

Фоточувствительность волоконных световодов, легированных различными примесями

Ю.В.Ларионов, А.А.Рыбалтовский, С.Л.Семенов,
С.К.Вартапетов, М.А.Курзанов, А.З.Обидин

Оценены и сопоставлены фоточувствительности кварцевых волоконных световодов, легированных германием, фосфором, сурьмой и алюминием при насыщении их водородом. Показано, что, хотя для всех образцов существует возможность предэкспонирования, степень проявления этого эффекта в них заметно различается, т.к. наведение показателя преломления определяется совместным вкладом одноэтапной фотохимической реакции и двухэтапной, ответственной за предэкспонирование. В более фоточувствительных световодах преобладают одноэтапные, в менее фоточувствительных – двухэтапные фотохимические реакции.

Ключевые слова: фоточувствительность, предэкспонирование, дефекты стекла, наведенный показатель преломления, эксимерный лазер.

1. Введение

Возможность изменения показателя преломления (ПП) в кварцевых волоконных световодах под действием УФ излучения обнаружена давно и уже широко используется, например при изготовлении датчиков и телекоммуникационных устройств на основе брэгговских решеток ПП. Однако многие детали механизма изменения ПП остаются до сих пор невыясненными. Более того, относительно недавно экспериментально обнаружены новые проявления механизма изменения ПП в световодах. К ним относится и явление предэкспонирования [1].

Фоточувствительность различных световодов (способность к изменению ПП под действием УФ излучения) в исходном состоянии, как правило, мала для практического использования, однако она заметно увеличивается при насыщении этих световодов молекулярным водородом. В [1] было обнаружено, что возможна сенсibilизация световода, в результате чего его фоточувствительность заметно возрастает в отсутствие внутри него молекул H_2 . Сенсibilизацию проводят экспонированием насыщенного водородом образца гомогенным пучком УФ излучения с относительно малой экспозиционной дозой (по сравнению с дозой, необходимой для записи брэгговской решетки). Эту операцию называют предэкспонированием. После выхода из образца водорода световод может иметь повышенную фоточувствительность в течение длительного времени. Возможность сенсibilизации, достигаемая в результате предэкспонирования, была обнаружена сначала для германосиликатных световодов (ГСС) [1], затем для фосфоросиликатных (ФСС) [2], а недавно – для алюмо- и сурьмосиликатных

[3, 4]. Эта возможность, по-видимому, носит общий характер для световодов на основе кварцевого стекла.

В [5] было предложено объяснение сенсibilизации на основе предэкспонирования. Предполагается, что она реализуется с помощью двухэтапной фотохимической реакции, модифицирующей точечные дефекты в сердцевине световода. На первом этапе этой реакции из молекул образуются атомы водорода, которые встраиваются в исходные дефекты стекла. Модифицированные таким образом исходные дефекты становятся дефектами промежуточного типа. Они не изменяют ПП непосредственно, но под действием УФ излучения даже без молекулярного водорода способны модифицироваться в дефекты конечного типа, которые на втором этапе фотохимической реакции приводят к изменению ПП.

К настоящему времени предложено несколько механизмов, объясняющих изменение ПП в кварцевых световодах под действием УФ излучения. Во всех этих механизмах (и в случае их совместного действия) предполагается, что наведение ПП происходит в ходе одного этапа фотохимических преобразований исходных состояний или структур в конечные (см., напр., [6]). Существование двухэтапных фотохимических реакций в световодах ставит вопрос о соотношении между одноэтапными и двухэтапными реакциями, в частности о том, является ли двухэтапный процесс изменения ПП единственным, основным или сопутствующим одноэтапному. Решению этой задачи была посвящена работа [7], однако ответ был получен только для ФСС.

Цель данной работы – определить наличие двухэтапных и одноэтапных фотохимических процессов в волоконных световодах, созданных на основе кварцевого стекла, легированного различными примесями, и оценить соотношение между ними.

2. Условия эксперимента

Экспериментальные исследования проводились на волоконных световодах, легированных четырьмя различными химическими элементами, для которых эф-

Ю.В.Ларионов, А.А.Рыбалтовский, С.Л.Семенов. Научный центр волоконной оптики при Институте общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 119991 Москва, ул. Вавилова, 38
С.К.Вартапетов, М.А.Курзанов, А.З.Обидин. Научный центр физического приборостроения при Институте общей физики им. А.М.Прохорова РАН, Россия, 142190 Троицк, Московская область

фект предэкспонирования уже был экспериментально зафиксирован. Это ГСС, ФСС, а также световоды, легированные сурьмой и алюминием. Световоды, наиболее изученные в отношении фоточувствительности (легированные германием и фосфором), в наших экспериментах были представлены образцами с разной концентрацией легирующей добавки. Образцы ФСС с малыми оптическими потерями [8] имели молярное содержание оксида фосфора 10.2 % ($\Delta N = 0.009$, $\lambda_c = 1.03$ мкм) и 12.5 % ($\Delta N = 0.01$, $\lambda_c = 1.1$ мкм). В дальнейшем они будут обозначены как P10.2 и P12.5 соответственно. Образцы ГСС имели молярное содержание оксида германия 3.5 % (аналог Corning SMF 28, $\Delta N = 0.005$, $\lambda_c = 1.24$ мкм, обозначение – SM28) и 4.5 % (аналог Flexcore, $\Delta N = 0.0065$, $\lambda_c = 0.96$ мкм, обозначение – Flxc). Для световода, легированного сурьмой (Sb), молярная концентрация оксида составила 1 % ($\Delta N = 0.01$, $\lambda_c = 1.03$ мкм). Для образца с алюминием и эрбием (Al/Er) молярное содержание Al_2O_3 равнялось 9 %, а массовое содержание Er^{3+} – 0.6 % ($\Delta N = 0.0206$, $\lambda_c = 0.98$ мкм). Концентрации оксидов контролировались по сколу волокон с помощью рентгеновского микроанализатора электронного микроскопа JSM-5910LV (JEOL).

Необходимость сравнивать волоконные световоды, которые могут заметно различаться по фоточувствительности, предъявляет повышенные требования к методу измерений наведенного ПП, а также к воспроизводимости условий эксперимента при подготовке образцов к экспонированию и при проведении самого экспонирования.

Для оценки наведенного ПП в волоконных световодах, как правило, используется метод записи брэгговских решеток. На предварительном этапе работы мы провели измерения фоточувствительности двумя методами: по результатам записи брэгговских решеток и интерференционным способом. Принципы и детали этих экспериментов описаны в [7]. Результаты измерений наведенного ПП этими двумя методами заметно различаются. В данных, полученных интерференционным методом, оказалось возможным выделить такие закономерности проявления фоточувствительности в различных волокнах, которые отсутствовали в данных, полученных методом брэгговских решеток. Кроме того, воспроизводимость значений наведенного ПП, полученных с помощью интерференционного метода, выше, чем при использовании метода брэгговских решеток. Это объясняется рядом метрологических недостатков последнего метода по сравнению с интерференционным:

1. Сложность обнаружения момента появления пика отражения от брэгговской решетки при малых дозах экспонирования и ограниченная способность регистрации амплитуды этого пика при больших дозах, определяемая техническими возможностями спектроанализатора, сужают диапазон доз экспонирования, в котором можно контролировать фоточувствительность волоконных световодов.

2. Динамика записи брэгговских решеток существенно зависит от степени когерентности излучения эксимерного лазера. Она различна для разных лазеров, зависит от настройки оптической системы лазера и схемы записи решетки. Зависимость наведенного ПП от когерентности света при записи решетки ухудшает его воспроизводимость и затрудняет сравнение его значений, полученных с помощью различных эксимерных лазеров.

3. Заметное влияние на воспроизводимость наведенного ПП в методе брэгговских решеток оказывает зазор между волокном и фазовой маской, с помощью которой формируется брэгговская решетка. Невоспроизводимость величины зазора, не контролируемая в наших экспериментах, определяет и невоспроизводимость наведенного ПП в данном методе.

4. Фазовая маска распределяет падающий на нее свет не только в 1-й и –1-й порядки дифракции, но и в другие порядки. В результате ограничивается контраст формируемой интерференционной картины, что искажает распределение наведенного ПП при больших дозах экспонирования.

В результате мы убедились в предпочтительности получения данных интерференционным методом, поэтому далее приводим результаты оценки наведенного ПП, полученные только этим методом.

Обеспечение воспроизводимости условий наведения ПП в исследуемых световодах сводилось к следующему. Все исследуемые световоды одинаково насыщались молекулярным водородом при внешнем давлении 100 атм и температуре 100 °С. Их облучение проводилось эксимерными лазерами CL-5000, CL-7000 [9] и Lumonics-520 (Lum) на длине волны 193 нм с одинаковой плотностью энергии в импульсе для сопоставляемых результатов. Частота следования лазерных импульсов во всех экспериментах составляла 10 Гц.

3. Результаты исследований и их обсуждение

Результаты измерения наведенного ПП в различных световодах представлены на рис.1. Наиболее заметной особенностью в расположении кривых является большой разброс в значениях доз экспонирования, при которых достигается наведенный ПП на уровне 10^{-5} – 10^{-4} и малый разброс доз для наведенного ПП вблизи 10^{-3} – 5×10^{-3} , т.е. сближение кривых при увеличении дозы экспонирования.

Другая особенность кривых на рис.1 – разный характер роста наведенного ПП для различных образцов. Кривые 4, 5, 6, расположенные слева на рис.1, отображают рост ПП в световодах, обладающих относительно высокой фоточувствительностью в диапазоне малых доз экс-

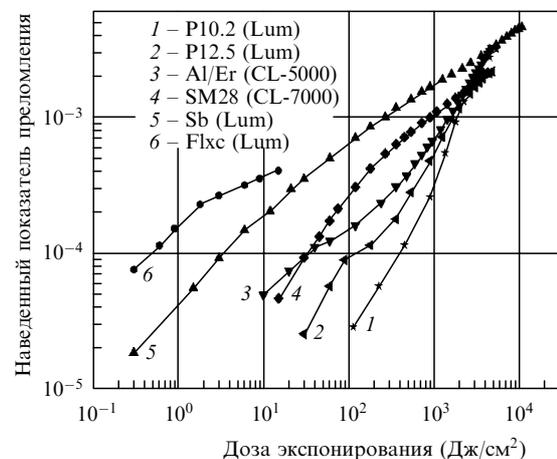


Рис.1. Дозные зависимости наведенного ПП волокон, насыщенных H_2 . Плотность энергии излучения в импульсе для кривых 1, 2, 3, 5 и 6 составляет 300 мДж/см², для кривой 4 – 200 мДж/см². Для каждой кривой указан тип волокна и тип лазера.

понирования. В этом диапазоне они растут почти линейно в двойном логарифмическом масштабе, а при больших дозах стремятся к насыщению. Кривые 1, 2, 3 с меньшей фоточувствительностью, расположенные справа на рис.1, растут по-другому. Они имеют участок линейного роста при малых дозах (на кривой 2 – до $100 \text{ Дж} \times \text{см}^{-2}$, на кривой 1 он практически отсутствует), который сменяется участком замедленного роста; за ним следует участок с ускоренным ростом и, наконец, рост вновь замедляется и зависимость насыщается. В литературе такой характер роста назван S-образным [10].

Последовательный характер изменений в форме кривых 6–1 от первого типа поведения ко второму наводит на предположение, что существует единое для всех световодов свойство фоточувствительности, проявляющееся качественно различно для образцов с высокой и низкой фоточувствительностью и имеющее переходные формы для образцов со средней фоточувствительностью. Мы предположили, что это свойство связано с эффектом предэкспонирования. Для подтверждения нашего предположения были проведены оценки фоточувствительности исследуемых световодов в трех режимах экспонирования: при насыщении водородом, после проведения предэкспонирования и в исходном состоянии, т. е. без насыщения водородом (табл.1). Все значения наведенного ПП измерены при дозе экспонирования 1 кДж/см^2 . Доза предэкспонирования для ФСС и ГСС выбиралась такой, чтобы достигалось максимальное значение наведенного ПП при экспонировании на втором этапе (~ 2 [11] и $\sim 0.1 \text{ кДж/см}^2$ [5] соответственно). Для световода, легированного сурьмой, это значение составило 1 кДж/см^2 , для световода, легированного алюминием, – 1.2 кДж/см^2 .

Проявление эффекта предэкспонирования в различных световодах можно оценивать по значению наведенного ПП в предэкспонированном образце по сравнению с наведенным ПП в исходном и насыщенном водородом образцах. Наиболее заметно эффект предэкспонирования проявляется в ФСС. Как видно из табл.1, значение наведенного ПП в предэкспонированном образце ФСС даже превышает соответствующее значение в образце, насыщенном водородом (6×10^{-4} против 4×10^{-4}). Слабее всего эффект предэкспонирования проявлялся в световоде, легированном сурьмой: наведенный ПП в предэкспонированном образце лишь немного превышал наведенный ПП в исходном. В германосиликатном световоде предэкспонирование проявляет себя заметнее, чем в сурьмосиликатном, но слабее, чем в алюмосиликатном. Таким образом, степень проявления эффекта предэкспонирования коррелирует с расположением кривых на рис.1 (убывает для кривых, расположенных последовательно слева направо).

В [7] было показано, что S-образный вид дозной зависимости связан с прохождением в световоде двухэтап-

ной фотохимической реакции. Зависимость такого вида характерна для световодов, легированных фосфором (кривые 1 и 2 на рис.1). Оказалось, что она существует и для образца, легированного алюминием (кривая 3). Отсутствие S-образной формы для кривых 4–6 на рис.1 свидетельствует о том, что в этих световодах двухэтапные фотохимические реакции, по-видимому, имеют ограниченное влияние на наведенный ПП.

Для объяснения формы кривых 4–6 на рис.1 можно предположить, что наведение ПП в различных насыщенных водородом волокнах есть результат прохождения одновременно двух фотохимических реакций. Первой – одноэтапной с модификацией исходных дефектов, в результате чего сразу возникают дефекты конечного типа, приводящие к изменению ПП, и второй – двухэтапной. В разных световодах соотношения между интенсивностями этих фотохимических реакций, по-видимому, заметно различаются. В волоконных световодах, фоточувствительность которых отображена кривыми 4–6, основной реакцией, по нашему мнению, является одноэтапная. Изменение ПП в кривых 1–3 определяется возрастающим влиянием двухэтапной реакции.

Первое свидетельство о прохождении в одном световоде одноэтапной и двухэтапной фотохимических реакций было представлено в [7] для ФСС и основано на анализе производной дозной зависимости наведенного ПП по дозе $d(\Delta N_{\text{ind}})/dD$. Оказалось, что изменения производной отображают динамику концентрации дефектов разных типов, предшествующих образованию дефектов конечного типа. Было выявлено, что в ФСС концентрация промежуточных дефектов растет довольно медленно (по сравнению с ГСС [5]), достигая максимума при дозе $\sim 2000 \text{ Дж/см}^2$. Изменение концентрации дефектов другого типа, участвующих только в одноэтапной реакции, происходит в диапазоне доз $0–500 \text{ Дж/см}^2$. Указанные изменения в концентрации дефектов различных типов происходят в разных диапазонах дозы экспонирования, не мешая фиксировать каждое из них в отдельности. Можно предположить, что для других световодов, исследуемых нами в данной работе (кривые 4–6 на рис.1), одноэтапная и двухэтапная реакции проходят в одном диапазоне дозы экспонирования. В этом случае более активная одноэтапная фотохимическая реакция способна маскировать проявление менее активной двухэтапной.

Используя те же исходные математические выражения для описания динамики концентрации дефектов в световоде, что и в [7], представим уравнения для одновременного изменения концентрации дефектов, принимающих участие в одноэтапной и двухэтапной фотохимических реакциях. Для упрощения предположим, что одни и те же дефекты исходного типа являются источником для промежуточных дефектов в двухэтапной фотохимической реакции и конечных дефектов в одноэтапной. Тогда уравнения в рамках модели, предложенной в [5], можно записать в виде

$$\begin{aligned} \dot{A} &= -(v_1^t + v^o)A, \\ \dot{B} &= v_1^t A - v_2^t B, \\ \dot{C}^t &= v_2^t B, \\ \dot{C}^o &= v^o A, \end{aligned} \tag{1}$$

Табл.1.

Легированная добавка	Молярная концентрация (%)	ΔN_{ind}		
		Образец, насыщенный H_2	Предэкспонированный образец	Исходный образец
Sb_2O_3	1	1.5×10^{-3}	7×10^{-4}	6×10^{-4}
GeO_2	3.5	1.5×10^{-3}	6×10^{-4}	4×10^{-4}
$\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Er}$	9	7×10^{-4}	5×10^{-4}	8.5×10^{-5}
P_2O_3	12	4×10^{-4}	6×10^{-4}	3×10^{-5}

где A – концентрация исходных дефектов, разрушение которых приводит к формированию промежуточных дефектов с концентрацией B в ходе двухэтапной реакции и к формированию дефектов конечного типа с концентрацией C^o в ходе одноэтапной реакции. Концентрация C^t относится к дефектам, рождающимся при разрушении промежуточных дефектов на втором этапе в двухэтапной реакции. Изменение концентрации исходных дефектов происходит со скоростями v_1^t при образовании промежуточных дефектов в двухэтапной реакции и v^o при образовании конечных дефектов в одноэтапной реакции. Скорость v_2^t определяет быстроту модификации промежуточных дефектов в конечные на втором этапе двухэтапной фотохимической реакции.

Мы предполагаем, что изменение наведенного ПП линейно связано с концентрацией дефектов конечного типа $C^o + C^t$. Тогда из (1) следует, что по изменению наведенного ПП, пропорционального $C^o + C^t$, экспериментально можно зафиксировать динамику изменения величины $A^o + B$, где A^o – та часть исходных дефектов A , которая участвует только в одноэтапной фотохимической реакции. Действительно, производная по концентрации дефектов конечного типа dC^t/dD пропорциональна концентрации промежуточных дефектов B , а dC^o/dD пропорциональна A^o , тогда сумма этих производных пропорциональна $A^o + B$.

Построенные в соответствии с (1) дозные зависимости концентрации части исходных дефектов A^t в двухэтапной реакции (кривая 1) и A^o – в одноэтапной (кривая 2), а также дозная зависимость концентрации промежуточных дефектов B (кривая 3) и сумма $A^o + B$ для случая, когда $v_1^t = v_2^t$, а $v^o = 0.25v_1^t$ (кривая 4), и для случая, когда $v^o = 0.13v_1^t$ (кривая 5), показаны на рис.2. Суммарная концентрация $A^o + B$ является убывающей функцией со ступенчатым характером изменения, который слабо заметен, когда скорость одноэтапной реакции превышает скорость двухэтапной. С уменьшением активности одноэтапной реакции по отношению к двухэтапной ступенчатый характер зависимости усиливается, и в дальнейшем появляется минимум (кривая 5). Все эти изменения проявляются в диапазоне доз, внутри которого происходит рост и достигается максимум концентрации промежуточных дефектов B .

Справедливость предсказаний теории о ступенчатом характере изменения концентрации дефектов в дозной зависимости при одновременном прохождении одно-

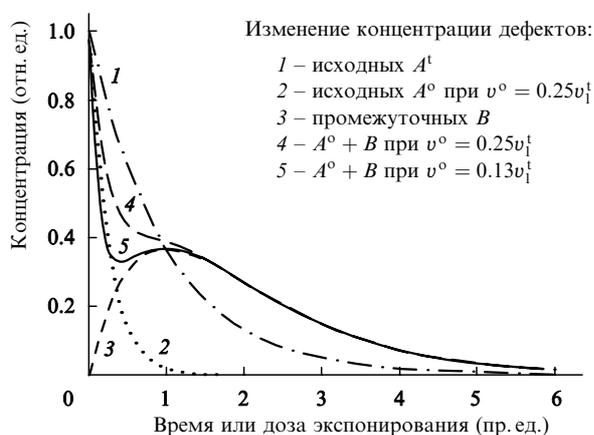


Рис.2. Нормированные дозные зависимости концентрации дефектов, рассчитанные в соответствии с (1).

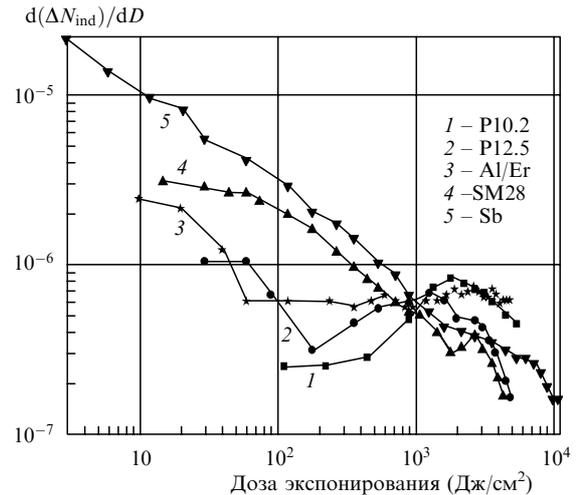


Рис.3. Дозные зависимости $d(\Delta N_{ind})/dD$ для кривых наведенного ПП, представленных на рис.1.

этапной и двухэтапной реакций можно проверить экспериментально с использованием данных, представленных на рис.1.

Производные взятых из рис.1 дозных зависимостей наведенного ПП показаны на рис.3. Они отображают динамику концентрации дефектов, предшествующих образованию дефектов конечного типа. Ступенчатый характер изменения концентрации дефектов $A^o + B$ можно обнаружить на кривых 3–5 рис.3 в диапазоне доз $10 - 10^3$ Дж/см², а минимум – на кривой 2. Любопытно, что для кривых 4 и 5 ступенчатый характер изменения концентрации дефектов повторно наблюдается в диапазоне $10^3 - 10^4$ Дж/см² (т.е. за пределом диапазона проявления высокой фоточувствительности образцов, легированных германием и сурьмой (см. рис.1)).

В начале экспонирования наивысшая концентрация дефектов $A^o + B$ имеет место для самого фоточувствительного образца, легированного сурьмой, меньшая – для образцов, легированных германием, еще меньшая – алюминием и, наконец, фосфором с молярной концентрацией 12.5 % (см. рис.3). Для образца, легированного фосфором с молярной концентрацией $\sim 10\%$ окисла, концентрация исходных дефектов типа A^o практически незаметна. Это свидетельствует о том, что активность одноэтапной реакции по отношению к двухэтапной максимальна для кривой 5 и последовательно уменьшается для кривых 4–1. Такое соотношение проявляется, на наш взгляд, также в форме и ширине ступенек кривых на рис.3: едва заметная для кривых 5 и 4 ступенька становится широкой для кривой 3, затем в ней появляется провал на кривой 2 (ср. с кривыми 4 и 5 на рис.2). Все это означает, что фоточувствительность волоконных световодов в диапазоне экспозиций $10 - 10^3$ Дж/см² определяется в основном одноэтапными фотохимическими реакциями.

На рис.3 видно, что в диапазоне доз более 1 кДж/см² дозная зависимость концентрации для обоих образцов ФСС (кривые 1 и 2) имеет максимум в диапазоне 1.3–1.8 кДж/см². В [7] было доказано, что эти максимумы отражают динамику изменения концентрации промежуточных дефектов B . В образце с меньшей концентрацией фосфора (кривая 1) достигается большее значение B , чем в образце с большей концентрацией (кривая 2). Формально это означает, что двухэтапный процесс в первом случае проходит более активно.

Наличие ступеньки в дозной зависимости наведенного ПП в диапазоне доз более 1 кДж/см² для образца, легированного сурьмой (кривая 5), и существование максимума и минимума для образца, легированного германием (кривая 4), мы не можем объяснить в рамках данных исследований. Возможно, они связаны с прохождением каких-то еще двухэтапных реакций в этих образцах.

Таким образом, форма всех кривых на рис.3 (и, следовательно, на рис.1) в диапазоне доз экспонирования до 1 кДж/см² может объясняться совместным прохождением одноэтапной и двухэтапной фотохимических реакций. Как видно из рис.3, в случае, когда одноэтапная фотохимическая реакция является доминирующей (как для кривых 4–6 на рис.1), двухэтапная реакция проявляется слабо. Для кривой 1 ситуация обратная. И только для кривых 2 и 3 концентрации дефектов, принимающих участие в одноэтапном и двухэтапном процессах, примерно равны. Любопытно отметить, что вне зависимости от выбранного пути, модификация исходных дефектов в разных световодах приводит в конечном счете к примерно одинаковым значениям наведенного ПП при дозе ~ 5–6 кДж/см² (рис.1).

4. Выводы

Эффект предэкспонирования, связанный с прохождением двухэтапной фотохимической реакции, определяет динамику наведения ПП во всех исследованных световодах, насыщенных водородом. Совместно с двухэтапной фотохимической реакцией во всех световодах протекает и одноэтапная фотохимическая реакция, причем соотношение интенсивностей этих двух реакций в световодах с различным легированием разное.

Двухэтапная фотохимическая реакция доминирует в наведении ПП в световодах, имеющих относительно сла-

бую фоточувствительность в исходном состоянии, например в ФСС. Эти световоды очень удобны для исследования двухэтапной фотохимической реакции и из-за слабости одноэтапного фотохимического процесса и разделенности одноэтапного и двухэтапных процессов по диапазонам доз экспонирования.

Для световодов, легированных оксидами сурьмы и германия и имеющих относительно высокую фоточувствительность в исходном состоянии, в динамике наведения ПП преобладают одноэтапные процессы. В этих световодах одноэтапные и двухэтапные фотохимические реакции протекают в одном диапазоне доз, в результате чего каждый из процессов вносит вклад в общий рост показателя преломления.

1. Dyer P., Farley R., Giedl R., Byron K. *Electron. Lett.*, **30** (14), 1133 (1994).
2. Canning J., Pasman R., Sceats M.G. *Proc. Conf. Photosens. Quadr. Non-Linearity in Glass Waveguides* (Portland, Oregon, 1995, p. 86).
3. Larionov Y.V., Rybaltovsky A.A., Semjonov S.L., et al. In: *Bragg Gratings Photosensitivity and Poling in Glass Waveguides. Techn. Dig.* (Monterey, California, 2003, MC4).
4. Larionov Y.V., Rybaltovsky A.A., Semjonov S.L., et al. *Opt. Mater.* (in press).
5. Canning J. *Optical Fiber Technology*, **6**, 275 (2000).
6. Дианов Е., Неуструев В. В сб. *Волоконно-оптические технологии, материалы и устройства* (М.: Изд-во Н.Бочкаревой, 1998, с. 64).
7. Ларионов Ю.В., Рыбалтовский А.А., Семенов С.Л., Курзанов М.А., Обидин А.З., Вартапетов С.К. *Квантовая электроника*, **33** (10), 919 (2003).
8. Dianov E.M., et al. *Tech. Dig. OFC'99* (San Diego, USA, 1999, PD25).
9. Атежев В.В., Вартапетов С.К., Жуков А.Н., Курзанов М.А., Обидин А.З. *Квантовая электроника*, **33** (8), 689 (2003).
10. Ramecourt D., Niay P., Bernage P., Riant I., Douay M. *Electron. Lett.*, **35** (4), 329 (1999).
11. Ларионов Ю.В., Рыбалтовский А.А., Семенов С.Л., Бубнов М.М., Дианов Е.М. *Квантовая электроника*, **32** (2), 124 (2002).