

基于金属-半导体-金属结构的 Bi_2Te_3 室温高响应率太赫兹探测器

徐新月^{1,2}, 张晓东^{1,4*}, 吴敬², 江林², 吴彩阳^{2,3},
姚娘娟², 曲越^{2,3}, 周炜², 尹一鸣^{2,3}, 黄志明²

(1. 东华大学理学院应用物理系, 上海 201620;

2. 中国科学院上海技术物理研究所 红外物理国家重点实验室, 上海 200083;

3. 中国科学院大学, 北京 100049;

4. 上海智能电子与系统研究所, 上海 201620)

摘要: 基于二维拓扑绝缘体 Bi_2Te_3 材料利用微纳工艺制备了金属-拓扑绝缘体-金属(MTM)结构的太赫兹光电探测器. 器件在 0.022 THz 的响应率可达 2×10^3 A/W, 噪声等效功率(NEP) 低于 7.5×10^{-15} W/Hz^{1/2}, 探测率 D^* 高于 1.62×10^{11} cm · Hz^{1/2}/W; 在 0.166 THz 的响应率可达 281.6 A/W, NEP 低于 5.18×10^{-14} W/Hz^{1/2}, D^* 高于 2.2×10^{10} cm · Hz^{1/2}/W; 在 0.332 THz 的响应率可达 7.74 A/W, NEP 低于 1.75×10^{-12} W/Hz^{1/2}, D^* 高于 6.7×10^8 cm · Hz^{1/2}/W; 同时器件在太赫兹波段具有小的时间常数(7~8 μs). 该项工作突破了传统光子探测的带间跃迁, 实现了可室温工作、高响应率、高速响应以及高灵敏度的太赫兹探测器件.

关键词: 太赫兹探测器; 二维材料; Bi_2Te_3

中图分类号: O511, O782 **文献标识码:** A

High responsivity Bi_2Te_3 -based room temperature terahertz detector based on metal-semiconductor-metal structure

XU Xin-Yue^{1,2}, ZHANG Xiao-Dong^{1,4*}, WU Jing², JIANG Lin², WU Cai-Yang^{2,3},
YAO Niang-juan², QU Yue^{2,3}, ZHOU Wei², YIN Yi-Ming^{2,3}, HUANG Zhi-Ming²

(1. Department of Applied Physics, College of Science, DongHua University, Shanghai 201620, China;

2. State Key Laboratory of Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics,
Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China;

3. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;

4. Shanghai Institute of Intelligent Electronics and Systems, Shanghai 201620, China)

Abstract: In this study, a metal-topological insulator-metal (MTM) structure terahertz photodetector was fabricated based on a two-dimensional topological insulator Bi_2Te_3 material using a micro-nano process. The responsivity of device reaches 2×10^3 A/W at 0.02 THz, the noise equivalent power (NEP) is lower than 7.5×10^{-15} W/Hz^{1/2}, and the detectivity D^* is higher than 1.62×10^{11} cm · Hz^{1/2}/W. The responsivity is up to 281.6 A/W at 0.166 THz, NEP is lower than 5.18×10^{-14} W/Hz^{1/2}, D^* is higher than 2.2×10^{10} cm · Hz^{1/2}/W. The responsivity is up to 7.74 A/W at 0.332 THz, NEP is lower than 1.75×10^{-12} W/Hz^{1/2}, D^* is higher than 6.7×10^8 cm · Hz^{1/2}/W. At the same time, the response time of device is 7~8 μs in the terahertz band. This work breaks through the inter-band transition of traditional photon detection, and realizes terahertz detectors with room temperature operation, high response rate, high speed response and high sensitivity.

收稿日期:2018-12-10, 修回日期:2019-

Received date: 2018-12-10, revised date: 2019-

基金项目: 国家自然科学基金(61625505, 61604160), 上海市自然科学基金(16JC1403400, 17ZR1444100, 17ZR1411500)

Foundation items: Supported by National Natural Science Foundation of China (61571011, 61302148), Natural Science Foundation of Shanghai, China (16JC1403400, 17ZR1444100, 17ZR1411500)

作者简介 (Biography): 徐新月 (1995-), 女, 安徽六安人, 硕士生, 主要研究领域为太赫兹探测器 E-mail: 18817831389@163.com

* 通讯作者 (Corresponding author): E-mail: xdzhang@dhu.edu.cn

Key words: terahertz detector, two-dimensional material, Bi_2Te_3

PACS: 85. 25. Pb, 85. 60. Gz

引言

Bi_2Te_3 属于全新量子物质拓扑绝缘体材料中的一种,它的体材料是有能隙的半导体,但表面是无能隙的狄拉克金属态^[1-4]. 由于其有无能隙的表面态,具有类似于石墨烯的从太赫兹到红外波段宽带光谱响应^[5],使二维半导体材料在太赫兹探测有潜在的应用. 由于在太赫兹波段的光子能量低,材料对入射光子基本不吸收,不能激发材料中的电子从价带跃迁到导带,同时受热噪声的影响,因此很难实现室温高响应率的探测器. 而拓扑绝缘体(TIs)的表面态弥补了半导体材料在这方面的缺陷,当电磁波的光能降低到材料的带隙以下时,TIs 的体态不再能探测入射的光子,这时,TIs 的表面态由于其无带隙可以在入射光子的作用下实现带内跃迁,产生电子-空穴对,从而增加了材料的载流子浓度,改变了材料的电导率,此时可以探测到材料两端的电信号.

THz 辐射的频率范围在 0. 1 ~ 10 THz (3 000 ~ 30 μm)^[6] 内的光谱区域,位于从无线电波到光学的过渡范围,最近该领域的众多突破使太赫兹成为研究的热点. 利用太赫兹探测技术进行的研究现在受到越来越多的关注,太赫兹系统将在各种人类活动中变得越来越重要(例如机场及轨道交通安检,毒品和爆炸检测,气体指纹,成像等等). 如今,太赫兹探测技术在基础科学中也有很多用途,如纳米材料科学和生物化学等. 远红外辐射的光电探测对于从医疗诊断到过程控制和家庭安全的广泛潜在应用具有重要的技术意义^[7]. 太赫兹辐射穿透许多常用的介电材料,同时,它允许通过其特有的分子指纹光谱鉴定有害物质和化合物. 目前商用典型的太赫兹探测器一般基于热敏效应(如热释电探测器, Golay 管,热电元件)或非线性电学响应特性(如肖特基器件)实现探测,这些器件都存在各自的应用局限. 热敏效应器件一般响应速度较慢(10 ~ 400 Hz 调制频率),或需要深低温制冷(4. 2 K)(如超导热电子辐射热测量计)^[8]. 尽管在太赫兹探测器件方面有了大量的研究,仍然鲜少有快速响应时间、高响应率、高灵敏度、低噪声以及可室温工作的太赫兹探测器. 太赫兹探测器在噪声等效功率(NEP),响应度(R_1)和集成潜力等方面需要进一步获得提高. 本论文基于二维拓扑绝缘体 Bi_2Te_3 材料,利用微纳工艺

制备了金属-拓扑绝缘体-金属(MTM)结构的太赫兹探测器,并实现了可室温工作、高响应率、高速响应率以及低噪声等效功率的优异器件性能.

1 样品制备及测试

基于单晶 Bi_2Te_3 晶体,通过机械剥离转移、光刻、电极套刻电极溅射、点焊等工艺,制作出了单元 Bi_2Te_3 室温太赫兹探测器. 器件制备的工艺流程如图 1(a)所示.

图 1(b)为典型器件结构示意图. 采用光学显微镜和原子力显微镜对 Bi_2Te_3 样品表面形貌进行了观测. 光学显微镜主要用来测量器件的材料大致尺寸和器件本身实际尺寸同时对中间图形结构和电极形貌进行观测. AFM 测试可以直接观测器件样品在材料处的形貌和测量材料厚度. 图 1(b)插图为器件光学显微照片. 图 1(c)为器件的 AFM 测试照片,其中 AFM 测试结果表明,材料厚度约为 119 nm.

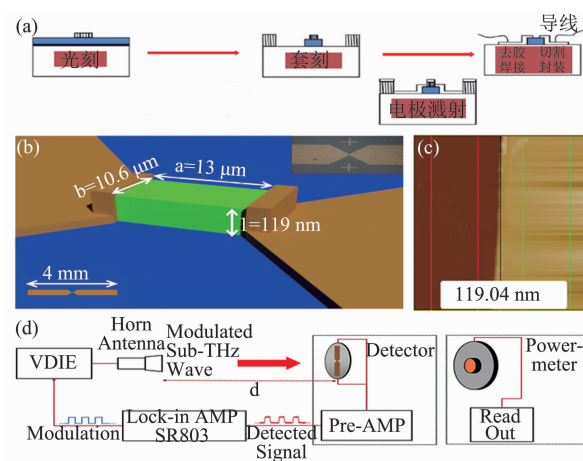


图 1 (a) 器件的工艺流程 (b) 器件结构示意图和光学显微照片(右上) (c) AFM 测试照片 (d) 太赫兹探测测试系统

Fig. 1 (a) Process flow of the device, (b) schematic diagram of the device structure and optical micrograph (top right), (c) AFM test photos, (d) terahertz detection test system

采用如图 1(d)所示的太赫兹探测测试系统,测试了二维 Bi_2Te_3 材料的太赫兹探测器对太赫兹波段的响应. 太赫兹源发射的经过调制的太赫兹光垂直均匀的入射到器件表面,太赫兹源到器件的距离为 30 cm,器件安装在一个测试盒上,太赫兹光被器件检测到之后经过前置放大器进行信号的放大,最

终由锁相放大器读出响应电压信号. 与此同时,我们用光功率计取代器件位置标定太赫兹光的功率密度(0.166 THz 光功率密度为 $P=0.5 \text{ mW/cm}^2$, 0.332 THz 光功率密度 $P=0.9 \text{ mW/cm}^2$).

2 光电性能和分析

首先在低频源 0.02 ~ 0.04 THz 波段范围测试了器件的电压响应,器件的响应率定义如下:

$$R_1 = \frac{I_{\text{ph}}}{P} \quad (1)$$

其中 R_1 代表响应率, I_{ph} (V_{ph}) 表示光照下电流(电压), P 表示入射功率.

噪声等效功率如下:

$$\text{NEP} = \frac{R_n}{R_v \times \sqrt{\Delta\nu}} \quad (2)$$

其中 R_n 是探测器的记录噪声水平, $\Delta\nu$ 是测试带宽.

归一化探测率如下:

$$D^* = \frac{\sqrt{A_d \Delta f}}{\text{NEP}} \quad (3)$$

器件响应时间采用脉冲信号下降至 63% 的时所需要的时间,响应时间可表示为:

$$i_s(t) = i_\infty [1 - \exp(-t/\tau)] \quad (4)$$

当 $i_s(t) = 0.63i_\infty$ 时, $t = \tau$; τ 就是响应时间.

通过式(1)计算出器件的响应率,其响应率如图 2(a)所示,器件在 0.02 ~ 0.04 THz 的波段范围内的最大响应率在 0.022 THz, 为 $2 \times 10^3 \text{ A/W}$. 图 2(b)给出了在 1 kHz 的调制频率下,响应率和偏置电流的关系,可以看出器件的响应率与偏置电流呈线性关系,响应率随着偏置电流的增加而线性增大. 基于金属-半导体-金属亚波长结构,应用了光子能远小于半导体带隙新的光电导机制模型^[9], 此机理突破了传统光子探测机制光子能量必须大于半导体禁带能量使价带跃迁到导带从而改变电导率的局限性.

当外界辐射入射到 MSM 结构上时,半导体材料会诱导产生势阱,在施加偏置电场的情况下,金电极中的电子移动并束缚在势阱中,源自金属触点的电子将被交换到半导体材料中并被捕获在激发势阱(EIW)中,因此材料的电导率随之发生变化,此时可探测到材料两端的电信号. 这一模型打破了传统光电导效应的限制,在未来远红外和太赫兹探测方面具有潜在的应用.

根据我们提出的 EIW 理论^[9],

$$R_1 = \frac{4\varepsilon_0 a \eta I_b \Gamma_e}{\pi^3 q^2 d n c_o \sqrt{\varepsilon_r}} \sqrt{\left(\frac{\pi}{a}\right)^2 - k_0^2} \times \left[1 - \exp(-d \sqrt{\varepsilon_r} \sqrt{\left(\frac{\pi}{a}\right)^2 - k_0^2})\right] \quad (5)$$

其中 ε_0 是真空中介电常数, η 是间隙中的电场增强因子,称之为光学增益, ε_r 是半导体的相对介电常数, a 是宽度间隙距离, d 是检测材料的厚度, k_0 是真空中光的波矢, Γ_e 为光电导增益. 如图 2(b)所示,根据式(5)表明,实验得到的结果与理论一致,响应率与偏置电流成正比.

图 2(c)是器件在 0.022 THz 的源辐射下器件在不同的偏置电流下,随调制频率变化的响应特性. 图中的测试结果表明电压响应信号随调制频率的增大(100 Hz ~ 50 KHz)而下降,拐点在 15 KHz 附近. 同时利用频率下降法估算了低频波段的时间常数. 通过频率下降方法拟合记录的数据:

$$R_1 = \frac{A}{\sqrt{1 + (2\pi\tau f)^2}} + C \quad (6)$$

其中 R_1 是探测器的响应率, f 是调制频率, τ 是时间常数, A 和 C 是无量纲常数. 拟合曲线如图 2(d)所示. 可以看出,在 0.022 THz 探测器的拟合时间常数约为 $(7.2 \pm 0.13) \mu\text{s}$. 同时根据式(6),如图 2(e)所示,实验结果与理论保持一致,响应率与调制频率的平方成反比. 同时根据式(4)我们利用响应波形观测估算了器件在 0.02 ~ 0.04 THz 波段的时间常数. 如图 2(e)所示,在光电导条件下,器件在 0.02 ~ 0.04 THz 波段的时间响应波形图. 时间常数是在电磁波辐射下,器件的光电压从 0% 到 63% 变化的时间. 从图中可以看出,0.022 THz 器件的时间常数约为 $7 \mu\text{s}$,与频率下降法拟合的结果一致. 该器件的时间常数比工作在常温下的热探测器的时间常数要小得多. 这主要是因为单晶材料电子的高迁移率,通常在 $9000 \sim 10000 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ 范围内^[10]. 另外,由于入射光斑面积远大于沟道材料面积,该器件对辐射产生的响应并不是因为热电效应.

等效噪声功率(NEP)和探测率 D^* 作为探测器的重要性能参数用来表征探测器优劣的一种优值因子,NEP 值越小,探测器的性能则越优,我们用示波器记录了器件的噪声水平,则 NEP 可通过式(2)计算得到. 0.022 THz 处器件的最大响应率 $R = 5.3 \times 10^5 \text{ V/W}$, 噪声等效功率 $\text{NEP} = 7.3 \times 10^{-15} \text{ W/Hz}^{1/2}$, 探测率 $D^* = 1.62 \times 10^{11} \text{ cm} \cdot \text{Hz}^{1/2}/\text{W}$, 由此可以看出,该器件在 0.02 ~ 0.04 THz 波段展现了十分优异的性能.

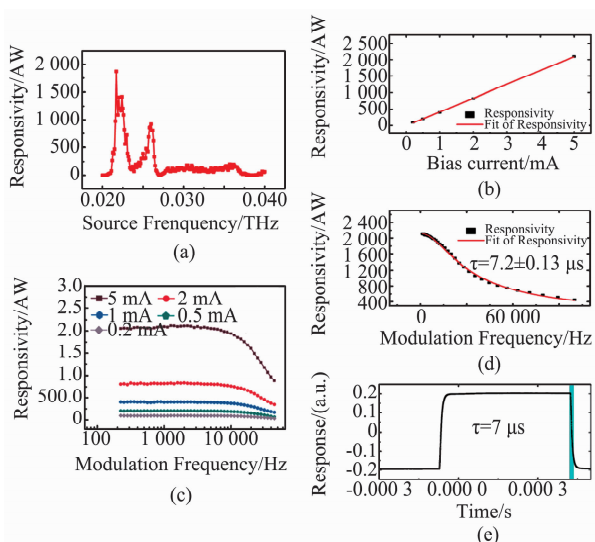


图2 (a) 源频率 0.02 ~ 0.04 THz 波段器件的响应率, (b) 器件在 0.022 THz 照射下 1 kHz 调制频率时响应率和偏置电流的关系, (c) 源频率 0.022 THz 照射下随偏置电流随调制频率变化的响应率, (d) 在 0.022 THz 频率照射下调制频率降法拟合得到的时间常数, (e) 器件对 0.022 THz 源频率的响应波形

Fig.2 (a) Responsivity of the device at 0.02 ~ 0.04 THz, (b) relationship of the device response rate and bias current at 0.022 THz source and 1 kHz modulation frequency, (c) the responsivity with the modulation frequency at different bias currents at a source frequency of 0.022 THz, (d) time constant obtained by modulation frequency drop method at 0.022 THz frequency, (e) response waveform of device to 0.022 THz source frequency

同时测试了器件对亚太赫兹波的电压响应, 所用的是 VDIE 太赫兹源, 波段范围在 0.165 ~ 0.173 THz 和 0.33 ~ 0.346 THz, 通过测试器件对太赫兹波的电压响应, 实验结果如图 3-4 所示. 从图 3(a) 可以看到, 器件在 0.165 ~ 0.173 THz 波段范围内最大响应率在 0.166 THz, 最大响应率 $R = 281.6 \text{ A/W}$, 噪声等效功率 $\text{NEP} = 5.18 \times 10^{-14} \text{ W/Hz}^{1/2}$, 探测率 $D^* = 2.2 \times 10^{10} \text{ cm} \cdot \text{Hz}^{1/2}/\text{W}$. 如图 3(b) 给出了在 1 kHz 的调制频率下响应率随着偏置电流的改变, 可以看出器件的响应率与偏置电流呈线性关系, 响应率随着偏置电流的增加而线性增大, 与 EIW 理论的结果一致. 图 3(c) 是器件在 0.166 THz 的源辐射下器件在不同的偏置电流下, 随调制频率变化的响应特性. 图中的测试结果表明电压响应信号随调制频率的增大 (100 Hz ~ 1.9 kHz) 而下降. 由于在 0.166 THz 和 0.332 THz 的调制时间远大于其时间常数, 因此并未对其进行频率下降法拟合. 同时根据式 (4) 利用响应波形观测估算了器件在 0.165 ~ 0.173 THz 波段的时间常数. 如图 3(d) 所示, 在光电导条件

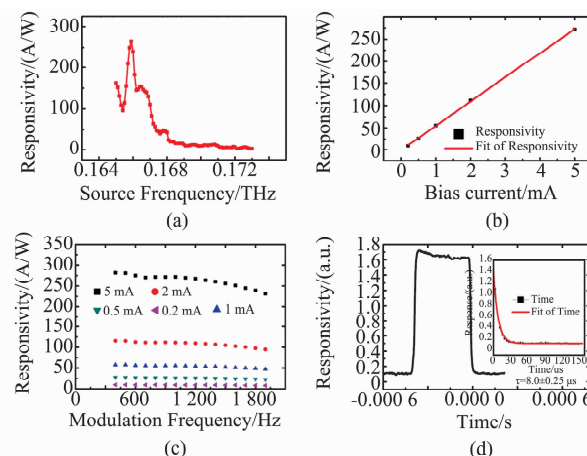


图3 (a) 源频率 0.165 ~ 0.173 THz 波段器件的响应率, (b) 器件在 0.166 THz 照射下 1 kHz 调制频率时响应率和偏置电流的关系, (c) 源频率 0.166 THz 照射下随偏置电流随调制频率变化的响应率, (d) 器件对 0.166 THz 源频率的响应波形

下, 器件在 0.165 ~ 0.173 THz 波段的时间响应波形图. 由于测试系统中源的开关比不稳定, 因此采用对稳定后的波形图进行拟合计算得到器件的时间常数, 如图所示, 0.166 THz 器件的时间常数为 $(8 \pm 0.25) \mu\text{s}$, 与低频波段的时间常数基本一致.

同理, 如图 4(a) 所示, 在 0.33 ~ 0.346 THz 波段范围内的最大响应率在 0.332 THz, 其最大响应率 $R = 7.74 \text{ A/W}$, 噪声等效功率 $\text{NEP} = 1.75 \times 10^{-12} \text{ W/Hz}^{1/2}$, 探测率 $D^* = 6.7 \times 10^8 \text{ cm} \cdot \text{Hz}^{1/2}/\text{W}$. 如图 4(b) 所示可以看出器件的响应率与偏置电流呈线性关系, 响应率随着偏置电流的增加而线性增大, 与 EIW 理论的结果一致. 如图 4(c) 所示, 在 0.33 ~ 0.346 THz 波段内电压响应信号随调制频率的增大 (100 Hz ~ 1.9 kHz) 而下降. 该器件在光电导条件下的响应率高于许多基于二维材料在红外-太赫兹波段的响应率, 高于其中一些石墨烯的太赫兹探测器响应率近两个数量级. 为了确认探测器的响应机制, 估算了探测器的温升以排除热效应. 为此, 忽略了半导体材料的热导, 假设光子能量完全转化为热能, 器件处于热绝缘状态估算了材料温升:

$$\Delta T = \frac{\Delta Q}{mC_p} = \frac{P\Delta t}{mC_p}, \quad (7)$$

其中, m 是材料质量, C_p 是材料的比热容, Δt 是微波源的调制周期, 利用调制频率为 1 kHz 时的响应与

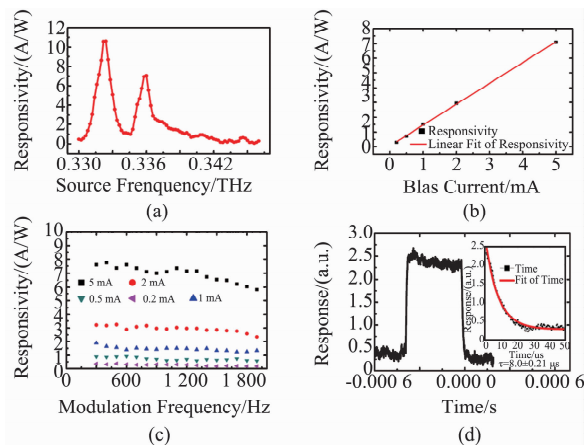


图4 (a) 源频率 0.330 ~ 0.345 THz 波段器件的响应率, (b) 器件在 0.332 THz 照射下 1 kHz 调制频率时响应率和偏置电流的关系, (c) 源频率 0.332 THz 照射下器件随偏置电流随调制频率变化的响应率, (d) 器件对 0.332 THz 源频率的波形响应

Fig. 4 (a) Responsivity of the device at 0.330 ~ 0.345 THz, (b) relationship of the device response rate and bias current at 0.332 THz source and 1 kHz modulation frequency, (c) responsivity with the modulation frequency at different bias currents at a source frequency of 0.332 THz, (d) response waveform of the device at 0.332 THz source frequency

其温升造成的热响应作对比, 调制周期为 1 ms. 查阅 Bi₂Te₃ 材料的电阻温度系数 (TCR), 为 $-0.7\% \text{ K}^{-1}$ [11]. 距离源 15 cm 的能量密度估计为 $11.43 \text{ W} \cdot \text{m}^{-2}$, 因此, 可以得出结论, 如果探测器响应基于热效应, 理想的温升应为 $7.4 \times 10^{-5} \text{ K}$, 造成的热响应大小估计为 $2.59 \times 10^{-9} \text{ V}$. 根据 1 K 调制频率下的响应数据, 测量得到探测器的实际响应为 $8.33 \times 10^{-4} \text{ V}$. 这个实际响应远大于理想热效应导致的器件响应. 因此, 可以得出结论, 此器件确实不属于传统基于带间跃迁的光子探测机制. 器件对太赫兹波的响应可归因于两方面, 一方面是因为 Bi₂Te₃ 材料无带隙的表面态作用; 其次是由于在室温 MTM 结构的光电导效应中, 偏置电流越大, 其电场越大, 更多的载流子将会被束缚于势阱中, 因此材料电导率变化越大. 同时根据式 (4) 利用响应波形观测估算了器件在 0.33 ~ 0.346 THz 波段的时间常数. 如图 4 (d) 所示, 在光电导条件下, 器件在 0.33 ~ 0.346 THz 波段的时间响应波形图. 同 0.166 THz 的源相同, 采取了同样的方法, 0.332 THz 器件的时间常数为 $(8 \pm 0.25) \mu\text{s}$, 与 0.166 THz 的时间常数一致. 对于基于石墨烯的 FET 的情况, 已经报道了噪声等效功率 (NEP) 为 $10 \text{ nW} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ 并且在室温下具有超过 10 V/W 的响应度 (具有 0.3 THz 的源)[12]. 很显然, 本文的器件噪声等效功率和响应率要优于典型

石墨烯 FET 2 ~ 4 个量级. 同时, 典型 THz SBD 和 FET 的探测灵敏度, 分别为 $10^5 \sim 10^6 \text{ cm} \cdot \text{Hz}^{1/2}/\text{W}$ 和 $10^4 \text{ cm} \cdot \text{Hz}^{1/2}/\text{W}$; MTM 器件灵敏度比典型的 THz SBD 和 FET 高 2 ~ 4 个数量级[13-15].

3 结论

报道了二维拓扑绝缘体 Bi₂Te₃ 材料的太赫兹探测器, 采用金属-半导体-金属亚波长结构, 它与 CMOS 技术兼容, 可以单片集成在 Si 上. 测定了器件在 0.02 ~ 0.04 THz、0.16 ~ 0.173 THz、0.33 ~ 0.346 THz 的太赫兹波段范围内器件的响应率, 时间常数, 噪声等效功率和探测率等探测器性能参数. 室温下器件对 0.332 THz 的噪声等效功率 $\text{NEP} = 1.75 \times 10^{-12} \text{ W}/\text{Hz}^{1/2}$, 探测率 $D^* = 6.7 \times 10^8 \text{ cm} \cdot \text{Hz}^{1/2}/\text{W}$. 并且基于 MTM 结构的室温光电导性机制 EIW 理论和拓扑绝缘体材料丰富的表面态性能对器件太赫兹响应机理进行了阐释. 该研究表明 TI (Bi₂Te₃) 太赫兹探测器在未来的太赫兹探测领域具有潜在的应用.

References

- [1] König M, Wiedmann S, Brune C, et al. Quantum spin hall insulator state in HgTe quantum wells [J]. *Science*, 2007, **318**(5851):766-770.
- [2] Zhang X, Wang J, Zhang S C. Topological insulators for high performance terahertz to infrared applications [J]. *Physical Review B Condensed Matter*, 2011, **82**(82):4196-4205.
- [3] Yuan H, Liu H, Shimotani H, et al. Liquid-gated ambipolar transport in ultrathin films of a topological insulator Bi₂Te₃ [J]. *Nano Letters*, 2011, **11**(7):2601-5.
- [4] Yan Y, Liao Z M, Ke X, et al. Topological surface state enhanced photothermoelectric effect in Bi₂Se₃ nanoribbons [J]. *Nano letters*, 2014, **14**(8):4389-4394.
- [5] Mciver J W, Hsieh D, Steinberg H, et al. Control over topological insulator photocurrents with light polarization. [J]. *Nature Nanotechnology*, 2011, **7**(2):96-100.
- [6] Chattopadhyay G. Submillimeter-Wave coherent and incoherent sensors for space applications [J]. *Lecture Notes Electrical Engineering*, 2008, **21**:387-414.
- [7] Sizov F, Rogalski A. THz detectors [J]. *Progress in Quantum Electronics*, 2010, **34**(5):278-347.
- [8] Rostami A, Rasooli H, Baghban H. *Terahertz and infrared quantum photodetectors* [M]. Terahertz Technology. Springer Berlin Heidelberg, 2011.
- [9] Huang Z, Zhou W, Tong J, et al. Terahertz detection: Extreme sensitivity of room-temperature photoelectric effect for terahertz detection (Adv. Mater. 1/2016) [J]. *Advanced Materials*, 2016, **28**(1):111.
- [10] Huo C, Yan Z, Song X, et al. 2D materials via liquid exfoliation: a review on fabrication and applications [J]. *Science Bulletin*, 2015, **60**(23):1994-2008.

(下转第 472 页)