

带金属尖四棱锥小孔光探针光斑近场分布数值模拟^{*}

王国军[†] 吴世法 李旭峰 李 睿 段建民 潘 石

(大连理工大学物理与光电工程学院, 大连 116024)

(2009 年 3 月 27 日收到, 2009 年 4 月 23 日收到修改稿)

采用时域有限差分法(FDTD)研究了带金属尖四棱锥小孔光探针光斑近场分布特性, 分析了金属尖的长度、尖端半径及距离小孔位置等因素对近场电场分布的影响, 讨论了该类光探针的电磁波通过等离子体激元方式从小孔传输到金属尖的机理. Taminiau 等人用不同方法获得的计算结果在本文的计算结果中得到了印证. 在此基础上, 本文重点分析、讨论了 Pohl 等人在 1984—1986 年获得 20—25 nm 高分辨率图像的原由, 讨论了该实验系统的成像机理和类型的归属. 计算结果表明, Pohl 等人的实验系统成像机理已离开小孔径扫描近场光学显微镜类型, 报告认为应归属金属尖散射扫描近场光学显微镜一类. 本结果对设计性能优良的光探针具有参考意义.

关键词: 扫描近场光学显微镜, 局域场增强, 时域有限差分法

PACC: 0779

1. 引言

传统光学显微镜成像分辨能力受衍射极限约 $\lambda/2$ 限制, 为了突破光学显微镜的衍射极限, 1928 年 Syngé^[1] 和 1956 年 O'keefe^[2] 分别独立提出小孔径扫描近场光学显微镜(A-SNOM)的设想. 由于当时技术条件的限制, 直到 Binning 和 Rohrer 发明了扫描隧道显微镜^[3]之后, 1984 年 Pohl 等^[4]首次成功地演示了扫描近场光学显微镜实验, 并获得了 $\lambda/20$ 即 25 nm 分辨率光学图像. 1986 年 Pohl 等^[5]对近场光学显微镜进行改进, 采用石英四棱锥镀金属膜开小孔-小孔旁边带一金属小突起(尖)结构的光探针, 依靠 STM(小突起-尖)的等隧道电流控制小孔与样品表面扫描时的等间距(尖与样品间距接近于零). 实验结果显示金属光栅图像分辨率达到 20 nm. 人们通常把 Pohl 等人的实验系统称为小孔径扫描近场光学显微镜. 其后, 许多小孔径扫描近场光学显微镜的实验极限分辨率大约只能达到 50 nm. Betzig 等^[6]研制成功了用光纤尖在样品表面近场切向共振、以剪切力控制等间距的小孔径扫描近场光学显微镜, 分辨率达到 60 nm. 1995 年, 国际上开始推出剪切力控制等间距的小孔径扫描近场光学显微镜商品. 至今, 产业化的 A-SNOM 商品最好的分辨率也仅能达到 50 nm.

1995 年 Zenhausern^[7]发明了扫描干涉无孔径尖光学显微镜(SIAM), 这是首例成功演示尖散射型扫描近场光学显微镜(S-SNOM). SIAM 实验系统演示的近场光学(相位差)图像的横向分辨极值, 最好处曾达到 1—2 nm. SIAM 使用了多种压抑背景、噪声技术才取得成功. S-SNOM 使用直径几十纳米甚至更小的极尖锐的针尖作为光探针, 分辨率主要由针尖的尖端尺度决定, 但是能否实现 S-SNOM 的高分辨率, 还要看散射的照明条件和对散射光背景、噪声的遏制水平. S-SNOM 类型近场光学显微镜的主要缺点是伴有较高的散射光背景, 为了进一步改进散射型光探针的性能, 2002 年 Frey 等^[8]提出在传统的光纤探针小孔径旁附着一个金属尖的方法. 该探针改进途径是采用局域照明(于金属尖)的方法以降低散射光背景和噪声. 2004 年 Frey 等使用此种探针演示了单个荧光分子的成像, 获得了 10 nm 的荧光图像分辨率^[9]. 光纤探针孔径旁附着一个金属尖的方法与原子力显微镜结合, 可同时获得样品光学和形貌学的图像.

带金属尖小孔光探针的近场分布非常复杂, 严格的解析解十分困难, 数值方法是分析这个问题的比较有效的方法. 用数值模拟研究近场光学问题已有很长的历史, 但大部分的研究对象为开小孔的光探针^[10—15], 或无孔的光探针^[16—19]. 小孔旁带金属尖

^{*} 辽宁省教育厅重点实验室项目(批准号 20060120)资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: wgj168gh@yahoo.com.cn

的光探针数值模拟研究尚不多见. 2005 年 Tanaka 等^[20]采用体积分方程法研究了 I 形小孔旁边带一金属尖的场分布情况. Taminiau 等^[21-22]使用有限积分技术对圆形纳米小孔旁竖立一金属尖的近场分布特性进行了研究. 他们的实验结果显示该探针的分辨率已达到 25 nm. 但对透彻理解小孔和金属尖相互作用的问题还需进一步深入研究, 例如, 金属尖的半径和离小孔距离等对成像光斑的影响, 什么条件下主要由金属尖的辐射来成像, 什么条件下又主要由小孔的辐射成像; 此外, 过去许多发表论文都说: 1984 年 Pohl 等人的首次近场光学显微镜实验属于小孔径-扫描近场光学显微镜(A-SNOM), 我们过去也一直同样认为, 但一直存有疑问. 根据 Bethe^[23]的理想金属模型理论和 Ohtsu 等人^[24]的实验, 已经证实, 金属屏上纳米尺度小孔的通光效率 P 与小孔直径 d 和入射光波长 λ 之间存在 $P \propto (d/\lambda)^4$ 的线性关系. 即纳米尺度的小孔作为扫描近场光学显微镜中常用的金属膜光纤探针的简化模型, 可知探针的孔径减小时光通量将随着急剧的减小. 如果 Pohl 等人在实验中仅用 10—20 nm 小孔径探针直接成像, 其通光效率是远远不够的. 若以此来分析 Pohl 等人实验系统, 其灵敏度将难于获得 20—25 nm 分辨率光学图像. 又如果 Pohl 等在实验中采用仅有镀铝膜开小孔的四棱锥光探针(在小孔近边没有金属尖的条件), 虽然探针尖端铝膜的透光性可提高光的传输效率, 然而, 其结果又将使图像分辨率下降(此时光斑将由小孔径壁决定), 也不可能获得 20—25 nm 高分辨率的光学图像. 事实是, Pohl 的实验结果确实显示了 20—25 nm 的图像分辨率. Pohl 等人采用的探针旁恰好有一金属小突起尖, 他们获得高分辨率图像是否与金属小突起尖有关, 我们这篇论文的模拟研究的主要目的, 就是为了探讨这个问题.

本文采用时域有限差分法(FDTD)^[25-26]对带金

属尖四棱锥小孔光探针光斑近场分布特性进行系统研究, 给出了金属尖的长度、曲率半径及距离小孔位置对光探针近场分布的影响, 并结合 Pohl 等人的实验条件, 分析了金属小突起(尖)在成像中的作用, 讨论了该实验系统的成像机理归属问题(鉴于问题的复杂性, 本文模拟还没有考虑样品的影响, 但它并不影响我们对成像机理归属问题的讨论).

2. 数值计算模型

本文对 Pohl 等人在实验中使用的探针进行简化. 图 1 为简化的小孔四棱锥型光探针结构图, 其中图 1(a)为不带金属尖的光探针, 图 1(b)为带一个金属尖的光探针. 除金属尖外两种光探针的几何尺寸相同. 探针的锥面角为 90° , 上端边长 $\Phi_1 = 1200$ nm, 下端边长 $\Phi_2 = 60$ nm, 外层金属膜 $D = 300$ nm. 图 1(b)中位于小孔边缘处的金属尖为末端带有半球的圆柱, 其中 L, R, H 分别表示金属尖长度、尖端曲率半径、金属尖中心轴线到探针小孔出口中心的距离. 以 y 方向偏振的平面波入射, 光波沿 z 向传播, 波长 $\lambda = 488$ nm. 四棱锥锥芯材料为 SiO_2 ($\epsilon = 2.25$), 金属膜材料及金属尖均为铝, 其介电常数 $\epsilon = -34.5 + i8.5$. 对不带金属尖的探针, 网格采用 $10 \text{ nm} \times 10 \text{ nm} \times 10 \text{ nm}$. 对带单个金属尖的四棱锥探针, 为了既能够保证足够的计算精度, 又能节约计算内存和运行时间, 计算中采用渐变网格, 对金属尖网格采用 $2 \text{ nm} \times 2 \text{ nm} \times 2 \text{ nm}$, 其他区域网格递增. 金属的光学性质采用 Drude^[17]模型, 边界条件采用理想匹配层(PML)吸收边界条件. 由于 Pohl 等人的实验采用接触模式扫描, 因此本文主要讨论距离探针尖端 0 nm 距离平面内的电场分布特性. 近场局域光斑的尺寸由电场极值的半高宽(FWHM)确定.

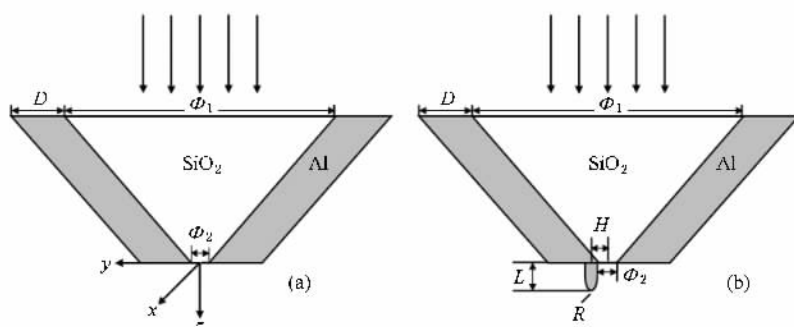


图 1 四棱锥光探针结构图 (a) 不带金属尖的光探针 (b) 带单个金属尖的光探针

3. 模拟计算结果及分析

图 2 为对应的不带金属尖和带金属尖的光探针分别在 (a) 距小孔出口 0 nm 处和 (b) 距金属尖的尖端 0 nm 处的 xy 平面内总电场分布图. 金属尖的结构参数为: $L = 60$ nm, $R = 20$ nm, $H = 50$ nm. 图 2(a) 中的光斑形状有少许不对称, 可能是由于网格划分不对称造成的(这并不影响我们对其近场分布特性的分析研究). 图 2(a) 和 (b) 的近场光斑的半高宽 (FWHM, x 和 y 方向) 分别为 60 nm $\times$ 80 nm 和 30 nm $\times$ 30 nm. 两者近场分布形状很不相同, 前者光斑的半高宽取决于小孔的边框, 中央场强低, 呈长方形. 后者光斑的半高宽取决于金属尖, 中央场强高, 呈圆形. 分析可知: 对于不带金属尖的探针, 由于入射光的偏振, 在垂直于入射光偏振方向的小孔两个金属边缘上出现了场增强效应, 产生两个分离的增强光斑, 它将使探针的分辨率变坏. 对于带金属尖的探针, 要求入射光的偏振方向必须平行于金属尖-小孔中心轴的平面. 在此条件下, 将在金属尖尖端产生一个圆形光斑, 光斑尺寸将小于同等条件下不带金属尖的小孔探针的光斑, 且其峰值电场可增强至后者的两倍或更高. 当不带金属尖和带金属尖的光探针

在扫描成像时, 前者与后者还有很重要的不同, 前者由于小孔结构必须有一个小平面, 扫描成像时它与样品表面必须要留出一定的工作间距. 视样品表面不平情况, 一般 10 nm 的工作间距是不可少的. 小孔光斑极值电场经此间距传输后又将衰减数倍, FWHM 尺寸也会增加. 由此分析可见, 带金属尖的小孔光探针的成像分辨率要好于不带金属尖的小孔光探针, 以上是在一般情况下分析的结论.

为了分析光频电磁波在带金属尖小孔光探针中传输的机理, 同样设 L, R, H 分别为 60 nm, 20 nm, 50 nm. 图 3 为带金属尖小孔光探针在 ($x = 0, y, z$) 剖面 (a) 和 ($y = 0, x, z$) 剖面 (b) 内的总电场分布图. 图 3 模拟结果表明: 由于入射光的偏振, 使电场在 $x = 0$ 和 $y = 0$ 平面上的分布是不同的. 由图 3(a) 可见, 入射光从小孔出射后沿 z 方向前进, 电场的极大值, 一直紧贴着位于孔径边缘处的金属尖表面, 向前传播, 直止于金属尖的顶端. 很明显地显示, 它是金属表面的等离子体激元波伴生的隐失场. 金属尖等离子体激元波产生局域场增强, 特别在金属尖的长度符合共振条件时, 其增强将可获得最大^[21]. 在图 3(b) 中, 从小孔出射的光沿小孔轴线方向向前传播, 相对小孔和金属尖两轴线面很对称, 其峰值场强明显小于 $x = 0$ 平面内金属尖端头的场强.

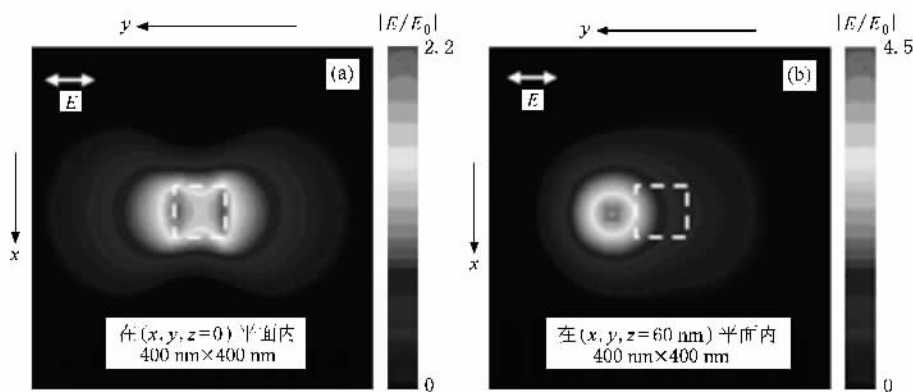


图 2 光探针在 xy 平面上的电场分布图(在每一幅图中白色的线条表示探针出口的轮廓) (a) 不带金属尖光探针在距小孔出口 0 nm 处 (b) 带金属尖光探针在距金属尖尖端 0 nm 处

为了更精细的研究金属尖长度对其尖端电场的影响, 计算了距金属尖尖端 0 nm 处峰值电场随金属尖长度的变化特性, 其中 L 从 20 nm 增加到 400 nm, R, H 分别固定为 20 nm, 50 nm. 计算结果如图 4 所示. 随着金属尖长度变化, 将有数个共振峰出现, 对应的金属尖长度分别为 $\lambda/8$ 和 $\lambda/2$ ($\lambda = 488$ nm), 电场增强值分别为 4.61 和 2.85. 入射光从小孔出射时

产生表面等离子激元 (plasmon), 表面等离子激元沿着金属尖表面向前传播, 当金属尖的总长度达到某一值时, 会形成稳定的驻波, 此时尖端电场达到极大值, 这一现象可被归因为表面等离子体激元共振增强效应, 在有的文献中将其称光学共振天线效应. 从以上的计算结果看出, 金属尖的作用类似光学天线, 为了获得大的场增强, 可以利用共振光学天线效应, 适当

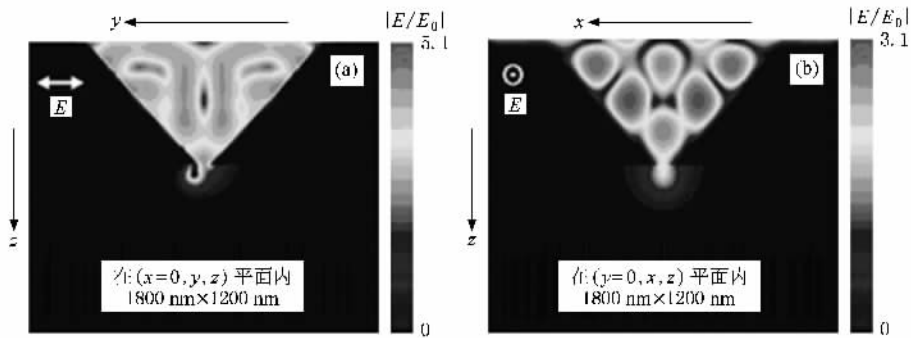


图3 带金属尖四棱锥光探针的电场分布剖面图 (a) $x=0$ 剖面 (b)在 $y=0$ 剖面

改变金属尖的长度,从而产生更大的增强因子.

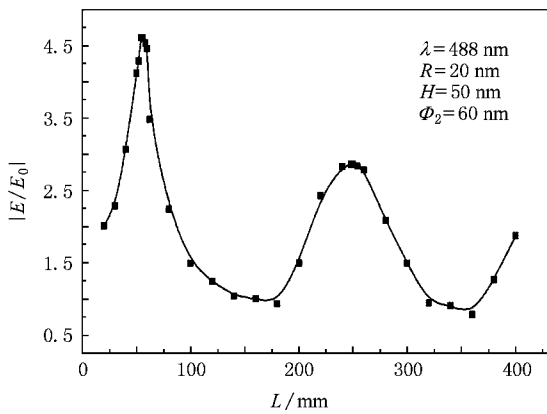


图4 距金属尖尖端0 nm处峰值电场随金属尖长度的变化曲线

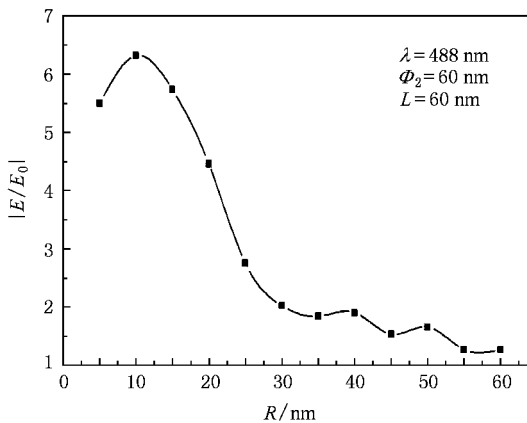


图5 金属尖尖端0 nm处峰值电场随 R 变化曲线

图5为距金属尖尖端0 nm处峰值电场随金属尖尖端半径(R)的变化曲线,其中 $L=60\text{ nm}$, $H=R+\Phi_2/2$.由图可见当 R 减小时尖端0 nm处峰值电场逐渐呈递增趋势,当半径减小到10 nm时出现极大值,半径继续减小时,电场反而有些下降.这就要

求在设计探针时应该选取合适的 R ,从而获得更大的场增强.图6为对应的近场光斑FWHM随 R 的变化曲线.分析可知,当金属尖与小孔均小于衍射极限并相近时,带金属尖探针的光斑FWHM尺寸主要由金属尖的尺度决定,两者呈线形关系,随着 R 的增加,光斑尺寸也逐渐变大.

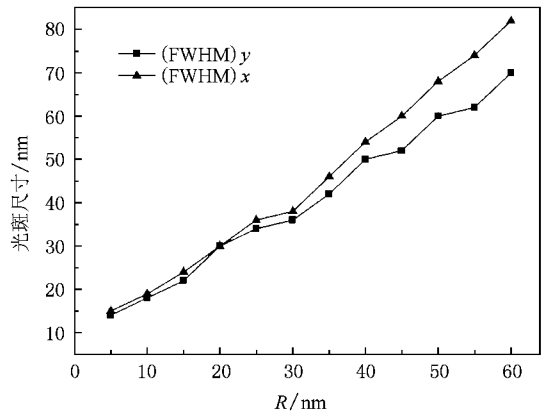


图6 光斑尺寸随金属尖 R 变化曲线

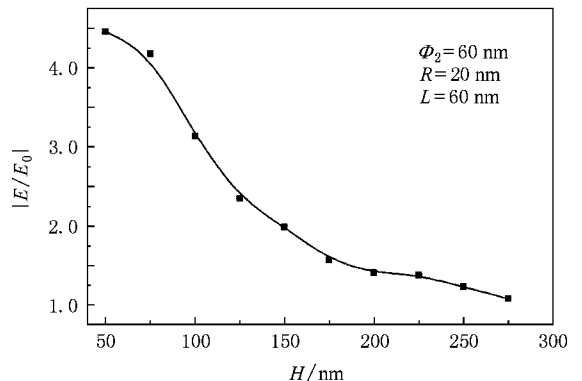


图7 金属尖尖端0 nm处峰值电场随 H 的变化曲线

图7为距金属尖尖端0 nm处峰值电场随金属

尖位置(H)的变化曲线,其中 $R=20\text{ nm}$, $L=60\text{ nm}$.从图中可以看出:随着 H 增大,金属尖尖端峰值电场逐渐减小.金属尖尖端电场是由小孔表面等离子体激元激励、传输至金属尖尖端的表面等离子体激元所产生的.当 H 增加时, plasmon 随传输距离增加而衰减,因此金属尖尖端电场也随着减小.为了获得

大的场增强,应合理选择金属尖的位置.图8给出了金属尖位于不同位置时的电场分布图.由图8(a),(b)(c)可见,当金属尖远离小孔时,尖端场强逐渐减弱,而从小孔出射的光则逐渐增强,逐渐出现了两个光斑,这降低了探针的分辨率.可知为了提高探针的分辨率,应合理选择金属尖的位置.

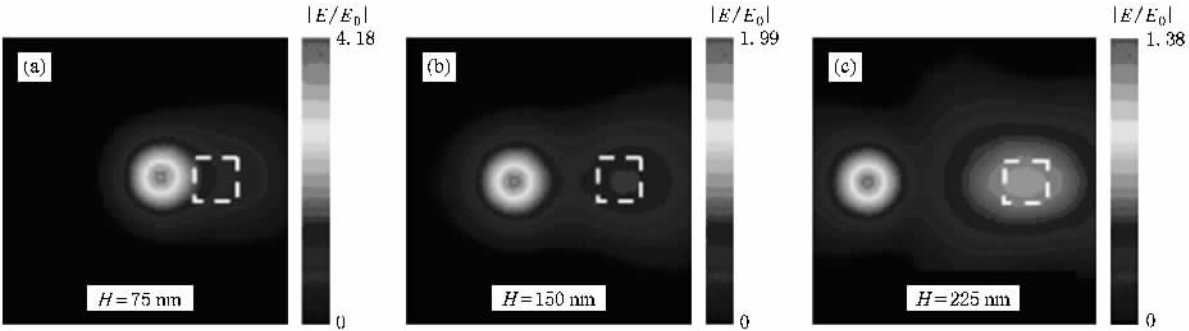


图8 不同金属尖位置时距尖0 nm处的 xy 面电场分布图

上文中我们使用FDTD方法系统地研究了带金属尖四棱锥光探针的近场分布特性,与Taminiau等人的计算结果较为符合.下面结合Pohl等人首次近场光学显微镜实验条件,分析Pohl等人在采用的探针孔径约为10—20 nm条件下,获得20—25 nm的图像分辨率的原由,讨论该实验系统成像机理的归属.图9模拟结果清楚地显示了带 $L=30\text{ nm}$ 金属尖小孔四棱锥光探针在三种不同 H 条件下的金属尖端 xy 平面电场分布的变化. H 分别为(a)20 nm (b)60 nm (c)110 nm,其中金属尖端半径 $R=10\text{ nm}$, $\Phi_2=20\text{ nm}$.本文通过改变探针的高度使得 $\Phi_2=20\text{ nm}$,探针其他结构参数保持不变.从三图中可以

看出,即使小孔直径很小,从小孔出射的电磁场仍然可激励旁边远到 $H=110\text{ nm}$ 的金属小突起尖,并在尖端产生局域增强电场.对应的光斑在 y 方向的剖面线半高宽FWHM分别为(a)28 nm (b)23 nm (c)26 nm.其场增强大约在0.4—0.15,有足够的光强度可以记录.此结果与Pohl等人首次近场光学显微镜实验条件比相近或相符,此情况下扫描成像的光主要来自金属尖而并非直接来自小孔.这样的近场光学显微镜应归属于S-SNOM类型.

图10模拟结果清楚地显示了带 $L=10\text{ nm}$ 金属尖小孔四棱锥光探针在三种不同 H 条件下的金属尖端 xy 平面电场分布的变化. H 分别为(a)20 nm,

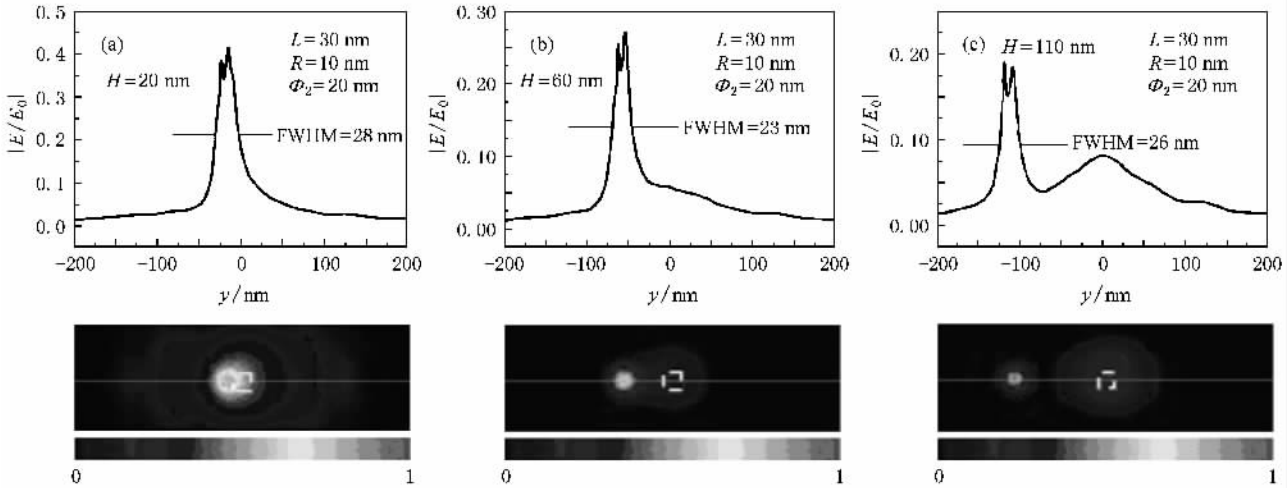


图9 金属尖 $L=30\text{ nm}$ 尖端 xy 平面内电场分布随不同 H 变化 (a) $H=20\text{ nm}$ (b) $H=60\text{ nm}$ (c) $H=110\text{ nm}$

(b) 60 nm (c) 110 nm, 其中金属尖端半径 $R = 10$ nm, $\Phi_2 = 20$ nm. 对应的光斑在 y 方向的剖面线半高宽 FWHM 分别为 45 nm, 100 nm, 61 nm. 从图 10(a) 中可以看出, 光场仍以金属尖端的光斑为主. 由图 10(b) 至 (c) 在 L 很小, 金属尖与小孔的间距变大时, 金属

尖端的光斑变弱, 出现双峰, 从小孔直接发射的光斑将上升, 并有可能在全场光斑中使从小孔直接发射的光转变成为主要的. 在此情况下, 出现双峰或小孔直接发射光转变成为主要时, 其 y 方向的光斑半高宽 FWHM 将变大, 这将破坏探针的分辨率.

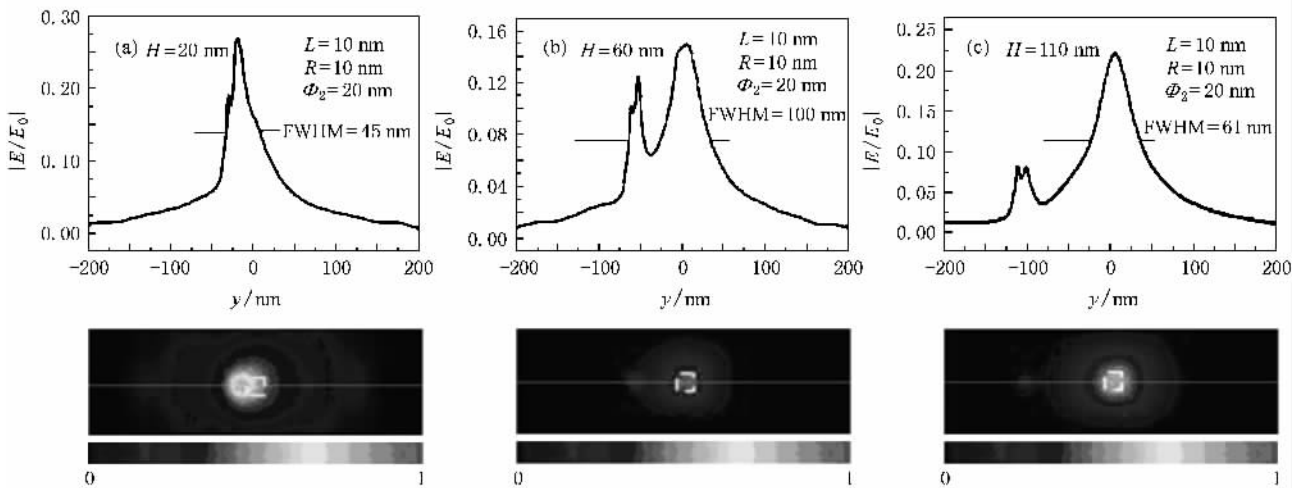


图 10 金属尖 $L = 10$ nm 尖端 xy 平面内电场分布随不同 H 变化 (a) $H = 20$ nm (b) $H = 60$ nm (c) $H = 110$ nm

Pohl 等人使用带金属突起尖的小孔光探针且获得了 20—25 nm 的分辨率, 显然不会与上述图 10(b) 或 (c) 情况相同或相近. 另外, Pohl 等人的实验样品金属光栅表面是有起伏的, 金属突起尖的长度估计不可能很小. 因此我们分析在 Pohl 等人的实验中扫描成像的光应该主要来自金属尖, Pohl 等人的实验系统的成像机理已离开了 A-SNOM 类型, 应归属于 S-SNOM 类型.

4. 结 论

综上所述, 本文采用 FDTD 法对带金属尖四棱

锥小孔光探针近场光斑分布特性进行了数值模拟, 研究了金属尖的长度、尖端半径及距离小孔位置等因素对电场分布的影响. 计算表明, 带金属尖小孔光探针的分辨率要好于不带金属尖的小孔光探针, 合理的选择金属尖的结构参数可同时获得通光量高和半高宽 (FWHM) 小的光斑. 计算分析 Pohl 等人首次近场光学显微镜实验系统的成像机理, 实验记录的主要信息来自金属突起 (尖), 并非直接来自小孔. 我们分析该实验系统已经离开了 A-SNOM 类型, 应归属于 S-SNOM 类型. 由于本文没有完整的相应的实验结果, 所以这一分析结论的正确性还有待于进一步讨论和研究.

- [1] Syng E H 1926 *Phil. Mag.* **6** 356
- [2] O'keefe J A 1956 *J. Opt. Soc. Am.* **46** 359
- [3] Binning G, Rohrer H Helv 1982 *Phys. Acta.* **55** 726
- [4] Pohl D W, Denk W, Lanz M 1984 *Appl. Phys. Lett.* **44** 651
- [5] Dürig U, Pohl D W, Rohner F 1986 *J. Appl. Phys.* **59** 3318
- [6] Betzig E, Isaacson M, Lewis A 1987 *Appl. Phys. Lett.* **51** 2088
- [7] Zenhausern F, Martin Y, Wickramasinghe K 1995 *Science* **269** 1083
- [8] Frey H G, Keilmann F, Kriele A, Guckenberger R 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 5030
- [9] Frey H G, Witt S, Felderer K, Guckenberger R 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 200801
- [10] Novotny L, Pohl D W, Regli P 1995 *Ultramicroscopy* **57** 180
- [11] Novotny L, Pohl D W, Hecht B 1995 *Opt. Lett.* **20** 970
- [12] Christensen D A 1995 *Ultramicroscopy* **57** 189
- [13] Liu X M, Wang J 2001 *Acta Opt. Sin.* **21** 1234 (in Chinese) [刘秀梅、王 佳 2001 光学学报 **21** 1234]
- [14] Zhou Q, Zhu X, Li H F 2000 *Acta. Phys. Sin.* **49** 210 (in Chinese) [周 庆、朱 星、李宏福 2000 物理学报 **49** 210]
- [15] Wang Z Y, Li Q, Zhao J, Guo J H 2000 *Acta. Phys. Sin.* **49** 1959 (in Chinese) [王子洋、李 勤、赵 钧、郭继华 2000 物理学报 **49** 1959]

- [16] Furukawa H ,Kawata S 1998 *Opt. Commun.* **148** 221
- [17] John T K II ,Erik J S ,X S X 2002 *J. Chem. Phys.* **116** 10895
- [18] Goncharenko A V ,Chang H C ,Wang J K 2007 *Ultramicroscopy* **107** 151
- [19] Hong X G ,Xu W D ,Li X G ,Zhao C Q ,Tang X D 2008 *Acta. Phys. Sin.* **57** 6643 (in Chinese)[洪小刚、徐文东、李小刚、赵成强、唐晓东 2008 物理学报 **57** 6643]
- [20] Tanaka K ,Tanaka M ,Sugiyama T 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 151116-1
- [21] Taminiau T H ,Moerland R J ,Segerink F B ,Kuipers L ,Hulst N F 2007 *Nano. Lett.* **7** 28
- [22] Taminiau T H ,Segerink F B ,Moerland R J ,Kuipers L ,Hulst N F 2007 *J. Opt. A :Pure Appl. Opt.* **9** S315
- [23] Bethe H A 1944 *Phys. Rev. Lett.* **66** 163
- [24] Ohtsu M ,Hori H 1999 *Near-Field Nano-Optics : From Basic Principles to Nano-Fabrication and Nano-Photonics* (New York : Kluwer Publishers) p129
- [25] Kunz K S ,Luebbers R J 2000 *The Finite Difference Time Domain Method for Electromagnetics* (Boca Raton ,Florida :CRC Press)
- [26] Wang C Q ,Zhu X L 1994 *Finite-Difference Time-Domain Method in Electromagnetic Field Computation* (Beijing : Peking University Press)(in Chinese)[王长清、祝西里 1994 电磁场计算中的时域有限差分法(北京 : 北京大学出版社)]

Numerical simulation of the near-field distribution of light spot of aperture pyramid-type optical probe with a metal tip^{*}

Wang Guo-Jun[†] Wu Shi-Fa Li Xu-Feng Li Rui Duan Jian-Min Pan Shi

(School of Physics and Optoelectronic Technology ,Dalian University of Technology ,Dalian 116024 ,China)

(Received 27 March 2009 ; revised manuscript received 23 April 2009)

Abstract

The finite-difference time-domain method (FDTD) is employed to investigate the near-field distribution of the light spot of aperture pyramid-type optical probe with a metal tip. The factors that have some influence on the electric field distribution such as the length ,radius and position departed from aperture of the tip are investigated. The mechanism of electromagnetic wave transmitting from the aperture to metal tip by way of plasmon is discussed. Our calculation results are consistent with the results obtained by Taminiau with different methods. How and why Pohl etc. have obtained images with high resolution in the 20—25 nm range between 1984 and 1986 are analyzed. The imaging mechanism of their experiment system is discussed. Numerical simulation demonstrates that the imaging mechanism of Pohl's experiment system may belong to a scattering-type near-field optical microscope (S-SNOM) rather than an aperture scanning near-field optical microscope (A-SNOM). This paper can help us to find optimized tip design in the future.

Keywords : scanning near-field optical microscope , local field enhancement , finite-difference time-domain method

PACC : 0779

^{*} Project supported by the Key Laboratory of Education Commission Foundation of Liaoning Province (Grant No. 20060120).

[†] Corresponding author. E-mail : wgj168gh@yahoo.com.cn