

稀土掺杂光功能玻璃及器件应用 (特邀)

何冬兵, 胡丽丽, 陈树彬, 唐景平, 王标, 张丽艳, 王欣

(中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201810)

摘要: 稀土的发光和激光性能都是由其 4f 电子在不同能级之间的跃迁产生的。由于稀土离子的独特性能,使得稀土掺杂光功能玻璃无论作为主动还是被动元器件,均在高功率激光系统发挥着重要作用。掺钕磷酸盐激光玻璃和掺铒磷酸盐激光玻璃,具有高稀土离子掺杂浓度、大尺寸和高均匀制备特性,分别是 1 μm 和 1.5 μm 人眼安全波段重频-大能量激光器的重要增益介质材料;光致热折变玻璃及体光栅器件,可实现波长选择和模式选择功能,具有衍射效率高、热稳定性好和抗损伤阈值高等特点,是高功率激光系统中重要的、多功能元器件。文中主要介绍了上海光机所最近几年在掺钕磷酸盐激光玻璃,掺铒磷酸盐激光玻璃以及掺铈的光致热折变玻璃及体光栅器件的研究进展。

关键词: 激光玻璃; 掺钕玻璃; 掺铒玻璃; 光致热折变玻璃; 体布拉格光栅; 人眼安全激光器
中图分类号: TQ171.73 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA20201081

Rare earth ions doped optical functional glass and application (*Invited*)

He Dongbing, Hu Lili, Chen Shubin, Tang Jingping, Wang Biao, Zhang Liyan, Wang Xin

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

Abstract: The luminescence and laser properties of rare earth are produced by the transition of 4f electrons between different energy levels. Due to its special properties, rare earth ions doped optical-functional glass have played important roles in high power laser system, whether as active or passive components. Nd³⁺, Er³⁺ doped phosphate laser glass, which have high rare earth ion doping concentration, preparation characteristics with large size and high uniformity, can be used in high energy laser as an important gain medium material; Volume Bragg grating based on Ce³⁺-doped Photo-Thermo-Refractive glass, is a multifunctional optical components in high power laser system, owing to its excellent wavelength and angular selectivity, high diffraction efficiency, high thermal stability and high damage threshold. In this paper the latest progress of Nd³⁺, Er³⁺ doped phosphate laser glass and Volume Bragg grating base on Ce³⁺-doped Photo-Thermo-Refractive glass were reported.

Key words: laser glass; Nd³⁺-doped phosphate laser glass; Er³⁺-doped phosphate laser glass; Photo-Thermo-Refractive glass; volume Bragg grating; eye-safe laser

收稿日期:2020-11-10; 修订日期:2020-12-14

作者简介:何冬兵(1979-),男,副研究员,博士,主要从事特种光功能玻璃方面的研究。Email: hdb798123@163.com

0 引言

稀土掺杂光功能玻璃, 是一种由玻璃基质和稀土激活离子构成的特种光学玻璃, 以玻璃为基质的主动和被动元器件对激光器及激光技术的发展起到了重要的推动作用。利用 Nd^{3+} 、 Er^{3+} 以及 Yb^{3+} 等离子的 4f 间电子跃迁特性以及磷酸盐玻璃的高稀土离子溶解度高、低非线性折射率系数和声子能量适中等特性, 掺钕磷酸盐激光玻璃和掺铒磷酸盐激光玻璃的应用领域已涵盖了激光聚变、激光武器、激光测距、光通信波导放大器、超短脉冲激光器应用^[1-2]。利用 Ce^{3+} 离子的 4f-5d 间的电子跃迁特性, 氧氟硅酸盐纳米微晶玻璃及体光栅器件, 作为波长锁定和压窄功能元器件, 在半导体激光器、光纤激光器和气体激光器中也得到广泛运用^[3-4], 以下将对中国科学院上海光学精密机械研究所在三种稀土掺杂光功能玻璃的研究现

状和进展进行介绍。

1 激光钕玻璃及应用

自 1960 年 Maiman 首次利用铬红宝石制成了第一台固体激光器后^[5], 1961 年底美国光学 (A. O.) 公司 Snitzer 即利用掺氧化钕的钾钡硅酸盐玻璃丝制成了世界上第一台玻璃激光器。我国在 1962 年初即开始了稀土玻璃光谱及激光玻璃研究, 并于 1963 年 4 月首次获得掺钕激光玻璃输出。图 1 为钕离子吸收光谱及氙灯发射光谱, 钕离子具有典型的四能级结构, 在 UV-VIS-NIR 波段都有吸收, 适用于氙灯或 LD 泵浦, 并在室温下就能获得 1.06 μm 的激光发射, 且激光输出阈值低, 激光稳定性和光束质量受温度影响小。因此, 掺钕磷酸盐玻璃成为大型高功率激光装置首选的激光放大器工作物质^[6-7]。

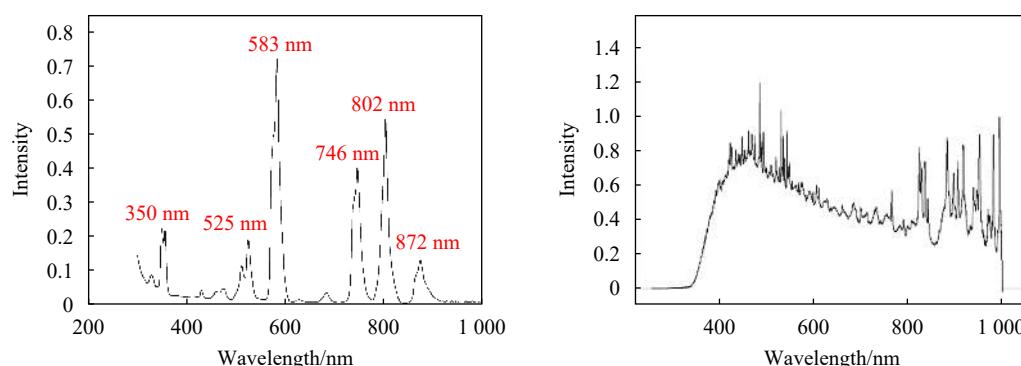


图 1 铕离子吸收光谱及氙灯发射光谱

Fig.1 Absorption spectra of Nd^{3+} ion and emission spectrum of Xenon lamp

上海光机所自 1964 年建所以来, 长期开展激光钕玻璃的研制, 形成了一支包括基础研究、工艺技术、设备研发和检测技术研发在内的激光钕玻璃综合研发队伍, 自主研发了三代激光钕玻璃产品。1984 年, 研制定型了 $\text{BaO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5$ 为主成分的 N21 型磷酸盐激光钕玻璃和 $\text{R}_2\text{O}-\text{RO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5$ 为主成分的 N24 型磷酸盐激光钕玻璃; 1998 年, 上海光机所完成了具有更好的综合激光性能的 N31 型磷铝钾钠系列 ($\text{R}_2\text{O}-\text{RO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5$) 磷酸盐激光钕玻璃的品种定型; 2016 年, 上海光机所定型了一种以 $\text{K}_2\text{O}-\text{MgO}-\text{Al}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5$ 为主成分的 N41 型偏磷酸盐玻璃, 具有低非线性折射率、高增益性能, 2019 年起已开始应用于我国高功率激光装置。同时, 为满足重频-大能量钕

玻璃激光器在工业加工中的应用需求, 上海光机所于 2010 年开始启动了 NAP2 和 NAP4 型铝磷酸盐激光钕玻璃的研制, 相比高峰值功率应用的 N21、N31 及 N41 型钕玻璃, NAP2 和 NAP4 钕玻璃膨胀系数较低、热导率较高, 目前已经在国内外低重复频率、高平均功率激光器中得到应用, 在激光冲击强化和钛宝石激光器泵浦源领域发挥重要作用。表 1 为上海光机所研制的磷酸盐激光钕玻璃主要性能参数^[6], 图 2 为近三十年以来不同激光装置上使用的磷酸盐激光钕玻璃。

近十年来, 上海光机所对大尺寸激光钕玻璃批量制备核心技术进行持续自主攻关, 实现了以下三项重大技术发明与突破: 1) 发明了动态除羟基和除杂质的

表 1 上海光机所研制的磷酸盐激光钕玻璃的性能参数

Tab.1 Properties of Nd³⁺-doped phosphate glass developed by SIOM

Properties	N21	N31	N41	NAP2	NAP4
Cross section for stimulated emission/pm ²	3.4	3.8	3.9	3.7	3.2
Lifetime at 1054 nm/μs	330	310	310	360	360
Central laser wavelength/nm	1053	1053	1053	1052	1052
FWHM for 1053 nm Fluorescence at 290 K/nm	24.0	25.5	25.4	25.4	28.5
Density/g·cm ⁻³	3.4	2.87	2.61	2.76	2.60
Refractive n _d	1.574	1.540	1.5102	1.542	1.530
Non-linear refractive index coeff./esu	1.3×10 ⁻¹³	1.18×10 ⁻¹³	1.05×10 ⁻¹³	1.22×10 ⁻¹³	1.10×10 ⁻¹³
Transformation temp./℃	500	450	475	500	545
Thermal coeff. of optical path length(20~100 ℃)/℃	1.9×10 ⁻⁶	1.4×10 ⁻⁶	0.3×10 ⁻⁶	3.6×10 ⁻⁶	5.0×10 ⁻⁶
Coeff.of linear thermal expansion(20~100 ℃)/℃	1.2×10 ⁻⁸	1.27×10 ⁻⁸	1.34×10 ⁻⁸	0.96×10 ⁻⁸	0.71×10 ⁻⁸
Thermal conductivity (25 ℃)/W·m·K ⁻¹	0.55	0.57	—	0.76	0.88

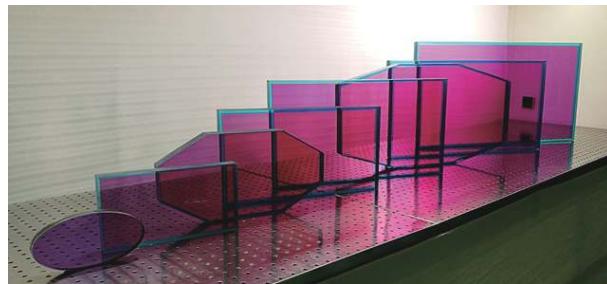


图 2 近三十年以来不同激光装置上使用的磷酸盐激光钕玻璃
Fig.2 Nd³⁺-doped phosphate laser glass used in different laser devices in recent 30 years

磷酸盐激光钕玻璃连续熔炼技术, 及其所需的痕量杂质检测技术, 攻克并集成了磷酸盐激光钕玻璃连续熔炼的动态除羟基、除杂质、除铂颗粒、小流量大尺寸均匀成型、隧道窑精密退火五个相互制约的关键技术, 成功实现了大尺寸磷酸盐激光钕玻璃的连续熔炼批量制备, 见图 3; 2) 发明了激光钕玻璃元件新型包边胶和大尺寸钕玻璃包边技术, 解决了包边剩余反射率难以降低、包边胶在高功率氙灯泵浦光辐照下易老化脱落、包边附加应力超标等技术难题。实现了剩余反射率小于 10⁻⁴、通光口径内无明显包边附加应力; 3) 发明了大尺寸钕玻璃批量制备的高效和高可靠检测技术, 包括包边剩余反射检测、铂颗粒及亚表面缺陷检测、光楔对调整变倍系统输出光束、应力扫描用机械装置、包边尺寸和角度的非接触检测等, 解决了国内外市场无现成测试技术和设备的问题。

在以上技术发明基础上, 上海光机所建成了具有



图 3 磷酸盐钕玻璃连续熔炼生产线
Fig.3 Continuous melting production line of Nd³⁺-doped phosphate laser glass

自主知识产权的大尺寸磷酸盐激光钕玻璃批量制备成套设备, 形成了年产 1200 片大尺寸磷酸盐激光钕玻璃的批量制造能力。与 SCHOTT 公司 LG-770 钕玻璃和 HOYA 公司 LHG-8 钕玻璃相比较, 该项目批量研制的激光钕玻璃铂颗粒损伤阈值、羟基吸收系数、钕离子浓度一致性三个关键指标优于国外同类产品, 其余指标与之相当, 满足了我国今后大型激光装置对增益元器件的需求。

2 掺铒激光玻璃及应用

波长为 1.5 μm 的激光对人眼危害较小, 人眼对 1.5 μm 波长允许的曝光量为 1 μJ/cm², 是 Nd:YAG 产生 1.06 μm 激光的 40 万倍, 是 10.6 μm CO₂ 激光的 100 倍。因此, 1.5 μm 波段激光器也被称为人眼安全激光器。此外, 1.5 μm 波段位于大气传输窗口, 对于

远距离作用,特别是军事应用具有极其重要的意义^[8]。LD 泵浦铒玻璃固体激光器,具有激光光束质量近衍射极限,体积小,功耗低,无温控,即开即用,稳定性好,可靠性高,温度适应范围广等突出优点,作为第三代激光测距技术,目前在军事和民用领域得到越来越多的实际应用,主要包括激光测距、激光雷达、激光医疗等,在国内外已经得到深入研究。基于 Yb³⁺/Er³⁺共掺磷酸盐激光玻璃及光波导结构,已实现能量从微焦(μJ)到毫焦(mJ)、工作频率最大到 3 kHz 的激光输出,在激光测距、测风雷达领域有着广泛应用^[9-10]。

图 4 给出了铒离子能级结构图及其 1.5 μm 发光^[11-12]。对 1.5 μm 辐射跃迁而言,铒离子为三能级系统。其中,⁴I_{13/2} 亚稳态能级是 1.5 μm 激光的上能级,而基态为下能级。由于 Er³⁺离子在 980 nm 附近吸收截面较小,限制了其对泵浦光的有效吸收,但是对于 Er³⁺离子的三能级系统而言,必须降低 Er³⁺离子的掺杂浓度以降低激光阈值,因此通常需要对 Er³⁺离子进行敏化。由于 Yb³⁺离子在 800~1100 nm 的光谱范围内具有很强的吸收,且 Yb³⁺离子的发射与 Er³⁺离子的吸收在光谱上有很大的重叠,保证了 Yb³⁺→Er³⁺较高的能量传递效率,故常用 Yb³⁺,Er³⁺离子共掺杂来敏化 Er³⁺离子的发射。

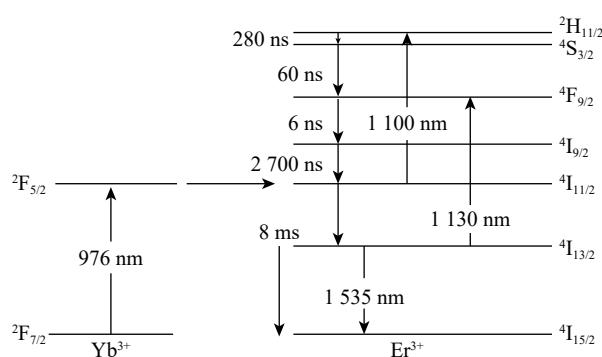


图 4 铒离子能级结构图及 1.5 μm 发光

Fig.4 Energy level and 1.5 μm luminescence of erbiumion

鉴于 Er³⁺离子的三能级结构发光,其掺杂浓度、敏化浓度以及玻璃性质,都直接决定了最终激光输出能力,因而从 20 世纪 80 年代起,掺铒激光玻璃就得到了广泛的关注和研究。最终磷酸盐玻璃以其声子能量适中、稀土掺杂浓度高、不易产生淬灭,成为目前最佳的掺 Er³⁺玻璃体系。其中,俄罗斯在 20 世纪 80 年代,首次开发出了 LGS-E 型号、KGSS 型号磷

酸盐激光铒玻璃;美国 Kigre 公司则先后开发出了 QE-7、QE-7S 和 QX/Er 系列磷酸盐激光铒玻璃;近几年,德国肖特则分别开发出了 LG-960 和 LG-950 型掺铒激光玻璃,并满足不同领域的应用。上海光机所最早于 20 世纪 90 年代就开始了铒玻璃研究,经历了反复的应用迭代,最终于 2000 年完成了几种满足不同应用需求的磷酸盐激光铒玻璃型号。表 2 给出了目前国内外主要磷酸盐激光铒玻璃产品的性能,图 5 给出了上海光机所开发的两类铒玻璃元器件图片^[6]。

表 2 国内外不同型号铒玻璃产品性能

Tab.2 Properties of Er³⁺-doped phosphate glass developed by SIOM

Properties	EAT14(SIOM)	Cr14(SIOM)
Cross section for stimulated emission/cm ²	0.8×10 ⁻⁶	0.8×10 ⁻⁶
Lifetime at 1535 nm/ms	7.7-8.0	7.7-8.0
Central laser wavelength/nm	1535	1535
Refractive (1535 nm)	1.524	1.530
Temp. coeff. Refractive index (20~100 °C)/°C	-1.72×10 ⁻⁶	-5.2×10 ⁻⁶
Transformation temp./°C	556	455
Softening temp./°C	605	493
Coeff. of linear thermal expansion (20~100 °C)/K	0.87×10 ⁻⁸	1.03×10 ⁻⁸
Thermal conductivity (25 °C)/WM ⁻¹ K ⁻¹	0.7	0.7

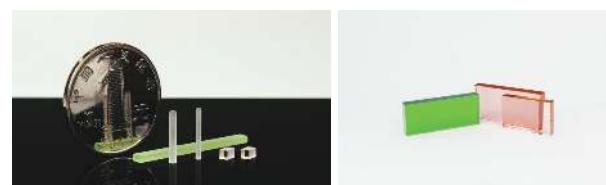


图 5 掺铒激光玻璃元器件

Fig.5 Erbium doped laser glass components

以 EAT14 型 Yb³⁺/Er³⁺共掺磷酸盐玻璃为增益介质,国内外多家单位研究了 LD 泵浦 Yb³⁺/Er³⁺共掺磷酸盐铒玻璃微片激光器的输出特性。上海光机所冯素雅^[13]以不同掺杂浓度的磷酸盐铒玻璃样品为增益介质,进行了连续 LD 泵浦下的激光实验,取得了最大 325 mW, 效率 25.9% 的激光输出。以含有 Co²⁺: MgAl₂O₄ 纳米晶粒的硅酸盐透明微晶玻璃为调 Q 元件,在 1.3 W 的泵浦功率下,获得了重复频率 3.864 kHz/6.3 μJ/ 6.2 ns 的激光输出;以北京工业大学

为代表的国内多家单位^[14]完成了 940 nm LD 的光束微整形技术、高低温下的激光器结构稳定性设计、激光材料的高散热性封装技术和激光器的气密封装技术,实现了百微焦量级/几十 Hz 的激光器设备;同时采取侧面泵浦方式,开始进行 mJ 级铒玻璃激光器的研究。

3 光热折变玻璃及体光栅器件

体光栅器件,是基于光致热折变玻璃的光敏和热敏特性,通过紫外激光干涉曝光和热处理技术,在玻璃中形成周期性分布的纳米微晶,获得具有特定衍射效率(5%~99%)和超窄带宽(0.02~0.5 nm)的高功率衍射元器件。其主要用于半导体激光二极管的波长锁定及温度性能提升、超快激光器中的脉冲展宽和压缩、固体激光器的激光共振腔内纵模与横模选择,是高功率激光系统中的一种多功能、多用途、高技术含量的元器件材料^[4, 15~16]。因其独特的高精度性能及要求,批量制备难度极高,全世界也仅三家公司可实现产品化供应,包括美国佛罗里达中央大学及其衍生的 OptiGrate 公司、PD-LD 公司和 ONDAX 公司。

光致热折变玻璃是一种特殊的稀土掺杂氧氟硅酸盐玻璃,通过玻璃组分设计和稀土离子选择掺杂,实现特定光敏和热敏性能。利用 Ce³⁺离子在 325 nm 的吸收特性,通过紫外曝光使得 Ce³⁺发生价态变化,给出一个电子被 Ag⁺离子吸收实现 Ag⁰原子的变化,在一定温度热处理后形成 Ag⁰原子核团簇,进一步升高温度控制玻璃的诱导析晶,实现折射率调制度。**图 6** 给出光致热折变玻璃在不同处理阶段的透过谱曲线。

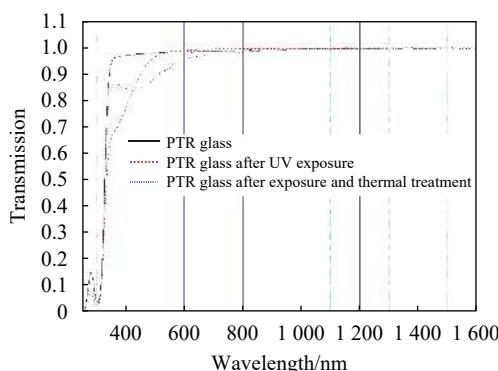


图 6 光致热折变玻璃在不同处理阶段的透过谱曲线

Fig.6 Transmission spectra of photo-thermo-refractive glass at different treatment stages

中科院上海光机所借助特种玻璃组分设计、工艺制备和性能评估平台,经过三年的持续优化,成功开发出了光致热折变玻璃,其基本物理性能参数已和美国同类水平相当,获得很好的热敏和光敏特性。**表 3** 给出了上海光机所光致热折变玻璃性能参数。目前可实现的制备口径大于 50 mm 口径,均匀性达到 10⁻⁶ 级别的光致热折变玻璃,见**图 7**,保证了后期 VBG 元件的制备。

表 3 光致热折变玻璃性能参数表

Tab.3 Properties of photo-thermo-refractive glass

Properties	PTRG
Refractive index Nd	1.501837±0.001
Refractive index modulation (Δn)	$\leq 10^{-3}$
Thermal stability/°C	≤ 400
Thermal conductivity (25 °C) /W·m·K ⁻¹	0.8
Coeff. of linear thermal expansion(30~100 °C,10 ⁻⁷)	93
Transformation temp./°C	460
Softening temp./°C	500
Density/g·cm ⁻³	2.55
Size/mm	<100×100



图 7 光致热折变玻璃及体光栅器件

Fig.7 Photo-thermo-refractive glass and Volume Bragg Gratings

在国产光致热折变玻璃的基础上,上海光机所完成了高精稳定性曝光装备的建立及其热显影工艺的精密调控,分别实现了体光栅器件在角放大和 976 nm 发射式场景的开发应用^[17~21]。其中在角放大应用领域,开发了在 1064 nm 波段的可实现±45°角度偏转范围的角放大器,最优折射率调制度均为 7.3×10^{-4} 左右,最大衍射效率可达 99.6%。在面向工业界应用,开发的 976 nm 反射式体光栅器件,在 67 W 入射条件下(Bar 条, 19 个点),中心波长偏移量在 0.5 nm 范围内,锁定后半高宽在 300 pm。通过玻璃和光刻技术的优化,形成的体光栅器件实现的技术指标达到国外同等水平。

4 结 论

特种光电功能玻璃通过玻璃组分设计和离子掺杂,再经过后续光、电、磁、热和化学等作用,进行结构设计和重构,赋予其特殊的机械和光电功能,是现代信息产业、光学、光源、光伏、半导体等国家战略性支柱性新兴产业不可或缺的重要基础性材料之一。在过去五十多年里,上海光机所持续聚焦激光玻璃领域的研发,为国家聚变装置、超短超强激光装置提供了数千片激光钕玻璃,未来还将发挥着重大作用。今后面向高功率半导体、光纤和碱金属气体激光器技术朝着更高功率、更高功效和规模应用的发展需求,特种光电功能玻璃无论是作为主动还是被动元器件,均将有重大应用价值,仍需要持续开展新型光功能玻璃,及在新领域的应用研究。

参 考 文 献:

- [1] Hu Lili, He Dongbing, Chen Huiyu, et al. Research and development of neodymium phosphate laser glass for high power laser application [J]. *Optical Materials*, 2017, 63: 213-220.
- [2] He Dongbing, Kang Shuai, Zhang Liyan, et al. Research and development of new neodymium laser glasses [J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2017, 5: 1-6.
- [3] Nikonorov N, Aseev V, Dubrovin V, et al. Design and fabrication of optical devices based on new polyfunctional photo-thermo-refractive glasses[C]/4th International Conference on Photonics, Optics and Laser Technology, IEEE, 2016: 20-27.
- [4] Lumeau J, Zanotto E D. A review of the photo-thermal mechanism and crystallization of photo-thermo-refractive (PTR) glass [J]. *International Materials Reviews*, 2016, 62(6): 348-366.
- [5] Snitzer E. Optical maser action of Nd³⁺ in barium crown glass [J]. *Phys. Rev. Lett.*, 1961, 7(12): 444-446.
- [6] 胡丽丽等. 激光玻璃及应用[M]. 上海: 上海科学技术出版社, 2019.
- [7] Campbell J H, Suratwala T I. Nd-doped phosphate glasses for high-energy/high-peak-power lasers [J]. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 2000, 263: 318-341.
- [8] Johnson G J. Springer Handbook of Lasers and Optics[M]. Germany: Springer, 2012.
- [9] Goldberg L, Hough N, Nettleton J, et al. Er/Yb glass Q-switched lasers with optimized performance[C]/Solid State Lasers XXVIII: Technology and Devices, International Society for Optics and Photonics, 2019, 10896: 1089603.
- [10] Sakimura T, Watanabe Y, Ando T, et al. 3.2 mJ, 1.5 μm laser power amplifier using an Er, Yb: glass planar waveguide for a coherent Doppler LIDAR[C]/Proceedings of 17th Coherent Laser Radar Conference. 2013.
- [11] Snitzer E, Woodcock R, Segre J. Phosphate Glass Er³⁺ Laser [J]. *IEEE Journal Of Quantum Electronics*, 1968, 4(5): 360.
- [12] Jiang S, Myers M, Peyghambarian N. Er³⁺ doped phosphate glasses and lasers [J]. *Journal of non-crystalline solids*, 1998, 239(1-3): 143-148.
- [13] 冯素雅, 李顺光, 陈力, 等. 激光二极管抽运自主研制铒玻璃实现325 mW连续激光输出[J]. 中国激光, 2009, 36(8): 2181.
- [14] 郭猛. 宽温度范围微型化人眼安全激光器的研究[D]. 北京: 北京工业大学, 2015.
- [15] Yang Z N, Wang H Y, Lu Q S, et al. An 80-W laser diode array with 0.1 nm linewidth for rubidium vapor laser pumping [J]. *Chinese Physics Letters*, 2011, 28(10): 104202-104204.
- [16] Lumeau J, Glebova L, Glebov L B. Near-IR absorption in high-purity photo-thermo-refractive glass and holographic optical elements: measurement and application for high-energy lasers [J]. *Applied Optics*, 2011, 50(30): 5905-5911.
- [17] Dai Huifang, Jin Yunxia, Chen Peng, et al. Broadband chirped volume Bragg grating for one-hundredfemtosecond pulse compression[C]/Tenth International Conference on Thin Film Physics and Applications, 2019.
- [18] Chen Peng, Jin Yunxia, He Dongbing, et al. Fabrication of high-precision reflective volume Bragg gratings [J]. *Appl. Opt.*, 2019, 58: 2500-2504.
- [19] Zhao Jingyin, Jin Yunxia, He Dongbing, et al. Vortex volume gratings with high diffraction efficiency at 1064 nm [J]. *Second Target Recognition and Artificial Intelligence Summit Forum*, 2020: 114271M.
- [20] Chen Peng, He Dongbing, Jin Yunxia, et al. Method for precise evaluation of refractive index modulation amplitude inside the volume Bragg grating recorded in photo-thermo-refractive glass [J]. *Optics Express*, 2018, 26(1): 157.
- [21] Chen Peng, Jin Yunxia, He Dongbing, et al. Design and fabrication of multiplexed volume Bragg gratings as angle amplifiers in high power beam scanning system [J]. *Optics Express*, 2018, 26(19): 25336.