

学校编码：10384  
学号：19920131152906

分类号\_\_密级\_\_  
UDC\_\_

厦 门 大 学

硕 士 学 位 论 文

高时空分辨动态拉曼成像系统及其关键技术

Dynamic Raman imaging system of high spatio-temporal  
resolution and Its key technologies

戴 吟 臻

指导教师姓名：王 磊 副教授

专 业 名 称：测试计量技术及仪器

论文提交日期：2016 年 4 月

论文答辩时间：2016 年 5 月

学位授予日期：2016 年 6 月

答辩委员会主席：\_\_

评阅人：\_\_

2016 年 月

厦门大学博硕士学位论文摘要库

## 厦门大学学位论文原创性声明

本人呈交的学位论文是本人在导师指导下,独立完成的研究成果。本人在论文写作中参考其他个人或集体已经发表的研究成果,均在文中以适当方式明确标明,并符合法律规范和《厦门大学研究生学术活动规范(试行)》。

另外,该学位论文为( )课题(组)的研究成果,获得( )课题(组)经费或实验室的资助,在( )实验室完成。(请在以上括号内填写课题或课题组负责人或实验室名称,未有此项声明内容的,可以不作特别声明。)

声明人(签名):

年 月 日

---

## 厦门大学学位论文著作权使用声明

本人同意厦门大学根据《中华人民共和国学位条例暂行实施办法》等规定保留和使用此学位论文，并向主管部门或其指定机构送交学位论文（包括纸质版和电子版），允许学位论文进入厦门大学图书馆及其数据库被查阅、借阅。本人同意厦门大学将学位论文加入全国博士、硕士学位论文共建单位数据库进行检索，将学位论文的标题和摘要汇编出版，采用影印、缩印或者其它方式合理复制学位论文。

本学位论文属于：

1. 经厦门大学保密委员会审查核定的保密学位论文，于  
年 月 日解密，解密后适用上述授权。

2. 不保密，适用上述授权。

（请在以上相应括号内打“√”或填上相应内容。保密学位论文应是已经厦门大学保密委员会审定过的学位论文，未经厦门大学保密委员会审定的学位论文均为公开学位论文。此声明栏不填写的，默认为公开学位论文，均适用上述授权。）

声明人（签名）：

年 月 日

## 摘要

拉曼光谱技术由于其无损、非接触、不受水分子干扰等特点而广泛应用于各个领域，其中显微拉曼光谱技术已发展成为微区检测、化学分析方面强有力的工具。然而目前大多数显微拉曼光谱仪的拉曼扫描成像速度仍无法满足电化学反应过程动态监测的要求。本文研究结合“适用于高时空分辨原位电化学显微拉曼光谱仪的研制及其应用研究”项目的目标和要求，通过集成拉曼扫描成像技术和宽场拉曼成像技术，构建具有高时空分辨特性的动态拉曼成像系统。在显微拉曼光谱仪具有的高空间分辨率的基础上，进一步提高成像系统的时间分辨，从而实现动态拉曼信号的检测。论文的主要工作包括：

1. 分析高时空分辨动态拉曼成像系统的功能要求，设计系统的整体光路，包括激发光路、拉曼扫描成像光路和宽场成像光路。并基于系统的电动控制要求，完成系统中电控运动部件的机械结构设计。
2. 完成系统光路的详细设计，搭建调试各光路模块，实现拉曼信号的有效激发和收集。基于搭建的光路进行系统标定，包括系统中相关各坐标系标定和光谱仪、液晶可调谐滤光片 LCTF(Liquid crystal tunable filter)的波长标定。
3. 分析系统各硬件设备的控制要求，基于各设备软件接口进行控制开发。包括光学电动元件、平台、光谱仪、LCTF 和 EMCCD(Electron-Multiplying)等控制。
4. 分析设计成像系统的软件架构，包括各硬件设备联用控制、系统功能时序控制、系统数据文件格式设计以及人机界面模块，实现系统软硬件的集成，完成成像系统的软件控制。
5. 对搭建的光路和软件系统进行功能测试，对系统的灵敏度、分辨率等进行性能测试，并将系统应用于实际测量体系。

本文主要的创新工作在于集成拉曼扫描成像技术和宽场拉曼成像技术，通过实现两者在光路、软硬件控制上的协同，使各功能模块检测效率最大化，这样系统不仅能满足高灵敏度的稳态体系拉曼扫描成像的要求，而且适用于电化学体系中稳态和动态反应的宽场动态拉曼成像。该系统能实现  $100\times$ 物镜下扫描成像  $0.5\mu\text{m}\times 0.5\mu\text{m}$  和宽场成像  $0.36\mu\text{m}\times 0.36\mu\text{m}$  的空间分辨，在时域上，结合激发光强度和拉曼散射强度，宽场成像能够达到约 50fps 的分辨率。

**关键词：**显微拉曼光谱仪；动态拉曼成像；高时空分辨

## Abstract

Raman spectroscopy, as a technique with the advantage of nondestructive, non-contact and insensitive to water, is widely applied to various fields. In particular Raman microspectroscopy has become a powerful tool for micro-area detection and chemical analysis. However, at present Raman scanning imaging speeds of the majority of Raman microspectrometers are still not fast enough to satisfy the demand of monitoring the dynamic electrochemical reaction. Based on the target and requirement of the project “development and application research of in situ electrochemical Raman microspectrometers with high spatio-temporal resolution”, the construction of a dynamic Raman imaging system with high spatio-temporal resolution by means of integrating Raman scanning imaging with wide-field Raman imaging was discussed in this thesis. On the basis of high spatial resolution which is the feature of Raman microspectrometer, the detection of dynamic Raman signal could be achieved by further improving the temporal resolution of imaging system. The main work of this thesis includes:

1. The function requirements of dynamic Raman imaging system are analyzed and the optical path of the whole system is designed including the excitation, Raman scanning imaging and wide-field imaging light paths. And based on the demand of system electric control, the mechanical structure design of the motor-driven moving parts is achieved.
2. After the detail design of the system light path, the construction and adjustments of each optical module is accomplished to realize the efficient excitation and signal collection. With the built optical system the calibrations are carried out including the calibration of relevant coordinate systems as well as the wavelength calibration of spectrometer and LCTF (Liquid crystal tunable filter).
3. The controls of all the hardware are developed by using respective software interface based on the control requirements. The hardware which need control in the system contain motor-driven optical parts, moving platform, spectrometer, LCTF, EMCCD (Electron-Multiplying) and so on.

4. The software architecture of the imaging system is analyzed and designed. Ultimately the image system software control with the integration of software and hardware consists of the union control of relevant hardware, the sequential control for system functions, the specification of system data file formats and the design of the human-computer interface.
5. The functions of the constructed optical and software system are tested and the performances including the sensitivity and resolution of the system are tested as well. Moreover, the system is applied to practical experiments.

The main innovation of this thesis lies in the technique integration of Raman scanning imaging and wide-field Raman imaging. The ultimate detection efficiency of each functional module is realized through the optimized optical path as well as the collaborative control of hardware and software. In this way, the imaging system not only fulfills the demand of steady-state Raman scanning imaging with high sensitivity, but also is available for electrochemical steady-state as well as dynamic wide-field Raman imaging. Currently, the imaging system achieves the spatial resolution of  $0.5\mu\text{m}\times 0.5\mu\text{m}$  for scanning imaging and  $0.36\mu\text{m}\times 0.36\mu\text{m}$  for wide-field imaging in the case of  $100\times$  objective. In terms of temporal resolution the wide-field imaging could realize about 50 fps considering the laser power and intensity of Raman scattering.

**Keywords:** Raman Microspectrometer; Dynamic Raman Imaging; High Spatio-temporal Resolution.

摘 要 .....	I
Abstract .....	II
<b>第一章 绪 论 .....</b>	<b>1</b>
<b>1.1 拉曼成像技术及其应用 .....</b>	<b>1</b>
1.1.1 拉曼成像技术简介 .....	1
1.1.2 拉曼成像技术的应用 .....	2
<b>1.2 拉曼成像系统研究现状 .....</b>	<b>3</b>
<b>1.3 课题研究的目标及内容 .....</b>	<b>5</b>
1.3.1 课题研究目标 .....	5
1.3.2 课题研究内容 .....	5
<b>第二章 高时空分辨动态拉曼成像系统 .....</b>	<b>7</b>
<b>2.1 高时空分辨动态拉曼成像系统功能模块 .....</b>	<b>7</b>
2.1.1 显微拉曼扫描成像 .....	7
2.1.2 基于 LCTF 和 EMCCD 的显微拉曼宽场成像 .....	7
<b>2.2 高时空分辨动态拉曼成像系统光路 .....</b>	<b>7</b>
2.2.1 系统整体光路原理 .....	8
2.2.2 激发光路 .....	8
2.2.3 拉曼扫描成像 Mapping 光路 .....	9
2.2.4 宽场成像光路 .....	11
<b>2.3 高时空分辨动态拉曼成像系统硬件选型与机械结构设计 .....</b>	<b>13</b>
2.3.1 系统的硬件组成及选型 .....	13
2.3.2 机械结构设计 .....	16
<b>2.4 本章小结 .....</b>	<b>17</b>
<b>第三章 成像系统的搭建与标定 .....</b>	<b>19</b>
<b>3.1 成像系统的光路搭建 .....</b>	<b>19</b>
3.1.1 激发光路的搭建调节 .....	19
3.1.2 拉曼扫描成像 Mapping 光路的搭建调节 .....	22
3.1.3 宽场成像光路的搭建调节 .....	24
<b>3.2 成像系统的标定 .....</b>	<b>26</b>
3.2.1 显微镜摄像头与移动平台的坐标标定 .....	26



3.2.2 X 振镜与显微镜摄像头、光谱仪的坐标标定.....	28
3.2.3 PI 光谱仪和 LCTF 的波长标定.....	30
<b>3.3 本章小结.....</b>	<b>31</b>
<b>第四章 系统控制与软件集成.....</b>	<b>32</b>
4.1 成像系统的整体软件框架.....	32
4.2 硬件独立控制模块设计.....	35
4.2.1 光学元件电动控制功能.....	35
4.2.2 显微镜、平台及显微镜摄像头的控制功能.....	36
4.2.3 光谱仪的控制.....	36
4.2.4 LCTF 和 EMCCD 的控制.....	38
4.3 联用控制模块设计.....	40
4.3.1 拉曼扫描成像功能.....	40
4.3.2 宽场成像功能.....	42
4.4 数据和文件模块设计.....	43
4.4.1 系统的数据结构及文件.....	43
4.4.2 系统的参数文件.....	44
4.5 人机界面设计.....	44
4.6 本章小结.....	49
<b>第五章 高时空分辨动态拉曼成像系统的应用.....</b>	<b>50</b>
5.1 成像系统的性能测试.....	50
5.2 镀金硅片的扫描成像.....	52
5.3 金纳米粒子散射与 SERS 的宽场成像.....	54
5.4 暂态电化学的宽场成像.....	56
5.5 本章小结.....	58
<b>第六章 总结与展望.....</b>	<b>59</b>
<b>参考文献.....</b>	<b>61</b>
<b>攻读硕士学位期间参与的科研项目.....</b>	<b>66</b>
<b>攻读硕士学位期间的科研成果.....</b>	<b>67</b>
<b>致谢.....</b>	<b>68</b>

# Contents

<b>Abstract in Chinese.....</b>	<b>I</b>
<b>Abstract in English .....</b>	<b>II</b>
<b>Chapter 1 Introduction.....</b>	<b>1</b>
<b>1.1 Raman Imaging Techniques and Applications .....</b>	<b>1</b>
1.1.1 Introduction of Raman Imaging.....	1
1.1.2 Application of Raman Imaging.....	2
<b>1.2 The Current Research of Raman Imaging System .....</b>	<b>3</b>
<b>1.3 Objective and Contents of the Research .....</b>	<b>5</b>
1.3.1 Objective of the Research .....	5
1.3.2 Contents of the Research .....	5
<b>Chapter 2 Dynamic Raman Imaging System.....</b>	<b>7</b>
<b>2.1 Function Modules of the Imaging System .....</b>	<b>7</b>
2.1.1 Raman Scanning Imaging .....	7
2.1.2 Raman Wide-field Imaging with LCTF and EMCCD.....	7
<b>2.2 Light Path of the Imaging System.....</b>	<b>7</b>
2.2.1 Design of the Overall System Light Path .....	8
2.2.2 Light Path of Excitation.....	8
2.2.3 Light Path of Raman Scanning Imaging.....	9
2.2.4 Light Path of Raman Wide-field Imaging.....	11
<b>2.3 Lectotype of Hardware and Design of Mechanical Structures .....</b>	<b>12</b>
2.3.1 Components and Lectotype of Hardware .....	13
2.3.2 Design of Mechanical Structures .....	16
<b>2.4 Brief Summary .....</b>	<b>17</b>
<b>Chapter 3 Construction and Calibration of the Imaging System .....</b>	<b>19</b>
<b>3.1 Construction of the Imaging System Light Path .....</b>	<b>19</b>
3.1.1 Construction and Adjustment of Excitation Light Path .....	19
3.1.2 Construction and Adjustment of Raman Mapping Light Path.....	22
3.1.3 Construction and Adjustment of Wide-field Imaging Light Path.....	24
<b>3.2 Calibration of the Imaging System .....</b>	<b>26</b>
3.2.1 Calibration of Microscope Camera and Moving Platform .....	26

3.2.2	Calibration of Galvo-mirror, Microscope Camera and Spectrometer.....	28
3.2.3	Wavelength Calibration of Spectrometer and LCTF .....	30
<b>3.3</b>	<b>Brief Summary .....</b>	<b>31</b>
<b>Chapter 4 System Control and Software Integration .....</b>		<b>32</b>
<b>4.1</b>	<b>Software Architecture of the Imaging System .....</b>	<b>32</b>
<b>4.2</b>	<b>Individual Control Module Design of Hardware .....</b>	<b>35</b>
4.2.1	Control of Motor-driven Optical Parts.....	35
4.2.2	Control of Microscope, Moving Platform and Microscope Camera .....	36
4.2.3	Control of Spectrometer.....	36
4.2.4	Control of LCTF and EMCCD .....	38
<b>4.3</b>	<b>Union Control Module Design of System .....</b>	<b>40</b>
4.3.1	Control of Raman Scanning Imaging .....	40
4.3.2	Control of Wide-field Imaging.....	42
<b>4.4</b>	<b>Data and File Module Design of System.....</b>	<b>43</b>
4.4.1	Design of System Data and File Structure.....	43
4.4.2	Design of System Parameter File.....	44
<b>4.5</b>	<b>Human-Computer Interface Design .....</b>	<b>44</b>
<b>4.6</b>	<b>Brief Summary .....</b>	<b>49</b>
<b>Chapter 5 Applications of Dynamic Raman Imaging System .....</b>		<b>50</b>
<b>5.1</b>	<b>Testing of System Performance.....</b>	<b>50</b>
<b>5.2</b>	<b>Raman Mapping of Gold-Plated Silicon Chip .....</b>	<b>52</b>
<b>5.3</b>	<b>Wide-field Imaging of Au Nanoparticles Scattering and SERS.....</b>	<b>54</b>
<b>5.4</b>	<b>Raman Wide-field Imaging of Transient Electrochemistry.....</b>	<b>56</b>
<b>5.5</b>	<b>Brief Summary .....</b>	<b>58</b>
<b>Chapter 6 Conclusions and Outlooks .....</b>		<b>59</b>
<b>References .....</b>		<b>61</b>
<b>Projects Participated during the Master's Degree .....</b>		<b>66</b>
<b>Research Results Achieved during the Master's Degree.....</b>		<b>67</b>
<b>Acknowledgements .....</b>		<b>68</b>

厦门大学博硕士学位论文摘要库

## 第一章 绪论

### 1.1 拉曼成像技术及其应用

#### 1.1.1 拉曼成像技术简介

拉曼光谱，作为一种无损、非接触的检测技术，是由 C.V. Raman 于 1928 年发现的<sup>[1]</sup>。二十世纪六十年代激光引入作为拉曼光谱仪的激发光源之后，拉曼光谱进入了发展的新时期，随后出现了很多新的拉曼光谱技术，并且在化学、生物和物理等领域得到了广泛的应用<sup>[2, 3]</sup>。

拉曼光谱，即拉曼散射信号是指光照射到样品上发生非弹性散射，光子的频率改变了的散射信号，可分为斯托克斯散射（散射光频率小于入射光频率）和非斯托克斯散射（散射光频率大于入射光频率），由于斯托克斯散射比反斯托克斯散射的强度强得多，通常检测采用的是斯托克斯散射。而光子和分子的弹性碰撞过程中没有改变光子的频率，则散射过程为瑞利散射<sup>[4]</sup>。

拉曼散射光谱作为物质的“指纹”光谱，反应的是物质中分子振动频率、能级和转动的信息，是研究分子结构的一种重要分析方法，可根据仅与分子振动和转动能级有关的拉曼位移进行分子结构定性分析，根据拉曼散射的强度反映的分子基团数量对物质分子进行定量分析。

近年来，基于显微拉曼光谱仪的拉曼成像检测技术受到了较大的关注<sup>[5, 6]</sup>，作为表征化学信息的一种有力手段，拉曼检测技术由单点检测发展到对区域内拉曼信号成像，通过大尺度、多采集点的拉曼光谱数据，以图像的方式表示表面的化学成分分布以及物理反应的动态变化，同时获取了空间信息和拉曼光谱信息，充分利用了原本单一的数据，使拉曼光谱的有了更深入、更广泛的应用，也是现在很多拉曼检测系统的重要功能模块<sup>[7, 8]</sup>。目前已有的拉曼成像技术主要分为两种，一种是扫描成像，另一种是宽场成像。

扫描成像是指对样品的不同位置进行逐一扫描获取一系列的拉曼光谱<sup>[9]</sup>，基于获得的扫描光谱生成相应的图像，由图像的灰度值和分布特征可以反应出样品的结构信息和分布，其成像的原则主要有基于拉曼峰的强度成像，拉曼峰半高宽成像以及拉曼峰位的成像。采用点激光的逐点扫描和线激光的逐线扫描是扫描成像的两种主要方法。点扫描成像是最传统基本的方法，点激发光在样品空间范围内（二维 X 轴和 Y 轴）单点步进，对应样品的每个 (x,y) 坐标的步进点获取

并记录该点的光谱。而线扫描成像则是点扫描成像的扩展<sup>[10]</sup>，通过激光扫描装置使光斑沿着 X 轴或者 Y 轴方向以直线的形式聚集在样品表面，该线对应的光谱信号将通过光谱仪的入射狭缝经过光栅沿垂直于入射狭缝的方向展开成像于光谱仪的面阵 CCD 上，CCD 中不同的行对应着样品激光线上不同点的信号，实现了同时采集多条光谱，通过对样品表面进行逐线扫描，获取并记录对应样品每条线的光谱<sup>[8, 11]</sup>。

与扫描成像不同，宽场成像通过采用宽场（全局）激发样品，其散射的信号直接耦合收集于面阵列 CCD<sup>[12, 13]</sup>。宽场成像最常用的方法是使用波长可调滤光片，通常为可调谐液晶滤光片 LCTF(Liquid crystal tunable filter)<sup>[14, 15, 16]</sup>，经过 LCTF 选择通过的信号的波长实现单波长成像，声光可调谐滤光器 AOTF(Acousto-optic tunable filter)也可以用于调节选择波长<sup>[17, 18]</sup>。通过 LCTF 的波长扫描，获取记录一定波长范围内的图像，可以实现和扫描成像相同的结果。因为同时收集两个空间维度的光谱，与扫描成像相比会节省很多时间。

拉曼光谱技术可以用于对物质分子结构进行定性分析和分子成分的定量分析，而拉曼成像技术则在此基础上进一步扩展到了对物质空间分布的研究和分布动态变化的实时监测。

### 1.1.2 拉曼成像技术的应用

目前，拉曼检测技术已经广泛地应用于材料、化工、石油、高分子、生物、医药、食品安全等重要领域<sup>[19, 20, 21]</sup>。随着光谱仪、CCD、滤光片等技术的进步，新一代的拉曼成像技术由于具有高速、高分辨率成像的特点，逐渐成为在电化学、生物、先进材料、药物等领域的重要研究手段之一<sup>[22]</sup>。

基于表面增强拉曼光谱(Surface-enhanced Raman Spectroscopy, SERS)的拉曼成像技术，通过引入纳米粒子和结构实现高增强因子，大大提高了光谱检测的灵敏度，进而很大程度上加快了成像的速度<sup>[23]</sup>。通过 SERS 带标记和无标记的细胞成像、活体成像等可以实时监测细胞动态、诊断肿瘤和其它疾病，通过对复杂体系的细胞生物图像进行动态追踪，对揭示病理生物分子反应机制具有重要意义，在生物医学领域表现出巨大的应用前景<sup>[7, 24]</sup>。

在药物分析领域，拉曼光谱技术也发挥着重要的作用，可以进行药物的水分定性、定量测定，基于 SERS 的痕量药物定性分析和定量测定等。通过拉曼成像

对药物的结晶度、颗粒大小、各成分在片剂中的分布等物理特性进行测定，对药物的品质特性进行控制<sup>[25]</sup>。在医药工业中，拉曼光谱应用于过程的监测和药品质量的控制，用于鉴别药物和药物释放实验、检测大批量的原料药和单态物质的结晶过程等都正处于发展时期<sup>[26]</sup>。

拉曼成像还可以对一些前沿的材料如半导体、石墨烯管、碳纳米管等的结构和性能进行研究分析<sup>[27, 28]</sup>。例如利用正切拉伸 G 模的线型和位置来分辨金属性和半导体性单壁纳米管<sup>[29]</sup>。

拉曼光谱应用于电化学领域始于上世纪 70 年代初，基于 SERS 效应能够显著增强表面（界面）的拉曼散射信号，避免液相或气相中同类物种的干扰。在检测灵敏度提高的基础上，通过提高检测的时空分辨率来研究电化学界面结构和表面分子的细节和动态过程<sup>[30]</sup>。例如 Fujishima 等人发展了基于共焦显微拉曼系统和 SERS 技术的拉曼成像技术，研究了 SERS 活性银表面吸附物及自组装膜的 SERS 表面增强图像<sup>[31]</sup>。随着拉曼成像技术的不断发展，电化学的研究目标也将从稳态的界面结构进一步扩展到电化学反应的动态过程的研究。

## 1.2 拉曼成像系统研究现状

现今很多显微拉曼成像系统采取的是点扫描和线扫描成像技术，其中有通过单独控制平台移动扫描，单独控制激光束扫描或者通过控制激光束和控制平台移动的结合实现扫描。这三种模式中，由控制激光束进行扫描相对平台移动更为快速，而且相比之下，激光束扫描具有无震动和无漂移的特点，成像更为清晰。

由于拉曼信号较为微弱的特性，一般获取单点拉曼光谱时间为 1 秒至 10 秒甚至更长，对于普通的逐点扫描成像，其成像时间通常需要几十分钟甚至是几小时来完成。相应的，线扫描成像由于一次获取样品一条线上的光谱，相比于传统的点扫描，在很大程度上提高了成像速度。

目前市面上常用的拉曼成像系统大多采用线扫描成像技术，如图 1.1 所示的 Renishaw-inVia 显微拉曼光谱仪，其具有模块化，高灵敏度的特点，可一次连续扫描大范围的拉曼光谱，无需人为接谱，采用了 StreamLine 快速拉曼扫描成像技术，大大提高了数据采集的速度<sup>[32, 33]</sup>。



图 1.1 Renishaw-inVia 显微拉曼光谱仪

如图 1.2 所示的 Nanophoton Raman-11 成像系统，其通过控制激光束在样品平面形成线激光并进行扫描，稳定且无漂移，可以实现快速、高精度、更为清晰的拉曼彩色成像，其成像速度为其它常规拉曼成像系统的 300-600 倍，并且通过共聚焦光学系统实现了高分辨率的拉曼成像，通常在几分钟之内可以获取亚微米高分辨率的拉曼图像<sup>[34]</sup>。



图 1.2 Nanophoton Raman-11 成像系统

如图 1.3 所示的 HORIBA LabRAM HR 共聚焦显微拉曼光谱仪，通过真共焦实现最佳的空间分辨率和精确的拉曼图像，采用 SWIFT 快速成像技术，可配多个激发波长，从可见到近红外，具有高、中、低光谱分辨率多道光谱探测模式，集高性能和智能自动化为一体，自动软件操作集成了成像、化学计量学分析、光谱定性分析等模块功能<sup>[8]</sup>。



Degree papers are in the “[Xiamen University Electronic Theses and Dissertations Database](#)”.

Fulltexts are available in the following ways:

1. If your library is a CALIS member libraries, please log on <http://etd.calis.edu.cn/> and submit requests online, or consult the interlibrary loan department in your library.
2. For users of non-CALIS member libraries, please mail to [etd@xmu.edu.cn](mailto:etd@xmu.edu.cn) for delivery details.