红外仿真系统短中波能量调节滤波器的研制

付秀华 陈志航* 张 静 熊仕富 范家晨

长春理工大学光电工程学院, 吉林 长春 130022

摘要 红外仿真作为一种新型仿真手段,以其仿真可信度高、重复性好、实验成本低等优点在军事领域得到越来越 广泛的应用。为满足红外仿真系统的要求,调节红外短、中波段能量的比例,对系统中的滤波器进行研制。选择 Ge 和 SiO 作为高低折射率材料,利用 Ge 在可见光和近红外的吸收特性,通过叠加膜堆展宽反射带,采用 TFCalc 软件的变度量(variable metric)法对双波段能量调节、超宽截止带滤波器进行优化设计。并针对不同材料的特性, 分别采用电子束蒸发和电阻蒸发技术,制备了相应的滤波器。通过逆向工程方法分析消光系数对透射率的影响, 解决了膜系透射率偏低的问题。制备的滤波器在 300~1900 nm 和 5500~7500 nm 波段透射率小于 1%,在 2000~2500 nm波段平均透射率为 90.6%,在 3700~4800 nm 波段平均透射率为 35.7%,满足该系统环境测试要求。 **关键词** 薄膜;滤波器;膜系设计;吸收;红外仿真

中图分类号 O484 文献标识码 A doi: 10.3788/CJL201643.0507001

Development of Short-Medium Wave Energy Regulation Filter in Infrared Simulation System

Fu Xiuhua Chen Zhihang Zhang Jing Xiong Shifu Fan Jiachen College of Opto-Electronic Engineering, Changchun University of Science and Technology, Changchun, Jilin 130022, China

Abstract As a new means of simulation, the infrared simulation is widely used in the military field for its high simulation credibility, good repeatability and low testing cost. To satisfy the requirements for infrared simulation system and to adjust the energy proportion of short-medium wave bands, we develop the filters. Using Ge and SiO as coating materials because of the absorption characteristic of Ge in the visible and near-infrared wave band, superimposing two film stacks to broaden the reflection band, we design and optimize a two-band energy regulation and wide band cut filter by using variable metric method of TFCalc software. According to the characteristics of different materials, we make the corresponding filter by using electron beam evaporation and resistance deposition techniques. By using reverse engineering method, we analyze the effect of extinction coefficient on transmittance and solve the problem of low transmittance. Transmittance of the filter is less than 1% at 300 nm to 1900 nm and 5500 nm to 7500 nm, 90.6% at 2000 nm to 2500 nm, and 35.7% at 3700 nm to 4800 nm, which meets environmental testing requirements of the simulation system.

Key words thin films; filter; film system design; absorption; infrared simulation OCIS codes 310.4165; 310.6860; 310.3915; 300.6340

1 引 言

目前,红外仿真技术的发展使红外制导系统的设计、验证、优化变得更加方便。红外制导仿真系统是指 通过光学系统提供目标和背景的红外辐射环境,供被测系统进行探测和识别,减少外场实验的次数,能够大 大缩短红外制导系统的研制时间和费用。

* 通信联系人。E-mail: czhbetter@126.com

收稿日期: 2015-10-12; 收到修改稿日期: 2016-01-16

基金项目: 吉林省重大科技攻关专项(20140203002GX)

作者简介:付秀华(1963-),女,博士,教授,主要从事光学薄膜方面的研究。E-mail: goptics@126.com

在实际应用中,红外制导系统不仅要克服背景噪声的影响,还要面临飞行器释放的红外干扰弹的干扰。而 双色成像制导系统可以有效克服红外干扰弹的影响,通常采用双色比来描述红外制导系统的抗干扰特性,其原 理是利用目标和干扰弹在中波红外和短波红外2个波段的积分能量比值的不同来区分目标和干扰弹^[1]。由目 标和干扰弹的辐射特性可知,目标的短中波双色比一般小于1.0,干扰弹的双色比一般大于1.0^[2]。

对于干扰弹来说,压制比是干扰弹与被保护飞机之间的辐射强度比值^[3],要实现较大的压制比,必须要 使干扰弹的温度远远大于尾焰的温度。以美军的 F16 为例,其尾喷等效温度不超过 900 K,而干扰弹的等效 温度可达 2000~2300 K。在实验室中模拟如此高温是不现实的,只有采用相对模拟的方式,即只模拟短、中 波能量比,而不去模拟绝对的短、中波能量值^[4]。国内外对各种滤波器进行了多方面的研究,但对能够在短、 中波双波段调节能量,且在工作波段两边具有超宽截止带的滤波器的研究还未见报道^[5-8]。

为模拟仿真干扰弹的光谱特性,本文所研究的滤波器需对碘钨灯光源在可见光、近红外、中波红外进行 光谱特性模拟,重点解决不同波段光谱的特性需求,使滤波器生成的短中波积分能量比达到仿真的要求。

2 膜系设计

滤波器的技术要求如表 1 所示,入射角为 0°,且在 2000~2500 nm 短波红外区与 3700~4800 nm 的中 波红外区的积分能量比要求大于 1.0。

Table 1	Spectral design parameters of filter	
Wavelength /nm	Transmittance	
300~1900	$\leqslant 1\%$	
$2000 \sim 2500$	$91\% \pm 1\%$	
3700~4800	$36\% \pm 1\%$	
$5500 \sim 7500$	$\leqslant 1\%$	

表 1 滤波器光谱设计参数

由以上参数可知,滤波器既要满足中短波能量调节的要求,又要具有极宽的抑制带,仅仅依靠一个滤光 片是难以实现的。经过分析,采用2片滤光片组合实现,第1片作为能量调节滤光片,在2000~2500 nm 波 段透射率为93%,3700~4800 nm 波段透射率为37%;第2片作为宽带通滤光片,在2000~5000 nm 波段透 射率为98%,1250~1900 nm 和5500~7500 nm 波段透射率小于1%,可见光及近红外波段的抑制通过材料 的吸收来实现。

2.1 基底及镀膜材料的研究

选取合适的基底和镀膜材料可以降低设计和制备的难度。针对上述技术指标,满足波段要求的红外基 底材料有单晶 CaF₂ 与多光谱 ZnS,但是多光谱 ZnS 质地较软、折射率较高、透射率较低(约为 70%),要在短 波红外波段实现较高的透射率需双面镀膜。而单晶 CaF₂ 在红外波段透射率较高(约为 94%),单面镀膜即 可满足要求,其物理化学性质稳定且热膨胀系数低,故基底选择 CaF₂。

镀膜材料的选择主要考虑其透明区、吸收区、膜层间以及膜层与基底间的匹配^[9]。高折射率的红外材料 可选择的有 Ge 和 Si。Si 的透明区为 1~9 μm,Ge 的透明区为 1.7~23 μm,但 Ge 的折射率较高且机械性能 好,在可见光及近红外波段有较强的吸收,有利于实现宽抑制带的要求。低折射率材料可选择的有 MgF₂ 与 SiO。SiO 薄膜表现为压应力,Ge 膜表现为张应力,交替镀制 Ge 膜和 SiO 膜可有效减弱应力。但 MgF₂ 薄 膜表现很高的张应力,且 MgF₂ 在沉积过程中容易产生喷点,MgF₂ 薄膜比 SiO 薄膜更容易破裂,故选择 SiO 作为低折射率材料。

2.1.1 材料折射率的计算

对于光学薄膜而言,同一材料在不同基底温度、真空度、蒸发速率等工艺条件下的光学常数也不相同,不同波长对应的折射率呈色散分布。因此,在膜系设计之前要先确定材料的折射率。一定的工艺条件下,在厚度为2 mm的 CaF₂ 基底上分别镀制一定厚度的 Ge 与 SiO,并用红外光谱仪测试其透射率,利用 Cauthy 公式进行曲线拟合得到材料不同波长的折射率,其数学表达式为

$$n(\lambda) = A + \frac{B}{\lambda^2} + \frac{C}{\lambda^4},\tag{1}$$

式中 A、B、C 为拟合参量, A 为波长。Ge 和 SiO 的折射率色散分布曲线分别如图 1(a)和图 1(b)所示。





2.1.2 材料的吸收特性

利用材料的吸收特性,可以简化膜系结构,展宽抑制带。据所查资料可知,Ge的透明区为 1.7~23 μm, 在可见光与近红外区域对光波能量具有良好的吸收能力。厚度大于 2 mm 的 Ge 片在 1700 nm 处,往短波 方向吸收系数开始呈指数规律迅速增长,在 1500 nm 处能量完全截止^[10]。但是,实际上 Ge 作为薄膜材料当 厚度为 500 nm 时,其透射率曲线如图 2 所示。从图 2 中可看出,波长 880 nm 之前由于材料吸收完全被抑 制。同时,增加 Ge 膜的厚度可在更宽波段实现抑制。





Fig. 2 Testing transmittance spectral curve of substrate coated with 500 nm Ge

2.2 能量调节膜系设计方案

为提高仿真系统对实际背景模拟的相似度,该能量调节片要满足短中波的积分能量比大于1.0。由光学 薄膜设计理论知,单层薄膜的特征矩阵为

$$\boldsymbol{M} = \begin{bmatrix} \cos \delta & \frac{\mathrm{i}}{\eta} \sin \delta \\ \mathrm{i}\eta \sin \delta & \cos \delta \end{bmatrix},\tag{2}$$

式中 η 为介质的光学导纳, δ 为相位。对于层数为 $k(k = 1, 2, 3, \dots)$ 的多层膜,膜系与基底组合的特征矩阵为

$$\begin{bmatrix} B\\ C \end{bmatrix} = \left\{ \prod_{j=1}^{k} \begin{bmatrix} \cos \delta_{j} & \frac{i}{\eta_{j}} \sin \delta_{j} \\ i\eta_{j} \sin \delta_{j} & \cos \delta_{j} \end{bmatrix} \right\} \begin{bmatrix} 1\\ n_{s} \end{bmatrix},$$
(3)

式中B、C为其矩阵单元, η。为基底折射率, 膜系与基底的组合导纳为

$$Y = C/B, \qquad (4)$$

膜系的反射率为

$$R = \left(\frac{\eta_s - Y}{\eta_s + Y}\right),\tag{5}$$

如果不考虑材料吸收,则膜系透射率为

$$T = 1 - R$$
 .

(6)

通过上述公式就可以计算任意膜系的透射率和反射率。

从技术要求可知,要满足短中波的积分能量比,需要利用膜系设计软件对初始膜系进行优化设计。首先 以反射膜系 S|(HL)^{*}H|A 为初始膜系,再利用 TFCalc 软件中基于微分算法的变度量(variable metric)优化 方法,经过多次优化,膜系为 S|0.5H3.6L1.5H1.9L…1.0L5.8H2.5L0.5H|A,共 11 层,物理厚度为1592 nm, Ge 膜总厚度为 652.7 nm。其中 S 为 CaF₂ 基底,A 为入射介质空气,H 和 L 分别表示 1/4 波长光学厚度的 Ge 和 SiO。因为 SiO 不稳定,在空气中会氧化成 SiO₂,而 Ge 的化学性质稳定,机械性能好,所以膜系选择 Ge 作为最外层。理论透射光谱曲线如图 3 所示。从图 3 中可以看出,2000~2500 nm 波段平均透射率为 93%,3700~4800 nm 波段平均透射率为 37%。





Fig. 3 Theoretical transmission spectral curve

2.3 宽带通滤光片设计方案

为减少其他波段杂散光的影响,提高仿真系统的信噪比,还需设计一个带通滤光片^[11]。通常可由长波 通滤光膜和短波通滤光膜分别镀制在基底的前后表面得到。

2.3.1 前表面膜系设计

通过测量上述能量调节滤光片在 300~1900 nm 和 5500~7500 nm 波长的透射率,得到其透射光谱曲 线如图 4 所示。





从图 4(a)知,光谱在 300~1250 nm 波段已实现完全抑制。但在 1250~1900 nm 波段仍有能量透过,需要进行抑制。故设计一长波通膜系,反射带波长设为 1250~1900 nm,透射波长为 2000~5000 nm。其基础 膜系为 S|(0.5HL0.5H)^s|A,但是单个膜堆的反射带宽有限,所以需要通过叠加 2 个不同参考波长的长波通 膜堆以展宽反射带^[12]。所以设定初始膜堆为 S|(0.5HL0.5H)¹² 1.3(0.5HL0.5H)¹² |A,中心波长为 1075 nm。采用 TFCalc 软件进行优化设计,经多次优化后的膜系为 S|3L0.9H0.7L3.2H…3.4H0.3L1.5H| A,共42 层,物理厚度为 6136 nm,理论设计光谱曲线如图 5(a)所示。从图 5(a)中可以看出,1250~1900 nm 波段平均透射率为 99%。



图 5 前、后表面理论透射光谱曲线。(a) 前表面;(b) 后表面

Fig. 5 Theoretical transmission spectral curves of the front and back surfaces. (a) Front surface; (b) back surface

2.3.2 后表面膜系设计

从图 4(b)可以看出,能量调节滤光片在 5500~7500 nm 波段能量透过较多,所以需要对该波段进行抑制。故设计一短波通膜系,该膜系在 2000~5000 nm 的红外中短波高透过,在 5500~7500 nm 波段截止。 其初始膜系为 S|(0.5LH0.5L)*|A,依据等效折射率理论,在初始膜系两侧添加匹配层以使多层膜的等效折 射率和基底匹配,从而减少通带内的波纹^[13]。经过优化设计后,膜系为 S|2.3L0.7H0.5L4.4H…3H0.3L 1.0H|A,共 30 层,物理厚度为 6341 nm。理论设计透射光谱曲线如图 5(b)所示,从图中可以看出,2000~ 5000 nm 波段平均透射率为 99%,5500~7500 nm 波段平均透射率为 0.8%。

把前后表面膜系导入 TFCalc 软件中,该宽带通滤光片的理论透射光谱曲线如图 6 所示。从图 6 中可以 看出,在通带 2000~5000 nm 波段,透射率为 98%,1250~1900 nm 和 5500~7500 nm 波段透射率分别为 0.5%和 0.6%。



图 6 双面透射光谱曲线

Fig. 6 Spectral curve of double-sided transmission

3 薄膜的制备

该能量调节滤光片和宽带通滤光片是在 TXX-900 型真空镀膜机上制备完成的,该设备配备有 IC/5 石 英晶体膜厚控制仪、考夫曼离子源和双电子枪。由于 SiO 极易氧化,所以离子源气体选用氩气,具体镀制的 工艺参数如表 2 所示。

	表 2 工艺参数
Fable 2	Technological parameters

	Deposition rate /(nm/s)	Substrate temperature / $^{\circ}$ C	Vacuum /(10^{-2} Pa)	Flow rate of Ar /(mL/min)*
Ge	0.3	200	1.5	25
SiO	0.5		1.5	25

* : under standard temperature and pressure

实验前,需用热的稀 NaOH 溶液对膜料 Ge 进行去油污处理,并用稀硝酸中和,最后用去离子水冲洗干净;并用体积比为1:1的无水乙醚和无水酒精混合液擦拭基片,镀制前用离子源轰击基片 10 min,以去除基片上残留的抛光粉和灰尘;镀制过程中采用电子束加热方法蒸镀 Ge,采用电阻加热方法蒸镀 SiO,由于膜

系较厚,采用离子束辅助沉积技术,以提高膜层致密性,离子源参数如表3所示。镀制完成后,阶梯式降温至 80 ℃以下取出基片。

Table 3 Parameters of ion source	
Parameter	Value
Plate voltage /V	415
Acceleration voltage /V	275
Anode voltage /V	50
Neutral current /A	$13 \sim 15$
Cathodic current /A	15
Ion beam current /mA	50

表 3 离子源参数

4 测试结果与分析

4.1 光谱性能测试与分析

用岛津 UV-3150 分光光度计和岛津 Varian-660-IR 傅里叶红外光谱仪分别对 300~1500 nm 和 1500~7500 nm 波段进行光谱特性测试,得到该滤光片在 300~7500 nm 的透射率曲线,如图 7 所示,短波段透射率 与理论存在较大偏差。

在 300~1250 nm 波段,平均透射率小于 1%;2000~2500 nm 波段处平均透射率为 90.9%,比理论设计 透射率低 2.1%。对于弱吸收薄膜^[14],虽然在其透明区的吸收不大,但当膜系较厚时,吸收的影响不可忽略, 故实际曲线的透射率比设计低。通过 TFCalc 软件的逆向分析功能对 Ge 的消光系数进行计算,模拟出当 Ge 的消光系数 k 分别为 0.005 和 0.01 时,能量调节滤光片在 2000~2500 nm 波段处平均透射率分别下降 2 % 和5%,如图8所示。经过与实际测试曲线相比较,逆向分析出Ge在此波段的消光系数为0.005,代入



图 7 能量调节滤光片透射光谱测试曲线图









图 8 Ge 的消光系数对透射率的影响 Fig. 8 Effect of extinction coefficient of Ge on transmittance



膜系设计软件,再进行优化改进,最终得到新膜系 S|0.52H3.64L1.5H1.9L…0.94L5.9H2.57L0.46H|A,物理 厚度为 1609 nm。采取此方法,在另外 2 种膜系的设计中都考虑消光系数,生成的新膜系分别为 S|2.84L 0.87H0.67L3.04H…2.58H0.49L1.45H|A 和 S|2.33L0.67H0.55L4.43H…3.07H0.3L1.1H|A。经过多次实 验,能量调节滤光片与宽带通滤光片的前、后表面的测试结果如图 9、10、11 所示。

双面镀膜后,基片的透射光谱曲线测试结果如图 12 所示,通带平均透射率为 97.8%,抑制带透射率小于 1%。将 2 个滤光片组合放入光谱仪内,测得其透射光谱曲线如图 13 所示。









Fig. 12 Testing spectral curve of double-sided transmission



图 13 能量调节滤光片与带通滤光片组合透射光谱测试曲线

Fig. 13 Testing transmittance spectral curve of combination of energy regulation filter and band-pass filter

由测试结果可知,该滤波器在 300~1900 nm 波段与 5500~7500 nm 波段透射率小于 1%,在 2000~2500 nm 短波段与 3700~4800 nm 中波段平均透射率分别为 90.6%和 35.7%,满足系统需要。镀膜后能量调节滤光片和宽带通滤光片如图 14 所示。



图 14 (a)镀膜后的能量调节滤光片和(b)宽带通滤光片 Fig. 14 (a) Coated energy regulation filter and (b) bandpass filter

4.2 短、中波积分能量比的计算

利用 Matlab 数学软件,调用基于梯形法计算定积分值的 trapz 函数,建立短中波积分能量比计算模型,把透射率数据导入其中,计算得到该滤波器系统的短、中波积分能量比为 1.20,满足系统要求。

4.3 环境测试

1)附着力测试:利用粘性强度大于 3 N/cm²、宽 2 cm 的高温胶带,平整无气泡地紧贴膜层,然后沿薄膜 表面垂直方向迅速拉起,重复 10 次,未产生脱膜现象。

2)温度测试:将样品放入高温箱,从室温升到 60 ℃,保持 12 h。再将样品放入低温箱,从室温降到 -50 ℃,保持 12 h,膜层无龟裂现象,取出后测得透射光谱曲线如图 15、16 所示,光谱漂移量小于 2 nm,满 足温度测试要求。









3)湿度测试:将样品放在相对湿度 95%、温度 55 ℃的环境中,放置 24 h,膜层无脱落、皱裂现象。取出 后测得透射光谱曲线如图 17、18 所示,光谱向长波漂移 5 nm,膜层致密度较好,可以满足使用要求。



图 17 能量调节滤光片湿度测试透射光谱曲线 Fig. 17 Humidity testing transmission spectral curve of energy regulation filter



图 18 宽带通滤光片湿度测试透射光谱曲线 Fig. 18 Humidity testing transmission spectral curve

of bandpass filter

5 结 论

短中波能量调节滤波器具有双波段调节能量、超宽截止带的特点,比普通的红外滤光片在膜系设计和制备上具有更大的难度。通过选取高低折射率材料 Ge 和 SiO,利用 TFCalc 膜系设计软件进行设计和分析,合理衔接材料吸收截止带和薄膜干涉截止带,减少膜系优化难度,减小了膜系厚度,降低了制备难度;考虑消光系数对透射率的影响,解决了材料吸收带来的透射率降低问题。并针对不同材料的特性,分别采用电子束蒸发和电阻蒸发技术,使制备的滤波器满足红外仿真系统的需要。但是实验结果与理论设计还有一定差距,所以寻找新材料和新工艺、进一步提高膜系设计方法是以后的研究方向。

参考文献

- Li Xue, Chen Yong, Jia Mingyong. The target recognition technology for multi-element dual-band IR seeker[J]. Infrared Technology, 2013, 35(6): 373-376.
 - 李 雪, 陈 勇, 贾明永. 多元红外双色导引头目标识别技术研究[J]. 红外技术, 2013, 35(6): 373-376.

2 Li Lijuan, Huang Shike, Chen Baoguo. Dual band IR imaging counter-countermeasures technology[J]. Laser & Infrared, 2006, 36(2): 141-143.

李丽娟,黄士科,陈宝国.双色红外成像抗干扰技术[J].激光与红外,2006,36(2):141-143.

3 Li Chenghua. Research on assessment technology of jamming effectiveness for helicopter-borne IR countermeasures system[D]. Xi'an: Northwestern Polytechnical University, 2007: 22.

李程华. 直升机载红外对抗系统干扰效果评估技术研究[D]. 西安: 西北工业大学, 2007: 22.

4 Gao Hui, Zhao Songqing. Exploration of applications of IR image simulator[J]. Infrared Technology, 2014, 36(5): 409-414.

高 辉, 赵松庆. 红外成像目标模拟器的应用探索[J]. 红外技术, 2014, 36(5): 409-414.

- 5 Pan Yongqiang, Zhu Chang, Hang Lingxia, et al.. Double waveband(3~5 μm and 8~12 μm) high performance infrared anti-reflection coatings on germanium substrate[J]. Laser & Infrared, 2004, 34(5): 372-374.
- 6 Geng Siyu, Fu Xiuhua, Tan Zhi, et al. Design and manufacture of day-and-night double sensitive infrared filter film[J]. Acta Optica Sinica, 2010, 30(3): 903-906.

耿似玉, 付秀华, 谭 志, 等. 双通感红外日夜两用型滤光膜的研制[J]. 光学学报, 2010, 30(3): 903-906.

7 Shi Peng, Fu Xiuhua, Sun Yan. Design and fabrication of double wavelength laser protective infrared antireflection coatings[J]. Chinese J Lasers, 2011, 38(4): 0407003.

石 澎, 付秀华, 孙 岩. 双波段激光防护红外减反膜的研制[J]. 中国激光, 2011, 38(4): 0407003.

8 Fu Xiuhua, Wang Gang, Liu Dongmei, et al.. Research and preparation of the visible and infrared control and guide system filters[J]. Chinese J Lasers, 2013, 40(1): 0107001.

付秀华,王 刚,刘冬梅,等.可见与红外制导系统高通滤光片的研制[J].中国激光,2013,40(1):0107001.

- 9 Yang Yongliang, Fu Xiuhua, Liu Guojun, *et al.*. Study and fabrication of multi-wavelength laser antireflection film using new mixed material[J]. Chinese J Lasers, 2011, 38(10): 1007002.
 杨永亮,付秀华,刘国军,等.采用新型混合材料的多波长激光减反射膜的研制[J]. 中国激光, 2011, 38(10): 1007002.
- 10 Yu Huaizhi. Infrared optical materials[M]. Beijing: National Defense Industry Press, 2007: 52-55. 余怀之. 红外光学材料[M]. 北京:国防工业出版社, 2007: 52-55.
- 11 Fu Xiuhua, Zhang Yushuai, Kou Yang, et al.. Study and fabrication of multi-channel filter film in free-space laser communication system[J]. Chinese J Lasers, 2015, 42(4): 0407001.

付秀华,张于帅,寇 洋,等.自由空间激光通信系统中多通道滤光膜的研制[J].中国激光,2015,42(4):0407001.

12 Tang Jinfa, Gu Peifu, Liu Xu, et al. Modern optical thin film technology[M]. Hangzhou: Zhejiang University Press, 2006: 140-141.

唐晋发,顾培夫,刘 旭,等.现代光学薄膜技术[M].杭州:浙江大学出版社,2006:140-141.

13 Hong Dongmei, Yue Wei. Research of optical films for middle infrared lasers[J]. Laser & Infrared, 2006, 36(12): 1157-1159.

洪冬梅,岳 威.中红外激光器光学薄膜的研制[J].激光与红外,2006,36(12):1157-1159.

14 Gu Peifu, Chen Haixing, Zheng Zhenrong, et al.. Determination of the extinction coefficient of a weakly absorbing multilayer system[J]. Acta Physica Sinica, 2005, 54(8): 3722-3725.

顾培夫,陈海星,郑臻荣,等.弱吸收多层薄膜消光系数的反演[J].物理学报,2005,54(8):3722-3725.