

# Měření elektrického pole v plazmatu

PřF:F9180 Diagnostické metody 2

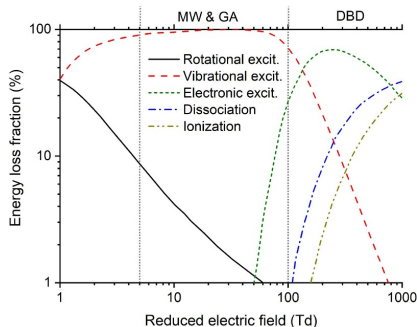
Martina Mrkvičková

jaro 2023

# Motivace

Elektrické pole určuje, jaké plazmochemické procesy v plazmatu probíhají.

Rozhoduje, jakými způsoby se využije energie dodaná do plazmatu.

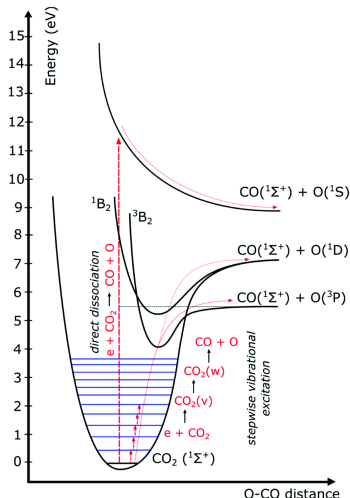


[A Bogaerts *et al*, ACS Energy Lett. 3 1013–27, 2018]: Fraction of electron energy transferred to different channels of excitation, as well as ionization and dissociation of  $N_2$ , as a function of the reduced electric field.

# Motivace

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

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

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

- ▶  $\lambda$  [m] – střední volná dráha mezi srážkami,  $\lambda = \frac{1}{\sigma N}$
- ▶  $\sigma$  [ $m^2$ ] – 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

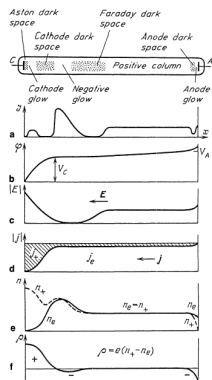
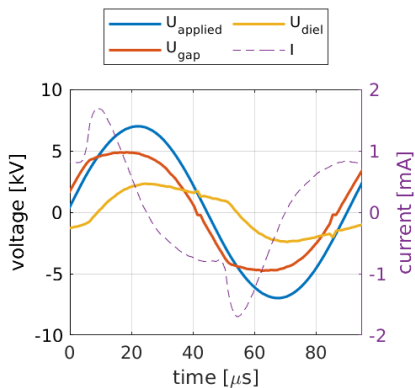


Fig. 8.2. Glow discharge in a tube and the distribution of: (a) glow intensity, (b) potential  $\phi$ , (c) longitudinal field  $E$ , (d) electronic and ionic current densities  $j_e$  and  $j_i$ , (e) charge densities  $n_e$  and  $n_+$ , and (f) space charge  $\rho = e(n_+ - n_e)$

- 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:
  - ▶ 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]

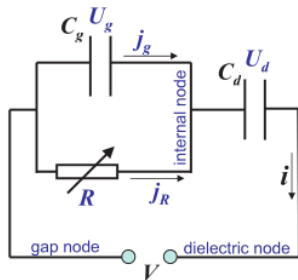
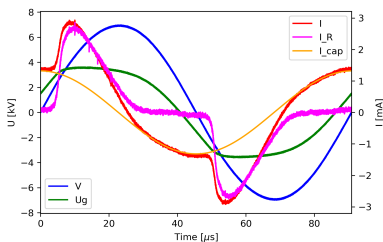


FIG. 3. Simplest equivalent circuit of a DBD.



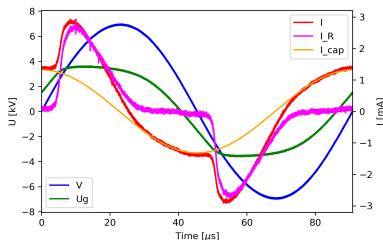
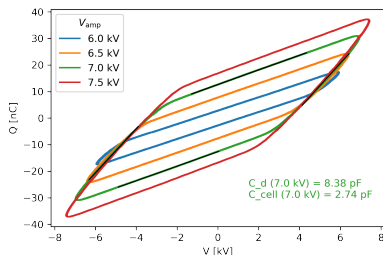


# Ekvivalentní obvod (Equivalent circuit)

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

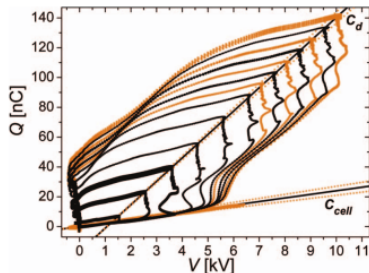
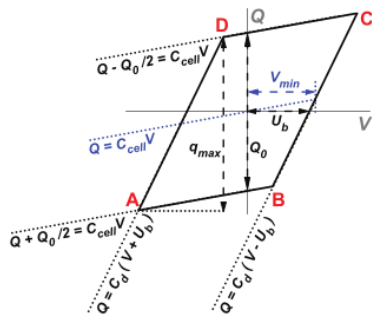
[AV Pipa *et al*, Review of Scientific Instruments, 83(11):115112, 2012]



# 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  $V_{max}$ :  
$$Q_{max} = C_d(V_{max} - U_{res})$$



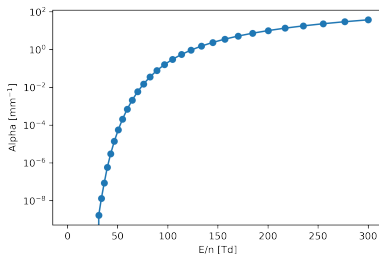
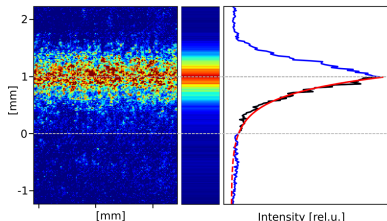
## Part II

# Townsendův koeficient

# Townsendův koeficient

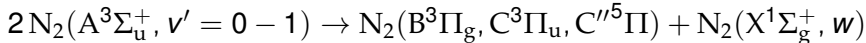
Townsendova lavinová teorie:

- $n(x) = n_0 e^{\alpha(E/N)x}$
- intenzita záření  $\sim$  koncentrace elektronů
- závislost  $\alpha(E/N)$  lze najít např. v databázi Biagi ([www.lxcat.net](http://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

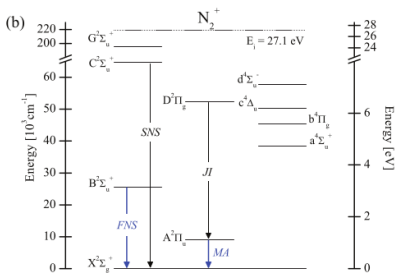
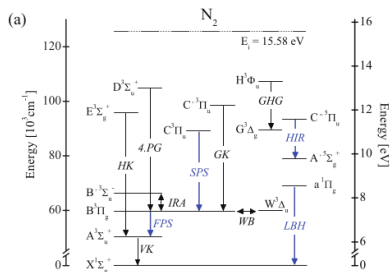
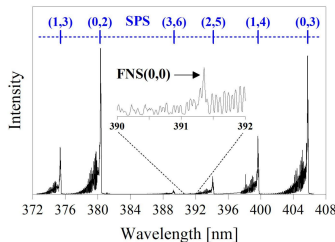
# Poměr intenzit spektrálních čar

# Poměr intenzit spektrálních čar

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

Př.: poměr záření FNS a SPS dusíku

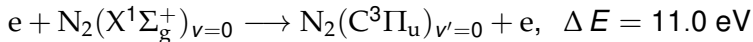
- first negative system (FNS)  
 $N_2^+(B^2\Sigma) \rightarrow N_2^+(X^2\Sigma) + h\nu_C$  (337 nm)
- second positive system (SPS)  
 $N_2(C^3\Pi) \rightarrow N_2(B^3\Pi) + h\nu_B$  (392 nm)



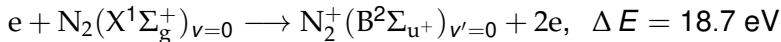
# Poměr intenzit spektrálních čar

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

- horní stav SPS:



- horní stav FNS:



Rychlostní rovnice (balance equations):

$$\frac{dn_C(x, t)}{dt} = k_C \left( \frac{E}{N} \right) n_{\text{N}_2} n_e - \frac{n_C(x, t)}{\tau_{\text{eff}}^C}$$

$$\frac{dn_B(x, t)}{dt} = k_B \left( \frac{E}{N} \right) n_{\text{N}_2} n_e - \frac{n_B(x, t)}{\tau_{\text{eff}}^B}$$

- ▶  $n_C$  – koncentrace molekul ve stavu  $\text{N}_2(\text{C})$
- ▶  $k$  – rychlostní koeficienty pro elektron-impakt excitaci (ionizaci)
- ▶  $\tau_{\text{eff}}$  – 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  $\frac{dI}{dt} \ll \frac{I}{\tau_{\text{eff}}}$  :

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

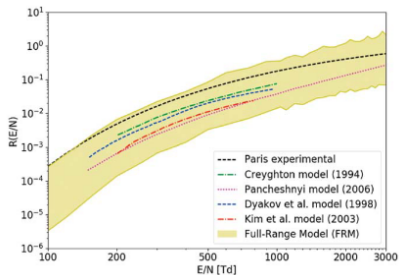
# Poměr intenzit spektrálních čar

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:

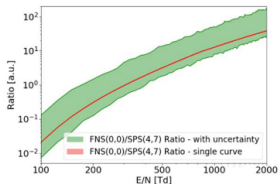
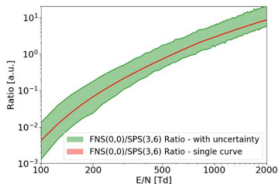
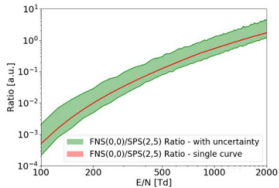
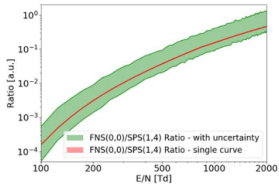
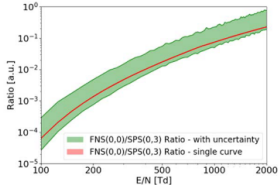
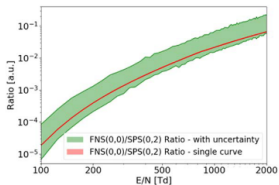
$$R\left(\frac{E}{N}(t)\right) = 0.5 \cdot 46 \cdot 0.065 \cdot e^{-89\left(\frac{E}{N}\right)^{-0.5} - 402\left(\frac{E}{N}\right)^{-1.5}}, \quad E[\text{Td}]$$

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



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

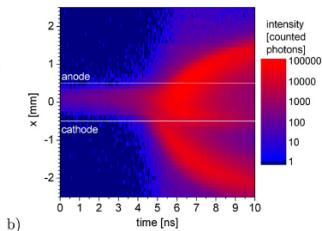
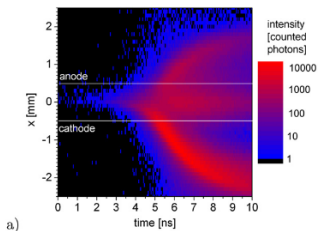
# Poměr intenzit spektrálních čar



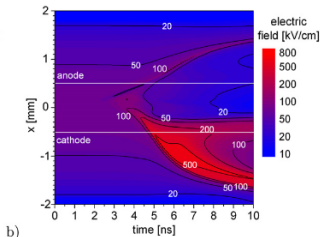
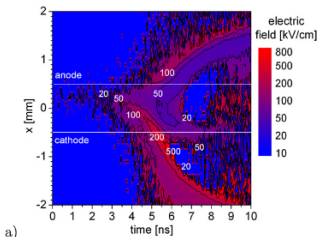
[4] P Bílek *et al*, Plasma Sources Science and Technology, 28(11):115011, 2019.

# 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:

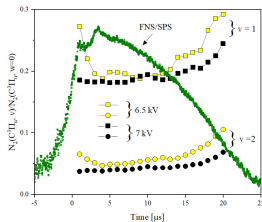
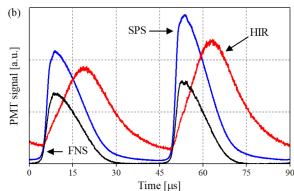
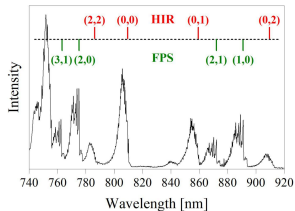
- velká nejistota v kinetických konstantách → nejistota výsledku
- nutnost přesné shody podmínek pro měření a model (např.  $T_{\text{rot}} \sim 300 \text{ K}$  pro [Bílek 2019])
- SPS and FNS musí být populované výlučně pomocí electron-impact excitation
  - ▶ konkurenční procesy:
    - ★ the  $\text{N}_2(\text{A})$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

## Jak to zkontrolovat:

- přítomnost Herman infrared bands (HIR) a NO- $\gamma$  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 Bilek *et al*, Plasma Sources Science and Technology, 31 084004, 2022]

# Poměr intenzit spektrálních čar

- přítomnost Herman infrared bands (HIR) a NO- $\gamma$  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

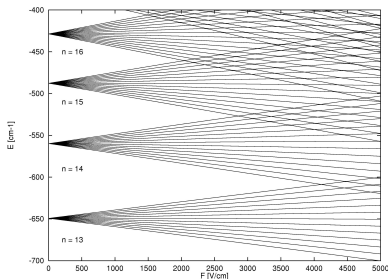
# Stark polarization emission spectroscopy



# 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>]

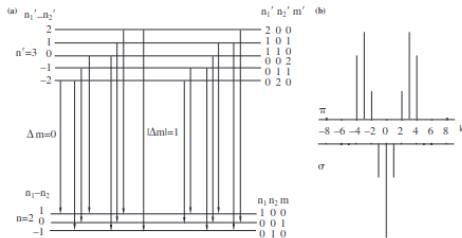
# Stark polarization emission spectroscopy

Starkův efekt:

- energetická 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:

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



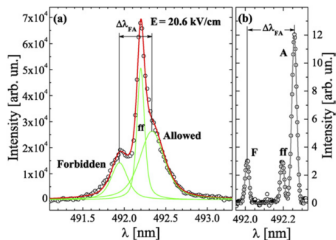
**Figure 1.** Splitting in an external electric field of the: (a) energy levels  $n' = 3$  and  $n = 2$ , (b)  $\pi$  and  $\sigma$  Stark components, where  $k = n'(n'_1 - n'_2) - n(n_1 - n_2)$ .

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

# Stark polarization emission spectroscopy

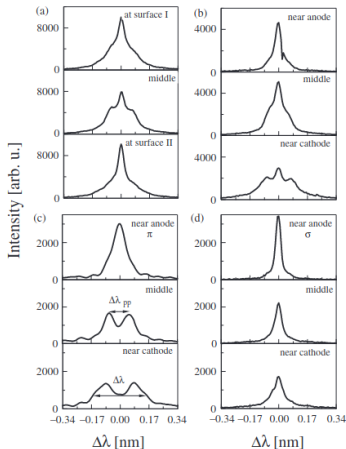
Obvykle pozorované čáry:

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



**Figure 6.** Typical  $\pi$ -polarized spectra of He I at 492.19 nm line recorded from (a) a helium plasma 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)]

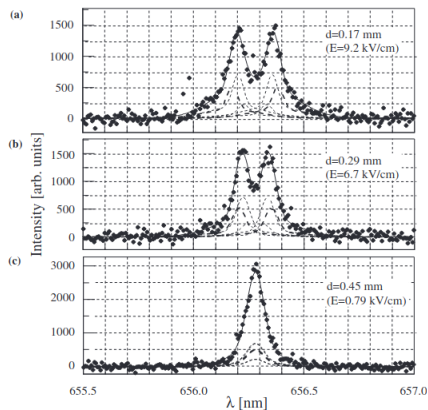


**Figure 3.** Balmer  $H_{\alpha}$  line profiles at several distances from the surface: (a) without chopper and polarizer; (b) with the chopper synchronously coupled with AC sinusoidal voltage supply; (c) with the chopper and the polarizer transmitting  $\pi$  components; (d) with chopper and with polarizer transmitting  $\sigma$  components.

[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  $\text{cm}^{-1}$ ); (b) in the centre of the discharge  $d = 0.29$  mm ( $E = 6.7$  kV  $\text{cm}^{-1}$ ); (c) near the anode  $d = 0.45$  mm ( $E = 0.79$  kV  $\text{cm}^{-1}$ ). The electric field strength intensity was determined from equation (4.3).

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

- jednoduchá instrumentace (spektrometr)
- neinvazivní metoda
- stanovení el. pole, ale také koncentrace a teploty elektronů
- nízká senzitivita (kV/cm)
- 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

# Part V

## Laser induced fluorescence dip spectroscopy

# Laser induced fluorescence dip spectroscopy

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

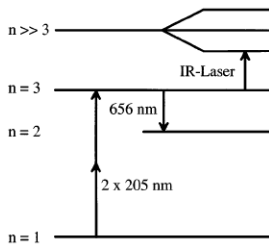
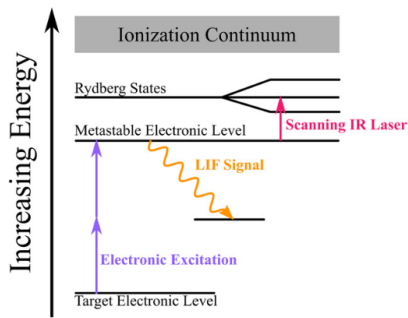


FIG. 1. Scheme for fluorescence-dip spectroscopy in atomic hydrogen.

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

# Laser induced fluorescence dip spectroscopy

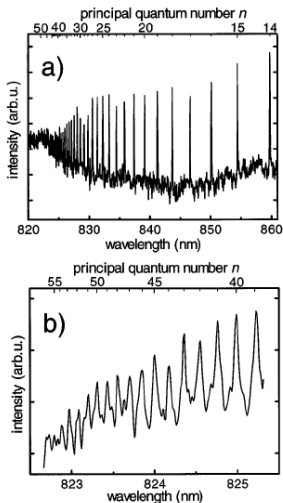


FIG. 3. Scan of the IR laser wavelength over Rydberg state resonances at zero field.

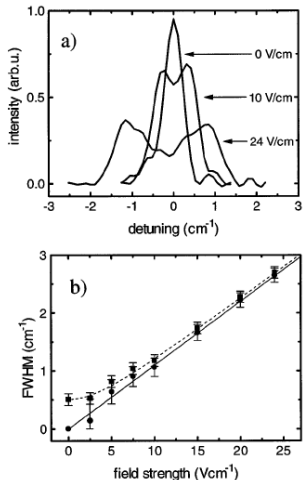


FIG. 4. (a) Measured spectra with  $n = 30$  at various field strengths. (b) Measured FWHM (squares) and reduced FWHM (circles) after deconvolution. The solid line is the theoretical curve.

[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

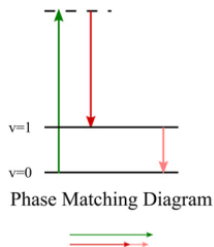
# Part VI

## 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

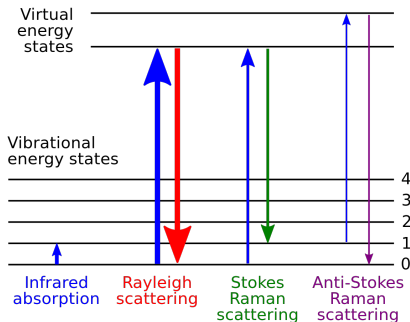


[Goldberg et al, Plasma Sources Sci. Technol. 31 (2022) 073001]

# 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

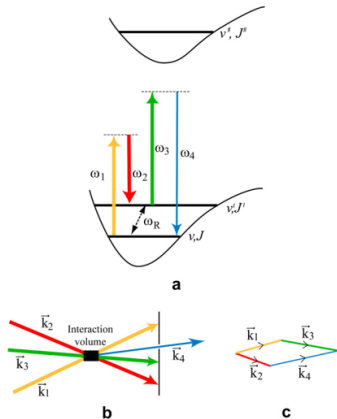


Fig. 1. (a) Schematic of molecular states and the CARS signal-generation process. The Raman transitions between  $v$ -vibrational states  $|v, J\rangle$  and  $|v', J'\rangle$  are probed with CARS spectroscopy. (b) BOX-CARS configuration where the pump, Stokes and probe beam with wave vectors  $\vec{k}_1$ ,  $\vec{k}_2$  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
- ▶  $E_j$  – intenzita elektrického pole
- ▶  $\chi^{(n)}$  – susceptibilita  $n$ -tého řádu (tenzor)

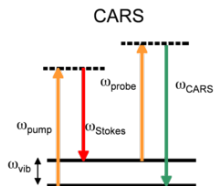
- vlnová rovnice:

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

- v řešení pro CARS se objeví nová komponenta:

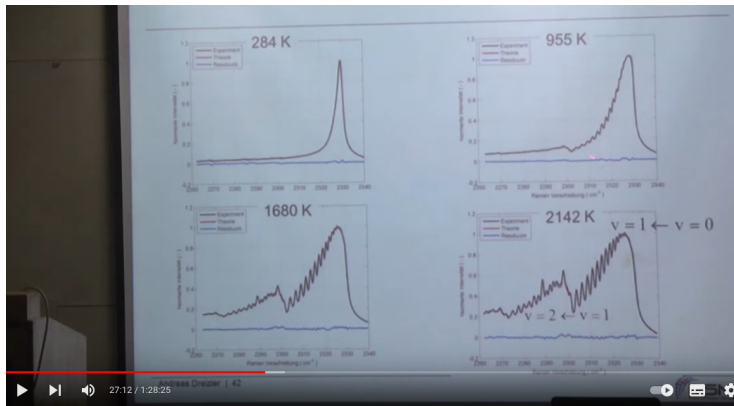
$$E_{(\omega_{\text{CARS}})} \propto E_{(\omega_{\text{Pump}})} E_{(\omega_{\text{Stokes}})} E_{(\omega_{\text{Probe}})} |\chi_{\text{CARS}}| \frac{\exp(i\Delta kL) - 1}{\Delta k}$$

- ▶  $\omega_{\text{CARS}} = \omega_{\text{Pump}} + \omega_{\text{Probe}} - \omega_{\text{Stokes}}$  (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

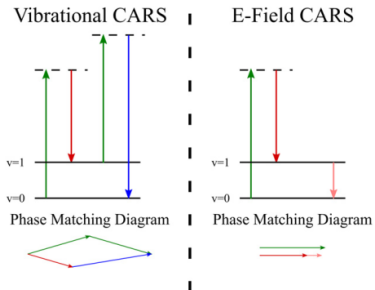
## Využití CARS: měření teploty



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

# El. field CARS

- "Probe" beam nahradím el. polem o nulové frekvenci
  - ▶ two driving lasers operate with wavelengths separated by the vibrational Raman shift of a gas molecule
  - ▶ the applied electric field enables an otherwise forbidden coherent infrared transition producing an output infrared laser beam



**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]

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

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



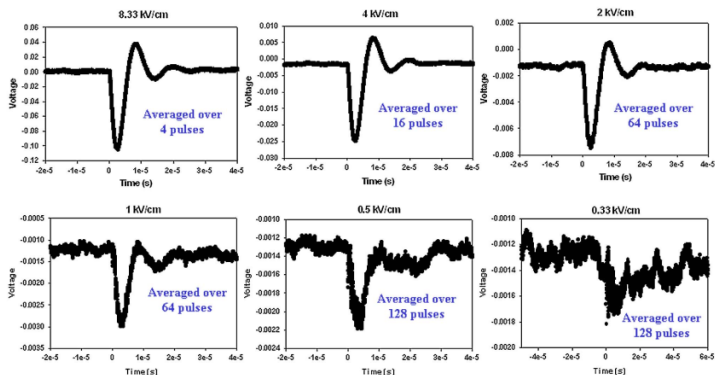


Fig. 3. (Color online) Sample oscilloscope traces of IR CARS pulses at various electric-field strengths.

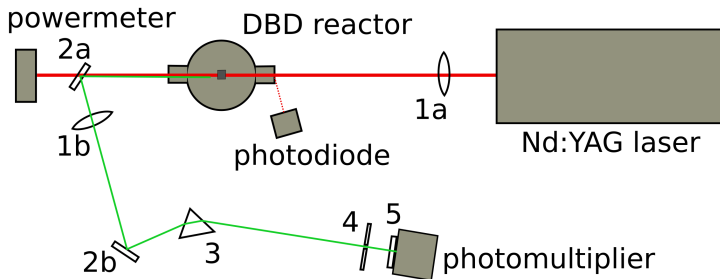
[Lempert W R, Kearney S P and Barnat E V 2011 Appl. Opt. 50, 5688–94]

## Part VII

# Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

# Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

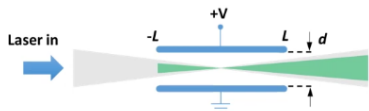
Elektrické pole v plynu  $\rightarrow$  polarizace plynu  $\rightarrow$  opticky anisotropní  $\rightarrow$  generace druhé harmonické frekvence:



Signál je velmi slabý, koherentní, line-integrovaný

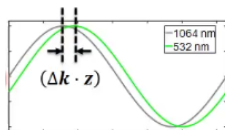
# Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

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
- ▶  $E_{\text{ext}}$  – externí el. pole (tohle měříme)
- ▶  $\Delta k = (2k_{\omega} - k_{2\omega})$  – rozdíl vlnových vektorů
- ▶  $L$  – polovina délky elektrod (ne délka ohniska!)



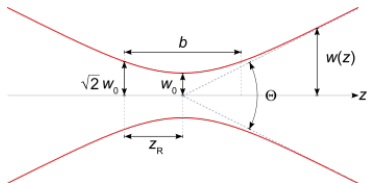
# Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

Nehomogenní pole:

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

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

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



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

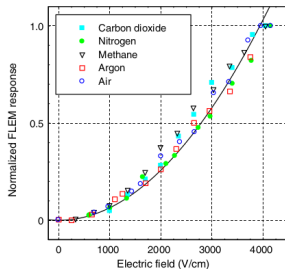
$$I^{(2\omega)} = A \cdot (I^{(\omega)})^2 \cdot E_0^2$$

Kalibrace: konstantu  $A$  zjistím měřením závislosti ve známém el. poli (... pod zápalným napětím)

# 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  $\sim 1$  kV/cm
- jen jeden laserový paprsek – jednoduché ladění experimentu
- polarizace signálu  $\parallel E_{\text{ext}}$



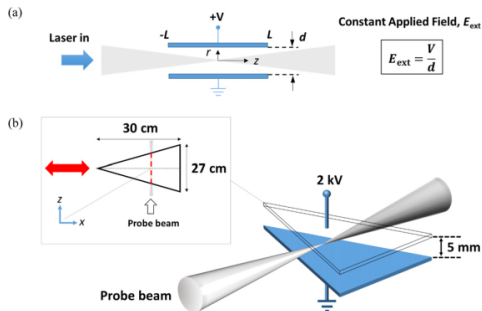
[Dogariu et al, Phys. Rev. Applied 7, 024024 (2017)]

# Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

Nevýhody, limitace:

- line-integrovaný signál → 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  $E_{\text{ext}}$

# Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

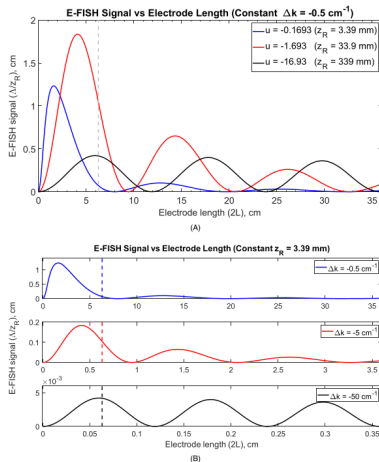


**Figure 1.** (a) Schematic of a canonical geometry typically used in E-FISH diagnosis. The top electrode is held at a potential of  $V$  with respect to the grounded bottom electrode. (While this illustration presents a focused probe beam, it should be understood that in the case of a plane-wave, the 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  $\Delta$  (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)

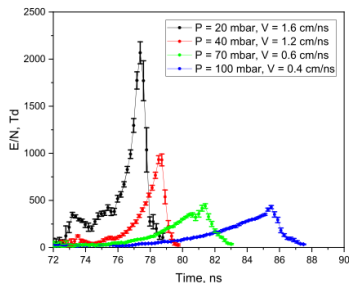


Figure 7. Reduced electric field measured in the front of a fast ionization wave discharge in nitrogen at  $P = 20$ –100 mbar, plotted on the same scale.

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

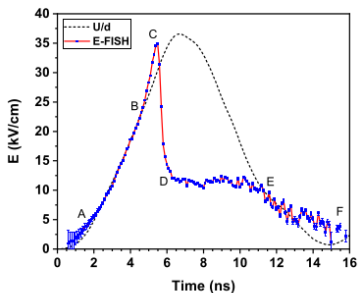
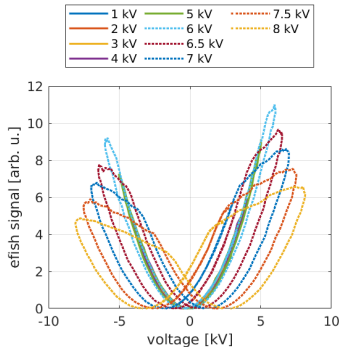
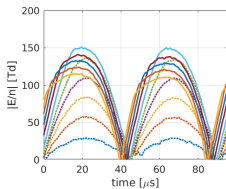
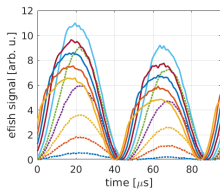
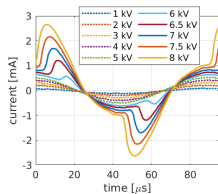
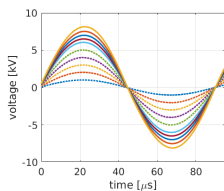


Figure 4. Longitudinal electric field temporal profile at  $500 \mu\text{m}$  from the cathode obtained using the E-FISH technique (line+symbol line) compared with the electric field profile calculated as a voltage over gap length ratio (dashed line). He:N<sub>2</sub> = 5:1 mixture at 900 mbar, negative polarity discharge. The letters denote the boundaries of the regions with different field behavior; see text.

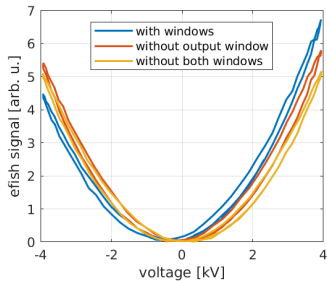
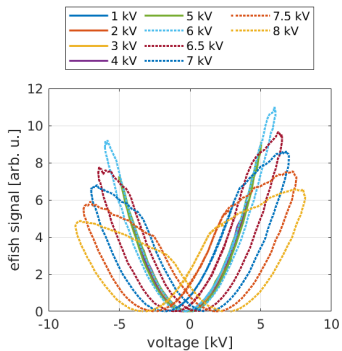
[N D Lepikhin et al 2021 J. Phys. D: Appl. Phys. 54 055201]

# Electric field induced second harmonic generation (EFISH)

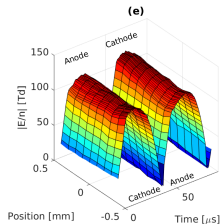
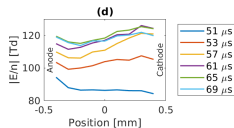
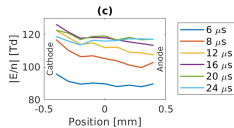
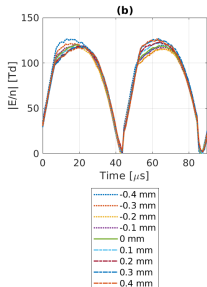
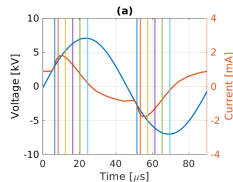


[M Mrkvičková et al 2023 Plasma Sources Sci. Technol. 32 065009]

# 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

