

T + OD 体系的同位素交换反应动力学*

朱志艳^{1)†} 朱正和²⁾ 张莉²⁾ 李培刚¹⁾ 唐为华¹⁾ 郑莹莹¹⁾

1) (浙江理工大学光电材料与器件中心, 杭州 310018)

2) (四川大学原子与分子物理研究所, 成都 610065)

(2010年11月22日收到; 2011年7月6日收到修改稿)

基于 DTO(\tilde{X}^1A_1) 分子的多体展式分析势能函数, 用准经典的 Monte Carlo 轨迹法研究了 T + OD(0,0) 体系的分子反应动力学过程. 结果表明, 在碰撞能较低 (小于 $121.34 \text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$) 时, 可以生成长寿命 DTO(\tilde{X}^1A_1) 络合物, 并且该络合反应是有阈能反应, 这与用多体项展式理论计算的 DTO 分子势能曲线结果一致. 随碰撞能增加, 逐渐出现置换产物 DT 和 OT, 最终分子被完全碰散成 D, T 和 O 原子, 而且反应 $T + OD(0,0) \rightarrow OT + D$, $T + OD(0,0) \rightarrow DT + O$ 和 $T + OD(0,0) \rightarrow D + T + O$ 也是有阈能反应. 由于 D 和 T 原子的同位素效应, T + OD(0,0) 与 D + OT(0,0) 体系的碰撞反应特征存在非一致性.

关键词: DTO, 分子反应动力学, 轨线, 反应截面

PACS: 31.50.-x, 31.15.xv, 34.10.+x, 34.20.-b

1. 引言

在核工业的生产过程中, 各种核设施不断产生大量的含氚轻水或重水. 考虑到工作人员的安全和防止天然水源的污染, 必须除去水中的氚. 并且, 氚是军用核技术和聚变能源的重要核材料. 因此, 含氚废水及含氚重水提氚具有重要的军事战略意义. 如何从重水中提取氚已成为当今的一个重要问题. 目前, 重水提氚的途径有多种, 氘水同位素交换就是一种极具发展潜力的方法^[1-5]. 例如通过反应 $D_2(\text{气}) + \text{DTO}(\text{液}) \rightarrow \text{DT}(\text{气}) + D_2O(\text{液})$, 就可以由 D_2 交换分离出 DT 气体.

长期以来, 人们对水及其同位素分子的交换反应进行了很多研究. 如 Pypers 等^[6] 测定了氢同位素水分子交换反应的平衡常数; Wang 等^[7] 研究了 H_2O 分子的势能面及 $D + OH \rightarrow H + OD$ 的交换反应速率常数; Chu 等^[8,9] 研究了 $O + H_2$ 反应中的非绝热效应. 但关于 T + OD 体系的同位素交换反应研究至今未见报道. 分子的分析势能函数可以为交换反应的反应截面和分子反应动力学过程的研究提

供重要的数据基础^[10-14]. 通过分子反应动力学原理研究确定氢同位素交换反应的反应截面, 可以为催化交换效率研究、传质过程研究和交换工艺设计提供一定的理论依据. 因此, 研究 DTO 分子的分析势能函数和分子反应动力学过程很有必要.

我们已在文献[15]中获得了 DTO(\tilde{X}^1A_1) 分子的分析势能函数, 可以依此来研究其分子反应动力学从而确定交换反应的反应截面. 本文基于文献[15]研究得到的 DTO(\tilde{X}^1A_1) 分子的多体展式分析势能函数, 用准经典的 Monte Carlo 轨迹法研究了 T + OD(0,0) 体系的分子反应动力学过程.

2. 理论方法

研究分子反应动力学, 首先需要确定涉及反应的各个分子的分析势能函数. 对于 T + OD 反应的碰撞动力学, 双原子分子 OD, OT 和 DT 的势能函数采用 Murrell Sorbie 势能函数形式, 三原子分子 DTO 的势能函数采用多体项展式理论确定, 各分子势能函数的研究方法及其具体参数见文献[15].

碰撞反应体系的势能函数确定以后, 由 Monte

* 中国工程物理研究院科学技术发展基金 (批准号: 20030867, 03H377) 资助的课题.

† E-mail: peonyzhu@sina.com

Carlo 准经典轨线法^[16,17]求解给定势能函数下的哈密顿运动方程. 对于三粒子的保守体系,为了完整地描述体系在指定时间所处的状态,必须说明这三个质点的位置和速度,因此需要 9 个坐标和 9 个动量. 设三原子体系 ABC ,三个原子的质量分别为 m_A, m_B 和 m_C ,在直角坐标系中,它们的坐标分别为 $A(q_1, q_2, q_3), B(q_4, q_5, q_6)$ 和 $C(q_7, q_8, q_9)$. 因此,三粒子体系的哈密顿运动方程有 18 个,即

$$\begin{aligned} \frac{\partial H}{\partial p_i} &= \dot{q}_i, \\ \frac{\partial H}{\partial q_i} &= -\dot{p}_i, \end{aligned} \quad (1)$$

式中 $i=1, 2, \dots, 9$. 在质心坐标系中,(1)式经坐标变换,得到相对运动的 12 个哈密顿方程为

$$\begin{aligned} \frac{\partial H_{\text{rel}}}{\partial P_i} &= \dot{Q}_i, \\ \frac{\partial H}{\partial Q_i} &= -\dot{P}_i, \end{aligned} \quad (2)$$

式中 $i=1, 2, \dots, 6$,哈密顿函数 H_{rel} 可表示为

$$H_{\text{rel}} = \frac{1}{2\mu_{BC}} \sum_{i=1}^3 P_i^2 + \frac{1}{2\mu_{A, BC}} \sum_{i=4}^6 P_i^2 + U(Q_1, Q_2, \dots, Q_6). \quad (3)$$

这里 $U(Q_1, Q_2, \dots, Q_6)$ 为分析势能函数,

$$\begin{aligned} \frac{1}{\mu_{BC}} &= \frac{1}{m_B} + \frac{1}{m_C}, \\ \frac{1}{\mu_{A, BC}} &= \frac{1}{m_A} + \frac{1}{m_B + m_C}. \end{aligned}$$

经过坐标再变换,可以建立以内坐标(R_{AB}, R_{BC}, R_{CA})表示的势能函数的 12 个哈密顿运动方程. 对方程(2)进行 Runge-Kutta-Gill 法和 Adms-Moulton 法联合数值求解. 反应截面 σ_r 可表示为

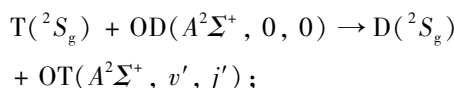
$$\begin{aligned} \sigma_r(E_i, V, J) &= 2\pi \int_0^{b_{\text{max}}} P(E_i, V, J, b) b db \\ &= \pi b_{\text{max}}^2 \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{N_r(E_i, V, J)}{N(E_i, V, J)}, \end{aligned} \quad (4)$$

式中 N 和 N_r 分别是计算的总轨线数和指定生成物的轨线数, b_{max} 为最大碰撞参数, E_i 为初始相对平动能, V 和 J 分别为振动量子数和转动量子数. 在计算中 N 取有限值,其大小由结果所允许误差的范围来确定. 本文实际计算 10000 条轨线. b_{max} 的确定方法是预先给定初始平动能 E_i ,选取一系列碰撞参数进行试算,试算中 N 取 1000,取刚好处于非弹性碰撞和弹性碰撞临界状态时的 b 值,该值即为最大碰撞参数 b_{max} ^[17].

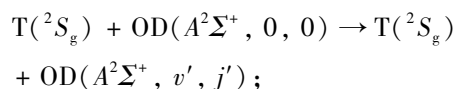
3. 结果及讨论

3.1. T + OD(0,0) 碰撞的轨线计算

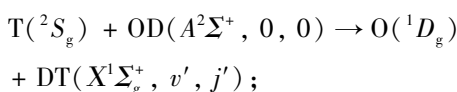
T 原子碰撞 OD 分子的初始相对平动能 E_i 选定为 1.6736, 2.5104, 3.3472, 8.3680, 16.736, 25.104, 33.472, 54.392, 75.312, 92.048, 104.60, 121.34, 167.36, 209.20, 334.72, 418.40, 460.24, 502.08 和 627.60 $\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$, OD($A^2\Sigma^+$) 的初始振动量子数和转动量子数均取零, T 到 OD 分子质心之间的初始距离取 1 nm, OD 分子初始振动相位及体系的方位均由 Monte Carlo 方法随机选取, b^2 在 $0-b_{\text{max}}^2$ 之间均匀分布. $T(^2S_g)$ 与 OD($A^2\Sigma^+, V=0, J=0$) 碰撞后有 5 种反应通道. 通道 1 为



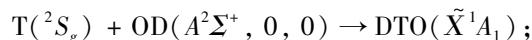
通道 2 为



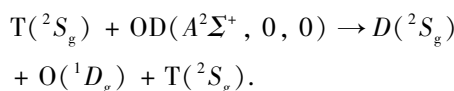
通道 3 为



通道 4 为



通道 5 为



对于不同的初始平动能,各通道上粒子数的分布情况如表 1 所列.

从表 1 可见,随初始相对平动能的增加,通道 1、通道 3 和通道 4 上的粒子数均先增加后减少,表明 T + OD 碰撞体系的络合反应 $T + OD(0,0) \rightarrow DTO(\tilde{X}^1A_1)$ 为有阈能反应,这一结果与文献[15]中用多体项展式理论计算的 DTO 分子势能曲线结果一致. 并且其交换反应也是有阈能反应. 在初始碰撞平动能较低(小于 25.104 $\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$)时,通道 4 的粒子数增加较快,有利于形成稳定的碰撞络合物 DTO. 当 E_i 大于 121.34 $\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ 时,不能形成 DTO 络合物. 碰撞能大于 54.392 $\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ 后,置换产物 DT 和 OT 先后迅速增加,随初始碰撞平动能的进一步增大,置换产物 OT 和 DT 数量减少,最后趋势为

表1 T + OD(0,0) 碰撞反应在不同初始平动能下各通道上粒子数的分布

$E_i/\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$	b_{max}/nm	通道 1	通道 2	通道 3	通道 4	通道 5	总数
1. 6736	0. 123	0	9727	9	226	0	9962
2. 5104	0. 292	0	9253	9	681	0	9943
3. 3472	0. 336	0	8860	23	1036	0	9919
8. 3680	0. 394	0	7690	36	2149	0	9875
16. 7360	0. 398	0	7239	92	2499	0	9830
25. 1040	0. 392	0	7191	178	2472	0	9841
33. 4720	0. 385	0	7505	273	2089	0	9867
54. 3920	0. 364	0	8302	517	1061	0	9880
75. 3120	0. 343	1	8733	869	343	0	9946
92. 0480	0. 323	29	8797	1078	84	0	9988
104. 6000	0. 311	92	8720	1163	19	0	9994
121. 3400	0. 291	223	8435	1331	2	0	9991
167. 3600	0. 288	588	8039	1363	0	0	9990
209. 2000	0. 276	741	7824	1425	0	0	9990
334. 7200	0. 262	756	7846	1388	0	0	9990
418. 4000	0. 261	638	8074	1278	0	0	9990
460. 2400	0. 256	645	8194	1143	0	14	9996
502. 0800	0. 253	572	8252	1064	0	105	9993
627. 6000	0. 244	354	8252	713	0	679	9998

分子被完全碰散成 D, T 和 O 原子.

所计算的轨线可分为非反应轨线(通道 2)和反应轨线(通道 1、通道 3、通道 4 和通道 5)两类,其中反应轨线包括交换反应(通道 1 和通道 3)、络合反应(通道 4)和完全碰散反应(通道 5). 图 1 为碰撞反应轨线的 4 种典型轨迹,它们表示了核间距随时间的变化. R_{OT} 为 O 与 T 的核间距, R_{OD} 为 O 与 D 的核间距, R_{DT} 为 D 与 T 的核间距. 图 1(a) 所示为 T + OD(0,0) 发生交换反应的轨迹. 在碰撞初期, T 原子向 OD 分子靠近, R_{OT} 和 R_{DT} 同时逐渐减小, 形成了中间体 $\text{D}\cdots\text{O}\cdots\text{T}$, 平动能 $E_i = 121.34 \text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ 时络合物的寿命为 $0.7 \times 10^{-13} \text{ s}$, 为短寿命络合物, 很快分解为 OT 和 D. 图 1(c) 所示为 T + OD(0,0) 发生络合反应的轨迹. 由于反应势能面的势阱较深 (10.07 eV)^[15], 在初始平动能不太大(小于 $121.34 \text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$) 时, 入射 T 原子插入 OD 分子中, 随着 T 原子向 OD 分子接近, 原子核间距 R_{OT} 和 R_{DT} 同时逐

渐减小, 最终在一定区间作上下振荡, 逃离时间大于 $9.8 \times 10^{-12} \text{ s}$, 形成稳定的 DTO 络合物分子. 随初始平动能的增大, 该反应产物先是置换出 DT 和 OT, 最后的趋势是完全碰散成 D, T 和 O 原子, 如图 1(d) 所示.

3.2. T + OD(0,0) 碰撞的反应截面

为了确定 T + OD(0,0) 碰撞反应通道 1、通道 3 和通道 4 的反应截面, 计算了大量不同初始状态的碰撞轨线, 使其具有统计分布的规律. 对于给定的 E_i, V, J 和 b_{max} , 反应截面可根据(4)式来计算. 在实际计算中, N 不必无穷大, 只要计算到反应概率趋于一个明显常数即可. 本文在确定最大碰撞参数 b_{max} 时, 取 N 为 1000, 在确定反应截面 σ_r 时, 取 N 为 10000. T + OD(0,0) 体系的反应截面 σ_r 计算结果列于表 2, 其中 $\sigma_r(1)$, $\sigma_r(3)$ 和 $\sigma_r(4)$ 分别为通道 1、通道 3 和通道 4 的反应截面.

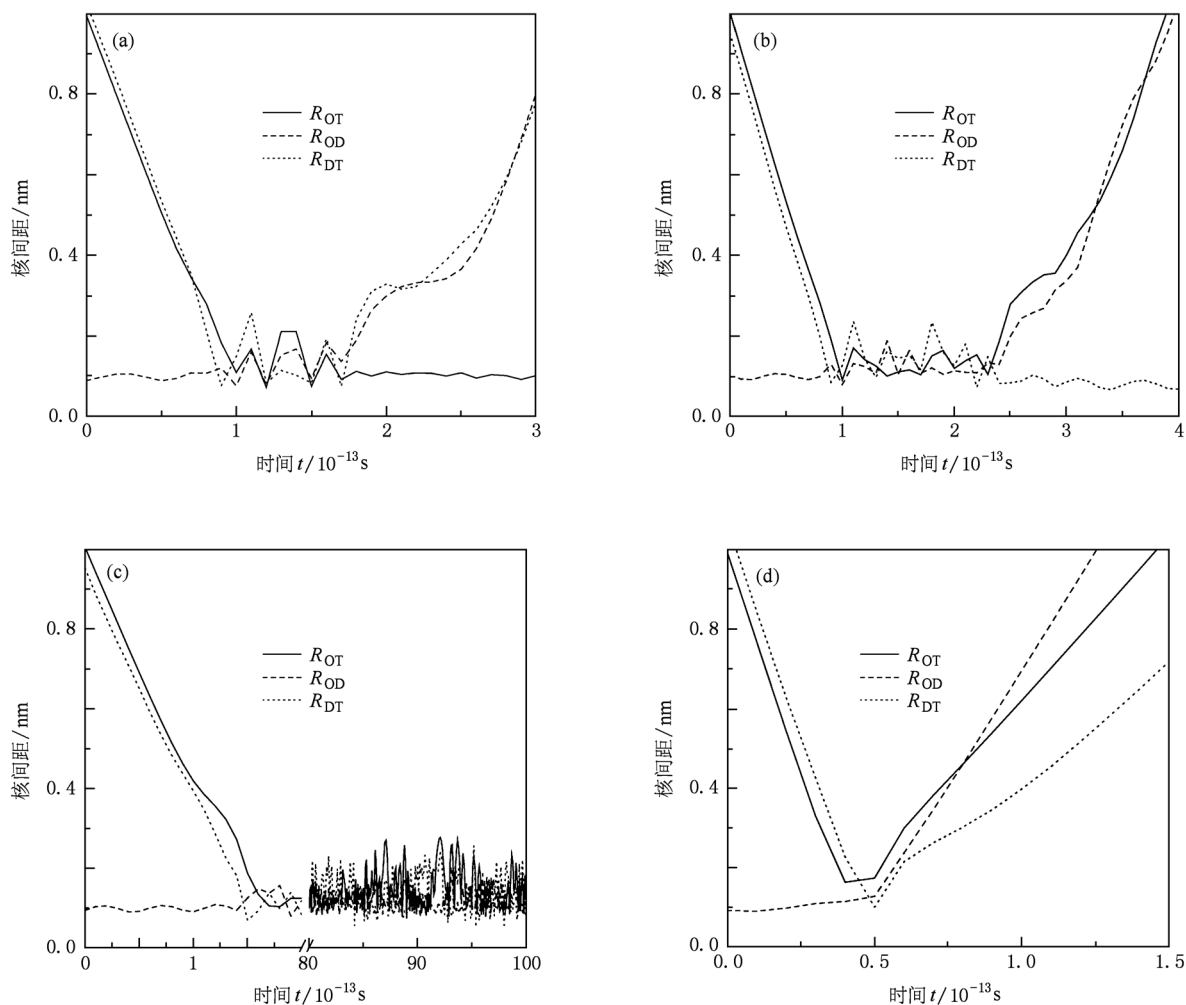


图1 T + OD(0,0)反应轨迹 (a)通道1, $E_t = 121.34$ kJ/mol, $b = 0.062797$ nm; (b)通道3, $E_t = 121.34$ kJ/mol, $b = 0.19434$ nm; (c)通道4, $E_t = 54.392$ kJ/mol, $b = 0.25801$ nm; (d)通道5, $E_t = 627.60$ kJ/mol, $b = 0.061635$ nm

从表2和图2可见,随初始相对平动能的增加, T + OD(0,0)碰撞的通道1、通道3和通道4的最大碰撞参数和反应截面 σ_r 均先增加后减小,反应截面 σ_r 有一最大值. 因而,通道1、通道3和通道4反应过程表现为有阈能反应,三者的阈能依次降低,说明在低能区更易得到络合物. 随碰撞能量的增加, T 将首先置换出 O 得到 DT 气体,平动能继续增加,将置换出 D. 比较 T + OD(0,0)和 D + OT(0,0)体系^[18]碰撞反应的各通道粒子数分布、反应轨线及各反应截面,发现两者的动力学反应特征存在非一致性,这与 DTO 分子势能曲线的特征相符^[15]. 这种非一致性是由于 D 和 T 原子的同位素效应所致.

3.3. T + OD(0,0)碰撞反应产物的角度分布

在质心系中,产物的角度分布可以用微分反应

截面表示为

$$q_r(E_t, V, J, \theta) = \pi b_{\max}^2 \frac{N_r(E_t, V, J, \theta)}{N(E_t, V, J, \theta) \Delta\theta}, \quad (5)$$

其中 b_{\max} 是最大碰撞参数, N_r 是在给定的初始条件 (E_t, V, J) 下产物在 $\theta - \Delta\theta$ 范围内的轨线数, N 为计算的总轨线数. 轨线数在散射角度内的分布如图3所示,图中 $N_r(1), N_r(2), N_r(3)$ 和 $N_r(4)$ 分别为通道1、通道2、通道3和通道4的轨线数.

图3为不同初始平动能下,通道1、通道2、通道3和通道4上碰撞产物的散射角分布. 对于非反应碰撞通道2,该过程发生的是直接碰撞,在初始平动能较低时产物向后散射大于向前散射,表现为向后定向散射,在初始平动能较高时产物向前散射大于向后散射,表现为向前定向散射. 对于络合物通道4,在较低的初始平动能时表现为向前定向散射. 从图3(a)和(c)可以看出,通道1和通道3的置

表2 T + OD(0,0) 碰撞的平动能 E_t 与反应截面 σ_r 和最大碰撞参数 b_{\max} 的关系

$E_t/\text{kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$	b_{\max}/nm	$\sigma_r(1)/10^{-3}\text{nm}^2$	$\sigma_r(3)/10^{-3}\text{nm}^2$	$\sigma_r(4)/10^{-3}\text{nm}^2$
1. 6736	0. 123	0. 00000	0. 04278	1. 07410
2. 5104	0. 292	0. 00000	0. 24108	18. 24100
3. 3472	0. 336	0. 00000	0. 81575	36. 74400
8. 3680	0. 394	0. 00000	1. 75570	104. 80000
16. 7360	0. 398	0. 00000	4. 57830	124. 36000
25. 1040	0. 392	0. 00000	8. 59290	119. 33000
33. 4720	0. 385	0. 00000	12. 71200	97. 27700
54. 3920	0. 364	0. 00000	21. 52000	44. 16400
75. 3120	0. 343	0. 03696	32. 11900	12. 67700
92. 0480	0. 323	0. 95050	35. 33200	2. 75320
104. 6000	0. 311	2. 79550	35. 33900	0. 57733
121. 3400	0. 291	5. 93250	35. 40900	0. 05321
167. 3600	0. 288	15. 32200	35. 51600	0. 00000
209. 2000	0. 276	17. 73300	34. 10200	0. 00000
334. 7200	0. 262	16. 30300	29. 93200	0. 00000
418. 4000	0. 261	13. 65400	27. 35000	0. 00000
460. 2400	0. 256	13. 28000	23. 53300	0. 00000
502. 0800	0. 253	11. 50200	21. 39600	0. 00000
627. 6000	0. 244	6. 62110	13. 33600	0. 00000

换碰撞反应产物散射角分布无固定规律. 因为在置
换反应碰撞中生成了短寿命的络合物中间体, O...D

键在振荡过程中断开, 产物随机散开, 表现为非定
向散射.

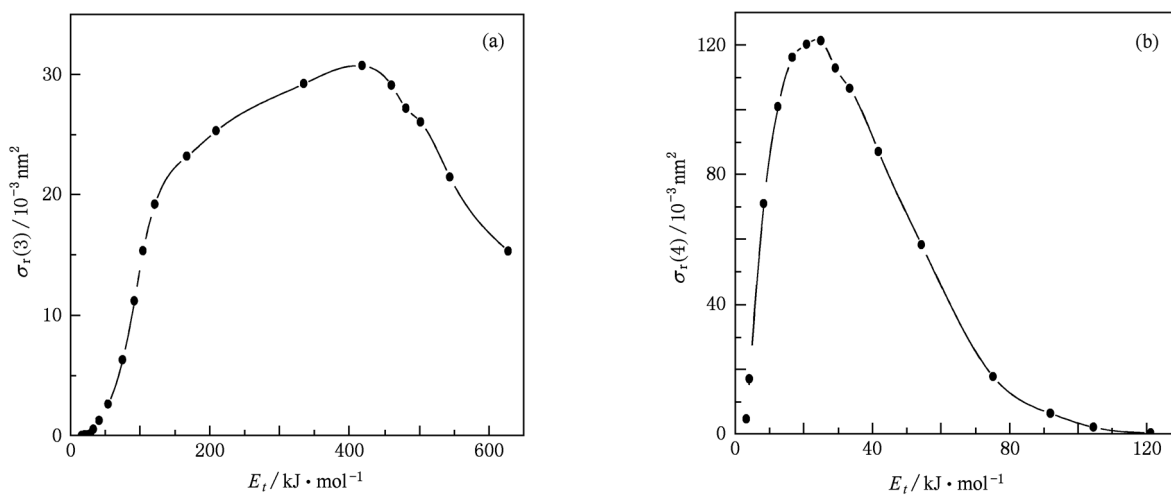


图2 T + OD(0,0) 碰撞反应的 E_t - σ_r 关系曲线 (a)通道3, (b)通道4

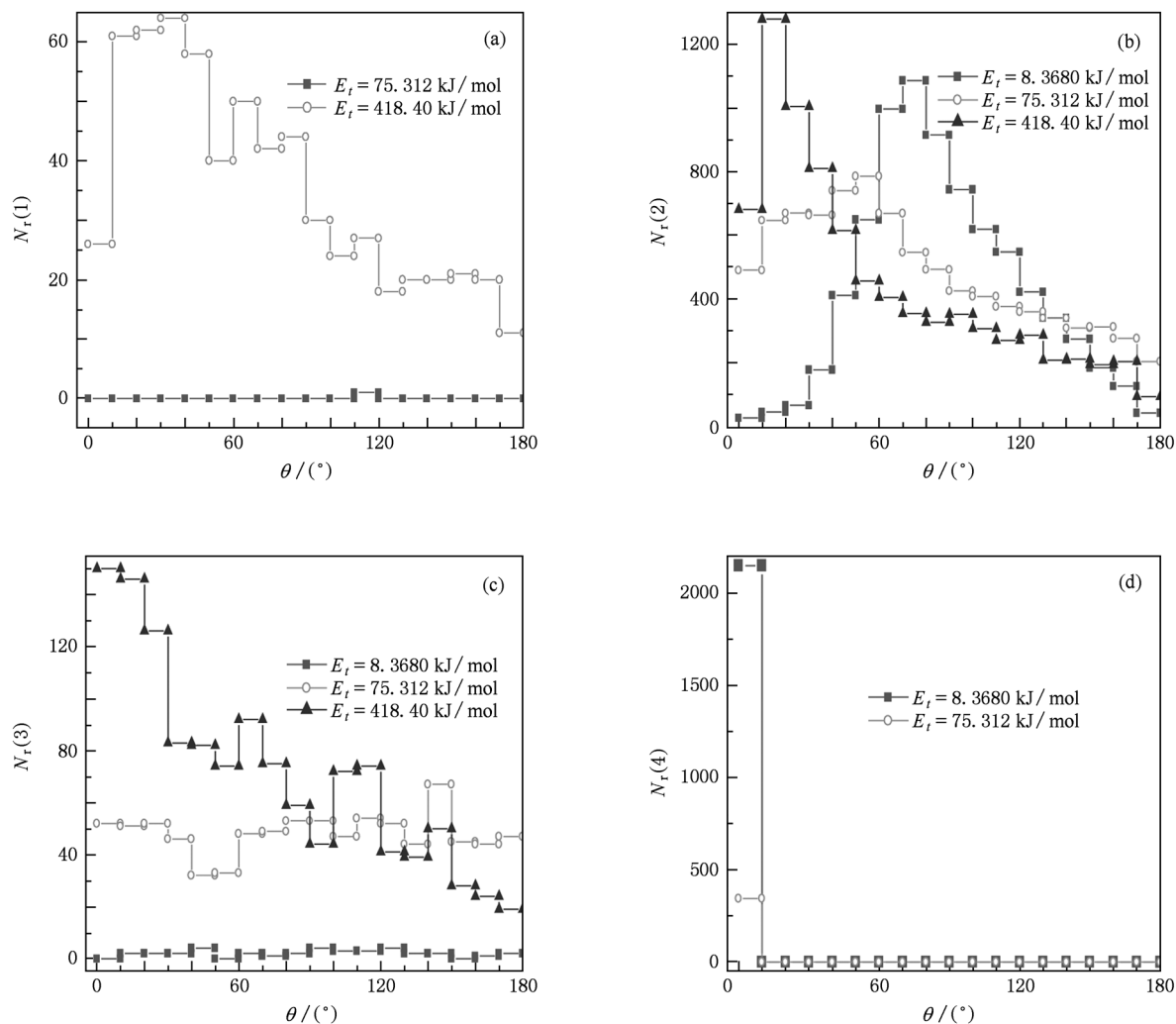


图3 T + OD(0,0)碰撞反应产物轨线数在散射角度内的分布 (a)通道1,(b)通道2,(c)通道3,(d)通道4

4. 结 论

在已获得 DTO(\tilde{X}^1A_1) 分子的多体展式分析势能函数的基础上,用准经典的 Monte Carlo 轨迹法研究了 T + OD(0,0) 碰撞体系的分子反应动力学过程,得到在不同的初始平动能 E_t 下,散射粒子在各个反应通道上的分布、散射粒子的经典轨线和散射角分布及各碰撞反应截面. 结果表明:随碰撞能量的增加,散射粒子在通道1、通道3和通道4上的粒子数均先增加后减小,三个反应通道的最大碰撞参数 b_{\max} 和反应截面 σ_r 随初始平动能的增加均先增加后减小,说明 T + OD 碰撞体系的络合反应是一个有阈能反应. 这与用多体项展式理论计算得到的

DTO 分子势能曲线的结果一致,并且其交换反应也是有阈能反应. 在碰撞初始平动能较低(小于 $121.34 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$)时,该反应可以生成长寿命的 DTO(\tilde{X}^1A_1) 络合物,随初始平动能的增加,T 将首先置换出 O 得到 DT 气体,再置换出 D,最终分子被完全碰散成 D,T 和 O 原子. 对于络合反应通道4,在较低的初始平动能时表现为向前定向散射. 交换反应通道1和通道3的置换碰撞反应产物散射角分布无固定规律.

由于 D 和 T 原子的同位素效应,T + OD(0,0) 碰撞体系和 D + OT(0,0) 碰撞体系的各通道粒子数分布、反应轨线及各反应截面等动力学反应特征存在非一致性,这与 DTO 分子势能曲线的特征相符.

- [1] Spagnolo D A, Everatt A E, Seto P W K 1988 *Fusion Sci. Technol.* **14** 501
- [2] Lu G D, Jiang G Q, Shen C S 1995 *Fusion Sci. Technol.* **28** 672
- [3] Alekseev I A, Bondarenko S D, Fedorchenko O A 2002 *Fusion Sci. Technol.* **41** 1097
- [4] Zhong Z K, Zhang L, Sun Y, Chen Y L, Zhu Z H 2004 *At. Ener. Sci. Technol.* **38** 148 (in Chinese) [钟正坤、张莉、孙颖、陈银亮、朱正和 2004 原子能科学技术 **38** 148]
- [5] Luo Y M, Wang H Y, Liu J 2005 *At. Ener. Sci. Technol.* **39** 49 (in Chinese) [罗阳明、王和义、刘俊 2005 原子能科学技术 **39** 49]
- [6] Pyper J W, Chritensen L D 1975 *J. Chem. Phys.* **62** 2596
- [7] Wang W L, Emanuel S, Joao B 2006 *J. Chem. Phys.* **124** 074305
- [8] Chu T S, Zhang X, Han K L 2005 *J. Chem. Phys.* **122** 214301
- [9] Chu T S, Zhang Y, Han K L 2006 *Int. Rev. Phys. Chem.* **25** 201
- [10] Meng D Q, Jiang G, Liu X Y, Luo D L, Zhang W X, Zhu Z H 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 1268 (in Chinese) [蒙大桥、蒋刚、刘晓亚、罗德礼、张万箱、朱正和 2001 物理学报 **50** 1268]
- [11] Xue W D, Wang H Y, Zhu Z H, Zhang G F, Zou L X, Chen C A, Sun Y 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2503 (in Chinese) [薛卫东、王红艳、朱正和、张广丰、邹乐西、陈长安、孙颖 2002 物理学报 **51** 2503]
- [12] Luo D L, Meng D Q, Zhu Z H 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 2438 (in Chinese) [罗德礼、蒙大桥、朱正和 2003 物理学报 **52** 2438]
- [13] Liu X Y, Zhu Z H, Jiang G, Chen H D 2005 *Sci. China G* **35** 415 (in Chinese) [刘晓亚、朱正和、蒋刚、陈涵德 2005 中国科学 G **35** 415]
- [14] Feng X, Zhu Z H, Liu X Y, Yang X D, Huang W 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 8217 (in Chinese) [冯兴、朱正和、刘晓亚、杨向东、黄玮 2009 物理学报 **58** 8217]
- [15] Zhu Z Y, Zhu Z H, Zhang L, Wang H Y, Gao T 2009 *Sci. China G* **39** 378 (in Chinese) [朱志艳、朱正和、张莉、王红艳、高涛 2009 中国科学 G **39** 378]
- [16] Han K L, He G Z, Lou N Q 1996 *J. Chem. Phys.* **105** 8699
- [17] Gao T, Wang H Y, Huang Z, Tan M L, Zhu Z H, Sun Y, Wang X L, Fu Y B 1999 *J. At. Mol. Phys.* **16** 162 (in Chinese) [高涛、王红艳、黄整、谭明亮、朱正和、孙颖、汪小琳、傅依备 1999 原子与分子物理学报 **16** 162]
- [18] Zhu Z Y, Zhu Z H, Zhang L, Hong F Y, Zhu H W, Shi S Q 2011 *Sci. China G* **41** 267 (in Chinese) [朱志艳、朱正和、张莉、洪方昱、朱晖文、施思齐 2011 中国科学 G **41** 267]

Isotope interchange reaction dynamics of the T + OD system*

Zhu Zhi-Yan^{1)†} Zhu Zheng-He²⁾ Zhang Li²⁾ Li Pei-Gang¹⁾ Tang Wei-Hua¹⁾ Zheng Ying-Ying¹⁾

1) (Center for Optoelectronics Materials and Devices, Zhejiang Sci-Tech University, Hangzhou 310018, China)

2) (Institute of Atomic and Molecular Physics, Sichuan University, Chengdu 610065, China)

(Received 22 November 2010; revised manuscript received 6 July 2011)

Abstract

The atomic and molecular reaction dynamics for T + OD have been studied based on the potential energy function of DTO(\tilde{X}^1A_1) by Monte Carlo quasi-classical trajectory approach. It is shown that the reaction T + OD \rightarrow DTO with a long-lived complex has a threshold energy at low collision energy, which accords with the potential curve. The interchange reaction increases with collision energy increasing, until the DTO molecules decompose into D, T, and O completely, and these reactions have threshold energies too. The trajectories and the collision cross-sections of T + OD(0, 0) and D + OT(0, 0) are different due to the isotopic effect of D atom and T atom.

Keywords: DTO, molecular reaction dynamics, trajectory, reactive section

PACS: 31.50.-x, 31.15.xv, 34.10.+x, 34.20.-b

* Project supported by the Science and Technology Development Foundation of China Academy of Engineering Physics (Grant Nos. 20030867, 03H377).

† E-mail: peonyzhu@sina.com