梯度掺杂 Yb: YAG 重频激光器热管理研究*

严雄伟^{1)†} 於海武 郑建刚 李明中 蒋新颖 段文涛 曹丁象 王明哲 单小童 张永亮

> (中国工程物理研究院激光聚变研究中心, 绵阳 621900) (2010年3月13日收到; 2010年7月7日收到修改稿)

为了改善重频激光器的热性能,本文采用了键合 Yb: YAG 晶体薄片作为激光增益介质,介质中掺杂粒子浓度 呈梯度分布.文章计算了不同参数条件下介质抽运过程,得到介质内部的储能,温度和应力分布,并从中选出较为 优化的介质参数.计算表明,采用梯度掺杂的方法,介质温度降低,形变和热应力减小,波前畸变改善.理论上证明 了采用梯度掺杂的方法改善热管理的可行性.

关键词: 梯度掺杂, 键合, Yb: YAG, 热管理 **PACS**: 78. 20. Bh, 78. 45. + h, 78. 20. - e, 65, 40. - b

1. 引 言

进入上世纪 90 年代,随着 InGaAs 激光二极管 输出功率和稳定性升高、价格下降,以及 Yb³⁺掺杂 新材料的研究应用,LD 抽运 Yb³⁺掺杂介质激光器 获得了长足的进步,被广泛应用于惯性约束核聚变 (ICF)以及通信、军事等各个领域^[1-3].

作为准三能级材料,Yb介质的储能提取效率对温度高低十分敏感^[4]. 尽管 Yb激光材料具有高的量子效率(抽运波长更接近于激光波长)、低的热生成率,但重复频率运转时,增益介质的热管理依然是一个挑战性的问题.

在挑战面前,美国 LLNL 实验室的 Mercury 系统使用 0.1 马赫的氦气流对七片 Yb:S-FAP 晶体进行冷却^[5];日本大坂大学 ILE 实验室的 HALNA 项目组在考虑低温 Yb: YAG 技术路线^[6,7];法国 LULI 实验室(Lucia 激光装置)采用非掺杂晶体粘合等技术进行冷却^[8].

我们对采用梯度掺杂 Yb: YAG 介质改善激光器热性能进行了探索.

2. 理论分析

本文考虑的物理过程主要有 Yb 离子储能及产

*国家自然科学基金(批准号:10874157)资助的课题.

热过程,介质的热传输过程和热致应力应变过程.

2.1. Yb 离子储能及产热

Yb 的能级图非常简单,只有间距约为 10,000 cm⁻¹的²F^{7/2}基态和²F^{5/2}受激多重态,抽运和激光跃迁发生在 Stark 分裂的子能级之间;由于激光下能级固有的热布居(百分之几)以及受热后激光下能级布居数进一步增加,因此具有准三能级特点.

首先定义参与抽运和激光跃迁的 Stark 子能级的波尔兹曼热分布因子: f_{Li} , f_{Lin} , f_{Ui} , f_{Uj} , 式中下标 U和 L分别表示 Yb离子的上下两个能级,下标 i,j表示抽运跃迁子能级,m,n表示激光跃迁子能级,根据 Yb 的能级结构,可以计算 Yb离子的上述分布系数.

因此,抽运和激光过程对应的粒子数差为

$$\begin{split} \Delta N_{\rm p} &= f_{\rm Li} N_{\rm L} - f_{\rm Uj} N_{\rm U} \\ &= N_{\rm Yb} \big(f_{\rm Li} + f_{\rm Uj} \big) \, \big(f_{\rm P} - X_{\rm U} \big) \, , \\ \Delta N_{\rm l} &= f_{\rm Un} N_{\rm U} - f_{\rm Lm} N_{\rm L} \\ &= N_{\rm Yb} \big(f_{\rm Lm} + f_{\rm Un} \big) \, \big(X_{\rm U} - f_{\rm l} \big) . \end{split}$$

式中下标 p 和 l 分别表示抽运和激光过程, N_{YD} 表示 Yb 粒子数密度(cm⁻³), N_{U} 与 N_{L} 分别表示处于上 能级和下能级的 Yb 粒子数密度,并定义了

$$f_{\rm p} = f_{\rm Li}/(f_{\rm Li} + f_{\rm Uj}),$$

 $f_{\rm l} = f_{\rm Lm}/(f_{\rm Lm} + f_{\rm Un}),$

[†] E-mail; yxw130@163. com

^{©2011} 中国物理学会 Chinese Physical Society

$$X_{\rm U} = N_{\rm U}/N_{\rm Yb}$$
.

因此表征激光上能级粒子数密度的速率方程为

$$\frac{\mathrm{d}N_{U}}{\mathrm{d}t} = \sigma_{\mathrm{p}}c\phi_{\mathrm{p}}\Delta N_{\mathrm{p}} - \frac{N_{\mathrm{U}}}{\tau_{\mathrm{U}}} - \sigma_{\mathrm{l}}c\phi_{\mathrm{l}}\Delta N_{\mathrm{l}},$$

式中右边的三项分别表示抽运吸收、自发辐射、受 激辐射.

Yb: YAG 介质中产热机理主要有以下几个方 面:1)抽运带与上激光能级之间的光子能差以热的 方式散逸到基质晶格中,造成量子亏损发热;2)与 1)类似,下激光能级与基能态之间的能差转换为热 能:3)因为激光跃迁的荧光过程的量子效率小于1. 除了产生激光能量外,其余能量由于激光猝灭而产 生热:4) 基质材料对 ASE 光线光能的吸收产生热.

综合考虑 Yb: YAG 介质抽运过程中的能级跃 迁过程和热过程,可以建立抽运过程中的物理模 型,可以计算得到 Yb: YAG 晶体中储能密度分布和 热源分布,文献[11]中有物理模型的详细描述.

本文定义储能中可以实现激光过程粒子数反 转的部分能量为可提取能量.

2.2. 热传输方程

激光介质中的温度分布与介质的热物性参数、 几何构型以及与外部环境条件有关. 在笛卡儿坐标 系中,热传导方程为

$$\rho \cdot C_{p} \cdot \frac{\partial T(x, y, z; t)}{\partial t}$$

$$= \kappa(T, C_{Yb}) \cdot \left(\frac{\partial^{2} T}{\partial x^{2}} + \frac{\partial^{2} T}{\partial y^{2}} + \frac{\partial^{2} T}{\partial z^{2}}\right)$$

$$+ P_{th}(x, y, z, t),$$

$$\kappa \frac{\partial T}{\partial \mathbf{n}_{i}} \Big|_{Si} = h_{i} \times (T_{i} - T_{\infty}).$$

式中, $\rho(kg/m^3)$ 为密度, $C_p(J/kg \cdot K)$ 为比热容, κ (T, C_{Yb}) $(W/m \cdot K)$ 为热导率, 它是温度和掺杂浓 度的函数^[9,10], $P_{th}(x,y,z,t)$ (W/m³)为介质内热源 分布,它也是时间的函数,通过对抽运过程进行计 算得到[11]. 边界条件 h; 为介质各表面的对流换热系 数, 求解热传输方程可以得到介质内的温度分布,

2.3. 应力应变场分析

对于温升产生的应力应变,需要用耦合法求 解[12].耦合场的分析有两种方法:顺序耦合方法和 直接耦合方法. 本文的热-应力耦合分析采用顺序耦 合解法,先进行非线性瞬态热分析,将热分析的结 果作为结构分析的载荷来实现两种场的藕合,由于

载荷和结构的响应随时间的变化比较缓慢,再进行 线性静态应力分析.

应力分析中作用于材料上的载荷包括:外部 施加的作用力和温度(具有非均匀的时间空间分 布) 载荷,这些载荷在材料上产生一定的应力和 变形. 这样, 材料的状态由准静态的热弹性方程 组决定[12,13],包括:几何方程、物理方程和力的平 衡方程. 求解方程组可以得到介质内的应力应变 分布.

2.3.1. 几何方程

描述应变和位移的关系为

$$\varepsilon_{x} = \frac{\partial u_{x}}{\partial x}, \varepsilon_{y} = \frac{\partial u_{y}}{\partial y}, \varepsilon_{z} = \frac{\partial u_{z}}{\partial z},$$

$$\gamma_{xy} = \frac{\partial u_{x}}{\partial y} + \frac{\partial u_{y}}{\partial x}, \gamma_{yz} = \frac{\partial u_{y}}{\partial z} + \frac{\partial u_{z}}{\partial y},$$

$$\gamma_{zx} = \frac{\partial u_{z}}{\partial x} + \frac{\partial u_{x}}{\partial z}.$$

2.3.2. 物理方程

应力应变之间的关系满足广义胡克定律

$$\sigma_{x} = \zeta(\varepsilon_{x} + \varepsilon_{y} + \varepsilon_{z}) + 2G\varepsilon_{x} - (3\zeta + 2G)\alpha T,$$

$$\sigma_{y} = \zeta(\varepsilon_{x} + \varepsilon_{y} + \varepsilon_{z}) + 2G\varepsilon_{y} - (3\zeta + 2G)\alpha T,$$

$$\sigma_{z} = \zeta(\varepsilon_{x} + \varepsilon_{y} + \varepsilon_{z}) + 2G\varepsilon_{z} - (3\zeta + 2G)\alpha T,$$

$$\tau_{xy} = G\gamma_{xy}, \tau_{yz} = G\gamma_{yz}, \tau_{zx} = G\gamma_{zx}.$$
式中, $\zeta = E\mu/(1 + \mu)(1 - 2\mu), G = E/2(1 + \mu),$
 α 为热膨胀系数, E 为弹性模量, G 为剪切弹性模量,

 α 为热膨胀系数, E 为弹性模量, G 为剪切弹性模量, μ 为泊松比.

2.3.3. 平衡方程

描述力的平衡关系. 若物体处于平衡状态,微 元体满足六个静力平衡条件

$$\sum X = \sum Y = \sum Z = \sum M_x = \sum M_y$$
$$= \sum M_z = 0,$$

先利用平衡条件 $\sum X = 0$ 来讨论 x 方向力的平衡. 微元体左侧的正应力表示为 $\sigma_x = f(x,y,z)$,在微元 体的右侧,由于坐标有微变量 dx,正应力为 σ'_x = f(x + dx, y, z), 按 Taylor 级数展开, $\sigma'_x = \sigma_x +$ $\frac{\partial \sigma_x}{\partial x}$ dx,同样得到其他应力的表达式.则 x 方向平衡 方程为

$$\left(\sigma_{x} + \frac{\partial \sigma_{x}}{\partial x} dx\right) dy dz - \sigma_{x} dy dz$$
$$+ \left(\tau_{yx} + \frac{\partial \tau_{yx}}{\partial y} dy\right) dx dz$$

$$-\tau_{yx} dxdz + \left(\tau_{zx} + \frac{\partial \tau_{zx}}{\partial z} dy\right) dxdy$$
$$-\tau_{zx} dxdy + F_{x} dxdydz = 0,$$

同理,利用 $\sum Y = 0$ 和 $\sum Z = 0$,得到 x,y,z 方向各力的平衡方程

$$\begin{split} &\frac{\partial \sigma_x}{\partial x} + \frac{\partial \tau_{yx}}{\partial y} + \frac{\partial \tau_{zx}}{\partial z} + F_x = 0, \\ &\frac{\partial \tau_{xy}}{\partial x} + \frac{\partial \sigma_y}{\partial y} + \frac{\partial \tau_{yz}}{\partial z} + F_y = 0, \\ &\frac{\partial \tau_{xz}}{\partial z} + \frac{\partial \tau_{yz}}{\partial y} + \frac{\partial \sigma_z}{\partial z} + F_z = 0. \end{split}$$

式中,F 为作用在微元体上的外力.

3. 激光器构型

本文研究的激光器采用端面抽运的"有源反射镜(AM)"构型. 我们知道,横向温度梯度(与激光束垂直)引起的光学畸变会降低光束质量,AM 型激光器有几个优点,一是可以做到均匀的大口径抽运,二是抽运辐射与激光束方向平行,三是可以在增益介质的背面直接进行水冷,从端面提取废热,有助于建立轴向的一维热梯度,从而减少横向温度梯度.

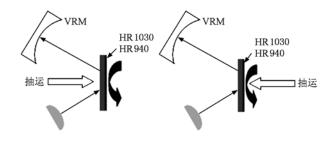


图 1 端面抽运构形 (a)激光与抽运光处于同一方向;(b)激光正面提取,抽运光背面入射

端泵激光器结构有如图 1 所示的两种设计. 图 1(a) 所示构形的特点是激光和抽运光处于同一侧, 介质正反面镀同一膜系, 由于 Yb: YAG 的吸收和发射波长分别为940 nm 和1030 nm, 膜层制作简单, 抽运光吸收效率高, 但该构形的缺点是主要的抽运光热沉积都远离冷却面, 抽运光的沉积、同时也是热功率沉积的梯度非常大, 不利于增益介质的热控制. 产生如下不利因素: 1) 增益介质的热变形导致腔的失谐, 2) Yb 介质温升显著, 导致介质内的储能得不到有效提取. 图 1(b) 所示构形的特点是激光和抽运光处于介质两侧, 抽运热沉积更靠近冷却面, 但是该构形的缺点是 940 nm/1030 nm 的双色膜系

较难制作(要同时保证高的损伤阈值),特别是对未来大口径激光放大器而言,工艺实现较难.

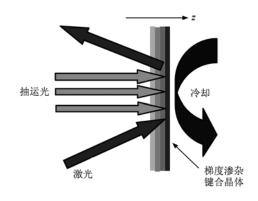


图 2 基于梯度掺杂晶体键合的沉热与冷却共面设计示意图

我们考虑采用激光与抽运光处于同一方向的构型,通过设计增益介质不同位置的掺杂浓度使热沉积尽量靠近冷却面(图 2). 由于渐变掺杂浓度材料难以实现,我们拟采用不同浓度薄晶体片键合的方法得到期望的晶体^[14,15]. 键合的晶体中掺杂浓度呈梯度分布. 为降低薄晶体片的键合难度,应用中采取二片、三片、四片等不同的组合方式较为可行.

4. 模拟计算与分析

在模拟计算中,建立了抽运过程的物理模型, 计算得到 Yb: YAG 晶体中储能密度分布和热源分 布,将热源分布作为条件在 ANSYS 软件中建立热力 学有限元模型,计算得到介质中的温度和应力分 布. 我们的物理模型如图 3 所示,晶体为圆形薄片, 中心有一正方形抽运区,在晶体一面有水冷,另一 面自然对流冷却. 计算中应用的介质、抽运和冷却

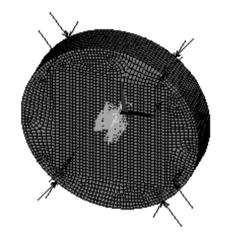


图 3 介质热-力学有限元模型

参数见表 1.

我们选取各种键合结构和参数进行计算优化, 希望在不牺牲可提取能量的条件下,获得较小的热 致畸变.

表1 介质、抽运和冷却参数

介质半径 R/mm	13
厚度 d/mm	5
掺杂浓度厚度积 $N_{\rm d}/{\rm cm}^{-2}$	2.0×10^{20}
抽运区/m	16 × 16
抽运强度/(kW/cm²)	20
抽运脉宽/ms	1
重复频率/Hz	10
量子亏损产热率	0.09
荧光量子效率	0. 97
光线传输损耗系数/cm-1	0.003
水冷面对流换热系数/(W/m²·℃)	10000
自然对流换热系数/(W/m²・℃)	6. 5
Yb: YAG 晶体比热/(J/kg·℃)	590
密度/(kg/m³)	4560
弹性模量/(GPa)	310
泊松比	0. 3
热膨胀系数/℃ -1	8×10^{-6}

4.1. 均匀掺杂介质计算

忽略冷却条件,考察均匀掺杂时(掺杂浓度为 $N_0 = 4.0 \times 10^{20}/\text{cm}^3$)介质平均温度高低对最大可提取能量的影响(图 4).

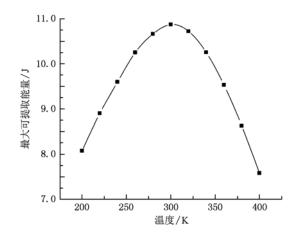


图 4 可提取能量随介质温度的变化

温度较低时,Yb:YAG 晶体的发射截面显著增大,增益过高,ASE 十分严重,大量的抽运能量转化

为自发辐射放大被消耗,上能级储存的能量很少.但是,低温条件下,激光下能级的热布居可以近似忽略,Yb离子趋于标准的四能级系统,能量提取较为容易.温度较高时,Yb:YAG晶体的发射截面较小,增益较小,ASE较弱,抽运能量可以有效的储存在上能级.但此时,激光下能级的热布居较大,造成能级堵塞,储存的能量很难提取.

因为以上原因,由图 4 可见,介质平均温度为300 K 左右时,介质的可提取能量最大.因此,我们希望控制介质平均温度在300 K 左右.

4.2. 两片键合掺杂介质计算

考虑冷却条件,考察两片等厚介质键合时,掺杂浓度之差 ΔN 对最大可提取能量和介质温度的影响,如图 5,图 6. 两片介质掺杂浓度分别为

$$N_1 = N_0 - \frac{\Delta N}{2}, N_2 = N_0 + \frac{\Delta N}{2}.$$

由图 5,图 6 可以看出,当两片掺杂片浓度差在 1.5×10²⁰/cm² 与 2.0×10²⁰/cm² 之间时,全片可提取能量达到最大值,相比于采用均匀掺杂的 Yb: YAG 片有所提高,当掺杂浓度相差过大时,全片可提取能量则会迅速减小.而介质平均温度一直随掺杂浓度之差的增大而减小.可见采用掺杂键合片对改善热管理有一定作用.

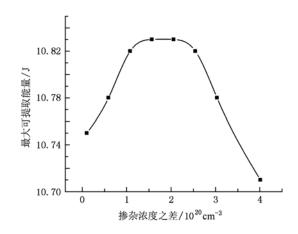


图 5 可提取能量随键合片浓度差的变化

4.3. 多片键合掺杂介质计算

将介质片沿厚度方向分为等厚薄层(对于我们设计的5 mm 厚度介质,我们分为10层),薄层内掺杂浓度相同,掺杂各层浓度沿厚度方向按简单指数函数分布,这是因为热沉积在介质内按指数函数分布.

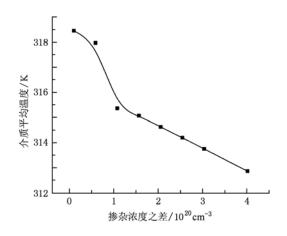


图 6 介质平均温度随键合片浓度差的变化

假设各层浓度按 $N = k \cdot \alpha^z$ 分布,k 和 α 为系数,z 为对应层数. 在浓度厚度积一定的条件下,可以给定 α ,求出 k,得到浓度表达式.

如表 2,图 7,8 所示,采用梯度掺杂后,可提取能量有一定下降,但热管理明显改善,片内平均温度降低,温度梯度减小.

考虑到加工难度,同时满足可提取能量降低不多的条件,我们在系数 $\alpha = 2$ 的基础上进行优化设计.得到三种三片键合的设计参数(表3).

表 2 系数 α 对应的可提取能量和平均温度

系数 α	1	1. 5	2	3
可提取能量 E/J	11.06	10.02	8. 70	7. 41
介质平均温度 T/K	312. 47	307. 50	305.56	304. 29

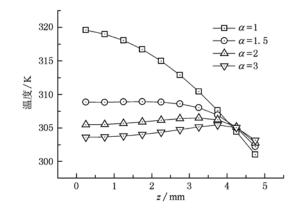


图7 介质内温度沿z方向分布

对以上三种键合参数介质计算结果如表 4,图 9 所示. 比较发现,参数 a 所得温度梯度较大,参数 b 可提取能量降低较多,选取 c 种掺杂参数较佳.

对比均匀掺杂片和参数 c 键合掺杂片的温度、

应力应变、波前畸变如图 10.

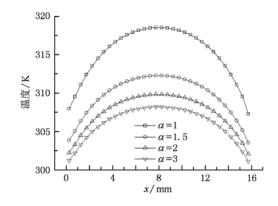


图 8 介质内温度沿口径方向分布

表3 三片键合参数

参数编号	薄片号	浓度/at%	厚度/mm
	1	1	3
a	2	5	1.5
	3	10	0. 5
	1	0	3
b	2	5	1.5
	3	15	0. 5
	1	0	3
c	2	5	1
	3	10	1

表 4 各参数对应的可提取能量和平均温度

参数编号	a	b	c
可提取能量 E/J	10. 37	8. 78	9. 08
介质平均温度 T/K	308. 48	305. 71	306. 10

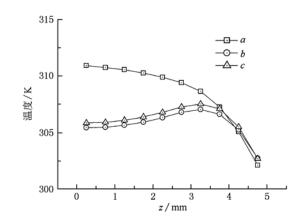


图9 介质内温度沿z方向分布

由图可见,采用键合掺杂片后,介质最高温度由337 K降低至313 K,温度梯度明显减小;z方向最大形变由15.1 μm 减小至11.9 μm,形变

沿端面方向均匀性改善;应力由 44.1 MPa 减小至 29.6 MPa,应力致折射率变化减小;波前畸变

由 2.5 λ 减小至 1.8 λ ,热效应对光束质量的影响明显减小.

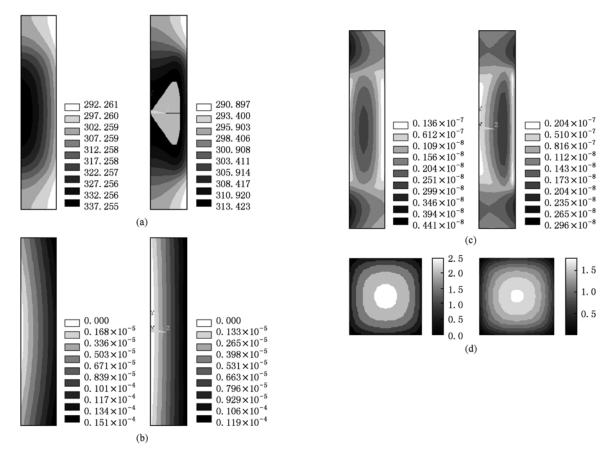


图 10 温度、应力、应变、波前畸变比较(左:均匀掺杂片;右:键合片) (a)温度分布($^{\circ}$ (b)形变分布($^{\circ}$ n);(c)应力分布(Pa);(d)抽运区内波前畸变($^{\circ}$ 0)

5. 结 论

综上所述,采用键合掺杂片增益介质的方法改善热管理具有一定的可行性.该方法通过设计增益介质不同位置的掺杂浓度,调整介质中热沉积的分布,以改善输出激光的光束质量.

采用键合掺杂片增益介质的方法不需要改动激光器的原有冷却结构,适用于各种片状增益介质,同时晶体键合技术在国内已经非常成熟,并有一定的应用^[16,17],是控制激光光束质量的新方法.

本方法还存在晶体键合面处的热学光学性质改变等问题,我们将进行更深入的研究.

^[1] Lacovara P, Choi H K, Wang C A, Aggarwal R L, Fan T Y 1991 Opt. Lett. 16 1089

^[2] Fan TY, Klunk S, Henein G 1993 Opt. Lett. 18 423

^[3] DeLoach L D, Payne S A, Smith L K, Kway W L, Krupke W F 1994 J. Opt. Soc. Am. B 11 269

^[4] Dong J, Bass M, Mao Y L, Deng P Z, Gan F X 2003 J. Opt. Soc. Am. B 20 1975

^[5] FY96 – 98 Summary Report Mercury: Next Generation Laser for High Energy Density Physics SI-014, UCRL-ID-139294

^[6] Kawanaka, J, Miyanaga N, Kawashima T, Tsubakimoto K, Fujimoto Y, Kubomura H, Matsuoka s, Ikegawa T, Suzuki Y, Tsuchiya N, Jitsuno T, Furukawa H, Kanabe T, Fujita H, Yoshida K, Nakano H, Nishimae J, Nakatsuka M, Ueda K, Tomabechi K 2008 J. Phys.: Conf. Ser. 112 032058

- [7] Tokita, S, Kawanaka J, Izawa Y, Fujita M, Kawashima T 2007 Optics Express, 15 3955
- [8] Yu, H, Bourdet G 2006 Applied Optics 45 6205
- [9] Gaumé R, Viana B, Vivien D, Roger J P, Fournier D 2003 Applied Physics Letters, 83 1355
- [10] Patel F D, Honea E C, Speth J S, Payne A, Hutcheson R, Equall R 2001 J. Quantum Electron. 37 135
- [11] Yan X W, Yu H W, Cao D X 2009 Acta Phys. Sin. **58** 4230 (in Chinese)[严雄伟、於海武、曹丁象 2009 物理学报 **58** 4230
- [12] Youitirou T (Translated by Guo T W, Li A D) 1977 Thermal stress (Beijing: sience press) (in Chinese) [竹内洋一郎著、郭廷伟、李安定译 1977 热应力 科学出版社]
- [13] Kong X Q 1998 Application of finite element method in heat transfer (vol 3) (Beijing; sience press) (in Chinese) [孔祥謙编

- 著,有限单元法在传热学中的应用(第三版),1998 北京:科学出版社出版]
- [14] Wang X D, Zhao Z W, Wang J Y, Xu J, Bourdet G, Chanteloup J C 2008 Journal of Inorganic Materials 1 125 (in Chinese) [王晓丹、赵志伟、王静雅、徐 军 Bourdet G, Chanteloup J C 2008 无机材料学报 1 125]
- [15] Wang J Y, Wang X D, Zhao Z W, Xu J 2008 Optics Journal 28 316(in Chinese)[王静雅、王晓丹、赵志伟、徐 军 2008 光学学报 28 316]
- [16] Lv J S, Yan P, Gong M L, Liu Q 2002 Optical Technique 4 355 (in Chinese) [吕静姝、闫 平、巩马理、柳 强 2002 光学技术 4 355]
- [17] Liu Q, Cong M L, Li C, Gong W P, Lu F Y, Chen G 2005 Acta

 Phys. Sin. 54 721 (in Chinese) [柳 强、巩马理、李 晨、宫武鹏、陆富源、陈 刚 2005 物理学报 54 721]

Thermal-management of grad-doping Yb: YAG repetitive-rate laser*

Yan Xiong-Wei Yu Hai-Wu Zheng Jian-Gang Li Ming-Zhong Jiang Xin-Ying Duan Wen-Tao Cao Ding-Xiang[†] Wang Ming-Zhe Shang Xiao-Tong Zhang Yong-Liang (Research Center of Laser Fusion of China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621900, China) (Received 13 March 2010; revised manuscript received 7 July 2010)

Abstract

To improve thermal capability of repetitive-rate laser, in this paper bonded Yb: YAG slices are chosen as gain medium, the doping-concentration in gain medium in chosen to be distributed in gradient manner. The distributions of stored energy, temperature and stress are obtained by calculating pumping process inside gain medium. From among the obtained results optimal parameters are chosen for an optimized design. The calculation indicate that using grad-doping medium can reduce temperature, deform, stress and wave aberration. In this paper, the feasibility of improving thermal-management by using grad-doping medium is demonstrated theoretically.

Keywords: grad-doping ,bonding, Yb: YAG, thermal-management **PACS**: 78.20. Bh, 78.45.+h, 78.20. -e, 65.40.-b

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10874157).

[†] E-mail; yxw130@ 163. com