

## 脉冲直流溅射 Zr 薄膜的微结构和应力研究

朱京涛<sup>1,2</sup>, 郭胜<sup>1,2</sup>, 赵娇玲<sup>2,3\*</sup>, 张嘉怡<sup>1,2</sup>, 朱航宇<sup>1,2</sup>, 邵建达<sup>2,3,4</sup><sup>1</sup> 同济大学物理科学与工程学院, 上海 200092;<sup>2</sup> 中国科学院上海光学精密机械研究所薄膜光学实验室, 上海 201800;<sup>3</sup> 中国科学院上海光学精密机械研究所强激光材料重点实验室, 上海 201800;<sup>4</sup> 国科大杭州高等研究院, 浙江 杭州 310024

**摘要** 薄膜沉积是滤片制备过程中的核心环节, 优化薄膜沉积工艺对于提高薄膜滤片的稳定性具有重要意义。本课题组采用脉冲直流磁控溅射工艺在不同氩气工作压强(0.05~1.0 Pa)下制备 Zr 薄膜, 利用 Zygo 干涉仪测试薄膜的面形, 计算得出薄膜应力, 并通过 X 射线衍射仪和原子力显微镜表征了薄膜的微结构变化。研究发现: 在大于 0.1 Pa 工作压强下制备的 Zr 薄膜表现为压应力, 随着工作压强减小, 压应力缓慢减小, 并在 0.05 Pa 时表现为张应力; 通过对物相结构和表面粗糙度的变化规律进行详细分析, 进一步解释了张应力的产生机制。结果表明, 金属材料塑性流动导致的微结构变化是张应力的主要成因。本研究为制备低应力自支撑 Zr 滤片提供了镀膜工艺优化的途径, 在极紫外光刻、同步辐射、空间探测等领域有重要的应用价值。

**关键词** 薄膜; 极紫外; 磁控溅射; 应力

中图分类号 O484 文献标志码 A

doi: 10.3788/AOS202141.1831001

## Microstructure and Stress of Zr Thin Film Deposited by Pulsed DC Sputtering

Zhu Jingtao<sup>1,2</sup>, Guo Sheng<sup>1,2</sup>, Zhao Jiaoling<sup>2,3\*</sup>, Zhang Jiayi<sup>1,2</sup>,  
Zhu Hangyu<sup>1,2</sup>, Shao Jianda<sup>2,3,4</sup><sup>1</sup> School of Physics Science and Engineering, Tongji University, Shanghai 200092, China;<sup>2</sup> Laboratory of Thin Film Optics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;<sup>3</sup> Key Laboratory of Materials for High Power Laser, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;<sup>4</sup> Hangzhou Institute for Advanced Study, University of Chinese Academy of Sciences, Hangzhou, Zhejiang 310024, China

**Abstract** Thin film deposition is the core in the filter preparation process and its optimization is of great significance for the stability improvement of thin film filters. In this paper, a Zr thin film was deposited by pulsed direct current (DC) magnetron sputtering at different working pressures (0.05–1.0 Pa) of Ar. The surface of the thin film was measured by a Zygo interferometer and then the film stress was calculated. The microstructure changes of the thin film were characterized by an X-ray diffractometer and an atomic force microscope. The results show that the Zr thin film exhibits compressive stress when the working pressure is higher than 0.1 Pa, and the stress decreases slowly with the decrease in working pressure. Furthermore, when the pressure is 0.05 Pa, the film exhibits tensile

收稿日期: 2021-03-12; 修回日期: 2021-04-01; 录用日期: 2021-04-07

基金项目: 国家自然科学基金(11875204)、NSAF 联合基金(U1930119)、大科学装置联合基金(U1932167, 11705259)、中国科学院青年创新促进会人才项目(2020253)

通信作者: \*jolin923@siom.ac.cn

stress. The variations in the phase structures and surface roughness are analyzed to further explain the generation mechanism for tensile stress. The results show that the main reason for the tensile stress forming is the microstructure change caused by plastic flow in the metal. Our study optimizes the deposition process in the preparation of low-stress and self-supporting Zr filters and has significant application value in extreme ultraviolet lithography, synchrotron radiation, and astronomical observation.

**Key words** thin film; extreme ultraviolet; magnetron sputtering; stress

**OCIS codes** 310.3840; 310.3915; 310.4925

## 1 引言

极紫外(EUV)波段通常是指波长在几十纳米到十分之几纳米之间的波段,该波段在极紫外光刻、同步辐射、空间探测、等离子体诊断等领域<sup>[1-6]</sup>有着至关重要的作用。基于激光等离子体(LPP)光源的极紫外光刻机反射式光学系统需要一个或多个滤片,以减少紫外线、可见光和红外光中的带外辐射,保护部分光学器件免受液锡碎片、晶片上抗蚀剂和泄漏气体等的影响,同时滤片还可以隔绝对 EUV 存在吸收的气体<sup>[7-8]</sup>。另一方面,在高次谐波应用中,滤片也起着至关重要的作用,可以去除残留的泵浦辐射以及对测量有害的不必要的谐波<sup>[9]</sup>。

滤片的制备流程主要包括选材、镀膜和镀膜。金属锆(Zr)材料在 6.85 nm(181.1 eV)处存在吸收边,在 13.5 nm 波段具有较高的透过率,同时对紫外和可见光波段抑制。极紫外光刻光学系统要求滤片在 13.5 nm 处的透射率大于 10%。降低膜厚可以提高滤片的透过率,但是滤片越薄,受生长条件的影响就越大,薄膜内应力和微结构生长问题带来的表面褶皱、针孔和颗粒等会严重影响滤片的稳定性。为减少基底对 EUV 光源的吸收,滤片通常采用自支撑形式。先在基底上制备 Zr 薄膜,随后经过滤片制备工艺中的镀膜流程使 Zr 薄膜与基底分离,即可形成自支撑结构滤片。滤片在镀膜过程中易受应力破坏出现褶皱、破裂而失效<sup>[10]</sup>。研究各溅射工艺参数对薄膜应力的影响,以减小薄膜中的应力,对于提高薄膜滤片的稳定性具有重要意义。

磁控溅射法制备的薄膜比较致密,适合制作纳米厚度的薄膜器件<sup>[11]</sup>。沉积过程中的相转变以及相转变前后的温度变化使整个薄膜几乎都处于某种应力状态之中<sup>[12]</sup>。由于到达基底的高能粒子的轰击作用,磁控溅射制备的金属薄膜的应力通常表现为压应力<sup>[13-14]</sup>。Window 等<sup>[15]</sup>研究了离子束辅助沉积 Mo、Zr 单层膜的应力变化趋势,结果表明:通过施加辅助偏压,增加氩离子轰击能量,薄膜中的应力缓慢增大,同时存在应变屈服点;在高辅助偏压

下,薄膜中的应力降低。曹鸿等<sup>[16]</sup>研究了磁控溅射沉积 Zr 薄膜在高溅射气压下的应力分布情况,结果发现,在 1.0 Pa 溅射气压以上,随着氩离子浓度增加,到达基片的 Zr 原子能量减少,Zr 膜呈现压应力状态,并且压应力随着溅射气压的增大而缓慢减小。目前,关于脉冲直流溅射氩气工作压强导致 Zr 薄膜应力变化的原因以及改变压强对 Zr 薄膜微结构影响的研究较少。

为了探索提高自支撑 Zr 滤片稳定性和机械强度的前期镀膜工艺,分析薄膜中应力的演化机制,探索获得低应力滤片的 Zr 薄膜溅射工艺,本课题组采用脉冲直流磁控溅射技术在不同溅射气压下沉积了 Zr 薄膜。进一步,本课题组利用白光干涉仪检测了 Zr 薄膜中的应力变化,采用原子力显微镜测量了薄膜的表面粗糙度;之后结合 X 射线衍射结果分析了应力和表面粗糙度变化的趋势,最后讨论了 Zr 薄膜微观结构对薄膜中应力的影响。

## 2 实验内容

### 2.1 薄膜制备

采用脉冲直流磁控溅射掠靶模式沉积 Zr 金属薄膜,镀膜本底真空度优于  $8 \times 10^{-5}$  Pa,溅射功率为 250 W,通过改变氩气流量来调节溅射气压,使溅射气压分别维持在 0.05, 0.1, 0.2, 0.3, 0.6, 1.0, 1.5, 2.0 Pa。在石英基片(JGS1)和硅基片(Si)上制备厚度为 500 nm 的 Zr 薄膜。为满足 Zygo 干涉仪测试面形变化从而计算应力的实验要求,本文测试应力采用的基片是 JGS1,并采用直径为 50 mm、厚度为 5 mm 的标准面形片。用于薄膜微结构测试(物相和表面粗糙度测试)的是常规实验用基片,其直径为 30 mm,厚度为 3 mm。

### 2.2 薄膜微结构测试

薄膜微结构测试包括物相和表面粗糙度测试。薄膜物相测试采用荷兰 PANalytical 公司的 X 射线衍射仪(XRD),衍射仪由 Cu 靶发出经单色器准直的 0.154 nm X 射线光源,选择  $20^\circ \sim 80^\circ$  范围以掠入射  $2\theta$  模式进行扫描。采用 Dimension-3100Veeco 原子

力显微镜(AFM)以轻敲模式进行表面形貌测试(扫描范围为  $5\ \mu\text{m} \times 5\ \mu\text{m}$ ),采集样品表面形貌数据时,探针与表面原子的相互作用力被转化为电信号;将采集的样品表面形貌数据代入功率谱密度公式进行计算就可以得到样品的均方根(RMS)粗糙度数值。

### 2.3 薄膜应力检测

在薄膜沉积过程中,薄膜中的应力导致的晶格应变会使基底发生形变,形变在压应力下表现为薄膜凸起,在张应力下表现为薄膜凹陷。应力测量方法基于测量原理可以分为两种:一种是测量镀膜前后基底曲率半径等宏观形变量,然后利用 Stoney 公式<sup>[17]</sup>进行薄膜应力的计算;另一种是利用 X 射线衍射技术对薄膜中的晶格应变进行测量,进而得到薄膜应力。本文采用第一种方法,首先利用 Zygo 干涉仪测量镀膜前后样品表面的弯曲程度,用 Power 值表示<sup>[17]</sup>,Power 值定义为曲面中心点到拟合球面相应点的距离,如图 1 所示。

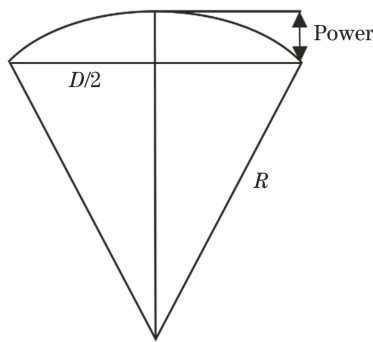


图 1 Power 值与曲率半径示意图

Fig. 1 Schematic of Power and radius of curvature

利用 Power 值变化可以推导得到镀膜前后的曲率半径。Power 值与曲率半径  $R$  的关系为

$$(R - P)^2 + \frac{D^2}{4} = R^2, \quad (1)$$

式中:  $P$  为 Power 值;  $D$  为基片直径;  $R$  为曲率半

径。Stoney 公式为

$$\sigma = \frac{E_s t_s^2}{6(1 - \nu_s) t_f} \left( \frac{1}{R_{\text{post}}} - \frac{1}{R_{\text{pre}}} \right), \quad (2)$$

式中:  $\sigma$  为薄膜应力值;  $R_{\text{post}}$  和  $R_{\text{pre}}$  分别为镀膜后和镀膜前基底表面的曲率半径;  $E_s$  为杨氏模量;  $\nu_s$  为泊松比;  $t_s$  和  $t_f$  分别代表基底厚度和薄膜厚度。将(1)式代入(2)式可得

$$\sigma = \frac{E_s t_s^2}{6(1 - \nu_s) t_f} \frac{8\Delta P}{D^2}, \quad (3)$$

式中:  $\Delta P$  为镀膜前后的表面弯曲程度(Power 值)之差。

## 3 结果分析与讨论

### 3.1 薄膜物相变化

分别对硅基底和 JGS1 石英基底上制备的 Zr 薄膜进行物相测试。不同溅射气压下 Zr 薄膜的物相测试结果如图 2 所示。在石英和硅两种基底上生长的 Zr 薄膜在主要衍射峰变化趋势上无明显差异,硅基底上的 Zr 薄膜仅在  $51^\circ$  处存在(103)晶面(未在图中显示出)。对照 Zr 元素的 PDF 卡片可知,(002)、(101)、(100)晶面的衍射峰强度较高,且随溅射气压变化的趋势比较明显。晶粒尺寸经 Scherrer 公式计算后可知无明显变化。当溅射气压低于 0.1 Pa 时, Zr 薄膜沿(002)择优生长;增大溅射气压后, Zr 薄膜在(002)和(101)两个生长方向上竞争,使得薄膜的表面粗糙度呈现随着溅射气压增加而增大的趋势。图 3 更加直观地反映了三个晶面的衍射峰强度随溅射气压的变化趋势。衍射峰强度变化呈现两个阶段:第一阶段为 0~0.5 Pa 气压范围,(002)峰随着溅射气压的增大而逐渐降低,随着(002)晶面被抑制出现了(101)和(100)择优取向;第二阶段为 0.5~2.0 Pa 气压范围,(002)和(101)晶面同时被抑制,(100)晶面的衍射峰强度逐渐增大,但相对强度较弱。

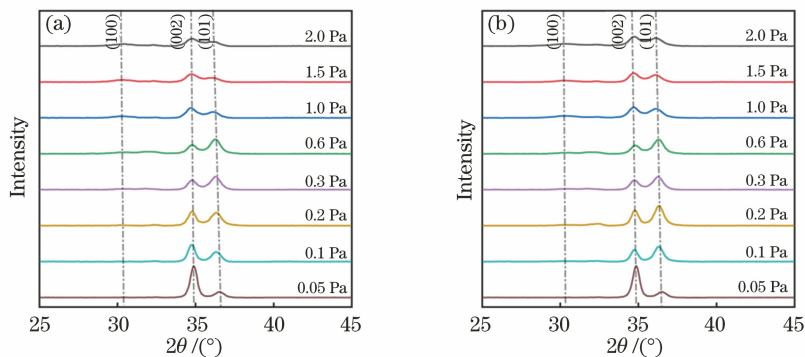


图 2 不同基底上 Zr 薄膜的 X 射线衍射图。(a) JGS1; (b) 硅

Fig. 2 X-ray diffraction patterns of Zr films on different substrates. (a) JGS1; (b) silicon

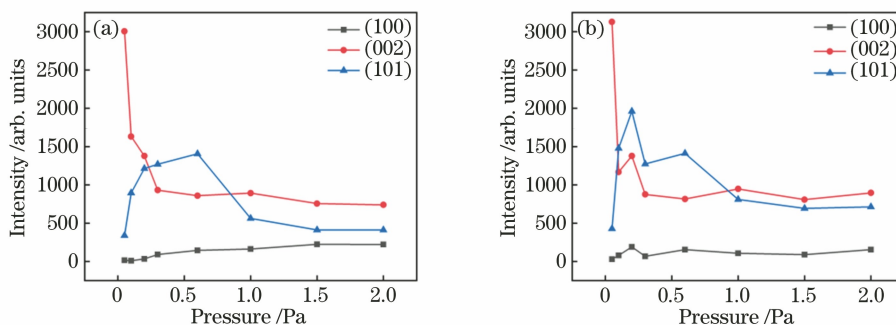


图 3 不同基底上 Zr 薄膜的衍射峰强度。(a) JGS1; (b) 硅

Fig. 3 Intensity of diffraction peak of Zr films on different substrates. (a) JGS1; (b) silicon

### 3.2 表面粗糙度变化

溅射气压对 Zr 薄膜表面粗糙度的影响明显,如图 4 所示。硅基底的粗糙度较大,硅基底样品的表面粗糙度比石英基底样品高 2~4 nm。在 0.05 Pa 溅射气压下于石英基底上制备的 Zr 薄膜的表面粗糙度为 2.67 nm。随着气压增大,薄膜表面粗糙度呈线性增加,至 0.8 Pa 溅射气压时,石英基底上薄膜的表面粗糙度为 14.53 nm。表面粗糙度的增大与薄膜的物相有关。在较低的溅射气压下,Zr 原子沿单一晶面(002)择优生长,薄膜表面更加平整;随着溅射气压增大,出现了其他生长方向与(002)晶面竞争的情形,表面粗糙度随着衍射峰强度的增加而增大。溅射气压增大时,Zr 原子溅射能量和浓度同时减小,薄膜沉积速率下降,导致薄膜呈疏松多孔结构,结晶程度下降,出现多个衍射峰并存。在该情况下,晶粒呈各向异性生长,在基底表面形成柱晶,对 Zr 粒子形成阻挡,部分区域的粒子数目减少,形成阴影效应,导致微孔洞或裂缝出现,增大了表面粗糙度。

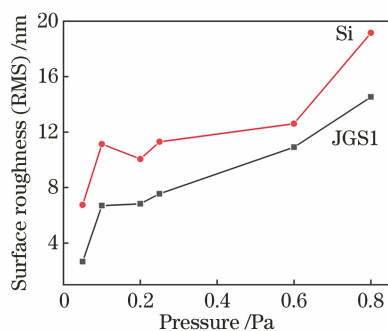


图 4 Zr 薄膜的表面粗糙度

Fig. 4 Surface roughness of Zr films

### 3.3 薄膜应力变化

厚度为 500 nm 的 Zr 薄膜的应力随溅射气压的变化趋势如图 5 所示。溅射气压为 0.05 Pa 时,薄膜的应力值为 0.127 GPa,表现为张应力;随着溅

射气压增加,Zr 薄膜应力出现转变,溅射气压高于 0.1 Pa 时,薄膜表现为较大的压应力,在 0.25 Pa 下压应力达到最大值 0.358 GPa。溅射气压为 0.05 Pa 和 0.2 Pa 时,镀膜前后的面形变化如图 6 所示。可见:在 0.05 Pa 镀膜前后,面形均为凹面,ΔP 为正值(51.889 nm),表现为张应力;在 0.2 Pa 镀膜后,面形由镀膜前的凹面转变为凸面,ΔP 为负值(-150.606 nm),表现为压应力。根据已有的文献报道<sup>[18-19]</sup>,在低气压下沉积的 Zr 薄膜通常表现为压应力,这是由于在较低气压下通过磁控溅射法沉积薄膜时,溅射原子以较高能量对成膜表面进行轰击,形成孔隙和空位等缺陷,同时使薄膜更加致密,从而表现为压应力。随着溅射气压的增大,Zr 薄膜中的压应力缓慢减小,在 0.8 Pa 时,压应力值为 -0.257 GPa。随着气压增大,从靶材表面溅射出来的 Zr 原子浓度增加,腔室中的氩离子数量较多,其与靶材表面溅射出来的 Zr 原子发生二次碰撞,使得到达基片表面的 Zr 离子能量变小,因此对基片的撞击效应减小,应力减小。

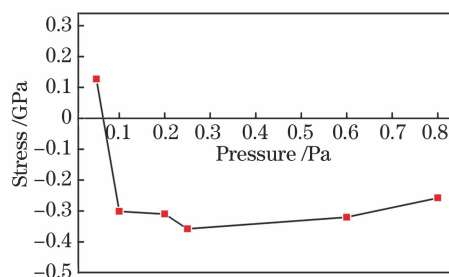


图 5 Zr 薄膜的应力变化

Fig. 5 Stress change of Zr film

低溅射气压下薄膜的面形表现为张应力的现象可用 Window 等提出的塑性流动机制解释<sup>[20]</sup>。在较大应力作用下,金属薄膜内部出现大范围的塑性流动,提供了一种增加优先取向的机制,导致薄膜内部的微观结构改变,其对应的晶格参数变化与薄膜



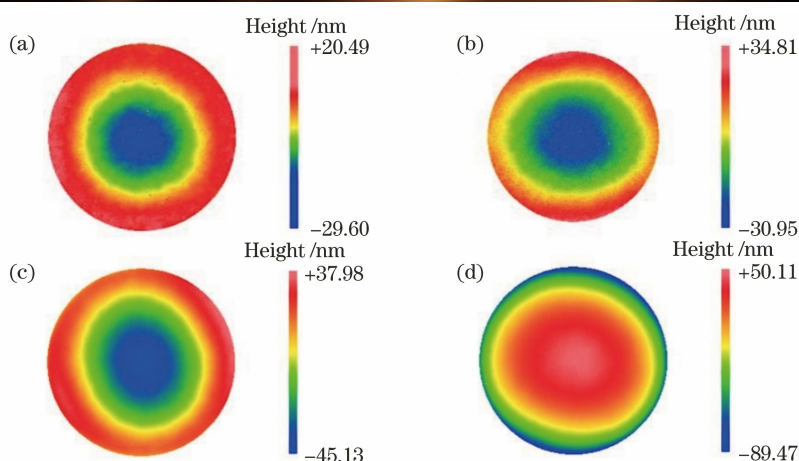


图 6 不同溅射气压下制备的 Zr 薄膜的面形测试。(a) 0.05 Pa, 镀膜前;(b) 0.2 Pa, 镀膜前;  
(c) 0.05 Pa, 镀膜后;(d) 0.2 Pa, 镀膜后

Fig. 6 Surface metrology of Zr film deposited at different sputtering pressures. (a) 0.05 Pa, before deposition;  
(b) 0.2 Pa, before deposition; (c) 0.05 Pa, after deposition; (d) 0.2 Pa, after deposition

应力关系密切<sup>[21]</sup>。0.2 Pa 为 Zr 薄膜发生塑性流动的转折点,在 0.05 Pa 时,由于氩离子浓度较低,Zr 薄膜溅射能量高,成膜速率快,此时在大应力作用下膜内出现大范围的塑性流动,可以填补生长过程中的孔隙和缺陷。结合 Hoffman 等<sup>[22]</sup>提出的晶格缺陷消除模型,薄膜内的缺陷消失,特别是空穴的消失会引起体积收缩,从而产生张应力。该理论同时可以解释缺陷的消失使薄膜表面粗糙度维持在较低水平的原因。此外,低的工作压强下氩离子浓度非常低,因此氩离子轰击靶材溅射产生的 Zr 原子浓度维持在较低水平。根据 Hoffman 和 Thornton 等提出的原子钉扎效应模型<sup>[18]</sup>,压应力产生的主要原因是原子对成膜部分的轰击效应。极低的溅射气压减弱了钉扎效应,从而减少了缺陷的形成,使薄膜体积减小,表现为张应力。所以,在 0.05 Pa 时 Zr 薄膜表现为张应力。

## 4 结 论

本文采用脉冲直流磁控溅射技术制备了厚度为 500 nm 的 Zr 薄膜,分析了溅射气压从 0.05 Pa 升至 1.0 Pa 过程中 Zr 薄膜物相、表面粗糙度和应力的变化。在石英和硅基底上制备的 Zr 薄膜的物相、表面粗糙度的变化相似。随着溅射气压升高,Zr 薄膜的晶面择优取向从单一的(002)晶向转变为多个晶向,晶向的增加导致 Zr 薄膜表面粗糙度明显增大。在高于 1.0 Pa 溅射气压下制备的 Zr 薄膜均表现为压应力,在溅射气压低于 0.1 Pa 时,压应力减小,并在 0.05 Pa 时转变为张应力。本文针对张应力产生的原因进行了详细分析,认为张应力产生主

要是由于薄膜内发生塑性流动使微观结构发生改变,缺陷和空穴的消失引起体积收缩,从而产生了张应力。此外,由于在低溅射气压下钉扎效应减弱,减少了缺陷的形成,在塑性流动机制的共同作用下,薄膜体积收缩,表现为张应力。

## 参 考 文 献

- [1] Attwood D, Sakdinawat A. X-rays and extreme ultraviolet radiation: principles and applications[J]. *Microscopy & Microanalysis*, 1999, 15(6): 585-586.
- [2] Spielmann C, Burnett N H, Sartania S, et al. Generation of coherent X-rays in the water window using 5-femtosecond laser pulses[J]. *Science*, 1997, 278(5338): 661-664.
- [3] Walker A B, Lindblom J F, Barbee T W, et al. Soft X-ray images of the solar corona with a normal-incidence Cassegrain multilayer telescope [J]. *Science*, 1988, 241(4874): 1781-1787.
- [4] Chkhalo N I, Drozdov M N, Klunov E B, et al. Thin film multilayer filters for solar EUV telescopes [J]. *Applied Optics*, 2016, 55(17): 4683-4690.
- [5] Wagner C, Harned N. Lithography gets extreme[J]. *Nature Photonics*, 2010, 4(1): 24-26.
- [6] Li X P, Yu D Y, Pan Q K, et al. Study on beam pointing stability of extreme ultraviolet lithography light source system [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2021, 58(17): 1714004.  
李鑫鹏, 于德洋, 潘其坤, 等. 极紫外光刻光源系统光束指向稳定性研究[J]. *激光与光电子学进展*, 2021, 58(17): 1714004.
- [7] Powell F R, Johnson T A. Filter windows for EUV lithography[J]. *Proceedings of SPIE*, 2001, 4343:

- 585-589.
- [8] Yu S S, Lin B, Yen A, et al. Thin-film optimization strategy in high numerical aperture optical lithography, part 1: principles [J]. *Journal of Microlithography Microfabrication & Microsystems*, 2005, 4(4): 043003.
- [9] Hatayama M, Takahashi E J, Takenaka H, et al. High-throughput beam splitters for high-order harmonics in soft-X-ray region [J]. *Proceedings of SPIE*, 2011, 8077: 80770T.
- [10] Zhu J T, Zhou T, Zhu J, et al. Study on stress in Si-doped Al thin films prepared by magnetron co-sputtering [J]. *Acta Optica Sinica*, 2020, 40(14): 1431002.  
朱京涛, 周涛, 朱杰, 等. 磁控共溅射制备 Si 掺杂 Al 薄膜的应力研究 [J]. *光学学报*, 2020, 40(14): 1431002.
- [11] Liu D M, Yue P F, Fu X H, et al. Development of iris recognition filter with low-angle effect [J]. *Acta Optica Sinica*, 2019, 39(11): 1131002.  
刘冬梅, 岳鹏飞, 付秀华, 等. 低角度效应虹膜识别滤光片的研制 [J]. *光学学报*, 2019, 39(11): 1131002.
- [12] Broadway D M, Weimer J, Gurgew D, et al. Achieving zero stress in iridium, chromium, and nickel thin films [J]. *Proceedings of SPIE*, 2015, 9510: 95100E.
- [13] Thielsch R, Gatto A, Kaiser N. Mechanical stress and thermal-elastic properties of oxide coatings for use in the deep-ultraviolet spectral region [J]. *Applied Optics*, 2002, 41(16): 3211-3217.
- [14] Shao S Y, Fan Z X, Fan R Y, et al. A review of study of stress in thin films [J]. *Laser & Optoelectronics Progress*, 2005, 42(1): 22-27.
- 邵淑英, 范正修, 范瑞瑛, 等. 薄膜应力研究 [J]. *激光与光电子学进展*, 2005, 42(1): 22-27.
- [15] Window B. Plastic flow and preferred orientation in molybdenum and zirconium films [J]. *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films*, 1989, 7(5): 3036-3042.
- [16] Cao H, Zhang C J, Wang S L, et al. Residual stress of Zr thin film deposited by magnetic sputtering [J]. *Laser Technology*, 2012, 36(6): 742-744.  
曹鸿, 张传军, 王善力, 等. 磁控溅射制备 Zr 膜的应力研究 [J]. *激光技术*, 2012, 36(6): 742-744.
- [17] Stoney G G. The tension of metallic films deposited by electrolysis [J]. *Proceedings of the Royal Society of London Series A*, 1909, 82(553): 172-175.
- [18] Youngworth R N, Gallagher B B, Stamper B L. An overview of power spectral density (PSD) calculations [J]. *Proceedings of SPIE*, 2005, 5869: 58690U.
- [19] Window B, Sharples F, Savvides N. Summary abstract: investigation of low-energy ion assisted deposition of refractory metals [J]. *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films*, 1988, 6(3): 1935-1936.
- [20] Wu C T. Intrinsic stress of magnetron-sputtered niobium films [J]. *Thin Solid Films*, 1979, 64(1): 103-110.
- [21] Story H S, Hoffman R W. Stress annealing in vacuum deposited copper films [J]. *Proceedings of the Physical Society Section B*, 1957, 70(10): 950-960.
- [22] Hoffman D W, Kukla C M. Determination of film stresses during sputter deposition using an *in situ* probe [J]. *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films*, 1985, 3(6): 2600-2604.