

质子对 BaTiO₃ 薄膜辐照损伤的计算机模拟*

朱勇 李宝华 谢国锋†

(湘潭大学材料与光电物理学院, 湘潭 411105)

(2011年2月11日收到; 2011年6月17日收到修改稿)

本文先应用分子动力学模拟 BaTiO₃ 体系在初级击出原子 (primary knock-on atom, PKA) 轰击下缺陷产生和复合的动力学过程, 模拟结果表明: PKA 的方向和能量对缺陷数目有重要影响, 并计算了 Ba, O 和 Ti 原子的平均位移阈能分别为 69 eV, 51 eV 和 123 eV, 远大于 SRIM 程序默认的位移阈能 25 eV. 然后应用蒙特卡罗软件包 SRIM, 模拟质子在 BaTiO₃ 薄膜中的能量损失过程, 比较位移阈能对模拟结果的影响, 分析质子能量和入射角度对空位数量以及分布的影响. 结果表明空位数量随着质子能量增加而增加, 增加的速率随能量的增加是降低的; 当入射角度大于 60°, 空位数量随入射角增大而明显减少.

关键词: 分子动力学, 铁电薄膜, 辐照损伤

PACS: 61.80.-x

1 引言

空间技术是对国家发展具有重要意义的前沿技术. 由于空间环境的特殊性, 应用在空间技术中的各种材料或者元器件必须能适应空间的辐射环境, 例如 Van Allen 辐射带对各种轨道的航天器都有一定影响, 空间服役的各种电子器件受到其较强的辐照. Van Allen 辐射带主要由不同能量的质子和电子组成, 其能量分布范围在 10^{-1} — 10^3 MeV. 人们一直致力于抗辐射新材料与器件的探索和研究. 科学家们发现钙钛矿结构铁电材料有很强的抗辐射性能, Scott 等人用锆钛酸铅 PZT 铁电薄膜制成电容器, 进行了总剂量和剂量率辐照实验^[1], 结果表明, 铁电电容的抗总剂量能力超过 5 Mrad (1 rad = 10^{-2} Gy), 抗剂量率的能力可达 2.0×10^{11} rad/s. Colc 等人用快中子、⁶⁰Co γ 射线和 10 keV X 射线辐照 PZT 电容^[2], 结果表明, 其抗中子辐照能力大于 $1.0 \times 10^{15}/\text{cm}^2$, 抗总剂量能力大于 3.0×10^7 rad, 抗剂量率能力大于 8.0×10^{11} rad/s. 而在相同条件下, Si 材料表现出了严重的辐照损伤效应. 钙钛矿铁电薄膜材料具有一系列重要特性, 如铁电开关效应、介电性、压电效应、热释电效应、声光效应等, 可以利用上述诸效应制作铁电存

储器和其他多功能器件, 在空间技术中的应用前景极为广泛^[3], 铁电薄膜材料及器件在各种高能粒子辐射作用下的结构损伤和性能变化以及失效机理成为人们更加关注的科学问题. Gruverman 等人用紫外线辐照 PbTiO₃ 薄膜, 发现其电滞回线产生了明显的印记行为^[4]. Stanishevsky 等人用 50 keV 的 Ga⁺ 离子束辐照 PZT 薄膜, 发现由于铅和氧损失以及镓的聚集, 损伤层的化学成分发生明显变化, 退火后铁电性能不能恢复, 变为介电层^[5].

由于 PZT 材料含有毒性金属元素铅, 极易对人体和环境造成伤害, 目前在铁电材料领域研究的重点已经从传统的含铅铁电材料 PZT 转移到不含铅材料上来. 人们已经对含铅铁电薄膜的辐照效应开展了一系列实验研究, 而对无铅铁电薄膜的辐照效应研究刚刚起步, Li 等人用 10 Mrad 的电子束辐照掺铋钛酸钡 Bi_{3.15}Nd_{0.85}Ti₃O₁₂ (BNT) 薄膜, 发现辐照后薄膜的剩余极化强度和漏电流减少^[6]. BaTiO₃ 是一种具有优良铁电、压电、绝缘性能且环保不含铅的钙钛矿铁电材料, 在电子学和光学器件中有广泛应用^[7]. 为了从原子层面研究质子对钙钛矿铁电材料微观结构的损失, 特别是 O 空位的数量与分布, 我们以 BaTiO₃ 为研究对象, 应用分子动力学计算了 Ba, O 和 Ti 原子的位移阈能, 应用蒙特卡罗程

* 国家自然科学基金 (批准号: 10702059) 资助的课题.

† E-mail: gfxie@xtu.edu.cn

序 SRIM 模拟质子束在 BaTiO_3 中的能量损失过程, 分析质子能量和入射角度对空位数量和分布的影响. 目前尚无质子对 BaTiO_3 薄膜辐射效应的实验报道, 由于我们计算的位移阈能比较可靠, 而 SRIM 程序成功地模拟了很多材料的质子辐照损伤, 所以本文的模拟结果对于分析质子辐照下 BaTiO_3 薄膜结构的损伤以及空位的数量和分布有一定的参考意义.

2 模拟方法

分子动力学方法非常适合模拟在初级击出原子 PKA 的轰击下, 缺陷的产生和复合等动力学过程^[8]. BaTiO_3 的相互作用势函数为

$$U_{ij} = \frac{q_i q_j}{r_{ij}} + A \exp\left(\frac{-r_{ij}}{\rho}\right) - \frac{C}{r_{ij}^6}, \quad (1)$$

式中右边第一项为长程库仑相互作用, 后两项表示短程 Buckingham 势的排斥和吸引项, 其中 q_i, q_j 分别表示离子 i 和 j 的电量, r_{ij} 表示两者之间的距离, A 是反映键能强弱的参数, ρ 是与键长有关的参数, C 表示偶极相互作用与 r^6 的比例. 本文的势参数采用我们前期工作优化取得的参数, 前期我们应用灵敏度分析与遗传算法相结合优化了 BaTiO_3 的相互作用势参数^[9], 分子动力学计算表明该势函数可以较精确地模拟 BaTiO_3 的结构和弹性常数等力学性能. 由于 PKA 原子的动能较大, 原子相互碰撞时原子间距可以很小, 而 Buckingham 势比较软, 排斥力不够, 所以当原子距离小于 1.5 \AA 时, 本文采用 ZBL 势^[10].

PKA 原子的运动方向不同, 原子碰撞的情况是不同的. 例如 Ti 原子作为 PKA, 沿 $[001]$, $[010]$ 或 $[100]$ 方向运动都将与 O 正碰, 而 $[101]$ 方向将从两个 O 原子和两个 Ba 原子之间掠射. O 原子 (Ba-O 平面的 O 原子) 的 $[001]$, $[010]$ 和 $[100]$ 方向碰撞类型是不同的, $[001]$ 方向与 Ti 原子正碰, $[010]$ 和 $[100]$ 方向都是从两个 Ba 原子之间掠射. 所以在模拟中必须引入不同运动方向的 PKA 原子.

当入射粒子能量较高时, 粒子的沉积深度以及级联碰撞的时间尺度都超出了分子动力学计算量的极限, 需要应用蒙特卡罗方法来模拟辐照损伤. SRIM 是模拟计算离子在靶材中能量损失和分布的程序组. 它采用蒙特卡罗方法, 利用计算机模拟跟踪一大批入射粒子的运动. 粒子的位置、能量损失以及次级粒子的各种参数都在整个跟踪过程中存

储下来, 最后得到各种所需物理量的期望值和相应的统计误差. 本文应用该软件模拟质子对 BaTiO_3 的辐照损伤, 分析质子在 BaTiO_3 中的能量损失过程, 以及质子能量和入射角度对空位数量及分布的影响. 原子的位移阈能是 SRIM 软件的关键参数, 它直接关系到模拟结果是否准确, 在软件的数据库中对氧化物各种原子的位移阈能都默认 25 eV , 这显然与实际不符, 所以我们应用分子动力学计算了 BaTiO_3 三种原子的位移阈能.

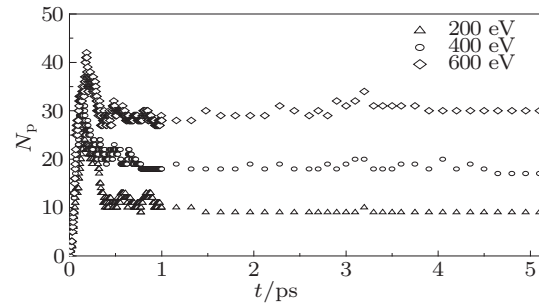


图 1 缺陷数量随时间的变化

3 模拟结果与分析

分子动力学模拟发现在 PKA 原子的撞击下, 系统的演化经历了三个阶段. 第一阶段是 PKA 原子的弹道运动阶段, 这个阶段时间非常短, 小于 0.2 ps , 在 PKA 撞击下, 产生了许多次级击出原子, 形成了很多 Frenkel 缺陷. 第二阶段是缺陷的快速扩散阶段, 该阶段的持续时间大约 1 ps , 热钉扎效应产生, 次级击出原子与周围原子碰撞, 将动能转变为热能, 体系温度升高, 局域的高温促进了缺陷的退火, 绝大部分 Frenkel 缺陷在该阶段恢复. 第三阶段是间隙原子的慢速扩散阶段, 这个阶段的温度比第二阶段下降了很多, 且基本稳定, 剩下的缺陷在这个阶段通过跳跃机理概率性的恢复. 这个阶段持续时间很长, 一直到模拟结束都属于该阶段. 图 1 表示 200, 400 和 600 eV 的 Ba 原子作为 PKA (初始速度在 $[001]$ 方向) 形成的缺陷数目随时间的变化, 图中可以清晰地反映了这三个阶段.

O 空位的数量与分布对钙钛矿结构铁电材料铁电性能的退化及失效机理有决定性的影响. O 空位的形成和恢复的动力学过程与 PKA 的运动方向以及能量之间的关系是我们非常关心的问题. 我们分别对 O 原子的平均缺陷对数目 N_p 和平均离位原子数目 N_d 随 PKA 能量的变化做了统计 (O 原子作为 PKA, PKA 的初始运动方向分别为 3 个低密

勒方向 [0 0 1], [1 0 1] 和 [1 1 0]), 如图 2 所示.

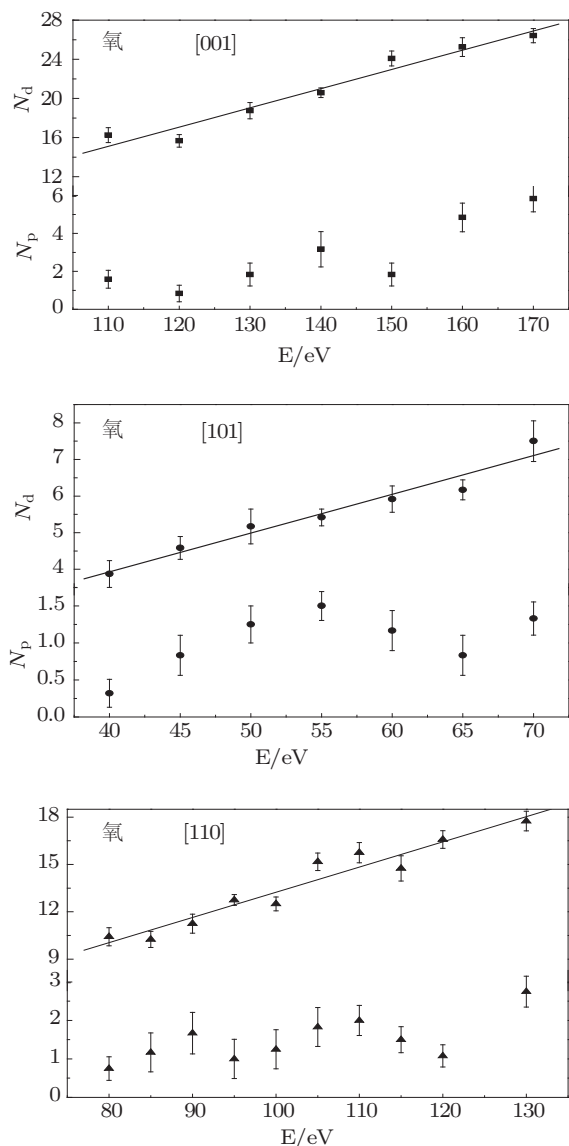


图 2 不同方向运动的 O 原子作为 PKA 形成的平均离位原子和缺陷数目随 PKA 能量的变化关系

缺陷对的数目是模拟结束后统计的最终稳定的缺陷, 而离位原子数是指在模拟过程中最大的离位原子数目. 图 2 表明在低能碰撞过程中, 平均离位原子数与平均缺陷对数目随 PKA 能量的变化关系是不同的. 平均离位原子数随着 PKA 能量的增加有着近似线性递增关系, 而平均缺陷对数目随着能量的增加呈现出起伏变化. 这是因为随着 PKA 能量的增大, 在能量向外传递过程中 PKA 原子与其他原子间的二体碰撞次数明显增加, 导致离位原子数目也在增加. 而 PKA 动能增加使得次级击出原子增加, 碰撞更剧烈, 导致局部温度升高, 而局部的高温促进了缺陷的退火, 不是所有离位原子都能

形成稳定缺陷, 局域温度的升高会促进缺陷的恢复, 二者竞争的结果使得原子平均缺陷对数目随 PKA 能量的增加而起伏变化. O 原子作为 PKA 形成的缺陷类型很单纯都是 O 缺陷 (见表 1), 而且 O 原子的质量轻, 局部高温对原子的热涨落贡献会使质量轻的 O 原子更容易回复到平衡位置, 所以 O 原子的这种现象尤为明显.

PKA 的位移阈能 (即产生稳定的 Frenkel 缺陷所需的最小动能) 是进行蒙特卡罗模拟的关键参数, 它还可以反映材料的抗辐射性能的强弱. 我们分别选取 Ti, Ba 和 O 原子作为 PKA, 给予其一定的初始动能和运动方向, 模拟 10 个 ps 判断能否产生稳定的 Frenkel 缺陷, 用二分法不断搜索 PKA 的初始动能, 直到该动能的 PKA 恰好能产生稳定的 Frenkel 缺陷, 就将这个动能定义为该 PKA 在该方向的位移阈能. 由于该方法计算的位移阈能强烈依赖初始构型, 所以对多个初始构型进行平均. 表 1 给出了 Ti, Ba 和 O 原子 (Ba-O 平面) 作为 PKA 在一些有代表意义的低密勒方向的位移阈能和对应的缺陷类型.

表 1 不同方向不同种类 PKA 的位移阈能和相应的缺陷类型

	PKA 的初始运动方向	位移阈能/eV	缺陷类型
Ti 原子	[001]	85	$V_{Ti}I^{Ti}V_OI^O$
	[011]	80	$V_{Ti}I^{Ti}V_OI^O$
	[111]	204	$V_{Ti}I^{Ti}O_{Ba}$
Ba 原子	[001]	30	$V_{Ba}I^{Ba}$
	[011]	57	$V_{Ba}I^O O_{Ba}$
	[111]	119	$2V_{Ba}2I^{Ba}$
O 原子	[100]	29	$2V_O2I^O$
	[001]	138	V_OI^O
	[101]	66	V_OI^O
	[110]	89	V_OI^O
	[111]	58	$2V_O2I^O$

从表 1 可以看出, 不同种类的 PKA 原子沿不同初始方向运动, 其位移阈能和缺陷类型是不同的, 平均而言 Ti 原子的位移阈能最高, 这是由晶体结构、键能强弱以及原子配位数决定的. Ti 原子位于氧八面体的中心, 无论 Ti 原子 (PKA) 向哪个方向运动, 产生的缺陷除了 Ti 的 Frenkel 缺陷, 还会产生其他原子的缺陷. [1 0 0] 与 [0 0 1] 方向的 O 原子差别是巨大的, 原因在于它们的碰撞类型是不同的. [1 0 0] 方向的 O 原子是从两个 Ba 原子之间掠射, 它的位移阈能较低, 而 [0 0 1] 方向的 O 原子与 Ti 原子正碰, 由于 Ti 原子质量大、Ti—O 键能强以及 Ti

的配位数高, 所以 O 原子必须拥有很高的能量才能将 Ti 原子击出. 另外从表中可以看出 BaTiO₃ 各种原子的位移阈能是很高的, 这也是其抗辐射能力远远强于硅锗等半导体材料的原因 (半导体材料位移阈能通常在 10—20 eV).

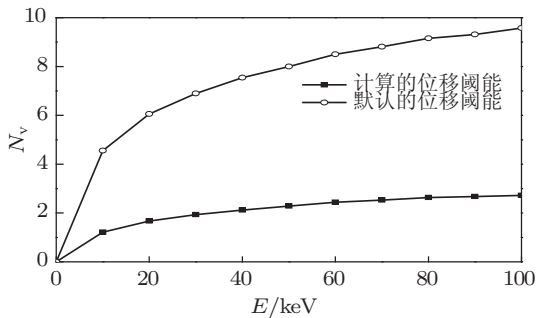


图3 平均一个质子产生的总空位数与质子能量的关系

Thomas 等人用分子动力学模拟方法分别计算了 Sr, O 和 Ti 原子在 [001],[101] 和 [111] 方向的位移阈能 [11], 然后将三个方向取平均值, 作为 Sr,O 和 Ti 原子的平均位移阈能, 分别为 70 eV, 50 eV

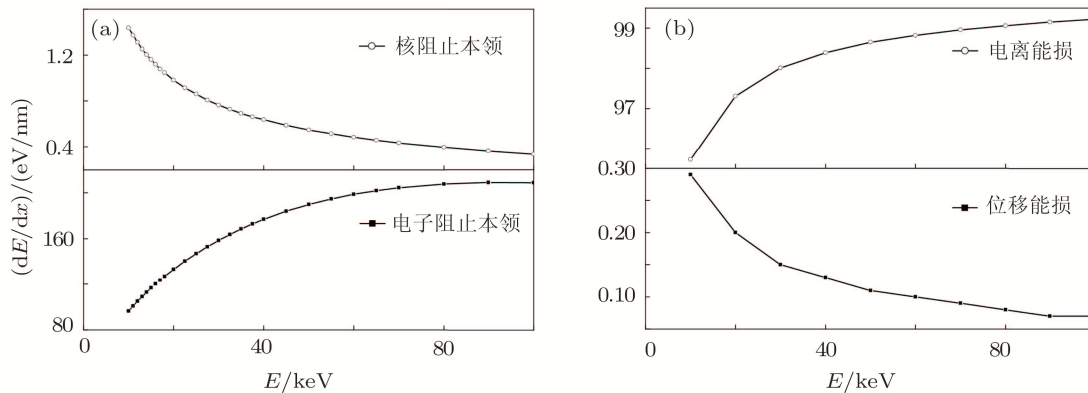


图4 阻止本领 (a) 以及能量损失率 (b) 与质子能量的关系

SRIM 程序中各种氧化物默认的位移阈能都是 25 eV, 根据我们分子动力学的模拟结果, 将 Ba,O 和 Ti 原子的平均位移阈能分别设置为 69 eV, 51 eV 和 123 eV, 应用 SRIM 软件模拟质子束对 BaTiO₃ 薄膜的辐射损伤. 图 3 表示的是平均一个质子在 BaTiO₃ 薄膜中产生的总空位数与质子能量的关系, 图中比较了本文计算的位移阈能与默认位移阈能作为参数对模拟结果的差别. 从图 3 可以看出位移阈能对于缺陷数目的影响是巨大的, 本文计算的位移阈能远大于 SRIM 默认的 25 eV, 空位数目只有用默认阈能计算得到的 (27±2)%.

和 140 eV. 对我们的计算结果作同样处理, 可得 Ba, O 和 Ti 原子的平均位移阈能分别为 69 eV, 51 eV 和 123 eV. BaTiO₃ 和 SrTiO₃ 都是钙钛矿结构铁电体, 且晶格常数、弹性常数和结合能较为接近, 位移阈能应该也比较接近. 实验方面, Smith 等人测量了 CaTiO₃ 的位移阈能, 45±4 eV(O), 82±11 eV(Ca), 69±9 eV (Ti)^[12], 还测量了 BaTiO₃, SrTiO₃, CaZrO₃ 等多种钙钛矿晶体 O 原子的位移阈能 [13], 测量结果表明这些晶体 O 原子的位移阈能很接近, 均在 45±5 eV 的范围内, 与我们的模拟结果相近. 阳离子的位移阈能实验值与模拟值差距较大, 尤其是 Ti. 原因在于阳离子的离位过程通常造成其他离子的离位. 从表 1 可以看出, 无论哪个方向, Ti 离子离位形成的缺陷类型都不是单纯的 Ti 空位和 Ti 间隙, 而是造成了 O 或 Ba 的离位, 而实验是无法区分这一点的. 从表 1 还可以看出, 各个方向 O 的离位产生的缺陷类型就很单纯, 都是 O 空位和 O 间隙, 所以实验测量的 O 的位移阈能值可靠性比阳离子高. 通过与其他人模拟和实验工作的对比, 本文计算的 Ba,O 和 Ti 原子的平均位移阈能是可靠的.

Thomas 等人研究 Au²⁺ 和 Kr⁺ 辐照 SrTiO₃^[11], 发现用 SRIM 默认的 25 eV 位移阈能得到的峰值损伤远大于实验值, 而用分子动力学修正了位移阈能后, SRIM 模拟与实验结果比较接近. 另外从图 3 可以看出, 随着质子能量增加, 平均一个质子产生的总空位数增加, 但是增加的速率是降低的. 质子能量增加, 级联碰撞次数和反冲原子的能量都会增加, 所以空位数增加很好理解, 增加速率降低可以从质子能损来解释. 在我们研究的能量范围, 质子在 BaTiO₃ 薄膜中的能量损失主要有两种方式: 1) 入射质子与靶原子核发生

弹性碰撞, 将能量传递给靶原子, 使靶原子反冲, 这一过程质子的能量损失称为核能量损失, 产生相应的辐照效应称为位移效应; 2) 运动质子把能量传递给靶中电子, 使得一些靶原子达到激发态或者电离态, 这一过程质子的能量损失称为电子能量损失, 产生相应的辐照效应称为电离效应. 图 4(a) 表示能量为 10—100 keV 的质子在 BaTiO₃ 薄膜中的电子阻止本领和核阻止本领, 即单位路程

上质子的电离能量损失和核能量损失, 图 4(b) 表示电离效应和位移效应能量损失的比率. 图 4 表明能量为 10—100 keV 的质子在 BaTiO₃ 薄膜中电子阻止本领远大于核阻止本领, 即质子的能量损失以电离能损为主, 质子对 BaTiO₃ 薄膜的辐照效应以电离效应为主, 且随着入射质子能量的增加, 位移能量损失占的比例是减小的, 这正是总空位随能量增加的速率降低的原因.

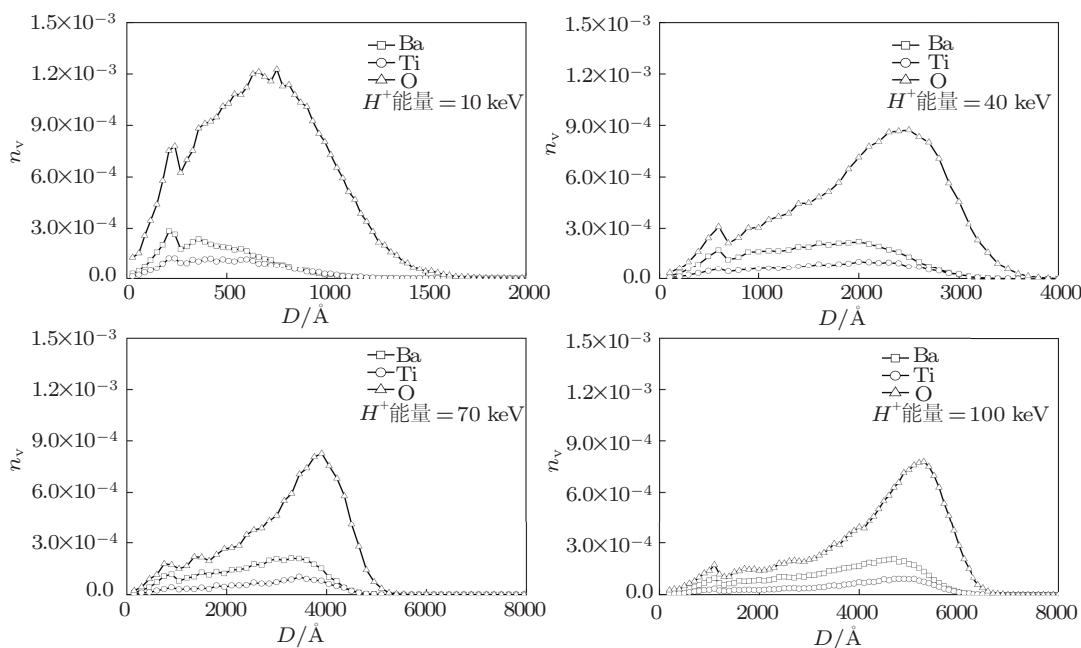


图 5 不同能量的质子垂直辐照时 BaTiO₃ 中的空位随薄膜深度的分布关系

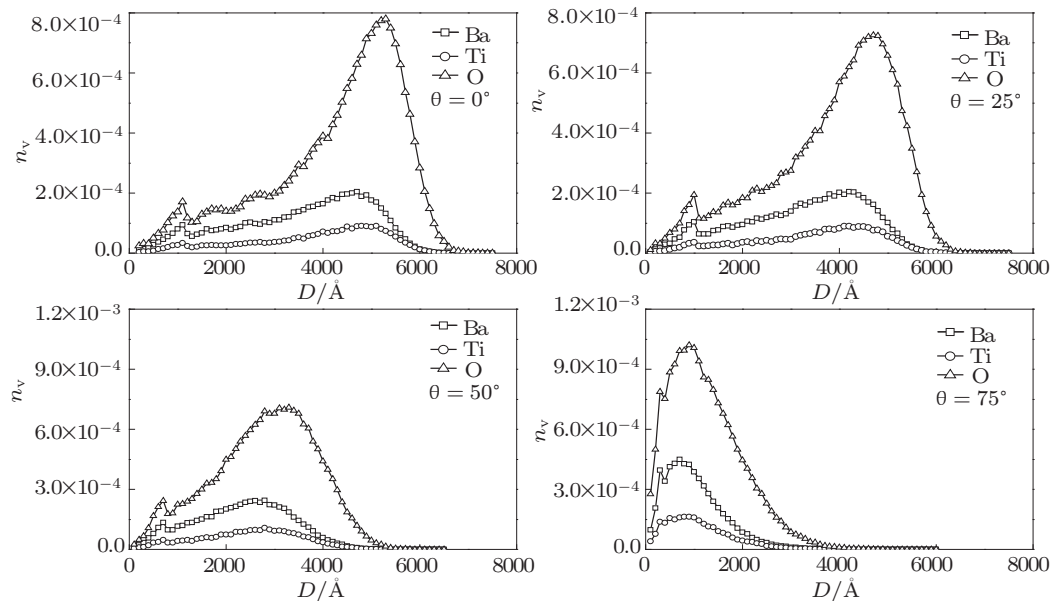


图 6 不同入射角度的质子辐照时 BaTiO₃ 中的空位随薄膜深度的分布关系

除了空位总数,空位的分布对铁电性能的退化及失效机理也有重要的影响.图5分别表示了能量为10,40,70和100 keV的质子垂直辐照BaTiO₃薄膜时Ba,Ti和O空位随薄膜深度的分布,图中纵坐标表示平均一个质子在单位深度(埃米)上产生的空位数,每条曲线的积分则表示平均一个质子产生的Ba,Ti和O的空位数目.图5表明O缺陷数目最多,Ti缺陷最少,这与前面分子动力学模拟结果一致,因为O原子的位移阈能最低且O原子数目最多;随着质子能量增加,空位分布的峰值位置向薄膜的深度方向发展.能量范围为10—100 keV的质子在BaTiO₃中的损伤区为60—550 nm.

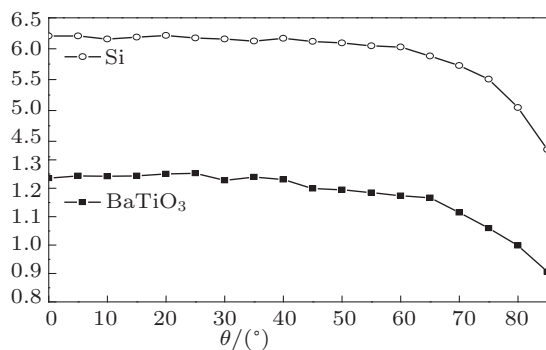


图7 平均一个质子产生的总空位数与质子入射角的关系

除了能量,质子的入射角度也是影响空位分布的重要因素.图6分别表示了入射角(质子初始速度与薄膜表面法线的夹角)为0°,25°,50°和75°辐照BaTiO₃薄膜时Ba,Ti和O空位随薄膜深度的分布.图6表明随着入射角度的增加,空位分布的峰值位置变浅.图7则表示平均一个质子产生的总空位数与入射角度的关系(质子的能量为10 keV).图中表明入射角小于60°,空位数变化不大,随着入

射角进一步增加,空位数迅速减少.另外在图7中还给出了质子辐照半导体材料Si产生的空位数,Si中空位数随入射角分布的规律是相似的,但空位数是BaTiO₃的5倍.这表明质子辐照BaTiO₃产生的位移效应远远小于半导体材料,或者说BaTiO₃的抗辐射能力远强于半导体材料.

4 结论

铁电材料及器件在辐射环境中性能的退化,乃至失效,其根本原因是荷能粒子对铁电材料的微观结构产生了辐照损伤,研究铁电材料的辐照损伤对于辐射环境中铁电材料的应用有着极为重要的意义.本文应用分子动力学,模拟在初级击出原子PKA作用下BaTiO₃体系的辐照损伤,揭示了系统演化经历的三个阶段,分析了缺陷的形成、复合等动力学过程,解释了缺陷数目随PKA能量增加而起伏变化的原因,计算了PKA在一些有代表性的低密勒方向的位移阈能和相应的缺陷类型.应用蒙特卡罗软件包SRIM,模拟质子在BaTiO₃薄膜中的能量损失过程.模拟结果表明能量范围为10—100 keV的质子在BaTiO₃中的辐照效应以电离效应为主,损伤区为60—550 nm;随着质子能量增加,空位数目增加,但增加的速率是降低的,空位峰值位置变深;随着质子入射角度增加,空位峰值位置变浅,入射角较小时对空位数量的影响很小,当入射角度大于60°时,空位数量随入射角增大而迅速减少.另外,本文还比较了位移阈能对SRIM模拟结果的影响,位移阈能对辐照损伤的影响很大,用分子动力学修正SRIM默认的位移阈能对于研究铁电材料的辐照效应十分必要.

- [1] Scott J F, Araujo C A, Brett H, McMillan L D, Shawabkeh A 1989 *J. Appl. Phys.* **66** 1444
- [2] Colc Y M, Musseau O, Leray J L 1994 *IEEE Trans. Nucl. Sci.* **41** 495
- [3] Scott J F 2004 *Ferroelectric Memories*(Beijing: Tsinghua University Press) (In Chinese) [朱劲松等译 2004 铁电存储器(北京:清华大学出版社)]
- [4] Gruverman A, Rodriguez B J, Nemanich R J, Kingon A I 2002 *J. Appl. Phys.* **92** 2734
- [5] Stanishevsky A, Nagaraj B, Melngailis J, Ramesh R, Khriachtchev L, McDaniel E 2002 *J. Appl. Phys.* **92** 3275
- [6] Li Y S, Ma Y, Zhou Y C 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 042903
- [7] Cao H X, Zhang N 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 6582 (in Chinese)[曹鸿霞,张宁 2008 物理学报 **57** 6582]
- [8] Ma Y, Sun L L, Zhou Y C 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 046105 (in Chinese) [马颖,孙玲玲,周益春 2011 物理学报 **60** 046105]
- [9] Xiao S Q, Xie G F 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 4808 (in Chinese)[肖松青,谢国锋 2010 物理学报 **59** 4808]
- [10] Ziegler J F, Biersack J P, Littmark U 1985 *The Stopping and Range of Ions in Solids.* (Pergamon, New York)
- [11] Thomas B S, Marks N A, Begg B D 2007 *Nucl. Instr. and Meth. B* **254** 211
- [12] Smith K L, Zaluzec N J 2005 *J. Nucl. Mater.* **336** 261
- [13] Smith K L, Colella M, Cooper R, Vance E R 2003 *J. Nucl. Mater.* **321** 19

Investigation of proton irradiation damage in BaTiO₃ thin film by computer simulation*

Zhu Yong Li Bao-Hua Xie Guo-Feng[†]

(Faculty of Materials, Optoelectronics and Physics, Xiangtan University, Xiangtan 411105, China)

(Received 11 February 2011; revised manuscript received 17 June 2011)

Abstract

BaTiO₃ is a kind of perovskite ferroelectric which has the advantages of ferroelectric property, piezoelectric property and radiation resistance. BaTiO₃ thin films and devices have important applications in strong irradiation environment. The structure damage, especially the oxygen vacancy has a crucial influence on the response of ferroelectric under radiation. Molecular dynamics is used to simulate the formation process and the recovery process of defects in BaTiO₃ under the impact of primary knock-on atom (PKA). The results show that the initial motion direction and energy of PKA have significant effects on the number of defects, and the averaged threshold displacement energies of Ba, O and Ti atom are 69 eV, 51 eV and 123 eV respectively. The calculated displacement energy is obviously larger than default value (25 eV) in SRIM code. Furthermore the SRIM code is used to simulate the proton irradiation damage in BaTiO₃ thin film. The results show that the number of vacancy increases with the increase of proton energy, but the increase rate decreases, and the number of vacancy decreases obviously with the increase of incidence angle when it is more than 60°.

Keywords: molecular dynamics, ferroelectric thin film, irradiation damage

PACS: 61.80.-x

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10702059).

[†] E-mail: gfxie@xtu.edu.cn