

半导体激光器在氧气探测中的应用及关键技术

刘云燕¹, 潘教青², 程传福³, 于红艳²

(1. 山东理工大学理学院, 山东 淄博 255049; 2. 中国科学院半导体研究所, 北京 100083;

3. 山东师范大学物理与电子科学学院, 山东 济南 250014)

摘要: 氧气探测在工业、医疗等诸行业都有重要意义。本文简述了近几年发展起来的 TD-LAS 技术之特点及优势, 评述了各种半导体激光器作为激发光源用于 TDLAS 技术进行氧气探测的性能, 着重讨论了在氧气探测方面具有发展前景和竞争优势的 DFB 和 VCSEL 结构激光器光源的应用和进展。

关键词: 半导体激光器; 氧探测; 可调谐二极管激光吸收光谱 (TDLAS); DFB; VCSEL

中图分类号: O433.1 **文献标识码:** A

Application and key technologies of semiconductor laser in the detection of oxygen

LIU Yun-yan¹, PAN Jiao-qing², CHENG Chuan-fu³, YU Hong-yan²

(1. School of Science, Shandong University of Technology, Zibo 255049, China;

2. Institute of Semiconductors CAS, Beijing 100083, China;

3. College of Physics and Electronics, Shandong Normal University, Jinan 250014, China)

Abstract: In many industrial and medical fields, oxygen probe is important. This paper briefly discussed the features and advantages of TDLAS technique developed in recent years, reviewed the performance of different kinds of semiconductor lasers as irradiance source for the TDLAS technology in the oxygen probe. The application and progress of DFB and VCSEL structure semiconductor lasers which are considered as the competitive irradiance sources for detection of oxygen are focused on.

Key words: semiconductor laser; oxygen detection; TDLAS; DFB; VCSEL

1 引言

近年来,我国钢铁冶金、航空航天、石油化工、水泥、电力以及生化制药发展迅猛,但由于这些产业资源消耗大、污染排放高,所以节能减排就成为一项重要而紧迫的任务。O₂ 是工业生产燃烧过程中最重要的助燃气体,对其进行快速精确的在线实时监控与回馈控制,不仅可以优化燃烧过程,降低能耗和污染,而且能提高系统整体的燃烧效果,不仅对提高生产效率、产品品质以及安全生产具有重要意义,而且成为节能减排和实行低碳经济的重要手段之一。借助氧气测量可以实现上述行业中高温气体实时准确的温度控制,同样具有减耗提效和安全生产的功效。

在医疗、生理和生物研究领域,氧探测也具有重要的临床应用价值和广阔的应用前景。氧是人体新陈代谢的重要物质,通过侦测人类呼吸中的含氧量,可以对人体的呼吸系统、新陈代谢、体育活动等进行监测,可以作为相关疾病的诊断以及药物治疗的基准。

氧探测的应用范围广,需求多样化,从发电站燃烧控制到汽车尾气排放检测,从食品储藏到医疗卫生,从半导体行业到空间技术,从垃圾焚烧到环境监测等等。由此使得氧探测从低压下的亚-ppm 量级

作者简介: 刘云燕(1974 -),女,副教授,博士研究生,主要从事半导体光电材料和器件的研究。E-mail: liuyunyan@sdu.edu.cn

收稿日期: 2010-12-06; **修订日期:** 2011-01-06

直到大气状态下的厘米/数量级,精度范围跨度增大;同时探测环境也趋于复杂,既包括有毒、腐蚀、高温燃烧以及爆炸等恶劣环境,也包括活性体体内,失重等特殊环境。从而促进了多种类型的氧探测器的广泛发展,主要包括电化学电池^[1],离子导电陶瓷(主要是 ZrO_2)^[2],荧光淬灭^[3],声表面波传感器等等。但这些技术的主要缺点:①需要探测源与被探测对象的近距离有效接触,很容易造成探测器的腐蚀或损坏,长期工作稳定性差,对操作人员亦有伤害;②响应速度慢,难于实现实时在线控制,对爆炸等高危紧急环境尤其不利;③对复杂气体环境中目标气体的辨别力差,灵敏度低,需要频繁校准以及系统维护等。近年发展起来的可调谐二极管激光吸收光谱技术(tunable diode laser absorption spectroscopy, TDLAS)解决了以上问题,必将迅速取代以上 O_2 探测技术。

2 可调谐二极管激光吸收光谱技术

TDLAS 技术原理是建立在红外吸收基础上的,其本质是一种吸收光谱技术。基于 Beer - Lambert 定律,是通过分析测量光束被气体的选择吸收获得气体浓度。具体来说,半导体激光器发射出特定波长的激光束穿过被测气体时,被测气体会对激光束吸收导致激光强度衰减,激光强度的衰减程度与被测气体含量成正比,因此,通过测量激光强度衰减信息就可以分析获得被测气体的浓度。与传统红外光谱技术相比,TDLAS 技术的特点主要表现为:实现了气体探测的非侵入式原位快速测量,可实现工业过程实时在线管理和回馈控制,恶劣环境适应能力强;对目标气体的选择性高,抗干扰能力强;不需采样预处理系统,节省了样气预处理和样气在管道内的传输时间;体积小,坚固耐用,便携稳定且具有价格优势。

TDLAS 技术最早在 20 世纪 70 年代出现,大多采用铅盐激光器。尽管使用 TDLAS 技术,铅盐激光器能测量到 ppm 量级,但是因其必须在液氮低温环境下运转,设备复杂,价格昂贵,大大限制了其应用发展的步伐,而且铅盐激光器工作于 $2 \sim 20 \mu\text{m}$ 范围,这对氧气在 760 nm 的吸收探测是不能使用的。20 世纪 90 年代后,由于光通讯发展的需要,促使性能高,室温工作、长寿命($>50000 \text{ h}$)、单模特性和较宽波长范围的半导体激光器被大量地生产出来并投入市场,一些高灵敏度的光谱技术如频率调制(frequency modulation spectroscopy)也逐渐成熟,相应的近红外 TDLAS 高灵敏在线检测技术实现了从实验

室到产品化的过渡^[4-6]。利用近红外 TDLAS 等技术,可对大气中多种气体浓度,如 CH_4 , HCl , CO , CO_2 , C_2H_2 , CH_2O , H_2S 和 NH_3 等进行测量。但是像氧气这种具有双核原子的分子气体,在近红外波段的吸收很小,信号微弱,谱线宽度窄,利用光谱吸收进行氧气的浓度测量一直无法实现。随着 TDLAS 技术的成长,直到近几年近红外 DFB 激光器生产的突破,利用 760 nm 附近 O_2 的光谱吸收,终于实现了对 O_2 浓度的快速在线监测。日本索尼公司,德国海德堡大学、美国斯坦福大学,爱尔兰 trinity 大学都已经开展了这方面的工作,国内中国科学院安徽光机械精密研究所、杭州电子科技大学等单位利用 TDLAS 进行工业氧气探测的研究也已经开始。

3 用于氧气探测的半导体激光器光源及关键技术

氧气吸收光谱如图 1 所示,由图看出,氧气吸收波长大约位于 760 ~ 763 nm 之间,因此作为氧气体探测的光源波长必须位于此范围内,其线宽必须要窄,并且能扫描对准到某一个吸收峰值。1987 年,日本首先制作了 AlGaAs DFB($\lambda = 759 \text{ nm}$)激光器,成功用于 760 nm 的 O_2 探测^[7],随后 GaAs/AlGaAs 量子阱激光器用于 O_2 探测得到了迅速发展。目前用以探测氧气特征波长的各种类型的半导体激光器已有:F-P 腔 AlGaAs 半导体激光器^[8],短外腔激光器(short external cavity lasers, SXC)、AlGaAs 激光器^[9-10],宽调谐外腔激光器(ECDL^[11]),分布反馈激光器(DFB)^[12-15]和垂直腔面发射激光器(VCSEL)^[14,16-17]。

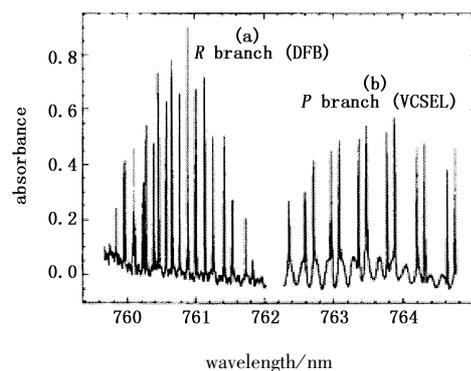


图1 使用DFB和VCSEL结构激光器作探测光源测得的氧气吸收光谱图

尽管 F-P 腔半导体激光器输出波长很窄(一般小于几 MHz),远远小于气体吸收线宽(常温常压下为几百 MHz),灵敏度也很高(达到 54 ppm-m)^[8,18-19],但是不易实现单模发射,调制过程中出现跳模,无法获得完全的光谱信息^[20],所以现在已很少用于 O_2 探测。针对 F-P 半导体激光器跳模现

象,以及为实现大范围连续频率可调,后来又发展了外腔激光器用于 O_2 测量,加拿大的 Douglas M. 小组^[10]制作了 AlGaAs 短外腔结构激光器,实现了对 O_2 的长时间稳定 (> 15 h) 无跳模测量,探测到 16 根独立的 O_2 吸收线,探测精度达到 4×10^{-6} 。但是这种激光器由于复杂的光学配置致使仪器笨重庞大,价格昂贵,机械性能不稳定,维修要求高,因而没有大规模生产。目前看最有发展前景和竞争优势的是 DFB 和 VCSEL 结构的激光器。

3.1 DFB 结构半导体激光器

DFB 结构激光器提供了大于 25 W 的高输出功率,具有优良的单模发射和大约 30 dB 的 SMSR,在几个 nm 范围呈现优良的线性可调谐性,且无跳模,探测灵敏度高(20 ppm),用于 O_2 探测获得了令人满意的效果。由于 DFB 结构激光器在 O_2 探测方面的显著技术优势和关键部件及分析技术逐渐成熟,所以推广潜力巨大。

由于二次生长出现的 Al 的氧化问题不能解决,比较 800 ~ 880 nm 的波长范围,750 ~ 800 nm 之间较短波段的 GaAs-AlGaAs 分布反馈式激光器很不容易制作,1995 年 N. A. Morris 教授等人^[21]在量子阱两端采用渐变分限制层 (GRIN-SCH) 结构实现了 760 nm 的单模连续可调无跳模激光发射,该激光器的临界电流为 25 mA,连续波长温度可调速率为 0.06 nm/ $^{\circ}C$,可调波长区间为 4.2 nm,而电流可调速率为 0.0075 nm/mA,成功的用于了 O_2 探测。此后,利用 TDLAS 技术,使用 DFB 结构激光器在各种场合进行了 O_2 探测的应用研究,取得了良好的效果。

C. Corsi 等人^[13]从实验上证明,即使存在背景气体干扰,从室温到 400 $^{\circ}C$ 高温环境使用 DFB 激光器均可对 O_2 实现有效探测,探测环境压强变化范围可从几个 Torr 到大气压强,激光器的波长是 761 nm,温度可调速率为 0.06 nm/ $^{\circ}C$,而电流可调速率为 0.03 nm/mA,输出波长线宽 10 MHz。德国 Ebert^[22],意大利 R. Benedetti 等人^[23]所在的研究小组在更高的温度下 ($800 \sim 900$ $^{\circ}C$),使用 DFB 激光器氧气探测系统,克服了物体焚烧时烟尘环境对 O_2 探测的不利影响,实现了对 O_2 的非侵入式原位高灵敏探测,而且通过测量氧气浓度同时实现了高温温度的测量。我国张帅等人^[24]以 DFB 激光器作为光源,使用 TDLAS 技术也已实现了对氧气浓度的快速在线检测。系统指标达到:检测范围 $0.01\% \sim 20\%$;检测精度 0.1% ;长期稳定性 1% 。王健等

人^[25]使用 TDLAS 技术,也成功进行了 $823 \sim 1323$ K 的高温条件下对氧气浓度的测量。

进行实际的火灾现场氧气探测对提高灭火效率,研究灭火机制具有重要的意义。灭火效率高度依赖于燃烧时的氧气浓度,而氧浓度受雾态水蒸气稀释,会出现迅速的多变性,加之灭火现场能见度低,探测光的有效穿越距离短,这种情况使用传统的 ZrO_2 氧探测器是无法实现准确实时测量的,而德国 H. Eric Schlosser 等人^[26]使用 DFB 激光器作为光源的 TDLAS 氧探测系统,在 2002 年真正的大规模灭火试验中,则成功实现了复杂的灭火环境中的氧气探测。随后,2007 年,Andrew R. 等人^[27]使用 TDLAS 技术,研究出了能同时探测火灾现场中 O_2 , CO 以及水蒸气三种气体的气体探测系统。

以上研究表明,在高温燃烧以及爆炸等恶劣环境中,使用 DFB 激光器作为光源的 TDLAS 系统进行有效的非接触性氧气探测,速度快,精度高,抗干扰能力强,坚固耐用,充分显示出 TDLAS 技术的优点。不仅在工业环境可以使用 TDLAS 技术探测氧气,在其他领域同样可以发挥优势,文献^[28]指出,使用 DFB 激光光源用 TDLAS 技术对水果中的氧浓度进行测量,对优化水果储存也具有重要的意义。

3.2 VCSEL 结构半导体激光器

VCSEL 结构激光器具有单模输出,线宽窄,可调制范围大,光束质量高,工艺简单等优点,该结构探测器已走出实验室对 O_2 的测量,成功进入现场应用,并得到迅速发展。

V. Weldon^[12]和 Hans P. Zappe 等人^[17]较早的使用 VCSEL 激光器作为光源进行对 O_2 的探测,尽管该激光器光源具有上述优点,但是,其探测精度误差很大,20000 ~ 400 ppm 区域变化,该探测结果远低于 DFB 和 FP 结构激光器,因此限制了其应用。此后,P. Vogel 等人^[29]使用四个 VCSEL 激光器组成 2×2 阵列双光束配置和平衡探测技术,实现了 65 ppm 的探测精度,兼顾 VCSEL 结构固有的优势,该结果标示着 VCSEL 完全可以取代 DFB 结构,而实现低成本低能耗 O_2 探测。

VCSEL 激光器做光源,使用 TDLAS 技术也已实现复杂环境的氧探测。在特殊的燃烧场合,如国际空间站,对气体浓度和温度的定量测量要求非常精确,传统的氧探测方法在失重情况下无法工作,而激光二极管的光源系统则可以实现该环境下的测量,其中 VCSEL 结构由于电流可调制范围大,且能包括更多的吸收线,体积小,功耗低,而成为最佳选择^[30]。

气体的吸收线特征会随着外界温度,压强以及气体成分的变化而发生变化,这就要求气体探测器具备足够宽的波长调制范围并能对变化的谱线进行快速调制扫描,从这一点讲,VCSEL激光器比DFB激光器要优越。边发射结构(DFB或FP)激光器电流调制频率的范围小($<2\text{ cm}^{-1}$),使得其探测环境的压强局限于室温大气压或高温几个大气压情况下,更高压强下不能有效探测。J. Wang^[16]等人研究了高压(如工业燃烧,空气助推等)情况下的氧气探测,他们使用VCSEL激光器作为光源,该结构激光器突破了DFB激光器较低的电流调制频率范围,实现了 $>30\text{ cm}^{-1}$ 的调制,探测压强10.9 bar,探测精度达到800 ppm。

最近,德国西门子公司的Andreas Hangauer^[31]等人用VCSEL激光器作光源,运用TDLAS技术探测 O_2 浓度,研制出了性能良好的汽车排气管系统燃烧传感仪,其测试精度不受气体系统油污冷凝或管道中快速温度变化等影响,响应速度非常快,达到300 ms,仪器小巧结实,成本低廉,进一步证明了使用VCSEL激光器作为光源的TDLAS技术在恶劣环境中的测量优势。

V. Weldon等研究小组^[32-33]比较了VCSEL和DFB结构对相同条件下 O_2 探测的效果,发现VCSEL的缺点是输出功率较低,大约2 mW,这对于探测微弱信号和对光源有较大散耗的景况是不利的,电流-输出光功率的线性较差,探测灵敏度低于DFB结构,波长随电流调制变化幅度大,意味着该结构探测器需要配备超低噪音电流源,而且在电流调制工程中观察到了跳模现象。但是,VCSEL结构激光器具有潜在的竞争优势:工作电流阈值低,无需晶圆测试,制作成本低,优良的单纵模输出,输出光束发散角小,易于实现光纤耦合。相对于VCSEL结构激光器,DFB结构激光器存在的主要问题是由于边发射,所以出射光束具有较大的发散角,制作复杂,成本较高。

4 结束语

TDLAS技术发展迅速,但其应用的一个瓶颈是作为核心部件的激光器探测光源成本居高不下。近几年,随着VCSEL结构激光器的制作成本大大降低和商业化发展,这一矛盾得到缓解,TDLAS气体探测技术的成本大幅度降低,应用范围拓展到了日常的民用领域。目前,国内外普遍采用的TDLAS O_2 探测系统的核心部件——激光器,是GaAs/AlGaAs激光器,国内该类型激光器主要依靠购买国外产品

(每支需要几万元),因为激光器的材料和器件制备有难度,例如AlGaAs体系一直受到灾变性光学损伤(catastrophe optical damage, COD),二次生长中O的形成现象的困扰等,所以激光芯片技术和产品产业化的突破是我们急需解决的主要矛盾,这也正是发展我国自主知识产权的激光吸收光谱技术的挑战和机遇。

参考文献:

- [1] R Kocache. The measurement of oxygen on gas mixtures [J]. J. Phys. E: Sci. Instrum., 1986, 19(6): 401-412.
- [2] R M A Kocache, J Swan, D F Holman. A miniature rugged and accurate solid electrolyte oxygen sensor [J]. J. Phys. E Sci. Instrum., 1984, 17(6): 477-482.
- [3] P T Meriläinen. Sensors for oxygen analysis: paramagnetic, electrochemical, polarographic, and zirconium oxide technologies [J]. Biomed. Instrum. Technol., 1989, 23(6): 462-466.
- [4] J Roths, T Zenker, U Parchatka, et al. Four-laser airborne infrared spectrometer for atmospheric trace gas measurements [J]. Appl. Opt., 1996, 35(36): 7075-7084.
- [5] F D Amato, H P Mazzing, F Castagnoli. Methane analyzer based on TDL's for measurements in the lower stratosphere: design and laboratory tests [J]. Appl. Phys. B, 2002, 75(2-3): 195-202.
- [6] X Zhou, J B Jeffries, K H Ronald. Development of a fast temperature sensor for combustion gases using a single tunable diode laser [J]. J. Appl. Phys. B, 2005, 81: 711-722.
- [7] S Takigawa, M Kume, K Hamada, et al. Continuous room-temperature operation of a 759 nm AlGaAs distributed feedback laser [J]. Appl. Phys. Lett., 1987, 51: 1580-1581.
- [8] C P Louis, K H Ronald. Laser diode wavelength-modulation spectroscopy for simultaneous measurement of temperature, pressure, and velocity in shock-heated oxygen flows [J]. Appl. Opt., 1993, 32(30): 6090-6103.
- [9] D T Cassidy, D M Bruce, B F Ventrudo. Short-external-cavity module for enhanced single-mode tuning of InGaAsP and AlGaAs semiconductor diode lasers [J]. Rev. Sci. Instrum., 1991, 62(10): 2385-2388.
- [10] D M Bruce, D T Cassidy. Detection of oxygen using short external cavity GaAs semiconductor diode lasers [J]. Appl. Opt., 1990, 29(9): 1327-1332.
- [11] Q V Nguyen, R W Dibble. High-resolution oxygen absorption spectrum obtained with an external-cavity continuously tunable diode laser [J]. Opt. Lett., 1994, 19(24):

- 2134 – 2136.
- [12] V Weldon, P Phelan, J Hegarty. Methane and carbon dioxide sensing using a DFB laser diode operating at 1.64 μm [J]. *Electron. Lett.*, 1993, 29(6): 560 – 561.
- [13] C Corsi, M Gabrysch, M Inguscio. Detection of molecular oxygen at high temperature using a DFB-diode-laser at 761 nm [J]. *Opt. Comm.*, 1996, 128(1–3): 35 – 40.
- [14] V Weldon, J O’Gorman, J J Perez-Camacho, et al. Oxygen sensing using single-frequency DFB laser diodes at $\lambda = 761 \text{ nm}$ [J]. *Sensors and Actuators B*, 1997, 42(): 163 – 168.
- [15] R U Martinelli, R J Menna, P K York, et al. Tunable single-frequency III-V semiconductor diode lasers with wavelengths from 0.76 to 2.7 μm [C]//Alan Fried. *Application of Tunable Diode and Other Infrared Sources for Atmospheric Studies and Industrial Process Monitoring*: Proc. SPIE, Denver, CO, USA 1996, 2834: 2 – 16.
- [16] J Wang, S T Sanders, J B Jeffries, et al. Oxygen measurements at high pressures with vertical cavity surface-emitting lasers [J]. *Appl. Phys. B*, 2001, 72(7): 865 – 872.
- [17] H P Zappe, M Hess, M Moser, et al. Narrow-linewidth vertical-cavity surface-emitting lasers for oxygen detection [J]. *Appl. Opt.*, 2000, 39(15): 2475 – 2479.
- [18] V G Avetisov, P Kauranen. High-resolution absorption measurements by use of two-tone frequency-modulation spectroscopy with diode lasers [J]. *Appl. Opt.*, 1997, 36(18): 4043 – 4054.
- [19] H Riris, C B Carlisle, L W Carr, et al. Design of an open path near-infrared diode laser sensor: application to oxygen, water, and carbon dioxide vapor detection [J]. *Appl. Opt.*, 1994, 33(30): 7059 – 7066.
- [20] C E Wieman, L Hollberg. Using diode lasers for atomic physics [J]. *Rev. Sci. Instrum.*, 1991, 62(1): 1 – 19.
- [21] N A Morris, J C Connolly, J H Abeles. Single-mode distributed-feedback 761 nm GaAs-AlGaAs quantum-well laser [J]. *IEEE Photo. Tech. Lett.*, 1995, 7(5): 455 – 457.
- [22] V Ebert, K U Pleban, J Wolfrum. In-situ oxygen-monitoring using near-infrared diode lasers and wavelength modulation spectroscopy [C]//*Laser Applications to Chemical and Environmental Analysis*: OSA Technical Digest Series, Washington: Opt. Soc. Am, 1998: 206 – 209.
- [23] R Benedetti, K Giuliotti, M Rosa-clot. Line shape analysis of O in air as a way to measure temperature using a DFB-diode-laser at 761 nm [J]. *Opt. Commun.*, 1998, 154(1–3): 47 – 53.
- [24] Zhang Shuai, Dong Fengzhong, Zhang Zhirong, et al. Monitoring of oxygen concentration Based on tunable diode laser absorption spectroscopy [J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2009, 29(10): 2593 – 2596. (in Chinese)
张帅,董凤忠,张志荣,等.基于可调谐半导体激光吸收光谱的氧气测量方法的研究 [J]. *光谱学与光谱分析*, 2009, 29(10): 2593 – 2596.
- [25] Wang Jian, Huang Wei, Gu Haitao, et al. Gas temperature measurement with tunable diode laser absorption spectroscopy [J]. *Acta Optica Sinica*, 2007, 27(9): 1639 – 1642. (in Chinese)
王健,黄伟,顾海涛,等.可调谐二极管激光吸收光谱法测量气体温度 [J]. *光学学报*, 2007, 27(9): 1639 – 1642.
- [26] H E Schlosser, J Wolfrum, V Ebert. In situ determination of molecular oxygen concentrations in full-scale fire-suppression tests using tunable diode laser absorption spectroscopy [J]. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2002, 29(1): 353 – 360.
- [27] Andrew R Awtry, Brian T Fisher, Robert A Moffatt, et al. Simultaneous diode laser based in situ quantification of oxygen, carbon monoxide, water vapor, and liquid water in a dense water mist environment [J]. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2007, 31(1): 799 – 806.
- [28] L Persson, H Gao, M Sjöholm, et al. Diode laser absorption spectroscopy for studies of gas exchange in fruits [J]. *Optics and Lasers in Engineering*, 2006, 44(7): 687 – 698.
- [29] P Vogel, V Ebert. Near shot noise detection of oxygen in the A-band with vertical-cavity surface-emitting lasers [J]. *Appl. Phys. B*, 2001, 72(1): 127 – 135.
- [30] Joel A Silver, Daniel J Kane. Diode laser measurement of concentration and temperature in microgravity combustion [J]. *Meas. Sci. Technol.*, 1999, 10(10): 845 – 852.
- [31] A Hangauer, A Spitznas, J Chen, et al. Laser spectroscopic oxygen sensor for real time combustion optimization [J]. *Procedia Chemistry*, 2009, 1(1): 955 – 958.
- [32] V Weldon, J O’Gorman, J J Perez-camacho, et al. Oxygen sensing using single frequency GaAs-AlGaAs DFB laser diodes and VCSELs [J]. *Electron. Lett.*, 1996, 32(3): 219 – 221.
- [33] V Weldon, J O’Gorman, J J Perez-camacho, et al. Laser diode based oxygen sensing: a comparison of VCSEL and DFB laser diodes emitting in the 762 nm region [J]. *Infrared, Phys. Technol.*, 1997, 38(6): 325 – 329.