

CH₄ 分子 ν_1 模拉曼诱导克尔效应谱与受激拉曼光声光谱峰形的比较*

喻远琴 周晓国 林 柯 戴静华 刘世林† 马兴孝

(合肥微尺度物质科学国家实验室(筹), 中国科学技术大学化学物理系, 合肥 230026)

(2005 年 10 月 22 日收到, 2005 年 11 月 15 日收到修改稿)

以气相甲烷分子 ν_1 模 Q 支的拉曼光谱为例, 采用拉曼诱导克尔效应谱(RIKES)进行峰形测量, 并将其与同时测量的受激拉曼光声光谱(PARS)的峰形进行了比较. 结果表明, 在 pump 光和 Stokes 光均为线偏振的情况下, 两者存在着差异, 在拉曼共振峰的低频端, RIKES 谱强度略高, 而高频端则恰好相反. 从信号产生机制出发, 对此进行了合理解释.

关键词: 拉曼诱导克尔效应谱, 受激拉曼光声光谱, 峰形

PACC: 4265C, 4265M, 3270

1. 引 言

自激光问世以来, 拉曼光谱方法取得了长足的发展. 以激光为抽运光, 可大大增加拉曼光谱的强度. 不仅如此, 由于激光的引入, 还诞生了许多新的拉曼谱实验方法, 如受激拉曼增益光谱(SRGS)^[1-3], 受激拉曼光声光谱(PARS)^[4], 相干反斯托克斯拉曼光谱(CARS)^[5], 拉曼诱导克尔效应谱(RIKES)技术^[6,7]等, 它们或者基于分子的拉曼散射, 或者基于拉曼共振增强的四波混频.

拉曼诱导克尔效应(RIKE)是一种特殊的四波混频事件. Heiman 和 Levenson 等详细报道了将 RIKE 技术用于拉曼谱测量的工作, 并对 RIKES 原理作了阐述^[6]. 同 SRGS 测量相比, RIKES 测量的是与 Stokes 光偏振方向垂直的光信号, 因而可藉助于检偏器将 Stokes 光的本底几乎完全消除, 使信噪比大为提高.

PARS 光谱也是一项十分灵敏的技术. 在该技术中, 光声信号来自分子能级的拉曼激发, 激发粒子因碰撞弛豫而释放出平动能并引起局部温度的增加, 产生声信号, 其强度比例于拉曼激发粒子的数目. 在弱激发条件下, 激发粒子数比例于拉曼激发事件的概率, 也就比例于自发拉曼散射截面的大小, 故受激

拉曼光声光谱的峰形与自发拉曼峰形一致. 相对而言, RIKES 信号是来源于粒子三阶非线性极化率引起的拉曼共振四波混频, 在这个过程中, 粒子并没有发生真实的拉曼跃迁. 因此, 将两种技术所得的拉曼峰形作一比较应是一件有趣的事情, 这是本文的主旨.

2. RIKES 原理

Heiman 和 Levenson 等人已在文献[6]中对 RIKES 原理有所阐述. 为了下面讨论的方便, 此处作一简要回顾并分析若干我们感兴趣的问题和心得.

在各向同性介质(如气相)中, 三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 中 81 个张量元 $\chi_{ijkl}^{(3)}$ 只有 21 个不恒为 0^[8]

$$\chi_{iii}^{(3)} = \chi_{1111}^{(3)}, \quad i = 1, 2, 3, \quad (1)$$

$$\chi_{ijj}^{(3)} = \chi_{1122}^{(3)}, \quad i, j = 1, 2, 3, \quad j \neq i, \quad (2)$$

$$\chi_{iji}^{(3)} = \chi_{1221}^{(3)}, \quad i, j = 1, 2, 3, \quad j \neq i, \quad (3)$$

$$\chi_{ijj}^{(3)} = \chi_{1212}^{(3)}, \quad i, j = 1, 2, 3, \quad j \neq i, \quad (4)$$

$$\chi_{1111}^{(3)} = \chi_{1122}^{(3)} + \chi_{1221}^{(3)} + \chi_{1212}^{(3)}. \quad (5)$$

由此出发不难得到, 在电矢量分别为 E_a , E_b 和 E_c 的光场(强度分别为 I_a , I_b 和 I_c)作用下, 极化强度(密度)矢量

* 国家自然科学基金(批准号 20533070)资助的课题.

† 通讯联系人 E-mail: sl Liu@ustc.edu.cn

$$P(\omega) = \chi_{1122}^{(3)}(E_a \cdot E_b)E_c + \chi_{1221}^{(3)}(E_b \cdot E_c)E_a + \chi_{1212}^{(3)}(E_c \cdot E_a)E_b. \quad (6)$$

而所谓拉曼诱导克尔效应则对应于以下的四波混频事件(如图 1 所示).其中

$$E_a(\omega_a) = E_p(\omega_p), \quad (7)$$

$$E_b(\omega_b) = E_s(\omega_s), \quad (8)$$

$$E_c(\omega_c) = E_p(\omega_p)^*, \quad (9)$$

式中下标 p, s 分别表示 pump 光场与 Stokes 光场. 频率与波矢条件分别为

$$\omega = \omega_a + \omega_b + \omega_c = \omega_p + \omega_s - \omega_p = \omega_s \quad (10)$$

$$k = k_a + k_b + k_c = k_p + k_s - k_p = k_s. \quad (11)$$

由(11)式可知,对于这种混频事件,波矢条件(相位匹配)总是成立的.

将(7)–(9)式代入(6)式便可以求得相应的极化强度矢量 $P(\omega)$. 为方便起见,我们分别对 E_p 为线偏振和圆偏振两种情形(E_s 总是保持线偏振)进行讨论.

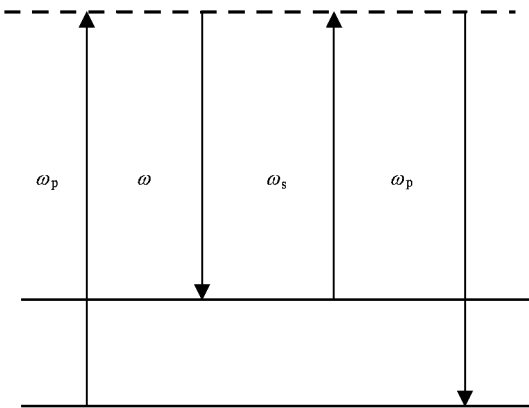


图 1 拉曼诱导克尔效应的示意图

2.1. E_p 为线偏振的情形

对应于(7)–(9)式,有

$$E_a = E_p = e_p E_p, \quad (12)$$

$$E_b = E_s = e_s E_s, \quad (13)$$

$$E_c = E_p^* = e_p E_p^*, \quad (14)$$

式中 e_p, e_s 分别为对应光场偏振方向的单位矢量.

将(12)–(14)式代入(6)式得

$$P = \{ [\chi_{1122}^{(3)} + \chi_{1221}^{(3)}] (e_p \cdot e_s) e_p + \chi_{1212}^{(3)} e_s \} |E_p|^2 E_s. \quad (15)$$

又,设 e_p 与 e_s 夹角为 θ , $e_{s\perp}$ 是 e_s 垂直方向上的单位矢量(如图 2)则

$$e_p = e_s \cos\theta + e_{s\perp} \sin\theta. \quad (16)$$

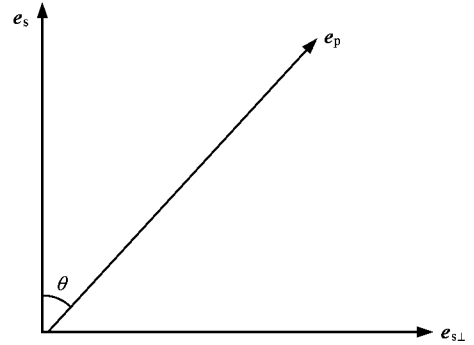


图 2 pump 光和 Stokes 光偏振方向的矢量图 θ 为偏振方向 e_p 和 e_s 的夹角

将其代入(15)式,并利用(5)式的关系,有

$$P = \{ [\chi_{1111}^{(3)} \cos^2\theta + \chi_{1221}^{(3)} \sin^2\theta] e_s + (\chi_{1111}^{(3)} - \chi_{1212}^{(3)}) \cos\theta \sin\theta e_{s\perp} \} |E_p|^2 E_s. \quad (17)$$

可见,一般而言,极化波 P 的偏振方向与 Stokes 光场 e_s 有所不同, P 的偏振除 e_s 方向外,还具有 $e_{s\perp}$ 方向的分量.在 pump 光场 I_p 与 Stokes 光场 I_s 的变化可予以忽略的条件下,耦合波方程慢变振幅近似给出混频波的电矢量 $E(\omega) \propto P(\omega)$ ^[8]. 于是由(17)式,在 $e_{s\perp}$ 方向偏振的混频光强(RIKES)

$$I_{s\perp} \propto |e_{s\perp} \cdot E|^2 \propto |e_{s\perp} \cdot P|^2 \propto |\chi_{1111}^{(3)} - \chi_{1212}^{(3)}|^2 \sin^2\theta \cos^2\theta I_p^2 I_s. \quad (18)$$

进一步,考虑到三阶极化率 $\chi^{(3)}$ 由共振项(χ^R)和非共振项(χ^{NR})两部分组成^[8],其中 χ^{NR} 可以认为是与频率无关的常数,而共振项

$$\chi^R \propto \frac{1}{[\omega_0 - (\omega_p - \omega_s)] - i\Gamma} \propto \frac{\omega_0 - (\omega_p - \omega_s)}{[\omega_0 - (\omega_p - \omega_s)]^2 + \Gamma^2} + i \frac{\Gamma}{[\omega_0 - (\omega_p - \omega_s)]^2 + \Gamma^2}, \quad (19)$$

式中 ω_0 对应于分子的振动或转动频率, Γ 对应于拉曼谱线的 Lorentz 线宽.共振项 χ^R 中实部 $\text{Re}(\chi^R)$ 和虚部 $\text{Im}(\chi^R)$ 随 pump 光和 Stokes 光的频率差 $\omega_p - \omega_s$ 的变化如图 3 所示.可以看出,虚部 $\text{Im}(\chi^R)$ 是一个标准的 Lorentz 线形,其中心在 $\omega_p - \omega_s = \omega_0$ 处;而实部 $\text{Re}(\chi^R)$ 的线形较为复杂,在整个区域内有正有负.当 $\omega_0 < \omega_p - \omega_s$ 时,实部 $\text{Re}(\chi^R)$ 为负;反之则为正.在谱线中心 $\text{Re}(\chi^R)$ 为零.

三阶非线性极化率各张量元的共振项和非共振

项之间有如下的关系式^[8]：

$$\chi_{1212}^R = \chi_{1122}^R = \rho \chi_{1111}^R, \quad (20)$$

$$\chi_{1221}^R = (1 - 2\rho) \chi_{1111}^R, \quad (21)$$

$$\chi_{1212}^{NR} = \chi_{1221}^{NR}, \quad (22)$$

式中 ρ 为分子的拉曼退偏比。

将(20)式代入(18)式中,有

$$\begin{aligned} & \chi_{1111}^{(3)} - \chi_{1212}^{(3)} \\ &= (\chi_{1111}^{NR} - \chi_{1212}^{NR}) + (\chi_{1111}^R - \chi_{1212}^R) \\ &= (\chi_{1111}^{NR} - \chi_{1212}^{NR}) + (1 - \rho) \chi_{1111}^R, \end{aligned} \quad (23)$$

所以,RIKES 的强度

$$\begin{aligned} I_{s\perp} &\propto |\chi_{1111}^{(3)} - \chi_{1212}^{(3)}|^2 \\ &= (\chi_{1111}^{NR} - \chi_{1212}^{NR})^2 + (1 - \rho)^2 |\chi_{1111}^R|^2 \\ &\quad + 2(\chi_{1111}^{NR} - \chi_{1212}^{NR}) \text{Re}(\chi_{1111}^R), \end{aligned} \quad (24)$$

式中

$$\begin{aligned} |\chi_{1111}^R|^2 &\propto \frac{2\Gamma}{[\omega_0 - (\omega_p - \omega_s)]^2 + \Gamma^2} \\ &= I[\nu_0 - (\nu_p - \nu_s)], \quad (25) \\ \text{Re}\chi_{1111}^R &\propto \frac{\omega_0 - (\omega_p - \omega_s)}{[\omega_0 - (\omega_p - \omega_s)]^2 + \Gamma^2} \\ &\propto [\nu_0 - (\nu_p - \nu_s)] \\ &\quad \times I[\nu_0 - (\nu_p - \nu_s)]. \end{aligned} \quad (26)$$

(25)和(26)式中 $I[\nu_0 - (\nu_p - \nu_s)]$ 为拉曼谱线归一化 Lorentz 线形因子, ν_0 , ν_p 和 ν_s 用来表示相应的频率,以区别其圆频率 ω_0 , ω_p 和 ω_s . 若 I_p 和 I_s 不是足够单色,则 L 应由 \tilde{L} 替代,其中

$$\begin{aligned} \tilde{L} &= \iint I[\nu_0 - (\nu_p - \nu_s)] G_p(\nu_{pL} - \nu_p) \\ &\quad \times G_s(\nu_{sL} - \nu_s) d\nu_p d\nu_s, \end{aligned} \quad (27)$$

G_p , G_s 分别是 pump 光和 Stokes 光归一化的线形因子, ν_{pL} 和 ν_{sL} 分别为其中心频率。

2.2. E_p 为圆偏振的情形

在 e_s 和 $e_{s\perp}$ 构成的直角坐标系中,相应于(7)–(9)式, E_a , E_b 和 E_c 可以表示为

$$E_a = \frac{1}{\sqrt{2}}(e_s - ie_{s\perp})E_p, \quad (28)$$

$$E_b = e_s E_s, \quad (29)$$

$$E_c = \frac{1}{\sqrt{2}}(e_s + ie_{s\perp})E_p^*, \quad (30)$$

将它们代入方程(6),得

$$P = \frac{1}{2} \{ \chi_{1111}^{(3)} + \chi_{1212}^{(3)} \} e_s$$

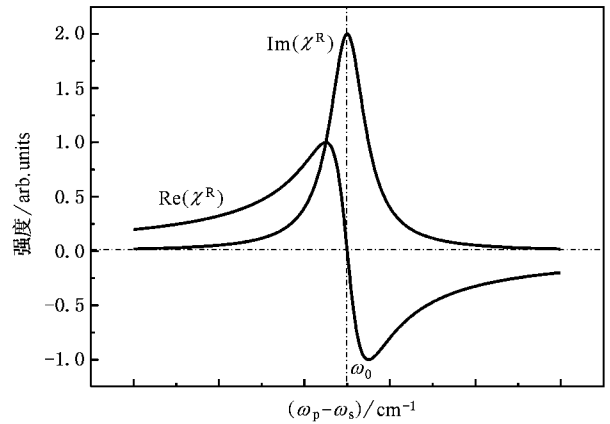


图3 三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 中实部 $\text{Re}(\chi^R)$ 和虚部 $\text{Im}(\chi^R)$ 随 $\omega_p - \omega_s$ 的变化

$$- \{ \chi_{1221}^{(3)} - \chi_{1122}^{(3)} \} e_{s\perp} \} |E_p|^2 E_s. \quad (31)$$

由此,RIKES 的信号强度

$$\begin{aligned} I_{s\perp} &\propto |e_{s\perp} \cdot E|^2 \propto |e_{s\perp} \cdot P|^2 \\ &\propto |\chi_{1221}^{(3)} - \chi_{1122}^{(3)}|^2 I_p^2 I_s. \end{aligned} \quad (32)$$

同样,类似于(23)式,有

$$\chi_{1221}^{(3)} - \chi_{1122}^{(3)} = (\chi_{1221}^{NR} - \chi_{1122}^{NR}) + (\chi_{1221}^R - \chi_{1122}^R),$$

由于 $\chi_{1122}^{NR} = \chi_{1221}^{NR}$, 故

$$\chi_{1221}^{(3)} - \chi_{1122}^{(3)} = \chi_{1221}^R - \chi_{1122}^R. \quad (33)$$

又 $\chi_{1221}^R = (1 - 2\rho) \chi_{1111}^R$, $\chi_{1122}^R = \rho \chi_{1111}^R$, (33)式可以进一步写为

$$\chi_{1221}^{(3)} - \chi_{1122}^{(3)} = (1 - 3\rho) \chi_{1111}^R, \quad (34)$$

将(34)式代入(32)式,得到 pump 光为圆偏振情形下的 RIKES 信号强度

$$\begin{aligned} I_{s\perp} &\propto |\chi_{1221}^{(3)} - \chi_{1122}^{(3)}|^2 = (1 - 3\rho)^2 |\chi_{1111}^R|^2 \\ &\propto I[\nu_0 - (\nu_p - \nu_s)]. \end{aligned} \quad (35)$$

式中 $I[\nu_0 - (\nu_p - \nu_s)]$ 的含义与(25)式相同,为拉曼谱线归一化的 Lorentz 线形因子.从(35)式可以看出,对于 pump 光为圆偏振的情形,RIKES 的强度变化忠实反映介质的拉曼光谱,其谱线的线形与自发拉曼散射完全一致.而当 pump 光为线偏振光时,由(24)式可以看出,RIKES 谱与自发拉曼不同.所以,不同偏振形式的 pump 光,所得 RIKES 谱线线形将有所不同。

3. 实验及其结果

实验装置如图3所示,其反应池与以前报道的反向抽运的受激拉曼光声光谱装置类似^[9].实验所

用光源为一台脉冲 Nd:YAG 激光(LAB190, Spectra Physics 公司)和其抽运的染料激光(ND6000, Continuum 公司). pump 光为经分束片分束后的 YAG 激光器的 532.1nm 输出,其线宽为 1cm^{-1} ;剩余的 532.1nm 激光用来抽运染料激光器,产生 Stokes 光. 两束激光分别经透镜聚焦后同轴反向作用于样品池内,当两束光的频率差调谐到等于分子的某一拉曼活性的振动频率时,将同时发生拉曼诱导克尔效应和受激拉曼效应.

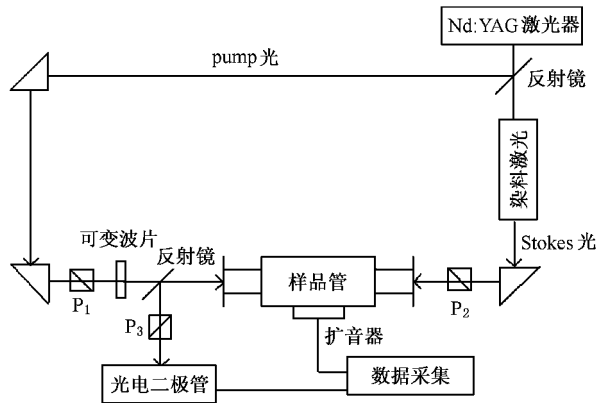


图 4 拉曼诱导克尔效应光谱和受激拉曼光声光谱实验装置图

P_1 , P_2 和 P_3 为格兰棱镜, P_2 和 P_3 的偏振方向相互垂直

为了检测 RIKES 信号,我们用一光楔(3° 倾斜角)反射部分 Stokes 光由光电二极管检测,光电二极管前格兰棱镜 P_3 (消偏比 10^{-5})的偏振方向与 Stokes 入射光的偏振方向 P_2 (即 e_s)相互垂直,以此滤除很强的 Stokes 光背景,只检测偏振方向为 $e_{s\perp}$ 的那一部分.实验中,Stokes 入射光的偏振方向恒为竖直,而 pump 光的偏振方向可以通过将可变波片设为 $\lambda/2$ 波片加以调节.当两束光偏振方向夹角 $\theta = 45^\circ$ 时, $e_{s\perp}$ 偏振方向上的 RIKES 信号强度最大,这可以从(18)式中看出.至于受激拉曼产生的光声信号则由置于池中心壁上的麦克风检测.

需要说明的是,尽管 Stokes 光的线宽为 0.1cm^{-1} ,但由于 pump 光的线宽为 1cm^{-1} ,因此两者共同作用得到的光谱分辨约为 1cm^{-1} .

实验中,pump 光的波长固定在 532.1nm,扫描 Stokes 光的波长,同步记录光电二极管和麦克风的输出信号随 Stokes 光波长的变化,得到 CH_4 分子 ν_1 模 Q 支在 $2913.8\text{--}2920\text{cm}^{-1}$ 范围内 RIKES 谱和 PARS 谱.在两束光均为线偏振,且偏振方向夹角为 45° 的情况下,得到图 5 所示的两种光谱.我们看到,

同时记录的两种信号给出的拉曼峰是大体相同的.然而仔细看来,它们并非完全一致.在拉曼位移小的一侧,即 $\omega_p - \omega_s < \omega_0$ 的一侧,RIKES 的信号强度偏高,而在拉曼位移大的一侧,即 $\omega_p - \omega_s > \omega_0$ 的一侧,RIKES 的信号强度偏高.为了进一步验证实验结果的可靠性,排除实验中其它因素的干扰,我们将 Stokes 光的波长分别从小到大和从大到小各扫描一次,两次均给出同样的结果,表明实验结果是可靠的.

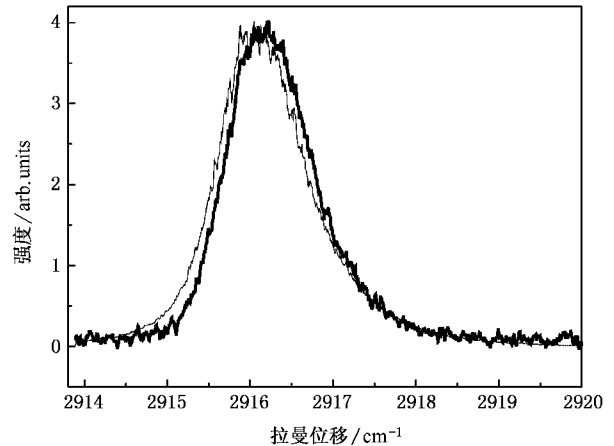


图 5 相同实验条件下同时记录的 CH_4 分子 ν_1 模拉曼诱导克尔效应谱(细线)和受激拉曼光声光谱(粗线) 线偏振的 pump 光和 Stokes 光的强度分别为 12mJ 和 100 μ J, CH_4 气压为 13300Pa

4. 讨 论

受激拉曼光声光谱(PARS)检测的是激发态粒子在弛豫过程中产生的光声信号,在我们的实验中,其谱线线形应与自发拉曼散射的完全一致,即 Lorentz 线形,其中心在 $\omega_p - \omega_s = \omega_0$ 处.

而对于 RIKES,当 pump 光和 Stokes 光都为线偏振时,由(24)式

$$I_{s\perp} \propto (\chi_{1111}^{\text{NR}} - \chi_{1212}^{\text{NR}})^2 + (1 - \rho)^2 |\chi_{1111}^{\text{R}}|^2 + 2(\chi_{1111}^{\text{NR}} - \chi_{1212}^{\text{NR}}) \text{Re}(\chi_{1111}^{\text{R}}),$$

第 1 项为非共振项,可以看成一常数,不会对谱线的轮廓产生影响;第 2 项为共振项,是 Lorentz 线形,与自发拉曼线形一致;第 3 项为非共振项与共振项的干涉项,其线形与实部 $\text{Re}(\chi_{1111}^{\text{R}})$ 一致,为非对称线形.所以,RIKES 谱的线形可以看成是 $|\chi_{1111}^{\text{R}}|^2$ 对应的 Lorentz 线形与 $\text{Re}(\chi_{1111}^{\text{R}})$ 所对应的非 Lorentz 线形以及一个小常数项的叠加,导致最终的线形偏离 Lorentz 线形.

这里要说明的是,以上有关 RIKES 谱的线形变

化是针对单支谱线而言的,而图 5 实际反映的是 CH_4 分子 ν_1 模整个 Q 支的拉曼谱带,是所有振转谱线的叠加,整个谱带峰形变化与单支谱线线形变化定性一致.

为了确信对两种光谱峰形差异的解释,我们特意将 pump 光改为圆偏光,按前面给出的理论结果 (35) 式,

$$I_{s\perp} \propto |\chi_{1221}^{(3)} - \chi_{1122}^{(3)}|^2 \propto |\chi_{1221}^R - \chi_{1122}^R|^2 \\ \propto (1 - 3\rho)^2 |\chi_{1111}^R|^2,$$

不出现干涉项,因而此时的 RIKES 信号峰形应为 Lorentz 线形,与光声信号峰形一致. pump 光为圆偏振的实验结果如图 6 所示,与图 5 中的结果相比,两种光谱之间的偏离明显减小,谱峰的轮廓也更为相似.之所以没有完全重合,是因为我们实验中的 pump 光并非理想的圆偏振光,而是椭圆率接近 0.9 的椭圆偏振光.

由以上实验结果和分析我们相信:在线偏振 pump 光和 Stokes 光的情况下,非共振背景 χ^{NR} 的存在,是 RIKES 谱和 PARS 谱形状略有差异的原因.

5. 结 论

拉曼诱导克尔效应谱 (RIKES) 和受激拉曼光声

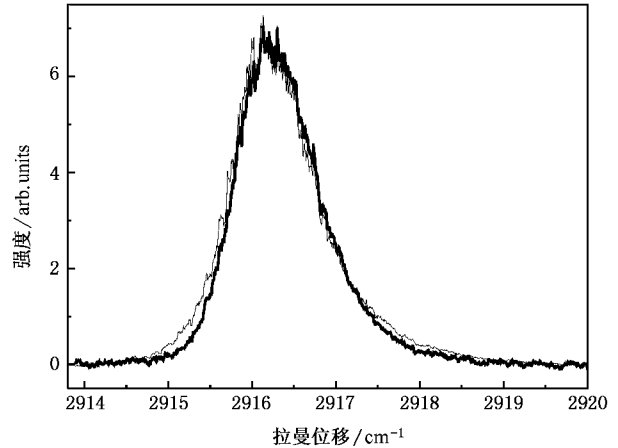


图 6 相同实验条件下同时记录的 CH_4 分子 ν_1 模拉曼诱导克尔效应谱(细线)和受激拉曼光声光谱(粗线)圆偏振的 pump 光和线偏振的 Stokes 光的强度分别为 10mJ 和 80 μ J, CH_4 气压为 13300Pa

光谱 (PARS) 都是很灵敏的非线性光谱技术,尽管它们都对应于分子的拉曼激发谱,但也存在着一些差别.主要原因是,拉曼诱导克尔效应谱受三阶非线性极化率 $\chi^{(3)}$ 中非共振项 χ^{NR} 的影响,其谱峰的线形偏离 Lorentz 线形.

[1] McDowell R S, Patterson C W, Owyong A 1980 *J. Chem. Phys.* **72** 1071
 [2] Tao Z M, Zhang Y C, Lu Y H, Hu S X, Shao S S, Cao K F, Liu X Q, Yue G M, Hu H L 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2589 (in Chinese) [陶宗明、张寅超、吕勇辉、胡顺星、邵石生、曹开法、刘小勤、岳古明、胡欢陵 2004 物理学报 **53** 2589]
 [3] Wu C K, Fan J Y, Wang Z Y 1980 *Acta Phys. Sin.* **29** 588 (in Chinese) [吴存恺、范俊颖、王志英 1980 物理学报 **29** 588]
 [4] Barrett J J, Berry M J 1979 *Appl. Phys. Lett.* **34** 144
 [5] Maker P D, Terhune R W 1965 *Phys. Rev.* **137** A801

[6] Heiman D, Hellwarth R W, Levenson M D, Martin G 1976 *Phys. Rev. Lett.* **36** 189
 [7] Wynne K 2005 *J. Chem. Phys.* **122** 244503
 [8] Eesley G L 1981 *Coherent Raman Spectroscopy* (Oxford: Programon Press)
 [9] Yu Yuanqin, Wang hua, Shi Yong, Li Qifeng, Dai Jinghua, Liu Shilin, Ma Xingxiao 2004 *Chin. J. Chem. Phys.* **17**(4)385 (in Chinese) [喻远琴、汪华、石勇、李奇峰、戴静华、刘世林、马兴孝 2004 化学物理学报 **17**(4)385]

Profile comparison between the Raman-induced Kerr effect spectrum and photoacoustic Raman spectrum of methane^{*}

Yu Yuan-Qin Zhou Xiao-Guo Lin Ke Dai Jing-Hua Liu Shi-Lin[†] Ma Xing-Xiao

(*Hefei National Laboratory for Physical Sciences at the Microscale , Department of Chemical Physics ,
University of Science and Technology of China , Hefei 230026 , China*)

(Received 22 October 2005 ; revised manuscript received 15 November 2005)

Abstract

Two kinds of spectrum , the Raman-Induced Kerr Effect Spectrum(RIKES)and the Photoacoustic Raman Spectrum(PARS) , were measured simultaneously for the ν_1 vibrational band of methane. The difference between the profiles of the two spectra obtained with linearly polarized pump and Stokes laser beams lies in that , the intensity of RIKES spectrum is stronger at the small Raman shift side , and is weaker at the large Raman shift side compared to the PARS spectrum. It was confirmed that this difference is caused by the interference between the resonant and non-resonant parts of the third order non-linear susceptibility.

Keywords : RIKES , PARS , profile

PACC : 4265C , 4265M , 3270

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 20533070).

[†] Corresponding author. E-mail : slliu@ustc.edu.cn