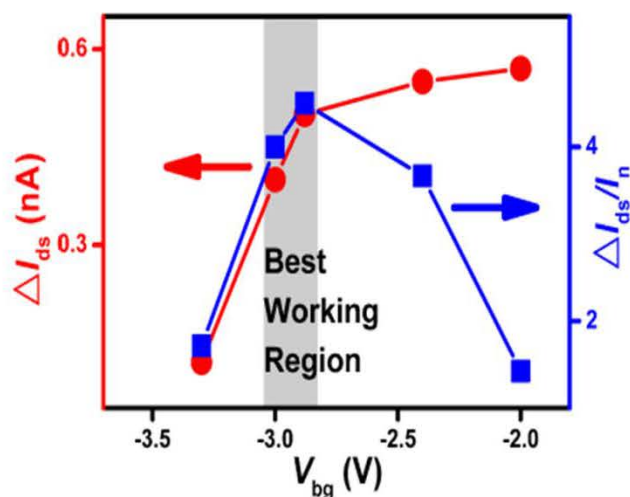


图 3.14 器件的信噪比 ($\Delta I_{ds}/I_n$) 随背栅电压 (V_{bg}) 的变化关系

Figure 3.14 The signal-to-noise ratio ($\Delta I_{ds}/I_n$) of the device as a function of the V_{bg}

3.4.6 单光子源校验

本实验中采用的是 LED 当作光源，由于 LED 出射光是发散性的，所以省去了激光对准寻找器件的麻烦。本实验中采用了两种方法对光源进行的验证是否是单光子水平。

第一种方法是采用的索雷博 Si 强度光电探测器（型号 S130C）进行测试、推导和验证的。实验包含下列四个部分，分别为 1) LED 光源的发光强度与小驱动电流的函数关系，2) LED 光源的发光光谱，3) 本实验纳米线光敏元的面积与索雷博 Si 探测器的面积之比，4) 两个假设

1) LED 光源的发光强度与小驱动电流的函数关系

如图 3.15 (a) 所示，LED 光源的发光强度与驱动电流呈线性关系。其中黑色小圆点是实验测得，将黑色原点连成线段，发现此时的发光强度与驱动电流是线性关系，这与之前文献报道相符。由于更小的驱动电流对应的光照强度已超过了该 Si 探测器的探测极限，所以我们可以精确地往下外延，得出驱动电流所对应的光照强度，如图中红点所示。

2) LED 光源的发光光谱

如图 3.15 (b) 所示，为 LED 光源的发光光谱。该光源的中心波长是 457 nm，而半高宽则是 17 nm，从 449 nm 到 466 nm。

3) 本实验纳米线光敏元的面积与索雷博 Si 探测器的面积之比

纳米线的沟道长度为 $0.5 \mu\text{m}$ ，直径为 100 nm ，则光敏元面积为 $0.05 \mu\text{m}^2$ ；Si 探测器的探测光敏元是圆形，直径为 9.5 mm ，则面积为 90.85 mm^2 。因此，两者相比之后得到的值为 7.057×10^{-10} 。

4) 两个假设

首先，由于纳米线的面积非常小，所以假设 LED 光源发出的光在纳米线的光敏元区域内是均匀的；其次，为了便于计算，我们将公式 (3-3) 中的波长值设定为 LED 光源的中心波长 457 nm 。

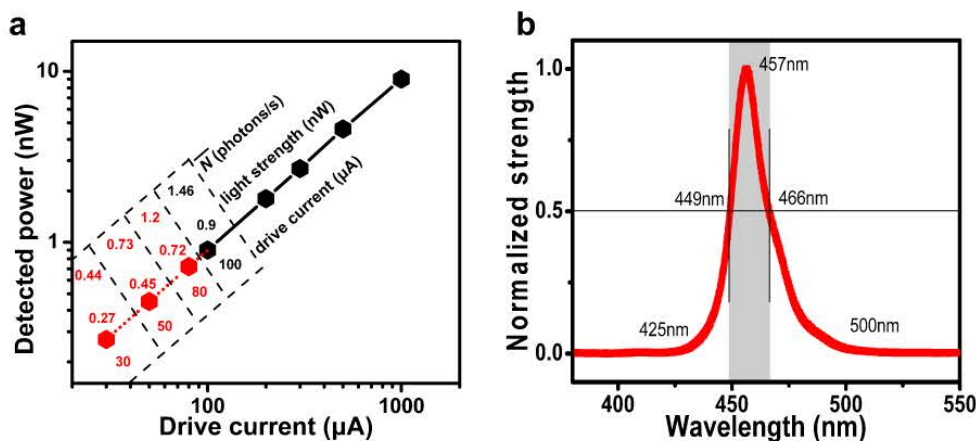


图 3.15 (a) LED 光源的发光强度与小驱动电流的函数关系，(b) LED 光源的发光光谱

Figure 3.15 (a) The luminous intensity of the LED as a function of small drive current, (b) The luminescence spectrum of the LED source.

现在进行计算：如图 3.15 (a) 所示，当在驱动电流为 $1.46 \mu\text{A}$ 时，其发光强度为 0.9 nW ，根据假设所有光子为 457 nm 光子，则该功率代表含有 2.07×10^9 光子/秒，再根据纳米线光敏元与索雷博 Si 探测器的面积之比，可以算出，在此驱动电流下，每秒钟到达纳米线光敏元的光子数为 1.46 。由于 LED 光源的发光强度随着小驱动电流呈线性关系，则基于上述计算方法，可以外推出其他驱动电流下每秒到达纳米线光敏元的光子数。

第二种校验方法则是采用商业单光子探测器对实验中所使用的 LED 光源进行验证。该单光子探测器是一种 PMT 光子脉冲计数器，型号是滨松光电子 H10682-210。实验中采用的示波器型号是泰克 MDO3014。当用光源照射 PMT 光子脉冲计数器时，PMT 可以将探测到的光子脉冲数直径展示在示波器上，并进行自动计数。

然而，在实验中存在如下问题：当用实验中所用的光子强度直接照射 PMT 光子脉冲计数器时，由于 PMT 光子脉冲计数器的面积远大于纳米线面积，所以接收到的光子数将会远大于 1，数量级甚至会超过 10^9 。因此，在这种校验方法中，我们应该再次减小 LED 光源的驱动电流，使其足够小，小到 PMT 接收到的光子脉冲数可以顺利用示波器读取。第二种方法也借鉴了第一种的外推法。

如图 3.16 (a) 所示，为示波器读取到的光子脉冲数，在一个 $10\ \mu\text{s}$ 的时间间隔内，PMT 光子脉冲计数器测得的最小计数为 2 个，最大的计数为 167 个，而在一个更长的时间内，平均计数为 134。此时所使用的驱动电流为 $3\ \mu\text{A}$ 。在此实验条件下，进行多次测量，最终得到更加准确的平均计数值，然后将用描点法将数值填到图 3.16 (b) 中，该图代表所测得的平均计数值与驱动电流的变化关系。实验中，通过测量 LED 光源在 5 个不同的小驱动电流下的出射光子个数，最终描成图 3.16 (b) 的曲线图，从图中可以看出，我们再次验证了在小的驱动电流下，LED 光源的出射光子个数与驱动电流呈线性关系。在测试纳米线的实验中，所使用的驱动电流为 $30\ \mu\text{A}$ ，则此时将一些实验参数，如纳米线光敏元与 PMT 的面积之比、不同条件下的驱动电流、不同的时间尺度，最终我们还原到实验中 LED 光源在 $30\ \mu\text{A}$ 时，照射到纳米线光敏元上的光子数为 0.25 光子/秒。该值与前一种方法所验证的结果在同一数量级之内。基于此，我们不仅用自制的纳米线在室温下探测到了单光子，并且也能保证光源为单光子水平。

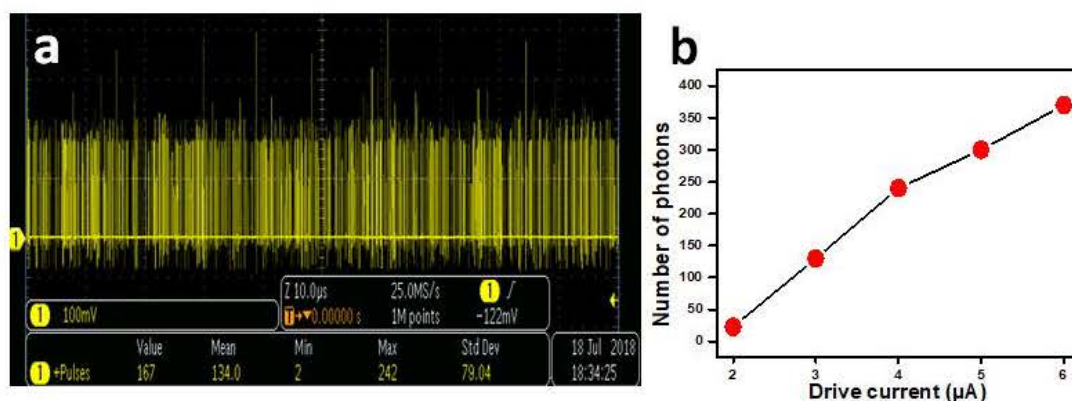


图 3.16 (a) 示波器测试的入射光子脉冲个数，(b) LED 光源的出射光子数与小驱动电流的函数关系

Figure 3.16 (a) The number of incident photon pulses tested by the oscilloscope, (b) The relationship between the number of emitted photons of the LED and the small drive current

3.4.7 器件的偏振光子选择性

当前，在量子通讯领域，信息的载体是单独的光子，传输之前光子会被加载不同的信息，比如偏振光子，在接收端光子的偏振解码则主要依靠单光子探测器前置的偏振分析仪来识别，其后则需要单光子探测器来检测其强度信息。随着探测器的不断发展，尤其是单光子探测器，在未来需要小型化，高度集成化，所以研发出一款同时能识别强度信息与偏振信息的单光子探测器对于芯片集成化是至关重要的。

由于一维纳米线的特殊结构，其径向方向的介电常数与周围介质（真空或大气）的介电常数相差极大，使得电子和空穴在传输方向上具有异向性，使得纳米线具有天然的偏振光选择性^[134, 135]。为了验证实验中的纳米线单光子探测器的偏振敏感性，搭建如图 3.17 (a) 所示的实验装置，在 LED 光源与衰减片之间依次放置线偏振片和半玻片。线偏振片主要将 LED 发出的光源从自然光转变成特定角度的线偏振光，半玻片则是改变线偏振光的角度。其中，当半玻片与线偏振片的角度改变为 0.5θ 角度，偏振光被改变的角度则为 θ 。随后的衰减片则是衰减光子数，使得到达纳米线的光子数为单光子水平。如图 3.17 (b) 所示，为纳米线单光子探测器探测到的光子计数率与偏振光的角度变化关系，显然，计数率 (count rates) 与角度 θ 呈 $\cos^2\theta$ 关系，其中纳米线的轴向方向被定义为 0° 。进一步，通过定量分析可知，该探测器的偏振对比度为 50%，该结果可以多次重复。该偏振对比度与之前报道的十字形纳米线的 0.56^[7] 大小相当。当然，这个值是比较低的，这主要归因于两点。其一，来源于纳米线的核壳结构的不均匀性，外壳对纳米线的介电常数有一定的影响；其二，则是来源于纳米线的百纳米直径造成的，越大的直径越不利于纳米线的光偏振敏感性，因为较大的直径会减小纳米线的介电常数与周围介质的介电常数之间的相差优势。

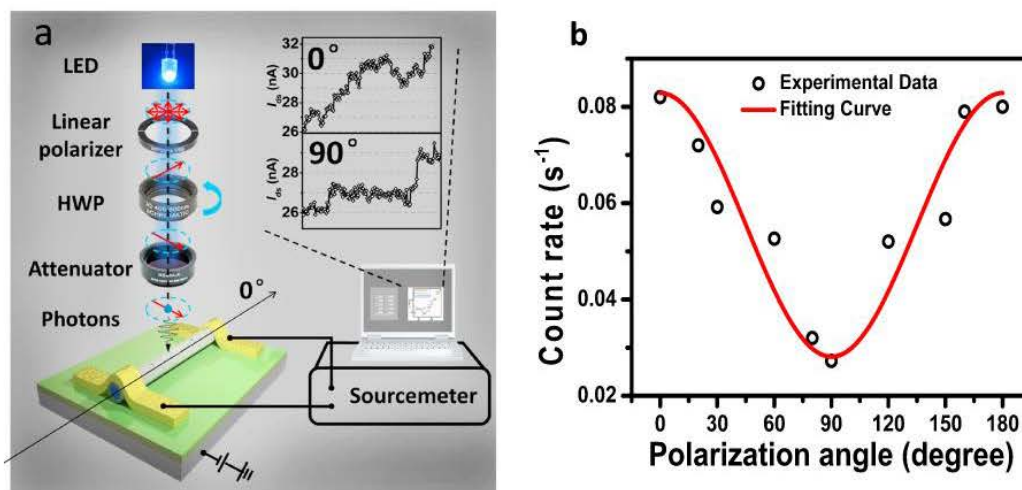


图 3.17 (a) 器件偏振测试系统图, (b) 光子计数率与偏振角的函数关系

Figure 3.17 (a) Device polarization test system diagram, (b) photon count rate as a function of polarization angle

3.5 本章小结

本章利用化学气相沉积方法生长了一种具有核壳结构的 CdS 纳米线。纳米线的表面具有天然氧化层, 这是纳米线的表面态, 类似于量子点, 具有 photongating 效应, 该层在室温下可以捕获到光生空穴。除了 CdS 的丰富表面态, 纳米线还有非常大的比表面积和高载流子迁移率, 这三个性质一起实现了纳米线在室温下成功地探测到了一个光子。经过大量实验探测, 并进行数据归类统计, 我们看到 CdS 纳米线单光子探测器具有光子数可分辨能力, 即能分辨出同时入射的 1 到 3 个光子, 且每个光子响应的高斯分布得到完美拟合, 并且取得了不低于 82% 的置信度。本章工作不仅在实验上观测到光子数响应情况, 并且还进行了理论建模和公式推导, 最终得出与实验模型相吻合的公式, 代入实验中相关数据, 结果与实验观测值完全契合。除此之外, 实验中通过四种不同方式分别验证出纳米线具有 photongating 效应。本实验中的光源采用 LED 发散光源, 同时也使用两种独立方法分别进行验证, 其中包括商业单光子探测器进行验证, 结果显示单位时间内入射到纳米线光敏元区域的光子数为单光子水平。同时, 得益于纳米线的一维特殊结构, 探测器显示出对不同偏振方向的入射光子有一定的偏振选择吸收特性。

第4章 InP 纳米线光电探测器

为了实现高灵敏、响应近红外光子的多功能探测器，本章研究了一种基于非对称金属电极和非对称电极面积接触的 InP 纳米线光电探测器。由于 InP 纳米线表面含有约 1.6 nm 的天然氧化层，像 CdS 纳米线的表面态一样，可以充当 photogating 层，实现高灵敏探测（光子探测器），该器件在 140 K 下可以实现 6 光子/秒的探测。另一方面，由于非对称结构配置，给器件带来了额外的两种功能：高整流比和电/光开关功能。室温下在 ± 6 V 的整流比高达 10^6 ，低温 77 K 下在 ± 5 V 的整流比高达 10^8 。且开关高低电流状态相差 4 个数量级。因此，该工作为多功能红外单光子探测器提供了一种新的发展思路。

4.1 引言

除了量子通讯领域，光纤光学传感，半导体器件分析，单线态氧检测^[136]以及各种学科的光子研究都需要近红外单光子检测。InP 材料以其高电子迁移率和直接带隙 (1.34 eV) 且易于与三元/四元化合物集成而被广泛研究。InP 具有极高的光电转换能力，利用 InP 纳米线作为单光子探测器光敏元极具前景^[130, 134]。

利用非对称电极面积接触可以提高器件的整流比，如图 4.1 (a) (b) 所示，是 2016 年 M. Golam Rabbani 等人^[137]在硅材料上制作的非对称源漏面积接触的光电探测器，该器件即使在零偏压下也能保持很大的光响应，该性能为有效抑制器件暗电流提供了新的方法，特别是零偏压下的高响应，为高密度集成电路中存在的热功耗问题提供了一条有效的解决途径。同样，使用二维材料也能达到这种效果，如图 4.1 (c) (d) 所示，是 2018 年 Changjian Zhou 等人^[138]制作的基于 WSe₂ 二维材料非对称电极接触的光电探测器，该器件同样也实现了很好的光电响应。

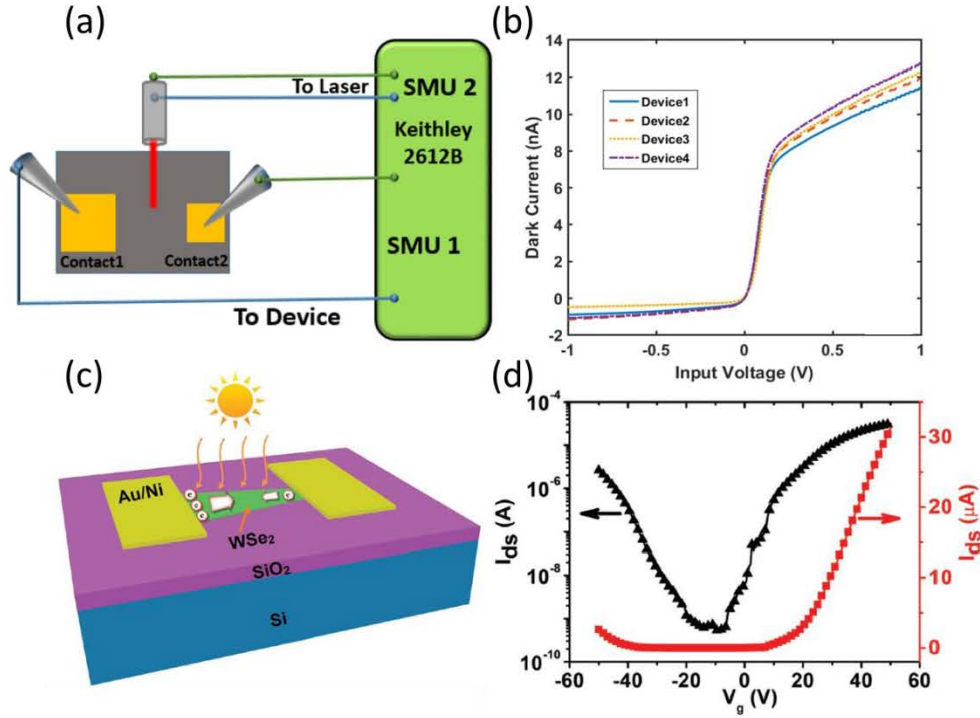


图 4.1 (a) 基于硅材料非对称电极面积接触光电探测器^[137], (b) 非对称硅器件的 I-V 曲线^[137], (c) 基于 WSe₂ 非对称电极面积接触光电探测器^[138], (d) 该 WSe₂ 器件所对应 I-V 曲线^[138]

Figure 4.1 (a) Asymmetric electrode area contact Si photodetector^[137], (b) IV curve of asymmetric Si device^[137], (c) WSe₂ photodetector based on asymmetric electrode area contact^[138], (d) the IV curve of the WSe₂ device^[138]

4.2 非对称金属及非对称接触面积器件制作

本章实验主要目标是制作成不同接触面积的器件, 同时进一步制作成不同金属且不同接触面积的器件。如图 4.2 (a) 所示, 是 InP 纳米线探测器的三维示意图, 实验中采用 Ti/Au 和 Pt/Au 分别充当接触电极, 由于 Ti 的功函数是 4.33 eV, 而 InP 的导带底到真空的能级是 4.38 eV, 所以 Ti 与 InP 接触会非常良好, 没有势垒。另外, InP 的带隙为 1.34 eV, 所以价带顶到真空的能级为 5.72 eV, 而 Pt 的带隙为 5.12 eV, 所以此时 Pt 可以与 InP 形成极大的接触势垒, 阻止电子从电极 Pt 到 InP 沟道方向的流动。另外, 实验中将 Ti/Au 与 InP 的接触面积制作成较大的一端, 将 Pt/Au 与 InP 的接触面积制作成较小的一端。

实验当中所制作的 InP 探测器主要运用电子束光刻的方法结合传统剥离工艺制备金属电极作为源极和漏极, 形成纳米线半导体场效应晶体管。因为 InP 是

采用 MOCVD 选区生长的，所以基底硅片上只会在特定区域有一些垂直向上生长的纳米线，这是有别于 CVD 生长的纳米线的。将滤纸剪成小面积三角纸片，在显微镜下找到选区生长的 InP 纳米线，使用镊子夹起三角纸片当作“镰刀”，在显微镜下小心“收割”纳米线，然后将三角纸片放在事先准备好的基底硅片上，该基底硅片是为后续光刻做准备的，所以与前几章一样，是采用带有 285 nm 二氧化硅绝缘层的基底，整个硅片上已被提前做上了坐标标记。随后，像第二章一样采用标准光刻工艺在纳米线两端制作源漏电极。其中需要注意的是纳米线两端电极是采用两步骤制作而成的，即第一步光刻过程只制作 Ti/Au 大面积接触，第二次再制作 Pt/Au 小面积接触。最后制作出来的器件如图 4.2 (b) 所示。

实验中除了源极为 Ti/Au，漏极为 Pt/Au，同时也在背栅施加栅极电压，背栅是 SiO₂/Si 的 Si 基底，因为实验中 Si 是重掺杂的，因此具有良好的导电率。

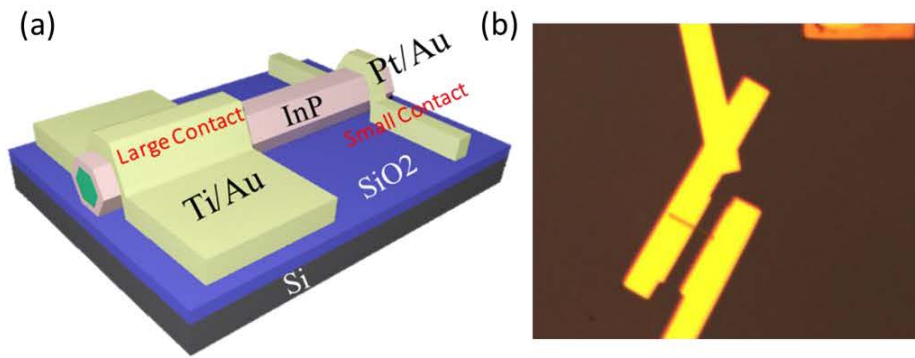


图 4.2 (a) InP 纳米线非对称金属及非对称接触面积器件三维示意图，(b) 器件的光学显微镜图像

Figure 4.2 (a) 3D schematic diagram of the InP nanowire based on asymmetric metal and asymmetric area contact, (b) Optical microscope image of the device

4.3 高整流比 InP 纳米线器件

为了验证器件的整流比，实验中对器件进行了 I - V 特性测试。将电压施加在漏极，如前所述，InP 纳米线器件的能带图在接触之前和之后分别如图 4.3 (a) 和 (b) 所示。从图中可以看到，在 Ti 与 InP 接触端基本没有电子势垒，电子从该端通过时，没有障碍；而在 Pt 端则存在极大的势垒，使得电子从 Pt 端到 InP 端存在极大障碍。

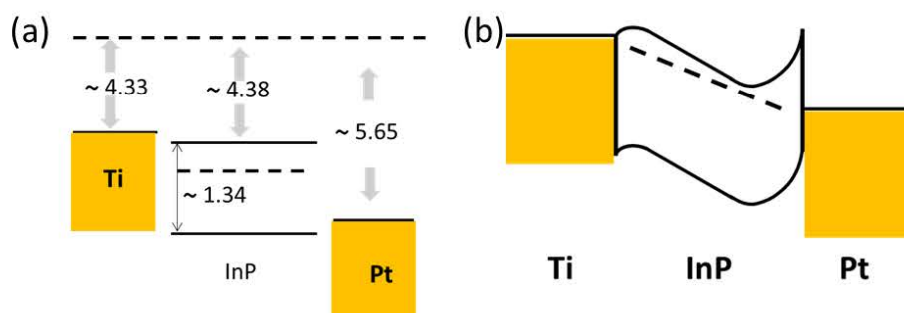


图 4.3 InP 纳米线器件高整流比器件能带理论图 (a) 接触前, (b) 接触后

Figure 4.3 InP nanowire device with high rectification ratio and its theoretical diagram (a) before contact, (b) after contact

最终, 图 4.4 (黑线) 是一个典型的 InP 纳米线非对称金属及非对称接触面积器件在常温下的 I - V 特性测试图。测试时, 从 -7 V 扫描到 $+7$ V, 可以看到在正半轴端, 器件的电流一直在 10 pA 以下, 说明 Pt 与 InP 的接触势垒成功抑制住了电子的传输; 而在负半轴, 电流则随着电压的增大而逐渐快速增大, 表明 Ti 与 InP 的接触端基本没有势垒, 电子可以顺畅通过。通过计算, 器件在室温下在 ± 6 V 的整流比高达 10^6 , 该结果在纳米线器件或者二维材料异质结器件中名列前茅。进一步, 将器件降温至 77 K 研究器件的 I - V 特性, 如图 4.4 (红线) 所示是器件在 77 K 下的 I - V 特性曲线。从图中可以看到, 在高势垒端器件的电流数量级降至更低 (10^{-13} A), 基本处于绝缘态, 这是由于温度对电子的动能有极大影响, 在 77 K 低温下, 电子的能量不足以越过从 Pt 到 InP 的势垒, 从而表现出绝缘态。而在势垒较低端, 电子不需要穿过势垒, 所以电流基本不受温度影响, 依然随着电压的增加而呈指数增加。对器件此时的整流比进行评估, 发现在 ± 5 V 的整流比高达 10^8 , 这在目前所有文献报道中处于领先水平的数值。

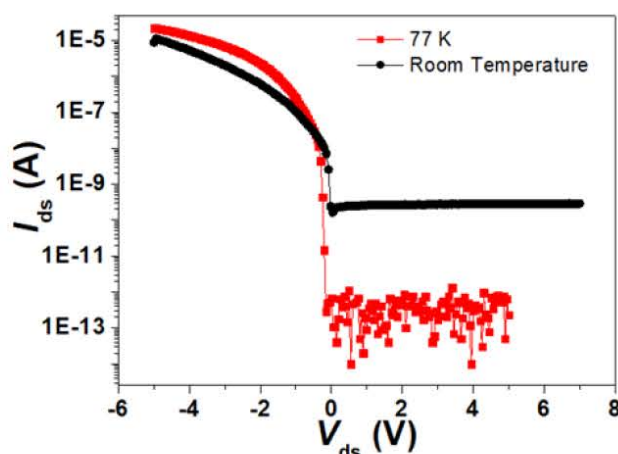


图 4.4 常温下和 77 K 低温下 InP 纳米线器件的 I - V 特性高整流比

Figure 4.4 High-rectification ratio of I - V characteristics of InP nanowire devices at room temperature and 77 K.

为了验证器件的接触面积不同造成的整流比不一样, 实验中制作了各种接触面积比的器件, 并测试其输出特性曲线。为了实验的可对比性, 在纳米线源漏两端采用同种金属 (Cr/Au) 进行实验, 并在同一次工艺下完成, 以消除其他变量因素带来的干扰。如图 4.5 所示, 是几个典型器件的光学照片, 所有输出特性曲线都是在室温下测试的。从图中可以看到, 当源漏两端的接触面积非对称时, 所得到的输出特性曲线的整流比非常大, 高达 10^5 。但是当两端接触面积比较接近时, 输出特性曲线则是两端都对称开启的。实验中制作了大量纳米线器件, 结果表明不同接触面积确实可以得到不同整流比的输出特性曲线, 因此得出结论: 接触比差别越大则整流比越大, 室温下最高值可达 10^5 , 最低值为 1。

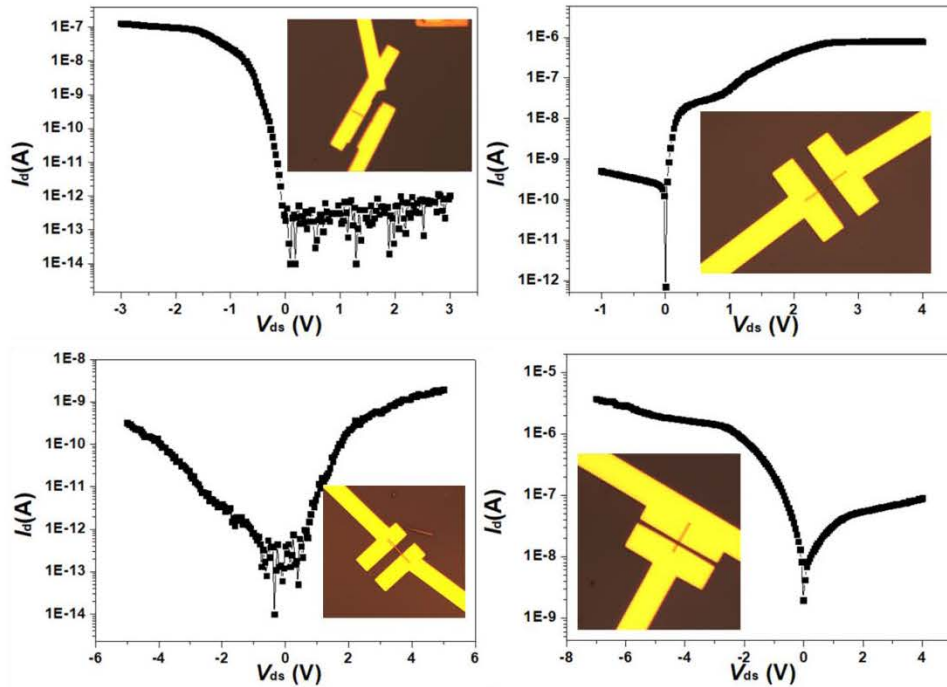


图 4.5 InP 纳米线器件源漏两端不同接触面积比所测得的输出特性曲线, 接触比差别越大, 输出特性曲线的整流比越大

Figure 4.5 Output characteristics of different contact area ratios at the source and drain ends of the InP nanowire device. The greater the difference in contact ratio, the larger of the rectification ratio

4.4 完全耗尽态

为进一步研究器件的场效应特性，实验中同时在背栅施加扫描电压，得到如图 4.6 所示典型转移特性曲线。与传统的转移特性曲线不同，本实验中的转移特性曲线会出现一个“自动反弹”的过程。该现象在纳米线器件中鲜有报道。但是这个现象可以带来更多功能应用，如弱光探测器、开关器件和逻辑器件等。低电流状态在 1×10^{-13} A 数量级水平，高电流状态在 1×10^{-9} A 数量级水平，两者相差 4 个数量级，另外，可以看到从低电流态（高阻态）跳跃到高电流态（低阻态）之间只有少数测量点存在，表明在电表的测量范围内，器件的高低阻态变化迅速，适合快速探测或快速电开关应用。

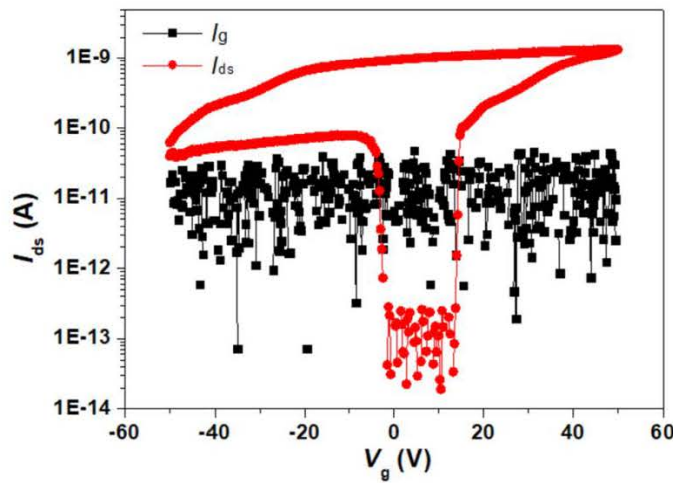


图 4.6 InP 纳米线器件的转移特性曲线

Figure 4.6 Transfer characteristics of InP nanowire devices at room temperature

4.5 InP 纳米线器件的光响应研究

进一步，为了研究 InP 纳米线器件的光响应，实验中进行了激光测试研究，包括弱光响应。结果证明，单根 InP 纳米线器件对光具有非常稳定的光响应，并且器件的光响应速度在之前报道的同类器件中处于领先地位。

4.5.1 InP 纳米线器件的全光谱响应图

为测试 InP 纳米线器件的全光谱响应图，实验中，使用不同波长的激光照射同一器件，测试器件在每一波长激光下的光电流响应。在实验中，需要保证不同波长的激光的功率相等。该系统主要采用一套分光系统对白光激光进行分光，为保证功率一致，在分光之后的光路中，加入中性密度衰减片，在不同的波长下，调节衰减片到不同的衰减倍数，使得系统的出射功率保持一致。由于纳米线器件

尺寸很小，实验中需要在光路中加入显微观察系统，使得激光光斑能够准确照射到纳米线器件上。在本实验中，我们的光波长从 650 nm 每相隔 25 nm 测试一次，直到 1000 nm。如图 4.7 所示是 InP 纳米线器件的全光谱响应图，从图中可以看出，InP 纳米线的响应截止波长略大于 900 nm，这与 InP 材料的带隙相符，InP 材料的带隙为 1.34 eV，对应的截止波长为 925 nm。图中在 925 nm 之后还有略微的光响应主要来源于 InP 材料的带尾吸收或器件的接触处产生的光电流，该响应与 925 nm 之前相比可以忽略不计；在 850 nm 之前，可以看到 InP 纳米线器件具有很高的光响应，直到 750 nm 才有所降低，说明 InP 纳米线的光响应最高峰在该范围之内。该实验结果与之前报道的 InP 材料全光谱响应结果基本一致。

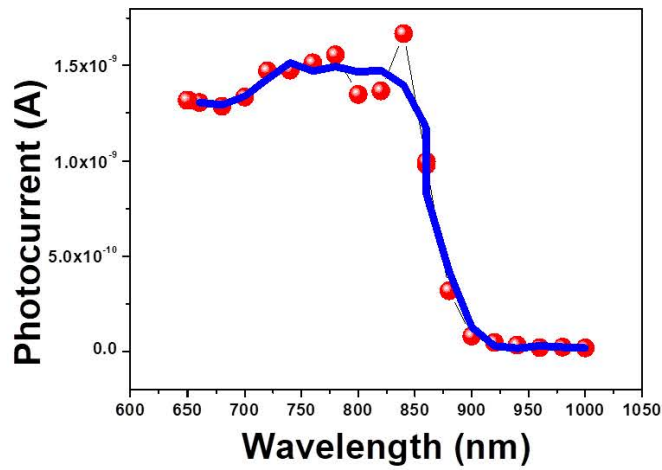


图 4.7 InP 纳米线器件的全光谱响应图

Figure 4.7 Broad spectrum response of InP nanowire devices

4.5.2 InP 纳米线器件的光响应稳定性和光响应速度

光响应稳定性和光响应速度是一个光电探测器不可缺少的两个重要指标。如图 4.8 (a) 所示，是器件在 785 nm 斩波激光照射下的光响应周期性展示图，实际实验中，进行了更长时间的测试，结果显示器件能够良好稳定地进行光响应。在此需要注意的是，本小节实验没有施加背栅电压，因此器件没有被调制到高阻态，且本小节实验是在室温下进行的，因此光响应是 InP 纳米线的本征光响应。实验后期研究中，进行了调制状态下的光响应，在后面介绍。实验中，使用示波器读取器件光响应在某一周期内的上升沿和下降沿，获取器件的响应速度信息。如图 4.8 (b) (c) 分别是器件的光响应上升沿 (60 μ s) 和下降沿 (40 μ s)。据我

们所知，在低维材料领域，该响应速度在两端器件的报道中是处于领先地位的。这与器件的光敏元材料的晶格质量和两端电极的收集效率有关。

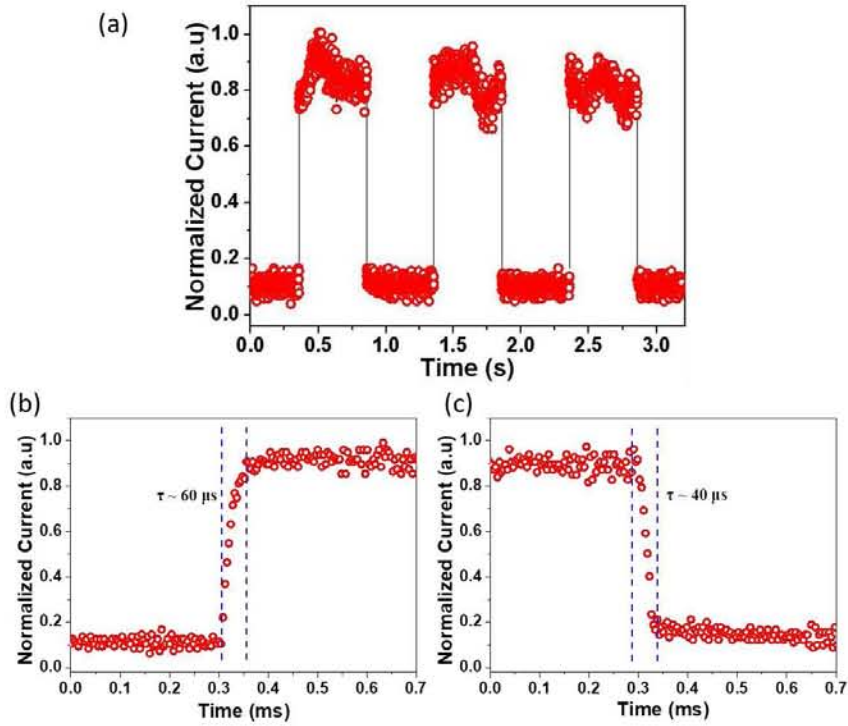


图 4.8 (a) InP 纳米线器件的光周期性响应图 (b) 器件的光响应上升沿 (c) 下降沿

Figure 4.8 (a) Photoperiod response of the InP nanowire device (b) Light response rising edge of the device (c) Light response falling edge of the device

4.5.3 InP 纳米线器件的光子数响应测试

利用转移特性曲线的特征现象进行了光子数响应测试研究。在此之前，我们已经得知 InP 纳米线的转移特性曲线在中间的某个时期会出现高阻态现象，达到了极低暗电流水平，实验中我们利用这种特殊的实验现象，进行光子数响应研究。实验是在 140 K 低温下，改变器件的背栅电压，使其达到高阻态状态，并且持续维持该状态；在一束微弱的激光前放置高倍数中性密度衰减片，使得到达 InP 纳米线上的光子数处于极低水平，实验中一直观测 InP 纳米线器件的时间-电流曲线，如图 4.9 所示，是 InP 纳米线器件对 6 光子/秒的响应时间-电流曲线。黑线代表的是无光照条件下，器件一直维持在一个极低的暗电流水平状态；红线代表的是器件在 6 光子/秒的入射下，电流逐渐增加的现象，说明该 InP 纳米线器件对 6 光子/秒是有响应的。实验中，由于存在电路噪音和环境噪音，因此，会出

现图中红线和黑线所示的抖动现象。

推算光子数的各参数如下：使用索雷博 Si 光电探测器（型号 S130C）所探测到的衰减之后的激光功率为 0.4 nW，而纳米线光敏元的面积与索雷博 Si 光电探测器的面积之比则为 1.13×10^{-8} ，激光波长为 785 nm，因此推算出入射的光子数约为 6 光子/秒。其中纳米线器件的半径 $r = 100$ nm，沟道长度 $l = 4$ μm ，因此面积算作 $2r \times l = 0.8$ μm^2 ，而 Si 光电探测器的面积则为 70.85 mm^2 ，因此两者之间的比值为 1.13×10^{-8} 。

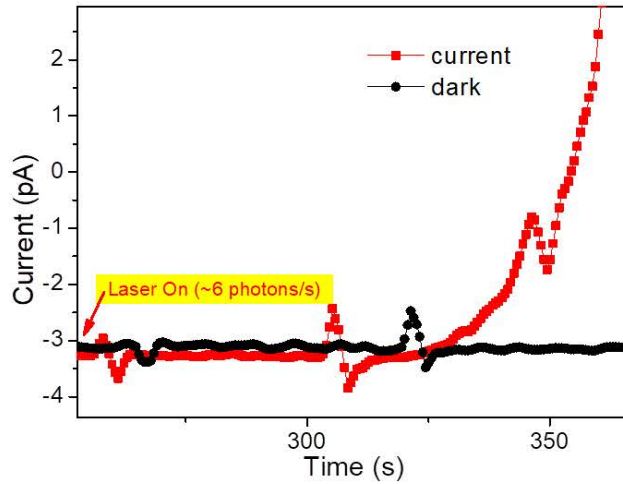


图 4.9 InP 纳米线器件对 6 光子/秒的响应 Current-Time 曲线。黑线代表的是无光照条件下的暗电流；红线代表的是器件在 6 光子/秒的入射下，电流逐渐增加的现象，说明该 InP 纳米线器件对 6 光子/秒是有响应的。

Figure 4.9 Current-Time curve of the InP nanowire device response to 6 photons/s. The black line represents the dark current; the red line represents the phenomenon that the current gradually increases with the device at 6 photons/s, indicating that the InP nanowire device can reponse to 6 photons/s.

4.6 InP 纳米线器件的转移特性曲线理论解释

综合前面的实验现象，我们对 InP 纳米线器件的特征转移曲线进行了理论解释。如图 4.10 所示，是一张典型的转移特性曲线特征图，在曲线中已经分别标记出了一些记号，按照实验中的背栅电压扫描开始点起步，分别为①②③④⑤。器件的源漏电压 $V_{ds} = -4$ V，在测试之初，处于情况①，此时背栅电压为 $V_g = -50$ V，表面态中的陷阱中心处于空缺态，所以此时的沟道电流由背栅电压来主导，又因

为沟道载流子的多子是电子，所以-50 V 的背栅电压对其是一个抑制作用。将背栅电压逐渐往正方向扫描，在此过程中，由于背栅电压的调制作用，会往整个沟道中注入更多的电子，使得整体电子浓度增多，同时，多余部分的电子会进入表面态的陷阱中心中存储起来，这些电子会对沟道里面的自由电子产生抑制作用。当处于情况②时，表面陷阱中已经存储了大量被捕获的电子，同时由于此时的背栅电压 $V_g = +50$ V，该电压处于主导地位，且对沟道电子是增强作用，因此，相较于情况①，此时的沟道内电子浓度是较高的，从图中可以看出，情况②的沟道电流是略大于情况①的。随后，将背栅电压逐渐往负方向扫描，当到达情况③时，此时的背栅电压处于 0 V 附近，即此时的背栅电压对沟道电流不造成抑制或增强作用，然而此时的表面态中还是存储了大量被捕获的陷阱电子，这些电子在纳米线的表面，可以完全耗尽沟道当中的电子，使其进入高阻态，使得纳米线基本处于绝缘状态，即情况④。可以发现，极低电流会持续一段时间，然后恢复到初始状态，由此可知，在这个持续的过程当中，表面态里面的陷阱电子会逐渐流失，直到表面的陷阱再次空缺，不足以形成耗尽态，因此突变到了原始情况①。

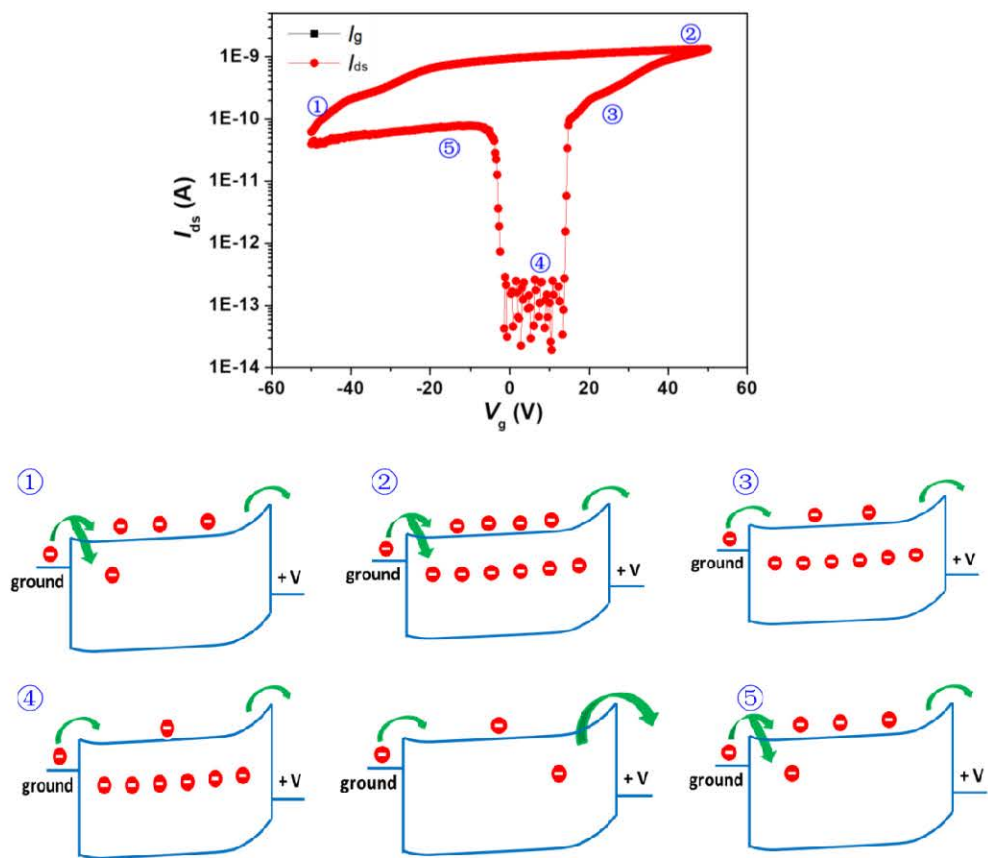


图 4.10 InP 纳米线器件典型的转移特性曲线。图中标识的①②③④⑤代表在整个扫描过程中

不同点的情况，这些情况分别对应不同的测试条件、电流情况、能带结构以及表面态陷阱
电子多少情况

Figure 4.10 Typical transfer characteristic curve of InP nanowire devices. The①②③④⑤labeled in the figure represents the different points in the whole scanning process. These cases correspond to different test conditions, including current conditions, band structure and surface state trap electrons.

4.7 本章小结

本章中，我们利用非对称面积和不同金属的源漏电极构建 InP 纳米线器件，得到了具有高整流比的电子器件，该器件在室温下 $\pm 5\text{ V}$ 的整流比高达 10^6 。同时通过构建不同接触面积的纳米线器件，对比得出电极面积大小与流经电流呈正相关关系。另外，该特殊结构器件的转移特性曲线具有一种高低阻态转换特性，利用这种特征现象，在极低暗电流条件下对光进行响应，结果表明器件在 140 K 温度下能够响应 6 光子/秒 ，该结果表明器件对光具有高敏感性，具有制作成多功能近红外单光子探测器的潜力。最后对该器件从能带方面进行了理论解释。

第5章 BP/WSe₂ 二维材料垂直结偏振探测器

为实现高灵敏、偏振敏感的红外光子探测器,本章设计了一种基于异质结的二维材料 photogating 光电探测器。该结构采用一种二维材料黑磷(BP)来垂直调控另一种二维材料二硒化钨(WSe₂),在室温下的光响应率分别在可见光和红外光波段达到了 10^3 A/W 和 0.5 A/W,并且探测率分别达到 10^{14} 和 10^{10} Jones。此外,对于红外偏振的光响应率约为 40 mA/W,这种高性能归功于 BP 的强固有线性二向色性和器件的巧妙设计可以各向同性地充分收集光生载流子,以及 BP/WSe₂ 重叠区域边缘对于所有方向偏振光敏感。本章工作所展示的高响应率、高探测率和高偏振敏感的红外光响应表明,基于 photogating 结构的光电探测器通过使用二维材料为室温下的红外光子偏振探测或成像提供了新的途径。

5.1 引言

使用具有高光响应率和偏振敏感的红外成像系统的能力是实际光电探测器的核心,并且已经在基于III-V或II-VI半导体的传统器件中得到证明。然而,在室温下工作且具有高响应率的红外偏振光检测的光电探测器仍然是难以实现的。

红外成像系统(IRIS)在军事中具有重要意义,可用于各种应用,如机载监视、目标探测、采集和跟踪、导航辅助和夜视、导弹预警和制导、精确打击等^[139, 140]。在存在杂波的实际应用中,光电探测器的空间分辨率是 IRIS 的主要需要改进的指标。这种改进可以通过增强光的多色能力、强度和偏振信息的检测来实现,以减少杂波并增强所需的特征或对比度^[141]。此外,实现 IRIS 光电探测器的高度集成也是国防现代化的趋势。但目前为止,许多器件无法在复杂的环境条件下执行高空间分辨率,或者在所需的任务开发中具有良好的可移植性。为了更加有效和方便地提高光电探测器的要求,已经发现了具有偏振敏感的某些材料,例如一维纳米线或碳纳米管,因为它们具有固有的高灵敏度和高迁移率性。然而,纳米线丰富表面态会引起的严重散射而导致器件噪声过大,使其在光子探测领域存在暗计数率大等问题。

最近,新兴的二维材料由于其独特的光电特性(界面平整、室温迁移率高、

无晶格失配、缺陷密度低等)而引起了研究人员极高的关注度。并且由于二维材料的结合是层间范德华力结合,因此在二维材料之间可以很容易地进行堆叠工作,且不用担心引入像传统材料的晶格失配问题^[98, 142]。黑磷是一种层状材料,能够将块状晶体机械剥离成单层,且具有高度各向异性的晶体结构,导致其光学和电子具有方向异性。另外,黑磷带隙对应于可见光范围到中红外光谱范围,表明基于黑磷的光电探测器的红外光探测能力^[77, 143]。

受 photogating 机制的启发,我们知道 photogating 效应在光响应增强和易于制造方面是一种有效的方法,且 BP 作为 photogating 层为红外光子探测提供了实际应用的潜力。

在这里,我们展示了一种具有高偏振灵敏的宽带光电探测器--采用基于 BP/WSe₂ 的垂直异质结构进行红外探测,其中 BP 用作 photogating 层, WSe₂ 用作导电沟道。由于 WSe₂ 和 BP 之间存在内建电场,可促进电子空穴对的有效分离并减少载流子的复合几率。该探测器具有 10³ A/W (可见光)和 0.5 A/W (红外光)的高响应率以及 10¹⁴ (可见光)和~10¹⁰ Jones (红外光)的高探测率(D*)。我们的器件的红外偏振相关光响应已通过空间分辨光电流测量进行了研究。BP/WSe₂ 结构可以消除由 BP/金属结引起的偏振光响应的混淆效应。此外,光诱导载流子可以通过 BP/WSe₂ 的内建电场分离,然后各向同性地传输和收集。此外, BP/WSe₂ 重叠区域的边缘取向对所有偏振的影响相同,从而导致红外偏振光响应优于传统 BP 光电探测器^[78]。因此,该结构更有可能在复杂的操作环境下提供高分辨率的红外光子成像应用。

5.2 BP/WSe₂ 垂直结器件的制作

首先获取二维材料 WSe₂: 利用胶带从块状晶体 WSe₂ 上通过机械剥离方法得到 WSe₂ 层状材料,将其物理转移到 Si 衬底上,其中 Si 衬底是高掺杂衬底,其上覆盖有 285 nm SiO₂ 用于绝缘介质栅。通过标准半导体工艺在 WSe₂ 两端制作 Cr/Au 电极,具体过程可以参照第二章 2.2 节。然后,通过机械剥离方法手段得到 BP 材料,将沾有大量 BP 薄层的胶带与 PVA 薄膜结合,使 BP 材料黏附在 PVA 薄膜上(PVA 薄膜是通过将 PVA 粉末与去离子水按 1: 99 质量比进行配制得到)。通过自制的定点转移平台将薄层 BP 材料转移到之前制作的 WSe₂ 器件之上。最终得到的器件效果图和实物图如图 5.1 所示。其中,转移过程中注意以下

几点:在 PVA 与载玻片之间需要垫一层 PDMS 中间层,以期二维材料更加平整,不会出现褶皱,不易断裂;当 BP 与 WSe₂ 接触后,加热平台达到 70 度,保持 1 分钟,使得 PVA 达到完全熔融状态,能够与 PDMS 顺利分离;之后使用去离子水浸没器件,使得 PVA 完全溶解。至此 BP/WSe₂ 垂直结器件制作完毕。同时,我们通过原子力显微镜 (AFM) 对器件进行了表征,如图 5.2 所示,可以看到 BP 和 WSe₂ 比较平整,且都是少数层二维材料。

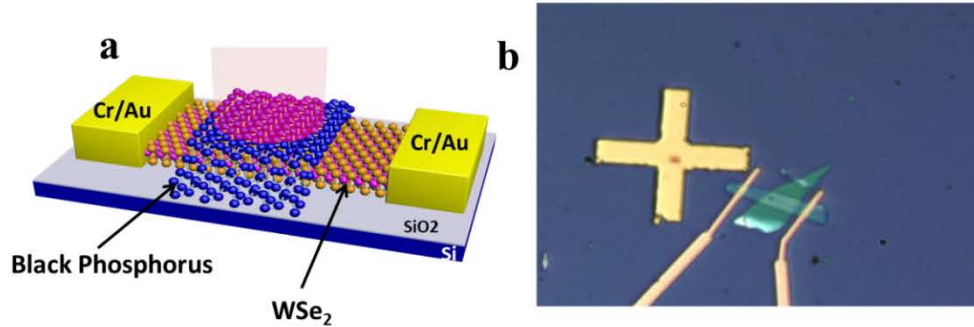


图 5.1 (a) BP/WSe₂ 垂直结器件的三维示意图, (b) 器件的光学显微实物图

Figure 5.1 (a) 3D schematic of a BP/WSe₂ vertical junction device, (b) Optical microscopic physical image of the device

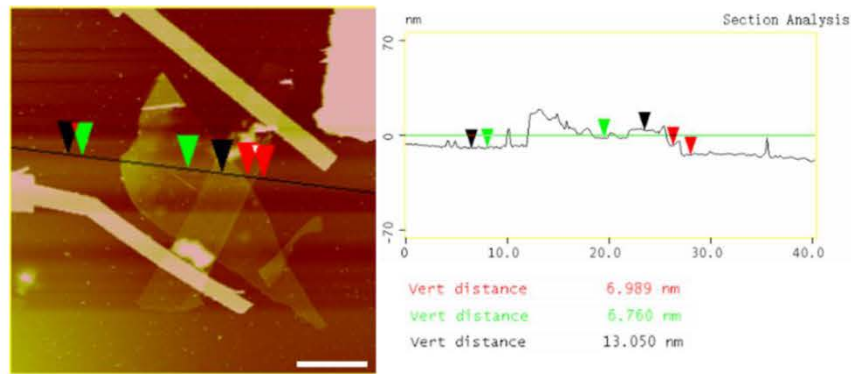


图 5.2 BP/WSe₂ 垂直结器件的 AFM 图像

Figure 5.2 AFM image of BP/WSe₂ vertical junction device

5.3 BP/WSe₂ 垂直结器件的电学性能和能带理论

首先对 BP/WSe₂ 垂直结器件进行电学测试。如图 5.3 (a) 所示,是器件在不同背栅电压下的输出特性曲线,从图中可以看出, WSe₂ 的接触良好,且器件沟道里的载流子可以被背栅调控。图 5.3 (a) 是器件的在不同偏压下的转移特性曲线,从图中可以看出,器件在电压大于 40 V 时存在一个转折点。在 40 V 之前,

器件的沟道电流随着背栅电压的增加而增加, WSe_2 表现出一个 n 型半导体性质, 当背栅电压超过 40 V 时, 沟道电压则呈一个下降的趋势, 对这种现象的解释可以从 BP/ WSe_2 这种垂直异质结构的能带上进行考虑。

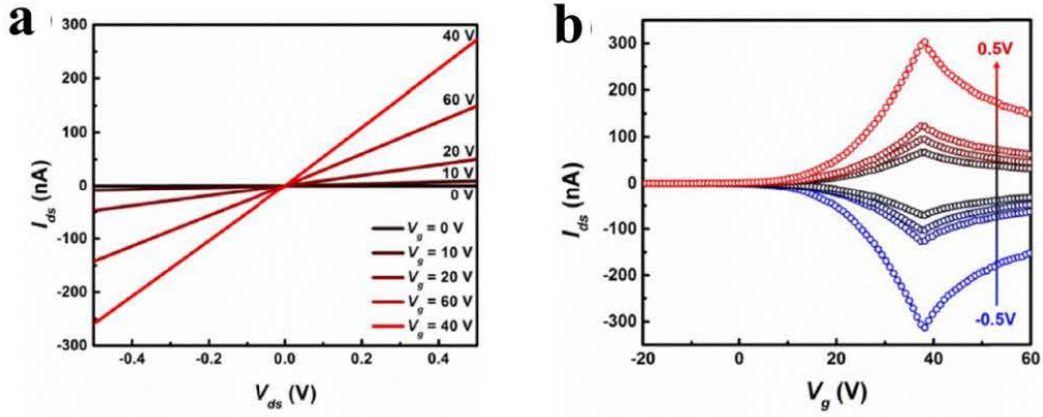
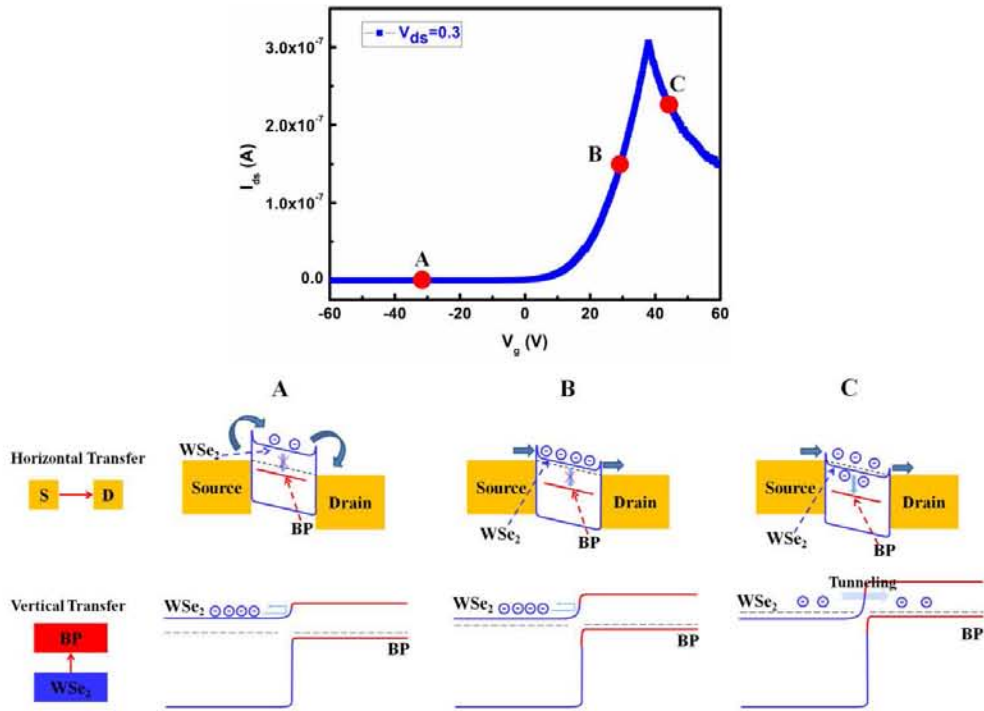


图 5.3 BP/ WSe_2 垂直结器件的 (a) 输出特性曲线和 (b) 转移特性曲线

Figure 5.3 (a) output characteristic curve and (b) transfer characteristic curve of BP/ WSe_2 vertical junction device

如图 5.4 所示, 是 BP/ WSe_2 垂直结器件的典型转移特性曲线和能带示意图。根据之前的文献报道, BP 一般是 P 型半导体。图中从点 A 到点 B 表现出的现象跟一个常规的器件无异, 当到达转折点时, 由于此时 WSe_2 在背栅电压的调控下, 它的导带底与 BP 的价带顶非常接近, 因此, 此时电子在 WSe_2 导带与 BP 的价带之间进行隧穿运动, 类似于异质结的 II 类接触。

图 5.4 BP/WSe₂ 垂直结器件的能带理论Figure 5.4 Band theory of BP/WSe₂ vertical junction devices

5.4 BP/WSe₂ 垂直结器件的光学性能和能带理论

基于此，我们对器件光响应进行了研究。如图 5.5 所示，是器件的光响应结果，图 (a) 和 (b) 分别是器件在 635 和 1550 nm 的光照射下，随着入射功率的增强输出特性曲线的表现形式。随着越来越多的光入射，可以看到器件的光电流越来越大，表明器件收集光生载流子的效率很高。需要注意的是，器件对 1550 nm 的光响应也是如此。由于 WSe₂ 带隙的限制，WSe₂ 无法对 1550 nm 光产生光响应，但是窄带隙的 BP 可以响应到更远波长。因此，我们认为此时器件的 1550 nm 响应来源于 BP 的光吸收，从图 5.5 (b) 中可以看出，在 1550 nm 波长光照射下，器件虽然光电流变小了，但是器件依然能够高效地收集光生载流子，表明 BP 吸收 1550 nm 光后，能够产生光生载流子，并且顺利转移到沟道材料 WSe₂ 中，被两端电极顺利收集。实际上，我们对上述光电过程建立了能带模型进行解释，如图 5.5 (c) 所示。在 635 nm 光照射下，BP 和 WSe₂ 材料都能产生光生载流子，由于器件采用的垂直结构，BP 和 WSe₂ 界面处会产生内建电场，该内建电场可以将 BP 中产生的光生电子空穴对快速分离，并且将光生电子顺利转移到 WSe₂ 中，可以增强沟道电子浓度，从而增强光电流，另一方面，光生空穴则留

在 BP 中，会对沟道 WSe_2 中的载流子进行 photogating 作用，从而产生更多的自由电子，所以再次增强了沟道电子浓度，进一步增强光电流，两种作用同时作用，因此能够产生了几十微安的光电流。当用 1550 nm 的光照射器件时，此时只有 BP 材料进行光响应，但 BP 与 WSe_2 的内建电场依然会顺利分离光生载流子。由于此时少了 WSe_2 进行光响应，且 BP 在 1550 nm 波段的光响应也不如可见光的响应，所以整体光电流相较于可见光照射时小了三个数量级。

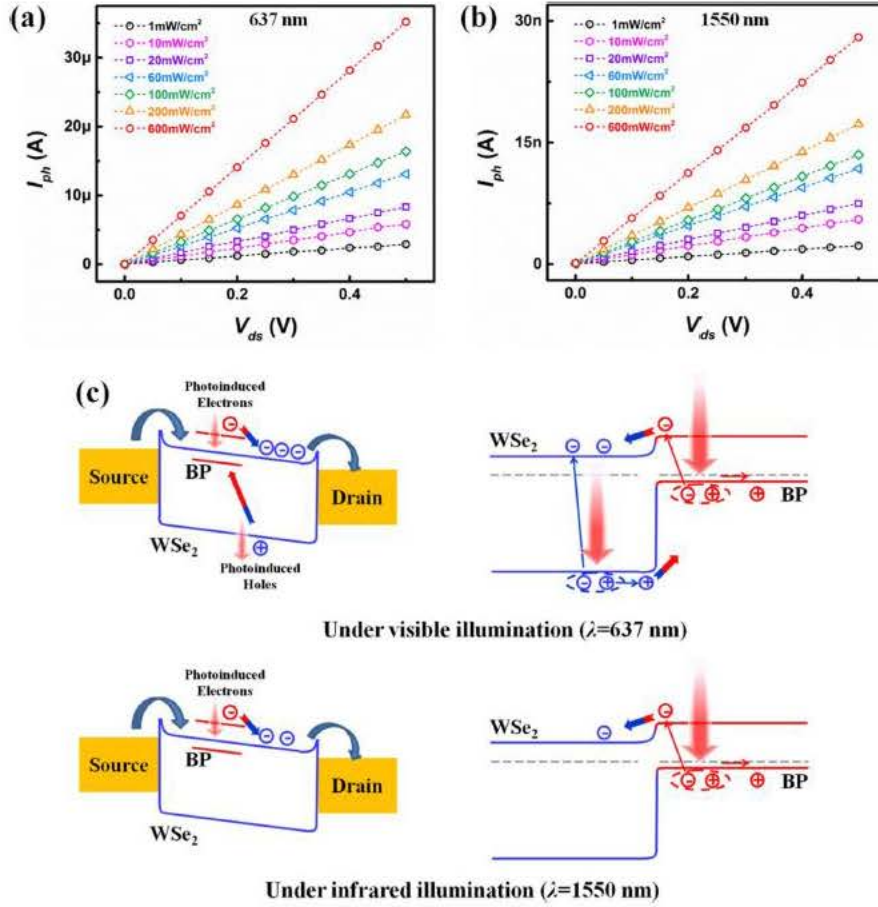


图 5.5 BP/ WSe_2 垂直结器件的分别对 635 和 1550 nm 的光响应和响应的能带理论

Figure 5.5 Band theory and response of 635 and 1550 nm for BP/ WSe_2 vertical junction devices

进一步，我们对器件的光响应性能进行了深入研究。如图 5.6 (a) 所示，是在不同入射光功率密度下探测器的可见光响应。该图显示在 $V_{ds} = 0.5\text{V}$ 下，光电流 (I_{ph}) 随着入射光功率密度从 1 mW/cm^2 到 0.6 W/cm^2 的增加而增加，表明产生更多的光诱导载流子并将其输送到电极两端，且在此测量范围内，较强的入射光下可以实现更高的光电检测性能。为了准确表达器件的光响应指标，我们对器

件的外量子效率 (EQE) 进行了评估, 该指标反映的是单位时间内一个光子激发的电子空穴个数与入射光子个数的比值, 如下式所示:

$$EQE(\lambda) = \frac{I_{ph}c}{Pe\lambda} \dots\dots\dots (5.1)$$

其中 e 是电子电荷, h 是普朗克常数, λ 是入射光波长, c 是光速。EQE 对 637 nm 光的功率密度的负依赖关系如图 5.6 (b) 所示, 揭示了探测器在 0.5 V 低偏压和室温下表现出非常高的 EQE $\sim 10^6$ 。探测器的红外光响应 (1550 nm) 如图 5.6 (c) 所示, I_{ph} 显示了对 V_{ds} 的线性光响应依赖性。图 5.6 (d) 显示出了 EQE 与入射红外光功率密度之间的关系。根据测试结果, 探测器可以实现高红外光响应, 在 0.5 V 低偏压和室温下, 器件的 EQE 为 $\sim 10^2$ 。

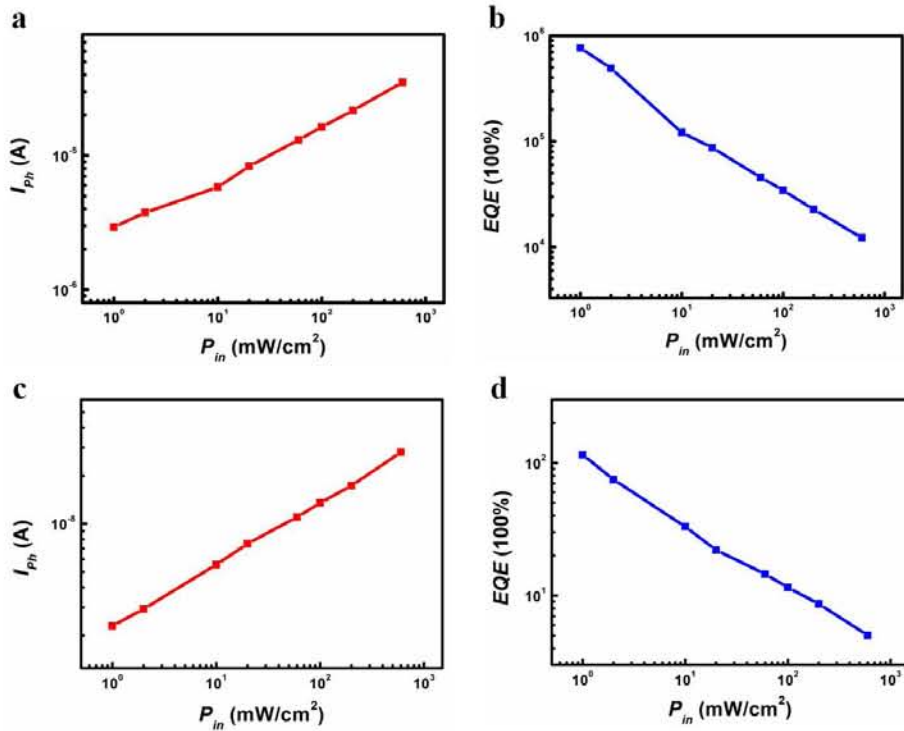


图 5.6 (a) 光电流 I_{ph} 随入射光 ($\lambda = 637$ nm) 的功率密度增强的而变化的曲线, (b) 探测器的 EQE 随入射光 ($\lambda = 637$ nm) 的功率密度增强的变化函数, (c) 光电流 I_{ph} 作为入射光 ($\lambda = 1550$ nm) 的功率密度的函数, (d) 光电探测器的相应 EQE 作为入射光 ($\lambda = 1550$ nm) 的功率密度的函数

Figure 5.6 (a) Curve of I_{ph} as a function of incident light ($\lambda = 637$ nm). (b) The change in the EQE of the detector as a function of the power density of the incident light ($\lambda = 637$ nm). (c) The I_{ph} is a function of the power density of the incident light ($\lambda = 1550$ nm). (d) The corresponding EQE of the photodetector as a function of the power density of the incident light ($\lambda = 1550$ nm).

另外，响应率 R 和探测率 D^* 是探测器比较重要的衡量指标。我们对器件的 R 和 D^* 进行了评估。源漏电压 (V_{ds}) 和不同波长照射的光响应率依赖性如图 5.7 (a) 所示。从图中可得， R 随着偏压的增加而显著增加，在 637 nm 光照下，0.5V 偏压和 1 mW/cm^2 功率密度下， R 可达到 $\sim 10^3 \text{ A/W}$ 。在 1550 nm 光照下， R 可达 0.5 A/W 。该结果证明了二维材料垂直异质结红外探测的潜在应用前景。另一个重要的评估参数，器件探测器 (D^*) 用于描述探测器响应弱光信号的能力，并表明探测器的最小可探测功率。图 5.7 (b) 展示了器件的光谱探测分布，显示了器件可测量的宽谱响应范围，在可见光范围内 D^* 可达 $\sim 10^{14} \text{ Jones}$ ，红外范围内可达 $\sim 10^{10} \text{ Jones}$ 。从图中可见，在 1000 nm 之后器件的探测率呈明显的下降趋势，表明在光波长大于 1000 nm 后，光响应率明显减弱。主要是因为 1000 nm 之前，器件的 WSe_2 和 BP 都可作为光敏元进行光响应，而在 1000 nm 之后则仅由 BP 进行光响应。此外，图 5.7 (b) 还给出了在不同波长下的光增益 (G) 分布结果， G 可以通过下式计算：

$$G = R \frac{hc}{e\lambda} \dots\dots\dots (5.2)$$

其中 R 是光响率率， h 是普朗克常数， λ 是入射光波长，其余跟前面一致。根据图 5.7 (b)，光增益在可见光范围内可达 $\sim 10^6$ ，并且在红外区域可接近 10^2 。这些结果与先前报道的基于 III-V 半导体的场效应晶体管所获得的结果相当^[144]。

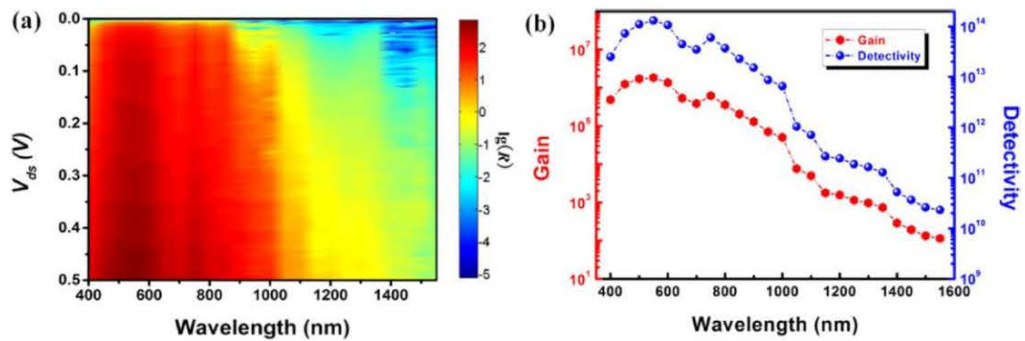


图 5.7 (a) 不同光波长和不同源漏偏压与响应率 R 的函数变化关系。(b) 光增益和探测率 D^* 对不同光波长的依赖关系。

Figure 5.7 (a) The relationship between different optical wavelengths and different V_{ds} as a function of responsivity R . (b) the dependence of optical gain and detection rate D^* on different wavelengths light.

为了更加直观地知道在可见光与红外光下 WSe₂ 和 BP 光敏元的转换, 实验中分别使用了 637 nm, 830 nm, 1060 nm 的光进行光电流显微扫描成像 (photocurrent mapping), 如图 5.8 所示。在该器件被 637 nm 的光照射时, 光电流来自于 WSe₂ 和 BP 共同作用, 从图中可以看到沟道处也有光响应, 即 WSe₂ 此时也充当光敏材料。当用更长波长(830 nm)的光照射器件时, 光电流则减小, 但光响应区域依然包括 WSe₂ 沟道和金属区域。但是当器件被 1060 nm 的光照射时, 光电流响应区域则主要是 BP 与 WSe₂ 的重叠区域。此时光响应具有下降趋势, 则主要归因于 1000 nm 光已超过了 WSe₂ 的光响应范围, 此时只有 BP 能进行光响应。

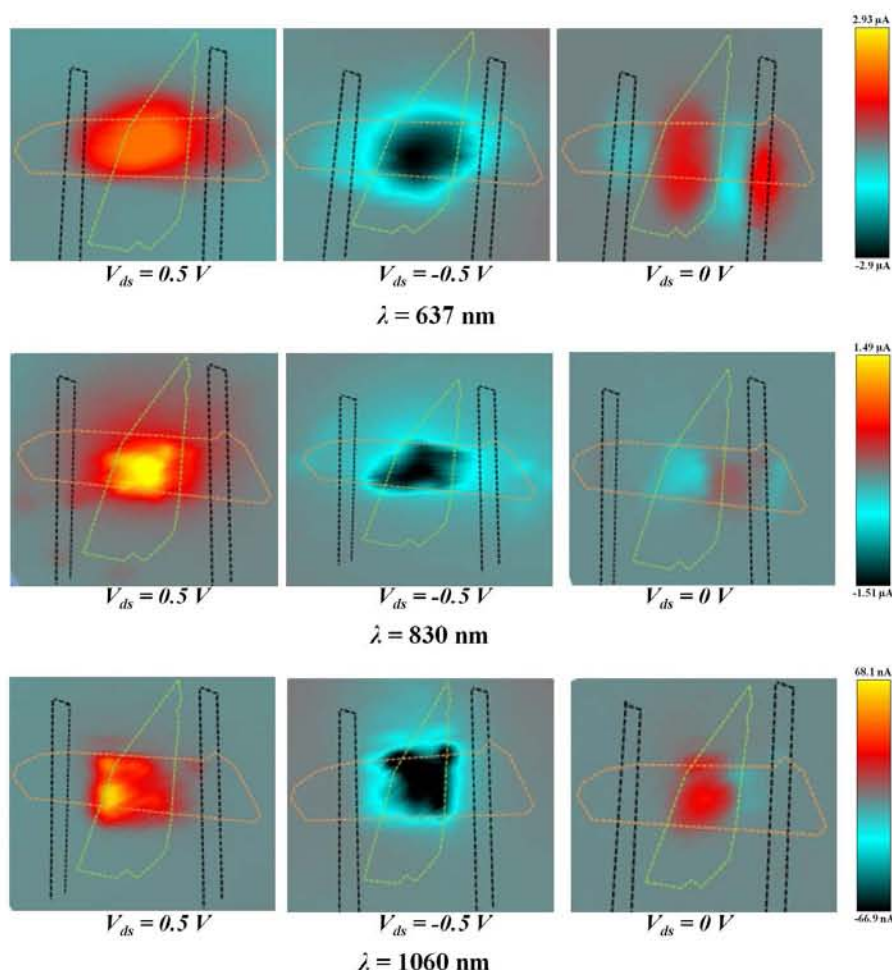


图 5.8 在 637、830、1060 nm 的光照射下, 不同源漏偏压下的光电流显微扫描成像

Figure 5.8 Photocurrent microscopy imaging with different V_{ds} at 637, 830 and 1060 nm

光探测器还有一个很重要的特征----光响应速度。如图 5.9 所示, 分别是器件对 637 nm 可见光和 1550 nm 红外光的响应速度以及器件的光响应周期图。可以

看到在多个周期的斩波光响应下器件依然可以保持稳定的光响应性,这是器件稳定工作的可靠依据,并且器件在可见光和红外光下的响应速度(包括上升沿和下降沿)都可达 $800\mu\text{s}$,在二维材料探测器中该结果属于比较快的响应速度,这主要归功于 BP 与 WSe_2 异质结界面处的内建电场能有效分离光生载流子。

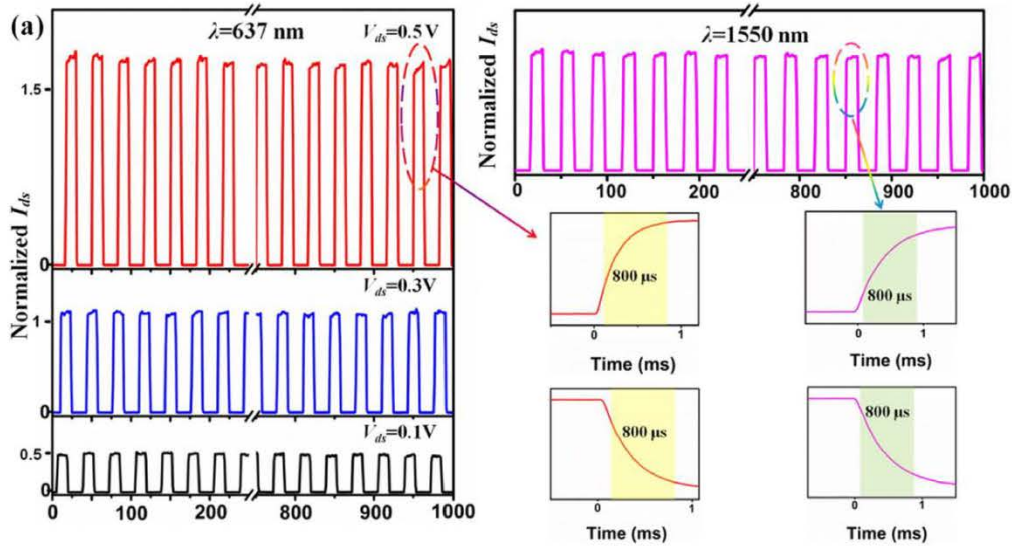


图 5.9 BP/ WSe_2 垂直异质结探测器在 637 nm 可见光和 1550 nm 红外光下的时间响应周期图以及响应速度表征

Figure 5.9 Time response period diagram and response speed characterization of BP/ WSe_2 vertical heterojunction detector at 637 nm visible and 1550 nm infrared light

偏振探测能够反映出强度探测中所不具备的更多信息,既能增加了探测信号的维度,又能够同时保持探测器的实时快速直接成像的能力,因此在医学中的肿瘤探测、遥感中的地质探测,军事侦察中的目标探测和大气探测等方面都有着广阔的应用前景。为了验证 BP/ WSe_2 光电探测器的红外偏振敏感性,实验中使用 $\lambda=1550\text{ nm}$ 的红外光对器件进行光电流显微扫描成像。如图 5.10 (a) 是 BP/ WSe_2 探测器在循序变化的线偏振光照射下的光电流显微扫描成像图。作为偏振角的函数,在 1550 nm 的恒定波长照射下显示出一系列光电流图像。入射光功率密度为 $100\text{ mW}/\text{cm}^2$, 两端偏压为 0.5 V, 器件的偏振光照射覆盖了 BP 和 WSe_2 的整个重叠区域。如图 5.10 (b) 所示,不同角度的偏振光可以引起不同大小的光电流。其中,在沿水平轴方向(0°)偏振光对应最大的光电流,其响应率可达 $40\text{ mA}/\text{W}$ 。响应率最小为 $6.8\text{ mA}/\text{W}$, 对应于垂直方向的入射光 (90°)。

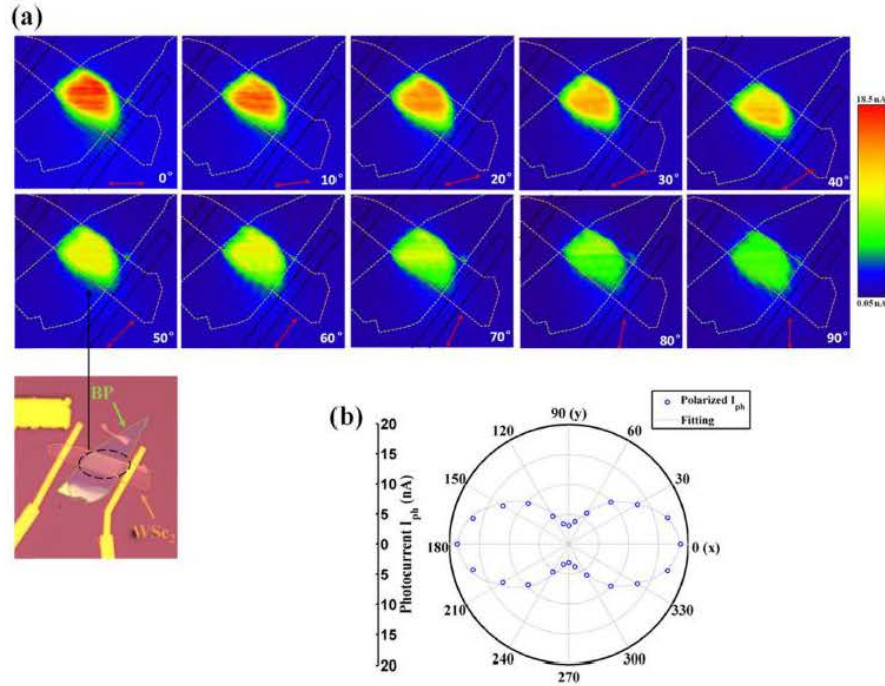


图 5.10 (a) BP/WSe₂ 垂直异质结探测器在 1550 nm 红外光下的光电流显微扫描成像, (b) 在极坐标下, 光电流随偏振光角度的变化关系

Figure 5.10 (a) photocurrent microscopy imaging of the heterojunction detector at 1550 nm infrared light, (b) photocurrent versus polarization angle

5.5 本章小结

本章通过在二维材料 WSe₂ 两端器件上定点转移另一种二维材料 BP 而构建的一种垂直 photogating 异质结光电探测器, 器件具有高响应率、高探测率、宽谱响应以及红外偏振探测等优良性能。由于 BP 不与金属电极接触, 仅仅充当 WSe₂ 的 photogating 层, 能够高效快速分离光生载流子, 器件在室温下的可见光和红外光响应速度均达到了 800 μ s, 而响应率在可见光和红外光波段分别达到了 10^3 A/W 和 0.5 A/W, 并且探测率分别达到 10^{14} 和 10^{10} Jones。此外, 由于 BP 具有内禀的光偏振敏感性, 实验中器件对 1550 nm 波长光具有高偏振选择性, 且响应率可达 40 mA/W。与传统的红外光电探测器相比, BP/WSe₂ 探测器表现出双色光电探测能力, 在室温下具有高光响应率和高探测率, 本工作展示了一种可堆叠的二维材料探测器新结构, 为开展红外光子偏振探测器应用提供了新思路。

第6章 总结与展望

6.1 论文总结

为实现高灵敏、室温工作、偏振灵敏、红外响应的耦合性单光子探测器，应用于量子通信领域终端探测板块，本论文主要研究了基于低维材料的增益型的光电探测器。主要成果包括：成功研制了基于二维材料 WS_2 （或 MoS_2 ）浮栅存储结构的高灵敏光电探测器，成功研制了一维纳米线室温单光子探测器，成功研制了基于非对称金属及面积接触的 InP 纳米线高灵敏红外光子探测器，成功研制了基于光诱导栅极的 BP/WSe_2 红外偏振探测器。具体内容包括：

1. 成功研制了基于二维材料 WS_2 （或 MoS_2 ）浮栅存储结构的高灵敏光电探测器。利用金纳米颗粒充当浮栅捕获电子层，实现浮栅存储结构的“编程”和“擦除”状态，利用编程状态的低暗电流（ 10^{-11} A）进行光响应，得到 1090 A/W 的高光响应率和 3.5×10^{11} Jones 的探测率。另外，二维材料 MoS_2 也被制作成浮栅结构的光敏层，被证明具有极强的光响应能力，表明这一结构具有普适性用来增强光电探测功能。
2. 成功研制了一维纳米线室温单光子探测器。利用具有核壳结构的 CdS 半导体纳米线制作成场效应晶体管光电探测器。利用核壳结构纳米线的 photogating 效应实现增益型探测，在室温下成功探测并分辨出 1~3 光子。器件在室温下的探测效率达到了 23%，暗计数率为 1.87×10^{-3} Hz。利用纳米线的一维特殊结构对线偏振光子进行响应，器件显示出了一定的偏振选择特性。同时建立理论模型，表明理论与实验吻合。
3. 成功研制出了基于非对称金属及面积接触的 InP 纳米线高灵敏红外光子探测器。利用非对称面积接触和非对称金属接触，制作 InP 纳米线光电探测器，得到极大整流比特性，室温下在 ± 6 V 的整流比高达 10^6 ，低温 77 K 下在 ± 5 V 的整流比高达 10^8 。利用 InP 纳米线的表面态的 photogating 效应，器件表现出一种半导体态与绝缘态的转变（光/电开关）。利用其绝缘态的极低暗电流进行光子响应，结果表明器件能够探测到 6 光子/秒。为实现高灵敏及单光子红外探测提供了一条有效的途径。

4. 成功研制出了基于光诱导栅极的 BP/WSe₂ 红外偏振探测器。按 photogating 增益机制, 构建 BP 垂直 WSe₂ 的特殊结构, 以 BP 充当 photogating 层。当光子入射, 利用 BP 与 WSe₂ 之间的内建电场快速分离光生载流子, 并利用 photogating 效应进行光探测, 产生较大光电流。器件在可见光和红外光波段的光响应率分别可达 10³ A/W 和 0.5 A/W, 探测率分别可达 10¹⁴ 和 10¹⁰ Jones。器件在室温下的可见光和红外光响应速度均达到了 800 μs。此外, 利用 BP 的内禀的光偏振敏感特性, 器件对 1550 nm 波长光表现出了偏振选择吸收特性。本节工作为室温工作、偏振灵敏、红外响应的单光子探测器提供了新思路。

6.2 后期展望

本论文主要利用低维材料和其增益放大机制设计和制备了一些高灵敏乃至单光子和偏振敏感的光电探测器, 但尚有许多地方有待改进和提高, 特别是涉及到更加微观的物理探测机理部分。后续还将继续利用二维材料构造更高性能的单光子探测器, 实现室温工作、光子数可分辨、偏振响应等多功能性能, 以满足量子通信等领域对单光子探测器的需求。后续还将从以下方向进行深入工作:

1. 对于本论文第 4 章节的非对称接触 InP 纳米线部分, 其转移特性曲线所表现出的巨大增益来源, 目前尚有不甚明确之处, 后续工作将会聚焦于使用更加微观的表征方法, 如近场光学手段, 对器件沟道中的载流子的运动、聚集问题进行直观测量, 如图 6.1 所示。如若澄清其详细增益机制, 后续以此机制从一维纳米线体系转移到二维材料体系, 构建范德华堆垛结构异质结, 实现高增益乃至单光子红外通信波段探测器技术。

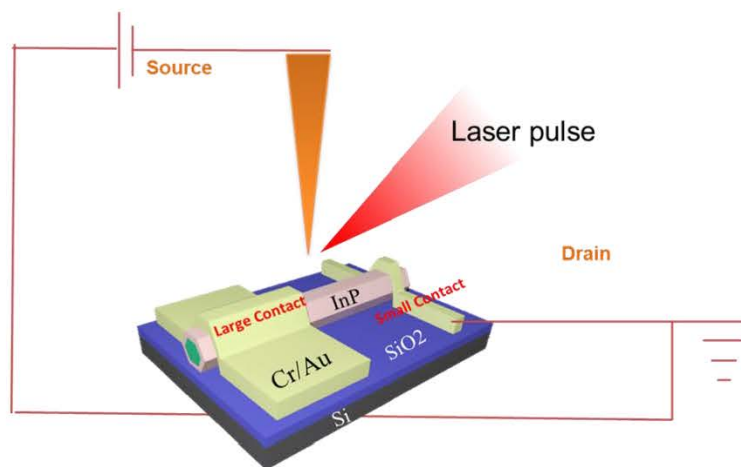


图 6.1 利用近场光学手段表征纳米线中的载流子聚集和流动情况

Figure 6.1 Characterization of carrier aggregation and flow in nanowires using near-field optics

2. 对于 photogating 效应来说, 器件的增益与响应速度, 两者相互制衡, 此消彼长, 难以实现极大的增益带宽积。因此, 后续工作将会致力于在原理上克服 photogating 效应引起的器件响应速度与增益制衡难题, 目前从低维探测器领域可能的突破口出发, 将 photogating 效应与光伏效应结合也许将会是一个两者兼顾, 极具前景的方向。

参考文献

- [1] GISIN N, RIBORDY G G, TITTEL W, et al. Quantum cryptography [J]. *Rev Mod Phys*, 2002, 74(1): 145-95.
- [2] HADFIELD R H. Single-photon detectors for optical quantum information applications [J]. *Nat Photonics*, 2009, 3(12): 696-705.
- [3] LI Y, QIAN F, XIANG J, et al. Nanowire electronic and optoelectronic devices [J]. *Materials Today*, 2006, 9(10): 18-27.
- [4] YAN R, GARGAS D, YANG P. Nanowire photonics [J]. *Nat Photonics*, 2009, 3(10): 569-76.
- [5] BUTLER S Z, HOLLEN S M, CAO L, et al. Progress, Challenges, and Opportunities in Two-Dimensional Materials Beyond Graphene [J]. *Acs Nano*, 2013, 7(4): 2898-926.
- [6] WANG Q H, KALANTAR-ZADEH K, KIS A, et al. Electronics and optoelectronics of two-dimensional transition metal dichalcogenides [J]. *Nat Nanotechnol*, 2012, 7(11): 699-712.
- [7] HAYDEN O, AGARWAL R, LIEBER C M. Nanoscale avalanche photodiodes for highly sensitive and spatially resolved photon detection [J]. *Nat Mater*, 2006, 5(5): 352-6.
- [8] GHIONI M, GULINATTI A, RECH I, et al. Progress in silicon single-photon avalanche diodes [J]. *Ieee J Sel Top Quant*, 2007, 13(4): 852-62.
- [9] RIBORDY G, GAUTIER J D, ZBINDEN H, et al. Performance of InGaAs/InP avalanche photodiodes as gated-mode photon counters [J]. *Appl Optics*, 1998, 37(12): 2272-7.
- [10] KARDYNAL B E, YUAN Z L, SHIELDS A J. An avalanche-photodiode-based photon-number-resolving detector [J]. *Nat Photonics*, 2008, 2(7): 425-8.
- [11] BUZHAN P, DOLGOSHEIN B, FILATOV L, et al. Silicon photomultiplier and its possible applications [J]. *Nucl Instrum Meth A*, 2003, 504(1-3): 48-52.
- [12] GATT P, JOHNSON S, NICHOLS T. Geiger-mode avalanche photodiode lidar receiver performance characteristics and detection statistics [J]. *Appl Optics*, 2009, 48(17): 3261-76.
- [13] ALBOTA M A, AULL B F, FOUCHE D G, et al. Three-dimensional imaging laser radars with Geiger-mode avalanche photodiode arrays [J]. *Lincoln Laboratory Journal*, 2002, 13(2): 351-70.
- [14] CUSHMAN P, RUSACK R. A PHOTOMULTIPLIER TUBE INCORPORATING AN AVALANCHE PHOTODIODE [J]. *Nucl Instrum Meth A*, 1993, 333(2-3): 381-90.
- [15] FUKASAWA A, HABA J, KAGEYAMA A, et al. High speed HPD for photon counting [J]. *Ieee Transactions on Nuclear Science*, 2008, 55(2): 758-62.
- [16] CABRERA B, CLARKE R M, COLLING P, et al. Detection of single infrared, optical, and ultraviolet photons using superconducting transition edge sensors [J]. *Appl Phys Lett*, 1998, 73(6): 735-7.
- [17] DAY P K, LEDUC H G, MAZIN B A, et al. A broadband superconducting detector suitable for use in large arrays [J]. *Nature*, 2003, 425(6960): 817-21.
- [18] IRWIN K D, HILTON G C. Transition-edge sensors [M]//ENSS C. *Cryogenic Particle Detection*. 2005: 63-149.
- [19] DIVOCHIY A, MARSILI F, BITAUD D, et al. Superconducting nanowire photon-number-resolving detector at telecommunication wavelengths [J]. *Nat Photonics*, 2008, 2(5): 302-6.
- [20] MARSILI F, VERMA V B, STERN J A, et al. Detecting single infrared photons with 93% system

- p>efficiency [J].
- Nat Photonics*
- , 2013, 7(3): 210-4.
- [21] NATARAJAN C M, TANNER M G, HADFIELD R H. Superconducting nanowire single-photon detectors: physics and applications [J]. *Superconductor Science & Technology*, 2012, 25(6): 063001.
- [22] ROSENBERG D, KERMAN A J, MOLNAR R J, et al. High-speed and high-efficiency superconducting nanowire single photon detector array [J]. *Opt Express*, 2013, 21(2): 1440-7.
- [23] WAKS E, INOUE K, OLIVER W D, et al. High-efficiency photon-number detection for quantum information processing [J]. *Ieee J Sel Top Quant*, 2003, 9(6): 1502-11.
- [24] KIM J S, TAKEUCHI S, YAMAMOTO Y, et al. Multiphoton detection using visible light photon counter [J]. *Appl Phys Lett*, 1999, 74(7): 902-4.
- [25] ADAMS D, ADAMS M, BAUMBAUGH B, et al. First large sample study of visible light photon counters (VLPC's) [J]. *Nuclear Physics B*, 1995, 340-8.
- [26] KOMIYAMA S, ASTAFIEV O, ANTONOV V, et al. A single-photon detector in the far-infrared range [J]. *Nature*, 2000, 403(6768): 405-7.
- [27] ASTAFIEV O, KOMIYAMA S, KUTSUWA T, et al. Single-photon detector in the microwave range [J]. *Appl Phys Lett*, 2002, 80(22): 4250-2.
- [28] TABE M, UDHIARTO A, MORARU D, et al. Single-photon detection by Si single-electron FETs [J]. *Physica Status Solidi a-Applications and Materials Science*, 2011, 208(3): 646-51.
- [29] SHIELDS A J, O'SULLIVAN M P, FARRER I, et al. Optically induced bistability in the mobility of a two-dimensional electron gas coupled to a layer of quantum dots [J]. *Appl Phys Lett*, 1999, 74(5): 735-7.
- [30] SHIELDS A J, O'SULLIVAN M P, FARRER I, et al. Detection of single photons using a field-effect transistor gated by a layer of quantum dots [J]. *Appl Phys Lett*, 2000, 76(25): 3673-5.
- [31] BLAKESLEY J C, SEE P, SHIELDS A J, et al. Efficient single photon detection by quantum dot resonant tunneling diodes [J]. *Physical Review Letters*, 2005, 94(6): 067401.
- [32] HEES S S, KARDYNAL B E, SEE P, et al. Effect of InAs dots on noise of quantum dot resonant tunneling single-photon detectors [J]. *Appl Phys Lett*, 2006, 89(15): 153510.
- [33] WAGNER R S, ELLIS W C. VAPOR-LIQUID-SOLID MECHANISM OF CRYSTAL GROWTH AND ITS APPLICATION TO SILICON [J]. *Transactions of the Metallurgical Society of Aime*, 1965, 233(6): 1053-64.
- [34] YAZAWA M, KOGUCHI M, MUTO A, et al. EFFECT OF ONE MONOLAYER OF SURFACE GOLD ATOMS ON THE EPITAXIAL-GROWTH OF INAS NANOWHISKERS [J]. *Appl Phys Lett*, 1992, 61(17): 2051-3.
- [35] HARAGUCHI K, KATSUYAMA T, HIRUMA K. POLARIZATION DEPENDENCE OF LIGHT EMITTED FROM GAAS P-N-JUNCTIONS IN QUANTUM-WIRE CRYSTALS [J]. *Journal of Applied Physics*, 1994, 75(8): 4220-5.
- [36] YU G, GAO J, HUMMELEN J C, et al. POLYMER PHOTOVOLTAIC CELLS - ENHANCED EFFICIENCIES VIA A NETWORK OF INTERNAL DONOR-ACCEPTOR HETEROJUNCTIONS [J]. *Science*, 1995, 270(5243): 1789-91.
- [37] DAI H J, WONG E W, LU Y Z, et al. SYNTHESIS AND CHARACTERIZATION OF CARBIDE NANORODS [J]. *Nature*, 1995, 375(6534): 769-72.
- [38] YANG P D, LIEBER C M. Nanorod-superconductor composites: A pathway to materials with high critical current densities [J]. *Science*, 1996, 273(5283): 1836-40.
- [39] HE J-H, HSIN C L, LIU J, et al. Piezoelectric gated diode of a single ZnO nanowire [J]. *Adv*

- Mater, 2007, 19(6): 781-4.
- [40] LAO C S, LIU J, GAO P X, et al. ZnO nanobelt/nanowire Schottky diodes formed by dielectrophoresis alignment across Au electrodes [J]. Nano Lett, 2006, 6(2): 263-6.
- [41] SOCI C, ZHANG A, BAO X-Y, et al. Nanowire Photodetectors [J]. Journal of Nanoscience and Nanotechnology, 2010, 10(3): 1430-49.
- [42] LU M-Y, SONG J, LU M-P, et al. ZnO-ZnS Heterojunction and ZnS Nanowire Arrays for Electricity Generation [J]. Acs Nano, 2009, 3(2): 357-62.
- [43] SUN K, JING Y, LI C, et al. 3D branched nanowire heterojunction photoelectrodes for high-efficiency solar water splitting and H₂ generation [J]. Nanoscale, 2012, 4(5): 1515-21.
- [44] XIE C, NIE B, ZENG L, et al. Core-Shell Heterojunction of Silicon Nanowire Arrays and Carbon Quantum Dots for Photovoltaic Devices and Self-Driven Photodetectors [J]. Acs Nano, 2014, 8(4): 4015-22.
- [45] BULGARINI G, REIMER M E, HOCEVAR M, et al. Avalanche amplification of a single exciton in a semiconductor nanowire [J]. Nat Photonics, 2012, 6(7): 455-8.
- [46] JAIN V, HEURLIN M, BARRIGON E, et al. InP/InAsP Nanowire-Based Spatially Separate Absorption and Multiplication Avalanche Photodetectors [J]. Acs Photonics, 2017, 4(11): 2693-8.
- [47] FAN G, ZHU H, WANG K, et al. Graphene/Silicon Nanowire Schottky Junction for Enhanced Light Harvesting [J]. Acs Applied Materials & Interfaces, 2011, 3(3): 721-5.
- [48] HU Y, ZHOU J, YE H P-H, et al. Supersensitive, Fast-Response Nanowire Sensors by Using Schottky Contacts [J]. Adv Mater, 2010, 22(30): 3327-32.
- [49] WEI T-Y, HUANG C-T, HANSEN B J, et al. Large enhancement in photon detection sensitivity via Schottky-gated CdS nanowire nanosensors [J]. Appl Phys Lett, 2010, 96(1): 013508.
- [50] AHN Y, DUNNING J, PARK J. Scanning photocurrent imaging and electronic band studies in silicon nanowire field effect transistors [J]. Nano Lett, 2005, 5(7): 1367-70.
- [51] GU Y, KWAK E S, LENSCH J L, et al. Near-field scanning photocurrent microscopy of a nanowire photodetector [J]. Appl Phys Lett, 2005, 87(4): 043111.
- [52] HAN S, JIN W, ZHANG D H, et al. Photoconduction studies on GaN nanowire transistors under UV and polarized UV illumination [J]. Chemical Physics Letters, 2004, 389(1-3): 176-80.
- [53] HEO Y W, TIEN L C, KWON Y, et al. Depletion-mode ZnO nanowire field-effect transistor [J]. Appl Phys Lett, 2004, 85(12): 2274-6.
- [54] FUJIWARA A, YAMAZAKI K, TAKAHASHI Y. Detection of single charges and their generation-recombination dynamics in Si nanowires at room temperature [J]. Appl Phys Lett, 2002, 80(24): 4567-9.
- [55] GARCIA N, PRZESLAWSKI J, SHARONOV M. Giant conductance response to light pulses in metallic nanowires [J]. Surface Science, 1998, 407(1-3): L665-L70.
- [56] CALARCO R, MARSO M, RICHTER T, et al. Size-dependent photoconductivity in MBE-grown GaN-nanowires [J]. Nano Lett, 2005, 5(5): 981-4.
- [57] GUO N, HU W, LIAO L, et al. Anomalous and Highly Efficient InAs Nanowire Phototransistors Based on Majority Carrier Transport at Room Temperature [J]. Adv Mater, 2014, 26(48): 8203-9.
- [58] FANG H, HU W, WANG P, et al. Visible Light-Assisted High-Performance Mid-Infrared Photodetectors Based on Single InAs Nanowire [J]. Nano Lett, 2016, 16(10): 6416-24.
- [59] NOVOSELOV K S, GEIM A K, MOROZOV S V, et al. Electric field effect in atomically thin carbon films [J]. Science, 2004, 306(5696): 666-9.
- [60] NOVOSELOV K S, JIANG D, SCHEDIN F, et al. Two-dimensional atomic crystals [J]. P Natl

- Acad Sci USA, 2005, 102(30): 10451-3.
- [61] BOLOTIN K I, SIKES K J, JIANG Z, et al. Ultrahigh electron mobility in suspended graphene [J]. Solid State Communications, 2008, 146(9-10): 351-5.
- [62] KIM K S, ZHAO Y, JANG H, et al. Large-scale pattern growth of graphene films for stretchable transparent electrodes [J]. Nature, 2009, 457(7230): 706-10.
- [63] BALANDIN A A, GHOSH S, BAO W, et al. Superior thermal conductivity of single-layer graphene [J]. Nano Lett, 2008, 8(3): 902-7.
- [64] MOSER J, BARREIRO A, BACHTOLD A. Current-induced cleaning of graphene [J]. Appl Phys Lett, 2007, 91(16): 163513.
- [65] CHOI M S, LEE G-H, YU Y-J, et al. Controlled charge trapping by molybdenum disulphide and graphene in ultrathin heterostructured memory devices [J]. Nat Commun, 2013, 4: 1624.
- [66] KUBOTA Y, WATANABE K, TSUDA O, et al. Deep ultraviolet light-emitting hexagonal boron nitride synthesized at atmospheric pressure [J]. Science, 2007, 317(5840): 932-4.
- [67] DEAN C R, YOUNG A F, MERIC I, et al. Boron nitride substrates for high-quality graphene electronics [J]. Nat Nanotechnol, 2010, 5(10): 722-6.
- [68] DAHAL R, LI J, MAJETY S, et al. Epitaxially grown semiconducting hexagonal boron nitride as a deep ultraviolet photonic material [J]. Appl Phys Lett, 2011, 98(21): 211110.
- [69] VAUGHN D D, II, IN S-I, SCHAAK R E. A Precursor-Limited Nanoparticle Coalescence Pathway for Tuning the Thickness of Laterally-Uniform Colloidal Nanosheets: The Case of SnSe [J]. Acs Nano, 2011, 5(11): 8852-60.
- [70] CHHOWALLA M, LIU Z, ZHANG H. Two-dimensional transition metal dichalcogenide (TMD) nanosheets [J]. Chemical Society Reviews, 2015, 44(9): 2584-6.
- [71] CHHOWALLA M, SHIN H S, EDA G, et al. The chemistry of two-dimensional layered transition metal dichalcogenide nanosheets [J]. Nature Chemistry, 2013, 5(4): 263-75.
- [72] TAN C, ZHANG H. Two-dimensional transition metal dichalcogenide nanosheet-based composites [J]. Chemical Society Reviews, 2015, 44(9): 2713-31.
- [73] RADISAVLJEVIC B, RADENOVIC A, BRIVIO J, et al. Single-layer MoS₂ transistors [J]. Nat Nanotechnol, 2011, 6(3): 147-50.
- [74] MAK K F, LEE C, HONE J, et al. Atomically Thin MoS₂: A New Direct-Gap Semiconductor [J]. Physical Review Letters, 2010, 105(13): 136805.
- [75] LI L, YU Y, YE G J, et al. Black phosphorus field-effect transistors [J]. Nat Nanotechnol, 2014, 9(5): 372-7.
- [76] QIAO J, KONG X, HU Z-X, et al. High-mobility transport anisotropy and linear dichroism in few-layer black phosphorus [J]. Nat Commun, 2014, 5: 4475.
- [77] LIU H, DU Y, DENG Y, et al. Semiconducting black phosphorus: synthesis, transport properties and electronic applications [J]. Chemical Society Reviews, 2015, 44(9): 2732-43.
- [78] YUAN H, LIU X, AFSHINMANESH F, et al. Polarization-sensitive broadband photodetector using a black phosphorus vertical p-n junction [J]. Nat Nanotechnol, 2015, 10(8): 707-13.
- [79] LONG M, GAO A, WANG P, et al. Room temperature high-detectivity mid-infrared photodetectors based on black arsenic phosphorus [J]. Science Advances, 2017, 3(6): e1700589.
- [80] YU L, ZHU Z, GAO A, et al. Electrically tunable optical properties of few-layer black arsenic phosphorus [J]. Nanotechnology, 2018, 29(48): 484001.
- [81] LIU B, KOEPF M, ABBAS A N, et al. Black Arsenic-Phosphorus: Layered Anisotropic Infrared Semiconductors with Highly Tunable Compositions and Properties [J]. Adv Mater, 2015, 27(30):

- 4423-9.
- [82] KOPPENS F H L, MUELLER T, AVOURIS P, et al. Photodetectors based on graphene, other two-dimensional materials and hybrid systems [J]. *Nat Nanotechnol*, 2014, 9(10): 780-93.
 - [83] XIA F, WANG H, XIAO D, et al. Two-dimensional material nanophotonics [J]. *Nat Photonics*, 2014, 8(12): 899-907.
 - [84] LIU N, TIAN H, SCHWARTZ G, et al. Large-Area, Transparent, and Flexible Infrared Photodetector Fabricated Using P-N Junctions Formed by N-Doping Chemical Vapor Deposition Grown Graphene [J]. *Nano Lett*, 2014, 14(7): 3702-8.
 - [85] XU X, GABOR N M, ALDEN J S, et al. Photo-Thermoelectric Effect at a Graphene Interface Junction [J]. *Nano Lett*, 2010, 10(2): 562-6.
 - [86] DYAKONOV M, SHUR M. SHALLOW-WATER ANALOGY FOR A BALLISTIC FIELD-EFFECT TRANSISTOR - NEW MECHANISM OF PLASMA-WAVE GENERATION BY DC CURRENT [J]. *Physical Review Letters*, 1993, 71(15): 2465-8.
 - [87] PARK J, AHN Y H, RUIZ-VARGAS C. Imaging of Photocurrent Generation and Collection in Single-Layer Graphene [J]. *Nano Lett*, 2009, 9(5): 1742-6.
 - [88] LEE E J H, BALASUBRAMANIAN K, WEITZ R T, et al. Contact and edge effects in graphene devices [J]. *Nat Nanotechnol*, 2008, 3(8): 486-90.
 - [89] MUELLER T, XIA F, AVOURIS P. Graphene photodetectors for high-speed optical communications [J]. *Nat Photonics*, 2010, 4(5): 297-301.
 - [90] MIAO J, HU W, JING Y, et al. Surface Plasmon-Enhanced Photodetection in Few Layer MoS₂ Phototransistors with Au Nanostructure Arrays [J]. *Small*, 2015, 11(20): 2392-8.
 - [91] LI L, XIONG D, WEN J, et al. A surface plasmonic coupled mid-long-infrared two-color quantum cascade detector [J]. *Infrared Physics & Technology*, 2016, 79: 45-9.
 - [92] POSPISCHIL A, HUMER M, FURCHI M M, et al. CMOS-compatible graphene photodetector covering all optical communication bands [J]. *Nat Photonics*, 2013, 7(11): 892-6.
 - [93] FURCHI M, URICH A, POSPISCHIL A, et al. Microcavity-Integrated Graphene Photodetector [J]. *Nano Lett*, 2012, 12(6): 2773-7.
 - [94] YU W J, LIU Y, ZHOU H, et al. Highly efficient gate-tunable photocurrent generation in vertical heterostructures of layered materials [J]. *Nat Nanotechnol*, 2013, 8(12): 952-8.
 - [95] VICARELLI L, VITIELLO M S, COQUILLAT D, et al. Graphene field-effect transistors as room-temperature terahertz detectors [J]. *Nat Mater*, 2012, 11(10): 865-71.
 - [96] BRITNELL L, RIBEIRO R M, ECKMANN A, et al. Strong Light-Matter Interactions in Heterostructures of Atomically Thin Films [J]. *Science*, 2013, 340(6138): 1311-4.
 - [97] GEIM A K, GRIGORIEVA I V. Van der Waals heterostructures [J]. *Nature*, 2013, 499(7459): 419-25.
 - [98] GEORGIOU T, JALIL R, BELLE B D, et al. Vertical field-effect transistor based on graphene-WS₂ heterostructures for flexible and transparent electronics [J]. *Nat Nanotechnol*, 2013, 8(2): 100-3.
 - [99] TANG W, POLITANO A, GUO C, et al. Ultrasensitive Room-Temperature Terahertz Direct Detection Based on a Bismuth Selenide Topological Insulator [J]. *Advanced Functional Materials*, 2018, 28(31): 1801786.
 - [100] FREITAG M, LOW T, XIA F N, et al. Photoconductivity of biased graphene [J]. *Nat Photonics*, 2013, 7(1): 53-9.
 - [101] YAN J, KIM M H, ELLE J A, et al. Dual-gated bilayer graphene hot-electron bolometer [J]. *Nat*

- Nanotechnol, 2012, 7(7): 472-8.
- [102] HAN Q, GAO T, ZHANG R, et al. Highly sensitive hot electron bolometer based on disordered graphene [J]. Sci Rep-Uk, 2013, 3: 3533.
- [103] GUO Q, POSPISCHIL A, BHUIYAN M, et al. Black Phosphorus Mid-Infrared Photodetectors with High Gain [J]. Nano Lett, 2016, 16(7): 4648-55.
- [104] LIU C-H, CHANG Y-C, NORRIS T B, et al. Graphene photodetectors with ultra-broadband and high responsivity at room temperature [J]. Nat Nanotechnol, 2014, 9(4): 273-8.
- [105] LEE Y, KWON J, HWANG E, et al. High-Performance Perovskite-Graphene Hybrid Photodetector [J]. Adv Mater, 2015, 27(1): 41-6.
- [106] FANG H, HU W. Photogating in Low Dimensional Photodetectors [J]. Advanced Science, 2017, 4(12): 1700323.
- [107] KONSTANTATOS G, BADIOLI M, GAUDREAU L, et al. Hybrid graphene-quantum dot phototransistors with ultrahigh gain [J]. Nat Nanotechnol, 2012, 7(6): 363-8.
- [108] KAHNG D, SZE S M. A FLOATING GATE AND ITS APPLICATION TO MEMORY DEVICES [J]. Bell System Technical Journal, 1967, 46(6): 1288-95.
- [109] MYUNG S, PARK J, LEE H, et al. Ambipolar Memory Devices Based on Reduced Graphene Oxide and Nanoparticles [J]. Adv Mater, 2010, 22(18): 2045-9.
- [110] ZHANG E, WANG W, ZHANG C, et al. Tunable Charge-Trap Memory Based on Few-Layer MoS₂ [J]. Acs Nano, 2015, 9(1): 612-9.
- [111] JANG S, HWANG E, LEE Y, et al. Multifunctional Graphene Optoelectronic Devices Capable of Detecting and Storing Photonic Signals [J]. Nano Lett, 2015, 15(4): 2542-7.
- [112] MAYOROV A S, GORBACHEV R V, MOROZOV S V, et al. Micrometer-Scale Ballistic Transport in Encapsulated Graphene at Room Temperature [J]. Nano Lett, 2011, 11(6): 2396-9.
- [113] LIU M, YIN X, ULIN-AVILA E, et al. A graphene-based broadband optical modulator [J]. Nature, 2011, 474(7349): 64-7.
- [114] SUN Z, HASAN T, TORRISI F, et al. Graphene Mode-Locked Ultrafast Laser [J]. Acs Nano, 2010, 4(2): 803-10.
- [115] GUTIERREZ H R, PEREA-LOPEZ N, ELIAS A L, et al. Extraordinary Room-Temperature Photoluminescence in Triangular WS₂ Monolayers [J]. Nano Lett, 2013, 13(8): 3447-54.
- [116] WU Z, LUO Z, SHEN Y, et al. Defects as a factor limiting carrier mobility in WSe₂: A spectroscopic investigation [J]. Nano Research, 2016, 9(12): 3622-31.
- [117] ZHAO W, GHORANNEVIS Z, CHU L, et al. Evolution of Electronic Structure in Atomically Thin Sheets of WS₂ and WSe₂ [J]. Acs Nano, 2013, 7(1): 791-7.
- [118] BRAGAD, LEZAMA I G, BERGER H, et al. Quantitative Determination of the Band Gap of WS₂ with Ambipolar Ionic Liquid-Gated Transistors [J]. Nano Lett, 2012, 12(10): 5218-23.
- [119] LAN C, LI C, YIN Y, et al. Large-area synthesis of monolayer WS₂ and its ambient-sensitive photo-detecting performance [J]. Nanoscale, 2015, 7(14): 5974-80.
- [120] HUO N, YANG S, WEI Z, et al. Photoresponsive and Gas Sensing Field-Effect Transistors based on Multilayer WS₂ Nanoflakes [J]. Sci Rep-Uk, 2014, 4: 5209.
- [121] LEE S H, LEE D, HWANG W S, et al. High-performance photocurrent generation from two-dimensional WS₂ field-effect transistors [J]. Appl Phys Lett, 2014, 104(19): 193113.
- [122] LOPEZ-SANCHEZ O, LEMBKE D, KAYCI M, et al. Ultrasensitive photodetectors based on monolayer MoS₂ [J]. Nat Nanotechnol, 2013, 8(7): 497-501.
- [123] JEON S, AHN S-E, SONG I, et al. Gated three-terminal device architecture to eliminate

- persistent photoconductivity in oxide semiconductor photosensor arrays [J]. *Nat Mater*, 2012, 11(4): 301-5.
- [124] ZHANG S, DONG N, MCEVOY N, et al. Direct Observation of Degenerate Two-Photon Absorption and Its Saturation in WS₂ and MoS₂ Mono layer and Few-Layer Films [J]. *Acs Nano*, 2015, 9(7): 7142-50.
- [125] DRIESSEN E F C, BRAAKMAN F R, REIGER E M, et al. Impedance model for the polarization-dependent optical absorption of superconducting single-photon detectors [J]. *European Physical Journal-Applied Physics*, 2009, 47(1).
- [126] CSETE M, SZENES A, MARACZI D, et al. Plasmonic Structure Integrated Single-Photon Detectors Optimized to Maximize Polarization Contrast [J]. *Ieee Photonics Journal*, 2017, 9(2): 1-11
- [127] ZHENG D, FANG H, WANG P, et al. High-Performance Ferroelectric Polymer Side-Gated CdS Nanowire Ultraviolet Photodetectors [J]. *Advanced Functional Materials*, 2016, 26(42): 7690-6.
- [128] LI H, WANG X, XU J, et al. One-Dimensional CdS Nanostructures: A Promising Candidate for Optoelectronics [J]. *Adv Mater*, 2013, 25(22): 3017-37.
- [129] LI L, WU P, FANG X, et al. Single-Crystalline CdS Nanobelts for Excellent Field-Emitters and Ultrahigh Quantum-Efficiency Photodetectors [J]. *Adv Mater*, 2010, 22(29): 3161-5.
- [130] ZHENG D, WANG J, HU W, et al. When Nanowires Meet Ultrahigh Ferroelectric Field-High-Performance Full-Depleted Nanowire Photodetectors [J]. *Nano Lett*, 2016, 16(4): 2548-55.
- [131] GONG F, LUO W, WANG J, et al. High-Sensitivity Floating-Gate Phototransistors Based on WS₂ and MoS₂ [J]. *Advanced Functional Materials*, 2016, 26(33): 6084-90.
- [132] GANSEN E J, ROWE M A, GREENE M B, et al. Photon-number-discriminating detection using a quantum-dot, optically gated, field-effect transistor [J]. *Nat Photonics*, 2007, 1(10): 585-8.
- [133] WENG Q, AN Z, ZHANG B, et al. Quantum dot single-photon switches of resonant tunneling current for discriminating-photon-number detection [J]. *Sci Rep-Uk*, 2015, 5: 9389.
- [134] WANG J F, GUDIKSEN M S, DUAN X F, et al. Highly polarized photoluminescence and photodetection from single indium phosphide nanowires [J]. *Science*, 2001, 293(5534): 1455-7.
- [135] FAN Z Y, CHANG P C, LU J G, et al. Photoluminescence and polarized photodetection of single ZnO nanowires [J]. *Appl Phys Lett*, 2004, 85(25): 6128-30.
- [136] YUAN Z L, KARDYNAL B E, SHARPE A W, et al. High speed single photon detection in the near infrared [J]. *Appl Phys Lett*, 2007, 91(4): 041114.
- [137] RABBANI M G, SUNDARARAJAN J P, VERMA A, et al. Photoresponse of silicon with asymmetric area contacts [J]. *Semiconductor Science and Technology*, 2017, 32(1).
- [138] ZHOU C, RAJU S, LI B, et al. Self-Driven Metal-Semiconductor-Metal WSe₂ Photodetector with Asymmetric Contact Geometries [J]. *Advanced Functional Materials*, 2018, 28(45): 1802954.
- [139] NORTON P, CAMPBELL J, HORN S, et al. Third-generation infrared imagers [M]//ANDRESEN B F, FULOP G F, STROJNIK M. *Infrared Technology and Applications Xxvi*. 2000: 226-36.
- [140] HORN S, NORTON P, CINCOTTA T, et al. Challenges for third-generation cooled imagers [M]//ANDRESEN B F, FULOP G F. *Infrared Technology and Applications Xxix*. 2003: 44-51.
- [141] TYO J S, GOLDSTEIN D L, CHENAULT D B, et al. Review of passive imaging polarimetry for remote sensing applications [J]. *Appl Optics*, 2006, 45(22): 5453-69.
- [142] BRITNELL L, GORBACHEV R V, JALIL R, et al. Field-Effect Tunneling Transistor Based on

- Vertical Graphene Heterostructures [J]. Science, 2012, 335(6071): 947-50.
- [143] WANG X, JONES A M, SEYLER K L, et al. Highly anisotropic and robust excitons in monolayer black phosphorus [J]. Nat Nanotechnol, 2015, 10(6): 517-21.
- [144] OGURA M. Hole Injection Type InGaAsInP Near Infrared Photo-FET (HI-FET) [J]. Ieee J Quantum Elect, 2010, 46(4): 562-9.

致谢

岁月无声，匆匆而过，转眼间在上海技物所已经过了 5 个年头。在我的博士论文即将完成之际，借此机会，我想感谢所有关心帮助支持过我的老师、同学、亲人、朋友以及陌生人。

首先我要感谢我的导师陆卫研究员。故事开始之初，我通过邮件第一次感受到陆老师的慷慨爽朗，使我坚定了做他博士生的信心。从我进所之时陆老师已经是所领导了，公务繁忙可想而知。但是陆老师对科研的热爱以及对学生的认真指导显然超过了我的预想，从我的几十封请教邮件有求必应，十数次当面求教陆老师都耐心解答当中可见一斑。五年来，陆老师不仅科研上给予我极大帮助，而且陆老师严谨的科研精神、清晰的研究思路、以及认真负责的治学风范都令我受益良多。陆老师的学术思想将会一直会伴随着我的学术生涯，指导我前行，由衷感谢陆老师。

这里我需要感谢我的第二导师胡伟达研究员。胡老师潇洒俊逸，待人亲切，能做胡老师的学生是一件幸福的事情。同时胡老师思维敏捷，科研预判力敏锐，在胡老师的指导下，使我的科研有一定的产出。当然最让我感动的是，是在这五年之中，我经历过科研的低落、沮丧、彷徨，是胡老师不曾放弃我，且不断鼓励我，使我重拾信心，奋起再战。胡老师的细心指导不仅锻炼了我的科研能力，而且还让我学到了豁达的心态、严谨的科研态度，这些都让我受益匪浅，由衷感谢胡老师。

感谢红外物理国家重点实验室。感谢实验室给我提供的科研条件。感谢实验室的陈效双主任、孟祥建主任、陈鑫主任、周孝好老师、王建禄老师、王文娟老师、李天信老师、夏辉老师、王少伟老师、张波老师和两位物理室秘书韩莉老师、陶玲老师，感谢你们给我科研上提供过的指导和帮助。

感谢研究生部汪骏发主任、李淑微老师、朱晓琳老师、黄曦老师、王愨超老师这五年来一直对我的学业和生活上的照顾和帮助。感谢中国科学院上海技术物理研究所提供给我的读博平台。

感谢湖南大学廖蕾老师在我研究生前期阶段提供给我的实验条件和研究指导。感谢澳大利亚国立大学的 Fu Lan 老师给我提供的实验样品。感谢华东师范大学的吴幸老师和骆晨同学给我提供过的样品表征和分析帮助。感谢科罗拉多大学的 James Torley 教授对我的文章提出的宝贵意见。

感谢翁钱春师兄、王文娟老师、黄庚华老师、丁宇星老师对我的室温纳米线单光子探测器工作提供的技术指导和帮助。

感谢课题组兄弟姐妹们。因为你们，所以温暖。感谢苗金水师兄在我刚入学的时候手把手教我做实验。感谢郭楠师兄对我科研上的持续指导。感谢课题组一起长期共事的兄弟姐妹们，他们包括王鹏师兄、郑定山师兄、龙明生师兄、吴峰师兄，同学：龚帆、罗曼、方河海、李庆、何家乐、唐奕程，师弟：仲方、王振、谢润章、葛浩楠、汪洋、彭孟、王海露、陈允枫、吴培松、叶家富、钟篱、张振汉、徐梦健，以及贺婷、梁芳两位师妹。感谢兄弟课题组的王旭东、黄海、吴广健、陈艳、黎丹、刘岚、涂路奇、邵倩倩、伍帅琴、吴斌民、张书魁、姜亦扬、蒋伟等人，感谢物理室的唐伟伟、苏小芳、温洁、张斌、朱思新、杜磊、张旭涛、杨辉、郭万龙、赵增月，以及张天宁、王书霞、黄田田、袁梦辉、杨艳、张悦等人，感谢同届一起读博的魏威、郑元辽、周玉伟、张淞洋、王文秀、黄敏、于春蕾、程雨顺、常高磊、岑懿群、俞辰韧等的小伙伴们。谢谢你们在我读博路上给我带来的帮助和欢声笑语。

感谢武汉大学戴志高、李文庆、苏萌、杨振宇、江贝、黎怡、张新刚、石俊强这些一起做过实验的小伙伴们。

感谢我的朋友们在我的生活及工作中对我的支持和鼓励，因为你们的存在让我多了一份完成学业的动力。

感谢我的家人。感谢父母无私的付出与养育之恩，感谢哥哥姐姐在我读博路上一直给我指引，做我的榜样。因为家人，所以温暖。

感谢百忙之中抽时间对本文进行审阅、评议和参加本人论文答辩的专家评委。

感谢以后所有读到这篇博士论文的人们。

凡所际遇，皆有缘由，时常感恩，感谢在我 29 岁之前发生的一切，我向往明天会更好。

2019 年 3 月

骆文锦

作者简历及攻读学位期间发表的学术论文与研究成果

作者简历:

1990 年 03 月 01 日生于湖北省鄂州市。

2009 年 09 月--2013 年 06 月, 湖北师范大学物理与电子科学学院, 获得学士学位。

2014 年 09 月--2019 年 06 月, 中国科学院上海技术物理研究所攻读博士学位。

获奖情况:

荣获“中国电子学会第二十三届青年学术年会”学生优秀论文奖(2017 年)

荣获“2018 全国表面分析科学与技术应用学术会议”最佳墙报奖

2018 年度博士研究生国家奖学金

2017-2018 年度中国科学院大学三好学生

2016-2017 年度中国科学院大学三好学生

2018 年度上海技术物理研究所一等奖学金

2017 年度上海技术物理研究所二等奖学金

2016 年度上海技术物理研究所二等奖学金

已发表(含投稿)的论文:

1. **Wenjin Luo**, Qianchun Weng, Mingsheng Long, Peng Wang, Fan Gong, Hehai Fang, Man Luo, Wenjuan Wang, Zhen Wang, Dingshan Zheng, Weida Hu, Xiaoshuang Chen, and Wei Lu. Room-temperature single-photon detector based on single nanowire. *Nano letters*, 2018, 18(9): 5439-5445. (IF:12.08) 一区
2. Fan Gong, **Wenjin Luo** (共同第一作者), Jianlu Wang, PengWang, Hehai Fang, Dingshan Zheng, Nan Guo, Jinli Wang, Man Luo, Johnny C. Ho, Xiaoshuang Chen, Wei Lu, Lei Liao, and Weida Hu. High - Sensitivity Floating - Gate Phototransistors Based on WS₂ and MoS₂. *Advanced Functional Materials*, 2016, 26(33): 6084-6090. (IF:13.32) 一区
3. Lei Ye, Peng Wang, **Wenjin Luo** (共同第一作者), Fan Gong, Lei Liao, Tiande Liu, Lei Tong, Jianfeng Zang, Jianbin Xu, and Weida Hu. Highly polarization

- sensitive infrared photodetector based on black phosphorus-on-WSe₂ photogate vertical heterostructure. *Nano energy*, 2017, 37: 53-60. (IF:13.12) —[☐](#)
4. Peng Xiao, Jie Mao, Ke Ding, **Wenjin Luo**, Weida Hu, Xiujuan Zhang, Xiaohong Zhang, Jiansheng Jie, Solution-Processed 3D RGO-MoS₂/Pyramid Si Heterojunction for Ultrahigh Detectivity and Ultra-Broadband Photodetection, *Advanced Materials*, 2018: 1801729. (IF:21.95) —[☐](#)
5. Peng Wang, Shanshan Liu, **Wenjin Luo**, Hehai Fang, Fan Gong, Nan Guo, Zhi-Gang Chen, Jin Zou, Yan Huang, Xiaohao Zhou, Jianlu Wang, Xiaoshuang Chen, Wei Lu, Faxian Xiu, and Weida Hu, Arrayed van der Waals Broadband detectors for Dual band detection, *Advanced Materials*, 29 (16), 1604439 (2017). (IF:21.95) —[☐](#)
6. Hehai Fang, Weida Hu, Peng Wang, Nan Guo, **Wenjin Luo**, Dingshan Zheng, Fan Gong, Man Luo, Hongzheng Tian, Xutao Zhang, Chen Luo, Xing Wu, Pingping Chen, Lei Liao, Anlian Pan, Xiaoshuang Chen, and Wei Lu, Visible light-assisted high-performance mid-infrared photodetectors based on single InAs nanowire, *Nano Letter*, 16 (10), 6416–6424 (2016). (IF:12.08) —[☐](#)
7. Dingshan Zheng, Hehai Fang, Peng Wang, **Wenjin Luo**, Fan Gong, Johnny C. Ho, Xiaoshuang Chen, Wei Lu, Lei Liao, Jianlu Wang, and Weida Hu, High-Performance Ferroelectric Polymer Side-Gated CdS Nanowire Ultraviolet Photodetectors, *Advanced Functional Materials*, 26 (42), 7690–7696 (2016). (IF:13.32) —[☐](#)
8. Longfei Lv, Yibing Xu, Hehai Fang, **Wenjin Luo**, Fangjie Xu, Limin Liu, Biwei Wang, Xianfeng Zhang, Dong Yang, Weida Hu, and Angang Dong, Generalized colloidal synthesis of high-quality, two-dimensional cesiumlead halide perovskite nanosheets and their applications in photodetectors, *Nanoscale*, 8, 13589-13596 (2016). (IF:7.23) —[☐](#)
9. Nan Guo, Weida Hu, Tao Jiang, Fan Gong, **Wenjin Luo**, Weicheng Qiu, Peng Wang, Lu Liu, Shiwei Wu, Lei Liao, Xiaoshuang Chen, and Wei Lu, High quality infrared imaging with graphene photodetectors at room temperature,

Nanoscale, 8(35): 16065-16072 (2016). (IF:7.23) 一区

10. Jinshui Miao, Weida Hu, Youliang Jing, **Wenjin Luo**, Lei Liao, Anlian Pan, Shiwei Wu, Jingxin Cheng, Xiaoshuang Chen, and Wei Lu, Surface Plasmon-Enhanced Photodetection in Few-Layer MoS₂ Phototransistors with Au Nanostructure Arrays, *Small*, 11, 2392–2398 (2015). (IF:9.59) 一区
11. Weida Hu, **Wenjin Luo**, Peng Wang, Jinshui Miao, Xiaoshuang Chen, and Wei Lu, Recent progress on localized-field enhanced few-layer MoS₂ photodetector[C]//*Photonics for Energy. Optical Society of America*, 2015: PT3E. 2.
12. Weida Hu, Hehai Fang, Yueming Wang, **Wenjin Luo**, Peng Wang, Xiaoshuang Chen and Wei Lu, Uncooled infrared photodetectors based on one-dimensional nanowires and two-dimensional materials[C]//*SPIE, Infrared Technology and Applications XLIII.*, 2017, 10177: 101771T.

专利:

1. 胡伟达、**骆文锦**、王鹏、龙明生、陈效双、陆卫, “一种室温纳米线光子数可分辨探测器”。已授权, 实用新型: ZL201820160569.8。
2. 胡伟达、龚帆、**骆文锦**、王鹏、龙明生、陈效双、陆卫, “基于二维材料垂直肖特基结近红外探测器”。已授权, 实用新型: ZL201720838173.X。
3. 胡伟达、王建禄、郑定山、**骆文锦**、王鹏、陈效双、陆卫, “全耗尽铁电侧栅单根纳米线近红外光电探测器及制备方法”。已授权, 发明专利: ZL201610893709.8。

承担和参加的研究项目:

1. 2015 年度中科院上海技术物理研究所创新专项项目, 基于柔性衬底石墨烯场效应管红外探测器研制 (8 万元), **项目负责人**。
2. 2017 年中国科学院(装备研制), 高空间分辨微区红外表征系统 (300 万元), 参与。
3. 2018 年国家自然科学基金委(杰青), 红外探测器物理及应用 (350 万元), 参与。
4. 2018 年国家自然科学基金委(重点), 基于局域场调控的二维材料红外光电探测新机理及应用研究 (340 万元), 参与。