

# 纳米体系中发光能隙展宽的研究\*

刘一星 余亚斌† 张 丽 全 军

(湖南大学物理与微电子科学学院,长沙 410082)

(2008 年 3 月 8 日收到,2008 年 4 月 15 日收到修改稿)

采用两种简单的一维模型,通过直接严格求解该模型下薛定鄂方程给出晶场中的限域情况下电子能级结构以及纳米体系中电子的限域能,从而研究体系的发光蓝移现象.基于限域能的计算,讨论了纳米体系的限域能和发光蓝移随尺寸以及势场的变化关系.结果表明:导带底的电子能级随体系的尺寸增大而降低,而价带顶则随粒径的增大而升高,因此,限域能随纳米尺寸的减小迅速增大.同时将计算结果与通常文献中所采用的有效质量计算的结果进行比较,可以看出二者有明显差别,且尺寸越小,其差异越大.因此,限域能随尺寸的变化并不严格满足通过有效质量方法计算出来的结果.也分析了限域能与晶场势高度的关系,结果表明限域能随之增大而减小.

关键词:蓝移,能隙,量子限域效应,量子尺寸

PACC:0365G,7125C,0365,0300

## 1. 引 言

当微粒直径进入纳米量级时,纳米材料粒径极小,表面积特大,内部电子局限在纳米空间内,电子的局限性和相干性增强,从而导致纳米体系具有与宏观体系不同的物理现象和效应.如量子效应常见的表面效应、量子尺寸效应和宏观量子隧道效应,表面效应引起的光吸收的蓝移和红移现象,量子尺寸效应<sup>[1,2]</sup>反映出的带间吸收和发光峰的蓝移<sup>[3]</sup>及光吸收系数与尺寸的关系等.

近年,微纳米科学技术发展迅速,半导体多量子阱和超晶格的制备、研究和应用吸引了越来越多的研究者并且取得了不少成果.许多纳米半导体材料比如 ZnO/MgO 超晶格、GaAs<sub>1-x</sub>Sb<sub>x</sub>/GaAs 等的在实验中得以制备成功,并通过合理的实验方法分析了其性质<sup>[4-7]</sup>,在理论上,研究者通过推导分析也成功地研究了纳米尺寸微粒的一些特殊性质<sup>[8-10]</sup>.比如对超晶格中的电子能级结构,带宽以及光跃迁频率的研究,其中 Brus<sup>[11,12]</sup>利用有效质量近似法(EMA)给出了纳米粒子所呈现的量子尺寸效应的吸收带隙公式.

然而,用有效质量方法给出尺寸效应的吸收带

隙公式还是值得质疑,因为对电子结构的有效质量描述是基于周期性结构,它实际是周期性晶场的近似描述.但是对于纳米尺寸的体系,甚至其尺度小于有效玻尔半径时周期结构已经不存在,其原来的能带结构也退化成为一系列的能级族.因此这时有效质量对纳米体系中电子已经不是一个好的描述,应当从所处的势场出发给出电子能级结构,从而找出所对应的发光能隙的变化.本文采用两个简单的模型势场,通过波函数及能级结构的计算,分析了在一维纳米结构体系中出现的发光带隙蓝移的原因,并给出能隙值随粒径的变化关系.

## 2. 模型与公式

本文采用两个简单的模型分析研究,纳米尺寸下电子能级、限域能与粒径、内部势场等参量的关系.首先,在宏观体系中以一个周期性方势阱场描述一维半导体内部晶格场,如图 1 所示.该模型晶体势场如下:

$$U = \begin{cases} 0 & 0 \leq x < c, \\ U_0 & c \leq x \leq a, \end{cases} \quad (1)$$

$$U(x + Na) = U(x) \quad (N = 0, 1, 2, \dots). \quad (2)$$

在周期场中运动的电子的能量本征函数可直接由布

\* 国家自然科学基金(批准号:10774041)资助的课题.

† E-mail: apybyu@hnu.edu.cn

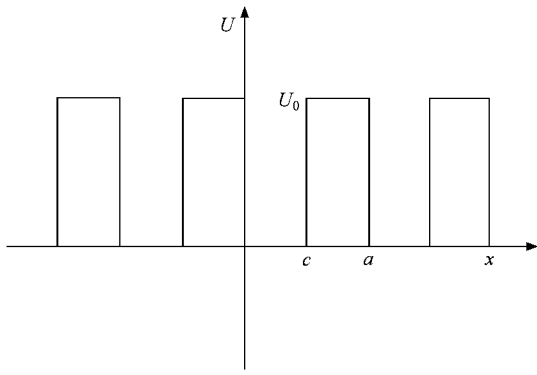


图1 周期方势阱(模型1)( $c$ 表示势阱宽, $a$ 为周期(晶格常数))

洛赫定理求解:

$$\psi = e^{iKx}\Phi_K(x), \quad (3)$$

$K$ 为布洛赫波数, $\Phi_K(x)$ 为周期函数.通过解薛定谔方程可得到一对粒子能量本征值的限制,

$$\frac{F_1(k, k')}{F_2(k, k')} = \cos(Ka), \quad (4)$$

其中

$$F_1(k, k') = \frac{(k' - k)^2}{k' + k} [e^{i(2ka - k'a)} + e^{ik'(a - 2c)}] - (k' - k)e^{-ik'a} - (k' + k)e^{ik'a - 2i(k' - k)c},$$

$$F_2(k, k') = \frac{8kk'}{k' + k} e^{i(k - k')c},$$

$$M_j = \begin{pmatrix} \frac{1}{4} \left( 2 + \frac{k'}{k} + \frac{k}{k'} \right) e^{i(k - k')b} + \frac{1}{4} \left( 2 - \frac{k'}{k} - \frac{k}{k'} \right) e^{i(k + k')b} & \frac{1}{4} \left( \frac{k'}{k} - \frac{k}{k'} \right) e^{i(k - k')b - 2iaj} + \frac{1}{4} \left( \frac{k'}{k} + \frac{k}{k'} \right) e^{i(k + k')b - 2iaj} \\ \frac{1}{4} \left( \frac{k}{k'} - \frac{k'}{k} \right) e^{-i(k + k')b + 2iaj} + \frac{1}{4} \left( \frac{k'}{k} - \frac{k}{k'} \right) e^{-i(k - k')b + 2i(k + k')aj} & \frac{1}{4} \left( 2 - \frac{k'}{k} - \frac{k}{k'} \right) e^{-i(k + k')b} + \frac{1}{4} \left( 2 + \frac{k'}{k} + \frac{k}{k'} \right) e^{-i(k - k')b} \end{pmatrix} \quad (7)$$

其中  $b (b = a - c)$  表示内部势垒的宽.

在无限深势阱的边界即  $x = (N + 1) \times a$  处有

$$\varphi_{N+1}((N + 1) \times a) = 0, \text{ 系数可取 } A_{N+1} = \frac{i}{2} e^{-iK(N+1)a}, B_{N+1} = \frac{-i}{2} e^{iK(N+1)a}, \text{ 则势阱另一边界处 } x = 0 \text{ 的波函数为}$$

$$\varphi_1(k, 0) = (1 \quad 1) \prod_{j=1}^{N+1} M_j \begin{pmatrix} A_{N+1} \\ B_{N+1} \end{pmatrix}. \quad (8)$$

利用波函数在边界为零的性质,可得到在纳米结构体系下,电子能量本征值的取值特性,即能量本

式中  $k = \sqrt{\frac{2mE}{\hbar^2}}, k' = \sqrt{k^2 - \frac{2mU_0}{\hbar^2}}$ , 限制条件(4)可简化为

$f_1 = (|F_1| - |F_2|)(|F_1| + |F_2| + 1) \leq 0$ , 该式是一个对粒子能量本征值的限制条件,由此可得到能量本征值的允许值范围.并求出体系的能带结构——电子的能带和禁带.如图3所示,为  $k$  的取值范围.

对于纳米结构体系,由于其格点(原子或分子)有限( $N$ 为有限值),体系不再存在一个完整的周期势场,布洛赫波也不再是体系的波函数.内部电子被限制在一个极小的范围之内.以下我们把体系表面作用等效为无限深势阱,纳米结构体系内部电子受到无限深的势阱束缚.

在这种小尺寸模型下,波函数的通解可以表示为

$$\varphi_j = A_j e^{ikx} + B_j e^{-ikx}, \quad (5)$$

$$\phi_j = A'_j e^{ik'x} + B'_j e^{-ik'x}, \quad (6)$$

$\varphi_j$  表示势阱中的波函数, $\phi_j$  表示势垒中的波函数.在势阱与势垒的交界面波函数  $\varphi_j(\phi_j)$  以及其一阶导数连续,利用此条件可得出系数矩阵的转换关系

$$\begin{bmatrix} A_1(x) \\ B_1(x) \end{bmatrix} = \prod_{j=1}^{N+1} M_j \begin{bmatrix} A_{N+1}(x) \\ B_{N+1}(x) \end{bmatrix},$$

$M_j$  为系数变换矩阵,

征值的取值的限制条件

$$\varphi_1(k, 0) = 0.$$

图3实线所示为  $f_2 = \varphi_1(k, 0) [1 + |\varphi_1(k, 0)|]$  随  $k$  的变化,由其与  $k$  轴交点给出能量本征值.通过比较图中两条曲线,在宏观尺寸下和纳米尺寸下,能量本征值的取值特性是不同的.

第二种模型,假设其内部势场不是周期变化的方势垒,而是周期变化的  $\delta$  势垒 Dirac 梳

$$V(x) = V_0 \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \delta(x + na), \quad (9)$$

其求解过程和在前面的模型下的计算过程类似.通

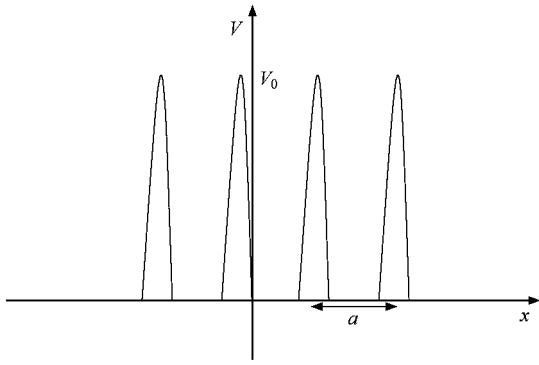


图2 晶体势场示意图(模型2)其中  $a$  为周期)

过求解薛定谔方程和利用波函数在势垒  $x = Na$  ( $N = 1, 2, 3, \dots$ ) 处的边界条件

$$\varphi(k, a+0) = \varphi(k, a-0),$$

$$\varphi'(k, a+0) = \varphi'(k, a-0) + \frac{2mV_0}{\hbar^2} \varphi(k, a),$$

求出在 Dirac 梳这种周期场中能量本征值  $k$  所受到的限制

$$G_1 \leq \cos(Ka), \quad (10)$$

其中

$$G_1 = \cos ka + \frac{\Omega}{k} \sin ka.$$

宏观尺寸下能量本征值的受限条件(10)可转化为

$$g_1 = \left| \cos \left[ ka - \arctan \left( \frac{\Omega}{k} \right) \right] \right| - \left| \frac{1}{\sqrt{1 + (\Omega/k)^2}} \right| \leq 0,$$

式中  $\Omega = mV_0/\hbar^2$ , 在这个受限条件下, 同样能够得出  $k$  在宏观体系中的取值范围. 图4虚线给出了  $g_1$  随  $k$  的变化曲线.

在纳米尺寸下, 也可以通过系数转换矩阵  $M_j$  和边界条件求出边界处的波函数与能量本征值  $k$  的关系,

$$\varphi_1(k, 0) = 0.$$

图4实线为  $g_2 = \varphi_1(k, 0) |1 + |\varphi_1(k, 0)||$  随  $k$  的变化, 同样可以由图中求出在此模型下能量的本征值. 其系数转换矩阵为

$$M_j = \frac{-1}{2ik} \begin{pmatrix} -ike^{-ikja} & e^{-ikja} \\ -ike^{ikja} & e^{ikja} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} e^{ikja} & e^{-ikja} \\ (ik - 2\Omega)e^{ikja} & (-ik - 2\Omega)e^{-ikja} \end{pmatrix}. \quad (11)$$

利用这种模型也可以得到半导体在宏观体系与纳米体系中能谱的不同. 而且电子能级通过这种模型的计算还能得到与前面模型类似的性质特征.

在纳米体系中, 电子、空穴的运动因表面(或界面)的约束受限量子阱内, 电子结构也从体相的连续能带结构变成能级, 并使能隙变宽, 而且其变化还与量子尺寸有关. 其限域能也与量子尺寸有关系, Brus 给出了纳米微粒呈现的量子尺寸效应的量子限域能公式<sup>[3, 11, 12]</sup>

$$\Delta E_g = \frac{\hbar^2 \pi^2}{2\mu L^2}, \quad (12)$$

其中  $\mu = \frac{m_e^* m_h^*}{m_e^* + m_h^*}$ ,  $m_e^*$  和  $m_h^*$  为电子和空穴的有效质量. 通过下面的公式可以求出电子、空穴的有效质量.

由前面的限制公式  $\frac{F_1(k)}{F_2(k)} = \cos(Ka)$ , 可设

$$f(k, K) = \frac{F_1(k)}{F_2(k)} - \cos(Ka), \text{ 能量为 } E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m} =$$

$\frac{K^2 \hbar^2}{2m^*}$ ; 其中  $m^*$  为有效质量, 由前面公式可得

$$\begin{aligned} \frac{1}{m^*} &= \frac{1}{\hbar^2} \frac{d^2 E}{dK^2} = \frac{d^2(k^2 \hbar^2 / 2m)}{\hbar^2 dK^2} \\ &= \frac{1}{m} \frac{d^2(k^2)}{dK^2} = \frac{1}{m} \left[ \left( \frac{dk}{dK} \right)^2 + k \frac{d^2 k}{dK^2} \right], \\ \frac{dk}{dK} &= \frac{p_K}{p_k} = \frac{a \sin(Ka)}{p_k}. \end{aligned} \quad (13)$$

电子和空穴的有效质量与波矢有关, 导带底和价带顶上对应的电子和空穴有效质量所对应的  $K$  取值应满足  $\cos(Ka) = \pm 1$ , 而当  $\cos(Ka) = \pm 1$  时,  $\sin(Ka) = 0$ ;  $p_k = 0$ , 因此  $\frac{dk}{dK} = 0$ ;

$$\begin{aligned} \frac{d^2 k}{dK^2} &= - \frac{p_{KK} p_k^2 - 2p_{Kk} p_k p_K + p_{kk} p_K^2}{p_k^3}, \\ \frac{d^2 k}{dK^2} &= - \frac{p_{KK} p_k^2}{p_k^3} = - \frac{a^2}{p_k^k}, \end{aligned}$$

因此有

$$\frac{1}{m^*} = \frac{1}{m} \left[ \left( \frac{dk}{dK} \right)^2 + k \frac{d^2 k}{dK^2} \right] = \frac{-ka^2}{mp_k}. \quad (14)$$

电子和空穴的有效质量可表示为

$$m^* = - \frac{p_k}{ka^2} m. \quad (15)$$

由 Brus 公式可以得出量子限域能是与粒径的平方成反比的, 通过变化原子数目  $N$ , 同样可以得

到量子限域能与粒径的关系.

### 3. 结果与分析

利用前面的模型和推导结果,我们固定阱宽  $b$ , 垒宽  $c$ , 晶格数  $N$  和垒高  $U_0$ , 分析计算了能量本征值的取值. 计算中长度以  $a$  为单位,  $E$  和  $U_0$  则以  $\frac{\hbar^2}{2ma^2}$  为单位, 下面分别对计算结果进行分析, 说明和对比.

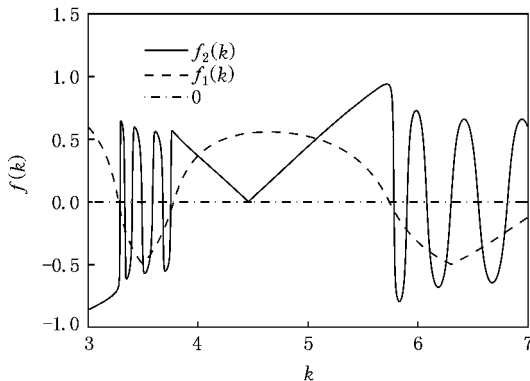


图3 确定电子能谱(模型1)  $f_1$  是由宏观体系给出的;  $f_2$  是由在纳米体系给出的)

图3中虚线为  $f_1 = (|F_1| - |F_2|)(|F_1| + |F_2| + 1)$  曲线, 即在模型1下,  $N \rightarrow \infty$  的  $k$  的限制条件, 计算中参数  $b = 0.5, c = 0.5, U_0 = 30$ . 如图中虚线所示, 只有一定范围内的能量本征值才是允许的.  $f_1(k)$  值大于零的部分是  $k$  的不允许值(对应能谱图中的禁带); 小于零的部分是  $k$  的允许值, 允许的  $k$  的取值范围被不允许的范围所分隔. 图中, 通过能量本征值的取值特性清晰地表现出宏观条件下粒子的能量在允许值的范围内, 是连续的( $k$  连续), 因此, 可得出在宏观尺寸下, 禁带和导带相互间隔, 粒子的能量结构是呈带状分布的; 实线则是在纳米体系下( $L = 6$ ), 函数  $f_2 = \varphi_1(k, 0)[1 + |\varphi_1(k, 0)|]$  随  $k$  的变化状况. 由于只有在满足  $f_2(k)$  的值为零的  $k$  取值才被允许, 因此在这个条件限制下, 使得  $k$  的取值即使在允许值范围内也只能取分离值, 体系的能量结构退化成能级簇结构形式. 通过比较图中的两条曲线, 还可以得出宏观下的禁带宽和纳米体系下的禁带宽是不同的, 宏观条件下的禁带宽度始终比纳米体系下的要小一些, 这是由于电子受无限深势阱的限制, 使得有效带隙展宽, 纳米体系下将会

出现带隙蓝移.

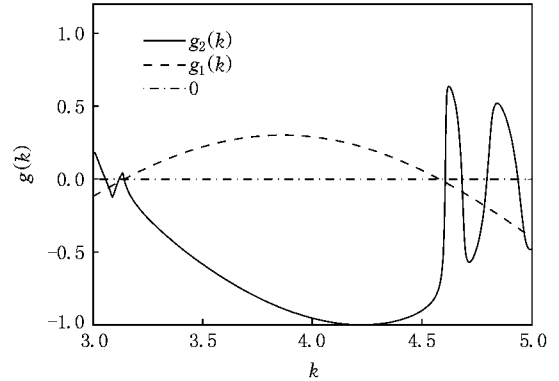


图4 确定电子能谱(模型2)  $g_1$  是由宏观体系给出的;  $g_2$  是由在纳米体系给出的)

图4是在模型2下的限制条件, 即  $g_1(k)$  和公式  $g_2(k)$  描绘出来的  $k$  的可能取值, 其中  $V_0 = 4, a = 1$ . 虽然电子的具体能级值与模型1下的结果有所不同, 但  $k$  在宏观和纳米体系下的取值特性与在第一种模型下计算出的结果是相同. 通过对比分析图3和图4中的曲线, 及前面的两种模型计算出来的结果都表明随着半导体尺寸进入纳米量级, 能谱由带状谱转为线状谱, 并且禁带宽也发生变化.

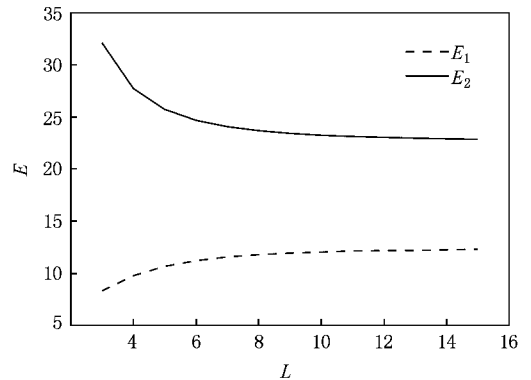


图5 由模型1计算出来的电子能级(虚线和实线分别对应价带顶和导带底)与体系尺寸的关系

图5表明导带底能级  $E_2$  随粒径的增大而减小; 而价带顶能级  $E_1$  随粒径的增大而增大, 使得带隙展宽. 能隙随粒子尺寸的增大而减小, 因此粒径较小者相对于粒径较大者所对应的吸收谱线就会发生蓝移. 图6和图7是在两种纳米尺寸模型下, 得出的限域能  $\Delta E_g$  随纳米尺寸  $L$  的变化曲线. 图中的两条曲线  $\Delta E_{1g}$  表示的曲线是通过受限电子能级的严格计

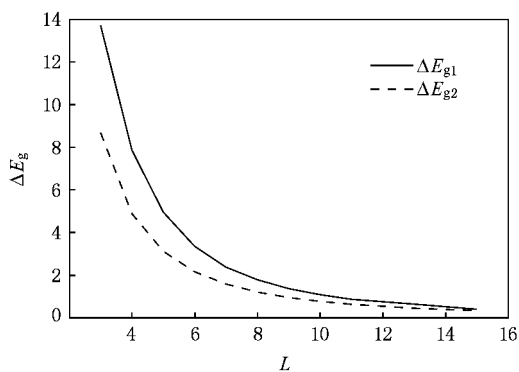


图 6 利用模型 1 计算的限域能与量子尺寸的变化关系(其中  $b = 0.5, c = 0.5, U_0 = 16$ )

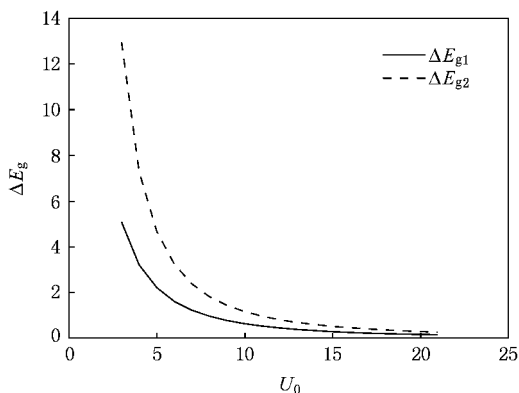


图 7 利用模型 2 计算的限域能与量子尺寸的变化关系(其中  $V_0 = 1$ )

算得到的,即公式  $\Delta E_g = E_2(L) - E_1(L) - (E_2(\infty) - E_1(\infty))$  (即  $\Delta E_g = E_g(L) - E_g(\infty)$ ) 直接求出来的两个模型下的限域能随纳米尺寸变化关系; $\Delta E_{2g}$  是通过求电子和空穴的有效质量,再由 Brus 公式给出来的.图中表明限域能随粒子尺寸的增大而减小,特别在尺寸很小时,变化更为明显.这是由于在粒径很小时,电子受限在一很小范围内,势阱壁对电子的作用将占主导地位,根据不确定性原理当电子的位置越精确其动量分布就越宽.因此当电子受限的尺寸越来越小,将必然出现能级分裂,而且能级展宽导致带隙在小尺寸下随尺寸变化明显.图中两条曲线的对比表明,这两条曲线的变化趋势很类似,但利用模型计算的值与通过有效质量计算的值有所不同,且粒径越小其差异就越大.如图 6 所示为模型 1 下计算的限域能与量子尺寸的关系,在  $L = 4$  时,严格计算的限域能明显大于通过 Brus 公式计算值;而在

模型 2 下的结果如图 7 所示, $L = 5$  严格计算值则小于 Brus 公式计算值,结果恰好是相反的.这是因为在粒径很小时,粒子的周期结构已经不存在了.由此可得出—维纳米结构体系中,利用模型 1 和模型 2 计算出来的限域能随尺寸的变化关系并不严格按照 Brus 公式那样与尺度平方成反比的关系,且随着模型不一样,严格计算的限域能可以向上也可以向下偏离 Brus 公式的计算结果,尤其是在尺寸很小时差别很大.

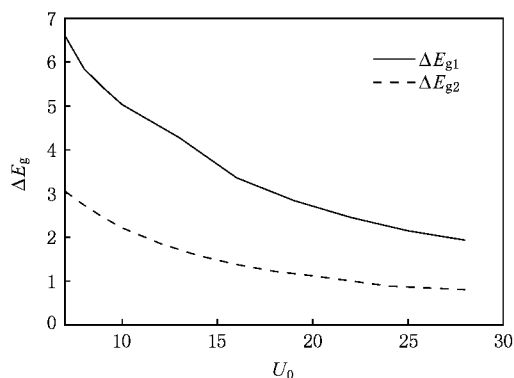


图 8 由模型 1 计算出来的限域能随势垒高的变化(其中  $b = 0.5, c = 0.5$ )

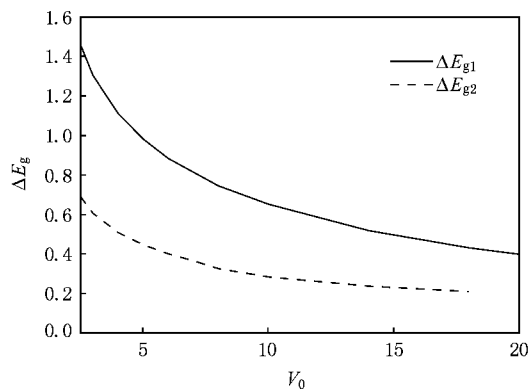


图 9 由模型 2 计算的限域能随势垒高的变化

图 8 和图 9 是在两个模型下,计算出来的限域能随内部势垒高度的变化关系图.在两个图中,限域能都随势垒的增高而减小,其中虚线是在  $L = 9$  下计算出来的,实线是在  $L = 6$  下计算出来的,通过比较可以得出两种模型下的计算机结果都表明在粒径更小时,限域能随内部势高的变化更为明显.因此在不改变其他参数时,当内部势场增大,蓝移现象反而不明显.

## 4. 结 论

本文利用无限深势阱模型,对半导体纳米晶体的限域能与量子尺寸的依赖关系进行了研究,同时通过求解纳米体系下波函数与  $k$  的关系,对体系能量结构进行了分析.在宏观体系中半导体内部的电子能级处于准连续状态,但当体系进入纳米尺寸,电子结构从体相的连续能带结构变成准分裂能级,使得能隙变宽,电子空穴复合发出的光子能级增大,发

光峰蓝移,并且其电子-空穴对的有效质量越小,电子和空穴能态受到影响就越明显.研究结果表明:在纳米体系中由于限域效应,在电子能量结构中电子能谱呈离散态,禁带宽增大,限域能随粒径的增大而减小且在粒径极小时其变化更为明显,但文中通过模型计算出来的限域能随尺寸的变化关系不再严格按照 Brus 公式那样与尺度平方成反比的关系,尤其是在尺寸很小时差别很大.另外通过图形还分析了限域能与粒子内部势场的关系,限域能随内部势场的增大而减小,且在粒径小时更为明显.

- [ 1 ] Bastard G ,Mendez E E ,Chang L L ,Esaki L 1982 *Phys. Rev. B* **26** 4
- [ 2 ] Kim S S ,Hong S K ,Yeon K H 2007 *Phys. Rev. B* **76** 115322
- [ 3 ] Nakamura Y ,Masada A ,Ichikawa M 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 013109
- [ 4 ] Zhang B P ,Binh N T ,Wakatsuki K ,Liu C Y ,Segawa Y 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 032105
- [ 5 ] Xin P ,Sun C W ,Qin F W ,Wen S P ,Zhang Q Y 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 1082 ( in Chinese ) [ 辛 萍、孙成伟、秦福文、文胜平、张庆瑜 2007 物理学报 **56** 1082 ]
- [ 6 ] Song S F , Zhao D W , Xu Z 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 2910 ( in Chinese ) [ 宋淑芳、赵德威、徐 征 2007 物理学报 **56** 2910 ]
- [ 7 ] Tchermicheva M , Nevou L , Doyennette L , Julien F H , Warde E 2006 *Phys. Rev. B* **73** 125347
- [ 8 ] Makino T , Chia C H , Tuan N T , Sun H D , Segawa Y 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 975
- [ 9 ] Akman N , Durgun E , Cahangirov S , Ciraci S 2007 *Phys. Rev. B* **76** 245427
- [ 10 ] Li N , Yuan X Z , Li N , Lu W , Li Z F , Dou H F , Shen X C 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 797 ( in Chinese ) [ 李 娜、袁先漳、李 宁、陆 卫、李志峰、龚红飞、沈学础 2000 物理学报 **49** 797 ]
- [ 11 ] Gu X Q , Zhu L P , Ye Z Z , He H P , Zhang Y Z , Huang F , Qiu M X , Zeng Y J 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 022103
- [ 12 ] Fu Z D , Cui Y S , Zhang S Y , Chen J , Yu D P , Zhang S L 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 263113

# Study of the spread of the energy gap in nanostructure systems<sup>\*</sup>

Liu Yi-Xing Yu Ya-Bin<sup>†</sup> Zhang Li Quan Jun

( School of Physics and Microelectronics Science ,Hunan University ,Changsha 410082 ,China )

( Received 8 March 2008 ; revised manuscript received 15 April 2008 )

## Abstract

In recent years considerable attention is being paid to the blue-shift of photoluminescence due to quantum confinement in the nanostructure. By employing two simple models of one-dimensional crystal potential ,we study the electronic energy spectra and confinement energies by solving the Schrödinger equation for the models. Based on the calculation of the confinement energies in the nanostructures ,the size- and potential-dependence of the confinement energy and the blue shift are investigated. The results suggest that : with creasing size of the system the energy of electrons at the bottom of the conduction band decreases ,but increases at the top of the valence band. Therefore ,the confinement energies increased abruptly as the size of nano-particle ( or nanostructures ) decreases. Meanwhile ,our results for the confinement energies show obvious difference from the ones calculated by the effective-mass approximation of ten used in the literature. Moreover ,we also find that the band gap and blue shift depend on the crystal potential in the systems ,and the confinement energies decrease as the potential increases.

**Keywords** : blue-shift , energy gap , quantum confinement effect , quantum size

**PACC** : 0365G , 7125C , 0365 , 0300

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 10774041 ).

E-mail : apybyu@hnu.edu.cn