

## Наблюдение областей отрицательной дифференциальной проводимости и генерации тока при туннелировании через нульмерные уровни дефектов барьера $h$ -BN в гетероструктурах графен/ $h$ -BN/графен

© Ю.Н. Ханин<sup>1</sup>, Е.Е. Вдовин<sup>1,†</sup>, А. Мищенко<sup>2</sup>, К.С. Новоселов<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Институт проблем технологии микроэлектроники и особо чистых материалов Российской академии наук, 142432 Черноголовка, Московская область, Россия

<sup>2</sup> School of Physics and Astronomy, University of Manchester, Oxford Road, Manchester, M13 9PL, UK

<sup>†</sup> E-mail: vdov62@yandex.ru

Поступила в Редакцию 6 марта 2019 г.

В окончательной редакции 10 марта 2019 г.

Принята к публикации 13 марта 2019 г.

Исследовались туннелирование и магнитотуннелирование в ван-дер-ваальсовых гетеросистемах графен/ $h$ -BN/графен, обнаружившие два новых типа систем, в которых области отрицательной дифференциальной проводимости реализуются в результате процессов резонансного туннелирования через уровни дефектов в барьере  $h$ -BN, а также происходит генерация тока, обусловленная их наличием.

**Ключевые слова:** туннелирование, магнитотуннелирование, ван-дер-ваальсовы гетеросистемы, графен.

DOI: 10.21883/FTP.2019.08.47995.9093

Наличие областей отрицательной дифференциальной проводимости (ОДП) на вольт-амперных характеристиках (ВАХ) в различных системах, проявляющихся как уменьшение тока с увеличением напряжения, привлекает постоянное внимание исследователей ввиду потребности в различных практических приборных приложениях нанoeлектроники, таких как СВЧ генераторы, вентили и элементы для реализации систем квантовых вычислений. В современных ван-дер-ваальсовых графеновых гетеросистемах эти исследования еще более актуальны [1], поскольку в них предполагается возможность достижения частот генерации вплоть до терагерцового диапазона [2] и недавно уже показана возможность реализации областей ОДП. Так, например, при туннелировании и магнитотуннелировании через барьер из гексагонального нитрида бора ( $h$ -BN) между графеновыми слоями, кристаллические решетки которых хорошо сориентированы по углу, наблюдались как область ОДП, так и обусловленный этим эффект генерации тока [3,4].

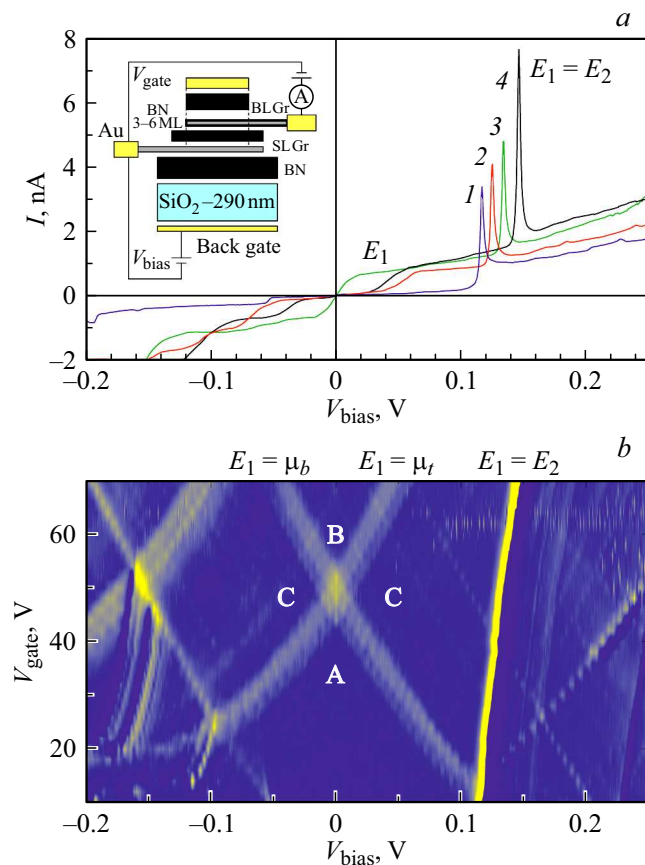
В данной работе исследовались туннелирование и магнитотуннелирование в ван-дер-ваальсовых гетеросистемах графен/ $h$ -BN/графен, обнаружившие две новые возможности реализации резких ОДП, связанные с наличием уровней дефектов в барьере  $h$ -BN.

Исследовавшиеся образцы представляли собой вертикальные ван-дер-ваальсовы гетероструктуры, получаемые путем механического расслоения и переноса слоев графена и  $h$ -BN (см. вставку на рис. 1, а). Изучалось два типа образцов, различавшихся верхним графеновым слоем и устройством нижнего затвора — в первом типе верхний электрод представлял собой двухслойный графен, а затвор состоял из высоколе-

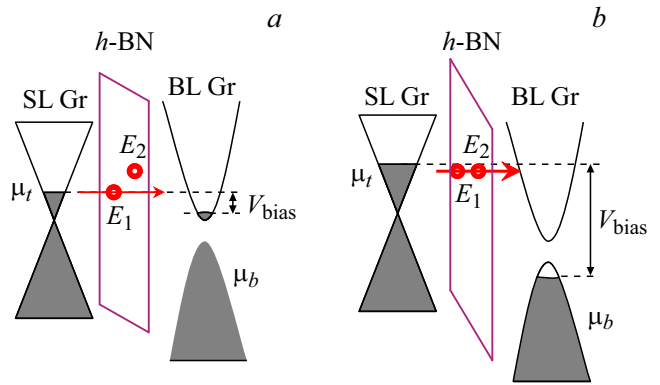
гированного Si и диэлектрических слоев толщиной  $D = 290 \text{ нм}(\text{SiO}_2) + 30 \text{ нм}(h\text{-BN})$ , а во втором — верхний электрод был из однослойного графена, а затвор состоял из графена электрода и подзатворного слоя  $h$ -BN толщиной  $D = 25\text{--}30 \text{ нм}$ , что обуславливало разные рабочие интервалы затворных напряжений  $V_{\text{gate}}$ . Контакты к слоям графена и верхняя затворная металлизация были изготовлены с помощью электронной литографии и напыления AuGe/Ni/Au. Проводящие графеновые слои  $\text{Gr}_b$  и  $\text{Gr}_t$  были изготовлены в виде крестообразной структуры, разделенной в месте пересечения туннельным барьером  $h$ -BN толщиной  $d$  в несколько монослоев (3–6 ML), площадь пересечения графеновых электродов была 25–50 мкм<sup>2</sup>. Измерения туннельной проводимости/тока проводились четырехзондовым методом.

Схематическое изображение основных слоев первой структуры и измерительной цепи приведено на вставке к рис. 1, а. Несколько атомных слоев  $h$ -BN образуют туннельный барьер, расположенный между верхним двухслойным и нижним однослойным графеновыми электродами, BL Gr и SL Gr соответственно, которые действуют как электроды истока и стока. При приложении напряжения смещения,  $V_{\text{bias}}$ , между ними химические потенциалы в верхнем и нижнем электродах ( $\mu_t$  и  $\mu_b$ ) смещаются друг относительно друга и возникает экспоненциально растущий туннельный ток  $I$  через барьер как результат переходов носителей из заполненных состояний в одном графеновом электроде в пустые состояния в другом. В случае, если в барьерном слое находится локализованное состояние любой природы и его энергетический уровень, двигаясь с изменением  $V_{\text{bias}}$ , совпадает с химическим потенциалом  $\mu_t$  в верхнем

контакте, открывается канал резонансного туннелирования через это состояние, проявляющийся в токе в виде ступени (например, ступень  $E_1$  на рис. 1, *a*) или пика в дифференциальной проводимости, поскольку при дальнейшем увеличении  $V_{bias}$  после порога этого резонанса ток через него меняется относительно слабо [5,6]. Если в разных слоях барьера находятся два близлежащих (в направлении, перпендикулярном туннелированию) состояния с несильно различающимися энергиями, то в случае совпадения их энергий на ВАХ будет наблюдаться резкий пик тока [7], как, например, на рис. 1, *a*. В наших образцах кристаллические углы  $> 10^\circ$ . Такая разориентация подавляет прямое межзонное резонансное туннелирование с сохранением продольной слоям компоненты импульса и позволяет детально изучить малый туннельный ток при переходах через индивидуальное локализованное состояние [8]. Нижний затворный электрод, расположенный на подложке, используется



**Рис. 1.** Эспериментальные ВАХ  $I(V_{bias})$  (*a*) и карта проводимости в координатах  $(V_{gate}, V_{bias})$  (*b*) образца с верхним двухслойным графеновым электродом, измеренные при  $T = 4.2$  К. *a*: ступеньки и пики в токе  $E_1$  и  $E_1 = E_2$  отражают туннельные переходы между истоком и стоком через один или два уровня дефектов в барьере;  $V_{gate} = 10$  (1), 30 (2), 50 (3) и 70 В (4). Описание линий и характерных зон на карте даны в тексте. На вставке — схематическое изображение основных слоев структуры и измерительной цепи.



**Рис. 2.** Схемы туннельных переходов в образце первого типа с участием одного (*a*) и двух (*b*) уровней дефектов в барьере.

для регулировки концентрации носителей в графеновых слоях путем изменения напряжения затвора,  $V_{gate}$ .

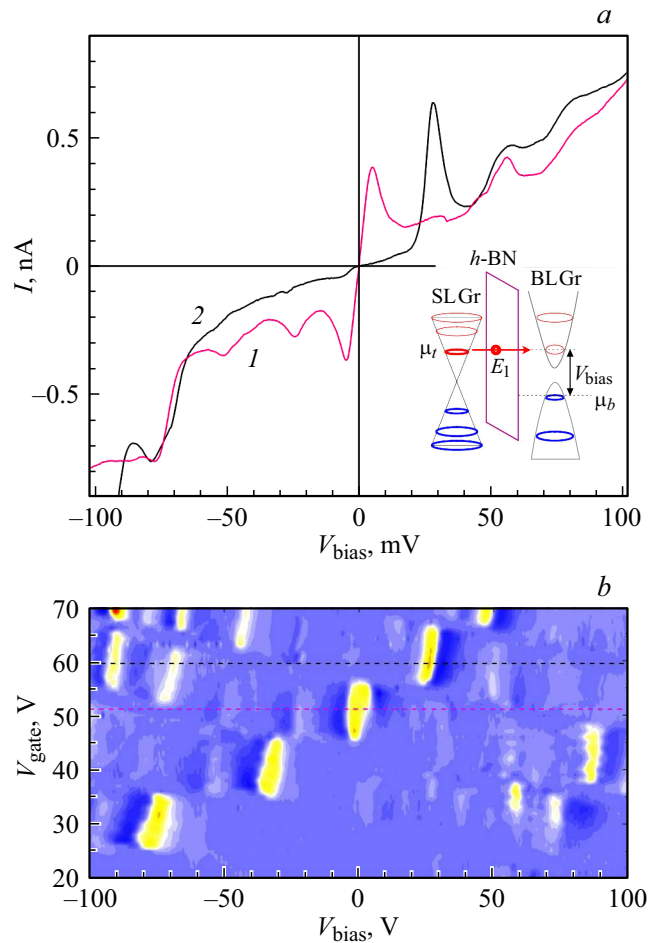
Экспериментальные ВАХ образца с верхним двухслойным графеновым электродом, измеренные при температуре  $T = 4.2$  К, показаны на рис. 1, *a*. Ступеньки и пики в токе, обозначенные  $E_1$  и  $E_1 = E_2$ , как уже отмечалось выше, обусловлены туннельными переходами между графеновыми истоком и стоком через один или два уровня дефектов в барьере [5]. Движение ВАХ вызвано изменением затворного напряжения. Многократное увеличение резонансного тока при переходах через два уровня по сравнению с переходом через один дефект обусловлено естественным ростом туннельной прозрачности системы в такой ситуации. Наглядно туннельные процессы с участием одного или двух уровней дефектов  $E_1$  и  $E_2$  представлены на рис. 2, где конусы и параболы соответствуют зонным структурам однослойного и двухслойного графена.

Наглядное представление о разных режимах транспорта в наших экспериментальных структурах дает рис. 1, *b*, на котором показана карта проводимости в координатах  $(V_{gate}, V_{bias})$ . Область А на карте соответствует малым значениям проводимости до начала порога резонансного туннелирования через состояние  $E_1$  в барьере. Уровень  $E_1$  в области А находится выше  $\mu_b$  и  $\mu_t$  одновременно, и туннельные переходы без изменения энергии невозможны из-за отсутствия в эмиттере носителей с необходимой энергией. При этом границы зоны А на карте соответствуют условию совпадения уровня  $E_1$  с  $\mu_b$  или  $\mu_t$ , т.е.  $E_1 = \mu_b$  и  $E_1 = \mu_t$  для положительных и отрицательных  $V_{bias}$  соответственно. Область В на карте отличается от А только тем, что до порога резонанса  $E_1$  находится ниже  $\mu_b$ , и  $\mu_t$ , туннелирование невозможно из-за отсутствия свободных состояний для туннельных переходов в коллекторе. Точка пересечения линий, разграничивающих области А, В и С, соответствует условию, когда  $E_1$  совпадает с  $\mu_b$  и  $\mu_t$  при  $V_{bias} = 0$ . Области С на карте отражают мало меняющиеся значения тока после порога тунне-

лирования через  $E_1$ . Самая яркая линия, обозначенная  $E_1 = E_2$ , порождена переходами через пару дефектов, схематически показанными на рис. 2, *b*. Как видно из положения этой линии на карте, увеличение напряжения на затворе незначительно смещает условия совпадения уровней  $E_1 = E_2$  в сторону больших  $V_{\text{bias}}$  (см. также ВАХ на рис. 1, *a* при  $V_{\text{gate}} = 10, 30, 50$  и  $70$  В) из-за перераспределения потенциалов в барьерной области с изменением концентраций в стоке и истоке.

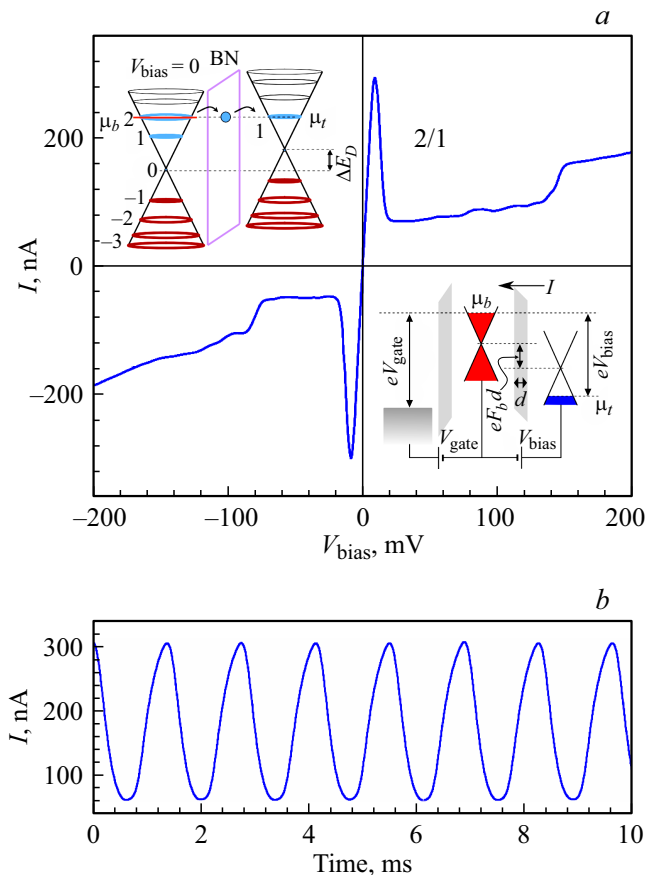
На этой структуре также наблюдались области ОДП при приложении магнитного поля. Магнитное поле, перпендикулярное графеновым слоям, приводило в такой ситуации к квантованию движения электронов в плоскости слоев и формированию неэквидистантных дискретных спектров уровней Ландау в однослойном графене и эквидистантных в двухслойном. Наблюдаемая при  $B = 0$  ступенька тока, соответствующая порог туннелирования через уровень состояния дефекта (например, обсуждавшийся выше  $E_1$  на рис. 1, *a*), в магнитном поле превращалась в резкий пик тока с последующей областью отрицательной дифференциальной проводимости. Такой вид зависимости в магнитном поле обусловлен одновременным совпадением уровня Ландау в двух графеновых электродах и уровня дефекта  $E_1$  в барьере. По сути такой резонансный канал  $E_1$  в магнитном поле является одновременно усилителем туннельного тока и узким сканером плотностей состояний, дающих вклад в суммарный ток. На рис. 3, *a* показаны две ВАХ при напряжении на затворе 51 (кривая 1) и 59 В (кривая 2), соответствующие туннелированию через уровень  $E_1$  и различные уровни Ландау в магнитном поле  $B = 7$  Тл при температуре 4.2 К. Карта проводимости, наглядно представляющая процессы магнитотуннелирования в этом образце при  $B = 7$  Тл и  $T = 4.2$  К, показана на рис. 3, *b*. Как видно из рисунка, плавная кривая движения порога резонанса  $E_1 = \mu_t$  превратилась в ступенчатую зависимость, где каждая вертикальная часть ступени отражает медленное изменение химического потенциала  $\mu_b$  с изменением параметров  $V_{\text{bias}}$ ,  $V_{\text{gate}}$  в интервалах одновременного совпадения пары уровней Ландау в слоях и уровня дефекта, а горизонтальные соответствуют резкому изменению  $V_{\text{bias}}$  в процессе перескока  $\mu_b$  к следующему уровню Ландау, вызванную этим перестройку потенциалов в барьерной области и, как результат, переход к новым условиям резонансного туннелирования. Штриховые линии соответствуют ВАХ, представленным на рис. 3, *a*.

Аналогичный эффект ОДП при туннелировании между однослойными графеновыми электродами в образце второго типа в магнитном поле также был нами зарегистрирован (см. рис. 4, *a*). Из-за меньшей толщины барьерного слоя *h*-BN и центрального положения дефектного уровня в барьере [9] величина магнитотуннельного резонанса почти на 2 порядка превышала наблюдавшуюся в образце первого типа. Именно такая большая величина резонансного тока позволила нам, кроме того, зарегистрировать на этом образце генерацию тока в



**Рис. 3.** Эспериментальные ВАХ  $I(V_{\text{bias}})$  (*a*) и карта проводимости образца первого типа (*b*) при  $T = 4.2$  К и  $B = 7$  Тл. *a*:  $V_{\text{gate}} = 51$  (1) и 59 В (2). На вставке — схема магнитотуннельных переходов через состояние  $E_1$ . Описание деталей карты дано в тексте.

ОДП (см. рис. 4, *b*). Частота генерации составляла 700 Гц, что, вероятнее всего, обусловлено внутренними параметрами гетероструктуры, поскольку эта частота радикально отличается от предсказанной теоретически для подобных структур величины  $\sim 50$  ГГц [23]. Такая генерация при магнитотуннелировании через уровень нульмерного состояния ранее не наблюдалась ни в графеновых, ни в полупроводниковых структурах. Для улучшения частотных характеристик систем, подобных нашим, требуется дополнительное исследование по их оптимизации, как, например, изготовление подобных образцов с существенно меньшими емкостями активных областей структуры, а также по оптимизации измерительной схемы. Однако эта трудоемкая задача не является предметом данной публикации. Вследствие более простой зонной структуры и симметричной структуры уровней Ландау в электродах образца второго типа (см. вставку к рис. 4, *a*), здесь достаточно просто определить конкретные пары уровней Ландау, участвующих в туннельном переходе через дефектный уровень. Так,



**Рис. 4.** *a* — ВАХ образца второго типа в области туннельного перехода через уровень дефекта в перпендикулярном слое магнитном поле  $B = 4$  Тл,  $T = 4.2$  К; на вставках: вверху — схема магнитотуннельных переходов при  $B = 4$  Тл,  $V_{bias} = 0$ ,  $\Delta E_D$  — энергетический сдвиг точек Дирака в слоях; внизу — схематическое изображение основных слоев структуры и измерительной цепи, где  $d$  — толщина барьера,  $F_b$  — электрическое поле в барьере,  $I$  — туннельный ток. *b* — генерация туннельного тока в области резонанса.

например, резонансный пик, представленный на рис. 4, *a*, порожден туннельным переходом в магнитном поле 4 Тл через уровни Ландау с номерами 2 и 1 в нижнем и верхнем слоях графена соответственно. Отметим, что в образцах первого типа нам не удалось обнаружить генерации тока из-за существенно меньшей величины эффекта, что в свою очередь требовало проведения измерений с большими постоянными времени измерительного усилителя. Однако наличие ярких областей ОДП и в этом типе образцов указывает на принципиальную возможность генерации при условии оптимизации эксперимента.

Хотя рассмотренные в статье образцы, очевидно, не могут быть использованы для практических приложений ввиду случайности появления локализованных состояний внутри барьера, сам принцип использования нульмерных состояний в ван-дер-ваальсовых гетероструктурах представляется интересным, и уже осуществлена

первая попытка создания таких структур со слоем выращенных в барьере  $h$ -BN графеновых квантовых точек [10].

### Финансирование работы

Работа выполнена Ю.Н. Ханиным в рамках государственного задания 075-00475-19-00. Е.Е. Вдовин благодарит за финансовую поддержку Российский фонд фундаментальных исследований (грант 18-02-00425).

### Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

### Список литературы

- [1] S. Kang, X. Mou, B. Fallahazad, N. Prasad, X. Wu, A. Valsaraj, H.C.P. Movva, K. Kim, E. Tutuc, L.F. Register, S.K. Banerjee. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **50**, 383002 (2017).
- [2] J. Gaskell, L. Eaves, K.S. Novoselov, A. Mishchenko, A.K. Geim, T.M. Fromhold, M.T. Greenaway. *Appl. Phys. Lett.*, **107**, 103105 (2015).
- [3] A. Mishchenko, J.S. Tu, Y. Cao, R.V. Gorbachev, J.R. Wallbank, M.T. Greenaway, V.E. Morozov, S.V. Morozov, M.J. Zhu, S.L. Wong, F. Withers, C.R. Woods, Y.-J. Kim, K. Watanabe, T. Taniguchi, E.E. Vdovin, O. Makarovskiy, T.M. Fromhold, V.I. Fal'ko, A.K. Geim, L. Eaves, K.S. Novoselov. *Nature Nanotechnology*, **9**, 808 (2014).
- [4] Ю.Н. Ханнин, Е.Е. Вдовин, А. Мищенко, Ж.С. Ту, А. Козиков, Р.В. Горбачев, К.С. Новоселов. *Письма ЖЭТФ*, **104** (5), 342 (2016).
- [5] M.T. Greenaway, E.E. Vdovin, D. Ghazaryan, A. Misra, A. Mishchenko, Y. Cao, Z. Wang, J.R. Wallbank, M. Holwill, Yu.N. Khanin, S.V. Morozov, K. Watanabe, T. Taniguchi, O. Makarovskiy, T.M. Fromhold, A. Patanè, A.K. Geim, V.I. Fal'ko, K.S. Novoselov, L. Eaves. *Commun. Phys.*, **1**, Article number: 94 (2018).
- [6] M.R. Deshpande, J.W. Sleight, M.A. Reed, R.G. Wheeler, R.J. Matyi. *Phys. Rev. Lett.*, **76**, 1328 (1996).
- [7] T. Bryllert, M. Borgstrom, L.-E. Wernersson, W. Seifert, L. Samuelson. *Appl. Phys. Lett.*, **82**, 2655 (2003).
- [8] Е.Е. Вдовин, Ю.Н. Ханнин. *Письма ЖЭТФ*, **108** (9), 674 (2018).
- [9] B. Ricco, M.Ya. Azbel. *Phys. Rev. B*, **29**, 1970 (1984).
- [10] G. Kim, S. Kim, J. Jeon, S. Yoon, S. Hong, Y.J. Cho, A. Misra, S. Ozdemir, J. Yin, D. Ghazaryan, M. Holwill, A. Mishchenko, D.V. Andreeva, Y. Kim, H.Y. Jeong, A. Jang, H. Chung, A.K. Geim, K.S. Novoselov, B. Sohn, H.S. Shin. *Nature Commun.*, **10**, 230 (2019).

Редактор Л.В. Шаронова

## Negative differential conductance and current generation at tunneling through zero-dimensional defect levels of the *h*-BN barrier in graphene/*h*-BN/graphene heterostructures

*Yu.N. Khanin*<sup>1</sup>, *E.E. Vdovin*<sup>1</sup>, *A. Mishchenko*<sup>2</sup>,  
*K.S. Novoselov*<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Institute of Problems of Microelectronics Technology  
and High Purity Materials,  
Russian Academy of Sciences,  
142432 Chernogolovka, Moscow Region, Russia

<sup>2</sup> School of Physics and Astronomy,  
University of Manchester,  
Oxford Road, Manchester, M13 9PL, UK

**Abstract** In this work, we studied tunneling and magnetotunneling in van der Waals heterosystems graphene/*h*-BN/graphene, which revealed two new types of systems in which the areas of negative differential conductivity are realized as a result of resonant tunneling processes through the levels of defects in the *h*-BN barrier, as well as current generation due to their presence.