

# 高热负载X射线反射镜多段复合冷却方法优化

王震1, 佟亚军1, 董晓浩2, 刘芳1\*

<sup>1</sup>上海科技大学大科学中心,上海 201210; <sup>2</sup>中国科学院上海高等研究院上海光源科学中心,上海 201204

**摘要** 高重复频率的自由电子激光和低发射度的同步辐射衍射极限环光源对反射镜的热变形提出了更高的要求。针对 上海硬X射线自由电子激光装置(SHINE)高热平均功率的特点和波前保持的需求,计算了第一条光束线中第一面反射 镜 M1在不同能量点下的热功率分布,并建立了有限元热学和结构耦合分析模型进行了 M1的热变形计算和波前传播模 拟。最终,采用多段冷却和复合使用的方式对反射镜冷却进行了优化设计,使得在入射光能量为 7.0 keV、掠入射角为 4.0 mrad 的情况下的额定热功率从 0.48 W 提高到了 3.06 W,工作重复频率提升了 6.4 倍。光学模拟结果显示,在其他 不同特定能量点下额定热功率也有 2.0~8.3 倍的提升。

**关键词** X射线光学;光学设计;有限元;热分析;高度残差;冷却 **中图分类号** O434.1 **文献标志码** A

DOI: 10.3788/AOS202242.2334003

# Optimal Compound Multi-Segment Cooling Method for High-Heat-Load X-Ray Mirrors

Wang Zhen<sup>1</sup>, Tong Yajun<sup>1</sup>, Dong Xiaohao<sup>2</sup>, Liu Fang<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup>Center for Transformative Science, ShanghaiTech University, Shanghai 201210, China;

<sup>2</sup>Shanghai Synchrotron Radiation Facility, Shanghai Advanced Research Institute, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201204, China

**Abstract** Light sources such as high-repetition-rate free-electron lasers and low-emittance synchrotron radiation diffraction-limited storage rings place higher demands on the thermal deformations of the mirrors. Given the high average thermal power and the wavefront preservation demand of the Shanghai high repetition rate XFEL and extreme light facility (SHINE), the thermal power distribution on the first mirror named M1 for the first beamline at different energy points is calculated. A finite-element analysis model with thermal and structural coupling is built to calculate the thermal deformation of M1 and conduct wavefront propagation simulation. Finally, the mirror cooling design is optimized by multi-segment cooling and compound utilization. The results show that when the incident light has an energy of 7.0 keV and an grazing angle of 4 mrad, the rated thermal power is improved from 0.48 W to 3.06 W, and the working repetition rate is enhanced by 6.4 times accordingly. According to the optical simulation results, the rated thermal power is also increased by 2.0 to 8.3 times at other energy points.

Key words X-ray optics; optical design; finite element; thermal analysis; height residual error; cooling

# 1 引 言

X射线因其波长短等特点,成为了在原子、分子尺度上揭示物质结构和生命现象的理想工具。X射线自发现以来就成为了科学研究的重点,目前与X射线相关的诺贝尔科学奖已经超过15个,在生命科学、物质科学、能源科学和环境科学多个领域中作出了巨大贡

献,对生命、物质、化学和工业等多个学科的发展方向 与世界科学发展路径产生了深远的影响。随着社会的 发展和科研的需求,X射线光源的发展也从最初的X 光管发展到同步辐射光源再到目前的同步辐射衍射极 限环<sup>[12]</sup>与X射线自由电子激光(XFEL)<sup>[34]</sup>。XFEL具 有高亮度、高相干性和超短脉冲的特性,为科学研究提 供了前所未有的探测手段<sup>[56]</sup>。

收稿日期: 2022-05-05; 修回日期: 2022-05-29; 录用日期: 2022-06-16

基金项目:上海市科技创新行动计划(19142202800)、上海市科技重大专项(2017SHZDZX02)

通信作者: "liufang@shanghaitech. edu. cn

#### 研究论文

XFEL高亮度和高相干性的特点对X射线的传输 过程提出了极其苛刻的要求,包括耐损伤、高稳定性和 波前保持<sup>[7-8]</sup>。为了将 XFEL 的高亮度、高相干性的特 点传输到实验站中,对反射镜的综合面形精度要求通 常需要达到1nm(均方根)以下<sup>[9-10]</sup>。反射镜的面形精 度主要受到光学元件加工、夹持支撑、重力变形[11]和热 变形的影响。新一代高重复频率XFEL的高平均功率 的特点会导致光学元件上的热负载非常大,一种解决 方案是通过后续的主动镜面压弯装置来进行面形补 偿,但即便如此,其温度的不均匀所导致的热畸变依然 是影响波前的重要因素。为此,科研人员也进行了非 常多的研究工作,如:Zhang等<sup>[12]</sup>分析了不同冷却接触 方式和光学元件截面形状对热变形的影响;为了进一 步减小热变形对光学元件的影响,Cocco等<sup>[13]</sup>在采用 了冷却光学元件的同时又增加了多个加热器来主动调 节温度梯度,以进一步降低面形误差。

上海硬X射线自由电子激光(SHINE)装置<sup>[14]</sup>是 我国在建的首台高重复频率XFEL装置,一期共建3 条光束线和10条实验站。其中,第一条光束线(FEL-I)的整个光束传输系统全长约为1200m,为硬X射线 高分辨共振散射实验站(HSS)、单分子/单颗粒相干衍 射实验站(CDS)和极端光物理实验站(SEL)三个实验 站提供光束,工作能量范围为3~15 keV。FEL-I的光 学系统包括复合折射率透镜(CRL1、CRL2、CRL3)、偏 移镜组(M1、M2a和M2b)、晶体单色器(DCM)和用于 聚焦到实验站的 Kirkpatrick-Baez(KB)系统(EM1、 EM2、M3、EM3、M4、EM4、EM5和EM6等)。其中,偏 移镜组的作用是对X光进行偏移,根据不同X光能量的 反射率特性,采用M1与M2a组合的方式对3~7keV能 量范围内的X光进行偏移,采用M1与M2b组合的方式 对6~15 keV 能量范围内的 X 光进行偏移。其他光学 元件根据实验站的运行需求可移入/移出光路。

由于 SHINE 装置的光束线平均传输功率可达到 1000 W 以上,故对反射镜热变形的要求更加苛刻。本 文针对 SHINE 装置 FEL-I的第一面反射镜 M1的热负 载分布和需求,建立了有限元分析(FEA)模型,对M1 反射镜的冷却结构进行了分析和优化设计,以提高光 束线的传输性能。

## 2 FEL-IM1光学元件热负载

FEL-I及其对应的实验站光路布局示意图如图 1 所示。M1的热负载来源于三部分,即自发辐射、FEL 基波吸收和FEL谐波吸收。第一部分是插入件的自 发辐射,根据表1提供的加速器电子束团参数,计算了 在7.0 keV 时插入件产生的自发辐射功率密度分布, 如图 2(a)所示。这部分发散角非常大,可以充满整块 镜子,并且比较均匀的分布在 FEL 的周围。在 1000 mm×4 mm范围内的吸收总功率约为1W,功率 密度为 0.26 mW/mm<sup>2</sup>。第二部分是源于 FEL 的基 波,可根据表2中的参数来计算,7.0 keV的FEL基波 如图 2(b)所示。这部分是按照光学元件 B<sub>4</sub>C 镀层吸收 率为1%计算的。因为XFEL光束传输系统需要传输 6σ(σ为高斯分布的方差)的光束,所以它几乎是完整 的高斯形状分布在M1反射镜上。这部分在7.0 keV 时 总 吸 收 功 率 为 18 W, 最 大 功 率 密 度 为  $0.08 \text{ W/mm}^2$ 。实际上通过自放大自发辐射(SASE) 产生的FEL光的影响因素非常多,这也就导致这部分 的结果具有极大的不确定性,这里给出的基波吸收是 可能的最大值。第三部分来自于FEL的高次谐波,图 2(c)展示了7.0 keV的三次谐波分布。与基波相比, 高次谐波含量的不确定性更大[15],在硬X射线波段通 常认为在0.1%~1.0%之间,本计算中按照1.0%进 行保守估计,高次谐波的发散角按照基波的1/3来估 算。从图2(c)中可以看出,高次谐波的功率密度高达 0.8 W/mm<sup>2</sup>,且集中在基波的中心位置处,总吸收功 率也为18W。图2(d)为M1反射镜上所有吸收热负 载的分布。同样的方式可得到FEL-I光束线主要几个 特定能量点在1 MHz工作频率下的吸收热负载分布, 如图3所示(后续无特殊注明情况下所有的计算都是 在FEL-I光束线的工作频率为1MHz下进行)。



图 1 SHINE装置 FEL-I 光束线光路示意图 Fig. 1 Layout of FEL-I beamline in SHINE

## 3 有限元分析模型介绍

根据FEL-I光束线 M1上的光斑分布和需求,反射镜所需要的光接收面长度为950 mm,宽度为40 mm,镀层采用B4C膜。FEA的反射镜模型采用长

度为1000 mm、宽度为50 mm、厚度为60 mm的单晶硅 基底,在光学表面附近加工一个凹槽用于放置液态铟 镓合金,在铟镓合金里插入无氧铜冷却片进行导热,其 中铜片和硅不直接接触,以减少冷却片振动对反射镜 的影响。在无氧铜片的另一端采用内径为8 mm的冷

#### 研究论文

表 1 自发辐射模拟对应的加速器参	数
-------------------	---

Table 1 Parameters for accelerator used in simultaneous radiation simulation

	Taulation Simulation	
Device Parameter		Value
	Electron energy /Gev	8
	Bunch charge /pC	100
	Average current /mA	0.1
Electron beam	Peak current /A	1000
	Pulse duration /fs	100
	Emittance /(µm•rad)	0.4
	Repetition rate /MHz	1
	Peak magnetic field /T	1
Undulator	Period /mm	26
	Undulator length /m	4
	Number of segments	42
	Distance between segments /m	1

### 却水管进行冷却,将反射镜上的热量缓释。由于反射



### 第 42 卷 第 23 期/2022 年 <u>12 月/光学学报</u>

表 2 不同光子能量下的光源参数

Table 2 Light source parameters un	nder diff	erent pl	hoton e	nergies
Photon energy /keV	3.0	7.0	12.4	15.0
Bunch charge /pC	100	100	100	100
Electron energy /GeV	5	8	8	8
Pulse energy /µJ	930	1800	394	60
Source size (FWHM) $/\mu m$	49	48	50	50

Source divergence (FWHM) /µrad 5.5 2.7 1.7 1.3

镜的 B<sub>4</sub>C 镀层的厚度仅为 50 nm,因此在 FEA 中省略 掉 B<sub>4</sub>C 镀层。FEA 单元采用四面体和六面体网格,共 826308个节点和 350241个单元,具体反射镜冷却结构 和 FEA 模型如图 4 所示。在分析过程中,首先利用 ANSYS 稳态热分析模块<sup>[16]</sup>计算出反射镜的温度分 布,再将反射镜温度作为结构分析模块中的热负载,计 算反射镜 M1的热畸变,进一步计算出反射镜 M1光学 表面子午线的热变形面形数据。





图 2 M1镜在1.9 mrad 掠入射角下能量为7.0 keV 时的吸收功率密度分布。(a)自发辐射;(b) FEL 基波辐射;(c)三次谐波辐射; (d)总功率

Fig. 2 Absorbed power density distribution of M1 at energy of 7.0 keV with grazing angle of 1.9 mrad. (a) Spontaneous radiation; (b) FEL fundamental radiation; (c) third harmonic radiation; (d) total power



图 3 M1中各特征能量点上的热负载分布。(a)反射镜子午方向;(b)反射镜弧矢方向

Fig. 3 Heat load distribution at each characteristic energy point in M1. (a) Meridian direction of reflector; (b) sagittal direction of reflector



图 4 反射镜冷却模型及FEA模型。(a)反射镜冷却结构;(b)反射镜冷却结构放大图;(c)反射镜冷却结构的FEA模型;(d)反射镜 冷却结构FEA模型的放大图

Fig. 4 Mirror cooling model and FEA model. (a) Mirror cooling structure; (b) enlarged view of mirror cooling structure; (c) FEA model of mirror cooling structure; (d) enlarged view of FEA model of mirror cooling structure

FEA中材料的参数如表3所示。反射面吸收的 热功率通过直接导入第2章描述的热分布加载,铜管 与 铟 镓、铟 镓 与 单 晶 硅 接 触 面 的 热 阻 抗 为 150000 W/(m<sup>2</sup>・℃),冷却水 温度为 30 ℃,流速为

			• •					
	Table 3Material parameters in FEA							
Matorial	Density /	Elastic	Yield stress /	Poisson ratio	Thermal conductivity /	Thermal expansion coefficient at		
wraterial	$(kg \cdot m^{-3})$	modulus /GPa	MPa	Poisson ratio	$(\mathbf{W} \cdot \mathbf{m}^{-1} \cdot \mathbf{K}^{-1})$	temperature of 300 K /( $10^{-6}K^{-1})$		
Silicon	2329	112.4	120	0.28	148	2.50		
Copper	8900	110.0	220	0.34	391	1.75		
In/Ga	6350				28			

	表	3	]	FEA	F	户材料的参数	

#### 研究论文

1.5 L/min,水管内壁膜系数为3177 W/(m<sup>2</sup>·℃)。由 于该夹持机构为低应力结构,故该反射镜的机械约束 采用ANSYS默认的弱弹簧约束,进而求解出近似无 约束的反射镜热变形。

4 M1反射镜热变形计算及优化

### 4.1 反射镜面形评判依据

针对激光的波前评判主要通过斯特列尔比(S<sub>R</sub>)来 评判<sup>[17-19]</sup>。因此,在本文的面形评判中,将ANSYS计 算的热变形数据导入到开源的自由电子激光光束传输 模块WPG<sup>[20-21]</sup>中进行波动光学模拟,并以最优斯特列 尔比作为评判标准。

### 4.2 常规冷却下的反射镜面形计算

对于常规的反射镜冷却,采用的冷却片长度为 900 mm,根据第3章描述的计算模型,得到反射镜在 7.0 keV能量X射线以1.9 mrad入射情况下的温度分 布如图 5 所示。各特定能量条件下的面形如图 6 所 示,拟合后的高度残差如表 4 所示。



图 5 能量为 7.0 keV 的射线以 1.9 mrad 掠入射角作用到 M1 反射镜后的温度分布

Fig. 5 Temperature distribution after ray with energy of 7.0 keV incident on M1 mirror at grazing angle of 1.9 mrad

#### 4.3 M1反射镜冷却优化设计

为了优化冷却结构,本文研究了冷却片长度对反 射镜面形的影响。由于WPG光学模拟的工作量大, 因此在冷却系统优化的初期,先以FEL光强分布的半 峰全宽(FWHM)区域内的热变形高度误差值作为初 步优化目标,来减少优化时间和提高效率,得到优化结 构后再进行WPG光学模拟以判断最终优化结果。将 7.0 keV时的热负载分布加载到光学元件上,改变冷 却片的长度从55 mm到47 mm,得到反射镜在子午线 方向的热变形曲线和拟合后的高度残差分别如图7和 图 8 所示。可以发现,在7.0 keV 能量的X光以 4.0 mrad入射的情况下,冷却片的优化长度为53 mm。 采用同样的方式得到各特定能量下冷却片的优化冷却 长度,如表5所示。



图 6 M1反射镜各特定能量点下子午方向的热变形

Fig. 6 Thermal deformation of M1 mirror in meridian direction at each characteristic energy point

表 4 不同能量下 M1反射镜的  $S_{R}$ 

m 11 /	C		1.00	
Table /	S of MIL	mirrorundor	r dittoront	000000000
			I UIIIEIEIII	energies.
1 0010 1	CR OI IVII	minition and of	. annoi onic	energies

Energy /keV	Grazing angle /mrad	Total heat / W	Simulated $S_{\rm R}$
3.0	4.0	18.90	0.17
5.0	4.0	28.60	0.12
7 0	4.0	38.20	0.15
7.0	1.9	37.10	0.16
12.4	1.9	9.23	0.29
15.0	1.9	1.72	0.70



图 7 不同冷却片长度下能量为 7.0 keV 的 X 光以 4.0 mrad 掠入射角作用到 M1反射镜后的热变形



针对冷却片的优化长度和实验站需求,将 7.0 keV能量的X光以4.0 mard入射作为第一优先 级,5.0 keV能量的X光以4.0 mrad入射作为第二优 先级。选取冷却长度为53、109、148 mm,在工程实施 上采取对称的5段冷却片冷却,如图9所示。对于该优 化后的结构重新采用第3章的热分析模型进行热分析



图 8 不同冷却片长度下能量为 7.0 keV 的 X 光以 4.0 mrad 掠入射角作用到M1反射镜后的高度残差

Fig. 8 Residual height error after X-ray with energy of 7.0 keV incident on M1 mirror at grazing angle of 4.0 mrad under different cooling fin lengths



Tab	le	5 (	Optimum	cooling	fin	lengths	under	different	energies
-----	----	-----	---------	---------	-----	---------	-------	-----------	----------

Energy /keV	Grazing angle / mrad	Optimum cooling fin length /mm
3.0	4.0	156
5.0	4.0	109
7.0	4.0	53
7.0	1.9	148
12.4	1.9	64
15.0	1.9	65

计算,并对计算得到的面形数据拟合后的残差进行光 学模拟,得到的优化后的斯特列尔比结果如表6所示。 统计结果显示,优化后的冷却结构在各个能量下的光 学质量相比于原来的冷却结构均有明显提升。

具体的冷却方式为:

1)能量为7.0 keV、掠入射角为4.0 mrad的X光,



第 42 卷 第 23 期/2022 年 12 月/光学学报

60 (mm

图 9 多段复合型冷却结构示意图

Fig. 9 Schematic diagram of multi-stage compound cooling structure

能量为12.4 keV、掠入射角为1.9 mrad的X光和能量 为15.0 keV的X光采用中间1段冷却片冷却,冷却长 度为53mm;

2)能量为5.0 keV、掠入射角为4.0 mrad的X光 采用中间3段冷却片冷却,冷却长度为109 mm;

3)能量为7.0 keV、掠入射角为1.9 mrad的X光 和能量为3.0 keV、掠入射角为4.0 mrad的X光采用 全部5段冷却片冷却,冷却长度为148 mm。

#### 4.4 讨 论

对于整个 FEL-I 光束线传输系统,按照 Maréchal 判据,将S<sub>8</sub>=0.82作为判断依据。然而,考虑到光束 线传输中存在多个光学元件,故针对M1反射镜,将  $S_{\rm R}=0.96$ 作为其工作阈值。对比表4和表6可以发 现,在1MHz的工作重复频率下,各能量点的S<sub>R</sub>依然 小于 0.96。为了进一步得到可承载重复频率,将 ANSYS计算得到的热变形数据除以一定的系数来模 拟降低自由电子激光重复频率后的热变形数据。热功 率下的热变形可以看成线性变化,优化前后各能量点 在达到 S<sub>R</sub>=0.96 时对应的可承载热负载和运行重复 频率如表7所示。

表 6	综合优化后各特定能量下的S <sub>R</sub>	
-----	----------------------------	--

$\Gamma$ able of $O_R$ under unterent energies after comprehensive optimization					
Energy /keV	Grazing angle /mrad	Total heat /W	Simulated $S_{\rm R}$		
3.0	4.0	18.90	0.30		
5.0	4.0	28.60	0.26		
7 0	4.0	38.20	0.35		
7.0	1.9	37.10	0.27		
12.4	1.9	9.23	0.60		
15.0	1.9	1.72	0.93		

# Table 6 S<sub>2</sub> under different energies after comprehensive optimization

#### 结 5 论

分析了SHINE装置FEL-I光束线M1反射镜在多 个特定能量点下的热变形,并采用多段冷却的方式优 化了特定能量点处的面形残差。采用波动光学模拟软 件WPG模拟计算了斯特列尔比。结果显示,优化后 FEL 光束的传输在最关键的能量为 7.0 keV、掠入射 角为4 mrad的X光入射情况下的额定热负载相较优 化之前提高了6.4倍,其他特征点的额定热负载也有 2.0~8.3倍的提高,从而进一步提升了SHINE装置的

2334003-7

第 42 卷 第 23 期/2022 年 12 月/光学学报

表 7 S<sub>R</sub>=0.96时优化前后的可承载热负载和运行重复频率

Table 7	Nominal heat load and	working repetition	rate before and	l after optimization	h at $S_{\rm R}$ =0.96
---------	-----------------------	--------------------	-----------------	----------------------	------------------------

Energy /keV	Grazing angle / mrad	Before Optimization		After Optimization		
		Total heat / W	Repetition rate / kHz	Total heat / W	Repetition rate / kHz	Repetition rate ratio
3.0	4.0	0.63	33.3	1.89	100	3.0
5.0	4.0	0.57	20.0	1.57	55	2.8
7.0	4.0	0.48	12.5	3.06	80	6.4
	1.9	0.62	16.7	1.86	50	3.0
12.4	1.9	0.37	40.0	3.07	333	8.3
15.0	1.9	0.43	250.0	0.86	500	2.0

可承载运行重复频率。

#### 参考文献

- Eriksson M, van der Veen J F, Quitmann C. Diffractionlimited storage rings: a window to the science of tomorrow[J]. Journal of Synchrotron Radiation, 2014, 21 (5): 837-842.
- [2] Hettel R. DLSR design and plans: an international overview[J]. Journal of Synchrotron Radiation, 2014, 21 (5): 843-855.
- [3] Emma P, Akre R, Arthur J, et al. First lasing and operation of an angstrom-wavelength free-electron laser [J]. Nature Photonics, 2010, 4(9): 641-647.
- [4] Ishikawa T, Aoyagi H, Asaka T, et al. A compact Xray free-electron laser emitting in the sub-ångström region [J]. Nature Photonics, 2012, 6(8): 540-544.
- [5] Kim K J, Huang Z R, Lindberg R. Synchrotron radiation and free-electron lasers: principles of coherent X-ray generation[M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2017.
- [6] Pellegrini C, Marinelli A, Reiche S. The physics of Xray free-electron lasers[J]. Reviews of Modern Physics, 2016, 88(1): 015006.
- [7] Cocco D, Spiga D, Klisnick A, et al. Wavefront preserving optics for diffraction-limited storage rings and free-electron lasers[J]. Proceedings of SPIE, 2019, 11111: 111110G.
- [8] Church E L, Takacs P Z. Specification of surface figure and finish in terms of system performance[J]. Applied Optics, 1993, 32(19): 3344-3353.
- [9] LCLS-II. LCLS-II final design report[R]. Menlo Park: SLAC National Accelerator Lab, 2015.
- [10] Bean R J, Aquila A, Samoylova L, et al. Design of the mirror optical systems for coherent diffractive imaging at the SPB/SFX instrument of the European XFEL[J]. Journal of Optics, 2016, 18(7): 074011.

- [11] Vannoni M, Freijo-Martin I. Installation and commissioning of the European XFEL beam transport in the first two beamlines from a metrology point of view[J]. The Review of Scientific Instruments, 2019, 90(2): 021701.
- [12] Zhang L, Cocco D, Kelez N, et al. Optimizing X-ray mirror thermal performance using matched profile cooling
  [J]. Journal of Synchrotron Radiation, 2015, 22(5): 1170-1181.
- [13] Cocco D, Hardin C, Morton D, et al. Adaptive shape control of wavefront-preserving X-ray mirrors with active cooling and heating[J]. Optics Express, 2020, 28(13): 19242-19254.
- [14] Zhu Z Y, Zhao Z T, Wang D, et al. SCLF: an 8-GeV CW SCRF linac-based X-ray FEL facility in Shanghai [C]//FEL2017: 38th International Free-Electron Laser Conference, Auguest 20-25, 2017, Santa Fe, NM, USA. Berlin: JACoW Publishing, 2017: MOP055.
- [15] Schneidmiller E A, Yurkov M V. Photon beam properties at the European XFEL[R]. Hamburg: Deutsches Elektronen-Synchrotron, 2011.
- [16] Ansys[EB/OL]. [2021-02-03]. https://www.ansys. com/.
- [17] Mahajan V N. Strehl ratio for primary aberrations in terms of their aberration variance[J]. Journal of the Optical Society of America, 1983, 73(6): 860-861.
- [18] Cocco D, Spiga D. Wavefront preserving optics for diffraction-limited storage rings and free-electron lasers[J]. Proceedings of SPIE, 2019, 11111: 37-46.
- [19] Cocco D. Recent developments in UV optics for ultrashort, ultra-intense coherent light sources[J]. Photonics, 2015, 2(1): 40-49.
- [20] Samoylova L, Buzmakov A, Chubar O, et al. WavePropaGator: interactive framework for X-ray freeelectron laser optics design and simulations[J]. Journal of Applied Crystallography, 2016, 49(4): 1347-1355.