

基于 ITO/聚甲基丙烯酸甲酯/Al 的有机阻变存储器 SPICE 仿真*

容佳玲¹⁾²⁾ 陈赅汉¹⁾²⁾ 周洁¹⁾²⁾ 张雪¹⁾²⁾ 王立¹⁾²⁾ 曹进^{2)†}

1) (上海大学材料科学与工程学院, 上海 200072)

2) (上海大学, 新型显示技术及应用集成教育部重点实验室, 上海 200072)

(2013年7月18日收到; 2013年8月25日收到修改稿)

探索了 ITO/PMMA/Al 器件的阻变机理及其 SPICE 电路仿真, 通过优化聚甲基丙烯酸甲酯 (PMMA) 层退火温度, 器件可实现连续擦 - 读 - 写 - 读操作. 基于不同退火温度 PMMA 薄膜的表面形貌研究, 构建了单层有机阻变器件的非线性电荷漂移模型, 以及描述该模型掺杂区界面移动的状态方程, 并通过反馈控制积分器建立了 SPICE 仿真电路. 最后, 代入器件实际测量参数, 得到与器件实际结果基本一致的电流 - 电压模拟曲线. 结果验证了单层有机器件的阻变机理, 说明该非线性电荷漂移模型的 SPICE 仿真在有机阻变器件仿真中同样适用.

关键词: 有机阻变存储器, 非线性电荷漂移, SPICE 仿真

PACS: 85.25.Hv, 73.40.Rw

DOI: 10.7498/aps.62.228502

1 引言

随着人们对于高速、便捷、可柔性电子产品需求的提高, 新型存储器的开发受到越来越多的关注^[1-4], 其中有机阻变存储器以其特有的低成本、可柔性、适用于大面积生产等优势成为研究的热点. 目前全球范围内有越来越多的研究组从事有机阻变随机存取存储器 (organic resistive random access memory, ORRAM) 的研究, 在探索 ORRAM 机理和提高 ORRAM 存储性能方面有很多进展. 但由于 ORRAM 的阻变特性易受有机材料类型^[5-8]、制备工艺^[9-11]等因素的影响, 对其机理的解释也是“百花争鸣”, 如 Filament 模型^[12]、离子扩散模型^[13]、Fowler-Nordheim 量子隧穿模型^[14,15]、空间电荷限制电流 (space charge limited current, SCLC) 模型^[16-18]、氧化还原模型^[19,20-22]、导电微通道模型^[23]等. 想要进一步探究 ORRAM 器件的机理及其作为一个无源电路元件的基本属性,

寻找一个能够准确描述其存储特性的仿真模型显得极为重要.

2008 年, 惠普 (HP) 实验室第一个成功制备了 Pt/TiO₂/Pt 结构的无机忆阻器^[24], 2009 年, Zdenek 等^[25]基于非线性电荷漂移模型原理, 利用现有的基本无源元件建立了符合 HP 器件实验结果的集成电路模拟软件 SPICE (simulation program with integrated circuit emphasis) 模型, 这一模型在一定范围内可以较好地模拟 HP 实验室制备的忆阻器器件的电学特性. 2011 年 Chua^[26]指出, 拥有阻变特性的两端口非易失性阻变存储器都属于忆阻器, 因此可以认为, 类似于 HP 实验室 M/O/M (金属层/有机层/金属层) 忆阻器器件结构的 ORRAM 器件也属于忆阻器^[27-30]的范畴.

本文设计了结构为 ITO/PMMA/Al 的单层有机阻变器件, 通过优化聚甲基丙烯酸甲酯 (poly-methylmethacrylate, PMMA) 退火温度得到了具有可重复擦 - 读 - 写 - 读的器件功能, 基于表面形貌研究结果, 解释了器件阻变特性产生的机理. 鉴于

* 上海自然科学基金 (批准号: 09ZR1411900)、上海市科委 (批准号: 11100703200) 和上海大学创新基金 (批准号: sdcx2012063) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: cj2007@shu.edu.cn

目前还没有关于有机阻变存储器 SPICE 仿真的报道, 我们基于 ITO/PMMA/Al 器件的阻变机理, 探索了掺杂体系非线性电荷漂移模型对应的 SPICE 仿真电路对器件电学特性仿真的适用性, 将制备的实际器件参数作为 SPICE 仿真电路输入数据, 考察了该电路仿真结果与器件实测结果的相符性, 这样建立的 ORRAM 的 SPICE 仿真有助于加快分析实验现象与器件机理的探索, 并为其读写操作的柔性电路设计提供参考.

2 器件制备与结果

本实验采用 ITO 氧化铟锡导电玻璃 (方块电阻: $20 \Omega/\square$) 为基片, 首先用常规的清洗方法对 ITO 玻璃进行清洗、烘干、UV (紫外线) 处理, 然后, 放入惰性气体手套箱中进行 PMMA 层的旋涂, PMMA 配制成一定浓度的氯苯溶液, 其浓度根据实验所需要的厚度来调整, 旋涂仪设置参数为先低速 300 r/min 旋转 5 s, 再以高速 2000 r/min 旋转 60 s. PMMA 薄膜旋涂完成后用热板进行退火处理, 实验中退火温度分别调整为室温 (25°C), 150°C , 180°C , 退火后待基片冷却至室温, 再放入真空蒸发设备中进行金属 Al 电极的蒸发, 金属 Al 电极的图案化通过 MASK(掩模板) 实现, 器件有效面积为 $3 \text{ mm} \times 3 \text{ mm}$, 器件结构如图 1(a) 所示. 真空室蒸发时的真空度为 $5 \times 10^{-4} \text{ Pa}$, 金属电极的沉积速率控制在 $0.1\text{--}0.2 \text{ nm/s}$ 之间, 沉积速率和厚度利用石英振荡器监控; 电压电流采用可编程的 KEITHLEY2400 测试, 器件 J - V 特性测试均以 Al 为正电极, ITO 为负电极, 所有测试在器件制备完成后室温条件下大气环境中即刻进行.

我们制备了 PMMA 层退火温度分别为室温 25°C , 150°C , 180°C 的器件, 其中 PMMA 厚度为 52 nm , 退火时间均为 1.5 h , 扫描电压为 $12 \text{ V} \rightarrow -12 \text{ V} \rightarrow 12 \text{ V}$. 器件电流 - 电压 (I - V) 结果如图 1(a) 所示, 由图可知, 未经退火的器件 (25°C) 表现为一般的绝缘特性而没有存储特性. 当退火温度增加到 150°C , 器件则呈现明显的阻变特性, 在 -5 V 时开关比为 21. 而当退火温度继续增加到 180°C 时, 此时器件的关态电流增加, 而开关比降低, 在 -5 V 时开关比为 8.

为进一步考察制备的 ITO/PMMA/Al 器件的存储特性, 我们用经过编程的电压脉冲作用于优化的

150°C 退火的器件, 实现器件的连续擦、读、写、读的操作, 实验结果如图 1(b) 所示, 擦、读、写、读电压分别为 $10, 5, -10, 5 \text{ V}$, 从图 1(b) 中也可以看出, 器件具有较好的写 - 擦 - 读 - 擦 - 写的可重复性.

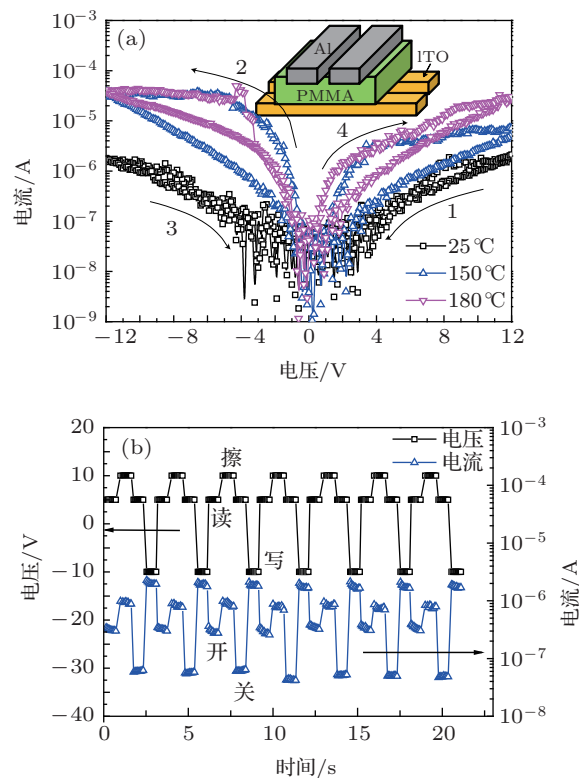


图 1 (a) PMMA 层退火温度分别为 $25, 150, 180^\circ\text{C}$ 时器件的电流 - 电压曲线, 扫描电压为 $12 \text{ V} \rightarrow (-12 \text{ V}) \rightarrow 12 \text{ V}$, 插图为器件结构图; (b) PMMA 厚度 52 nm 时器件在擦 - 读 - 写 - 读电压下的电流响应

3 ITO/PMMA/Al 单层有机阻变存储器的物理模型

为考察 ITO/PMMA/Al 器件阻变特性产生的内在原因, 我们利用原子力显微镜 (AFM) 分析了不同退火温度下 PMMA 薄膜的表面形貌, PMMA 厚度均为 52 nm . 结果分别如图 2(a) — (c) 所示.

由图 2 可知, 未退火的 PMMA 薄膜呈微小颗粒的密集分布; 当退火温度增加到 150°C , PMMA 颗粒明显变大, 同时形成了颗粒之间较大的缝隙; 当退火温度进一步增加到 180°C 时, PMMA 颗粒及其缝隙都有进一步增大的趋势. 由此我们认为, 器件阻变特性主要与金属 Al 电极在蒸发过程中向有机层 PMMA 的渗透有直接关系. Al 原子通过 PMMA 颗粒间隙扩散形成器件内的“局部微通

道”^[23], 该“局部微通道”对器件的双稳态特性起到决定性作用. 对于未退火的器件, 由于颗粒之间的“缝隙”很小, 并残留着水、溶剂分子, 因此阻碍了蒸渡过程中 Al 原子向薄膜内的扩散, 器件表现出绝缘特性. 当退火温度增加到 150 °C, 此时一方面颗粒之间的“缝隙”随 PMMA 颗粒的增大而进一步增大, 提高了 Al 原子在制备过程中向内部 PMMA 扩散的概率. 另外由于水、氯苯的完全去除, 器件呈现明显的两个电阻态. 而当退火温度进一步增加到 180 °C 时, “缝隙”随 PMMA 颗粒的增大而进一步增大, 使扩散进入 PMMA 的 Al 原子较多, 容易形成更多的“导电微通道”, 使得形成的“微通道”更易于处于“打开”状态, 而“关闭”变得困难, 因此表现出关态电流明显增加, 开关比降低.

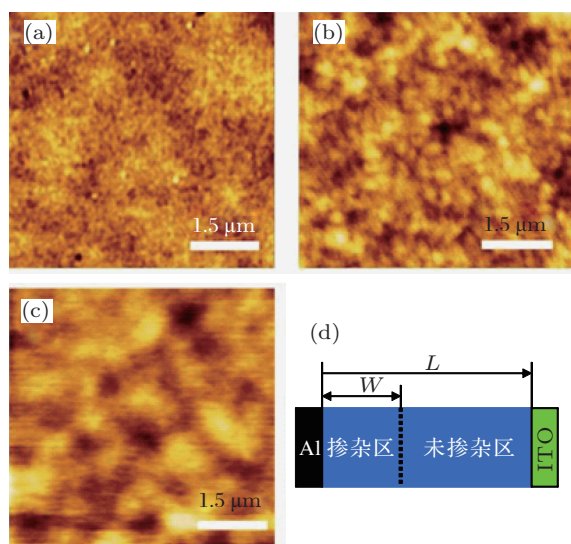


图 2 PMMA 薄膜 AFM 表面形貌图 (a) 25 °C; (b) 150 °C; (c) 180 °C; (d) ITO/PMMA/Al 物理模型

基于以上观点, 我们建立了器件的物理模型如图 2(d) 所示, 由于蒸发 Al 电极引起的掺杂作用, 器件总厚度为 L 的有机层分为两个区域, 高掺杂区 W 和低掺杂区 $L-W$, 器件总电阻取决于两个串联在一起并不断变化的导电区和绝缘区电阻之和. 掺杂区由于高浓度的掺杂而具有低阻值 R_{ON} , 相应的低掺杂区具有高阻值 R_{OFF} . 假设 $x = W/L$ 是反映器件内部状态的状态变量, x 在 $(0, 1)$ 区间内取值, 因此得到:

$$R_{\text{orram}} = R_{ON}x + R_{OFF}(1-x), \quad (1)$$

其中 R_{ON} 和 R_{OFF} 是当 $W = D$ 和 $W = 0$ 时器件的阻值, R_{orram} 是器件的总电阻. 当器件上外加偏置电压, 会使两个区域的交界移动, 原因是掺杂引起电荷的漂移运动. 依据欧姆电子传导和线性电荷漂移,

可以获得端口方程如下:

$$v(t) = (R_{ON}x + R_{OFF}(1-x))i(t). \quad (2)$$

若设 μ_v 是电荷迁移率, $i(t)$ 为器件电流, 在均匀电场作用下, 最后获得状态方程:

$$\frac{dx}{dt} = \mu_v \frac{R_{ON}}{L^2} i(t). \quad (3)$$

在纳米器件中, 小电压可以产生巨大的电场, 它可以激发产生显著的非线性电荷迁移, 这些非线性特别表现在薄膜边缘, 在那里高掺杂与低掺杂区域交界面运动的速度逐渐减小到零. 这种现象被称为非线性掺杂漂移, 我们认为本文制备的 ITO/PMMA/Al 单层有机阻变器件也遵循非线性电荷漂移物理模型, 可以用修饰边界效应的窗口函数 $f(x)$ 来模拟. 当前, 常用的窗口函数有 Joglekar 和 Zdenek 两种^[25], 表达式如下:

Joglekar 窗口函数

$$f(x) = 1 - (2x - 1)^{2p},$$

Zdenek 窗口函数

$$f(x) = 1 - (x - \text{stp}(-i))^{2p};$$

$$\text{stp}(i) = \begin{cases} 1 & \text{pro } i \geq 0 \\ 0 & \text{pro } i < 0 \end{cases},$$

其中 x 为状态变量, i 为流经器件的电流, p 为正整数.

在无机忆阻器的 SPICE 仿真中 Zdenek 等^[25]比较了两个窗口函数, 认为 Zdenek 窗口函数修正了 Joglekar 窗口函数中存在的器件边界处 (即 $R_{\text{orram}} = R_{OFF}(x = 0)$ 或者 $R_{\text{orram}} = R_{ON}(x = D)$) 状态锁存的问题.

4 SPICE 模型的建立与仿真结果

4.1 SPICE 模型

以上状态方程 (3) 和端口方程 (2) 描述了器件内部两个掺杂区域交界面在电场下的移动状况, 在 SPICE 仿真电路中可以通过反馈控制积分器来模拟^[25]. 它存储流经器件电流的影响, 通过修改交界位置来改变器件的阻值, 非线性漂移和边界条件的影响可以由非线性窗口函数 $f(x)$ 反馈来模拟. SPICE 仿真电路原理如图 3.

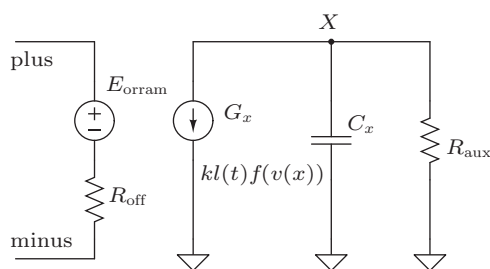


图3 SPICE模型的电路原理图

状态变量(掺杂层厚度即归一化宽度) x 通过电容 C_x 上的电压 $V(x)$ 来模拟。(3)式右边定义为流过 C_x 两端的电流,而 $V(x)$ 可以通过对 C_x 积分获得:

$$V(x) = \int kI_{\text{orram}}f(V(x)), \quad (4)$$

其中,

$$k = \mu_v \frac{R_{\text{ON}}}{L^2},$$

方程(4)可作为状态方程(3)右边量的积分器。(5)式可以将器件动态阻值定义为一个受控电压源和 R_{OFF} 的串联:

$$R_{\text{orram}}(x) = R_{\text{OFF}} - x\Delta R, \quad \Delta R = R_{\text{OFF}} - R_{\text{ON}}, \quad (5)$$

该电压源的电压受控于公式 $-x\Delta R$ 。状态变量(掺杂层的归一化宽度)初始态为 x_0 ,也是 C_x 两端的初始电压, x_0 可以由(6)式决定:

$$x_0 = \frac{R_{\text{OFF}} - R_{\text{init}}}{\Delta R}, \quad (6)$$

在以该电路为基础的SPICE电路中代入相应参数就可以实现SPICE对ORRAM实际器件的仿真。

4.2 SPICE模型仿真结果

利用添加了Zdenek窗口函数的非线性电荷漂移模型建立了SPICE仿真电路,并仿真了我们制备的单层有机存储器的电学特性,考察了非线性电荷漂移的SPICE仿真电路在有机阻变存储器仿真的适用性,其中PMMA厚为52 nm器件的SPICE仿真代码见表1。

在-5 V电压下,器件厚度 L 为45, 52, 60 nm,器件对应的开态电阻 R_{ON} 分别为:40, 170, 1560 k Ω ;关态电阻 R_{OFF} 分别为500, 3300, 12500 k Ω ;当设定初始状态 $W = 10$ nm时,由(6)式计算得对应的初始电阻 R_{init} 分别为399, 2698, 1064 k Ω 。将以上测得实际器件的 $L, R_{\text{ON}}, R_{\text{OFF}}, R_{\text{init}}$ 等参数代入SPICE仿真电路,获得的 $I-V$ 结果如图4所示。

表1 ORRAM的SPICE仿真代码

```

*ORRAM SPICE Model
*created by RJL
*****
*Ron, Roff -开态电阻, 关态电阻
*Rinit -初始电阻
*L -PMMA有源层薄膜的宽度
*uv -迁移系数
*p -描述模型中非线性边界条件窗口函数中的一个参数
*x -W/L的比例, W是掺杂区域的实际宽度

.SUBCKT orram Plus Minus PARAMS:
+Ron=170k Roff=3300k Rinit=2698k L=52n uv=12f p=15;PMMA厚度
为52nm, 设定X0=10
*****
*微分方程建模*
Gx 0 x value={I(Eorram)*uv*Ron/L^2*f(V(x), I(Eorram), p)}
Cx x 0 1 IC={(Roff-Rinit)/(Roff-Ron)}
Raux x 0 1T
*****
*ORRAM的电阻端口*
Eorram plus aux value={-I(Eorram)*V(x)*(Roff-Ron)}
Roff aux minus {Roff}
*****
*非线性电荷漂移模型中的Zdenek窗口函数*
.func f(x, i, p)={1-(x-stp(-i))^(2*p)}|
.ENDS orram
    
```

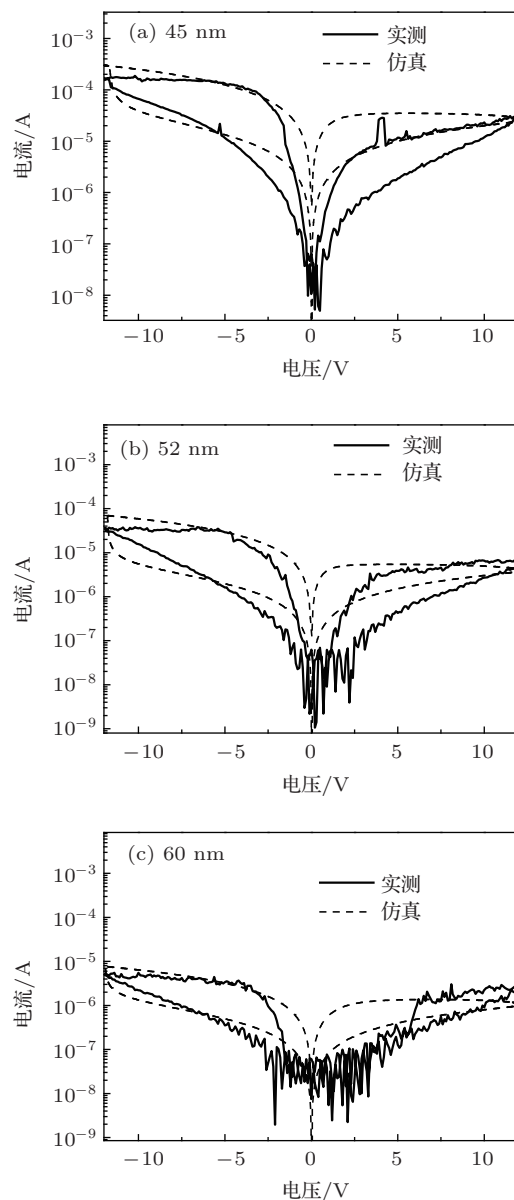


图4 器件厚度分别为(a) 45 nm; (b) 52 nm; (c) 60 nm时的实际测试结果(实线)与SPICE仿真结果(虚线)对比

由图 4 可知, 器件电流随有机层厚度的增加而降低, 模拟结果 (虚线) 与实测结果 (实线) 一致. 图 4 实线显示器件在负压区的电流均大于正压区的电流, 我们认为这是由于器件的上、下电极不同, 上电极 Al 的电子注入能力明显大于下电极 ITO 而造成. 由于我们模拟代入的是器件在负压区 -5 V 时的实测参数, 因此模拟结果与实测结果在负压区域符合较好, 但在正压区域相对较差. 此外, 图 4 实线显示在 0 V 附近器件电流出现不稳定状态, 并随有机层厚度增加而加剧, 这可归因于随着薄膜厚度增加, Al/PMMA 界面处电场强度变小, 不利于电子注入 PMMA 有源层, 以及局部导电微通道的形成; 而图 4 虚线却无法体现这种不稳定状态, 这是由于我们所采用的 Zdenek 窗口函数不能准确描述器件在 0 V 附近的边界状态; 对于 ORRAM 器件来说, 更为精确的窗口函数仍有待进一步的研究. 尽管如此, 本文的 SPICE 电路仿真结果与实际器件测

试结果在 I - V 曲线类型及其变化趋势上一致, 说明本文建立的基于掺杂体系非线性电荷漂移机理模型的 SPICE 仿真电路可以在一定范围内合理模拟 ORRAM 的电学特性.

5 结论

本文制备了具有连续擦 - 读 - 写 - 读功能的单层 ITO/PMMA/Al 结构有机阻变器件, 基于器件的掺杂体系非线性电荷漂移机理模型, 建立了其相应的 SPICE 仿真电路, 并考察了该仿真电路应用于单层有机阻变存储器中的适用性. 通过带入不同 PMMA 厚度器件在 -5 V 电压下实际测量的器件厚度、ON 态电阻、OFF 态电阻、初始电阻等参数, 对其电流 - 电压曲线进行了仿真. 结果表明该模型电路仿真结果与器件实测结果相符合, 证明了该模型能很好地反映实际器件的电学性能.

- [1] Jia L N, Huang A P, Zheng X H, Xiao Z S, Wang M 2011 *Acta Phys. Sin.* **61** 120502 (in Chinese) [贾林楠, 黄安平, 郑晓虎, 肖志松, 王玫 2012 物理学报 **61** 217306]
- [2] Liu S, Li Y T, Wang Y, Long S B, Lü H B, Liu Q, Wang Q, Zhang S, Lian W T, Liu M 2011 *Chin. Phys. B* **20** 017305
- [3] Zhang T, Bai Y, Jia C H, Zhang W F 2012 *Chin. Phys. B* **21** 107304
- [4] Hu H, Cai J M, Zhang C D, Gao M, Pan Y, Du S X, Sun Q F, Gao H J, Xie X C, Niu Q 2010 *Chin. Phys. B* **19** 037202
- [5] Lai Y S, Tu C H, Kwong D L, Chen J S 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 122101
- [6] Tondelier D, Lmimouni K, Vuillaume D, Fery C, Haas G 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 5763
- [7] Mahapatro A K, Agrawal R, Ghosh S 2004 *J. Appl. Phys.* **96** 3583
- [8] Majumdar H S, Baral J K, Österbacka R, Ikkalab O, Stubba H 2005 *Org. Electron.* **6** 188
- [9] Ma L P, Liu J, Yang Y 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 2997
- [10] Möller S, Perlov C, Jackson W, Taussig C, Forrest S R 2003 *Nature* **426** 166
- [11] Ji Y, Cho B, Song S, Kim T W, Choe M, Kahng Y H, Lee T 2010 *Adv. Mater.* **22** 3071
- [12] Joo W J, Choi T L, Lee K H, Chung Y S 2007 *J. Phys. Chem. B* **111** 7756
- [13] Ma L, Xu Q, Yang Y 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 4908
- [14] Reddy V S, Karak S, Ray S K, Dhar A 2009 *Org. Electron.* **10** 138
- [15] Baral J K, Majumdar H S, Laiho A, Jiang H, Kauppinen E I, Ras R H A, Ruokolainen J, Ikkala O, Österbacka R 2008 *Nanotechnology* **19** 035203
- [16] Carbone A, Kotowska B K, Kotowski D 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 236601
- [17] Mark P, Helfrich W 1962 *J. Appl. Phys.* **33** 205
- [18] Lin H T, Pei Z, Chan Y J 2007 *IEEE Electron. Dev. Lett.* **28** 569
- [19] Ling Q D, Song Y, Ding S J, Zhu C X, Chan D S H, Kwong D L, Kang E T, Neoh K G 2005 *Adv. Mater.* **17** 455
- [20] Ling Q D, Lim S L, Song Y, Zhu C X, Chan D S H, Kang E T, Neoh K G 2007 *Langmuir* **23** 312
- [21] Song Y, Ling Q D, Zhu C, Kang E T, Chan D S H, Wang Y H, Kwong D L 2006 *IEEE Electron. Dev. Lett.* **27** 154
- [22] Song Y, Tan Y P, Teo E Y H, Zhu C X, Chan D S H, Ling Q D, Neoh K G, Kang E T 2006 *J. Appl. Phys.* **100** 084508
- [23] Wang M L, Zhou J, Gao X D, Ding B F, Shi Z, Sun X Y, Ding X M, Hou X Y 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 143511
- [24] Strukov D B, Snider G S, Stewart D R, Williams R S 2008 *Nature* **453** 80
- [25] Zdenek B, Birolek D, Biolková V 2009 *Radioengineering* **18** 210
- [26] Chua L O 2011 *Appl. Phys. A: Mater. Sci. Process* **102** 765
- [27] Huang L, Huang A P, Zheng X H, Xiao Z S, Wang M 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 137701 (in Chinese) [黄力, 黄安平, 郑晓虎, 肖志松, 王玫 2012 物理学报 **61** 137701]
- [28] Bao B C, Hu W, Xu J P, Liu Z, Zou L 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 120502 (in Chinese) [包伯成, 胡文, 许建平, 刘中, 邹凌 2011 物理学报 **60** 120502]
- [29] Liang Y, Yu D S, Chen H 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 158501 (in Chinese) [梁燕, 于东升, 陈昊 2013 物理学报 **62** 158501]
- [30] Bao B C, Xu J P, Zhou G H, Ma Z H, Zou L 2011 *Chin. Phys. B* **20** 120502

SPICE simulation of organic resistive memory with structure of ITO/polymethylmethacrylate/Al*

Rong Jia-Ling¹⁾²⁾ Chen Yun-Han¹⁾²⁾ Zhou Jie¹⁾²⁾ Zhang Xue¹⁾²⁾
Wang Li¹⁾²⁾ Cao Jin^{2)†}

1) (Shanghai University School of Materials Science and Engineering, Shanghai 200072, China)

2) (Key Laboratory of Advanced Display and System Applications, Shanghai University, Ministry of Education, Shanghai 200072, China)

(Received 18 July 2013; revised manuscript received 25 August 2013)

Abstract

In this paper the resistive mechanism of the device with structure of ITO/PMMA/Al and the relevant SPICE simulation circuit are investigated. By optimizing the annealing temperature of PMMA, the devices can achieve continuous erasable-readable-writeable-readable operation. Based on the surface morphology researches of PMMA with different annealing temperatures, a physics model of nonlinear charge-drift mechanism in doping system is established to explain the resistance characteristics of the organic device. And the state equations are established to describe the interface movement of different doping regions in the model. Then, the SPICE simulation circuit is set up with feedback control integrator. Finally, substituting the measured parameters of device into the simulation circuit, we obtain the current-voltage simulation curve which is in good agreement with the actual results of the device. The results verify the resistance mechanism of nonlinear charge-drift in our device, and the applicability of the SPICE simulation of nonlinear charge-drift model based on inorganic memristors to the organic resistive memory.

Keywords: organic resistive memory, nonlinear charge-drift, SPICE simulation

PACS: 85.25.Hv, 73.40.Rw

DOI: 10.7498/aps.62.228502

* Project supported by the Shanghai Natural Science Funds, China (Grant No. 09ZR1411900), the Shanghai Science and Technology Commission Project, China (Grant No. 11100703200), and the Shanghai University Innovation Funds, China (Grant No. sdcx2012063).

† Corresponding author. E-mail: cj2007@shu.edu.cn