

Měření elektrického pole v plazmatu

PřF:F9180 Diagnostické metody 2

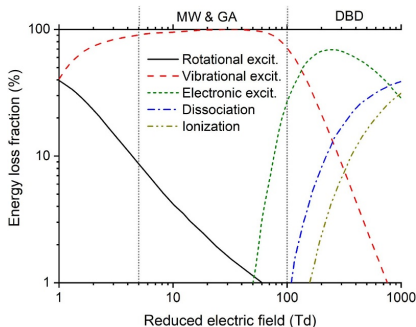
Martina Mrkvičková

jaro 2025

Motivace

Elektrické pole určuje, jaké plazmochemické procesy v plazmatu probíhají.

Rozhoduje, jakými způsoby se využije energie dodaná do plazmatu.

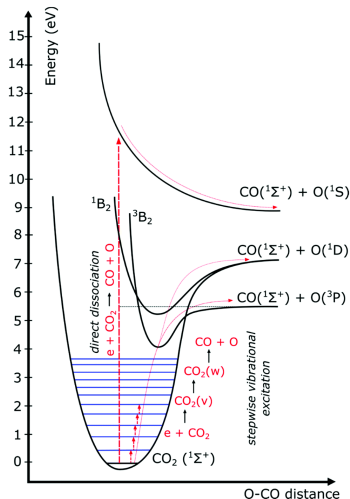


[A Bogaerts *et al*, ACS Energy Lett. 3 1013–27, 2018]: Fraction of electron energy transferred to different channels of excitation, as well as ionization and dissociation of N_2 , as a function of the reduced electric field.

Motivace

Př.: konverze $\text{CO}_2 \rightarrow \text{C} + \text{O}_2$:
MW plazma má mnohem lepší
energetickou účinnost než DBD

- MW: vibrační excitace +
"ladder climbing", disociační
en. 5.5 eV
- DBD: elektronová excitace do
repulsivního stavu – 7-10 eV



[R Snoecks, A, Bogaerts, Chem. Soc.
Rev., 2017,46, 5805-5863]

"Electric field" vs. "Reduced electric field"

- Elektrické pole: E , [$\text{V} \cdot \text{m}^{-1}$]
- Redukované elektrické pole: E/N , [$\text{Td} = 10^{-21} \text{ V} \cdot \text{m}^2$]
 - ▶ udává množství energie, kterou nabitá částice získá urychlením v el. poli mezi dvěma srážkami:

$$\varepsilon = q \cdot U = q \cdot \lambda \cdot E = \frac{q}{\sigma} \cdot \frac{E}{N}$$

- ▶ λ [m] – střední volná dráha mezi srážkami, $\lambda = \frac{1}{\sigma N}$
- ▶ σ [m²] – účinný průřez pro srážku s jinou částicí
- ▶ N [m⁻³] – koncentrace částic

Proč nestačí $E = U/d$?

- povrchový náboj na dielektrických
- objemový náboj – stínění náboje, ionizační vlny, streamery

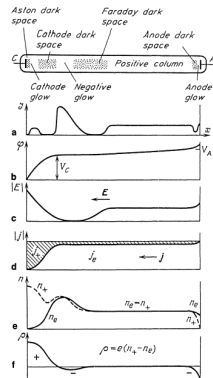
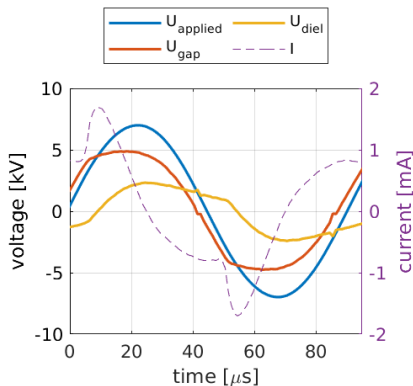


Fig. 8.2. Glow discharge in a tube and the distribution of: (a) glow intensity, (b) potential φ , (c) longitudinal field E , (d) electronic and ionic current densities j_e and j_i , (e) charge densities n_e and n_i , and (f) space charge $\rho = e(n_i - n_e)$

- elektrická měření:
 - ▶ ekvivalentní obvod
 - ▶ kapacitní sondy
 - ▶ Pockels-effect-sensitive crystals
- optická emisní spektroskopie:
 - ▶ Townsendův koeficient
 - ▶ podíl intenzit spektrálních čar (např. FNS/SPS)
 - ▶ Stark broadening, Stark polarization emission spectroscopy
 - ▶ bremsstrahlung (Z. Navrátil)
- laserové metody:
 - ▶ el. field CARS (Coherent anti-Stokes Raman scattering)
 - ▶ laser-induced fluorescence dip spectroscopy
 - ▶ EFISH

- elektrická měření:
 - ▶ **ekvivalentní obvod**
 - ▶ kapacitní sondy
 - ▶ Pockels-effect-sensitive crystals
- optická emisní spektroskopie:
 - ▶ **Townsendův koeficient**
 - ▶ **podíl intenzit spektrálních čar (např. FNS/SPS)**
 - ▶ **Stark broadening, Stark polarization emission spectroscopy**
 - ▶ bremsstrahlung (Z. Navrátil)
- laserové metody:
 - ▶ **el. field CARS (Coherent anti-Stokes Raman scattering)**
 - ▶ **laser-induced fluorescence dip spectroscopy**
 - ▶ **EFISH**

Part I

Ekvivalentní obvod (Equivalent circuit)

Ekvivalentní obvod (Equivalent circuit)

Určení průměrné hodnoty el. pole v plynu mezi dielektriky (DBD) pomocí záznamu napětí $V(t)$ a proudu $I(t)$

- $E = U_g/d$
- gap voltage: $U_g(t) = V(t) - \frac{Q(t)}{C_d}$
- transferred charge:
 $Q(t) = \int_0^t I(t') dt'$
- dielectric barrier capacitance C_d :
slope of active phases of QV plot

[AV Pipa *et al*, Review of Scientific Instruments, 83(11):115112, 2012]

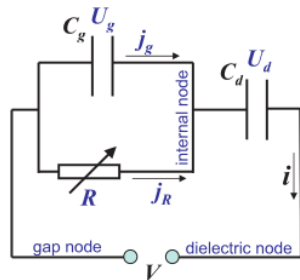
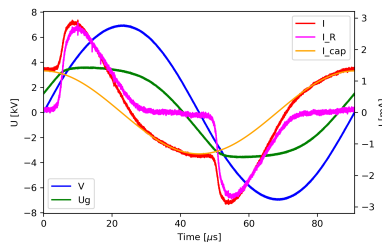


FIG. 3. Simplest equivalent circuit of a DBD.

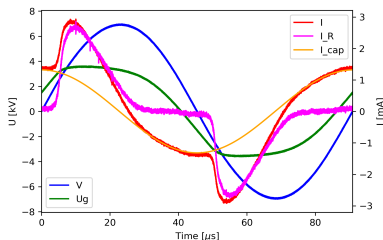
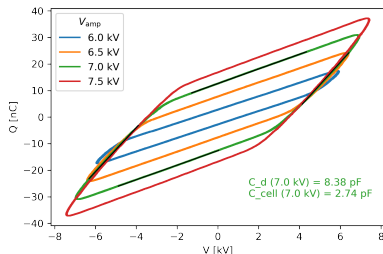


Ekvivalentní obvod (Equivalent circuit)

Určení průměrné hodnoty el. pole v plynu mezi dielektriky (DBD) pomocí záznamu napětí $V(t)$ a proudu $I(t)$

- $E = U_g / d$
- gap voltage: $U_g(t) = V(t) - \frac{Q(t)}{C_d}$
- transferred charge:
 $Q(t) = \int_0^t I(t') dt'$
- dielectric barrier capacitance C_d :
slope of active phases of QV plot

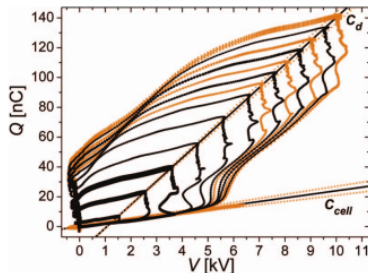
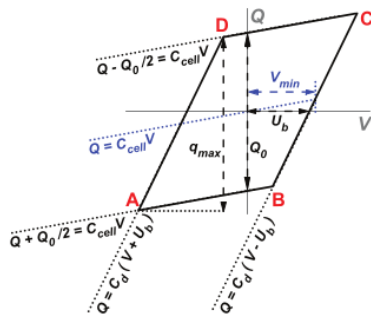
[AV Pipa *et al*, Review of Scientific Instruments, 83(11):115112, 2012]



Ekvivalentní obvod (Equivalent circuit)

Problémy:

- měří jen "průměrované" elektrické pole v celém gapu
- určení kapacity dielektrika není vždy jednoduché
 - ▶ př. pro fast pulsed DBD: určení z maximálního přeneseného náboje a jeho závislosti na V_{max} :
$$Q_{max} = C_d(V_{max} - U_{res})$$



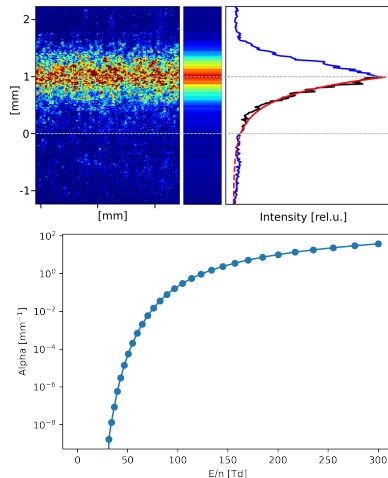
Part II

Townsendův koeficient

Townsendův koeficient

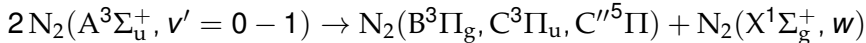
Townsendova lavinová teorie:

- $n(x) = n_0 e^{\alpha(E/N)x}$
- intenzita záření $\sim$ koncentrace elektronů
- závislost $\alpha(E/N)$ lze najít např. v databázi Biagi (www.lxcat.net)
- ... zaznamenáme prostorové rozložení záření výboje a fitujeme jej exponenciálou



Omezení:

- předpoklad homogenního el. pole (Townsendův výboj)
- excitované stavy musí být populované výlučně pomocí electron-impact excitation
- protipříklad: zářivé stavy dusíku se mimo aktivní fáze výboje populují převážně prostřednictvím "pooling reaction":



Part III

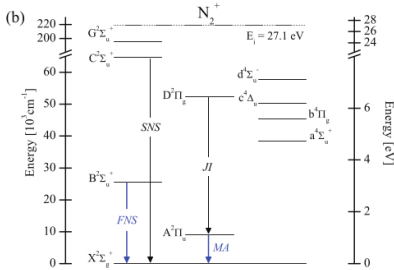
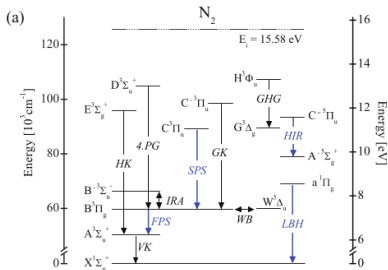
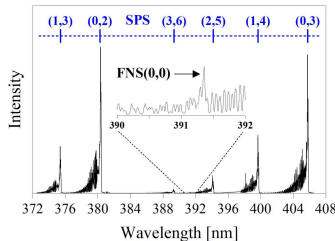
Poměr intenzit spektrálních čar

Poměr intenzit spektrálních čar

Porovnání intenzit záření ze dvou stavů, které jsou populované různě energetickými elektrony

Př.: poměr záření FNS a SPS dusíku

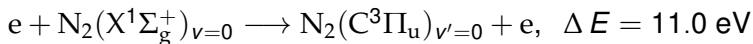
- first negative system (FNS)
 $N_2^+(B^2\Sigma) \rightarrow N_2^+(X^2\Sigma) + h\nu_C$ (337 nm)
- second positive system (SPS)
 $N_2(C^3\Pi) \rightarrow N_2(B^3\Pi) + h\nu_B$ (392 nm)



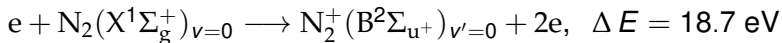
Poměr intenzit spektrálních čar

Různé minimální energie a účinné průřezy pro excitaci horních stavů SPS a FNS:

- horní stav SPS:



- horní stav FNS:



Rychlostní rovnice (balance equations):

$$\frac{dn_C(x, t)}{dt} = k_C \left(\frac{E}{N} \right) n_{N_2} n_e - \frac{n_C(x, t)}{\tau_{\text{eff}}^C}$$

$$\frac{dn_B(x, t)}{dt} = k_B \left(\frac{E}{N} \right) n_{N_2} n_e - \frac{n_B(x, t)}{\tau_{\text{eff}}^B}$$

- ▶ n_C – koncentrace molekul ve stavu $N_2(C)$
- ▶ k – rychlostní koeficienty pro elektron-impakt excitaci (ionizaci)
- ▶ τ_{eff} – efektivní doba života

Poměr intenzit spektrálních čar

$$\frac{dn_C(x, t)}{dt} = k_C \left(\frac{E}{N} \right) n_{N_2} n_e - \frac{n_C(x, t)}{\tau_{\text{eff}}^C}$$

$$\frac{dn_B(x, t)}{dt} = k_B \left(\frac{E}{N} \right) n_{N_2} n_e - \frac{n_B(x, t)}{\tau_{\text{eff}}^B}$$

$$I_C(x, t) = \frac{T_C n_C h c}{\tau_{00}^C \lambda_{C,0-0}}, \quad I_B(x, t) = \frac{T_B n_B h c}{\tau_{00}^B \lambda_{B,0-0}}$$

$$\frac{\frac{dI_B}{dt} + \frac{I_B}{\tau_{\text{eff}}^B}}{\frac{dI_C}{dt} + \frac{I_C}{\tau_{\text{eff}}^C}} \cdot \frac{\tau_{\text{eff}}^B}{\tau_{\text{eff}}^C} = \frac{k_B \left(\frac{E}{N}(t) \right) T_B \tau_{00}^C \lambda_C \tau_{\text{eff}}^B}{k_C \left(\frac{E}{N}(t) \right) T_C \tau_{00}^B \lambda_B \tau_{\text{eff}}^C} = R \left(\frac{E}{N}(t) \right)$$

steady state $\frac{dI}{dt} \ll \frac{I}{\tau_{\text{eff}}}$:

$$\frac{I_B}{I_C} = R \left(\frac{E}{N}(t) \right)$$

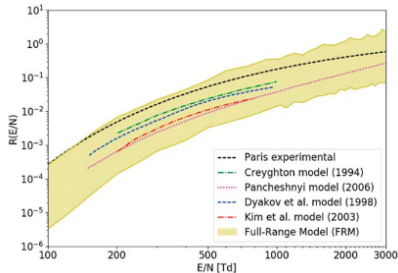
Poměr intenzit spektrálních čar

Jak získat kalibrační funkci $R\left(\frac{E}{N}(t)\right)$?

- experimentálně: měření v Townsendově výboji o různých napětích
[P Paris *et al*, J. Phys. D: Appl. Phys. 38 3894–9 (2005)]
- simulací, pomocí kolizně-radiačního modelu
[P Bilek *et al*, Plasma Sources Science and Technology, 28(11):115011, 2019]
- "kompromis" mezi dosud získanými závislostmi:

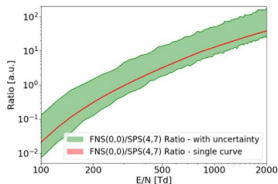
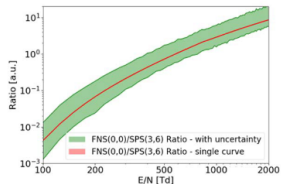
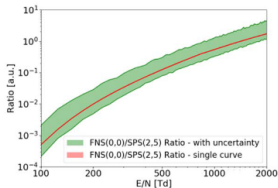
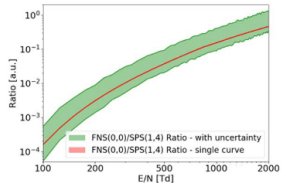
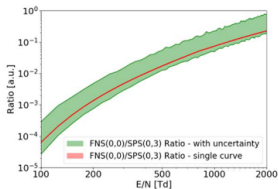
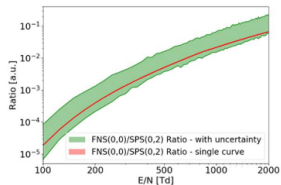
$$R\left(\frac{E}{N}(t)\right) = 0.5 \cdot 46 \cdot 0.065 \cdot e^{-89\left(\frac{E}{N}\right)^{-0.5} - 402\left(\frac{E}{N}\right)^{-1.5}}, \quad E[\text{Td}]$$

[G M Goldberg *et al*, Plasma Sources Sci. Technol. 31 (2022) 073001]



[A Obrusník *et al*, Plasma Sources Science and Technology 27 (2018) 085013]

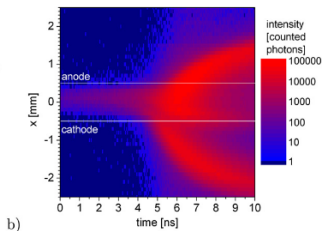
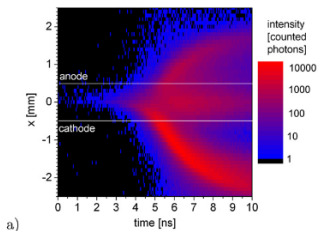
Poměr intenzit spektrálních čar



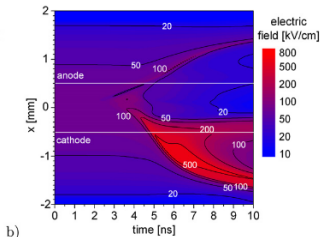
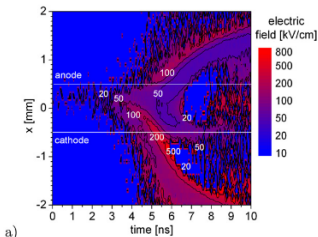
[4] P Bílek *et al*, Plasma Sources Science and Technology, 28(11):115011, 2019.

Poměr intenzit spektrálních čar

Ukázka výsledků: "Hoderovy rybičky" (streamer v komplanárním DBD ve vzduchu) [J. Jánský *et al*, Plasma Sources Sci. Technol. 30 (2021) 105008]



a) FNS
b) SPS



a) měřené E/N
b) simulace

Poměr intenzit spektrálních čar

Omezení a nevýhody:

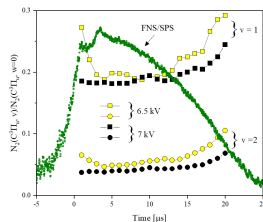
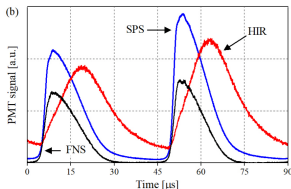
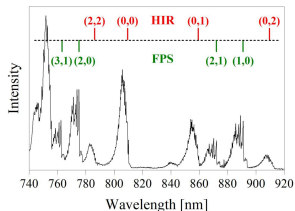
- velká nejistota v kinetických konstantách → nejistota výsledku
- nutnost přesné shody podmínek pro měření a model (např. $T_{\text{rot}} \sim 300 \text{ K}$ pro [Bílek 2019])
- SPS and FNS musí být populované výlučně pomocí electron-impact excitation
 - ▶ konkurenční procesy:
 - ★ the $\text{N}_2(\text{A})$ metastable pooling:
$$2\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma_u^+) \longrightarrow \text{N}_2(\text{C}^3\Pi_u) + \text{N}_2(\text{X}^1\Sigma_g^+, w)$$
 - ★ fotodisociace iontu N_4^+ : $\text{N}_4^+ + h\nu \longrightarrow \text{N}_2^+(\text{B}^2\Sigma_u^+)_{v=0} + \text{N}_2(\text{X}^1\Sigma_g^+)_{v=0}$

Jak to zkontrolovat:

- přítomnost Herman infrared bands (HIR) a NO- γ bands varuje, že se ve výboji vyskytují metastability $\text{N}_2(\text{A}^3\Sigma)$
- vibrační distribuce $\text{N}_2(\text{C}^3\Pi_u, v)$ a $\text{N}_2^+(\text{B}^2\Sigma_u^+, v)$ by měla odpovídat kinetickému modelu [P Bílek *et al*, Plasma Sources Science and Technology, 31 084004, 2022]

Poměr intenzit spektrálních čar

- přítomnost Herman infrared bands (HIR) a NO- γ bands varuje, že se ve výboji vyskytují metastability $N_2(A^3\Sigma)$
- vibrační distribuce $N_2(C^3\Pi_u, v)$ a $N_2^+(B^2\Sigma_u^+, v)$ by měla odpovídat kinetickému modelu [P Bilek *et al*, Plasma Sources Science and Technology, 31 084004, 2022]



Poměry jiných čar v jiných plynech:

- argon: Ar(763.5 nm), Ar+(488.0 nm) [N A Dyatko *et al*, 2021 Plasma Sources Sci. Technol. 30 055015]
- helium: poměr intenzit povolených a zakázaných čar – Hel 402.6 nm, Hel 447.1 nm, Hel 492.1 [B.M. Obradovic *et al*, Physics Letters A 372 (2008) 137–140]

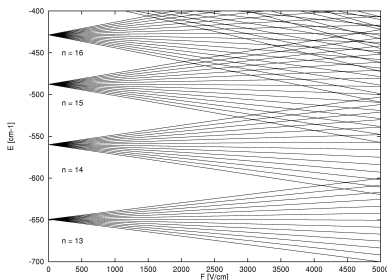
Part IV

Stark polarization emission spectroscopy

Stark polarization emission spectroscopy

Starkův efekt:

- posun a štěpení spektrálních čar atomů či molekul vlivem silného vnějšího elektrického pole
- "elektrická obdoba" Zeemanova jevu
- stanovení el. pole, ale také koncentrace a teploty elektronů



Energiový diagram atomu vodíku v závislosti na elektrickém poli
[<https://en.wikipedia.org>]

Stark polarization emission spectroscopy

Starkův efekt:

- energiová hladina s hl. kv. č. n se vlivem vnějšího el. pole E rozštěpí na $(2n - 1)$ podhladin

- posun energií:

$$\Delta W(n, n_1, n_2) = \frac{3a_0 e}{2Z} n(n_1 - n_2) E$$

Přechody mezi hladinami se rozdělí na množství komponent dvou typů:

- $\Delta m = 0$: π -komponenty – lineárně polarizované $\parallel E$
- $\Delta m = \pm 1$: σ -komponenty – kruhově polarizované v rovině $\perp E$

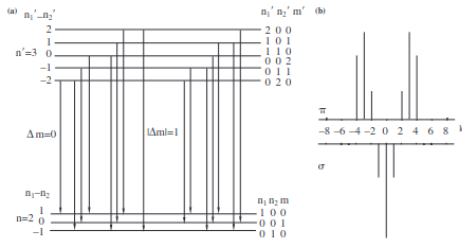


Figure 1. Splitting in an external electric field of the: (a) energy levels $n' = 3$ and $n = 2$, (b) π and σ Stark components, where $k = n'(n_1' - n_2') - n(n_1 - n_2)$.

[T Wujec et al 2003, J. Phys. D: Appl. Phys. 36 868]

Stark polarization emission spectroscopy

Obvykle pozorované čáry:

- H_{α} (656 nm), H_{β} (486.13 nm)
- He I $2p\ ^1P^0-4d\ ^1D^0$ (492.19 nm)

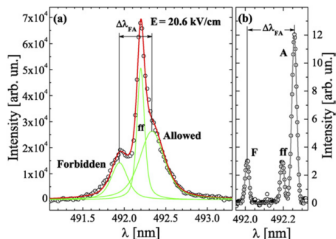


Figure 6. Typical π -polarized spectra of He I at 492.19 nm line recorded from (a) a helium jet in air at atmospheric pressure [88] and (b) an abnormal DC discharge at low pressure [85]. F is the forbidden line, A is the allowed line, ff is the field-free component. Reprinted from [88], with the permission of AIP Publishing.

[G B Sretenović et al, Appl. Phys. Lett. 99, 161502 (2011)]

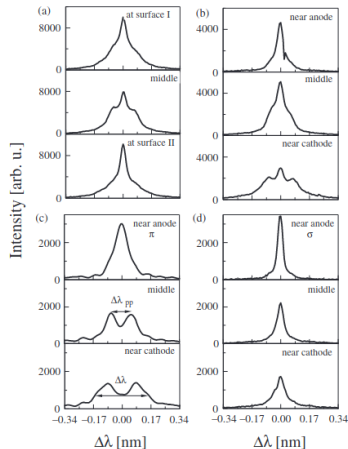


Figure 3. Balmer H_{α} line profiles at several distances from the surface: (a) without chopper and polarizer; (b) with the chopper synchronically coupled with AC sinusoidal voltage supply; (c) with the chopper and the polarizer transmitting π components; (d) with chopper and with polarizer transmitting σ components.

H_2 , 2 kPa [T Wujec et al 2003, J. Phys. D: Appl. Phys. 36 868]

Stark polarization emission spectroscopy

Ukázka výsledků:

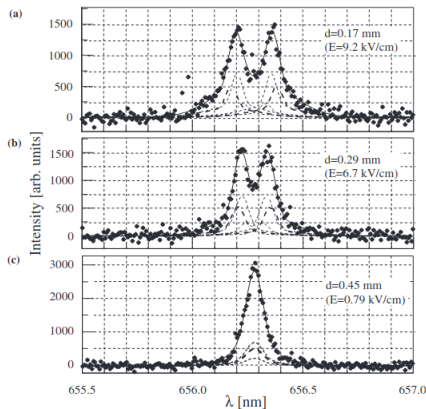


Figure 7. Measured $H_\alpha(\pi)$ Stark profiles and their fits (—) at the distances: (a) near the cathode $d = 0.17$ mm ($E = 9.2$ kV cm⁻¹); (b) in the centre of the discharge $d = 0.29$ mm ($E = 6.7$ kV cm⁻¹); (c) near the anode $d = 0.45$ mm ($E = 0.79$ kV cm⁻¹). The electric field strength intensity was determined from equation (4.3).

H_2 , 2 kPa [T Wujec et al 2003, J. Phys. D: Appl. Phys. 36 868]

Stark polarization emission spectroscopy

- jednoduchá instrumentace (spektrometr)
- neinvazivní metoda
- stanovení el. pole, ale také koncentrace a teploty elektronů
- nízká senzitivita (kV/cm), možná zlepšit sledováním vyšších (Rydbergových) stavů – excitace laserem
- časové a prostorové rozlišení je obvykle horší než u laserových metod (ale pomůže streak kamera nebo TCSPC)
- jen pro nízké tlaky (<100 Pa?), kde je viditelný Starkův efekt (pro 1 atm, $H\alpha$, Stark přemůže tlakové rozšíření čáry až při ~ 10 kV/mm)

Part V

Laser induced fluorescence dip spectroscopy

Laser induced fluorescence dip spectroscopy

- první laser (UV, stabilní λ): dvoufotonová excitace, pozorujeme fluorescenci z horního stavu
- druhý laser (IR, scan λ): excitace vyšších Rydbergových stavů, pozorujeme "absorpční" peaky v detekované fluorescenci
- el. pole způsobuje Starkovo rozšíření/posun peaků

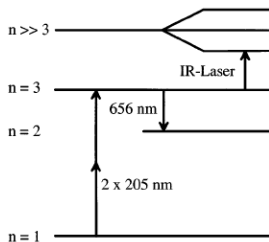
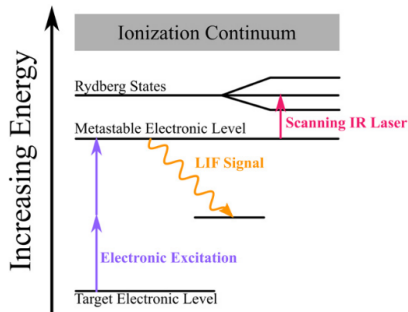


FIG. 1. Scheme for fluorescence-dip spectroscopy in atomic hydrogen.

[U. Czarnetzki, D. Luggenhölscher, and H. F. Döbele Phys. Rev. Lett. 81, 4592]

Laser induced fluorescence dip spectroscopy

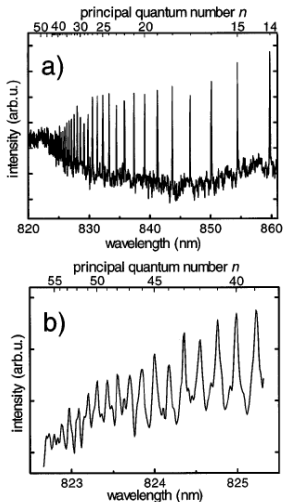


FIG. 3. Scan of the IR laser wavelength over Rydberg state resonances at zero field.

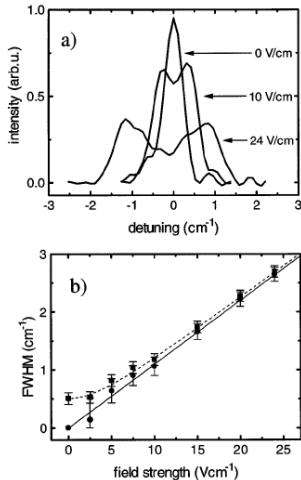


FIG. 4. (a) Measured spectra with $n = 30$ at various field strengths. (b) Measured FWHM (squares) and reduced FWHM (circles) after deconvolution. The solid line is the theoretical curve.

[U. Czarnetzki, D. Luggenhölscher, and H. F. Döbele Phys. Rev. Lett. 81, 4592]

Laser induced fluorescence dip spectroscopy

- obvyklé částice: H, Ar, Kr, Xe
- skvělá citlivost ($\sim 1 \text{ V cm}^{-1}$)
- 2D rozlišení (parametry laseru a kamery)
- časové rozlišení: $\sim \text{ns}$, limitované skenováním vlnové délky
- vhodné pro "řídké" výboje – DC glow, RF – kde by CARS či EFISH neměl dostatek signálu
- jen pro nízké tlaky ($< 100 \text{ Pa}$?), kde je viditelný Starkův efekt

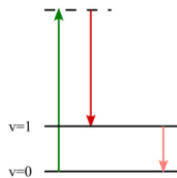
Part VI

El. field CARS

- CARS = coherent anti-Stokes Raman scattering
- E-field CARS: dva kolineární laserové svazky excitují molekulu do vyššího vibračního stavu; IR emise $\sim$ intenzita elektrického pole

- 1 Co je Ramanův rozptyl?
- 2 Co je CARS?
- 3 Co je E-field CARS?

E-Field CARS



Phase Matching Diagram

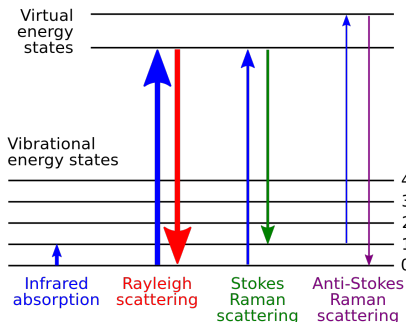


[Goldberg et al, Plasma Sources Sci. Technol. 31 (2022) 073001]

El. field CARS: 1) Ramanův rozptyl

Ramanův rozptyl:

- inelastický rozptyl fotonů při srážce s částicí (molekulou)
- typicky zobrazuje vibrační spektrum molekuly; komplementární k IR spektroskopii
- spontánní Ramanovské záření je velmi slabé (→ je obtížné odfiltrovat jej od Rayleighova rozptylu)



[Wikipedia]

El. field CARS: 2) CARS

CARS = coherent anti-Stokes Raman scattering

- nelineární optika, four-wave mixing
- koherentní, pročez silnější než Raman
- pump+Stokes fotony společně excitují molekulu do vyššího vibr. stavu
- třetí foton (probe) způsobí klasického anti-Stokese

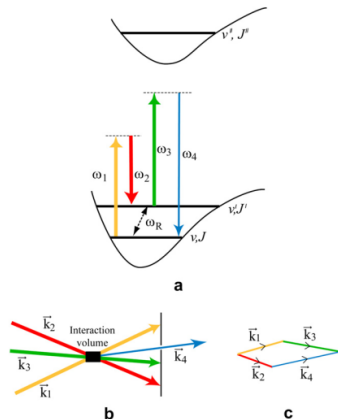


Fig. 1. (a) Schematic of molecular states and the CARS signal-generation process. The Raman transitions between ro-vibrational states $|v, J\rangle$ and $|v', J'\rangle$ are probed with CARS spectroscopy. (b) BOX-CARS configuration where the pump, Stokes and probe beam with wave vectors $\vec{k}_1$, $\vec{k}_2$ and $\vec{k}_3$ overlap at the interaction volume to generate CARS signal along $\vec{k}_4$. (c) Vectorial representation of the phase-matching condition Eq. (11).

[S. Roy et al., Progress in Energy and Combustion Science 36 (2010) 280–306]

El. field CARS: 2) CARS

Výlet do nelineární optiky:

- nelineární polarizace:

$$P_i = \epsilon_0 (\chi_{ij}^{(1)} E_j + \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots)$$

- ▶ P_i – indukovaná polarizace materiálu
- ▶ E_i – intenzita elektrického pole
- ▶ $\chi^{(n)}$ – susceptibilita n -tého řádu (tenzor)

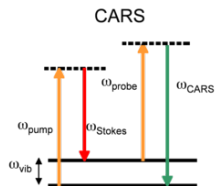
- vlnová rovnice:

$$\nabla^2 E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}$$

- v řešení pro CARS se objeví nová komponenta:

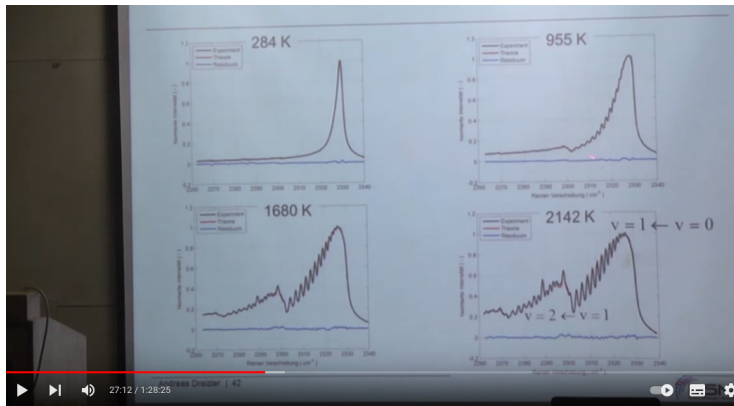
$$E_{(\omega_{\text{CARS}})} \propto E_{(\omega_{\text{Pump}})} E_{(\omega_{\text{Stokes}})} E_{(\omega_{\text{Probe}})} |\chi_{\text{CARS}}| \frac{\exp(i\Delta k L) - 1}{\Delta k}$$

- ▶ $\omega_{\text{CARS}} = \omega_{\text{Pump}} + \omega_{\text{Probe}} - \omega_{\text{Stokes}}$ (typicky $\omega_{\text{Pump}} = \omega_{\text{Probe}}$)
- ▶ $\Delta k = 2k_{\text{Pump}} - k_{\text{Stokes}} - k_{\text{CARS}}$ – wave vector mismatch
- ▶ L – interakční délka



El. field CARS: 2) CARS

Využití CARS: měření teploty, měření koncentrace konkrétních molekul



NCCRD@IITM-Coherent anti-stokes Raman Spectroscopy by Prof Andreas Dreizler

El. field CARS

- "Probe" beam nahradím el. polem ("foton o nulové frekvenci")
 - ▶ dva laserové svazky o energiích lišících se o energii vibračního Ramanovského přechodu molekuly (H_2 , N_2)
 - ▶ vnější elektrické pole umožní (jinak zakázaný) IR přechod, vzniklý IR svazek je koherentní s lasery a závisí kvadraticky na el. poli

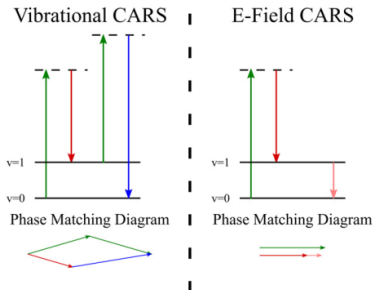


Figure 9. Vibrational and E-field CARS energy and phase matching diagrams. In both experiments, pump and Stokes photons interact with ground state molecules. In E-field CARS, the induced oscillation mixes with the external electric field allowing for the molecules to emit coherent radiation at their $Q(1)$ frequency.

[Goldberg et al, Plasma Sources Sci. Technol. 31 (2022) 073001]

$$I_{\text{IR}} \propto |\chi_{\text{IR}}^{(3)}|^2 L^2 \cdot I_{\text{Pump}} I_{\text{Stokes}} |E_{\text{Ext}}|^2 \cdot \text{sinc}^2 \left(\frac{\Delta k L}{2} \right)$$

$$\frac{I_{\text{IR}}}{I_{\text{CARS}}} \propto \frac{|\chi_{\text{IR}}^{(3)}|^2}{|\chi_{\text{CARS}}^{(3)}|^2} \frac{|E_{\text{Ext}}|^2}{I_{\text{Pump}}}$$

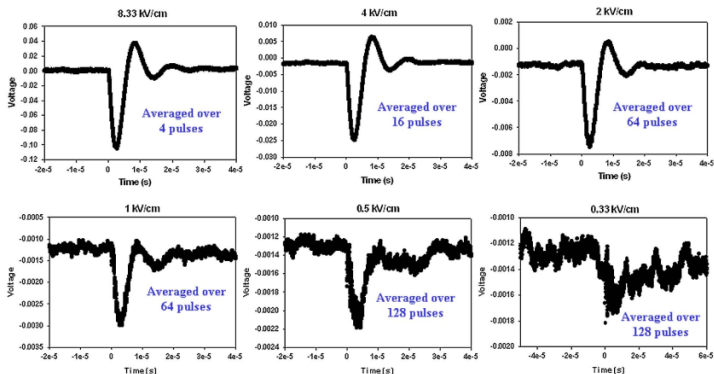


Fig. 3. (Color online) Sample oscilloscope traces of IR CARS pulses at various electric-field strengths.

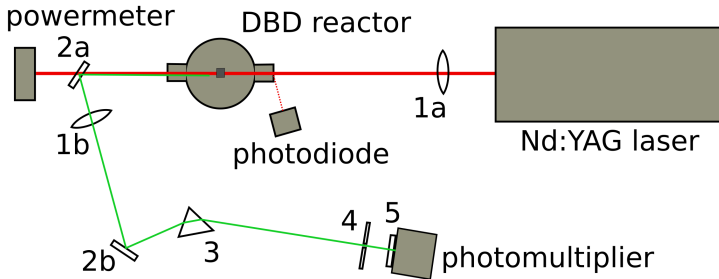
[Lempert W R, Kearney S P and Barnat E V 2011 Appl. Opt. 50, 5688–94]

Part VII

Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

Elektrické pole v plynu $\rightarrow$ polarizace plynu $\rightarrow$ opticky anisotropní $\rightarrow$ generace druhé harmonické frekvence:



Signál je velmi slabý, koherentní, line-integrovaný

Výlet do nelineární optiky

- nelineární polarizace:

$$P_i = \epsilon_0 (\chi_{ij}^{(1)} E_j + \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots)$$

- ▶ P_i – indukovaná polarizace materiálu
- ▶ E_j – intenzita elektrického pole
- ▶ $\chi^{(n)}$ – susceptibilita n -tého řádu (tenzor)

- vlnová rovnice:
$$\nabla^2 E - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 P}{\partial t^2}$$

- generace druhé harmonické:

$$E_j = E_k = E_0 \cos(\omega t)$$

$$\begin{aligned} P_i^{(2)} &= \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k = \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)} E_0^2 \cos^2(\omega t) = \\ &= \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)} E_0^2 + \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)} E_0^2 \cos(2\omega t) \end{aligned}$$

- $\chi_{ijk}^{(2)} = 0$ v izotropním médiu (např. plyn)

Výlet do nelineární optiky - EFISH

EFISH:

- a) elektrické pole $\rightarrow$ prostředí už není izotropní $\rightarrow \chi_{ijk}^{(2)} \neq 0$
- b) elektrické pole beru jako "třetí E s nulovou frekvencí":

$$E_j = E_k = E^{(\omega)} \cos(\omega t), \quad E_l = E_{\text{ext}}$$

- indukovaná polarizace na druhé harmonické frekvenci:

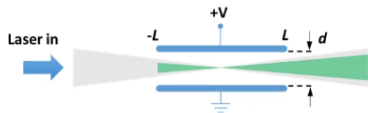
$$P_i^{(2\omega)} \sim \frac{3}{2} \chi_{ijkl}^{(3)}(-2\omega, 0, \omega, \omega) E_{\text{ext}} (E^{(\omega)})^2$$

- intenzita signálu je úměrná kvadrátu polarizace:

$$I^{(2\omega)} \sim \left[\chi^{(3)} E_{\text{ext}} I^{(\omega)} \right]^2$$

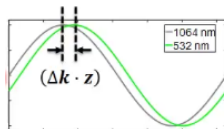
Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

EFISH v homogenním el. poli $E = \frac{U}{d}$:



$$I^{(2\omega)} \propto \left[\alpha^{(3)} \cdot N \cdot I^{(\omega)} \cdot E_{\text{ext}} \cdot \frac{\sin(\Delta k L)}{\Delta k} \right]^2$$

- ▶ $I^{(2\omega)}$ – intenzita signálu EFISH
- ▶ $\alpha^{(3)}$ – nelineární hyperpolarizabilita třetího stupně (vlastnost plynu)
- ▶ N – koncentrace plynu
- ▶ $I^{(\omega)}$ – intenzita primárního laserového svazku
- ▶ E_{ext} – externí el. pole (tohle měříme)
- ▶ $\Delta k = (2k_{\omega} - k_{2\omega})$ – rozdíl vlnových vektorů
- ▶ L – polovina délky elektrod (ne délka ohniska!)



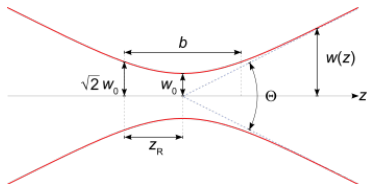
Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

Nehomogenní pole:

$$I^{(2\omega)} \propto \left[\alpha^{(3)} \cdot N \cdot I^{(\omega)} \right]^2 \cdot E_0^2 \cdot z_R \cdot \left| \int_{-\infty}^{\infty} E'_{\text{ext}}(z') \cdot \frac{\exp(i \cdot \Delta k \cdot z_R \cdot z')}{[1 + i \cdot z']} dz' \right|^2$$

$$E'_{\text{ext}}(z') = \frac{E_{\text{ext}}(z)}{E_0}$$

$$z' = \frac{z}{z_R}$$



Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

- Pokud je složení plynu, tvar laseru i prostorový tvar $E'_{\text{ext}}(z')$ neměnné během experimentu i kalibrace:

$$I^{(2\omega)} = A \cdot (I^{(\omega)})^2 \cdot E_0^2$$

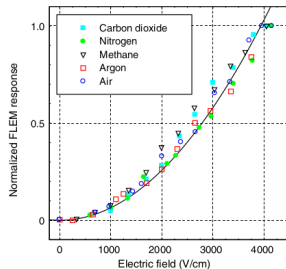
- Kalibrace: konstantu A zjistím měřením závislosti ve známém el. poli (... pod zápalným napětím)
- El. pole pak stanovíme jako

$$E_0 = \frac{\sqrt{I^{(2\omega)}}}{\sqrt{A \cdot I^{(\omega)}}}$$

Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

Výhody:

- vysoké časové i prostorové rozlišení (parametry laseru – délka pulzu, tvar ohniska)
- funguje ve většině plynů
- nerezonantní, libovolná volba vlnové délky
- citlivost ~ 1 kV/cm
- jen jeden laserový paprsek – jednoduché ladění experimentu
- polarizace signálu $\parallel E_{\text{ext}}$



[Dogariu et al, Phys. Rev. Applied 7, 024024 (2017)]

Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

Nevýhody, limitace:

- line-integrovaný signál $\rightarrow$ nesnadné určení prostorové závislosti pole podél z , signál může vznikat i překvapivě daleko od ohniska
- neintuitivní závislost na L – obtížná kalibrace, pokud tvar pole neznáme
- závislost na typu plynu – např. $\alpha_{\text{vzduch}}^{(3)} \approx 20 \cdot \alpha_{\text{He}}^{(3)}$
- pro kalibraci se často musí extrapolovat
- signál závisí na frekvenci E_{ext}

Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

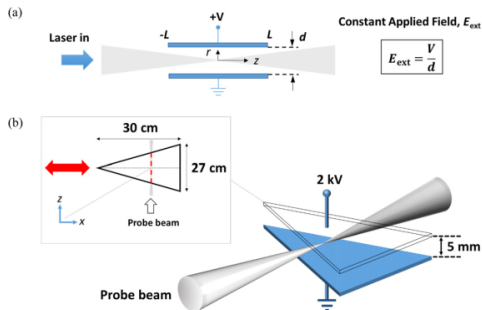


Figure 1. (a) Schematic of a canonical geometry typically used in E-FISH diagnosis. The top electrode is held at a potential of V with respect to the grounded bottom electrode. (While this illustration presents a focused probe beam, it should be understood that in the case of a plane-wave, the intensity of the probe beam is constant with respect to space and time.) (b) Corresponding schematic of the triangular-shaped, parallel-plate electrodes used for the experiments. By translating the electrodes (red arrow in figure inset), the effective electrode length (vertical red dashed line) seen by the E-FISH probe beam is varied.

[T L Chng et al Plasma Sources Sci. Technol. 29 (2020) 125002]

Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

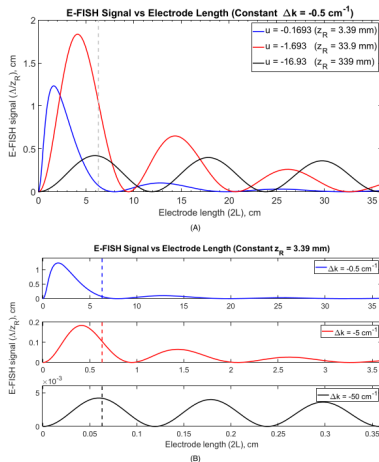


Figure 3. E-FISH signal in the modified plane-wave approximation. (a) Effect of electrode length, $2L$, on Λ (based on equation (4)) for three different z_R and $\Delta k = -0.5 \text{ cm}^{-1}$ (note the logarithmic scale on the vertical axis). (b) Spatial (z) evolution of the E-FISH signal (given by equation (5)) in a constant external field, for $L = 6.4 \text{ cm}$, and $z_R = 3.39 \text{ mm}$. Gray and blue vertical dashed lines correspond to $z = \pm z_R$ and $\pm 5z_R$ respectively.

[T L Chng et al Plasma Sources Sci. Technol. 29 (2020) 125002]

Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

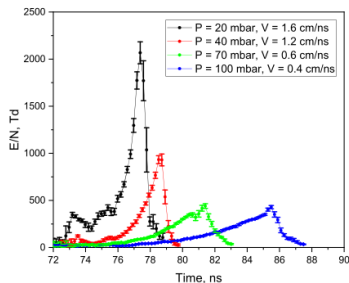


Figure 7. Reduced electric field measured in the front of a fast ionization wave discharge in nitrogen at $P = 20$ –100 mbar, plotted on the same scale.

[T L Chng et al 2019 Plasma Sources Sci. Technol. 28 045004]

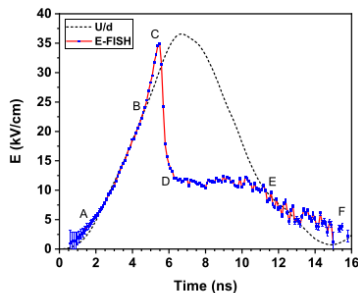
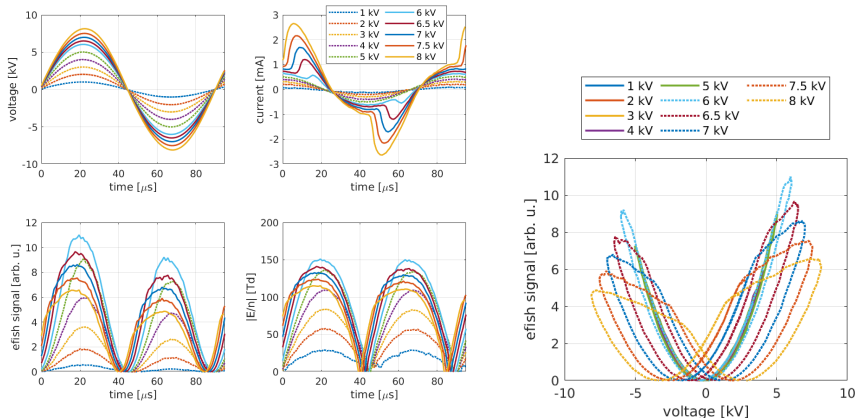


Figure 4. Longitudinal electric field temporal profile at $500 \mu\text{m}$ from the cathode obtained using the E-FISH technique (line+symbol line) compared with the electric field profile calculated as a voltage over gap length ratio (dashed line). He:N₂ = 5:1 mixture at 900 mbar, negative polarity discharge. The letters denote the boundaries of the regions with different field behavior; see text.

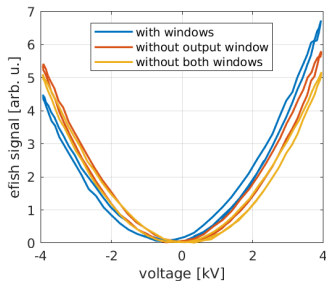
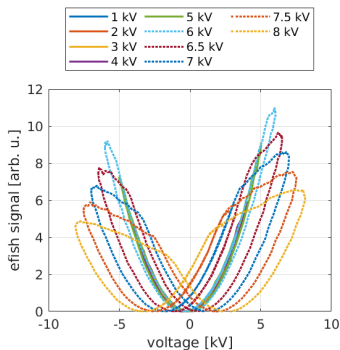
[N D Lepikhin et al 2021 J. Phys. D: Appl. Phys. 54 055201]

Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

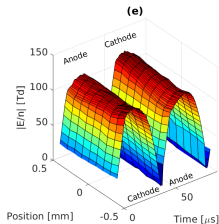
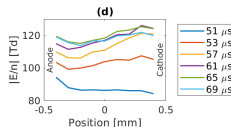
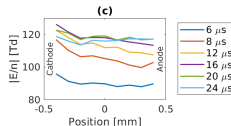
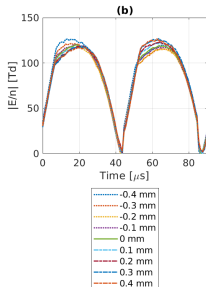
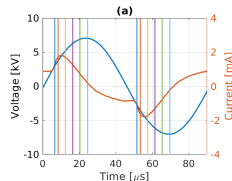


[M Mrkvičková et al 2023 Plasma Sources Sci. Technol. 32 065009]

Electric field induced second harmonic generation (EFISH)



Electric field induced second harmonic generation (EFISH)



Part VIII

Shrnutí

- elektrická měření:
 - ▶ ekvivalentní obvod
 - ▶ kapacitní sondy
 - ▶ Pockels-effect-sensitive crystals
- optická emisní spektroskopie:
 - ▶ Townsendův koeficient
 - ▶ podíl intenzit spektrálních čar (např. FNS/SPS)
 - ▶ Stark broadening, Stark polarization emission spectroscopy
 - ▶ bremsstrahlung (Z. Navrátil)
- laserové metody:
 - ▶ CARS (Coherent anti-Stokes Raman scattering)
 - ▶ laser-induced fluorescence dip spectroscopy
 - ▶ EFISH

