## Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Физический институт им П.Н. Лебедева Российской Академии Наук

На правах рукописи

Шутов Алексей Викторович

# Нелинейные процессы при усилении мощных субпикосекундных УФ лазерных импульсов в KrF лазерной системе и их распространении в атмосфере

01.04.21- лазерная физика

Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук

Научный руководитель

кандидат физико-математических наук, доцент

Зворыкин Владимир Дмитриевич

Научный консультант

кандидат физико-математических наук

Устиновский Николай Николаевич

Москва 2019

Введение	5
Обоснование актуальности темы диссертации	5
Цели и задачи работы	7
Научная новизна	8
Практическая ценность	9
Характеристика методов исследования	10
Краткое содержание работы по главам	12
Защищаемые положения	14
Сведения об апробации результатов работы	15
Личный вклад автора	19
Глава 1. Обзор литературы	20
1.1 Наработка, поддержание и распад фотоионизационной плазмы в воздухе, создаваемой УФ лазерным излучением	20
1.1.1 Многофотонная ионизация воздуха УФ лазерным излучением	20
1.1.2 Кинетические процессы в низкотемпературной воздушной плазме	29
1.1.3 Трёхчастичное прилипание электрона к кислороду	34
1.1.4 Временная эволюция компонентов фотоионизационной плазмы	39
1.1.5 Методы увеличения времени жизни фотоионизационной плазмы в воздухо	e. 41
1.2 Усиление УФ УКИ в эксимерных KrF усилителях.	43
1.2.2 Усиление УКИ в KrF активной среде	46
1.2.3 Нелинейные потери при усилении	47
Глава 2. Инструментарий и методика экспериментов.	50
2.1 KrF усилители с электронно-пучковой накачкой	50
2.2 Титан-сапфировая лазерная система	52
2.3 Лазерный источник узкополосного KrF излучения	53
2.4 Схема усиления УФ УКИ	54
2.5 Диагностика проводимости плазмы	55

## Оглавление

2.6 Регистрирующая аппаратура и методики измерений 64
Глава 3. Измерение констант скорости ионизации и распада в фотоионизационной воздушной плазме, создаваемой лазерным излучением на длине волны 248 нм 66
3.1. Исследование механизмов фотоионизации воздуха и его компонентов 66
3.1.1 Характерные осциллограммы фотоионизационного тока, квазистационарный и неквазистационарный случаи
3.1.2 Ионизация воздуха 25-нс импульсами KrF лазера
3.1.3 Ионизация компонентов воздуха УКИ76
3.1.3 Влияние длительности импульса на эффективность фотоионизации80
3.1.4 Измерение эффективных сечений фотоионизации
3.2 Трёхчастичное прилипание электрона к кислороду
3.2.1 Модифицированная схема измерения проводимости
3.2.2 Экспериментальные результаты91
3.2.3 Расчет энергетического спектра электронов воздушной плазмы в постоянном электрическом поле94
3.2.4 Обсуждение результатов
3.3 Фотоотрыв электронов от отрицательных ионов сдвоенным лазерным импульсом
3.4 Выводы к Главе 3 108
Глава 4. Влияние множественной филаментации на усилении УФ УКИ в эксимерных KrF усилителях110
4.1 Обзор работ по усилению одиночных УКИ и цугов УКИ в многокаскадной KrF лазерной системе «ГАРПУН-МТВ»111
4.2 Измерение профиля интенсивности пучка в режиме множественной филаментации
4.3 Измерение нелинейных потерь энергии УКИ в CaF <sub>2</sub> 128
4.4 Оценка влияния множественной филаментации излучения на нелинейные потери в оптике и активной среде при усилении УФ УКИ в KrF
4.5 Наведенное поглощение в окнах из CaF2 и пробой оптики в филаментах138
4.6 Выводы к Главе 4140

Глава 5. Подавление множественной филаментации	. 141
5.1 Явление отрицательной Керровской нелинейности	. 141
5.2 Подавление множественной филаментации в Хе	. 142
5.3 Влияние подавления филаментации на фокусируемость излучения	. 150
5.4 Монохроматическая ИК коническая эмиссия в Хе.	. 153
5.5 Выводы к Главе 5	. 160
Заключение	. 161
Благодарности	. 163
Список литературы	. 165

#### Введение

#### Обоснование актуальности темы диссертации

работы обусловлена нелинейные Актуальность тем, что процессы, происходящие при распространении мощных ультракоротких импульсов (УКИ) УФ излучения KrF лазера с длиной волны  $\lambda = 248$  нм в воздухе и других газах, а также кинетические процессы в фотоионизационной плазме, создаваемой УФ УКИ, мало исследованы, И имеют существенные отличия от аналогичных процессов, протекающих при распространении видимого и ИК излучения. Важную роль в этих процессах играют самофокусировка лазерного пучка [1-3] и филаментация мощного излучения [4-7], а также многофотонная ионизация среды в филаментах, которая приводит к образованию протяженных плазменных каналов [8, 9]. Кроме того, при выборе оптимальных схем усиления мощных УФ УКИ в KrF лазерных системах необходимо учитывать нелинейные процессы в воздушном тракте усиления и окнах усилителей.

Преимущества УФ излучения для фотоионизации газовых сред являются следствием большой энергии кванта (5 эВ для KrF лазера), что при наличии промежуточных возбужденных состояний в молекулярных газах позволяет эффективно нарабатывать свободные электроны как за счет прямой, так и резонансно-усиленной многофотонной ионизации (МФИ) при сложении сравнительно небольшого числа фотонов *К* (обычно  $K=2\div4$ ). Что делает возможным создание равномерных протяженных плазменных каналов с варьируемой плотностью электронов. Для сравнения сечения МФИ ИК импульсов на много порядков меньше, так как требуется в 3 и более раза больше фотонов (для кислорода K=8 при  $\lambda=800$  нм), а значительно более резкая зависимость МФИ от интенсивности ~I<sup>К</sup> приводит к тому, что образование плазмы носит пороговый характер. К тому же для большей длины волны излучения возрастает вклад лавинной ионизации газа, которая начинает играть существенную роль при увеличении длительности ИК импульсов.

Несмотря на относительно большое число исследований в области кинетических процессов в фотоионизационной плазме (см. [10- 12] и ссылки в них), в случае УФ излучения остается ряд неясностей и противоречий, как по механизмам, так и по скоростям различных процессов, в частности большой интерес представляют сечения МФИ, скоростные константы релаксационных процессов, а также данные по электронным температурам в подобной плазме. Новые экспериментальные данные важны для изучения филаментации и нелинейного распространения УФ УКИ и их применения для лазерно-индуцированного высоковольтного пробоя воздуха, численного моделирования газового разряда и процессов, происходящих в природной и техногенной низкотемпературной газовой плазме, включая молниевые разряды, плазму ионосферы Земли, ионных потоков и др.

Оптимизация мощных источников УФ излучения на основе KrF лазеров помимо различных применений, связанных с созданием плазменных каналов в атмосфере, представляет большой интерес для лазерного термоядерного синтеза (ЛТС) [13]. KrF лазеры в силу особенностей газовой активной среды лишены важнейших недостатков твердотельных лазерных систем и, как следствие, являются важной альтернативой этим системам. Короткая фундаментальная длина волны оптимальна с точки зрения фокусировки лазерного излучения и более глубокого проникновения излучения в плазму и не требует преобразования частоты, что вкупе с высоким коэффициентом полезного действия делает KrF лазер одним из основных кандидатов на роль драйвера для ЛТС [14-17], в особенности при реализации перспективной схемы ударного зажигания [18]. В этой схеме после импульса с длительностью 10-20 нс, сжимающего мишень до требуемой высокой плотности, подается короткий импульс с длительностью около 200 пс и мощностью на два порядка выше основного, генерирующий сходящуюся к центру сильную ударную волну, осуществляющую зажигание горючего. В настоящей работе рассматриваются

6

вопросы оптимизации усиления УФ УКИ пикосекундной длительности в KrF усилителях и физические механизмы, ограничивающие выходную энергию усиленных импульсов.

#### Цели и задачи работы

Целью диссертационной работы являлось экспериментальное исследование нелинейных явлений при распространении в прозрачных средах мощного KrF лазерного излучения, процессов образования и распада плазмы.

Работа собой Это включает два связанных между направления. экспериментальное исследование механизмов образования фотоионизационной плазмы под действием импульсного УФ излучения в воздухе и составляющих газах и кинетики её релаксации, а также получение новых (уточненных) данных о сечениях и константах скоростей этих процессов, которые могут быть применены в численном моделировании плазмы. Другое направление связано с оптимизацией мощных KrF лазерных установок и включает в себя изучение мелкомасштабной самофокусировки и множественной филаментации широкоапертурных пучков УФ УКИ пикосекундной длительности с пиковой мощностью до 1 ТВт при распространении в усилительном тракте KrF лазерной системы. Оно также включает исследование нелинейных процессов в оптических окнах и активной среде KrF лазера, влияющих на усиление субпикосекундных УФ лазерных импульсов в KrF усилителях, поиск путей улучшения качества лазерного пучка и повышения энергии излучения.

Исходя из целей работы решались следующие задачи:

1) Исследование механизмов фотоионизации УФ лазерным излучением на длине волны 248 нм атмосферного воздуха и его основных компонентов (N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O);

2) Исследование механизмов гибели электронов в воздухе при различных плотностях фотоионизационной плазмы, измерение характерных времен жизни в

7

воздухе с различным содержанием влаги и при различных напряженностях приложенного электрического поля.

3) Исследование условий возникновения и длины затухания филаментов в широкоапертурном лазерном пучке с субтераваттной пиковой мощностью при многопроходном усилении в KrF активной среде, измерение параметров филаментов: переносимой мощности, диаметра, интенсивности.

4) Исследование влияния самофокусировки и множественной филаментации лазерного излучения на нелинейные потери в проходной оптике, лазерной активной среде при многопроходном усилении УКИ.

5) Разработка методов подавления филаментации лазерного пучка и снижения связанных с ней нелинейных потерь излучения за счет явления резонансной самоиндуцированной дефокусировки излучения в Хе.

#### Научная новизна

1. До настоящей работы основным механизмом фотоионизации атмосферного воздуха 248-нм лазерным излучением считалась прямая трёхфотонная ионизация кислорода, а вклад других компонентов воздуха считался пренебрежимо малым. Полученные результаты свидетельствуют, что в воздухе доминирующим процессом ионизации является резонансно-усиленная многофотонная ионизация молекул воды промежуточное двухфотонное возбуждение через высоколежащего предиссоционного  $\tilde{C}^{1}B_{1}$  уровня. Ионизация молекулярного азота также носит резонансный характер, а её вклад в ионизацию воздуха сопоставим с ионизацией кислорода. В работе были впервые измерены величины эффективного сечения резонансно-усиленной МФИ паров воды и молекулярного азота, уточнено сечение прямой МФИ кислорода. Важным следствием полученных данных является то, что ионный состав фотоионизационной плазмы, создаваемой УФ излучением, состоит в первую очередь из ионов H<sub>2</sub>O<sup>+</sup> и их производных. Это приводит к необходимости пересмотра или уточнения существующих моделей УФ филаментации и плазмохимии фотоионизационной плазмы.

2. Получены экспериментальные данные по распаду электронной компоненты фотоионизационной плазмы в атмосферном воздухе в широком диапазоне начальных концентраций электронов  $10^{10} \div 10^{15}$  см<sup>-3</sup>, влажностей воздуха (0÷2.3 об%) и напряженностей приложенных электрических полей (0.2÷8 кВ/см). В указанном диапазоне плотностей фотоионизационной плазмы исследован вклад электрон-ионной рекомбинации и трёхчастичного прилипания электронов к кислороду, получены уточненные данные по скорости прилипания в воздухе в зависимости от влажности воздуха и напряженности поля.

3. Измерены параметры множественных филаментов в широкоапертурном УФ лазерном пучке с тераваттной пиковой мощностью и связанные с ними нелинейные потери в окнах KrF усилителей из CaF<sub>2</sub>; показано, что наряду с ненасыщаемыми потерями в активной среде усилителей, они являются основным фактором, ограничивающим выходную энергию усиливаемых импульсов.

4. Экспериментально продемонстрировано подавления самофокусировки и множественной филаментации излучения KrF лазера на длине волны  $\lambda$ =248 нм за счет двухфотонного резонанса с  $6p[1/2]_0$  состоянием в ксеноне и связанным с ним большим по абсолютному значению отрицательным нелинейным показателем преломления.

#### Практическая ценность

Экспериментальные данные по временной эволюции электронной компоненты плазмы в атмосферном воздухе, в первую очередь константа скорости трёхчастичного прилипания электрона к кислороду, а также измеренные в работе сечения прямой и резонансно-усиленной МФИ молекул H<sub>2</sub>O, O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, могут быть использованы для численного моделирования кинетических процессов в плазме газового разряда, фотоионизационной плазмы и плазмы в верхних слоях атмосферы

9

Земли и др. Кроме того, учет новых данных может существенно повлиять на существующие модели нелинейного распространения и филаментации УФ лазерных пучков в атмосферном воздухе.

Продемонстрированный в работе способ подавления множественной филаментации лазерного пучка в ячейке с ксеноном позволяет улучшить качество пучка и уменьшить нелинейные потери УФ излучения в окнах и активной среде широкоапертурных KrF усилителей, что, по сути дела, является более дешёвой альтернативой схеме усиления чирпированных импульсов с применением чрезвычайно дорогих дифракционных решеток.

#### Характеристика методов исследования

Исследования в рамках данной работы проводились в Лаборатории газовых лазеров ОКРФ ФИАН на многокаскадной гибридной KrF/Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> лазерной системе «ГАРПУН-МТВ», состоящей из задающего Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (титан-сапфирового) стартового комплекса «Старт 248-М» с утроением частоты (ООО Авеста-Проект), электроразрядного узкополосного перестраиваемого по частоте KrF лазера EMG 150 TMSC (фирма Lambda Physik), который использовался для синхронизации стартового комплекса и двух каскадов KrF усилителей «ГАРПУН» и «Бердыш» с электронно-пучковой накачкой, а также измерения спектральной зависимости фотоионизации газов.

С помощью разработанной высокочувствительной методики измерения фотопроводимости плазмы в приложенном продольном электростатическом поле были получены данные по многофотонной ионизации и эволюции электронной компоненты фотоионизационной плазмы в воздухе и входящих в его состав газах при концентрации электронов вплоть до 10<sup>10</sup> см<sup>-3</sup>. Отличительной особенностью данных экспериментов является то, что сравнительные данные по многофотонной ионизации для УФ излучения впервые были получены для лазерных импульсов фемтосекундного, пикосекундного и наносекундного диапазонов. Продемонстрировано, что основным механизмом фотоионизации воздуха является резонансно-усиленная многофотонная ионизация водяных паров, естественным образом содержащихся в воздухе. Вода в качестве третьего тела также играет важную роль в трёхчастичном прилипании электронов к атмосферному кислороду.

На многокаскадной гибридной KrF/Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> лазерной системе «ГАРПУН-МТВ» были получены поперечные профили распределения интенсивности в широкоапертурных субтераваттных УФ лазерных пучках и измерены параметры множественных филаментов. На Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> стартовом комплексе для одиночных филаментов были измерены нелинейное поглощение, рассеяние и уширение спектра УФ УКИ субпикосекундной длительности в CaF<sub>2</sub>, материале проходной оптики. Таким образом, было показано, что нелинейные потери в оптике и активной среде, а также уширение спектра за пределы полосы усиления KrF активной среды, связанные с мелкомасштабной самофокусировкой излучения являются главным фактором, ограничивающим выходную энергию УФ УКИ при прямом (не чирпированном) усилении KrF усилителях. Используя В резонансную отрицательную Керровскую нелинейность в ксеноне на длине волны  $\lambda$ =248 нм, было впервые продемонстрировано полное подавление самофокусировки И множественной филаментации сверхкритических УФ лазерных импульсов за счет самоиндуцированной дефокусировки.

#### Краткое содержание работы по главам

В первой обзорной главе обосновывается актуальность проводимых исследований и проводится анализ современного уровня знаний в данной области.

Во второй главе описывается экспериментальная установка, входящие в её состав узлы и экспериментальное оборудование, использованное в работе. Также в ней описывается методика диагностики фотоионизационной плазмы, с помощью которой была получена часть основных результатов данной работы

В третьей главе приводятся экспериментальные данные по многофотонной ионизации воздуха и его основных компонентов УФ лазерными импульсами различной длительности, а также данные по временной эволюции электронной компоненты фотоионизационной плазмы в воздухе. На основании измеренных зависимостей концентрации электронов от интенсивности делается вывод, что в атмосферном воздухе основным механизмом фотоионизации является (2+1) резонансно усиленная МФИ водяных паров, естественным образом содержащихся в воздухе. Из этих же измерений, находятся эффективные сечения многофотонной ионизации компонентов воздуха. На основании данных по временной эволюции электронной компоненты плазмы находится константа скорости трехчастичного прилипания электрона к кислороду в атмосферном воздухе.

В четвёртой главе приводится литературный обзор работ по усилению цугов УКИ субпикосекундной длительности в многокаскадной гибридной KrF/Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> лазерной системе "ГАРПУН-МТВ", где показано, что происходит насыщение выходной энергии при сравнительно низких энергиях излучения на входе, и далее экспериментально исследуются причины этого явления. С помощью методики визуализации УФ излучения измерены поперечные профили излучения в различных сечениях УФ лазерного пучка вдоль усилительного тракта. При пиковой мощности излучения ~0.2 ТВт, что соответствует 3000 критическим мощностям для самофокусировки ( $P_{cr} \approx 60$  МВт), пучок содержал ~ 300 УФ филаментов диаметром около 300 мкм, интенсивностью  $I_f \sim (2\pm1) \times 10^{11}$ BT/см<sup>2</sup> и плотностью энергии  $\varepsilon_f \sim 0.2$ 

Дж/см<sup>2</sup>. В них содержалось 30÷40% энергии импульса. Таким образом, при распространении УΦ УКИ co сверхкритической пиковой мощностью В усилительном тракте, состоящем из активной среды, окон усилителей и воздушной происходит мелкомасштабная самофокусировка излучения, трассы, которая приводит к образованию «горячих точек», а затем филаментов, интенсивность и плотность энергии излучения в которых примерно в 100 раз превышают средние значения.

В той же главе производится оценка нелинейных потерь в активной среде и окнах KrF усилителей, обусловленных подобными неоднородностями интенсивности. Так как плотность энергии в филаментах  $\varepsilon_f$  в несколько раз превышает предельную плотность энергии  $\varepsilon_{lim}$  (определяемую балансом усиления и поглощения излучения в активной среде усилителя), то сформировавшиеся между проходами усилителей филаменты поглощаются в усилителях. Дополнительные нелинейные потери вносят окна усилителей, изготовленные из фтористого кальция (CaF<sub>2</sub>). Чтобы оценить их величину на стартовом комплексе при сравнимых с филаментами интенсивностях измерялось нелинейное поглощение в CaF<sub>2</sub>, а также рассеяние и уширение спектра УФ излучения. В результате было показано, что за наблюдаемое насыщение выходной энергии усиливаемых УФ УКИ ответственны оба вида потерь и, в конечном счете, они обусловлены мелкомасштабной самофокусировкой излучения и образованием множественных филаментов.

В пятой главе впервые продемонстрировано полное подавление множественной филаментации лазерного пучка за счет дефокусировки в ксеноне, обладающим нелинейным резонансно-индуцированным отрицательным показателем преломления. В ксеноне также наблюдалась монохроматическая когерентная узконаправленная коническая эмиссия на длине волны 828 нм, обусловленная УΦ нелинейным взаимодействием Ha с филаментами. основании экспериментальных данных даны возможные объяснения этой эмиссии.

13

#### Защищаемые положения

- 1. Для импульсного лазерного излучения субпикосекундной и наносекундной длительности с длиной волны 248 нм основной вклад в многофотонную ионизацию атмосферного воздуха этим излучением вносит резонансноусиленная многофотонная ионизация паров воды.
- 2. В низкоплотной (<10<sup>14</sup> см<sup>-3</sup>) плазме в воздухе время жизни электронов в процессе трехчастичного прилипания к кислороду растет с ростом напряженности приложенного постоянного электрического поля и снижается с увеличением концентрации водяных паров.
- 3. Множественная филаментация коллимированного широкоапертурного пучка приводит к нелинейным потерям в оптических элементах и активной среде KrF усилителей при многопроходном усилении импульсов. Нелинейное поглощение и рассеяние излучения, а также уширение спектра за пределы полосы усиления ограничивают выходную энергию субпикосекундных УФ импульсов в KrF усилителях.
- Использование ксенона, имеющего отрицательный нелинейный показатель преломления на длине волны 248 нм, позволяет подавить мелкомасштабную самофокусировку и филаментацию УФ излучения с тераваттной пиковой мощностью.

#### Сведения об апробации результатов работы

Результаты работы лично докладывались диссертантом на следующих международных и российских научных конференциях и школах:

- "International Conference on Coherent and Nonlinear Optics & International Conference on Lasers, Applications, and Technologies" (ICONO/LAT 2013), 23-26 июня, 2013, Москва, Россия
- "6<sup>th</sup> International Conference on The Frontiers of Plasma Physics and Technology" (FPPT-6), 4-8 марта, 2013, Габороне, Ботсвана
- 3. "15я Школа Молодых Ученых «Актуальные проблемы физики»", 16-20 ноября, 2014 г., ФИАН, Москва, Россия
- "7<sup>th</sup> International Conference on The Frontiers of Plasma Physics and Technology" (FPPT-7), 13-17 апреля, 2015, Кочин, Индия
- 5. "The 25th Annual International Laser Physics Workshop" (LPHYS'16), 11–15 июля, 2016, Ереван, Армения
- "International Conference on Coherent and Nonlinear Optics & International Conference on Lasers, Applications, and Technologies" (ICONO/LAT 2016), September 26-30, 2016, Minsk, Belarus
- "17 International Conference on Laser Optics 2016" (ICLO 2016), 27 июня-1 июля, 2016, Санкт-Петербург, Россия.
- "8<sup>th</sup> International Conference on The Frontiers of Plasma Physics and Technology" (FPPT-8), 3-7 апреля, 2017, Винья дель Мар, Вальпарейсо, Чили
- 9. "The 26th Annual International Laser Physics Workshop" (LPHYS'17), 17–21 июля, 2017, Казань, Россия.
- 10. "International Conference on Ultrafast Optical Science" (UltrafastLight-2017), 3–5 октября, 2017, Москва, Россия.
- 11."18 International Conference on Laser Optics 2018" (ICLO 2018), 4-8 июня, 2018, Санкт-Петербург, Россия.

- 12."The 27th Annual International Laser Physics Workshop" (LPHYS'18), 16–20 июля, 2018, Ноттингем, Великобритания
- 13. "International Conference on Ultrafast Optical Science" (UltrafastLight-2018), 1–5 октября, 2018, Москва, Россия.
- 14. "XVII Workshop On Nuclear Physics" (WONP-XVII), 1-5 апреля, 2019, Гавана, Куба.
- "The 29th Annual International Laser Physics Workshop" (LPHYS'19), 8–12 июля 2019, Кёнджу, Республика Корея
- 16. "International Conference on Ultrafast Optical Science" (UltrafastLight-2019), 30 октября- 4 ноября, 2019, Москва, Россия.

Результаты работы опубликованы в ряде изданий, входящих в базу данных Web of Science, ссылки на которые приведены ниже:

1\*. Zvorykin V.D., Smetanin I.V., Ustinovskii N.N., **Shutov A.V.**, "Manipulation by multiple filamentation of subpicosecond TW KrF laser beam", Applied Physics B, **124**:80, 2019

2\*. **Shutov A.V.**, Ustinovskii N.N., Smetanin I.V., Mokrousova D.V., Goncharov S.A., Ryabchuk S.V., Sunchugasheva E.S., Seleznev L.V., Ionin A.A., Zvorykin V.D., "Major Pathway for Multiphoton air ionization at 248 nm laser wavelength", Applied Physics Letters, **111** (22), 224104, 2017

Erratum: Applied Physics Letters, **113** (18), 189902, 2018

3\*. Зворыкин В.Д., Гончаров С.А., Ионин А.А., Мокроусова Д.В., Рябчук С.В., E.C., Селезнев Л.В., Сунчугашева Устиновский H.H., Шутов **A.B.** "Экспериментальные возможности лазерной Ті: сапфир – KrF-системы ГАРПУНвзаимодействия субпикосекундных MTB исследования УΦ для импульсов излучения с мишенями", Квантовая электроника, 47, 319-326, 2017

4\*. Zvorykin V.D., Goncharov S.A., Ionin A.A., Mokrousova D.V., Ryabchuk S.V., Seleznev L.V., **Shutov A.V.**, Smetanin I.V., Sunchugasheva E.S., Ustinovskii N.N., "Kerr self-defocusing of multiple filaments in TW peak power UV laser beam", Laser Physics Letters, **13**, 125404, 2016

5\*. Smetanin I.V., Levchenko A.O., **Shutov A.V.**, Ustinovskii N.N., Zvorykin V.D., "Role of coherent resonant nonlinear processes in the ultrashort KrF laser pulse propagation and filamentation in air", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, **369**, p. 227-231, 2016

6\*. Зворыкин В.Д., Ионин А.А., Левченко А.О., Селезнев Л.В., Синицын Д.В., Сметанин И.В., Устиновский Н.Н., Шутов А.В., "Протяженные плазменные каналы в воздухе, созданные УФ лазером и их применение для управления электрическими разрядами", Физика плазмы, **41**, с.125-162, 2015

7\*. Zvorykin V.D., Ionin A.A., Levchenko A.O., Seleznev L.V., **Shutov A.V.**, Sinitsyn D.V., Smetanin I.V., Ustinovskii N.N., "Multiple filamentation of supercritical UV laser beam in atmospheric air", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, **355**, p. 227-231, 2015

8\*. Zvorykin V.D., Ionin A.A., Levchenko A.O., Seleznev L.V., Sinitsyn D.V., Smetanin I.V., Ustinovskii N.N., **Shutov A.V.**, "Directed transfer of MW radiation in sliding-mode plasma waveguides produced by UV laser in atmospheric air", Applied Optics, **53** (31), p.I31-I40, 2014

9\*. Зворыкин В.Д., Ионин А.А., Левченко А.О., Месяц Г.А., Селезнев Л.В., Синицын Д.В., Устиновский Н.Н., Шутов А.В., "Лазерная гибридная Ті: сапфир – КrF-система, генерирующая цуг субтераваттных УФ импульсов субпикосекундной длительности", Квантовая Электроника, **44**, (5) с.431-439, 2014

10\*. **Shutov A.V.**, Smetanin I.V., Ionin A. A., Levchenko A.O., Seleznev L.V., Sinitsyn D.A., Ustinovskii N.N., Zvorykin V.D., "Direct measurement of the characteristic

three-body electron attachment time in the atmospheric air in direct current electric field", Applied Physics Letters, **103**, 034106, 2013

11\*. Zvorykin V.D., Levchenko A.O., **Shutov A.V.**, Solomina E.V., Ustinovskii N.N., Smetanin I.V., "Long-Distance Directed Transfer of Microwaves in Tubular Sliding-Mode Plasma Waveguides Produced by KrF Laser in Atmospheric Air", Physics of Plasmas, **19**, 033509, 2012

В работах [2\*, 6\*, 10\*, 11\*] опубликованы основные результаты из Главы 3, связанные с исследованием кинетических процессов в фотоионизационной воздушной плазме. А именно, в работе [2\*] опубликованы основные результаты раздела **3.1**; в [6\*, 10\*] из раздела **3.2**; в [11\*] из раздела **3.3**. В работах [5\*, 7\*-9\*] опубликованы основные результаты из Главы 4, связанные с измерением параметров филаментов и исследованием влияния множественной филаментации излучения на усиление УФ УКИ в KrF активной среде. А именно, в работах [5\*, 7\*, 8\*] опубликованы основные результаты из раздела **4.2**; в работах [5\*, 7\*, 8\*] опубликованы основные результаты из раздела **4.2**; в работе [9\*] разделов **4.3** и **4.4**. В работах [1\*, 3\*, 4\*] опубликованы основные результаты из раздела **5.2** и **5.4**; в работе [3\*] раздела **5.3**. Другие результаты, опубликованные в этих работах, не входят в диссертацию.

За цикл работ «Формирование плазменных каналов при филаментации мощных ультракоротких лазерных импульсов и управление с их помощью высоковольтными электрическими разрядами» диссертанту в составе авторского коллектива (В. Д. Зворыкин, А. А. Ионин, С. И. Кудряшов, А. О. Левченко, Л. В. Селезнев, Д. В. Синицын, И. В. Сметанин, Е. С. Сунчугашева, Н. Н. Устиновский) Лаборатории Газовых Лазеров ОКРФ ФИАН была присуждена вторая премия Физического Института им П.Н. Лебедева РАН за 2013 год.

#### Личный вклад автора

Все приведенные в диссертации результаты были получены автором лично или при его непосредственном участии. Автор принимал участие в определении целей и задач исследования, подготовке и проведении экспериментов, обработке и интерпретации полученных данных, участвовал в написании статей, докладывал полученные результаты на конференциях. Результаты численного моделирования, приведенные в разделе 3.2.3 диссертации, получены совместно с И.В. Сметаниным (ФИАН).

#### Глава 1. Обзор литературы

### 1.1 Наработка, поддержание и распад фотоионизационной плазмы в воздухе, создаваемой УФ лазерным излучением

#### 1.1.1 Многофотонная ионизация воздуха УФ лазерным излучением

Плазменные каналы, создаваемые В воздухе лазерным излучением, представляют большой интерес в связи с рядом перспективных приложений, начиная с возможности направленной передачи электромагнитной энергии и управления высоковольтными разрядами, где плазменные каналы играют роль виртуального проводника [19-24] или волновода [25-28], заканчивая перспективой создания удаленного когерентного источника света в атмосферном воздухе для задач зондирования атмосферы [29, 30]. Кроме того, в последние десятилетия с развитием технологии чирпированного усиления [31, 32] и появлением мощных источников ультракоротких импульсов (УКИ) появилось огромное число работ связанных с исследованием явления филаментации УКИ и сопутствующих нелинейных процессов [4-7, 33, 34]. Рассматриваемые в работе процессы многофотонной ионизации (МФИ) воздуха играют критическую роль, как для получения плазмы, так и энерговклада лазерного излучения в газовые среды.

Важнейшей работой по ионизации атомов и молекул полем интенсивной световой волны является труд академика Л.В. Келдыша [8]. В этой работе предсказывается, что в зависимости от длины волны и интенсивности лазерного излучения возможны два режима образования свободных электронов: многофотонная и туннельная ионизации. МФИ подразумевает одновременное поглощение K фотонов таким образом, чтобы их суммарная энергия превзошла потенциал ионизации вещества  $K \times hv > W_i$ , и происходит в случае относительно малых электрических полей и достаточно больших энергий фотона. Туннельная же

ионизация подразумевает искажение кулоновского поля ядра, удерживающего электрон, полем световой волны и последующее туннелирование электрона в континуум. Критерий перехода между МФИ и туннельной ионизацией определяется параметром Келдыша

$$\gamma = \frac{\omega}{e} \sqrt{\frac{m_e cn\varepsilon_0 W_i}{I}}$$

Где е,  $m_{\rm e}$  –элементарный заряд и масса электрона; с – скорость света; n,  $\varepsilon_0$ показатель преломления и диэлектрическая проницаемость среды;  $\omega$ , *I*- частота и интенсивность лазерного излучения; W<sub>i</sub>- потенциал ионизации среды. В случае, когда  $\gamma \ll 1$ , реализуется туннельный режим, при  $\gamma \gg 1$  - режим МФИ. В чистом кислороде (*W*<sub>i</sub>=12.06 эB) вероятность туннельной ионизации превышает вероятностью МФИ ( $\gamma \le 1$ ) при интенсивностях выше  $I_{248} \approx 10^{15} \text{ Bt/см}^2$ ,  $I_{800} \approx$  $10^{14}$  Вт/см<sup>2</sup>,  $I_{1064} \approx 5 \times 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> и  $I_{3900} \approx 5 \times 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup> для излучения на длинах волн  $\lambda$ =248 нм,  $\lambda$ =800 нм,  $\lambda$ =1064 нм и  $\lambda$ =3900 нм соответственно. Как видно, туннельная ионизация в случае коротких длин волн требует значительных интенсивностей лазерного излучения, которые, как правило, не достигаются в газовых средах. Для типичных параметров современных лазерных систем, интенсивности более 10<sup>14</sup> Вт/см<sup>2</sup> достигаются только при жесткой фокусировке лазерного излучения в вакууме. В воздухе и других газовых средах (O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> и т.п.) достижение больших интенсивностей фокусировке при ограничивается высокоэффективным плазмообразованием, генерацией гармоник и рассеянием излучения на образующейся плазме [33-35]. В случае параметров излучения, типичных для нелинейного распространения излучения в воздухе (см [4-7] и ссылки в них) интенсивности излучения не превышают 3÷5×10<sup>13</sup>Вт/см<sup>2</sup>. Таким образом, сравнивая эту интенсивность, с «переходными» интенсивностями для параметра Келдыша, следует вывод, что для коротковолнового видимого и УФ излучения

доминирующим механизмом ионизации будет прямая МФИ, либо какие-то резонансные ступенчатые процессы. Туннельный режим реализуется в случае больших полей и относительно малых энергий кванта, т.е. для длинноволнового видимого и ИК излучения, когда вероятность одновременного поглощения большого числа фотонов мала по сравнению с вероятностью туннелирования электрона в сильном поле.

Другим распространённым механизмом образования свободных электронов в поле световой волны является лавинная ионизация [36-40], при которой электроны, ускоряясь в поле световой волны, набирают энергию достаточную для ударной ионизации компонент воздуха. Первичные электроны в этом случае могут быть либо ΜФИ лазерным излучением в результате ИЛИ фотоэффекта созданы на легкоионизуемых примесях воздуха, либо появиться в результате пролёта высокоэнергетичной частицы космического происхождения. Поскольку нагрев электронов в результате обратного тормозного поглощения лазерного излучения происходит в процессе столкновений электронов с тяжелыми частицами, при которых энергия колебаний электронов в поле электромагнитной волны переходит в тепловую энергию, возникает ограничение на минимальную длительность лазерного импульса, когда возможен эффективный нагрев электронов. В связи с этим, механизм ударной ионизации реализуется для относительно длинных, длиннее характерных столкновительных времён электрона в воздушной плазме ~1 пс [12], лазерных импульсов, (за исключением случая сверхмощных УКИ в среднем и дальнем ИК диапазоне где также предсказывается возможность ударной ионизации атмосферных газов фотоэлектронами [40], которые, в случае большой длины волны, за половину периода осцилляции электромагнитного поля лазерного импульса набирают энергию, достаточную для ударной ионизации компонентов воздуха). Лавинный механизм носит пороговый характер и ввиду стохастичности процесса размножения, не позволяет «управлять» создаваемой концентрацией электронов.

При достаточной длительности импульса, результатом лавинного размножения электронов является оптический пробой воздуха лазерным излучением. Важной особенностью является то, что плотность плазмы в полностью однократно ионизованном воздухе  $\sim 2.5 \times 10^{19}$  см<sup>-3</sup> (близка к плотности плазмы в оптическом пробое) превышает критическую плотностью плазмы  $N_{ecr} = \frac{\pi c^2 m_e}{e^2 \lambda^2}$  для длин волн более 650 нм, таким образом, образующаяся плазма непрозрачна для падающего длинноволнового излучения и после пробоя «запирает» задний фронт импульса. Следствием этого является то, что волна поглощения, то есть фронт плазмы, на котором поглощается излучение, движется навстречу лазерному пучку, а в случае длинной перетяжки сфокусированного излучения (например при фокусировке аксиконом), происходит образование отдельных плазменных очагов [12]. В связи с этим лавинный механизм ионизации малопригоден для создания протяженных однородных плазменных каналов в воздухе.

Таким образом, в случае УФ излучения большая энергия кванта даёт высокую вероятность МФИ и при этом возможны различные резонансные процессы. Наибольшее внимание за последние десятилетия привлекает резонансно-усиленная МФИ (resonance-enhanced multiphoton ionization (REMPI)), которая легла в основу одноименной методики спектроскопии [41]. В отличие от прямой МФИ, где поглощение фотонов идёт через виртуальные уровни, механизм REMPI предполагает резонансное поглощение т фотонов (одного или нескольких) на промежуточный реальный электронный уровень с последующей быстрой ионизацией возбужденной молекулы n фотонами ((m+n) REMPI). В этом случае возможно снижение степени наблюдаемой зависимости концентрации электронов от интенсивности лазерного излучения. При прямой МФИ скорость образования электронов пропорциональна  $\frac{dN_e}{dt} \sim I^K$ , где K – порядок или степень многофотонности процесса (в случае МФИ это минимальное натуральное число, для которого суммарная энергия К фотонов превышает потенциал ионизации атома или молекулы

 $Mhv > W_i$ ). В случае (*m*+*n*) REMPI наблюдаемая степенная зависимость скорости образования электронов может снижаться, по сравнению с прямой МФИ, до значения  $\frac{dN_e}{dt} \sim I^m$ , т.е. в случае REMPI степень многофотонности процесса *K* может снижаться до K = m (более подробно см. Главу 3.1.2). Что касается атомных и молекулярных компонентов воздуха, то в литературе для излучения на длине волны 248 нм (энергия кванта *hv*=5 эВ) существуют расхождения, как по механизмам, так и по скоростям ионизации. Прежде чем их описать, перечислим список основных компонентов воздуха в Таблице 1.

Таблица 1. Основные компоненты воздуха

Газ	Содержание, %	Потенциал ионизации <i>W</i> <sub>i</sub> , эВ
Азот, N <sub>2</sub>	78.09 <sup>a</sup>	15.58
Кислород, О2	20.95 <sup>a</sup>	12.06
Аргон, Аг	0.93 <sup>a</sup>	15.76
Водяной пар, H <sub>2</sub> O	$0.01 \div 5^{6}$	12.62

<sup>а</sup>Для сухого воздуха

<sup>6</sup>Зависит от температуры и относительной влажности воздуха

До настоящей работы считалось, что основным механизмом ионизации воздуха на длине волны 248 нм является МФИ кислорода [7, 42], которая исследовалась достаточно подробно в работе [11], где наблюдалась прямая трёхфотонная МФИ, при этом измеренные двумя различными методиками и при различных давлениях газа сечения МФИ лежат в диапазоне  $1.5 \times 10^{-31} \div 2.7 \times 10^{-30}$ см<sup>6</sup>с<sup>-1</sup>Вт<sup>-3</sup>. (2+1) REMPI кислорода наблюдалось в работе [43] на длине волны 287.6 нм и в работе [44] на длинах волн 251.0 и 247.3 нм. Ступенчатая ионизация через промежуточное двухфотонное возбуждение также наблюдалось в работе [45], где продемонстрировали двухфотонное поглощение на нескольких длинах волн в диапазоне 220÷235 нм и 280÷304 нм с последующей 1 и 2 квантовой ионизацией мощным излучением основной гармоники Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> лазера. Большой интерес работы исследованию спектров возбуждения кислорода представляют ПО электронным ударом. Так в работах [46, 47] наблюдалось эффективное ударное возбуждение электронами с энергиями ~10 эВ состояния  ${}^{3}\Pi_{g}$ , то есть в молекулярном кислороде имеется двухфотонный резонанс с излучением на длине волны 248 нм. Этот результат подтвердился в работе [48] при однофотонном возбуждении 124 нм ВУФ излучением (наибольшие сечения возбуждения электронным ударом соответствуют оптически разрешённым переходам). В связи с этим наблюдавшаяся нашей научной группой в ранних экспериментах зависимость  $N_e \sim I^2$  в атмосферном воздухе на длине волны 248 нм [49] была интерпретирована как (2+1) REMPI кислорода. Однако, двухфотонный переход из основного состояния на <sup>3</sup>П<sub>2</sub> уровень является запрещённым по чётности, и в кислороде следовало бы ожидать прямую трёхфотонную МФИ, что находится в противоречии с нашими ранними экспериментами [49]. В теоретических работах сечения прямой МФИ кислорода, рассчитанные в рамках стандартной и модифицированной теории Келдыша имеют разброс на три порядка от 3.8×10<sup>-31</sup> [9] до 1.4×10<sup>-28</sup> см<sup>6</sup>с<sup>-1</sup>Вт<sup>-3</sup> [7] соответственно.

Фотоионизация азота, являющегося основным компонентом воздуха, исследовалась в большом числе работ, и в них тоже имеется большой разброс по предполагаемым механизмам ионизации. Так в работе [50] зависимость флюоресценции на первой отрицательной системе иона азота N<sub>2</sub><sup>+</sup> (В←Х) от интенсивности падающего излучения интерпретировалась как (3+1) REMPI. В работе [51] (3+1) REMPI была получена из измерений акустического отклика среды в зависимости от интенсивности падающего излучения в диапазоне 0.1÷1 ТВт/см<sup>2</sup>. В работе [11] наблюдалась прямая четырёхфотонная МФИ с помощью гальванической схемы измерения проводимости, а измеренные в этой работе сечения МФИ при различных давлениях отличались на несколько порядков, от 1×10<sup>-46</sup> до 3×10<sup>-44</sup>

см<sup>8</sup>с<sup>-1</sup>Вт<sup>-4</sup>. Прямая четырёхфотонная ионизация наблюдалась и в работах [51, 52]. Квадратичную зависимость ионизации от интенсивности излучения на длине волны 248 нм в азоте наблюдали в работе [53] по свечению первой отрицательной системы иона азота на длине волны 391.4 нм. Такую же зависимость наблюдали при ионизации азота излучением на длине волны 308 нм [54] и 266 нм [55]. Это может свидетельствовать либо о наличии канала REMPI с двухфотонным возбуждением, либо, как в работе [54] о присутствии каких-то легкоионизуемых примесей. Подводя итоги, отметим, что в разных работах предполагается неоднозначная интерпретация механизмов ионизации азота излучением с длиной волны 248 нм, так как наблюдались различные показатели степени K = 2 [53], K = 3 [50, 51] и K = 4 [11, 51, 52]. Рассчитанные с помощью стандартной и модифицированной теории Келдыша сечения четырёхфотонной МФИ отличаются на 3 порядка от  $4.8 \times 10^{-47}$  см<sup>8</sup>с<sup>-1</sup>Вт<sup>-4</sup> [9] до  $3.2 \times 10^{-44}$  см<sup>8</sup>с<sup>-1</sup>Вт<sup>-4</sup> соответственно [7].

Относительно ионизации аргона также имеется ряд противоречий, как по механизмам, так и по сечениям МФИ. Так, в работе [11] наблюдалась прямая четырёхфотонная МФИ, причем сечения, измеренные двумя разными методиками, составили  $1.4 \cdot 10^{-44}$  см<sup>8</sup>с<sup>-1</sup>Вт<sup>-4</sup> (при низком давлении ~1 Торр) и  $3.7 \cdot 10^{-41}$  см<sup>8</sup>с<sup>-1</sup>Вт<sup>-4</sup> (при высоком давлении ~400 Торр), причем разницу в 3 порядка между результатами двух методик авторы никак не объяснили. Она может быть связана с известным [56] феноменом «подбарьерной» ионизации [57], когда оптически возбуждённый атом Ar\* образует эксимерную молекулу Ar<sub>2</sub>\*, потенциальная кривая которой в процессе колебательной релаксации пересекается с потенциальной кривой димерного иона:

$$Ar + 3h\nu \rightarrow Ar^{*}$$
$$Ar^{*} + Ar + M \rightarrow Ar_{2}^{*} + M$$
$$Ar_{2}^{*} \rightarrow Ar_{2}^{+} + e$$

Скорость подобного процесса будет существенно зависеть от концентрации аргона, т.е. от давления, что может объяснять расхождение результатов в работе [11] при

малых и больших давлениях. Также прямая МФИ наблюдалась в [51]. В этой же работе при меньших интенсивностях, предположительно, получена (3+1) REMPI ионизация. В работе [58] наблюдалась двухфотонная ионизация, которая была отнесена к ионизации органических примесей. Теоретически рассчитанные сечения прямой МФИ аргона составляют соответственно  $3.6 \times 10^{-47}$  см<sup>8</sup>с<sup>-1</sup>Вт<sup>-4</sup> [9] и  $3.0 \times 10^{-44}$  см<sup>8</sup>с<sup>-1</sup>Вт<sup>-4</sup> [7] для стандартной и модифицированной теории Келдыша.

Что касается воды, при исследовании ионизации воздуха зачастую пренебрегают её наличием, хотя для типичных лабораторных условий  $T=21^{\circ}$ С и относительной влажности  $\eta=40\%$  содержание молекул воды в воздухе составляет 0.93% и равно содержанию атомов аргона. В основном вода в виде паров низкого давления исследовалась методом REMPI-спектроскопии в работах [59-61]. Из этих работ следует, что на рассматриваемой длине волны наблюдалась (2+1) REMPI через промежуточный двухфотонный  $\tilde{C}^1B_1 \leftarrow \tilde{X}^1A_1$  переход, но поскольку не приводится никаких данных по эффективности этого процесса, невозможно оценить его вклад в ионизацию атмосферного воздуха. Вдобавок к этому, в работе [62] наблюдалось увеличение ионизации азота в присутствии молекул воды: по флюоресценции иона  $N_2^+$  была показана возможность резонансной передачи двухфотонной ионизацией возбужденной молекулы  $H_2O$  на молекулу  $N_2$  с последующей двухфотонной ионизацией возбужденной молекулы азота.

$$H_2O + 2h\nu \rightarrow H_2O^*$$
$$H_2O^* + N_2 \rightarrow N_2^* + H_2O$$
$$N_2^* + h\nu + h\nu \rightarrow N_2^+ + e$$

Выше было отмечено, что у молекулы  $O_2$  также имеется  ${}^3\Pi_g$  уровень с энергией ~10 эВ, двухфотонный переход на который из основного состояния запрещён правилами отбора. Следовательно, в кислороде, также как и в азоте можно ожидать столкновительного возбуждения промежуточного уровня двухквантово возбужденной молекулой воды. До настоящего момента единственной работой, где

сравнивалась ионизация сухого и влажного воздуха являлись труды конференции [63], где в узком диапазоне интенсивностей  $2 \times 10^{10} \div 4 \times 10^{10}$  Вт/см<sup>2</sup> для влажного воздуха наблюдалась квадратичная зависимость акустического отклика среды в зависимости от интенсивности лазерного излучения, а для сухого воздуха-кубическая. Причем в случае влажного воздуха абсолютная величина акустического сигнала возрастала в 5÷10 раз. Авторы этой работы не привели данных, относительно эффективности ионизации воды и её вклада в ионизацию атмосферного воздуха.

Поскольку ряд приложений, таких как активная молниезащита, требует создания плазменных каналов в атмосфере на большой высоте, немалый интерес представляют данные по зависимости от давления измеренных скоростей ионизации. По определению, сечение МФИ не должно зависеть от давления среды, но в экспериментах наблюдается совершенно иная картина. Так в работах [55, 64, 65] при давлениях ниже 350-400 Торр наблюдалась линейная зависимость концентрации ионизованных частиц (либо флюоресценции ионизованных частиц) от давления, а при росте давления свыше 350-400 Торр наблюдалось насыщение, которое можно интерпретировать, как падение эффективности ионизации при повышенных давлениях. В работе [55] это объяснялось тем, что «перевозбужденная» частица (система из иона и электрона с энергией, большей энергии ионизации), в достаточно плотном газе может испытать неупругое столкновение с нейтральной частицей. В результате такого процесса произойдут возбуждение нейтральной частицы и рекомбинация иона и электрона. Данное объяснение не очень понятно, учитывая характерные времена перехода электрона в континуум (несколько десятков фс [66]) и межмолекулярных столкновений (~10<sup>-8</sup> с [12]).

Резюмируя вышеизложенное, до настоящей работы существовало представление, что основной вклад в ионизацию воздуха УФ лазерным излучением дает МФИ кислорода. Для большинства компонентов воздуха существует различная

большой интерпретация механизмов ионизации И разброс сечениях В Для некоторых газов существует разброс ионизационных процессов. по наблюдаемым показателям степени в зависимости ионизации от интенсивности лазерного излучения. В экспериментах также наблюдается «насыщение» скоростей ионизации при давлениях выше 350 Торр, объяснение которого, на наш взгляд, некорректно. В ряде работ, в том числе с газами высокой чистоты, наблюдаемая квадратичная зависимость ионизации от интенсивности излучения относится авторами к ионизации не идентифицированных примесей. Исследованию этих вопросов будет посвящена Глава.3. настоящей работы.

#### 1.1.2 Кинетические процессы в низкотемпературной воздушной плазме

Поскольку полное описание эволюции воздушной плазмы, создаваемой ионизирующим излучением, включает огромное количество побочных реакций между образующимися ионами, следуя за большинством работ (см., например [10,12,67,68]) будем использовать упрощенный анализ основных процессов на основании уравнения для электронной плотности.

$$\underbrace{k_5 N_e N_{M^+}}_{\text{дисс.рекомб.}} - \underbrace{N_e \frac{D_a}{\Lambda^2}}_{\text{диффузия}} + \underbrace{\frac{l}{\mu \nu} \sigma_{O_2^-}^{pd} N_{O_2^-}}_{\text{фотоотрыв}}$$
(1.1)

$$\frac{dN_{O_2^-}}{dt} = N_e \left( k_1 N_{O_2}^2 + k_2 N_{O_2} N_{H_2O} + k_3 N_{O_2} N_{N_2} \right) - \frac{I}{h\nu} \sigma_{O_2^-}^{pd} N_{O_2^-}$$
(1.2)

Здесь  $N_0 \sum_j \alpha_j \sigma_j^{(K)} I^K$  - скорость генерации электронов в различных процессах МФИ, более подробно описанных в предыдущей главе;  $N_0$  - полная концентрация атомов и молекул в воздухе;  $\alpha_j$  - относительные концентрации его различных компонент;  $\sigma_j^{(K)}$  - соответствующие эффективные сечения процессов МФИ или

REMPI; *К*-степень многофотонности процесса (т.е., число фотонов, необходимых для ионизации конкретных компонентов воздуха).

Основными механизмами потерь электронов в воздухе являются прилипание к кислороду со скоростью  $N_e(k_1N_{O_2}^2 + k_2N_{O_2}N_{H_2O} + k_3N_{O_2}N_{N_2} + k_4N_{O_2})$  и диссоциативная электрон-ионная рекомбинация  $k_5N_eN_{M^+}$ , где  $k_1...k_5$  скорости соответствующих процессов,  $M^+$ - концентрация положительных ионов (см. ниже); член уравнения  $N_e(t)\frac{D_a}{\Lambda^2}$  описывает амбиполярную диффузию, где  $D_a$ - коэффициент диффузии,  $\Lambda$ - радиус плазменного канала. Последний член в уравнении (1.1)  $\frac{1}{h\nu}\sigma_{O_2}^{pd}N_{O_2}$  описывает фотоотрыв электронов лазерным излучением от ионов  $O_2^-$ , образующихся в процессе трехчастичного прилипания (см. следующий раздел), где  $\sigma_{O_2}^{pd}$ - сечение фотоотрыва. Временная эволюция концентрации ионов  $O_2^-$  описывается уравнением (1.2).

Вклад каждого из процессов гибели электронов зависит в первую очередь от параметров плазмы. В воздушной плазме умеренной (<10<sup>13</sup> см<sup>-3</sup>) плотности потери электронов обусловлены в основном трехчастичным прилипанием электронов к молекулам O<sub>2</sub> [69-71]

$$O_2 + e + O_2(H_2O, N_2) \rightarrow O_2^- + O_2^*(H_2O^*, N_2^*)$$
 (1.3)

При атмосферном давлении воздуха в литературе имеется большой разброс относительно скоростей этих процессов; так характерное время прилипания варьируется в диапазоне от нескольких наносекунд до нескольких сотен наносекунд (Обсуждается подробнее в следующем разделе). Альтернативный двухчастичный процесс потерь электронов- диссоциативное прилипание,

$$O_2 + e \stackrel{k_4}{\to} O^- + 0 \tag{1.4}$$

имеет высокий порог активации [12] и менее эффективен в условиях наших экспериментов: при наибольшей величине приведённого поля  $E/N_0 = 32$  Tд (E=8 кB/см;  $N_0=2.5\times10^{19}$  см<sup>-3</sup>) его характерное время составляет несколько миллисекунд (по оценкам на основе [12]). Константы скорости трехчастичного и двухчастичного прилипания зависят от приведенного электрического поля. При повышенных  $E/N_0$  (>10<sup>2</sup> Tд) и, соответственно, при большой энергии электронов двухчастичные процессы доминируют над трехчастичными [12].

Амбиполярная электрон-ионная диффузия учитывается в формуле (1.1) для плазмы цилиндрической геометрии с соответствующим коэффициентом диффузии  $D_a \sim 200 \text{ см}^2 \text{c}^{-1}$  [12], а  $\Lambda = R_{pl}/2.4$ ,  $R_{pl}$  – радиус плазмы, равный радиусу лазерного пучка. Оценки показывают, что диффузия приводит к оттоку электронов из начального плазменного канала радиусом  $R_{pl} \sim 100$  мкм за времена  $\sim 100$  нс. В условиях экспериментов, описанных в Главе 3, сигналы фототока в разрядном промежутке интегрируются по сечению плазмы вплоть до поперечного размера r=2 мм, и полученные результаты не чувствительны к диффузии.

При более высокой плотности плазмы (>10<sup>13</sup> см<sup>-3</sup>) гибель электронов происходит в результате диссоциативной рекомбинации электронов с положительными молекулярными ионами [10, 52, 68]. Она является единственным процессом, в котором электроны необратимо гибнут, а лазерная энергия, затраченная на ионизацию, перераспределяется между атомами и молекулами в основном и возбужденных состояниях. Основной здесь является реакция

$$M^+ + e \xrightarrow{k_5} M_1 + M_2^*$$
 (1.5)

Описание процесса диссоциативной рекомбинации в относительно плотной распадающейся плазме ( $10^{14} \div 10^{17}$  см<sup>-3</sup>) осложняется тем, что ионы, образовавшиеся в результате первичной фотоионизации лазерным излучением ( $N_2^+, O_2^+, H_2O^+$ ), участвуют в большом числе плазмохимических процессов, в результате которых

образуются сложные ионные комплексы. Например, в воздухе, для положительных ионов кислорода и азота известны быстрые процессы ионной конверсии:

$$O_{2}^{+} + 2O_{2} \stackrel{R_{1}}{\leftrightarrow} O_{4}^{+} + O_{2}$$

$$N_{2}^{+} + 2N_{2} \stackrel{R_{2}}{\rightarrow} N_{4}^{+} + N_{2}$$

$$O_{2}^{+} + 2N_{2} \stackrel{R_{3}}{\rightarrow} N_{2}O_{2}^{+} + N_{2}$$
(1.6)-(1.8)

и передачи заряда:

$$N_{2}^{+} + H_{2}O \xrightarrow{R_{4}} H_{2}O^{+} + N_{2}$$

$$N_{4}^{+} + H_{2}O \xrightarrow{R_{5}} H_{2}O^{+} + 2N_{2}$$

$$N_{2}^{+} + O_{2} \xrightarrow{R_{6}} O_{2}^{+} + N_{2}$$

$$N_{4}^{+} + O_{2} \xrightarrow{R_{7}} O_{2}^{+} + 2N_{2}$$
(1.9)-(1.12)

Характерные времена реакций ионной конверсии (1.6)-(1.8) составляют от нескольких единиц до десятка наносекунд [10, 72], типичные времена ионной перезарядки (1.9)-(1.12) составляют несколько единиц наносекунд [10, 72]. Таким образом, в атмосферной плазме диссоциативная рекомбинация электронов протекает в виде большого числа реакций с различными ионами, как сформировавшимися в результате первичной ионизации, так и в процессе эволюции плазмы, основными из которых являются реакции:

$$\begin{array}{l} O_{2}^{+} + e \xrightarrow{\beta_{1}} 0 + 0^{*} \\ O_{4}^{+} + e \xrightarrow{\beta_{2}} O_{2} + O_{2}^{*} \\ N_{2}^{+} + e \xrightarrow{\beta_{3}} N + N^{*} \\ N_{4}^{+} + e \xrightarrow{\beta_{4}} N_{2} + N_{2}^{*} \\ H_{2}O^{+} + e \xrightarrow{\beta_{5}} OH^{*} + H \end{array}$$
(1.13)-(1.17)

Константы скорости  $\beta_1...\beta_5$  определяются следующими выражениями [10, 72]:

$$\begin{split} \beta_1 &= 2 \times 10^{-7} \left(\frac{300}{T_e}\right) \mathrm{cm^3 c^{-1}} \\ \beta_2 &= 1.4 \times 10^{-6} \left(\frac{300}{T_e}\right)^{0.5} \mathrm{cm^3 c^{-1}} \\ \beta_3 &= 4.8 \times 10^{-7} \left(\frac{300}{T_e}\right)^{0.5} \mathrm{cm^3 c^{-1}} \\ \beta_4 &= 2 \times 10^{-6} \left(\frac{300}{T_e}\right)^{0.5} \mathrm{cm^3 c^{-1}} \\ \beta_5 &= 2.7 \times 10^{-7} \left(\frac{300}{T_e}\right)^{0.5} \mathrm{cm^3 c^{-1}} \end{split}$$

и лежат в интервале ~ $10^{-7} \div 2 \times 10^{-6}$  см<sup>3</sup>·с<sup>-1</sup> в зависимости от эффективной электронной в Кельвинах, которая результате  $T_{\rho}$ устанавливается температуры В релаксации(нагрева) изначального спектра фотоэлектронов. Ввиду большого числа задействованных кинетических процессов, полное описание диссоциативной рекомбинации электронов с ионами в фотоионизационной плазме в воздухе является крайне сложной задачей, которая останется за рамками настоящей диссертации. В настоящей работе будет подробно рассмотрен случай низкоплотной плазмы, в которой доминирующим процессом гибели будет трёхчастичное прилипание электрона к кислороду (1.3). Используя данные по скоростям реакций (1.13)-(1.17) и (1.3), можно оценить, что при комнатной температуре диссоциативная рекомбинация преобладает над прилипанием при плотностях электронов:  $N_e \ge N_e^* \sim 10^{13} \text{ см}^{-3}$ . Иллюстрацией доминирующего механизма гибели электронов смены при уменьшении плотности плазмы может служить Рис. 3.11 в Главе 3.1, где видно, что при уменьшении начальной плотности электронов временной характер распада гиперболического, соответствующего диссоциативной плазмы меняется с рекомбинации, на экспоненциальный, соответствующий прилипанию.

#### 1.1.3 Трёхчастичное прилипание электрона к кислороду

Процесс трёхчастичного прилипания электрона к кислороду с образованием отрицательного иона является одним из основных механизмов гибели электронов в низкотемпературной атмосферной плазме. Помимо своей ключевой роли в процессах в атмосфере и ионосфере [12], прилипание электронов существенно в ряде важнейших прикладных задач. В медицине при радиотерапии и адронотерапии, для задач дозиметрии и контроля пучков, в настоящий момент широко используются ионизационные камеры, наполненные атмосферным воздухом [73-78]. Это связанно с тем, что подобные детекторы имеют линейный отклик в широком диапазоне интенсивностей излучения (либо пучков протонов) с различными энергетическими и временными параметрами. Кроме того, использование атмосферного воздуха в качестве ионизуемой среды чрезвычайно удобно в медицинских учреждениях, поскольку не требует дополнительного оборудования и обучения персонала. Корректное измерение дозы облучения с помощью ионизационной камеры требует учета большого числа параметров (дрейфовые скорости электронов и ионов, времена рекомбинации и трёхчастичного прилипания и т.п.) [73-77], следовательно, получение уточненных данных по скорости трехчастичного прилипания может иметь важное прикладное значение для более точной калибровки медицинских дозиметров.

В контексте данной работы процесс трехчастичного прилипания электронов представляет большой интерес, поскольку образующиеся в результате прилипания ионы  $O_2^-$  имеют очень небольшую, по сравнению с другими компонентами воздуха, энергию связи с электроном ~0.5 эВ [79] и сравнительно большое время жизни ~1 мкс [12], что открывает возможность для высокоэффективного фотоотрыва прилипших электронов лазерным излучением:

$$0_2^- + h\nu \to e + 0_2 \tag{1.18}$$

34

Процесс фотоотрыва электронов исследовался во множестве работ, как для лазерного излучения, так и для солнечного света. В частности, фотоотрыв экспериментально демонстрировался в работах [21, 23, 80-82] причем в работе [83] предсказывается, что для энергии кванта ~5 эВ процесс фотоотрыва носит резонансный характер. Это подтвердилось в работах [84, 85] автора диссертации, где было показано, что при средней интенсивности в лазерном импульсе *I*>10<sup>9</sup> Bт/см<sup>2</sup>, лазерное излучение на длине волны 248 нм отрывает более 90% залипших электронов. Из этого следует важный вывод, что в процессе действия достаточно интенсивного лазерного импульса, трёхчастичное прилипание электронов является полностью подавленным.

Процесс трехчастичного прилипания проходит в две стадии [70], первая состоит в прилипании электрона к молекуле кислорода, с образованием возбужденного отрицательного иона  $(O_2^-)^*$ 

$$O_2 + e \to (O_2^-)^*$$
 (1.19)

Во второй стадии метастабильный отрицательный ион  $(O_2^-)^*$  либо снимает возбуждение в столкновении с третьим телом, образуя ион  $O_2^-$ , либо залипший электрон отрывается.

$$(O_2^-)^* + M \to O_2^- + M^*$$
 (1.20)

$$(O_2^-)^* + M \to e + O_2 + M^*$$
 (1.21)

Третьим телом могут выступать молекулы кислорода, азота или воды. В литературе наибольшие скорости приписываются реакциям прилипания с O<sub>2</sub> и H<sub>2</sub>O в качестве третьего тела [69-71,86,87]. Поскольку в результате процессов (1.19-1.20) происходит экспоненциальная убыль электронов, в дальнейшем для простоты описания процесса будет использоваться понятие характерного времени жизни

электронов относительно трехчастичного прилипания  $\tau_{att}$ , это время, за которое концентрация электронов уменьшается в *e* раз. В наших условиях для всех трёх реакции  $O_2 + e + O_2(H_2O, N_2) \xrightarrow{K_{1,2,3}} O_2^- + O_2^*(H_2O^*, N_2^*)$ , скорость гибели электронов будет описывать время  $\tau_{att} = \left[N_{O_2}(k_1N_{O_2} + k_2N_{H_2O} + k_3N_{N_2})\right]^{-1}$ .

Трёхчастичное прилипание электронов исследовалось во множестве работ, но при этом в литературе нет окончательной ясности относительно константы скорости этого процесса, которая зависит от ряда факторов, например от величины приложенного электрического поля и влажности воздуха. Для наглядности на Рис. 1.1 приведены времена прилипания электронов  $\tau_{att}$  из тех работ, в которых эти значения измерены в зависимости от напряженности электрического поля. В двух недавних работах [88, 89], где методика измерений была сходна с нашей (см. Главу 2.5), полученные времена прилипания отличались почти в 4 раза, а именно в работе [88] измеренное время жизни электронов в приложенном поле 5 кВ/см составило 146 нс, в работе [89] для того же поля 5 кВ/см указано время прилипания в 40 нс; а в работе [23] такое же время прилипания 40 нс было измерено в поле 1.25 кВ/см. В экспериментальной работе [90], где исследовалась эволюция низкоплотной плазмы по рассеянию 100-ГГц СВЧ излучения, время жизни электронов в процессе трехчастичного прилипания составило 13 нс. В аналогичных по методике работах [91, 92] измерены значения 21.7 и 60 нс соответственно. Такой разброс, вероятно, связан с нагревом электронов СВЧ полем, влияние которого на прилипание авторы не рассматривали. Большой интерес представляют работы, сделанные С использованием дрейфовых труб, поскольку в некоторых из этих работ получены данные в широком диапазоне напряженностей поля. В работе [93] время прилипания в сухом воздухе составило 10 нс, а в работах [94, 95] приводится огромный массив данных в диапазоне 0.1÷7 кВ/см, в т.ч. дано сравнение сухого и влажного воздуха. Из работ [94, 95] следует, что с ростом напряженности поля время прилипания растёт от 9 до ~85 нс, причем, во влажном воздухе, с содержанием молекул воды ~2
% при напряженностях поля менее 4 кВ/см, время прилипания до двух-трёх раз меньше, чем в сухом (см. Рис. 1.1, треугольники). Используя ионизационную камеру, в работе [77] был получен ряд данных для больших напряженностей поля, которые неплохо согласуются с [94, 95] (см. Рис. 1.1, круги). К сожалению, авторы не приводят данных о влажности исследуемого воздуха. Расчетные значения времени прилипания, приведенные в литературе, также дают достаточно большой разброс. Так в работе [96] расчетное значение в поле 0.4 кВ/см составляет ~10 нс.



Рис. 1.1 Литературные данные по характерному времени жизни электронов относительно трехчастичного прилипания в воздухе при температуре 21°C и давлении 1 атм ( $N_0 \approx 2.5 \times 10^{19}$  см<sup>-3</sup>).

В книгах Ю.П. Райзера, одного из наиболее авторитетных исследователей газового разряда, приводятся взаимно противоречивые данные о временах прилипания. Так в книге «Физика газового разряда» [12] приводится значение 10 нс, а зависимость

времени прилипания от напряженности поля не обсуждается, а в книге «Физика молнии и молниезащиты» [97] приводится значение в 80 нс в поле 4.2 кВ/см, а также аналитическая зависимость от напряженности поля, приведенная на Рис. 1.1 в виде красной прямой. Отметим, что расхождение между формулой и отдельной точкой связано, по всей видимости, с плотностью молекул, использованной в расчётах. В стандартных условиях при температуре  $T=0^{\circ}C$  и давлении p=1 атм она соответствует числу Лошмидта  $N_L=2.68\times10^{19}$  см<sup>-3</sup>, тогда как при комнатной температуре T=21°C, типичной для лабораторий,  $N_0 \approx 2.5 \times 10^{19}$  см<sup>-3</sup>. В связи с этим, ряд литературных значений, в частности из работ [94, 95], где указаны рабочие температуры, отличные от T=21°C, были пересчитаны автором диссертации для комнатной температуры. В работе [98] расчетное значение времени прилипания для низкоэнергетичных электронов ( $T_e \approx 297$  K) составляет от 11 до 6 нс. Также для времени прилипания есть ряд аналитических формул в зависимости от электронной температуры плазмы [10, 71], основанных на экспериментах [69, 70, 99], которые обсуждаются в Главе 3.2. Как видно, разброс литературных данных крайне значительный. Это может быть связано с тем, что во многих работах, например [88-93], авторы не приводят содержание молекул воды в исследуемом воздухе, тогда как ранее отмечалось, что согласно работам [69, 70, 94, 95] значение константы скорости трехчастичного прилипания с третьим телом H<sub>2</sub>O в разы превышает значения аналогичной константы для кислорода, следовательно, присутствие молекул воды должно существенно уменьшать характерное время трехчастичного прилипания.

Ввиду большого разброса имеющихся литературных данных по времени трехчастичного прилипания электрона к кислороду, одной из задач настоящей диссертационной работы было прямое измерение этой величины в воздухе различной влажности и при различных значениях приложенного электростатического поля.

#### 1.1.4 Временная эволюция компонентов фотоионизационной плазмы.

Решение уравнения (1.1) требует одновременного решения самосогласованной системы кинетических уравнений для заряженных компонентов плазмы (1.2-1.17), где скоростные константы процессов гибели электронов (1.3; 1.13-1.17) зависят от электронной температуры и могут существенно меняться в процессе релаксации плазмы. Процессы (1.3; 1.13-1.17), в свою очередь, сами оказывают существенное влияние на остывание электронов, т.е. на электронную температуру. Вследствие этого, точный расчет функции распределения электронов по энергиям И сопутствующих требует кинетических процессов решения сложной самосогласованной задачи. Примеры подобных расчетов можно найти в работах [100-102].

В упрощенном виде задачу временной эволюции заряженных компонентов плазмы в сухом воздухе можно численно решить, сделав предположение, что электронная температура задаётся только приложенным внешним электрическим полем и мало меняется в процессе эволюции плазмы (в Главе 3 приводится ряд доводов, почему это оправданно). В случае ~100 фс лазерного импульса, короткого по сравнению с характерными временами процессов в плазме, в уравнении (1.1) можно убрать член, описывающий наработку электронов, задав начальные концентрации электронов и положительных ионов в момент времени (t=0). На Рис. 1.2 представлены проделанные автором диссертации вычисления [85], описывающие временную эволюцию различных компонентов воздушной плазмы при отсутствии внешнего электрического поля (а) и в поле с напряженностью 2 кВ/см (б). Из полученных данных видно, что с увеличением поля замедляется как прилипание электронов к молекулам О<sub>2</sub> так и их рекомбинация с положительными ионами. Другой существенный вывод, что типичные плотности отрицательных ионов кислорода не превышают 3×10<sup>13</sup> см<sup>-3</sup>, что ограничивает возможность получения более высоких концентраций электронов вторым импульсом за счет фотоотрыва (см. следующий раздел). Начальные условия в расчетах соответствовали типичным

параметрам фотоионизационной плазмы, создаваемой УКИ [7, 42]. К сожалению, как будет показано в Главе.З настоящей работы, заложенные в эти, а также в расчеты из работ [100-102], начальные условия описывают исключительно случай сухого воздуха, ионизуемого коротким ИК импульсом, и мало применимы для случая 248 нм УФ излучения, где основным механизмом ионизации воздуха является ионизация молекулы воды.



**Рис. 1.2** Рассчетная временная эволюция различных компонентов плазмы в воздухе (а) без внешнего поля и (б) в постоянном поле 2 кВ/см.

## 1.1.5 Методы увеличения времени жизни фотоионизационной плазмы в воздухе.

Время существования электронов в плазме, и как следствие, проводимости плазмы, является ключевым параметром для ряда приложений, таких как лазерное управление высоковольтными разрядами, транспортировка СВЧ излучения и т.д. Как видно из Рис. 1.2, типичные времена, за которые первичная электронная плотность снижается в сто раз, не превышают нескольких десятков наносекунд. За последние несколько десятилетий в литературе встречается много работ [102-107], где были предприняты попытки увеличения времени жизни плазменного канала, создаваемого импульсным лазером. В этих работах можно выделить два основных механизма поддержания долгоживущей лазерной плазмы: нагрев электронов приложенным лазерным или постоянным электрическим полем, либо наработку новых электронов дополнительными лазерными импульсами. В первом случае, увеличение времени жизни плазменного канала происходит благодаря замедлению гибели электронов с ростом электронной температуры, во втором за счет фотоотрыва и наработки новых электронов. Так в работе [103] осуществляется нагрев плазмы, создаваемой 30 фс ИК УКИ дополнительным 300-пс лазерным импульсом, приходившим с задержкой в 10 нс. В эксперименте отслеживалась динамика распада плазмы по флюоресценции на переходе  $N^+: 3p(^3S) - 3s(^3P^0)$  на длине волны 504.5 нм. Авторы наблюдали замедление времени распада плазмы от 40 до 200 нс в присутствии 2го импульса, связанное с её нагревом и подавлением прилипания электронов. Однако время существования плотной плазмы ~10<sup>15</sup>см<sup>-3</sup> выросло незначительно, до ~15 нс, что качественно согласуется с расчетами на Рис. 1.2. Схожие результаты были получены в работах [104-106] где был продемонстрирован фотоотрыв электронов от ионов  $0_2^-$  и замедление рекомбинации в связи с нагревом плазмы. В работе [107] при многопроходном усилении в Ті<sup>3+</sup>:Аl<sub>2</sub>O<sub>3</sub> активной среде генерировался цуг из 17 мощных УКИ с длительностью 60 фс и периодом следования ~15 нс с суммарной энергией ~60 мДж. Время распада плазмы, измеренное по флюоресценции, возрастало с 8 нс для одиночного импульса

до 150 нс для цуга. Аналогичный по своему смыслу результат был получен в работе автора настоящей диссертации [84, 108], где было продемонстрировано увеличение времени существования плазменного канала до ~150 нс с помощью амплитудномодулированных УФ импульсов. Подобные импульсы представляли из себя суперпозицию 100 нс импульса свободной генерации KrF лазера и цуг усиленных субтераваттных УФ УКИ пикосекундной длительности, следовавших с интервалом ~5 нс. В контролируемой плотности электронов возникала долгоживущая составляющая, которая свидетельствует о накоплении электронов в плазме в результате эффекта подавления прилипания электронов к молекулам кислорода.

В целом, можно утверждать, что увеличение времени жизни плотной >10<sup>15</sup> см<sup>-3</sup> фотоионизационной плазмы до времён ~100 нс и более возможно только в случае постоянной наработки новых электронов, например цугом УКИ. Причем период следования импульсов в цуге задаёт нижний порог, до которого будет опускаться электронная плотность и, как следствие, проводимость плазменного канала. Частота повторений современных достаточно мощных (ТВт в импульсе) лазеров не превышает нескольких кГц, что соответствует периоду следования несколько миллисекунд, чего явно недостаточно поддержания плотной для плазмы (см. Рис. 1.2). Но как будет показано в Главе 4, требуемые задержки между импульсами  $\Delta t < 10$  нс достижимы в случае усиления цугов импульсов в средах с быстрым восстановлением инверсии населённостей  $\tau < \Delta t$ . В частности, подобные короткие времена восстановления инверсии характерны для газовых эксимерных лазеров, где возможно усиление цугов УКИ с периодом следования  $\Delta t \sim 5$  нс.

#### **1.2 Усиление УФ УКИ в эксимерных KrF усилителях.**

В данном разделе будут рассмотрены основные особенности усиления УФ УКИ в эксимерных газовых средах, а также процессы нелинейного распространения УФ УКИ в контексте усиления УКИ в KrF усилителях.

Создание мощных лазерных источников УФ излучения является крайне важным как для фундаментальных, так и для прикладных задач. Мощные коротковолновые лазерные драйверы востребованы для проблемы лазерного термоядерного синтеза (ЛТС), а также для фундаментальных исследований взаимодействия интенсивного УΦ излучения с веществом, генерации коротковолновых гармоник высокого порядка и аттосекундных импульсов. С помощью УФ УКИ можно создавать протяженные плазменных каналы для коммутации высоковольтных разрядов, транспортировки СВЧ-излучения и других приложений, обсуждавшихся в Главе 1.1. КrF лазерные системы, способные усиливать цуги субпикосекундных УКИ с тераваттной пиковой мощностью на длине волны 248 нм, являются наиболее эффективным способом наработки электронов в атмосферном воздухе путем его многофотонной ионизации (см. Главу 3.1). В связи с этим в диссертационной работе рассматриваются проблемы прямого усиления мощных УФ УКИ в гибридной KrF/Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> лазерной системе ГАРПУН-МТВ, связанные с нелинейными потерями в сильно неоднородном пучке.

## 1.2.1 Особенности газовой KrF активной среды

Характерной особенностью KrF газовой активной среды, по сравнению с твердотельными средами, является обусловленное столкновительным тушением короткое время жизни верхнего лазерного уровня  $\tau_c \approx 2$  нс [109], тогда как в твердотельных активных средах, например в Nd:YAG лазерах, это время может достигать нескольких сотен микросекунд [110]. В связи с этим в KrF лазере принципиально невозможно длительное накопление энергии для реализации активной либо пассивной модуляции добротности. Поскольку длительности накачки, составляющие 15÷30 нс в электроразрядных KrF лазерах и 100÷500 нс в

КrF лазерах с накачкой электронным пучком, существенно превышают время жизни  $\tau_c$ , эффективный энергосъем в такой среде достигается за счет использования многопроходных [111] и многопучковых схем усиления [112, 113]. Другой особенностью газовой активной среды KrF лазера является низкая плотность энергии насыщения  $Q_s = \frac{h\nu}{\sigma} \approx 2 \text{ мДж/см}^2$  [109], (где  $h\nu = 5$  эВ,  $\sigma = 2.5 \times 10^{-16} \text{ см}^2$  - сечение индуцированного лазерного перехода), которая на 3 порядка меньше, чем у твердотельных лазеров. Для достижения больших энергий и мощностей необходимы большие апертуры KrF усилителей в сотни квадратных сантиметров при объемах активной среды в десятки литров. Накачка таких больших объемов возможна с использованием выскоэнергетичных электронных пучков с энергиями 100÷500 кэВ. Использование подобной накачки, связанные с ней рассеянные быстрые электроны и тормозное рентгеновское излучение, а также агрессивная фторсодержащая газовая среда ограничивают выбор материала окон, устойчивых к перечисленным факторам. Для высокой пиковой интенсивности УКИ существенные ограничения на выбор материала окон накладывают и нелинейные процессы (см. Главу 4).

Основными достоинствами газовых активных сред, по сравнению с твердотельными, является возможность эффективного охлаждения активной среды путем прокачки газа. Стоит отметить, что задача охлаждения активной среды является одним из основных ограничителей при создании твердотельного драйвера для ЛТС. Так все имеющиеся на данный момент и строящиеся сверхмощные лазерные установки, National Ignition Facility (NIF) (*E*=1.8 МДж) в Ливерморе, США [114] и Laser Mega Joule (LMJ) в Бордо, Франция [115] (*E*=1.8 МДж) работают в однократном режиме. Схожие проблемы имеют сверхинтенсивные твердотельные лазеры с петаваттной мощностью, где типичная частота повторения пока не превышает  $2 \times 10^{-2}$ Гц [116]. В настоящий момент разработаны мощные KrF лазеры с накачкой электронным пучком, работающие с частотой до 5 Гц с полным КПД  $\eta$ >7% [117]. Другой важной особенностью является быстрое время восстановления

инверсной населенности в KrF активной среде, которое составляет ~2 нс [118] что позволяет одновременно усиливать УКИ и длинные импульсы, а также усиливать цуги УКИ, обеспечивая эффективный энергосъем на протяжении длинного импульса накачки, что было продемонстрировано в работе автора настоящей диссертации [119]. Для создания УФ лазерных систем с высокой пиковой мощностью УКИ на базе KrF усилителей большое значение имеет низкий нелинейный показатель преломления n<sub>2</sub>, ответственный за самофокусировку излучения. Поскольку нет эффективных способов генерации УКИ на базе самой KrF активной среды (модуляция добротности невозможна в связи с коротким временем жизни верхнего лазерного уровня, а синхронизация мод требует длинной накачки) используются гибридные лазерные системы: затравочные УКИ генерируются с помощью других лазеров, и, после преобразования частоты излучения, усиливаются в эксимерной активной среде. Поскольку собственная ширина линии усиления KrF лазера на переходе В→Х составляет ~2.5 нм, возможно прямое усиление УФ УКИ с предельной длительностью до 60 фс [120]. В первых работах в качестве затравочного импульса использовалось преобразованное по частоте излучение лазера на красителе [111, 120-125], либо излучение комбинационного рассеяния [126-129]. Так в работе [126], используя 300-фс импульсы на длине волны 308 нм, полученные путём усиления затравочных импульсов лазера на красителе в XeCl эксимерной среде, были получены 450-фс 248 нм УКИ. Для этого исходные 308-нм импульсы фокусировались в ячейку с водородом при давлении 33 атм., где за счет четырёхволнового смешения (ЧВС) вращательной и колебательной Стоксовых компонент комбинационного рассеяния получалось излучение на длине волны 248.8 нм, пригодной для усиления в KrF. Наиболее перспективным подходом является использование большой ширины линии усиления Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> лазера, составляющей ~400 нм, что позволяет с одной стороны получать УКИ методом синхронизации мод, а с другой – перестраивать длину волны излучения в достаточно широких пределах. частности для получения затравочного излучения для KrF усилителей B

используется третья гармоника Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> лазера, работающего на длине волны 744 нм [118, 130-132].

## 1.2.2 Усиление УКИ в KrF активной среде

Физические основы усиления в среде KrF лазера подробно описаны в обзорах [118, 133], следуя за этими работами, перечислим важнейшие выводы. Некогерентное усиление коротких импульсов с длительностью  $\tau_p < \tau_c$  (где  $\tau_c \approx 2$  нс – время столкновительного тушения) в KrF активной среде описывается модифицированным уравнением Франца-Нодвика [134]

$$\frac{d\varepsilon}{dx} = g(x)(1 - e^{-\varepsilon}) - \alpha_{ns}(\varepsilon)\varepsilon, \qquad (1.13)$$

где  $\varepsilon = Q/Q_s$ - отношение плотности энергии импульса  $Q(x) = \int_0^{\tau} I(x, t') dt'$  к плотности энергии насыщения  $Q_s = \frac{h\nu}{\sigma} \approx 2$  мДж/см<sup>2</sup>, I(x,t)- интенсивность УКИ, g(x)- распределение коэффициента усиления вдоль усилителя,  $\alpha_{ns}$ - ненасыщаемые потери. Граничным условием при x=0 является  $\varepsilon(x=0)=\varepsilon_{in}$ , где  $\varepsilon_{in}$ - нормированная на плотность энергии насыщения входная плотность энергии. При этом важным фактором, влияющим на усиление, является насыщение коэффициента усиления g(x) усиленным спонтанным излучением (УСИ).

В случае отсутствия ненасыщаемого поглощения уравнение (1.13) интегрируется и решение может быть представлено в виде [135]:

$$\varepsilon(x) = \ln[1 + (\exp(\varepsilon_{in}) - 1)\exp(g_0 x)]$$
(1.14)

Как видно, существуют два режима усиления, экспоненциальный рост энергии при  $\varepsilon \ll 1$  и линейный, когда энергия импульса существенно превосходит плотность энергии насыщения  $\varepsilon \gg 1$ . При учёте поглощения уравнение (1.13) аналитически не решается, однако как было показано в этой же работе [135], усиливаются только входные импульсы, для которых  $\varepsilon_{in} < \frac{g_0}{\alpha_{ns}}$ , где  $\frac{g_0}{\alpha_{ns}} = 10 \div 20$ - отношение коэффициента усиления слабого сигнала к коэффициенту ненасыщаемого поглощения лазерного излучения в активной среде, а при  $\varepsilon_{in} > \frac{g_0}{\alpha_{ns}}$  происходит

поглощение излучения, при этом асимптотическим решением уравнения (1.13) при  $\varepsilon > 1$  будет

$$\varepsilon(x) = \varepsilon_{in} \exp(-\alpha_{ns} x) + [1 - \exp(-\alpha_{ns} x)] \frac{g_0}{\alpha_{ns}}$$
(1.12)

В пределе бесконечно длинного усилителя,  $x \to \infty$  предельная извлекаемая энергия находится  $\lim_{x\to\infty} \varepsilon = \frac{g_0}{\alpha_{ns}}$ . Таким образом, в случае некогерентного усиления при инжекции УФ УКИ в усилитель в многопроходной схеме в случае насыщенного усиления можно ожидать предельной энергии в импульсе  $E_{\rm m} = \frac{g_0}{\alpha_{ns}} Q_s S$ , где S- площадь апертуры усилителя, а предельная достижимая плотность энергии составляет  $Q_s \frac{g_0}{\alpha_{ns}} \sim 50$  мДж/см<sup>2</sup>. Наибольшая эффективность усиления при  $g(x) \approx g_0$  достигается при  $E_{\rm opt} = Q_s \ln\left(\frac{g_0}{\alpha_{ns}}\right) S$ , т.е. при плотностях энергии  $Q_{opt} = Q_s \ln\left(\frac{g_0}{\alpha_{ns}}\right) \sim 4.6 \div 6.0$ мДж/см<sup>2</sup>.

На практике в большинстве лазерных систем подобные значения плотности энергии не достигались и связано это в первую очередь с нелинейными потерями в оптике и активной среде. Несмотря на то, что сама газовая активная среда обладает существенно более низким нелинейным показателем преломления по сравнению с твердотельными средами, наличие проходной оптики, а также протяженной (десятки метров в случае многопроходных схем) трассы усиления приводит к тому, что существенную роль начинает играть самофокусировка излучения и связанные с ней нелинейные потери.

## 1.2.3 Нелинейные потери при усилении

Нелинейные потери лазерного KrF лазерного излучения в различных УФ оптических материалах – плавленом кварце (SiO<sub>2</sub>), фтористом кальции (CaF<sub>2</sub>), фтористом барии (BaF<sub>2</sub>), фтористом магнии (MgF<sub>2</sub>) и фтористом литии (LiF) – измерялись ранее в ряде работ для субпикосекундных импульсов [136-138] и для импульсов длительностью 8 пс [139]. Ограничения, накладываемые нелинейным

поглощением в окнах на предельные мощности KrF-усилителей, обсуждались в обзоре [118]. Так как удвоенная энергия кванта KrF-излучения (10 эВ) превышает ширину запрещенной зоны в SiO<sub>2</sub> ( $D_E=7.8$  эВ) и BaF<sub>2</sub> ( $D_E=9.1$  эВ), то в этих материалах наблюдается сильное двухфотонное поглощение с коэффициентами  $\beta$ =(4.8÷8)×10<sup>-11</sup> и 1.1×10<sup>-10</sup> см/Вт соответственно, неприемлемое для окон KrFусилителей УКИ. В LiF (D<sub>E</sub>=11.6 эВ) и MgF<sub>2</sub> (D<sub>E</sub>=11.8 эВ) наблюдается только трехфотонное поглощение с коэффициентами  $g=1.6 \times 10^{-23}$  и  $1.1 \times 10^{-23}$  см<sup>3</sup>/Вт<sup>2</sup> соответственно [137]. Однако в этих материалах под действием мощных УФ УКИ или тормозного рентгеновского излучения, сопровождающего электронно-пучковую накачку KrF-усилителей, накапливаются долгоживущие центры окраски [138]. Максимумы полос поглощения для центров окраски в LiF и MgF<sub>2</sub> лежат вблизи длины волны лазерного излучения 248 нм, что делает эти материалы также непригодными для окон усилителей. В CaF<sub>2</sub> ширина запрещенной зоны D<sub>E</sub>=10 эВ совпадает с удвоенной энергией кванта лазерного излучения. В связи с этим имеются существенные расхождения в интерпретации механизма поглощения двухфотонное [136, 138] или трехфотонное [137, 139], а также большой разброс в измеренных значениях коэффициента трехфотонного поглощения у: для импульсов длительностью 8 пс получен  $\gamma = 2 \times 10^{-21}$  см<sup>3</sup>/Вт<sup>2</sup> [139], а для субпикосекундных УКИ  $-\gamma = 3.8 \times 10^{-23}$  см<sup>3</sup>/Вт<sup>2</sup> [137]. При этом в работе [139] отмечалось, что, помимо трехфотонного поглощения, к потерям в CaF<sub>2</sub> приводит нелинейное рассеяние излучения (33% при интенсивности падающего излучения 120 ГВт/см<sup>2</sup>) и образование центров окраски.

Потери в оптике усугубляются самофокусировкой излучения, которая приводит к неустойчивости волнового фронта и распаду пучка на множество филаментов с очень высокими локальными значениями интенсивности и плотности энергии (см. Главу 4). Критическая мощность самофокусировки излучения, пропорциональна квадрату длины волны излучения и обратно пропорциональна нелинейному показателю преломления

$$P_{cr} = \frac{3.77\lambda^2}{8\pi n_0 n_2} \tag{1.13}$$

– для излучение KrF лазера в воздухе ( $\lambda_{y\Phi}=248$  нм,  $n_{2,y\Phi}=(8\div10)\cdot10^{-19}$  см<sup>2</sup>·Bt<sup>-1</sup>) в 30 раз ниже, чем для ИК излучения ( $\lambda_{UK}=800$  нм,  $n_{2,UK}=(2.8\div3.0)\cdot10^{-19}$  см<sup>2</sup>·Bt<sup>-1</sup>).

В случае твердотельных ИК лазерных систем УКИ проблема самофокусировки и нелинейных потерь в твердотельной среде эффективно решается за счет усиления и последующего сжатия чирпированных по частоте и растянутых во времени импульсов [31]. Для широкоапертурных КгF усилителей эта технология становится малоприменимой. Во первых практически отсутствуют дифракционные решетки для УФ области спектра, необходимые для временного сжатия усиленных импульсов, основным ограничением здесь является низкая лучевая стойкость оптики и напылений, а также большая апертура усилителей, которая потребует использования огромных дифракционных решёток ( $S_{pem}~2S$  или ~650 см<sup>2</sup> для KrF усилителя ГАРПУН), чрезвычайно сложных и дорогих в производстве.

Резюмируя, во второй части диссертационной работы целью является исследование влияния самофокусировки лазерного излучения на нелинейные потери в проходной оптике и лазерной активной среде в многокаскадной гибридной Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/KrF лазерной системе «ГАРПУН-МТВ», а также возможности снижения нелинейных потерь, связанных с самофокусировкой излучения.

### Глава 2. Инструментарий и методика экспериментов.

Настоящая глава посвящена описанию основных частей многокаскадной гибридной Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/KrF лазерной системы «ГАРПУН-МТВ» [118]. Она состоит из двух каскадов KrF-усилителей с электронно-пучковой накачкой – оконечного ГАРПУН широкоапертурного усилителя И предусилителя «Бердыш», вспомогательного электроразрядного KrF-лазера TMSC-150 (Lambda Physik EMG), используемого для синхронизации накачки усилителей, а также Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> стартового комплекса «Старт-248М» производства 000 «Авеста-Проект». Стартовый комплекс генерирует ИК УКИ на длине волны 744 нм, энергия которых после утроения частоты излучения в полосу усиления KrF ( $B \rightarrow X$ ) составляет до 0.2 мДж при длительности импульсов ~90 фс. Стартовый комплекс работает с частотой 10 Гц. В режиме усиления вырезался одиночный УКИ, который усиливался в нескольких проходах через широкоапертурные KrF-усилители. Синхронизация всей установки осуществлялась от тактового генератора стартового комплекса. Через цифровые генераторы задержек он запускал импульсное высоковольтное питание формирующих линий KrF-усилителей и вспомогательный электроразрядный KrFлазер, который, в свою очередь, с точностью ±5 нс поджигал разрядники формирующих линий, нагруженных на вакуумные диоды, использовавшиеся для генерации электронных пучков накачки.

## 2.1 KrF усилители с электронно-пучковой накачкой.

Конструкция усилителя ГАРПУН [118] представлена на (Рис. 2.1). Предусилитель Бердыш устроен аналогично. Газовая активная среда, представлявшая из себя смесь Ar/Kr/F<sub>2</sub> = (89.65/10/0.35)% при абсолютном давлении 1.4 атм, накачивалась пучком быстрых электронов (обозначены на Рис. 2.1 зелёными стрелками), вводимых в лазерную камеру через боковые окна с разделительной Ті фольгой толщиной 25 мкм. Накачка усилителя ГАРПУН с объемом активной среды 16х18х100 см<sup>3</sup> производилась двумя встречными пучками электронов с энергией 400 кэВ, плотностью 60 кА (50 А/см<sup>2</sup>) и длительностью 100 нс, управляемых магнитным полем 0.08 Т, удельная мощность накачки усилителя ГАРПУН составляет W=0.7÷0.8 МВт/см<sup>3</sup>. Накачка предусилителя Бердыш с объемом активной среды 8х8х100 см<sup>3</sup> осуществлялась одним электронным пучком (с одной стороны) с энергией 350 кэВ, 50 кА (50 А/см<sup>2</sup>), длительностью 100 нс и удельной мощностью W= 0.6÷0.7 МВт/см<sup>3</sup>. Питание электронных пушек осуществлялось генераторами импульсного напряжения (ГИН) Аркадьева-Маркса, подключенными через водонаполненную двойную формирующую линию (ДФЛ).



Рис. 2.1 Конструкция КrF усилителя ГАРПУН с электронно-пучковой накачкой. 1камера активной среды, 2- световое окно из CaF<sub>2</sub>, 3- окно для ввода электронного пучка из Ті фольги, 4- опорная решётка фольги, 5- камера вакуумного диода, 6изолятор, 7- катод, 8- анодная сетка, 9- катушка магнитного поля, 10-

высоковольтный ввод.

### 2.2 Титан-сапфировая лазерная система

Для генерации УФ УКИ использовался Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> лазерный комплекс с утроением частоты «Старт-248М», работающий в режиме усиления чирпированных импульсов, основные узлы которого изображены на Рис. 2.2. Он состоит из задающего генератора, оптического стретчера, регенеративного и многопроходного усилителей, оптического компрессора и генератора третьей гармоники.



Рис. 2.2 Блок схема титан-сапфировой лазерной системы «СТАРТ-248М»

Задающий генератор представляет из себя кристалл Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, расположенный в Z-образном резонаторе с линзой Керра, накачиваемый непрерывным Nd:YAGлазером с удвоением частоты Laser Quantum «Finess-532». Задающий генератор формирует непрерывный цуг импульсов на длине волны 744 нм с шириной спектра  $\sim 20$  нм ( $\tau_p \sim 40$  фс) и частотой повторений 80МГц. Из цуга с помощью электрооптической ячейки с частотой 10 Гц вырезались импульсы, которые после чирпирования усиливались в двух каскадах Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> усилителей, накачиваемых импульсным Nd:YAG лазером Lotis TII LS-2134D, генерировавшим 15 нс импульсы с энергией 100 мДж и частотой повторения 10 Гц на длине волны 532 нм. После усиления и сжатия импульсов в компрессоре на выходе получались импульсы длительностью  $\sim 100$  фс, энергией 5 мДж и частотой повторения (TГ) в двух кристаллах BBO (генераторах второй гармоники и суммарной частоты) в результате чего получались УФ УКИ с энергией 0.1-0.3 мДж и частотой повторения 10 Гц на длине волны 248 нм, которая подстраивалась в максимум полосы усиления KrF усилителей  $(B \rightarrow X)$ .

## 2.3 Лазерный источник узкополосного KrF излучения

Оптическая схема KrF-лазера TMSC-150 EMG производства Lambda-Physik показана на Puc. 2.3. Лазер состоит из двух электроразрядных камер с общим коммутирующим тиратроном. Одна из лазерных камер использовалась в качестве генератора со спектрально-селективным «плоским» резонатором, в котором роль одного из зеркал выполняла дифракционная решётка в автоколлимационном режиме. Для увеличения дисперсии, и, как следствие, спектрального разрешения, использовался расширитель пучка из трёх кварцевых призм, что обеспечивало узкую линию генерации  $\Delta\lambda \sim 10^{-3}$  нм, много меньше полосы усиления на В—X переходе KrF. Диафрагмы 1 и 2 служили для селекции основной поперечной моды резонатора.



Рис. 2.3 Оптическая схема KrF лазера, работающего в режиме захвата излучения. 1,2 –диафрагмы, 3 – призмы, 4 – дифракционная решётка, М5- плоское полупрозрачное зеркало, М6, М7 - поворотные зеркала, М8- глухое сферическое зеркало с отверстием, М9- мениск

Узкополосное излучение генератора через отверстие в сферическом зеркале инжектировалось в конфокальный неустойчивый резонатор с большим

коэффициентом увеличения, установленный на второй разрядной камере. За счет инжекции затравочного узкополосного излучения ~95% выходной энергии лазерных импульсов (200 мДж, 25 нс) содержалось в узкой спектральной линии, перестраиваемой путём поворота дифракционной решётки в диапазоне  $\lambda$ =248.0÷248.8 нм.

## 2.4 Схема усиления УФ УКИ

В экспериментах использовались различные многопроходные схемы усиления УКИ в KrF усилителях. Базовая конфигурация [140], показанная на Рис. 2.4, представляла собой два прохода в предусилителе «Бердыш» и последующие два прохода в оконечном усилителе ГАРПУН (схема 2+2).



**Рис. 2.4** Схема усиления УФ УКИ в двух каскадах KrF усилителей с электроннопучковой накачкой.

В ряде экспериментов, где это указано в тексте, использовались схемы с четырьмя проходами через предусилитель Бердыш и двумя или одним проходом через усилитель ГАРПУН схема (4+2) и схема (4+1). Для уменьшения взаимовлияния усиленного спонтанного излучения (УСИ), возникавшего в каждом из усилителей, между усилительными каскадами находился вакуумный пространственный фильтр

длиной 6 м. В схемах (4+1) и (4+2) между вторым и третьим проходом через предусилитель Бердыш также устанавливался дополнительный вакуумный пространственный фильтр (подробнее см. Главу 4.1). Окна усилителей и пространственного фильтра, а также линзы дополнительного пространственного фильтра были изготовлены из высокочистого фтористого кальция марки ФКУ. Непросветленные окна располагались под небольшим углом к оптической оси, чтобы предотвратить паразитную генерацию. Все остальные элементы оптического тракта представляли собой высокоотражающие зеркала с диэлектрическим покрытием, нанесенным на подложки из кварца КУ-1. С их помощью лазерный пучок транспортировался вдоль тракта усиления, и его сечение согласовывалось с апертурами усилителей и пространственных фильтров. Юстировка всей оптической схемы и диагностического оборудования производилась с помощью непрерывного 10-Гц цуга УФ УКИ от стартового комплекса.

### 2.5 Диагностика проводимости плазмы

В исследованиях фотоионизационной плазмы в воздухе и составных газах, описанных в Главе.3, использовалась методика измерения проводимости плазмы в продольной геометрии, когда постоянное электрическое поле прикладывалось вдоль плазменного канала, образованного при фокусировке лазерного излучения между двумя медными трубчатыми (для устранения фотоэмиссии) электродами (Рис. 2.6). Параллельно разрядному промежутку подключалась ёмкость  $C_{3ap}=4.7$  мкФ заряжавшаяся от источника постоянного напряжения  $U_{3ap}$ . Возникавший в цепи ток регистрировался осциллографом. Величина зарядной ёмкости подбиралась таким образом, чтобы суммарный заряд  $Q_{3ap}=U_{3ap}(C_{3ap}+C_{3n})\approx U_{3ap}C_{3ap}$  (т.к.  $C_{3ap}>>C_{3n}$ ) накопленный на обкладках конденсатора  $C_{3ap}$  и межэлектродной емкости  $C_{3n}$ существенно превышал заряд, протекающий в контуре при возникновении плазмы  $Q_{nn}$ . Для типичного напряжения, использовавшегося в работе  $U_{3ap}= 3$  кВ,  $Q_{3ap}= 1.4 \times 10^{-3}$  Кл, при этом протекающий в контуре заряд можно найти из экспериментальных осциллограмм (см. например Рис. 2.7 или раздел 3.1.1) как  $Q_{\Pi\Pi} \approx \frac{1}{R_{ocu}} \int_{0}^{\infty} u_{BX}(t) dt$ , где  $u_{B}(t)$  осциллограмма фототока. Для наибольших лазерных интенсивностей (т.е. максимального интеграла от фототока)  $Q_{\Pi\Pi} \leq 10^{-8}$  Кл. Таким образом, накопленный заряд на обкладках конденсатора  $C_{3ap}$  более чем на 5 порядков превышал максимально возможный полный заряд, протекающий в цепи, и компенсировал падение напряжения  $U_{3ap}$ , связанное с протеканием фототока.



Рис. 2.6 Схематичный вид фотоэлектрического датчика

На рис 2.7а представлена типичная осциллограмма фототока на высокоимпедансном ( $R_{ocu}=1$  МОм) входе осциллографа. Она имеет два компонента: первоначальный резкий скачок  $\Delta u$  и медленный сигнал, постепенно нарастающий и снижающийся за времена порядка нескольких сотен микросекунд. Подобное поведение тока описано в литературе, для импульсных ионизационных камер [141], а также для датчиков тока в фотоионизационной плазме с продольной геометрией [142, 143]. Его можно объяснить, если учесть разную дрейфовую скоростью электронов  $v_{3n}\sim 10^6$  см/с и ионов  $v_{HOH}\sim 10^4$  см/с: начальное  $\Delta u$  на рис 2.7а является интегрированным по времени током электронов, который возникает синхронно с лазерным импульсом (не разрешен на осциллограмме), а последующий медленный компонент является ионной составляющей тока.



Рис. 2.7 Типичные осциллограммы фототока (а)  $R_{osc} = 1$  МОм для 25 нс импульса KrF лазера с  $I_0 = 10^9$  BT/см<sup>2</sup>, (б)  $R_{osc} = 50$  Ом, создаваемые (1)- УФ УКИ с  $I_0 = 3 \times 10^{11}$  BT/см<sup>2</sup> (2) 25-нс лазерного импульса с  $I_0 = 2 \times 10^{10}$  BT/см<sup>2</sup>

Ток достигает максимального значения за 40 мкс, что приблизительно соответствует времени интегрирования на высокоимпедансном входе осциллографа, а затем медленно спадает вследствие взаимной рекомбинации положительных и отрицательных ионов. При переходе на низкоимпедансную нагрузку  $R_{ocq}$ =50 Ом, временное разрешение становится достаточным (~1 нс), чтобы разрешить во времени электронную компоненту тока (Рис. 2.7 (б)). Более подробно вид и форма осциллограмм электронного тока обсуждаются в разделе 3.1.1.

Отметим, что в подобных датчиках возможно ограничение электронного тока из-за поляризации плазмы. При протекании тока на концах плазменного канала образуются заряженные слои свободных электронов и ионов, поле между которыми может компенсировать приложенное внешнее поле. Чтобы оценить влияние поляризации на работу датчика, рассмотрим упрощенный случай цилиндрического плазменного канала длины Z созданного мгновенно без контакта между двумя плоскими электродами в приложенном постоянном электрическом поле E (Рис. 2.8а). Заряд, образующийся на концах плазменного канала можно оценить как  $Q=e \times V_{cM} \times N_e$ , где e- заряд электрона,  $V_{cM}$  – объем заряженного слоя,  $N_e$ - концентрация электронов в

нем. Полагая, что на временах жизни электронов (~10÷100 нс) ионы покоятся (скорость дрейфа ионов на 3 порядка ниже, чем электронов), будем считать, что объем  $V_{\rm cm}$  одинаков для свободных электронов и ионов и определяется только смещением электронов.



Рис. 2.8 (а) Иллюстрация смещения электронов в плазменном канале находящемся во внешнем поле; (б) Рассчитанные значения напряженности поля в момент времени t'=1 нс между слоями плазмы с различной начальной концентрацией электронов  $N_e^0$ , пунктирной линией отмечена средняя по промежутку напряженность внешнего приложенного поля E=4 кB/см

Первоначально, на временах меньше характерных времен столкновений электронов с нейтральными молекулами t<1/v<sub>тр</sub>, электроны набирают скорость v(t) в электромагнитном поле с ускорением  $a = \frac{eE}{m_e}$ , затем в результате соударений с молекулами устанавливается средняя дрейфовая скорость  $v_{\rm дp}$ , определяемая приложенным полем E. Для простоты будем считать, что средняя скорость электронов линейно растёт до момента достижения дрейфовой скорости  $t = v_{\rm дp}/a$ . Тогда величину смещения электронов за время t' можно оценить как  $L_{\rm cm} = \int_0^{t'} v(t) dt$ , где  $v(t) = \begin{cases} at$  при  $t < v_{\rm дp}/a$ . Из смещения электронов, можно определить объем заряженной области  $V_{\rm cm}$  и суммарный заряд Q на краях плазменного канала. Для случая гауссова поперечного профиля распределения плазмы с радиусом перетяжки по полувысоте  $R_{1/2}$ ,

$$V_{\rm CM}(t') = \frac{\pi R_{1/2}^2}{2} \int_0^{t'} v(t) dt$$
 (2.1)

$$Q(t') = eN_e(t')\frac{\pi R_{1/2}^2}{2}\int_0^{t'} v(t)dt$$
(2.2)

Гибель электронов за время разлета  $N_e(t')$  оценивалась с использованием численной модели, описанной в работе [85].

Для реального плазменного канала, создаваемого лазерным излучением, величины  $L_{\rm CM}$  и  $R_{1/2}$  много меньше длины плазменного канала Z= 0.7 см (для напряженности поля E=4 кB/см  $v_{\rm dp}(E) = 3 \times 10^6$  см/с, смещение за время жизни электронов ~10 нс составляет  $L_{\rm CM} = 2.4 \times 10^{-2}$  см, а типичный размер плазменного канала составляет  $R_{1/2} \approx 25 \div 50$  мкм). Исходя из этого, можно рассматривать заряды слоев электронов и ионов Q(T) как точечные, а кулоновское поле между ними как

$$E(r,t') = \frac{1}{4\pi\varepsilon_0} \left[ \frac{Q(t')}{r^2} + \frac{Q(t')}{(Z-r)^2} \right]$$
(2.3)

где r=0 соответствует центру слоя электронов. Рассчитанные значения электрического поля E(r) в момент времени t'=1 нс (соответствует временному разрешению схемы) для плазменного канала длиной Z=0.7 см с гауссовым распределением электронов  $R_{1/2} \approx 25$  мкм, находящегося во внешнем поле E=4кВ/см в зависимости от пиковой начальной плотности электронов приведены на Рис. 2.86. Как видно, в низкоплотной плазме  $N_e^0 < 10^{15}$  см<sup>-3</sup> поле, создаваемое свободными зарядами, почти во всём межэлектродном промежутке меньше приложенного внешнего поля и не оказывает существенного влияния на дрейф электронов. При больших плотностях электронов поле между слоями начинает существенно ослаблять внешнее поле, что может приводить к ограничению измеряемого электронного тока. Подобные эффекты, предположительно, наблюдались в эксперименте (см. Рис. 3.5-3.6 и подпись к ним). Отметим, что для больших времен разлета t' накопление заряда и рост поля ограничивается гибелью электронов.

Таким образом, при начальных концентрациях электронов  $N_e^0 < 10^{15}$  см<sup>-3</sup>, плазменный канал, создаваемый лазерным излучением, можно рассматривать как переменное омическое сопротивление R(t), которое связано с внешней цепью через цилиндрические конденсаторы  $C_1$  образуемые электродами и плазменным каналом. Их емкость можно оценить как  $C_1 = \frac{2\pi\varepsilon_0 L_1}{\ln(r_{3\pi}/R_{1/2})} \approx 0.08$  пФ, где  $L_1 = 1$  мм - оценочная длина ёмкости,  $r_{3\pi}=1$  мм внутренний радиус электрода. Для типичных сигналов фототока длительностью  $\tau \approx 5$  нс, сопротивление ёмкости сигналу соответствующей частоты равно  $R_1 = \frac{1}{\omega C_1} \approx \frac{\tau}{\pi C_1} \approx 80$  кОм. Для сравнения сопротивление плазменного канала с концентрацией электронов  $N_e^0 = 10^{14}$  см<sup>-3</sup> составляет  $R(t = 0) = \frac{L}{eN_e^0 \mu_e S} \approx 3$  МОм. Поскольку  $R(t) \gg R_1$  наличием ёмкостной связи можно пренебречь. В этом случае решив систему уравнений Кирхгофа для цепи на Рис. 2.6., можно установить связь между сопротивление R(t) и напряжением на входе осциллографа  $u_{\text{вх}}(t)$  как:

$$\frac{1}{R(t)} = \frac{du_{\rm BX}(t)}{dt} \frac{C_{\rm BX}}{U_{\rm 3ap}} + u_{\rm BX}(t) \frac{1}{R_{\rm oct} U_{\rm 3ap}}$$
(2.4)

где  $C_{\rm BX}$  - входная емкость, которая состоит из емкости входа осциллографа  $C_{\rm ocu}=13$  пФ и подводящих проводов  $C_{\rm пp} \approx 30$  пФ. В описанных в Главе 3 экспериментах для обеспечения максимального временного разрешения (минимального  $R_{\rm ocu}C_{\rm BX}$ ) использовалось входное сопротивление  $R_{\rm ocu}=50$  Ом, согласованное с волновым сопротивлением подводящего кабеля. При этом вклад первого члена в правой части соотношения (2.1) становился пренебрежимо малым и сигнал на осциллографе был пропорционален проводимости плазменного канала (1/R(t)) и напряжению (напряженности электрического поля) на промежутке.

$$u_{\rm BX}(t) = \frac{R_{\rm ocu} U_{\rm 3ap}}{R(t)} \tag{2.5}$$

Это проверялось в эксперименте для фотоионизационной плазмы создаваемой KrF лазером. Импульсы длительностью 25 нс и с энергией  $\varepsilon = 150$  мДж с помощью линзы f=1 м (NA $\approx 0.01$ ) фокусировались в датчик, амплитуда сигнала которого  $u_{\text{мах}}$  измерялась при различных значениях зарядного напряжения  $U_{\text{зар}}$  (Рис. 2.9а). Как видно, зависимость  $u_{\text{мах}}(U_{\text{зар}})$  линейна. Небольшое отклонение от линейной зависимости наблюдается при больших полях E>6 кB/см, что, вероятно, связано с началом размножения электронов в поле за счет столкновительной ионизации.





Аналогичный эксперимент был сделан для хорошо описанного в литературе случая филаментации 130 фс ИК импульсов Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> лазера с  $\lambda$ =744 нм. Лазерные импульсы с энергией  $\varepsilon = 0.7$  мДж ( $P \approx 2P_{cr}$ ) с помощью линзы с f=50 см (NA $\approx 0.016$ ) фокусировались в датчик, сигнал с которого измерялся при различных значениях

зарядного напряжения U<sub>зар</sub> (Рис. 2.96). Наличие филамента, в котором плотность плазмы стабилизируется за счет баланса самофокусировки и дефокусировки на фотоионизационной плазме позволяло поддерживать фиксированную концентрацию электронов в плазменном канале в течение всего эксперимента. В случае отсутствия филаментации, ввиду большой степени нелинейности МФИ К=8 даже небольшие изменения энергии лазерного импульса приводили бы к многократному изменению плотности электронов. Как видно, для фиксированной начальной концентрации электронов зависимость амплитуды сигнала от напряженности поля близка к линейной. Небольшое отклонение от линейной зависимости наблюдается при малых полях (<2 кВ/см), что связано с нелинейной зависимостью дрейфовой скорости электронов в воздухе от напряженности электрического поля в этом диапазоне (см. например [12, 144]). В случае эксперимента с 25 нс импульсами KrF лазера (Рис. 2.9a) аналогичного отклонения от линейной зависимости при малых полях (<2 кВ/см) не наблюдается. По всей видимости, это связано с тем, что измеряемый в эксперименте максимум тока достигается во время действия лазерного импульса (см. раздел 3.1.1), при этом температура и подвижность электронов задаётся не только приложенным зарядным напряжением  $U_{3ap}$ , а также их нагревом в поле световой волны.

Таким образом, для датчика фототока амплитуды измеряемых сигналов  $u_{\rm bx}$ (вид и форма сигналов подробно обсуждаются в Главе 3) линейно зависели от приложенного поля (Рис. 2.9), т.е. выполнялся закон Ома. Он также выполнялся при вариации длины межэлектродного промежутка *L* при фиксированном зарядном напряжении [145]: амплитуда сигнала фототока была обратно пропорциональна длине межэлектродного промежутка. На основании этого, плазменный канал, создаваемый лазерным излучением, рассматривался как омический проводник, а из измеренного сопротивления канала *R*(*t*) находилась удельная проводимость плазмы и соответствующая ей концентрация электронов (подробнее см. Главу 3.1) Отметим, что если для данных на Рис 2.96 задаться известными параметрами плазменного канала, соответствующими хорошо изученному случаю жесткой фокусировки ИК филамента в воздухе [7, 146], то можно решить обратную задачу: рассчитать подвижность носителей тока для кривой на Рис. 2.96. Используя связь между удельной проводимостью ( $\sigma = \frac{L}{R(t)s}$ , где *L*- длина канала,  $s = \int_0^\infty e^{-\frac{Kr^2}{2r_{1/e}^2}} r dr = \pi r_{1/e}^2/K$ - оценка площади плазменного канала для лазерного пучка радиуса  $r_{1/e}$  и степени многофотонности ионизации *K*) и концентрацией электронов ( $N_e = \frac{\sigma}{\mu_e e}$ , где *e* и  $\mu_e$ - заряд и подвижность электронов) можно из (2.5) получить формулу, для подвижности носителей тока в промежутке для заданного поля  $U_{3ap}$ 

$$\mu = u_{\rm BX}(t) \frac{L}{eR_{\rm ocu}U_{\rm 3ap} s N_e} \tag{2.6}$$

Подставив значения напряженности поля  $E=U_{3ap}/L=7$  кВ/см,  $u_{Bx}^{max}=1.25$  В из рис. 2.96, и параметры плазменного канала из [146]  $r_{1/e} = 30$  мкм,  $N_e^{max} = 10^{16}$  см<sup>-3</sup>, K=8 можно оценить подвижность носителей тока как  $\mu = \frac{u_{Bx}LK}{eN_eR_{ocu}U_{3ap}\pi r_{1/e}^2} \approx 630 \frac{\text{см}^2}{\text{B}c}$ . Данное значение по порядку величины хорошо соответствует значению подвижности электронов в воздухе для данной напряженности поля  $\mu = 770 \frac{\text{см}^2}{\text{B}c}$  из [12].

Значение зарядного напряжения  $U_{3ap}$  подбиралось таким образом, чтобы обеспечить максимальные значения сигнала фототока, но чтобы при этом не происходило лавинного размножения электронов и электрического пробоя промежутка. Типичные значения напряжения составляли  $U_{3ap}=3$  кВ для воздуха, азота и кислорода и  $U_{3ap}=0.1$  кВ для благородных газов, а соответствующие напряженности поля  $E=U_{3ap}/L\approx4.2$  кВ/см и 0.14 кВ/см. Низкие значение

напряженности электрического поля в благородных газах, по сравнению с молекулярными, связаны с тем, что в благородных газах, ввиду отсутствия низколежащих энергетических уровней с колебательной и вращательной структурой, и, как следствие, неупругих электрон-молекулярных соударений, происходит эффективный нагрев электронов приложенным полем. В связи с этим пробойные напряженности поля в создаваемой лазерным импульсом плазме благородных газов составляли несколько сотен В/см.

### 2.6 Регистрирующая аппаратура и методики измерений

Для контроля усиливаемых УКИ и УСИ использовались коаксиальные вакуумные фотодиоды ФЭК 29 КПУ с временным разрешением ~1 нс и кремниевые фотодиоды Thorlabs DET-210 и DET-10A/M с разрешением ~0.5 нс, сигналы с которых регистрировались на четырехканальном цифровом осциллографе Tektronix TDS-3054 с частотой дискретизации 5 ГГц, либо TDS-2024 с дискретизацией 2ГГц.

Энергетические характеристики лазерного излучения измерялись с помощью калориметра Ophir Nova II PE50-SH-V2 либо калиброванных калориметров ВЧД-2 и КДМ производства ОКБ ФИАН.

Ослабление энергии излучения Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> стартового комплекса и электроразрядного KrF лазера производилось с помощью ступенчатого дифракционного аттенюатора DVA-22-250 производства ИАиЭ СО РАН, позволявшего менять энергию излучения на длине волны 248 нм в диапазоне 1÷90% от начальной.

Для регистрации поперечного профиля излучения использовались ПЗС камеры Видеоскан-285-UV и Ophir SP620U

Спектральные характеристики излучения измерялись с помощью спектрометра Avesta ASP-150, со спектральным разрешением в УФ диапазоне 0.2 нм

В экспериментах при пониженном давлении газа использовался датчик давления MicroPirani-925 с измерительным модулем MKS PDR900-1.

Для измерения длительностей УКИ использовался сделанный автором диссертации одноимпульсный автокоррелятор на встречных пучках на основе XeF газовой ячейки, содержащей He/Xe/F<sub>2</sub> = (74/25/1)% при абсолютном давлении 4 атм принцип действия которого описан в [147].

# Глава 3. Измерение констант скорости ионизации и распада в фотоионизационной воздушной плазме, создаваемой лазерным излучением на длине волны 248 нм.

Настояшая глава посвяшена детальному исслелованию механизмов фотоионизации воздуха УФ импульсным лазерным излучением на длине волны λ=248 нм и последующей эволюции такой плазмы. Обзор имеющейся литературы в Главе 1 показал, что имеющиеся данные о механизмах многофотонной ионизации атмосферного воздуха и входящих в его состав газов весьма противоречивы, а измеренные сечения фотоионизации отличаются друг от друга на много порядков. Характерные времена жизни воздушной плазмы часто измерены без учета влияния водяных паров и также отличаются в несколько раз. Цель диссертационной работы состояла в выявлении основных механизмов фотоионизации атмосферного воздуха и входящих в его состав газов импульсами различной длительности, интенсивности и спектра. Полученные новые ширины экспериментальные данные показали ошибочность общепринятых представлений о доминирующей роли кислорода в ионизации воздуха, уточнили механизмы и величины сечений многофотонной ионизации, а также состава и скоростей релаксации воздушной плазмы.

## 3.1. Исследование механизмов фотоионизации воздуха и его компонентов.

# 3.1.1 Характерные осциллограммы фотоионизационного тока, квазистационарный и неквазистационарный случаи

С целью проведения исследований в как можно более широком диапазоне интенсивностей и для разных длительностей импульса, в экспериментах были задействованы два различных лазера, а именно, электроразрядный KrF лазер и титан-сапфировый лазер с утроением частоты. Первый генерировавал узкополосное  $(\Delta\lambda \sim 10^{-3} \text{ нм})$  импульсное излучение перестраиваемое в диапазоне  $\lambda = 248.0 \div 248.8$  нм с

энергией E=200 мДж и длительностью  $\tau_p=25$  нс по полувысоте, второй широкополосные ( $\Delta\lambda\sim1$  нм) УКИ на центральной длине волны 248.5 нм, с энергией E=150 мкДж и длительностью импульсов  $\tau_p=90$  фс.

Лазерные импульсы с помощью линзы с f=1м, что для размера пучка обоих лазеров соответствовало числовой апертуре  $NA\approx 0.02$ , фокусировались в межэлектродный промежуток схемы измерения проводимости, описанной в Главе 2.5, размещенной в наполненной воздухом или одним из атмосферных газов вакуумной камере. При этом в лазерной перетяжке за счет многофотонной ионизации образовывался плазменный канал, продольный размер (Рэлеевская длина) которого ~5÷6 см превышал межэлектродное расстояние L= 0.85мм. Ток, протекающий через плазму в приложенном электростатическом поле 4.2 кВ/см, измерялся с помощью осциллографа TDS3054C. Характерные осциллограммы, полученные в эксперименте, приведены на Рис. 3.1.



Рис. 3.1 Типичные осциллограммы (а) для 25-нс лазерного импульса (1)-временная форма лазерного импульса и нормированный фототок в атмосферном воздухе для пиковых лазерных интенсивностей *I*<sub>0</sub>: (2) 10<sup>9</sup> и (3) 2×10<sup>10</sup> Вт/см<sup>2</sup>; (б) Нормированный фототок для УФ УКИ *I*<sub>0</sub>: (1) 3×10<sup>11</sup> и (2) 7×10<sup>10</sup> Вт/см<sup>2</sup>.

Чтобы объяснить поведение тока следует обратиться к упрощенному кинетическому уравнению для электронной плотности (1.1).

$$\frac{dN_e}{dt} = \underbrace{N_0 \sum_{j} \alpha_j \sigma_j^{(K)} I^K}_{\text{двухчаст.прилип.}} - \underbrace{N_e N_{O_2} \left(k_1 N_{O_2} + k_2 N_{H_2O} + k_3 N_{N_2}\right)}_{\text{трехчастичное прилипание электронов к кислороду}} + \underbrace{N_e N_{O_2} \left(k_1 N_{O_2} + k_2 N_{H_2O} + k_3 N_{N_2}\right)}_{\text{двухчаст.прилип.}}$$

Поскольку мы полагаем прилипание полностью подавленным во время действия лазерного импульса в связи с явлением фотоотрыва, а измерительная схема не чувствительна к диффузии электронов (см. Главу 1.2.1), во время действия лазерного импульса фототок, пропорциональный концентрации электронов, определяется исключительно конкуренцией наработки электронов в процессах МФИ и REMPI и их гибели в результате диссоциативной рекомбинации.

$$\frac{dN_e}{dt} = N_0 \sum_j \alpha_j \sigma_j^{(K)} I^K - k_5 N_e N_{M^+}$$
(3.1)

Для длинных 25 нс импульсов (Рис 3.1а), в случае, когда характерные времена гибели электронов много больше длительности импульса (при низких лазерных интенсивностях, и низких концентрациях электронов  $N_0 \sum_j \alpha_j \sigma_j^{(K)} I^K \gg k_5 N_e N_{M^+})$ схема регистрирует накопление электронов за время действия лазерного импульса  $N_e(t) = N_0 \sum_j \int_0^t \alpha_j \sigma_j^{(K)} I^K(t') dt'$  (передний фронт осциллограммы (2)), а после окончания импульса наблюдается распад фотоионизационной плазмы. При высоких быстрой электронов рекомбинации плотностях И устанавливается квазистационарный ток, который, с учетом квазинейтральности плазмы  $N_{M^+} \approx N_e$ , можно записать как  $N_e(t) \sim \sqrt{N_0 \sum_j \alpha_j \sigma_j^{(K)} I^K / k_5}$  (осциллограмма (3)). В случае УКИ, работающего как б-источник свободных электронов, ток по определению неквазистационарный и на Рис. 3.1(б) наблюдается распад электронной компоненты плазмы. В более плотной плазме при высоких лазерных интенсивностях он определяется диссоциативной рекомбинацией (осциллограмма 1), а в плазме с меньшей плотностью – трехчастичным прилипанием (осциллограмма 2). Последний случай подробно описан в Главе 3.2.



**Рис. 3.2** Измеренное нормированное распределение интенсивности *f*(*r*) в фокусе линзы с *f*=1 м для (а) 170 фс УКИ (точки) с Гауссовой аппроксимацией (пунктирная кривая); (б) 25 нс лазерного импульса (1) и содержание энергии в зависимости от

## радиуса (2).

В неквазистационарном случае, когда происходит накопление электронов, измеряемый пиковый сигнал фототока  $u_{\text{max}}$  является интегральной величиной и определяется проинтегрированной по пространству и времени интенсивностью лазерного излучения  $I_0^K \iint 2\pi r f^K(r) g^K(t) dr dt$ , где  $I_0 = E / \int 2\pi r f(r) dr \int g(t) dt$ мгновенная пиковая лазерная интенсивность по нормированным радиальному f(r) и временному g(t) распределению интенсивности, E- энергия лазерного импульса, Kстепень нелинейности процесса МФИ или REMPI. Для случая УКИ, предполагая Гауссову пространственную и временную форму импульса, удельная проводимость плазмы максимальна на оптической оси в конце лазерного импульса и связана с

фототока измеряемым сигналом  $u_{max}$ как  $\sigma_{max} = u_{max}L/U_{
m sap}R_{
m ocu}2\pi\int_{0}^{\infty}re^{-Kr^{2}/2r_{
m 1/e}^{2}}dr$ . Здесь  $r_{
m 1/e}$ = 40 мкм взято из Гауссовой аппроксимации распределения интенсивности, измеренного с помощью цифрового профилометра OPHIR SP620U (Рис. 3.2а). Концентрация электронов связана с удельной проводимостью как  $N_e = \sigma/e\mu_e$ , где e- элементарный заряд,  $\mu_e$  – подвижность электронов в соответствующем газе [12]. Значения  $\mu_e$ , использованные при расчетах составили 1200 см<sup>2</sup>B<sup>-1</sup>c<sup>-1</sup>, 680 см<sup>2</sup>B<sup>-1</sup>c<sup>-1</sup> и 770 см<sup>2</sup>B<sup>-1</sup>c<sup>-1</sup>, для О<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> и воздуха соответственно. Начальная концентрация электронов  $N_{\rho}^{0}$ , которая вычислялась из экспериментальных данных ниже, является максимумом по пространственному распределению, который достигается в конце действия лазерного импульса  $N_e^0 = u_{max} L K / U_{3ap} R_{ocu} \pi r_{1/e}^2 e \mu_e$ . Аналогичные вычисления производились для случая 25-нс импульса с учетом измеренных радиальной f(r)(Рис. 3.2б) и временной g(t) (Рис. 3.1а) форм импульса.

## 3.1.2 Ионизация воздуха 25-нс импульсами KrF лазера

Используя перестраиваемое узкополосное излучение KrF лазера, была измерена спектральная зависимость выхода фотоионизации (электронной плотности) атмосферного воздуха, представленная на Рис. 3.3. Идентичная спектральная зависимость была получена и для других исследовавшихся газов высокой чистоты, а именно азота, кислорода, аргона и гелия. Отсюда логично предположить, что и в воздухе, и в баллонных газах фотоионизация происходит с участием одного и того же примесного вещества. Из сравнения с работой [59] выяснилось, что спектр на Рис. 3.3 принадлежит колебательно-вращательной полосе двухфотонных  $\tilde{C}^1B_1 \leftarrow \tilde{X}^1A_1$  переходов молекулы воды.

Идентичность спектра для всех исследовавшихся газов и воды указывает на то, что вода в разных количествах присутствует в каждом из них. Далее оказалось, что во всех исследуемых газа наблюдается квадратичная зависимость концентрации электронов от интенсивности лазерного излучения (см. например Рис. 3.4). Эти измерения проводились для трёх длин волн, отмеченных на Рис 3.3 буквами *A*, *B* и *C*, которые приходятся на максимум (A) и минимумы между спектральными линиями (В и C) уширенных из-за короткого времени жизни  $\tilde{C}^1B_1$  уровня (см подробнее [59]). Следовательно, можно сделать вывод, что первой ступенью фотоионизации является резонансное двухфотонное возбуждение молекулы воды, скорость которой пропорциональна 2й степени интенсивности лазерного импульса.



**Рис. 3.3** Нормированный спектр выхода фотоионизации атмосферного воздуха. Спектральные пики соответствуют колебательно-вращательной структуре двухфотонных  $\tilde{C}^1B_1 \leftarrow \tilde{X}^1A_1$  переходов молекулы H<sub>2</sub>O [59].

На следующем этапе происходит фотоионизация либо возбуждённых молекул воды  $H_2O^*$ , либо молекулярного  $N_2^*(O_2^*)$  возбужденного в столкновениях с  $H_2O^*$ ,

либо продуктов диссоциации  $H_2O^*$ . Столкновительная передача энергии от молекулы  $H_2O^*$ молекулам азота или кислорода маловероятна, так как промежуточное возбужденное  $\tilde{C}^1B_1$  состояние является короткоживущим, с характерными временами предиссоциации ~0.5 пс [148], а характерное время межмолекулярных соударений при атмосферном давлении составляет ~нс что намного больше. Чтобы подтвердить это проводился дополнительный эксперимент, где сравнивалась эффективность ионизации O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub> и Не с одинаковым содержанием водяного пара. Поскольку в Не отсутствуют электронные уровни с энергией ниже 20 эВ, передача возбуждения молекулами воды атомам гелия невозможна. Полученные концентрации электронов во всех трех случаях были одинаковыми. Таким образом, можно сделать вывод, что канал передачи энергии с двухквантово возбужденной молекулы воды на кислород и азот даёт незначительный вклад в ионизацию атмосферного экспериментах [62] наблюдалась воздуха, хотя ранее В люминесценция на переходе азота при передачи возбуждения от молекул воды.

Чтобы понять, наблюдается ли фотоионизация  $H_2O^*$  или продуктов диссоциации, рассмотрим кинетику процесса REMPI ионизации следуя [65]. Для m+n ионизации из основного состояния X через промежуточный уровень A в континуум C можно записать следующую систему кинетических уравнений:

$$\begin{cases} \frac{dN_X}{dt} = -N_X \sigma_{A\leftarrow X}^{(m)} I^m + N_A \left( \sigma_{A\leftarrow X}^{(m)} I^m + \gamma \right) \\ \frac{dN_A}{dt} = +N_X \sigma_{A\leftarrow X}^{(m)} I^m - N_A \left( \sigma_{A\leftarrow X}^{(m)} I^m + \sigma_{C\leftarrow A}^{(n)} I^n + \gamma + \delta \right) \\ \frac{dN_e}{dt} = N_A \sigma_{C\leftarrow A}^{(n)} I^n \end{cases}$$
(3.1)

Здесь  $\gamma$ - вероятность излучательного распада промежуточного уровня A,  $\delta$ вероятность его предиссоциации в возбужденное, но неионизуемое состояние. В этом случае эффективную скорость ионизации  $\frac{dN_e}{dt} = \omega$  можно записать как
$$\omega = \frac{N_X \sigma_{C \leftarrow A}^{(n)} \sigma_{A \leftarrow X}^{(m)} I^{m+n}}{\sigma_{C \leftarrow A}^{(n)} I^n + \gamma + \delta}$$
(3.2)

Как видно из этой формулы, снижение порядка степени в зависимости ионизации от интенсивности при REMPI наблюдается в случае  $\sigma_{C \leftarrow A}^{(n)} I^n \gg \gamma + \delta$ , т.е. когда вероятность фотоионизации возбужденного состояния много больше вероятности предиссоциации и распада уровня. Поскольку в экспериментах наблюдалась квадратичная зависимость концентрации электронов от интенсивности лазерного излучения (см. Рис. 3.4), т.е. снижение порядка степени ионизации K с m+n=3 до 2, скорость однофотонной ионизации  $\tilde{C}^1B_1$  уровня оказывается выше скорости предиссоциации. Превышение скорости однофотонной ионизации  $\tilde{C}^1B_1$  уровня над скоростью его предиссоциации также обсуждается в работе [59]. Подобная высокая эффективность однофотонного перехода из возбужденного состояния в континуум является, по всей видимости, следствием однофотонного резонанса для перехода из возбужденного состояния воды в состояние молекулярного иона  ${}^2A_1(3a_1^{-1}) \leftarrow \tilde{C}{}^1B_1$ [149].

Таким образом, можно сделать вывод, что основным механизмом ионизации воздуха лазерным излучением на длине волны  $\lambda = 248$  нм (а также прочих) исследуемых газов) является (2+1) REMPI молекул воды. Стоит отметить, что паспортное содержание водяного пара в газах высокой чистоты составляет  $\sim 0.5 \times 10^{-4}$ об% т.е. при наиболее часто используемом давлении 1 атм и температуре T=21 °C  $2.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ абсолютная  $(N_0 =$ концентрация молекул воды составляет  $N_{\rm H2O} \sim 1.25 \times 10^{13}$  см<sup>-3</sup>. Тем не менее, за счет высокоэффективной резонансной ионизации, даже при таком низком содержании молекул воды ионизация исследуемых газов низкоинтенсивным излучением несравнимо мала по сравнению с ионизацией водяного пара.

Этот вывод подтвердили эксперименты, в которых газы перед напуском в фотоионизационного камеру для измерения тока пропускались через высокоэффективную азотную ловушку, представлявшую из себя длинную ~5 м, закрученную в спираль стальную трубку Ø 5 мм, погруженную в ёмкость с жидким азотом. В свою очередь, камера также откачивалась с использованием ловушки с жидким азотом. В результате осушки газов сигналы фототока в азоте, аргоне и гелии полностью исчезли, а в кислороде они сильно уменьшились, при этом выход ионизации перестал зависеть от длины волны в окрестности 248 нм. Поскольку содержание молекулы воды в воздухе является переменной величиной, зависящей от погодных условий и лабораторного помещения, в дальнейшем использовались искусственные специально приготовленные смеси. В качестве сухого воздуха использовались осушенные  $N_2$  и  $O_2$  в соотношении 4:1 при давлении p=1 атм. В качестве влажного воздуха использовался атмосферный, влажность которого  $\eta \approx 100\%$ за добавления в увеличивалась ДО счет камеру предварительно дистиллированной и деионизованной воды. При атмосферном давлении И лабораторной температуре T=21°C содержание воды в нем составляло ~2.3% и соответствовало абсолютной концентрации молекул воды  $N_{\rm H2O}$ =5.8×10<sup>17</sup>см<sup>-3</sup>.

Варьируя падающую энергию лазерного импульса с помощью ступенчатого аттенюатора в диапазоне 2÷200 мДж, были получены зависимости концентрации электронов от интенсивности лазерного излучения для сухого и влажного воздуха (Рис. 3.4). Измерения проводились для длины волны отмеченной буквой A на Рис. 3.3. Напомним, что интенсивность  $I_{0}$ , отмеченная на графике, является максимумом по временному и пространственному распределению импульса, а концентрация электронов  $N_e^0$  представляет из себя пиковую концентрацию электронов (для неквазистационарного тока в конце действия лазерного импульса). Как видно из Рис. 3.4, в случае влажного воздуха нарабатываемая лазерным импульсом концентрация электронов на 2 порядка превышает концентрацию электронов в сухом воздухе. Во влажном воздухе наблюдается квадратичная зависимость концентрации электронов от интенсивности (K=2), что подтверждает предположение о (2+1) REMPI, тогда как в случае сухого воздуха ограниченное количество экспериментальных данных не позволяет сделать достоверного вывода о степени многофотонности, которая укладывается в диапазон  $K=2\div3$ .



**Рис. 3.4** Зависимость концентрации электронов от пиковой интенсивности 25 нс лазерного импульса в сухом (кресты) и влажном ( $N_{\rm H2O}$ =5.8×10<sup>17</sup> см<sup>-3</sup>, точки) воздухе с аппроксимацией степенными зависимостями. Аппроксимация *I*<sup>3</sup> рассчитана из данных для УКИ (см. текст).

Аппроксимирующая кривая ~ $I^3$  на Рис. 3.4 рассчитана исходя из данных полученных для УКИ (см. раздел 3.1.3) с учетом различия пространственной и временной формы импульса. Наблюдаемое во влажном воздухе «насыщение» сигналов при интенсивностях >10<sup>10</sup> BT/см<sup>2</sup> (уменьшение наклона с K = 2 на K = 1) является

следствием перехода к режиму квазистационарного тока (см. Рис. 3.1а и подписи к ним), при котором  $N_e(t) \sim \sqrt{I^K}$  и, соответственно, при K = 2, измеряемая  $N_e \sim I$ .

Было экспериментально проверено, что 1% добавка аргона к сухому воздуху, соответствующая его реальному содержанию в атмосфере, не дает существенного вклада в ионизацию в рамках погрешности измерений. В случае сухого воздуха основной вклад в измеряемый сигнал давала, по всей видимости, ионизация кислорода. Отметим, что в сухом воздухе предельные измеряемые концентрации электронов составили ~5×10<sup>14</sup> см<sup>-3</sup>, но при этом в отсутствии осушки измеряемые сигналы в составных газах были больше, и наблюдалась спектральная зависимость фотоионизации, хотя концентрация молекул воды в баллонах составляет всего ~10<sup>13</sup> см<sup>-3</sup>. Это следствие того, что на отложенное пиковое значение  $N_e^0$  существенно влияет нормировочного интеграла ПО пространству размер  $(N_e^0 \sim u_{max} / \int_0^\infty 2\pi r f^K(r) dr)$ , который зависит от степени нелинейности K. В радиальном распределении интенсивности лазерного импульса f(r), измеренном с профилометра OPHIR **SP-620U** помощью цифрового имеются широкие низкоинтенсивные «крылья» (Рис. 3.2), содержащие большую ~60% долю энергии импульса. Тогда как в сухих газах, где степень нелинейности  $K \ge 3$ , основной вклад в ионизацию даёт центральный максимум в распределении интенсивности, во влажном воздухе или не осушенных газах низкоинтенсивные крылья, за счет более эффективного квадратичного по интенсивности механизма ионизации, лают основной вклад в измеряемый интегральный фототок  $u_{max}$ .

#### 3.1.3 Ионизация компонентов воздуха УКИ

Вследствие нормальной дисперсии групповых скоростей при распространении УКИ в воздухе и прозрачных оптических элементах оптической схемы (линза, дифракционный аттенюатор и окно вакуумной камеры) длинноволновые спектральные компоненты опережали коротковолновые, в результате чего первоначальный импульс длительностью  $\tau_p=90\pm10$  фс приобретал положительный чирп и уширялся во времени до  $\tau_p=170\pm10$  фс, конечная длительность импульса рассчитывалась с помощью калькулятора дисперсии Venteon vChirp 1.3. Для заданных размеров пятна фокусировки с  $r_{1/e}=40$  мкм (см. раздел 3.1.1.) пиковые значения интенсивности варьировались в диапазоне  $10^{10}\pm10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> путем ослабления энергии УФ УКИ с помощью дифракционного ослабителя.

Первоначально была проведена серия экспериментов в чистых осушенных N<sub>2</sub> и  $O_2$  при давлении p=1 атм. В азоте зависимость концентрации электронов от интенсивности имела кубический характер (Рис. 3.5). Поскольку потенциал ионизации азота составляет Wi=15.58 эВ, то для прямой ионизации азота требуется 4 кванта, из этого можно сделать вывод, что наблюдается (3+1) REMPI. Попытка получить спектр ионизации с помощью узкополосного лазера не увенчалась успехом ввиду отсутствия сигналов. Это связанно либо с тем, что задействованные трёхфотонные резонансные переходы диапазона перестройки лежат вне узкополосного лазера (120600÷120950 см<sup>-1</sup>), но при этом перекрываются спектром широкополосных УКИ, либо с малой эффективностью трёхфотонного возбуждения низкоинтенсивным эксимерным лазером. Впервые (3+1) REMPI молекулярного азота наблюдалось в работе [50], там же был приведен перечень возможных резонансных переходов. В [150] наблюдалось однофотонное поглощение на энергиях 120586 и 121037 см<sup>-1</sup> на  $b'^{1}\Sigma_{u}^{+}(\nu'=26,27) \leftarrow X^{1}\Sigma_{g}^{+}$  переходах. В этой же работе наблюдалась слабая линия поглощения на 120694 см<sup>-1</sup>, соответствующая  $c'_4 {}^1 \Sigma_u^+ (\nu' = 8) \leftarrow X^1 \Sigma_g^+$  переходу, которая попадает в диапазон перестройке KrF лазера, но не наблюдалась при нашей методике измерений. Эти переходы относятся к системе Ридберговских уровней Кэррола - Йошино, которые сходятся с основным  $X^2 \Sigma_q^+$  состоянием  $N_2^+$ . В работе [151] наблюдалась линия  $O_4{}^3 \Pi_u (\nu' = 0) \leftarrow X^1 \Sigma_q^+$ перехода с энергией 121071 см<sup>-1</sup>, соответствующая системе Ридбеговских уровней Огавы - Танаки, которая сходится с возбужденным  $A^2 \Pi_{u,3/2}$  уровнем  $N_2^+$ . Поскольку все эти уровни перекрываются спектром широкополосного УФ УКИ, из имеющихся данных невозможно достоверно установить, через какие резонансные уровни непосредственно происходит процесс (3+1) REMPI.

В кислороде зависимость концентрации электронов от интенсивности также носила кубический характер K = 3 (Рис. 3.5), из чего можно сделать вывод о прямой трёхфотонной ионизации. В пользу этого также свидетельствует отсутствие спектральной зависимости фотоионизации в экспериментах с узкополосным излучением. Также была проведена серия экспериментов с чирпированными импульсами различной длительности в диапазоне  $0.1 \div 1.2$  пс, описанная в конце главы, результаты которой также свидетельствуют в пользу прямой МФИ О<sub>2</sub>.



Рис. 3.5 Экспериментальные зависимости концентрации электронов от пиковой интенсивности УКИ в (кресты) и O<sub>2</sub> (круги) при давлении *P*=1 атм со степенными аппроксимациями (черные линии) и теоретическими зависимостями [7] (пунктирные линии ~*I*<sup>3</sup> для O<sub>2</sub> и ~*I*<sup>4</sup> для N<sub>2</sub>).

С учетом содержания N<sub>2</sub> и O<sub>2</sub> в атмосфере, для широкополосного излучения УКИ их вклад в ионизацию воздуха сопоставим, будучи в соотношении 3:5. Отметим, что в современных моделях филаментации УФ излучения в воздухе (см. например [42, 152]), вклад ионизации азота полагают пренебрежимо малым на основании теоретических сечений, рассчитанных по модифицированной теории Келдыша.

Полученные данные по механизмам ионизации кислорода (прямая МФИ) и азота ((3+1) REMPI) совпадают с выводами экспериментальных работ [50, 51]. При более высоких интенсивностях, не рассматривавшихся в наших экспериментах, более  $10^{13}$  BT/cm<sup>2</sup>, в работах [11, 51] наблюдалась прямая четырёхфотонная ионизация азота с K= 3.7 и K=4 соответственно, но в относительно узком диапазоне интенсивностей, что может приводить к существенной ошибке в определении степени ионизации K.



**Рис. 3.6** Экспериментальная зависимость концентрации электронов от пиковой интенсивности УКИ во влажном (*N*<sub>H2O</sub>=5.8×10<sup>17</sup>см<sup>-3</sup>, точки) и сухом (кресты) воздухе при давлении *P*=1 атм со степенными аппроксимациями (черные линии).

Сравнение сухого и влажного воздуха показывает, что присутствие молекул воды увеличивает нарабатываемую лазером концентрацию электронов более чем на порядок (Рис. 3.6). Во влажном воздухе также наблюдалась трехфотонная ионизация (K = 3), связанная с ионизацией молекул воды, механизм которой будет обсуждаться в следующем разделе.

Стоит отметить, что наблюдаемое на Рис. 3.5 и 3.6 насыщение сигналов при повышении интенсивности носит «инструментальный» характер и не отражает реального поведения измеряемых величин. Как уже было отмечено в разделе 2.5, при больших  $N_e>10^{14}$  см<sup>-3</sup> начальных плотностях электронов возможно ограничение электронного тока из-за экранировки внешнего поля накопленным на концах плазменного канала зарядом. Кроме того, предельное временное разрешение измерительной схемы составляет ~1÷2 нс и определяется откликом измерительной схемы и осциллографа на  $\delta$ -сигнал. В случае плотной  $N_e>10^{14}$  см<sup>-3</sup> плазмы, когда скорость гибели электронов определяется быстрой диссоциативной электрон-ионной рекомбинацией и становится сравнимой со скоростью отклика измерительной схемы, возможно существенное занижение измеряемых сигналов и, как следствие, концентраций электронов.

# 3.1.3 Влияние длительности импульса на эффективность фотоионизации

Подведём промежуточные итоги: в экспериментах с импульсами длительностью 25 нс было показано, что при лазерных интенсивностях  $I=4\times10^8\div10^{10}$ Вт/см<sup>2</sup> основным механизмом ионизации воздуха является (2+1) REMPI ионизация воды, которая имеет квадратичную зависимость от интенсивности. В случае УФ УКИ основным механизмом фотоионизации воздуха также является ионизация молекул воды, однако измеренная зависимость концентрации электронов от интенсивности в диапазоне  $I = 2\times10^{10} \div 4\times10^{11}$  W/cm<sup>2</sup> была кубической,  $N_e \sim I^3$ , и механизм этой трёхфотонной ионизации не очевиден.

В принципе, возможны различные степенные зависимости выхода фотоионизации от интенсивности *I* и длительности импульса  $\tau_{p}$ . Как было показано в разделе 3.1.2, вероятность фотоионизации возбужденного промежуточного  $\tilde{C}^1B_1$ состояния воды в наших экспериментах с 25-нс импульсами много больше вероятности предиссоциации и распада этого уровня  $\sigma_{C \leftarrow A}^{(n)} I^n \gg \gamma + \delta$ , что приводит к снижению порядка степени в зависимости скорости и выхода ионизации от интенсивности по сравнению с прямой МФИ, где  $dN_e/dt = N_A \sigma^{(K)} I^K$  – не зависит от длительности импульса и  $N_e \sim I^K \tau_p$ . Автоматически это условие должно выполняться и для УКИ, если его длительность  $\tau_{p}$  больше характерного времени релаксации поляризации среды Т<sub>2</sub>, т.е. взаимодействие со средой происходит в некогерентном режиме. При  $\tau_p << T_2$  реализуется когерентный режим [153], при котором выход ионизации пропорционален третьей степени плотности энергии (флюенса) падающего излучения  $N_{\rm e} \sim F^3 \sim I^3 \tau^3_{\ p}$ , что согласуется с нашими экспериментами для УКИ с заданной длительностью импульсов 170 фс, но отличается от  $N_{\rm e} \sim I^3 \tau_p$  для прямой МФИ. Наконец, в случае некогерентного REMPI при наличии короткоживущего промежуточного резонансного уровня воды  $\tilde{C}^1B_1$  с характерным временем диссоциации ~0.5 пс можно обобщить систему уравнений 3.1 и предположить, что в результате предиссоциации появляется частица D, которая дает дополнительный вклад в фотоионизацию:

$$\begin{cases} \frac{dN_X}{dt} = -N_X \sigma_{A\leftarrow X}^{(m)} I^m + N_A \left( \sigma_{A\leftarrow X}^{(m)} I^m + \gamma \right) \\ \frac{dN_A}{dt} = +N_X \sigma_{A\leftarrow X}^{(m)} I^m - N_A \left( \sigma_{A\leftarrow X}^{(m)} I^m + \sigma_{C\leftarrow A}^{(n)} I^n + \gamma \right) - N_A / \tau_d \\ \frac{dN_D}{dt} = N_A / \tau_d - N_D \sigma_{C\leftarrow D}^{(n)} I^n \\ \frac{dN_e}{dt} = N_A \sigma_{C\leftarrow A}^{(n)} I^n + N_D \sigma_{C\leftarrow D}^{(n)} I^n \end{cases}$$
(3.3)

Если скорость непосредственной ионизации с промежуточного уровня А мала по сравнению с диссоциацией и фотоионизацией новой частицы D, можно переписать эту систему в следующем виде:

$$\begin{cases} \frac{dN_X}{dt} = -N_X \sigma_{A\leftarrow X}^{(m)} I^m + N_A \left( \sigma_{A\leftarrow X}^{(m)} I^m + \gamma \right) \\ \frac{dN_A}{dt} = +N_X \sigma_{A\leftarrow X}^{(m)} I^m - N_A \left( \sigma_{A\leftarrow X}^{(m)} I^m + \gamma \right) - N_A / \tau_d \\ \frac{dN_D}{dt} = N_A / \tau_d - N_D \sigma_{C\leftarrow D}^{(n)} I^n \\ \frac{dN_e}{dt} = N_D \sigma_{C\leftarrow D}^{(n)} I^n \end{cases}$$
(3.4)

Из решения этой системы следует, что скорость наработки электронов  $\frac{dN_e}{dt} \sim N_A I^{m+n} \tau_p^{m+n-2}$ . В случае K=m+n=3,  $N_e \sim I^3 \tau_p^2$ , что также отличается от классической теории МФИ.



Рис. 3.7 Зависимость концентрации электронов во влажном воздухе, разделенной на
 (а) длительность импульса, (б) квадрат длительности импульса и (в) куб
 длительности импульса от интенсивности лазерных импульсов различной
 длительности.

В итоге возможны три различных варианта зависимости скорости ионизации длительности лазерного импульса:  $\frac{dN_e}{dt} \sim N_0 \sigma^{(3)} I^3 \tau_p^2$ ,  $\frac{dN_e}{dt} \sim N_0 \sigma^{(3)} I^3 \tau_p$ И ОТ  $\frac{dN_e}{dt} \sim N_0 \sigma^{(3)} I^3$ , т.е.  $N_e \sim I^3 \tau_p^3$ ,  $N_e \sim I^3 \tau_p^2$  и  $N_e \sim I^3 \tau_p$ . Чтобы экспериментально проверить, какой из описанных выше механизмов реализуется на практике, была проведена серия дополнительных экспериментов с УКИ различной длительности. Для этого исходное излучение Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> стартового комплекса пропускалось через толщу кварца (2÷12 см), в результате чего за счет эффективной дисперсии скоростей получались положительно чирпированные групповых импульсы длительностью  $\tau_p = 0.2 \div 1.2$  пс, которая измерялась с помощью одноимпульсного автокоррелятора на встречных пучках на основе XeF ячейки высокого давления [147]. Полученные данные по ионизации влажного воздуха, а фактически, молекул воды импульсами различной длительности приведены на Рис. 3.7. По оси ординат приведены концентрации электронов, деленные на длительность импульса (Рис. 3.7а, а также квадрат (б) и куб (в) длительности импульса. Как видно из эксперимента, подтверждается предположение, что скорость МФИ не зависит (Рис 3.7а) от длительности импульса  $\frac{dN_e}{dt} \sim N_0 \sigma^{(3)} I^3$ . что формально совпадает с прямой МФИ и противоречит зависимости для когерентного REMPI [153]. Для последнего, очевидно, нарушается одно из необходимых условий  $\tau_{\rm p}{<}{<}T_2$  из-за быстрой предиссоциации резонансного возбужденного состояния воды  $\tilde{C}^1B_1$ , характерное время которой 0.2 пс – соизмеримо с длительностью УКИ. Однако, как будет показано в следующем разделе, в условиях двухфотонного резонанса измеренное сечение МФИ для воды более чем на два порядка превосходит сечение для кислорода с близким потенциалом ионизации, где наблюдалась прямая МФИ. Повидимому, мы имеем промежуточный случай, для которого отсутствует адекватное теоретическое описание. Столь высокая эффективность ионизации воды для УКИ, предположительно, связана с наличием уже упоминавшегося резонансного перехода в возбужденное состояние молекулярного иона  ${}^{2}A_{1}(3a_{1}^{-1})$  [149]. Поскольку в работе [149] структуру молекулярного иона наблюдали по однофотонному поглощению синхротронного ВУФ излучения на длинах волн от 60 до 100 нм, аналогичные трехфотонные переходы также должны быть разрешены правилами отбора. Исходя из чего, можно предположить, что наблюдаемая в эксперименте трехфотонная ионизация является резонансным трёхфотонным поглощением в возбужденное ионное состояние, а смена механизма ионизации зависит от интенсивности импульса и является результатом конкуренции (2+1) REMPI и резонансной трёхфотонной ионизации.

## 3.1.4 Измерение эффективных сечений фотоионизации

Чтобы определить эффективные сечения МФИ или REMPI из полученных данных необходимо убедиться в том, что измеряемые концентрации электронов линейно зависят от концентрации ионизируемых молекул. С этой целью была проведена серия экспериментов, в которых при фиксированной падающей интенсивности  $I_0$  в 170-фс УКИ варьировалось давление среды p и одновременно зарядное напряжение  $U_{3ap}$  таким образом, чтобы величина приведённого электрического поля E/P, а вместе с ней и подвижность электронов не изменялись.

Полученные зависимости  $N_e(P)$  в кислороде и азоте приведены на Рис. 3.7а. Как видно в обоих случаях зависимость линейна в области малых (<400 Торр) давлений и насыщается при давлениях близких к атмосферным. Подобные зависимости наблюдались ранее в работах [55, 64, 65], где также имело место падение эффективности ионизации при росте давления свыше 350 Торр. Предложенные объяснения в основном предполагали столкновительное тушение возбужденных атомов и молекул в результате неупругого соударения с нейтральной частицей. Однако подобные объяснения выглядят неправдоподобно в связи с тем, что в настоящем эксперименте, а также в работах [55, 64] длительность импульса была существенно меньше характерных времен межмолекулярных соударений (~10<sup>-9</sup> с). Отметим, что в данном случае измерения производились при мощностях излучения ниже критической мощности самофокусировки в воздухе, т.е. распространение излучения проходило в линейном режиме.



Рис. 3.8 Линейная экстраполяция (пунктир) зависимостей сигнала фототока (пропорционального концентрации электронов) от (а) давления N<sub>2</sub> (оранжевые кресты) и O<sub>2</sub> (зеленые ромбы) при E/p = 4 В/(см·Торр) и интенсивности УКИ  $I_0=3\times10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup> и от (б) влажности воздуха при  $T=21^{\circ}$ С и  $I_0=10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup>

Наблюдаемое в эксперименте насыщение является, по нашему мнению, следствием потерь энергии УКИ на ионизацию исследуемого газа при распространении излучения в камере до датчика фотоэлектронов. В силу высокого порядка нелинейности процессов МФИ, даже небольшое снижение падающей энергии будет заметно сказываться на измеряемой концентрации электронов. Действительно, если для наших экспериментальных параметров рассчитать затраты энергии на объемную ионизацию, создаваемую сходящимся гауссовым пучком, то потери энергии на длине 70 см от входного окна камеры до середины Рэлеевской перетяжки в фокусе линзы будут составлять ~5÷10% от полной энергии пучка. Подобное небольшое снижение падающей энергии и интенсивности может существенно снизить измеряемую интегральную электронную плотность за счет нелинейной зависимости

концентрации электронов от интенсивности, что, по всей видимости, и наблюдается в эксперименте (Рис. 3.8). Наблюдаемое насыщение зависимостей концентрации электронов от давления, по сравнению с линейной экстраполяцией зависимостей для низких давлений, можно использовать для оценки падающей на датчик энергии УКИ (прямое измерение этих потерь с помощью калориметра внутри камеры невозможно) и более точного расчета лазерной интенсивности I<sub>0</sub>. Исходя из этого, из зависимостей на Рис. 3.8 были высчитаны поправочные коэффициенты  $\Delta = u_e/u_L$  в различных газах и в предположении, что они слабо зависят от падающей интенсивности, учтены при расчете истинных интенсивностей, которые и отложены по оси абсцисс на Рис. 3.3, 3.5-3.7 как  $I_0 = I_0^{измеренная} \times 0.92 \sqrt[K]{\Delta}$ , где  $I_0^{измеренная}$ значение интенсивности на основе измерения энергии перед вакуумной камерой, пропускание окна камеры (определяемое Френелевским отражением). 0.92-Использованные при расчетах значения  $\sqrt[K]{\Delta}$  составили 0.6, 0.87, 0.8, 0.9 для влажного и сухого воздуха, кислорода и азота соответственно. Использование одной и той же поправки для всего диапазона интенсивностей связано с тем, что фактический размер поправки мал по сравнению с разбросом экспериментальных данных.

В кислороде и азоте при давлениях 0.5 и 0.01 атм для зависимостей  $N_e^0(I_0)$ были получены степени многофотонности *K*, которые оказались такими же, как и при атмосферном давлении (*K*=3 в обоих случаях). Для воды, степень многофотонности *K*=3 проверялась в насыщенном паре при давлении ~6 Торр, которая также совпала с измерениями для влажного воздуха при атмосферном давлении. Таким образом, можно сделать вывод, что установленные ранее механизмы, а, следовательно, и скорости (эффективные сечения) МФИ не зависят от давления среды.

Поскольку измерения при низких давлениях очень чувствительны к натеканию воздуха, а с ним и водяного пара, эффективные сечения ионизации вычислялись из зависимостей  $N_{\rm e}(I)$  при давлении P=1 атм (Рис. 3.3, 3.5, 3.6). Для каждого массива

данных в диапазоне концентраций электронов  $N_e^0 = 5 \times 10^{10} \div 10^{14}$  см<sup>-3</sup> методом наименьших квадратов подбиралась наилучшая аппроксимация  $N_e^0 = \sum_i N_{i0} \sigma_i^{(K)} I_0^K \int_0^\infty g^K(t') dt'$  с заданным *K*, где суммирование по *i* означает учет ионизации всех компонент газовой смеси. Рассчитанные таким образом сечения представлены в Таблице 2 вместе с теоретическими значениями из работ [7, 11].

**Таблица 2**. Измеренные эффективные сечения фотоионизации  $\sigma^{(K)}$  при интенсивностях  $I = 10^{10} \div 5 \times 10^{13}$  Вт/см<sup>2</sup> для излучения с длиной волны 248 нм

Газ	Потенциал	Механизм,	Сечение МФИ	Литература [7]
	ионизации	K	$\sigma^{(K)}(\mathrm{cm}^{2K}\mathrm{c}^{-1}\mathrm{B}\mathrm{t}^{-K})$	<b>K</b> ; $\sigma^{(K)}$ (cm <sup>2K</sup> c <sup>-1</sup> Bt <sup>-K</sup> )
	<i>W</i> <sub>i</sub> , (эВ)			
N <sub>2</sub> ;	15.58	( <b>3</b> + <b>1</b> ) REMPI	$(1.7\pm0.8)\times10^{-30}$	<b>4</b> ; 3.22×10 <sup>-44</sup>
O <sub>2</sub> ;	12.07	<b>3</b> МФИ	(1.2±0.5)×10 <sup>-29</sup>	<b>3</b> ; 1.35×10 <sup>-28</sup>
Сухой		3 -	(3.8±1.9)×10 <sup>-30</sup>	-
воздух				
H <sub>2</sub> O;	12.62	3 REMPI	(5.6±3.8)×10 <sup>-27</sup>	<b>3</b> ; 3.6×10 <sup>-31</sup> b
$H_2O^a$ ;	12.62	(2+1) REMPI	$(9.0\pm5.5)\times10^{-16}$	-

<sup>а</sup>Для 25 нс импульсов с интенсивностью  $I=10^8 \div 3 \times 10^{10} \text{ Bt/cm}^2$ 

<sup>b</sup>Оценка на основании [11]

Как можно видеть сечение трехфотонной резонансной МФИ воды сильно отличается от предсказанного теорией Келдыша, что вполне объяснимо, учитывая наличие как двухфотонного [59], так и трехфотонного [149] резонанса, которые, по всей видимости, многократно увеличивают эффективность процесса ионизации, в результате чего эффективность ионизации водяных паров более чем на 2 порядка превышает эффективность ионизации кислорода или азота. В работе [152] для филаментов на длине 248 нм в воздухе было получено значение сечения трёхфотонной ионизации, приписанное кислороду, равное  $\sigma^{(3)}=2.5\times10^{-28}$  см<sup>6</sup>с<sup>-1</sup>Вт<sup>-3</sup>.

Если пересчитать его для случая МФИ молекулы воды (умножив на соотношение концентраций кислорода и воды в воздухе  $N_{O_2}/N_{H_2O}\sim20$ ) для реалистичного содержания молекул воды в 1% (соответствует T=21°C и относительной влажности лабораторного воздуха 40%), то получится  $\sigma_{H_2O}^{(3)}=5\times10^{-27}$  см<sup>6</sup>с<sup>-1</sup>Вт<sup>-3</sup>, что в точности совпадает с результатом наших измерений.

#### 3.2 Трёхчастичное прилипание электрона к кислороду

Данный параграф посвящен измерению скорости трёхчастичного прилипания электрона к кислороду в атмосферном воздухе. Актуальность этой задачи обусловлена тем, что в литературе значение характерного времени прилипания  $\tau_{\rm att}$ для атмосферного воздуха варьируется от нескольких единиц до нескольких десятков или даже сотен наносекунд, а влияние влажности исследовалось мало (см. подробнее Главу 1.2.1). Как было показано в предыдущем разделе, с помощью УФ УКИ возможно создание низкоплотной плазмы с управляемой начальной электронной плотностью (по сравнению с ИК излучением, где ионизация носит, по сути, пороговый характер ввиду большой степени нелинейности ( $K=8\div10$  и более)). Данная особенность УФ излучения представляет большой интерес с точки зрения исследования атмосферной плазмохимии, поскольку возможность управления начальной концентрацией электронов позволяет получать различные режимы разными процессами рекомбинации. распада плазмы С доминирующими Полученные в экспериментах разрешённые во времени осциллограммы электронной компоненты тока, были использованы для измерения характерных скоростей распада электронной компоненты плазмы, в частности скорости трёхчастичного прилипания электрона к кислороду.

#### 3.2.1 Модифицированная схема измерения проводимости

Временное разрешение используемой схемы измерения фототока на Рис. 2.6 ограничивается ёмкостью входа осциллографа и подводящих проводов, а также индуктивностью схемы. При работе с атмосферным воздухом, временное разрешение и отношение сигнал/шум могут быть улучшены путем модификации измерительной схемы: фотоэлектрический датчик размещается на осциллографе и использовалась дифференциальная схема измерения, см. Рис. 3.9. На один из 50-омных дифференциальных входов осциллографа TDS3054C подавался сигнал с рабочего коллекторного электрода (1), который подсоединялся непосредственно к

ВNС разъему входа осциллографа. К другому входу был подсоединен точно такой же электрод (2) параллельной схемы, на которую не подавалось лазерное излучение. Высоковольтные электроды (3) обеих схем соединялись с корпусом осциллографа через зарядную емкость (4).



Рис. 3.9 Фотография датчика для измерения проводимости воздуха: (1)коллекторный электрод, (2)- холостой электрод, (3)- высоковольтные электроды, (4)зарядная ёмкость U<sub>зар</sub>

В меню осциллографа выбирался дифференциальный режим измерения, что позволило вычесть наводку из сигнала фототока и тем самым повысить чувствительность. Отсутствие соединительных проводов уменьшало входную ёмкость  $C_{Bx}$  до емкости осциллографа  $C_{ocu}$ , а также уменьшало общую индуктивность, что позволило улучшить временное разрешение схемы до предельного значения ~1 нс, определяемого полосой частот осциллографа (500 МГц). Недостатком этой схемы является то, что в такой компоновке её можно использовать только в атмосферном воздухе.

### 3.2.2 Экспериментальные результаты

В эксперименте для создания плазмы использовался импульс третьей гармоники  $Ti^{3+}:Al_2O_3$  лазера, длительность которого  $\tau_p \sim 170$  фс была существенно длительности рекомбинационных меньше любых процессов В плазме. Следовательно лазер работал как б-источник свободных электронов, что позволяло отслеживать временную эволюцию электронной компоненты рекомбинирующей Аналогично экспериментам, плазмы. предыдущим лазерное излучение фокусировалось В межэлектродный промежуток длиной L=7.85MM модифицированной измерительной схемы с помощью линзы с фокусным расстоянием f=1м. К промежутку прикладывалось постоянное напряжение в  $U_{3ap} = 300 \div 5500$ B. диапазоне которому соответствовала напряженность электрического поля от 0.4 до 7 кВ/см. Эксперименты проводились в лабораторном помещении с постоянной температурой воздуха  $T_0 = 294$  К при относительной влажности  $\eta = 17\%$ .

Варьируя лазерную энергию с помощью ступенчатого аттенюатора, был получен набор осциллограмм, соответствующих различным лазерным интенсивностями и начальным концентрациям электронов Рис. 3.10а. Измерения проводились при фиксированной напряженности приложенного поля *E*=6 кB/см, поэтому имеет место однозначная корреляция между величиной фототока и Как концентрацией электронов. видно, временная эволюция электронной компоненты плазмы (форма осциллограмм) меняется в зависимости от начальной концентрации электронов N<sub>e</sub><sup>0</sup>. В случае высоких начальных концентраций электронов  $N_e^0 > 10^{14}$  см<sup>-3</sup>, преобладает быстрый распад плазмы за характерные нс, который хорошо аппроксимируется гиперболической ~5÷10 времена зависимостью  $N_e(t) = N_e^0/(1 + N_e^0\beta t)$  (Рис. 3.10б, кривая (1)), описывающей диссоциативную электрон-ионную рекомбинацию При плазмы. низких электронов  $N_e^0 < 10^{13}$  см<sup>-3</sup>, форма осциллограмм перестаёт концентрациях

изменяться с концентрацией электронов, что означает, что вклад электрон-ионной рекомбинации, скорость которой квадратично N<sub>e</sub>, зависит OT становится пренебрежимо малым. Осциллограммы при низких концентрациях электронов хорошо аппроксимируется экспоненциальной зависимостью  $N_e(t) = N_e^0 \exp(-t/\tau_{att})$  (Рис. 3.10б, кривая (2)), характерной для процесса прилипания электронов к кислороду. В наших условиях для всех трёх реакции  $O_2 + e + O_2(H_2O, N_2) \xrightarrow{K_{1,2,3}} O_2^- + O_2^*(H_2O^*, N_2^*)$ , скорость гибели электронов будет  $\tau_{att} = \left[ N_{O_2} \left( k_1 N_{O_2} + k_2 N_{H_2O} + k_3 N_{N_2} \right) \right]^{-1}.$ определять время (б) (a) Конц. электронов, норм. 1 Конц. электронов, норм.  $(2)N_{a}(t) \sim \exp(-t/\tau_{att})$ 0.8 0.6 0.5 0.4 (2)(3́) 0.2 (1)0 0 0 50 100 150 0 10 20 30 40 50 Время, нс Время, нс

Рис. 3.10 Нормированные осциллограммы фототока (начало всех осциллограмм разнесено во времени для удобства восприятия) полученные (а) для различных начальных концентраций электронов  $N_e^0$  (в постоянном электрическом поле E=6 кВ/см); (б) для (1)  $N_e^0 = 10^{15}$  см<sup>-3</sup> и (2)  $N_e^0 = 10^{12}$  см<sup>-3</sup> (E=4 кВ/см) с аппроксимацией соответственно гиперболической и экспоненциальной зависимостями ( $\beta$  и  $\tau_{att}$  подбирались вручную).

Наличие подобного процесса гибели электронов в воздухе обусловлено тем, что молекула кислорода имеет наибольшую положительную энергию сродства к электрону 0.43 эВ, по сравнению с другими нейтральными компонентами воздуха [154, 158]. Положительная энергия сродства означает, что процесс образования отрицательного иона экзотермический, т.е. происходит с выделением энергии, соответственно электроны прилипают в основном к молекулярному кислороду (см. раздел 1.1.3). Энергия сродства к электрону для молекулы воды была измерена относительно недавно [156] и составила 0.8 эВ, больше, чем в кислороде, но воды в воздухе намного меньше, чем кислорода. Однако, как будет показано ниже, в качестве третьего тела в процессе трёхчастичного прилипания электронов к кислороду вода даёт немалый вклад в прилипание.



Рис. 3.11 (а) Нормированные осциллограммы фототока, полученные для фиксированной начальной концентрации электронов  $N_e^0 \sim 10^{12}$  см<sup>-3</sup> и различных электрических полей. (б) Измеренная зависимость характерного времени прилипания  $\tau_{att}$  от напряженности приложенного поля (зелёные точки) и литературными данные (отмечены номерами ссылок).

Подобрав по форме осциллограмм подходящую (достаточно низкую) энергию лазерных импульсов, можно получать плазму, эволюция которой будет с самого начала полностью определяться трёхчастичным прилипанием электронов к кислороду. Варьируя напряженность поля в межэлектродном промежутке в

диапазоне  $E=0.4\div7$  кВ/см, было получено семейство осциллограмм, часть из которых представлены на Рис. 3.11а. Аппроксимация данных кривых экспоненциальной зависимостью позволила определить характерное время трехчастичного прилипания  $\tau_{att}$  в зависимости от приложенного электрического поля с экспериментальными погрешностями, определяемыми небольшим изменением показателя экспоненты на временном интервале ~100 нс. Зависимость  $\tau_{att}$  от напряженности электрического поля измеренная при температуре  $T_0= 294$  К и относительной влажности  $\eta=17\%$ приведена на Рис. 3.116. Как видно, время прилипания быстро растёт в диапазоне напряженности поля  $E=1\div4$  кВ/см, затем следует насыщение.

Для того чтобы сравнить полученные результаты имеющимися С теоретическими и экспериментальными данными по скоростям прилипания в атмосферном воздухе, которые, зачастую, приведены в зависимости от электронной температуры, необходимо знать связь электронной температуры с приложенным численный расчёт электрическим полем. Для этого проводился функции распределения электронов по энергиям в различном приложенном поле, описанный в следующем параграфе.

# **3.2.3** Расчет энергетического спектра электронов воздушной плазмы в постоянном электрическом поле.

Численное моделирование, представленное в этом разделе, выполнено диссертантом совместно с к.ф.-м.н. И.В. Сметаниным.

Характерное время трехчастичного прилипания электронов В плазме значительно превышает характерные времена ключевых упругих и неупругих столкновительных процессов в воздухе. Таким образом, для расчета средней энергии определяющей электронов, скорость прилипания, можно использовать квазистационарную функцию распределения электронов по энергиям. Для построения квазистационарного энергетического спектра электронов в воздушной

плазме использовалась следующая кинетическая модель. В энергетическом представлении, кинетическое уравнение для энергетического спектра электронов  $n(\varepsilon,t)$  можно представить как (см. например обзор [157])

$$\frac{\partial n(\varepsilon,t)}{\partial t} = - \frac{\partial}{\partial \varepsilon} \widetilde{j}_E + \widetilde{I}_{HY} + \widetilde{I}_Y$$
(3.5)

Энергия электронов в поле определяется тремя основными процессами: нагревом в поле и потерями энергии в упругих и неупругих соударениях с нейтральными атомами и молекулами. Первый член в правой части  $j_E$ - поток, описывающий нагрев электронов в плазме в постоянном электрическом поле напряженности E,

$$j_E = u_E(\varepsilon)n(\varepsilon,t) - D_E(\varepsilon)\frac{\partial n(\varepsilon,t)}{\partial \varepsilon}$$
(3.6)

В постоянном электрическом поле электроны набирают тепловую энергию в упругих столкновениях с нейтральными компонентами газа (при столкновениях кинетическая энергия переходит в тепловую), что характеризуется скоростью нагрева  $u_E(\varepsilon) = (eE)^2/6m\nu_T(\varepsilon)$  и коэффициентом диффузии электронов по энергиям  $D_E(\varepsilon) = \varepsilon(eE)^2/3m\nu_T(\varepsilon)$ , где  $\nu_T(\varepsilon)$  транспортная частота упругих соударений электронов с нейтральными атомами и молекулами. В наших экспериментальных условиях потери электронов диффузии В результате оказываются несущественными. В то же время, прикладываемое поле существенно меньше порога пробоя воздуха; таким образом, размножение электронов является пренебрежимо малым, а функция распределения электронов по энергиям быстро «остывает» в результате неупругого столкновительного возбуждения колебательных уровней компонентов воздуха (молекулярного кислорода, азота и воды). В данной модели мы не учитываем столкновительное возбуждение вращательных уровней. В описывающий неупругие таких условиях член, соударения, определяется

возбуждением молекулярных колебательных уровней в столкновениях с электронами

$$I_{\rm Hy} = -\sum N_k \sum_m [\sigma_{km}(\varepsilon + \hbar\omega_{km}) v(\varepsilon + \hbar\omega_{km}) n(\varepsilon + \hbar\omega_{km}) - \sigma_{km}(\varepsilon) v(\varepsilon) n(\varepsilon)] (3.7)$$

Суммирование в уравнении (3.7) делается по колебательным уровням *m* и по типам молекул *k*,  $N_k$  соответствует концентрациям молекул типа *k*,  $\sigma_{km}(\varepsilon)$ -сечение возбуждения *m*-го колебательного уровня v электроном с энергией  $\varepsilon$ . Разлагая по степеням соотношения колебательных квантов к энергии электронов  $\hbar\omega_{km}/\varepsilon$ , можно свести уравнение (3.7) к форме дополнительного потока электронов вдоль оси энергии [157],

$$I_{\rm Hy} = -\frac{\partial}{\partial \varepsilon} j_{\rm Hy}, \, \mathrm{гдe} \, j_{\rm Hy} = \, v_{\rm Hy}(\varepsilon) n(\varepsilon, t) \tag{3.8}$$

где эффективная скорость потерь энергии в неупругих соударениях определена как

$$v_{\rm Hy}(\varepsilon) = \sum_{k,m} (2\varepsilon/m)^{1/2} N_k \sigma_{km}(\varepsilon) \hbar \omega_{km}$$
(3.9)

Интеграл упругих столкновений также может быть представлен в виде потока электронов в энергетическом представлении,

$$I_{y} = -\frac{\partial}{\partial \varepsilon} j_{y}, \, \text{где} \, j_{y} = \, v_{y} \left( n(\varepsilon, t) + T_{0} \frac{\partial}{\partial \varepsilon} \left( \frac{n(\varepsilon, t)}{\sqrt{\varepsilon}} \right) \right)$$
(3.10)

Здесь  $v_y = \sum_i (2m_e/M_i) \varepsilon v_T$  - характеристическая скорость потерь энергии в упругих соударениях, а  $T_0$  температура молекул воздуха в эВ.

Решение кинетического уравнения (3.12) в случае атмосферного воздуха и преобладания трехчастичного прилипания в гибели электронов (т.е. при плотностях  $n_e \leq 10^{13} \text{ см}^{-3}$ ) достаточно быстро (~ 1 нс) приобретает вид квазистационарной функции, где спектр электронов описывается следующим распределением [157]:

$$n_{\rm CT}(\varepsilon) = \sqrt{\varepsilon} exp\left[-\int_0^{\varepsilon} d\varepsilon \frac{\nu_{\rm Hy}(\varepsilon) + \nu_{\rm y}(\varepsilon)}{T_0 \nu_{\rm y}(\varepsilon) + D_E(\varepsilon)}\right]$$
(3.11)

В наших расчетах мы считали лабораторный воздух смесью 79% молекул  $N_2$ , 21%  $O_2$  и соответствующего различным влажностям числа молекул  $H_2O$  при температуре  $T_0$ =294К. Соответствующие данные по сечениям упругих и неупругих столкновений получены из работ [158-163].



Рис. 3.12 (а) Энергетические спектры электронов в зависимости от напряженности электрического поля в сухом воздухе. (б) Расчетная зависимость средней энергии
 электронов <ε> от напряженности постоянного электрического поля в атмосферном воздухе при различных относительных влажностях от 0% до 100%.

Вычисленные из уравнения (3.11) энергетические спектры электронов для различных напряженностей электрического поля приведены на Рис. 3.12а. Форма спектров определяется колебательной структурой молекул воздуха. В частности, ограничение функции распределения электронов по энергиям энергиями~2 эВ обусловлено в первую очередь тем, что более горячие электроны эффективно теряют энергию на возбуждение колебательной структуры молекулярного азота в неупругих столкновениях (см. Рис. 3.14). Используя полученные спектры можно рассчитать

зависимость средней энергии электронов от напряженности электрического поля. Эти зависимости, рассчитанные для различных влажностей воздуха, приведены на Рис. 3.12б. Видно, что средняя энергия электронов уменьшается с увеличением влажности, что объясняется увеличением потерь энергии на колебательное возбуждение молекул воды. Также стоит отметить, что максимальное различие между кривыми на Рис. 3.12б достигается при напряженности поля ~1кВ/см, с увеличением поля влияние влажности на энергию электронов уменьшается, а кривые сходятся, что объясняется смещением спектра электронов за пределы области эффективного колебательного возбуждения молекул воды.

Рассчитанная средняя энергия электронов <ɛ> позволяет нам рассчитать характерное время трехчастичного прилипания

$$\tau_{att}^{-1} = k_1 N_{O_2}^2 + k_2 N_{O_2} N_{H_2O} + k_3 N_{O_2} N_{N_2}$$
(3.12)

Мы использовали две различные аналитические формулы для скорости процесса с кислородом как третьим телом. Первая взята из работы А. Фелпса [71]

$$k_1 = 3.6 \times 10^{-31} \times \frac{1}{T_e} \exp\left(-\frac{0.052}{T_e}\right) \text{cm}^6/\text{c}$$
(3.13)

здесь температура электронов  $T_e$  в эВ и рассчитывалась как  $T_e = 2/3 < \varepsilon >$ . Вторая формула взята из работ [10, 70]

$$k_1 = 1.14 \times 10^{-29} \times \frac{300}{T_e} \exp\left(-\frac{600}{T}\right) \exp\left(\frac{700}{T} - \frac{700}{T_e}\right) \text{cm}^6/\text{c} \qquad (3.14)$$

здесь температура газа  $T = T_0$  и электронная температура  $T_e$  выражены в Кельвинах. Для обоих случаев (формул 3.13 и 3.14) учет роли прилипания с третьим телом водой производился по формуле [70].

$$k_2 = 8.5 \times 10^{-29} \times \frac{300}{T_e} \exp\left(-\frac{600}{T}\right) \exp\left(\frac{700}{T} - \frac{700}{T_e}\right) \mathrm{cm}^{6/c}$$
(3.18)

Скорость трехчастичного прилипания с третьим телом азотом считалась пренебрежимо малой (*k*<sub>3</sub>=0).

### 3.2.4 Обсуждение результатов

Поскольку полученные расчетные кривые (Рис. 3.13) показали, что возможна сильная зависимость времени прилипания от влажности воздуха, с помощью фотоэлектрического датчика в вакуумной камере описанного в Главе 3.1 были проведены дополнительные серии экспериментов во влажном и сухом воздухе.



Рис. 3.13 Экспериментальные зависимости характерного времени прилипания электронов в слабоионизованной плазме τ<sub>att</sub> от напряженности постоянного электрического поля для влажностей воздуха 0%, 17% и 94% (круглые точки).
Расчетные кривые получены при температуре T<sub>0</sub> = 294K и различных влажностях воздуха от 0% до 100%. Вычисления производились с использованием формулы А. Фелпса [71] (сплошные линии) и [10] (пунктирные линии). Литературные данные (Ромбы) соответствуют работам 1- [93], 2- [96], 3- [23], 4- [89]

Полученные экспериментальные зависимости и расчетные кривые изображены на Рис. 3.13. Как видно, вне зависимости от влажности воздуха, все кривые похожи: при напряженностях поля менее 3.5 кВ/см происходит быстрый рост, а затем следует насыщение. Объяснение подобному поведению может быть дано, если рассмотреть спектр неупругих потерь энергии электронов в атмосферном воздухе Рис. 3.14.



**Рис. 3.14** Эффективная скорость потерь энергии электронов в неупругих соударениях в сухом воздухе  $v_{Hy}(\varepsilon)$  в зависимости от энергии электронов

В области энергий электронов ~2÷4 эВ появляются линии поглощения, связанные с колебательной структурой молекулярного азота. По этой причине при напряженностях поля свыше 3.5 кВ/см происходит падение эффективности нагрева электронов (см. Рис. 3.12). Кроме того, использованные в расчетах сечения прилипания (3.13-3.15) также падают с ростом электронной температуры. В связи с этим все экспериментальные кривые на Рис. 3.13 насыщаются в области больших полей.

Что расчетных кривых, наилучшее соответствие касается с экспериментальными данными получено с использованием формулы (3.13) для воздуха с относительной влажностью  $\eta=0\%$  и  $\eta=17\%$  в диапазоне полей  $E=2\div8$ кВ/см. В случае экспериментальных данных для влажности  $\eta$ =94%, которые лежат несколько ниже расчетных, можно предположить, что значение константы скорости  $k_2$  недооценено. При напряженностях поля E < 2 кВ/см экспериментальные значения снижаются существенно быстрее расчётных. Вероятно, в диапазоне низких напряженностей поля и низких, близких к комнатной, температур электронов при расчете температуры электронов требуется учитывать неупругие потери на вращательных переходах молекул воздуха.

Сравнение полученных результатов с имеющимися литературными данными (см. Рис. 1.1) несколько затруднительно, поскольку авторы большинства работ не Качественно контролировали влажность исследуемого воздуха. с нашим экспериментом согласуются значения из работ [12, 23, 89-91, 93, 96], отмеченные на Рис. 3.13 синими ромбами. Данные из работ [97] и [88], а именно ~90 и 147 нс явно расходятся с настоящим экспериментом. В работе [88], где методика измерений была сходна нашей, расхождение в данных, по всей видимости, связанно с тем, что исходные осциллограммы, которых  $au_{\rm att}$ , имели начальную ИЗ находилось концентрацию электронов  $N_e^0 \approx 10^{16}$  см<sup>-3</sup>, т.е. на распад плазмы существенно влияла диссоциативная электрон-ионная рекомбинация. В работах [94-95], где сравнивался сухой и влажный воздух, по всей видимости, при больших полях наблюдалось размножение электронов в дрейфовой трубке (см. Рис. 1.1) в связи с чем значения  $au_{att}$  в сухом и влажном воздухе мало отличались и были сильно завышены в области больших полей. В нашем случае особенности методики измерений, а именно использование УФ излучения, которое позволяло создавать низкоплотную плазму, в которой вклад рекомбинации был пренебрежимо мал, а также возможность работать при атмосферном давлении, что существенно ограничивало возможность размножения электронов в приложенном поле, позволило корректно измерить время трехчастичного прилипания в атмосфере.

На основании полученных экспериментальных данных была выведена феноменологическая формула, описывающая время прилипания в зависимости от напряженности поля в диапазоне 0÷8 кВ/см и влажности воздуха

$$\tau_{att}(\xi, H) = (1+H)^{-1} \left[ 65 - 54.6 \left( 1 + \left( \frac{\xi}{1.6 + 0.9H} \right)^{2.55 + 0.65H} \right)^{-1} \right] [\text{Hc}] (3.19)$$

Где  $\xi = \frac{E[\kappa B/cM]}{1\kappa B/cM}$  - безразмерная напряженность поля, а  $H = \frac{N_{H2O}}{N_{H2O}^*}$  безразмерная влажность воздуха, определяемая как соотношение концентрации молекул воды в воздухе  $N_{H2O}$  относительно концентрации молекул воды в воздухе при температуре T=294 K и относительной влажности  $\eta = 100\%$  ( $N_{H2O}^* = 5 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$ ). Т.е. при комнатной температуре и отн. влажности  $\eta = 40\%$  H=0.4.

# 3.3 Фотоотрыв электронов от отрицательных ионов сдвоенным лазерным импульсом

Как уже упоминалось в Обзоре литературы (раздел 1.1.5), образующиеся в результате трехчастичного прилипания отрицательные ионы  $O_2^-$  имеют низкую энергию связи с электроном (0.5 эВ), в связи с чем, одним из способов поддержания долгоживущей лазерной плазмы является фотоотрыв «прилипших» электронов. Для демонстрации этого эффекта в атмосферном воздухе был проделан эксперимент (Рис. 3.15) в котором фотоионизационная плазма создавалась сдвоенным 25-нс лазерным импульсом KrF лазера TMSC 150. Для этого исходный лазерный импульс с помощью полупрозрачного зеркала (2) с коэффициентом отражения R=60% делился на два импульса. Первый с помощью линзы (6) с f=0.7 м фокусировался в датчик фототока (8) описанный ранее, а второй пропускался через оптическую

линию задержки (3) и дифракционный ослабитель (4), а затем совмещался с первым импульсом и также фокусировался с помощью той же линзы в датчик фототока.



Рис. 3.15 Схема эксперимента по фотоотрыву электронов от отрицательных ионов; (1)- KrF лазер, (2)- полупрозрачное зеркало-делитель, (3)- оптическая линия задержки, (4) –дифракционный ослабитель, (5)- фотодиод, (6)- линза, (7) – цифровой профилометр, (8) датчик фототока

С помощью плоскопараллельных пластин из CaF<sub>2</sub> небольшая доля энергии обоих импульсов отводилась на фотодиод DET-210 (5) и на цифровой профилометр SP-620U (7). Поскольку временное разрешение фотодиода ~1 нс было меньше, чем длительность импульса KrF лазера ~25 нс, фотодиод использовался для контроля соотношения энергии в первом и втором импульсе, которое изменялось с помощью аттенюатора. В каждом выстреле совмещение обоих пучков в фокальной плоскости контролировалось профилометром. Из-за небольшого астигматизма фокальных пятен и вибрации оптических зеркал линии задержки измеренная степень совмещения пучков в среднем составляла  $\vartheta = 0.8$ .

Типичные осциллограммы сдвоенного лазерного импульса И фотоэлектронного тока на согласованном входе осциллографа при длительности задержки между двумя импульсами  $\Delta t = 80$  нс представлены на Рис. 3.16. Интенсивность первого импульса фиксировалась на уровне  $I_1=3.3\times10^9$  Вт/см<sup>2</sup>, таким образом, чтобы в воздухе с влажностью  $\eta = 17\%$  плотность плазмы, создаваемая первым импульсом не превышала 10<sup>14</sup> см<sup>-3</sup> (см. Рис. 3.4), а распад плазмы определялся трехчастичным прилипанием электронов к кислороду. Видно, что фототок примерно постоянен в течение лазерного импульса и спадает после его окончания. Это проявление подавления прилипания электронов к молекулам О<sub>2</sub> под действием лазерного излучения. К приходу второго (задержанного) импульса большинство электронов, созданных первым импульсом, уже прилипли к молекулам кислорода (для напряженности поля в датчике 4 кВ/см и влажности воздуха η=17% время прилипания, рассчитанное по формуле (3.19) составляет  $\tau_{att}$ =51 нс).



**Рис. 3.16** Осциллограммы сдвоенных лазерных импульсов (1) и фотоэлектронный ток на входе осциллографа (2) (R<sub>осц</sub>= 50 Ом).

Как видно на Рис. 3.16, амплитуда второго импульса фототока явно больше, чем первого, в отличие от соотношения амплитуд лазерных импульсов. Очевидно, второй лазерный импульс не только производит фотоэлектроны в процессе REMPI но, кроме того, обеспечивает их фотоотрыв от отрицательных молекулярных ионов  $O_2^-$ , образовавшихся при релаксации плазмы после первого лазерного импульса. Такой же эффект в меньшем масштабе наблюдался и при временной задержке 40 нс между лазерными импульсами.

Эффективность фотоотрыва электронов в зависимости от интенсивности второго импульса (он ослаблялся ступенчатым дифракционным аттенюатором) измерялась на внутренней нагрузке осциллографа 1 МОм. Поскольку электроны имеют подвижность на 3 порядка величины больше, чем ионы, то можно считать, что они вносят наибольший вклад в проводимость плазмы. Напомним, что в случае высокого сопротивления входа осциллографа фотоэлектронный ток интегрируется за время жизни электронов и создает первоначальный резкий скачок  $\Delta u$  (см. подробнее Рис 2.7а и Главу 2.5), тогда как последующий сигнал постепенно нарастает и снижается в соответствии с временной динамикой ионного тока. При этом амплитуда осциллограмм  $\Delta u$ пропорциональна суммарной концентрации электронов, создаваемых первым и вторым импульсом.

Чтобы охарактеризовать долю электронов, высвобождаемых вторым лазерным импульсом, относительно числа залипших электронов вводится коэффициент фотоотрыва *R*<sub>0</sub>

$$R_{O} = \frac{\Delta u_{1+2} - (\Delta u_1 + \Delta u_2)}{\vartheta \Delta u_1 \left( 1 - exp(-(\Delta t - \tau_p)/\tau_{att}) \right)}$$
(3.20)

Здесь  $\Delta u_{1+2}$  – скачок фотоэлектронного сигнала, формируемого сдвоенным лазерным импульсом;  $\Delta u_1$  и  $\Delta u_2$  – измеренные независимо фотоэлектронные сигналы от двух одиночных импульсов с такими же амплитудами (при блокировании другого

импульса), как и в сдвоенном импульсе;  $\vartheta = 0.8$  – пространственное перекрытие в сдвоенном лазерном пучке. Числитель в выражении (3.20) пропорционален общему количеству электронов, появившихся в результате фотоотрыва от ионов  $O_2^-$ . Знаменатель пропорционален количеству ионов  $O_2^-$ , образовавшихся после окончания первого лазерного импульса в результате прилипания электронов к моменту прихода второго импульса. Предполагается, что под действием лазерного излучения прилипание полностью компенсируется процессом фотоотрыва. Величину  $\tau_{att}$  в выражении (3.20) можно рассматривать как подгоночный параметр, чтобы достичь независимости коэффициента  $R_0$  от задержки между импульсами  $\Delta t$ .



**Рис. 3.17** Коэффициент фотоотрыва электронов *R*<sub>O</sub> в зависимости от интенсивности второго лазерного импульса *I*<sub>2</sub>, задержанного на 40 (кружки) и 80 нс (точки). Интенсивность первого импульса *I*<sub>1</sub> = 3.3×10<sup>9</sup> Вт/см<sup>2</sup> отмечена на рисунке пунктиром.

На Рис. 3.17 представлен коэффициент фотоотрыва  $R_O$  при заданной интенсивности первого импульса  $I_1 = 3.3 \times 10^9 \, \text{Вт/см}^2$ , как функция интенсивности

второго импульса, которая варьируется в интервале  $I_2 = 2 \times 10^7 \div 2 \times 10^9 \text{ Bt/cm}^2$ . Для двух значений  $\Delta t = 40$  и 80 нс, наилучшее значение подгоночного параметра  $\tau_{att}$  равно 50 нс (см. Рис. 3.17), что отлично согласуется с результатами измерений из предыдущего раздела. При этом коэффициент  $R_0$  приблизительно одинаков для двух задержек и зависит только от интенсивности второго импульса. Для средней интенсивности в лазерном пятне большей чем ~10<sup>9</sup> Bt/cm<sup>2</sup>  $R_0$  стремится к единице, т.е. почти все «прилипшие» электроны оказываются оторванными.

### 3.4 Выводы к Главе 3

1. Экспериментально исследованы механизмы фотоионизации атмосферного воздуха и основных входящих В его состав газов, измерены сечения соответствующих процессов. Показано, что во влажном воздухе основной вклад в ионизацию дает резонансно-усиленная многофотонная ионизация (REMPI) водяного пара, естественным образом содержащегося В воздухе. Для импульсов длительностью 25-нс в диапазоне интенсивностей 10<sup>8</sup>÷3×10<sup>10</sup> Вт/см<sup>2</sup> происходила высокоэффективная (2+1) REMPI ионизация водяного пара с сечением (9.0±5.5)·10<sup>-16</sup> см<sup>4</sup>/сВт<sup>2</sup>. Для импульсов длительностью 170-фс в диапазоне интенсивностей 10<sup>10</sup>÷5×10<sup>12</sup> Вт/см<sup>2</sup> в кислороде наблюдалась прямая трёхфотонная ионизация с сечением (1.2±0.5)·10<sup>-29</sup> см<sup>6</sup>/сВт<sup>3</sup>, в азоте (3+1) REMPI с сечением (1.7±0.8)·10<sup>-30</sup> см<sup>6</sup>/сВт<sup>3</sup>. Высокоэффективная трехфотонная резонансная ионизация водяного пара происходила с сечением  $(5.6\pm3.8)\cdot10^{-27}$  см<sup>6</sup>/сВт<sup>3</sup>.

2. Экспериментально исследована эволюция низкоплотной фотоионизационной плазмы, созданной в атмосферном воздухе УФ УКИ. Показано, что основным механизмом гибели электронов в плазме с начальной концентрацией электронов  $N_e^0 < 10^{13}$  см<sup>-3</sup> является трёхчастичное прилипание электронов к кислороду. Получены новые данные о скоростях процесса в атмосферном воздухе при различной влажности и напряженности приложенного электрического поля. Измеренные времена жизни электронов относительно трёхчастичного прилипания в сухом воздухе возрастали от 8 до 65 нс при увеличении напряженности поля от 0.3 до 8 кВ/см. Во влажном воздухе, где в трёхчастичное прилипание к кислороду основной вклад вносит вода как третье тело, время жизни электронов в том же диапазоне напряженностей поля составляло от 5 до 30 нс.

3. Экспериментально продемонстрировано явление фотоотрыва электронов от ионов  $O_2^-$ , образующихся в результате трёхчастичного прилипания в низкоплотной фотоионизационной плазме. При средней интенсивности в лазерном импульсе  $I>10^9$  Вт/см<sup>2</sup>, лазерное излучение на длине волны 248 нм отрывает более 80% залипших
электронов. Из этого следует важный вывод, что в процессе действия достаточно интенсивного лазерного импульса, трёхчастичное прилипание электронов является полностью подавленным. Явление фотоотрыва может быть использовано для увеличения времени жизни фотоионизационной плазмы с помощью цугов импульсов.

## Глава 4. Влияние множественной филаментации на усилении УФ УКИ в эксимерных KrF усилителях

Как было показано в Главе. 3, лазерное излучение на длине волны 248-нм за счет двухфотонного резонансного возбуждения промежуточного  $\tilde{C}^1B_1$  уровня молекулы воды является крайне эффективным для создания фотоионизационной плазмы в атмосферном воздухе. Вследствие этого, а также ряда других причин (см. Лит. обзор), возникает интерес к созданию мощных источников подобного излучения. В связи с этим настоящая глава посвящена проблемам генерации мощных УФ УКИ путем усиления затравочных УКИ в эксимерной KrF среде.

В Разделе 4.1 приводится обзор литературы по усилению УКИ в многокаскадной гибридной KrF/Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> лазерной системе "ГАРПУН-МТВ". В этих экспериментах, предваривших настоящую диссертационную работу, показано, что при усилении УКИ происходит ограничение выходной энергии лазерных импульсов, не связанное с насыщением усиления в активной среде.

В последующих разделах исследуется природа этого явления, связанного с сильно неоднородным распределением излучения в профиле лазерного пучка, приводящим к возникновению существенных нелинейных потерь в окнах усилителей и KrF активной среде. С помощью методики визуализации мощного УФ излучения, получены поперечные профили распределения плотности энергии (интенсивности) в лазерном пучке с субтераваттной пиковой мощностью излучения, на четыре порядка превышающей критическую мощность самофокусировки УФ излучения в воздухе. Показано, что мелкомасштабная самофокусировка приводит к множественной филаментации лазерного пучка – образованию высокоинтенсивных (~2×10<sup>11</sup> Вт/см<sup>2</sup>, 0.2 Дж/см<sup>2</sup>) протяженных каналов-филаментов, в которых

содержится существенная (до 30÷40%) доля полной энергии, а интенсивность на 2 порядка превышает среднюю по полной апертуре пучка.

В отдельных экспериментах были измерены нелинейные потери при прохождении УФ УКИ различной мощности через пластины из CaF<sub>2</sub> (материал окон KrF усилителей). Получено, что из-за нелинейного поглощения и рассеяния излучения, а также уширения спектра за пределы полосы усиления KrF лазера, значительная часть содержащейся в филаментах энергии теряется.

## 4.1 Обзор работ по усилению одиночных УКИ и цугов УКИ в многокаскадной KrF лазерной системе «ГАРПУН-МТВ»

На гибридной KrF/Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> лазерной системе ГАРПУН-МТВ (см. Главу 2 и [118]) исследовались различные многопроходные схемы усиления цугов УКИ субпикосекундной длительности [118, 119, 140]. Из-за короткого времени жизни верхнего лазерного уровня  $\tau_c \sim 2$ нс, существенно меньшего времени накачки (~100 нс для усилителя ГАРПУН), эффективный энергосъем в активной среде обеспечивает цуг УКИ с длительностью  $\tau_p \leq \tau_c$ , следующих с интервалом  $\Delta t \geq \tau_c$ . В этом случае инверсия населенностей и усиление в среде успевают восстановиться к приходу очередного импульса и малы потери на усиленное спонтанное излучение. С другой стороны, цуг УФ УКИ, суммируя энергию отдельных УКИ, позволяет эффективно нарабатывать электроны и продлевать время существования ионизованных атмосферном воздухе. Последнее плазменных каналов в важно для ряда применений, описанных в Главе 1.

В работах [119, 140] исследовалось последовательное двухпроходное усиление в усилителях «Бердыш» и ГАРПУН (схема 2+2, Рис 4.1) одиночных УКИ и цуга УКИ с интервал следования ∆*t*≈ 5.3 нс между ними. Основной целью этих экспериментов было получение максимальной энергии одиночного УКИ и цуга УКИ, измерявшейся на выходе после усилителя ГАРПУН. При этом предполагаемая максимальная энергия одиночного УКИ, рассчитанная из уравнения ФранцаНодвика в режиме насыщения среды, могла достигать ~4÷8 Дж и 10÷30 Дж для цуга УКИ.



**Рис. 4.1** Схема двухпроходного усиления цуга УКИ в усилителях Бердыш и Гарпун (2+2).

В экспериментах с помощью дифракционного аттенюатора производства ИАиЭ СО РАН варьировалась полная энергия цуга УКИ на входе в схему усиления и измерялась выходная энергия. Количественные измерения энергии УКИ и УСИ проводились калориметром, причем вклад УСИ определялся в отсутствие инжекции УКИ в тракт усиления. Калориметр располагался в слабосфокусированном пучке на расстоянии 10 м от выхода оконечного усилителя, и на его приемную площадку диаметром 2 см падала лишь та часть УСИ, которая распространялась с расходимостью, сходной с расходимостью усиленных УКИ. Полученные данные изображены на Рис. 4.2. Аналогичная зависимость была получена и для одиночного

УКИ с той разницей, что энергия одиночного УКИ была в среднем в 2.5 раза меньше, чем энергия цуга.



**Рис. 4.2** Зависимость полной выходной энергии и выходной энергии цуга УКИ от входной энергии цуга УКИ для двухпроходного усиления в усилителях Бердыш и Гарпун (2+2) из работы [140].

Для цуга с энергией  $E_{in} \sim 80$  мкДж на входе в усилители максимальная выходная энергия  $E_{out}$  составляла 1.2 Дж, Причем, как видно, изменение входной энергии на порядок, с 8 до 80 мкДж не приводило к существенному изменению выходной энергии, которая при этом менялась всего в 2 раза. Максимальная энергия одиночных УКИ достигала 0.4 Дж (при входной энергии ~ 25 мкДж), т.е. полученная плотность энергии одиночного УКИ после усилителя ГАРПУН при усилении в схеме (2+2) составила  $Q_{2+2} = \frac{E}{s} = 2 \text{ мДж/см}^2$  (E=0.4 Дж, S=200 см<sup>2</sup>), что существенно ниже ожидаемых плотностей энергии ( $Q_{opt} \sim 4.6 \div 6.0 \text{ мДж/см}^2$ ). Аналогично энергия цуга УКИ была в несколько раз ниже ожидаемых из теории значений.



**Рис. 4.3** Схемы усиления УКИ с четырьмя проходами через предусилитель БЕРДЫШ и одним (4+1) (а) или двумя проходами через усилитель ГАРПУН (4+2) (б).

В дальнейшем в работе [140] для увеличения выходной энергии, были добавлены два дополнительных прохода через предусилитель «Бердыш». Были исследованы два варианта усиления с одним (схема 4+1) или двумя (схема 4+2) последующими проходами через основной усилитель ГАРПУН, показанные на Рис. 4.3. Входной пучок УКИ имел диаметр ~30 мм и дважды проходил усиливающую среду предусилителя, после чего пропускался через дополнительный вакуумный пространственный фильтр, установленный в схеме для ограничения УСИ. Пространственный фильтр, образованный линзами L1 и L2 на выходе давал расходящийся пучок, полностью заполнявший апертуру предусилителя В последующих двух проходах. Энергия цуга УКИ, усиленного в предусилителе, измерялась калориметром, установленным за основным пространственным фильтром, и соответствовала поступающей на вход основного усилителя.

114



**Рис. 4.4** Зависимость выходной энергии цуга УКИ после четырех проходов через предусилитель «Бердыш» от входной энергии цуга из работы [140].

На Рис. 4.4 показана зависимость полной выходной энергии цуга УКИ после четырех проходов через предусилитель «Бердыш» от входной энергии цуга. Максимальная выходная энергия  $E_{BbIX} = 0.13$  Дж при  $E_{BX} = 0.08$  мДж, что соответствовало полному усилению  $G = E_{BbIX} / E_{BX} \approx 1600$  за четыре прохода. Энергия УСИ, измеренная в этой схеме, оказалась незначительной ( $E_{YCH} \sim 3$  мДж). Для сравнения в предыдущих экспериментах в двухпроходной схеме после предусилителя была получена энергия одиночных УКИ  $E_{BbIX} = 23$  мДж при  $G \approx 70$ . На Рис. 4.5 представлены зависимости полной энергии (левая ось ординат) и энергии УКИ, измеренной как разность полной энергии и энергии УСИ (правая ось ординат), от входной энергии цуга УКИ для двух схем усиления (4+1) и (4+2). В двухпроходной схеме (4+2) вклад УСИ в полную энергию излучения составляет около 50% (Рис. 4.56) и примерно в 5 раз превышает вклад в однопроходной схеме (4+1) (Рис. 4.5а). Возрастание УСИ в схеме (4+2), обусловленное его экспоненциальным усилением и двукратным увеличении эффективной длины оконечного усилителя  $I_{\rm YCH} \sim exp[(g_0 - \alpha_{ns})L_{9\varphi\varphi}]$ , согласуется с результатами измерений и расчетов [118]. В то же время энергия усиленного цуга УКИ изменяется незначительно, так как их усиление происходит в насыщенном режиме. Увеличение интенсивности УСИ в схеме (4+2) приводит к насыщению коэффициента усиления и его уменьшению в среднем в 2,5 раза по сравнению с коэффициентом усиления слабого сигнала  $g_0 \sim 0.08$  см<sup>-1</sup>. Для сравнения в схеме (4+1) коэффициент усиления иза насыщения УСИ снижается до  $g \sim 0.05$  см<sup>-1</sup>.



**Рис. 4.5** Зависимость выходной энергии цуга УКИ после четырех проходов через предусилитель «Бердыш» и одного (4+1) (а) или двух (4+2) (б) проходов через усилитель ГАРПУН от входной энергии цуга из работы [140].

В целом, все полученные в работах [118, 119, 140] зависимости выходной энергии УКИ от энергии на входе качественно похожи друг на друга: увеличение входной энергии УКИ на 3 порядка приводит к увеличению выходной энергии всего в несколько раз (см. например Рис. 4.2 и 4.5). Наибольшее насыщение усиления отмечалось в схеме (4+2), в которой получена максимальная энергия усиленного цуга УКИ 1.6 Дж. В схеме усиления (4+1) максимальная энергия цуга составила 1.3 Дж, и ненамного отличалась от энергии 1.2 Дж, измеренной в двухпроходной схеме (2+2). Таким образом, в условиях насыщения усиления УКИ увеличение числа

проходов через усилители от 4 (в схеме 2+2) до 6 (в схеме 4+2) не приводило к желаемому результату – существенного увеличения выходной энергии не произошло. При этом, при увеличении числа проходов и общей длины усиления возрастала доля УСИ, которая составляла около 50% в схеме (4+2) и 10% и 3% в схемах (4+1) и (2+2) соответственно. В идеальном приближении (при отсутствии УСИ и прочих потерь, за исключением ненасыщаемого собственного поглощения в активной среде) плотность выходной энергии одиночного УКИ возрастает с увеличением длины усиления вплоть до предельной величины  $Q_{\rm lim} = \frac{g_0}{\alpha_{\rm rs}} Q_s = 20 \div 40$ 

мДж/см<sup>2</sup>, которая находится из условия  $\frac{d\varepsilon}{dx} = 0$  в уравнении (1.13), означающего, что вся извлекаемая из активной среды энергия целиком поглощается в самой же среде. Для площади выходной апертуры усилителя ГАРПУН  $S \approx 200$  см<sup>2</sup> предельная энергия одиночного УКИ могла бы составить 4÷8 Дж, а для цуга – примерно в 3 раза больше. Учет прочих потерь, связанных с Френелевским отражением на непросветленных окнах усилителя и поглощением излучения молекулярным фтором (он входит в состав рабочего газа и в невозбужденном состоянии поглощает лазерное излучение) в ненакачанных электронным пучком областях вблизи окон усилителя, согласно оценкам из [140], не меняет ситуацию. Следовательно, в наблюдаемое насыщение выходной энергии цуга УКИ на уровне  $E_{out} \approx 1.6$  Дж с увеличением числа проходов через усилители помимо насыщения усиления активной среды вносит вклад неизвестное нелинейное поглощение, возрастающее с числом проходов. Целью последующей работы будет поиск источника этого поглощения.

# 4.2 Измерение профиля интенсивности пучка в режиме множественной филаментации

Если предположить, что излучение УКИ распределено равномерно, то средняя интенсивность в одиночном УКИ составит  $I_{cp} = \frac{E}{S \times \tau_p} = \frac{0.4 \text{ Дж}}{200 \text{ см}^2 \times 900 \times 10^{-15} \text{ c}} = 2.2 \text{ ГВт/см}^2$ . В этом случае трехфотонное поглощение в CaF<sub>2</sub> (окнах усилителей) можно оценить по формуле [136]

$$I(L) = \frac{I_0}{(1 + \gamma I_0^2 L / \sqrt{3})}$$
(4.1)

Для окон толщиной *L*=4 см, падающей интенсивности  $I_0$ =2.2 ГВт/см<sup>2</sup> и коэффициента трехфотонного поглощения  $\gamma$ =3.8×10<sup>-23</sup> см<sup>3</sup>×Вт<sup>-2</sup> [137] пропускание, без учета Френелевского отражения составляет *T*=*I*(*L*)/ $I_0$ ≈1. Таким образом, средняя интенсивность в усиленном УКИ такова, что существенного нелинейного поглощения в окнах усилителей наблюдаться не должно, а возможное нелинейное поглощение может быть связано с неоднородным распределением излучения и наличием каких-то «горячих точек». Следовательно, необходимо понять, каковы характерные масштабы неоднородностей интенсивности в усиленном УКИ. Поскольку пиковая мощность такого импульса, *P*~0.4 ТВт многократно превышает критическую мощность самофокусировки в воздухе *P*<sub>cr</sub>=100 МВт [7, 164],  $\frac{P}{P_{cr}}$ ~4 × 10<sup>3</sup>, можно ожидать существенного влияния самофокусировки излучения на распределение интенсивности (плотности энергии) в лазерном пучке.

Для измерения поперечного профиля распределения интенсивности УФ излучения была использована методика, основанная на измерении люминесцентного отклика стекла К8 [165] (Рис. 4.6). Одиночный или цуг усиленных УКИ подавались на стеклянную пластину, изображение люминесценции которой строилось с помощью макрообъектива Мир-1 на ПЗС камеру Видеоскан-285-UV.



**Рис. 4.6** Схема измерения поперечного профиля пучка УФ УКИ. 1- Пластина из стекла К8, 2- Объектив, 3- ПЗС камера.

Такая методика была выбрана ввиду ряда существенных особенностей диагностики УКИ: высокая интенсивность УКИ делала невозможным прямое измерение с помощью CCD матрицы в силу небольшого порога разрушения матрицы (~50 Вт/см<sup>2</sup>), а размер матрицы (~0.5 см<sup>2</sup>) не позволял снимать ближнюю зону (S $\approx$ 200 см<sup>2</sup>) целиком. В свою очередь использование люминесценции стеклянной пластины позволяло работать без ослабления мощности пучка и как следствие изменения условий нелинейного распространения. Кроме того имелась возможность снимать полный профиль пучка большой площади в одном измерении. Нелинейность отклика люминесценции стекла К8 в зависимости от падающей интенсивности была одновременно и достоинством и недостатком методики: она значительно увеличивала динамический диапазон измерений, но при этом требовалась калибровка нелинейного отклика люминесценции на падающее УФ излучение. В связи с чем, в независимых экспериментах с помощью УКИ Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> лазера в той же схеме (Рис. 4.6) была получена калибровочная зависимость интенсивности ОТ интенсивности УКИ (Рис. 4.7). люминесценции стекла С помощью дифракционного аттенюатора энергия УКИ ослаблялась от 0.14 до 0.007 мДж (что соответствует изменению пиковой мощности УКИ от 1.4 до 0.07 ГВт). Затем излучение фокусировалось линзой с F=1 м в пятно с распределением излучения, близким Гауссову. Для чтобы к того исключить возможное влияние

самофокусировки излучения на распределение в облучаемом пятне, калибровка люминесценции стекла проводилась как при фокусировке в воздухе, так и в вакууме. УКИ Непосредственно эксперименте каждой энергии В ДЛЯ находился максимальный ПО пятну сигнал люминесценции, который приписывался соответствующей максимальной плотности энергии.



**Рис. 4.7** Зависимость люминесцентного отклика стекла К8 от падающей интенсивности УФ излучения в воздухе и вакууме.

В дальнейшем используя калибровочную кривую люминесценции стекла, из измеренного профиля люминесценции для пучка усиленного УКИ восстанавливался профиль распределения плотности энергии (и интенсивности) усиленного УКИ. Изображение люминесценции, соответствующей поперечному сечению слегка поджатого пучка для мощного одиночного усиленного УКИ с энергией Е~ 0.2 Дж на расстоянии ~25 м от усилителя ГАРПУН показано на Рис. 4.8.

Как видно, лазерный пучок распадается на множество горячих точек, причем подобная структура пучка прослеживалась на расстоянии десятков метров, что

позволяет говорить о самоканаллировании или множественной филаментации излучения [165, 166].





Распределение филаментов в пучке задавалось фазовыми вариациями волнового фронта пучка при прохождении выходного окна усилителя из CaF<sub>2</sub>, которое имело блочную структуру, то есть представляло из себя сростку из нескольких монокристаллических блоков. Вследствие этого дополнительный набег фазы на границе блоков был затравкой для самофокусировки излучения. Вопросы нелинейного распространения и множественной филаментации мощных усиленных УФ УКИ более подробно изучались в других работах автора диссертации [165, 167, 168], здесь же будет рассмотрено только влияние самофокусировки на усиление УФ УКИ в KrF усилителях. Для подсчета числа филаментов и содержавшейся в них энергии после преобразования распределения люминесценции в плотность энергии УФ излучения задавался критерий, согласно которому горячая точка считалась филаментом, если плотность энергии в ней  $Q_f > 0.3Q_{\text{max}}$ , где  $Q_{\text{max}}$  – максимальная плотность энергии среди всех горячих точек. Для УКИ с пиковой мощностью P=0.2ТВт~2000 $P_{\text{cr}}$  число филаментов составило  $N_f=289\pm20$ , а содержащаяся в них доля энергии составила  $\xi\approx30$ -40%. Доля энергии определялась как отношение суммарной энергии переносимой в филаментах (где  $Q_f > 0.3Q_{\text{max}}$ ) к полной энергии в импульсе. Т.е. один филамент переносит мощность  $P_f=0.3P/N_f \sim 200$  МВт, что соответствует ~ $2\times P_{\text{cr}}$ , т.е. нескольким критическим мощностям самофокусировки.



**Рис. 4.9** Профиль распределения интенсивности одиночных филаментов, отмеченных цифрами на Рис. 4.8

Измеренный диаметр различных филаментов, отмеченных цифрами 1...5 на Рис. 4.8, составил по уровню 1/2 от максимума  $d_f = 290\pm50$  мкм (Рис. 4.9). Полагая Гауссово распределение излучения в филаменте для площади  $S_f = \pi a_f^2$  ( $a_f = d_f/2\ln 2$ ), получаем интенсивность  $I_f = P_f/S_f = (2.0\pm0.6) \cdot 10^{11}$  Вт/см<sup>2</sup> и плотность энергии  $Q_f =$  0.20±0.06 Дж/см<sup>2</sup> в филаментах, что в 100 раз больше средних по выходной апертуре усилителя значений ( $I_{cp} = 2.2 \ \Gamma B T / c M^2$ ;  $Q_{cp} = 2 \ M Д ж / c M^2$ ).

Отметим, что в литературе имеет место довольно большой разброс относительно параметров УФ филаментов. Для излучения на длине волны 248 нм в теоретической работе [42] предсказывается формирование филаментов диаметром  $d_{\rm f}$ = 50 мкм, с пиковой интенсивностью  $I_{\rm f}$ =2.7·10<sup>13</sup> Вт/см<sup>2</sup> при длительности импульса 100 фс, тогда как в работе [152] экспериментально измеренный размер филамента составил  $d_{\rm f}$ = 150 мкм, а пиковая интенсивность  $I_{\rm f}$ =2.2·10<sup>11</sup> Вт/см<sup>2</sup> при длительности импульса 450 фс. В этой же работе, по результатам численного моделирования было указано, что пиковая плотность электронов в филаменте достигает 10<sup>15</sup> см<sup>-3</sup>. Однако, как было показано в Главе 3 (см. например Рис. 3.6) подобная плотность плазмы недостижима для импульсов столь низкой интенсивности. Если для параметров импульса из работы [152] рассчитать пиковую плотность электронов на оптической оси с учетом измеренных в Главе 3 сечений МФИ компонент воздуха (см. раздел 3.1.4), то даже в случае воздуха с содержанием влаги 2%, что маловероятно в условиях лабораторного эксперимента, предельно достижимая плотность электронов составляет ~2×10<sup>13</sup> см<sup>-3</sup>, что на 2 порядка ниже указанного в работе [152] значения. Следовательно, выполнение общепринятого для филаментов с  $\lambda$ =800 нм условия баланса между самофокусировкой излучения и дефокусировкой на плазме [7], в случае  $\lambda$ =248 нм потребовало бы на 2 порядка больших сечений фотоионизации, по сравнению с имеющимися в литературе (см. например [7, 11]) либо измеренными в настоящей работе. Исходя из этого можно предположить, ЧТО В случае 248-нм УКИ. физический филаментации коллимированных механизм, ограничивающий самофокусировку излучения и определяющий параметры УФ филаментов, вероятно, не связан с образованием плазмы. Отметим, что в литературе встречается достаточно много работ, где наблюдалась бесплазменная филаментация

и были предложены альтернативные физические механизмы, ограничивающие самофокусировку излучения (см. подробнее [168-174]).

В целом измеренная в [152] интенсивность в одиночном филаменте  $I_{\rm f}$ =2.2·10<sup>11</sup> Вт/см<sup>2</sup> хорошо согласуется с измеренным в нашей работе значением. Разброс диаметров филаментов, по всей видимости, связан с отличиями в условиях фокусировки, в работах [42] и [152] излучение фокусировалось линзой. Дополнительная (по сравнению с Керровской самофокусировкой) фокусировка излучения приводит к изменению параметров филаментов, в частности, наличие линзы приводит к тому, что фокус линзы f<sub>L</sub> складывается с нелинейным фокусом  $f_{\text{Kerr}}$ , как  $f^{-1} = f_L^{-1} + f_{Kerr}^{-1}$ , что навязывает более раннюю филаментацию ( $f < f_{\text{Kerr}}$ ) и меньший диаметр пучка, по сравнению с коллимированным филаментом (см. например обзоры [5-7]). Также имеет место отличие в длительностях исследуемых импульсов, в нашем случае  $\tau_p$ =900 фс, тогда как в работах [42]  $\tau_p$ =100 фс и [152] τ<sub>p</sub>=450 фс. Отличие в длительности может приводить к существенному изменению нелинейного показателя преломления  $n_2$  в связи с наличием инерционного нелинейного отклика среды связанного с ВКР [175, 176], что для импульсов с длиной волны 248 нм было продемонстрированно в работе сотрудников ФИАН [164].

Таким образом, из-за большого превышения пиковой мощности усиленного УКИ над критической мощностью самофокусировки происходит множественная филаментация излучения. В связи с этим возникает ряд вопросов, а именно, (1) на каком этапе при усилении УКИ происходит формирование множественных филаментов; (2) можно ли уменьшить филаментацию пучка, если использовать монокристаллические (моноблочные) окна в KrF усилителях; (3) каково влияние филаментации на нелинейные потери в проходной оптике и активной среде. Для ответа на первые два вопроса был проведен эксперимент, в котором с помощью той же методики измерялся поперечный профиль пучка для одиночного УКИ и цуга УКИ усиливаемых в четырех проходах через предусилитель, на котором были установлены монокристаллические окна. Затем излучение проходило весь тракт усиления в схеме (4+2), где наиболее ярко проявлялось ограничение выходной энергии излучения. Однако в данных экспериментах усилитель ГАРПУН не накачивался. Соответствующие отдельным измерениям положения на схеме (Рис. 4.10) отмечены цифрами.



Рис. 4.10 Схема измерения поперечного профиля пучка в тракте усиления.

Полученные распределения излучения для одиночного УКИ и цуга УКИ приведены на Рис. 4.11. Как видно, филаментационная структура начинает формироваться уже после первых двух проходов излучения в предусилителе (Рис. 4.11а, б), а после четырех проходов перед большим пространственным фильтром (положение 3) видна уже полностью сформированная картина филаментации (Рис. 4.11в, г). Напомним, что энергия одиночного УКИ после четырех проходов в предусилителе составляла около E=100 мДж, что при длительности импульса  $\tau_p=700$  фс, соответствовало мощности P=0.15 ТВт $\approx 1500 P_{cr}$ .



**Рис. 4.11** Поперечные профили распределения интенсивности усиленного УКИ (верхний ряд) и цуга УКИ (нижний ряд), размер изображений 3×3 см. Цифрами обозначены положения на Рис. 4.10.

Пропускание через ненакачиваемый усилитель ГАРПУН приводило к падению полной энергии и уменьшению числа филаментов (д, е). Большое яркое пятно на изображениях (а-г) является следом от УСИ, которое задерживалось пространственными фильтрами (Рис. 4.12). Распространение и фокусировка филаментированного пучка через малую диафрагму в вакууме приводило к некоторому выравниванию картины филаментации, хотя и не устраняло её полностью.



**Рис. 4.12** Поперечные профили распределения интенсивности усиленного УКИ (левая колонка) и цуга УКИ (правая колонка), после пространственных фильтров, размер изображений 3×3 см.

Как видно на Рис. 4.12, где показаны профили излучения после пространственных фильтров в положении (2) и (4) пропускание через фильтры полностью убирает УСИ и значительно искажает картину филаментации.

Сравнение картин филаментации одиночных УКИ и цуга показывает, что они очень похожи, положение одиночных филаментов и их пространственное распределение на временном интервале в несколько десятков наносекунд (задержка между первым и последним УКИ в цуге) меняется незначительно. Кроме того, картина филаментации хорошо воспроизводилась в каждой серии экспериментов (при неизменной юстировке пучка), если за время между импульсами накачки успевала выровняться температура рабочей смеси в усилителе.

Таким образом, мы продемонстрировали, что в случае многопроходного усиления субпикосекундных УКИ даже для однородных монокристаллических окон усилителя по мере увеличения мощности излучения развивается мелкомасштабная самофокусировка и множественная филаментация лазерного пучка, обусловленные нелинейным набегом фазы начальных случайных неоднородностях на пространственного Использование распределения излучения. вакуумных пространственных фильтров, хотя и несколько выравнивает распределение, не устраняет полностью филаментацию пучка.

### 4.3 Измерение нелинейных потерь энергии УКИ в CaF<sub>2</sub>

Для оценки влияния эффекта множественной филаментации на нелинейные потери при усилении УКИ был проведен модельный эксперимент, в котором исследовалось нелинейное поглощение УФ УКИ с интенсивностью  $10^9 \div 5 \cdot 10^{11}$  Вт/см<sup>2</sup> в CaF<sub>2</sub>, материале окон усилителей. Излучение третьей гармоники Ti<sup>3+</sup>:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> стартового комплекса с  $\lambda$ =248.5 нм фокусировалось длиннофокусной линзой с f = 2 м в плоскопараллельную пластину из CaF<sub>2</sub> толщиной 2 см, которая располагалась в области перетяжки пучка на расстоянии ~8 см до фокальной плоскости (Рис. 4.16). Положение образца из CaF<sub>2</sub> вдоль оптической оси выбиралось таким образом, чтобы диаметр пятна на входе в образец ( $d_{1/2}$ ~ 300 мкм, измеренный профилометром SP620U), был равен среднему диаметру отдельных филаментов в мощном пучке усиленных УКИ.

Энергия УКИ на выходе из стартового комплекса измерялась калориметром OPHIR и составляла ~0.1 мДж при длительности импульсов ~100 фс, что соответствовало средней мощности  $P \sim 1$  ГВт. Падающее на образец излучение поэтапно ослаблялось дифракционным аттенюатором DVA-22-250 в 100 раз, причем

размер пятна на входе в образец был примерно одинаков как при максимальной мощности УКИ, в 10 раз превышавшей критическую мощность филаментации  $P_{cr}$  в воздухе, так и при минимальной мощности, которая была в 10 раз ниже критической. В данном эксперименте условия прохождения окна усилителя отдельными филаментами воспроизводились в значительно более широком диапазоне пиковых мощностей, которые были заведомо выше критической мощности самофокусировки в CaF<sub>2</sub> (см. раздел 4.4).



Рис. 4.13 Схемы измерения (а) пропускания образца из CaF<sub>2</sub> и (б) спектральной диаграммы направленности излучения. 1- линза, 2- образец из CaF<sub>2</sub>, 3- диафрагма, 4спектрометр. (Римскими цифрами отмечен ход лазерного пучка в отсутствии (I) и в присутствии образца (II))

Поскольку чувствительность имеющихся калориметров была недостаточна для измерения небольших изменений энергии в диапазоне 1÷20 мкДж, в экспериментах для измерения энергии использовался спектрометр ASP с ПЗС-линейкой. При больших интенсивностях излучения падающего на CaF<sub>2</sub> ( $I_0$ >2×10<sup>11</sup> Bt/cm<sup>2</sup>) наблюдалось сильное рассеяние излучения по углам, в связи с чем, для учета

рассеяния, излучение пропускалось через ирисовую диафрагму, диаметр которой был равен поперечному размеру пучка в отсутствии образца (Рис. 4.13а). Прошедшее через диафрагму излучение с помощью короткофокусной линзы направлялось на спектрометр. Типичные спектры излучения, прошедшего через воздух и CaF<sub>2</sub>, приведены на Рис. 4.14.



Рис. 4.14 Нормированные спектры излучения, прошедшего через воздух (Рис.
4.13а) (оранжевые треугольники) и образец из CaF<sub>2</sub> (синие кружки) При пиковой мощности УКИ 0.75 ГВт. Черной полоской отмечена полоса усиления KrF.

Как видно, излучение в воздухе имеет широкие спектральные крылья, отстроенные от основной длины волны на ~10 нм. Подобный спектральный сдвиг соответствует изменению энергии кванта на  $h\Delta\nu\sim0.2$  эВ, что по порядку величины соответствует размеру колебательного кванта основного состояния молекулярного кислорода  $\omega_e$ =1580 см<sup>-1</sup> (0.196 эВ) [177]. Исходя из чего можно сделать вывод, что широкие спектральные крылья являются результатом ВКР на колебательной структуре молекулярного кислорода. В случае излучения, прошедшего через CaF<sub>2</sub> помимо широких спектральных крыльев наблюдается сильное уширение центрального максимума и появление на нем нескольких спектральных пиков,

которые подробнее анализируются позднее. Из сравнения интегралов ПО спектральным распределениям излучения, прошедшего через образец и в его отсутствие, (ослабления) находилась относительная величина пропускания излучения, обусловленная суммарным эффектом нелинейного поглощения и рассеяния. Такая методика регистрации позволяла исключить влияние уширения спектра прошедшего через CaF<sub>2</sub> излучения на результаты измерений, которое отмечалось при использовании фотодиодов, имеющих сильную зависимость спектральной чувствительности от длины волны излучения в УФ области спектра. В воздухе (где также можно было ожидать некоторого поглощения излучения) интеграл по спектру излучения, прошедшего через фокальную перетяжку, в пределах погрешности измерений линейно зависел от падающей энергии (Рис. 4.15). При этом энергия УКИ, непосредственно измеренная калориметром при нулевом ослаблении дифракционного аттенюатора, до и после перетяжки пучка с точностью до погрешности измерений совпала. В связи с чем, значения интегралов по спектру были привязаны к падающей энергии и мощности УКИ. Отметим, что причина отсутствия существенного поглощения в воздухе (по сравнению с экспериментами в Главе 3) связана с на порядок меньшей числовой апертурой фокусировки (*NA*≈2.7×10<sup>-3</sup>) и низкой  $\eta$ ≈20% влажностью воздуха.

Результаты подобной обработки с учетом Френелевского отражения от обеих поверхностей образца показаны на Рис. 4.18а. Видно, что значительные нелинейные потери в CaF<sub>2</sub> возникают для УКИ с пиковой мощностью более 0.1 ГВт, что соответствует интенсивностям падающего на образец излучения ~10<sup>11</sup> Вт/см<sup>2</sup>. С увеличением мощности УКИ нелинейные потери возрастают и при P=1 ГВт достигают ~80%. На Рис. 4.15б показано пропускание образца из CaF<sub>2</sub> толщиной 2 см, а также построенные (с учетом пространственной и временной формы лазерного импульса) по формуле (4.1) аппроксимирующие кривые для различных значений коэффициента трёхфотонного поглощения  $\gamma$ , где  $\gamma_1$  и  $\gamma_2$  взяты из работ [139] и [137]

соответственно. Наилучшее совпадение с экспериментом получено для значения  $\gamma = (1.1 \pm 0.3) \times 10^{-22} \text{ см}^3/\text{Br}^2$ .





Отметим, что в нашем случае, в отличие от работы [137], где использовались импульсы со схожей длительностью (450 фс), коэффициент у учитывает как потери на нелинейное поглощение, так и на рассеяние излучения. В остальном, мощности (интенсивности) УФ излучения, при которых проявляются нелинейное поглощение и рассеяние в CaF<sub>2</sub>, близки к приведенным в работах [106, 137].

Помимо прямых потерь энергии, связанных с нелинейным поглощением и рассеянием излучения, как отмечалось выше, также наблюдалось сильное уширение спектра излучения, прошедшего через образец CaF<sub>2</sub> (Рис. 4.15). Уширение спектра,

хотя и в меньшей степени, наблюдалось и при фокусировке в воздухе. При этом значительная часть энергии, достигающая нескольких десятков процентов, содержалась в широких крыльях, полуширина которых  $D_{1/2} \sim 20$  нм намного превышает полосу усиления лазерного перехода KrF (~2.5 нм), и, следовательно, они не участвовали в усилении. Чтобы оценить связанные с этим потери, спектр излучения интегрировался в полосе усиления KrF (отмечена черной полоской на Рис 4.17), и находилась доля энергии по отношению к полной энергии во всем спектре. В случае воздуха, доля энергии в спектральных крыльях за пределами полосы усиления KrF составляла до 50% при максимальной мощности излучения 0.75 ГВт, тогда как при прохождении излучения через образец из CaF<sub>2</sub> более 90% полной энергии импульса оказывалось за пределами полосы усиления.

Чтобы понять природу уширения спектра и рассеяния излучения, был проведён эксперимент (Рис. 4.13б), в котором измерялась спектральная диаграмма направленности излучения, прошедшего через воздух и CaF<sub>2</sub>. Для этого спектрометр ASP-150 устанавливался на прецизионную подвижку, с помощью которой смещался поперёк пучка, а излучение на спектрометр не фокусировалось. Полученные спектры излучения на оптической оси и на краях углового распределения при пиковой мощности падающего излучения 0.8 ГВт приведены на Рис. 4.16а, б, г-е. Путем интегрирования спектров строилась угловая диаграмма, приведенная на Рис. 4.16в.

Как видно, в случае воздуха, спектр излучения на краях углового распределения (б) похож на спектр на оптической оси (а), при этом на краях отсутствуют (вероятно, находятся вне диапазона чувствительности прибора) широкие спектральные крылья, а спектральная ширина на полувысоте  $\Delta\lambda=1$  нм соответствует длительности импульса  $\tau_p=100$  фс. Ширина спектра излучения на оптической оси несколько шире,  $\Delta\lambda\approx2$  нм, и, по всей видимости, уширена вращательным вынужденным комбинационным рассеянием (ВКР) в воздухе.

Отметим, что в случае воздуха угловая диаграмма с шириной по полувысоте ∆ $\theta \approx 0.1$  рад задается фокусирующей линзой.



Рис. 4.16. Спектры излучения, прошедшего через воздух (**a**, **б**) и CaF<sub>2</sub> (**г**-**e**) для различных углов рассеяния (в радианах) при пиковой мощности падающего излучения 1 ГВт. Угловая диаграмма излучения прошедшего через воздух и CaF<sub>2</sub> (**B**).

Пунктиром отмечена центральная длина волны 248.5 нм.

При прохождении излучения через образец из CaF<sub>2</sub> формируется широкий, по сравнению с воздухом, конус излучения (Рис. 4.16в). При этом, как на оптической оси, так и на краях углового распределения спектр излучения содержит большое число не эквидистантных спектральных линий, отстроенных от основной длины волны (отмечена пунктиром) как в длинноволновую, так и в коротковолновую область (Рис. 4.19г-е). К подобному рассеянию и уширению спектра могут приводить два процесса, фазовая самомодуляция излучения (ФСМ) и ВКР.

Как правило, величина уширения спектра из-за ФСМ пропорциональна *B*интегралу  $B = \frac{2\pi}{\lambda} \int_0^L n_2 I(l) dl$  [7]. Подставив формулу 4.1 и проинтегрировав, получаем

$$B = \frac{2\pi n_2 I_0 \ln(\frac{\gamma I_0^2 L}{\sqrt{3}} + 1)}{\lambda \frac{\gamma I_0^2 L}{\sqrt{3}}}$$
(4.2)

Где  $I_0$  интенсивность излучения на входе в образец, L- толщина образца,  $n_2$ нелинейный показатель преломления образца,  $\gamma$ - коэффициент нелинейного поглощения. Для  $I_0 = 0.8$  TBt/cm<sup>2</sup> величина  $B \approx 8$ , т.е. можно ожидать уширение исходного спектра  $\Delta \lambda = 1$  нм до ~8 нм, что по порядку величины соответствует уширению, наблюдаемому в эксперименте  $\Delta \lambda = 5$  нм (Рис. 4.14).

В пользу ВКР свидетельствует то, что интенсивные линии, смещенные на  $\tilde{v} = 157,218,289,332 \text{ см}^{-1}$  (Рис. 4.16г-е) известны из литературы [178] и соответствуют, согласно [179] вынужденному комбинационному рассеянию второго порядка. Положение стоксовой и антистоксовой компонент ВКР первого порядка, которому соответствует величина Рамановского сдвига  $\tilde{v} = 321 \text{ см}^{-1}$  [180], по всей видимости, перекрывается максимумами с  $\tilde{v} = 332 \text{ см}^{-1}$ . Что касается линии, смещенной на  $\tilde{v} = 120 \text{ см}^{-1}$ , она соответствует диапазону, который, насколько известно автору, ранее не исследовался. Отметим, что для ВКР порядок процесса

определяется спектром фононных колебаний (числом фононов), участвующих в рассеянии, где первый порядок относится к коллективным колебаниями решётки Са относительно F [179].

Вероятно, на рассеяние излучения и уширение спектра оказывают влияние оба процесса, и ФСМ, и ВКР, выделить вклад каждого из них из имеющихся экспериментальных данных затруднительно.

## 4.4 Оценка влияния множественной филаментации излучения на нелинейные потери в оптике и активной среде при усилении УФ УКИ в KrF

Для оценки потерь филаментированного лазерного пучка в окнах оконечного KrF усилителя будем считать, что согласно измерениям (см. раздел 4.2) УКИ с энергией 0.2 Дж и пиковой мощностью 0.2 ТВт содержит около 300 филаментов с пиковой интенсивностью  $I_f \sim 2 \times 10^{11} \text{ Bt/cm}^2$  и плотностью энергии  $Q_f \sim 0.2 \text{ Дж/cm}^2$  (в 100 раз большей средних значений), которые переносят долю энергии ξ≈30%. При прохождении окна из CaF<sub>2</sub> толщиной 4 см потери каждого филамента на нелинейное поглощение и рассеяние, согласно данным из Рис. 4.15 и формуле (4.1), составляют  $R_{\rm HI} \approx 90\%$  (при  $\gamma = 1.1 \times 10^{-22} {\rm сm}^3/{\rm BT}^2$ ). Вдобавок к этому, из-за уширения спектра излучения в CaF<sub>2</sub>, доля прошедшего излучения, попадающего в полосу усиления KrF составляет не более 30%. Следовательно, в случае формирования филаментов в тракте усиления, потери энергии УКИ при прохождении через толстую оптику приблизительно соответствуют доле энергии, содержащейся в филаментах ξ, т.е. составляют ~ 30÷40%. В эксперименте измеренное пропускание окна усилителя для пучка, состоящего из множества филаментов (Рис 4.11), составило Т≈60%. С учетом Френелевского отражения это хорошо согласуется с приведенной выше оценкой  $T=T_F \times (1-\xi) \approx 0.92 \times (1-0.3) = 64\%$ .

В приведенной выше оценке мы исходили из предположения, что поперечные распределения излучения УКИ в толще окна и в воздухе идентичны. Такое предположение на первый взгляд противоречит сложившемуся представлению о множественной филаментации [5-7, 181], согласно которому отдельные филаменты переносят мощность, близкую к критической. В CaF<sub>2</sub>, в связи с высокой, по сравнению с воздухом, плотностью среды критическая мощность самофокусировки должна быть существенно ниже. Согласно [182] для УФ излучения в CaF<sub>2</sub>  $n_0 = 1.45$  и  $n_2 = 1.9 \times 10^{-16}$  см<sup>2</sup>/Вт. Подставляя эти значения в формулу (1.13) получаем значение  $P_{\rm cr}=3$  МВт. Поскольку  $P_{\rm cr}$  в CaF<sub>2</sub> в ~30 раз ниже, чем в воздухе, можно было бы ожидать, что в нем увеличится как число филаментов, так и суммарная доля переносимой ими мощности.

Подобного перераспределения мощности при распространении пучка в CaF<sub>2</sub> не наблюдалось. Иллюстрацией этому служит Рис 4.17, где приводится фотография свечения множества филаментов лазерного пучка, перешедших из воздуха в образец из CaF<sub>2</sub>. Видно, что на длине образца наблюдается затухание филаментов, в то время как их плотность не успевает измениться.



**Рис. 4.17** Иллюстрация нелинейного поглощения большого числа филаментов, распространяющихся в CaF<sub>2</sub>. Излучение распространяется справа налево.

Кроме того, окна KrF усилителей, ввиду высоких значений линейного и нелинейного показателей преломления CaF<sub>2</sub>, могут вносить дополнительный вклад в формирование филаментации пучка. Поскольку плотность энергии в филаментах  $Q_f \approx 0.2 \text{ Дж/см}^2$  в сто раз превышает плотность энергии насыщения  $Q_s \approx$ 

2 мДж/см<sup>2</sup> в активной среде KrF лазера и превосходит предельную плотность энергии  $Q_s \frac{g_0}{\alpha_{ns}} \sim 50$  мДж/см<sup>2</sup>, филаменты будут поглощаться в активной среде из-за преобладания ненасыщаемых потерь над насыщенным усилением (подробнее см. раздел 1.2.2).

## 4.5 Наведенное поглощение в окнах из CaF<sub>2</sub> и пробой оптики в филаментах.

Наведенное стационарное поглощение УФ излучения в окнах KrF усилителей, связанное с наработкой центров окраски в  $CaF_2$  вследствие двухфотонного поглощения УКИ, хотя и составляло малую часть от нестационарного нелинейного поглощения и рассеяния (действующих в течение импульса), но накапливалось от импульса к импульсу, что приводило к постепенному уменьшению выходной энергии УКИ.



**Рис. 4.18** Дефекты в выходном окне усилителя Бердыш, образовавшиеся в результате оптического пробоя в филаментах.

Зондирование выходного окна усилителя ГАРПУН излучением электроразрядного КrF-лазера показало, что исходное пропускание ~ 92 % (близкое к Френелевскому) после нескольких сотен импульсов уменьшилось до 72 %, а пропускание противоположного окна, работающего при меньших мощностях УКИ, – до 84 %. Помимо этого, при продолжительной работе в схеме усиления УКИ (4+2) в выходном окне предусилителя возникали множественные каналы оптического пробоя как результат воздействия филаментов лазерного пучка (Рис. 4.18).

Продолжительный (в течение ~6 ч) отжиг окон в муфельной печи при температуре 350 °C и последующая их полировка для удаления поверхностного дефектного слоя, образовавшегося при взаимодействии нагретого CaF<sub>2</sub> с атмосферным воздухом, восстанавливали исходное пропускание окон. Обесцвечивание центров окраски наблюдалось и при длительном (в течение нескольких дней) УФ облучении окон ртутной лампой. При этом, естественно, необратимые дефекты, связанные с пробоем оптики, сохранялись. Наиболее оптимальной с точки зрения сохранности оптики и уменьшения её деградации оказалась схема усиления УКИ (2+2).

### 4.6 Выводы к Главе 4

Экспериментально исследовано явление насыщения выходной энергии при усилении УКИ в эксимерных KrF усилителях с накачкой электронным пучком. Показано, что при усилении УКИ субпикосекундной длительности при пиковой мощности *P*>0.1 ТВт, что соответствует ~1000 критическим мощностям для самофокусировки излучения, из-за неустойчивости волнового фронта В усилительном тракте происходит мелкомасштабная самофокусировка излучения, в результате чего в пучке образуется несколько сотен филаментов. С помощью методики диагностики УФ излучения по люминесценции стекла К8 были измерены параметры одиночных филаментов: их диаметр по уровню 1/2 от максимума составил  $d_{\rm f} = 290\pm50$  мкм; максимальная интенсивность  $I_{\rm f} = (2.2\pm0.6)\cdot10^{11}$  BT/см<sup>2</sup> и плотность энергии  $Q_f = 0.20 \pm 0.06 \text{ Дж/см}^2$  в филаментах в 100 раз больше средних по выходной апертуре усилителя значений (соответственно ~10<sup>9</sup> Вт/см<sup>2</sup> и ~ 1 мДж/см<sup>2</sup>). При этом в филаментах содержалось *≿*≈30-40% от полной энергии УКИ.

В эксперименте, моделирующим взаимодействие филаментов с окнами KrF усилителей из CaF<sub>2</sub>, показано, что нелинейное поглощение излучения, рассеяние и уширение спектра, возникающие при высоких интенсивностях излучения, близких к интенсивностям в филаментах, приводят к почти полной потери энергии, переносимой в филаментах. Наряду с большими ненасыщаемыми потерями в KrF активной среде (в условиях насыщения усиления) нелинейные потери в окнах усилителей существенно ограничивают выходную энергию УКИ при усилении филаментированного лазерного пучка.

Исходя из полученных результатов, целью следующей Главы будет подавление самофокусировки и множественной филаментации излучения.

#### Глава 5. Подавление множественной филаментации.

В главе описывается новая методика подавления множественной филаментации за счет само-дефокусировки излучения в ксеноне – среде с резонансно-индуцированным отрицательным нелинейным показателем преломления на длине волны 248 нм. Впервые продемонстрировано полное подавление множественной филаментации в УФ лазерных пучках со сверхкритической мощностью излучения.

### 5.1 Явление отрицательной Керровской нелинейности

В мелкомасштабная предыдущем разделе было показано, что самофокусировка субпикосекундных тераваттных импульсов и множественная филаментация лазерного пучка в схемах прямого (не чирпированного) усиления УКИ в KrF усилителях сильно ухудшают профиль пучка и вследствие нелинейных потерь ограничивают предельно достижимые энергии и мощности. Использование схем для усиления чирпированных импульсов встречает значительные трудности изза отсутствия дифракционных решеток для оптических компрессоров в УФ диапазоне (см. раздел 1.2.3). Исходя из этого, в данной главе рассмотрен новый метод подавления множественной филаментации KrF лазерного пучка и связанных с ней нелинейных потерь за счет самоиндуцированной Керровской дефокусировки УФ излучения в ксеноне, обусловленной отрицательным нелинейным показателем преломления n<sub>2</sub> вблизи двухфотонного резонанса. Сущность этого явления можно понять, рассмотрев формулу для кубической поляризуемости среды, которая в одноэлектронном приближении на частоте воздействующего излучения имеет вид [177]:

$$\chi(\omega) = \sum_{n,n',n''} \frac{\vec{d}_{nn'}\vec{d}_{n'}\vec{d}_{n'n'}\vec{d}_{n''i}}{2\hbar^3} \begin{bmatrix} \frac{1}{(\omega_{ni} - \omega)(\omega_{n'i} - 2\omega)(\omega_{n''i} - \omega)} + \frac{\omega_{ni}}{(\omega_{ni}^2 - \omega^2)(\omega_{n'i} + 2\omega)(\omega_{n''i} + \omega)} + \frac{\omega_{n''i}}{(\omega_{n''i}^2 - \omega^2)(\omega_{n''i} - \omega)} + \frac{\omega_{n''i}}{(\omega_{n''i}^2 - \omega^2)(\omega_{n'i})(\omega_{n''i} - \omega)} + \frac{\omega_{n''i}}{(\omega_{n''i}^2 - \omega^2)(\omega_{n'i})(\omega_{n''i} - \omega)} + \frac{\omega_{n''i}}{(\omega_{n''i}^2 - \omega^2)(\omega_{n''i})(\omega_{n''i} - \omega)} + \frac{\omega_{n''i}}{(\omega_{n''i}^2 - \omega^2)(\omega_{n''i})(\omega_{n''i} - \omega)} \end{bmatrix}$$
(5.1)

где d<sub>nn</sub> - матричные элементы оператора дипольного момента, связывающие соответствующие состояния,  $|i\rangle$  - основное состояние, а суммирование идет по всем состояниям атомного спектра. Как видно, если удвоенная частота (энергия двух квантов) лазерного излучения 2 инемного превышает энергию электронного состояния  $\omega_{n'i}$  в атоме, то первое слагаемое в уравнении для поляризуемости среды приближении при К резонансу «сверху», формально, стремится К  $\lim_{2\omega\to+\omega_{n'i}}\frac{1}{(\omega_{n'i}-2\omega)} = -\infty$ . Т.е. в формуле (5.1) в условиях резонанса основной вклад будет вносить первое слагаемое, при этом вся сумма (5.1) будет иметь отрицательный знак.

Для излучения на длине волны 248 нм подобный резонанс имеет место для двухфотонного перехода из основного  $5p^6({}^1S_0)$  в  $6p[1/2]_0$  состояние ксенона. При этом резонансная природа этого явления приводит к тому, что абсолютная величина отрицательного  $n_2$  в ксеноне в несколько раз превышает типичные значения нерезонансных положительных  $n_2$  для кислорода, азота и других газов. Этот эффект был впервые предсказан и экспериментально подтвержден в работе [183], где была продемонстрирована как самоиндуцированная дефокусировка излучения, так и компенсация самофокусировки и фазовой самомодуляции при относительно небольшой (~10%) добавке Хе в CO<sub>2</sub>, газ с большим положительным  $n_2$ .

#### 5.2 Подавление множественной филаментации в Хе

Схема эксперимента по подавлению множественной филаментации пучка показана на Рис. 5.1. Одиночный УФ УКИ от стартового комплекса усиливался по схеме (2+2) (см. Рис. 4.1) до энергии  $E\approx0.3$  Дж и направлялся в газонаполненную

ячейку длиной 2.5 м с входным окном из  $CaF_2$  диаметром 9 см, толщиной 1 см и выходным окном из стекла K8. Двухзеркальный телескоп (не показан на рисунке) согласовывал поперечный размер лазерного пучка с апертурой ячейки. Ввиду небольшой несогласованности зеркал телескопа, на выходе получался слегка сходящийся пучок с фокусным расстоянием ~150 м, достаточно длинным, чтобы поперечный размер пучка мало изменялся на расстояниях, рассматриваемых в эксперименте. Профиль пучка после прохождения через воздух, вакуум и Хе регистрировался в схеме, аналогичной изображенной на Рис. 4.6, где в качестве люминесцирующей пластины использовалось выходное окно ячейки из стекла K8, а в качестве ПЗС камеры использовался цифровой профилометр SP620U.

Так как отчетливая картина филаментации в схеме усиления (2+2) формировалась на расстоянии ~15 м от оконечного усилителя, были проведены две серии экспериментов. В первой серии экспериментов (Рис. 5.1а) ячейка устанавливалась на расстоянии ~20 м от усилителя, так что в неё входил пучок с полностью сформировавшимися филаментами.



**Рис. 5.1** Схема экспериментов по подавлению филаментации в Хе. Ячейка с ксеноном устанавливалась в лазерный пучок (а) со сформировавшимися филаментами, (б) до начала филаментации.

На Рис. 5.2а в увеличенном масштабе изображена часть профиля пучка после прохождения ячейки, заполненной атмосферным воздухом. В этом случае сохраняется картина множественной филаментации, аналогичная наблюдавшейся в атмосфере.



Рис. 5.2 Один и тот же фрагмент поперечного профиля лазерного пучка, прошедшего через ячейку с (а) воздухом при p=1 атм, (б) вакуумом при  $p=10^{-2}$  Торр, (в) Хе при p=0.1 атм.

нелинейной Ввиду природы поглощения В CaF<sub>2</sub>, пространственное филаментов распределение вошедших ячейку искажалось. Поскольку В одновременно поглощением рассеянием излучения происходила c И И самофокусировка, точный расчет пространственной моды филаментов после окна из CaF<sub>2</sub> является сложной теоретической задачей, которая останется за рамками настоящей диссертационной работы. Однако ввиду того, что после пропускания через вакуум центральный максимум В пространственном распределении интенсивности одиночных филаментов имел форму, близкую к Гауссовой (Рис. 5.26
и 5.3) в дальнейшем будем предполагать, что филаменты на входе в ячейку также имели распределение, близкое к Гауссовому.



Рис. 5.3. Профиль интенсивности одиночного филамента (по горизонтальной оси), отмеченного на Рис. 5.2 буквой «А», прошедшего через ячейку с (1) воздухом при *p*=1 атм, (2) вакуумом при *p*=10<sup>-2</sup> Торр, (3) Хе при *p*=0.1 атм, кривые разнесены по интенсивности для удобства восприятия, *w*<sub>0</sub>≈500 мкм.

В случае если ячейка откачана до остаточного давления  $p=10^{-2}$  Торр, картина филаментации полностью воспроизводится (Рис. 5.26) (напомним, что положение филаментов задаётся, в первую очередь, блочной структурой выходного окна оконечного усилителя), но при этом поперечный размер одиночных филаментов увеличивается примерно в два раза. Это связано с тем, что в вакууме «выключается» Керровская нелинейность, балансирующая естественную дифракцию излучения и присутствующее в воздухе рассеяние на плазме. В случае, если ячейка наполнена Хе наблюдается гомогенизация пучка, т.е. дефокусировка филаментов и мелкомасштабных неоднородностей интенсивности (Рис. 5.2в). Причем данный эффект практически в неизменном виде наблюдался в диапазоне давлений Хе  $p=1\div0.1$  атм.

Распространение отдельного филамента вдоль ячейки можно в параксиальном приближении описать следующим уравнением для перетяжки пучка [184]:

$$w^{2}(x) = w_{0}^{2} (1 + (x/x_{0})^{2} (1 - P(x)/P_{cr}))$$
(5.2)

где w(x=0)=w<sub>0</sub> характерный размер филамента после входного окошка,  $x_0 = \frac{kw_0^2}{2}$  –Рэлеевская длина, где  $k=2\pi(n_0+n_2I)/\lambda_{248}\approx 2.5\times 10^7$  м<sup>-1</sup> – волновое число, P(x)мощность в филаменте вдоль ячейки. Наилучшее совпадение с пиковая экспериментальными данными (см. ниже) было получено для значения  $x_0 \approx 3$  м, что соответствует величине  $w_0 \approx 500$  мкм. Подобное увеличение поперечного размера филаментов по сравнению с исходным размером в воздухе (300 мкм) может быть связанно с нелинейным поглощением во входном окошке ячейки. В воздухе, когда мощность в филаменте на входе в ячейку составляет  $P(x=0) \approx P_{cr}^{air}$ , дифракция компенсируется самофокусировкой и размер пучка сохраняется вдоль кюветы. В случае, когда ячейка откачана P<sub>cr</sub>→∞, поперечный размер филамента определяется исключительно дифракцией пучка, в этом случае диаметр филамента в конце ячейки  $w(x=2.5 \text{ m})\approx 1.6w_0$ что качественно согласуется экспериментом с (Рис. 5.36  $w_{vac} \approx 1.7 w_0$ ). В ксеноне ввиду отрицательного, при  $\lambda = 248$  нм, нелинейного показателя преломления  $n_2^{Xe}$ , значение критической мощности самофокусировки  $P_{cr}^{Xe} = 3.77 \lambda^2 / 8 \pi n_0^{Xe} n_2^{Xe}$  также, формально, отрицательное. Полагая, что мощность филаментов на входе в ячейку заполненную 0.1 атм Хе составляет  $P(x=0) \approx P_{cr}^{air}$  и мало меняется в процессе распространения в ячейке, поперечный размер филаментов будет определяться соотношением  $P_{cr}^{air}/P_{cr}^{Xe} \approx n_2^{Xe}/n_2^{air}$ . Согласно работам [183, 185]  $n_2^{air} = 1.2 \times 10^{-22}$  м<sup>2</sup>/Вт, и  $n_2^{Xe} = -8.5 \times 10^{-22}$  м<sup>2</sup>/Вт (при давлении Xe p=0.1 атм), т.е.  $P_{cr}^{air}/P_{cr}^{Xe} \approx -7$ . В таком случае, расчетный диаметр филамента на выходе из ячейки w<sub>Xe</sub>(x=2.5 м)≈3.9w<sub>0</sub> совпадает с наблюдаемым в эксперименте. Отметим,

что в последнем случае предполагалось, что дефокусировка излучения происходит одинаково на всей длине распространения, что, вероятно, не соответствует действительности. Поскольку в окрестности резонанса величина нелинейного показателя преломления может сильно зависеть от интенсивности, то по мере дефокусировки можно ожидать снижения её эффективности. В целом, можно отметить качественное соответствие приведенных оценок с экспериментом.

К снижению интенсивности в филаментах приводила не только самодефокусировка излучения, но и нелинейное поглощение излучения в Хе. Измеренные потери энергии пучка при прохождении ячейки заполненной Хе при давлении P=1 атм, за вычетом Френелевского отражения, составили ~20% от полной энергии импульса. Логично предположить, что нелинейное поглощение излучения происходило, в первую очередь, в высокоинтенсивных филаментах. Поскольку измеренная ранее доля энергии в них составила ~30% от полной энергии импульса, филаменты в ячейке теряют ~2/3 от своей энергии. Таким образом, с учетом дефокусировки излучения интенсивность в филаментах падает в ~40 раз  $I_{Xe}$  =  $\frac{I_f}{3\cdot 3\cdot 6^2} = 0.025 I_f$ . Таким образом, использование ячейки с Хе позволяет существенно амплитуду неоднородностей интенсивности в пучке уменьшить за счет самоиндуцированной дефокусировки и нелинейного поглощения излучения.

Нелинейный набег фазы, обычно определяемый как В-интеграл [7],

$$B = \frac{2\pi}{\lambda} \int_0^L n_2 I dl \tag{5.3}$$

в случае распространения в среде с отрицательным нелинейным показателем преломления, формально, отрицательный. Считается, что при  $B \le 1$  нелинейные эффекты не возникают, а при  $B \ge 1$  импульс начинает самофокусироваться. В связи с этим, можно ожидать, что распространение в ксеноне будет, помимо дефокусировки существующих филаментов, «откладывать» появление новых

филаментов в воздухе до того момента, пока суммарный набег фазы в ксеноне и в воздухе не приобретёт положительный знак.

$$B = \frac{2\pi}{\lambda} \left[ \int_0^{L_1} n_2^{Xe} I dl + \int_{L_1}^{L_2} n_2^{air} I dl \right] \ge 1$$
 (5.4)

Это предположение подтвердилось во второй серии экспериментов (Рис. 5.16), в которой ячейка, заполненная ксеноном при давлении p=1 атм., устанавливалась в 1.5 м от оконечного усилителя, т.е. там, где филаменты еще только зарождались. Непрозрачное для УФ излучения выходное окно ячейки из стекла К8 заменялось на прозрачное из CaF<sub>2</sub>. Распределение прошедшего излучения контролировалось вдоль протяженной трассы в коридоре длинной ~ 100 метров. Профили излучения, полученные для УКИ с энергией  $E_0 \approx 0.2$  Дж на различных расстояниях от усилителя с Хе ячейкой и при её отсутствии, представлены на Рис. 5.4. Как видно, пропускание через Хе предотвращает распад пучка на множество филаментов, причем подобный эффект сохранялся на расстоянии в несколько десятков метров.

В случае распространения в воздухе, почти на всей длине наблюдается филаментация излучения (а-в), при этом число и плотность филаментов постепенно убывает с расстоянием, а к концу трассы филаментация пучка без ячейки постепенно утрачивалась и в 95 м от усилителя она практически отсутствовала (в). Такое поведение нельзя объяснить истощением энергии УКИ на большой длине распространения, так как измеренная ранее [186] экспоненциальная длина затухания филаментированного пучка составляла  $L_e = 150$  м. Следовательно, на расстоянии L =95 м от усилителя энергия УКИ  $E=E_0\exp(-L/L_e)=0.53E_0 = 0.11$  Дж, что при длительности импульса  $\tau_p \approx 900$  фс соответствует пиковой мощности P=0.12ТВт $\approx 1200 \times P_{cr}$ .



Рис. 5.4 Распределение флюоресценции стекла от лазерного пучка с энергией ~ 0.2 Дж на различных расстояниях после оконечного усилителя (а-в) шедшего через воздух и (г-е) пропущенного через ячейку наполненную Хе при давлении P=1 атм. На каждом рисунке указано приблизительное превышение мощности над P<sub>cr</sub>. Размер изображений 5х5 см. (Круглое пятно на Рис. (д) является ближней зоной конической эмиссии в Хе (см. дальше)).

Скорее всего, прекращение филаментации связано с утратой пространственной когерентности пучка за счет разного нелинейного набега фазы в филаментах и низкоинтенсивных областях пучка. Некоторым подтверждением этому служит то, что в присутствие Хе ячейки, которая компенсирует фазовую самомодуляцию в филаментах, на больших расстояниях от усилителя (95 м) распределение излучения в пучке менее однородно, чем без ячейки (сравни (в) и (е) на Рис. 5.4).

После ячейки с ксеноном пучок почти на всей длине распространения более однородный, чем при отсутствии ячейки (г-е). При этом видно, что отдельные филаменты возникают на расстоянии ~60 м, что подтверждает идею, что отрицательный нелинейный набег фазы в Хе может «откладывать» появление новых филаментов в воздухе. В отсутствие филаментов измеренные потери энергии пучка при прохождении ячейки заполненной Хе при давлении Р=1 атм, за вычетом Френелевского отражения, составили <5% от полной энергии импульса. Исходя из этого энергию и мощность импульса на расстоянии L можно оценить как E =  $E_0 T_{Xe} T_F \times e^{-L/150}$ , где  $E_0$ - энергия на выходе из усилителя,  $T_{Xe} \approx 1$  пропускание Хе,  $T_F = 0.92^2$ - Френелевское отражение от окон ячейки. Поскольку в случае подавленной филаментации экспоненциальная длина затухания пучка, вероятно, увеличивается, приведенные на Рис. 5.4г-е мощности оценены «снизу». Сравнение Рис. 5.4г-е с, например, Рис. 4.11в, где представлен поперечный профиль импульса со сходной энергией и аналогичным превышением мощности над P<sub>cr</sub>, показывает, что полная картина филаментации не восстанавливается. Отметим, что вероятными механизмами потерь энергии в Хе являются двухфотонное поглощение и (2+1) REMPI ионизация.

#### 5.3 Влияние подавления филаментации на фокусируемость излучения

Эффект от подавления филаментации на расходимость лазерного пучка исследовался в эксперименте, где излучение фокусировалось сферическим зеркалом с *f*=2.5 м, вблизи фокуса которого располагался УФ конвертор (Рис. 5.5). Чтобы избежать абляции стеклянной пластины, на неё с помощью клина, расположенного в 10 см от фокуса зеркала отводилось ~4% падающей энергии.



**Рис. 5.5** Схема экспериментов по измерению профиля пучка в фокусе сферического зеркала.

При различном ослаблении люминесценции конвертора с помощью нейтральных светофильтров HC-8 снималось несколько распределений в фокальной плоскости для пучка, состоящего из множества филаментов и пучка с подавленной филаментацией (после ячейки с Хе) (Рис. 5.6а-в). Затем измеренные в нескольких диапазонах профили люминесценции сшивались и по калибровочной кривой пересчитывались в интенсивности УФ излучения.



Рис. 5.6 Профили излучения в фокусе сферического зеркала после пропускания через ячейку с Хе, Рисунки (а-в) простроены в одном линейном масштабе и соответствуют разным динамическим диапазонам (разному ослаблению люминесценции стекла К8).



**Рис. 5.7** (а) Распределение излучения, пропущенного через ячейку с Хе, при фокусировке зеркалом с *f*=2.5 м (б) Гауссова аппроксимация распределения излучения в фокусе зеркала пропущенного через Хе и шедшего через воздух.

Полученный таким образом профиль распределения излучения в лазерном пучке в диапазоне изменения интенсивностей на четыре порядка показан на Рис. 5.7а. Аналогичный эксперимент без ячейки с Хе проводился, когда фокусирующее зеркало находилось на расстоянии ~20 метров от усилителя, т.е. в зоне со сформировавшейся множественной филаментацией.

Путем интегрирования полученных распределений находилась доля энергии излучения в заданном угле (Рис. 5.7б). Расходимость лазерного пучка с подавленной филаментацией составила по уровню 0.1 от максимального значения 0.14 мрад (отметим, что угол на Рис. 5.7б составляет половину расходимости). В этом угле содержалось 50% всей энергии импульса. Расходимость филаментированного пучка при отсутствии Хе ячейки была больше всего на 10-15%.

В целом, существенных отличий в фокусируемости пучка, состоящего из множества филаментов, и с подавленной филаментацией не наблюдается. Причина, по всей видимости, состоит в том, что филаменты когерентны между собой, что будет доказано в следующем разделе.

152

### 5.4 Монохроматическая ИК коническая эмиссия в Хе.

Помимо подавления филаментации, при прохождении 248-нм излучения через ячейку с Хе, наблюдалась генерация конической эмиссии в ИК области спектра. Эффект был замечен благодаря яркой засветке матрицы ПЗС камеры излучением, проходившим через пластину-конвертер из стекла К8 (см. например, Рис. 5.4д). Поскольку объектив в схеме регистрации люминесценции (см. Рис. 4.6) строил изображение пластины, которая размещалась поблизости, пришедшее издалека ИК излучение не фокусировалось на ПЗС матрице.

Заменив в схеме диагностики объектив на линзу с f=18 см, вблизи фокальной плоскости было получено изображение дальней зоны ИК излучения, которое состояло из большого числа перекрывающихся тонкостенных колец Рис. 5.8а. При отстройке от фокуса кольца преобразовывались в точки (б, в). Рассмотрение этого эффекта на основе геометрической оптики (внизу Рис. 5.8) показывает, что кольца в фокальной плоскости является следствием конической эмиссии. Каждая «образующая» конического волнового фронта фокусируется в точку на кольце, причем толщина стенки кольца задаётся угловой шириной конической эмиссии  $\Delta \alpha$ .

Источником конической эмиссии в Хе является множество одиночных филаментов, причем наблюдаемое в эксперименте большое число колец обусловлено сходящейся геометрией пучка (напомним, что после телескопа, согласующего апертуры пучка и Хе ячейки пучок немного сходился), где филаменты также сходятся под небольшим углом. В случае строго коллимированного пучка и, соответственно, коллимированных филаментов, коническая эмиссия от всей совокупности филаментов фокусировалась бы в единое кольцо.



Рис. 5.8 Сверху: Изображение конической эмиссии от большого числа филаментов в районе фокуса линзы с *f*=18 см (а) в фокусе и за фокусом на расстоянии (б) 0.5 см и (в) 1 см. Внизу: схема регистрации конической эмиссии.

Отметим также, что в ближней зоне конической эмиссии в случае внесения ИК ослабления ПЗС светофильтров для засветки камеры возникали интерференционные полосы равного наклона (Рис. 5.9), из чего следует вывод, что ИК большого филаментов излучение числа является когерентным, OT а следовательно, отдельные филаменты в пучке, состоящем из множества филаментов также являются когерентными. Наблюдаемая на Рис. 5.4д спекл-структура в засвеченном пятне также свидетельствует о когерентности ИК излучения.



**Рис. 5.9** Интерференционные полосы в ближней зоне ИК излучения после прохождения через плоскопараллельные светофильтры. Вертикальный размер изображения составляет 2 мм.



Рис. 5.10 Спектр конической эмиссии в Хе при различном ослаблении

Измеренная с помощью фотодиода, длительность импульса ИК излучения, составила  $\tau$ =1.2 нс и определялась временным разрешением прибора. Измеренный с помощью спектрометра ASP-150 спектр излучения изображен на Рис. 5.10. Он состоит из двух узких линий атомарного Хе с длинами волн  $\lambda$ =828 и 823 нм, причем интенсивность излучения на длине волны  $\lambda$ =828 нм была на несколько порядков

выше. Отметим, что измеренная ширина спектра  $\Delta\lambda \approx 0.2$  нм равна предельному разрешению спектрометра, т.е. истинная ширина спектральной линии может быть меньше. Согласно табличным данным [177, 187], это излучение соответствует атомарному переходу  $6p[1/2]_0 \rightarrow 6s[3/2]_1^0$ .

Причина, по которой мы наблюдаем в первую очередь излучение на длине волны 828 нм, по всей видимости, связана с тем, что верхний уровень перехода  $6p[3/2]_2 \rightarrow 6s[3/2]_2^0$ , излучающего на длине волны 823 нм находится ниже по энергии, и «включается» только в случае существенного динамического Штарковского сдвига, как это наблюдалось в работе [188], где также наблюдалась коническая эмиссия в Хе, при фокусировке мощных 300 фс УКИ с λ=248 нм. В этой работе явление связывалось с вынужденным гипер-Рамановским рассеянием (процессом, аналогичным ВКР, но происходящим с участием двух или более квантов излучения накачки [189]) или усиленным спонтанным излучением на атомарном переходе  $6p[1/2]_0 \rightarrow 6s[3/2]_0^1$ . Однако в тех экспериментах наблюдался ряд существенных отличий, в частности соотношение диаметра кольца к его ширине  $\Delta \alpha / \alpha = 0.3$  на много порядков отличалось от наблюдавшегося в наших экспериментах Δα/α=0.0025, а ширина спектра ИК излучения составляла ~1 нм, что в 5 раз больше. Кроме того, в отличие от настоящей работы интенсивность спектральной линии с λ=823 нм была сопоставима с интенсивностью линии с λ=828 нм. По всей видимости, эти отличия связаны с тем, что в работе [188] УФ лазерное излучение было жестко сфокусировано, при этом интенсивность на 3 порядка превышала значение интенсивности в филаментах.

В настоящей работе рассматривались 2 возможных механизма генерации конической эмиссии:

1. Узконаправленный конический волновой фронт излучения может возникать в случае, когда скорость вторичного излучения в среде (в данном случае ИК) ниже, чем групповая скорость источника. Подобное явление наблюдаются, например, для излучения Вавилова-Черенкова [190-193]. В этом случае, если предположить, что аномальная дисперсия возникает в результате нелинейного распространения УФ излучения (известно, что при линейном распространении излучения Хе является средой с нормальной дисперсией [194]), то можно найти связь между измеряемым углом эмиссии и нелинейным показателем преломления. По соотношению радиуса кольца *r* к фокусу линзы *f* можно оценить угол конуса  $\alpha$ , как  $\alpha = \operatorname{arctg} \frac{r}{f} = 4$  мрад. Угол конуса  $\alpha$  в данном случае задаёт соотношение между фазовыми скоростями, т.е. эффективными показателями преломления для ИК и УФ излучения, как

$$n_{UV}^{Xe} = n_{IR}^{Xe} \cos(\alpha) \tag{5.5}$$

где  $n_{UV}^{Xe} = n_{0_UV}^{Xe} + n_{2_UV}^{Xe} I_f$ , где  $I_f$ - интенсивность в филаменте. Откуда можно грубо оценить величину нелинейного показателя  $n_2^{Xe}$  как

$$n_{2\_UV}^{Xe} = \frac{n_{0_{IR}}^{Xe} \cos(\alpha) - n_{0\_UV}^{Xe}}{I_f}$$
(5.6)

Подставляя в формулу значения  $n_{0_{-}IR}^{Xe} = 1.00067819$ ,  $n_{0_{-}UV}^{Xe} = 1.00081841$  и интенсивность в филаменте  $I_f \approx 1 \times 10^{15} \text{BT/M}^2$ , получаем  $n_{2_{-}UV}^{Xe} = -14 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{BT}$ , что более чем на порядок выше значения из работы [189] ( $-0.85 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{BT}$ ). Отметим, что в данном случае существенную роль играет точность оценки линейных показателей преломления  $n_{0_{-}IR}^{Xe}$  и  $n_{0_{-}UV}^{Xe}$ , которая в обоих случаях является экстраполяцией данных [194], а также оценка интенсивности в филаменте.

С другой стороны, в случае, если наблюдаемая коническая эмиссия является следствием аномальной дисперсии среды, должна была бы наблюдаться существенная зависимость угла рассеяния от величины нелинейного показателя преломления. Для проверки этого был проведён дополнительный эксперимент, в котором в диапазоне 0.5-2 атм варьировалось давление Хе в ячейке. Величина нелинейного показателя преломления линейно зависит от давления среды, т.е. изменялась с давлением в 4 раза. Данный эксперимент показал, что угол рассеяния от давления не зависит: наблюдаемая картина конической эмиссии (Рис. 5.8) сохранялась во всём диапазоне давлений, при этом изменялась только интенсивность

ИК излучения. Таким образом, первое предположение не подтверждается ни расчетами, ни экспериментом.

2. Второй возможный механизм связан с параметрическим преобразованием излучения (гипер-Рамановское рассеяние или ЧВС). При этом угол конической эмиссии задаётся законом сохранения импульса и не зависит от давления среды, что подтвердилось в эксперименте. Однако, в таком случае ширина спектра вторичного излучения (ИК) в энергетическом представлении должна соответствовать ширине спектра исходного УФ излучения, также они должны иметь эквивалентную длительность импульса. В нашем случае ширина спектра усиленных УКИ составляет около  $\Delta\lambda\approx2$  нм (см Рис. 4.17), а конической эмиссии  $\Delta\lambda=0.2$  нм (Рис. 5.10). Такая полуширина для длины волны  $\lambda=828$  нм соответствует спектрально-ограниченному импульсу длительностью 5 пс, что намного больше длительности исходного импульса (~1 пс). Подобная ширина спектра и длительность импульса не могут объясняться параметрическим преобразованием излучения и характерны для усиленного спонтанного излучения в Хе

Таким образом, полученные экспериментальные данные свидетельствуют о наличии двух различных физических механизмов генерации когерентного ИК излучения с длиной волны 828нм. Во-первых, это резонансно-усиленный параметрический процесс (вероятно четырехволнового смешения), состоящий в вынужденном распаде двух фотонов излучения накачки с длиной волны 248 нм на фотонов. пару один которых соответствует резонансному ИЗ переходу  $5p^{5}6p \rightarrow 5p^{5}6s[3/2]$  и имеет длину волны 828нм, а второй – ВУФ фотон с энергией 8.44 эВ (147 нм) соответствующий переходу из состояния 5p<sup>5</sup>6s[3/2] в основное состояние атома ксенона. Этот процесс имеет место в течение длительности импульса накачки, в его результате формируется коническая эмиссия с углом эмиссии, определяемым законом сохранения импульсов участвующих в указанном процессе рассеяния фотонов. Интенсивность когерентного ИК излучения в этом процессе велика (так что в дальней зоне формируется отчетливые кольца,

приведенные на рисунке 5.8), однако в силу малой длительности процесса (900фс) энергия в этом импульсе УКЭ невелика. Второй механизм формирования импульса УКЭ начинает работать уже после прохождения импульса накачки и заключается в формировании импульса усиленного спонтанного излучения на переходе  $5p^56p \rightarrow 5p^56s[1/2]$ , инверсия которого достигается за счет двухфотонного резонансного перехода  $5p^6 ({}^1S) \rightarrow 5p^5 6p[1/2]_0$  в сильном лазерном поле излучения накачки. Импульс усиленного спонтанного излучения обладает большей энергией, но более низкой интенсивностью, и в результате формирует спектр УКЭ с шириной эквивалентной длительности УКЭ порядка 4 пс.

### 5.5 Выводы к Главе 5

продемонстрировано эффективное Экспериментально подавление множественной филаментации лазерного пучка при распространении в атмосферном воздухе субпикосекундного импульса УФ излучения с пиковой мощностью до 0.3 ТВт (в 3000 раз превышающую критическую мощность самофокусировки) за счет Керровской дефокусировки в ксеноне, имеющем отрицательный и большой по абсолютной нелинейный величине показатель преломления вследствие двухфотонного резонанса с лазерным излучением. Показано, что в ячейке с ксеноном длиной 2.5 м при давлении 0.1 атм происходит полная дефокусировка филаментов И «гомогенизация» лазерного пучка. При распространении высокоинтенсивных УФ филаментов в ксеноне возникает узконаправленная монохроматическая коническая эмиссия на длине волны 828 нм. Ячейка с давлением газа 1 атм., установленная в пучок с ещё не сформировавшимися филаментами, задерживала их появление на несколько десятков метров, причем потери энергии УКИ в ячейке не превышали 20%. Самоиндуцированная дефокусировка излучения, а также задержка самофокусировки могут быть использованы для уменьшения нелинейных потерь при многопроходном усилении в KrF усилителях, что является альтернативой усилению чирпированных импульсов.

## Заключение

Ниже кратко перечислены полученные впервые основные результаты работы:

1. Экспериментально продемонстрировано, что в атмосферном воздухе с содержанием водяных паров более 0.1% основной вклад в фотоионизацию импульсным 248-нм излучением субпикосекундной и наносекундной длительности при лазерных интенсивностях  $10^8 \div 5 \times 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup> дает резонансно-усиленная многофотонная ионизация (REMPI) паров воды.

2. Для наносекундных импульсов с длительностью 25 нс в диапазоне интенсивностей  $10^8 \div 3 \times 10^{10}$  BT/см<sup>2</sup> в воздухе происходит высокоэффективная (2+1) REMPI ионизация водяного пара с эффективным сечением  $\sigma_{H_2O}^{(2)} = (9.0 \pm 5.5) \times 10^{-16}$  см<sup>4</sup>с<sup>-1</sup>BT<sup>-2</sup>.

3. Для субпикосекундных импульсов длительностью 170 фс в диапазоне интенсивностей  $10^{10} \div 5 \times 10^{12}$  Вт/см<sup>2</sup> в кислороде и парах воды наблюдалась прямая трёхфотонная ионизация, причем ионизация водяного пара происходит с сечением  $\sigma_{H_2O}^{(3)} = (5.6 \pm 3.8) \times 10^{-27}$  см<sup>6</sup>с<sup>-1</sup>Вт<sup>-3</sup>, существенно превышающим сечение для кислорода  $\sigma_{O_2}^{(3)} = (1.2 \pm 0.5) \times 10^{-29}$  см<sup>6</sup>с<sup>-1</sup>Вт<sup>-3</sup>, и сечение REMPI фотоионизации в азоте,  $\sigma_{N_2}^{(3)} = (1.7 \pm 0.8) \times 10^{-30}$  см<sup>6</sup>с<sup>-1</sup>Вт<sup>-3</sup>, протекающей по схеме (3+1).

4. Показано, что основным механизмом гибели электронов в плазме с начальной концентрацией электронов  $N_e^0 < 10^{13}$  см<sup>-3</sup> является трёхчастичное прилипание электронов к молекулярному кислороду. Измеренное время жизни электронов относительно трехчастичного прилипания составило от 5 до 65 нс в зависимости от влажности воздуха и приложенного постоянного электрического поля в диапазоне  $0.3 \div 8$  кВ/см.

5. Показано, что при многопроходном усилении субпикосекундных УФ лазерных тераваттной пиковой мощностью В KrF усилителях импульсов с из-за множественной филаментации пучка 30-40% энергии импульса перераспределяется в высокоинтенсивные (0.2 ТВт/см<sup>2</sup>) филаменты. Стократный рост плотности энергии и интенсивности в филаментах относительно средних по пучку значений приводит к насыщению активной среды и нелинейным потерям в оптических элементах усилителей. Это приводит к насыщению плотности энергии при многопроходном усилении на уровне ~2 мДж/см<sup>2</sup>. Измерен коэффициент нелинейных потерь 248-нм лазерного излучения в окнах из  $CaF_2 \gamma = 1.1 \times 10^{-22} \text{ см}^3 \text{Br}^{-2}$ , связанный с трехфотонным поглощением и рассеянием излучения за счет ВКР и фазовой самомодуляции.

6. Продемонстрировано эффективное подавление множественной филаментации и улучшение качества лазерного пучка при распространении в атмосферном воздухе субпикосекундных импульсов УФ излучения с пиковой мощностью до 0.3 ТВт за счет Керровской дефокусировки в ячейке с ксеноном, обладающим отрицательным коэффициентом Керровской нелинейности вследствие двухфотонного резонанса.

# Благодарности

das Kind mit dem Bade ausschütten

Я очень признателен тем людям, ЧЬИ идеи, мысли И замыслы материализовались в этом, как иногда казалось, бесконечном нагромождении слов, формул, рисунков и ссылок. Слона в комнате найти тяжело, и то, что, смею надеяться, довольно логично изложено на страницах этой работы, стало, во многом, следствием череды абсолютно нелепых случайностей. Они, скорее всего, могли бы и не произойти, если бы человеком, направлявшим процесс в правильное русло, не был мой научный руководитель, Зворыкин Владимир Дмитриевич. В самый ответственный момент продвинуться вперед помогла любознательность моего научного консультанта, Устиновского Николая Николаевича, который просматривая литературу, случайно наткнулся на работу [62], он был первым, кто «произнёс слово вода». В этой работе также присутствует малая толика изрядной научной эрудиции Игоря Валентиновича Сметанина, нередко окормлявшего наши экспериментальные изыскания. Человеком, придумавшим, как оказалось, невероятно удачный датчик тока (см. раздел 2.5) был Левченко Алексей Олегович.

Значительная часть экспериментов выполнена совместно с Дарьей Вадимовной Мокроусовой (улыбнись!) и Еленой Сергеевной Сунчугашевой (тоже улыбнись!), а также их руководителем, Селезнёвым Леонидом Владимировичем. Я благодарен им, а также всем сотрудникам, аспирантам и студентам лаборатории, с которыми мне довелось работать.

Текст диссертации и наше понимание некоторых физических аспектов, затронутых в работе, значительно улучшились благодаря Ионину Андрею Алексеевичу и Лосеву Леониду Леонидовичу, взвалившим на себя труд ознакомиться работой. Я признателен своей семье, родителям, Виктору Ивановичу и Диане Григорьевне, брату, Виталию Викторовичу, бабушке, Вере Васильевне, просто за то, что они есть. Выражаю надежду, что мой старший брат не снесет такой несправедливости и сам когда-нибудь защитится.

Для тех, кто, как и соискатель, ни черта не понимает в немецком, в эпиграф вынесена идиома авторства немецкого сатирика и монаха Томаса Мурнера, о том, как важно вместе с водой не выплеснуть и ребёнка.

Старался наилучшайше, бесхитростно Ваш, Алексей.

### Список литературы

- 1. Аскарьян Г.А., «Воздействие градиента поля интенсивного электромагнитного луча на электроны и атомы», ЖЭТФ, т. 42, с. 1567, 1962.
- 2. Таланов В.И., «Самофокусировка электромагнитых волн в нелинейных средах,» Изв. ВУЗов, Радиоф., т. 7, с. 564, 1964.
- 3. Chiao R.Y., Garmire E., Townes C.H., «Self-Trapping of Optical Beams», *Phys. Rev. Lett.*, **13**, p. 479, 1964
- 4. Braun A., Korn G., Liu X., Du D., Squier J., Mourou G., «Self-channeling of highpeak-power femtosecond laser pulses in air», *Opt. Lett.*, **20**, p. 73, 1995.
- 5. Chin S.L., Hosseini S.A., Liu W., Luo Q., Theberge F., Aközbek N., Becker A., Kandidov V.P., Kosareva O.G., Schroeder H., «The propagation of powerful femtosecond laser pulses in optical media: physics, applications, and new challenges», *Can. J. of Phys.*, v. **83**, p. 863, 2005
- 6. Кандидов В.П., Шлёнов С.А., Косарева О.Г., «Филаментация мощного фемтосекундного лазерного излучения», *Квант. Электрон.*, т. **39**, с. 205, 2009
- 7. Couairon A., Mysyrowicz A., «Femtosecond filamentation in transparent media», *Phys. Rep.*, **441**, p. 47, 2007.
- 8. Келдыш Л.В., «Ионизация в поле сильной электромагнитной волны», ЖЭТФ, т. 47, с. 1945, 1964
- 9. Mainfray G., Manus G., «Multiphoton ionization of atoms», *Rep. Prog. Phys.*, **54**, p. 1333, 1991
- Коссый И.А., Костинский А.Ю., Матвеев А.А., Силаков В.П. «Плазмохимические процессы в неравновесной азотно-кислородной смеси», *Труды ИОФАН*, 47, 1994
- Schwarz J., Rambo P., Diels J.-C., «Measurements of multiphoton ionization coefficients with ultrashort ultraviolet laser pulses», *Appl. Phys. B*, **72**, p. 343–347, 2001
- 12. Райзер Ю.П. Физика газового разряда, М.: Наука, 1987
- Басов Н. Г., Розанов В. Б., Соболевский Н. М., «Лазерный термоядерный синтез в энергетике будущего», Изв. АН СССР. Энергетика и транспорт, №6, с. 3, 1975
- 14. Sviatoslavsky, I.N., Sawan, M.E., Peterson, R.R., «A KrF Laser Driven Inertial Fusion Reactor "Sombrero"». *Fusion Technol.*, **21**, 1470-1474, 1992
- 15. Von Rosenberg, C.W. Jr. (1992). «KrF driver system architecture for a laser fusion power plant», *Fusion Technol.*, **21**, 1600-1604, 1992

- McGeoch, M.W., Corcoran, P.A., Altes, R.G., «Conceptual Design of a 2MJ KrF Laser Facility», *Fusion Technol.*, **32**, 610-643, 1997
- Sethian J.D., Obenschain S.P., Lehmberg R.H., McGeoch M.W., «KrF Lasers for Inertial Fusion Energy». *Proceedings of 17th IEEE/NPSS Symposium on Fusion Engineering, San Diego, CA, October 1997*, p. 593-597, 1998.
- Betti R., Zhou C.D., Anderson K.S., Perkins L.J., Theobald W., and Solodov A.A., «Shock Ignition of Thermonuclear Fuel with High Areal Density» *Phys. Rev. Lett.* 98, 155001, 2007
- 19. Koopman D.V., Wilkenson T.D., «Channeling of an Ionizing Electrical Streamer by a Laser Beam», J. Appl. Phys. 42, 1883, 1971
- 20. Зворыкин В.Д., Николаев Ф.А., Холин И.В., Чугунов А.Ю., Шелоболин А.В., Физика плазмы, т. 5, с. 1140—1144, 1979
- Zhao X.M., Wang Y.C., Diels J.-C., and Elizondo J., «Femtosecond ultraviolet laser pulse induced lightning discharges in gases», *IEEE J. Quantum Electron.* 31, 599, 1995
- 22. Tzortzakis S., Franco M. A., Andre Y.-B., Chiron A., Lamouroux B., Prade B. S., and Mysyrowicz A., «Formation of a conducting channel in air by self-guided femtosecond laser pulses», *Phys. Rev. E*, **60**, R3505, 1999
- 23. Mejean G., Ackermann R., Kasparian J., Salmon E., Yu J., Wolf J.-P., «Improved laser triggering and guiding of megavolt discharges with dual fs-ns pulses», *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 021101, 2006
- Kasparian J., Ackermann R., Andre Y.-B. Méchain G., Méjean G., Prade B., Rohwetter Ph., Salmon E., Stelmaszczyk K., Yu J., Mysyrowicz A., Sauerbrey R., Woeste L., and Wolf J.-P. «Electric events synchronized with laser filaments in thunderclouds», *Opt. Express.*, 16, 5757, 2008
- Аскарьян Г.А., «Волноводные свойства трубчатого светового луча» ЖЭТΦ, т. 55, 1968.
- 26. Chateauneuf M., Payeur S., Dubois J., and Kieffer J.-C., «Microwave guiding in air by a cylindrical filament array waveguide», *Appl. Phys. Lett.*, **92**, 2008
- 27. Зворыкин В.Д., Левченко А.О., Устиновский Н.Н., Сметанин И.В. «Транспортировка СВЧ излучения в плазменных волноводах скользящих мод», Письма в ЖЭТФ., т. 91, 2010
- 28. Валуев В.В., Дормидонов А.Е., Кандидов В.П., Шленов С.А., Корниенко В.Н., Черепенин В.А., «Плазменные каналы множества филаментов как направляющая система для сверхвысокочастотного излучения», *Радиотехника и электроника*, т. **55**, 2, с. 222-229, 2010

- 29. Dogariu A., Michael J. B., Scully M. O., Miles R. B., «High-Gain Backward Lasing in Air», *Science*, **331**, 442, 2011
- Peñano J., Sprangle P., Hafizi B., Gordon D., Fernsler R., Scully M., «Remote lasing in air by recombination and electron impact excitation of molecular nitrogen», J. Appl. Phys. 111, 033105, 2012
- 31. Strickland, D., Mourou, G. «Compression of amplified chirped optical pulses», *Opt. Commun.* **56**, 219-221, 1985
- 32. Pessot M., Maine P., Mourou G., «1000 times expansion/compression of optical pulses for chirped pulse amplification», *Opt. Commun.*, **62**, 419-421, 1987
- Nibbering E.T.J., Curley P.F., Grillon G., Prade B.S., Franco M.A., Salin F., Mysyrowicz A., «Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air,» *Opt. Lett.*, 21, 62, 1996
- 34. Brodeur A., Chien C.Y., Ilkov F.A., Chin S.L., Kosareva O.G., Kandidov V.P., «Moving focus in the propagation of ultrashort laser pulses in air,» *Opt. Lett.*, **22**, 304, 1997
- 35. Liu W., Petit S., Becker A., Aközbek N., Bowden C.M., Chin S.L., «Intensity clamping of a femtosecond laser pulse in condensed matter», *Opt. Commun.* 202, 189-197, 2002
- 36. Damon E.K., Tomlinson R.G., «Observation of Ionization of Gases by a Ruby Laser», *Appl. Opt.*, **2**, 546-547, 1963
- 37. Meyerand Jr. R.G., and Haught A.F., «Optical-Energy Absorption and High-Density Plasma Production», *Phys. Rev. Lett.*, **13**, 1964
- Minck R.W., «Optical Frequency Electrical Discharges in Gases», J. Appl. Phys., 35, 252, 1964
- Мандельштам С.Л., Пашинин П.П., Прохиндеев А.В., Прохоров А.М., Суходрев Н.К., «Изучение искры, создаваемой в воздухе лазерным излучением», ЖЭТФ, 47, 2003, 1964
- Voronin A.A., Gordienko V.M., Platonenko V.T., Panchenko V.Y., Zheltikov A.M., «Ionization-assisted guided-wave pulse compression to extreme peak powers and single-cycle pulse widths in the mid-infrared», *Opt. Lett.*, **35**, 3640–3642, 2010
- 41. Lichtin D.A., Datta-Ghosh S., Newton K.R., Bernstein R.B., «Laser multiphoton ionization in a time-of-flight mass spectrometer: vibronic/mass spectra of triethylenediamine from 425 to 560 nm», *Chem. Phys. Lett.*, **75**, 214-219, 1980
- 42. Couairon A., Bergé L, «Light Filaments in Air for Ultraviolet and Infrared Wavelengths», *Phys. Rev. Lett.* **88**, 135003, 2002

- 43. Wu Y., Zhang Z., Adams S.F., «O<sub>2</sub> rotational temperature measurements by coherent microwave scattering from REMPI» *Chem. Phys. Lett.*, **513**, 191–194, 2011
- 44. Ogorzalek Loo R., Marinelli W. J., Houston P. L., Arepalli S., Wiesenfeld J. R., Field R.W., «Multiphoton ionization of  $O_2 X^3 \Sigma_g^-$ ,  $a^1 \Delta_g$ , and  $b^1 \Sigma_g^+$  via the two-photon resonant  $ns\sigma_g$ ,  $nd\sigma_g$ , and  $nd\pi_g$  Rydberg levels» *J. Chem. Phys.* **91**, 5185, 1989
- 45. Conde A.P., Montero R., Ovejas V., Fernandez M., Castaño F., Longarte A.,
  «Ultrafast dynamics of the ns (n = 3,4) and 3d Rydberg states of O<sub>2</sub>» *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 15, 4914, 2013
- Cartwright D.C., Hunt W.J., Goddart III W.A., «Theoretical and Experimental (Electron-Impact) Studies of Low Lying Rydberg States in O<sub>2</sub>» *Phys. Rev. A*, 8, 5, 1973
- 47. York T.A., Comer J., «Electron energy-loss studies of molecular oxygen in the region 6.0-16.1 eV using a multidetector electron spectrometer» *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 16, 3627-3639, 1983
- 48. Lu H.C., Chen H.K., Chen H.F., Cheng B.M., and Ogilvie J.F., «Absorption cross section of molecular oxygen in the transition  $E^{3}\Sigma_{u} v = 0 X^{3}\Sigma_{g} v = 0$  at 38 K» *Astron. Astrophys.*, **520**, 2010
- 49. В. Д. Зворыкин, А. О. Левченко, Н. Н. Устиновский, «Управление протяженными высоковольтными электрическими разрядами в атмосферном воздухе УФ излучением KrF-лазера» *Квант. Электрон.*, **41**, 227-233, 2011
- Guthrie J.A., Wang X.X., Radziemski L.J., «Resonance enhanced multiphoton ionization of N<sub>2</sub> at 193 nm and 248 nm detected by N<sub>2</sub><sup>+</sup> fluorescence», *Chem. Phys. Lett.*, **170**, 117-120, 1990
- Ionin A.A., Kudryashov S.I., Ponomarev Y.N., Seleznev L.V., Sinitsyn D.V., Tikhomirov B.A., Tikhov A.A., Zvorykin V.D., «Absorption and ionization of molecular nitrogen by UV femtosecond laser pulses», *Opt. Commun.*, 282, 2009
- 52. Keister K.E., Wagner C.J., Putney J.L., Hewitt J.D., and Eden J.G., «Determination of  $Ar_2^+$  and  $N_4^+$  recombination coefficients by subpicosecond multiphoton ionization at 248 nm and microwave interferometry», *Phys. Rev. A*, **89**, 013401, 2014
- 53. Parigger C., Plemmons D.H., Hornkohl J.O., and Lewis J.W.L., «Temperature measurements from first-negative  $N_2^+$  spectra produced by laser-induced multiphoton ionization and optical breakdown of nitrogen», *Appl. Opt.*, **34**, 18, 3331, 1995
- 54. Soulem N, Held B and Chapelle J, «Analysis of the laser-produced current impulse below the breakdown threshold in a homogeneous field», *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 29, 1952–1962, 1996

- 55. Лосев Л.Л., Сосков В.И. «Нелинейная фотоионизация воздуха в спектральном интервале (355 200) нм.», Оптика атмосферы и океана, **3**, 8, 842-846, 1990
- 56. Reininger R., Saile V. and Kohler A.M., «Photoionisation yield spectra below the atomic ionization energy in argon and krypton», *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* **20**, 2239-2245, 1987
- 57. Laporte P., Saile V., Reininger R., Asaf U., and Steinberger I.T., «Photoionization of Xenon below the atomic ionization potential», *Phys. Rev. A*, **28**, 3613, 1983
- Takahashi E., Kato S., Sasaki A., Kishimoto Y. and Furutani H. «Controlling branching in streamer discharge by laser background ionization» J. Phys. D: Appl. Phys. 44, 075204, 2011
- Meijer G., Ter Meulen J.J., Andresen P., Bath A., «Sensitive quantum state selective detection of H<sub>2</sub>O and D<sub>2</sub>O by (2+1)-resonance enhanced multiphoton ionization» *J. Chem. Phys.*, 85, 6914-6922, 1986
- 60. Versluis M., Meijer G, and Chandler D.W., «Degenerate four-wave mixing with a tunable excimer laser», *Appl. Opt.*, **33**, 3289, 1994
- Yang C.H., Sarma G., Ter Meulen J.J., Parker D.H. and Western C.M., « REMPI spectroscopy and predissociation of the C(1)B(1)(v = 0) rotational levels of H(2)O, HOD and D(2)O» *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **12**, 13983–13991, 2010
- 62. Laufer G., Lee A.S., «Water assisted multi-photon ionization of N<sub>2</sub> by KrF lasers» *Chem. Phys. Lett.*, **266**, 584-590, 1997
- 63. Ionin A.A., Kudryashov S.I., Ponomarev Y.N., Seleznev L.V., Sinitsyn D.V., and Tikhomirov B.A., «Nonlinear Absorption and Ionization of Gases by Intense Femtosecond Laser Pulses», *AIP Conf. Proc.*, **1278**, 354, 2010
- 64. Adams S.F., DeJoseph C.A. Jr., Williamson J.M., «Formation and electron-ion recombination of  $N_4^+$  following photoionization in near-atmospheric pressure  $N_2 \gg J$ . *Chem. Phys.* **130**, 144316, 2009
- 65. Way J., Hummelt J., and Scharer J., «Experimental measurements of multiphoton enhanced air breakdown by a subthreshold intensity excimer laser», *J. Appl. Phys.* 106, 083303, 2009
- 66. Pfeiffer A.N., Cirelli C., Smolarski M., Dörner R. and Keller U. «Timing the release in sequential double ionization», *Nat. Phys.*, **7**, 428–433, 2011
- 67. Fersner R. F., Ali A.W., Greig J.R., Vitkovitskiy I.M., «The NRL Chmair code: A disturbed Sea level air chemistry code», Naval Research Laboratory, 1979
- 68. Ali A.W., "The electron avalanche ionization of air and a simple air chemistry model," *NRL Memorandum Report 4794*, 1982.

- 69. Chanin L.M., Phelps A.V., Biondi M.A., «Measurements of the Attachment of Low-Energy Electrons to Oxygen Molecules», *Phys. Rev.*, **128**, 219, 1962
- Александров Н.Л., «Трёхчастичное прилипание электрона к молекуле», УФН, 154 177–206, 1988
- 71. Phelps A.V., «Defense Nuclear Agency Reaction Rate Handbook (M.H. Bortner, T. Baurer Eds)», Chapter 17, 1972.
- 72. Sakiyama Y., Graves D.B., Chang H.-W., Shimizu T. and Morfill G.E., «Plasma chemistry model of surface microdischarge in humid air and dynamics of reactive neutral species» *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **45**, 425201, 2012
- 73. Bielajew A.F., «The effect of free electrons on ionization chamber saturation curves», *Med. Phys.*, **12**, 197–200, 1985
- 74. Hochhauser E., and Balk A., «The influence of unattached electrons on the collection efficiency of ionisation chambers for the measurement of radiation pulses of high dose rate», *Phys. Med. Biol.*, **31**, 1986
- 75. Schardt D., Elsässer T., Schulz-Ertner D., «Heavy-ion tumor therapy: Physical and radiobiological benefits» *Rev. Mod. Phys.*, **82**, 2010
- 76. Courtois C., Boissonnat G., Brusasco C., Colin J., Cussol D., Fontbonne J.M., Marchand B., Mertens T., De Neuter S., Perronnel J., «Characterization and performances of a monitoring ionization chamber dedicated to IBA-universal irradiation head for Pencil Beam Scanning», *NIMA*, **736**, 112–117, 2014
- 77. Boissonnat G., Fontbonne J.M., Colin J., Remadi A., Salvador S., «Measurement of ion and electron drift velocity and electronic attachment in air for ionization chambers», arXiv:1609.03740v1, 2016
- 78. DeBlois F., Zankowski C., Podgorsak E.B., «Saturation current and collection efficiency for ionization chambers in pulsed beams» *Phys. Med. Biol.*, **41**, 885–897, 1996
- 79. Ervin K.M., Anusievicz I., Skurski P., Simons J., Lineberger W.C., «The Only Stable State of  $O_2^-$  Is the  $X^2\Pi_g$  Ground State and It (Still!) Has an Adiabatic Electron Detachment Energy of 0.45 eV» *J. Phys. Chem. A*, **107**, 8521–8529, 2003
- Burch D.S., Smith S.J., Branscomb L.M., «Photodetachment of O<sub>2</sub><sup>-</sup>», *Phys. Rev.*, 112, 1958
- 81. Frederickson K., Lee W., Palm P., Adamovich I.V., Rich J.W., Lempert W.R., «Mitigation of electron attachment to oxygen in high pressure air plasmas by vibrational excitation», *J. Appl. Phys.*, **101**, 093302 (2007);
- Zhou B., Akturk S., Prade B., André Y.-B., Houard A., Liu, Y., Franco M., D'Amico C., Salmon E., Hao Z.-Q., Lascoux N., Mysyrowicz A., «Revival of femtosecond laser plasma filaments in air by a nanosecond laser», *Opt. Express.*, 17, 2009

- 83. Lin P., Lucchese R.R., «Studies of angular distributions and cross sections for photodetachment from the oxygen molecular anion», *J. Chem. Phys.*, **114**, 2001
- 84. В.Д. Зворыкин, А.А. Ионин, А.О. Левченко, Г.А. Месяц, Л.В. Селезнев, Д.В. Синицын, И.В. Сметанин, Е.С. Сунчугашева, Н.Н. Устиновский, А.В. Шутов; «Создание протяженных плазменных каналов в атмосферном воздухе амплитудно-модулированным УФ излучением Ті : сапфир KrF-лазера ГАРПУН-МТВ. Ч.2. Накопление электронов в плазме и управление электрическими разрядами», Квант. электроника, 43 (4), с.339–346, 2013
- 85. В.Д. Зворыкин, А.А. Ионин, А.О. Левченко, Л.В. Селезнев, Д.В. Синицын, И.В. Сметанин, Н.Н.Устиновский, А.В. Шутов, "Протяженные плазменные каналы в воздухе, созданные УФ лазером и их применение для управления электрическими разрядами", Физика плазмы, 41, с.125-162, 2015
- 86. Stockdale J.A., Christophorou L.G., Hurst G.S., «Capture of Thermal Electrons by Oxygen», J. Chem. Phys, 47, 3267 (1967)
- 87. Spence D., Schulz G.J., «Three-Body Attachment in O<sub>2</sub> Using Electron Beams», *Phys. Rev. A.*, **5**, 1972
- 88. Ladouceur H.D., Baronavski A.P., Lohrmann D., Grounds P.W., Girardi P.G., «Electrical conductivity of a femtosecond laser generated plasma channel in air», *Opt. Commun.*, **189**, 2001
- 89. Tzortzakis S., Prade B., Franco M., Mysyrowicz A. «Time-evolution of the plasma channel at the trail of a self-guided IR femtosecond laser pulse in air», *Opt. Commun.*, **181**, 123–127, 2000
- 90. Dogariu A., Shneider M.N., Miles R.B., «Versatile radar measurement of the electron loss rate in air», *Appl. Phys. Lett.*, **103**, 224102 (2013);
- 91. Wu Y., Zhang Z., Jiang N., Roy S., Gord J.R., «Resonant- and avalanche-ionization amplification of laser-induced plasma in air», *J. Appl. Phys.*, **116**, 143304 (2014)
- 92. Young B.G., Johnson A.W., Carruthers J.A., «Loss Of Free Electrons In Irradiated Air», *Can. J. Phys*, **41**, (1963)
- Price M.L., van Lint V.A.J., "Electron Mobility and Attachment in Dry and Moist Air," Defense Nuclear Agency Report No. DNA 6109T, 1982
- 94. Davies, D. K., «Measurements of Swarm Parameters in Dry Air», Air Force Weapons Laboratory Report No. AFWL-TR-83-55, 1983
- 95. Davies D.K., Chantry P.J., «Air chemistry measurements II», Air Force Weapons Laboratory Report No. AFWL-TR-84-130, 1985
- 96. Gardner R.L., Frese M.H., Gilbert J.L., Longmire C.L., «A Physical Model of Nuclear Lightning», *Phys. Fluids.*, **27**, 2694, 1984

- 97. Базелян Э.М., Райзер Ю.П., «Физика молнии и молниезащиты» М.: ФИЗМАТЛИТ, 2001
- 98. Herzenberg A., «Attachment of Slow Electrons to Oxygen Molecules», J. Chem. Phys., **51**, 4942 (1969)
- Pack, J. L. and Phelps, A. V., "Electron Attachment and Detachment. II. Mixtures of O<sub>2</sub> and CO<sub>2</sub> and of O<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>O", *J. Chem. Phys.*, 45, 4316-4329 (1966)
- 100. Aleksandrov N.L., Bodrov S.B., Tsarev M.V., Murzanev A.A., Sergeev Yu.A., Malkov Yu.A., Stepanov A.N., «Decay of femtosecond laser-induced plasma filaments in air, nitrogen, and argon for atmospheric and subatmospheric pressures», *Phys. Rev. E*, **94**, 013204, 2016
- 101. Petrova Tz.B., Ladouceur H.D., Baronavski A.P., «Nonequilibrium dynamics of laser-generated plasma channels», *Phys. Plasmas*, **15**, 053501, 2008
- 102. Shneider M.N., Zheltikov A.M., Miles R.B., «Tailoring the air plasma with a double laser pulse», *Phys. Plasmas*, **18**, 063509, 2011
- 103. Hao Z.Q., Zhang J., Li Y.T., Lu X., Yuan X.H., Zheng Z.Y., Wang Z.H., Ling W.J., Wei Z.Y., «Prolongation of the fluorescence lifetime of plasma channels in air induced by femtosecond laser pulses», *Appl. Phys. B*, **80**, 627-630, 2005
- 104. Yang H., Zhang J., Yu W., Li Y.J., Wei Z.Y., «Long plasma channels generated by femtosecond laser pulses», *Phys. Rev. E*, **65**, 016406, 2001
- 105. Yang H., Zhang J., Li Y.J., Zhang J., Li Y., Chen Z., Teng H., Wei Z.Y., Sheng Z., «Characteristics of self-guided laser plasma channels generated by femtosecond laser pulses in air», *Phys. Rev. E*, **66**, 016406, 2002
- 106. Zhu J., Ji Z., Deng Y., Liu J., Li R., Xu Z. «Long lifetime plasma channel in air generated by multiple femtosecond laser pulses and an external electrical field», *Opt. Express*, 14, 4915, 2006
- 107. Liu X.-L., Lu X., Ma J.-L., Feng L.-B., Ge X.-L., Zheng Y., Li Y.-T., Chen L.-M., Dong Q.-L., Wang W.-M., Wang Z.-H., Teng H., Wei Z.-Y., Zhang J., «Long lifetime air plasma channel generated by femtosecond laser pulse sequence» *Opt. Express*, 20, 5968, 2012
- 108. Ionin A.A., Kudryashov S.I., Levchenko A.O., Seleznev L.V., Shutov A.V., Sinitsyn D.V., Smetanin I.V., Ustinovsky N.N., Zvorykin V.D., «Triggering and guiding electric discharge by a train of ultraviolet picosecond pulses combined with a long ultraviolet pulse», *Appl. Phys. Lett.*, **100**, 104105, 2012
- 109. Shaw M.J., «Prospect for High Power KrF Laser», Laser Part. Beams, 9, 309-328, 1991
- 110. Звелто О., Принципы Лазеров, СПб. «Лань», 2008

- Watanabe M., Hata K., Adachi T., Nodomi R., Watanabe S., «High-repetition-rate terawatt excimer laser system with gated gain amplification», *Opt. Lett.*, **15**, 845-847, 1990
- Ewing, J.J., Haas, R.A., Swingle J.C., George E., Krupke W., «Optical Pulse Compression Systems for Laser Fusion», *IEEE J. Quantum Electron.*, **15**, 368-379, 1979
- 113. Lowenthal, D.D., Ewing, J.J., Center, R.E., Mumola P., Grossman W., Olson N., Shannon J., «Conceptual Design of an Angular Multiplexed 50 kJ KrF Amplifier for ICF», *IEEE J. Quant. Electron.*, **17**, 1861-1870, 1981
- 114. Moses E.I., Miller G.H., Kauffman R.L. «The ICF status and plans in the United States», *J. Phys. IV France*, **133**, 9-16, 2006
- 115. Bigot B., «Inertial fusion science in Europe», J. Phys. IV France, 133, 3-8, 2006
- 116. Zeng X., Zhou K., Zuo Y., Zhu Q., Su J., Wang X., Wang X., Huang X., Jiang D., Guo Y., Xie N., Zhou S., Wu Z., Mu J., Peng H., Jing F., «Multi-petawatt laser facility fully based on optical parametric chirped-pulse amplification», *Opt. Lett.* 42, 2014-2017, 2017
- 117. Sethian J.D., Hegeler F., Myers M., Friedman M., Obenschain S., Lehmberg R., Giuliani J., Kepple P., Swanekamp S., Smith I., Weidenheimer D., Morton D., Schlitt L., Smilgys R., Searles S., «The Electra KrF Laser Program» IEEE, New York, NY p 232 (2002).
- 118. Zvorykin V.D., Didenko N.V., Ionin A.A., Kholin I.V., Konyashchenko A.V., Krokhin O.N., Levchenko A.O., Mavritskii A.O., Mesyats G.A., Molchanov A.G., Rogulev M.A., Seleznev L.V., Sinitsyn D.V., Tenyakov S.Yu., Ustinovskii N.N., Zayarnyi D.A., «GARPUN-MTW: A hybrid Ti:Sapphire/KrF laser facility for simultaneous amplification of subpicosecond/nanosecond pulses relevant to fastignition ICF concept», *Laser Part. Beams*, 25, 435, 2007
- 119. Зворыкин В.Д., Ионин А.А., Левченко А.О., Месяц Г.А., Селезнев Л.В., Синицын Д.В., Сметанин И.В., Сунчугашева Е.С., Устиновский Н.Н., Шутов А.В., «Создание протяженных плазменных каналов в атмосферном воздухе амплитудно-модулированным УФ излучением Ті : сапфир — KrF-лазера ГАРПУН-МТВ. Ч.1. Регенеративное усиление субпикосекундных импульсов в широкоапертурном KrF-усилителе с накачкой электронным пучком», Квант. электроника, 43 (4), с.332–338, 2013
- 120. Szatmari, S., Schafer, F.P., «Simplified laser system for the generation of 60 fs pulses at 248 nm», *Opt. Commun.*, **68**, 196-202, 1988

- 121. Szatmari S., Schafer F.P., Muller-Horsche E.M., Muckenheim W., «Hybrid dyeexcimer laser system for the generation of 80 fs, 900 GW pulses at 248 nm», *Opt.Commun.*, 63, 305-309, 1987
- 122. Schwarzenbach A.P., Luk T.S., McIntyre I.A., Johann U., McPherson A., Boyer K., Rhodes C.K. «Subpicosecond KrF\* excimer-laser source», *Opt. Lett.*, **11**, 1986
- 123. Endoh A, Watanabe M., Sarucura N., Watanabe M., «Multiterawatt subpicosecond KrF laser», *Opt. Lett.*, **14**, 353 (1989).
- 124. Mizoguchi M., Kondo K., Watanabe S., «100-fs, 10-Hz, terawatt KrF laser», J. Opt. Soc. Am. B, 9, 1992
- 125. Szatmari, S. «Terawatt-class hybrid dye/excimer lasers». In: Stuke M. (eds) Dye Lasers: 25 Years. Topics in Applied Physics, Berlin: Springer. pp. 129-140, (1992).
- 126. Glownia J.H., Misewich J., Sorokin P.P., «Ultrafast ultraviolet pump-probe apparatus», J. Opt. Soc. Am. B, 3, 1986
- 127. Takahashi, E., Losev, L.L., Matsumoto, Y., Okuda I., Matsushima I., Kato S., Nakamura H., Kuwahara K., Owando Y., «KrF laser picosecond pulse source by stimulated scattering processes», *Opt. Commun.* **215**, 163-167, 2003
- Takahashi, E., Losev, L.L., Matsumoto, Y., Okuda I., Kato S., Aota. T., Owando Y., «1 ps, 3 mJ KrF laser pulses generated using stimulated Raman scattering and fast Pockels cell», *Opt. Commun*, **247**, 149-152, 2005
- 129. Owadano Y., Okuda I., Matsumoto Y., Matsushima I., Takahashi E., Miura E. Yashiro H., Tomie T., Kuwahara K., Shinbo M, «Overview of "Super-ASHURA" KrF Laser Program», *Fusion Eng. Des.*, 44, 91-96, 1999
- 130. Nabekawa Y., Kondo K., Sarukura N., Sajiki K., Watanabe S., «Terawatt KrF/Ti:sapphire hybrid laser system», *Opt. Lett.*, **18** (22), 1993
- Békési J., Szatmári S., Simon P., Marowsky G., «Table-top KrF amplifier delivering 270 fs output pulses with over 9 W average power at 300 Hz», *Appl. Phys. B*, **75**, 521-524, 2002
- 132. Nabekawa Y., Yashitomi D., Sekikawa T., Watanabe S., «50-W average-power, 480-fs KrF excimer laser with gated gain amplification», *Opt. Lett.*, **26**, 2001
- 133. McIntire I.A., Rhodes C.K., «High power ultrafast excimer lasers», J. Appl. Phys., 69, R1, 1991
- 134. Franz L.M., Nodvik J.S., «Theory of Pulse Propagation in a Laser Amplifier», J. Appl. Phys., **34**, 2346, 1963
- 135. Tilleman M.M., Jacob J.H., «Short pulse amplification in the presence of absorption», *Appl. Phys. Lett.*, **50**, 121, 1987

- 136. Taylor A.J., Gibson R.B., Roberts J.R., «Two-photon absorption at 248 nm in ultraviolet window materials», *Opt. Lett.*, **13**, 814, 1988
- 137. Simon P., Gerhardt H., Szatmari S., «Intensity-dependent loss properties of window materials at 248 nm», *Opt. Lett.*, **14**, 1207, 1989
- 138. Hata K., Watanabe M., Watanabe S. «Nonlinear processes in UV optical materials at 248 nm», *Appl. Phys. B*, **50**, 55-59, 1990
- 139. Tomie T., Okuda I., Yano M. «Three-photon absorption in CaF2 at 248.5 nm», *Appl. Phys. Lett.*, **55**, 325, 1989
- 140. В.Д. Зворыкин, А.А. Ионин, А.О. Левченко, Г.А. Месяц, Л.В. Селезнев, Д.В. Синицын, Н.Н. Устиновский, А.В. Шутов, «Лазерная гибридная Ті : сапфир КrF-система, генерирующая цуг субтераваттных УФ импульсов субпикосекундной длительности», Квант. Электроника, 44, (5) с.431-439, 2014
- 141. В. Векслер, Л. Грошев и Б. Исаев, Ионизационные методы исследования излучений. Государственное издательство техникотеоретической литературы, Москва — Ленинград, 1949.
- 142. Mongin D., Schubert E., De La Cruz L., Berti N., Kasparian J., Wolf J.P. «Linearity of charge measurement in laser filaments», *Opt. Express*, **25**, 2017
- 143. Chen S., Liu X.-L., Lu X., Ma J., Wang J., Zhu B., Chen L., Li Y. « Temporal evolution of femtosecond laser filament detected via magnetic field around plasma current », *Opt. Express*, **25** (26), 2017
- 144. Laitano R.F., Guerra A.S., Pimpinella M., Caporali C and Petrucci A. «Charge collection efficiency in ionization chambers exposed to electron beams with high dose per pulse», *Phys. Med. Biol.* **51**, 6419, 2006
- 145. Zvorykin V.D., Levchenko A.O., Shutov A.V., Solomina E.V., Ustinovskii N.N., Smetanin I.V., «Long-Distance Directed Transfer of Microwaves in Tubular Sliding-Mode Plasma Waveguides Produced by KrF Laser in Atmospheric Air», *Phys. Plasmas*, **19**, 033509, 2012
- 146. Сунчугашева Е.С. Филаментация фемтосекундного лазерного излучения при жесткой фокусировке в воздухе: дис. канд. физ.-мат. наук. Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН, Москва, 2016.
- 147. Sarukura N., Watanabe M., Endoh A., Watanabe S., Single-shot measurement of subpicosecond KrF pulse width by three-photon fluorescence of the XeF visible transition, *Opt. Lett.*, **13**, 1988
- 148. Steinkellner O., Noack F., Ritze H.-H., Radloff W., Hertel I.V., «Ultrafast predissociation dynamics of water molecules excited to the electronic  $\tilde{C}$  and  $\tilde{D}$  states», *J. Chem. Phys.* **121**, 1765, 2004

- Ishiguro E., Sasanuma M., Masuko H., Morioka Y., Nakamura M., «Absorption spectra of H<sub>2</sub>O and D<sub>2</sub>O molecules in the vacuum-ultraviolet region», *J. Phys. B: At. Mol. Phys.* 11, 993, 1978
- Carter V.L., «High-Resolution N<sub>2</sub> Absorption Study from 730 to 980 Å», J. Chem. Phys. 56, 4195 (1972)
- 151. Gürtler P., Saile V., Koch E.E., «High resolution absorption spectrum of nitrogen in the vacuum ultraviolet», *Chem. Phys. Lett.*, **48**, 245-250, 1977
- 152. Schwarz J., Rambo P., Diels J.-C., Kolesik M., Wright E.M., Moloney J. «Ultraviolet filamentation in air», *Opt. Commun.*, **180**, 383-390, 2000
- 153. Smetanin I.V., Levchenko A.O., Shutov A.V., Ustinovskii N.N., Zvorykin V.D.,. «Role of coherent resonant nonlinear processes in the ultrashort KrF laser pulse propagation and filamentation in air», *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*, 369, 227-231, 2016
- 154. Travers M.J., Cowles D.C., Ellison G.B., «Reinvestigation of the electron affinities of O<sub>2</sub> and NO», *Chem. Phys. Lett.*, **164**, 449-455, 1989
- Christodoulides, A.A., McCorkle, D.L., Christophorou, L.G.. «Electron affinities of atoms, molecules, and radicals» Department of Energy report № DOE/EV/04703— 39, United States, 1982
- 156. Gaiduk A.P., Pham T.A., Govoni M., Paesani F., Galli G., «Electron affinity of liquid water», *Nat. Commun.*, **9**, 2018
- 157. Belenov E.M., Isakov V.A., Nazarkin A.V., Smetanin I.V., « Quantum Character Of Optical Breakdown Of Gases In The Visible And UV Bands Of The Spectra», J. Sov. Laser Res., 13, 118-134, 1992
- 158. Гордеев О.А., Калинин А.П., Комов А.Л., Люстерник В.Е., Самуйлов Е.В., Соколова И.А., Фокин Л.Р. // Потенциалы взаимодействия, упругие сечения, интегралы столкновений компонентов воздуха для температур до 20000 К. Обзоры по теплофизическим свойствам веществ. ТФЦ. М.: ИВТАН, 1985. № 5. С. 55.
- McDaniel E.W. «Collision phenomena in ionized gases». London: J. Wiley & Sons, Inc., 1964
- Engelhardt A.G., Phelps A.V., Risk C.G., «Determination of Momentum Transfer and Inelastic Collision Cross Sections for Electrons in Nitrogen Using Transport Coefficients», *Phys. Rev.* 135, A1566, 1964
- 161. Itikawa Y., Mason N., «Cross Sections for Electron Collisions with Water Molecules», J. Phys. Chem. Ref. Data., 34, 1, 2005

- 162. Исламов Р.Ш., Кочетов И.В., Певгов В.Г. Анализ процессов взаимодействия электрона с молекулой кислорода. — М., 1977. — 27 с. (Препринт ФИАН № 169).
- 163. Phelps A.V. ftp://jila.colorado.edu/collision data/
- 164. Ionin A.A., Mokrousova D.V., Piterimov D.A., Seleznev L.V., Sinitsyn D.V., Sunchugasheva E.S. «Influence of dispersion stretching of ultrashort UV laser pulse on the critical power for self-focusing», *Laser Phys.* 28, 045405, 2018
- 165. Shipilo D.E., Panov N.A., Sunchugasheva E.S., Mokrousova D.V., Shutov A.V., Zvorykin V.D., Ustinovskii N.N., Seleznev L.V., Savel'ev A.B., Kosareva O.G., Chin S.L., Ionin A.A. «Fifteen meter long uninterrupted filaments from sub-terawatt ultraviolet pulse in air», *Opt. Express* 25 (21), 25386-25391, 2017
- 166. Braun A., Korn G., Liu X., Du D., Mourou G., «Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air», *Opt. Lett.* **20**, 73, 1995
- 167. Zvorykin V.D., Smetanin I.V., Ustinovskii N.N., Shutov A.V., «Manipulation by multiple filamentation of subpicosecond TW KrF laser beam», *Appl. Phys. B*, 124:80, 2018
- 168. Zvorykin V.D., Ionin A.A., Levchenko A.O., Seleznev L.V., Shutov A.V., Sinitsyn D.V., Smetanin I.V., Ustinovskii N.N., «Effects of picosecond terawatt UV laser beam filamentation and a repetitive pulse train on creation of prolonged plasma channels in atmospheric air», *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*, 309, 218-222, 2013
- 169. Hao Z., Zhang J., Yuan X., Zheng Z., Lu X., Jin Z., Wang Z., Zhong J., Liu Y., «Characteristics of multiple filaments generated by femtosecond laser pulses in air: prefocused versus free propagation» *Phys. Rev. E*, **74**, 066402, 2006
- 170. Mechain G., Couairon A., Andre Y.-B., Franco M., Prade B., Tzortzakis S., Mysyrowicz A., Sauerbrey R., «Long-range self-channeling of infrared laser pulses in air: a new propagation regime without ionization» *Appl. Phys. B* 79, 379, 2004
- 171. Loriot V., Hertz E., Faucher O., Lavorel B., «Measurement of high order Kerr refractive index of major air components» *Opt. Express* **17**, 13429, 2009
- 172. Bejot P., Kasparian J., Henin S., Loriot V., Hertz E., Faucher O., Lavorel B., Wolf J.-P., «Higher-Order Kerr Terms Allow Ionization-Free Filamentation in Gases» *Phys. Rev. Lett.* **104**, 103903, 2010
- Bejot P., Hertz E., Kasparian J., Lavorel B., Wolf J.-P., Faucher O., «Transition from Plasma-Driven to Kerr-Driven Laser Filamentation» *Phys. Rev. Lett.* 106, 243902, 2011

- 174. Milchberg H.M., Chen Y.-H., Cheng Y.-H., Jhajj N., Palestro J.P., Rosenthal E.W., Varma S., Wahlstrand J.K., Zahedpour S., «The extreme nonlinear optics of gases and femtosecond optical filamentation» *Phys. Plasmas* **21**, 100901 (2014)
- 175. Palastro J.P., Antonsen Jr. T.M., Pearson A., «Models of the delayed nonlinear Raman response in diatomic gases», *Phys. Rev. A*, **84**, 013829, 2011
- 176. Zahedpour S., Wahlstrand J.K., Milchberg H.M., «Measurement of the nonlinear refractive index of air constituents at mid-infrared wavelengths», *Opt. Lett.*, **40**, 2015
- 177. А.А. Радциг, Б.М. Смирнов «Справочник по атомной и молекулярной физике», Москва «Атомиздат», 1980 г.
- 178. Russel J.P., «The Raman spectrum of calcium fluoride», Proc. Phys. Soc., 85, 1965
- 179. Krishnan R.S., Krishnamurthy N.. «The second order Raman spectrum of calcium fluoride». *J. de Physique*, **26** (11), 633-636, 1965
- 180. Press. D.C., «Raman spectrum of fluorspar and its temperature variation», *Proc. Ind. Acad. Sc.* A, **31**, 56-61, 1950
- 181. Bergé L., Skupin S., Lederer F., Méjean G., Yu J., Kasparian J., Salmon E., Wolf J.P., Rodriguez M., Wöste L., Bourayou R., Sauerbrey R., «Multiple Filamentation of Terawatt Laser Pulses in Air», *Phys. Rev. Lett.* **92**, 225002, 2004
- 182. Kim Y.P., Hutchinson M.H.R., «Intensity-induced nonlinear effects in UV window materials», *Appl. Phys. B*, **49**, 1989
- 183. Lehmberg R.H., Pawley C.J., Deniz A.V., Klapisch M., Leng Y., «Two-photon resonantly-enhanced negative nonlinear refractive index in Xenon at 248 nm», *Opt. Commun*, **121**, 78-88, 1995
- 184. Schwarz J. Diels J.-C., «Analytic solution for uv filaments», Phys. Rev. A, 65, 013806, 2001
- 185. Shaw M.J., Hooker C.J., Wilson D.C., «Measurement of the nonlinear refractive index of air and other gases at 248 nm», *Opt. Commun*, **103**, 153-160, 1993
- 186. Zvorykin V.D., Ionin A.A., Levchenko A.O., Seleznev L.V., Sinitsyn D.V., Smetanin I.V., Ustinovskii N.N., Shutov A.V., «Directed transfer of microwave radiation in sliding-mode plasma waveguides produced by ultraviolet laser in atmospheric air», *Appl. Opt.*, **53**, I31-I40, 2014
- 187. Meggers W.F. Humphreys C.J., «Interference Measurements in the Spectra of Noble Gases», J. Res. Natl. Bur. Stand. (U.S.), **13**, 293–309, 1934
- Tunnermann A., Mossavi K., Wellegehausen B., «Nonlinear-optical processes in the nearresonant two-photon excitation of xenon by femtosecond KrF-excimer-laser pulses», *Phys. Rev.* A,. 46, 2707–17, 1992

- 189. Kelley A.M., «Hyper-Raman Scattering by Molecular Vibrations», *Annu. Rev. Phys. Chem.*, **61**, 2010
- 190. Черенков П.А., «Видимое свечение чистых жидкостей под действие үрадиации», ДАН, **2**, 451, 1934
- 191. Вавилов С.И., «О возможных причинах синего γ-свечения жидкостей», ДАН.,
   2, 457, 1934
- 192. Čerenkov P.A., «Visible Radiation Produced by Electrons Moving in a Medium with Velocities Exceeding that of Light», *Phys. Rev.*, **52**, 378, 1937
- 193. Тамм И.Е., Франк И.М., «Когерентное излучение быстрого электрона в среде», ДАН, **14**, 107, 1937
- 194. Bideau-Mehu A., Guern Y., Abjean R., Johannin-Gilles A., «Measurement of refractive indices of neon, argon, krypton and xenon in the 253.7-140.4 nm wavelength range. Dispersion relations and estimated oscillator strengths of the resonance lines», *J. Quant. Spectrosc. Rad. Transfer*, **25**, 395-402, 1981