

透镜到靶材的距离对脉冲激光诱导等离子体的影响机理研究*

刘月华 陈明 刘向东[†] 崔清强 赵明文

(山东大学物理学院和晶体材料国家重点实验室, 济南 250100)

(2012年4月23日收到; 2012年8月29日收到修改稿)

采用高功率抽运调 Q 激光器分别在真空和空气中烧蚀 Ti-Al 合金靶材激发等离子体, 研究了在不同气体压强下透镜到靶材的距离对等离子体参数的影响机理对于焦距为 111 mm 的聚焦透镜, 当透镜到靶材距离小于透镜焦距时, 随着距离逐渐接近焦距, 真空和空气中电子温度、电子密度和谱线强度均逐渐增强. 当透镜到靶材距离大于透镜焦距时, 真空中, 电子温度和电子密度仍然继续升高, 而谱线强度却变化不大. 空气中, 等离子体参数却有不同的演化特性: 等离子体的电子温度、电子密度和谱线强度在透镜到靶材距离为 107 mm 时达到最大值, 当距离继续增大时, 均呈现出迅速下降的趋势, 当透镜到靶材距离大于 112 mm 时, 电子温度和电子密度又有明显上升, 特征谱线强度却大幅下降.

关键词: 脉冲激光烧蚀, Ti-Al 合金, 等离子体, 发射光谱

PACS: 52.38.Mf, 52.50.Jm, 52.70.Kz

DOI: 10.7498/aps.62.025203

1 引言

高功率脉冲激光烧蚀技术由于具备超快的光与材料物质相互作用特性, 可在瞬间激发出高温致密的等离子体, 在金属切割与焊接、激光等离子体推进、微量元素探测、材料表面改性、纳米粒子和纳米薄膜的制备等诸多高端领域具有诱人的应用前景, 多年来受到了国内外研究人员越来越多的关注^[1-11]. 激光诱导等离子体是一个瞬态多变的过程, 外界的实验条件如入射激光波长、脉宽、能量、环境气体的种类及压强等对等离子体演化有着直接的影响. 在诸多外界影响条件中, 透镜到靶材的距离 (lens-to-sample distance, LTSD) 是一个重要的因素, 谱线强度的急剧变化直接影响着微量元素探测时的探测极限, 而烧蚀面积和烧蚀深度的研究有利于大尺寸样品的横向和纵向扫描探测, 而电子温度和电子密度的激变还可以改善脉冲激光沉

积镀膜时薄膜的粗糙度、结合强度等. 目前, 该影响因素已经得到研究人员的充分重视, 然而, 前期研究还局限在空气条件下测量谱线强度的变化规律, 尤其是在脉冲激光烧蚀合金材料领域, 尚未给出等离子体电子温度和电子密度的演化特性, 且缺少不同气压条件下的对比研究^[12-18].

在合金材料领域, Ti-Al 合金作为典型的轻量化耐热材料因在航空航天及汽车制造等领域的重要应用而受到极大关注^[7,19-21], 对于这种超硬度的合金材料, 除了一些传统的材料加工方法以外, 近年来, 采用脉冲激光材料改性技术能够极大地提高合金质量. 因此, 在本文中将选取 Ti-Al 合金作为烧蚀靶材, 采用高功率抽运调 Q 激光器分别在真空和空气环境中作用到靶材表面诱导等离子体, 通过瞬态光谱分析技术详细研究 LTSD 的变化对等离子体特性的影响机理. 本文采用实验与理论相结合, 不仅能进一步加深对 LTSD 因素的全面认识, 更有利于系统研究脉冲激光在微量元素探测及合金材

* 国家自然科学基金 (批准号: 11105085, 11075097, 10974119) 和山东省优秀中青年科学家科研奖励基金 (批准号: BS2012CL024) 资助的课题.

[†] 通讯作者. E-mail: xdliau@sdu.edu.cn

料领域的改性技术.

2 实验系统

实验中采用 Nd:YAG 高功率抽运调 Q 激光器, 二倍频输出波长为 532 nm, 脉冲宽度为 10 ns, 频率固定在 10 Hz, 脉冲激光束经 45° 全反镜改变光路后, 由焦距为 111 mm 的石英透镜聚焦于原子比为 1:1 的钛铝合金样品表面. 实验中用机械泵可将靶室中气压抽至机械泵极限值 2.7 Pa 左右, 并将样品置于三维可调的钢质杜瓦瓶中, 烧蚀过程中同步调节三维平台, 避免样品同一个位置经过多次脉冲激光击穿. 为了减少实验误差, 用能量计 (Moletron, EPM1000) 实时监测入射激光能量的起伏变化. 在实验中同时改变激光脉冲能量和聚焦距离, 以保持功率密度不变. 产生等离子体的发射光谱通过 50 mm 的石英透镜以 1:1 成像于光谱仪入射狭缝, 狭缝宽度设为 10 μm . Andor 公司最新提供的 SR-500 光谱仪作为摄谱装置, 高分辨率的分光光谱仪内置光栅刻痕为 1200 l/mm, 闪耀波长为 500 nm, 采用 DH740 型号的增强型电荷耦合器件 (ICCD) 作为光谱探测系统. 实验过程中, 探测特征谱线的曝光时间均为 0.5 s, 探测位置固定在距离样品表面 4 mm 处. 烧蚀区域的微观形貌通过扫描电子显微镜 (日立公司生产, 型号 S-4800) 观察.

3 实验结果与讨论

3.1 等离子体电子温度和电子密度的计算

等离子体的电子温度和电子密度是描述等离子体性质的两个重要参数, 对于电子密度的计算, 我们采用孤立谱线的斯塔克展宽的方法. 一般认为中性原子和一次电离、非类氢离子的孤立谱线的斯塔克展宽主要是由电子引起的, 谱线的半高全宽和电子密度之间存在如下关系^[22,23] $\Delta\lambda_{1/2} = 2W\left(\frac{N_e}{10^{16}}\right)$, 其中 W 为展宽系数. 由此可见, 电子密度与谱线半高全宽度成线性变化关系, 实验中, 我们选取 Ti(II) 368.52 nm 谱线展宽计算电子密度, 尽管目前该谱线展宽系数并不完备, 但在 Tankosić 等^[24] 给出的 Ti(II) 离子斯塔克展宽数据中我们发现, 电子密度为 10^{17} cm^{-3} , 电子温度为 20000 K 时, Ti(II) 离子的半高全宽非常接近 0.1 Å, 因此电子密度的计算均是基于此数值.

为了保证谱线展宽数据的可靠性, 需要考虑仪器展宽的影响, 我们借助标准汞灯来测量所用探测系统在焦点处的分辨率. 分辨率 $\Delta\lambda$ 可由下式给出: $\Delta\lambda = (\text{FWHM}/a) \times \Delta A$, 这里 $\Delta A = 579.06 - 576.96 = 2.10 \text{ nm}$, 是 Hg(I) 的两条标准谱线之间波长差 (其中 576.96 nm 和 579.06 nm 是 Hg(I) 的两条谱线) 而 FWHM 是 Hg(I) 谱线的半高全宽度, 这儿约为 0.065 nm, a 是上述两条 Hg(I) 谱线峰值之间的实际距离, $a = 578.93 - 576.82 = 2.11 \text{ nm}$. 代入上式可以求得 $\Delta\lambda \approx 0.065 \text{ nm}$ ^[25].

本实验我们利用 1200 l/mm 的高分辨率的分光光谱仪内置光栅来测量 Ti(II) 368.52 nm 谱线, 再利用得到的 Ti(II) 368.52 nm 谱线的斯塔克展宽线形来计算电子密度, 我们需要考虑在这一波长区域仪器的展宽. 由于分辨率随着谱线强度的增加而有所变差, 因此仪器展宽随谱线强度的变化也有所变化. 为消除仪器展宽的影响, 对于我们在不同 LTSD 处所测得的 Ti(II) 368.52 nm 谱线, 我们采用了相应的仪器展宽, 经过去卷积过程得到谱线的实际线形, 再由此求出实际斯塔克展宽的半高全宽度.

对于电子温度的计算, 我们采用玻尔兹曼图解法^[23,26], 决定电子温度的表达式为 $\ln\left(\frac{I_{mn}\lambda_{mn}}{A_{mn}g_m}\right) = \ln\left(\frac{N_e}{Z}\right) - \left(\frac{E_m}{kT_e}\right)$. 式中, λ_{mn} 是跃迁波长, A_{mn} , E_m 和 g_m 分别是能级跃迁概率、高能级能量和统计权重, k 是玻尔兹曼常数, T_e 是电子温度. 如果以 $\ln\left(\frac{I_{mn}\lambda_{mn}}{A_{mn}g_m}\right)$ 为纵坐标, E_m 为横坐标, 选取同一电离能级的几条谱线根据上式作图, 因总的电子密度 N_e 及配分比 Z 对温度不起决定作用, 可视为常数, 故通过作图得到的直线斜率 $-1/kT_e$, 即可得到电子温度 T_e 的值. 图 1 为实验中所得到的典型玻尔兹曼图, 用最小二乘法拟合数据后由直线的斜率算得电子温度为 1.52 eV.

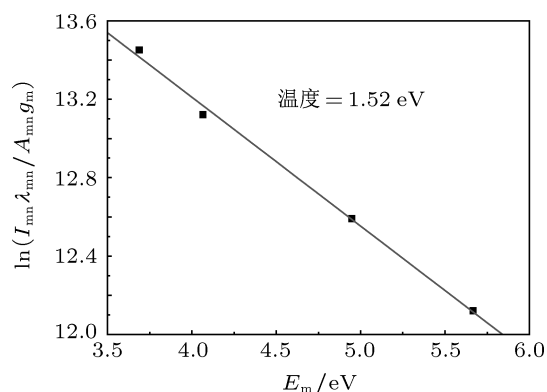


图 1 实验中所用到的典型玻尔兹曼图

以上电子温度和电子密度的计算都是在等离子体满足局部热力学平衡的假设下才能成立的, 只有在粒子密度足够大时才能够接近局部热力学平衡. 局部热力学平衡成立的一个必要条件是^[23,26]: $N_e \geq 1.4 \times 10^{14} T_e^{1/2} (x_{mn})^3 \text{ cm}^{-3}$, 式中, T_e 和 x 的单位为电子伏特, x_{mn} 为能级 m, n 之间的能量差. 计算出电子温度和电子密度值后应予以验证上式是否成立.

3.2 真空条件下, 不同 LTSD 时等离子体参数的演化情况

我们在真空条件下用 6.5 GW/cm^2 的 532 nm 入射激光烧蚀 Ti-Al 合金靶材, 随着 LTSD 逐渐增大, 分析了诱导产生等离子体的电子温度、电子密度及 Ti(II)368.52 nm 谱线强度的演化情况, 所得结果如图 2 所示.

从图 2(a), (b) 可以看出, 当焦距为 111 mm 的聚焦透镜从距离靶材料表面为 105 mm 处逐渐增加到 114 mm 时, 电子密度从 $1.925 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 逐渐增大到 $2.170 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. 而电子温度的值则存在较大的波动, 但是整体上也是呈现上升的趋势, 在 105 mm 时电子温度为 1.493 eV , 在 112.5 mm 时有最大值 1.675 eV . 相对于电子温度和电子密度, 图 2(c) 的谱线强度又有着不同的演化趋势, 在 105 mm 到 109.5 mm 的范围内, 谱线强度随距离的增加逐渐增强, 而在大于 109.5 mm 的范围内谱线强度变化不大, 趋于饱和状态.

3.3 真空条件下, 不同 LTSD 时烧蚀后的表面形貌对比

我们在真空条件下, 当 LTSD 分别为 107 mm , 111 mm 和 115 mm 时, 用 100 次激光脉冲烧蚀靶材, 烧蚀后表面形貌的扫描电子显微图像如图 3 所示.

图 3 为真空条件下, 不同 LTSD 时 6.5 GW/cm^2 的 532 nm 入射激光, 经由 100 次脉冲烧蚀后靶材表面形貌的扫描电镜图像. 从图中可以看出, 当透镜到靶材的距离大于或小于透镜焦距时, 烧蚀区域的面积均大于 LTSD 正好是透镜焦距的情况: 当 LTSD 为 $107, 111$ 和 115 mm 时, 烧蚀区域的直径分别为 $500, 420$ 和 $710 \mu\text{m}$, 且当 LTSD 小于透镜焦距, 即入射激光汇聚于靶材料内部时 (如图中 107 mm 时), 形成的烧蚀坑的深度更深, 而当入射激光汇聚于靶材料前方时 (如图中 115 mm 时), 烧蚀效率大

大减小, 烧蚀坑的深度明显变浅, 且烧蚀区域的形貌变得很不规则.

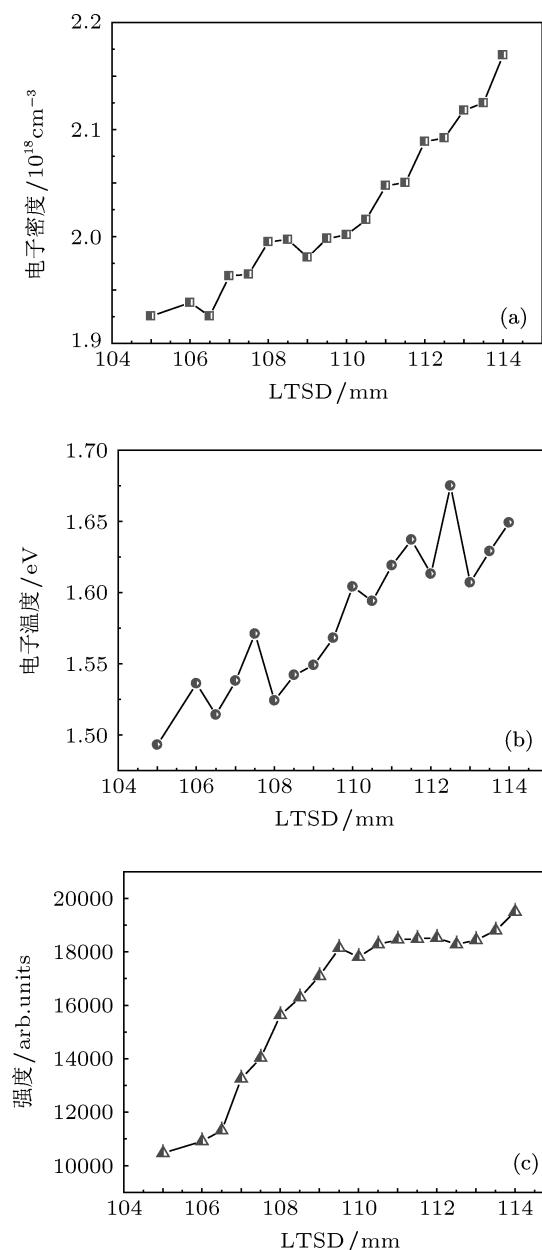


图 2 真空条件下, 不同 LTSD 时等离子体参数的演化情况 (a) 电子密度; (b) 电子温度; (c) Ti(II)368.52 nm 谱线强度

3.4 大气环境下, 不同 LTSD 时等离子体参数的演化情况

作为对比研究, 我们还在大气环境下研究了 LTSD 对等离子体参数的影响, 结果如图 4 所示, 所用激光功率密度为 6.5 GW/cm^2 .

与真空中的情况相比, 我们发现, 在大气环境下, 当 LTSD 较小时 (从 100 mm 到 107 mm), 等

离子体参数的演化情况与真空中类似, 随距离逐渐接近焦距, 等离子体电子温度、电子密度、谱线强度均逐渐增强, 其中电子温度和电子密度在 LTSD 为 107 mm 时达到最大值, 然后随着距离的进一步增大, 电子温度和密度均迅速降低, 但是在

LTSD 大于 112 mm 时, 电子温度和密度又有很强烈的上升趋势, 而谱线强度在 LTSD 为 108 mm 时达到最大值, 且在 106 mm 到 111 mm 的范围内趋于饱和, 当距离大于 111 mm 时, 谱线强度又迅速减小.

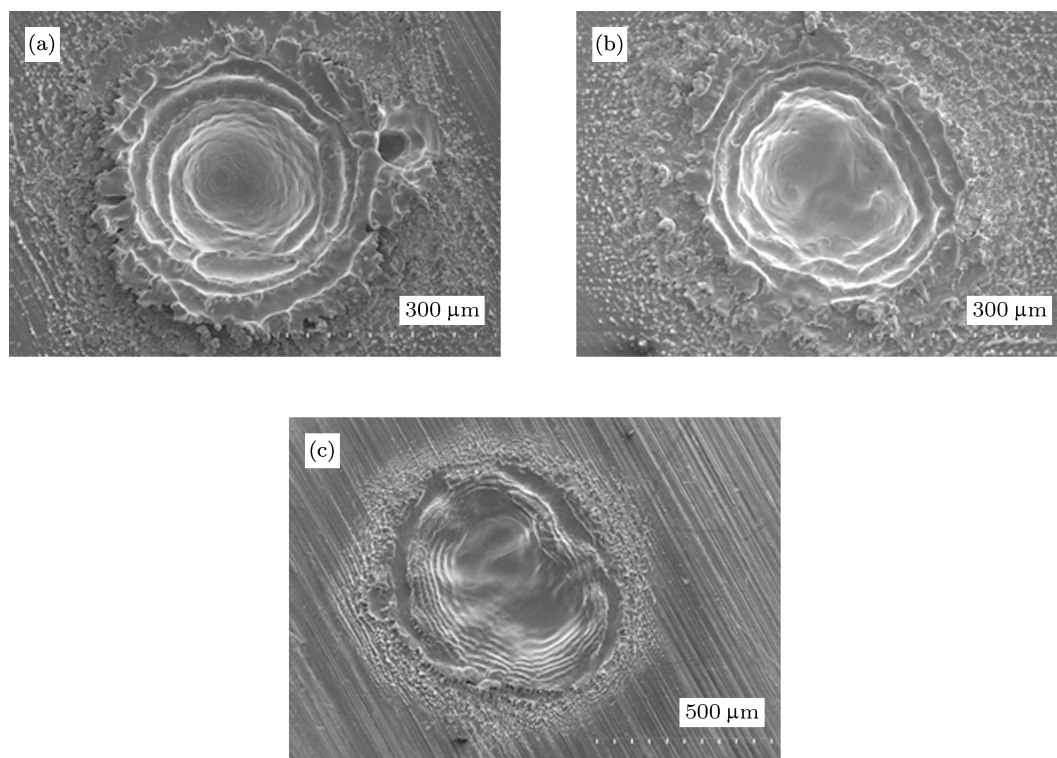


图3 功率密度为 6.5 GW/cm^2 的 532 nm 入射激光, 真空条件下, 不同 LTSD 时, 100 次脉冲烧蚀后的表面形貌 (a) LTSD = 107 mm; (b) LTSD = 111 mm; (c) LTSD = 115 mm

对于真空和空气两种环境压强下, 不同 LTSD 时等离子体参数的演化情况, 我们给出如下的解释 [12,17,27,28]: 当 LTSD 较小时 (真空中小于 111 mm, 空气中小于 107 mm), 入射激光经由透镜汇聚到靶材料表面的光斑尺寸较大, 因此作用到靶材表面的激光功率密度较低, 随着距离越来越接近焦距, 透镜对入射激光的汇聚作用逐渐增强, 光斑尺寸减小, 入射到靶材表面的激光功率密度增加, 对靶材的烧蚀效率和离化效率逐渐增强, 因此电子温度、电子密度和谱线强度均逐渐增强. 但是, 真空中, 当 LTSD 大于透镜焦距时, 电子温度和电子密度仍然继续升高, 而谱线强度却趋于饱和, 这主要是由于入射激光对烧蚀产生等离子体存在再激发过程. 我们知道, 高功率脉冲激光束到达靶材料表面后会迅速激发出高速膨胀的等离子体, 一般几个 ns 以后就

已经有毫米量级的厚度, 因此对于纳秒脉冲激光来说, 瞬间产生的等离子体对后续的激光束会形成一个激光等离子体的作用区域, 部分后续的入射激光能量会被已经产生的等离子体所吸收, 不再作用到靶材料表面. 在此时空区域内, 入射激光能量会通过逆轫致辐射而转化为等离子体的内部热能和动能. 因此在距离大于焦距时, 电子温度和电子密度继续大幅上升. 而在 LTSD 大于焦距的范围内, 随着 LTSD 的进一步增大, 由于瞬态等离子体对入射激光的吸收作用, 大大降低了能够到达靶材料表面的激光功率, 而特征谱线强度主要取决于直接烧蚀靶材料的激光功率, 因此谱线强度在此区域范围内呈现出饱和状态. 在空气中, 等离子体参数却有着不同的演化规律, 由于环境气体的存在, 等离子体参数在 LTSD 为 107 mm 时达到最大值, 当距离继续

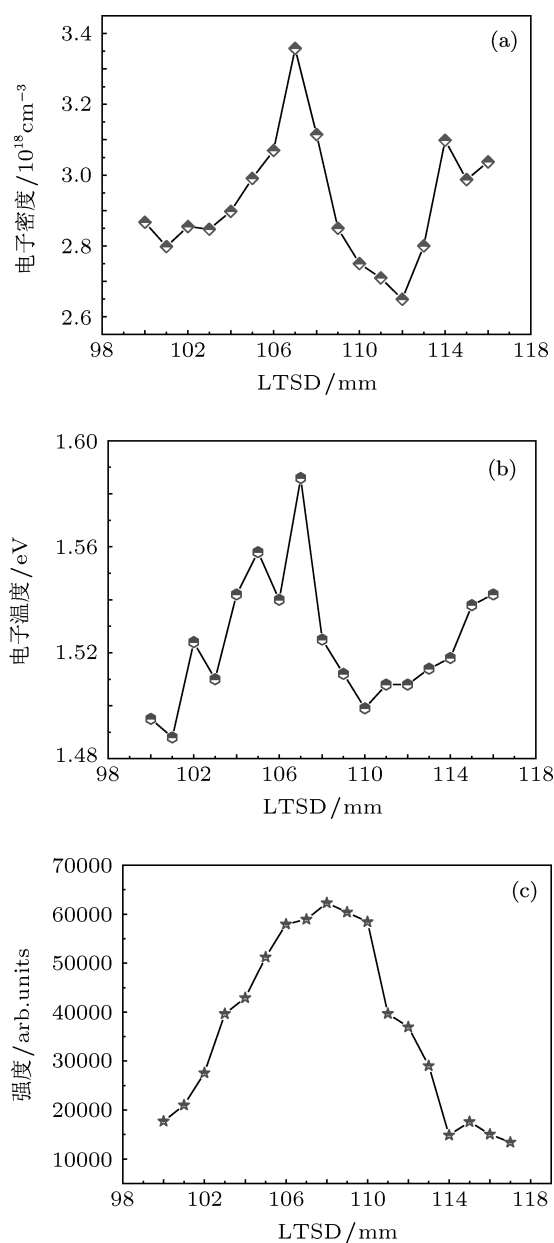


图4 大气环境下,不同LTSD时等离子体参数的演化情况
(a) 电子密度; (b) 电子温度; (c) Ti(II)368.52 nm 谱线强度

增大时,脉冲激光逐渐汇聚到靶材料正前方,激光诱导空气击穿现象开始变得明显.由于在靶材料正前方形成空气击穿,消耗了大部分的入射激光能量,因此使得到达靶材的激光功率急剧减小,对靶材的烧蚀效率大大降低,使得等离子体的电子温度、电子密度和谱线强度均下降很快.我们注意到,当LTSD大于112 mm时,电子温度和电子密度又有明显上升,这主要是因为逐渐增强的空气击穿形成了高温致密空气等离子体开始与烧蚀靶材料形成的等离子体相互耦合增强,构成一种增强耦合效

应,导致电子温度和电子密度的大幅上升.但是此时,瞬态形成的空气等离子体和烧蚀靶材等离子体对后续入射激光的屏蔽效应更加明显,使得后续到达靶材料表面的激光功率进一步降低,大大降低了对靶材料的烧蚀效率,进而使得Ti离子谱线强度呈现出持续降低的趋势.以上实验结果及相关的物理机理对于采用光谱分析技术进行微量元素探测具有实际的指导意义,我们知道,光谱分析用于微量元素探测时,探测精度和灵敏度一直是研究人员关注的重点,而根据我们的实验数据,LTSD对等离子体的发射谱线强度、电子温度、电子密度等都有着直接的影响:真空中,当LTSD大于透镜焦距时,虽然谱线的强度没有明显增加,但是电子温度和电子密度却大大增加,我们认为这主要是入射激光对已产生等离子体的再激发,在此区域内可产生高温致密的等离子体,更适合一些难电离元素的微量探测.而在空气中,由于大气环境的影响,应在LTSD略小于透镜焦距时有最佳探测效果.

最后我们要验证计算过程中等离子体是否满足局部热力学平衡的假设,即公式 $N_e \geq 1.4 \times 10^{14} T_e^{1/2} (x_{mn})^3 \text{ cm}^{-3}$ 是否成立.我们计算电子温度所用的四条谱线中,最大能级间距为Ti离子316.85 nm谱线, $x_{mn} = 3.92 \text{ eV}$,实验中我们计算的电子温度最大值为1.675 eV,由上述公式可计算出容许热力学平衡条件的电子密度最低为 $9.78 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$,而我们计算出的电子密度值均高于此值,因此以上的实验结果均是有意义的.

4 结论

我们用波长为532 nm的脉冲激光分别在真空和大气条件下烧蚀Ti-Al合金诱导等离子体,研究了LTSD对等离子体参数的影响机理,发现真空中和空气中等离子体参数有不同的演化规律.真空条件下,电子温度和电子密度随LTSD的增加逐渐增强,谱线强度在LTSD小于透镜焦距时随LTSD增加而增强,在LTSD大于透镜焦距时趋于饱和.而大气环境中,等离子体参数在LTSD为107 mm附近时出现最大值,当LTSD继续增加时等离子体参数迅速减小,而在LTSD大于112 mm时,电子温度和电子密度又有上升趋势,我们认为这是空气击穿、空气等离子体的增强耦合效应以及入射激光对等离子体的再次激发等多种原因共同作用的结果.

- [1] Fabienne Boué-Bigne 2008 *Spectrochimica Acta B* **63** 1122
- [2] Kokanović I, J R Cooper, M Matusiak 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 187002
- [3] Yu B H, Dai N L, Wang Y, Li Y H, Ji L L, Zheng Q G, Lu P X 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 5821 (in Chinese) [余本海, 戴能利, 王英, 李玉华, 季玲玲, 郑启光, 陆培祥 2007 物理学报 **56** 5821]
- [4] Tsing-Hua Her, Richard J Finlay, Claudia Wu, Shrenik Deliwala, Eric Mazur 1998 *Appl. Phys. Lett.* **73** 1673
- [5] Sun D X, Su M G, Dong C Z, Wang X L, Zhang D C, Ma X W 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 4571 (in Chinese) [孙对兄, 苏茂根, 董晨钟, 王向丽, 张大成, 马新文 2010 物理学报 **59** 4571]
- [6] Yang H D, Li X H, Li G Q, Yuan C H, Tang D C, Xu Q, Qiu R, Wang J B 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 027901 (in Chinese) [杨宏道, 李晓红, 李国强, 袁春华, 唐多昌, 徐琴, 邱蓉, 王俊波 2011 物理学报 **60** 027901]
- [7] Ohtsu N, Yamane M, Kodama K, Wagatsuma K 2010 *Appl. Surf. Sci.* **257** 691
- [8] Liu Z Q, Leusink D P, Wang X, Lü W M, Gopinadhan K, Annadi A, Zhao Y L, Huang X L, Zeng S W, Huang Z, Srivastava A, Dhar S, Venkatesan T, Ariando 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 146802
- [9] Chichkov B N, Momma C, Nolte S, Von Alvensleben F, Tünnermann A 1996 *Appl. Phys. A* **63** 109
- [10] Zijie Yan, Ruqiang Bao, Yong Huang, A N Caruso, Syed B Qadri, Cerasela Zoica Dinu, Douglas B Chrisey 2010 *J. Phys. Chem. C* **114** 3869
- [11] Hongqiang Wang, Naoto Koshizaki, Liang Li 2011 *Adv. Mater.* **23** 1865
- [12] Zhu D H, Ni X W, Chen J P, Zhang H C 2011 *Spectrosc. Spec. Anal.* **31** 319 (in Chinese) [朱德华, 倪晓武, 陈建平, 张宏超 2011 光谱学与光谱分析 **31** 319]
- [13] Lin Z X, Li J, Lu J D, Liu L M 2009 *J. Huazhong Univ. of Sci. & Tech. (Natural Science Edition)* **37** 17 (in Chinese) [林兆祥, 李捷, 陆继东, 刘林美 2009 华中科技大学学报(自然科学版) **37** 17]
- [14] Chen J Z, Zhao S R, Wei Y H, Guo Q L, Huai S F 2005 *Spectrosc. Spec. Anal.* **25** 1693 (in Chinese) [陈金忠, 赵书瑞, 魏艳红, 郭庆林, 怀素芳 2005 光谱学与光谱分析 **25** 1693]
- [15] Aguilera J A, Bengoechea J, Aragón C 2004 *Spectrochimica Acta B* **59** 461
- [16] Aguilera J A, Aragón C 2008 *Spectrochimica Acta Part B* **63** 793
- [17] Li J, Lu J D, Lin Z X, Gong S S, Xie C L, Chang L, Yang L F, Li P Y 2009 *Optics & Laser Technology* **41** 907
- [18] Dong Hyoung Lee, Tae Hyeong Kim, Euo Chang Jung, Jong II Yun 2011 *Appl. Phys. A* **104** 863
- [19] Cheng J, Perrie W, Sharp M, Edwardson S P, Semaltianos N G 2009 *Appl. Phys. A* **95** 739
- [20] Yuan B, Gong Z B, Shen S B 1999 *Laser Journal* **20** 33 (in Chinese) [袁斌, 龚知本, 沈书泊 1999 激光杂志 **20** 33]
- [21] Niinomi M 2003 *Biomaterial* **24** 2673
- [22] Griem H R 1964 *Plasma Spectroscopy*, (New York: McGraw-Hill)
- [23] Chen M, Liu X D, Yang X M, Zhao M W, Sun Y M, Qi H J, Chen X F, Xu X G 2008 *Phys. Lett. A* **372** 5891
- [24] Tankosić D, Popović L, Dimitrijević M 2001 *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **77** 277
- [25] Ying M J 2003 *Ph. D. Dissertation* (Jinan: Shandong University) (in Chinese) [英敏菊 2003 博士学位论文(济南: 山东大学)]
- [26] Chen M, Liu X D, Zhao M W, Sun Y M 2009 *Opt. Lett.* **34** 2682
- [27] Monge E M, Aragón C, Aguilera J A 1999 *Appl. Phys. A* **69** S691
- [28] Aragón C, Aguilera J A 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 01331

The mechanism of effect of lens-to-sample distance on laser-induced plasma*

Liu Yue-Hua Chen Ming Liu Xiang-Dong[†] Cui Qing-Qiang Zhao Ming-Wen

(School of Physics and State Key Laboratory of Crystal Materials, Shandong University, Jinan, Shandong 250100, China)

(Received 23 April 2012; revised manuscript received 29 August 2012)

Abstract

The analysis of nanosecond laser-induced plasma versus the lens-to sample distance(LTSD) is investigated by 532nm laser ablated Ti-Al alloys in air and vacuum condition. The results indicate that electron temperature and density increase rapidly with the LTSD changing from short distance to the focal length ($f = 111$ mm). Moreover, the plasma parameters by laser ablation in vacuum condition will further increase with LTSD further increasing. As for ambient medium, the plasma parameters reach their maximum values at 107 mm and then substantially decrease. On the other hand, the electron temperature and density rise again, while the intensity of Ti(II)368.52 nm decreases rapidly when the LTSD extends 112 mm.

Keywords: pulse laser ablation, Ti-Al alloys, plasma, emission spectrum

PACS: 52.38.Mf, 52.50.Jm, 52.70.Kz

DOI: 10.7498/aps.62.025203

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11105085, 11075097, 10974119), and the Excellent Youth and Middle Age Scientists Fund of Shandong Province (Grant No. BS2012CL024).

[†] Corresponding author. E-mail: xdlu@sdu.edu.cn