

FEL 诱导半导体材料非线性光吸收^{*}

江 俊¹⁾ 李 宁¹⁾ 陈贵宾¹⁾ 陆 卫¹⁾ 王明凯²⁾ 杨学平²⁾ 吴 刚²⁾
范耀辉²⁾ 李永贵²⁾ 袁先漳³⁾

¹⁾ (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)

²⁾ (中国科学院高能物理研究所自由电子激光实验室, 北京 100080)

³⁾ (温州师范学院物理与电子信息科学系, 温州 325027)

(2002 年 9 月 26 日收到, 2002 年 10 月 31 日收到修改稿)

应用北京自由电子激光 (BFEL) 对典型的红外光电子材料 $Hg_{1-x}Cd_xTe$, $InSb$ 和 $InAs$ 进行了非线性光吸收研究. 利用 FEL 的高光子密度和皮秒量级的短脉冲宽度特性, 研究了双光子吸收 (TPA) 以及光生载流子吸收 (FCA) 共同作用机理, 从实验上直接证实了在强入射能量下, FCA 是不可忽略的光吸收过程, 提取了精确的自由载流子吸收截面参数.

关键词: FEL, 双光子吸收, 光生载流子吸收, 吸收截面, 载流子寿命

PACC: 4255J, 4265, 7720J

1. 引 言

不论是红外光电子材料应用方面的需要, 还是出于基础物理研究的兴趣, $Hg_{1-x}Cd_xTe$, $InSb$ 和 $InAs$ 的非线性光学性质都显得十分重要. 事实上, 双光子吸收 (TPA) 作为一种最为常见的非线性过程, 是光学通讯和信息处理中的重要物理基础, 而其诱导的材料透射特性的变化是人们对其非线性性质研究的重要实验切入点, 因此已经有大量的实验和理论研究工作^[1-10], 其中也对 TPA 的饱和现象进行了系统的研究. 但是, 由于缺乏高功率可调谐的红外波段的激光光源, 对窄禁带半导体材料 $Hg_{1-x}Cd_xTe$, $InSb$ 和 $InAs$ 等中的光吸收机理的研究还需进一步完善. 尽管存在不同的理论模型, 如何将单光子吸收 (OPA), TPA 以及自由载流子吸收 (FCA) 的贡献有效地区分开依然未得到解决, 从而导致了双光子吸收的饱和过程的研究以及双光子吸收系数的获得依然难以以高精度提取.

通过应用中国科学院北京高能物理所研制的中红外波段的自由电子激光, 我们研究了半导体材料 $Hg_{1-x}Cd_xTe$, $InSb$ 和 $InAs$ 的非线性光吸收现象, 并期

望具体地检验已有的理论模型. 现有的理论表明, 在入射光强度足够大时, TPA 会产生材料中的电子与空穴对, 而这些自由载流子会吸收入射光, 这一吸收 (FCA) 与光强的三次方成正比. 但至今为止人们主要是对透过能量随入射能量变化而变化的一条渐变的实验曲线的解释上证实考虑到了 FCA 的机理, 理论与实验符合较好^[2]. 考虑到在这一实验过程中存在着光脉冲的空间与时间上分布的复杂性, 对实验结果的影响和其他高阶非线性项对实验结果的贡献使得 FCA 机理在实验中难以定量, 有多少直接贡献还没有一个实验上的直接结果. 本文将从实验结果提取出电子、空穴浓度变化对 FCA 的影响因素, 从而直接观察 FCA 的贡献.

2. 实验结果

实验所用的透射样品为 $InSb$, $InAs$ 和 $x = 0.25$ 的 $Hg_{1-x}Cd_xTe$ 三种材料. 其中样品的电学参数均列于表 1, 参量的测量温度为 300K. 其中 $Hg_{0.75}Cd_{0.25}Te$ 和 $InSb$ 都是体材料, 而 $InAs$ 是生长在 $GaAs$ 衬底上的薄膜材料. 为了更好地分析这些材料的非线性特性, 我们首先测量了样品的单光子透射光谱, 具体在

* 中国科学院预研项目资助的课题.

IFS-113V 型 Fourier 红外光谱仪上进行了测量,光谱分辨率 4cm^{-1} . 从样品 $\text{Hg}_{0.75}\text{Cd}_{0.25}\text{Te}$, InSb 的透射光谱可以看到对于 $\text{Hg}_{0.75}\text{Cd}_{0.25}\text{Te}$ 样品,当入射光波长大于 $5\mu\text{m}$ 时吸收非常小,小于 $5\mu\text{m}$ 时则变得很强,所以对于我们实验上将应用的波长 $8.95\mu\text{m}$ 和 $9.764\mu\text{m}$ 下, $\text{Hg}_{0.75}\text{Cd}_{0.25}\text{Te}$ 材料中可认为已不存在单光子吸收,这一点也可以从 $\text{Hg}_{0.75}\text{Cd}_{0.25}\text{Te}$ 材料禁带宽度 $E_g = 0.214\text{eV}$ 得到证明. 同样,禁带宽度 $E_g = 0.172\text{eV}$ 的 InSb 材料在 $8.95\mu\text{m}$ 和 $9.764\mu\text{m}$ 下也不会存在单光子吸收,其单光子强响应波段为低于 $7.5\mu\text{m}$ 波段. 对于 InAs 薄膜材料,由于 InAs 材料厚度为亚微米,在透射光谱中已难分辨其禁带间跃迁吸收,而它的衬底材料 GaAs 在所研究的 FEL 激光波长处也是无单光子吸收的.

表 1 样品的电学参数

样品	掺杂类型	载流子浓度/ cm^{-3}	迁移率($\text{cm}^2/\text{V}\cdot\text{s}$)	厚度/ cm
$\text{Hg}_{0.75}\text{Cd}_{0.25}\text{Te}$	n	3.0×10^{14}	7.5×10^5	0.074
InSb	n	1.0×10^{14}	7.5×10^5	0.098
InAs	n	4.6×10^{12}	6036	衬底 0.056 膜 0.5×10^4

北京自由电子激光(BFEL)激光波长在 $7\text{--}25\mu\text{m}$ 范围可调,宏脉冲宽度典型值为 $2\text{--}4\mu\text{s}$,频率 3Hz . 每个宏脉冲包含 $5000\text{--}10000$ 个宽度为 4ps ,周期为 350ps 的超快微脉冲. 宏脉冲功率密度最高可达 $20\text{MW}/\text{cm}^2$,微脉冲功率密度则可达到 $2\text{GW}/\text{cm}^2$. 激光光束中同时含有基波与谐波分量,其中的高次谐波分量的功率密度小于基波的 10^{-6} . 由于具有高激发强度、波长连续可调、光束质量好、激光效率高以及脉宽窄的优点,十分有利于观测光学损伤阈值较低的窄禁带半导体非线性吸收特性. 而且,由于微脉冲周期远大于其脉宽,同时宏脉冲周期远大于宏脉冲的脉宽,从而可以忽略热效应的积累.

FEL 透射实验的光路示意图如图 1 所示,从 FEL 谐振腔输出的激光被引导到光学平台,经 KBr 分束片分为透射和反射两束光,反射光被 RJ-7620 型能量辐射计探头 B 收集,透射光则直接照射样品,透射光斑直径为 0.2mm . 经过样品后的透射光束与反射光束同步地分别被 RJ-7620 型能量辐射计探头 A 和 B 所接收. 通过应用实验前测定好的特定波长下稳定的分束的透射光强与反射光强比值,可以得到同步照射到样品上的宏脉冲能量及其透射样品后的能量,从而获得透射率的实验数据. 同时,通过

采用滤光片可以滤除谐波干扰,而利用衰减光阑可以调节入射激光强弱,能量计采集到的激光功率信号送入计算机记录. 注意到衰减光阑被置于 FEL 聚焦光路之前,因此衰减光阑的调节不会改变照射光斑的大小.

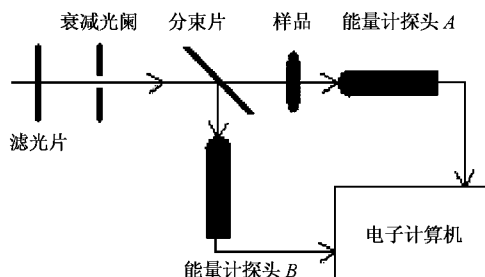


图 1 FEL 透射实验光路示意图,滤光片为滤除小于 $8\mu\text{m}$ 的 FEL 的高通滤光片,调节衰减光阑开口大小可控制入射光强,分束片为 KBr

在本文实验工作中,我们应用的 FEL 波长 λ_p 分别为 $8.95\mu\text{m}$ 和 $9.764\mu\text{m}$,对应 $\text{Hg}_{0.75}\text{Cd}_{0.25}\text{Te}$ 和 InSb 样品的能带结构,有 $E_g/2 < \hbar c/\lambda_p < E_g$,可见,在高能入射下,双光子吸收是完全可能的,这一点也被我们的实验结果所证明. 如图 2(a)(b)所示分别为 $8.95\mu\text{m}$ 和 $9.764\mu\text{m}$ 波长的 FEL 入射到 InSb 样品上的透射光功率随入射光强度变化结果,其中圆点表示纯基波情况下的实验测量结果. 同样图 3 和图 4 给出了 $\text{Hg}_{0.75}\text{Cd}_{0.25}\text{Te}$ 与 InAs 样品的结果,从图 2(a)和(b)中可见,随着入射光强的增大,出射光能量呈线性增大,然后进入亚线性增大,最后达到一恒定值,表现出一种典型的非线性吸收行为,与已有的文献报道相同^[1,2]. 在 FEL 入射 $\text{Hg}_{0.75}\text{Cd}_{0.25}\text{Te}$ 材料实验中也观察到了类似的结果,具体如图 3 所示,从图 4 可看到其变化规律与图 2 和图 3 不相似,在图 4 中仅表现出一种线性过程. 这主要是由于 InAs 样品的厚度仅为 $0.5\mu\text{m}$,这远小于图 2 和图 3 中的体材料样品的厚度,所以它的非线性变化特性难以被观察到,即透射曲线表现出来的实验上是 GaAs 衬底的吸收. 具体的定量分析在下文给出.

3. 理论分析

若 FEL 激光以光强 I 沿 z 方向正入射厚度为 d 的材料上,其光强沿 z 方向衰减可以表达为

$$dI = -kI \quad (z = 0),$$

$$dI = -\beta I^2 \cdot dz - ((p_0 + \Delta N)\sigma_p,$$

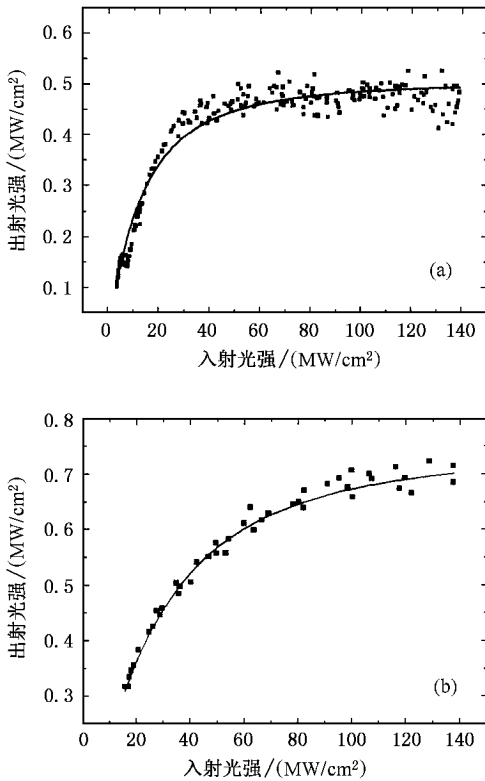


图 2 (a) 室温下波长 $8.95\mu\text{m}$ FEL 辐照样品 InSb 的透射光强随入射光强变化关系 (b) 室温下波长 $9.764\mu\text{m}$ 的 FEL 辐照样品 InSb 的透射光强随入射光强变化关系(圆点为纯 FEL 入射, 实线为理论计算拟合曲线)

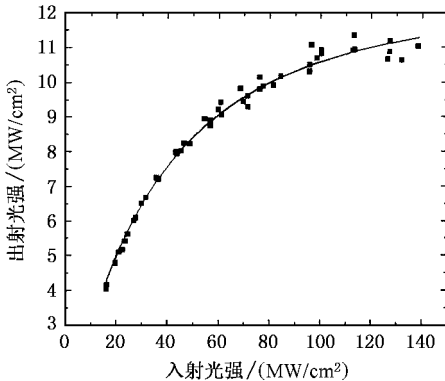


图 3 室温下波长 $9.764\mu\text{m}$ FEL 辐照样品 $\text{Hg}_{0.75}\text{Cd}_{0.25}\text{Te}$ 的透射光强随入射光强变化关系(圆点为纯 FEL 入射, 实线为理论计算拟合曲线)

$$+(n_0 + \Delta N)\sigma_n)I \cdot dz \quad (z > 0), \quad (1)$$

其中 β 为基波的双光子吸收系数; p_0 和 n_0 分别为晶体平衡态电子和空穴数目; σ_p 和 σ_n 表示电子和空穴的吸收截面; ΔN 是 OPA 和 TPA 诱导跃迁产生的电子-空穴对数目, 注意到 ΔN 是时间和空间的函

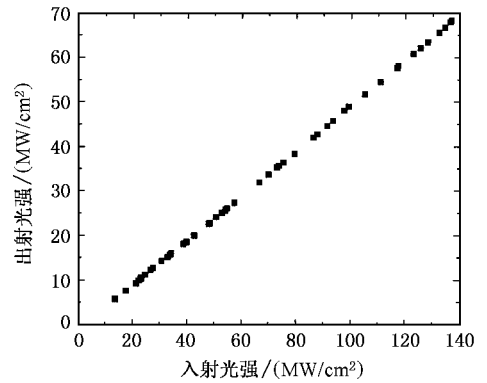


图 4 室温下波长 $9.764\mu\text{m}$ 的 FEL 辐照样品 InAs 的透射光强随入射光强变化关系

数, 它依赖于 FEL 光斑的空间分布和光脉冲的时间分布; k 表示反射系数, 由于 k 主要取决于材料的折射率和表面平整度, 可以认为仅作用于样品表面, 因此我们在光强衰减中可以先减去反射损耗, 从而只需考虑 $z > 0$ 的情况。

Danishevskii^[3]和 Gibson^[11]曾指出, 由于光生载流子的复合时间相对入射激光持续时间不可忽略, InSb 材料在高光强 $10\mu\text{m}$ 的 CO_2 激光入射下, 双光子吸收产生的光生载流子的吸收主导了吸收过程。同样, 可预期在更高强度的 FEL 对 $\text{Hg}_{0.75}\text{Cd}_{0.25}\text{Te}$, InSb 和 InAs 透射中也存在着这一现象。要注意的是光生载流子数目还决定于载流子的产生和复合速率, 一般来讲, 在常温高激发态下, 俄歇散射主导了载流子复合过程^[12,13], 因此可将 ΔN 表达为

$$\frac{d(\Delta N)}{dt} = \frac{\beta I^2}{2\hbar\omega} - r\Delta N, \quad (2)$$

其中 r 表示复合系数, 其本身也依赖于 ΔN 的变化, $\hbar\omega$ 代表光子能量。由于 FEL 脉宽为 4ps, 远小于所用材料中俄歇复合时间(ns 量级)^[14]。然而, 由于 FEL 周期为 350ps, 很明显上一微脉冲产生的光生载流子会有残余累计到下一微脉冲并消耗其光子, 那么经过很多个微脉冲后, 这一产生与复合过程将会达到一个动态平衡, 此时便可以忽略 r 对 ΔN 的依赖, 同时在这一平衡态下的 ΔN_n 有

$$\int_0^{t_p} \frac{\beta I^2}{2\hbar\omega} dt - r_0 \Delta N_n = 0, \quad (3)$$

其中 r_0 是平衡态下一个微脉冲周期内的载流子复合率, t_p 为微脉冲脉宽, 而且, 从累加统计的角度出发, 我们可以计算出 ΔN_n 为

$$\Delta N_n = \frac{1 - (1 - r_0)^{t_p}}{r_0} \cdot \int_0^{t_p} \frac{\beta I^2}{2\hbar\omega} dt. \quad (4)$$

将(4)式再代入(3)式,有

$$1 - (1 - r_0)^n = 1. \quad (5)$$

由于 r_0 远小于 1, 而微脉冲累计次数足够大, 可知 r_0 是不依赖于入射光强而变化的常数. 考虑到应用的 FEL 辐照为方波脉冲, 有

$$\Delta N_n = \frac{\beta I^2 t_p}{2r_0 \hbar \omega}. \quad (6)$$

这样, 进一步认为一个宏脉冲内的大部分微脉冲是处于 ΔN 的平衡态条件下的, 从而忽略宏脉冲中开始部分微脉冲由于不处在平衡态而引起的光传输行为区别导致的对整个宏脉冲最终光传输特性的影响, 可以将(6)式代入透射光强衰减公式(1)中, 可以得到

$$dI/dz = -(p_0 \sigma_p + n_0 \sigma_n)I - \beta I^2 - \frac{\chi(\sigma_p + \sigma_n)I^3 t_p}{2r_0 \hbar \omega}, \quad (7)$$

同时, 由于被 FEL 激发而跃迁的电子的热弛豫时间为 fs 量级, 远小于微脉冲宽度, 因此可认为热弛豫的时间忽略不计. 这样对(7)式整理后有出射光强为

$$I = \int_0^d (I - a_1 I - a_2 I^2 - a_3 I^3) dz, \quad (8)$$

$$I_{(z=0)} = I_0,$$

其中 d 为样品的厚度, I_0 为入射光强, $a_1 = (p_0 \sigma_p + n_0 \sigma_n)$, 它表征着本征载流子吸收导致的损耗, 由于材料中空穴的吸收截面 σ_p 远大于电子的吸收截面 $\sigma_n^{[2]}$, 同时我们有目的地选取 n 型的半导体材料进行实验, 可以认为 a_1 项非常微弱, 因此我们将之近似为 0, $a_2 = \beta$, 它表征着双光子吸收 (TPA) 损耗, $a_3 = \chi(\sigma_p + \sigma_n)t_p/2r_0 \hbar \omega$, 它表征着双光子吸收导致的自由载流子对入射光吸收的损耗.

考虑到我们的实验测量主要是观察宏脉冲的透射光强随入射光强的变化, 并且着重关注自由载流子吸收行为对这种变化规律整体上的影响, 所以可以忽略 FEL 脉冲的空间与时间上的分布, 近似地认为在光斑上的空间分布是均匀的, 在时间分布上也认为是一个方形光脉冲. 这样可以根据(8)式通过数值计算获得样品的透射行为. 采用递推方法可以方便地求出出射光强, 其递推公式为

$$I_{i+1} = I_i - (a_1 I_i + a_2 I_i^2 + a_3 I_i^3) \delta z$$

$$\left/ \left(1 + \left(\frac{a_1}{2} + a_2 I_i + \frac{3}{2} a_3 I_i^2 \right) \delta z \right) \right., \quad (9)$$

其中 δz 是将样品进行细分的单元厚度; I_0 为入射光强; I_n 为入射光强, 其中 $n = d/\delta z$. 确定计算方法

后, 首先对在 Fourier 红外光谱仪上测量的单光子透射光谱图进行了参数提取, 由于此时不存在着 TPA 和 FCA 过程, 可以认为 a_2 和 a_3 参数都为零, 由此可以精确地获取 k 参数, 如表 2 所示. 忽略 k 对光强的依赖, 将 k 参数在代入 FEL 辐照下的透射方程中, 根据(9)式拟合出的 I_n 相对 I_0 的变化如图 2 和图 3 的实线所示. 而若忽略 FCA 过程对入射光的吸收, 也就是近似 a_3 为 0, 将无法获得与实验结果符合的拟合曲线, 这就验证了 FCA 过程对光吸收的影响. 表 2 给出了对图 2 和图 3 中实验曲线进行拟合计算获得的参量 a_2 和 a_3 , 从拟合结果看, 实验结果与前面的理论计算是一致的. 由于在纯 FEL 入射下 $a_2 = \beta$, 所以得到的 InSb 材料的 β 值与相关文献测得值 $\beta_{\text{InSb}} = 8 \text{ cm/MW}^{[13,15,16]}, 14 \text{ cm/MW}^{[17]}, 15 \pm 2 \text{ cm/MW}^{[18]}$ 符合得很好.

Berryman 的理论计算^[2]指出, 随着入射光波长的减小, 其双光子吸收系数将增大, 这一点也由表 2 中 InSb 和 $\text{Hg}_{0.75}\text{Cd}_{0.25}\text{Te}$ 材料的不同波长下的 β 值给出了验证. 同时, 利用已有文献报道的光生载流子寿命, $\tau_{\text{MCT}} = 40 \text{ ns}^{[15]}$ 和 $\tau_{\text{InSb}} = 20 \text{ ns}^{[3]}$, 可以估算出在一个微脉冲周期内的复合系数 r_0 . 将 r_0 代入所获得的 a_3 和 a_4 值中, 计算出自由载流子的吸收截面 $\sigma_p + \sigma_n$, 由于材料中空穴的吸收截面 σ_p 远大于电子的吸收截面 $\sigma_n^{[2]}$, 所以可以忽略 a_2 中的因子 σ_n , 对应的 σ_p 值如表 2 所示. 我们计算所得的 InSb 材料的 σ_p 与 Fan^[19]提供的 $\sigma_p = 2.3 \times 10^{17} \text{ cm}^2$ 在误差范围内是一致的. 同样我们也获得了 $\text{Hg}_{0.75}\text{Cd}_{0.25}\text{Te}$ 材料的自由载流子吸收截面约为 $\sigma_p = 1.4 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$. 对于 InAs 材料, 由于薄膜厚度 d 仅为 $0.5 \mu\text{m}$, 采用(8)式计算可得由于 d 太小, 非线性效应难以体现, 所以在拟合中仅可以较好地确定参量 a_1 , 而 a_2 和 a_3 已不能从实验值中提取, 正是由于非线性效应已无法体现, 所以在拟合中由谐波诱导的非线性效应变化也无法体现.

表 2 拟合参量 a_1, a_2 和 a_3

样品	波长/ μm	k/cm^{-1}	$a_2(\text{cm/MW})$	$a_3(\text{cm}^3/\text{MW}^2)$	$\sigma_p/10^{-17} \text{ cm}^2$
MCT	8.95	0.625	0.795	0.012	0.148
MCT	9.764	0.651	0.703	0.0105	0.134
InSb	8.95	0.96275	13.923	4.21	5.935
InSb	9.764	0.97275	8.195	2.701	5.930

4. 结 论

通过测量一系列半导体样品在不同波长下 FEL 入射的吸收,研究了非线性吸收在不同光强下的变

化,提取了 TPA 过程的吸收系数,观察到了由空穴吸收引起的明显非线性效应,并精确提取了 InSb 和 $\text{Hg}_{0.75}\text{Cd}_{0.25}\text{Te}$ 材料的空穴散射截面参量 σ_p . 从实验上直接验证了自由载流子非线性效应上是不可忽略的.

- [1] Lami J F *et al* 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 1632
- [2] Berryman K W *et al* 1997 *Phys. Rev. B* **55** 7148
- [3] Gibson A F *et al* 1976 *J. Phys. C* **9** 3259
- [4] He L S, Jiang H H and Xia Y X 1991 *Acta Phys. Sin.* **40** 718 (in Chinese) [何林生、江海河、夏宇兴 1991 物理学报 **40** 718]
- [5] Jiang H H and He L S 1991 *Acta Phys. Sin.* **42** 8 (in Chinese) [江海河、何林生 1991 物理学报 **42** 8]
- [6] Yu B L, Pu H J and Wu X C 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 320 (in Chinese) [余保龙、卜宏建、吴晓春等 1999 物理学报 **48** 320]
- [7] Liu C H, Chen C Y and Ma B K 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2022 (in Chinese) [刘翠红、陈传誉、马本坤 2002 物理学报 **51** 2022]
- [8] Wang Y Y, Si J H and Yang Q G *et al* 1997 *Acta Phys. Sin.* **6** 504
- [9] Xin L 2000 *Chin. Phys.* **9** 910
- [10] Lin C, Zhang X L 2001 *Chin. Phys.* **10** 307
- [11] Anishevskii A M, Patrino A A, Ryvkin S M and Yaroshetskii I P 1969 *Sov. Phys. JETP* **29** 781
- [12] Beattie A R *et al* 1959 *Proc. Phys. Soc.* **16**, 29 A 249
- [13] Johnston A M *et al* 1980 *Phys. Rev. B* **22** 825
- [14] Murrin B N *et al* 1993 *Optical and Quantum Electronics* **25** 171
- [15] Miller A *et al* 1979 *J. Phys. C* **12** 4839
- [16] Holah G D, Dempsey J and Johnston A 1979 *Inst. Phys. Conf. Ser.* **43** 505
- [17] Holah G D *et al* 1978 *Physics of Semiconductors: Inst. Phys. Conf. Ser.* **43** 505
- [18] Doviak J M *et al* 1973 *J. Phys. C: Solid St. Phys.* **6** 593
- [19] Fan H Y 1967 *Semiconductors and Semimetals* Ed R. K. Willardson and A. C. Beer (Academic Press) 3 409
- [20] Vaidya Nathan *et al* 1985 *J. Opt. Soc. Am. B* **2** 294
- [21] Kurnick S W and Powell J M 1959 *Phys. Rev.* **116** 597
- [22] Lee C C and Fan H Y 1972 *Appl. Phys. Lett.* **20** 18
- [23] Yuan X Z, Lu W, Jiang J 2001 *Science in China A* **31** 939 (in Chinese) [袁先漳、陆卫、江俊 2001 中国科学(A 辑) **31** 939]

Free-electron laser induced nonlinear optical absorption in semiconductors *

Jiang Jun²⁾ Li Ning¹⁾ Chen Gui-Bin¹⁾ Lu Wei¹⁾ Wang Ming-Kai²⁾ Yang Xue-Ping²⁾
Wu Gang²⁾ Fan Yao-Hui²⁾ Li Yong-Gui²⁾ Yuan Xian-Zhang³⁾

¹⁾ National Laboratory for Infrared Physics, Shanghai Institute of Technical Physics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200083, China)

²⁾ Free Electron Laser Laboratory, Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

³⁾ Department of Physics and Electronic Information Science, Wenzhou Normal College, Wenzhou 325027, China)

(Received 26 September 2002 ; revised manuscript received 31 October 2002)

Abstract

Using a free-electron laser source, we have studied the nonlinear absorption in InSb, $\text{Hg}_{1-x}\text{Cd}_x\text{Te}$ and InAs semiconductors. By measuring the transmission, two-photon-absorption (TPA) has been investigated as a function of the input power. In two cases, a distinct saturation of TPA coefficients has been observed. Using an extension of these methods, we demonstrated that the reduced transmission at high intensities is primarily due to free-carrier-absorption (FCA) of the electrons and holes generated by TPA, not directly due to the TPA process. Furthermore, by careful calculation, we have extracted the convincing cross section of FCA.

Keywords : FEL, two-photon-absorption, free-carrier-absorption, cross section, lifetime of carriers

PACC : 4255J, 4265, 7720J

* Project supported by the Research Foundation of the Chinese Academy of Sciences.