

# 1.3 $\mu\text{m}$ GaAs 基量子点垂直腔面发射激光器 结构设计与分析\*

佟存柱 牛智川<sup>†</sup> 韩 勤 吴荣汉

(中国科学院半导体研究所, 北京 100083)

(2004 年 12 月 10 日收到 2005 年 2 月 24 日收到修改稿)

结合垂直腔面发射激光器(VCSEL)原理以及量子点增益特点,计算了不同结构 VCSEL 的腔内损耗和量子点的模式增益.分析了激光器阈值特性以及氧化限制层对光损耗的影响.设计了含氧化限制层的 1.3  $\mu\text{m}$  量子点 VCSEL 结构.

关键词:量子点,垂直腔面发射激光器,增益

PACC:4255P,7320D

## 1. 引 言

垂直腔面发射激光器(VCSEL)因其自身特殊的结构,具有良好的波长选择特性、高量子效率、低制备成本、易大规模单片集成等优点,是光纤通信系统的理想光源之一.850 nm GaAs 基 VCSEL 在商业上取得了成功,使得人们更渴望把波长扩展到 1.31 和 1.55  $\mu\text{m}$ ,以满足中长距离光通信的需要,降低光通信系统成本.相对于 InP 基 VCSEL,GaAs 基 VCSEL 具有更简单的结构、集成优势和更好的温度特性.可以产生 1.31  $\mu\text{m}$  光增益的 GaAs 基半导体材料主要有 GaInNAs/GaAs 量子阱和自组织 InAs 量子点. GaInNAs 量子阱可以提供较大的模式增益<sup>[1]</sup>,但 N 的并入又会降低发光效率<sup>[2]</sup>,难以激射<sup>[3]</sup>.而量子点因其态密度的特点,可以使量子点激光器有更低的阈值电流<sup>[4]</sup>、更高的斜率效率<sup>[5]</sup>等优点.1.3  $\mu\text{m}$  InAs 量子点边发射激光器实现了室温 19 A/cm<sup>2</sup> 的阈值电流密度<sup>[6]</sup>.1.3  $\mu\text{m}$  InAs 量子点 VCSEL 也已经实现室温脉冲工作<sup>[7]</sup>,微分斜率效率超过了 40%.但因为量子点的增益不同于量子阱,量子点 VCSEL 在结构上也有别于量子阱 VCSEL.本文从 VCSEL 原理出发,结合量子点的增益特点,设计并优化了量子点 VCSEL 结构.

## 2. 理论分析

VCSEL 的结构如图 1 所示,上下为高反射率的分布反馈 Bragg 光栅(DBR),用作谐振腔的反射镜;中间是光学厚度为  $n\lambda$  的共振腔,其中心为有源区,提供光增益.谐振腔与上下 DBR 连接处为高铝组分氧化限制层,用于电、光限制,提高载流子注入密度,降低阈值电流.

本文仅讨论具有上氧化层结构的 VCSEL.图 1 (a)为上下电极结构的 VCSEL,记为 A 结构;(b)为双内电极结构的 VCSEL,记为 B 结构.A 结构的上 DBR p 型掺杂,浓度为  $3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ,下 DBR n 型掺杂,浓度为  $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ .B 结构上下 DBR 均不掺杂.p, n 电极接触层掺杂浓度分别为  $5 \times 10^{18}$  和  $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ,厚度分别为 100 和 200 nm.

### 2.1. 有源区设计

量子点的发光波长与量子点的尺寸有关<sup>[8]</sup>,增益波长为 1.3  $\mu\text{m}$  的 InAs 量子点典型尺寸为底面直径为 20 nm,高为 10 nm<sup>[9,10]</sup>.量子点激光器有源区一般采用 DWELL 结构<sup>[11]</sup>,即量子点生长在量子阱里,这种结构的量子点具有较高的面密度<sup>[10]</sup>.多层堆垛量子点<sup>[11]</sup>可以提高量子点激光器的饱和模式增益

\* 国家重点基础研究发展规划(批准号: TG2000036603)、国家自然科学基金(批准号: 60137020)和国家高技术研究发展计划(批准号: 2002AA312080)资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人, E-mail: zcniu@red.semi.ac.cn

和内量子效率. 因此,量子点激光器 常采用多层量子点堆垛,浸润层一般为  $\text{In}_{0.15}\text{Ga}_{0.85}\text{As}^{[11]}$ ,在我们的

分析计算中,浸润层厚度取为 8 nm,各层量子点之间用 50 nm GaAs 分隔.

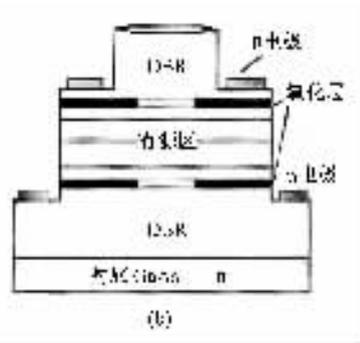
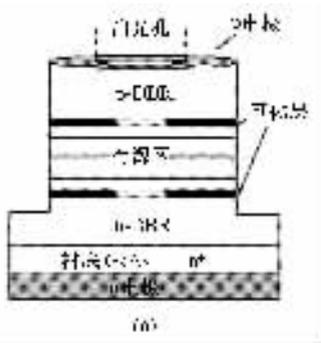


图 1 两种不同结构的 VCSEL (a)上下电极结构 (b)双内电极结构

### 2.1.1. VCSEL 阈值模式增益

激光器要实现激射,就要有足够高的增益. VCSEL 实现激射的阈值模式增益可以写为<sup>[12]</sup>

$$g_{th} = \alpha_d \left( 1 - \frac{L}{L_{eff}} \right) + \alpha_c \frac{L}{L_{eff}} + \frac{1}{L_{eff}} \ln \left( \frac{1}{\sqrt{R_1 R_b}} \right), \quad (1)$$

式中  $\alpha_d$  为 DBR 的平均损耗系数,包括吸收损耗和衍射损耗; $\alpha_c$  为平均腔内损耗; $R_1$  和  $R_b$  为上下 DBR 的反射率; $L$  为实际腔长; $L_{eff}$  为等效腔长. 对于 1.3  $\mu\text{m}$  的 GaAs 基 VCSEL,上下 DBR 反射率很高时, $L_{eff} \approx 1.076 \mu\text{m} + L$ ,可见增大腔长和降低损耗可以降低阈值增益.

VCSEL 腔外的吸收损耗主要来源于价带内跃迁光吸收和自由载流子吸收. 对于室温 1.3  $\mu\text{m}$  处的 GaAs p 型掺杂下,掺杂浓度为  $5.3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  时价带内跃迁光吸收系数约为  $80 \text{ cm}^{-1}$ <sup>[13]</sup>,掺杂浓度为  $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  时价带内跃迁光吸收系数约为  $13 \text{ cm}^{-1}$ <sup>[14]</sup>,掺杂浓度为  $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$  时价带内跃迁光吸收系数降至  $2 \text{ cm}^{-1}$ <sup>[15]</sup>. 对于 n 型掺杂,掺杂浓度为  $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  时总的光吸收系数约为  $13 \text{ cm}^{-1}$ <sup>[16]</sup>. 由此估算出 A 结构的 p 型 DBR 平均吸收系数约为  $20 \text{ cm}^{-1}$ ,n 型 DBR 约为  $13 \text{ cm}^{-1}$ . B 结构的上 DBR 平均吸收系数约为  $17 \text{ cm}^{-1}$ ,下 DBR 约为  $6 \text{ cm}^{-1}$ ,这里忽略了衍射损耗.

计算得到的阈值模式增益  $g_{th}$  和上 DBR 反射率  $R_1$  关系如图 2 所示. 计算中假设下 DBR 反射率  $R_b$  为 1, $R_1$  为不计吸收损耗影响的反射率,实际计算中考虑了吸收损耗对反射率的影响. 不同腔长的光限制因子保持相同,量子点为 5 层,量子点的层数对实际腔长略有影响. 从图 2 可以看到,腔长增加,阈值

模式增益下降,相同腔长下,B 结构  $g_{th}$  要小于 A 结构,这是由于 B 结构的吸收损耗比 A 结构的要小. 在  $R_1 = 0.997$  时,B 结构 1 $\lambda$ 、3 $\lambda$  和 5 $\lambda$  腔长 VCSEL 的  $g_{th}$  分别为 28,19 和  $15 \text{ cm}^{-1}$ ,而对应 A 结构分别为 35,24 和  $18 \text{ cm}^{-1}$ .

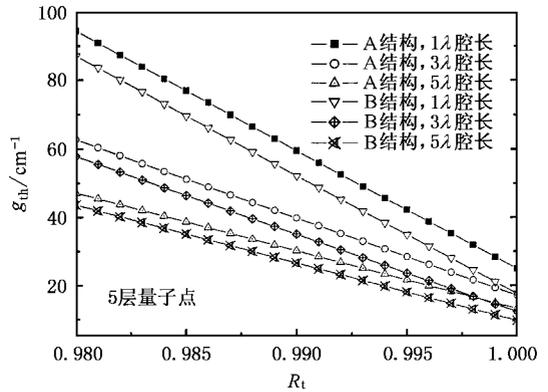


图 2 阈值模式增益  $g_{th}$  与上 DBR 反射率  $R_1$  的关系

### 2.1.2. 量子点的增益

量子点的增益主要取决于量子点的面密度、半高宽 (FWHM) 和载流子浓度. 量子点的材料增益可以表示为<sup>[9]</sup>

$$\begin{aligned} \alpha(E) = & \frac{2\pi\hbar e^2}{cn_r m_0 \epsilon_0} n_{\text{QD}} \frac{|M_b|^2}{m_0 E_g} \\ & \times \int_{-\infty}^{\infty} [f_v(\epsilon) - f_c(\epsilon)] R_{\text{QD}}(E) \\ & \times B(E - \epsilon) d\epsilon, \end{aligned} \quad (2)$$

式中  $R_{\text{QD}}(E)$  为量子点非均匀展宽函数,产生于量子点尺寸的涨落; $B(E - \epsilon)$  为量子点归一化均匀展宽函数,起源于带内弛豫; $|M_b|^2$  为体材料的动量矩阵元; $c$  为光速; $n_r$  为折射率; $m_0$  为静态电子质量; $\epsilon_0$  为真空介电常数; $e$  为电荷; $E_g$  为带隙能量;

$n_{\text{QD}} = \rho_d/h_d$ ,  $\rho_d$  为量子点面密度,  $h_d$  为量子点高度;  $f_c(\epsilon)$  和  $f_v(\epsilon)$  分别为导带和价带电子占据概率, 假设电中性  $f_c(\epsilon) + f_v(\epsilon) = 1$ . 这里仅研究量子点基态的增益, 有

$$R_{\text{QD}}(E) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\Delta_i} \exp\left(-\frac{(E - E_g)^2}{2\Delta_i^2}\right), \quad (3)$$

$$|M_b|^2 = \frac{m_0^2}{12} \left( \frac{1}{m_e} - \frac{1}{m_0} \right) \frac{E_g(E_g + \Delta)}{E_g + 2\Delta/3}, \quad (4)$$

$$B(E - \epsilon) = \frac{\Delta_h/\pi}{(E - \epsilon)^2 + \Delta_h^2}. \quad (5)$$

(3) 式中的  $\Delta_i$  为发光谱峰的特征宽度, (4) 式中的  $\Delta$  为有源区体材料的自旋-轨道能级分裂,  $m_e$  为电子有效质量, (5) 式中  $\Delta_h$  为均匀展宽特征能量. 由 (2) 式可看出增益与面密度成正比, 而载流子浓度影响的是  $f_c(\epsilon)$  和  $f_v(\epsilon)$  值.

最大增益情形对应于  $f_c(\epsilon) = 1$ . 图 3 为计算得到的饱和增益  $G_{\text{max}}$  与 FWHM 关系, 面密度  $\rho_d$  取为  $5 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ . 从图 3 可以看到, FWHM 越窄, 增益越大. 从生长角度看, 一般量子点 FWHM 为 35—45 meV<sup>[9]</sup>, 计算得到 FWHM 为 35 meV 时饱和增益峰值约为  $1304 \text{ cm}^{-1}$ , 40 meV 对应的峰值约为  $1141 \text{ cm}^{-1}$ , 这与实验结果  $1200 \text{ cm}^{-1}$ <sup>[4]</sup> 基本相符.

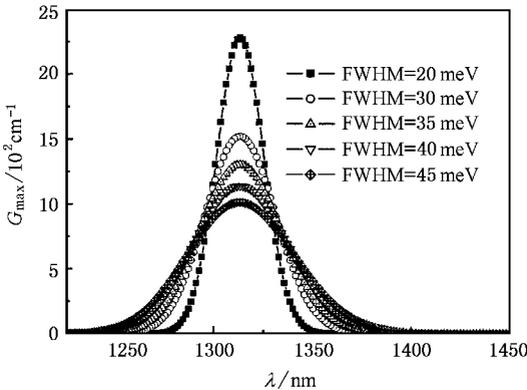


图 3 饱和增益谱  $G_{\text{max}}(\lambda)$  与 FWHM 的关系

多层堆垛量子点可以提高有源区光限制因子, 从而提高模式增益. 为获得最大光限制因子, 在 VCSEL 中常把量子点层放在腔内驻波波峰处, 这时光限制因子可以写为<sup>[12]</sup>

$$\Gamma = \Gamma_1 \frac{d}{L_{\text{eff}}} \left( 1 + \frac{\lambda}{4\pi n} \frac{\sum_{i=1}^{N_d} \left| \sin\left(4\pi n \frac{zh_i}{\lambda}\right) - \sin\left(4\pi n \frac{zl_i}{\lambda}\right) \right|}{\sum_{i=1}^{N_d} |zh_i - zl_i|} \right), \quad (6)$$

式中,  $\Gamma_1$  为横向光限制因子, 在横向尺寸大于  $5 \mu\text{m}$  时,  $\Gamma_1 \approx 1$ <sup>[17]</sup>;  $N_d$  为  $\lambda$  腔内的量子点层数;  $zh$  和  $zl$  为量子点层位置坐标, 取对称中心点为坐标原点;  $\bar{n}$  为腔内平均折射率;  $\lambda$  为腔模式波长,  $d$  为有源区厚度, 不同于量子阱, 量子点是离散的, 所以  $d$  是一个等效值, 可由下式计算:

$$d = N_d \rho_d \frac{2\pi}{3} r_d^2 h_d, \quad (7)$$

式中  $r_d$  为量子点半径, 这里近似把量子点视为半球形. 由模式增益与材料增益关系  $g(E) = \Gamma G(E)$  可算得饱和模式增益  $g_{\text{max}}$ . 这里得到的光限制因子  $\Gamma$  比量子阱 VCSEL 几乎要小一个数量级, 一般量子阱 VCSEL 光限制因子大约为 0.04—0.05<sup>[12]</sup>. 可见由于光限制因子较小, 使得量子点模式增益很小, 器件对光损耗也就很敏感. 降低光吸收损耗也就成为量子点 VCSEL 制备的一个关键, 这可通过适当降低掺杂浓度来实现.

图 4 为计算得到的最大模式增益  $g_{\text{max}}$  与量子点层数  $N_d$  和腔长关系, 每个  $\lambda$  腔内都保持相同量子点层数. 计算参数见表 1, 其中 InAs 量子点自旋-轨道能级分裂能量取为  $0.38 \text{ eV}$ <sup>[9,10]</sup>, 电子有效质量取为  $0.044 m_0$ <sup>[18]</sup>. 从图 4 可以看到, 腔长和量子点层数的增加都会增加  $g_{\text{max}}$  值, 当然这归因于光限制因子  $\Gamma$  的增加. 与图 2 相比较, 对于 B 结构器件, FWHM 为 40 meV, 5 层量子点  $5\lambda$  腔结构需要  $R_1 \geq 0.997$ ,  $3\lambda$  腔结构需要  $R_1 \geq 0.999$ ,  $1\lambda$  腔结构难以激射. 而 FWHM 为 35 meV 情况, 5 层量子点  $5\lambda$  腔结构  $R_1 \geq 0.995$  就可以满足阈值增益条件,  $3\lambda$  腔结构则需要  $R_1 \geq 0.999$ ,  $1\lambda$  腔结构难以激射, 除非降低 A 结构和 B 结构的光损耗.

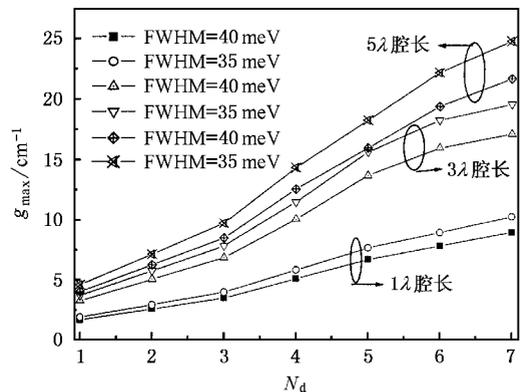


图 4 最大模式增益  $g_{\text{max}}$  与量子点层数  $N_d$  和腔长关系

表 1 计算参数取值

参数	取值	参数	取值
$\rho_d/\text{cm}^{-2}$	$5 \times 10^{10}$	$E_g/\text{eV}$	0.945
$h_d/\text{nm}$	10	$\Delta_b/\text{meV}$	15
$\Delta/\text{eV}$	0.38	$n_r$	3.6
$m_e/m_0$	0.044	$r_d/\text{nm}$	10

### 2.1.3. 量子效率及阈值电流

VCSEL 的微分量子效率  $\eta_d$  为

$$\eta_d = \eta_i \frac{\frac{1}{L_{\text{eff}}} \ln(1/\sqrt{R_t})}{\alpha + \frac{1}{L_{\text{eff}}} \ln(1/\sqrt{R_t R_b})}, \quad (8)$$

式中,  $\alpha$  为 VCSEL 除反射损耗外其他损耗,  $\eta_i$  为电流注入效率, 对于阱内量子点结构, 电流注入效率可近似达到 1<sup>[11]</sup>.  $\eta_d$  的大小直接影响输出功率, 输出功率可由下式求得:

$$\begin{aligned} P_o(I) &= \eta_d \eta_s C E_g I & (I \leq I_{\text{th}}), \\ P_o(I) &= \eta_d E_g (I - I_{\text{th}}) + \eta_d \eta_s C E_g I_{\text{th}} & (I > I_{\text{th}}), \end{aligned} \quad (9)$$

式中,  $C$  为自发辐射因子, 对于 5 层量子点 VCSEL 估算约为 0.01<sup>[19]</sup>;  $\eta_s$  为自发辐射效率. 由 (9) 式可知, 器件的微分斜率效率主要由  $\eta_d$  决定, 即由电流注入效率和反射损耗决定. 图 5 为微分量子效率  $\eta_d$  与  $R_t$  关系, 可见要保持高的微分量子效率, 上 DBR 反射率  $R_t$  不能太小, 这对应要求有源区要有高的增益. 相比于量子阱, 量子点激光器的电流注入效率可以很高, 所以量子点激光器和 LED 器件往往具有高的微分斜率效率.

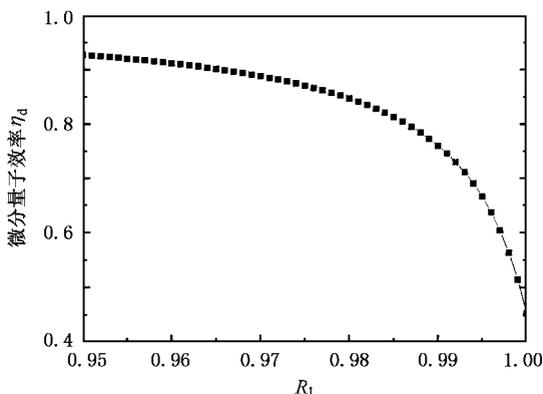


图 5 微分量子效率  $\eta_d$  与上 DBR 反射率  $R_t$  的关系

当注入电流增加时, 有源区载流子浓度增加, 这直接影响导带和价带载流子填充, 即增加 (2) 式中

$f_c(\epsilon) - f_v(\epsilon)$  值, 这时增益随电流增加而增大, 当达到阈值增益时开始激射. 对于量子点, 增益较易饱和, 即电流增加到一定程度,  $f_c(\epsilon) - f_v(\epsilon)$  已经达到极大值而使增益不随电流变化. 对于典型量子点边发射激光器, 基态饱和模式增益约为  $12 \text{ cm}^{-1}$ , 而第一激发态饱和模式增益约为  $23 \text{ cm}^{-1}$ <sup>[4]</sup>, 因此量子点边发射激光器激发态更易激射, 甚至出现双稳态工作情形. 而对于 VCSEL, 由于 DBR 反射镜具有波长选择性, 不会发生这种情况. 多层量子阱会增加透明电流强度<sup>[17]</sup>, 从而增加阈值电流, 但实验表明对于多层阱内量子点结构这种增加幅度并不大<sup>[11]</sup>, 因此多  $\lambda$  腔多层量子点结构的 VCSEL 是可以实现的.

### 2.2. DBR 反射镜设计

DBR 由  $\lambda/4$  的 AlGaAs/GaAs 构成. 对于掺杂的 DBR, 由于异质结势垒的存在而具有串联电阻. 高的 DBR 串联电阻会产生大量热而影响激射, 并会降低 Wall-Plug 效率. 对比 A 结构与 B 结构, B 结构串联电阻主要来自于横向电阻, 而 A 结构横向和纵向电阻都有. B 结构在降低串联电阻上占有明显优势. 根据上述分析, 降低光损耗也是 DBR 设计的重点. B 结构比 A 结构具有更大的降低光损耗的空间, 这可以通过降低 B 结构的 p 电极层掺杂浓度和厚度来实现. 也可用 AlO/GaAs 作为 DBR, 这可以降低吸收损耗<sup>[7]</sup>, 并且由于 AlO 和 GaAs 折射率差较大, 可以用更少的对数实现高反射率.

### 2.3. 氧化限制层设计

GaAs 基 VCSEL 采用高铝组分砷化物作为氧化限制层, 通过氧化产生  $\text{Al}_x\text{O}_y$  来实现光限制和电限制. 出于氧化控制考虑, 常用  $\text{Al}_{0.98}\text{Ga}_{0.02}\text{As}$  作为氧化层. 氧化孔会产生衍射损耗, 氧化层位置放在腔内光场驻波波腹位置, 可以降低衍射损耗和阈值<sup>[20]</sup>. 氧化层不宜太厚, 一般在 30 nm 左右, 这时衍射损耗较小<sup>[21]</sup>. 氧化孔径变小可以降低阈值电流, 但当孔的尺寸与光模式波长可比拟时, 反而会增加损耗, 造成模式失配<sup>[21]</sup>, 使阈值升高<sup>[20]</sup>. 因此氧化孔不应太小, 应比光模式波长大得多.

## 3. 结 论

根据以上的分析, 量子点作为 VCSEL 有源材料, 模式增益较小, 对腔内损耗很敏感, 因此提高模

式增益而降低光损耗成为量子点 VCSEL 实现的关键. 提高模式增益可通过提高材料增益和光限制因子来实现. 提高量子点面密度和 FWHM (由量子点尺寸均匀性决定) 都可以提高量子点材料增益, 而光限制因子可通过增加量子点层数来提高. 使腔长增

大、适当降低 DBR 或电极层掺杂浓度可大大降低反射损耗和吸收损耗. 氧化层设计也要从降低腔内光学损耗角度出发. 综上所述, 多  $\lambda$  腔低损耗的结构更适于量子点 VCSEL.

- [ 1 ] Borchert B , Egorov A Y , Illek S *et al* 1999 *Electron. Lett.* **35** 2204
- [ 2 ] Ni H Q , Xu X H , Zhang W *et al* 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 1474 (in Chinese) [ 倪海桥、徐晓华、张 纬等 2004 物理学报 **53** 1474 ]
- [ 3 ] Pan Z , Li L H , Zhang W *et al* 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 214
- [ 4 ] Maximov M V , Asryan L V , Shernyakov Y M *et al* 2001 *IEEE J. Quantum Electron.* **37** 676
- [ 5 ] Kovsh A R , Maleev N A , Zhukov A E *et al* 2002 *Electron. Lett.* **38** 1274
- [ 6 ] Park G , Shchekin O B , Huffaker D L *et al* 2000 *IEEE Photon. Technol. Lett.* **12** 230
- [ 7 ] Lott J A , Ledentsov N N , Ustinov V M *et al* 2000 *Electron. Lett.* **36** 1384
- [ 8 ] Cusack M A , Briddon P R , Jaros M 1996 *Phys. Rev. B* **54** 2300
- [ 9 ] Mukai K , Nakata Y , Otsubo K *et al* 2000 *IEEE J. Quantum Electron.* **36** 472
- [ 10 ] Fiore A , Oesterle U , Stanley R P *et al* 2001 *IEEE J. Quantum Electron.* **37** 1050
- [ 11 ] Liu G T , Stintz A , Li H *et al* 2000 *IEEE J. Quantum Electron.* **36** 1272
- [ 12 ] Li H E , Iga K 2003 *Vertical-cavity Surface-emitting Laser Devices* ( Berlin : Springer-Verlag ) p59 , 56
- [ 13 ] Casey H C Jr , Carter P L 1984 *Appl. Phys. Lett.* **44** 82
- [ 14 ] Henry C , Logan R , Merrit F *et al* 1983 *IEEE J. Quantum Electron.* **19** 947
- [ 15 ] Braunstem R , Magid L 1958 *Phys. Rev.* **111** 480
- [ 16 ] Shen X C 2002 *Optical Spectroscopy and Optical Properties of Semiconductors* ( Beijing : Science Press ) p202 (in Chinese) [ 沈学基础 2002 半导体光谱和光学性质(北京:科学出版社)第 202 页 ]
- [ 17 ] Ustinov V M , Zhukov A E , Egorov A Y *et al* 2003 *Quantum Dot Lasers* ( Oxford : Oxford University Press ) p238
- [ 18 ] Stier O , Grundmann M , Bimberg D 1999 *Phys. Rev. B* **59** 5688
- [ 19 ] Baba T , Hamano T , Koyama F *et al* 1991 *IEEE J. Quantum Electron.* **27** 1347
- [ 20 ] Demeulaere B , Bienstman P , Baets R G 1999 *IEEE J. Quantum Electron.* **35** 358
- [ 21 ] Hegblom E R , Babic D I , Thibault B J 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 1757

# Design and analysis of 1.3 $\mu\text{m}$ GaAs-based quantum dot vertical-cavity surface-emitting lasers<sup>\*</sup>

Tong Cun-Zhu Niu Zhi-Chuan Han Qin Wu Rong-Han

(*Institute of Semiconductor, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China*)

(Received 10 December 2004; revised manuscript received 24 February 2005)

## Abstract

A theoretical study on 1.3  $\mu\text{m}$  GaAs-based quantum dot vertical-cavity surface-emitting lasers (VCSELs) was made. Investigation of the influence of VCSELs on the optical confinement factors and the optical loss and the calculation of the material gain of the assembled InGaAs/GaAs quantum dots. Analysis of the threshold characteristic was made and the multi-wavelength cavity and multilayer quantum-dot stack structure is found to be more suitable for quantum dot VCSELs.

**Keywords** : quantum dots , vertical-cavity surface-emitting laser , gain

**PACC** : 4255P , 7320D

---

<sup>\*</sup> Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China ( Grant No. TG2000036603 ) , the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 60137020 ) , and the National High Technology Development Program of China ( Grant No. 2002AA312080 ) .