γ射线辐照快速生长 KDP 晶体的性能

谢晓义1,2**,朱茂东1,2,王斌1,王虎1,齐红基1,邵建达1*

¹中国科学院上海光学精密机械研究所强激光材料重点实验室薄膜光学实验室,上海 201800; ²中国科学院大学,北京 100049

摘要 采用连续过滤快速横向生长技术,有效增大了磷酸二氢钾(KDP)晶体的 Z 向长度,提高了单位晶体 II 类元 件的切片率。使用不同剂量的γ射线辐照 II 类晶体坯片后,测试其光学性能与抗激光损伤阈值。研究结果显示, 不同剂量的γ射线辐照不会改变晶格内部的振动模式,但会降低 912 cm⁻¹处的晶格振动强度;γ射线辐照诱导缺 陷的种类不变,但随着辐照剂量的增大,缺陷浓度增大;晶体坯片的损伤阈值随着辐照剂量的增大而减小。 关键词 材料; KDP 晶体;连续过滤;射线辐照;激光损伤阈值;晶体改性 中图分类号 O77+4 **文献标识码** A **doi**: 10.3788/CJL201845.1003004

Performance of Rapidly Grown KDP Crystals Irradiated by Gamma Ray

Xie Xiaoyi^{1,2**}, Zhu Maodong^{1,2}, Wang Bin¹, Wang Hu¹, Qi Hongji¹, Shao Jianda^{1*}

¹Laboratory of Thin Film Optics, Key Laboratory of Materials for High Power Laser, Shanghai Institute of

Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;

²University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Abstract The rapid transversal growth method based on continuous filtration is applied to effectively increase the Z-direction length of the potassium dihydrogen phosphate (KDP) crystal and improve the II-type plate yield of the unit crystal. Different doses of γ ray are used to irradiate on the II-type crystal. The optical performance and the laser induced damage threshold are tested. The research results show that different doses of γ ray irradiation do not change the lattice vibration modes within crystals, but can reduce the vibration intensity of the lattice at 912 cm⁻¹. The defect types induced by the γ ray irradiation do not change, but the defect density increases with the increase of the irradiation dose. In addition, the laser induced damage threshold of crystal plates decreases with the increase of the irradiation dose.

Key words materials; KDP crystal; continuous filtration; ray irradiation; laser damage threshold; crystal modification

OCIS codes 160.2100; 300.2530; 300.6450

1 引 言

在惯性约束核聚变(ICF)装置中,大尺寸磷酸 二氢钾(KDP)类晶体主要用于制作普克尔斯盒与 二倍频及三倍频器件^[1]。随着 ICF 的发展,系统的 光路数增多,增加了对 KDP 类晶体的数量要求;而 传统生长技术下 KDP 晶体切割成三倍频器件时的 利用率只有 30%^[2],且生长时间需要 1~2 年。采 用横向快速生长技术可大大缩短晶体的生长周期, 且晶体沿着[001]和[001]两个方向生长,增大了晶 体的 Z 向长度^[3],提高了单位毛坯晶体 II 类坯片的 切片率^[4]。然而,ICF 过程将产生大量的γ射线等 高能射线,导致装置运行时光学元件受到辐照^[5],其 性能发生变化,器件使用寿命缩短。当晶体受到高 能射线的辐照时,其体内的氧空位、氢原子、包裹体 等缺陷在 300~650 nm 波段会有较强的吸收^[6-8]。 采用γ射线辐照 KDP 晶体时,晶体内的杂质离子还 有可能导致形成缺陷中心^[5,9],晶体的紫外吸收、介 电性质及电导率均会发生变化^[10-12]。高能射线辐照 连续过滤横向快速生长的 II 类 KDP 晶体坯片的性 能变化研究鲜有报道。

本文将"点籽晶"连续过滤横向快长技术应用于

收稿日期: 2018-05-11;修回日期: 2018-05-22;录用日期: 2018-05-24

^{*} E-mail: jdshao@mail.shcnc.ac.cn; ** E-mail: xiaoyixie13@siom.ac.cn

KDP 晶体的生长过程,提高了 II 类晶体坯片的切片 率^[13];研究了 II 类 KDP 晶体坯片经不同剂量 γ 射 线辐照后性能的变化,包括透过率、拉曼光谱、荧光 光谱及损伤缺陷。研究结果表明,γ 射线辐照影响 了晶体的性能。这些结果为 KDP 类晶体生长技术 的优化与晶体辐照性能的研究提供了实验数据。

2 实 验

2.1 晶体生长

图 1 所示为自主研发的生长设备,由配料槽、连续过滤槽及生长槽组成。首先,将一定量的高纯磷酸二氢钾粉料与电阻率高达 18 M Ω •cm的去离子水在配料槽中混合均匀,通过称重法标定生长溶液的饱和温度为 56.5 $\mathbb{C}^{[14]}$ 。随后,将生长溶液经孔径为 0.04 μ m的 Entegris 滤芯过滤后转移到生长槽内槽(容积约为 60 L),在 75 \mathbb{C} 温度下过热 48 h,并开启循环过滤系统。溶液中的杂质严重影响晶体的光学性能和激光损伤阈值^[3,15-17],Garces 等^[18-19]研究发现,金属杂质离子的存在严重影响了经X射线

辐照后的 KDP 晶体的紫外透过率。因此,在晶体 生长前,从生长槽中取出 10 mL 的生长溶液,利用 电感耦合等离子发射质谱仪(ICP-MS)对其进行了 部分金属阳离子的含量(质量分数)测试。测试温度 为 20 ℃,相对湿度为 65%;仪器的测量范围为 2~ 270 amu(1 amu=1.66053886×10⁻²⁷ kg),分辨率 为 0.7 amu。测试结果见表 1,可知经两级连续过滤 后,生长溶液中 Fe、Al、As 等金属离子的含量已达 到较低水平。



图 1 晶体生长设备 Fig. 1 Equipment for crystal growth

表 1 连续过滤后的溶液杂质检测结果

Table 1 Detection results of solution contamination after continuous filtration

Element	As	Mg	Al	Cr	Pb	Ca	Cu	Fe	Ba	Sr
Content $/(mg \cdot kg^{-1})$	<0.05	0.07	0.09	<0.05	<0.05	0.16	<0.05	<0.05	0.15	<0.05

当溶液温度降至设定的生长温度时,将大小为 10 mm×10 mm×10 mm的无可见缺陷的 Z 切点 状籽晶放入生长槽中,生长方向呈水平方向。晶体 生长过程中,籽晶转速设置为 30 r/min,转动方式 为 30 s 正转、3 s 暂停、30 s 反转;生长溶液按一定 的流量连续不断地经生长槽进入连续过滤槽内,经 孔径分别为 0.04 μ m 与 0.02 μ m 的滤芯过滤后再回 到生长槽内。

随着晶体的生长,利用自主研发的监控系统捕获晶体不同角度的外形图片,程序计算后可获得晶



体的三维尺寸,通过进一步计算即可得到每天的溶 质消耗量^[14]。实验的温度控制精度为±0.01 ℃,晶 体的平均生长速度为8 mm/d。经过15 d 的快速生 长,获得了一块透亮无明显缺陷的 KDP 晶体,重达 2.18 kg,尺寸为94 mm×125 mm×61 mm,如 图 2(a)所示,其中长度94 mm 不包括两个锥的长 度。如图 2(b)所示,实验中用到的样品是从位于整 个晶体的对称位置且靠近晶体柱面无宏观缺陷的区 域内选取的4块,方向为 II 类切割,定向精度小于 1′,尺寸为50 mm×50 mm×10 mm。



图 2 实物。(a) KDP 晶体;(b)部分晶体坯片 Fig. 2 Physical maps. (a) KDP crystal; (b) some crystal plates

2.2 γ射线辐照实验

样品辐照源为南京航空航天大学的⁶⁰Coγ射线 辐照源。实验中通过时间长短来控制辐照剂量,辐 照剂量率为 895 Gy/h。4 个样品具体的辐照参数 见表 2。

表 2 不同样品的 γ 射线辐照剂量

Table 2	γ ray	irradiation	doses	\mathbf{for}	different	samples	
---------	-------	-------------	-------	----------------	-----------	---------	--

Samula	Dosage rate /	Irradiation	Irradiation	
Sample	$(kGy \cdot h^{-1})$	time /min	dosage /kGy	
1 #	0	0	0	
2 #	0.895	67	1	
3 #	0.895	3333	50	
4 #	0.895	13333	200	

2.3 样品性能测试

对辐照后的 4 块样品进行了抛光处理,使样品的两个通光面及一对侧面表面成光学平面,以保证符合测试条件。对样品进行了拉曼光谱、荧光光谱 以及损伤阈值测试实验。其中,荧光光谱仪为日本Horiba 公司的 FluoroMax-4 型荧光光谱仪,激发波长为 220 nm。实验中采用的拉曼设备为法国HORIBA 科学仪器事业部生产的 XploRA PLUS型拉曼光谱仪,测试温度为室温,激发波长为532 nm。抗激光损伤阈值是 KDP 类晶体最关键的性能之一,对 4 个样品均采用"R-on-1"的方式进行了损伤阈值测试^[20]。实验中测试用激光的波长为355 nm,脉宽为 7.6 ns,重复频率为 10 Hz,有效光斑面积为 0.513 mm²。

3 实验结果与讨论

3.1 拉曼光谱

图 3(a) 所示为不同剂量辐照的样品在 100~ 1200 cm⁻¹的拉曼光谱。可以看出,2 # 样品与 1 # 样品的拉曼光谱基本一致,而 3 # 、4 # 样品在 912 cm⁻¹处的拉曼峰强度有较明显的变化。800~



$$\boldsymbol{A}_{1} = \begin{bmatrix} a & c(\varphi) & 0\\ c(\varphi) & a & 0\\ 0 & 0 & b \end{bmatrix}, c(\varphi) = k |\cos\varphi|, (1)$$
$$\boldsymbol{S} = \boldsymbol{A} |\sum_{a\beta = xyz} e_{i}^{a} \boldsymbol{A}_{1} e_{s}^{\beta}|^{2}, \qquad (2)$$

式中a、b、k为常数,A为系数; e_1^{α} 和 e_s^{β} 分别为抽运 光和散射光的偏振方向单位矢量在主轴a、 β 方向的 分量; φ 为声子波矢与晶体Z轴间的夹角,声子波矢 即抽运光与散射光的波矢差;xyz为坐标系。由(1) 式可看出,散射强度与声子波矢的方向有关。因此, 当 γ 射线辐照晶体时,诱导缺陷影响了晶体的极化 率,改变了拉曼矩阵,引起了散射光强的改变,但振 动模式没有变化。4个样品拉曼谱线的半峰全宽相 同,均为24 cm⁻¹,而拉曼散射的宽度与参与拉曼散 射的声子种类数^[22]有关,故辐照剂量并没有改变参 与拉曼散射的声子种类。

3 # 样品的拉曼散射强度最弱, 而受激拉曼散射 的增益系数正比于自发拉曼散射强度, 因此, 3 # 样 品的受激拉曼散射强度比其他三种样品的更小。三 倍频器件优先选用氘化 KDP(DKDP)晶体的原因 是 DKDP 晶体的横向受激拉曼散射强度比 KDP 晶 体的小。KDP 晶体中 912 cm⁻¹附近的受激拉曼散



图 3 拉曼光谱。(a)样品的拉曼光谱;(b)样品 912 cm⁻¹处的拉曼峰

Fig. 3 Raman spectra. (a) Raman spectra of samples; (b) Raman peaks at 912 cm^{-1} for samples

射较强,其在传播中过程中会进一步增强,散射光会 聚向一个点附近,形成很强的光强,会造成整个大尺 寸晶体元件的损伤^[25-26]。基于图 3 的推测,使用合 适剂量的高能射线辐照整个 II 类 KDP 晶体坯片, 可减小 ICF 中大口径元件受到横向受激拉曼散射 破坏的可能性。

3.2 荧光光谱

图 4(a) 所示为 1 # 样品 200~350 nm 的激发光 谱,其在 200~230 nm 范围内的激发强度较大,因此 选择 λ=220 nm 作为激发光波长。2 # 样品的荧光光 谱与 1 # 样品的基本一致,这可能是由于辐照剂量较



小,未诱导缺陷或辐照诱导缺陷的荧光太弱;荧光光 谱中两个主要的发射峰分别位于 400 nm 附近与 450~500 nm 之间,但发光强度较小。3 #、4 # 样品 在同样的位置附近也各有类似的发射峰,但发光强度 更大,且随着辐照剂量的增大,发光强度增大。图 4 (b)所示为样品的荧光光谱,可以推测,4 个样品在 390 nm处的发光峰很有可能是由氧空位相关的缺陷 引起的;405 nm 处的发光峰有可能与晶体中的 Fe 离 子有关;450 nm 处的发光峰有可能与间隙氧离子有 关;485 nm 处的发光峰有可能是 L-缺陷(氢空位)引起 的;500 nm 处的发光峰有可能是杂质 Ti 引起的^[27]。



图 4 光谱。(a) KDP 晶体的激发谱;(b)样品的荧光光谱 Fig. 4 Spectra. (a) Excitation spectrum of KDP crystal; (b) fluorescence spectra of samples

利用高斯函数对 4 个样品的每个谱线进行分峰 拟合,结果如图 5 所示,荧光分峰的详细信息见 表 3。可以看出,4 个样品在 300~600 nm 范围内 均存在两个强而宽的荧光峰,这与 Guo 等^[28]的研究 结果一致。从表 3 可以看出,相较于样品 1 #、2 #, 样品 3 #、4 # 分峰得到的两个荧光峰存在轻微红 移^[27],但辐照剂量的增大并没有导致新的荧光峰出 现。故不同剂量的γ辐照诱导缺陷的种类并没有变



图 5 样品的荧光光谱高斯分峰。(a) 1 # 样品;(b) 2 # 样品;(c) 3 # 样品;(d) 4 # 样品 Fig. 5 Gauss peak separation of fluorescence spectra of samples. (a) 1 # sample; (b) 2 # sample; (c) 3 # sample; (d) 4 # sample

化,但随着辐照剂量的增大,辐照诱导的缺陷浓度增大,荧光强度增大。

Table 3	Gauss peak separation positions of samples					
	T 11.1	Position of	Position of			
Sample	dosage /kGy	Gauss peak	Gauss peak			
		1 /nm	2 /nm			
1 #	0	407	507			
2 #	1	401	488			
3 #	50	415	531			
4 #	200	432	516			

表 3 样品的高斯分峰位置

3.3 抗激光损伤阈值

对样品进行抗激光损伤阈值测试后,为从损 伤阈值中获取与内部缺陷情况更直接相关的信息,采用 Krol 模型对样品的损伤阈值和缺陷密度 进行分析^[29],结果如图 6 与表 4 所示。在缺陷阈 值服从高斯分布的前提下,Krol 统计模型基于损 伤阈值曲线的形状与斜率,能够有效提取损伤阈

值的大小、标准方差及缺陷密度。表4中,T。为损 伤概率为 50% 时的损伤阈值, ΔT 为采用模型计算 的损伤阈值方差,缺陷密度为计算得到的整个样 品的平均密度。图 6 中上侧分图为损伤概率与激 光能量之间的关系,下侧分图为缺陷密度随能量 变化的曲线。可以看出,2#样品被辐照的剂量较 小,T。值较1#样品的变化很小,但100%损伤时 的阈值明显小于1#样品的;4个样品的曲线趋势 一致,这表明辐照过程中缺陷类型没有变化,与前 面的研究结果一致。表4进一步显示,随着辐照 剂量的增大,辐照诱导的缺陷浓度增大,KDP 晶体 受缺陷诱导的三倍频损伤阈值逐渐减小。这是因 为 γ 射线的光子能量大于 10⁶ eV, 而 KDP 晶体的 禁带宽度为 7~9 eV^[30],因此当 γ射线辐照 KDP 晶体时,晶体吸收γ射线光子能量,发生电离,氢 键断裂形成空位缺陷和间隙缺陷,晶体材料与激 光相互作用时因缺陷诱导了损伤[31]。



图 6 Krol 模型计算的样品损伤阈值与缺陷密度。(a) 1 # 样品;(b) 2 # 样品;(c) 3 # 样品;(d) 4 # 样品

Fig. 6 Damage threshold and defect density calculated by Krol model.

(a) 1 # sample; (b) 2 # sample; (c) 3 # sample; (d) 4 # sample

表 4 样品的模拟计算结果

Fable 4 S	Simulation	results	of	sampl	es
-----------	------------	---------	----	-------	----

0 1		Defect	T / (I - 2)	AT /(I = -2)	
Sample	density $/cm^{-3}$	$I_0/(J \cdot cm^2)$	$\Delta I / (J \cdot cm^{-1})$		
	1#	1.765	17.986	6.070	
	2 #	2.219	17.003	6.962	
	3 #	2.452	12.831	6.536	
	4 #	4.978	10.812	6.178	

4 结 论

采用"点籽晶"连续过滤横向快速生长方法生长 了一块尺寸为 94 mm×125 mm×61 mm 的 KDP 晶体。通过 γ 射线辐照 II 类 KDP 晶体坯片发现,γ 射线辐照不会改变晶格内部的振动模式,但会降低 其振动强度;γ 射线辐照诱导缺陷的种类没有变化, 但随着辐照剂量的增大,缺陷总浓度变大;晶体坯片 的损伤阈值随着辐照剂量的增大而减小。根据辐照 后晶体的拉曼光谱测试结果推测,提高合适剂量的 γ射线辐照可能降低 KDP 晶体受激拉曼散射破坏 的可能性。

致 谢 感谢南京航空航天大学提供辐照源支持。

参考文献

- [1] Wang G C, Yuan Z S. Inertial confined fusion [M]. Hefei: Anhui Education Press, 1996. 王淦昌,袁之尚.惯性约束核聚变 [M]. 合肥:安徽 教育出版社, 1996.
- [2] Bespalov V I, Bredikhin V I, Ershov V P, et al. KDP and DKDP crystals for nonlinear optics grown at high rate [J]. Journal of Crystal Growth, 1987, 82(4): 776-778.
- [3] Burnham A K, Robey H F, Zaitseva N P, et al. Producing KDP and DKDP crystals for the NIF laser[R]. Livermore: Lawrence Livermore National Laboratory, 1999: UCRL-D-135590.
- [4] de Yoreo J J, Burnham A K, Whitman P K. Developing KH₂ PO₄ and KD₂ PO₄ crystals for the world's most power laser[J]. International Materials Reviews, 2013, 47(3): 113-152.
- [5] Marshall C D, Speth J A, DeLoach L D, et al. Penetrating radiation impact on NIF final optic components[J]. Proceedings of SPIE, 1997, 3047: 343-364.
- [6] Marshall C D, Payne S A, Henesian M A, et al. Ultraviolet-induced transient absorption in potassium dihydrogen phosphate and its influence on frequency conversion[J]. Journal of the Optical Society of America B, 1994, 11(5): 774-785.
- [7] Chirila M M, Garces N Y, Halliburton L E, et al. Production and thermal decay of radiation-induced point defects in KD₂PO₄ crystals[J]. Journal of Applied Physics, 2003, 94(10): 6456-6462.
- Setzler S D, Stevens K T, Halliburton L E, et al. Hydrogen atoms in KH₂PO₄ crystals [J]. Physical Review B, 1998, 57(5): 2643-2646.
- [9] Cooke D W, Muenchausen R E, Bennett B L. Measurement of point defect energetics in potassium dihydrogen phosphate (KDP) [R]. Los Alamos: Los Alamos National Laboratory, 1997: LA-UR-97-4967.
- [10] Gavrik A P, Nikolov O T. Gamma ray induced decrease of defect concentration in KDP single crystals[J]. Functional Materials, 2011, 18(2): 216-223.

- [11] Leuchenko A N. Methods of optical absorption reduction in irradiated KDP single crystals containing arsenic ions[J]. Functional Materials, 2009, 16(2): 145-149.
- [12] Guo D C, Zu X T, Yang G X, et al. Gamma irradiation effect on optical and dielectric properties of potassium dihydrogen phosphate crystals[J]. Optical Materials, 2016, 54: 238-244.
- [13] Zaitseva N, Carman L, Smolsky I. Habit control during rapid growth of KDP and DKDP crystals[J]. Journal of Crystal Growth, 2002, 241(3): 363-373.
- [14] Xie X, Qi H, Shao J. DKDP crystal growth controlled by cooling rate[J]. Proceedings of SPIE, 2017, 10339: 103390W.
- [15] Hu G H, Wang Y L, Chang J, et al. Performance of rapid-grown KDP crystals with continuous filtration
 [J]. High Power Laser Science and Engineering, 2015, 3: e13.
- [16] Ye L W. Rapid growth of large-scale KDP crystal and its optical quality [D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences, 2013.
 叶李旺. 大尺寸 KDP 晶体的快速生长及光学性能研 究[D]. 北京:中国科学院大学, 2013.
- [17] Wang J C, Zheng G Z, Su G B, *et al*. Study on rapid growth of KDP and DKDP crystals[J]. Acta Optica Sinica, 2009, 29(s1): 198-201.
 汪剑成,郑国宗,苏根博,等. KDP 和 DKDP 晶体快 速生长的研究[J].光学学报, 2009, 29(s1): 198-201.
- [18] Garces N Y, Stevens K T, Halliburton L E, et al. Optical absorption and electron paramagnetic resonance of Fe ions in KDP crystals[J]. Journal of Crystal Growth, 2001, 225(2/3/4): 435-439.
- [19] Alybakov A A, Abdrazakov A A, Arbotoev O M, et al. Paramagnetic centers in X-irradiated KH₂ PO₄ crystals doped with chromium [J]. Crystal Research and Technology, 1988, 23(10/11): 1401-1406.
- [20] Wang Y L. Laser damage mechanisms and laser conditioning properties in I-type KDP and II-type DKDP crystals [D]. Beijing: University of Chinese Academy of Sciences, 2017.
 王岳亮. I类 KDP 和 II 类 DKDP 晶体激光损伤机理 及激光预处理特性研究 [D].北京:中国科学院大学, 2017.
- [21] Demos S G, Yan M, Staggs M, et al. Raman scattering investigation of KH₂PO₄ subsequent to high fluence laser irradiation [J]. Applied Physics Letters, 1998, 72(19): 2367-2369.
- [22] Chai X X, Zhu Q H, Li F Q, et al. Stimulated Raman scattering properties of KDP crystal[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2014, 26(9): 177-

181.

柴向旭,朱启华,李富全,等.KDP晶体受激拉曼散 射特性[J].强激光与粒子束,2014,26(9):177-181.

- [23] Chai X X, Zhu Q H, Li F Q, et al. Raman scattering angular dependence of KDP crystal [J]. High Power Laser and Particle Beams, 2014, 26(2): 138-142.
 柴向旭,朱启华,李富全,等. KDP 晶体拉曼散射角 度特性 [J]. 强激光与粒子束, 2014, 26(2): 138-142.
- [24] Loudon R. The Raman effect in crystals[J]. Advances in Physics, 1964, 13(52): 423-482.
- [25] Liu B A, Sun S T, Ji L L, et al. Laser-induced damage of DKDP crystal for third harmonic generation under different wavelengths[J]. High Power Laser and Particle Beams, 2010, 22(2): 323-326.
 刘宝安,孙绍涛,季来林,等.不同波长三倍频

DKDP晶体的激光损伤[J].强激光与粒子束,2010, 22(2):323-326.

[26] Chai X X. Study on the Raman scattering properties of KDP and DKDP crystals [D]. Jinan: Shandong University, 2015. 柴向旭. KDP、DKDP 晶体拉曼散射特性研究 [D]. 济南: 山东大学, 2015.

- [27] Guo D C. Radiation effects and micro defects detection of KDP crystals[D]. Chengdu: University of Electronic Science and Technology of China, 2016.
 郭德成. KDP 晶体微观缺陷检测及辐照效应研究 [D]. 成都: 电子科技大学, 2016.
- [28] Guo D C, Jiang X D, Huang J, et al. Effects of γray irradiation on optical absorption and laser damage performance of KDP crystals containing arsenic impurities [J]. Optics Express, 2014, 22 (23): 29020-29030.
- [29] Krol H, Gallais L, Grezes-Besset C, et al. Investigation of nanoprecursors threshold distribution in laser-damage testing[J]. Optics Communications, 2005, 256(1/2/3): 184-189.
- [30] Carr C W, Radousky H B, Demos S G. Wavelength dependence of laser-induced damage: Determining the damage initiation mechanisms [J]. Physical Review Letters, 2003, 91(12): 127402.
- [31] Liu C S, Kioussis N, Demos S G, et al. Electron- or hole-assisted reactions of H defects in hydrogenbonded KDP [J]. Physical Review Letters, 2003, 91(1): 015505.