

ОПТИМИЗАЦИЯ ВЫВОДА СВЕТА ИЗ МОЩНЫХ СВЕТОДИОДНЫХ СБОРОК "ЧИП НА ПЛАТЕ", ИЗЛУЧАЮЩИХ В УЛЬТРАФИОЛЕТОВОМ ДИАПАЗОНЕ ДЛИН ВОЛН

К.А. Виноградова^{1,2,3*}, С.Н. Липницкая^{1,2}, К.Д. Мынбаев^{1,2,3}, В.Е. Бугров^{1,2},
А.Р. Ковш^{1,2}, М.А. Одноблюдов^{1,2}, В.И. Николаев^{2,3,4}, А.Е. Романов^{1,2,3}

¹Группа компаний «Оптоган», Таллинское ш. 206, Санкт-Петербург, 198205, Россия

²Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет
информационных технологий, механики и оптики,

Кронверкский пр. 49, Санкт-Петербург, 197101, Россия

³Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук, Политехническая ул. 26,
Санкт-Петербург, 194029, Россия

⁴ООО "Совершенные Кристаллы", Политехническая ул. 28 Литер А, Санкт-Петербург, 194064, Россия

*e-mail: K.Vinogradova@mail.ioffe.ru

Аннотация. В статье рассмотрены проблемы вывода света из светодиодных устройств, изготовленных по технологии «чипнаплате», излучающих в ультрафиолетовом (УФ) диапазоне (длины волн 360–380 нм). Проведены экспериментальные измерения электрических и оптических характеристик устройств с различным количеством и расположением полупроводниковых чипов. Оптимизационные расчеты с использованием программного пакета Zemax, включающие выбор материала подложки, вариации в расположении чипов и изменение параметров оптического покрытия, позволили выработать рекомендации по улучшению характеристик УФ светодиодных устройств. В частности, было показано, что оптимизация расположения чипов на подложке даёт 10 %-ный прирост энергоэффективности светодиодных модулей.

1. Введение

Изготовление мощных УФ светодиодов, светодиодных сборок, обладающих высокой эффективностью, является актуальной задачей [1–5], поскольку устройства, излучающие в УФ диапазоне, требуются в различных отраслях промышленности: медицинской, пищевой, сельскохозяйственной и других [3], — но до недавнего времени выпускались исключительно на основе ртутных ламп. Использование УФ излучения обусловлено его особым действием на клетки живых организмов [4]. Светодиодные сборки, выполненные по технологии «чип на плате», являются высокотехнологичной экологичной альтернативой традиционным устройствам. Конструкция *ultraviolet chip-on-board*, сокращенно UV-COB, включает УФ светодиодные чипы, металлизированное основание сборки, одновременно корпусом устройства и обеспечивает токоведущую разводку между чипами и внешними контактами, далее в тексте называемое «подложка», защитное покрытие [5]. Эффективность устройств сильно зависит от эффективности светодиодных чипов,

коэффициента отражения поверхности подложки, стойкости поверхности подложки к воздействию УФ излучения и оптических свойств защитного покрытия [6]. Исследовательские работы по повышению эффективности УФ светодиодных чипов ведутся по всему миру, причем основное внимание уделяется элементам гетероструктуры чипа [1, 7–9]. Моделирование оптических, электрических, механических свойств также играет важную роль при разработке светодиодных устройств [10, 11]. Проведенные исследования для светодиодных сборок, излучающих в синем диапазоне длин волн, а также для сборок белого свечения [6], показали, что расположение чипов сильно сказывается на эффективности устройств из-за эффектов поглощения и рассеяния света на различных внутренних поверхностях COB [12].

Цель настоящей работы — оценить влияние геометрии чипов в светодиодных сборках, созданных на базе чипов, излучающих в УФ диапазоне, на эффективность устройств и определить конструкцию с наибольшей эффективностью для выбранных материалов, а также выработать рекомендации при разработке таких устройств. Для этого в ходе исследования были созданы опытные образцы UV-COB и проведены измерения их свойств, а также модельные и параметрические расчеты.

2. Экспериментальное исследование образцов УФ светодиодных сборок

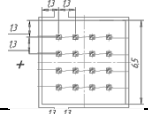
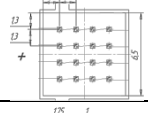
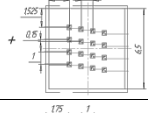
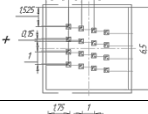
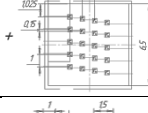
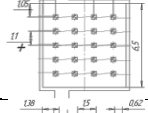
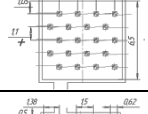
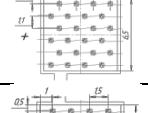
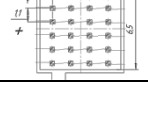
Для проведения измерений были изготовлены 9 видов УФ светодиодных сборок по 10 образцов каждого вида, которые отличались количеством чипов (16, 20, 24), пиковой длиной волны излучения (368 нм и 376 нм для UV-COB с 16 чипами) и различным расположением чипов на подложке.

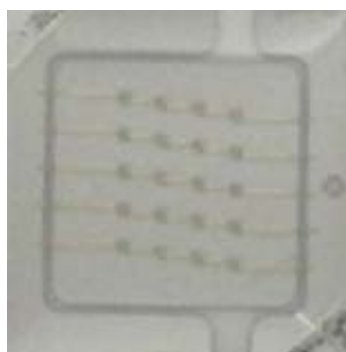
Электрические и радиометрические измерения проводились с использованием спектро радиометра ORB Optronix SP-75, позволяющего регистрировать интенсивность излучения в диапазоне 250–1000 нм, сферического интегратора GammaScientific диаметром 50 см и программируемого источника питания 2601A Keithley. Результаты измерений фиксировались в программном пакете SpectralSuite 3.0.

Усредненные по 10 образцам характеристики устройств и полученные для данных устройств результаты представлены в Таблице 1. В Таблице 1 приняты обозначения: n — количество чипов, I_f — рабочий ток, U_f — рабочее напряжение, P_{el} — мощность потребления, λ_{peak} — пиковая длина волны, FWHM — *full width at half maximum*, полная ширина спектра на полувысоте от максимума интенсивности излучения, P_{opt} — мощность излучения. КПД устройств определялся как отношение мощности излучения к потребляемой электрической мощности. Оптические фотографии нескольких видов образцов UV-COB приведены на Рис. 1.

На основании результатов проведенных экспериментальных исследований не удалось однозначно сформулировать правила построения УФ устройств, обладающих максимальной мощностью излучения и эффективностью при заданном количестве чипов. Это обусловлено тем, что поставленные опыты не охватывают все возможные варианты конструкций, а зависимость эффективности светодиодной сборки от площади, занятой чипами, неоднозначна. Отметим, однако, следующее: для образцов, содержащих 16 чипов, с $\lambda_{peak}=368$ нм разница в эффективности двух рассмотренных конструкций составила 9 %, в то время как для образцов с $\lambda_{peak}=376$ нм эта разница оказалась незначительной, 1 %. Образцы трех вариантов расположения 20 чипов показали разницу в эффективности между собой в 2 %. Образцы с 24 чипами также показали 10 % прирост в эффективности в определенном варианте конструкции. Наглядное распределение эффективности, приведенной к максимальному значению среди рассматриваемых образцов по количеству чипов, представлено на Рис. 2. Экспериментальные результаты послужили основой задания параметров численного моделирования UV-COB.

Таблица 1. Характеристики УФ светодиодных сборок «чип на плате».

№ UV-COB	Общий вид UV-COB	n	I_f , мА	U_f , В	P_{el} , Вт	λ_{peak} , нм	FWHM, нм	P_{opt} , мВт	КПД, %
1		16	80	13.23	1.06	376	9	218	21
2		16	80	13.63	1.09	368	10	125	11
3		16	80	13.25	1.06	376	9	221	21
4		16	80	13.56	1.08	368	11	137	13
5		20	100	13.21	1.32	376	9	288	22
6		20	100	13.27	1.33	376	9	283	21
7		20	100	13.21	1.32	376	9	295	22
8		24	120	13.38	1.61	377	10	320	20
9		24	120	13.24	1.59	377	10	356	22



(а)



(б)



(в)

Рис. 1. Оптические фотографии нескольких исследованных образцов UV-COB: (а) образец № 5 (см. Таблицу 1), (б) образец № 6, (в) образец № 7.

Размер подложки UV-COB составляет 9.8×9.8 мм, размер чипа — 400×400 мкм.

3. Численное моделирование вывода излучения из УФ светодиодных сборок

Кроме экспериментального исследования проводилось численное моделирование опытных образцов UV-COB с целью сопоставления результатов моделирования с данными прямых измерений и формулирования рекомендаций к разработке.

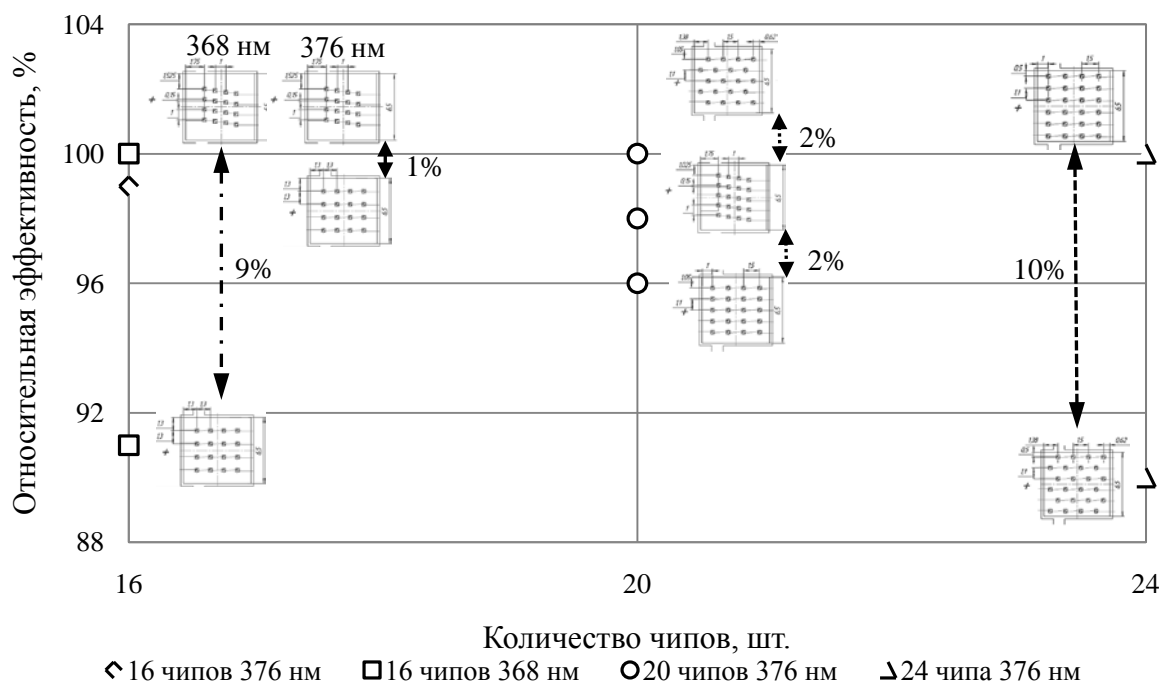


Рис. 2. Относительная эффективность экспериментальных образцов UV-COB с различным количеством и геометрией размещения чипов и длиной волны излучения.

оптимальной конструкции. Параметрическое численное моделирование позволяет оценить влияние на вывод излучения из UV-COB таких параметров, как количество и размер чипов, расстояние между ними, толщина защитного покрытия. Моделирование вывода света производилось с помощью программного пакета Zemax [13], использующего метод Монте-Карло для трассировки лучей [14]. При моделировании варьировались оптические свойства используемых в UV-COB материалов: коэффициенты поглощения, рассеяния и отражения света, показатель преломления [15].

Расчетная модель. Ниже перечислены основные элементы конструкции UV-COB и значения их основных (неизменяемых) свойств, используемых в моделировании:

- *подложка*: отражение соответствовало Ag/Ni металлизации: поглощение излучения длин волн в диапазоне 360–380 нм составляло 10–20 %. Размер подложки — 9.8×9.8 мм;
- *чипы*: материал чипов полностью поглощал свет, распределение излучения с поверхности чипа соответствовало закону Ламберта, пиковая длина волны излучения составляла 376 нм. Размеры чипа — 0.4×0.4 мм;
- *защитное покрытие*: показатель преломления материала — 1.41, пропускание излучения длин волн 360–380 нм — 98–100 %, толщина покрытия — 0.9 мм;

При проведении параметрических расчетов варьировались следующие параметры:

- *количество чипов* (проводились расчеты для UV-COB с 1, 4, 9 и 16 чипами);
- *расстояние между чипами* (для UV-COB с 4, 9 и 16 чипами расстояние между центрами чипов варьировалось от максимально возможного до 0.5 мм; моделируемые варианты конструкций представлены на Рис. 3);

- *размеры чипа* (для UV-COB с 1, 4, 9 и 16 чипами размер стороны чипа варьировался в интервале 0.4–1.2 мм, продольное сечение чипа представляло собой квадрат);
- *толщина защитного покрытия* (для UV-COB с 1, 4 и 9 чипами толщина покрытия варьировалась в интервале 0.4–2 мм).

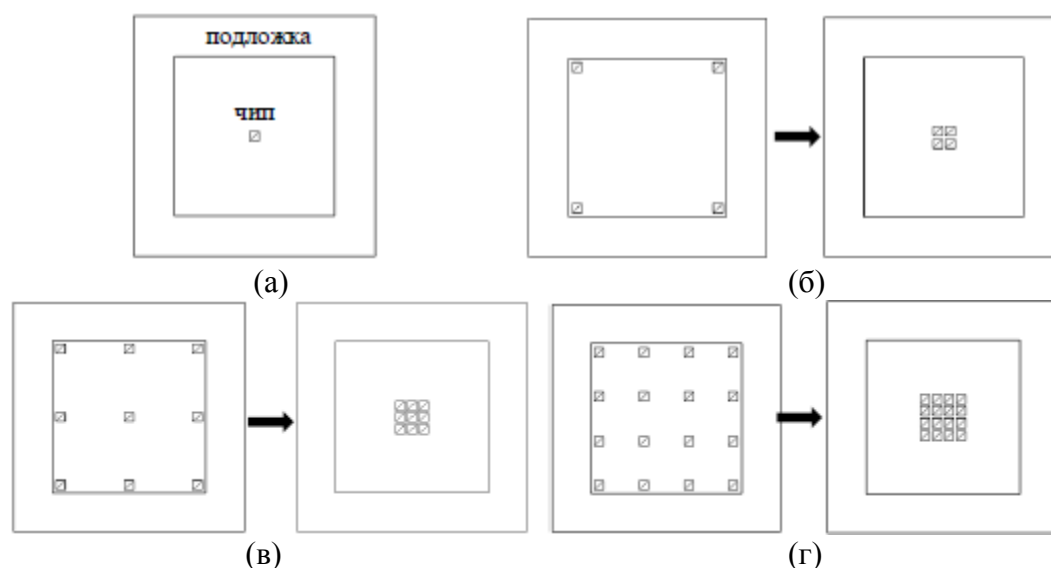


Рис. 3. Конструкции UV-COB (вид сверху) с «наименьшими» и «наибольшими» расстояниями между чипами: (а) 1 чип, (б) 4 чипа, (в) 9 чипов, (г) 16 чипов.

Моделирование проводилось с некоторыми упрощениями: из всего спектра излучения чипов задавалась лишь пиковая длина волны, коэффициент отражения поверхности подложки был использован для выбранной пиковой длины волны, как и коэффициент пропускания защитного покрытия, не учитывалось наличие проводочных контактов.

На Рис. 4 показана простейшая схема распространения излучения в UV-COB и некоторые характерные геометрические параметры. Угол полного внутреннего отражения (ПВО) α составляет для используемого материала покрытия 45.17° , все лучи, попадающие на поверхность покрытия под углами меньше α , покидают UV -COB (область (I)). Остальные лучи отражаются от поверхности покрытия внутрь устройства, часть из них попадает на подложку и соседние чипы (область (II)), часть выходит через боковую поверхность покрытия (область (III)). Для размеров чипа 0.4×0.4 мм и толщины покрытия 0.9 мм параметр $a = 1.2$ мм, $b = 1.5$ мм, c зависит от расположения чипа на подложке, для случая одного чипа, расположенного посередине подложки, $c = 3.4$ мм.

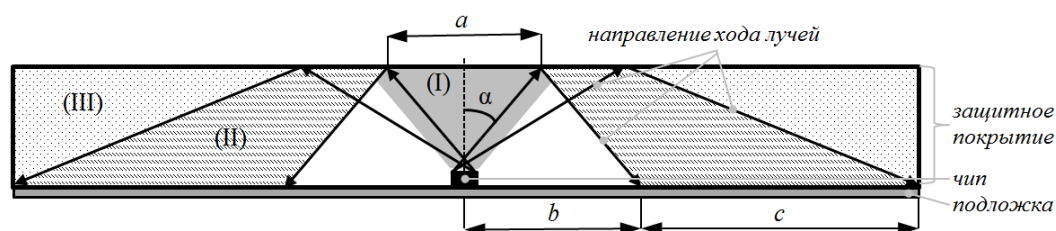


Рис. 4. Схема распространения излучения в одночиповой светодиодной сборке (вид сбоку).

Численное моделирование опытных образцов. На Рис. 5 приведены результаты модельных расчетов мощности излучения рассматриваемых вариантов конструкций UV-COB с пиковой длиной волны излучения 376 нм и экспериментальные данные.

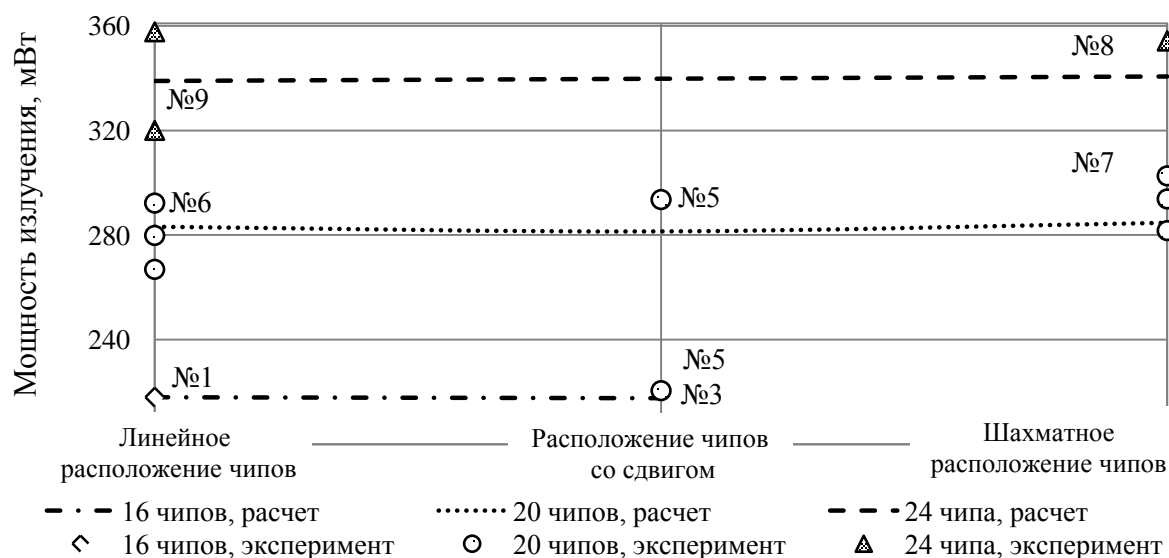


Рис. 5. Экспериментальные результаты и результаты расчетов мощности излучения UV-COB с длиной волны излучения 376 нм. Номер образца на рисунке соответствует варианту конструкции UV-COB, приведенной в Таблице 1.

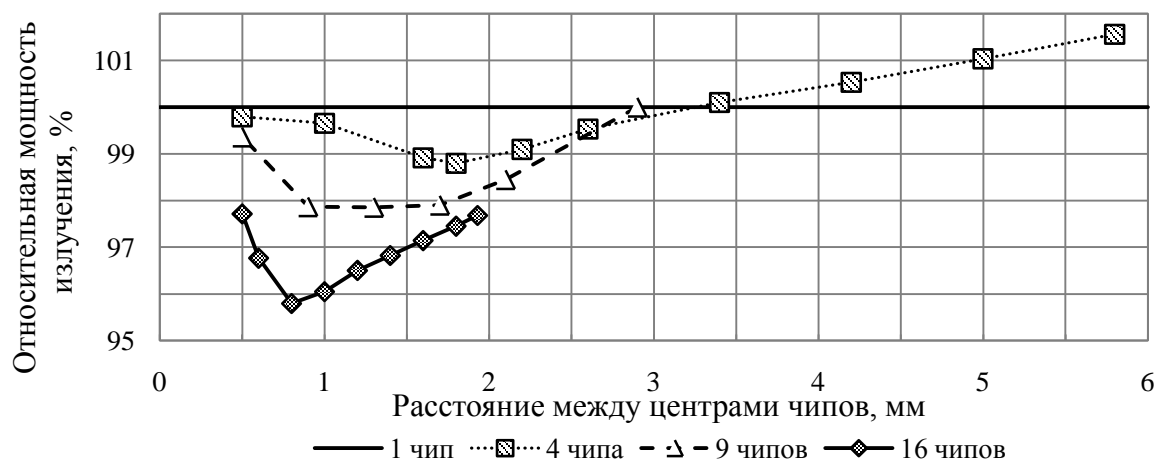


Рис. 6. Результаты параметрических расчетов относительной мощности излучения UV-COB с разным количеством чипов в зависимости от расстояния между чипами.

Для рассмотренных конструкций №№ 1–9 приняты обозначения: № 1, 2, 6, 9 — «линейное расположение чипов», № 3, 4, 5 — «расположение чипов со сдвигом», № 7, 8 — «шахматное расположение чипов». Как видно из Рис. 5, наблюдается хорошее согласие экспериментальных данных с данными модельных расчетов, подтверждая, что выбранные параметры моделирования заданы верно, и моделирование характеристик подобных устройств будет корректным.

Параметрические расчеты. На Рис. 6 изображены зависимости относительной мощности излучения для UV-COB от расстояния между чипами. Мощность излучения нормирована относительно мощности излучения UV-COB с одним чипом.

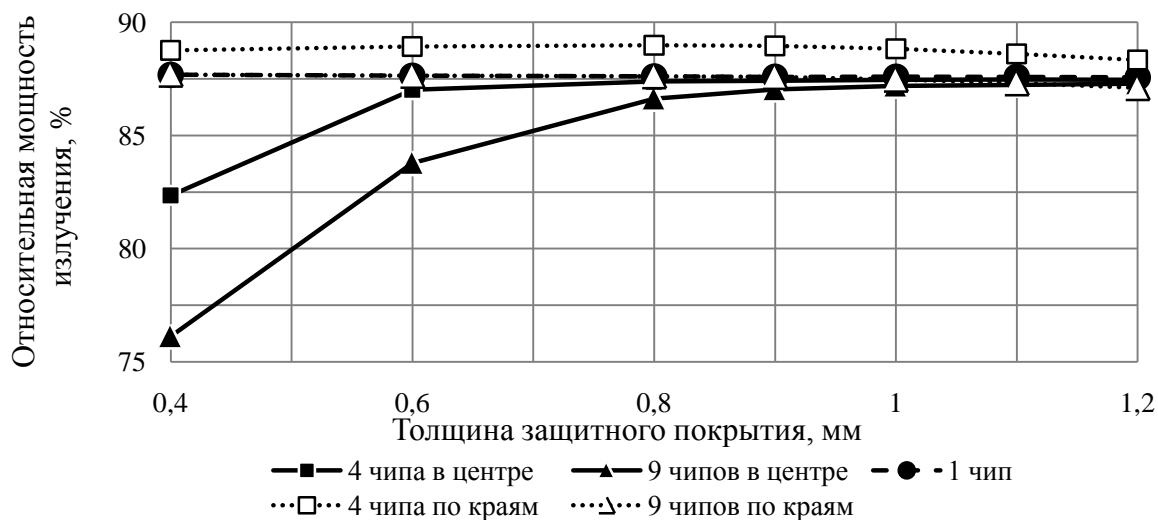


Рис. 7. Результаты параметрических расчетов относительной мощности излучения UV-COB с разным количеством чипов в зависимости от толщины защитного покрытия.

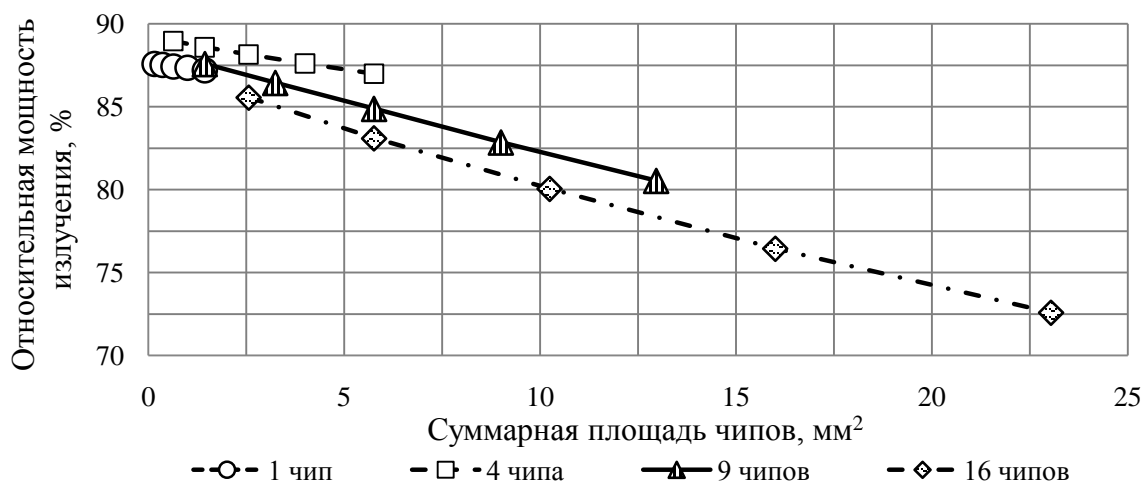


Рис. 8. Результаты параметрических расчетов мощности излучения UV-COB с разным количеством чипов в зависимости от суммарной площади чипов. Результаты представлены для чипов с длиной стороны чипа от 400 мкм до 1,2 мм.

В общем случае, чем меньше чипов в сборке, тем меньше потерь излучения за счет поглощения материалом чипов. Для каждой конструкции есть значение расстояния между центрами чипов, при котором достигается минимум мощности излучения. Для рассмотренных образцов это расстояние составляет: 1,8 мм для UV-COB из 4 чипов, 1,3 мм для UV-COB из 9 чипов, 0,8 мм для UV-COB из 16 чипов, это то расстояние, для которого большая поверхность чипов попадает в зону (II) соседних чипов (см. Рис. 4).

Оптимальное расстояние между чипами определяется их количеством и размером подложки. Существует два оптимальных расстояния:

- минимально возможное расстояние между чипами, которое обеспечивает расположение большинства чипов в зоне между зонами (I) и (II) (см. Рис. 4);
- максимально возможное расстояние между чипами, которое снижает их взаимное влияние и при котором чипы располагаются близко к краю подложки, что обеспечивает вывод света через боковую поверхность покрытия.

Разница между наименее (16 чипов на расстоянии 0.8 мм) и наиболее (4 чипа на расстоянии 5.8 мм) оптимальным вариантом составляет около 6 %.

На Рис. 7 изображены расчетные зависимости относительной мощности излучения UV-COB с 1, 4 и 9 чипами, находящимися на минимальном (чипы находятся в центре сборки, Рис. 3) и максимальном (чипы находятся по краям сборки, Рис. 3) расстоянии, от толщины защитного покрытия.

В случае, когда чипы располагаются на максимальном возможном расстоянии друг от друга, по краям подложки, зависимость от толщины защитного покрытия практически отсутствует. Для UV-COB, в которых чипы расположены на минимальном расстоянии друг от друга в центре подложки, оптимальная толщина защитного покрытия составляет 1.1 мм.

Для варианта UV-COB с 9 чипами в центре подложки зависимость мощности излучения от толщины защитного покрытия довольно заметная: разница между наименее (толщина покрытия 0.4 мм) и наиболее (толщина покрытия 1.2 мм) оптимальным вариантом составляет около 13 %.

На Рис. 8 представлены зависимости мощности излучения UV-COB с 1, 4, 9 и 16 чипами, находящимися на максимальном расстоянии, от общей площади чипов, изменяющейся с изменением размера чипов. Так как чипы поглощают излучение, попавшее на них, то эти расчеты подтверждают очевидный качественный эффект — чем больше общая площадь чипов, тем больше мощности излучения теряется. Зависимость мощности излучения от площади чипов линейная. Конструкция UV-COB с 4 чипами показывает лучшие результаты, поскольку в этом случае больше света выводится через боковые поверхности сборки. Для UV-COB с 9 и 16 чипами при увеличении площади чипов в четыре раза, мощность выводимого излучения изменяется на 5 %.

4. Заключение

Анализ характеристик изготовленных экспериментальных образцов ультрафиолетовых светодиодных сборок, выполненных по технологии «чип на плате», и проведенные модельные расчеты показали, что на эффективность устройства значительно влияют: толщина защитного покрытия, размер чипов и геометрия их расположения. Расчетными совместно с экспериментальными данными продемонстрировано, что существует некоторое оптимальное расстояние между УФ чипами, при котором достигается максимально возможная мощность излучения при заданных характеристиках компонентов устройств. Оптимальная геометрия обеспечивает, по крайней мере, десятипроцентный прирост эффективности для UV-COB.

Работа выполнена в рамках федеральной целевой программы «Исследования разработки по приоритетным направлениям развития научно-технологического комплекса России на 2007–2013 годы» при выполнении государственного контракта №12.527.12.5002 по теме: «Разработка опытно-промышленной технологии мощных светодиодныхборок «чип на плате», излучающих в УФ диапазоне, на основе нитридных полупроводниковых материалов».

Литература

- [1] M. Kneissl, T. Kolbe, C. Chua, V. Kueller, N. Lobo, J. Stellmach, A. Knauer, H. Rodriguez, S. Einfeldt, Z. Yang, N.M. Johnson, M. Weyers // *Semiconductor Science Technology* **26** (2011) 014036.
- [2] P.-M. Tu, C.-Y. Chang, S.-C. Huang, C.-H. Chiu, J.-R. Chang, W.-T. Chang, D.-S. Wu, H.-W. Zan, C.-C. Lin, H.-C. Kuo, C.-P. Hsu // *Applied Physics Letters* **98** (2011) 211107.

- [3] G. Tamulaitis // *Lithuanian Journal of Physics* **51** (3) (2011) 177.
- [4] <http://www.med-shop.ru/faq/ultra.htm>.
- [5] К.А. Виноградова, Н.В. Середова, В. Тезисах 9-ой Всероссийской конференции «Нитриды галлия, индия, алюминия: структуры и приборы» (Москва, 2013) с. 182.
- [6] В.Е. Бугров, *Физические основы оптимизации нитридных полупроводниковых гетероструктур для их применения в высокоэффективных светодиодных устройствах*. Диссертация на соискание ученой степени д.ф.-м.н. (Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе, Санкт-Петербург, 2013).
- [7] O. Svensk, P.T. Törmä, S. Suihkonen, M. Ali, H. Lipsanen, M. Sopanen, M.A. Odnoblyudov, V.E. Bougrov // *Journal of Crystal Growth* **310** (23) (2008) 5154.
- [8] P.T. Törmä, M. Ali, O. Svensk, S. Suihkonen, M. Sopanen, H. Lipsanen, M. Mulot, M.A. Odnoblyudov, V.E. Bougrov // *Cryst. Eng. Comm.* **12**(10) (2010) 3152.
- [9] M. Ali, O. Svensk, L. Riuttanen, M. Kruse, S. Suihkonen, A.E. Romanov, P.T. Törmä, M. Sopanen, H. Lipsanen, M.A. Odnoblyudov, V.E. Bougrov // *Semiconductor Science and Technology* **27**(8) (2012) 082002.
- [10] С.С. Суслов, К.А. Виноградова, В.Е. Бугров, М.А. Одоблюдов, А.Е. Романов // *Materials Physics and Mechanics* **14** (1) (2012) 78.
- [11] И.Н. Ивукин, Д.М. Артемьев, В.Е. Бугров, М.А. Одоблюдов, А.Е. Романов // *Физика Твёрдого Тела* **54** (12) (2012) 2102.
- [12] С.Н. Липницкая, К.Д. Мынбаев, Л.А. Никулина, В.Е. Бугров, А.Р. Ковш, М.А. Одоблюдов, А.Е. Романов // *Оптический журнал* **12** (2013) (в печати).
- [13] *Zemax 12. Optical Design Program. User's Manual* (Radiant Zemax LLC, 2012).
- [14] L. Szirmay-Kalos, *Monte-Carlo methods in global illumination* (Institute of Computer Graphics, Vienna University of Technology, Vienna, 2000).
- [15] М. Борн, Э. Вольф, *Основы оптики* (издательство «Наука», Москва, 1973).

OPTIMIZATION OF LIGHT EXTRACTION FROM POWER LED CHIP-ON-BOARD MODULES EMITTING IN ULTRAVIOLET RANGE OF SPECTRUM

**K.A. Vinogradova^{1,2,3*}, S.N. Lipnitskaya^{1,2}, K.D. Mynbaev^{1,2,3}, V.E. Bougrov^{1,2},
A.R. Kovsh^{1,2}, M.A. Odnoblyudov^{1,2}, V.I. Nikolaev^{2,3,4}, A.E. Romanov^{1,2,3}**

¹Optogan Group, Tallinskoe shosse 206, St. Petersburg, 198205, Russia

²St. Petersburg National Research University of Information Technologies, Mechanics and Optics,
Kronverkskiy pr. 49, St. Petersburg, 197101, Russia

³Ioffe Physical Technical Institute RAS, Polytekhnicheskaya 26, St. Petersburg, 194021, Russia

⁴Ltd. "Perfect crystals", Polytekhnicheskaya 26 A, St. Petersburg, 194064, Russia

*e-mail: K.Vinogradova@mail.ioffe.ru

Abstract. This article investigates the problem of light extraction from LED devices fabricated via chip-on-board technology and emitting in ultraviolet (UV) range (360-380 nm) of spectrum. The measurements of electrical and optical properties of devices with varying number and arrangement of semiconductor chips were conducted. Optimization modeling was

performed with Zemax software. Modeling included the choice of substrate material, variation in the chip arrangement, and the change in the properties of the covering layer. All together, the accomplished study allowed us to elaborate the recommendations for improving the performance of UV LED devices. In particular, it was demonstrated that the optimization of chip arrangement on the substrate can provide 10 % increase in energy efficiency of LED modules.

References

- [1] M. Kneissl, T. Kolbe, C. Chua, V. Kueller, N. Lobo, J. Stellmach, A. Knauer, H. Rodriguez, S. Einfeldt, Z. Yang, N.M. Johnson, M. Weyers // *Semiconductor Science Technology* **26** (2011) 014036.
- [2] P.-M. Tu, C.-Y. Chang, S.-C. Huang, C.-H. Chiu, J.-R. Chang, W.-T. Chang, D.-S. Wu, H.-W. Zan, C.-C. Lin, H.-C. Kuo, C.-P. Hsu // *Applied Physics Letters* **98** (2011) 211107.
- [3] G. Tamulaitis // *Lithuanian Journal of Physics* **51** (3) (2011) 177.
- [4] <http://www.med-shop.ru/faq/ultra.htm>.
- [5] K.A. Vinogradova, N.V. Seredova, In: *Abstracts of the 9th All-Russian Conference "Nitrides of gallium, indium, aluminum: structures and devices"* (Moscow, 2013), p. 182.
- [6] V.E. Bougrov, *Physical basis of the optimization of nitride semiconductor heterostructures for their application in high-performance LED devices*. Thesis for the degree of Doctor of Science (Ioffe Physical Technical Institute, St. Petersburg, 2013).
- [7] O. Svensk, P.T. Törmä, S. Suihkonen, M. Ali, H. Lipsanen, M. Sopanen, M.A. Odnoblyudov, V.E. Bougrov // *Journal of Crystal Growth* **310** (23) (2008) 5154.
- [8] P.T. Törmä, M. Ali, O. Svensk, S. Suihkonen, M. Sopanen, H. Lipsanen, M. Mulot, M.A. Odnoblyudov, V.E. Bougrov // *Cryst. Eng. Comm.* **12** (10) (2010) 3152.
- [9] M. Ali, O. Svensk, L. Riuttanen, M. Kruse, S. Suihkonen, A.E. Romanov, P.T. Törmä, M. Sopanen, H. Lipsanen, M.A. Odnoblyudov, V.E. Bougrov // *Semiconductor Science and Technology* **27** (8) (2012) 082002.
- [10] S.S. Suslov, K.A. Vinogradova, V.E. Bougrov, M.A. Odnoblyudov, A.E. Romanov // *Materials Physics and Mechanics* **14** (1) (2012) 78.
- [11] I.N. Ivukin, D.M. Artem'ev, V.E. Bougrov, M.A. Odnoblyudov, A.E. Romanov // *Physics of the Solid State* **54** (12) (2012) 2421.
- [12] S.N. Lipnitskaya, K.D. Mynbaev, L.A. Nikulina, V.E. Bougrov, A.R. Kovsh, M.A. Odnoblyudov, A.E. Romanov // *Journal of Optical Technology* **12** (2013) (in press).
- [13] *Zemax 12. Optical Design Program. User's Manual* (Radiant Zemax LLC, 2012).
- [14] L. Szirmay-Kalos, *Monte-Carlo methods in global illumination* (Institute of Computer Graphics, Vienna University of Technology, Vienna, 2000).
- [15] M. Born, E. Wolf, *Principles of Optics* (Pergamon Press, Oxford, 1968).