

金纳米环双体尺寸和耦合效应对表面等离子体共振特性的影响*

孙中华¹⁾ 王红艳^{1)†} 王辉¹⁾ 张志东¹⁾ 张中月²⁾

1) (西南交通大学物理科学与技术学院, 成都 610031)

2) (西南大学物理科学与技术学院, 重庆 400715)

(2011年5月25日收到; 2011年11月16日收到修改稿)

采用离散偶极子近似方法系统地研究了金纳米环双体的消光光谱及其电场分布. 计算结果表明, 金纳米环双体在耦合作用下的共振消光峰对应着不同振动模式, 改变金纳米环双体的排列方式、间距和尺寸大小, 其表面等离子体共振消光峰发生红移或蓝移. 因此可以通过对金纳米环双体结构参数和排列方式的设定, 调节其表面等离子体共振消光峰的位置. 电场分布表明, 水平排列的金纳米环双体较单个金纳米环产生更强的局部表面增强电场. 适当的小间距, 较大的内外半径的金纳米环水平阵列更适合做表面增强拉曼散射的衬底, 在生物分子检测等领域具有潜在的应用.

关键词: 金纳米环, 共振消光谱, 耦合效应, 表面增强电场

PACS: 52.35.Mw, 78.67.-n, 78.68.-m

1 引言

当入射光频率和金属纳米粒子内部自由电子振动频率相等时, 纳米结构产生强烈的光吸收和散射, 从而产生金属纳米粒子的表面等离子体共振消光现象, 且在金属纳米粒子局部产生电场强度远大于入射电场强度, 这种现象称局域表面等离子体共振 (localized surface plasmon resonance, LSPR)^[1]. 表面增强拉曼散射 (surface enhanced Raman scattering, SERS) 信号强度正比于表面增强电场的四次方^[2], 因此金属纳米粒子的局域表面增强电场是产生 SERS 现象的重要原因^[2,3]. 纳米结构的表面等离子体共振强烈地依赖于纳米结构的组分、形状、尺寸、周围介质及纳米结构间的排列方式^[4-9]. 球形、椭球形、三角形、楔形、长方形、圆柱形等实心纳米结构理论和实验研究较多, 而空

心结构在不降低增强效果的情况下还可以减少材料的用量^[10,11]. 我们的研究表明, 由于金纳米环的内外表面都产生极化电荷, 具有相同高度和外半径的单个金纳米环比单个金纳米盘产生更强的表面增强电场^[12].

单个纳米结构产生的电场增强强度和区域小于纳米结构阵列, 实验制备和实际 SERS 应用中采用的衬底都是纳米结构阵列, 此时纳米结构间的耦合作用不容忽略. 纳米结构间耦合能产生更强电场增强^[13], 耦合作用下表面等离子体共振峰的位置强烈地依赖于纳米结构间的间距和排列方式^[14,15]. 2010年, Teo 小组和 Banaee 小组分别采用电子束平版印刷术 (electron-beam lithography) 制备出间距为 0—30 nm 水平排列的金纳米环双体^[16] 和间距约 25 nm 水平排列的金纳米环双体阵列^[17]. 理论上, Banaee 小组采用时域有限差分法计算了单个金纳米环和金纳米环双体的共振消光峰和电场分布,

* 国家自然科学基金 (批准号: 10974161, 11174237, 11004160), 中央高校基本科研业务费专项基金 (批准号: SWJTU09CX079, 2010ZT06, XDJK2009C078) 和优秀学生资助项目 (批准号: 2010XS45) 资助的课题.

† E-mail: xnjtdx3515@163.com

但是他们仅研究了水平排列的金纳米环双体间距约 25 nm 的电场分布情况, 没有考虑金纳米环之间小间距的耦合作用以及耦合作用可能对其表面等离子体共振模式产生的影响. Banaee 小组采用时域有限差分法研究单个金纳米环和金纳米环双体共振波长分别较实验的偏大 50 nm, 69 nm, 且模拟增强电场得到金纳米环双体较单个金纳米环增强了仅 2.5 倍. 本文模拟表明, 间距减小能增强约 29 倍和 41 倍.

本文采用水平排列和竖直排列的金纳米环双体简单模拟纳米环的点阵, 运用离散偶极子近似方法 (discrete dipole approximation, DDA) 系统地研究金纳米环双体的尺寸大小、间距及排列方式对其表面等离子体共振消光峰和局域表面增强电场的影响, 分析耦合作用下的共振消光峰对应的振动模式以及耦合作用对其表面等离子体共振模式和局域表面增强电场的影响.

2 离散偶极子近似方法

离散偶极子近似方法 (DDA) 是用大量分立位于间距为 d 的立方格点上的离散偶极子模拟任意形状粒子电磁散射与电磁吸收的数值算法. 计算中, 采用一个偶极子代表一个立方格, 偶极子的极化强度决定于入射电场和其他偶极子在其位置处激发的电场, 所有偶极子的极化强度构成一个自洽的方程, 通过高效迭代算法求解得到所有偶极子的极化强度, 其他物理量可以由偶极子极化强度求得 [18,19].

本文采用 DDA 方法, 分别研究水平和竖直排列的金纳米环双体的消光光谱和近电场分布. 图 1 中 L 表示金纳米环双体的间距, 金纳米环的高度固定为 10 nm, 环厚度为内外半径差, 固定为 10 nm. 金纳米环双体视为有 N 个偶极子构成的立方矩阵, 分割纳米结构的格子 (lattice spacing) 尺寸为 $d = 1$ nm, 此尺寸满足了离散偶极子近似计算收敛的需要, 即使入射光波长满足 $|m|kd < 0.5$, 其中 m 为金纳米环的介电常数, $k = 2\pi/\lambda$ 为入射光波矢. 金纳米环双体的体积为 $V (V = Nd^3)$, 则有效半径为 $a_{\text{eff}} = (3V/4\pi)^{1/3}$, 消光系数 $Q_{\text{ext}} = C_{\text{ext}}/\pi a_{\text{eff}}^2$, 其中 C_{ext} 为消光截面. 假定入射光的偏振方向垂直于纳米环的轴

线, 入射光平行于纳米环的轴线传播, 不同入射光波长下的金的复介电常数采用文献 [20] 中的实验值.

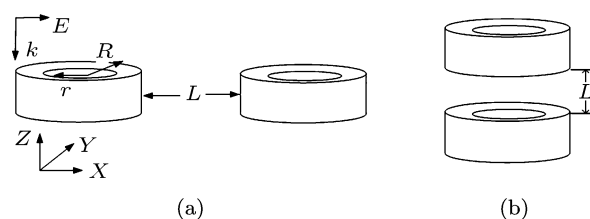


图 1 (a) 水平排列金纳米环双体; (b) 竖直排列金纳米环双体

3 结果与讨论

3.1 金纳米环双体的间距对共振消光峰影响

为了研究不同排列方式的金纳米环双体的间距对其表面等离子体共振消光峰影响, 固定金纳米环外半径 R 为 24 nm, 内半径 r 为 14 nm, 高为 10 nm, 改变间距 L , 得到如图 2 所示表面等离子体消光光谱, 图 3 为在入射光场作用下两种排列方式的极化电场的分布情况.

图 2(a) 表明水平排列的金纳米环双体, 随着间距减小, 在耦合作用下, 共振消光峰从 695 nm ($L = 60$ nm) 红移到 1110 nm ($L = 0$ nm), 共振消光峰红移了 505 nm. 间距越小, 峰位移动越大. 因为当入射光的电场方向垂直于金纳米环双体的主轴时, 在入射光场的极化下, 极化电荷分布在金纳米环的左右两侧, 由于邻近的金纳米环的不同极化电荷间的吸引 (图 3(a)), 使每个金纳米环的表面电荷的回复力被削弱, 共振频率降低 [21–23]. 所以随着间距 L 减小, 环间耦合增加, 共振消光峰红移 (图 2(a)).

当金纳米环双体竖直排列时, 共振消光峰从 695 nm ($L = 50$ nm) 蓝移到 634 nm ($L = 0$ nm), 与水平排列的金纳米环双体共振消光峰移动方向相反 (图 2(b)). 对于竖直排列的金纳米环双体, 每个金纳米环表面同侧产生相同极化电荷分布 (图 3(b)), 环间耦合作用下, 每个金纳米环的表面电荷的回复力增强, 金纳米环共振频率增大. 因此随着 L 减小, 环间耦合增加, 共振消光峰蓝移 (图 2(b)).

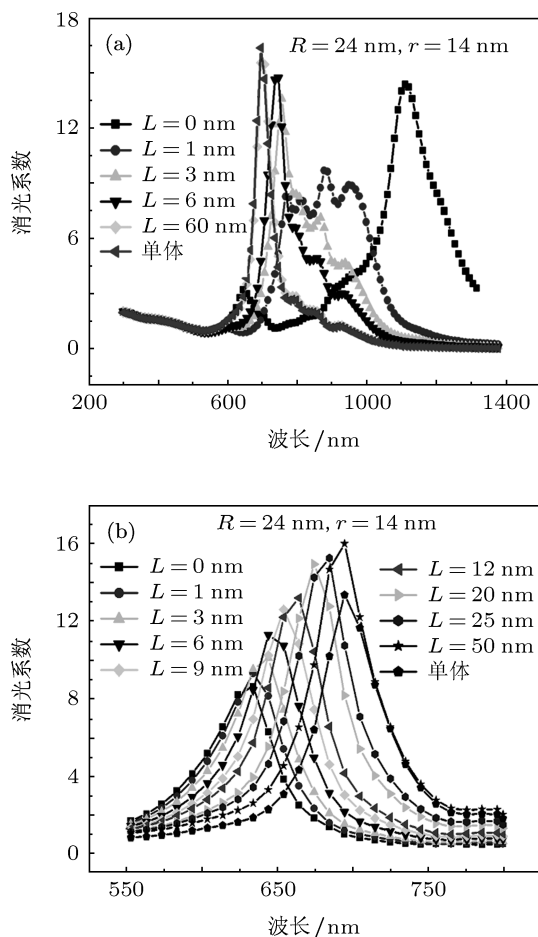


图2 不同间距 (L) 的水平 (a) 和竖直 (b) 排列的金纳米环双体的消光光谱

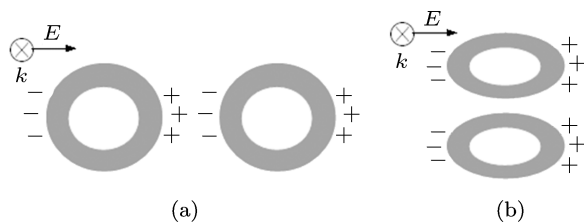


图3 金纳米环双体的极化电场的分布

不同排列方式时, 共振消光峰的形状不同, 对应不同耦合振动模式. 水平排列时, 当金纳米环双体相接触 ($L = 0$ nm), 在 1110 nm 和 644 nm 处出现了两个共振消光峰, 分别对应着表面等离子体共振的偶极子振动模式和四极子振动模式^[24]. 当金纳米环双体的间距为 1 nm 时, 出现了四个明显的共振消光峰, 主要是由邻近的金纳米环间相互耦合作用形成的 (图 4). 在入射光场作用下, 金纳米环的内外表面产生极化电荷 (图 4(a), 4(b)) 形成极化偶极

子, 其电子振动的有效路径分别为 L_4 和 L_2 . 极化电荷之间又产生反对称耦合和对称耦合, 对应的表面等离子体共振模式分别为图 4(c) 和图 4(d)^[25,26] 所示的极化偶极子. 表面等离子体共振消光峰依赖于偶极子中的电子振动的有效距离^[4,12], 四种偶极子振动模式中的电子振动的有效路径间的关系为 $L_1 < L_2 < L_3 < L_4$, 因此产生四个明显的表面等离子体共振消光峰. 随着金纳米环双体的间距变大, 这四个共振消光峰减弱, 当金纳米环双体的间距为 6 nm 时, 四个共振消光峰不明显. 当金纳米环双体的间距大于 60 nm 时, 金纳米环双体共振消光峰的位置与单金纳米环重叠, 无极化电荷的耦合作用.

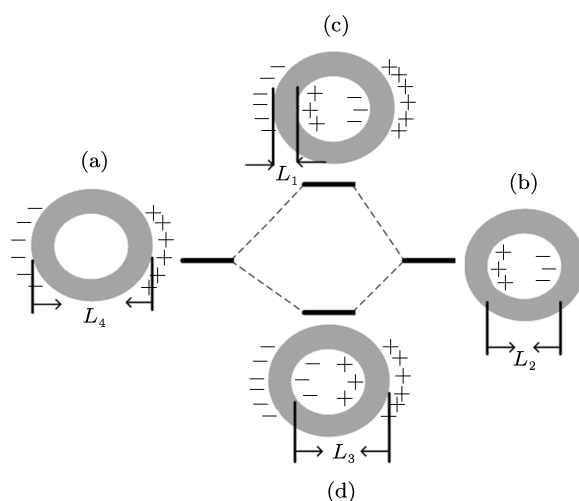


图4 水平排列的金纳米环的耦合模式

竖直排列时, 极化电荷分布在金纳米环双体的同侧如图 3(b) 所示, 环间耦合作用只是增加了相邻偶极子的强度, 即增强了每个金纳米环的表面电荷的回复力, 从而增加了金纳米环共振频率. 因此不同的间距, 只出现一个表面等离子体共振消光峰, 其振动模式类似于单环的内外表面电荷形成的偶极子振动模式. 随着 L 减小, 环间耦合增加, 共振消光峰蓝移. 当 $L = 0$ 时, 相当于一个高 20 nm 的内外半径等同的金纳米单环. 因此可以通过调整金纳米环双体的间距和排列方式, 改变共振消光峰的位置, 设计出具有特殊光学性质的金纳米环双体.

3.2 金纳米环双体的间距对电场分布影响

在表面等离子体共振频率入射时, 纳米结构

表面电场相对强度表示为, $\gamma = |\mathbf{E}|^2/|\mathbf{E}_0|^2$, $|\mathbf{E}|$ 为金纳米环表面近电场的大小, $|\mathbf{E}_0|$ 是入射电场的大小.

为了研究不同间距的水平排列的金纳米环双

体和三体在表面等离子体共振消光峰处电场分布, 保持金纳米环的内外半径为 14 nm 和 24 nm, 高为 10 nm, 模拟在表面等离子体共振频率入射时, 金纳米环表面电场分布 (图 5).

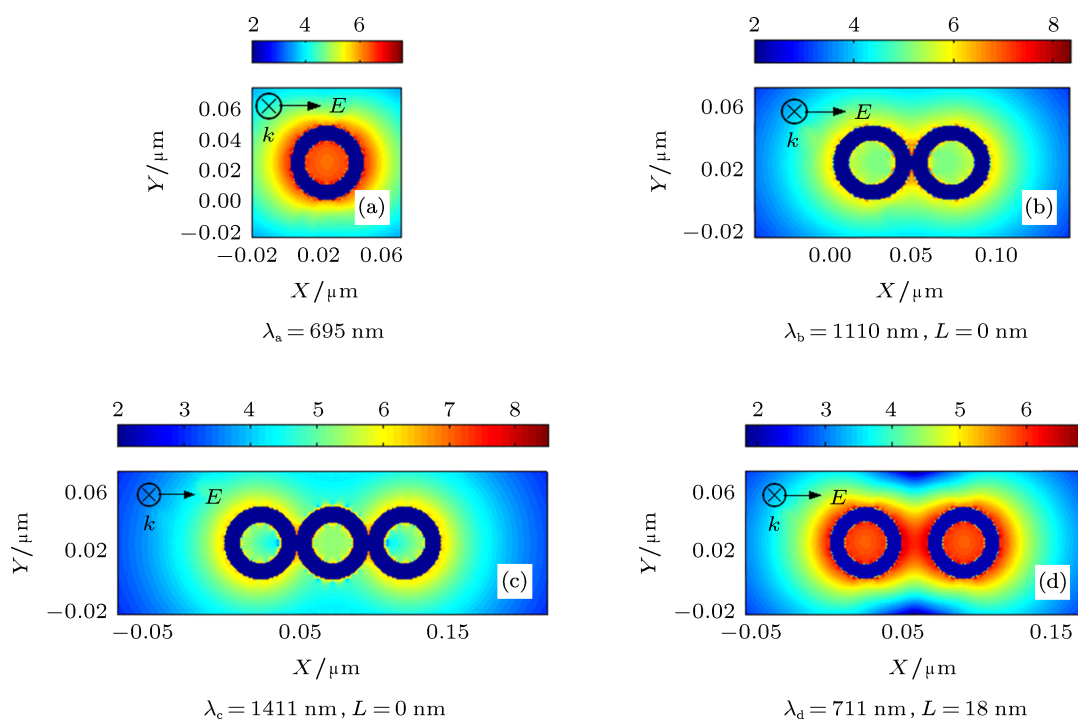


图 5 不同间距的水平排列的金纳米环结构的电场分布 ($\log_{10}\gamma$)

单个金纳米环 (图 5(a)) 在表面等离子体共振消光峰 (695 nm) 处, XY 面上产生的最大电场增强 (7.6×10^6), 而相同尺寸的水平排列的金纳米环双体和三体间距为 0 nm 时, 在表面等离子体共振消光峰 (1110 nm, 1411 nm) 处, XY 面上产生的最大电场增强相应地达到了 2.2×10^8 (图 5(b)), 3.1×10^8 (图 5(c)), 较单个金纳米环 (图 5(a)) 增强了约 29 倍和 41 倍. 水平排列的金纳米环双体和三体的增强电场分布在金纳米环内外表面附近, 且在两个环之间的耦合区域电场增强最强. 在光电场作用下, 水平排列的金纳米环三体耦合作用大于双体, 在 XY 面上产生更强的局域表面增强电场.

尽管紧密相连的金纳米环双体和三体, 在相连处的 XY 面产生了最大增强电场, 但是增强区域较小, 仅出现在接触点附近. 为了获得较大面积的表面电场增强区域, 金纳米环之间应该保持一定的间距. 水平排列的金纳米环双体的间距与最大表面增

强电场的关系曲线如图 6 所示, 表面最大电场增强随着间距增大而成指数衰减. 因为随着间距变大, 耦合减弱, 入射光的波长为共振消光峰波长时, 表面最大电场增强逐渐减弱. 间距大于 5 nm 时, 耦合产生最大电场增强与单个纳米环最大电场增强基本处于一个数量级. 如图 5(d) 所示, 当水平排列的金纳米环双体间距为 18 nm 时, 在表面等离子体共振消光峰 (711 nm) 处, XY 面上产生最大电场增强仅为 7.3×10^6 .

对于竖直排列的金纳米环双体, 保持相同的内外半径和高度 ($r = 14$ nm, $R = 24$ nm, $H = 10$ nm), 间距 L 分别取 0 nm, 6 nm 表面电场分布模拟结果如图 7 所示. 竖直排列的金纳米环二体间距为 0 nm, 在其等离子体共振消光峰 (634 nm) 处, XZ 面产生最大电场增强为 4.8×10^6 (图 7(a)); 竖直排列的金纳米环二体间距为 6 nm, XZ 面产生最大电场增强为 5.1×10^6 . 图 5(b) 和图 7(a) 结果表

明, 当入射光的电场方向平行于金纳米环双体的主轴时, 具有相同尺寸 ($R = 24 \text{ nm}$, $r = 14 \text{ nm}$) 和间距 (0 nm), 竖直排列较水平排列的金纳米环双体产生的局域表面增强电场弱, 环间的耦合作用不明显.

当水平排列金纳米环双体相互接触时, 如图 3(a) 和图 5(b) 所示, 入射光的电场方向平行于金纳米环双体的主轴, 电子可在两环间交换, 相当于尺寸增大, 产生偶极子和四极子振动, 从而产生较强表面增强电场; 当竖直排列的金纳米环双体相互接触, 相当于单金纳米环的高度增加, 而入射光的电场方向平行于金纳米环双体的主轴, 故对竖直的电场分布影响不大, 如图 3(b) 和图 7(a) 所示.

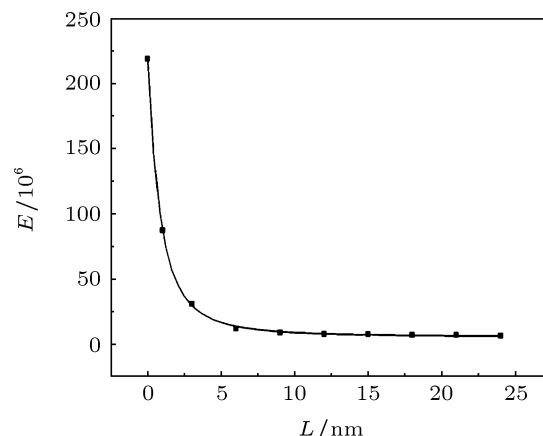


图 6 水平排列的金纳米环双体的间距与最大电场增强的关系

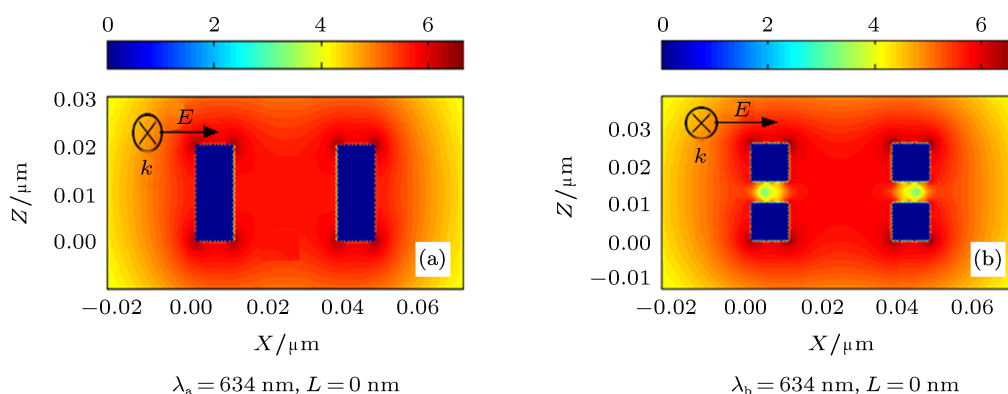


图 7 竖直排列金纳米环二体的表面电场分布 ($\log_{10}\gamma$)

3.3 金纳米环双体的尺寸大小对共振消光峰影响

图 6 表明, 当金纳米环双体间距大于 5 nm 时, 纳米结构之间的耦合作用几乎消失, 金纳米环双体尺寸大小是影响表面等离子体共振消光峰的主要因素. 设定金纳米环双体的间距 ($L = 6 \text{ nm}$), 高 ($h = 10 \text{ nm}$), 厚度 ($R - r = 10 \text{ nm}$), 同时改变金纳米环双体的内外半径, 计算不同内外半径所对应的表面等离子体消光谱线 (图 8).

从图 8 可以看出, 保持金纳米环双体的间距不变 ($L = 6 \text{ nm}$), 当内外半径同时减小时, 水平排列的金纳米环双体产生的共振消光峰从 746 nm ($R = 24 \text{ nm}$, $r = 14 \text{ nm}$) 蓝移到 594 nm ($R = 15 \text{ nm}$, $r = 5 \text{ nm}$), 共振消光峰蓝移了 152 nm ; 竖直排列的金纳米环双体产生的共振消光峰从 644 nm

($R = 24 \text{ nm}$, $r = 14 \text{ nm}$) 蓝移到 543 nm ($R = 15 \text{ nm}$, $r = 5 \text{ nm}$), 共振消光峰蓝移了 101 nm . 类似于单个金纳米环, 电子有效振动距离取决于金纳米环的最大的直径, 当金纳米环双体的内外半径减小, 金纳米环双体中每个环的电子有效振动距离减小, 电子振动的频率变大, 故随着金纳米环双体的尺寸减小, 其表面等离子体共振消光峰发生蓝移 [4,12].

3.4 金纳米环双体的尺寸大小对电场分布影响

保持相同间距 ($L = 6 \text{ nm}$), 不同尺寸的金纳米环双体表面增强电场分布如图 9 所示. 内半径为 5 nm , 外半径为 15 nm , 在表面等离子体共振消光峰 (694 nm) 处, 水平排列的金纳米环双体在 XY

面上产生的最大电场增强为 2.7×10^6 (图 9(a)); 当内半径为 14 nm, 外半径为 24 nm 时, 在其表面等离子体共振消光峰 (746 nm) 处, XY 面上产生的最大电场增强达到 1.2×10^7 (图 9(b)), 表面电场增强了近 5 倍. 因此对于相同间距的水平排列的金纳米环双体, 其尺寸增大, 振荡电荷增多, 在 XY 面上产生电场增强增大. 尺寸较大的水平排列的金纳米环双

体更适合做表面增强拉曼散射的衬底. 比较图 7(b) 和图 9(b) 发现, 当入射光的电场方向平行于金纳米环双体的主轴时, 具有相同尺寸 ($R = 24 \text{ nm}$, $r = 14 \text{ nm}$) 和间距 (6 nm), 水平排列金纳米环双体较竖直排列金纳米环双体产生的局域表面增强电场强, 因此增加纳米阵列的层数对表面增强电场的影响不大.

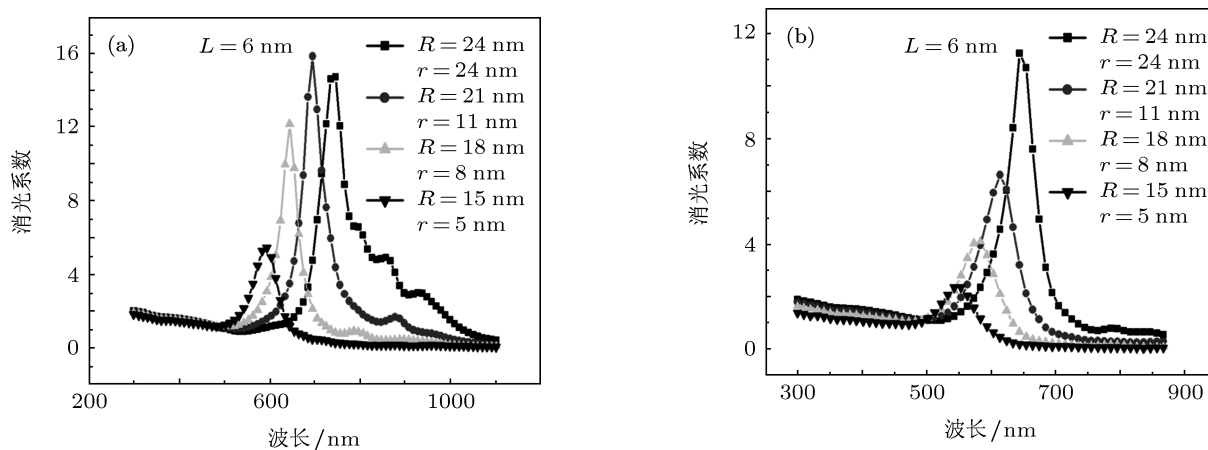


图 8 相同间距 ($L = 6 \text{ nm}$), 不同尺寸的水平排列 (a) 和竖直排列 (b) 的金纳米环双体的消光光谱

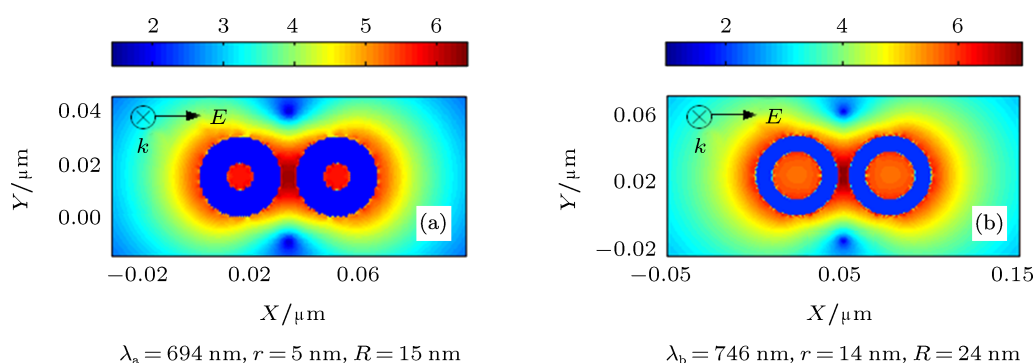


图 9 金纳米环的电场分布 ($\log_{10} \gamma$)

4 结论

离散偶极子近似方法计算结果表明, 水平排列和竖直排列的金纳米环双体, 随着其尺寸变小, 水平排列间距增大, 竖直排列的间距减小, 其表面等离子体共振消光峰发生蓝移. 不同的排列方式和不同的间距时, 极化电荷形成偶极子的耦合方式不同,

对应不同的共振消光峰和振动模式, 耦合效应是由纳米结构的大小与其间距之间的相对关系决定的.

金纳米环结构表面电场分布模拟发现, 水平排列较竖直排列的金纳米环双体产生的局域表面增强电场强; 水平排列时, 金纳米环三体较双体产生更强的局域表面增强电场, 金纳米环双体比单体产生更强的局域表面增强电场. 随着金纳米环双体水

平间距减小,产生的局域表面增强电场增大,水平排列的金纳米环双体相接触时产生最大的局部表面增强电场.

SERS 信号强度正比于表面增强电场的四次方^[2],因此为了产生较强的局域表面增强电场,需

要综合考虑金纳米环双体的尺寸大小、间距和排列方式对局域表面增强电场的影响.采用适当的小间距,较大的内外半径的金纳米环水平阵列作为表面增强拉曼散射的衬底,将大幅度增强局域电场,从而提高 SERS 信号强度.

- [1] Liz-Marzán LM 2006 *Langmuir* **22** 32
- [2] Tian Z Q, Ren B, Wu D Y 2002 *J. Phys. Chem. B* **106** 9463
- [3] Campion A, Kambhampati P 1998 *Chem. Soc. Rev.* **27** 241
- [4] Zhang Z Y, Zhao Y P 2007 *J. Appl. Phys.* **102** 113308
- [5] Mo D, Liu J, Duan J L, Yao H J, Hou M D, Sun Y M, Chen Y F, Xue Z H, Zhang L 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 2599 (in Chinese) [莫丹, 刘杰, 段敬来, 姚会军, 侯明东, 孙友梅, 陈艳峰, 薛智浩, 张苓 2009 物理学报 **58** 2599]
- [6] Wu D J, Xu X D, Liu X J 2008 *Solid State Commun.* **146** 7
- [7] Li X L, Zhang Z D, Wang H Y, Xiong Z H, Zhang Z Y 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 047807 (in Chinese) [李雪莲, 张志东, 王红艳, 熊祖洪, 张中月 2011 物理学报 **60** 047807]
- [8] Zhao S, Yin J B, Zhao X P 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 3302 (in Chinese) [赵晟, 尹剑波, 赵晓鹏 2010 物理学报 **59** 3302]
- [9] Barbillon G, Bijeon J L, Plain J, Royer P 2009 *Thin Solid Films.* **517** 2997
- [10] Li S, Zhong M L, Zhang L J, Xiong Z H, Zhang Z Y 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 087806 (in Chinese) [李山, 钟明亮, 张礼杰, 熊祖洪, 张中月 2011 物理学报 **60** 087806]
- [11] Zhang Z Y, Xiong Z H 2010 *Scientia Sinica Phys Mech & Astron* **40** 330 (in Chinese) [张中月, 熊祖洪 2010 中国科学: 物理学力学天文学 **40** 330]
- [12] Sun Z H, Wang H Y, Zhang Z D, Zhang Z Y 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 047808 (in Chinese) [孙中华, 王红艳, 张志东, 张中月 2011 物理学报 **60** 047808]
- [13] Liu Y J, Zhang Z Y, Zhao Y P 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 173106
- [14] Su K H, Wei Q H, Zhang X, Mock J J, Smith D R, Schultz S 2003 *Nano Lett.* **3** 1087
- [15] Zhao L L, Kelly K L, Schatz G C 2003 *J. Phys. Chem. B* **107** 7343
- [16] Teo S L, Lin V K, Marty R, Large N, Llado E A, Arbouet A, Girard C, Aizpurua J, Tripathy S, Mlayah A 2010 *Opt. Express* **18** 22271
- [17] Banaee M G, Crozier K B. 2010 *Opt. Lett.* **35** 760
- [18] Purcell E M, Pennypacker C R 1973 *Astrophys. J.* **186** 705
- [19] Draine B T, Flatau P J 2008 *J. Opt. Soc. Am. A* **25** 2693
- [20] Johnson P B, Christy R W 1972 *Phys. Rev. B* **6** 4370
- [21] Jain P K, Huang W, El-Sayed M A 2007 *Nano Lett.* **7** 2080
- [22] Rechberger W, Hohenau A, Leitner A, Krenn J R, Lamprecht B, Aussenegg F R 2003 *Opt. Commun.* **220** 137
- [23] Jain P K, El-Sayed M A 2010 *Chem. Phys. Lett.* **487** 153
- [24] Gunnarsson L, Rindzevicius T, Prikulis J, Kasemo B, Käll M, Zou S L, Schatz G C 2005 *J. Phys. Chem. B* **109** 1079
- [25] Prodan E, Radloff C, Halas N J, Nordlander P 2003 *Science* **302** 419
- [26] Aizpurua J, Hanarp P, Sutherland D S, Käll M, Bryant G W, Abajo F J G D 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 5

Effects of size and electric field coupling on the surface plasmon properties of gold nanoring dimer structures*

Sun Zhong-Hua¹⁾ Wang Hong-Yan^{1)†} Wang Hui¹ Zhang Zhi-Dong¹
Zhang Zhong-Yue²

1) (*School of Physical Science and Technology, Southwest Jiaotong University, Chengdu 610031, China*)

2) (*School of Physical Science and Technology, Southwest University, Chongqing 400715, China*)

(Received 25 May 2011; revised manuscript received 16 November 2011)

Abstract

The extinction spectra and the electric field distribution of the surface plasmon coupling of gold nanoring dimer in horizontal and vertical arrangements are calculated by the discrete dipole approximation method. It is found that the peaks of extinction spectra and electric field distribution of the surface plasmon coupling are sensitive to the size and the separation gap between gold nanorings. It is demonstrated that the peaks of extinction spectra will be red-shifted or blue-shifted due to the different structure parameters of gold nanorings. Because of the effect of the polarization charge coupling between adjacent gold nanoring, the local electric field distribution is found to be stronger for the gold nanoring dimer and trimer in horizontal arrangement than for the single gold nanoring. The horizontal gold nanoring trimer has stronger enhancement of local electric field than the dimer. It shows that the greater separation gap has the weaker local electric field distribution for the gold nanoring dimer and trimer in horizontal arrangement. Therefore the gold nanoring horizontal array is predicted to be an ideal surface enhanced Raman scattering substrate and is expected to have potential applications in biological and chemical detections.

Keywords: gold nanoring structures, plasmon resonance extinction spectra, effect coupling, surface enhanced electric field

PACS: 52.35.Mw, 78.67.-n, 78.68.-m

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10974161, 11174237 and 11004160), the Fundamental Research Funds for the Central Universities (Grant Nos. SWJTU09CX079, 2010ZT06 and XDJK2009C078), and the Outstanding Student aid Programs (Grant No. 2010XS45).

† E-mail: xnjtdx3515@163.com