

DOI: 10.19322/j.cnki.issn.1006-4710.2016.01.002

基于数值迭代的两能级封闭量子系统最优控制

谢 国^{1,2}, 田 冰^{1,3}, 刘 丁^{1,2}

(1. 西安理工大学 自动化与信息工程学院, 陕西 西安 710048;

2. 陕西省复杂系统控制与智能信息处理重点实验室, 陕西 西安 710048;

3. 中铁第一勘察设计院集团有限公司通号处, 陕西 西安 710043)

摘要: 期望的性能指标是实施系统控制的基准。针对现有的量子控制主要集中在基于末态精度最优、时间最优、或者能量最小等单一性能指标的控制, 而缺乏对系统综合性能考虑的问题, 本文在综合分析两能级封闭量子系统特性的基础上, 提出了基于么正演化和能量最优的复合性能指标, 并通过对性能指标变分, 得到了满足最优控制量的状态及其拉格朗日乘子的微分方程组。在此基础上, 采用差分的方法, 设计了基于数值迭代的最优控制量求解策略。最后, 仿真分析了参数对控制结果的影响, 验证了本文所提最优控制方法和迭代算法的有效性。

关键词: 两能级量子系统; 最优控制; 性能指标; 数值迭代

中图分类号: TP206.3

文献标志码: A

文章编号: 1006-4710(2016)01-0007-05

The optimal control of two-level closed quantum system based on numerical iteration

XIE Guo^{1,2}, TIAN Bing^{1,3}, LIU Ding^{1,2}

(1. School of Automation and Information Engineering, Xi'an University of Technology, Xi'an 710048, China;

2. Shaanxi Key Laboratory of Complex System Control and Intelligent Information Processing, Xi'an 710048, China;

3. China Railway First Survey and Design Institute Group Ltd, Xi'an 710043, China)

Abstract: The expected performance index is the foundation for all of control systems. The research on the control of quantum systems mainly focus on a unique object such as the precision of final state, the minimum of time or energy, which lacks a comprehensive consideration on the actual system. Based on the comprehensive analysis of the characteristic of the two-level closed quantum system, a comprehensive performance index leading to an optimal unitary evolution and energy is proposed in this paper. Then a group of differential equations of state and Lagrange multipliers which satisfies the optimality condition to the performance index is obtained based on the variation of performance index. Further, regarding the group of differential equations, a strategy for the solution of optimal control is designed based on numerical iteration with finite difference methods. Lastly, the influence of parameters to the control results is analyzed based on numerical simulation, and the effectiveness of the optimal control method and the iteration algorithm suggested in this paper is tested.

Key words: two-level quantum system; optimal control; performance index; numerical iteration

量子控制是量子力学与经典信息学结合的产物, 现阶段以开环控制为主。

目前, 量子最优控制是量子开环控制中的重要方法, Rabitz 对最优控制在量子控制中的应用进行了讨论, 在验证了其可行性后, 量子最优控制被应用于选键化学, 进而被应用于原子运输、布居数转移控制等多个领域^[1]。近来, 由于量子最优控制与经典

控制论中的最优控制有着诸多相似, 并且在各个领域都展现出了良好的控制效果, 已引起了众多研究学者的关注^[2-4]。

量子最优控制的基本框架是给定一个性能指标, 然后求取最优控制场或者说最优解, 使性能指标最大或最小。虽然控制思路与经典控制中的最优控制相似, 但是对于一个量子系统, 如何确定其性能指

收稿日期: 2015-05-28

基金项目: 中国博士后科学基金面上资助项目(2014M552471); 陕西省创新团队资助项目(2013KCT-04)

作者简介: 谢国, 男, 副教授, 博士, 研究方向为随机控制、参数辨识、数据分析与处理。E-mail: guoxie@xaut.edu.cn

标是量子最优控制中的难点。

当前的性能指标选取主要有控制场能量最优、控制时间最优以及 D'Alessandro 提出的两能级量子系统的控制场能量最优^[5]。在此基础上,吴热冰教授总结了两能级量子系统时间最优情况下的一般特征^[6],给出了特殊情况下最优解的结构。在控制方法方面,Rabitz 提出了一种作用在偶极矩模型的基于数值迭代的控制方法^[7],Palao 等在 Rabitz 的基础上又提出了 Krotov 控制方法在量子控制中的应用^[8],Chen 等提出了基于模糊估计器的不确定量子系统控制方法^[9],Harno 等提出了基于差分进化算法的线性相干系统控制^[10]。此外,线性系统的鲁棒控制^[11]、变尺度梯度方法^[12]、反馈控制^[13]、松弛最优法^[14]等多种最优控制方法也逐步应用于量子控制领域。然而,现有关于两能级封闭量子系统最优控制的研究主要集中在单一的性能指标下,例如时间最优、能量最优^[15],从而导致相应的最优策略不能与最优控制场等其他指标兼得。

针对以上问题,本文从两能级封闭量子系统最优控制的性能指标选取出发,研究了复合性能指标下的最优控制策略,主要包括性能指标的选取和数值迭代算法,并通过数值仿真验证了性能指标及迭代算法的合理性和有效性。

1 最优控制的性能指标选取

量子是指物理上不可分割的最小个体,所以量子控制专指对量子系统的控制,现阶段量子控制的研究对于了解微观物质特性有非常重要的意义。量子控制中的控制场主要有磁场、电场、激光等,目前最常用的控制场是磁场和激光。系统性能指标是最优控制最重要的部分,通常的性能指标选取原则为,在一定时间内使控制场能量极小。

$$J_2 = \int_0^T u^2(t) dt \quad (1)$$

式中, $u(t)$ 为控制场, T 为控制时间, J_2 为系统能量最优性能指标。

当求得的控制场 $\tilde{u}(t)$ 使式(1)取得其极小值时, $\tilde{u}(t)$ 便是最优控制场。但是单一的性能指标对系统的约束往往不够,例如 D'Alessandro 将如式(1)的性能指标应用于一个双磁场下的电子自旋模型,最终得到的控制场在实际中并不能得到应有的效果,所以本文针对性能指标进行重新设计。

在量子系统演化过程中,实际演化矩阵 U 与目标演化矩阵 O 有如下关系:

$$U = e^{-i\varphi} O \quad (2)$$

式中,演化矩阵 O 表示为酉矩阵的形式,即矩阵 O 的列向量是 O 空间的一个标准正交基; i 为虚数单位, φ 为全局相移。

定义复数 τ 的共轭展开:

$$\tau = \text{Tr} \{ \hat{P} \hat{O}^* \hat{U} \} = \sum_{n=1}^N \langle \varphi | \hat{O}^* \hat{U} | \varphi \rangle \quad (3)$$

式中, $\hat{P}$ 表示 P 投影算符, $\hat{P} = |\varphi\rangle\langle\varphi|$, δ^* 是 δ 的共轭转置(文中 $*$ 表示矩阵的转置), $|\varphi\rangle$ 定义了一组希尔伯特复数空间下的标准正交基, N 表示系统的能级(或者量子比特的数目)。由于 O 是酉矩阵,把式(2)带入式(3)可以得到 $\tau = e^{-i\varphi} \hat{P}$,即当实际演化矩阵 U 与目标演化矩阵 O 的关系满足式(2)时,系统取得最优解。同时,由于虚部表征演化角度的变化对终点位置没有影响,所以选取式(3)的实部来定义性能指标:

$$J_R = \text{Re}[\tau] = \text{Re} \left[\sum_{n=1}^N \langle \varphi | \hat{O}^* \hat{U} | \varphi \rangle \right] \quad (4)$$

对式(4)进行化简,设 φ_d 为目标状态, φ_0 为初始状态。这里 φ_0 、 φ_d 均为给定的系统初始状态和最终状态, ψ_T 为系统实际的最终状态。将公式(4)中的右半部分 $\langle \varphi_0 | \hat{O}^* \hat{U} | \varphi_0 \rangle$ 展开,有如下变换:

$$\begin{aligned} \|\langle \varphi_0 | \hat{O}^* \hat{U} | \varphi_0 \rangle\| &= \|\langle \varphi_d | \psi_T \rangle\|^2 = \\ \langle \psi_T | \varphi_d \rangle \langle \varphi_d | \psi_T \rangle &= \langle \psi_T | P | \psi_T \rangle \end{aligned} \quad (5)$$

性能指标写为:

$$J_R = \langle \psi_T | P | \psi_T \rangle \quad (6)$$

当 $\psi_T = \varphi_d$ 时,系统性能指标极大,取得最优解。

在选取性能指标时,还要考虑控制场能量问题,同样的控制目标下,控制场能量越小越好,故性能指标第二部分选取能量最优性能指标,如式(1)所示。

为了更好的约束性能指标,引入关于薛定谔方程的拉格朗日乘子。这里引入拉格朗日乘式,同时也为后续的迭代做准备,其运算结果如下:

$$L = \text{Re} \left[\int_0^T |\chi\rangle (i\hbar |\dot{\psi}\rangle - H |\psi\rangle) dt \right] \quad (7)$$

式中, H 为哈密顿量, $\hbar$ 为普朗克常量; ψ 表示量子状态, $\dot{\psi}$ 表示 ψ 的导数; $|\chi\rangle$ 也表示量子状态,但是以拉格朗日乘子形式存在。经以上分析,综合式(4)~式(7),最终得到两能级量子系统基于数值迭代最优控制的性能指标:

$$J = J_R - qJ_2 - L \quad (8)$$

式中, q 为权重系数。当式(8)取其极大值时,系统获得最优控制的解。对于式(8),首先要满足 J_R 取极大值,并且系统消耗能量最小,即 J_2 取极小值,并使得整体性能指标式(8)取极大值。针对以上性能指标,本文将对一类两能级量子系统的最优控制量

及其求解进行分析与讨论。

2 基于数值迭代的最优性求解

2.1 变量与性能指标的关系

本文给定一个自旋 1/2 的两能级量子系统,其哈密顿量为: $H = H_0 + H_1 u(t)$, H_0 为系统内部哈密顿量,描述了量子系统内部相互作用的变化, H_1 为系统外部哈密顿量,描述了量子系统在外部控制场作用下的情况, $u(t)$ 为控制量。对于该系统其性能指标选取为:

$$J = \langle \psi_T | P_{\varphi_d} | \psi_T \rangle - q \int_0^T u^2(t) - \text{Re} \left[\int_0^T | \chi \rangle (i\hbar | \dot{\psi} \rangle - (H_0 + H_1 u(t))) dt \right] \quad (9)$$

在选用磁场为控制场时,控制量 $u(t)$ 表示控制场的磁场强度, P_{φ_d} 为当系统状态为 φ_d 时的投影算符。控制目标即为求取使得性能指标 J 极大的控制量 $u(t)$, 此时 $u(t)$ 即为系统的最优控制解。

针对以上问题,根据变分法首先对 J 进行变分,分别得到系统的状态方程、协态方程(或伴随方程)、耦合方程:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} | \psi \rangle = (H_0 + H_1 u(t)) | \psi \rangle \quad (10)$$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} | \chi \rangle = (H_0 + H_1 u(t)) | \chi \rangle \quad (11)$$

$$u(t) = -q \text{Im}[\langle \chi | H_1 | \psi \rangle] \quad (12)$$

满足式(10)~式(12)中 $| \psi \rangle$ 、 $| \chi \rangle$ 、 $u(t)$ 的解便是使式(9)取得极大值的最优解。将式(12)带入式(10)、式(11)得到:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} | \psi \rangle = H_0 | \psi \rangle - H_1 | \psi \rangle \text{Im}[\langle \chi | H_1 | \psi \rangle] \quad (13)$$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} | \chi \rangle = H_0 | \chi \rangle - H_1 | \chi \rangle \text{Im}[\langle \chi | H_1 | \psi \rangle] \quad (14)$$

式(13)及式(14)是关于系统状态 $| \psi \rangle$ 和拉格朗日乘子 $| \chi \rangle$ 的薛定谔方程,满足式(13)及式(14)的 $| \psi \rangle$ 是系统最优演化轨迹,所以对式(13)及式(14)进行迭代:

1) 取任意输入 $u_0(t)$, 代入式(10),求得在初始输入下的系统状态 $| \psi_0 \rangle$, 这里 $u_0(t)$ 的取值对于后续的迭代没有影响;

2) 将 $| \psi_0 \rangle$ 带入式(14)求得拉格朗日乘子 $| \chi_1 \rangle$:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} | \chi_1 \rangle = H_0 | \chi_1 \rangle - H_1 | \chi_1 \rangle \text{Im}[\langle \chi_1 | H_1 | \psi_0 \rangle] \quad (15)$$

3) 将 $| \chi_1 \rangle$ 带入式(13)求得系统状态 $| \psi_1 \rangle$:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} | \psi_1 \rangle = H_0 | \psi_1 \rangle - H_1 | \psi_1 \rangle \text{Im}[\langle \chi_1 | H_1 | \psi_1 \rangle] \quad (16)$$

4) 将 $| \psi_1 \rangle$ 代入式(14)求得拉格朗日乘子 $| \chi_2 \rangle$;

5) 将 $| \chi_2 \rangle$ 代入式(13)求得系统状态 $| \psi_2 \rangle$ 。

反复进行步骤 4)、5),进行拉格朗日乘子 $| \chi \rangle$ 和系统状态 $| \psi \rangle$ 的互相迭代,直到完成预定的迭代次数。

对迭代过程需要说明的是,第一步中系统状态 $| \psi \rangle$ 的初始状态取 $| \psi_0 \rangle = \varphi_0$, 为给定已知量;拉格朗日乘子每一次迭代的约束条件为 $| \chi \rangle = P_{\varphi_d} | \psi_T \rangle$ 。完成 N 次迭代后得到的拉格朗日乘子为 $| \chi^N \rangle$, 系统状态为 $| \psi^N \rangle$, 得到的最优控制场为:

$$u^N(t) = -\frac{1}{q} \text{Im}[\langle \chi^N | H_1 | \psi^N \rangle] \quad (17)$$

2.2 数值迭代求解步骤

在设计迭代算法时,需要考虑以下几点:

1) 微分方程的迭代是一个整体连续的迭代,所以在设计算法时要以整个迭代方程组为一个系统,不能单步求解后带入下步微分方程进行迭代;

2) 关于拉格朗日乘子 $| \chi \rangle$ 的微分方程实际上是一个终值微分方程,处理时需要将时间 t 倒置,这时所求得的终值实际上是 $| \chi \rangle$ 的初值 $| \chi(0) \rangle$ 。

综合以上两点,迭代算法采用离散差分的方法求解最为有效。

对式(10)、式(13)及式(14)离散化有:

$$i\hbar \frac{\psi^{n+1} - \psi^n}{\Delta t} = [H_0 + H_1 u^n(t)] \psi^n \quad (18)$$

$$\chi^n = \chi^{n+1} + i\Delta t \cdot f(t^{n+1}; \psi^{n+1}; \chi^{n+1}) \quad (19)$$

$$\psi^{n+1} = \psi^n - i\Delta t \cdot g(t^n; \psi^n; \chi^n) \quad (20)$$

其中, $f(\cdot)$ 和 $g(\cdot)$ 分别表示迭代步长的梯度。算法的流程如图 1 所示。

首先任意给定一个初始控制场,带入式(18)得到一组离散的系统状态 $(\psi_0^1, \psi_0^2, \dots, \psi_0^{n+1})$, 将得到的状态带入式(19)得到一组倒置的离散的拉格朗日乘子 $(\chi_1^{n+1}, \chi_1^n, \dots, \chi_1^1)$, 继续带入式(20)得到第一次迭代后的系统状态 $(\psi_1^1, \psi_1^2, \dots, \psi_1^{n+1})$, 然后将第一次迭代后的系统状态再带入式(19)进行第二次迭代,如此反复迭代直到达到迭代次数为止。初始给定的控制场在算法中相当于给系统一个初始输入来激活系统,后续的控制与初始给定的控制场无关。

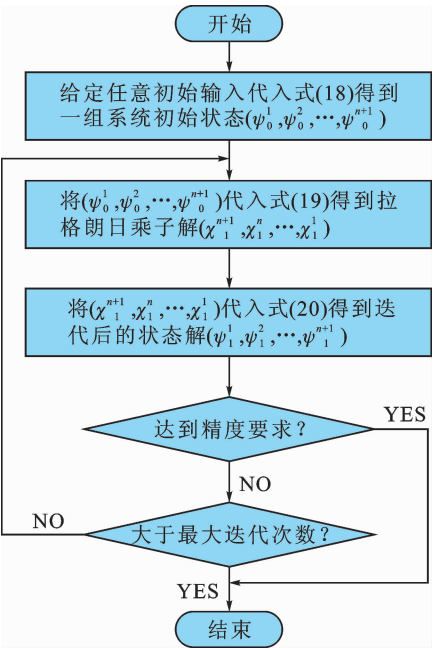


图 1 数值迭代算法流程图

Fig. 1 Flow chart of numerical iterative algorithm

3 数值仿真

给定一个电子自旋 1/2 模型作为两能级封闭量子系统仿真对象,其哈密顿量满足 $H = H_0 + H_1 u$, 由于是电子自旋模型,故内外哈密顿量选取为泡利矩阵:

$$H_0 = \begin{pmatrix} 0.5 & 0 \\ 0 & -0.5 \end{pmatrix} \quad H_1 = \begin{pmatrix} 0 & 0.5 \\ 0.5 & 0 \end{pmatrix}$$

则系统满足薛定谔方程为:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi\rangle = (H_0 + H_1 u(t)) |\psi\rangle$$

式中, $\hbar$ 在仿真中取为 1; 系统的初始状态 $\varphi_0 = (1 \ 0)^T$, 目标状态 $\varphi_d = (0 \ 1)^T$; 待实现的控制目标为使量子自旋方向反转。

3.1 迭代次数对控制的影响

初始控制场任意给定: $u_0(t) = \cos(0.5t)$, 假设时间 $T = 200$, 权重系数 $q = 1$, 通过改变迭代次数观察迭代次数对系统的影响。

表 1 显示了性能指标、控制场变化范围及控制误差随迭代次数变化的情况。

由运行结果可以看出,随着迭代次数增加,性能指标明显增大,并最终稳定在 1.648 6 附近;与此同时,控制误差即 $\|\varphi_d - \varphi_T\|^2$ 逐渐减小,最终稳定在 0.12 左右;控制场稳定在 $-0.12 \sim 0.19$ 的范围。

3.2 权重系数对控制的影响

初始控制场设置为 $u_0(t) = \cos(0.5t)$, 控制时间 $T = 200$, 迭代 100 次。逐渐改变权重来分析权

重对系统性能指标的影响,其中权重的变化范围为 0~1。性能指标、控制场范围以及控制误差随权重系数的变化如表 2 所示。

表 1 时间固定情况下的数值分析
Tab. 1 Numerical analysis of the fixed time case

迭代次数	性能指标 J	控制场变化范围	$\ \varphi_d - \varphi_T\ ^2$
10	1.645 0	-0.181 9~0.294 9	0.185 8
15	1.646 8	-0.177 6~0.288 3	0.179 2
20	1.647 5	-0.173 0~0.281 0	0.173 7
25	1.647 8	-0.169 2~0.274 8	0.169 4
30	1.648 1	-0.165 8~0.264 9	0.165 7
35	1.648 2	-0.162 8~0.264 5	0.162 7
40	1.648 3	-0.160 0~0.259 9	0.159 6
45	1.648 4	-0.157 3~0.255 6	0.156 9
50	1.648 4	-0.154 8~0.251 4	0.154 4
70	1.648 6	-0.135 3~0.219 0	0.145 0
90	1.648 6	-0.135 3~0.219 0	0.136 3
110	1.648 6	-0.125 3~0.202 4	0.128 2
120	1.648 6	-0.120 2~0.193 9	0.124 4
130	1.648 6	-0.119 2~0.190 9	0.122 4

表 2 权重变化时系统数值分析
Tab. 2 Numerical analysis system of weight change

权重系数	性能指标 J	控制场范围	$\ \varphi_d - \varphi_T\ ^2$
0.01	2.166 4	-1.596 3~1.043 2	2.831 0
0.05	2.042 3	-0.826 3~1.288 4	1.783 8
0.1	1.893 3	-1.267 0~0.930 2	0.346 2
0.2	1.650 3	-0.308 4~0.380 4	0.127 2
0.3	1.643 1	-0.395 5~0.540 1	0.123 5
0.4	1.645 4	-0.237 6~0.387 5	0.260 7
0.5	1.647 2	-0.363 1~0.593 3	0.524 0
0.6	1.647 9	-0.366 5~0.599 0	0.533 3
0.7	1.648 3	-0.328 3~0.535 5	0.574 7
0.8	1.648 5	-0.267 4~0.435 5	0.308 7
0.9	1.648 6	-0.199 5~0.324 1	0.204 2
1.0	1.648 6	-0.130 4~0.210 7	0.132 2

将表 2 所示数据表示为图 2、图 3 所示的曲线。其中,图 2 所示为系统性能指标随权重系数的变化曲线,当权重系数逐渐增大时,系统性能指标呈减小趋势,同样最终稳定在 1.648 6 附近。图 3 所示为系统误差随权重系数的变化曲线,由图可知,当权重系数逐渐增大时,控制误差逐步减小。

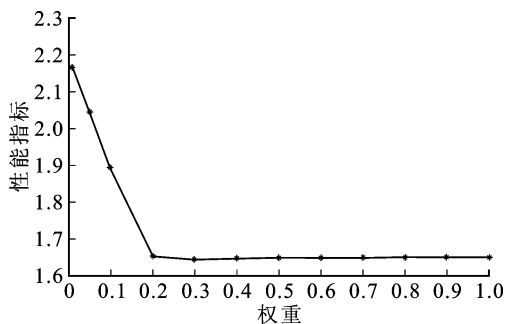


图2 性能指标随权重系数变化

Fig. 2 Performance index varies with the weight change

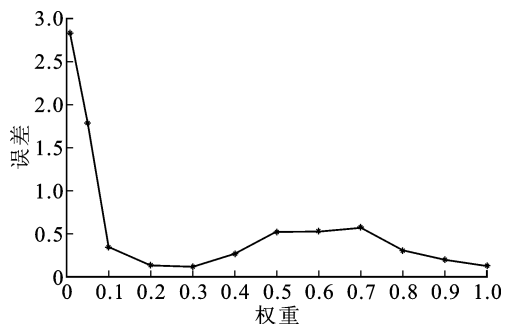


图3 控制误差随权重系数变化

Fig. 3 Control error with weight

综合上述仿真结果可知,当权重系数和控制时间都确定时,随着迭代次数的增大,系统性能指标逐渐增大并最终稳定在 1.648 6 附近,控制场的变化范围随着迭代次数的增大而减小,控制误差 $\|\varphi_d - \psi_T\|^2$ 随迭代次数的增大而减小,这种误差的变化与提出的性能指标相符合,迭代次数的增加会使系统获得更优的控制解;第二组仿真固定迭代次数和控制时间,当权重系数增大时,性能指标呈现减小趋势并稳定在 1.648 6 附近,虽然性能指标减小,但是控制场范围随着权重系数的增大而缩小,并且控制误差 $\|\varphi_d - \psi_T\|^2$ 随着权重的增大而减小。

4 结 论

本文研究了基于数值迭代的两能级封闭量子系统最优控制,并采用数值仿真的方法对自旋 1/2 模型的数值迭代最优控制法进行了验证。理论分析指出,当系统性能指标最大时,所得控制解即为最优控制解。在此基础上,对性能指标进行变分,得到了最优控制的解空间,并设计了最优解的数值迭代方法,获得了最优控制解。仿真结果验证了控制算法的可行性,并对系统的性能指标显示出了良好的跟随性和约束性。

参考文献:

- [1] 陈宗海,董道毅,张陈斌,等. 量子控制导论[M]. 合肥:中国科学技术大学出版社,2005.
- [2] ALTAFINI C, TICOZZI F. Modeling and control of quantum systems: an Introduction[J]. IEEE Trans. on Auto. Cont., 2012, 57(8): 1898-1917.
- [3] DONG D, PETERSEN I. Quantum control theory and applications: a survey[J]. IET Control Theory & Applications, 2010, 4(12): 2651-2671.
- [4] 王竹荣,杨波,吕兴朝,等. 一种改进的量子遗传算法研究[J]. 西安理工大学学报, 2012, 28(2): 145-151.
WANG Zhurong, YANG Bo, LÜ Xingchao, et al. An improved quantum genetic algorithm[J]. Journal of Xi'an University of Technology, 2012, 28(2): 145-151.
- [5] D'ALESSANDRO D, DAHLEH M. Optimal control of two-level quantum systems[J]. IEEE Trans. on Auto. Cont., 2001, 46(6): 866-876.
- [6] WU Rebing, LI Chunwen, WANG Yuzhen. Explicitly solvable extremals of time optimal control for two-level quantum systems[J]. Phys. Letters A, 2002, 295(1): 20-24.
- [7] ZHU W, BOTINA J, RABITZ H. Rapidly convergent iteration methods for quantum optimal control of population[J]. Chem Phys. 1998, 108(5): 1953-1963.
- [8] PALAO J, KOSLOFF R. Optimal control theory for unitary transformations [J]. Phys. Rev. 2003, 68: 062308.
- [9] CHEN Chunli, DONG Daoyi, LAM J, et al. Control design of uncertain quantum systems with fuzzy estimators [J]. IEEE Trans. on Fuzzy Systems, 2012, 20(5): 820-831.
- [10] HARNO H, PETERSEN I. Synthesis of linear coherent quantum control systems using a differential evolution algorithm [J]. IEEE Trans. on Auto. Cont., 2015, 60(3): 799-805.
- [11] PETERSEN I R. Control and robustness for quantum linear systems[C]//32nd Chinese Control Conference. Beijing: Tech. Committee on Cont. Theory, Chinese Association of Automation, 2013: 17-25.
- [12] 丛爽, 匡森. 量子系统控制理论与方法[M]. 合肥:中国科学技术大学出版社, 2013.
- [13] NURDIN H I. Synthesis of linear quantum stochastic systems via quantum feedback networks [J]. IEEE Trans. on Auto. Cont., 2010, 55(4): 1008-1013.
- [14] KHANEJA N, REISS T, LUY B, et al. Optimal control of spin dynamics in the presence of relaxation[J]. Journal of Magnetic Resonance, 2003, 162(2): 311-319.
- [15] ALBERTINI F, D'ALESSANDRO D. Time-optimal control of a two level quantum system via interaction with an auxiliary system[J]. IEEE Trans. on Auto. Cont., 2014, 59(11): 3026-3032.