物理学报 Acta Physica Sinica



基于双极性二维晶体的新型 p-n 结

张增星 李东

Novel p-n junctions based on ambipolar two-dimensional crystals

Zhang Zeng-Xing Li Dong

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 66, 217302 (2017) DOI: 10.7498/aps.66.217302 在线阅读 View online: http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.217302 当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2017/V66/I21

您可能感兴趣的其他文章 Articles you may be interested in

ZnSe 量子点敏化纳米 TiO₂ 薄膜光电子特性研究

Photoelectron characteristics of ZnSe quantum dots-sensitized mesoporous La-doped nano-TiO₂film 物理学报.2017,66(6):067301 http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.067301

原子层沉积法生长ZnO的性质与前驱体源量的关系研究

Investigation on the relationship between the properties of atomic layer deposition ZnO film and the dose of precursor

物理学报.2013, 62(14): 147306 http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.147306

光伏型碲镉汞探测器在波段内连续激光辐照下的两种不同过饱和现象的产生机理 Generation mechanism of two different over-saturation phenomena of photovoltaic HgCdTe detectors irradiated by CW band-in laser 物理学报.2013, 62(9): 097303 http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.097303

Al₂O₃钝化及其在晶硅太阳电池中的应用

The passivation of Al₂O₃ and its applications in the crystalline silicon solar cell 物理学报.2012, 61(18): 187303 http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.187303

n-ZnO:Al/i-ZnO/n-CdS/p-Cu₂ZnSnS₄太阳能电池光伏特性的分析 Investigation of the photovoltaic performance of n-ZnO:Al/i-ZnO/n-CdS/p-Cu₂ZnSnS₄ solar cell 物理学报.2012, 61(18): 187304 http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.187304

专题: 与硅技术融合的石墨烯类材料及其器件研究

基于双极性二维晶体的新型p-n结*

张增星† 李东

(同济大学物理科学与工程学院,上海市特殊人工微结构材料与技术重点实验室,上海 200092)

(2017年7月8日收到; 2017年8月9日收到修改稿)

二维晶体的特殊结构和新奇物理性能为构建新型纳米结构和器件,实现半导体领域的突破性进展提供了可能.本文首先介绍了双极性二维晶体的基本物理性能和相关范德瓦耳斯异质结的制备方法.在此基础上, 主要综述了双极性二维晶体在新型电场调制二维晶体 p-n 结与异质 p-n 结以及非易失性可存储二维晶体 p-n 结等方面的应用、相关结构设计、电子和光电子等物理性能.然后进一步介绍了该类新型 p-n 结在逻辑整流电 路、场效应光电子晶体管、多模式非易失性存储器、整流存储器、光电子存储器、光伏器件等方面的潜在应用. 最后总结展望了该种新型 p-n 结在相关领域的可能发展方向.

关键词:二维晶体, p-n结, 范德瓦耳斯异质结, 电性能和光电子性能 PACS: 73.40.Lq, 85.30.-z, 73.63.-b, 85.60.-q DOI: 10.7498/aps.66.217302

1引言

随着微电子技术的快速发展,以硅为基础的半导体工艺面临越来越多的挑战,因此,探索制备新的材料和发现新的物理性能一直是凝聚态物理、材料学、信息科学等多个学科研究的前沿领域.近年来,二维晶体及其新奇物理特性的不断发现为构建新型纳米结构、实现半导体器件的突破性进展提供了可能^[1].这些新型纳米结构表现出优异的物理特性,有望用来发展高性能的电子与光电子器件,或者用以弥补传统硅基半导体器件的不足,拓展传统半导体器件的功能和应用领域.

作为最早发现的二维材料,石墨烯是一种零 带隙的半金属材料,这将限制其在电子和光电子 器件中的应用^[2].2011年,Kis等^[3]发现MoS₂二 维晶体在室温下具有较高的载流子迁移率(可达 200 cm²·V⁻¹·s⁻¹)和开关比率(~10⁸).与石墨烯 不同,过渡金属二硫族化合物(TMDs),如MoS₂, WS₂,MoSe₂,WSe₂等在单层时为直接带隙的半导 体材料,在作为纳电子与光电子器件时具有明显的 优势,因而很快受到了广泛关注.到目前为止,除 了石墨烯、TMDs外,人们还获得了多种其他二维 晶体材料,如六方氮化硼(h-BN)^[4]、黑磷(BP)^[5,6]、 硅烯^[7,8]等^[4,9–11].可以预见,随着研究的不断深 入,将有更多的二维晶体及其物理特性会被发现, 为进一步设计制备纳米电子和光电子器件提供丰 富的资源.

随着研究的逐步深入,由二维晶体堆垛而成的范德瓦耳斯异质结开始受到研究人员的关注^[12-15].通过利用相互之间的范德瓦耳斯力相互作用,二维晶体可以堆垛组合在一起形成原子级界面的范德瓦耳斯异质结^[16].通过利用二维晶体组成单元的不同性质,可控构建具有新奇物理特性的新型人造结构.众多的二维晶体为构建丰富多彩的范德瓦耳斯异质结提供了可能.2010年Hone等^[17]报道了h-BN上面的石墨烯具有很高的载流子迁移率.随后,Geim等^[18]发现封装在h-BN之间的石墨烯在室温下表现出微米尺度的弹道输运现象.此后,Perali等^[19]发现h-BN隔开的双层石

^{*} 上海市自然科学基金(批准号: 16ZR1439400, 17ZR1447700)资助的课题.

[†]通信作者. E-mail: zhangzx@tongji.edu.cn

^{© 2017} 中国物理学会 Chinese Physical Society

墨烯可在较高温度下实现超流; Wang 等^[20] 发现 MoS₂/WS₂之间具有超快的电荷转移现象, 可望用 于新型光电子器件; Withers 等^[21] 设计制备了二 维晶体超晶格结构, 发现其可以用于发光二极管 (LED)等. 这些发现极大地引起了人们对二维晶体 范德瓦耳斯异质结或超晶格的研究兴趣, 一些新的 物理特性也被逐渐揭示出来.

作为最基本的半导体结构之一, p-n结是半导体器件物理的基础, 被广泛用于二极管、晶体管、 光电探测器、LED、光伏器件等. 二维晶体范德瓦 耳斯异质结的发展为构建新型二维p-n结提供了可 能. 通过耦合不同载流子类型的二维晶体, 多种异 质p-n结被制备出来^[22-30]. 这些二维晶体在整流、 光伏、LED、光电探测等方面表现出不错的性能. 此外, 通过栅电压的调控, 可以很容易地实现对二 维晶体 p-n结性能的调控. 这类研究有望拓展传统 p-n结的功能和应用领域, 正在受到研究人员的广 泛关注, 并有很多的相关报道. 本综述将主要针对 一类由双极性 (ambipolar) 二维晶体组成的 p-n结 的物理性能和潜在应用进行讨论, 以期对相关研究 和应用提供帮助.

2 双极性(ambipolar)二维晶体

在传统的半导体材料中,载流子主要由掺杂产 生.掺杂的引入会破坏原有半导体的晶体结构,进 而影响其物理性能.此外,掺杂一旦形成,就很难再 对其进行调控,无法使其在p型和n型之间动态变 化.不同于传统的半导体材料,某些二维晶体表现 出双极性行为,通过施加外部电场,可以实现二维 晶体载流子在p型和n型之间的动态调控.图1(a) 和图1(b)展示了双极性二维晶体在外加栅极电压 下的调控示意图.当施加一个合适的负栅极电压 时,基于电容器的工作机理,空穴将聚集在沟道层 中,这时双极性二维晶体表现为p型(图1(a)).随 着栅极电压朝着0V方向移动,沟道中聚集的空穴 将逐渐减少.当施加一个正栅极电压时,电子将会 逐渐聚集到沟道层中,在合适的条件下,双极性二 维晶体将变成 n型(图1(b)).也就是说,随着栅极





Fig. 1. Ambipolar two-dimensional (2D) crystals. By applying the external electrical field, the ambipolar 2D crystals can be dynamically tuned between the (a) p-type and (b) n-type. Panels (c), (d) and (e) are the schematic crystal structures of the typical ambipolar 2D crystals of the few-layer graphene, WSe₂ and black phosphorus (BP). Panels (f), (g) and (h) are the transfer characteristics of the corresponding field-effect transistors (FETs).

电压从负向正扫描的过程中,双极性二维晶体中的 主要载流子将会逐渐地从空穴转变为电子.这种显 然不同于传统半导体材料的物理性能,有望用于设 计制备新的器件结构,产生一些新的功能,从而改 善和增强传统半导体器件的功能.

石墨烯是最先发现的双极性二维晶体材料^[31]. 其晶体结构如图1(c) 所示. 图1(d) 展示了石墨烯 场效应晶体管(FET)的转移特性曲线,可以看出 明显的双极性特征. 当栅极电压从负往正的扫描 过程中,石墨烯先是表现为p型.随着电压的扫描, 电阻逐渐增大,说明空穴正在减少. 当到达一定 的电压时, 电阻值达到最大, 这时为电中性状态. 随着栅极电压往正方向接着扫描, 电阻又开始变 小,这时表现为n型.它的双极性性能使得其在开 发新型器件方面具有独特的优势,但由于零带隙 的能带结构,石墨烯FET的开关比很低,这限制 了其在逻辑电路中的应用. 随着二维晶体家族的 不断发展丰富,其他半导体性的双极性二维晶体, 如WSe₂(图1(e), (f))、黑磷(图1(g), (h))、WS₂、 MoSe₂等也被逐渐发现^[5,6,32-34].这些半导体性双 极性二维晶体的出现不仅弥补了石墨烯在应用中 的不足, 也丰富了双极性二维晶体的种类, 拓展了 双极性二维晶体的应用领域.

3 范德瓦耳斯异质结的制备

范德瓦耳斯异质结的研究具有重要意义.在结构制备过程中,通过组装不同性能的二维晶体,可

以避免常规制备方法中对设备和工艺的复杂要求. 利用化学气相沉积等方法,目前已经有不少关于范 德瓦耳斯异质结生长的报道^[35-39].为了探讨结构 的物理性能,目前最行之有效的方法还是利用机械 剥离法制备二维晶体结构单元,然后通过逐层转移 制备所需要的范德瓦耳斯异质结^[40].在制备过程 中,一般先把底层二维晶体利用机械剥离法直接制 备在所需要的基底上,而对于其他二维晶体,则需 要逐层精确定位到基底上.由于利用机械剥离法所 获得的二维材料尺寸较小,这个转移制备过程通常 需要显微镜的帮助.图2为一个简单的转移制备设 备,一般包括一个显微镜和两个三维移动台.在显 微镜的帮助下,利用两个三维移动台可以把样品精 确定位到一起.







图 3 范德瓦耳斯异质结干法转移制备过程示意图 (a)—(e)转移制备过程示意图^[41]; (f) 一个范德瓦耳斯异质结 的光学显微镜照片, 其包括①, ②, ③共三层

Fig. 3. Dry transfer process of the fabrication of van der Waals heterostructures: (a)–(e), Schematic process ^[41]; (f) a van der Waals heterostructure including three layers indicated as (1), (2) and (3).

图3是利用干法转移制备范德瓦耳斯异质结 的过程示意图.首先,通过利用机械剥离法把底层 二维晶体直接制备在所需要的基底上;同时把所需 要转移的二维晶体制备在透明基底,如聚甲基丙烯 酸甲酯,聚二甲基硅氧烷等上.然后把底层样品和 所需要转移的样品面对面的固定在三维移动台上. 在显微镜的帮助下,利用三维移动台把要转移的样 品精确移动到所需要的位置,然后把两个样品紧贴 在一起.当利用三维移动台把透明基底抬起时,由 于范德瓦耳斯力的存在,所需要转移的二维晶体会 脱离透明基底而被转移到底层二维材料上.以此类 推,更多的二维材料可以被转移上去,从而获得所 需要的范德瓦耳斯异质结(图3(f)). 4 基于双极性二维晶体的新型p-n结

4.1 电场调制二维晶体 p-n结

由于双极性二维晶体的载流子可以通过外部 电场调制在p型与n型之间变化,因而可以通过结 构设计,形成两个独立栅极对二维晶体的调控,实 现不同类型的载流子在同一二维晶体上的分布,从 而形成p-n结.图4(a)下部插图为这种结构的典型 示意图^[42].该结构具有两个栅极,每个栅极只对应 部分双极性二维晶体沟道层.利用这种结构,最早 实现了石墨烯p-n结^[43,44].由于石墨烯的零带隙 能带结构,所形成的石墨烯p-n结很难观察到典型 的整流特性.半导体双极性二维晶体的发现为构建



图 4 电场调制二维晶体 p-n 结 (a) 上面为 WSe₂ 器件的光学显微镜图片,下面为器件结构示意图; (b) 通过 WSe₂ 的电流 -电压曲线; PN, $V_{lg} = -10$ V, $V_{rg} = 10$ V; NP, $V_{lg} = 10$ V, $V_{rg} = -10$ V; NN, $V_{lg} = V_{rg} = 10$ V; PP, $V_{lg} = V_{rg} = -10$ V; (c), (d) PN 与 NP 状态下的电流 - 电压曲线, 纵坐标为指数形式^[42]

Fig. 4. Electrical-field-tuned 2D p-n junction: (a) Top, optical microscopy image of the WSe₂ based device; bottom, Schematic device configuration; (b) I_{ds} - V_{ds} curves of the device at the PN, NP, NN and PP state (PN, $V_{lg} = -10$ V, $V_{rg} = 10$ V; NP, $V_{lg} = 10$ V; NP, $V_{lg} = 10$ V, $V_{rg} = -10$ V; NN, $V_{lg} = V_{rg} = 10$ V; PP, $V_{lg} = V_{rg} = -10$ V); (c), (d) I_{ds} - V_{ds} curves of the device at the PN and NP state in a logarithmic scale ^[42].

这类p-n结提供了条件. 2014年, 三个不同的研究 小组分别通过利用这种结构, 制备出单层WSe₂的 p-n结^[42,45,46].研究结果表明, 通过两个独立栅极 电压的调制, 可以对两个栅极上面的双极性二维晶 体进行独立的载流子调控, 从而使沟道层形成p-n 结、n-n结、p-p结以及n-p结等多种状态, 使其表现 出不同的 *I-V* 特性 (图4(b)).当一个栅极调制其上 的双极性二维晶体为p型时, 另一个栅极调制其上 的双极性二维晶体为p型时, 另一个栅极通过施加 反向电压, 调制其上的双极性二维晶体为n型, 从 而形成 p-n结 (图4(c)), 反之, 可以调控其为 n-p结 (图4(d))等.随后, 据报道双极性二维晶体黑磷也 表现出类似的 p-n结行为^[47].这类 p-n结具有不错 的物理性能, 有望用于 LED、光伏器件等多个领 域^[42,45-49].

4.2 电场调制二维晶体异质 p-n结 (场效应 异质 p-n结晶体管)

从图4(a)可以看出,利用两个独立栅极调控 实现双极性二维晶体 p-n 结往往需要复杂的结构设 计和实现途径.诸多的双极性二维晶体为实现电场 调制异质 p-n 结提供了可能. 我们课题组在这方面 进行了一些尝试^[50]. 图5 (a) 为我们设计的一种电 场调制异质 p-n 结示意图, 图5 (b) 为其扫描电子显 微镜照片. 该结构的沟道层为p型的黑磷和n型的 WSe₂所组成的范德瓦耳斯异质结. 不同于图4 (a) 的结构,这种异质 p-n 结只有一个栅极,在制备工 艺上将会简单一些,对设备的要求较低. 基于组 成范德瓦耳斯异质结双极性二维晶体的不同性能, 通过栅极的调控,可以实现异质结沟道层在 p-n 结、 p-p 结、 n-n 结等不同结构之间的调控 (图5 (c) 和图5 (d)).

在范德瓦耳斯异质 p-n结研究方面, 人们更关注的是栅极电场对 p-n结性能的调制. 诸多的研究结果表明, 外部电场可以实现对 p-n结整流和光电子性能的调控, 表明外部电场有可能用来改善二维晶体 p-n结的物理性能^[23,51]. 事实上, 图4与图5的结果还表明, 通过栅极电压的调控, 可以实现沟道层在 p-n结等多个状态之间的变化. 借鉴 FET的特征, 这些研究结果启示我们, 这种结构可以用来发展可逻辑调控的新型二维晶体 p-n 结(可以定



图 5 电场调制二维晶体异质 p-n 结 (场效应异质 p-n 结晶体管) (a) 基于黑磷/WSe₂ 异质结的器件结构示意图; (b) 黑 磷/WSe₂ 异质结器件的扫描电子显微镜照片; (c) 不同源漏电压下的转移特性曲线; (d) 不同栅极电压下的 $I_{\rm D}$ - $V_{\rm DS}$ 曲线 ^[50] Fig. 5. Electrical-field-tuned 2D heterostructured p-n junction (field-effect p-n heterojunction transistor): (a) Schematic structure of the BP/WSe₂ heterostructure based FET; (b) scanning electron microscopy (SEM) image of the BP/WSe₂ device; (c) transfer characteristics at different $V_{\rm DS}$; (d) $I_{\rm D}$ - $V_{\rm DS}$ curves at different gate voltages ($V_{\rm G}$) ^[50].

义为场效应p-n结晶体管). 我们课题组在这方面 做了一些初步的探讨,提出了逻辑调控p-n结的 概念^[50]. 基于图5(a)和图5(b)的器件,测量了 黑磷/WSe₂ FET 的转移特性曲线 (图 5 (c)). 结果 表明这种异质结具有不同于一般FET的特殊性 能——它的电流依赖于施加的源漏电压 VDS 的方 向,而在通常的FET中,其电流和源漏电压V_{DS} 的方向无关, 深入的研究结果表明, 由于黑磷和 WSe₂的双极性特征, 栅电压的调制可以分别使其 在n型和p型之间调控,在不同的栅电压区间,形成 了p-p结、p-n结与n-n结等不同状态. 由于p-n结 与非p-n结具有不同的整流特性,从而使其电流依 赖于源漏之间的电压方向.具体而言,在该结构中, 金属与黑磷的接触为欧姆接触,因而与整流行为无 关. 器件的整流行为主要由黑磷-WSe2界面以及 金属-WSe₂界面主导. 在 $V_{\rm G} < -36$ V 时, 黑磷和 WSe₂都是p型,这时黑磷-WSe₂与金属-WSe₂分 别为p-p结与金属-p肖特基结.在这种情况下,输 运主要由金属-p肖特基结决定,因而, $V_{DS} = 1$ V 时的电流比 $V_{DS} = -1$ V的大;在 -36 与 -30 V之 间, WSe2具有很大的电阻, 近似绝缘, 因而电流非 常小;在-30与12 V之间,黑磷仍然为p型,但是 WSe2变成n型,这时输运行为主要由p-n结决定, 因而 $V_{DS} = 1$ V时的电流比 $V_{DS} = -1$ V的大; 当 门电压大于12 V时,黑磷和WSe₂都变成n型,这 时的整流行为主要由金属-n肖特基结决定,因而 $V_{DS} = 1$ V时的电流比 $V_{DS} = -1$ V的小. 这些研 究结果意味着所制备的范德瓦耳斯异质结可以用 于逻辑调控p-n结(场效应p-n结晶体管)——通过 栅极电压的调控,使沟道层在p-n结与非p-n结等 不同的状态之间进行逻辑切换.

4.3 非易失性可存储二维晶体 p-n结

二维晶体 p-n结有望用于整流、LED、光伏、光 电探测器等多个领域. 图4(a)所示的结构可以有 效地获得 p-n结,但是相应 p-n结状态的维持需要 持续性地对两个栅极施加电压,这显然不利于其 在实际中的应用. 我们早期的研究结果表明,通 过浮栅场效应晶体管 (FG-FET)结构,利用双极性 二维晶体可以实现高性能的双极性存储器^[41].受 这些启发,利用双极性二维晶体,我们设计制备 了一种半浮栅场效应晶体管 (SFG-FET)^[52].利用 这种结构,可以实现非易失性可存储的 p-n结,如 图 6 (a) 所示,这种结构主要包括双极性二维晶体 沟道层 (WSe₂、黑磷等)、半浮栅 (石墨烯等)、控制 栅 (Si) 以及两个电介质层 (SiO₂ 与 h-BN,也可以使 用其他高介电材料).需要指出的是,不同于常用的 FG-FET,这里的半浮栅仅对应部分的沟道层.

图 6 (b) 和 图 6 (c) 为 SFG-FET 的 工 作 机 理. 当在控制栅上施加一个正的电压时,负电荷将聚集 在双极性二维晶体沟道层中,同时形成一个半浮栅 向双极性二维晶体的电场. 这个电场将使聚集的负 电荷隧穿到半浮栅中. 当正的电压消失时, 由于电 介质层势垒的作用, 隧穿的负电荷将存储在半浮栅 中. 这些存储的负电荷将在半浮栅上面的沟道层中 镜像正电荷,使其载流子类型为p型,而不在半浮 栅上的双极性材料将不受影响. 由于缺陷等各种 原因, 双极性二维晶体本身表现为一定的载流子类 型. 如果其本身为n型, 基于上述过程, 这时沟道层 将形成p-n结.显然,当在控制栅上施加负的电压 时,正电荷将存储在半浮栅中,使相应的沟道层部 分变成n型.这时候沟道层将形成n+-n结.我们首 先利用 n 型的 WSe₂ 进行了相关研究 (图 6 (d))^[52], 结果表明正的脉冲电压确实使其表现为p-n结行 为(图6(e)),而反向的负脉冲电压使其具有反向的 整流行为 $(n^+-n \pm)(图_6(f))$. 进一步的研究结果表 明,存储的电荷可以很好地保存在半浮栅中,经过 10年的时间, 仅有15%左右的电荷会消失掉, 表明 所制备的SFG-FET结构可以用于非易失性可存储 p-n结. 需要指出的是,这种SFG-FET结构可能具 有普适性,我们课题组已经成功获得了双极性二 维晶体黑磷与WSe1.2Te0.8的非易失性可存储p-n 结^[52].

5 双极性二维晶体新型p-n结的潜在 应用

作为最基本的结构之一, p-n结被广泛用于多 个领域. 基于双极性二维晶体的新型 p-n结具有不 同于传统 p-n结的特征, 有望产生一些新的有价值 的应用.



图 6 非易失性可存储二维晶体 p-n 结 (a) 器件结构示意图,该器件为一个 SFG-FET 结构; (b), (c) 为工作机理; (d) 基 于 WSe₂/h-BN/石墨烯的 SFG-FET 扫描电子显微镜照片; (e) 在正的脉冲电压调制下, WSe₂ 表现为 p-n 结的整流行为; (f) 在负的脉冲电压调制下, WSe₂ 表现为 n⁺-n 结的反向整流行为^[52]

Fig. 6. Non-volatile storable 2D p-n junction: (a) Schematic device configuration, which is a semi-floating-gate field-effect transistor (SFG-FET) structure; (b) and (c) are the working mechanism; (d) SEM image of a WSe₂/h-BN/graphene based SFG-FET device; (e) WSe₂ p-n junction by positive voltage pulses; (f) WSe₂ n^+ -n junction by negative voltage pulses [52].

5.1 逻辑整流电路

p-n结的单向导电性使得其在整流器件方面 具有广泛的应用.对于非p-n结(例如n⁺-n结),尽 管也具有整流特征,但是由于势垒较低,反向电流 一般较大,不具有很好的整流特性.无论对于逻 辑调控二维晶体 p-n结(场效应 p-n结晶体管),还 是对于非易失性可存储二维晶体 p-n结,通过在 栅极(或控制栅极)上施加电压(或脉冲电压),可 以实现二维晶体沟道层在 p-n结与非 p-n结之间的 逻辑变化,因而可以使其用于逻辑整流电路^[50]. 在 2013年, Hersam等^[53]利用碳纳米管薄膜/MoS2 异质结实现了电路的逻辑整流功能.相较于碳 纳米管薄膜,单晶的二维晶体更有利于器件的小 型化.图7(a)中的插图为基于黑磷/WSe₂异质结 FET的逻辑整流电路,这里用一个10 MΩ的电阻 串联到BP/WSe₂ FET 上.图7(a)是其在不同栅 极电压下的滤波特征.可以看出,当栅极电压为 0 V时,FET工作于p-n结状态.对于正向的源漏 电压(V_{DS}),二极管等效为闭合的开关,电流能够通 过电路.当 V_{DS} 反向时,二极管等效为断开的开关, 阻断了电流的通过,器件最终表现出半波整流的特 性(负向滤波); 当栅极电压变为10 V时,由图5(c) 可以看出, $V_{DS} = 1$ V与 $V_{DS} = -1$ V交汇在一起, 这时黑磷处于本征状态,异质结表现为n-i结,不具 有整流行为,正向源漏电压具有和负向源漏电压相 同的电阻,滤波作用也随之消失;当栅极电压变为 30 V时,异质结成为n-n结,具有与p-n结相反的整 流方向,表现出相反的滤波功能^[50].由图7(b)可 以看出,当持续性地施加某个栅压时,整流电路可 以有效地保持在某个状态. 然而, 当栅极电压发生 变化时, 电路可以迅速地在不同的整流状态之间变 化(图7(c)). 也就是说, 通过操纵栅极电压, 可以 使电路在不同整流状态之间逻辑切换, 因而它可以 用在整流电路里, 并使得整流电路具有逻辑运算的 功能.



图 7 逻辑整流电路 (a)电路在不同栅压下的滤波特性,插图为整流电路示意图,该电路利用一个黑磷/WSe₂ FET 和一 个 10 MΩ 的电阻串联; (b)电路在不同栅压下的保持能力; (c)通过调控栅压,可以使器件在不同整流状态之间切换 ^[50] Fig. 7. Logic rectifier circuit: (a) Filtering characteristics of the circuit at different gate voltages (inset, schematic plan of the rectifier circuit, where a 10 MΩ resistor is connected to the BP/WSe₂ FET); (b) retention performance of the circuit at different gate voltages; (c) switching behavior of the circuit by alternating the gate voltages ^[50].

5.2 场效应光电子晶体管 (field-effect optoelectronic transistor)

光是自然界传输最快的物质; 电可以用来成熟 地操纵信息, 从而具有逻辑运算的本领. 如何充分 借助光和电的不同性能, 发展具有快速信息处理能 力的新型纳米器件, 成为一个非常有意义和值得 探索的课题. p-n结是连接光与电的桥梁, 具有光 电转换的本领. 由于 p-n结与非 p-n结具有不同的 光电转换性能, 对于逻辑调控二维晶体异质 p-n结 (场效应p-n结晶体管),通过操纵栅极电压可以实 现器件在不同工作状态之间的切换,进而实现在不 同光电转换状态之间的逻辑变化^[50].类比于FET 用电来操纵电信号,可以定义这种器件为场效应光 电子晶体管,它可以用电来操纵光电转换状态的 信号.图8(a)为场效应光电子晶体管器件的示意 图,这里器件工作在光伏状态.在这种器件里,光 一直辐照在器件沟道层上,类似于FET里的源漏 电压V_{DS};光伏开路电压V_{OC}类似于FET中的输 出电流.通过栅极电压的调控,实现器件输出Voc 在夹断(非p-n结,光伏几乎可以忽略不计)和开启 (p-n结)之间变化.类比于FET,我们也可以定义 场效应光电子晶体管的转移特性曲线.图8(b)展 示了黑磷/WSe2异质结场效应光电子(光伏)晶体 管的转移特性曲线,可以看出,在一定强度的持续 光照下,栅极电压可以实现对输出Voc的调制.随 着栅极电压的改变,Voc可以在开启和夹断之间变 换,具有类似于FET的性能(输出电流在开启和夹 断之间变化).对于恒定的栅极电压,Voc可以固定 在一定的状态(开启或夹断,图8(c)).当栅极电压 为-10 V时 (p-n结),器件 V_{OC} 很大,对外表现出 很强的光电转换性能;当栅极电压为+30 V时 (n-n 结),器件 V_{OC} 很小,其光电转换性能很弱.而当栅 极电压改变时,可以很快地实现 V_{OC} 在开启和夹断 状态之间的切换 (图 8 (d)).这种新型器件可以用于 光电子电路里,使其具有逻辑运算的功能:在栅极 电压的操纵下,实现电路的光电转换状态从"开"到 "关"或者从"关"到"开"的快速切换.需要指出的 是,非易失性可存储二维晶体 p-n结也具有类似的 逻辑能力,只是需要利用控制栅脉冲电压代替这里 的栅电压.



图 8 场效应光电子晶体管 (a)场效应光电子(光伏)晶体管示意图,这里光一直照射在器件沟道上,通过栅极电压的调控, 实现沟道层的光电转换状态的调制;(b)光电转换状态(开路电压 V_{OC})-栅压(V_G)曲线;(c)器件在不同栅压下的保持能力; (d)通过调控栅压,可以实现器件在不同光电转换状态(V_{OC})之间的切换^[50]

Fig. 8. Field-effect optoelectronic transistor: (a) Schematic of the field-effect optoelectronic (photovoltaic) transistor (here the light illuminates the channel, and the optoelectronic conversion state is tuned by the gate voltage); (b) $V_{\rm OC}$ - $V_{\rm G}$ curve ($V_{\rm OC}$ is the open-circuit voltage); (c) retention performance of the device at different gate voltages; (d) switching behavior of the device by alternating the gate voltage ^[50].

5.3 多模式非易失性存储器

存储器是信息处理设备中不可或缺的部分,用 于信息的存储和读取.FG-FET是一种重要的非 易失性存储器件.在FG-FET存储器中,通过调制 存储在浮栅中的电荷,控制沟道层的电阻,从而使 其具有信息存储和处理能力.二维晶体优异的物 理性能,引起了人们对其在FG-FET非易失性存 储器中的应用研究,这些二维晶体可以代替传统 器件中的浮栅或者沟道层,表现出不错的物理性 能^[54-56].2015年,我们课题组通过利用黑磷作为 沟道层,制备出高性能的双极性存储器,这种不同 于传统存储器的双极性存储器,有望用于沟道电荷 类型可调的新型存储器或者逆变逻辑电路中^[41]. 基于SFG-FET结构的p-n结具有非易失性可存储 功能,因而可以用于非易失性存储器.图9是基于WSe₂/h-BN/graphene结构的SFG-FET存储器的性能展示.由图9(a)可以看出,不同于传统的浮栅存储器,由于这种器件的沟道层存储在不同的整流状态,因而依赖于源漏电压V_{DS}的方向.当施加不同方向的源漏电压时,其表现出不同的存储窗口,且具有不同的擦写比.因而在设计存储电路时,可以根据需要采用不同的存储模式,使其具有多模式存储器的功能,这将使电路设计时具有更多的选择性.图9(b)是不同的存储状态随时间的演化曲线.可以看出,经过1000 s以上,存储状态几乎没有什

么变化,表明器件具有很好的存储能力.事实上, 测试结果表明,经过10年的时间,大约15%左右的 存储电荷会消失掉^[52].图9(c)与图9(d)为存储器 在不同的存储状态之间的变化.可以看出,当施加 不同的脉冲电压时,器件可以很快地在不同的存储 状态之间进行切换,具有可编程特点.这些结果表 明,基于双极性二维晶体的SFG-FET可以很好地 用于非易失性存储器,且具有不同于传统浮栅存储 器的特殊性能.这些特点将有可能丰富未来电路的 功能,拓展其应用领域.



图 9 基于 WSe₂/h-BN/grapheme SFG-FET 的多模式非易失性存储器 (a) 不同 $V_{\rm DS}$ 下的 $I_{\rm D}$ - $V_{\rm CG}$ 曲线; (b) 不同存储 状态下的保持能力; (c), (d) 加在控制栅上的脉冲电压可以使其在不同状态之间进行切换^[52] Fig. 9. Multiple mode non-volatile memory based on WSe₂/h-BN/graphene SFG-FET: (a) $I_{\rm D}$ - $V_{\rm CG}$ curves at different $V_{\rm DS}$; (b) retention performance of the memory; (c) and (d) switching behaviors between different state by alternating the control gate voltage pulse^[52].

5.4 整流存储器

在黑磷/WSe₂ FET 里,通过栅压调控来实现 其逻辑整流功能.同样,非易失性可存储 p-n结也 可以用来发展逻辑整流器件^[52].图10(a)的内插 图为所设计的电路,其中一个1GΩ的电阻用来连 接SFG-FET.由图10(a)可以看出,在不同的控制 栅脉冲电压下,电路展示了不同整流状态下的滤波 功能. 与黑磷/WSe₂ FET 不同, 这一类器件整流状态的维系依赖于半浮栅中所存储的电荷. 也就是说,器件在不同整流状态之间的切换是通过在控制栅上施加相应的脉冲电压完成的(图10(b)). 由于半浮栅的存储功能, 这类器件可以作为整流存储器使用^[52]. 通过调控半浮栅中的存储电荷, 来实现整流状态的存储、擦除与信息读取.



图 10 整流存储器 (a) WSe₂/h-BN/graphene SFG-FET 在不同存储状态下的滤波特性, 插图为整流存储电路示意 图, 该电路利用一个 WSe₂/h-BN/graphene SFG-FET 和一 个 1 G Ω 的电阻串联; (b) 通过调制控制栅脉冲电压, 可以使器 件在不同整流存储状态之间切换 [52]

Fig. 10. Rectifier memory: (a) Filtering characteristics of the WSe₂/h-BN/graphene SFG-FET at different storable states (inset is schematic plan of the rectifier memory circuit, where a 1 G Ω resistor is connected to the SFG-FET); (b) switching behavior of the circuit by alternating the control gate voltage pulse [52].

5.5 光电子存储器

同样,黑磷/WSe₂ FET 中栅极电压控制光电 转换状态的行为也可以拓展到非易失性可存储二 维晶体 p-n结中.通过操纵控制栅的脉冲电压使 器件工作于不同的光电转换状态,从而使其具有 场效应光电子晶体管的功能.由于半浮栅的存在, 器件具有存储功能,因而可以进一步发展其为光 电子存储器^[52].图11(a)为光电子存储器的结构 示意图(可以称之为半浮栅场效应光电子晶体管). 图11(b)与图11(c)为其相关性能.可以看出,通过 操纵控制栅脉冲电压,可以实现器件不同光电转换 状态的存储和切换,使其具有可编程非易失性存储 功能.这类器件有望用于光电子电路中,使其具有 光电子信息的存储、擦写和读取功能.



图 11 光电子存储器 (a) 基于双极性二维晶体 SFG-FET 的光电子(光伏)存储器示意图; (b) WSe₂/h-BN/graphene SFG-FET 光电子存储器光电转换状态在不同控制栅脉冲电压下的保持能力; (c) 通过施加不同的控制栅脉冲电压,可以 使器件在不同的光电转换状态快速切换^[52]

Fig. 11. Optoelectronic memory: (a) Schematic plan of the optoelectronic (photovoltaic) memory based on the ambipolar 2D crystal SFG-FET; (b) retention performance of the WSe₂/h-BN/graphene SFG-FET optoelectronic memory at different control gate voltage pulse; (c) switching behavior between the different optoelectronic conversion states by alternating the control gate voltage pulse ^[52].

5.6 光伏器件

由于 p-n 结内建电场的存在,可以分离开光照产生的光生载流子,从而用于光伏器件.在控制栅脉冲电压作用下,SFG-FET器件可以存储 p-n 结状态,因而可以用于光伏器件.图12为基于 WSe₂/h-BN/graphene SFG-FET 的光伏测试结果^[52].研究结果表明,该器件的开路电压可以达到0.6 V,转化

效率可达4.1%. 事实上,图4所示的p-n结也可以 用于光伏器件,但是光电转换状态的维持需要持续 性的施加栅极电压.由于半浮栅的引入,SFG-FET 结构不需要栅极电压的维持,只需要一次性地施加 一个脉冲电压,显然更有利于其在光伏器件中的使 用.此外,在传统的半导体p-n结中,电荷的产生通 常需要元素掺杂.掺杂元素的引入会破坏半导体晶 体结构,从而影响其物理性能.SFG-FET 通过脉冲 电压的调制,对双极性二维晶体实行电荷掺杂,从 而使其形成p-n结.这种掺杂不会改变半导体的晶 体结构,因而有可能表现出更好的物理性能.



图 12 光伏器件 (a), (b) 基于 WSe₂/h-BN/graphene SFG-FET 器件的光伏性能^[52]

Fig. 12. Photovoltaic devices: (a) and (b) Photovoltaic properties of the WSe₂/h-BN/graphene SFG-FET ^[52].

6 结论与展望

本文首先介绍了双极性二维晶体的基本物理 性能以及范德瓦耳斯异质结的制备方法.通过充分 利用二维晶体组成单元的物理性能,范德瓦耳斯异 质结不仅可以用来构建具有新奇物理特性的新型 人工材料,还可以避免通常结构和器件制备过程中 所需要的复杂工艺和昂贵设备,是一种便捷的构建 新型纳米结构和器件的有效方法.双极性二维晶体不同于传统半导体材料的特殊物理性能,为构建 新型半导体p-n结提供了可能.在此基础上,本文 主要介绍了双极性二维晶体在电场调制二维晶体 p-n结与异质p-n结(场效应p-n结晶体管),非易失 性可存储二维晶体p-n结等方面的应用、相关结构 设计和主要性能特点.p-n结是连接光和电的桥梁, 是半导体最基本的结构之一.基于双极性二维晶体 的新型p-n结为丰富传统p-n结的功能,拓展其应 用领域提供了可能.在此基础上,进一步介绍了双 极性二维晶体新型p-n结在逻辑整流电路、场效应 光电子晶体管、多模式非易失性存储器、整流存储 器、光电子存储器、光伏器件等方面的潜在应用.

基于双极性二维晶体的新型 p-n 结是随着二维 晶体及范德瓦耳斯异质结深入研究发展出来的一 个新的方向,相关器件物理性能,如响应速度等还 需要进一步深入研究.目前来看,在一定时期内, 硅工艺仍将是半导体工业的主力. 双极性二维晶体 不同于传统半导体的特殊物理性能有可能用以弥 补传统半导体器件的不足, 拓展传统半导体器件的 功能和应用领域,为半导体领域的突破性进展提供 了可能,因而具有很好的研究和发展前景.通过对 其结构、电子和光电子性能的深入研究,揭示相关 结构对其物理性能的影响规律, 然后进一步设计制 备相关结构和器件,改善和提高相关物理性能,是 近来急需解决的一个重要问题. 随着研究的逐步开 展,在相关电子和光电子电路的应用也是一个迫切 解决的问题,相关反馈可以为更好地设计制备双极 性二维晶体 p-n结, 改善和提高其物理性能提供方 向. 相关结构和器件的最终应用需要大规模高质量 材料的制备,相信随着制备技术的逐步发展,大规 模制备范德瓦耳斯异质结的工艺会得到突破. 此 外, SFG-FET 的设计为载流子调控提供了一个新 的思路,这种不需要元素掺杂对半导体载流子进行 调控的方法不会破坏半导体的结构和物理性能,有 可能会对相关研究提供帮助.

参考文献

- Ferrari A C, Bonaccorso F, Fal'ko V, Novoselov K S, Roche S, Boggild P, et al. 2015 Nanoscale 7 4598
- [2] Castro Neto A H, Guinea F, Peres N M R, Novoselov K S, Geim A K 2009 *Rev. Mod. Phys.* 81 109
- [3] Radisavljevic B, Radenovic A, Brivio J, Giacometti V, Kis A 2011 Nat. Nano. 6 147

- [4] Novoselov K S, Jiang D, Schedin F, Booth T J, Khotkevich V V, Morozov S V, Geim A K 2005 Proc. Natl. Acad. Sci. USA 102 10451
- [5] Liu H, Neal A T, Zhu Z, Luo Z, Xu X F, Tomanek D, Ye P D D 2014 ACS Nano 8 4033
- [6] Li L, Yu Y, Ye G J, Ge Q, Ou X, Wu H, Feng D, Chen X H, Zhang Y 2014 Nat. Nano. 9 372
- [7] Feng B, Ding Z, Meng S, Yao Y, He X, Cheng P, Chen L, Wu K 2012 *Nano Lett.* **12** 3507
- [8] Tao L, Cinquanta E, Chiappe D, Grazianetti C, Fanciulli M, Dubey M, Molle A, Akinwande D 2015 Nat. Nano. 10 227
- [9] Lü R, Robinson J A, Schaak R E, Sun D, Sun Y, Mallouk T E, Terrones M 2015 Acc. Chem. Res. 48 56
- [10] Xu M, Liang T, Shi M, Chen H 2013 Chem. Rev. 113 3766
- [11] Mas-Balleste R, Gomez-Navarro C, Gomez-Herrero J, Zamora F 2011 Nanoscale 3 20
- [12] Geim A K, Grigorieva I V 2013 Nature 499 419
- [13] Liu Y, Weiss N O, Duan X D, Cheng H C, Huang Y, Duan X F 2016 Nat. Rev. Mater. 1 16042
- [14] Novoselov K S, Mishchenko A, Carvalho A, Castro Neto A H 2016 Science 353 461
- [15] Jariwala D, Marks T J, Hersam M C 2017 Nat. Mater. 16 170
- [16] Haigh S J, Gholinia A, Jalil R, Romani S, Britnell L, Elias D C, Novoselov K S, Ponomarenko L A, Geim A K, Gorbachev R 2012 Nat. Mater. 11 764
- [17] Dean C R, Young A F, Meric I, Lee C, Wang L, Sorgenfrei S, Watanabe K, Taniguchi T, Kim P, Shepard K L, Hone J 2010 Nat. Nano. 5 722
- [18] Mayorov A S, Gorbachev R V, Morozov S V, Britnell L, Jalil R, Ponomarenko L A, Blake P, Novoselov K S, Watanabe K, Taniguchi T, Geim A K 2011 Nano Lett. 11 2396
- [19] Perali A, Neilson D, Hamilton A R 2013 *Phys. Rev. Lett.* 110 146803
- [20] Hong X, Kim J, Shi S F, Zhang Y, Jin C, Sun Y, Tongay S, Wu J, Zhang Y, Wang F 2014 Nat. Nano. 9 682
- [21] Withers F, Del Pozo-Zamudio O, Mishchenko A, Rooney A P, Gholinia A, Watanabe K, Taniguchi T, Haigh S J, Geim A K, Tartakovskii A I, Novoselov K S 2015 Nat. Mater. 14 301
- [22] Deng Y X, Luo Z, Conrad N J, Liu H, Gong Y J, Najmaei S, Ajayan P M, Lou J, Xu X F, Ye P D 2014 ACS Nano 8 8292
- [23] Wang F, Wang Z, Xu K, Wang F, Wang Q, Huang Y, Yin L, He J 2015 Nano Lett. 15 7558
- [24] Lee C H, Lee G H, van der Zande A M, Chen W, Li Y, Han M, et al. 2014 Nat. Nano. 9 676
- [25] Zhang K A, Zhang T N, Cheng G H, Li T X, Wang S X, Wei W, et al. 2016 ACS Nano 10 3852
- [26] Cheng R, Li D, Zhou H, Wang C, Yin A, Jiang S, Liu Y, Chen Y, Huang Y, Duan X 2014 Nano Lett. 14 5590
- [27] Hill H M, Rigosi A F, Rim K T, Flynn G W, Heinz T F 2016 Nano Lett. 16 4831

- [28] Kośmider K, Fernández-Rossier J 2013 Phys. Rev. B 87 075451
- [29] Wang X, Huang L, Peng Y, Huo N, Wu K, Xia C, Wei Z, Tongay S, Li J 2016 Nano Res. 9 507
- [30] Huo N, Kang J, Wei Z, Li S S, Li J, Wei S H 2014 Adv. Func. Mater. 24 7025
- [31] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Zhang Y, Dubonos S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 Science 306 666
- [32] Chuang H J, Tan X B, Ghimire N J, Perera M M, Chamlagain B, Cheng M M C, Yan J Q, Mandrus D, Tomanek D, Zhou Z X 2014 Nano Lett. 14 3594
- [33] Hwang W S, Remskar M, Yan R, Protasenko V, Tahy K, Chae S D, Zhao P, Konar A, Xing H, Seabaugh A, Jena D 2012 Appl. Phys. Lett. 101 013107
- [34] Pradhan N R, Rhodes D, Xin Y, Memaran S, Bhaskaran L, Siddiq M, Hill S, Ajayan P M, Balicas L 2014 ACS Nano 8 7923
- [35] Gong Y, Lin J, Wang X, Shi G, Lei S, Lin Z, et al. 2014 Nat. Mater. 13 1135
- [36] Huang C, Wu S, Sanchez A M, Peters J J P, Beanland R, Ross J S, Rivera P, Yao W, Cobden D H, Xu X 2014 *Nat. Mater.* 13 1096
- [37] Yang W, Chen G, Shi Z, Liu C C, Zhang L, Xie G, et al. 2013 Nat. Mater. 12 792
- [38] Addou R, Dahal A, Batzill M 2013 Nat. Nano. 8 41
- [39] Zhang C, Zhao S, Jin C, Koh A L, Zhou Y, Xu W, Li Q, Xiong Q, Peng H, Liu Z 2015 Nat. Commun. 6 6519
- [40] Castellanos-Gomez A, Buscema M, Molenaar R, Singh V, Janssen L, van der Zant H S J, Steele G A 2014 2D Mater. 1 011002
- [41] Li D, Wang X, Zhang Q, Zou L, Xu X, Zhang Z 2015 Adv. Func. Mater. 25 7360
- [42] Baugher B W H, Churchill H O H, Yang Y, Jarillo-Herrero P 2014 Nat. Nano. 9 262
- [43] Williams J R, DiCarlo L, Marcus C M 2007 Science 317 638
- [44] Lemme M C, Koppens F H L, Falk A L, Rudner M S, Park H, Levitov L S, Marcus C M 2011 Nano Lett. 11 4134
- [45] Pospischil A, Furchi M M, Mueller T 2014 Nat. Nano. 9 257
- [46] Ross J S, Klement P, Jones A M, Ghimire N J, Yan J, Mandrus D G, et al. 2014 Nat. Nano. 9 268
- [47] Buscema M, Groenendijk D J, Steele G A, van der Zant H S J, Castellanos-Gomez A 2014 Nat. Commun. 5 4651
- [48] Zhang Y J, Oka T, Suzuki R, Ye J T, Iwasa Y 2014 Science 344 725
- [49] Groenendijk D J, Buscema M, Steele G A, de Vasconcellos S M, Bratschitsch R, van der Zant H S J, Castellanos-Gomez A 2014 Nano Lett. 14 5846
- [50] Li D, Wang B, Chen M, Zhou J, Zhang Z 2017 Small 13 1603726
- [51] Chen P, Zhang T T, Zhang J, Xiang J, Yu H, Wu S, Lu X, Wang G, Wen F, Liu Z, Yang R, Shi D, Zhang G 2016 Nanoscale 8 3254
- [52] Li D, Chen M, Sun Z, Yu P, Liu Z, Ajayan P M, Zhang Z 2017 Nat. Nano. 12 901

- [53] Jariwala D, Sangwan V K, Wu C C, Prabhumirashi P L, Geier M L, Marks T J, Lauhon L J, Hersam M C 2013 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **110** 18076
- [54] Zhang E Z, Wang W Y, Zhang C, Jin Y B, Zhu G D, Sun Q Q, Zhang D W, Zhou P, Xiu F X 2015 ACS Nano

9 612

- [55] Myung S, Park J, Lee H, Kim K S, Hong S 2010 Adv. Mater. 22 2045
- [56] Bertolazzi S, Krasnozhon D, Kis A 2013 ACS Nano 7 3246

SPECIAL TOPIC — Hybrid silicon/graphene and related materials and devices

Novel p-n junctions based on ambipolar two-dimensional crystals^{*}

Zhang Zeng-Xing[†] Li Dong

(Shanghai Key Laboratory of Special Artificial Microstructure Materials and Technology, School of Physics Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China)

(Received 8 July 2017; revised manuscript received 9 August 2017)

Abstract

Two-dimensional (2D) materials have a unique crystal structure and excellent properties, which renders it possible to be used to construct novel artificial nanostructures and design novel nanodevices, thereby achieving a breakthrough in the semiconductor field. In this review paper, the basic behaviors of the ambipolar 2D crystals and the fabrication method of the van der Waals heterostructures are first introduced. We mainly summarize the applications of the ambipolar 2D crystals for novel electrical-field-tunable 2D p-n junctions and p-n heterojunctions (field-effect p-n heterojunction transistor) and non-volatile storable p-n junctions, and other aspects of the relevant structural design, electronic and optoelectronic properties. Then we further introduce their potential applications of logic rectifiers, field-effect optoelectronic transistors, multi-mode non-volatile memories, rectifier memories, optoelectronic memories, photovoltaics, etc. Finally, we provide an outlook of the future possible studies of this new type of p-n junctions in the relevant fields.

Keywords: two-dimensional crystals, p-n junction, van der Waals heterostructure, electronic and optoelectronic property

PACS: 73.40.Lq, 85.30.-z, 73.63.-b, 85.60.-q

DOI: 10.7498/aps.66.217302

^{*} Project supported by the Natural Science Foundation of Shanghai, China (Grant Nos. 16ZR1439400, 17ZR1447700).

[†] Corresponding author. E-mail: zhangzx@tongji.edu.cn