

基于 800 mm 口径半椭球反射镜的高温材料 光谱发射率测量技术

杨永兴^{1,2*},王鑫蕊^{1,2},陈北北^{1,2},管恒睿^{1,2},李金鹏^{1,2,3**},张景源^{1,2},赖新华⁴,赵金标³ ¹中国科学技术大学,安徽 合肥 230022;

²中国科学技术大学南京天文仪器研制中心, 江苏 南京 210042;

3中科院南京天文仪器有限公司, 江苏 南京 210042;

4上海师范大学数理学院,上海 200234

摘要 为解决中高温条件下材料发射率的测量问题,提出了一种基于半椭球反射镜的高温材料光谱发射率测量技术。该技术使用 800 mm 口径半椭球反射镜大范围聚焦信号光,利用 3 种离轴抛物镜来切换不同测试视场,并利用 高功率激光器对样品进行加热。仿真研究了所设计系统的测量误差,结果表明,反射率测量偏差最大为 0.035,透 射率测量偏差最大为 0.031。构建了基于 800 mm 口径半椭球镜的发射率测量系统,测算了某合金材料和某半透 明材料的反射率、透射率和发射率,表明所设计的系统可实现常温到中高温(300~1200 K)、多视场(30°、60°、90°)、 宽谱段(2~14 μm)的测量。

High-Temperature Material Spectral Emissivity Measurement Technology Based on 800 mm Semi-Ellipsoidal Reflector

Yang Yongxing^{1,2*}, Wang Xinrui^{1,2}, Chen Beibei^{1,2}, Guan Hengrui^{1,2}, Li Jinpeng^{1,2,3**}, Zhang Jingyuan^{1,2}, Lai Xinhua⁴, Zhao Jinbiao³

¹ University of Science and Technology of China, Hefei 230022, Anhui, China;

² Nanjing Research Center of Astronomical Instruments, University of Science and Technology of China,

Nanjing 210042, Jiangsu, China;

³Nanjing Astronomical Instruments Co., Ltd., Chinese Academy of Sciences, Nanjing 210042,

Jiangsu, China;

⁴ Mathematics and Science College of Shanghai Normal University, Shanghai 200234

Abstract To solve the problem of material emissivity measurement at medium-high temperature, a high-temperature material spectral emissivity measurement technology based on semi-ellipsoidal reflector is proposed. In this technology, a 800 mm semi-ellipsoidal mirror is used to focus the signal light in a large range, three kinds of off-axis parabolic mirrors are used to switch different test fields of view, and the sample is heated by a high-power laser. The measurement error of the designed system is studied in simulation. The results show that the maximum measurement deviation of reflectivity is 0.035, and that of transmittance is 0.031. An emissivity measurement system based on a 800 mm semi-ellipsoidal mirror is constructed. Then, the reflectivity, transmittance, and emissivity of an alloy material and a translucent material are measured, which shows that the designed system can

收稿日期: 2021-10-19;修回日期: 2021-11-24;录用日期: 2021-12-06

基金项目:国家自然科学基金(12003067)

通信作者: *nameyyan@mail.ustc.edu.cn; **lijinpeng@nairc.ac.cn

realize the measurement from normal temperature to medium-high temperature (300–1200 K), multi-field of view (30°, 60°, 90°), and wide spectrum (2–14 μ m).

Key words geometric optics; semi-ellipsoidal mirror; emissivity measurement; reflectivity measurement; transmittance measurement; infrared spectrometer

1引言

发射率是表征物体热辐射能力的重要热物理参数^[1]。在辐射测温、光学参数计算、航空航天、微电子技术、遥感、新材料开发和军事伪装等高新技术领域中,光谱发射率测量有重要的应用价值^[2-3]。例如,在红外隐身技术中,利用涂层调节目标表面的发射率,使目标接近背景辐射,进而达到隐身的目的^[4-8]。在航空航天技术中,飞行器在进出太空时有气动加热阶段,此时飞行器表面与空气摩擦会产生大量气动热,需要使用隔热瓦等隔热材料和涂层来及时散热,发射率的高低将直接影响隔热材料的散热效果^[9]。

目前国内外都对材料发射率测量进行了研究。 Postlethwait 等^[10]设计了一种基于积分黑体的高温 光谱发射率测量装置。Krenek 等^[11-12]研究了利用 脉冲激光闪光法测量高温材料的光谱发射率。 Zhang 等^[13]研制了一台使用直接测量法的高温光 谱发射率测量装置。卞宇涛等^[14]使用热电偶进行 测温,建立了一套测量高温石墨板在短红外波段的 光谱发射率装置。

材料的光学参数通常用反射光谱或透射光谱法 来测量^[15]。反射光谱或透射光谱法的原理是将光 源照射在样品上的反射光或透射光引入光谱仪,通 过对光谱数据的分析,可得到材料的光学参数。物 体的表面发射率与波长、温度、角度和粗糙度等参数 有关^[16-18]。由于目前的测量装置多数工作在中低温 范围内,故高温条件下的实验数据较为缺乏。传统 的测试设备往往只能测量在某个特定角度的单一光 学参量。传统的炉腔等加热方式在样品温度与黑体 温度较高时,达到热平衡的时间较长,这会给实验带 来额外的不确定因素。此外,光源发出的光没有会 聚,进而无法获得较强的辐照度和较高的能量利用 率。因此,所提系统将 800 mm 大口径半椭球反射 镜作为大范围聚光元件,可以有效地提高设备的能 量利用效率,获得更好的辐照均匀性。通过开设不 同的视场窗口,配合3种离轴抛物镜,可以实现30°、 60°、90°等多角度测量模式。通过高能激光器与激 光整形器的配合,直接会聚光束照射到待测样品上, 进而实现样品的快速控温。利用红外光谱仪可实现 样品光谱数据的快速采集与处理。整体系统最终能 够完成高温条件下宽光谱多角度多种测量模式集成 的测量工作。

2 高温材料光谱发射率测量系统

高温材料光谱发射率测量系统由半椭球面反射 镜、红外光谱仪、黑体辐射光源、高能激光器和3种 离轴抛物镜组成。

如图 1(a) 所示,系统将黑体作为主动照射光 源,外置斩波器置于黑体出光口处,经过斩波器调制 的光束经半椭球反射镜会聚到测试样品上,样品反 射/透射的能量经过离轴抛物镜准直,经平面反射镜 和折转镜反射进入到红外光谱仪中,进而实现样品 反射、透射特性的测量。将高能连续波激光器作为 热源,经过整形的激光可直接照射样品,实现对样品 的加热。使用 3 种离轴抛物镜分别匹配 30°、60°、 90°测量模式。

图 1(b)为半椭球面反射系统,在半椭球上分别 开有 30°、60°、90°反射测量孔位和非接触式红外测 温孔。黑体光源和待测样品分别放置在半椭球反射 镜的 2 个焦点处。椭球镜内表面镀有镀金反射膜, 半椭球镜光学参数如表 1 所示,其中λ为干涉仪的 波长。

高温材料光谱发射率测试技术基于间接发射率 测量方法。首先,测量材料的反射率。然后,根据不 透明物体的发射率、不透明物体的反射率和已知标 准样品的发射率之间的关系,得到被测材料的发射 率。因此,通过测量待测样品和标准样品在相同测 试条件下的反射功率,即探测器的输出电压,可以获 得样品的发射率。

3 材料光谱系统装置仿真分析

3.1 反射率仿真实验

为验证材料高温光学参数测量系统的光学性能,对整个装置中的光学件进行光学建模分析。表2给出了各工作面的属性值和黑体光源的相关设置 情况。使用 Tracepro 软件对模型进行光线追迹,半 椭球镜内表面镀有反射率为 98.3%的金膜,在仿真 的黑体辐射面处设置一温度为 1000 K 的黑体,将该 黑体放置于半椭球镜的焦点位置,待测样品放置于

研究论文

另一焦点处。3种离轴抛物反射镜分别置于样品 30°、60°、90°位置上,并与样品共焦。在具体的测量 模式中,可调节平动反射镜的高度与3块离轴抛物 反射镜同高,对样品表面反射的光束准直后经旋转 反射镜导入光谱仪接收面,完成反射率仿真模型 搭建。





Fig. 1 Layout of measuring devices. (a) Devices for measuring spectral emissivity of high-temperature materials; (b) 800 nm semi-ellipsoidal mirror

表1 半椭球反射镜参数

Table 1 Parameters of semi-ellipsoidal mirror

Parameter	Description
Length of ellipsoid major axis /mm	800
Length of ellipsoid minor axis /mm	690
Focal length /mm	404.8
Ellipsoid equation	$\frac{x^2}{400^2} + \frac{z^2 + y^2}{345^2} = 1$
Material	Aluminum 7075
Surface accuracy	≪3λ@0.6328 µm

在反射率测量实验中,将反射率为98.3%的金 靶作为标准检测样品,分别将标准样品、待测样品置 于椭球镜检测点处,分别获得金靶、待测样品的辐照 度能量。将待测样品仿真分析得到的辐照度值与金 靶辐照度能量值对比,可以获得样品的反射率。结 合半椭球镜开孔尺寸、离轴抛物镜参数和光源参数, 可得到:30°测量模式下孔径角为 6.85°;60°测量模 式下孔径角为 8.25°;90°测量模式孔径角为 7.37°。 3 种待测样品分别为氮化铝(AlN)、氮化硅(Si₃N₄) 和碳化硅(SiC),将其理论反射率函数输入 Tracepro 中建立样品光学模型^[19-20]。根据测量模式,调整平动 反射镜高度分别与 30°、60°、90°离轴抛物镜一致,其余 参量设置情况与表 2 相同。在 30°和 60°反射率仿真 实验中,在样品表面处设置镜面反射条件。在 90°反 射率仿真实验中,在样品表面处设置有散射条件。仿 真光线的追迹结果如图 2 所示。

从图 2 中可以看出整体系统光线的传播方向, 按照设定从光源发出的光束经过半椭球反射镜后, 聚焦于待测样品上,使得系统的光能利用率得到提 高。从图 3(a)~(c)中可以看出,反射率在 2~ 9 μm 波长范围内呈下降趋势,在 9~14 μm 波长范 围内呈上升趋势。从图 3(d)~(f)所示的误差图中

第 42 卷 第 9 期/2022 年 5 月/光学学报



图 2 仿真光线追迹图。(a) 30°反射率测量模式;(b) 60°反射率测量模式;(c) 90°反射率测量模式;(d)法向透射率测量模式 Fig. 2 Simulated ray-tracing diagrams. (a) 30°reflectivity measurement mode; (b) 60°reflectivity measurement mode; (c) 90°reflectivity measurement mode; (d) normal transmittance measurement mode

可以看到,在 8~10 μm 波长范围内有峰值反射率 测量误差(0.035),2~8 μm 和 10~14 μm 波长范 围内的反射率测量误差小于 0.010,表明仿真测试 结果中待测样品测试值与理论值符合得较好。从上 述仿真中可以发现,整体测量系统具备测量样品反 射率的功能。

Model type	Description
	Gold-plated film;
Semi-ellipsoidal mirror	reflectivity: 98.3%;
inner surface	ABg model: A = 0.0001,
	B = 0.0150, g = 2
Light source setting	Emission type: blackbody;
	number of rays: 100000;
	angular distribution: Lambertian;
	temperature: 1000 K
	Gold-plated film;
Off-axis mirror	reflectivity: 99.9%;
	wavelength: 2–14 μm
Sample surface model	Specular/diffuse reflection
	Receiving surface is set
Infrared spectrometer	as a perfect absorber with
	a radius of 80 mm

表 2 光线追迹参数 Table 2 Parameters of Ray tracing

3.2 透射率仿真实验

在透射率测量仿真中,待测样品为3种不同厚度的 AlN 材料,厚度分别为0.1,0.5,1.0 mm。将

3 种厚度的 AlN 材料理论透射率随波长的变化关 系输入 Tracepro 中建立样品光学模型,装置其余模 型参数设置情况与表 2 相同。在透射率仿真实验 中,在椭球镜 90°开孔处会安装与椭球镜面形相同 的镜塞,对模型进行光线追迹,追迹结果如图 2(d) 所示。

在透射率仿真测量中,分别测量了厚度为 0.1, 0.5,1.0 mm 的 AlN 材料的透射率曲线。从图 4 中 可以看出,透射率在 2~10 μ m 波长范围内呈下降 趋势,在 10~14 μ m 波长范围内较为平稳。结合图 5 中透射率误差曲线可以得出,在 5 μ m 和 9 μ m 波 长附近有峰值误差(0.03100),其余波长处的误差均 小于 0.00614,表明装置仿真测量值与理论值较为 符合。结合图 2(d)中的光线追迹图可知,所提装置 具备样品透射率测量功能。

4 高温材料发射率现场实验

高温材料光谱发射率测量装置使用 CI Systems 公司生产的 SR-5000N 光谱辐射度计,其光谱范围 为0.2~25.0 µm。光谱仪在0.4~14.2 µm 波长范 围内的光谱分辨率小于波长的 2%,其中使用的是 锑化铟/碲镉汞三合一探测器,配有液氮和热循环冷 却系统,满足高精度宽光谱检测需要。配合 SR200 黑体光源,黑体控温精度小于 0.1 ℃,黑体中斩波器 的频率为 0~250 Hz,可实现检测信号调制,消除背 景辐射影响。将连续波运转高功率激光器作为待测



图 3 仿真结果曲线。(a) 30°反射率测量曲线;(b) 60°反射率测量曲线;(c) 90°反射率测量曲线; (d) 30°反射率测量误差曲线;(e) 60°反射率测量误差曲线;(f) 90°反射率测量误差曲线

Fig. 3 Simulation result curves. (a) 30° reflectivity measurement curves; (b) 60° reflectivity measurement error curves;
(c) 90° reflectivity measurement curves; (d) 30° reflectivity measurement error curves; (e) 60° reflectivity measurement curves; (f) 90° reflectivity measurement error curves



图 4 90°法向透射率曲线。(a)测量值曲线;(b)标准值曲线

Fig. 4 90° normal transmittance curves. (a) Measured value curves; (b) standard value curves

第 42 卷 第 9 期/2022 年 5 月/光学学报



图 5 AlN 透射率误差曲线

Fig. 5 Transmittance error curves of AlN

样品加热装置,激光器功率可达 4000 W,该设计能 够保证样品被加热到 2500 K 以上的温度,且激光器 配有整形器,可以控制调节激光光斑大小。采用接 触式热电偶和非接触式红外测温仪,实时测量和监 控样品表面温度,以控制系统闭环调控激光器的功 率大小和出光频率,进而实现待测样品温度的稳定。

通过高温材料光谱发射率测量装置,对某超黑 表面合金材料和某草绿色涂层的样品进行反射率和 发射率测试,并对某半透明材料进行了透射率测量。 超黑喷料处理的合金材料处于高温材料发射率装置 反射率 60°测量模式下,测量从常温到中高 (300~1200 K),2~14 μm波段的发射率。某草绿 色样品在常温下进行 30°、60°、90°的反射率和发射 率的测量。某半透明材料在常温下进行法向透射率 测量。

设置采样 20条曲线,计算后绘制的光谱发射率 和反射率曲线如图 6(a)、(b)所示。可以发现,该超 黑材料的发射率整体在 2~7 um 波段处于下降趋 势,在 9~14 µm 波段内较为平缓,在 8 µm 波长附 近有最大峰值,随着温度从 300 K 上升至 1200 K, 发射率呈逐渐增大趋势,表明高温材料光谱发射率 测量装置可以实现在 300~1200 K 温度范围下对样 品进行测量。图 7(a)、(b)为草绿色材料在 30°、 60°、90°下的发射率和反射率随波长的变化。可以 发现,2~6 µm 波长范围内发射率总体呈先增大后 下降的趋势,并在 6 μm 波长附近有最小值,7~ 14 µm 波长范围附近有较小值,且随着测量角度的增 加,发射率呈逐渐增大的趋势,表明该系统可以在 30°、60°、90°测量模式下进行测试工作。图 7(c)为某 半透明材料法向透射率随波长的变化,对同一材料多 次测量后所得的标准差图如图 7(d)所示。可以看 出,在2~3 µm 波长范围内标准差有最大峰值(0.3), 表明多次测量下系统的稳定性较好, 目多次测量可重 复,即所提系统具有法向光谱透射率测量功能。





Fig. 6 Spectral emissivity and reflectivity of super black alloy material. (a) Emissivity; (b) reflectivity

5 讨 论

5.1 高温对测量的影响

在碳化钨样品超高温测量过程中发现,随着实验温度的升高,其光谱发射率曲线会发生非常显著

的变化,如图 8(a)、(b)所示。当实验结束后取出待 测样品时发现,样品表面与空气发生反应,使其表面 在高温情况下产生氮化钨并覆盖在待测样品表面, 从而使得其发射率发生明显变化,如图 9(a)、(b)所 示。Zhao 等^[21]研究了氧气对金属发射率的影响,





Fig. 7 Actual measurement result curves. (a) Spectral emissivity curves of grass green sample; (b) spectral reflectivity curves of grass green sample; (c) relationship between transmittance of translucent material and wavelength;(d) standard deviation diagram of transmittance of translucent material



图 8 某合金材料的测量结果。(a)发射率;(b)反射率

Fig. 8 Measurement results for alloy material. (a) Emissivity; (b) reflectivity



图 9 某合金材料实物图。(a)中低温下某合金材料的实物图;(b)高温下某合金材料的实物图 Fig. 9 Physical diagrams of alloy material. (a) Physical diagram of alloy material at medium-low temperature; (b) physical diagram of alloy material at high temperature

研究论文

第 42 卷 第 9 期/2022 年 5 月/光学学报

考虑了氧化温度、加热时间和波长对发射率的影响。因此,后续可以考虑进行待测样品与空气中的某些成分在特定温度下的实验,从而进一步扩展整体装置的实际应用范围。

5.2 机械结构对测量的影响

为研究系统结构产生的杂光对于装置测量结果 的影响,对装置整体进行了建模。其中,各光学件的 参数与表 2 相同,设置模型中系统结构件表面的属 性,并进行光线追迹,光线追迹结果如图 10 所示。 以光谱仪接受面的辐射能量为评价指标,从图 11 中 可以看出:当不考虑结构的表面反射和散射情况时, 接受面的辐射能量为 3.0347 W,计算得到的反射率 为 0.909;当考虑结构表面的反射与散射时,接受面 的能量为 3.0461 W,计算得到的反射率为 0.912, 相对误差为 0.0033。可以发现,系统的机械结构对 最终测量结果的影响较小。



图 10 三维光线追迹模型图。(a)模型线框图;(b)模型实物图 Fig. 10 Three-dimensional ray-tracing model diagrams. (a) Wireframe diagram of model; (b) physical diagram of model





6 结 论

设计了一种高温材料光谱发射率测量系统,解 决了材料在常温至中高温范围内的发射率测量问 题。所提装置可以测量特定角度下的反射率、透射 率和发射率。对该系统进行了仿真建模,利用光线 追迹方法对整体装置在各测量模式下的待测样品的 光学特性进行了分析。仿真结果表明:反射率误差 曲线在 10 μm 波长处的峰值为 0.035,其余波段误 差值小于 0.010;透射率误差曲线在 5 μm 波长处的 峰值为 0.03100。此外,利用整体装置实际测量待 测样品,进行了不同温度范围、不同方向反射率、不 同方向发射率和不同方向透射率的实验。从实验结 果中可以得出,基于半椭球反射镜的高温材料光谱 发射率测量装置能够实现常温到中高温(300~ 1200 K)条件下,2~14 μm 波长范围的宽光谱测量 工作,能够对 30°、60°、90°视场的反射率、发射率和 法向透射率进行测量。所设计的测量系统为在大温 度范围、多视场和宽光谱范围情况下测量材料上的 光学参数提供了一种解决方案。

第 42 卷 第 9 期/2022 年 5 月/光学学报

参考文献

- [1] Gutschwager B, Hollandt J, Jankowski T, et al. A vacuum infrared standard radiation thermometer at the PTB[J]. International Journal of Thermophysics, 2008, 29(1): 330-340.
- [2] Shuai Y, Dong S K, Tan H P. Simulation of the infrared radiation characteristics of high-temperature exhaust plume including particles using the backward Monte Carlo method [J]. Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 2005, 95(2): 231-240.
- [3] Chen M, Morsy A M, Povinelli M L. Design of VO₂-coated silicon microspheres for thermallyregulating paint[J]. Optics Express, 2019, 27(15): 21787-21793.
- [4] 王田宇, 卞进田, 李欣, 等. 激光诱导表面周期性结构对铜薄膜红外发射特性的改变[J]. 中国激光, 2021, 48(4):0401010.
 Wang T Y, Bian J T, Li X, et al. Effect of laser

induced periodic surface structures on infrared emission characteristics of copper films[J]. Chinese Journal of Lasers, 2021, 48(4): 0401010.

- [5] Wen K H, Han T C, Lu H P, et al. Experimental demonstration of an ultra-thin radar-infrared bistealth rasorber[J]. Optics Express, 2021, 29(6): 8872-8879.
- [6] Qi D, Cheng Y Z, Wang X, et al. Multi-layer composite structure covered polytetrafluoroethylene for visible-infrared-radar spectral compatibility [J]. Journal of Physics D, 2017, 50(50): 505108.
- [7] Pang Y, Li Y, Yan M, et al. Hybrid metasurfaces for microwave reflection and infrared emission reduction[J]. Optics Express, 2018, 26(9): 11950-11958.
- [8] Zou J, Zhang J, He Y, et al. Multiband metamaterial selective absorber for infrared stealth [J]. Applied Optics, 2020, 59(28): 8768-8772.
- [9] Brodu E, Balat-Pichelin M, Sans J L, et al. Influence of roughness and composition on the total emissivity of tungsten, rhenium and tungsten-25% rhenium alloy at high temperature [J]. Journal of Alloys and Compounds, 2014, 585: 510-517.
- [10] Postlethwait M A, Sikka K K, Modest M F, et al. High-temperature, normal spectral emittance of silicon carbide based materials [J]. Journal of Thermophysics and Heat Transfer, 1994, 8(3): 412-418.
- [11] Krenek S, Anhalt K, Lindemann A, et al. A study on the feasibility of measuring the emissivity with the laser-flash method [J]. International Journal of

Thermophysics, 2010, 31(4/5): 998-1010.

- [12] Krenek S, Gilbers D, Anhalt K, et al. A dynamic method to measure emissivity at high temperatures
 [J]. International Journal of Thermophysics, 2015, 36(8): 1713-1725.
- [13] Zhang B, Redgrove J, Clark J. A transient method for total emissivity determination [J]. International Journal of Thermophysics, 2004, 25(2): 423-438.
- [14] 卞宇涛,潘军,蒋立军,等. 高温石墨板短波红外光 谱发射率-温度变化规律研究[J].光学学报, 2021, 41(10): 1030003.
 Bian Y T, Pan J, Jiang L J, et al. Study on variation of short wave infrared spectral emissivity of hightemperature graphite plate [J]. Acta Optica Sinica, 2021, 41(10): 1030003.
- [15] 管恒睿,郑锋华,李文祥,等.用于材料高温光学参数测量的半椭球反射镜光机特性分析[J].光学学报,2021,41(6):0608002.
 Guan H R, Zheng F H, Li W X, et al. Analysis of optomechanical characteristics of semi-ellipsoidal mirrors for measuring high-temperature optical parameters of materials [J]. Acta Optica Sinica, 2021, 41(6):0608002.
- [16] 赵晚梦,李龙飞,原泽野,等.Ti-6Al-4V合金方向 光谱发射率特性研究[J].光学学报,2020,40(8): 0830002.
 Zhao W M, Li L F, Yuan Z Y, et al. Directional spectral emissivity of Ti-6Al-4V alloy [J]. Acta Optica Sinica, 2020, 40(8): 0830002.
- [17] Hagqvist P, Sikström F, Christiansson A K. Emissivity estimation for high temperature radiation pyrometry on Ti-6Al-4V [J]. Measurement, 2013, 46(2): 871-880.
- [18] Coppa P, Consorti A. Normal emissivity of samples surrounded by surfaces at diverse temperatures [J]. Measurement, 2005, 38(2): 124-131.
- [19] Kischkat J, Peters S, Gruska B, et al. Mid-infrared optical properties of thin films of aluminum oxide, titanium dioxide, silicon dioxide, aluminum nitride, and silicon nitride [J]. Applied Optics, 2012, 51 (28): 6789-6798.
- [20] Larruquert J I, Pérez-Marín A P, García-Cortés S, et al. Self-consistent optical constants of SiC thin films
 [J]. Journal of the Optical Society of America A, 2011, 28(11): 2340-2345.
- [21] Zhao S N, Li X F, Zhou X M, et al. Investigation of the effects of Ni-based alloy DZ125 on the normal spectral emissivity during oxidation [J]. Applied Thermal Engineering, 2016, 109: 663-671.