

双光子制备的微结构及其装配的研究

夏锦涛,张超,陶卫东*,王刚*

(宁波大学理学院微电子科学与工程系,浙江宁波 315211)

摘要:近年来,随着微机电系统、显微医疗和组织工程等领域技术水平的快速发展,微操作技术引起了科研界和产业界的广泛关注,其对于未来的微纳技术的小型化、功能化和集成设备的制造有着至关重要的作用。利用飞秒激光双光子聚合技术加工的微结构,其尺寸处于微观尺度,质地较脆、黏着力大、尺度效应显著,且微结构所受到的表面力逐渐取代重力起主导作用,以上因素进一步增加了微操作的难度。因此,一种基于毛细作用的玻璃毛细管吞吐微结构的微操作装置被提出,利用毛细力将微结构拾取和移动,再将不同的微结构装配在一起。该方法不仅能将微型原件进行组装,而且能将不同材料、不同特性的微型器件组装在一起,形成复杂的混合微结构。

关键词:双光子聚合; 毛细作用; 拾取; 移动; 装配

中图分类号: O437 **文献标志码:** A **DOI:** 10.3788/IRLA201948.0306007

Study on microstructure of two-photon fabrication and assembly

Xia Jintao, Zhang Chao, Tao Weidong*, Wang Gang*

(Department of Microelectronic Science and Engineering, Faculty of Science, Ningbo University, Ningbo 315211, China)

Abstract: In recent years, with the rapid development of technology in the fields of microelectromechanical systems, micromedical treatment and tissue engineering, micro-operation technology has attracted extensive attention from scientific research and industry, it plays a vital role in the miniaturization, functionalization and manufacture of integrated devices for future micro-nano technologies. Microstructures are fabricated using femtosecond laser two-photon polymerization, whose size is at the microscopic scale, the texture is brittle, the adhesion is large and the scale effect is significant, the surface force of the microstructure gradually replaces gravity to dominate. These factors further increase the difficulty of micro-operations. Therefore, a microoperating device based on capillary action of glass capillary tube was proposed, which used the capillary force to pick up and move the microstructure, and then assembled the different microstructures together. The method can assemble not only micro-originals, but also micro-devices with different materials and different characteristics to form a complex mixed microstructure.

Key words: two-photon polymerization; capillary action; pick-up; movement; assembly

收稿日期:2018-10-18; 修订日期:2018-11-20

基金项目:国家自然科学基金(11704204, 61604084)

作者简介:夏锦涛(1994-),男,硕士生,主要从事光学微加工方面的研究。Email: 13345961994@163.com

导师简介:王刚(1986-),男,讲师,博士,主要从事二维材料的制备及应用的研究。Email: gangwang@nbu.edu.cn

陶卫东(1969-),男,教授,博士,主要从事飞秒激光微加工方面的研究。Email: taoweidong@nbu.edu.cn

0 引言

微操作趋向于小型化、多功能化和集成化的方向发展。例如,机电产品的机械零部件的尺寸越来越小,装配也越来越困难。微操作技术可以对微型零部件进行准确地拾取、移动、释放和装配。文中着重介绍了一种新型的微操作装置,可以对微米级的对象进行高效、灵活的操作。为了制造具有微米级功能集成的微结构,可以利用飞秒激光双光子聚合技术^[1-9](Two-photon polymerization, TPP),该实验所用到的 TPP 将真三维(Three-Dimensional, 3D)^[2-3]制造能力和高空间分辨率^[4]结合在一起,精细度可达到微纳米级别,是制备 3D 微纳结构的理想工具。此外,可以使用 TPP 对掺杂各种功能材料的光刻胶进行加工,制作出具有特定功能的微结构,利用微操作技术将不同功能的微结构进行装配,进而形成复杂的混合微结构。例如,W. Zhu 等^[1]将四氧化三铁纳米粒子掺杂到负性光刻胶中,制作出具有磁性的微鱼,施加外磁场的方法可对其进行驱动。W. Xiong 等^[2]将碳纳米管与负性光刻胶相混合,制作出微型电容器。N. B. Tomazio 等^[4]将罗丹明与负性光刻胶相混合,降低了光刻胶的材料阈值,制作出具有罗丹明荧光的微结构。由于石墨烯具有优异的电学特性、光学特性、机械特性和热学特性^[9],所以自问世以来受到了科研界和工业界的广泛关注。文中的研究对象是将石墨烯粉末掺杂到负性光刻胶中,先利用 TPP 制出微结构,再使用笔者自主设计的微操作装置进行装配,以此来探究新型微结构的物理或化学性能。然而,在 TPP 的微观结构中,将不同材料和不同功能的微结构组合在一起仍然具有很大的挑战。例如,S. E. Chung 等^[10]提出形状导向和流体力共同作用的自装配方法,可以在平面上将 TPP 制备的复杂微器件进行二维的组装。J. Köhler 等^[11]使用光镊在不与微结构产生直接接触的情况下,利用光学力对微结构进行捕获、转移、装配。文中主要提出一种基于毛细作用对三维微结构进行装配的方法,并且可以将不同材料、不同形状的三维结构进行组装,使混合的微结构具有更多的功能。该实验可以为微型机械装配、显微医疗和生物工程等领域的应用提供新的解决方案。

1 飞秒激光双光子原理

TPP 是一种精细的 3D 微加工快速成型技术,由于非线性阈值效应,微结构的分辨率远远超出了衍射极限^[7]。在 TPP 中,光刻胶因吸收双光子而固化,通过精确定位激光焦点制作出具有亚微米分辨率的三维结构。如图 1(a)所示,当通过双光子吸收时,只有焦点(黑色区域)处的样品才能吸收足够的光子而发生光化学反应,焦点以外的区域因没有吸收足够的光子而不发生固化反应,利用载物台相对于焦点自上而下运动,可以实现微结构的精细加工。该实验使用锁模的钛蓝宝石激光器激发的 780 nm 波长的飞秒激光(Coherent 公司 2; Mira-900f, 波长为 780 nm)作为光源。

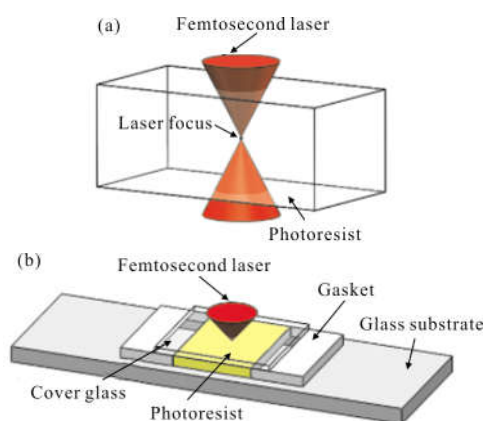


图 1 (a) 双光子吸收原理;(b) 样品制备示意图

Fig.1 (a) Principle of two-photon absorption;

(b) Schematic diagram of sample preparation

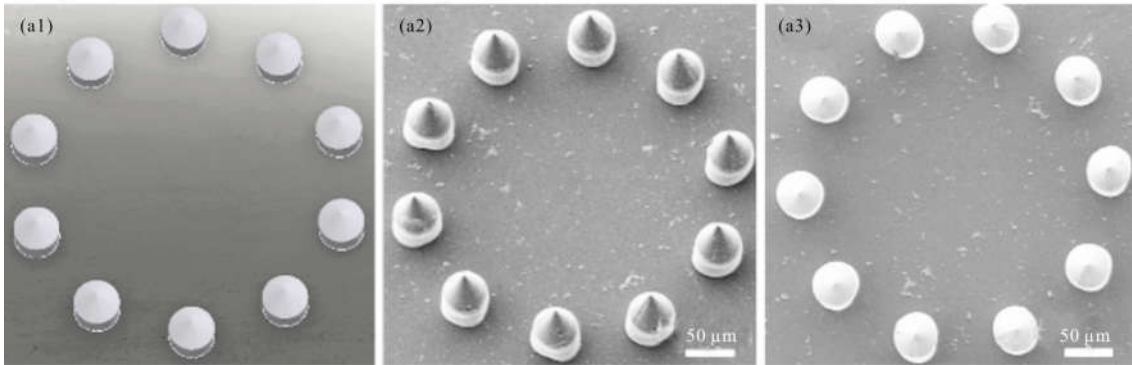
微加工实验的样品如图 1(b)所示,将高度为 70 μm 的垫片放置在载玻片上,中间间距约为 1 cm,取两滴负性光刻胶滴于载玻片上,然后取盖玻片置于垫片之上,使光刻胶均匀地扩散于载玻片上。垫片起支撑盖玻片的作用,使飞秒激光可以在厚度为 70 μm 的光刻胶内光刻。利用 Newport 公司提供的 uFAB 微加工台配套控制软件或者其他 3D 绘图软件设计各种 3D 图案,将其另存为 stl 格式后导入到控制软件中,软件自动将 3D 图形的体积数据切片,激光焦点从底部到顶部,通过逐层扫描将 3D 图案刻写在载玻片上。将完成光刻的样品置于无水乙醇中浸泡 10 min,由于固化的光刻胶不溶于无水乙醇,而未固化的光刻胶易溶解于无水乙醇中,所以发生光

反应的区域(即固化区)保留下来,取出后得到 3D 微结构。为了使微结构更加坚固,可将其置于紫外光下曝光 5 min 左右,使微结构内部未固化的光刻胶全部固化。

2 微结构的制作

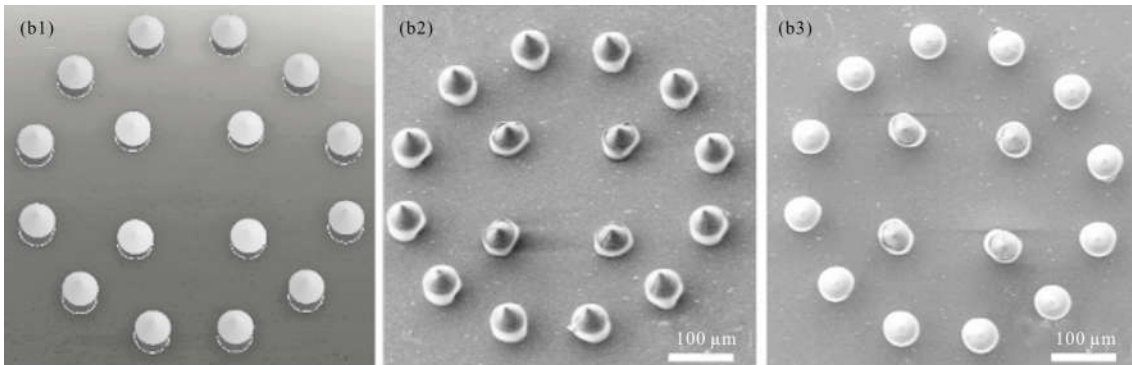
利用 3D 绘图软件设计一个外径为 400 μm 的圈状结构,保存为 stl 格式,如图 2(a1)所示。该结构由

10 个“帐篷状”的小单元所组成,文中称之为“400 μm 的微槽”。“帐篷状”的结构由圆柱和圆锥两个部分组成,两者的直径和高度相同,分别为 50 μm 和 30 μm 。图 2(a2)、(a3)为“400 μm 的微槽”倾斜 20°和俯视的扫描电子显微镜(Scanning electron microscope, SEM)图片。图 2(b1)为“500 μm 的微槽”,外圈由 12 个“帐篷状”单元组成,结构和图 2(a1)相同,内部由 4 个小“帐篷状”单元围成一个正方形,边长为 100 μm 。



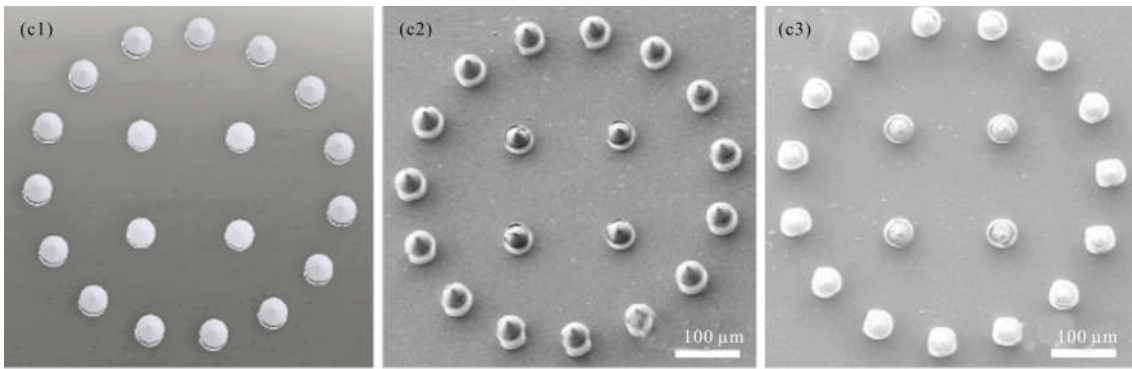
(a) 400 μm

(a) 400 μm



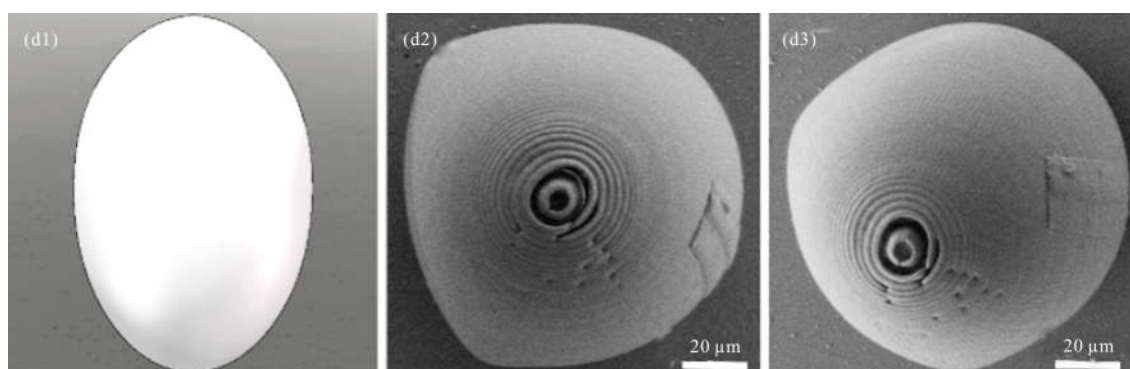
(b) 500 μm

(b) 500 μm



(c) 600 μm

(c) 600 μm



(d) 110 μm

(d) 110 μm

图 2 不同尺寸的微结构

Fig.2 Microstructures of different sizes

组成小“帐篷状”单元的圆柱和圆锥的高度和直径相同,分别为 20 μm 和 50 μm。图 2(b2)、(b3)为其倾斜 22°和俯视的 SEM 图片。图 2(c1)为“600 μm 的微槽”,外圈由 15 个“帐篷状”单元围成,内圈由 4 个小“帐篷状”单元围成边长为 125 μm 的正方形。图 2(c2)、(c3)为其倾斜 20°和俯视的 SEM 图片。图 2(d1)为“椭球状”结构,高度为 110 μm,图 2(d2)、(d3)为其 SEM 图片。由于开始光刻时激光焦点聚焦在衬底中,所以光刻完成后的微结构并不是完整的椭球。图 2(a1)、(b1)、(c1)、(d1)均由 3D 绘图软件绘制,另存为 stl 格式后的图片。

将图 2(a1)、(b1)、(c1)、(d1)导入微加工台的软件中进行飞秒激光直写。取一片清洗干净的载玻片,将一片长和宽均为 2.5 cm 的聚氯乙烯 (Polyvinyl Chloride, PVC) 片用无影胶固定在载玻片上,用紫外灯照射无影胶使其固化,保证 PVC 牢牢地固定在载玻片上。取厚度为 70 μm 的垫片将其固定在 PVC 片的两边,中间空出 1~1.5 cm 的加工区域,用移液枪取两到三滴负性光刻胶滴于 PVC 衬底上,再将清洗干净的盖玻片置于垫片之上,结构示意图如图 1(b)所示。

微加工开始时,先将激光的能量调至 560 μW,把制好的样品放置在微加工的三维位移台上,通过调节螺旋测微器旋钮让显微镜镜头缓慢向下移动,让激光的焦点聚焦在盖玻片的上表面,再通过微加工软件控制三维位移台在 Z 轴方向上下移动,使激光的焦点刚好聚焦在 PVC 衬底下方 1~2 μm 处,这样加工好的微结构就会比较牢固地粘在 PVC 衬底

上,清洗时不易与衬底分离。在微加工时,微加工软件控制位移台围绕着 3D 图形的轮廓以 50 μm/s 的速度沿着 X、Y 轴移动,以 10 μm/s 沿着 Z 轴移动,15 min 后,图 2(a)制作完毕。取出加工后的样品置于无水乙醇中浸泡 10 min,将未固化的光刻胶清洗干净。图 2(b)~(d)的光刻过程和图 2(a)相同,但图 2(d)在玻璃衬底上进行加工,因为微结构和玻璃衬底之间的粘附力比 PVC 衬底小,有利于接下来的拾取工作。由于微加工平台不完全平整,当制作的微结构的尺寸超过 500 μm 时,为了保证微结构各个部位的微结构高度相同,需要在激光直写前对样品进行“三点对焦”,所以图 2(b)、(c)在光刻前需要进行“三点对焦”,其他的步骤和之前的相同。

3 微操作装置原理图

图 3(a)为普通的透射光学显微镜。图 3(b)为微操作装置的结构示意图,将内直径为 100 μm 的玻璃毛细管一端弯曲成 70°,便于在光学显微镜下观察微结构的拾取与释放过程。玻璃毛细管的另一端与注射器筒内的细软管相连接,为了保证接口处有良好的气密性,将玻璃毛细管与细软管的接口用胶水密封。注射器筒用双管胶固定在位移平台上,防止在微操作时玻璃毛细管四处抖动。细软管的另一端与固定在位移平台的注射器相连接,并用胶水密封。将无水乙醇注射在注射器中,按压注射器按钮,利用无水乙醇将整个装置的空气排出,使其处于液体环境中。注射器下方的位移平台是通过 3 个一维手动平台组装而成,通过旋转旋钮,可以实现整个装置在

上下、左右、前后 3 个方向上移动。调节该装置的 3 个旋钮能够控制玻璃毛细管在三维空间上移动，最终完成，微结构的拾取和装配。

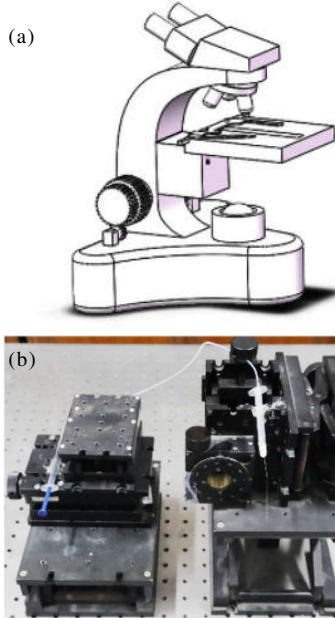
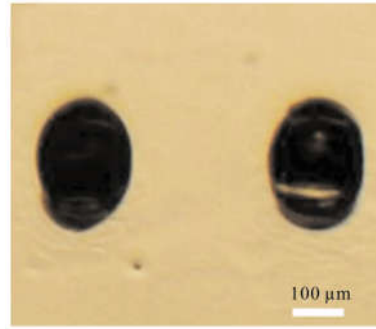


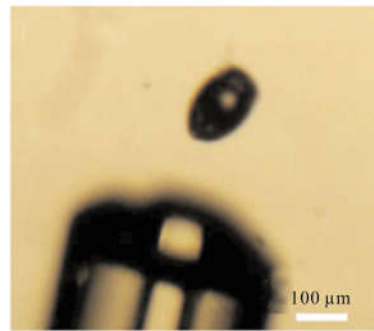
图 3 (a)透射光学显微镜;(b)微操作的装置图
Fig.3 (a) Transmission optical microscope;
(b) Schematic of micro-operation device

4 微结构的拾取、转移、释放

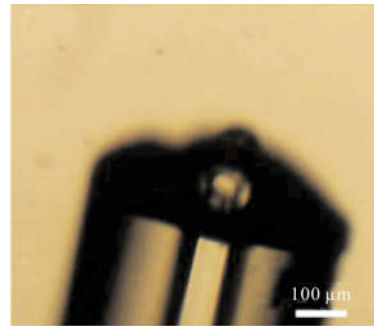
将清洗干净的玻璃皿放置到显微镜的载物台上,并用样品夹将其固定。把微操作装置放置在显微镜的正前方,将椭球和微槽放到玻璃皿中,注入酒精直至没过样品。在透射显微镜下将焦点聚焦到椭球上,通过调节微操作装置上下、左右、前后旋钮,将玻璃毛细管^[6]和椭球调节在同一平面上,图 4(a)为在玻璃衬底上制作的椭球。通过调节装置的前进旋钮使玻璃毛细管向着椭球的方向前进,推动椭球让其和衬底分开,如图 4(b)所示。因为玻璃毛细管的毛细作用,微结构会向管口靠近,通过调节注射器的按钮,在玻璃毛细管管口处产生较大的吸力,而吸力会让酒精在局部范围内产生流动力,椭球因为酒精的流动力而被吸入到玻璃毛细管中,如图 4(c)所示。调节光学显微镜,将焦点聚焦在微槽上面,如图 4(d)所示。调节装置的前进旋钮,让玻璃毛细管和微槽处于同一个平面上。调节装置的上升旋钮,使玻璃毛细管上升 65 μm 左右,防止其将微结构损坏。再次调节



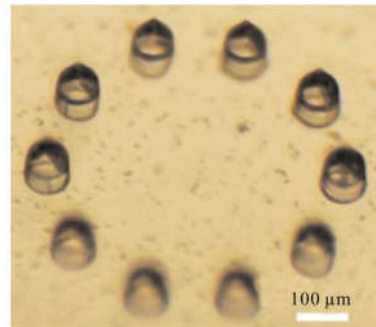
(a) 固定的椭球
(a) Fixed ellipsoids



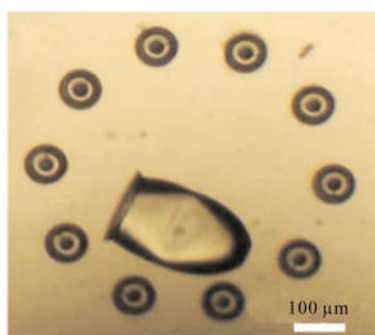
(b) 准备拾取
(b) Preparation for picking



(c) 拾取成功
(c) Success

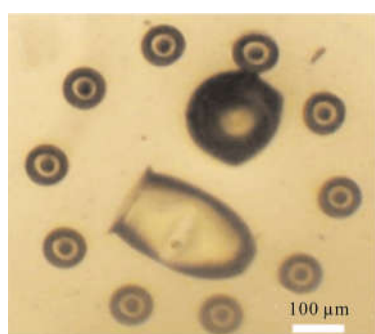


(d) 400 μm 的微槽
(d) 400 μm microgroove



(e) 第一个椭球装配成功

(e) Successful assembly of the first ellipsoid



(f) 第二个椭球装配成功

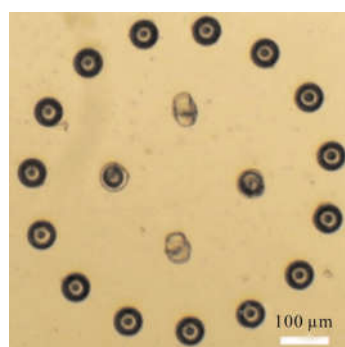
(f) Second ellipsoid is successfully assembled

图 4 椭球的拾取和装配流程图

Fig.4 Flow chart of picking and assembling of ellipsoid

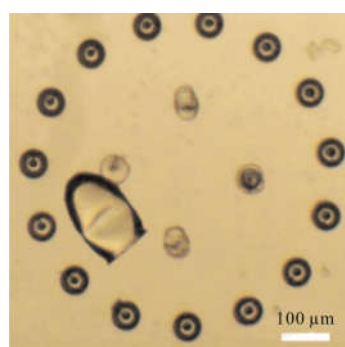
前进旋钮,将玻璃毛细管管口置于微槽的正上方,通过调节注射器的按钮,让注射器内部的酒精缓慢流出,由于酒精内部流动力的存在,使玻璃毛细管内的椭球和酒精一起流出,此时椭球恰好落在微槽的中间。由于试验台有一些轻微的震动会使玻璃皿内部的酒精具有一定的流动性,所以椭球会向微槽一边漂移,如图 4(d)所示。为了验证实验是否具有重复性,再次用玻璃毛细管拾取一颗椭球,将其放置在微槽中,如图 4(e)所示。因为微槽的内径只有 $300\ \mu\text{m}$,而椭球的直径为 $110\ \mu\text{m}$,所以最多只能放置两个椭球。

为了进一步提高微结构装配的精确度以及验证试验的可重复性,将 5 个椭球逐个放进对角线长为 $200\ \mu\text{m}$ 的微槽中。图 5(a)为未放入椭球的空微槽,接下来将第一个椭球拾取放入到边长为 $120\ \mu\text{m}$ 的小微槽中。首先拾取一个直径为 $110\ \mu\text{m}$ 的椭球于玻璃毛细管中,将其移至微槽的正上方,按压注射器的按钮,将玻璃毛细管内部的椭球准确地释放在小微槽的正上方,结果如图 5(b)所示。图 5(c)~(f)分别



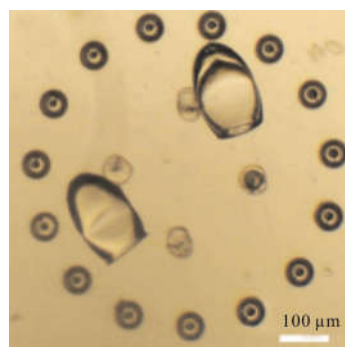
(a) $600\ \mu\text{m}$ 的微槽

(a) Microgroove at $600\ \mu\text{m}$



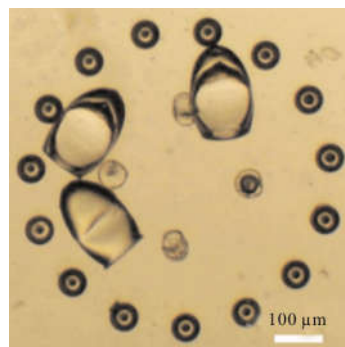
(b) 装配第一个椭球

(b) Assembly of the first ellipsoid



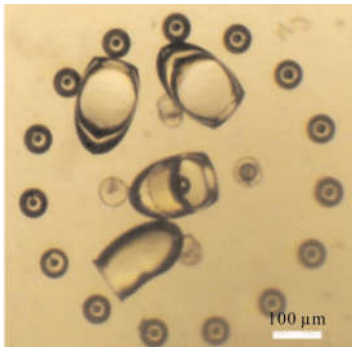
(c) 装配第二个椭球

(c) Assembly of the second ellipsoid



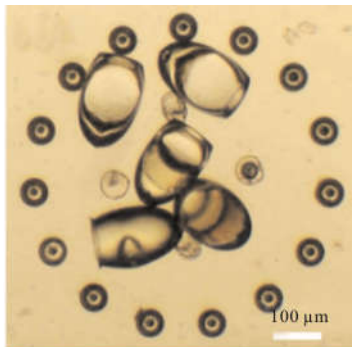
(d) 装配第三个椭球

(d) Assembly of the third ellipsoid



(e) 装配第四个椭球

(e) Assembling the fourth ellipsoid



(f) 装配第五个椭球

(f) Assembling the fifth ellipsoid

图 5 多个椭球的精确装备

Fig.5 Accurate equipment for multiple ellipsoids

为将第二个、第三个、第四个、第五个椭球准确地释放到微槽的内部,每次释放的精度达到 80%以上。由于实验台轻微的震动使玻璃皿内部的酒精具有流动性,椭球之间也具有一定吸引力,所以图 5(f) 中有 3 个椭球相互靠近。

5 不同材料的微结构的装配

将不同材料制作的微结构进行装配,可以得到一个混合的微结构,使微结构具有更多的功能。文中在光刻胶中掺杂了石墨烯粉末^[12-15],为接下来探究混合微结构的物理和化学性质打下基础。取少量的石墨烯于试剂瓶中,加入适量的浓 HNO₃ 酸浸泡 7 天。7 天后先将石墨烯中和至中性,再将酸纯化后的石墨烯进行超声、离心、取上清液,把上清液均匀地掺杂到光刻胶中。用光刻胶-石墨烯混合物制作出来的混合微结构具有一些纯微结构所不具有的功能。如图 6 所示,分别对光刻胶、石墨烯和光刻胶-石墨烯

混合物进行 Raman (SENTERRA) 测试^[13]。在 Raman 光谱中, D 峰位于 1 350 cm⁻¹ 附近,表示石墨烯的边缘或缺陷, G 峰位于 1 580 cm⁻¹ 附近,源于一阶 E_{2g} 声子的平面振动,是碳 sp² 结构的特征峰。2D 峰位于 2 700 cm⁻¹ 附近,源于两个双声子共振,是石墨烯材料特有的峰位。在石墨烯-光刻胶的混合物中,观察到 2D 峰的存在,表明光刻胶和石墨烯已经相互混合。

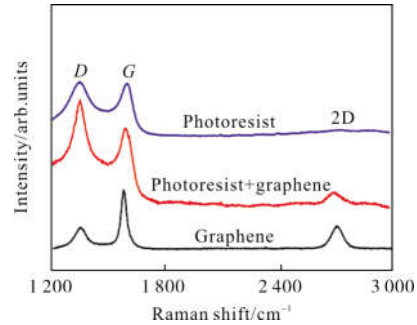
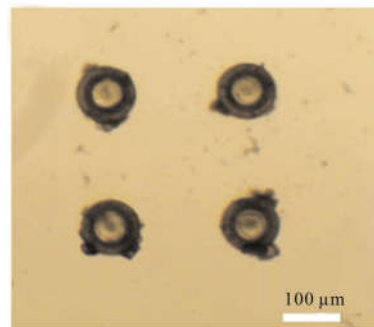


图 6 光刻胶、石墨烯和混合样品的拉曼图谱

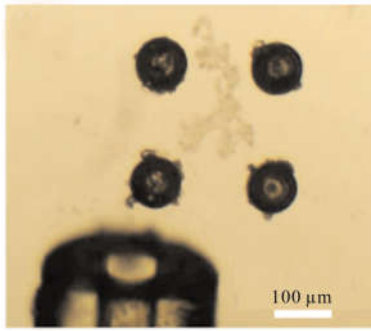
Fig.6 Raman spectra of photoresist, graphene, and composite

将配置好的石墨烯-光刻胶混合物制成图 1(b) 所示的样品,利用 TPP 对样品进行加工,得到了 4 个直径为 110 μm 的石墨烯椭球,如图 7(a)所示。图 7(d) 是直径为 500 μm 的微槽,内部的小微槽的边长为 100 μm,将椭球装配到该微槽的精度要求更高,难度也会更大。通过调节微操作装置,使玻璃毛细管逐渐靠近椭球,并将椭球成功地拾取到玻璃毛细管中,如图 7(b)、(c)所示。通过微操作装置将两颗石墨烯椭球全部放置到微槽中,结果如图 7(e)、(f)所示。实验结果表明;虽然微槽的尺寸越来越小,但是依然可以精确地将椭球装配到微槽中。实验验证了含有石墨烯的椭球可以装配到微槽中,接下来可以将不同的材料掺杂到光刻胶中,制备出含有不同材

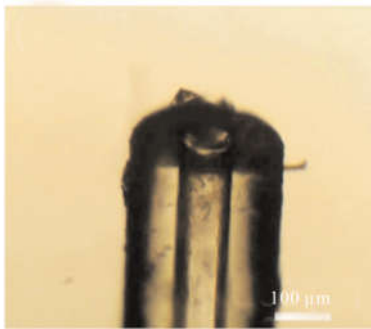


(a) 固定的石墨烯椭球

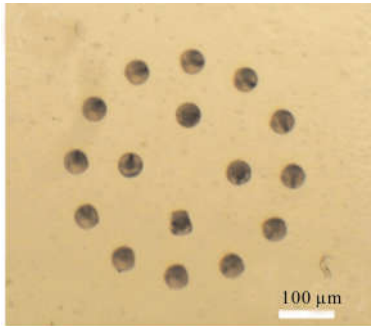
(a) Fixed graphene ellipsoid



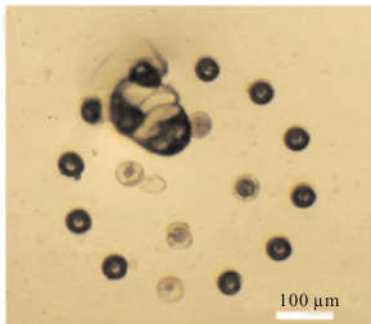
(b) 准备拾取
(b) Ready for picking



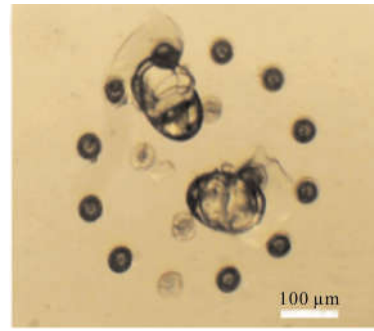
(c) 拾取成功
(c) Successful picking



(d) 500 μm 微槽
(d) 500 μm microgroove



(e) 第一个椭球装配成功
(e) Successful assembly of the first ellipsoid



(f) 第二个椭球装配成功
(f) Second ellipsoid is successfully assembled

图 7 石墨烯椭球的精确装配

Fig.7 Accurate assembly of graphene ellipsoids

料的微结构,将其进行装配,形成具有多种功能的混合结构。

6 结 论

文中首先利用飞秒激光双光子聚合技术,使用纯光刻胶制备了不同尺寸的微槽,再将石墨烯粉末和光刻胶均匀混合,制备出光刻胶-石墨烯的混合物。通过拉曼位移谱可以发现,石墨烯粉末均匀的掺杂到光刻胶中,分别用纯光刻胶和光刻胶-石墨烯的混合物利用双光子聚合技术制作出 110 μm 的椭球。文中通过使用实验室自制的微操作装置,利用毛细作用,将含有不同成分的椭球从衬底上精确地拾取,并将这些椭球精确地装配到不同尺寸的微槽中。通过实验结果可以发现:该实验具有较高的准确性和可重复性,既可以将纯光刻胶的微结构进行组装,又可以将含石墨烯的微结构进行组装,所以可以利用微操作技术将不同材质、不同形状的微结构进行组装,从而形成复杂的微结构系统。关于微结构的制备和装配的研究,可以为微型机械装配、微细加工、微结构掺杂、生物工程等领域的应用提供新的参考方向。

参考文献:

- [1] Zhu Wei, Li Jinxin, Leong Y, et al. 3D-printed artificial microfish [J]. *Advanced Materials*, 2015, 27(30): 4411-4417.
- [2] Xiong Wei, Liu Ying, Jiang Lijia, et al. Laser-directed assembly of aligned carbon nanotubes in three dimensions for Multifunctional Device Fabrication [J]. *Advanced Materials*, 2016, 28(10): 2002-2008.

- [3] Xing Xin, Yuan Wei, Li Zehan, et al. Pre-damage dynamics of dielectric chirped mirror film layer excited by femtosecond laser [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2017, 46(11): 1106005. (in Chinese)
邢昕, 袁伟, 李泽汉, 等. 飞秒激光作用下啁啾镜膜层内损伤相关动力学[J]. 红外与激光工程, 2017, 46(11): 1106005.
- [4] Tomazio N B, Boni L D, Mendonca C R. Low threshold Rhodamine doped whispering gallery mode microlasers fabricated by direct laser writing[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7(1): 8559.
- [5] Jiang Zhongwei, Yuan Dajun, Zhu Anding, et al. 2-photon 3-D microfabrication technology and its experimental system [J]. *Opt Precision Eng*, 2003, 11(3): 234-238. (in Chinese)
蒋中伟, 袁大军, 祝安定, 等. 双光子三维微细加工技术及实验系统的开发[J]. 光学精密工程, 2003, 11(3): 234-238.
- [6] Villangca M J, Palima D, Bañas A R, et al. Light-driven micro-tool equipped with a syringe function [J]. *Light Science & Applications*, 2016, 5(9): e16148.
- [7] Cheng Ping, Wei Di, Wu Benke, et al. Femtosecond laser precision machining of biodegradable heart stent [J]. *Opt Precision Eng*, 2014, 22(1): 63-68. (in Chinese)
程萍, 位迪, 吴本科, 等. 可降解心脏支架的飞秒激光精密加工[J]. 光学精密工程, 2014, 22(1): 63-68.
- [8] Wei Xiong, Zhou Yunshen, Hou Wenjia, et al. Direct writing of graphene patterns on insulating substrates under ambient conditions [J]. *Scientific Reports*, 2014, 4(7499): 4892.
- [9] Zhu Y, Murali S, Cai W, et al. Graphene and graphene oxide: synthesis, properties, and applications [J]. *Cheminform*, 2010, 22(46): 5226-5226.
- [10] Chung S E, Park W, Shin S, et al. Guided and fluidic self-assembly of microstructures using railed microfluidic channels [J]. *Nature Materials*, 2008, 7(7): 581-587.
- [11] Köhler J, Ksouri S I, ESEN C, et al. Optical screw-wrench for microassembly [J]. *Microsystems & Nanoengineering*, 2017, 3: 16083.
- [12] Xie Shiwei, Xiao Xiao, Tan Jianjun, et al. Recent progress in dye-sensitized solar cells using graphene-based electrodes [J]. *Chinese Optics*, 2014, 7(1): 47-56. (in Chinese)
谢世伟, 肖啸, 谭建军, 等. 基于石墨烯基电极染料敏化太阳能电池的研究进展[J]. 中国光学, 2014, 7(1): 47-56.
- [13] Kaplas T, Matikainen A, Nuutinen T, et al. Scalable fabrication of the graphitic substrates for graphene-enhanced Raman spectroscopy[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7(1): 8561.
- [14] Chen Xieyu, Tian Zhen. Recent progress in terahertz dynamic modulation based on graphene [J]. *Chinese Optics*, 2017, 10(1): 86-97. (in Chinese)
陈颢宇, 田震. 石墨烯太赫兹波动态调制研究进展[J]. 中国光学, 2017, 10(1): 86-97.
- [15] Chen Kai, Zhu Lianqing, Lou Xiaoping, et al. All-polarization-maintaining fiber laser mode-locked by graphene[J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2017, 46(10): 1005004. (in Chinese)
陈恺, 祝连庆, 娄小平, 等. 石墨烯锁模的全保偏光纤激光器[J]. 红外与激光工程, 2017, 46(10): 1005004.