

# **FFI RAPPORT**

## **ELEKTROOPTISKE BEGRENSERE**

VILLANGER Asta Storebø, BRUDEVOLL Trond, AJER Halvor,  
STENERSEN Knut

**FFI/RAPPORT-2002/01876**



FFIE/792/113

Godkjent  
Kjeller 15 april 2002

Stian Løvold  
Forskningsjef

## **ELEKTROOPTISKE BEGRENSERE**

VILLANGER Asta Storebø, BRUDEVOLL Trond, AJER  
Halvor, STENERSEN Knut

FFI/RAPPORT-2002/01876

**FORSVARETS FORSKNINGSINSTITUTT**  
**Norwegian Defence Research Establishment**  
Postboks 25, 2027 Kjeller, Norge



P O BOX 25  
 NO-2027 KJELLER, NORWAY  
**REPORT DOCUMENTATION PAGE**

**SECURITY CLASSIFICATION OF THIS PAGE**  
 (when data entered)

1) PUBL/REPORT NUMBER FFI/RAPPORT-2002/01876	2) SECURITY CLASSIFICATION UNCLASSIFIED	3) NUMBER OF PAGES 65
1a) PROJECT REFERENCE FFIE/792/113	2a) DECLASSIFICATION/DOWNGRADING SCHEDULE -	
4) TITLE ELEKTROOPTISKE BEGRENSERE  ELECTROOPTICAL LIMITERS		
5) NAMES OF AUTHOR(S) IN FULL (surname first) VILLANGER Asta Storebø, BRUDEVOLL Trond, AJER Halvor, STENERSEN Knut		
6) DISTRIBUTION STATEMENT Approved for public release. Distribution unlimited. (Offentlig tilgjengelig)		
7) INDEXING TERMS IN ENGLISH:		
a) <u>Optical limiters</u>	b) <u>Nonlinear optical properties</u>	c) <u>Optical self-focusing</u>
d) <u>Organic macromolecules</u>	e) _____	
IN NORWEGIAN:		
a) <u>Optiske begrensnere</u>	b) <u>Ikke-lineære optiske egenskaper</u>	c) <u>Optisk selvfokusering</u>
d) <u>Organiske makromolekyler</u>	e) _____	
THESAURUS REFERENCE: INSPEC		
8) ABSTRACT A description is given of physical mechanisms and promising materials which can be utilized in optical power limiting devices. The discussion is focussed on use of such limiters for protection of military electro-optic sensors and personnel against laser countermeasures. The best known limiter materials, suitable for different wavelength ranges from the visible to the far infrared spectral region, are presented together with a discussion of material properties. Important material data and results from published experimental work are summarized in a table. The report also presents experimental results obtained at FFI with optical limiters based on carbon-black suspensions and CS <sub>2</sub> .		
9) DATE 15 April 2002	AUTHORIZED BY This page only Stian Løvold	POSITION Director of Research

ISBN-82-464-0613-2

**UNCLASSIFIED**

**SECURITY CLASSIFICATION OF THIS PAGE**  
 (when data entered)



**INNHOOLD**

	<b>Side</b>	
1	INNLEDNING	7
2	GEOMETRIER OG DEFINISJONER	8
2.1	Geometrier	8
2.2	Definisjon av sentrale parametere som beskriver begrenserens ytelse	9
2.3	Eksempler på ytelseskrav	11
3	FYSISKE PROSESSER I BEGRENSERMATERIALER	11
3.1	Generelt om begrensermekanismer og materialer	12
3.2	Elektronisk struktur og prosesser i organiske molekyler og halvledere	13
3.2.1	Organiske molekyler	13
3.2.1.1	Karbon-karbon bindinger	13
3.2.1.2	Energibånd	15
3.2.2	Halvledere	16
3.3	Ikke-lineære absorpsjonsmekanismer	16
3.3.1	RSA – forenklet modell	17
3.3.2	RSA i organiske molekyler	20
3.3.3	Two-photon absorption – TPA	20
3.3.3.1	TPA i molekyler	20
3.3.3.2	TPA i halvledere	23
3.4	Mekanismer som påvirker begrensermaterialets brytningsindeks	23
3.4.1	Termiske effekter	23
3.4.2	Spredning	24
3.4.2.1	Fotonisk båndgap spredning	24
3.4.2.2	Fotorefraktiv spredning	24
3.4.3	Molekylær reorientering	25
3.4.4	Elektrostriksjon	26
3.4.5	Selvfokusering og dielektrisk sammenbrudd	26
4	OVERSIKT OVER AKTUELLE MATERIALER OG DERES BRUKSOMRÅDER	27
4.1	Materialer for synlig og nær-IR stråling (0.4 - 2 $\mu\text{m}$ )	27
4.1.1	Konjugerte polymere	27
4.1.1.1	Donor-akseptor polymere	28
4.1.1.2	Dendrimer-molekyler	30
4.1.1.3	Porphyriener, phtalo- og naphtalo-cyaniner	30
4.1.1.4	Calixarener	32
4.1.2	Halvledere	32
4.1.3	Karbonpartikler	32
4.1.4	Fullerener	33
4.1.5	Nanopartikler	34
4.1.6	CS <sub>2</sub>	35
4.1.7	Flytende krystaller	36
4.1.8	Fiberarrayer	37
4.1.9	Fotonisk båndgap krystaller	38

4.2	Materialer for mid-IR (3 - 5 $\mu\text{m}$ )	39
4.3	Materialer for langbølget IR (8 - 12 $\mu\text{m}$ )	40
4.3.1	Gass-celler	40
4.3.2	Vanadiumoksyder ( $\text{V}_x\text{O}_y$ )	41
4.3.3	Halvledere	43
4.3.4	Karbondisulfid ( $\text{CS}_2$ )	43
5	DATA FOR AKTUELLE BEGRENSERMATERIALER OG EKSEMPEL PÅ YTELSE FOR EN TANDEMBEGRENSER	44
5.1	Data for aktuelle materialer	44
5.2	Eksempel på tandembegrenser	49
6	EKSPERIMENTER UTFØRT VED FFI	49
6.1	Eksperimentelt oppsett	49
6.2	Forsøk med CBS	51
6.3	Forsøk med $\text{CS}_2$	54
6.3.1	Teoretiske arbeider	54
6.3.2	Tidligere eksperimentelle arbeider	55
6.3.3	Eksperimenter utført ved FFI	56
7	KONKLUSJON	58
	Litteratur	60
	Fordelingsliste	65



## ELEKTROOPTISKE BEGRENSERE

### 1 INNLEDNING

Bruk av lasere som direkte motmidler for narring, blinding eller ødeleggelse av elektro-optiske sensorer representerer en økende militær trussel. I FFI-prosjektet *P792 – IR laser motmidler og beskyttelse* blir temaet laser motmidler studert, både gjennom utvikling av laserkilder, bruk av disse kildene til å måle virkningen mot ulike typer komponenter og sensorer, og gjennom studier av beskyttelsestiltak. Denne rapporten omhandler beskyttelsestiltak i form av optiske begrensere.

Metoder for strålingsbeskyttelse av elektrooptiske sensorer kan grovt klassifiseres i to kategorier: metoder som hindrer gitte bølgelengder i å nå billedplanet, og metoder som begrenser strålingsintensiteten inn mot billedplanet, selv om bølgelengden ligger innenfor sensorens følsomhetsområde, Brudevoll *et al.* [1]. Den første metoden baseres vanligvis på bruk av klassiske dielektriske tynnfilmfiltre eller filtre laget av bølgelengdeselektive absorberende materialer, som delvis benyttes til å definere sensorens følsomhetsområde og som i tillegg gir kraftig demping for bølgelengden til spesielt farlige lasertyper. Dette er på sikt en lite tilfredsstillende beskyttelsesmetode, både fordi filterne i betydelig grad begrenser den ønskede strålingstransmittansen inn til billedplanet og fordi det etter hvert blir utviklet effektive laserkilder med bølgelengder som kan avstemmes over hele det aktuelle følsomhetsområdet til de enkelte sensortypene.

Den andre metoden, som er hovedtemaet for denne rapporten, er basert på ikke-lineære materialer som begrenser den transmitterte strålingsintensiteten når intensiteten overskrider et visst nivå, og som dermed hindrer at skadelige strålingsdoser når billedplanet, Hollins [2]. Dette betyr at sensoren under normal bruk (vanlige lysforhold i scenen) kan ha full følsomhet over hele det spektralområdet som man ønsker å benytte. Dersom sensoren derimot belyses med intens laserstråling, vil transmittansen i det ikke-lineære begrensermaterialet reduseres drastisk, slik at skader ikke oppstår. Denne prosessen er selvregulerende, og normal transmisjon gjenoprettes etter pulsen såfremt det ikke-lineære materialet ikke er blitt skadet.

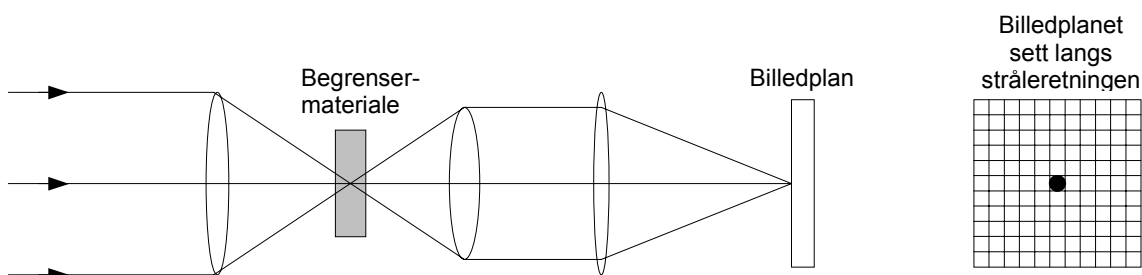
Kapittel 2 i rapporten gir en enkel innføring i hovedprinsipper og geometrier for optiske begrensere og definerer noen sentrale størrelser vedrørende begrenserens ytelse. I kapittel 3 gis en orientering om sentrale ikke-lineære fysiske mekanismer som benyttes, mens spesifikke karakteristika for de mest aktuelle materialene blir diskutert i kapittel 4. I kapittel 5 gis eksempler på noen av de mest lovende resultatene som er rapportert i åpen litteratur, mens kapittel 6 beskriver resultater oppnådd i innledende eksperimenter utført på FFI med to ikke-lineære materialer. En oppsummering og konklusjoner vedrørende status og utsikter for denne teknologien gis i kapittel 7.

## 2 GEOMETRIER OG DEFINISJONER

Vi skal her gi en kort innføring i hovedprinsippene for optiske begrensere og definere noen sentrale størrelser som beskriver ytelsen til begrensersystemet.

### 2.1 Geometrier

Som vi senere skal se krever alle aktuelle ikke-lineære begrensersystemer en høy strålingsintensitet for at begrensningen skal bli effektiv. Dette medfører at begrensersystemet vanligvis må plasseres i mellomfokus i det optiske systemet som leder inn til sensorens billedplan. En slik konfigurasjon er vist i figur 2.1. Graden av fokusering inn på begrensersystemet angis enten ved strålens fokuserte diameter i luft (altså uten at begrensersystemet er installert) eller ved fokuseringslinsens såkalte  $F$ -nummer ( $F\#$ ), som er lik forholdet mellom linsens brennvidde og åpningsdiameter. Strålens fokuserte diameter kan defineres enten som den diameter hvor strålingsintensiteten har falt til  $1/e^2$  av maksimumsverdien eller som diameteren i den første mørke ringen i Airy diffraksjonsmønsteret i fokus. Siden det er mest vanlig å oppgi  $1/e^2$ -diameteren vil vi i det følgende bruke betegnelsen *flekkdiameter* for denne, mens diameteren til den første mørke ringen i Airy-diffraksjonsmønsteret vil bli omtalt som *Airy-diameteren*. Andre definisjoner benyttes også, slik som *FWHM* (full bredde ved halvparten av maksimumsverdien), og vi omtaler dette da som *FWHM-diameteren*.

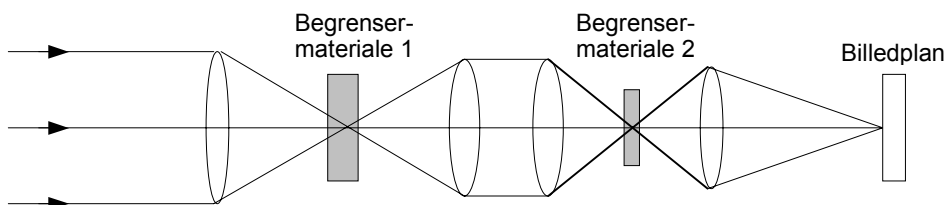


Figur 2.1 Den klassiske begrensergeometri. Lys fra en fjern punktkilde (f eks en laser) avbildes til et punkt (diffraksjonsbegrenset flekkstørrelse) både i billedplanet og i et mellomfokus. Begrensersystemet plasseres i mellomfokus

Ved å plassere begrensersystemet i et mellomfokus oppnås to hovedfordeler: For det første vil laserstrålen, som representerer en fjern punktkilde, avbildes til en nær diffraksjonsbegrenset flekk med en diameter på ned mot noen få  $\mu\text{m}$  i materialet. Dermed blir intensiteten svært høy, slik at begrensersystemet kan virke effektivt. Dernest oppnår man at begrensningseffekten ikke påvirker avbildningen i resten av sensorens synsfelt, fordi alle andre punkter i synsfeltet avbildes på andre steder i mellomfokus-planet. Med et godt konstruert system kan således sensoren i prinsippet fremdeles gi et tilnærmet uforstyrret bilde av scenen, med unntak av det ene bildeelementet som treffes av den dempede laserstrålen (illustrert i figuren til høyre i figur 2.1). I praksis må man imidlertid regne med en viss blanding utover det ene bildeelementet. Dette kan f eks skje ved at det oppstår termisk induserte linseeffekter i begrensersystemet, slik at laserstrålen defokuseres i billedplanet eller ved at strølys fra laserstrålen når andre deler av billedplanet.

Det bør også understrekes at ingen av de begrensersystemene som er tilgjengelige i dag gir en perfekt begrensning av transmittert intensitet, slik at det for svært høye intensiteter vil kunne

oppstå metningseffekter i flere bildelementer. Slike høye intensiteter vil også kunne forårsake permanente skader i begrensermaterialet. En aktuell løsning på disse problemene, og som også øker det dynamiske området, er å benytte flere begrensere i serie, som illustrert i figur 2.2. Den første begrenseren vil i dette tilfellet først aktiviseres ved svært høye lasereffekter, ved at man enten sørger for å ha en større fokusert strålediameter i denne begrenseren, eller ved at materialet har en høyere terskel for den ikke-lineære begrensingsprosessen. Vi skal i kapittel 5 gi et eksempel på et slikt system.



Figur 2.2 Tandem begrensersystem med to mellomfokus

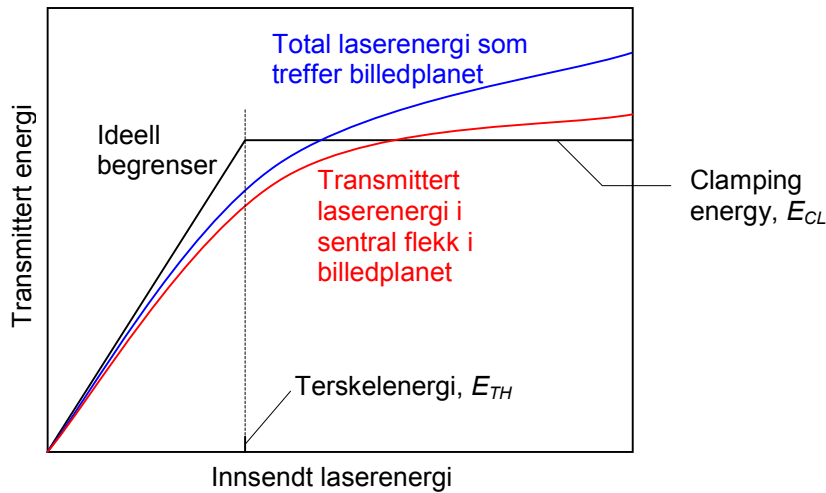
I tillegg til disse *serielle* konfigurasjonene er det også mulig å tenke seg *parallelle* plasseringer av begrensererlementer. Høykvalitets CCD kameraer har ofte tre separate detektorer [3]. Disse kameraene blir markedsført med betegnelsen CCDx3 eller 3CCD. Innkommende lys blir skilt spektralt og fysisk i tre sidegrener (rødt, grønt og blått) av stråledelere eller prismer. Foruten å gi en høyere billedkvalitet, vil dette ha to ytterligere fordeler når det gjelder motmiddel-resistens: 1) Man har mulighet for å benytte ulike begrensermaterialer med smalere transmisjonsvinduer i hver av sidegrenene, noe som gir mulighet for mer optimalt tilpassede begrensere. 2) Bare en av grenene vil kunne blendes om gangen.

Parallell plassering av begrensererlementer vil generelt også kunne være aktuelt i multispektrale avbildningssystemer.

## 2.2 Definisjon av sentrale parametere som beskriver begrenserens ytelse

Litt forenklet kan vi si at den sentrale egenskapen til en ikke-lineær begrenser er dens evne til å redusere transmittansen inn til billedplanet ved høye strålingsintensiteter. Det er imidlertid forskjellige måter å kvantifisere denne ytelsen på, og vi skal nedenfor gi noen vanlig brukte definisjoner som beskriver ytelsen. Figur 2.3 gir en illustrasjon på hvordan transmittert energi varierer som funksjon av innkommende energi for en ideell begrenser og en mer realistisk begrenser.

I en ideell begrenser er transmittansen konstant (helst nær 100 %) for innsendte energier under en viss *terskelenergi*,  $E_{TH}$ . For høyere energier er transmittert energi konstant, dvs at transmittansen avtar omvendt proporsjonalt med innsendt energi. Den konstante transmitterte energien kalles gjerne for *clamping energy*, og det er viktig at denne energien ligger under skadegrensen for sensormaterialet i billedplanet. Størrelsen på  $E_{TH}$  er vanligvis avhengig av hvor sterkt strålen fokuseres inn mot begrensermaterialet.



Figur 2.3 Kvalitative transmittanskurver for en ideell begrenser og en mer realistisk begrenser (rød og blå kurve)

I praktisk realiserbare begrensere vil man ikke oppnå en slik brå knekk i kurven, og det vil normalt være slik at den transmitterte energien vil ha en svak monoton stigning også for høye innsendte energier. Det er her vanlig å benytte betegnelsen *limiting energy* (i denne rapporten representert ved symbolet  $E_{L/2}$ ) på den innsendte energien hvor transmittansen er falt til 50 % av transmittansen ved lav energi. Som indikert i figuren kan det her også være formålstjenlig å skille mellom den totale transmitterte energien som når billedplanet, og den energien som ligger innenfor den sentrale fokuserte flekken i billedplanet (vanligvis på størrelse med ett billedelement). Den siste kalles gjerne for *fokuserbar energi* og er den størrelsen som er avgjørende for hvorvidt det vil oppstå permanente skader i billedplanet. Ut fra de kurvene som er gitt i figuren er det vanlig å definere en såkalt *figure of merit*,  $FOM$ , som er forholdet mellom transmittansen ved lav energi ( $E \rightarrow 0$ ) og transmittansen ved en aktuell energi,  $E$ :

$$FOM_E = \frac{T_{E \rightarrow 0}}{T_E} \quad (2.1)$$

$FOM$  vil altså være en funksjon som øker med innkommende pulsenergi. Et beslektet begrep er den *optiske tettheten* (*optical density* –  $OD$ ), som er gitt ved

$$OD_E = -\log_{10}(T_E) \quad (2.2)$$

hvor  $T_E$  er transmittansen ved energien  $E$ . En begrenser som har transmittans lik 1 ved lav energi og en transmittans på  $10^{-4}$  ved energien  $E$  har en  $FOM_E = 10^4$  og en  $OD_E = 4$ . Når man oppgir verdier for  $FOM$  eller  $OD$  er det viktig å presisere om transmittansen er beregnet ut fra fokuserbar transmittert energi eller total transmittert energi.

Den maksimale energien som begrenseren tåler uten å få skader kalles *damage energy*,  $E_D$ , og den tilsvarende transmittansen betegnes med  $T_D$ . Forholdet  $E_D/E_{TH}$  kalles det *dynamiske området* (*dynamic range* –  $DR$ ). For en ideell begrenser hvor ikke-lineariteten starter ved  $E_{TH}$  og hvor ut-energien holdes lik  $E_{CL}$  helt opptil skadeenergien  $E_D$ , vil den maksimale  $FOM$  og det dynamiske området  $DR$  være identiske størrelser. Dette innses lett siden  $E_D \cdot T_D = E_{CL} = E_{TH} \cdot T_{E \rightarrow 0}$ .

For å gjøre en tilfredsstillende måling av ytelsen til et ikke-lineært begrensermateriale er det viktig å benytte en måleoppstilling som i størst mulig grad er representativ for hvordan begrenseren vil fungere i et aktuelt optisk system. Dette betyr at man må benytte linser og aperturer som er representative for det optiske systemet, slik at strølys og defokusert lys vil nå billedplanet på en realistisk måte. For å skille mellom den fokuserbare del av energien og strølys, kan man enten benytte aperturer av varierende størrelse foran detektoren i måleoppstillingen, eller aller helst benytte en billedsensor for å kunne måle den detaljerte fordelingen av laserlyset i billedplanet. Detaljer vedrørende måleoppstillinger benyttet under eksperimenter ved FFI vil bli gitt i kapittel 6.

### 2.3 Eksempler på ytelseskrav

Kravet til dempningsfaktor vil være sterkt avhengig av sensortype. Et av de mest aktuelle anvendelsesområdene for optiske begrensere er beskyttelse av personell mot øyeskader ved belysning med laserlys. Spesielt utsatt er personell som benytter forstørrende siktemidler. Kravet til en optisk begrenser i et slikt siktemiddel må ta utgangspunkt i hva som er en sannsynlig lasertrussel (sannsynlig pulsenergi innenfor optikkens inngangsapertur) og hva som er skadeterskelen for netthinnen i øyet. Forskningsresultater viser at for korte laserpulser (ca 10 ns) med bølglengde i det synlige området øker faren for øyeskader raskt når energifluensen som treffer øyepupillen overstiger ca  $1 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  (Hollins [2] og [4]). Dersom en sannsynlig trussel f.eks. antas å være en frekvensdoblet Nd:YAG laser (532 nm bølglengde) med 0.5 J pulsenergi og 1 mrad divergens på 1 km avstand, betyr det at fluensen inn mot et nakent øye vil være ca  $64 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ . Dette betyr at en begrenser med  $FOM = 100$  burde gi tilstrekkelig beskyttelse. Benyttes derimot en kikkert med 7-ganger forstørrelse, øker fluensen inn mot øyepupillen med ca en faktor 50, og begrenserens  $FOM$  bør da økes tilsvarende. Likeledes vil en laser med høyere energi, mindre divergens eller kortere avstand føre til krav om en ytterligere økning av  $FOM$ . Det kan i denne forbindelsen nevnes at det for konvensjonelle (lineære) beskyttelsesfiltre vanligvis stilles krav om at  $OD$  bør være over 4, som tilsvarer en  $FOM$  på 10 000.

Når det gjelder elektrooptiske sensormaterialer vil skadeterskelen typisk ligge i området 0.1 -  $1 \text{ J}/\text{cm}^2$  fluens inn på sensormaterialet, Ajer *et al.* [5], Grolier-Mazza [6]. Hvis vi antar en fokusert flekkdiameter på 10  $\mu\text{m}$  i billedplanet, tilsvarer dette en energi (i billedplanet) på ca 0.08 - 0.8  $\mu\text{J}$ . Antar vi slik som ovenfor en laser med 0.5 J pulsenergi og 1 mrad divergens på 1 km avstand, og at sensorens inngangsapertur har en diameter på 5 cm, vil man uten beskyttelse få en energi på 1.25 mJ i sensorens billedplan. Kravet til en optisk begrenser i dette tilfellet ville således være en  $FOM$  på 1500 - 15 000.

Disse eksemplene indikerer at optiske begrensere bør gi dempningsfaktorer på opp til minst 10 000 for å gi tilfredsstillende beskyttelse. Slike ytelser er demonstrert i laboratorieforsøk med tandem-begrensere basert på den geometrien som ble vist i figur 2.2. Resultater fra disse forsøkene vil bli diskutert nærmere i kapittel 5.

## 3 FYSISKE PROSESSER I BEGRENSERMATERIALER

Dette kapittelet er viet til de fysiske mekanismene som kan utnyttes for å hindre skadelig stråling i å blende eller skade en detektor. Detaljer omkring ytelsen til de enkelte materialene

behandles i kapittel 4. For å få til elektrooptisk begrensning over et bredt bølgelengdeområde og et bredt spekter av pulslengder er det nødvendig å gjøre bruk av flere begrensingsmekanismer og ulike materialer. Det er ønskelig å ha beskyttelse mot alle typer skadelig lasereksposering, fra pulser med varighet ned mot noen få pikosekunder ( $1 \text{ ps} = 10^{-12} \text{ s}$ ) til kontinuerlig stråling. Den farligste strålingen når det gjelder skade på detektorer er korte pulser i området  $1 \text{ ps} - 1 \mu\text{s}$  ( $10^{-12} \text{ s} - 10^{-6} \text{ s}$ ). Pulsene er da så korte at det ikke skjer noen varmeavledning fra treffområdet i løpet av pulsen, og dette kan lett føre til lokal smelting og ødeleggelse av sensormaterialet. Hovedprioriteten blir derfor å komme frem til beskyttelses-materialer som kan reagere raskt nok. På dette området er passive ikke-lineære begrensere enerådende. For lange pulslengder kan også aktive elementer som er styrt av en ytre spenning bli konkurransedyktige, men slike begrensere vil ikke bli behandlet her.

### 3.1 Generelt om begrensermekanismer og materialer

I hovedsak kan mekanismene deles inn i tre hovedkategorier: ikke-lineær absorpsjon, spredning, og mekanismer som baserer seg på at det intense laserlyset inducerer endringer i begrensermaterialets brytningsindeks slik at laserlyset enten blir reflektert eller sterkt defokuseret i billedplanet. I mange materialer vil flere av disse effektene kunne opptre samtidig, f.eks. ved at absorpsjon fører til oppvarming som igjen fører til endringer i brytningsindeks. Litt forenklet kan man si at materialer basert på absorpsjon er gunstige ved relativt lave pulsenergier fordi de gir en svært effektiv begrensning av transmittansen. De har imidlertid den ulempen at de lett blir ødelagt pga oppvarming ved høye pulsenergier eller ved gjentatte pulser fra høy-pulsrate lasere. Spredning har den fordelen at det gir langt mindre konsentrert oppvarming, men begrensningen vil være mindre effektiv fordi en betydelig brøkdel av det spredte lyset vil fanges opp av den etterfølgende optikken og dermed nå billedplanet. Mekanismer som sørger for at mesteparten av laserlyset blir reflektert vil i betydelig grad kunne løse disse problemene, men vil også kunne øke faren for at en sensor kan bli lokalisert ved at den som sender ut laserstrålen kan fange opp tilbakereflektert stråling. Det vil derfor være essensielt at begrenseren konstrueres slik at refleksjonen går tilbake i en annen retning.

Begrensermaterialer finnes både som faste stoffer, væsker og gasser. Noen materialer er homogene, mens andre kan bestå av et vertsmateriale tilsatt såkalte aktive "gjestmaterialer" i form av partikler eller molekyler som i mange tilfeller samspiller med vertsmaterialet i begrensingsprosessen. Noen gjestmaterialer er egnet for å kunne inkorporeres i både faststoffverter og i væskeverter.

Fordelen med å benytte et flytende vertsmateriale er den høye skadeterskelen som kan oppnås ved at man unngår at brå lokal oppvarming fører til termisk induserte spenninger som kan ødelegge materialet. Selv om en intens laserpuls skulle føre til en lokal fotoindusert spaltning eller annen form for lokal ødeleggelse i væsken, vil påfølgende diffusjon og strømning i væsken føre til at den lokale skaden "forsvinner". Den globale forandringen i væsken vil kunne forbli ubetydelig selv om den lokale skaden var stor. I faste stoffer (krystaller, glasser) vil termomekaniske spenninger kunne føre til at materialet knuses lokalt eller at det oppstår globale sprekke-dannelser.

Vertsvæsken består som oftest av organiske forbindelser, f.eks. toluen eller klorbenzen. For væskebaserte begrensere skiller vi mellom tilfeller hvor gjestmaterialet opptrer som en

suspensjon og tilfeller hvor det opptrer i form av en løsning. Partikler vil opptre i form av suspensjoner, mens molekyler oftest opptrer som løsninger. Suspensjoner krever mer vedlikehold fordi gjestmaterialet og vertsvæsken lett kan separere. Vanlig brukte faststoffverter er ulike typer glass- og plastmaterialer.

De fleste av de mekanismene som diskuteres i dette kapitlet kan formelt beskrives via den polarisasjonen  $P$  som oppstår i mediet når mediet påtrykkes et elektrisk felt  $E$ . Polarisasjonen er generelt gitt av Taylor-rekken

$$P = \varepsilon_0 \left( \chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E \cdot E + \chi^{(3)} E \cdot E \cdot E + \dots \right) \quad (3.1)$$

der  $\chi$  er den elektriske susceptibiliteten til mediet. Førsteordensleddet  $\chi^{(1)}$  beskriver lineære effekter (f eks brytningsindeks, småsignal (spontan) spredning, småsignal absorpsjon), mens høyereordensleddene beskriver en rekke ikke-lineære effekter (f eks frekvensmiksing, tofotonabsorpsjon, ikke-lineær brytning, og stimulerte spredningsprosesser).  $\chi^{(3)}$  (tredje-ordens ikke-lineær susceptibilitet) er spesielt viktig når en skal beskrive optisk begrensning. Realdelen av  $\chi^{(3)}$  beskriver den såkalte kvadratiske optiske effekt (endring av den effektive brytningsindeksen med kvadratet av feltet, Kerr-effekt), og imaginærdelen beskriver tofotonabsorpsjon, Loudon, kap. 9 [7], Boyd [8]. Generelt er  $P$  og  $E$  vektorer, og de forskjellige leddene av  $\chi$  er tensorer. I denne rapporten vil vi kun benytte skalar teori, og vi vil i stor grad kun gi en fenomenologisk beskrivelse av de ulike begrensningsmekanismene uten formelle utledninger basert på ligning 3.1.

### 3.2 Elektronisk struktur og prosesser i organiske molekyler og halvledere

Organiske molekyler og halvledere er blant de mest aktuelle materialene for optiske begrensere. Optisk begrensning kan foregå via flere typer prosesser. De fleste begrensingsprosessene i disse materialene er knyttet til elektroniske energioverganger.

Vi skal først gi en kort generell orientering om oppbygging, energinivåstruktur og sentrale egenskaper ved disse materialene.

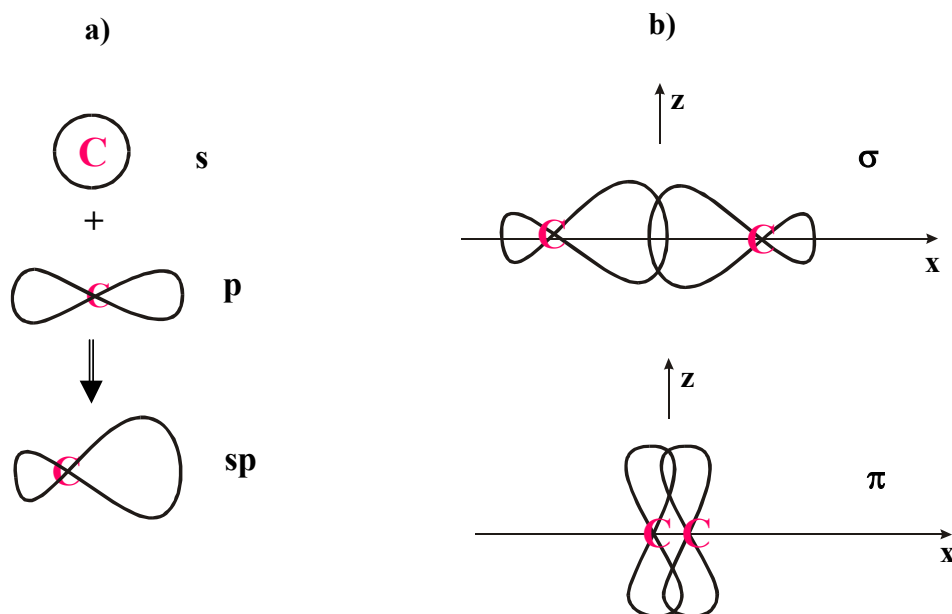
#### 3.2.1 Organiske molekyler

##### 3.2.1.1 Karbon-karbon bindinger

I organiske molekyler er karbonatomer og bindingene mellom dem svært sentrale når man skal forklare de elektroniske og optiske egenskapene.

Karbonatomet har 4 valenselektroner (elektronkonfigurasjon  $2s^2 2p^2$ ), og disse har en utpreget tendens til å danne kovalente bindinger (deling av elektronpar). Før karbonatomet inngår i en binding med et annet atom skjer en såkalt hybridisering (blanding) av s- og p-orbitalene [9]. Ved såkalt  $sp^3$ -hybridisering vil ett s-orbital blandes med de tre p-orbitalene ( $p_x$ ,  $p_y$ ,  $p_z$ ) til fire hybridiserte atomorbitaler med ulik orientering i rommet, hvert besatt med ett valenselektron. Det hybridiserte orbitalet har en asymmetrisk form, som vist i figur 3.1a. En C-C-enkeltbinding, dannes ved endeoverlapp mellom to slike sp-orbitaler i to C-atomer. Dette kalles også en  $\sigma$ -binding (figur 3.1b) og er den mest vanlige typen binding, som også inngås med andre atomer, f

eks hydrogen. Et eksempel på dette er C-C og C-H bindingene i etan ( $C_2H_6$ ). I andre tilfeller skjer en såkalt  $sp^2$ -hybridisering, hvor s-orbitalen blandes med bare to av p-orbitalene ( $p_x$  og  $p_y$ ), mens det tredje p-orbitalen ( $p_z$ ) forblir intakt. I dette tilfellet vil det i tillegg til  $\sigma$ -bindingen dannes en såkalt  $\pi$ -binding ved sideoverlapp mellom de intakte p-orbitalene i de to C-atomene, som vist i figur 3.1b.



Figur 3.1 En C=C-dobbeltbinding er satt sammen av én  $\sigma$ -binding og én  $\pi$ -binding. a): et s- og et p-orbital går sammen og danner et hybridisert orbital. b) Øverst: en  $\sigma$ -binding dannes ved ende-overlapp av to hybridiserte orbitaler (étt fra hvert C-atom). Nederst: Et resterende p-orbital fra hvert atom kan overlappe sideveis og danne enda en binding ( $\pi$ -binding) mellom C-atomene, [9]

Dette kalles en C=C-dobbeltbinding, og forekommer f eks i etylen ( $C_2H_4$ ) og benzen ( $C_6H_6$ ).

I optiske begrensere benyttes ofte organiske molekyler som inneholder såkalte *konjugerte* dobbeltbindinger. Her er karbonatomer bundet sammen ved at enkeltbindinger og dobbeltbindinger alternerer langs kjedet; det er en enkeltbinding mellom hver dobbeltbinding. Den sentrale egenskapen ved slike konjugerte bindinger er at de elektronene som er knyttet til  $\pi$ -bindingene er relativt fri til å bevege seg langs molekylkjedet, noe som fører til økt polariserbarhet for molekylet og dermed høy optisk ikke-linearitet, jfr ligning 3.1.

Organiske molekyler som har lik atomær oppbygning (like mange atomer av hver type) kan eksistere i ulike geometriske former, hvor den ene kan oppfattes som en deformert versjon av den andre. Orienteringen av f eks to benzen-ringer i forhold til hverandre gir da navn til molekylet. Dette kalles *cis/trans* isomeri – *cis* betyr ”hos” og *trans* betyr ”tvers overfor” [9]. Polariserbarheten av de ulike formene kan være høyst forskjellig, selv om de har det samme antall konjugerte bindinger. Overganger mellom *cis* og *trans* versjoner kan være strålingsinduserte. Det er også mulig at bare den ene av formene har tilstrekkelig polariserbarhet til å egne seg som begrensersmateriale.

Organiske molekyler vil inneholde mange  $\sigma$ - og  $\pi$ -bindinger, og fordelingen av elektroner kan

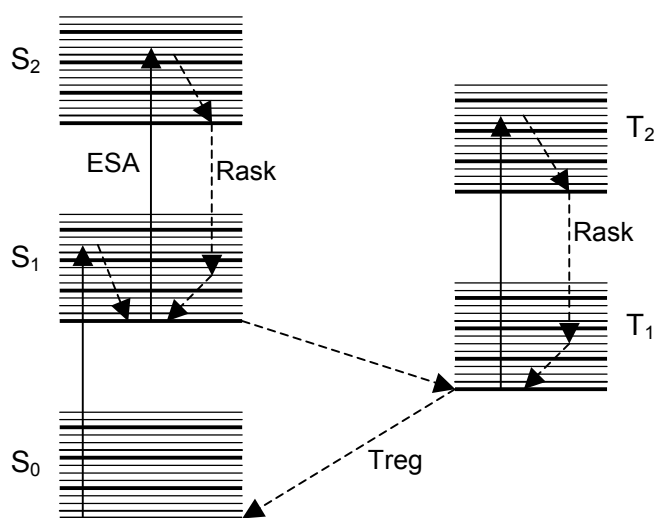


her beskrives av *molekylorbitalteorien* [10]. Etter denne teorien betraktes *hele* molekylet, og elektronene fordeles på nye orbitaler som angår *alle* kjernene. Molekylorbitalene er satt sammen av lineærkombinasjoner av den type atomorbitaler som ble omtalt ovenfor. Elektronene vil okkupere de molekylorbitalene som har lavest energi.

### 3.2.1.2 Energibånd

I et molekylorbital har elektronene fått helt nye baner, og elektronenes banespinn,  $L$ , er ikke lenger bevart slik tilfellet er i atomer, hvor elektronene beveger seg i en sentrosymmetrisk potensialbrønn. Man kan imidlertid gi en forenklet beskrivelse av molekylets energitilstander basert på egenspinnene til elektronene. I hvert molekylorbital kan det maksimalt være to elektroner, som ifølge Paulis eksklusjonsprinsipp må ha motsatt spinn. Vi sier at elektronene er paret når begge elektrontilstandene i et molekylorbital er besatt. Parede elektroner bidrar ikke til totalspinn  $S$  til molekylet. Et molekyl med bare pærede elektroner har totalspinn  $S = 0$  og sies å være i en singlett-tilstand (S). Hvis molekylet har et orbital som er besatt med bare ett elektron, vil vi få et totalspinn lik egenspinnet til ett elektron,  $S = 1/2$ , og tilstanden kalles da en dublett. Hvis molekylet har to uparede elektroner med parallelt spinn får vi at  $S = 1$ , og denne tilstanden kalles en triplett (T). I de organiske molekylene spiller de elektroniske singlett- og triplett-tilstandene en viktig rolle. Normalt er ikke overganger fra singlett til triplett tillatt, men det kan være svake koblinger mellom spinnene  $L$  og  $S$  slik at singlett- og triplett-tilstandene får et visst overlapp. Styrken i denne koblingen kan justeres ved å substituere inn tunge atomer. På denne måten vil singlett-triplett-overgangsraten kunne justeres.

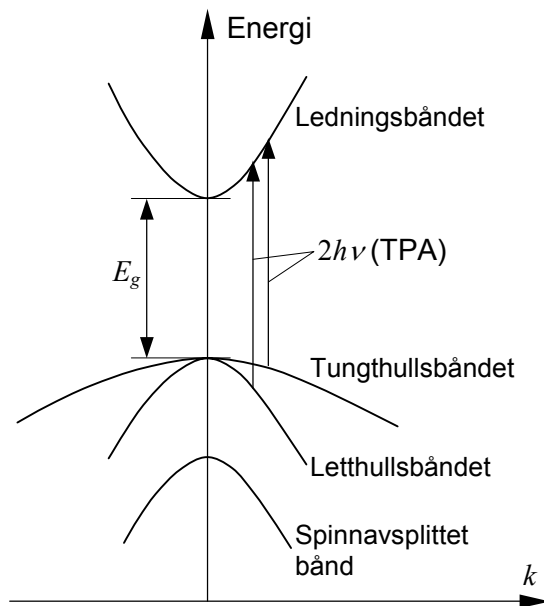
Hver elektronisk tilstand vil bli smurt ut til et bredt bånd pga vibrasjons- og rotasjonsnivåer i molekylet. Dette er vist i figur 3.2, hvor ulike singlett-tilstander er markert med bokstaven "S" og triplett-tilstandene er markert med "T". Figuren antyder også ulike eksitasjons- og relaksasjonsprosesser som har betydning i forbindelse med optiske begrensere, og den er representativ for alle de organiske molekylene vi skal omtale i denne rapporten.



Figur 3.2 Energibånd i organiske molekyler, med skjematisk fremstilling av noen eksitasjons- (heltrukne piler) og relaksasjonsprosesser (stiplede piler) som har betydning i forbindelse med optiske begrensere.

### 3.2.2 Halvledere

En typisk båndstruktur (energi som funksjon av bølgetallet  $k$ ) for en halvleder er vist i figur 3.3 [11]. Eksemplet gjelder halvledere med sinkblende- (ZnS) struktur. Bunnen av ledningsbåndet er skilt fra toppen av de øverste valensbåndene (tungthull- og letthullbåndet) med båndgapsenergien  $E_g$ .



Figur 3.3 Båndstrukturen til halvledere med sinkblendestruktur (ZnS, GaAs, InSb). Skjemaet viser også typiske tofotonoverganger (TPA).  $E_g$  er båndgapet og  $k$  er bølgetallet.

Ledningsbåndet er generert av s-orbitaler, så her ser vi bare ett bånd. Valensbåndene stammer fra p-orbitaler ( $p_x$ ,  $p_y$  og  $p_z$ ), og dette gir grunnlag for tre ulike bånd; tungthullsbåndet, letthullsbåndet og det spinn-avsplittede båndet. Som navnet antyder er sistnevnte adskilt fra tungt- og letthullsbåndet på grunn av ulik spinn-banekobling.

### 3.3 Ikke-lineære absorpsjonsmekanismer

Vi skal her diskutere ikke-lineære absorpsjonsmekanismer som er karakterisert ved at absorpsjonen i begrensmediet øker kraftig når strålingsintensiteten øker over et visst nivå. Dette innebærer som regel at en betydelig del av den innsendte laserenergien blir avsatt som varme, noe som i sin tur kan føre til at andre ikke-lineære mekanismer får betydning, f.eks. termiske linseffekter. De ikke-lineære absorpsjonsmekanismene kan deles i to hovedklasser; såkalt reversert blekbar absorpsjon (*reverse saturable absorption* – RSA) og tofotonabsorpsjon (*two-photon absorption* - TPA). Disse blir diskutert nedenfor, med basis i sterkt forenklede skisser av materialenes båndstruktur.

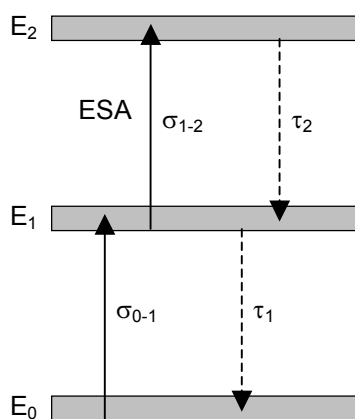
Intensitetsforandringen for en stråle som forplanter seg i z-retningen er i litteraturen ofte beskrevet ved absorpsjonskoeffisientene  $\alpha$  og  $\beta$ ,

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha \cdot I - \beta \cdot I^2 \quad (3.2)$$

Her er  $\alpha$  den lineære absorpsjonskoeffisienten mens  $\beta$  er tofotonabsorpsjonskoeffisienten. Enhetene for disse parametrene blir henholdsvis  $\text{lengde}^{-1}$  og  $\text{lengde/effekt}$ . RSA kan beskrives ved at  $\alpha$  endres ved høye strålingsnivåer som følge av at høyere energitilstander i materialet besettes. Tofotonabsorpsjon beskrives i sin helhet av  $\beta$ .

### 3.3.1 RSA – forenklet modell

I figur 3.4 er det gitt et forenklet energinivåskjema for et materiale som kan gi RSA. De ulike energinivåene er indikert som bånd. De mest aktuelle materialene som oppviser RSA er organiske molekyler.



Figur 3.4 Energiniåskjema for et materiale som kan oppvise "reverse saturable absorption" – RSA

Hovedprinsippet bak RSA kan forstås slik: Når materialet er i termisk likevekt vil de aktive molekylerne befinne seg i det nederste energinivået,  $E_0$ . Når materialet belyses med fotoner med energi  $h\nu$  som tilsvarer energidifferansen mellom  $E_0$  og  $E_1$ , blir fotonene absorbert, og molekylerne blir i første omgang eksitert til  $E_1$ . Dersom materialet belyses med en kraftig laserpuls kan dette føre til at en betydelig brøkdel av molekylerne eksiteres til  $E_1$ , og dermed vil absorpsjonen normalt avta fordi utgangsnivået  $E_0$  tømmes for molekyler. Dette fenomenet kalles blekbar absorpsjon, eller *saturable absorption* – SA. Dersom imidlertid molekylerne har et høyereliggende energinivå  $E_2$ , slik at fotonenergien også tilsvarer energidifferansen mellom  $E_1$  og  $E_2$ , kan molekylerne eksiteres videre til  $E_2$ . Dette fenomenet kalles gjerne *excited state absorption* – ESA. Den kombinerte effekten av disse to prosessene kalles *reverse saturable absorption* – RSA, og kan utnyttes til å lage optiske begrensere med høy følsomhet.

Absorpsjon av stråling i et materiale kan beskrives ved såkalte absorpsjonstverrsnitt. I ligning 3.2 setter vi da  $\alpha = \sigma_{0-1} \cdot N_0$  hvor  $\sigma_{0-1}$  er absorpsjonstverrsnittet for en overgang fra energinivå  $E_0$  til  $E_1$  og  $N_0$  er antall aktive molekyler pr volumenhet som befinner seg i tilstanden  $E_0$ . Absorpsjonstverrsnittet får dimensjon areal pr molekyl.

For at den optiske begrensningen være effektiv må følgende betingelser være oppfylt:

- 1) Absorpsjonen fra  $E_0$  til  $E_1$  bør være forholdsvis svak slik at transmittansen til vanlig lys ikke blir vesentlig påvirket. Denne ”småsignal” eller ”lineære” transmittansen er gitt ved løsning av ligning 3.2 (med  $\beta$  satt lik null):

$$T_{I \rightarrow 0} = \exp(-\sigma_{0-1} N_0 l) \quad (3.3)$$

hvor  $I$  er innkommende lysintensitet,  $l$  er tykkelsen av materialet,  $N_0$  er populasjonstettheten i nivået  $E_0$ , og  $\sigma_{0-1}$  er absorpsjonstverrsnittet for overgangen. Ved lav intensitet vil  $N_0$  være tilnærmet identisk med den totale tettheten av absorberende molekyler,  $N_M$ . For en gitt materialtype vil man søke å velge molekyltettheten  $N_M$  og tykkelsen  $l$  slik at  $\sigma_{0-1} N_M l \ll 1$ , slik at småsignaltransmittansen blir forholdsvis høy.

- 2) Levetiden  $\tau_1$  til atomene i nivå  $E_1$  bør være større enn lengden på laserpuls, slik at de eksiterte molekylene forblir tilgjengelige for videre eksitasjon til nivå  $E_2$  gjennom hele laserpuls. Av samme årsak bør levetiden  $\tau_2$  til atomene i nivå  $E_2$  være svært kort slik at atomene etter eksitasjon straks faller tilbake til  $E_1$  og dermed blir tilgjengelige for ny eksitasjon. Det er denne gjentatte eksitasjonen som fører til effektiv begrensning av transmittansen til den innkommende laserpuls.
- 3) Absorpsjonstverrsnittet  $\sigma_{1-2}$  for overgangen mellom nivåene  $E_1$  og  $E_2$  bør være så stort at  $\sigma_{1-2} N_1 l \gg 1$ , slik at transmittansen blir tilnærmet lik 0 når populasjonstettheten  $N_1$  har nådd en viss brøkdel av  $N_M$  (vanligvis vil eksitasjonen fra  $E_0$  til  $E_1$  stoppe opp når  $N_1 \approx N_0 \approx N_M/2$ ).

I praksis vil det være en konflikt mellom kravene 1) og 3) fordi det er vanskelig å finne materialer hvor  $\sigma_{1-2}/\sigma_{0-1} > \text{ca } 30$  [12]. Dette illustreres ved følgende betraktning: Hvis vi som indikert ovenfor antar at  $N_1 \approx N_A/2$  ved belysning med en kraftig laserpuls, får vi en ”sterksignal”-transmittans gitt ved

$$T_{I \rightarrow \infty} = \exp\left(-\sigma_{1-2} \frac{N_A l}{2}\right) \quad (3.4)$$

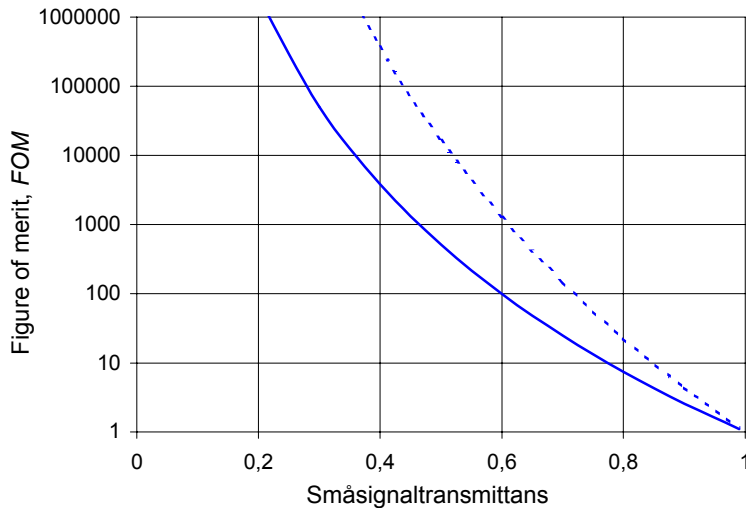
Fra ligningene 3.3 og 3.4 kan vi i henhold til definisjonen gitt kapittel 2.3 beregne en *figure of merit*,  $FOM$ , for materialet:

$$FOM = \frac{T_{I \rightarrow 0}}{T_{I \rightarrow \infty}} = \exp\left\{\left(\frac{\sigma_{1-2}}{\sigma_{0-1}} - 1\right) \sigma_{0-1} \frac{N_A l}{2}\right\} \quad (3.5)$$

I figur 3.2 nedenfor har vi plottet  $FOM$  som funksjon av småsignaltransmittansen for henholdsvis  $\sigma_{1-2}/\sigma_{0-1} = 20$  (heltrukket kurve) og  $\sigma_{1-2}/\sigma_{0-1} = 30$  (stiplet kurve). Det går her klart frem at dersom man krever en høy  $FOM$ , vil dette gå på bekostning av redusert småsignaltransmittans. Denne konflikten forsterkes når  $\sigma_{1-2}/\sigma_{0-1}$  minker. I kapittel 2.3 ble det indikert at kravene til  $FOM$  for en optisk begrenser kunne være i størrelsesorden 10 000. Selv om kurvene i figur 3.5 viser at dette er mulig ved en småsignaltransmittans på 0.35 - 0.5, tas det i praksis bare ut en  $FOM$  på 30 - 100. Grunnen til dette er at materialet må plasseres i et mellomfokus, med  $l$

av størrelsesordenen  $50 \mu\text{m} - 2 \text{mm}$ . Ved høye intensiteter kan det derfor oppstå skader på glasset og i noen grad også skader på RSA materialet lenge før de teoretisk mulige  $FOM$  verdiene oppnås.

Verdien av RSA materialer som begrensere ligger således ikke i en høy  $FOM$ , men i høy følsomhet.



Figur 3.5  $FOM$  plottet som funksjon av småsignaltransmittansen for  $\sigma_{1-2}/\sigma_{0-1} = 20$  (heltrukket kurve) og  $\sigma_{1-2}/\sigma_{0-1} = 30$  (stiplet kurve)

En viktig størrelse for å beskrive følsomheten er den terskelenergien som skal til for at begrensingsmekanismen skal tre i kraft (jfr figur 2.3). Vi kan gjøre et grovt overslag over terskelenergien basert på at en betydelig brøkdel av atomene må eksiteres til nivået  $E_1$  og videre til  $E_2$  for at transmittansen skal bli vesentlig redusert. Hvis vi baserer oss på at småsignaltransmittansen skal være ca 0.5 (dvs  $\sigma_{0-1} N_M l = \ln 2$ ), og definerer terskelen til at 25 % av atomene ( $N_M/4$ ) skal ha gjennomgått en eksitasjon, finner vi at den optiske terskelfluensen,  $F_{TH}$  (energi/arealenhet) blir

$$F_{TH} \approx 2h\nu \cdot l \frac{N_M}{4} = \frac{h\nu \cdot l}{2\sigma_{0-1}} \quad (3.6)$$

For typiske verdier på  $\sigma_{0-1} = 10^{-17} \text{ cm}^2$  [13] og  $h\nu = 4 \cdot 10^{-19} \text{ J}$  (ca  $0.5 \mu\text{m}$  bølgelengde) får vi at  $F_{TH} \approx 0.014 \text{ J/cm}^2$ . Dette vil for mange materialer være en akseptabel terskel, fordi de ofte vil tåle langt høyere fluenser før det oppstår skader. En av de mekanismene som kan gi skader er kraftig lokal oppvarming pga at en betydelig del av den absorberte energien vil gå over til varme i vertsmaterialet. En del av energien vil også bli frigitt som luminescens. Siden luminescensen fordeler seg uniformt i alle retninger, vil det være en relativt liten del som når detektoren i den optiske sensoren. Dersom luminescensen ligger innenfor sensorens følsomhetsområde, kan dette likevel gi et strålingsbidrag som fører til at begrensersens  $FOM$  blir lavere enn det som er gitt av ligning 3.3.

### 3.3.2 RSA i organiske molekyler

I organiske molekyler (jfr kapittel 3.2.1) er Excited State Absorption (ESA) mellom singlett-tilstandene  $S_1$  og  $S_2$  en essensiell del av begrensermekanismen RSA. Dersom en betydelig brøkdel av molekylene blir overført fra singlett- til triplett-tilstand, vil også absorpsjon fra  $T_1$  til  $T_2$  bidra til RSA. Dette er særlig aktuelt for lengre pulslengder. For at RSA-prosessen skal være effektiv må levetidene i tilstandene  $S_1$  og  $T_1$  være mye lengre enn i de høyere eksiterte tilstandene  $S_2$  og  $T_2$ . Levetidene i  $S_1$  og  $T_1$  vil typisk være i størrelsesorden noen mikrosekunder, mens levetidene i de høyere eksiterte tilstandene kan være ned mot noen få pikosekunder [14]. Det er den raske relaksasjonen fra  $S_2$  og  $T_2$  tilstandene som tapper energien ut av den innkommende strålingen. Det er verd å merke seg at de ulike relaksasjonsprosessene påvirkes av vekselvirkning med vertsmaterialet (molekylene vil typisk være oppløst i en vertsvæske), og valg av vertsmateriale kan være av betydning for å oppnå ønsket balanse mellom de ulike prosessene.

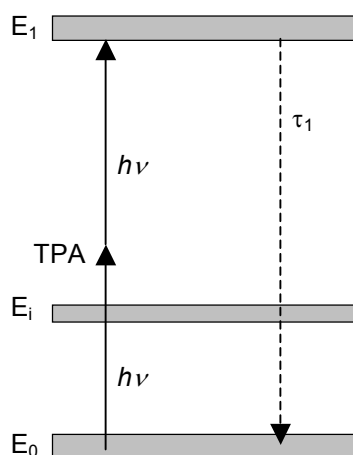
Organiske RSA-materialer oppviser god respons på pulser i pikosekund- og nanosekund-området. Innenfor disse pulslengdene spiller selve *formen* på pulsen liten rolle; det er energiinnholdet eller fluensen ( $J/cm^2$ ) som blir den avgjørende størrelsen.

Det er verdt å merke seg at RSA er avhengig av en viss småsignalabsorpsjon fra  $S_0$  til  $S_1$ . Hvis denne absorpsjonen uteblir, vil hele prosessen stanse opp. Transmisjonsområdet til materialet bestemmes også av småsignalabsorpsjonen. Typisk vil transmisjonsområdet til organiske RSA materialer ha en bredde på rundt 150 nm. Hvis småsignalabsorpsjonen ikke er jevn over hele sensorens transmisjonsområde, kan det føre til fargeubalanse. Dette kan imidlertid korrigeres med fargefiltre eller med et annet RSA-materiale med en komplementær småsignal-absorpsjon i en tandemkonfigurasjon.

### 3.3.3 Two-photon absorption – TPA

TPA er en intensitetsavhengig prosess og opptrer som begrensermekanisme i både molekyler og halvledere. I motsetning til sekvensiell absorpsjon av fotoner, slik som ved RSA, skjer det ved TPA en instantan (simultan) absorpsjon av to fotoner, mens mediet eksiteres direkte til den høyere slutttilstanden.

#### 3.3.3.1 TPA i molekyler



Figur 3.6 To-foton absorpsjon (TPA) av to fotoner med energi  $h\nu$

Prosesen er vist i figur 3.6. Som indikert på figuren er enkeltfotonenergien ikke tilpasset noen energiovergang i mediet. Derimot er summen av to fotonenergier lik energidifferansen mellom nivåene  $E_0$  og  $E_1$ . Energien er dermed bevart ved TPA. Overgangssannsynligheten beregnes kvantemekanisk ved 2. ordens perturbasjonsteori, hvor man inkluderer elektrisk dipol matriselementer mellom starttilstanden og ett eller flere intermediære energinivåer ( $E_i$  i figuren), og tilsvarende matriselementer mellom de intermediære nivåene og slutttilstanden [7], [8]. I media hvor enkeltfotonenergien begynner å nærme seg energidifferansen mellom starttilstanden og en av de intermediære energitilstandene, vil man kunne få en resonanslignende kraftig forsterket TPA.

Overgangssannsynligheten kan også for TPA beskrives ved å tilskrive hvert molekyl et absorpsjonstverrsnitt  $\sigma_{0-1}$ . I motsetning til RSA er det aktuelle tverrsnittet for TPA prosessen proporsjonalt med lysintensiteten:

$$\sigma_{0-1} = \sigma_{TPA} \cdot I = \sigma_{TPA} \cdot h\nu \cdot I_f = \sigma'_{TPA} \cdot I_f \quad (3.7)$$

hvor  $\sigma_{TPA}$  nå er en parameter med enhet (lengde)<sup>4</sup>/(effekt og molekyl). Som vist i ligning 3.7 kan man bruke alternative formuleringer hvor intensiteten erstattes med  $I_f$ , som angir antall innkommende fotoner pr tidsenhet og flateenhet. Dette fører til at vi må innføre en ny parameter  $\sigma'_{TPA}$  med enhet (lengde)<sup>4</sup> · tid/(foton og molekyl). Uttrykket ”tverrsnitt” benyttes selv om enhetene til  $\sigma_{TPA}$  og  $\sigma'_{TPA}$  ikke er areal. Oftest oppgis  $\sigma_{TPA}$  i cm<sup>4</sup>/(GW og molekyl), mens  $\sigma'_{TPA}$  oppgis i cm<sup>4</sup> · s / (foton og molekyl). I de fleste tekster brukes det ikke forskjellig symbol for  $\sigma_{TPA}$  og  $\sigma'_{TPA}$ . Hva som menes i hvert enkelt tilfelle vil da fremgå av hvilke enheter som benyttes for tverrsnittene.

Av ligning 3.5 ser vi at overgangssannsynligheten for TPA blir svært liten ved lave lysintensiteter, slik at småsignaltransmittansen i mediet kan bli tilnærmet lik 1. Dette gir en fordel i forhold til RSA-media. Forplantningen av lysintensiteten gjennom TPA-mediet beskrives av ligning 3.2 hvor vi setter  $\alpha = 0$  og  $\beta = \sigma_{TPA} \cdot N_0$ . Som i avsnittet om RSA er  $N_0$  antall molekyler pr volumenhet som befinner seg i tilstanden  $E_0$ ;

$$\frac{dI}{dz} = -\sigma_{TPA} N_0 I^2 \quad (3.8)$$

For et TPA-medium med tykkelse  $l$  finner man da følgende uttrykk for transmittansen:

$$T = \frac{I(l)}{I(0)} = \frac{1}{1 + I(0)\sigma_{TPA}N_0l} \quad (3.9)$$

hvor  $I(0)$  er den innsendte intensiteten. Vi har her antatt at levetiden  $\tau_1$  i energinivået  $E_1$  er svært kort slik at det ikke oppstår noen metning i TPA-prosessen ved at  $E_1$  fylles opp. TPA er en instantan prosess som ikke krever lagring av energi i eksiterte nivåer, slik tilfellet var ved RSA. Det betyr at prosessen ikke har noen terskel i pulsenergi eller fluens, men derimot en terskel i intensitet. Fra ligning 3.9 kan vi definere en slik terskel,  $I_{TH}$ , som den intensiteten hvor

transmittansen har falt til 0.5:

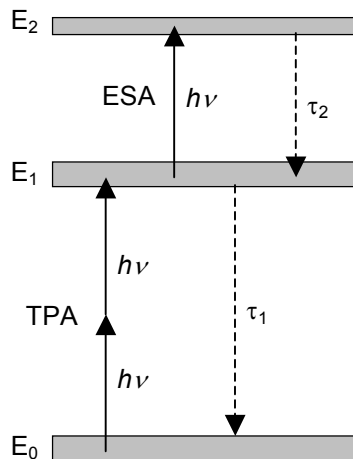
$$I_{TH} = \frac{1}{\sigma_{TPA} N_0 l} \quad (3.10)$$

Vi ser også av ligning (3.7) at figure of merit,  $FOM$ , for begrenseren blir

$$FOM_{TPA} = 1 + I(0)\sigma_{TPA}N_0l \quad (3.11)$$

Høyeste rapporterte verdi for  $\sigma_{TPA}$  i organiske molekyler er ca  $4 \cdot 10^{-28} \text{ cm}^4/\text{W}$  ( $1.1 \cdot 10^{-46} \text{ cm}^4 \cdot \text{s}/(\text{foton og molekyl})$ ) [15]. Typiske molekyltettheter vil være i størrelsesorden  $10^{20}/\text{cm}^3$ . For et medium med tykkelse  $l = 1 \text{ cm}$  vil vi således få en terskelintensitet på ca  $25 \text{ MW}/\text{cm}^2$ , og vi får en  $FOM$  på 100 for en intensitet på  $2.5 \text{ GW}/\text{cm}^2$ . Fordi virkningen er instantan egner TPA seg godt som begrensermekanisme for pulser i pikosekund-området. TPA kan også godt benyttes for lengre pulser, men fordi terskelintensiteten er så høy, vil man ved lange pulser fort komme opp i så høye energifluenser at andre effekter enn TPA vil gjøre seg gjeldende (oppvarming, boble-dannelse, plasmadannelse, optisk induert skade, etc). Eksemplet ovenfor viser også at det med TPA-begrensere kan være vanskelig å oppnå høye verdier for  $FOM$ .

Det er verdt å merke seg at det også er mulig å kombinere TPA med andre prosesser, f eks ESA, for å øke begrensereffekten. Dette er særlig interessant for lengre pulser i nanosekund-området, hvor man ellers ville få problemer med den svært høye energifluensen, som nevnt ovenfor. Prinsippet for en slik kombinert effekt er vist i figur 3.7.



Figur 3.7 Kombinert TPA og ESA.

I dette tilfellet bør levetiden i nivå  $E_1$  være lengre enn pulslengden, og levetiden i nivå  $E_2$  bør være svært kort, slik at de molekylene som er blitt eksitert via TPA forblir tilgjengelige for eksitasjon via ESA. ESA-tverrsnittet bør her være størst mulig slik at det kreves få molekyler i nivå  $E_1$  før absorpsjonen blir sterk. Fordelen med dette prinsippet er at man, som ved vanlig TPA, oppnår tilnærmet 100 % småsignaltransmittans, og at man ved å velge et materiale med svært høyt ESA-tverrsnitt kan oppnå svært sterk absorpsjon så snart intensiteten passerer TPA-terskelen. Ved å benytte en slik TPA/ESA-kombinasjon har man observert *effektive* TPA/ESA-



tverrsnittet på opp til  $7 \cdot 10^{-28} \text{ cm}^4/\text{W}$  ( $1.94 \cdot 10^{-46} \text{ cm}^4 \cdot \text{s}/(\text{foton og molekyl})$ ) for pulser i nanosekund-området [16] [17].

En annen mulighet til å øke TPA-absorpsjonen er som nevnt tidligere å utnytte en nær resonans med en av de intermediære energitilstandene som bidrar til TPA-prosessen.

### 3.3.3.2 TPA i halvledere

Eksempler på TPA-overganger er vist i figur 3.3. Som vi ser er det for en gitt  $h\nu$  to mulige TPA-overganger ved to forskjellige  $k$ -verdier. Som forklart i kapittel 3.1 kan overgangssannsynligheten for TPA beregnes kvantemekanisk ved 2. ordens perturbasjonsteori, hvor man inkluderer elektrisk dipol matriseelementer mellom starttilstanden og ett eller flere intermediære energinivåer, og tilsvarende matriseelementer mellom de intermediære nivåene og slutttilstanden. For TPA i halvledere kan de intermediære tilstandene enten finnes i andre bånd enn start- og sluttbåndet eller i nærliggende tilstander med litt forskjellig  $k$ -verdi innen start- eller sluttbåndet. Som for molekyler er energien bevart for prosessen som helhet når vi betrakter start- og slutttilstanden, mens det for de intermediære energitilstandene ikke stilles krav til energibevarelse.

Tofotonabsorpsjon er tillatt for fotonenergier  $h\nu$  som er mindre enn  $E_g$  men større enn  $E_g/2$ . De mest moderne teorier for tofotonabsorpsjon i halvledere angir tofotonabsorpsjonskoeffisienten  $\beta$  (oppgis oftest med enhet  $\text{cm}/\text{GW}$ ) ved følgende uttrykk, Van Stryland *et al* [18]:

$$\beta = \frac{K \sqrt{E_p} \cdot F(2h\nu / E_g)}{n^2 E_g^3} \quad (3.12)$$

hvor  $K$  er en materialuavhengig konstant,  $n$  er den lineære brytningsindeksen, og  $E_p$  er tilnærmet materialuavhengig. Funksjonen  $F$  avhenger av formen på båndstrukturen, men ser vi bort fra dette er den kun bestemt av forholdet  $2h\nu/E_g$ . På faktoren  $E_g^3$  i nevner vil materialer med lite båndgap ha den største følsomheten overfor tofoton-absorpsjon.

## 3.4 Mekanismer som påvirker begrensermaterialets brytningsindeks

I tillegg til absorpsjonsmekanismene beskrevet i forrige avsnitt, finnes det en rekke mekanismer som kan gi optisk begrensning ved at de påvirker mediets brytningsindeks. I noen tilfeller er det også en kobling mellom absorpsjonseffekter og endringer i brytningsindeks, f.eks termiske effekter.

### 3.4.1 Termiske effekter

De termiske effektene er ofte relativt langsomme og i tillegg akkumulative, og de kan derfor utnyttes mot lasere med lengre pulslengder eller lasere med høye pulsrater. Både lineær og ikke-lineær absorpsjon fører til oppvarming og utvidelse (fortynning) av et materiale. Dette gir opphav til brytningsindeksforskjeller. Oppvarmingen kan føre til både økning og reduksjon av brytningsindeksen, avhengig av type medium, og dermed lokal fokusering eller defokusering. I første omgang vil dette kunne føre til en økt diameter på den fokuserte laserstrålen i billedplanet til en optisk sensor (påvirker den fokuserbare energien, jfr kapittel 2). Dette kan gi en betydelig reduksjon av fluensen i billedplanet og dermed redusere faren for skader. Dernest kan den lokale oppvarmingen gi en rekke følgeefferter som bidrar til mange av de begrensingsmekanismene som blir diskutert i de etterfølgende kapitlene. Et eksempel på dette er termisk indusert

spredning (kapittel 3.4.2). I andre tilfeller hvor transmisjonen gjennom et medium er avhengig av at molekylene er ordnet regelmessig, kan termiske effekter forstyrre ordningen og hindre at strålingen får passere, Khoo *et al* [19].

### 3.4.2 Spredning

Spredning inntreffer på grunn av romlige variasjoner i brytningsindeksen til et medium. Slike variasjoner kan enten opptre i form av tilfeldige tetthetsfluktuasjoner eller de kan ha en mer ordnet romlig fordeling. Et typisk eksempel på førstnevnte form for spredning finner man i CBS-begrensere (CBS = *Carbon-Black Suspension*). Her dannes det gassbobler av vertsvæsken rundt karbonpartikler som oppvarmes av den innkommende strålingen. Gassboblene sprer så laserlyset i alle retninger. Denne begrensermekanismen kan benyttes over et bredt spektrum av pulslengder fra nanosekund- til millisekund-området.

Når det gjelder spredning som skyldes en ordnet romlig fordeling av tetthetsvariasjonene, er det særlig to effekter som er aktuelle; fotonisk båndgap spredning og fotorefraktiv spredning. Disse omtales nærmere i de neste to avsnittene.

#### 3.4.2.1 Fotonisk båndgap spredning

Fotoniske krystaller er materialer som har en romlig periodisk variasjon i brytningsindeksen. Dette gjør at man får et sett av båndgap eller bølgelengdeområder hvor lyset ikke kan trenge inn i materialet men blir i stedet avbøyd eller reflektert. Prosessen er ganske analog til elektroner i krystaller, som bare tillates å bevege seg innen gitte energibånd.

Generelt skapes variasjonen i brytningsindeksen ved å implantere et materiale med en annen brytningsindeks enn vertsmaterialet i et regelmessig mønster. For å kunne virke som begrensere, er det imidlertid nødvendig at variasjonen i brytningsindeks ikke gjør seg gjeldende før ved høyere energinivåer. Dette kan oppnås ved å implantere et materiale som har samme brytningsindeks som vertsmaterialet ved lavere energier men som får en annen brytningsindeks som følge av lokal oppvarming for høyere energier.

#### 3.4.2.2 Fotorefraktiv spredning

I enkelte ikke-lineære krystallinske materialer kan laserstråling som passerer gjennom, fremkalle et diffraksjonsgitter ved å eksitere ladningsbærere knyttet til urenheter i materialet. Ladningsbærerne skaper sterke elektriske felter som påvirker brytningsindeksen til vertsmaterialet i et periodisk mønster, og diffraksjon i dette gitteret fører til at strålingen avbøyes fra sin opprinnelige retning. Dette kalles fotorefraktiv effekt. Ideen er at koherensen i strålen fra et lasermotmiddel skal føre til at strålen luker seg selv bort fra billedplanet, mens stråling fra scenen, som er inkoherent, slipper igjennom upåvirket. Effekten kan f.eks observeres som såkalt *beam-fanning*, hvor en enkelt innkommende stråle spres ut i vifteform [20]. Man kan også bruke en stråledeler og speil til å splitte opp innkommende stråling i to forskjellige optiske veier [21]. Den ene delen, sidestrålen med ca 10 % av energien, sendes inn i det fotorefraktive materialet i en skrå vinkel i forhold til hoveddelen. De to delene av den koherente strålen vekselvirker på en slik måte at energien i hovedstrålen kobles inn i sidestrålen som på forhånd har fått retning ut av sensor-optikken.

I fotorefraktive prosesser trengs det en viss absorpsjon for å eksitere ladningsbærerne som

danner diffraksjonsgitteret. Absorpsjonen i materialet kan utgjøre så mye som 10 - 20 %. Mindre absorpsjon fører til høyere ikke-lineær terskel.

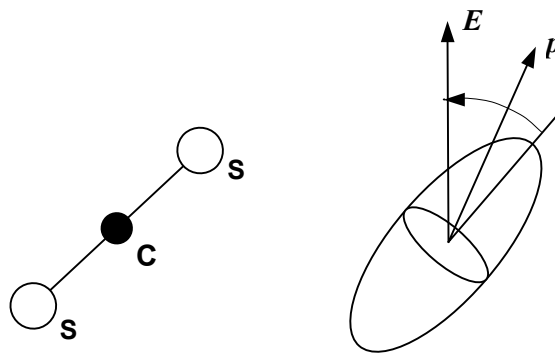
Fotorefraktiv avbøyning er en forholdsvis treg mekanisme og egner seg derfor best for kontinuerlig stråling eller pulset stråling med lav pulsenergi og høy pulsrate. Den kritiske størrelsen er den såkalte pregefluens ( $\text{J}/\text{cm}^2$ ), som er et uttrykk for den fluens som trengs for å skape diffraksjonsgitteret. Den vil typisk ligge i området  $0.005 - 0.1 \text{ J}/\text{cm}^2$ , avhengig av materiale og metode [21]. Skadeterskelen i fotorefraktive materialer er forholdsvis lav, f.eks ca  $1.5 \text{ J}/\text{cm}^2$  for ett av de mest kjente materialene, bariumtitanat ( $\text{BaTiO}_3$ ). En ulempe med den fotorefraktive prosessen er polarisasjonsavhengigheten. Generelt er det bare én polarisasjon som har sterk kobling mellom hoved- og sidestrålen, noe som betyr at den andre polarisasjonen må avvises av en polarisator eller redirigeres på annen måte.

Selv om fotorefraktiv avbøyning av stråling har vist svært lovende resultater i forsøk med optiske begrensere, og selv om prinsippet er unikt i forhold til de øvrige mekanismene vi har omtalt, må man bruke ganske komplisert optikk for å få det til å virke.

### 3.4.3 Molekylær reorientering

Molekylær reorientering danner grunnlaget for den teknologi som er bygget på flytende krystaller. Ved bruk av flytende krystaller er det vanlig å plassere mediet mellom to innbyrdes kryssede polarisatorer. Kollektiv orientering av molekylene fører til at mediet blir anisotropt og dermed dobbeltbrytende. Mediet vil dermed kunne dreie polarisasjonen til strålingen slik at denne enten kan passere gjennom eller bli blokkert av utgangspolarisatoren. Bruk av polarisatorer gjør at den totale transmittansen for upolarisert stråling alltid vil være  $< 50 \%$ . Den molekylære orienteringen blir vanligvis styrt av en ytre påtrykt spenning. Slik ekstern styring har imidlertid den ulempen at responsen ikke blir rask nok til å beskytte mot korte pulser. I tillegg til ekstern styring kan reorientering også induseres av påtrykt optisk stråling, f.eks fra en laser. Hvor hurtig slik reorientering kan foregå vil avhenge av molekylstørrelsen ved at store/lange molekyler bruker lengre tid på å skifte retning. I vanlig brukte flytende krystaller vil reorienteringen typisk ta flere millisekunder, men det finnes tilfeller hvor dette kan gå mye raskere [19]. For små molekyler, slik som  $\text{CS}_2$ , kan imidlertid responstiden ligge i pikosekundområdet [8], [22].

Figur 3.8 illustrerer hvordan orienteringen foregår. Et  $\text{CS}_2$ -molekyl får induert et dipolmoment  $\mathbf{p}$  som følge av et påtrykt elektrisk felt  $\mathbf{E}$ . Fordi molekylet har en avlang form vil separasjonen av ladning tendere til å bli størst langs molekylets lengdeakse. Dipolmomentet er produktet av effektiv ladning  $q$  og separasjonsvektoren  $\mathbf{d}$ ,  $\mathbf{p} = q\mathbf{d}$ . Dette betyr at dipolmomentet til molekylet vil ligge nær molekylets lengdeakse, som antydnet i figuren. Et dreiemoment  $\boldsymbol{\tau} = \mathbf{p} \times \mathbf{E}$  vil nå virke på molekylet slik at dette rettes inn med lengdeaksen langs  $\mathbf{E}$ . Den termiske bevegelsen til molekylene motvirker denne innretningen. Sterkere felt betyr sterkere innretning, noe som av det optiske feltet oppfattes som at brytningsindeksen øker. Dette betyr at en laserstråle som har størst intensitet i senter av strålen vil møte en brytningsindeks som øker inn mot senteret. En slik brytningsindeksvariasjon gjør at mediet virker som en positiv linse. Laserstrålen fokuserer dermed seg selv inne i mediet.



Figur 3.8 Illustrasjon av et  $CS_2$  molekyl som får induisert et dipolmoment  $\mathbf{p}$  som følge av et påtrykt elektrisk felt  $\mathbf{E}$ .

I det siste har man også fått demonstrert nye, svært følsomme optisk induserte reorienterings-effekter som bygger på at et dipolemokyl avgir ladning under påvirkning av stråling. Den avgitte ladningen påvirker i sin tur orienteringen til de flytende krystallene [19].

#### 3.4.4 Elektrostriksjon

Elektrostriksjon beskriver den tilbøyelighet et materiale har til å bli fortettet under påvirkning av et elektrisk felt. F.eks. vil molekylene i en væske som  $CS_2$  fornemme en kraft som trekker dem inn i området med maksimal feltstyrke [8]. Konsekvensen er at materialet blir tettere og at brytningsindeksen øker. Som ved molekylær reorientering vil dette også føre til selvfokusering av laserstrålen, men prosessen er ikke like rask. Typisk vil effekten være merkbar for nanosekund-pulser og sterkt fokuserende optikk [23]. I motsetning til molekylær reorientering er elektrostriksjon generelt å regne som en ikke-lokal effekt, da den kan involvere forflytning av molekyler.

#### 3.4.5 Selvfokusering og dielektrisk sammenbrudd

Flere av de effektene som beskrives i kapittel 3.2 kan betegnes som selvfokuseringseffekter. Mange av disse effektene har imidlertid forholdsvis lange responstider og egner seg derfor best for lange pulser. I dette avsnittet ser vi på den type selvfokusering som opptrer tilnærmet instantant via ikke-lineær elektronisk polarisasjon i mediet. I dette tilfellet er den lokale brytningsindeksen i mediet gitt av den instantane lokale strålingsintensiteten ved uttrykket [8]

$$n = n_0 + n_2 I \quad (3.13)$$

hvor  $n_0$  er den vanlige (småsignal) brytningsindeksen til mediet, mens  $n_2$  er den såkalte ikke-lineære brytningsindeksen (enhet  $cm^2/W$ ). Som nevnt i 3.1 er  $n_2$  proporsjonal med  $\chi^3$ . Dette fører til en økning av brytningsindeksen innenfor laserstrålens tverrsnitt, noe som vil gi en linseffekt. For at dette skal føre til faktisk fokusering av strålen må linseffekten overvinne den naturlige diffraksjonen. Det viser seg at for en kollimert gaussisk stråle vil slik selvfokusering opptre for effekter høyere enn en viss kritisk effekt,  $P_{cr}$ , gitt av følgende omtrentlige uttrykk [8]:

$$P_{cr} = \frac{0.146\lambda^2}{n_0 n_2} \quad (3.14)$$

hvor  $\lambda$  er strålingsbølgelengden. En lignende formel er gitt av Marburger [24]. Det er verdt å merke seg at denne grenseverdien er gitt av effekten og ikke av intensiteten i strålen. For  $P > P_{cr}$  vil fokuseringen bli selvforsterkende slik at strålen til slutt fokuseres til så liten diameter at vi får dielektrisk sammenbrudd i mediet. Dette kalles gjerne for katastrofal selvfokusering, noe som gir stor dempning av den innkommende energien. Det forutsettes her at mediet er langt nok til at et slikt fokus nås inne i mediet. Lengden fra mediets inngangsflate til fokus for en kollimert gaussisk stråle er gitt ved [8]

$$L_f = \omega_0^2 \left( \frac{\pi n_0}{2 n_2 P} \right)^{\frac{1}{2}} = \omega_0 \left( \frac{n_0}{n_2 I} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.15)$$

hvor  $\omega_0$  er stråleradien. Vi ser at selv om det kun er et krav om en viss minste effekt for oppnå selvfokusering, kan det være essensielt å benytte en høy intensitet for å oppnå en rimelig kort lengde til fokus og dermed redusere kravet til lengde på mediet. Vi skal igjen benytte CS<sub>2</sub> som et eksempel. CS<sub>2</sub> er et medium med forholdsvis høy ikke-lineær brytningsindeks;  $n_2 = 2.6 \cdot 10^{-14}$  cm<sup>2</sup>/W. Hvis vi antar en bølgelengde på 1 μm og benytter at  $n_0 = 1.7$ , får vi en kritisk effekt  $P_{cr}$  på ca 33 kW. For pulser i piko- og nanosekund-området kan inn-effekter i denne størrelseorden lett oppnås selv om pulsenergien ikke er særlig stor. Velger vi videre  $P = 1$  MW og  $\omega_0 = 100$  μm, får vi at  $L_f \approx 1$  cm. Det skal her også bemerkes at den kritiske effekten og lengden til fokus vil bli redusert dersom strålen er fokusert (konvergent) ved inngangsflaten til mediet.

## 4 OVERSIKT OVER AKTUELLE MATERIALER OG DERES BRUKSOMRÅDER

Vi skal her gi en nærmere beskrivelse og diskusjon av spesifikke begrensermaterialer.

### 4.1 Materialer for synlig og nær-IR stråling (0.4 - 2 μm)

Ut fra tilgangen på laserkilder og faren for blinding av det menneskelige øyet er det naturlig nok dette området som hittil har blitt tildelt den største forskningsinnsatsen. Mange sensorer som opererer i dette området er svært følsomme overfor blinding eller blinding. Tilpasningen av begrenserens utgangsenergi til detektorens skadeterskel blir derfor en krevende oppgave.

#### 4.1.1 Konjugerte polymere

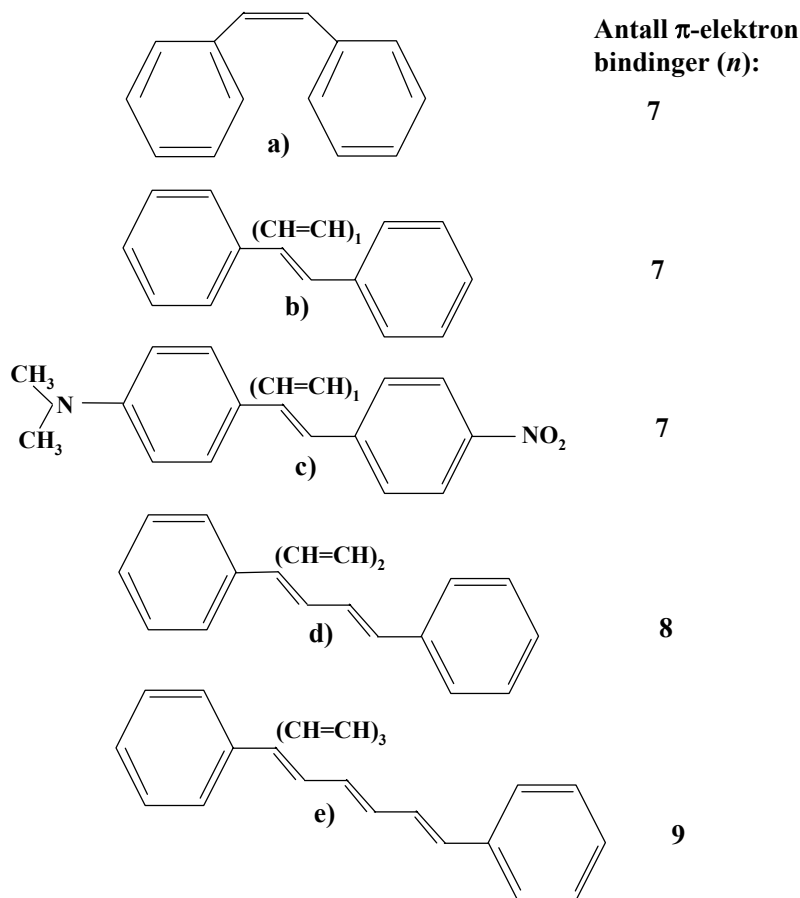
I konjugerte polymere består grunnstrukturen av konjugerte bindinger mellom karbonatomer (jfr kapittel 3.2.1.1), hvor  $\sigma$ -bindingene definerer molekylets form. I tillegg deltar  $\pi$ -elektronene i bindingene. Disse elektronene kan også bringes opp i delokaliserte eksiterte ( $\pi^*$ ) tilstander som gjør kjedet lett polariserbart (med store verdier for susceptibilitetene  $\chi^{(2)}$  og  $\chi^{(3)}$ ), noe som gir grunnlag for sterke ikke-lineære effekter. Et sentralt spørsmål dreier seg om på hvilke måter ladning kan bli lagret i polymerkjedet, og på hvilke måter den kan flyttes. Strategien for å øke polariserbarheten går ut på at man modifiserer (utvider) polymerkjedet ved tilsetning av nye grupper av donor- og akseptoratomer på forskjellige steder i molekylet. Dette omtaler vi som donor-akseptor polymere. Det som skjer rent kvantemekanisk er at man øker de matrise-

elementene som er involvert i gitte prosesser. For de polymerene vi omtaler nedenfor gjelder dette først og fremst tofotonovergangene.

#### 4.1.1.1 Donor-akseptor polymere

Den vanligste typen av donor-akseptor polymere er bygget opp av polyener. Difenylypolyener består av to fenyyl-grupper (benzen-ringer), én i hver ende, som er bundet sammen med en bro av konjugerte bindinger. Figur 4.1 viser noen aktuelle eksempler. Molekyler med de korteste broene kalles stilbener, mens de med lengre broer får navn etter de ulike polyenene som danner broen. De to første tallene i navnet spesifiserer hvilke atomer i kjedet som benzen-ringene er knyttet til, mens den andre gruppen av tall angir plasseringen av dobbeltbindingene i kjedet.

Det øverste molekylet i figur 4.1 (*cis*-stilben) oppviser mye mindre tofotonabsorpsjon enn det nest øverste molekylet (*trans*-stilben), selv om begge har det samme antall  $\pi$ -bindinger. Dette skyldes at *cis*-stilben har en ikke-planar struktur som ødelegger  $\pi$ -elektron delokaliseringen i molekylet. En av benzen-ringene er vridd ca  $30^\circ$  ut av planet i forhold til den andre. De fleste organiske molekyler har et ganske lavt TPA tverrsnitt, av størrelsesorden  $\sigma'_{TPA} \approx 1 \cdot 10^{-50} \text{ cm}^4 \text{ s}$  pr foton og molekyl. Stilbener har generelt verdier rundt  $12 - 60 \cdot 10^{-50} \text{ cm}^4 \text{ s}$  pr foton og molekyl [25]



Figur 4.1 Molekylstruktur til noen difenylypolyener, a) *cis*-stilben, b) *trans*-stilben, c) DANS (4-dimetylamino-4-nitrostilben), d) DPB (1,4-difenyyl-1,3-butadien), og e) DPH (1,6-difenyyl-1,3,5-hexatrien)

### Optimalisering av TPA tverrsnittet

Ladningsforskyvningen (polariserbarheten) som søkes oppnådd i optimaliserte molekyler kan skje fra utkantene av et konjugert system til midten av molekylet, eller omvendt, fra sentrum til utkantene, eller fra den ene enden av molekylet til den andre. For at dette skal oppnås, må  $\pi$ -systemet destabiliseres, dvs gjøres bi-stabilt på en slik måte at forskyvningen lett kan trigges ved å absorbere to fotoner på en gang. Foruten den rent eksperimentelle utprøvingen av molekylene har man også numeriske metoder som kan gi en pekepinn på forhånd om tofotonprosessen vil være effektiv eller ikke.

### Ikke-sentrosymmetriske konjugerte molekyler

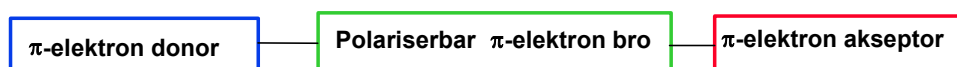
Her er donor- og akseptorgruppene substituert asymmetrisk, for eksempel en donor på den ene enden av en stilben-enhet og en akseptor på den andre, et såkalt  $D\pi A$ -polyen. Dette er vist skjematisk øverst i figur 4.2. DANS-molekylet i figur 4.1c er et eksempel på et slikt  $D\pi A$ -polyen. Her utgjør  $N(CH_3)_2$  donorgruppen mens  $NO_2$  er akseptor. Ofte brukes betegnelsen *push-pull* om slike molekyler, idet donorgruppen skyver fra seg ladning mens akseptorgruppen tiltrekker seg ladning. Under tofotonabsorpsjonen skjer det foruten en betydelig endring av ladningsfordelingen også en endring av molekylets dipolmoment i forhold til grunntilstandens dipolmoment.

### Sentrosymmetriske konjugerte molekyler

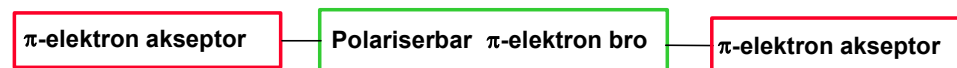
I sentrosymmetriske molekyler har man fått til et lett-trigget system ved å substituere elektron-donerende eller elektron-aksepterende grupper til begge ender av et molekyl. Et slikt  $A\pi A$ -polyen er skissert nederst i figur 4.2. Man kan også ha donorer på endene ( $D\pi D$ -polyen) og eventuelt supplere med en akseptorgruppe på den konjugerte broen ( $DAD$ -polyen), som hjelper til med å dra ladningen fra endene av molekylet og inn mot broen.

Den sentrosymmetriske ladningsforskyvningen under absorpsjonen fører ikke til noe netto dipolmoment, men man kan få betydelige endringer i molekylets kvadropolmoment i forhold til grunntilstandens kvadropolmoment.

#### TYPE 1



#### TYPE 2



Figur 4.2 Optimalisering av polyener for maksimal TPA: Type 1,  $D\pi A$  ikke-sentrosymmetrisk molekyl. Type 2, sentrosymmetrisk  $A\pi A$  molekyl

Som et eksempel på enklere molekyler med  $D\pi D$ -struktur nevner vi DPAS (4,4'-bis-difenylaminostilben). Dette molekylet er nært beslektet med DANS, og har  $\sigma'_{TPA} = 325 \cdot 10^{-50} \text{ cm}^4$  s pr foton og molekyl [15].

#### 4.1.1.2 Dendrimer-molekyler

Dendrimer-molekyler representerer en videreutvikling av de lineære D $\pi$ A og A $\pi$ A polymerene ovenfor. Som navnet sier har vi her en dendrittisk (forgrenet) struktur, hvor de aktive elementene fremdeles kan være stilben- eller polyen-enheter. I jakten på høyere TPA tverrsnitt har man nylig begynt å lage tredimensjonale molekyler med mange armer som stikker ut fra et kort sentralt kjede.

Populært sagt ligner dendrimer-molekyler en ball som man har stukket pinner i. Med denne trestrukturen har man gitt avkall på å ha reorienteringseffekter, og heller satset på å rendyrke TPA. Sammenlignet med lineære polymere har dendrimer-molekylene mange fordeler:

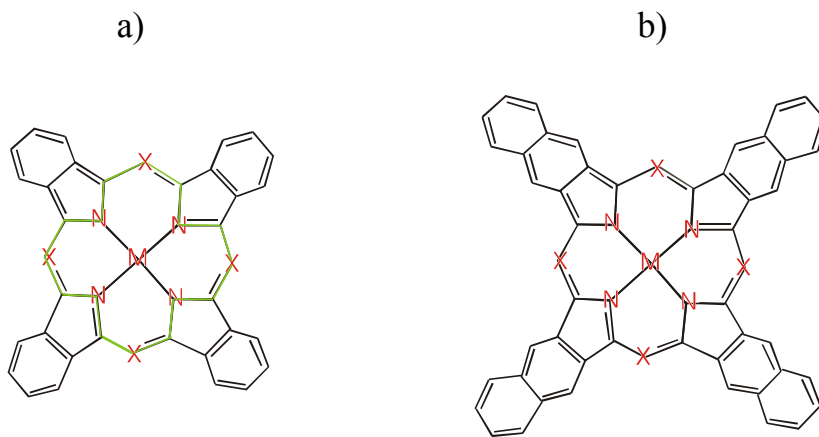
(1) Pga den spesielle trestrukturen kan størrelsen til et dendrimer-molekyl bli økt ved addisjon av aktive elementer til grenene (divergent strategi) eller ved addisjon til det sentrale kjerne-kjedet (konvergent strategi). (2) Den resulterende tredimensjonale strukturen tillater en meget høy pakketetthet av de aktive elementene, hvis antall øker eksponensielt med molekylets størrelse. (3) dendrimer-molekyler har høy fotokjemisk og termisk stabilitet, og er lette å fremstille, noe som gjør det mulig å produsere tynne polymerfilmer, fibre og bulk polymerer som er dopet med disse makromolekylene.

Man kan observere et rødsjift i TPA-maksimum i forhold til utgangsmolekylet ved addisjon av flere elementer, og også lignende skift i den lineære absorpsjonen [15]. Dette kan skyldes vekselvirkninger mellom grenene, og vil også kunne ha betydning for tilpasning av dendrimer-molekylet til et gitt transmisjonsvindu i et observasjonsinstrument. Det maksimale TPA-tverrsnittet for sub-pikosekund pulser som er oppnådd i organiske materialer er målt i et dendrimer-molekyl bygd opp av DPAS enheter ( $\sigma'_{TPA} = 11\,000 \cdot 10^{-50} \text{ cm}^4 \text{ s}$  pr foton og molekyl, som tilsvarer  $4 \cdot 10^{-28} \text{ cm}^4/\text{W}$  [15]). Det maksimale TPA-tverrsnittet for nanosekund-pulser i donor-akseptor polymere kan komme opp i verdier på knapt det dobbelte av dette [16], men da dreier det seg om ”effektive” TPA+ESA tverrsnitt. Det understrekes at det ikke er formelt riktig å bruke kun ett enkelt tverrsnitt for å beskrive den sistnevnte sammensatte prosessen, men tallene gir likevel en pekepinn på hvilken ytelse de nyere TPA-molekylene gir i pikosekund - nanosekund området.

#### 4.1.1.3 Porphyriner, phtalo- og naphtalo-cyaniner

Disse molekylene omtales ofte som makrosykliske (ringformede) organiske fargestoffer [26]. Phtalocyaniner ble først syntetisert ved en tilfeldighet ved Scottish Dyes Co Ltd i 1928, mens porphyrinene allerede var kjent på slutten av 1800 tallet. I den senere tid har man begynt å videreutvikle egenskapene til slike ring-molekyler for anvendelse i begrensere. Grunnstrukturen til phtalo- og naphtalocyaninene er vist i figur 4.3. Phtalo- og naphtalocyaninene har nitrogen på plassene markert med X i figuren. Porphyrinene har karbon på disse plassene, og har ellers mange fellestrekk med cyaninene. De fire femkantede ringene kalles pyrrolringer, og materialer som har denne strukturen går også under navnet tetrapyrroler. Vi finner oftest metallatomer i sentrum av den makroskopiske ringen. Metallatomet M er bundet til ringen via nitrogenatomer N, men kan i tillegg ha andre elementer knyttet til seg, f eks klor.





Figur 4.3 Strukturformel for a): phtalocyanin og b): naphtalocyanin

Den optiske begrensersmekanismen i disse molekylene er RSA; altså en *sekvensiell* form for absorpsjon hvor molekylene først eksiteres til  $S_1$ -tilstanden (jfr figur 3.2), som har forholdsvis lang levetid. Etterfølgende absorpsjon fra  $S_1$  til  $S_2$  (eller fra  $T_1$  til  $T_2$  dersom molekylet relaxerer fra  $S_1$  til triplett-tilstanden  $T_1$ ). For pikosekund-pulser (av kortere varighet enn tiden som trengs for å populere  $T_1$ ) vil singlett-absorpsjonen fra  $S_1$  til  $S_2$  være viktigst, mens det for lengre pulser vil kunne skje en overgang til  $T_1$  og en absorpsjon herfra til  $T_2$ . Denne evnen til å takle både lange og korte pulser er svært nyttig. Som for alle RSA-prosesser har mekanismen en fluensterskel, jfr kapittel 3.1, ligning 3.5.

Den aktive ingrediensen i disse materialene er ringsystemet som er markert med grønt i figur 4.3. For å øke overgangsraten fra  $S_1$  til triplett-tilstanden  $T_1$  kan man erstatte det sentrale atomet i ringen med et tungt atom, for eksempel et bly-atom [13]. Den dype potensialbrønnen som det tunge atomet representerer gir en økt spinn-bane kobling for metallorbitalene, som forstyrrer elektron egenspin-betraktningene som ligger til grunn for de rene singlett- og triplett-tilstandene. Når disse orbitalene kombineres med orbitalene i ringsystemet til molekylorbitaler som gjelder hele molekylet, vil det resultere i en økt overgangssannsynlighet fra singlett- til triplett-tilstandene. Andre modifikasjoner som kan gjøres med disse molekylene består i å addere ulike kjemiske grupper til de fire ”armene” på de to grunnstrukturene som er vist i figur 4.3.

Det lineære absorpsjonsspekteret til phtalocyaniner består av to absorpsjonsbånd, ett nær UV området (ofte kalt Soret-båndet) og ett som ligger i eller inn mot nær-IR området (ofte kalt Q-båndet). Nær-IR absorpsjonen er assosiert med overganger fra grunntilstanden  $S_0$  til den eksiterte tilstanden  $S_1$ . For kloro-aluminium-phtalocyanin (CAP) inntreffer absorpsjonstoppen i nær-IR ved 670 nm. Nær-UV absorpsjonen er assosiert med overganger fra  $S_0$  til  $S_2$ . Absorpsjonstoppen i nær-UV er ved 355 nm for CAP. Begge absorpsjonsbåndene er assosiert med overganger i det makrosykliske ringsystemet fra besatte  $\pi$ -orbitaler til ubesatte  $\pi^*$ -orbitaler. Den svakere ”rest-absorpsjonen” mellom disse områdene er helt nødvendig for initieringen av RSA, og er sammensatt av overganger til litt høyere vibroniske nivåer innen  $S_1$  og delvis også av lavenergihalen til  $S_2$  [27].

Porphyriner, phtalocyaniner og naphtalocyaniner hører til de mest følsomme organiske begrensersmaterialene med kapabilitet til å beskytte øyet. Typiske ytelser er terskelenergier på rundt 7-8 nJ med en korresponderende terskelfluens  $F_{L/2}$  i fokus av begrenserseren på ca

0.07 J/cm<sup>2</sup>.

#### 4.1.1.4 Calixarener

Arener er et annet navn for aromatiske (dvs. bestående av benzenringer) hydrokarboner. Disse materialene er også makrosykliske, og de har et ringsystem som er svært likt det vi finner i porfyriner, phtalo- og naphthalocyaniner. Den mest markante forskjellen er at det sentrale elementet i den makrosykliske ringen ikke er pyrrolringer, men benzenringer, forbundet med korte broer. F eks vil calix(4)aren ha fire benzenringer i den makrosykliske ringen. Til benzenringen kan en så forbinde andre funksjonelle grupper og bygge ut molekylet i en stjerneform. Som for phtalo- og naphthalocyaninene vil raten for singlett-triplett overganger kunne påvirkes ved substitusjon av tunge atomer.

#### 4.1.2 Halvledere

Halvlederbegrensere kan operere over et bredt bølgelengdeområde fordi den initielle tofotonabsorpsjonen og påfølgende refleksjons- og brytningseffekter (defokusering) pga fotogenererte frie ladningsbærere varierer lite med bølgelengden. Defokusering pga frie ladningsbærere er en svært viktig del av virkemåten til halvlederbegrensere fordi dette både bidrar til begrensning og beskytter halvlederen mot de høye intensitetene i fokus. Det er derfor viktig at man unngår å fokusere strålingen på den skadeutsatte overflaten, men heller fokuserer dypere inn i materialet. På den måten kan begrenseren beskytte seg selv. Dette krever material-tykkelser som gjerne overskrider 10 mm. Dynamisk område kan være rundt  $10^4$ , og man har testet ZnSe-begrensere med dynamisk område  $> 10^4$  for inn-energi opp til 100  $\mu\text{J}$  uten at skade oppsto [28]. Halvledere virker best for pulser i pikosekund-området hvor ikke-linearitetene kan starte for inn-energi rundt 10 nJ [29], mens man i nanosekund-området (20 ns pulser og 6.4  $\mu\text{m}$  flekkdiameter) har målt  $E_{TH} = 2 \mu\text{J}$  for en ZnSe begrenser med 10 mm tykkelse ved 532 nm bølgelengde [28]. For pulser i nanosekund-området vil rekombinasjon (tidsskala ca 1 ns) og en lite effektiv absorpsjon p g a de frie ladningsbærerne gi langt mindre begrensning. Operasjonsområdet for ZnSe er fra 0.5 - 0.85  $\mu\text{m}$ , avgrenset av oppstart av lineær absorpsjon for den minste bølgelengden og opphør av tofotonabsorpsjon for den største bølgelengden. I [18] er det gitt en oversikt over aktuelle halvlederbegrensere i det synlige og i nær-IR området. Den økte effektiviteten i tofotonabsorpsjon i for økende bølgelengde (jfr ligning 3.12) kan demonstreres ved å sammenligne tofotonabsorpsjonskoeffisienten  $\beta$  for ZnSe som opererer idet synlige området med  $\beta$  for aktuelle materialer i nær-IR, GaAs og CdTe. Vi finner hhv 5.5 cm/GW for ZnSe, mens GaAs har  $\beta = 23 \text{ cm/GW}$  og CdTe har  $\beta = 22 \text{ cm/GW}$  [18].

#### 4.1.3 Karbonpartikler

En svært interessant klasse av optiske begrensere er de såkalte *carbon-black suspensions* (CBS), som består av karbonpartikler blandet i en væske. FFI har utført egne forsøk med slike begrensere, noe som vil bli diskutert i kapittel 6. Begrensermekanismene i CBS har vært mye omstridt, så vi vil her kun gi en nokså summarisk beskrivelse.

Den initielle absorpsjonen av stråling, som fører til oppvarming av karbonpartiklene, er en lineær prosess. Det er ellers to hovedmekanismer i CBS-begrensere: bobledannelse i vertsvæsken rundt de oppvarmede karbonpartiklene, og sublimasjon (fordampning) av karbonpartikler med påfølgende overslag i karbonplasmaet for høyere fluenser. Ved bobledannelse spres laserlyset, og mekanismen inntreer typisk ved fluenser på ca 0.1 J/cm<sup>2</sup> og

virker over et svært stort pulslengdeområde (nanosekund-millisekund). Bobledannelsen er avhengig både av vertsvæsken og pulslengden. Sublimasjon inntreffer ved fluenser på ca  $0.7 \text{ J/cm}^2$ , og er ikke vertsvæskeavhengig, Fougeanet *et al.* [30]. I de tilfeller hvor pulslengden er større enn ca 10 ns og vertsvæsken er egnet for bobledannelse, vil den ikke-lineære transmittansen oppvise to nedadgående knekker som funksjon av fluensen, en knekk ved ca  $0.1 \text{ J/cm}^2$  (bobledannelse) og en ny knekk ved  $0.7 \text{ J/cm}^2$  (sublimasjon). Oppgitte terskelverdier kan ellers variere mye med preparering av materialet og med selve prøveoppsettet.

Et annet trekk ved karbonpartikkelsuspensjoner er at den transmitterte pulsen *forkortes* ved økende inn-energi (målt etter halvverdbredden). Det første partiet følger inngangspulsen, mens det siste partiet svekkes kraftig. Dette fører til at topp-punktet i den transmitterte pulsen kommer *foran* topp-punktet i den innkommende pulsen (jfr FFI-eksperimenter diskutert i kapittel 6).

Den lineære småsignalabsorpsjonen i karbonpartiklene som driver begrensersprosessen dekker et stort bølgelengdeområde, fra UV til langt inn i nær-IR området. Utfra spektroskopiske målinger finner man at denne absorpsjonen avtar med økende bølgelengde som  $\lambda^{-1}$  [31].

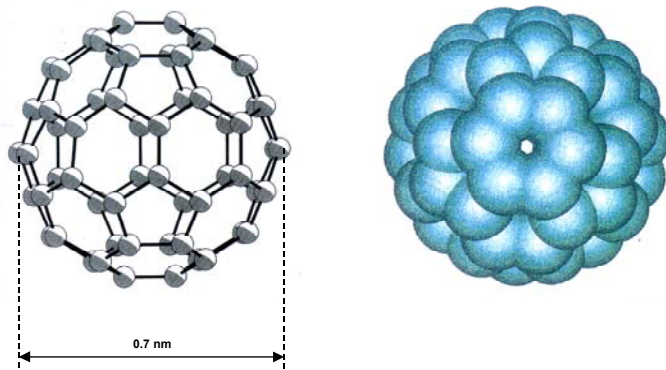
En ulempe med karbonpartikler er at sublimasjonen fører til ødeleggelse av partiklene og dette betyr at man må ha gjennomstrømning i vertsvæsken for å kunne hanskkes med repeterende pulser. Man kan høyne toleransen for repeterende pulser ved å velge en vertsvæske som tillater en rask diffusjon av nye partikler inn i fokus av strålen. Blant disse væskene er  $\text{CS}_2$  en aktuell kandidat.

#### 4.1.4 Fullerener

Fullerener er strukturer av karbon, der atomene er ordnet i lukkede skall som er svært stabile. Antall atomer i skallet kan variere, men spesielt har skall sammensatt av 60 atomer ( $\text{C}_{60}$ ) vist interessante egenskaper. I  $\text{C}_{60}$  er atomene ordnet i en polygonstruktur lik mønsteret på en fotball, som vist i figur 4.4.

Optisk begrensing i  $\text{C}_{60}$  ble først rapportert av L.W. Tutt og A. Kost i 1992 [32].  $\text{C}_{60}$  er en god RSA-absorbator i området 532-650 nm, men ikke for lengre bølgelengder, grunnet for svak lineær absorpsjon til å drive RSA (det er mulig å modifisere  $\text{C}_{60}$  molekylet for å gi bedre respons for bølgelengder større enn 650 nm).

I  $\text{C}_{60}$  er både singlett- og triplett-tilstandene (jfr Figur 3.2) aktive i RSA-prosessen. Først populeres den nederste eksiterte  $S_1$ -tilstanden, deretter populeres  $T_1$ -tilstanden (levetid  $> 10 \mu\text{s}$ ) med en kvantevirkningsgrad nær 1. Fordi  $T_2$ - $T_1$ -overgangsraten er høy ( $10^{11} \text{ 1/s}$ ) kan molekylet absorbere et stort antall fotoner på  $T_1$ - $T_2$ -overgangen før det faller tilbake til grunntilstanden,  $S_0$ .



Figur 4.4 Fullerenener (bildet viser  $C_{60}$ ) er ett av de mest sentrale beskyttelsesmaterialene i det synlige/nær-IR området

Fullerene nanorør representerer en videreutvikling fra kuleskallstrukturer til rørstrukturer. Optisk begrensning i karbon-nanorør, der rørene består av enkle eller multiple vegger (single-wall carbon nanotubes SWNT, multiwall carbon nanotubes MWNT), er undersøkt for piko- og nanosekund laserpulser [33], [34]. Begrensermekanismen er funnet å være ikke-lineær spredning, lik den i CBS-begrensere (avsnitt 4.1.3). For pikosekund pulser ble det ikke registrert noen optisk begrensning. Dette kommer av at det tar ca 0.5 ns før den ikke-lineære transmisjonen starter [33], (svarer til karakteristisk tid for dannelsen av spredningsentra i løsningen). For nanosekund pulser (532nm), var terskelen for SWNT i kloroform  $0.04 \text{ J/cm}^2$  [34], og for MWNT i etanol  $0.2 \text{ J/cm}^2$  [33].

#### 4.1.5 Nanopartikler

Det foregår i dag intensiv forskning for å finne ut hvordan materialeegenskaper utvikler seg som funksjon av partikkelstørrelse, mellom molekyl- og bulkregimet. Partikler i dette størrelsesområdet kan ha vesentlig forskjellige egenskaper fra dem vi kjenner for bulk-materialer bestående av de samme elementene. Når størrelsen på en partikkel krymper, vil antall atomer i overflaten øke i forhold til antall atomer som befinner seg inne i partikkelen. Overflaten vil derfor spille en mye større rolle.

Metall-nanopartikler oppviser en sterk, bredbåndet absorpsjon i det synlige området. Denne grunntilstands-absorpsjonen forårsakes av kollektive oscillasjoner (overflate-plasmoner) av overflate-elektroner i et ledningsbånd. Oscillasjonene settes i gang av det elektriske feltet i den innkommende strålingen. Denne kollektive, lineære absorpsjonen kan så starte en individuell eksitasjon av elektroner innen ledningsbåndet, idet enkelte elektroner får høyere energi enn de har i plasmon-moden. Overgangen fra kollektive eksitasjoner til enkelteksitasjoner er markert med en bleking av grunntilstandsabsorpsjonen. Opp til dette stadiet virker altså nanopartikkelen som en blekbar absorptor [35].

For høyere intensiteter vil enkelteksitasjonene dominere, og vi får en ny, bredbåndet absorpsjon i enkelte frie ladningsbærere. De eksiterte elektronene vil kvitte seg med energien ved først å vekselvirke med hverandre (elektron-elektron relaksasjon) på en tidsskala rundt 0.5 ps, og deretter skjer vekselvirkningen med partikkelens gitter på en tidsskala rundt 2.5 ps. I sin tur vil

gittersvingningene som har blitt satt i gang av disse relaksasjonsprosessene dumpe sin termiske energi til en vertsvæske. Siden nanopartikler er svært følsomme for hva som skjer i overflaten, vil også denne siste vekselvirkningen ha en viss innvirkning på grunntilstandsabsorpsjonen, og man får ikke fullstendig restituert denne før etter ca 50 - 100 ps. Virkemåten som er beskrevet her må klassifiseres som RSA, og en begrenser basert på metall-nanopartikler vil derfor ha likhetstrekk med organiske RSA-begrensere. Den vil imidlertid ha en mer bredbåndet respons, og i håndtering ellers vil den ha fellestrekk med karbonpartikkelbegrensere; idet begge er suspensjonsbegrensere. Den viktige forskjellen her er at nanopartiklene er *stabile*, slik at de tåler høyere puls-rater uten å måtte ha gjennomstrømning av væske. Stabiliteten oppnås ved å dekke overflaten med et organisk materiale som blandes inn etter en viss tid i fremstillingsprosessen. Det organiske materialet stanser veksten av metallpartiklene idet de legger seg som et beskyttende lag omkring hver partikkel.

I tillegg til de prosesser vi har nevnt ovenfor, kan også elektroner eksiteres via tofoton- eller multifotonabsorpsjon, slik at de forlater nanopartikkelen (elektronemisjon) eller blir liggende i et skikt inntil partikkelen. Dette fører til oppladning av partikkelen, og i noen tilfeller, hvor det ikke skjer en rask rekombinasjon, kan det føre til at partikkelen brytes opp.

Som de fleste RSA-materialer virker nanopartikler best for nanosekund-pulser. I pikosekund-området er det med 14  $\mu\text{m}$  flekkdiameter og 3 - 4 nm partikkelstørrelse er det rapportert en ikke-lineær terskel på 0.1 J/cm<sup>2</sup> for 35 ps pulser. Nanopartiklene var her sammensatt av sølvatomer med et organisk beskyttelsesskikt, og vertsvæsken var toluen [35]. Nanopartikler har en raskere og mer bredbåndet respons enn tradisjonelle RSA-materialer, og en ser for seg at disse kan videreutvikles til å virke som begrensermateriale for pulser i femtosekund-området [35].

#### 4.1.6 CS<sub>2</sub>

CS<sub>2</sub> er en væske som har høy transparens i både det synlige, nær-IR, mid-IR og fjern-IR området. Den kan brukes både som aktivt materiale og som vertsvæske. Mekanismene som inntreer er tofotonabsorpsjon, selvfokusering, selvdefokusering og dielektrisk sammenbrudd. Tofotonabsorpsjon setter inn i bølgelengdeområdet under 490 nm, hvor absorpsjonskoeffisienten  $\beta$  øker fra null ved 490 nm til 10 GW/cm ved 400 nm, Ross [36]. CS<sub>2</sub> kan oppvise høye *FOM* verdier (ca 1000 ved 51 mJ inn-energi og 5 ns pulser på 532 nm bølgelengde [37], [38], men er ikke følsomt nok til å beskytte sensorer alene. Nyttien av CS<sub>2</sub> som aktivt begrensermateriale avgjøres derfor av hvilke andre, mer følsomme materialer det kan samvirke med.

Hovedmekanismene i optiske begrensere basert på at det i CS<sub>2</sub> er molekylær reorientering og elektrostriksjon, som fører til en intensitetsavhengig brytningsindeks  $n_2$ . Dette gir opphav til sterk selvfokusering (jfr kapittel 3).

I henhold til teorien i kapittel 3.4.5 (ligning 3.14) og data for  $n_2$  i CS<sub>2</sub> skal kritisk selvfokusering i CS<sub>2</sub> opptre for effekter over ca 9 kW ved 532 nm bølgelengde for en lineært polarisert stråle som er kollimert på inngangsflaten til CS<sub>2</sub>-cellen. Nylig har Hernández *et al* [23] gjort forsøk med CS<sub>2</sub> som førstebegrenser i en tandem-konstruksjon, og funnet en eksepsjonelt lav terskel på 2.6 kW (14  $\mu\text{J}$  pulsenergi) for 5 ns lange pulser ved en fokusert flekkdiameter på 12  $\mu\text{m}$  og 532 nm bølgelengde. Den lave terskelen tilskrives innvirkningen av elektrostriksjon. Det er

ifølge [23] uklart hvilke terskler en får når pulslengden økes utover denne verdien. I kapittel 6 skal vi gå mer i detalj på dette spørsmålet. Elektrostriksjon krever generelt en lengre pulslengde enn molekylær reorientering, og den er sterkt avhengig av at flekkdiameteren er liten. Hernández [23] beregner at den kritiske effekten i deres eksperiment ville vært på 8.2 kW ved 532 nm for ”moderat” fokusering. Dette ligger litt under det man får i henhold til ligning 3.14.

Til sammenligning fant Solieau *et al* [22] en terskel på 26 kW ( $\sim 1 \mu\text{J}$  pulsenergi) for 40 ps lange pulser, en flekkdiameter på 100  $\mu\text{m}$  og 1.06  $\mu\text{m}$  bølgelengde. Dette ligger også noe under den terskelen som kan beregnes fra ligning 3.14.

Et annet vesentlig spørsmål er hvor robust sammenbruddsmekanismen i  $\text{CS}_2$  er overfor stråler som avviker fra en gaussisk transversal profil. Det har lenge vært diskutert hvorvidt strålen brytes opp i filamenter som selvfokuserer individuelt eller om strålen kollapser enhetlig. Man kan tenke seg at hvert filament inneholder nok energi til at terskelverdien for selvfokusering overskrides. Høyere innsendt energi gir da en mulighet for at det kan dannes flere filamenter, men antallet filamenter vil også kunne bestemmes av hvor ”ren” strålen er i utgangspunktet (singelmodus vs multimodus stråle). Likeledes diskuteres det hvorvidt fokus i strålen vil forflytte seg hurtig frem og tilbake i løpet av pulsen. Slike mekanismer kan ha en viss innvirkning på terskelverdiene og på hvor gradvis sammenbruddet skjer.

FFIs egne forsøk (jfr kapittel 6) med 7 ns pulslengde og en flekkdiameter på 28  $\mu\text{m}$  fra en multimodus Nd:YAG laser på 1.06  $\mu\text{m}$ , ga en terskel på 29 kW (ca 200  $\mu\text{J}$ ). Flekkdiameteren er her 4.7 ganger større enn hos Hernández *et al* og bølgelengden 2 ganger større, og terskel-effekten er her i godt samsvar med terskelen gitt av ligning 3.14.

#### 4.1.7 Flytende krystaller

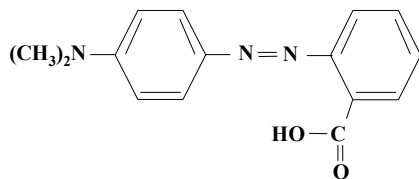
Nematiske (stavformede) flytende krystaller har et bredt transmisjonsområde (0.4 - 12  $\mu\text{m}$ ), og en stor responsivitet overfor både elektriske og optiske felter. Mekanismene kan strekke seg fra sub-pikosekund elektroniske polarisabiliteter til lengdeakse-reorienteringer på millisekund-skala [39]. En kortfattet beskrivelse av dette ble for øvrig gitt i [1].

Polymer disperse flytende krystaller (PDLC) er sammensatte materialer som består av dråper av flytende krystaller i et polymer-vertsmateriale. Materialene blir laget ved at initielt homogene blandinger av polymeren og vertsmaterialet separerer i sine enkelte faser. Spredning av innkommende stråling oppstår fordi den anisotrope flytende krystallen kan endre orientering inne i vertsmaterialet og derved endre brytningsindeks i forhold til dette. De raskeste PDLC har svitsjetider under 100  $\mu\text{s}$ , og de har derfor potensiale som beskyttelsesmaterialer for lengre pulser. Både aktive (eksternt styrte) og passive PDLC har vært studert [40].

I 1999 demonstrerte Khoo *et al* [19] en øyesikker begrenser basert på en nematisk flytende krystall dopet med fargestoffet metylrødt i en ikke-lineær film på en glassplate. Begrenseren var virksom fra pulser i millisekund-området til kontinuerlig stråling, og var tenkt å samvirke med en raskere begrenser i en tandem-konfigurasjon for å oppnå øyesikker begrensnings fra pikosekund- til cw-området. Mekanismen for begrensningsen består i at de avlange molekylene normalt (for lave intensiteter) er orientert med lengdeaksen parallell med glassplatenes plan, og at denne aksene dreier seg rundt plannormalen som funksjon av høyden over glassplaten (disse

kalles chiral nematiske flytende krystaller, idet orienteringen varierer som etter en spiral). Derved dreier også laserstrålens polarisasjon tilsvarende, slik at den slipper igjennom de kryssede polarisatorene. Ved påvirkning av laserstråling vil dopemolekylet metylrødt (figur 4.5) gi fra seg ladning som fører til at det dannes et romladningsskikt med feltretning normalt på glassplatenes plan. Dette orienterer så lengdeaksen til de flytende krystallene normalt til planet, noe som gjør at strålingens polarisasjon ikke lenger dreies og blir stoppet av de kryssede polarisatorene. Mekanismen klassifiseres som strålingsindusert molekylær reorientering. I den grad absorpsjon av stråling forekommer, vil dette ikke øke transmisjonen via termiske effekter. Høy transmisjon er avhengig av at molekylene er ordnet i et spiral-mønster som beskrevet ovenfor, og dette mønsteret ødelegges av den termisk/tilfeldige orienteringen som oppstår for høye temperaturer. Dette er med på å sikre at begrenseren er stabil for lange pulslengder og cw-stråling.

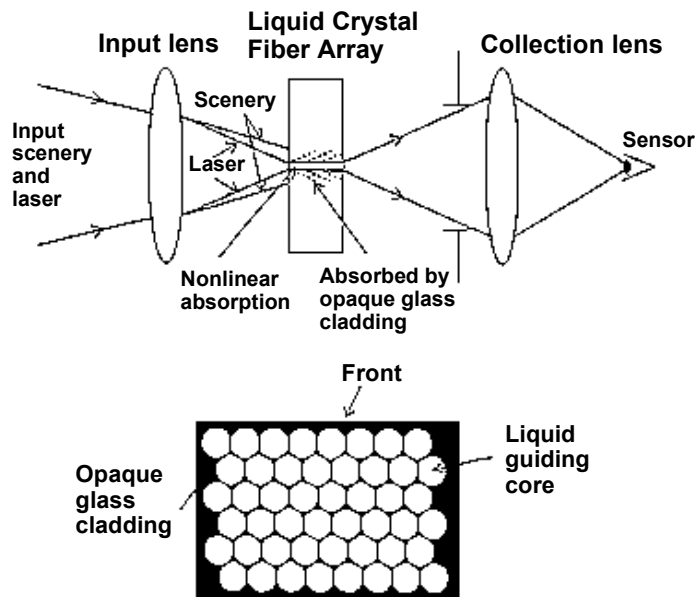
Mengden av metylrødt som ble brukt, var 0.1% (i vekt). Ut-effekten var generelt noen få  $\mu\text{W}$ , for inn-effekter så høye som 140 mW. Småsignaltransmittansen var ca 10 %, p g a de to polarisatorene og ikke-antirefleksbeskyttede cellevinduer. Dette gir en *FOM* på over 3000. Demplingen som funksjon av innkommende effekt hadde et slikt forløp at man ble mindre blendet av laseren når man overskred den nedre terskelen for begrenseren enn når man lå under denne terskelen. Det vil si at jo høyere lasereffekten var, jo bedre kunne man observere scenen i nærområdet rundt laseren.



Figur 4.5 Strukturformel for metylrødt

#### 4.1.8 Fiberarrayer

Fiberarrayer kan også gjøre nytte som begrensermaterialer, Khoo *et al* [41], [42]. Arrayene har vist seg å ha stor nok følsomhet til å kunne beskytte øyet. De er sammensatt av optiske fibre fylt med en væskeblanding som absorberer stråling v h a ikke-lineære prosesser. Det er en fiber for hvert piksel i bildet. Rommet mellom fibre er omsluttet av en strålingsabsorberende glasskappe, se figur 4.6.



Figur 4.6 Øverst: Fiberarrayets plassering i mellomfokus. Nederst: Snitt gjennom frontflaten av arrayet sett fra inngangslinsen

Avbildningen av scenen dekker hele arrayet, mens laserkilder vil fokuseres inn med en flekkdiameter på rundt én fiber-diameter. Avbildningen og laserstrålen transmitteres gjennom fiberkjernene og detekteres på utgangen. Laserstrålen (høy intensitet) vil dempes kraftig pga ikke-lineær absorpsjon i de flytende krystallene (for korte pulser) og spredning inn i den absorberende glasskappen via termisk induserte tetthetsfluktuasjoner (for lange pulser).

Ytelsen til disse begrensene er best i ps området, hvor tofotonabsorpsjon er den dominerende mekanismen. Med en fiberdiameter rundt 30  $\mu\text{m}$ , fiberlengde 5 mm og lineær transmisjon på 70 % er det rapportert at  $E_{CL} = 0.3 \mu\text{J}$  for 66 ps pulser og F/3 - F/6 optikk. Bølgelengden var da 532 nm. For 20 ns pulser på samme bølgelengde ligger  $E_{CL}$  på 1  $\mu\text{J}$  for F/6 optikk og på 1.3  $\mu\text{J}$  for F/3 optikk.

Væskene som benyttes i disse fiberarrayene er fargeløse og de oppviser tofotonabsorpsjon over hele det synlige området. Pga den lange vekselvirkningslengden trenger ikke tofotonabsorpsjonen være særlig sterk, men for ns pulser er det ønskelig med en viss grad av lineær absorpsjon slik at spredningen inn i glasskappen via termiske fluktuasjoner kan bli mer effektiv. Dette justeres til et passende kompromiss ved å blande inn materialer som enten har lineær absorpsjon eller som oppviser RSA.

Man har laget arrayer med fiberdiameter på 5, 10 og 30  $\mu\text{m}$ . Skader på frontflaten av fiberarrayet oppstår først når inn-energien overskrider ca 220  $\mu\text{J}$  for 30  $\mu\text{m}$  fiberdiameter.

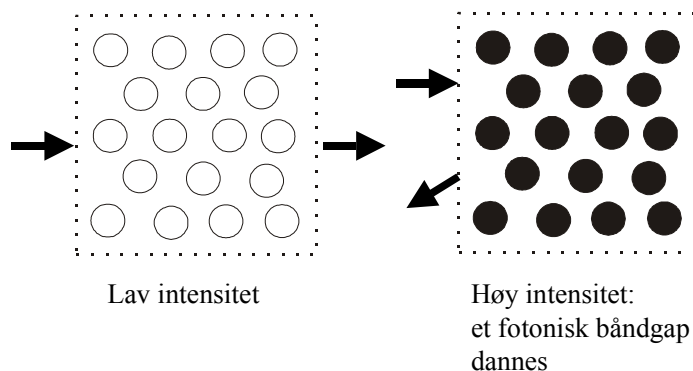
#### 4.1.9 Fotonisk båndgap krystaller

Et annet eksempel på sammensatte, øyesikre begrensere materialer er vist i figur 4.7. Man lager fotoniske krystaller ved å plassere hule rør inn i en faststoffvert. Tykkelsen på vertsmaterialet er typisk rundt 0.2 mm. For begrensere i det synlige området er avstanden mellom rørene ca 220 nm, og diameteren rundt 147 nm, Lin *et al.* [43], Shirk [44]. Rørene er orientert langs en retning som ligger normalt til den optiske aksene. De fylles så med en væske som kan absorbere



stråling enten via lineære eller ikke-lineære prosesser. Væsken kan være en blanding av nigrosin (et fargestoff med bredbåndet lineær absorpsjon) og etanol/toluen [43] eller den kan inneholde phtalocyaniner (fargestoffer som har sterk ikke-lineær absorpsjon) [44]. Brytningsindeksen til den aktive væsken er tilpasset faststoffverten slik at krystallet er transparent for normalt lys. For laserstråling (høy intensitet) forandres brytningsindeksen i væsken som følge av absorpsjon og oppvarming. Laserstrålingen blir dempet kraftig via refleksjon forårsaket av brytningsindeksforskjellen mellom væsken og vertsmaterialet som omgir rørene. Med phtalocyaniner som aktivt materiale bidrar ikke-lineær absorpsjon i rørene også til dempningen. For nigrosin/etanol/toluen er responsen best for lengre pulslengder. Bruk av phtalocyaniner kan redusere terskelfluensen og bedre responsen for korte pulser.

Stoppbåndet i et fotonisk krystall avhenger kritisk av geometrien i plasseringen av rørene og brytningsindeksforskjellen mht faststoffverten. Den spektrale bredden til stoppbåndet øker raskt til over 100 nm når terskelfluensen overskrides. For krystaller basert på en løsning av nigrosin/etanol/toluen faller den transmitterte energien brått av når terskelen passeres, mens phtalocyanin løsninger gir en svakt økende transmittert energi som funksjon av inn-energien. Mekanismen inntreffer ved en midlere fluens  $F_{L/2}$  rundt  $0.2 \text{ J/cm}^2$  for 100  $\mu\text{s}$  pulser og  $f/20$  fokusering (Airy flekkdiameter var da  $25.2 \mu\text{m}$ ) med nigrosin/etanol/toluen som aktivt materiale.  $F_{L/2}$  øker til  $1.2 \text{ J/cm}^2$  for 4 ms pulser [43]. Dette skyldes varmetap fra fokalvolumet, og skulle ikke representere noe stort problem da skadetersklene for detektormaterialer også vil øke p g a varmeavledning for så lange pulser. For høyere pulsenergi ved 4 ms pulslengde vil dessuten nigrosin/etanol/toluen begrenseren oppvise en sterkere avtagende transmittert energi som funksjon av inn-energien. Ved ca 20  $\mu\text{J}$  inn-energi ligger den transmitterte energien på en felles verdi rundt 0.1  $\mu\text{J}$  for et bredt spekter av pulslengder med  $FOM > 130$  [43].



Figur 4.7 Et fotonisk båndgap krystall som optisk begrenser

Transmittert energi med phtalocyaniner som aktivt materiale var 0.25 - 0.3  $\mu\text{J}$  for 12  $\mu\text{J}$  inn-energi,  $f/5$  fokusering og 5 ns pulser [44].

#### 4.2 Materialer for mid-IR (3 - 5 $\mu\text{m}$ )

Lasertruslene i mid-IR området er relativt få. Mulige kilder kan være DF-lasere, CO-lasere eller optiske parametriske oscillatorer (OPO'er). De to førstnevnte er såpass lite utbredt og lite brukervennlige at de foreløpig ikke representerer noen stor trussel. Det er imidlertid for tiden en betydelig forskningsinnsats knyttet til utvikling av OPO'er i dette området, og disse er svært aktuelle motmidler som kan tilpasses til hvilken som helst bølgelengde innenfor følsomhetsområdet til ulike mid-IR sensorer.

Mangel på tilgjengelige publiserte data gjør at vi ikke har noe detaljert bilde av hvilke ytelser som kan forventes for begrensere i mid-IR området. Det er grunn til å anta at dette bl a skyldes at det har vært mangel på egnede laserilder til slike undersøkelser, samt at innsatsen har vært konsentrert om materialer som egner seg for øyebeskyttelse. Det må imidlertid forventes at etter hvert som man kommer lenger i utviklingen av praktiske laserbaserte motmidler i mid-IR området, vil man også i økende grad konsentrere seg om studier av begrensermaterialer som kan beskytte ulike sensorer mot denne trusselen. Siden de sensorene man har behov for å beskytte (missilsøkere, IR-kameraer, IR-sikter) har svært stor militær betydning, må man imidlertid regne med et betydelig hemmelighold omkring ytelser og eventuelle svakheter i de beskyttelsesmaterialene som blir benyttet.

Mange av prinsippene og materialene vi har omtalt for det synlige og nær-IR området vil fortsatt kunne benyttes i mid-IR området. Det samme gjelder metoder og materialer for 8 - 12  $\mu\text{m}$  området, som vi skal omtale nedenfor. En viktig forskjell fra det synlige området er at kravene til beskyttelse ikke ligger så fast (jfr terskel for øyeskader). Man har mulighet til å velge sensortyper som har høyere skadeterskler [6] og tilpasse detektorens konstruksjon til de begrensermaterialer som velges. Halvledere, partikkelsuspensjoner, flytende krystaller,  $\text{CS}_2$  og fotoniske krystaller er blant de materialer som bør undersøkes.

Vi skal her kun knytte et par kommentarer til mulig anvendelse av  $\text{CS}_2$ , som vi på FFI allerede har gjort eksperimenter med i nær-IR området.  $\text{CS}_2$  kjennetegnes av høy transparens både i det synlige og i IR området, og det kan tenkes benyttet både som vertsmateriale og som selvstendig ikke-lineært medium som kan gi selvfokusering og dielektrisk sammenbrudd. Absorpsjonsspekteret i mid-IR har en svak absorpsjons-topp ved 4.6  $\mu\text{m}$ . Hvis man benytter  $\text{CS}_2$  som begrenser i nærheten av denne toppen, vil absorpsjonen kunne føre til defokusering p g a oppvarming og termisk ekspansjon. En viss usikkerhet er knyttet til den ikke-lineære brytningsindeksen  $n_2$ , som ikke er kjent for dette bølgelengdeområdet. Denne vil kunne avgjøre hvor lett det er å oppnå selvfokusering og sammenbrudd i materialet. I prinsippet kan en begrenser bygget på  $\text{CS}_2$  virke både ved selvfokusering eller selvdefokusering. Hvis den intrinsiske absorpsjonen er høy i det transmisjonsvinduet som benyttes i sensoren, blir man nødt til å benytte selvdefokusering. Denne effekten kan så forsterkes ved å blande inn urenheter som øker absorpsjonen. Vi kommer tilbake til eksperimenter omkring dette i neste delkapittel.

### 4.3 Materialer for langbølget IR (8 - 12 $\mu\text{m}$ )

Tilgangen på  $\text{CO}_2$ -lasere som kilde i det langbølgete IR-området har medført at man her har kunnet gjennomføre forsøk med ikke-lineære prosesser i flere materialer. Omfanget av disse forsøkene er likevel på langt nær så stort som i det synlige området. Årsaken til dette er at trusselen er relativt forutsigbar ( $\text{CO}_2$  lasere har et begrenset bølgelengdeområde fra ca 9.2 - 11  $\mu\text{m}$ ), og den kan derfor foreløpig håndteres med enkle filtre [1].

#### 4.3.1 Gass-celler

Det har blitt gjort mye forskning omkring laser-indusert plasmagenerering og sammenbrudd i gasser. For bølgelengder mindre enn 1  $\mu\text{m}$  blir den initielle ioniseringen startet opp ved multifoton-ionisasjon av gassatomene. For lengre bølgelengder skjer den initielle ioniseringen ved termisk ionisasjon av partikkel-urenheter som uunngåelig er til stede i gassen. De initielt genererte frie elektronene blir akselerert av det elektriske feltet og støt-ioniserer så andre gass-

atomer. Energitalpet ved støt-ionisasjonen oppveies så av den energien som elektronene får fra det elektriske feltet. På denne måten oppnås en balansert hastighetsfordeling for elektronene, tilsvarende temperaturer på  $10^4$  -  $10^5$  K. Generelt vil terskelen for laser-indusert plasmagenerering minke ved økende trykk og økende bølgelengde. Redusert ikke-lineær terskel for lengre bølgelengder tilsier at gass-begrensere er godt egnet for det langbølgete IR-området. Det skal bemerkes at tersklene for sammenbrudd i edelgassene er lavere enn for nitrogen, som ofte benyttes som fyllgass i avbildende optikk.

Mekanismen for plasmagenerering i IR-området tilsier at man kan påvirke ionisasjonsterskelen ved å introdusere små partikler i gassen, for eksempel hule glasskuler med sølv-overflate [45]. Kulene kan holdes svevende enten ved at de beveger seg frem og tilbake og transporterer ladning mellom to elektroder i et elektrostatisk felt eller ved strømning i en gass. Eksperimenter utført ved  $10.6 \mu\text{m}$  bølgelengde viser at man med argon-gass ved et trykk på 1 atm får en terskel  $E_{TH}$  på ca  $3.8 \text{ J/cm}^2$ . Her ble det brukt en  $\text{CO}_2$  laser med pulslengde på ca 100 ns etterfulgt av en 3 - 5  $\mu\text{s}$  lang "hale". Tilsettes partikler reduseres fluktuasjonene i terskelen samtidig som den senkes til 0.26 -  $2.3 \text{ J/cm}^2$  ved 1 atm, avhengig av partikkelkonsentrasjon [45]. Økning av gasstrykket senker også terskelen, men tilsetning av partikler er mer effektivt.

Utfra de kurvene som er gitt i [45], får vi at  $FOM \approx 10$  ved inn-energi rundt 50 mJ. Dette er ingen høy ytelse, og sammen med den høye ikke-lineære terskelen tilsier dette at sammenbrudd i gasser vil være best egnet i en ytre begrenser mot høyenergilasere i IR-området. En faktor på 10 i demping av energi er ikke mye, men om man tar i betraktning de høye energiene det dreier seg om, vil det likevel være store energimengder som blir tatt bort i et slikt første trinn.

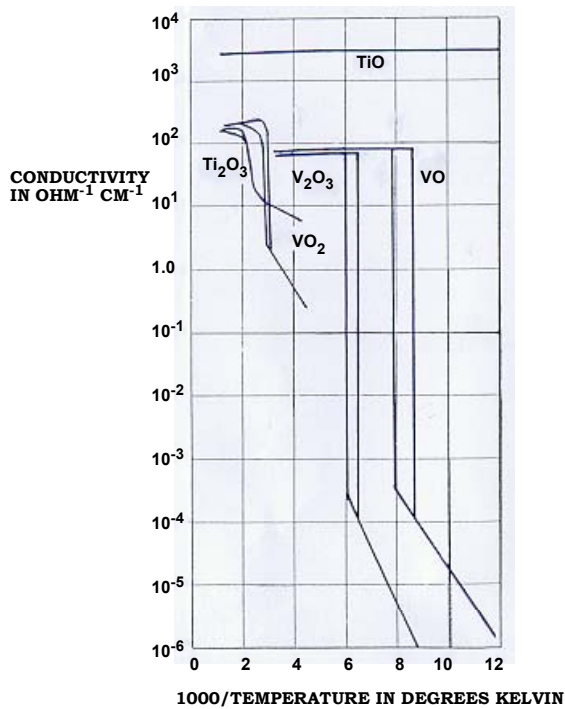
#### 4.3.2 Vanadiumoksyder ( $\text{V}_x\text{O}_y$ )

Vanadiumoksyder oppviser faseoverganger fra transparente halvledere til reflekterende metaller ved ulike temperaturer (figur 4.8). Med et båndgap på 0.6 - 0.7 eV vil vanadiumoksydfilmer generelt være transparente fra 3 - 12  $\mu\text{m}$ . Ved å inkorporere urenheter, for eksempel gullatomer [46], kan absorpsjonen økes slik at den temperaturstyrte faseovergangen lettere kommer i gang.

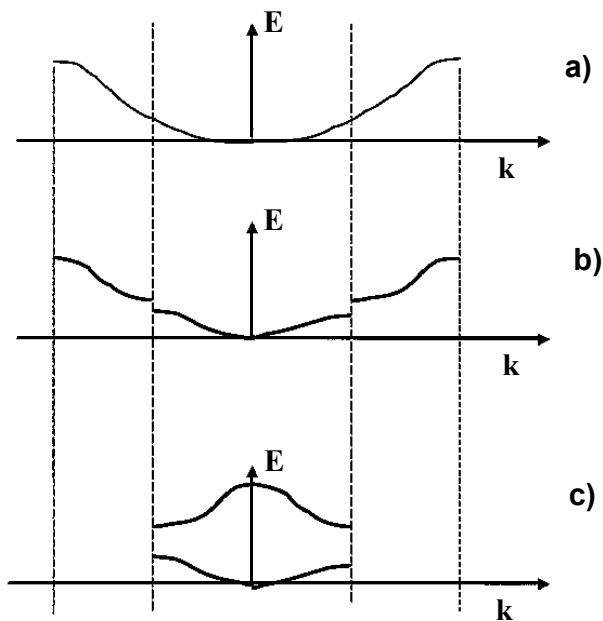
Blant vanadiumoksydene er det  $\text{VO}_2$  med en overgang til metall ved ca  $68^\circ\text{C}$  som vil være best egnet i en begrenser. Faseovergangen tilbake til halvleder skjer ved at nærliggende  $\text{V}^{4+}$ - $\text{V}^{4+}$  ioner grupperer seg i par og danner en overordnet periodisitet langs en retning i krystallet. Dette fører til en halvering av brillouinsonen i denne retningen og at det danner seg et båndgap ved halveringspunktene (figur 4.9).

Tynne filmer av  $\text{VO}_2$  dopet med Au-atomer har vært utprøvd for 500 ns pulser på bølgelengden 10.6  $\mu\text{m}$  [46]. Terskelen  $E_{L/2}$  var da 150  $\mu\text{J}$ , og kurvene viser en  $FOM = 5$  ved 1 mJ inn-energi. Ved bølgelengden 2.5  $\mu\text{m}$  har det blitt gjort forsøk [46] der en målte optisk transmittans under oppvarming til  $80^\circ\text{C}$  og fant en reduksjon i denne med en faktor på nærmere 100. Småsignaltransmittansen var da rundt 37 % før oppvarmingen.

$\text{VO}_2$  har potensiale for anvendelse i smarte vinduer, optiske og elektriske svitsjer. Dessuten blir materialet brukt som IR detektor [48], der man utnytter den brå endringen i ledningsevne med temperatur rundt  $68^\circ\text{C}$ . I en elektrooptisk begrenser vil man være avhengig av å kombinere dette materialet med andre.



Figur 4.8 Faseoverganger fra transparente halvledere til reflekterende metaller for vanadiumoksyder ved ulike temperaturer. Etter Morin [47]



Figur 4.9 Prinsippskisse for metall-halvlederovergang: a) Høye temperaturer, metall; båndet er halvveis fylt opp, ut til  $k$ -vektorer avgrenset av de innerste stiplede linjene. Periodisiteten i  $k$ -rommet (det resiproke gitteret) er gitt av en  $k$ -vektor som går mellom de to ytterste stiplede linjene. b) Temperaturen senkes, og totalenergien minskes ved å senke energien til de fylte tilstandene slik at et energigap oppstår. Senkingen av energien oppnås ved en svak forskyvning av  $V^{4+}$  ionene slik at avstanden  $a$  mellom dem ikke lenger er uniform; ionene grupperer seg i par med avstand litt mindre enn  $a$  innen parene og avstand litt større enn  $a$  mellom parene. Dette fører til at periodisiteten i ionegitteret nå er endret - perioden bestemmes ikke lenger av avstanden mellom to nabo-ioner, men av

*avstanden mellom korresponderende ioner i nabopar, og den er 2a. c) Doblet periode i ionegitteret betyr halvert periode i det resiproke gitteret. Vi kan derfor fritt forskyve de øvre, tomme delene av båndet med  $\mathbf{k}$ -vektorer som tilsvarer en periode i dette nye resiproke gitteret. Denne nye perioden er gitt av en  $\mathbf{k}$ -vektor som går mellom de to innerste stiplede linjene. Forskyvningen utføres slik at båndstrukturen passer inn i en ny minsket brillouinsone. Vi har nå fått båndstrukturen til en halvleder.*

#### 4.3.3 Halvledere

Det er særlig indiumantimonid (InSb) som er aktuelt som begrensermateriale i det langbølgete IR området. Som for halvledere i det synlige og nære IR området er mekanismene pulslengdeavhengige, og de er sammensatt av flere separate effekter og prosesser; tofotonabsorpsjon, ikke-lineariteter knyttet til ladningsbærere, diffusjons- og rekombinasjonsdynamikk, og påfølgende termiske ikke-lineariteter. En mulig bruk av InSb som begrensermateriale baserer seg på en kombinasjon av flere slike effekter. InSb er et vanlig benyttet detektormateriale i mid-IR området (3 - 5  $\mu\text{m}$ ), og er i slike sammenhenger ofte kjølt for å øke følsomheten. Materialet har et båndgap,  $E_g(T)$ , som varierer betydelig med temperaturen. Ved 77 K gir båndgapet en "cut-off"-bølgelengde i området 5 - 6  $\mu\text{m}$  sammenlignet med en "cut-off" på snaut 7  $\mu\text{m}$  ved romtemperatur [49], [5]. For lengre bølgelengder vil materialet ha svært lav absorpsjon siden én-fotonabsorpsjon over båndgapet ikke er mulig. Materialet vil derfor være transparent i området 8 - 12  $\mu\text{m}$  for lave (normale) strålingsintensiteter.

For høyere intensiteter vil ulike prosesser bidra til økt absorpsjon. Nærmere beskrivelse av disse, samt numeriske eksempler er gitt i [49]. Her ser man imidlertid ikke på begrenseregenskaper i seg selv, men studerer ulike dynamiske prosesser forbundet med optisk oppvarming av halvledere. Det benyttes en Q-svitsjet  $\text{CO}_2$ -laser på 10.6  $\mu\text{m}$  bølgelengde som strålingskilde. Man har da at  $h\nu < E_g(T) < 2h\nu$  slik at tofotonabsorpsjon eksiterer frie ladningsbærere til ledningsbåndet. Den tilhørende økningen i ladningsbærertetthet fører videre til en betydelig økning av den totale absorpsjonen gjennom absorpsjon innenfor ledningsbåndet. Den økte absorpsjonen gir økt temperatur i materialet som igjen senker båndgapet slik at én-fotonabsorpsjon over båndgapet inntreffer med tilhørende økning i ladningsbærertetthet. Den økte optiske absorpsjonen gir en rask økning av temperatur opp mot smeltepunktet. For begrensere er det ønskelig å unngå smelting.

I forsøk med bestråling av en 1 mm tykk InSb begrenser ved 10.6  $\mu\text{m}$  bølgelengde, 170 ns pulslengde og 120  $\mu\text{m}$  flekkdiameter har man oppnådd en terskelenergi  $E_{L/2}$  på 4  $\mu\text{J}$  [28].

#### 4.3.4 Karbondisulfid ( $\text{CS}_2$ )

I motsetning til i 3 - 5  $\mu\text{m}$  området har det i 8 - 12  $\mu\text{m}$  området blitt gjort forsøk med  $\text{CS}_2$  som begrensermateriale. Den ene av disse målingene [50] ble utført med en  $\text{CO}_2$  laser på 10.6  $\mu\text{m}$  bølgelengde, 130 ns pulslengde (FWHM), og pulsenergi opp til 100 mJ. Det ble konkludert med at begrensermekanismen var selvfokusering, og at den ikke-lineære brytningsindeksen  $n_2$  var en størrelsesorden høyere enn i det synlige området. Senere publikasjoner, delvis med de samme forfatterne, tar for seg termisk selvdefokusering i det samme materialet [51], [52]. Her var pulslengden økt til 300 ns, og strålen ble fokusert til en flekkdiameter på 120  $\mu\text{m}$  i luft.

Termiske linseffekter oppstår pga termisk utvidelse av det bestrålte væskevolumet. Utvidelsen ledsages av en akustisk trykkbølge som etterfølges av en isobar termisk ekspansjon. Responstiden for oppbygningen av den termiske linsen er gitt av den tiden det tar for en akustisk bølge å krysse strålediameteren. Med en lydshastighet på  $1.5 \cdot 10^3$  m/s i  $\text{CS}_2$  får man en responstid på ca 40 ns for den aktuelle flekkstørrelsen. Pulslengden i det aktuelle forsøket var nesten en størrelsesorden lengre enn dette. Nedbygging av den termiske linsen er derimot styrt av termisk diffusjon, noe som skjer over en tidsskala på 0.1 sekund [52]. Ved å blande inn urenheter (svovel) kunne den lineære absorpsjonen økes slik at den ikke-lineære terskelen startet på  $150 \mu\text{J}$  (0.5 kW) i en celle med tykkelse 3 mm.

## 5 DATA FOR AKTUELLE BEGRENSERMATERIALER OG EKSEMPEL PÅ YTELSE FOR EN TANDEMBEGRENSER

I kapittel 5.1 oppsummerer vi rapporterte data for noen av de mest sentrale begrensermaterialene. I tillegg til å karakterisere ulike materialer for bruk i begrensere, er det også viktig å vurdere endringer i optikken slik at man kan kombinere de forskjellige materialene eller utnytte et gitt materiale på en best mulig måte. Generelt vil man erfare at det for en gitt detektor eller sensor ikke finnes ett enkelt materiale som alene kan gi den ønskede graden av beskyttelse og i tillegg dekke hele transmisjonsbåndet til sensoren. Det vil derfor som oftest være nødvendig å kombinere ulike materialer for å oppnå ønsket ytelse. Et eksempel på dette er tandemkonfigurasjonen beskrevet i kapittel 5.2.

### 5.1 Data for aktuelle materialer

Tabell 5.1 gir en oversikt over aktuelle ikke-lineære begrensermaterialer, tilhørende begrensermekanismer, og publiserte resultater oppnådd i eksperimenter med disse materialene. For hvert publisert arbeid er det (hvis spesifisert) angitt laserbølgelengde, pulslengde, flekkdiameter, F-nummer, celle-tykkelse (materialtykkelse) og den lineære (småsignal) transmittansen gjennom cellen, samt den målte terskelenergien, terskelfluensen, eller terskeleffekten (se kapittel 2.1 for definisjoner). Det skal understrekes at det i mange referanser er forholdsvis mangelfulle opplysninger om både målebetingelser og resultater. F eks er det ikke alltid klart hvordan man definerer pulslengde, flekkdiameter og terskelenergi. Resultatene må derfor til dels betraktes som indikasjoner på forventet ytelse.

Tabellen angir også den mest aktuelle plasseringen av hvert materiale i et tandembegrenser-system. Her betegner B1 det første begrenser-elementet (det mest robuste), mens B2 er et mer følsomt element som er egnet til å dempe energien ned mot en verdi som en detektor kan tåle uten å bli ødelagt.

Materiale	Mekanisme	Trans- misjons område ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma_{\text{TPA}}$ (GM) $\beta_{\text{TPA}}$ (cm/GW)	Ref	Bølge- lengde ( $\mu\text{m}$ )	Puls- lengde (ns)	Flekk- diam. ( $1/e^2$ ) ( $\mu\text{m}$ )	F <sub>#</sub>	Celle tykk- else (mm)	Lineær trans- misjon (%)	F <sub>th</sub> (F=J/cm <sup>2</sup> ) E <sub>th</sub> (J) P <sub>th</sub> (W)	F <sub>L/2</sub> (F=J/cm <sup>2</sup> ) E <sub>L/2</sub> (J)	Tandem posisjon (B1/B2)	Kommen- tarer
CBS (vann)	Sublimasjon, bobledannelse, spredning			53	0.532	13	11.7 <sup>1</sup>		2		0.09 F		B1	<sup>1</sup> FWHM
				54	0.532	12	300		2	40	0.17 F		B1	
				FFI	1.064	7 <sup>1</sup>	57		10	50	0.8 F 10.5 $\mu\text{J}$		B1	<sup>1</sup> FWHM
CBS (kloroform)	Som for CBS i vann			53	0.532	13	11.7 <sup>1</sup>		2		0.04 F		B1	<sup>1</sup> FWHM
				54	0.532	12	300		2	40	0.034 F		B1	
CBS (etanol)	Som for CBS i vann			53	0.532	13	11.7 <sup>1</sup>		2		0.07 F		B1	<sup>1</sup> FWHM
				56	0.532	13	65			80	0.06 F 1 $\mu\text{J}$		B1	
CS <sub>2</sub>	Selvfokusering (molekylær reorientering, elektrostriksj.), absorpsjon	0.4-12		22	1.064	0.04 <sup>1</sup>	100		12		26kW		B1	<sup>1</sup> FWHM
				23	0.532	5 <sup>1</sup>	12		10		2.6kW		B1	<sup>1</sup> FWHM
				25	0.532	7 <sup>1</sup>	11.4		10		4.3kW		B1	<sup>1</sup> FWHM
				57	0.532	14 <sup>1</sup>	7		10		3.8kW		B1	<sup>1</sup> FWHM
				58	1.064	20 <sup>1</sup>	10.2		10	85	13.5kW		B1	<sup>1</sup> FWHM
				FFI	1.064	7 <sup>1</sup>	28		10		29kW		B1	<sup>1</sup> FWHM
C <sub>60</sub> (toluen)	RSA			53	0.532	13	11.7 <sup>1</sup>				0.017 F		B2	<sup>1</sup> FWHM
				59	0.532	ns					0.013 F		B2	
				60	0.532	8 <sup>1</sup>	94.4		1	62	0.02 F	1.05 F	B2	<sup>1</sup> FWHM
				60	0.532	0.03 <sup>1</sup>	94.4		1	62		0.07 F	B2	<sup>1</sup> FWHM
				61	0.532	ns					0.05 F		B2	
C <sub>60</sub> (PMMA)	RSA			53	0.532	13	11.7 <sup>1</sup>				0.01 F		B2	<sup>1</sup> FWHM





Materiale	Mekanisme	Transmisjonsområde ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma_{\text{TPA}}$ (GM) $\beta_{\text{TPA}}$ (cm/GW)	Ref	Bølgelengde ( $\mu\text{m}$ )	Puls-lengde (ns)	Flekk-diam. ( $1/e^2$ ) ( $\mu\text{m}$ )	F <sub>#</sub>	Celle-tykkelse (mm)	Lineær transmisjon (%)	F <sub>th</sub> (F=J/cm <sup>2</sup> ) E <sub>th</sub> (J) P <sub>th</sub> (W)	F <sub>L/2</sub> (F=J/cm <sup>2</sup> ) E <sub>L/2</sub> (J)	Tandem posisjon (B1/B2)	Kommentarer
DAP	TPA+ESA		17700	17	0.6	5		5	10	95			B1	
Dendrimer	TPA, TPA+ESA		11000 <sup>1</sup>	15	0.713	0.0001			2				B1	<sup>1</sup> TPA
			19400 <sup>2</sup>	16	0.8	8			10				B1	<sup>2</sup> TPA+ESA
Gass-celler: Ar Ar+partikler (1atm)	Absorpsjon, brytning, refleksjon			45	10.6	100 <sup>1</sup>					3.8 F (0.26 - 2.3 F) <sup>2</sup>		B1	<sup>1</sup> 3-5 $\mu\text{s}$ lang hale <sup>2</sup> avh. av konsentr.
				45	10.6	100 <sup>1</sup>							B1	
VO <sub>x</sub> filmer: VO <sub>2</sub> + Au	Faseovergang, refleksjon	3 - 12		46	10.6	500						150 $\mu\text{J}$	B2	
Fotonisk bånd-gap (nigrosin/etanol/toluen)	Brytning, refleksjon			43	0.514	100 $\mu\text{s}$	25.2 <sup>1</sup>	20	0.175	40		0.2 F	B2	<sup>1</sup> Airy-diam.
				43	0.514	4ms	25.2 <sup>1</sup>	20	0.175	40		1.2 F	B2	
Fiberarray: (ILC+C <sub>60</sub> )	RSA, TPA		5 $\beta$	42	0.532	0.066	30 <sup>1</sup>	3/6	5	60	<0.12 F		B2	<sup>1</sup> Fiber-diameter
				42	0.532	20	30 <sup>1</sup>	3	5	50	0.15 F	B2		
				42	0.532	20	30 <sup>1</sup>	6	5	50	0.12 F	B2		
Nanorør: SWNT MWNT	Ikke-lineær spredning (jfr CBS)			34	0.532	5				80	0.04 F		B1	<sup>1</sup> FWHM
				33	0.532	7 <sup>1</sup>	30			50	0.2 F	B1		

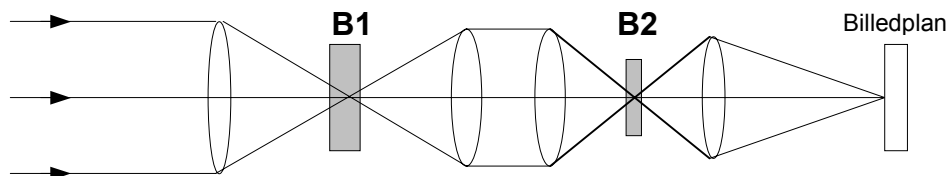
Tabell 5.1 Data for aktuelle optiske begrensere-materialer.

GM = 10<sup>-50</sup> cm<sup>4</sup> s / (foton-molekyl), CBS (carbon-black-suspension), PMMA (poly-methyl-methacrylate), CAP (kloro-aluminium-phtalocyanin), PD

*(polymethine dye), TMSP (trimethyl-silylethynyl porphyriner), DAP (donor-akseptor polymere), ILC (isotropic liquid crystal), SWNT (single-wall carbon nanotubes), MWNT (multi-wall carbon nanotubes), RSA (reverse saturable absorption), TPA (two-photon absorption), ESA (excited state absorption).*

## 5.2 Eksempel på tandembegrenser

Det dynamiske området kan økes ved å lage tandemkonfigurasjoner. Dette kan enten gjøres ved å plassere ulike materialer inntil hverandre rundt et mellomfokus, Said *et al.* [65], eller ved å benytte to separate mellomfokus, Hernández *et al.* [23], som vist i figur 5.1.



Figur 5.1 Eksempel på en tandembegrenser med to mellomfokus

I [23] bestod begrenseren av en 2-cm-tykk  $\text{CS}_2$  celle i det første fokuset (B1) og en 0.1-mm-tykk celle fylt med PbPc i en organisk vertsvæske i det andre fokuset (B2). Begrensererelementet B2 i figur 5.1 har til oppgave å finregulere energien ned til et nivå som detektoren tåler. Den ikke-lineære prosessen i  $\text{CS}_2$  starter ved høyere effekter enn for PbPc, og en får derved dekket et større energiområde. Samtidig vil  $\text{CS}_2$  cellen beskytte PbPc cellen. På grunn av at PbPc også har betydelig lineær absorpsjon er det ikke ønskelig å ha en tykk celle med høy konsentrasjon av PbPc, hvor der kan bli store områder som er inaktive fordi de befinner seg langt fra fokus. For å utnytte materialet best mulig samtidig som man får høyest mulig transmisjon i det lineære området blir PbPc cellen derfor gjort svært tynn. Siden fokuset i et optisk system kan forskyve seg opptil 1 mm eller mer som funksjon av temperatur og bølgelengde [2] er det også en mulighet for fluktuasjoner i ytelsen. Målinger av fokuserbar energi gjennom denne tandembegrenseren viste en  $FOM = 30\,000$  ved 51 mJ pulsenergi på bølgelengden 532 nm [23].

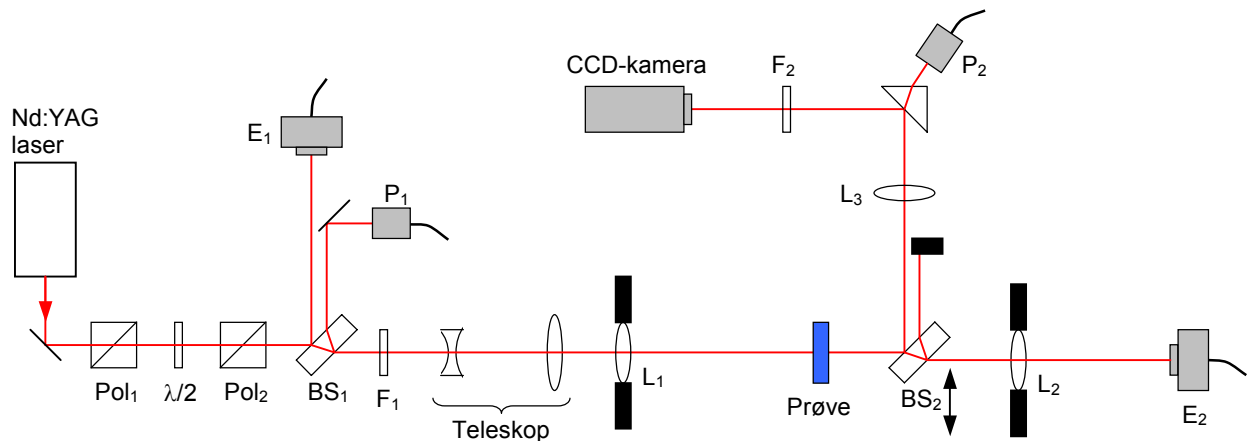
## 6 EKSPERIMENTER UTFØRT VED FFI

Dette avsnittet beskriver eksperimenter og resultater oppnådd ved målinger på to optiske begrensermaterialer: karbonpartikkelløsninger (såkalt carbon black suspension – CBS) og  $\text{CS}_2$ .

Hensikten med arbeidet har vært: 1) å etablere en enkel måleutrustning for å teste begrensermaterialer, 2) å finne ut hvordan avbildningen av laseren blir gjennom et optisk system som inneholder en begrenser, og 3) å utføre eksperimenter på aktuelle materialer under litt andre forhold enn de som er beskrevet i litteraturen slik at eksperimentene kunne gi utfyllende informasjon. Arbeidet har blitt utført innen nær-IR området hvor det finnes lett tilgjengelige begrensermaterialer og laserkilder. Målsettingen er å utvide arbeidet til mid-IR området.

### 6.1 Eksperimentelt oppsett

Måleoppstillingen som ble benyttet under flere av forsøkene er skissert i figur 6.1.



*Figur 6.1 Måleoppstilling. Pol – polarisator,  $\lambda/2$  – halvølgeplate, BS – beam splitter (stråledeler), L – linse, F – dempefilter, E – energimeter, P – effektmeter. BS<sub>2</sub> ble flyttet inn i strålen for å måle tidsforløp på den transmitterte pulsen og for å måle stråleprofilen med CCD-kameraet. I noen målinger ble teleskopet ikke benyttet, og strålen dekket da under halvparten til aperturen til L<sub>1</sub>. Flekkdiameteren i prøven var da ca 57  $\mu\text{m}$  ( $1/e^2$ -diameter). Med teleskopet inne dekket strålen hele aperturen til L<sub>1</sub>, og flekkdiameteren var da ca 28  $\mu\text{m}$ .*

Laseren er en Q-svitsjet Nd:YAG laser (Quantel, Modell YG-581) med 1064 nm bølglengde. Den består av en oscillator med etterfølgende forsterker, men bare oscillatoren ble benyttet i forsøkene. Oscillatoren ble i tillegg modifisert med en apertur i resonatoren for å forbedre strålekvaliteten. Pulslengden var ca 7 ns (full halvverdbredde – FWHM). Pulsenergien inn på prøvene ble regulert ved hjelp av to polarisatorer og en mellomliggende halvølgeplate (Pol<sub>1</sub>,  $\lambda/2$ , Pol<sub>2</sub>), samt et dempefilter F<sub>1</sub>. Maksimal tilgjengelig pulsenergi inn på prøven var ca 6 mJ, men denne energien kan om ønskelig økes ved å ta i bruk forsterkeren. Stråledelerne BS<sub>1</sub> og BS<sub>2</sub> ble benyttet til å koble ut litt av strålen for måling av pulsenergi og pulsforløp før og etter prøven. Strålen fra BS<sub>2</sub> sendes også inn på et CCD-kamera for måling av stråleprofil. Linsen L<sub>3</sub> avbilder stråleprofilen i prøven inn på kameraet. Strålen fokuseres inn på prøven av linsen L<sub>1</sub>, som har en 25 mm diameter og 100 mm fokallengde. Strålediameteren i prøven avhenger av hvor stor del av linsen laserstrålen dekker. Teleskopet benyttes til å justere dette. Uten teleskop var strålediameteren i prøven ca 57  $\mu\text{m}$  (full bredde mellom  $1/e^2$ -punktene). Med teleskopet inne dekket laserstrålen hele aperturen til L<sub>1</sub>, og strålediameteren i prøven var da ca 28  $\mu\text{m}$ . Det siste tilfellet vil være det mest aktuelle når en observasjonssensor belyses med laser på lang avstand. Prøven (begrensermaterialet) ble plassert i glasskuvetter med 10 mm tykkelse.

Den transmitterte energien gjennom begrenseren ble målt med et energimeter som hadde så stor aperture at alt lyset som passerte gjennom linsen L<sub>2</sub> ble fanget opp. Dette betyr at man målte både den såkalte fokuserbare delen av energien (den skadelige del av energien for en sensor, se avsnitt 2.2) og defokusert energi. Dette gjør at de målte FOM (figure of merit, se avsnitt 2.2) verdiene blir noe lavere enn om man bare hadde målt den fokuserbare komponenten. Det gjør også at terskeleenergien for begrenseren blir mindre skarp. Nøyaktig måling av fokuserbar energi kan gjøres ved å benytte aperturer i billedplanet til en sensor. Dette krever stor grad av nøyaktighet og ble ikke gjort i dette arbeidet. De observerte terskeleenergiene i dette arbeidet er

likevel så tydelige at gevinsten ved slike tiltak kan synes å være marginal.

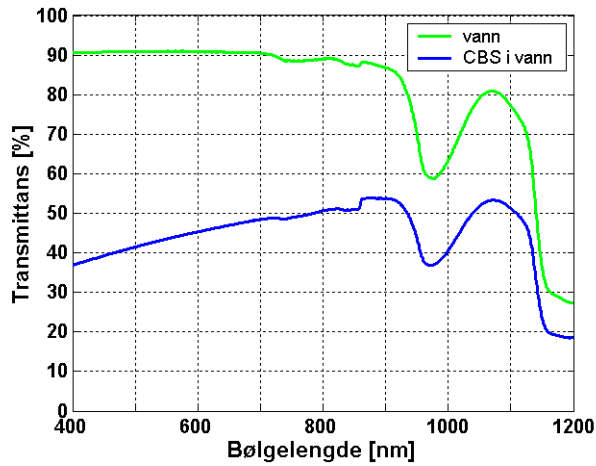
Småsignaltransmittansen gjennom prøvene i dette arbeidet var begrenset av absorpsjon og spredning i selve prøven samt av refleksjonstap i glasskuvetten. Disse tapene kan generelt reduseres ved å tilpasse prøvens brytningsindeks til glasset i kuvetten, ved å benytte antirefleksbelegg på utsiden av kuvetten, og ved å redusere absorpsjon og spredning i prøven (f eks ved valg av vertsvæske). Småsignaltransmittansen ble først målt med et Perkin-Elmer  $\lambda$  900 fotospektrometer og siden med måleoppstillingen i figur 6.1 ved lave pulsenergier. Det var stort sett godt samsvar mellom disse målingene. Den ikke-lineære transmittansen ble målt ved å øke den innsendte pulsenergien gradvis opp til den maksimalt tilgjengelige energien på ca 6 mJ.

Det ble ikke gjort noe forsøk på å optimalisere figure of merit (*FOM*) for de begrensergeometriene som ble studert i dette arbeidet. Generelt kan dette gjøres gjennom valg av begrensermateriale (f eks valg av vertsvæske, partikkelkonsentrasjon og celletykkelse for CBS begrensere), fokuseringsgrad og geometri rundt begrensere. En slik optimalisering vil måtte gjøres ved utvikling av en komplett begrensere for en gitt sensor. Det vil da også være nødvendig å vurdere bruk av en tandem-begrensere.

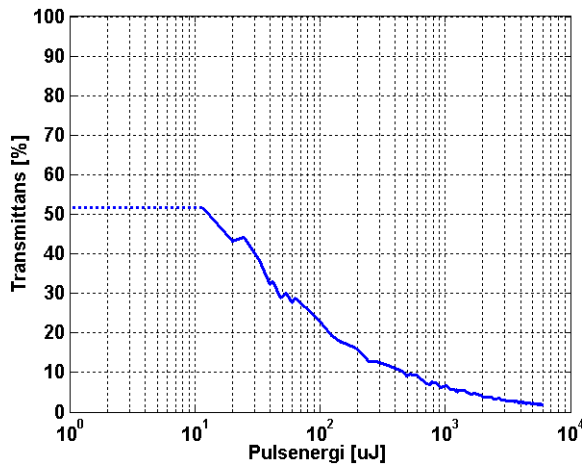
## 6.2 Forsøk med CBS

Det ble tilstrebet å fremstille en CBS-løsning som hadde en småsignaltransmittansen på ca 50 % ved bølgelengden 1064 nm. Småsignaltransmittansen for en gitt blanding ble målt med et Perkin-Elmer  $\lambda$  900 fotospektrometer. For å finne et utgangspunkt for en 50 % -blanding, målte vi på forskjellige blandingsforhold av destillert vann og blekk (Indian ink, merke: Winsor & Newton). Blandingen ble ristet godt i et ultralyd-bad i 3 min, før den vha en pipette ble fylt i kuvetten. Det viste seg at en blanding av 1 dråpe blekk fra en 2-ml pipette i 15 ml destillert vann ga nær 50 % transmisjon gjennom den 10 mm tykke kuvetten ved 1064 nm. Løsningene ble ikke filtrert på partikkelstørrelse.

Den lineære (småsignal) transmittansen i området 400 - 1200 nm for både CBS-blandingen og for rent vann er vist i figur 6.2. Ca 9 % av tapene skyldes refleksjoner i overgangene luft/kuvette/vann (jfr kurven for rent vann ved korte bølgelengder). Kurven for rent vann viser også at det er til dels betydelig absorpsjon i vannet for bølgelengder over ca 900 nm. Denne absorpsjonen er 11 - 12 % ved 1064 nm. Den økende transmittansen i CBS-løsningen som funksjon av bølgelengden skyldes i det vesentlige at karbonpartiklene absorberer mindre effektivt for større bølgelengder. Dette kan delvis kompenseres ved å øke partikkelkonsentrasjonen. Siden denne type småsignalabsorpsjon er nødvendig for at begrensere skal virke, antyder dette at vi kan få en mindre effektiv begrensere mekanisme med de samme partiklene lenger ut i IR-området. På grunn av absorpsjonen i vannet vil det også generelt være nødvendig å benytte andre værtsvæsker for bølgelengder utover i IR området. Som figuren viser ble det målt en småsignaltransmittans på i overkant av 50 % ved 1064 nm, hvorav ca 20 % skyldes refleksjonstap i kuvetten og absorpsjon i vann.



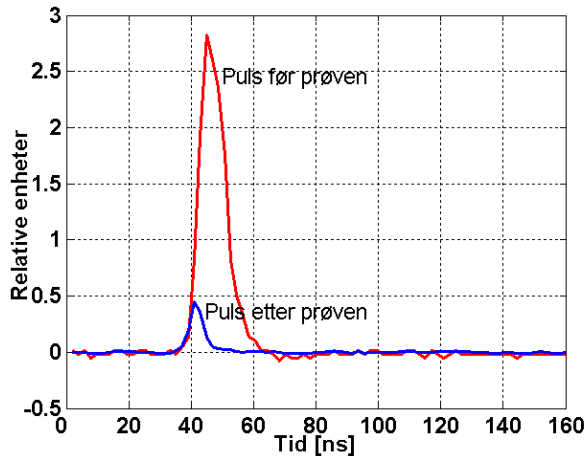
Figur 6.2 Målt småsignaltransmittans som funksjon av bølgelengde for rent vann og CBS i vann. Den monotone økningen i transmittans fra 37 % ved 400 nm til 54 % ved 900 nm skyldes hovedsakelig minsket absorpsjon i karbonpartiklene med økende bølgelengde.



Figur 6.3 Målinger utført for CBS i vann,  $\lambda = 1.064 \mu\text{m}$ , flekkdiameter  $57 \mu\text{m}$ . Stiplert linje angir småsignaltransmittansen målt med spektrometeret (jfr figur 6.2)

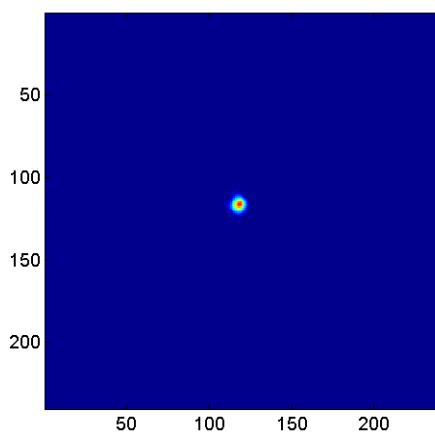
Figur 6.3 gir et typisk eksempel på transmittansforløpet for økende innsendt pulsenergi mot CBS-prøven. Det ble her benyttet en flekkdiameter ( $1/e^2$ ) på  $57 \mu\text{m}$  (jfr figur 6.6 nedenfor). Figuren viser at transmittansen er redusert med ca en faktor på 27 ved den høyeste pulsenergien. Terskelenergien er ca  $10 \mu\text{J}$ , som tilsvarer en fluens i senter av strålen på ca  $0.8 \text{ J/cm}^2$ . Dette er en faktor 5 - 10 høyere enn de terskelfluensene som er målt i referansene [53] og [54] ved  $532 \text{ nm}$  bølgelengde (jfr tabell 5.1), men er på den annen side i god overensstemmelse med terskelverdien på  $0.7 \text{ J/cm}^2$  som i [30] ble antatt å skyldes sublimasjon av karbonpartikler. Det skal imidlertid bemerkes at det i disse referansene ble benyttet mye mindre flekkdiameter (ca  $11 \mu\text{m}$ ) og kortere celle ( $2 \text{ mm}$ ), samt at småsignaltransmittansen ikke er klart angitt. Man har også ved bruk av aperturer målt terskelen i sentrum av strålen, mens våre målinger omfatter hele stråleprofilen, hvor fluensen utover i flankene er langt lavere enn i sentrum. Det er også usikkerhet knyttet til hvor stor betydning forskjellen i bølgelengde fra  $532 \text{ nm}$  til  $1064 \text{ nm}$  kan ha for resultatene. Som nevnt ovenfor absorberer karbonpartiklene mindre effektivt for økende bølgelengde, mens vannet absorberer sterkere ved  $1064 \text{ nm}$  enn ved  $532 \text{ nm}$ . Det er derfor vanskelig å gi noen sikker forklaring på forskjellene i målt terskel.

Et typisk trekk ved karbonpartikkelsuspensjoner er at den transmitterte pulsen *forkortes* ved økende inn-energi. Det første partiet følger inngangspulsen, mens det siste partiet svekkes kraftig (etter at bobledannelsen og den kraftige spredningsprosessen er kommet i gang). Dette fører til at topp-punktet i den transmitterte pulsen kommer *foran* topp-punktet i den innkommende pulsen, som figur 6.4. Det skal her bemerkes at den målte pulsformen er påvirket av den begrensede samplingsraten til oscilloskopet (1 GHz), og at hver enkelt puls i virkeligheten typisk inneholder flere topper som skyldes at laseren oscillerer på flere longitudinale moder med tilfeldig varierende faseforhold fra puls til puls.



Figur 6.4 Målinger av pulsforløp for CBS i vann,  $\lambda = 1.064 \mu\text{m}$ ,  $57 \mu\text{m}$  flekkdiameter, 6 mJ pulsenergi. Pulsforkortningen etter prøven er ca 4.5 ns. Toppunktet forskyves med 3.5 ns.

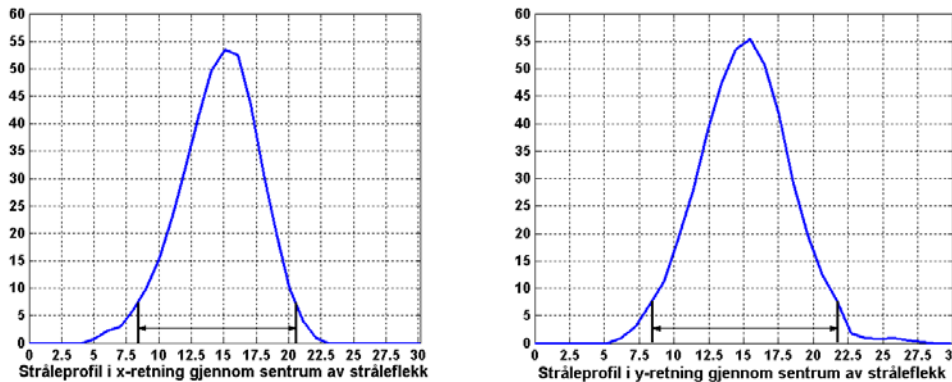
Måling av flekkdiameteren til laserstrålen i prøven ble utført ved å avbilde stråleprofilen i fokus av linsen  $L_1$  inn på et CCD kamera, som indikert i figur 6.1. Optikken gir en forstørrelse på 4 i avbildningen på kameraet. Figur 6.5 viser avbildningen av stråleflekk på kameraet når det ikke er plassert noen prøve (kuvette) i fokus av  $L_1$ .



Figur 6.5 Avbildet stråleflekk uten begrensere. Akseverdier angir pikselnummer i bildet

Flekkdiameteren beregnes ut fra  $1/e^2$ -punktene i stråleprofilene i hhv x- og y-retning (diameteren mellom punkter der intensiteten har falt med en faktor  $1/e^2$  i forhold til intensiteten i

sentrum). Stråleprofilene i x- og y-retning gjennom sentrum av stråleflekken er vist i figur 6.6.



Figur 6.6 Stråleprofiler i hhv x- og y-retning for stråleflekk uten begrensers. Flekkdiameteren beregnes ut fra  $1/e^2$ -punktene (markert med sorte linjer). x-aksen angir pikselnummer i bildet

Stråleprofilene fra figur 6.6 gir følgende flekkdiameter når det tas hensyn til at forstørrelsen i avbildningen er ca 4:

I x-retning er avstanden mellom  $1/e^2$ -punktene ca 13 piksler og pikselbredden  $17.3 \mu\text{m}$ , som gir flekkdiameter  $13 \cdot 17.3/4 \mu\text{m} \approx 56 \mu\text{m}$ . I y-retning er avstanden mellom  $1/e^2$ -punktene ca 14 piksler og pikselbredden  $16.6 \mu\text{m}$ , som gir  $14 \cdot 16.6/4 \mu\text{m} \approx 58 \mu\text{m}$ . Middelerdiene av x- og y-verdiene gir en flekkdiameter på ca  $57 \mu\text{m}$ .

### 6.3 Forsøk med $\text{CS}_2$

I dette kapitlet gis først en diskusjon omkring teoretiske arbeider relatert til selvfokusering og dielektrisk sammenbrudd i  $\text{CS}_2$ . Deretter diskuteres relevante eksperimentelle resultater fra litteraturen og resultater fra våre egne arbeider.  $\text{CS}_2$  er i første rekke anvendelig som en første begrenser i et tandem-system med et etterfølgende begrenserelement med større følsomhet.

#### 6.3.1 Teoretiske arbeider

Det har i den senere tid vært gjennomført teoretiske arbeider på selvfokusering og sammenbrudd i materialer [38], [66]. Ligning 3.14, som gir effektterskelen  $P_{cr}$  for sammenbrudd, gjelder for gaussiske stråler og bygger på to forutsetninger. Den ene er den såkalte paraksiale approksimasjon hvor det gjøres forenklinger i beskrivelsen av den transversale variasjonen av det elektriske feltet [67], mens den andre forutsetningen er gitt av ligning 3.13, som forutsetter at brytningsindeksen  $n$  kun avhenger av  $E$ -feltet lokalt. I følge den paraksiale approksimasjon vil strålen kollapse under selvfokusering hvis effekten overskrider  $P_{cr}$ . Ikke-paraksiale metoder gir mulighet til å gi en mer nøyaktig beskrivelse av bølgeforplantningen fram til kollaps-punktet når  $P_{cr}$  overskrides. I [67] gjøres det for første gang en beregning som ikke bygger på paraksialapproksimasjonen. Imidlertid brukes det en *skalar* versjon av Maxwells ligninger. I [66] gjennomføres en mer fullstendig beregning som bygger på de vektorielle Maxwell'ske ligningene, men fortsatt under forutsetning av at brytningsindeks-endringen kan beskrives av den enkle ligningen 3.13.

Hernandez *et al* [38.] har gjort mer realistiske simuleringer av  $\text{CS}_2$  som også tar hensyn til elektrostriksjon, men den paraksiale approksimasjonen er benyttet, så resultatene herfra må også tolkes med et visst forbehold. I følge [66] gir ligning 3.14 fortsatt et noenlunde riktig uttrykk for



$P_{cr}$ , men alt i alt må det konkluderes med at vi for tiden ikke kan vise til noen tilfredsstillende simulering av prosessene som foregår under selvfokusering i væsker. I mangel på et teoretisk verktøy som kan gi sikre forutsigelser, blir det derfor nødvendig å støtte seg til et større sett av eksperimentelle resultater.

Et vesentlig spørsmål for begrensere som baserer seg på sammenbrudd i CS<sub>2</sub> er hvor robust sammenbruddsmekanismen i CS<sub>2</sub> vil være overfor stråler som avviker fra en rent gaussisk transversal profil. Det har lenge vært diskutert om strålen brytes opp i filamenter som selvfokuserer individuelt eller om strålen kollapser enhetlig. I følge [67] vil en perturbert gaussisk stråle være ganske stabil overfor filamentering. Det diskuteres også hvorvidt fokus i strålen vil forflytte seg hurtig frem og tilbake i løpet av pulsen [38].

### 6.3.2 Tidligere eksperimentelle arbeider

Eksperimenter med selvfokusering og dielektrisk sammenbrudd i CS<sub>2</sub>, utført av Solieau *et al* [22] i 1983, viste en terskel på 26 kW (pulsenergi  $\sim 1.04 \mu\text{J}$ ) for 40 ps pulser på bølgelengden  $1.06 \mu\text{m}$  med en flekkdiameter på  $100 \mu\text{m}$ . Dette er i rimelig samsvar med ligning 3.14, som gir en kritisk terskeeffekt på ca 33 kW for en gaussisk stråleprofil ved denne bølgelengden, uavhengig av flekkdiameter og pulslengde. Ligning 3.14 sier at terskelen er proporsjonal med  $\lambda^2$ , og dette hadde så langt gitt god overensstemmelse i tilfeller hvor ligningen var blitt brukt som skaleringsformel til å sammenligne resultater oppnådd ved ulike bølgelengder. Det siste året har Hernández *et al* [23], [37], [38] gjort forsøk med CS<sub>2</sub> som første-begrenser i en tandemkonstruksjon med to fokalplan, med F/5 optikk og 5 ns (FWHM) pulser ved 532 nm bølgelengde. Flekkdiameteren ble målt til  $12 \mu\text{m}$  i begge plan, som er ca 3.5 ganger større enn den diffraksjonsbegrensede flekkdiameteren ved denne bølgelengden. Med utgangspunkt i at Solieau [22] målte en terskel på 26 kW ved  $1.06 \mu\text{m}$  bølgelengde (se ovenfor) burde Hernández *et al* fått en terskel på ca 6.5 kW ved 532 nm bølgelengde. Det forutsettes da at  $n_2$  ikke endres vesentlig fra 532 nm til  $1.06 \mu\text{m}$ . I eksperimentene ble det imidlertid funnet en mye lavere terskel,  $P_{cr} = 2.6 \text{ kW}$ . Det ble antatt at forskjellen, 2.6 kW kontra 6.5 kW, måtte forklares ved andre effekter enn selvfokusering via molekylær reorientering. Dette ble studert i numeriske simuleringer [23], [37], [38], som viste en senkning av terskelen med en faktor på 3 for det aktuelle tilfellet når det ble tatt hensyn til at elektrostriksjon og molekylær reorientering virker sammen og forsterker hverandre. Effekten av elektrostriksjon forventes å øke ved økende pulslengde og avtagende flekkdiameter, fordi elektrostriksjon innebærer forflytning av molekyler, noe som krever betydelig tid. I utgangspunktet forventes elektrostriksjon å få betydning for pulslengder over 1 ns og flekkdiameter under noen titalls  $\mu\text{m}$ .

Følgende referanser har også gjort målinger som er relevante for denne diskusjonen:

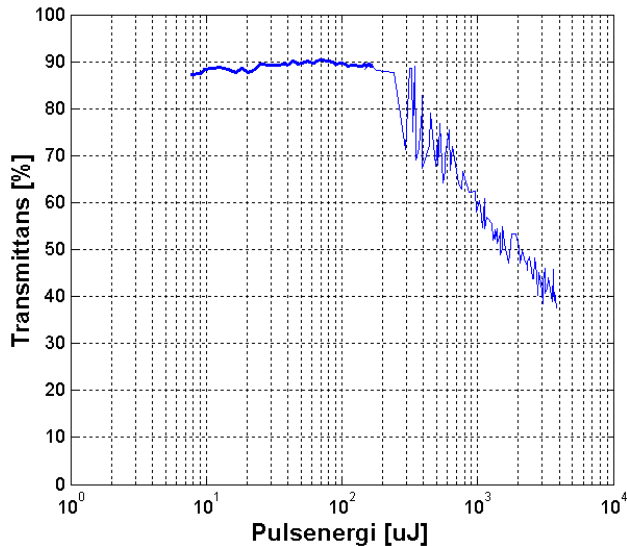
Bunning *et al* [25] benytter  $11.4 \mu\text{m}$  flekkdiameter, 7 ns pulslengde og 532 nm bølgelengde og får en terskel på 4.3 kW ( $30 \mu\text{J}$ ). Mansour *et al* [58] bruker  $7 \mu\text{m}$  flekkdiameter, 14 ns (FWHM) pulslengde og 532 nm bølgelengde og får en terskel som vi leser ut av figur 2 i denne artikkelen til å være ca 3.8 kW ( $50 \mu\text{J}$ ). I tillegg har Mansour *et al.* [58] gjort forsøk med  $10.2 \mu\text{m}$  flekkdiameter og 20 ns (FWHM) pulslengde og  $1064 \text{ nm}$  bølgelengden og fått en terskel på 13.5 kW ( $290 \mu\text{J}$ ). Justert for forskjell i bølgelengde gir den siste en terskel på ca 3.4 kW ved 532 nm. Selv om dette til sammen ikke representerer noe stort eksperimentelt materiale, finner vi at terskelen ved 532 nm bølgelengde varierer forholdsvis lite ( $P_{cr} = 2.6 - 4.3 \text{ kW}$ ) for pulslengder i området 5 - 20 ns og flekkdiameter i området 7 - 12  $\mu\text{m}$ . I følge simuleringer gjort av Hernandez

*et al* [38] skulle den *effektive*  $n_2$  (med bidrag både fra elektrostriksjon og molekylær reorientering) øke ytterligere med en faktor 2.5 når pulslengden øker fra 5 ns til 16 ns for 12  $\mu\text{m}$  flekkdiameter og inn-effekten holdes konstant. Dette innebærer at  $P_{cr}$  skulle minke tilsvarende med pulslengden, siden  $P_{cr}$  er proporsjonal med  $n_2$  i ligning 3.14. Når vi ser referansene nevnt ovenfor i sammenheng, er det derimot ingen klar tendens til dette. Det eneste klart avvikende resultatet er publisert av Solieau *et al* [22], som ga en terskel på 6.5 kW ved skalering til 532 nm bølgelengde. I dette eksperimentet var som nevnt pulslengden mye kortere (40 ps) og flekkdiameteren større (100  $\mu\text{m}$ ). Det kan imidlertid her stilles spørsmål ved om den målte terskelen faktisk har vært begrenset av cellelengden på 12 mm. Avstanden fra den fokuserte flekken i prøven og fram til punktet hvor strålen kollapser er gitt av ligning 3.15. Ved innsetting av aktuelle verdier for flekkdiameter og den målte terskelen på 26 kW ved 1064 nm, får man en avstand til kollaps på ca 16 mm, som er sammenlignbar med cellelengden. Dette innebærer at den målte terskelen kunne ha blitt lavere ved bruk av en lengre celle. For de andre referansene er avstanden til kollaps (gitt av ligning 3.15) ved de målte terskelverdiene under 0.1 mm, så her har cellelengden ikke hatt noen innvirkning på målingene. Det er uansett interessant å merke seg at i målingene med flekkdiameter i området 7 - 12  $\mu\text{m}$  ligger de målte terskelverdiene opp til en faktor 2.5 under den verdien som kan beregnes med ligning 3.14 ved innsetting av den vanlig aksepterte verdien av  $n_2$  for  $\text{CS}_2$ . Den mest aktuelle forklaringen på dette er som nevnt innvirkningen av elektrostriksjon.

Det er generelt av stor betydning å finne ut når terskelen begynner å avvike fra ligning 3.14. Senkning av terskelen blir spesielt viktig i tandembegrensere i tilfeller hvor flekkdiameteren ved frontflaten til begrenseroelement nr 2 er liten og det dermed lett kan oppstå skader. F eks er det vist at skadeterskelen i RSA-begrensere kan være under 50  $\mu\text{J}$  ved 12  $\mu\text{m}$  flekkdiameter [23], [37], [38].

### 6.3.3 Eksperimenter utført ved FFI

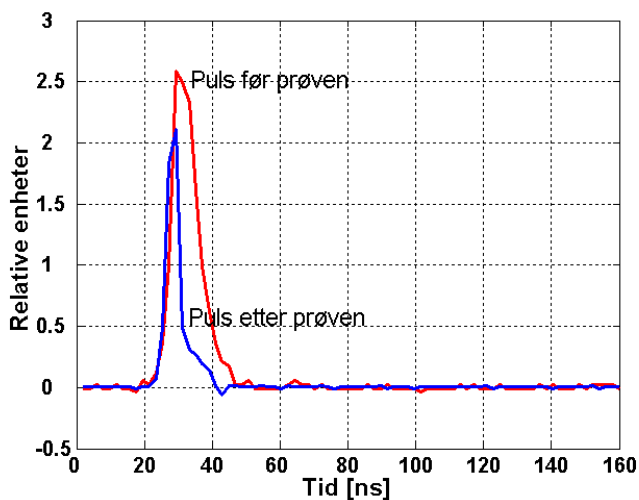
For å undersøke hva som eventuelt er kritisk flekkdiameter for at terskelen skal senkes pga elektrostriksjon er det nødvendig å gjøre eksperimenter ved større diometre, men med pulslengder i det samme området som de i andre forsøkene. Vi har gjort forsøk med måleoppstillingen i figur 6.1, med 7 ns pulslengde, 28  $\mu\text{m}$  flekkdiameter og 1064 nm bølgelengde. Figur 6.7 viser målt transmittans som funksjon av innsendt pulsenergi. Den kritiske terskelenergien er ca 200  $\mu\text{J}$ , som tilsvarer en terskeeffekt  $P_{cr}$  på ca 29 kW. Skalert til 532 nm bølgelengde gir dette en terskel på ca 7 kW. Disse måleresultatene er i bra overensstemmelse med resultatene til Solieau *et al* [22], som benyttet en enda større flekkdiameter (100  $\mu\text{m}$ ). Det er mulig at terskelen kunne blitt senket ytterligere ved å redusere flekkdiameteren fra 28  $\mu\text{m}$  og ned mot de verdiene (7 - 12  $\mu\text{m}$ ) som ble benyttet i de andre referansene nevnt ovenfor. Det mangler i øyeblikket eksperimentelle data som kunne bekrefte at en slik reduksjon opptrer i området 28  $\mu\text{m}$  - 12  $\mu\text{m}$  flekkdiameter, så dette ville være en interessant oppfølging av arbeidet. Det skal imidlertid føyes til at laseren som ble brukt i våre eksperimenter var en multi-modus laser, både med hensyn til transversal stråleprofil og til frekvensinnhold (multi-longitudinal mode), som gir et tilfeldig varierende pulsforløp fra puls til puls. For å oppnå tilstrekkelig veldefinerte målebetingelser ville det være nødvendig å benytte en enkelt-modus laser i slike oppfølgende forsøk.



Figur 6.7 Målinger utført på  $CS_2$  med  $\lambda = 1.064 \mu m$  og  $28 \mu m$  flekkdiameter

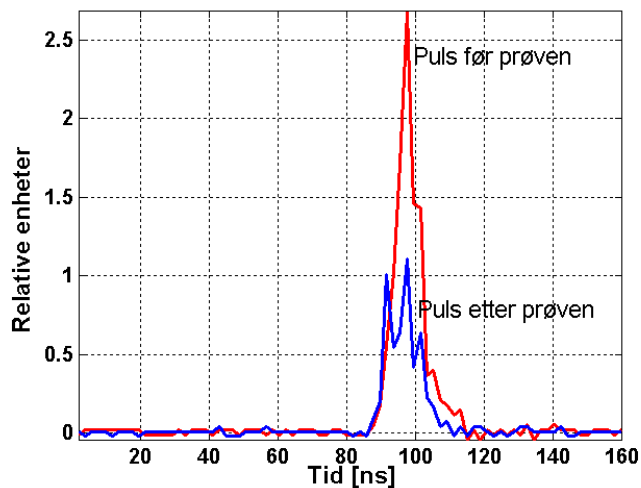
Vi kan få en del informasjon om hvordan sammenbruddet skjer ved å studere fluktusjonene i transmittans i figur 6.7. Datapunktene representerer en enkelt tilfeldig valgt puls for hver pulsenergi, og fluktusjonene i transmittans for en gitt pulsenergi var omtrent like store som de fluktusjonene man observerer lokalt i kurven. Fluktusjonene fra puls til puls er størst i området nær terskelenergien (ca 20 %), men det er også betydelige fluktusjoner ved de høyeste energiene (opp til 10 %). Dette skyldes sannsynligvis at laseren, som nevnt ovenfor, oscillerer på mange longitudinale moder, noe som gir tilfeldig varierende oscillasjoner i pulsforløpet fra puls til puls selv om den totale pulsenergien holdes konstant. Pulser med spesielt høye topper vil lettere føre til kollaps i strålen, og det er naturlig at dette blir mest kritisk i området rundt terskelen. Dette fenomenet forventes også å gjøre seg gjeldende i CBS-begrensere, hvor pulser med spesielt høye topper lettere gir bobledannelser. Dette kan observeres i figur 6.3.

Under forsøkene ble det også gjort målinger av pulsforløp. Som i målingene på CBS-begrenseren fant man også her at den transmitterte pulsen forkortes i forhold til den innsendte pulsen. Dette observeres for moderat svake pulser, som vist i figur 6.8.



Figur 6.8 Målinger av pulsforløp for  $CS_2$ ,  $\lambda = 1.064 \mu m$ ,  $28 \mu m$  flekkdiameter,  $1.84 mJ$  pulsenergi. Pulsforkortningen etter prøven er ca 3.5 ns.

Etter hvert som energien økte observerte vi at den transmitterte pulsen endret form, som vist i figur 6.9. Den initielle forkortede pulsen fra figur 6.8 er her borte, noe som sannsynligvis kan forklares ved at kollaps av strålen og dielektrisk sammenbrudd skjer svært tidlig i pulsforløpet. Lignende observasjoner ble også gjort i [25]. Hernandez *et al* [38] noterte en svak toppunktsforskyvning på 1 ns for lave energier, men antydnet at dette kan endre seg ved høyere energier.



Figur 6.9 Målinger av pulsforløp for  $CS_2$ ,  $\lambda = 1.064 \mu m$ ,  $28 \mu m$  flekkdiameter,  $4.64 mJ$  pulsenergi.

Disse forholdene blir viktige når man skal vurdere hvilken type materialer som skal benyttes etter  $CS_2$  i en tandembegrenser. I dette tilfellet må det etterfølgende elementet være minst mulig følsomt overfor pulsens form. Fluensavhengige begrensere (f eks RSA-materialer) oppfyller dette kravet. I tandembegrensere er det også viktig at terskelen i det første begrenserelementet er tilstrekkelig lav, slik at den transmitterte pulsenergien kan holdes på et så lavt nivå at det ikke oppstår skader i det siste begrenserelementet. Som vi har sett ovenfor er det ved 532 nm bølgelengde målt terskeleffekter i området 2.6 - 4.3 kW for pulslengder i området 5 - 20 ns, og de tilsvarende terskelenergiene er typisk under 50  $\mu J$ . De transmitterte pulsenergiene vil imidlertid vanligvis bli betydelig høyere enn dette ved høy innsendt energi, fordi begrenseren ikke er ideell. Det er essensielt at man tar hensyn til dette i utformingen av tandembegrenseren, ved at flekkdiameteren i det siste begrenserelementet velges tilstrekkelig stor til at fluensen alltid holdes godt under skadeterskelen. For at det skal bli mulig å oppfylle dette kravet er det viktig at det første elementet både har lavest mulig terskelenergi og mest mulig ideell begrensning for høye innsendte pulsenergieer.

## 7 KONKLUSJON

Vi har gjennomført en teoretisk og praktisk innledende studie av noen viktige ikke-lineære optiske begrenserelementer. Vi har sett at man må ta i bruk svært forskjellige materialer for å kunne oppfylle de krav til bølgelengdeuavhengighet, følsomhet og skadeterskel som det er nødvendig å stille. Flere av de materialene som undersøkes er også aktuelle innen fremtidig mikroelektronikk, og internasjonalt gjøres det for tiden et omfattende arbeid for å kartlegge

deres egenskaper og egnethet for ulike anvendelser.

Utviklingen innen begrensermaterialer har generelt kommet lengst i det synlige og nære infrarøde spektralområdet. Hittil har arbeidet hovedsakelig gått ut på å undersøke hvilke muligheter de ulike materialene gir. Når man i det synlige området har demonstrert en dempningsfaktor på 30 000 ved å kombinere to materialer i en tandembegrenser, må dette tas som en bekreftelse på hvilket potensiale som ligger i ikke-lineære beskyttelsestiltak.

I deler av det synlige området har man i laboratoriet demonstrert tilstrekkelig beskyttelse mot pulser fra Q-svitsjede lasere, hvor pulslengden typisk ligger i området 1 - 15 ns. Dersom hele det synlige området skal dekkes, ser vi mulighet til å splitte området i smalere spektralbånd slik som det gjøres i høykvalitets CCD kameraer. Vi anser at begrensereenes anvendelsesområde vil være beskyttelse av detektorer, og ikke beskyttelse av det menneskelige øyet, som har fått den største oppmerksomheten fram til nå. Dette skyldes at det i militær sammenheng blir stadig mer aktuelt å gjøre observasjon og målfatning via en elektrooptisk sensor. Kravene til begrenseren vil ikke være så forskjellige i de to tilfellene, men en direkte optisk signalvei fra en laser og inn i øyet medfører en risiko som kan unngås ved økt bruk av kameraer.

Ventelig vil man først se ikke-lineære beskyttelsestiltak på våpensikter på større militære plattformer samt i missiler. I sistnevnte tilfelle kan begrensere plasseres inn i søkeren som en generell beskyttelse og i tillegg være et element i missilets "home on jam" strategi. Ikke-lineær beskyttelse i et visir eller i en brille uten bruk av mellomfokus må i beste fall betegnes som en meget ambisøs målsetning.

En av utfordringene vil være å avpasse de optiske fluensene gjennom de ulike begrenser-elementene slik at man både oppnår tilstrekkelig dempning og unngår at det oppstår skader. Dette vil særlig gjelde for laserpulser i området 15 ns til 1  $\mu$ s. Tilpasning av begrensere til ulike detektortyper er også en sentral oppgave. Det må utføres et videre arbeid for å gjøre detektorene mer resistente overfor lasere, og samtidig bør man velge følsomme detektorer for å kompensere for det uunngåelige småsignaltapet gjennom begrensere.

Det nødvendig å ha tilgang på testfasiliteter for å kunne verifisere ytelsen til beskyttede sensorer. Dette krever tilgang til laserkilder i de forskjellige puls- og bølgelengdeområdene.

## Litteratur

- (1) Brudevoll T, Villanger A (1999): Strålingsbeskyttelse av elektrooptiske sensorer, FFI/RAPPORT-99/03802, Forsvarets forskningsinstitutt (BEGRENSET).
- (2) Hollins R C (1999): Materials for optical limiters, *Current Opinion in Solid State & Materials Science* **4**, 189 - 196.
- (3) Holst G C (1998): CCD arrays, cameras, and displays, SPIE Optical Engineering Press.
- (4) Hollins R C (1998): Optical limiters: Spatial, temporal, and spectral effects, Proceedings, First International Workshop on Optical Power Limiting, CANNES (France), 28 June - 1 July.
- (5) Ajer H, Villanger A S, Heen L T, Skafle U (2000): Laserskader i materialer for IR-sensorer. Skadeterskler og -mekanismer, FFI/RAPPORT-2000/05949 (KONFIDENSIELT)
- (6) Grolier-Mazza V (1998): The specification of laser protection, Proceedings, First International Workshop on Optical Power Limiting, CANNES (France), 28 June - 1 July.
- (7) Loudon R (1983): The quantum theory of light, Oxford University Press.
- (8) Boyd R W (1992): Nonlinear optics, Academic Press.
- (9) Holtan H, Hagen G (1978): Organisk kjemi, Universitetsforlaget.
- (10) Holtan H (1976): Generell kjemi, Universitetsforlaget.
- (11) Pidgeon C R, Wherrett B S, Johnston A M, Dempsey J, Miller A (1979): Two-photon absorption in zinc-blende semiconductors, *Phys. Rev. Letters* **42**, 26, 1785 - 1788.
- (12) Perry J W (1997): Organic and metal-containing reverse saturable absorbers for optical limiters In: *Nonlinear Optics of Organic Molecules and Polymers* (Eds: Nalwa H S, Miyata S), CRC Press, New York, 813 - 840.
- (13) Tang N, Su W, Krein D M, McLean D G, Brant M C, Fleitz P A, Brandelik D M, Sutherland R L, Cooper T M (1997): Optical limiting in modified meso-alkynyl porphyrins, Proceedings, Materials Research Society Symposium, **479**, 47 - 52.
- (14) Kobayakov A, Hagan D J, Van Stryland E W (2000): Analytical approach to dynamics of reverse saturable absorbers, *J. of the Optical Society of America B* **17**, 11, 1884 - 1893.
- (15) Drobizhev M, Karotki A, Rebane A, Spangler C W (2001): Dendrimer molecules with record large two-photon absorption cross section, *Optics Letters* **26**, 14, 1081 - 1083.
- (16) He G S, Yuan L, Cheng N, Bhawalkar J D, Prasad P N, Brott L L, Clarson S J, Reinhardt B A (1997): Nonlinear optical properties of a new chromophore, *J. of the Optical Society of America B* **14**, 5, 1079 - 1087.
- (17) Ehrlich J E, Wu X L, Lee L-Y S, Heikal A A, Hu Z-Y, Rockel H, Marder S R, Perry J W (1997): Two-photon absorbing organic chromophores for optical limiting, Proceedings, Materials Research Society Symposium, **479**.

- (18) Van Stryland E W, Vanherzeele H, Woodall M A, Soileau M J, Smirl A L, Guha S, Boggess T F (1985): Two photon absorption, nonlinear refraction, and optical limiting in semiconductors, *Optical Engineering* **24**, 4, 613 - 623.
- (19) Khoo I C, Wood M V, Shih M Y, Chen P H (1999): Extremely nonlinear photosensitive liquid crystals for image sensing and sensor protection, *Optics Express* **4**, 11, 432 - 442.
- (20) IR/EO systems handbook (1993): Photorefractive limiters: *The Infrared & Electro-Optical Systems Handbook: Countermeasure Systems* (Ed: Pollock D H), **7**, SPIE Optical Engineering Press.
- (21) McCahon S W, Klein M B (1989): Coherent beam excisors using the photorefractive effect in BaTiO<sub>3</sub>, In: *Materials for Optical Switches, Isolators, and Limiters*, Proceedings SPIE **1105**, 119 - 124.
- (22) Soileau M J, Williams W E, Van Stryland E W (1983): Optical power limiter with picosecond response time, *IEEE J of Quantum Electronics* **QE-19**, 4, 731 - 735.
- (23) Hernández F E, Yang S, Van Stryland E W, Hagan D J (2000): High-dynamic-range cascaded-focus optical limiter, *Optics Letters* **25**, 16, 1180 - 1182.
- (24) Marburger J H (1975): Self-focusing theory In: *Progress in Quantum Electronics* (Eds: Sanders J H, Stenholm S), **4**, part 1, Pergamon, Oxford, 35 - 110.
- (25) Bunning T J, Natarajan L V, Schmitt M G, Epling B L, Crane R L (1991): Optical limiting in solutions of diphenyl polyenes, *Applied Optics* **30**, 30, 4341 - 4348.
- (26) Topics in applied chemistry (1990): Infrared absorbing dyes (Ed: Matsuoka M), Plenum Press, New York.
- (27) Wei T H, Hagan D J, Sence M J, Van Stryland E W, Perry J W, Coulter D R (1992): Direct measurements of nonlinear absorption and refraction in solutions of phthalocyanines, *Applied Physics B* **54**, 46 - 51.
- (28) Hagan D J, Van Stryland E W, Wu Y Y, Wei T H, Sheik-Bahae M, Said A, Mansour K, Young J, Soileau M J (1989): Passive broadband high dynamic range semiconductor limiters, In: *Materials for Optical Switches, Isolators, and Limiters*, Proceedings SPIE **1105**, 103 - 113.
- (29) Van Stryland E W, Wu Y Y, Hagan D J, Soileau M J, Mansour K (1988): Optical limiting with semiconductors, *J. of the Optical Society of America B* **5**, 9, 1980 - 1989.
- (30) Fougeanet F, Riehl D (1998): Investigation of optical limiting mechanisms in carbon-black suspensions, Proceedings, First International Workshop on Optical Power Limiting, CANNES (France), 28 June - 1 July.
- (31) Bussoletti E, Colangeli L, Borghesi A (1987): VUV to FIR laboratory observations on submicron amorphous carbon particles, (Eds: A Leger, L d'Hendecourt, and N Boccara), Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Astrophysics, NATO ASI Series, 63 - 74.
- (32) Tutt Lee W, Kost A (1992): Optical limiting performance of C<sub>60</sub> and C<sub>70</sub> solutions, *Nature* **356**, 225 - 226.
- (33) Sun X, Xiong Y, Chen P, Lin J, Ji W, Lim J H, Yang S S, Hagan D, Van Stryland E W

- (2000): Investigation of an optical limiting mechanism in multiwalled carbon nanotubes, *Applied Optics* **39**, 12, 1998 - 2001.
- (34) Vivien L, Riehl D, Delouis J-F, Delaire J A, Hache F, Anglaret E (2002): Picosecond and nanosecond polychromatic pump-probe studies of bubble growth in carbon-nanotube suspensions, *J. of the Optical Society of America B* **19**, 2, 208 - 214.
- (35) Philip R, Kumar G R, Sandhyarani N, Pradeep T (2000): Picosecond optical nonlinearity in monolayer-protected gold, silver, and gold-silver alloy nanoclusters, *Physical Review B* **62**, 19, 13160 - 13166.
- (36) Ross T S (1998), Ph.D. Dissertation, University of Central Florida.
- (37) Hernández F E, Yang S, Dubikovskiy V, Shensky III W, Van Stryland E W, Hagan D J (2000): High performance optical limiter, *IEEE Lasers and Electro-Optics Society (LEOS) Newsletter*, 5 - 7.
- (38) Hernández F E, Yang S, Dubikovskiy V, Shensky III W, Van Stryland E W, Hagan D J (2000): Dual focal plane visible optical limiter, *J. of Nonlinear Optical Physics & Materials* **9**, 4, 423 - 440.
- (39) Khoo I-C (1995): LIQUID CRYSTALS; Physical properties and nonlinear optical phenomena, John Wiley & Sons, INC., New York.
- (40) Palffy-Muhoray P, Frisken B J, Kelly J and Yuan H J (1989): Nonlinear optical response of polymer dispersed liquid crystal films, In: *Materials for Optical Switches, Isolators, and Limiters*, Proc. SPIE **1105**, 33 - 41.
- (41) Khoo I C, Wood M V, Shih Min-Yi, Guenther B D, Chen P (1997): Analytical modeling of nonlinear- and excited state-absorption and optical limiting in a liquid-cored fiber array, In: *Nonlinear Optical Liquids and Power Limiters*, Proc. SPIE San Diego, California, 30 - 31 July.
- (42) Khoo I C, Wood M V, Chen P H, Shih M Y (1999): Nonlinear optical liquid cored fiber array and liquid crystalline film for optical limiting of frequency agile picosecond pulsed - CW laser, Proceedings, First International Workshop on Optical Power Limiting , Cannes (France), 28 June - 1 July.
- (43) Lin H-B, Tonucci R J, Campillo A J (1998): Two-dimensional photonic bandgap optical limiter in the visible, *Optics Letters* **23**, 2, 94 - 96.
- (44) Shirk J S (2000): Protecting the war fighter's vision in a laser-rich battlefield environment, *Optics & Photonics News*, 19 - 23.
- (45) Nashold K M, Walter D P, Voss J M, Frysinger G S, Sharpless R L (1999): Comparing the scattering process in particle suspensions in liquids and gases for use as optical limiters, Proceedings, First International Workshop on Optical Power Limiting , Cannes (France) , 28 June - 1 July, 353 - 376.
- (46) Segaud J P, Giraudo O, Indrigo C, Cavanna E, Livage Onera J (1999): VO<sub>2</sub> and Au-VO<sub>2</sub> thin films prepared by sputtering and sol-gel for infrared optical power limiting, Proceedings, First International Workshop on Optical Power Limiting, Cannes (France), 28 June - 1 July.



- (47) Morin F J (1959): *Physical Review Letters* **3**, 34.
- (48) Wenstøp Ø S (1999): Det billeddannende resistive bolometer, FFI/RAPPORT-99/00706, Forsvarets forskningsinstitutt (UGRADERT).
- (49) Meyer J R, Bartoli F J, Krueer M R (1980): Optical heating in semiconductors, *Physical Review B* **21**, 4, 1559 - 1568.
- (50) Mohebi M, Aiello P F, Reali G, Solieau M J, Van Stryland E W (1985): Self-focusing in CS<sub>2</sub> at 10.6 μm, *Optics Letters* **10**, 8, 396 - 398.
- (51) Sheik-bahae M, Said A A, Van Stryland E W (1989): High-sensitivity, single-beam n<sub>2</sub> measurements, *Optics Letters* **14**, 17, 955 - 957.
- (52) Sheik-bahae M, Said A A, Hagan D J, Solieau M J, Van Stryland E W (1989): Simple analysis and geometric optimization of a passive optical limiter based on internal self-action, In *Materials for Optical Switches, Isolators, and Limiters*, Proceedings SPIE **1105**, 146 - 153.
- (53) Vincent D (2001): Optical limiting threshold in carbon suspensions and reverse saturable absorber materials, *Applied Optics* **40**, 36, 6646 - 6653.
- (54) James D B, McEwan K J (1999): Bubble and refractive processes in carbon suspensions, *Nonlinear Optics* **21**, 377 - 389.
- (55) McEwan K J, Milsom P K, James D B (1998): Nonlinear optical effects in carbon suspensions, In: *Nonlinear Optical Liquids for Power Limiting and Imaging* (Ed: Lawson C M), Proceedings SPIE **3472**, 42 - 52.
- (56) Nashold K M, Walter D P (1995): Investigations of optical limiting mechanisms in carbon particle suspensions and fullerene solutions, *J. of the Optical Society of America B* **12**, 1228 - 1237.
- (57) Mansour K, Van Stryland E W, Soileau M J (1989): Optical limiting in media with absorbing microparticles, In *Materials for Optical Switches, Isolators, and Limiters*, Proceedings SPIE **1105**, 146 - 153.
- (58) Mansour K, Soileau M J, Van Stryland E W (1992): Nonlinear optical properties of carbon-black suspensions (Ink), *J. of the Optical Society of America B* **9**, 7, 1100 - 1109.
- (59) Li C, Zhang L, Wang R, Song Y, Wang Y (1994): Dynamics of reverse saturable absorption and all-optical switching in C<sub>60</sub>, *J. of the Optical Society of America B* **11**, 1356 - 1360.
- (60) McLean D G, Sutherland R L, Brant M C, Brandelik D M, Fleitz P A, Pottenger T (1993): Nonlinear absorption study of a C<sub>60</sub>-toluene solution, *Optics Letters* **18**, 858 - 860.
- (61) Tutt L W, Kost A (1992): Optical limiting performance of C<sub>60</sub> and C<sub>70</sub> solutions, *Nature (London)* **356**, 225 - 226.
- (62) Lepkowicz R, Kobayakov A, Hagan D J, Van Stryland E W (2002): Picosecond optical limiting in reverse saturable absorbers: a theoretical and experimental study, *J. of the Optical Society of America B* **19**, 94 - 101.

- (63) Brunel M, Canva M, Brun A, Chaput F, Malier L, Boilot J-P (1995): Doped gels for optical limiting applications, In *Materials for Optical Limiting* (Eds: Crane R, Lewis K, Van Stryland E W, Khoshnevisan M), Proceedings, Materials Research Society Symposium, **374**, 281 - 286.
- (64) Shirk J S, Pong R G S, Flom S R, Boyle M E, Snow A W (1995): Materials for reverse saturable absorption optical limiters, Proceedings, Materials Research Society Symposium, **374**, 201 - 209.
- (65) Said A A, Wei T H, DeSalvo J R, Sheik-Bahae M, Hagan D J, Van Stryland E W (1992): Self-protecting optical limiters using cascading geometries, *Proceedings SPIE* **1692**, Orlando, FL.
- (66) De la Fuente R, Varela O, Michinel H (2000): Fourier analysis of non-paraxial self-focusing, *Optics Communications* **173**, 403 - 411.
- (67) Feit M D, Fleck J A (1988): Beam nonparaxiality, filament formation, and beam breakup in the self-focusing of optical beams, *J. of the Optical Society of America B* **5**, 633 - 640.

## FORDELINGSLISTE

FFIE

Dato: 15 april 2002

RAPPORTTYPE (KRYSS AV)		RAPPORT NR.	REFERANSE	RAPPORTENS DATO	
<input checked="" type="checkbox"/> RAPP	<input type="checkbox"/> NOTAT	<input type="checkbox"/> RR	2002/01876	FFIE/792/113	15 april 2002
RAPPORTENS BESKYTTELSESGRAD			ANTALL EKS UTSTEDT	ANTALL SIDER	
UGRADERT			50	65	
RAPPORTENS TITTEL			FORFATTER(E)		
ELEKTROOPTISKE BEGRENSERE			VILLANGER Asta Storebø, BRUDEVOLL Trond, AJER Halvor, STENERSEN Knut		
FORDELING GODKJENT AV FORSKNINGSSJEF:			FORDELING GODKJENT AV AVDELINGSSJEF:		

### EKSTERN FORDELING

### INTERN FORDELING

ANTALL	EKS NR	TIL	ANTALL	EKS NR	TIL
1		FO/FST	14		FFI-Bibl
1		FO/FST, v/Oblt Gaute Dyrdal	1		Adm direktør/stabssjef
1		LTI	1		FFIE
1		LTI, v/Oblt Erik Pande-Rolfsen	1		FFISYS
1		FLO/Land, v/Elektro-optisk kontor	1		FFIBM
1		FLO/Land, v/ Rittm Tarjei Holtestaul	1		Halvor Ajer, E
1		FLO/Land, v/Oing Jan Inge Smeland	1		Gunnar Arisholm, E
1		FLO/Luft	1		Egil Bingen, E
1		FLO/Luft, v/Senioring Richard Nordås	1		Trond Brudevoll, E
1		FLO/Sjø	1		Randi Haakenaasen, E
1		FLO/Sjø v/Orlkapt Bjarne Isfeldt	1		Lars Trygve Heen, E
		<a href="http://www.ffi.no">www.ffi.no</a>	1		Harald Hovland, E
			1		Espen Lippert, E
			1		Stian Løvold, E
			1		Atle Rognmo, E
			1		Gunnar Rustad, E
			1		Øyvind Sjøvik, E
			1		Ulv Skafle, E
			1		Espen Stark, E
			1		Helge Steen, E
			1		Knut Stenersen, E
			1		Erling Sunde, E
			1		Stephane Nicolas, E
			1		Magnus Willum Haakestad, E
			1		Asta Storebø Villanger, E
			5		Arkiv, FFIE
					FFI-veven

FFI-K1

Retningslinjer for fordeling og forsendelse er gitt i Oraklet, Bind I, Bestemmelser om publikasjoner for Forsvarets forskningsinstitutt, pkt 2 og 5. Benytt ny side om nødvendig.