



ΠΟΛΥΤΕΧΝΕΙΟ ΚΡΗΤΗΣ
ΓΕΝΙΚΟ ΤΜΗΜΑ –ΤΟΜΕΑΣ ΦΥΣΙΚΗΣ

**«ΑΛΛΗΛΕΠΙΔΡΑΣΗ ΑΚΤΙΝΟΒΟΛΙΑΣ ΛΕΪΖΕΡ ΜΕ
ΤΗΝ ΥΛΗ ΜΕ ΕΜΦΑΣΗ ΣΤΗΝ ΕΞΕΤΑΣΗ ΦΥΣΙΚΩΝ
ΜΗΧΑΝΙΣΜΩΝ ΠΟΥ ΣΥΜΒΑΙΝΟΥΝ ΚΑΤΑ ΤΗΝ
ΔΙΑΔΟΣΗ ΧΡΟΝΙΚΑ ΒΡΑΧΕΩΝ ΠΑΛΜΩΝ ΛΕΪΖΕΡ
ΥΨΗΛΗΣ ΕΝΤΑΣΗΣ ΣΕ ΑΕΡΙΑ ΚΑΙ ΣΤΕΡΕΑ»**

ΔΙΔΑΚΤΟΡΙΚΗ ΔΙΑΤΡΙΒΗ

ΚΟΡΤΣΑΛΙΟΥΔΑΚΗΣ ΝΑΘΑΝΑΗΛ

XANIA 2006

Η διατριβή αυτή αποτελεί μέρος των απαιτήσεων για την απόκτηση της Διδακτορικής Διατριβής του Τομέα Φυσικής του Γενικού Τμήματος του Πολυτεχνείου Κρήτης

Εξεταστική επιτροπή

- Σταύρος Μουσταίτζης, Αναπλ. Καθηγητής – Γενικό Τμήμα, Τομέας Φυσικής Πολυτεχνείο Κρήτης (Επιβλέπων)
- Θωμάς Ευθυμιόπουλος, Αναπλ. Καθηγητής – Τμήμα Φυσικής, Πανεπιστήμιο Πατρών
- Γεώργιος Καρατζάς, Αναπλ. Καθηγητής – Τμήμα Μηχανικών Περιβάλλοντος, Πολυτεχνείο Κρήτης
- Κωνσταντίνος Κοσμίδης, Καθηγητής – Τμήμα Φυσικής, Πανεπιστήμιο Ιωαννίνων
- Ιωάννης Σαριδάκης, Καθηγητής – Γενικό Τμήμα, Τομέας Μαθηματικών, Πολυτεχνείο Κρήτης
- Αλέξανδρος Σεραφεινίδης, Καθηγητής – Σχολή Εφαρμοσμένων Μαθηματικών και Φυσικών Επιστημών, Τομέας Φυσικής, Εθνικό Μετσόβιο Πολυτεχνείο
- Δημήτριος Χαραλαμπίδης, Καθηγητής – Τμήμα Φυσικής, Πανεπιστήμιο Κρήτης

Στην οικογένειά μου
και στους φίλους μου

Ευχαριστίες

Η παρούσα διατριβή δεν θα μπορούσε να ολοκληρωθεί χωρίς την συμβολή κάποιων ανθρώπων, τους οποίους πρέπει να ευχαριστήσω προσωπικά. Έτσι, πρώτα από όλους, θέλω να ευχαριστήσω τον επιβλέποντα μου, Αναπληρωτή Καθηγητή Σταύρο Μουσταϊζή, για την τιμή που μου έκανε να επιβλέψει την διδακτορική διατριβή μου, την αμέριστη συμπαράσταση και εμπιστοσύνη που έδειξε στο πρόσωπό μου. Στην συνέχεια θέλω να ευχαριστήσω όλα τα μέλη της εξεταστικής επιτροπής για την τιμή που μου έκαναν να εξετάσουν την διατριβή μου. Θέλω να ευχαριστήσω τον Δρ. Στέλιο Τζωρτζάκη, για την πολύτιμη βοήθειά του τόσο για την κατανόηση των θεωρητικών θεμάτων όσο και για την πειραματική διαδικασία, τον Δρ. Μιχάλη Ταταράκη, για την βοήθειά του σε πολλά στάδια της διατριβής μου, τον Σκουλάκη Αλέξανδρο για την βοήθειά του στην κατασκευή και επίλυση του αριθμητικού μοντέλου προσομοίωσης, αλλά κυρίως για τις ατελείωτες και συνήθως άνευ τελικού αποτελέσματος συζητήσεις επί επιστημονικών θεμάτων, και μη, τον Δρ. Νεκτάριο Παπαδογιάννη και τον Νίκο Βακάκη για την βοήθεια τους στα πειράματα, τον Δρ. Κώστα Καλπούζο, τον Δρ. Ευθύμιο Μπακαρέζο, τον Απόστολο Εγγλέζη και τον Δρ. Δημήτρη Άγγλο για την βοήθεια τους στην πρόσβαση και στην διαξεγαγωγή των πειραμάτων στο Ίδρυμα Έρευνας και Τεχνολογίας, τον Dr. Michel Franco (LOA, Γαλλία), Dr. Vadim Tcheremiskine (LP3, Γαλλία), Dr. Leonid Mikheev (Lebedev, Ρωσία). Επίσης, τον Dr. Nigel Woolsey (York University, M. Βρετανία) για την ευκαιρία που μου έδωσε να δουλέψω στο μεγαλύτερο ερευνητικό κέντρο λείζερ της Ευρώπης στο Rutherford Appleton Laboratory (RAL), και τον Dr. David Chambers. Τέλος, θέλω να ευχαριστήσω όλους τους φίλους μου που με στήριξαν σε όλη αυτήν την προσπάθεια και συγκεκριμένα τον Μανώλη, που ανέχεται να είναι αληθινός φίλος για περισσότερο από 30 χρόνια, τον φίλο και κουμπάρο μου Μιχάλη και την γυναίκα του Βαρβάρα για την συμπαράσταση που μου δείχνουν, τον Νεκτάριο για την πολύχρονη φιλία του, τον Μάνο και την Βάσω τους νεότερους φίλους μου στα Χανιά, και φυσικά την Ελένη...Κλείνοντας, ένα μεγάλο ευχαριστώ στους γονείς μου, Θανάση και Αργυρώ που με στηρίζουν όλα αυτά τα χρόνια στις επιλογές που έχω κάνει στη ζωή μου, γνωρίζοντας ότι αυτό που επέλεξα δεν είναι και ο πιο εύκολος δρόμος, στον αδερφό μου Γιώργο, στην αδερφή μου Κατερίνα και τον σύζυγό της Γιώργο.

Σύντομο Βιογραφικό Σημείωμα

Ο Ναθαναήλ Κορτσαλιουδάκης γεννήθηκε το 1973 στα Χανιά Κρήτης. Το 1992, εισήχθη κατόπιν Πανελληνίων Εξετάσεων στο Τμήμα Φυσικής του Πανεπιστημίου Κρήτης, από όπου απόκτησε το πτυχίο Φυσικής το 1997. Κατά την διάρκεια των σπουδών του (1995-97), εκπόνησε διπλωματική εργασία στο Εργαστήριο Περιβαλλοντικών Ερευνών του Ινστιτούτου Ηλεκτρονικής Δομής και Λείζερ (Ι.Η.Δ.Λ.) του Ιδρύματος Τεχνολογίας και Έρευνας (Ι.Τ.Ε.). Το 1997, έγινε δεκτός για μεταπτυχιακές σπουδές στο Γενικό Τμήμα του Πολυτεχνείου Κρήτης, από όπου απόκτησε το 2000, Μεταπτυχιακό Δίπλωμα Ειδίκευσης (ΜΔΕ), στην Εφαρμοσμένη και Τεχνολογική Φυσική και Τεχνολογία των Λείζερ, ενώ στην συνέχεια έγινε δεκτός ως υποψήφιος διδάκτωρ του Γενικού Τμήματος για εκπόνηση Διδακτορικής Διατριβής (Δ.Δ.). Το 2000 κατατάχθηκε στην Πολεμική Αεροπορία για την εκπλήρωση των στρατιωτικών του υποχρεώσεων, όπου απόκτησε την ειδικότητα του Αναλυτή Προγραμματιστή Η/Υ και απολύθηκε το 2002 με τον βαθμό του έφεδρου υπαξιωματικού. Ομιλεί απταισίτως Αγγλικά ενώ έχει λάβει τρεις υποτροφίες: α) ΙΤΕ, για την εκπόνηση της διπλωματικής διατριβής, β) Γενικό Τμήμα, γ) ΙΚΥ, για την καλύτερη επίδοση μεταπτυχιακού φοιτητή του Γενικού Τμήματος κατά το Ακαδ. έτος 1997-98). Τα έτη 1997-1999 καθώς και τα έτη 2002-2006 εργάστηκε ως Εργαστηριακός Βοηθός στο Εργαστήριο Δομής της Ύλης και Φυσικής Λείζερ του Πολυτεχνείου Κρήτης (διδάσκων ΠΔ.407/80), ενώ τα έτη 2003-2005 εργάστηκε ως Εργαστηριακός Συνεργάτης στα Τμήματα Ηλεκτρονικής και Φυσικών Πόρων του ΤΕΙ Κρήτης–Παράρτημα Χανίων. Παράλληλα, έχει εργαστεί ως Επιστημονικός Συνεργάτης σε δύο ερευνητικά προγράμματα: α) Τα έτη 2002-2004 στο Ευρωπαϊκό πρόγραμμα “SHARP” (Contract no: HPRI – CT – 2001 – 50037) και β) Τα έτη 2004-2006 στο πρόγραμμα «ΠΥΘΑΓΟΡΑΣ-ΠΕΡΙΒΑΛΛΟΝ» (ΕΠΕΑΚ II, «Ενίσχυση Ερευνητικών Ομάδων στο Πολυτεχνείο Κρήτης»). Ο Ναθαναήλ Κορτσαλιουδάκης έχει συγγράψει τρία (3) επιστημονικά άρθρα που έχουν δημοσιευθεί σε διεθνή περιοδικά με κριτές, ενώ έχει συμμετάσχει με εργασίες σε έξι (6) διεθνή και πανελλήνια συνέδρια.

Περίληψη

Στην συγκεκριμένη διατριβή, μελετήθηκε η διάδοση βραχύχρονων (*femtosecond*) παλμών υψηλής έντασης ($>10^{12}$ W/cm²) λέιζερ με μήκος κύματος στο υπεριώδες (248 nm) σε αέρια μέσα (στον ατμοσφαιρικό αέρα και στο Αργό) σε διαφορετικές πιέσεις (50-1000 mbar) καθώς και σε στερεά (διοξείδιο του πυριτίου, SiO₂). Η επιλογή του ατμοσφαιρικού αέρα, έγινε με βασικό κριτήριο την εφαρμογή της συγκεκριμένης μελέτης στην ατμοσφαιρική φυσική (ανίχνευση ρύπων στην ατμόσφαιρα), η επιλογή του Αργού έγινε με γνώμονα την υψηλή απόδοσή του (ενέργεια) σε σχέση με άλλα αέρια στην παραγωγή αρμονικών στο υπεριώδες, καθώς μέρος της μελέτης αποτελεί η εξέταση της παραγωγής αρμονικών κατά την μη γραμμική διάδοση βραχύχρονων παλμών υψηλής έντασης, ενώ τέλος η επιλογή του διοξειδίου του πυριτίου από τα στερεά έγινε λόγω της ευρείας εφαρμογής του στην οπτική και την μικροηλεκτρονική.

Τα πειραματικά αποτελέσματα της μελέτης διάδοσης στον ατμοσφαιρικό αέρα και στο Αργό έδειξαν ότι κάτω από καθορισμένες συνθήκες έντασης δέσμης λέιζερ ($I > 10^{12}$ W/cm²) και πίεσης ($P > 200$ mbar) έχουμε τον σχηματισμό αυτο-οδηγούμενων παλμών (*self-guided pulses*) λόγω «νηματοποίησης» της δέσμης (*filamentation*). Κάτω από αυτές τις συνθήκες, η δέσμη εμφανίζει το ιδιαίτερο χαρακτηριστικό να παραμένει εστιασμένη σε πολύ υψηλή ένταση και να διαδίδεται κατά αυτόν τον τρόπο σε σχετικά μεγάλες αποστάσεις (αρκετά μέτρα). Θεωρητικά, το φαινόμενο περιγράφεται από μια 2^{ης} τάξης μη γραμμική μερική διαφορική εξίσωση, την μη γραμμική εξίσωση του Schrödinger (*Non-Linear Schrödinger Equation, NLSE*), όπου η μη γραμμικότητα σχετίζεται με την μη γραμμική πόλωση του μέσου από το εξωτερικό ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ (φαινόμενο *Kerr*). Η συγκεκριμένη εξίσωση, λόγω της πολυπλοκότητας των φαινομένων που υπεισέρχονται, δεν επιδέχεται αναλυτικές λύσεις, αλλά επιλύεται μόνο αριθμητικά. Για τον λόγο αυτό κατασκευάστηκε ένα υπολογιστικό μοντέλο προσομοίωσης που περιγράφει της συνθήκες διάδοσης των συγκεκριμένων πειραμάτων της μελέτης. Τα αποτελέσματα του μοντέλου είναι σε πολύ καλή συμφωνία με τις πειραματικές μετρήσεις που διεξήχθησαν γεγονός που ενισχύει την παρούσα μελέτη. Στην συνέχεια μελετήθηκε πειραματικά το φαινόμενο της παραγωγής αρμονικών κατά την μη γραμμική διάδοση της δέσμης αυτο-οδηγούμενων παλμών λέιζερ υπεριώδους μέσα στο Αργό σε διαφορετικές πιέσεις, και ταυτόχρονα χρησιμοποιήθηκε η παραγωγή των αρμονικών αυτών ως διαγνωστική μέθοδος για την μελέτη των ιδιοτήτων της

δέσμης των αυτό-οδηγούμενων παλμών κατά μήκος της διάδοσής της. Τα αποτελέσματα σειράς πειραματικών μετρήσεων έδειξαν: 1) Δημιουργία αρμονικών ($3^{\text{ης}}$ και $5^{\text{ης}}$ τάξης) σε όλο το μήκος της διάδοσης λόγω των αυτό-οδηγούμενων παλμών. Οι μετρήσεις ανέδειξαν φαινόμενα φασματικής διαπλάτυνσης της δέσμης (spectral broadening) τόσο στην περιοχή του μήκους κύματος του λέιζερ όσο και στην περιοχή μηκών κύματος των παραγόμενων αρμονικών, καθώς και μετατόπιση των μηκών κύματος προς το ιώδες (blue shift). Τόσο η φασματική διαπλάτυνση όσο και η μετατόπιση προς το ιώδες είναι φαινόμενα που σχετίζονται άμεσα με την διάδοση αυτό-οδηγούμενων παλμών, 2) Αυξημένη απόδοση της έντασης των παραγόμενων αρμονικών σε σύγκριση με αντίστοιχες τιμές (σε πειράματα παράγωγης αρμονικών με την κλασική μέθοδο) στην διεθνή βιβλιογραφία κατά ένα παράγοντα τουλάχιστον της τάξης του 10^2 . Αυτό εκτιμάται ότι οφείλεται στο ότι οι αρμονικές παράγονται σε πολλές περιοχές του χώρου κατά μήκος της διάδοσης (λόγω των αυτό-οδηγούμενων παλμών) και όχι μόνο στην περιοχή γεωμετρικής εστίασης, 3) Ενδείξεις ύπαρξης του φαινομένου της «ενισχυμένης» συμφωνίας φάσης (quasi-phase matching), λόγω των αυτό-οδηγούμενων παλμών. Για την συγκεκριμένη μελέτη πραγματοποιήθηκαν μετρήσεις της έντασης των παραγόμενων αρμονικών μεταβάλλοντας την πίεση (50-500 mbar) του αέριου μέσου (Αργό), ενώ ταυτόχρονα κατασκευάστηκε ένα αριθμητικό μοντέλο προσομοίωσης της μεταβολής της έντασης των αρμονικών σε συνάρτηση με την πίεση, ώστε να εξεταστούν οι συνθήκες συμφωνίας φάσης (phase-matching) δηλαδή αν οι παραγόμενες αρμονικές βρίσκονται σε φάση με την αρχική δέσμη που τις παρήγαγε, και στην συνέχεια να υπολογιστεί το αντίστοιχο μήκος συμφωνίας (coherence length). Το θεωρητικό μοντέλο προβλέπει την εμφάνιση «κροσσών Maker», δηλαδή την περιοδική μεταβολή της έντασης των αρμονικών, όταν μεταβάλλεται η πίεση, αποτέλεσμα που επιβεβαιώθηκε και πειραματικά. Η σύγκριση του θεωρητικού μοντέλου με τις πειραματικές μετρήσεις έδειξε ότι το μήκος συμφωνίας των παραγόμενων αρμονικών είναι πολύ μεγαλύτερο (τουλάχιστον κατά 2 τάξεις μεγέθους) από το θεωρητικό μήκος συμφωνίας που υπολογίστηκε με βάση την θεωρία παραγωγής αρμονικών, ισχυρή ένδειξη του φαινομένου ενισχυμένης συμφωνίας φάσης λόγω της ύπαρξης των αυτό-οδηγούμενων παλμών κατά την παραγωγή των αρμονικών. Τέλος, μελετήθηκε θεωρητικά το φαινόμενο της διάδοσης βραχύχρονων παλμών μέσα σε διοξειδίο του πυριτίου (SiO_2). Τα αποτελέσματα του μοντέλου προσομοίωσης της διάδοσης έδειξαν ότι και στην περίπτωση των στερεών επικρατούν τα ίδια μη γραμμικά φαινόμενα που εμφανίζονται και στην περίπτωση της διάδοσης σε αέρα σε διαφορετική κλίμακα.

Περιεχόμενα

Κεφάλαιο 1: Εισαγωγή.....	- 1 -
1.1. Πρόλογος.....	- 1 -
1.2. Η σπουδαιότητα της αλληλεπίδρασης της ακτινοβολίας λέιζερ με την ύλη στην εξέλιξη της τεχνολογίας.....	- 2 -
1.3. Σκοπός της παρούσας διατριβής.....	- 4 -
1.4. Περιληπτική σύνοψη της διατριβής.....	- 5 -
Κεφάλαιο 2: Θεωρία διάδοσης βραχύχρονων παλμών λέιζερ υψηλής έντασης μέσα σε αέρια .	- 9 -
2.1. Εισαγωγή.....	- 9 -
2.2. Ηλεκτρο-οπτικό φαινόμενο Kerr	- 11 -
2.3. Βασική θεωρία: Εξισώσεις του Maxwell και κυματική εξίσωση διάδοσης	- 12 -
2.4. Δημιουργία νηματίων υψηλής έντασης (filaments) σε ουδέτερο αέριο	- 15 -
2.5. Αυτοδιαμόρφωση φάσης (Self-phase modulation, SPM)	- 16 -
2.6. Φασματική διαπλάτυνση (spectral broadening)	- 17 -
2.7. Διάδοση αυτο-οδηγούμενων παλμών λέιζερ σε κατάσταση ιονισμού	- 20 -
2.8. Υπολογισμός του ρυθμού μεταβολής της ενέργειας του παλμού.....	- 21 -
2.9. Μέγιστη απόσταση διάδοσης	- 22 -
Κεφάλαιο 3: Περιγραφή συστήματος λέιζερ που χρησιμοποιήθηκε στην παρούσα διατριβή ..	- 23 -
3.1. Εισαγωγή.....	- 23 -
3.2. Υβριδικό σύστημα λέιζερ KrF/Dye	- 26 -
3.3. Διαγνωστικά υβριδικού συστήματος λέιζερ KrF/Dye.....	- 29 -
3.4. Αυτοσυσχετιστής τρίτης τάξης από διφωτονικό ιονισμό μορίων NO.....	- 32 -
Κεφάλαιο 4: Διάδοση βραχύχρονων παλμών λέιζερ υπεριώδους υψηλής έντασης στον ατμοσφαιρικό αέρα σε διαφορετικές πιέσεις.....	- 35 -
4.1. Εισαγωγή.....	- 35 -
4.2. Περιγραφή του θεωρητικού μοντέλου της διάδοσης υψηλής έντασης βραχύχρονων παλμών λέιζερ υπεριώδους στον ατμοσφαιρικό αέρα	- 35 -
4.3. Ιονισμός λόγω του ηλεκτρικού πεδίου του λέιζερ (Optical field induced, OFI, ionization)	- 37 -
4.4. Επίδραση της πίεσης στην διάδοση υψηλής έντασης βραχύχρονων παλμών λέιζερ υπεριώδους στον ατμοσφαιρικό αέρα.....	- 42 -
4.5. Πειραματική μελέτη της διάδοσης υψηλής έντασης βραχύχρονων παλμών λέιζερ υπεριώδους στον ατμοσφαιρικό αέρα.....	- 43 -
4.6. Μη γραμμική αυτοεστίαση.....	- 44 -
4.7. Μετρήσεις οπτικής παρατήρησης του φαινομένου Kerr	- 46 -
4.8. Μετρήσεις διάδοσης στον ατμοσφαιρικό αέρα σε πίεση διαφορετική από την ατμοσφαιρική ..	- 46 -
4.9. Μετρήσεις ύπαρξης νηματίων υψηλής έντασης (filament)	- 50 -
4.10. Έλεγχος ύπαρξης filaments: Φασματοσκοπική ανάλυση.....	- 50 -
4.11. Υπολογισμός μήκους Rayleigh.....	- 52 -
4.12. Περιγραφή του υπολογιστικού μοντέλου	- 54 -

4.13. Χωρική εξέλιξη της πυκνότητας ενέργειας των διαδιδόμενων παλμών	- 56 -
4.14. Εξέλιξη χωρικής και χρονικής κατανομής της έντασης της δέσμης.....	- 63 -
4.15. Μεταβολή φάσματος του διαδιδόμενου παλμού	- 70 -
4.16. Υπολογισμός της πυκνότητας ηλεκτρονίων	- 72 -
4.17. Συμπεράσματα.....	- 74 -
Κεφάλαιο 5: Διάδοση βραχύχρονων παλμών λείζερ υπεριώδους υψηλής έντασης στο Αργό σε διαφορετικές πιέσεις.....	- 75 -
5.1. Εισαγωγή.....	- 75 -
5.2. Επιλογή του Αργού ως μέσου διάδοσης	- 75 -
5.3. Θεωρία διάδοσης βραχύχρονων παλμών λείζερ μέσα στο Αργό	- 76 -
5.4. Πειραματική ανάλυση της διάδοσης βραχύχρονων παλμών λείζερ υπεριώδους υψηλής έντασης στο Αργό.....	- 77 -
5.5. Μετρήσεις και ανάλυση αποτελεσμάτων.....	- 79 -
5.6. Υπολογιστικό μοντέλο προσομοίωσης.....	- 82 -
5.7. Συμπεράσματα.....	- 86 -
Κεφάλαιο 6: Παραγωγή αρμονικών λόγω διάδοσης αυτο-οδηγούμενων παλμών λείζερ υπεριώδους στο Αργό	- 89 -
6.1. Εισαγωγή.....	- 89 -
6.2. Θεωρία παραγωγής αρμονικών λόγω αλληλεπίδρασης ακτινοβολίας λείζερ με αέριο μέσο....	- 89 -
6.3. Επιλογή του Αργού για παραγωγή αρμονικών υψηλής απόδοσης στο υπεριώδες.....	- 96 -
6.4. Πειραματικός προσδιορισμός παραγωγής αρμονικών στο Αργό.....	- 98 -
6.5. Πειραματική διάταξη.....	- 98 -
6.6. Μετρήσεις και ανάλυση αποτελεσμάτων.....	- 101 -
6.7. Φασματικές μετρήσεις κατά την διάδοση της δέσμης λείζερ στο Αργό	- 101 -
6.8. Μέτρηση της ακτινοβολίας των αρμονικών ως συνάρτηση της πίεσης.....	- 107 -
6.9. Απόδοση αρμονικών λόγω «συμφωνίας φάσης» (Phase-matching)	- 108 -
6.10. Περιπτώσεις μη συμφωνίας φάσης (phase mismatch)	- 112 -
6.11. Συνθήκες «συμφωνίας φάσης» (phase-matching) για παραγωγή αρμονικών στο Αργό	- 114 -
6.12. Η επίδραση του ιονισμού στη μη συμφωνία φάσης	- 115 -
6.13. Η επίδραση της εστίασης στη μη συμφωνία φάσης	- 116 -
6.14. Η επίδραση της διασποράς ταχύτητας ομάδος στη μη συμφωνία φάσης.....	- 117 -
6.15. Η επίδραση της πίεσης στη μη συμφωνία φάσης.....	- 121 -
6.16. Σύγκριση αποτελεσμάτων με υπολογιστικό μοντέλο προσομοίωσης.....	- 125 -
6.17. Συμπεράσματα.....	- 128 -
Κεφάλαιο 7: Διάδοση βραχύχρονων παλμών λείζερ υπεριώδους υψηλής έντασης σε στερεά -	- 129 -
7.1. Εισαγωγή.....	- 129 -
7.2. Επίλυση αριθμητικού μοντέλου.....	- 129 -
7.3. Αποτελέσματα αριθμητικού μοντέλου	- 131 -
Κεφάλαιο 8: Εφαρμογή της διάδοσης αυτό-οδηγούμενων παλμών στην ατμοσφαιρική φυσική: Μελέτη τροποσφαιρικού όζοντος	- 139 -

8.1. Εισαγωγή.....	- 139 -
8.2. Μελέτη φυσικοχημείας όζοντος με αυτό-οδηγούμενους παλμούς.....	- 139 -
8.3. Χαρακτηριστικά του τροποσφαιρικού όζοντος.....	- 140 -
8.4. Μέτρηση τροποσφαιρικού όζοντος	- 142 -
8.5. Προτεινόμενη πειραματική διάταξη.....	- 144 -
8.6. Συστήματα παραγωγής όζοντος σε εργαστηριακές συνθήκες	- 145 -
8.7. Μέθοδος οπτικής απορρόφησης	- 146 -
8.8. Μετρήσεις βαθμονόμησης συστημάτων παραγωγής όζοντος σε εργαστηριακές συνθήκες.....	- 148 -
Κεφάλαιο 9: Τελικά συμπεράσματα - Επίλογος.....	- 153 -
9.1. Περιγραφή τελικών συμπερασμάτων - Επίλογος.....	- 153 -
Παράρτημα : “Enhanced harmonic conversion efficiency in the self-guided propagation of femtosecond ultraviolet laser pulses in Argon”, Applied Physics B: Lasers and Optics 80, 211-214 (2005).	- 157 -
Βιβλιογραφία.....	- 161 -

Πίνακας σχημάτων

Εικ. 1-1: Ιστορία των λέιζερ (http://en.wikipedia.org/wiki/Laser).....	- 3 -
Εικ. 2-1: Παλμός λέιζερ που έχει υποστεί chirp	- 10 -
Εικ. 2-2: Σχηματισμός πολλαπλών νηματίων (filaments) για ισχύ παλμού πολύ μεγαλύτερη από την κρίσιμη ισχύ P_{cr} (J.Kasparian et.al. "Ultrashort laser applications in lidar and atmospheric sciences", SPIE, Volume 5226, pp. 238-248 (2003)).....	- 15 -
Εικ. 2-3: Αυτό-διαμόρφωση φάσης: Self-phase modulation, SPM (www.inoa.it/~stefanob/cristalli.html).....	- 17 -
Εικ. 2-4: Κωνική εκπομπή από ένα μόνο νηματίο (filament), λόγω του φαινομένου της αυτοδιαμόρφωσης φάσης (SPM). Παρατηρείται η εκπομπή λευκού φωτός από το νηματίο στο κέντρο της δέσμης. Η ισχύς του παλμού εδώ είναι λίγο μεγαλύτερη από την κρίσιμη ισχύ P_{cr} . (J.Kasparian et.al. "Ultrashort laser applications in lidar and atmospheric sciences", SPIE, Volume 5226, pp. 238-248 (2003)).....	- 20 -
Εικ. 3-1: Υβριδικό σύστημα λέιζερ τύπου KrF/Dye (Ιδρυμα Τεχνολογίας και Έρευνας, ΙΤΕ)	- 24 -
Εικ. 3-2: Ενερgetικό διάγραμμα λέιζερ excimer τύπου KrF.....	- 24 -
Εικ. 3-3: Σχηματικό διάγραμμα του υβριδικού συστήματος KrF/Dye λέιζερ	- 26 -
Εικ. 3-4: Περιγραφή συστήματος DF DL (Distributed Feedback Dye Laser).....	- 27 -
Εικ. 3-5: Φάσμα της δέσμης του υβριδικού λέιζερ KrF/Dye.....	- 30 -
Εικ. 3-6: Σχηματικό διάγραμμα αυτοσυσχετιστή τρίτης τάξης	- 33 -
Εικ. 3-7: Μέτρηση της χρονικής διάρκειας των παλμών λέιζερ μέσω του ίχνους αυτοσυσχέτισης.....	- 34 -
Εικ. 4-1: Πολυφωτονικός Ιονισμός (Multi-photon ionization, MPI)	- 38 -
Εικ. 4-2: Ιονισμός σήραγγας (Tunneling ionization, TI)	- 39 -
Εικ. 4-3: Ιονισμός πάνω από το κατώφλι του φράγματος δυναμικού (Above Threshold Ionization, ATI).....	- 39 -
Εικ. 4-4: Επίδραση της πίεσης στην διάδοση.....	- 43 -
Εικ. 4-5: Ανίχνευση της ακτινοβολίας φθορισμού κατά την διάδοση της δέσμης λέιζερ στον αέρα.....	- 44 -
Εικ. 4-6: Δημιουργία μη γραμμικής εστίασης με φακό μεγάλης εστιακής απόστασης	- 44 -
Εικ. 4-7: Σχηματικό διάγραμμα του ανιχνευτικού συστήματος και της οπτικής απεικόνισης (imaging).....	- 45 -
Εικ. 4-8: Σύστημα οπτικής απεικόνισης (imaging) και φωτοπολλαπλασιαστή (PMT).....	- 45 -
Εικ. 4-9: Μέτρηση ακτινοβολίας φθορισμού για διάδοση στον αέρα κατά μήκος του άξονα διάδοσης εστιάζοντας με φακό $f=9.5\text{ m}$	- 46 -
Εικ. 4-10: Σχηματικό διάγραμμα της διάταξης ελεγχόμενης πίεσης για την διάδοση σε ατμοσφαιρικό αέρα	- 47 -
Εικ. 4-11: Πειραματική διάταξη ελεγχόμενης πίεσης για την διάδοση σε ατμοσφαιρικό αέρα.....	- 47 -
Εικ. 4-12: Μέτρηση ακτινοβολίας φθορισμού για διάδοση στο αέρα σε πιέσεις διαφορετικές της ατμοσφαιρικής εστιάζοντας με φακό $f=9.5\text{ m}$ σε απόσταση 7.24 m από τον σωλήνα.	- 48 -
Εικ. 4-13: Μέτρηση ακτινοβολίας φθορισμού για διάδοση στον αέρα εστιάζοντας με φακό $f=+2\text{ m}$ σε απόσταση 1.24 m από τον σωλήνα	- 49 -
Εικ. 4-14: Μέτρηση ακτινοβολίας φθορισμού για διάδοση σε αέρα σε διαφορετικές πιέσεις εστιάζοντας με φακό $f=+2\text{ m}$ σε απόσταση 1.66 m από τον σωλήνα	- 49 -
Εικ. 4-15: Οπτικός έλεγχος σχηματισμού filament σε φωτοευαίσθητο χαρτί: παρατηρείται ότι η διάμετρος της δέσμης είναι περίπου 3 mm , ενώ η διάμετρος της φωτεινής κηλίδας μέσα στην δέσμη (filament) είναι $150\text{ }\mu\text{m}$ περίπου.....	- 50 -
Εικ. 4-16: Μονοχρωμάτορας TRIAX 320.....	- 51 -
Εικ. 4-17: Φάσμα του διεγερμένου αζώτου N_2^+ στον αέρα στο φασματικό εύρος $300\text{--}400\text{ nm}$	- 52 -
Εικ. 4-18: Γεωμετρία εστίασης	- 53 -
Εικ. 4-19: Προσομοίωση της χωρικής κατανομής της πυκνότητας ενέργειας σε J/cm^2 σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης z , πριν από την αυτο-εστίαση ($2 < z < 5\text{ m}$).....	- 57 -
Εικ. 4-20: Προσομοίωση της χωρικής κατανομής της πυκνότητας ενέργειας σε J/cm^2 σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης z , κατά την δημιουργία της αυτο-εστίασης ($5 < z < 7$).....	- 59 -
Εικ. 4-21: Προσομοίωση της χωρικής κατανομής της πυκνότητας ενέργειας σε J/cm^2 σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης z , κατά την δημιουργία της αυτο-εστίασης ($7 < z < 10$).....	- 60 -
Εικ. 4-22: Υπολογισμός της πυκνότητας ενέργειας (J/cm^2) ως συνάρτηση της διαμέτρου της δέσμης r σε mm και της απόστασης διάδοσης z σε m (τρισιδιάστατη απεικόνιση).	- 61 -
Εικ. 4-23: Υπολογισμός της πυκνότητας ενέργειας (J/cm^2) ως συνάρτηση της διαμέτρου της δέσμης r σε mm και της απόστασης διάδοσης z σε m σε ισοϋψής απεικόνιση (contour).....	- 62 -

Εικ. 4-24: Ποσοστό της αρχικής ενέργειας της δέσμης που υπόκειται σε αυτο-εστίαση κατά μήκος του άξονα διάδοσης z .	- 63 -
Εικ. 4-25: Υπολογισμός της κατανομής της έντασης της δέσμης στα πρώτα μέτρα διάδοσης ($0 < z < 2$) m. ...	64 -
Εικ. 4-26: Υπολογισμός της κατανομής της έντασης της δέσμης για διάδοση από $3 < z < 5$ m.	- 65 -
Εικ. 4-27: Υπολογισμός της κατανομής της έντασης της δέσμης για διάδοση από $5 < z < 7$ m.	- 67 -
Εικ. 4-28: Υπολογισμός της κατανομής της έντασης της δέσμης για διάδοση από $7 < z < 9$ m.	- 68 -
Εικ. 4-29: Υπολογισμός της κατανομής της έντασης της δέσμης για διάδοση από $9 < z < 11$ m.	- 69 -
Εικ. 4-30: Χρονικό προφίλ της έντασης των διαδιδόμενων παλμών σε όλο το μήκος διάδοσης	- 70 -
Εικ. 4-31: Χρονική εξέλιξη των διαδιδόμενων παλμών σε ολόκληρο το μήκος διάδοσης (contour)...	- 70 -
Εικ. 4-32: Φάσμα του παλμού σε απόσταση μετά την γεωμετρική εστία (9.5 m). Παρατηρείστε το αρχικό φάσμα του λέιζερ πριν την χρήση φακού (Laser spectrum), το φάσμα που δημιουργείται από το filament (Filament Spectrum), καθώς και το φάσμα περιμετρικά από το filament (Ring Spectrum). Παρατηρείστε επίσης την έντονη μετατόπιση των φασμάτων του filament και της περιβάλλουσας του προς το ιώδες (blue shift).....	- 71 -
Εικ. 4-33: Υπολογισμός της πυκνότητας ηλεκτρονίων από το επαγόμενο πλάσμα κατά μήκος του άξονα διάδοσης	- 73 -
Εικ. 4-34: Υπολογισμός της πυκνότητας ηλεκτρονίων λόγω επαγόμενου πλάσματος σε συνάρτηση με την ακτίνα της δέσμης και της απόστασης διάδοσης.....	- 73 -
Εικ. 5-1: Σχηματικό διάγραμμα της πειραματικής διάταξης για την διάδοση παλμών λέιζερ υπεριώδους μέσα σε Αργό.....	- 77 -
Εικ. 5-2: Πειραματική διάταξη διάδοσης παλμών λέιζερ υπεριώδους μέσα σε Αργό (ULF –ITE)	- 78 -
Εικ. 5-3: Σύστημα σωλήνων (μεταλλικό μέρος και χαλαζίας)	- 78 -
Εικ. 5-4: Φάσματα εκπομπής του Αργού στην φασματική περιοχή 300-450 nm (Spektrus 1.0).....	- 79 -
Εικ. 5-5: Μέτρηση της ακτινοβολίας φθορισμού του Αργού κατά μήκος του άξονα διάδοσης σε πίεση 400 και 600 mbar	- 80 -
Εικ. 5-6: Μέτρηση της ακτινοβολίας φθορισμού στο Αργό μετά το σημείο μη γραμμικής εστίασης για πιέσεις 500 και 1000 mbar.....	- 81 -
Εικ. 5-7: Μέτρηση της ακτινοβολίας φθορισμού στο Αργό μετά το σημείο μη γραμμικής εστίασης για πιέσεις 200 και 100 mbar.....	- 81 -
Εικ. 5-8: Μεταβολή της ακτίνας της δέσμης κατά την διάδοσή της στο Αργό σε πίεση 250 και 500 mbar. Η δέση εστιάζει στα 7.8 m (μη γραμμική εστία) και όχι στα 9.5 m (γραμμική εστία).	- 82 -
Εικ. 5-9: Μεταβολή της πυκνότητας ενέργειας της διαδιδόμενης δέσμης μέσα στο Αργό σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης σε πίεση 500 mbar.	- 83 -
Εικ. 5-10: Μεταβολή της αρχικής ενέργειας της δέσμης καθώς αυτή διαδίδεται μέσα στο Αργό.....	- 83 -
Εικ. 5-11: Μεταβολή των ενεργειακών απωλειών της δέσμης λόγω πολυφωτονικής απορρόφησης σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης.	- 84 -
Εικ. 5-12: Μεταβολή της μέγιστης έντασης της δέσμης του λέιζερ (W/cm^2) για διάδοση στο Αργό σε πίεση 250 mbar σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης.	- 84 -
Εικ. 5-13: Μεταβολή της πυκνότητας ηλεκτρονίων λόγω επαγόμενου πλάσματος κατά την διάδοση της δέσμης μέσα στο Αργό σε πίεση 250 mbar και για αποστάσεις διάδοσης > 8 m. Η πυκνότητα ηλεκτρονίων παραμένει σχεδόν σταθερή για όλο το μήκος διάδοσης και κυμαίνεται από 10^{12} - $10^{15} cm^{-3}$	- 85 -
Εικ. 5-14: Μεταβολή της κατανομής της έντασης της δέσμης του λέιζερ καθώς διαδίδεται στο Αργό σε πίεση 250 mbar σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης και την ακτίνα του filament. Η ένταση κυμαίνεται από 10^{12} - $10^{13} W/cm^2$ σε όλη το μήκος του filament και σε όλη την απόσταση διάδοσης.....	- 86 -
Εικ. 6-1: Ατομο στο οποίο φαίνεται η μετατόπιση του πυρήνα σε σχέση με το κέντρο του νέφους ηλεκτρονίων, εξαιτίας του εξωτερικού ηλεκτρικού πεδίου του λέιζερ.	- 91 -
Εικ. 6-2: Ημι-κλασική προσέγγιση της παραγωγής αρμονικών (μοντέλο Corkum).....	- 93 -
Εικ. 6-3: Κβαντομηχανική περιγραφή παραγωγής αρμονικών	- 94 -
Εικ. 6-4: Μέτρηση ακτινοβολίας προερχόμενης από την 3 ^η αρμονική (83 nm) λέιζερ υπεριώδους τύπου KrF ($\lambda_0=248$ nm), για διαφορετικά ευγενή αέρια (Wellegehausen et.al.(1996)[122])	- 96 -
Εικ. 6-5: Διαγράμματα ενεργειακών μεταβάσεων των ευγενών αερίων (Wellegehausen et.al.(1996)[122]).....	- 97 -
Εικ. 6-6: Πειραματική διάταξη πειράματος μέτρησης φάσματος αρμονικών.....	- 98 -
Εικ. 6-7: (a): Κατασκευάζοντας την πειραματική διάταξη, (b) Τελική μορφή	- 99 -
Εικ. 6-8: Καμπύλες ανακλαστικότητας του φράγματος περίθλασης (#1200) του φασματογράφου	- 100 -
Εικ. 6-9: (a): Σύστημα διαφορικό κενού, (b): Φασματογράφος Acton Research VM502-X.....	- 100 -
Εικ. 6-10: Φάσμα εκπομπής του Αργού: (a) Ουδέτερο Αργό (Ar) στην περιοχή 50-250 nm, (b) Ουδέτερο Αργό (Ar) στην περιοχή 50-130 nm (zoom), (c) Μια φορά ιονισμένο Αργό (Ar^+) στην περιοχή 40-120 nm	- 101 -

Εικ. 6-11: Φάσμα εκπομπής της δέσμης του λέιζερ μετά την διάδοσή της μέσα στο Αργό σε πίεση 210 mbar	- 102 -
Εικ. 6-12: Κβαντική απόδοση ανιχνευτή MCP σε συνάρτηση με το μήκος κύματος	- 103 -
Εικ. 6-13: Διάγραμμα ανακλαστικότητας του φράγματος περίθλασης του φασματογράφου στην περιοχή από 40-260 nm	- 103 -
Εικ. 6-14: Φάσμα της δέσμης του λέιζερ πριν την διάδοση	- 105 -
Εικ. 6-15: Φάσμα της δέσμης του λέιζερ (248 nm)	- 105 -
Εικ. 6-16: Φάσμα της 3 ^{ης} αρμονικής (82.7 nm)	- 106 -
Εικ. 6-17: Φάσμα της 5 ^{ης} αρμονικής (49.6 nm)	- 106 -
Εικ. 6-18: Μεταβολή της έντασης της 3 ^{ης} αρμονικής σε συνάρτηση με την πίεση	- 107 -
Εικ. 6-19: Μεταβολή της έντασης της 5 ^{ης} αρμονικής σε συνάρτηση με την πίεση	- 108 -
Εικ. 6-20: Ταχύτητες διάδοσης ενός μη μονοχρωματικού παλμού	- 109 -
Εικ. 6-21: (a) Παλμός χωρίς chirp, (b) παλμός που έχει υποστεί chirp	- 111 -
Εικ. 6-22: Δείκτης διάθλασης του Αργού ως συνάρτηση του μήκους κύματος	- 119 -
Εικ. 6-23: Μεταβολή του δείκτη διάθλασης Δn, του Αργού ως συνάρτηση της πίεσης	- 122 -
Εικ. 6-24: Μεταβολή του συντελεστή Δk με την πίεση (3 ^η αρμονική)	- 123 -
Εικ. 6-25: Μεταβολή του συντελεστή Δk με την πίεση (5 ^η αρμονική)	- 123 -
Εικ. 6-26: Μεταβολή του μήκους συμφωνίας L _{coh} σε συνάρτηση με την πίεση	- 124 -
Εικ. 6-27: Μεταβολή του μήκους walk-off L _w σε συνάρτηση με την πίεση	- 124 -
Εικ. 6-28: Σύγκριση του θεωρητικού μοντέλου και των μετρήσεων για μεταβολή της έντασης της 3 ^{ης} αρμονικής σε συνάρτηση με την πίεση	- 126 -
Εικ. 6-29: Σύγκριση του θεωρητικού μοντέλου και των μετρήσεων για μεταβολή της έντασης της 5 ^{ης} αρμονικής σε συνάρτηση με την πίεση	- 127 -
Εικ. 7-1: Γεωμετρικά στοιχεία της προσομοίωσης: Φακός εστιακής απόστασης f=+80 mm, πάχος δείγματος L=10 mm, ενώ η δέσμη εστιάζεται σε απόσταση 3 mm μέσα στο υλικό	- 131 -
Εικ. 7-2: Στιγμιότυπα της κατανομής της πυκνότητας ενέργειας (J/cm ²) σε διάφορα σημεία της διαδοσης (0 < z < 3.7 mm)	- 132 -
Εικ. 7-3: Στιγμιότυπα της κατανομής της πυκνότητας ενέργειας (J/cm ²) σε διάφορα σημεία της διαδοσης (4.47 mm < z < 8.82 mm)	- 133 -
Εικ. 7-4: Κατανομή της πυκνότητας ενέργειας της δέσμης κατά μήκος του άξονα διάδοσης για διάδοση μέσα σε SiO ₂	- 134 -
Εικ. 7-5: Στιγμιότυπα της κατανομής της έντασης (W/cm ²) σε διάφορα σημεία της διαδοσης (0 < z < 3.7 mm)	- 135 -
Εικ. 7-6: Στιγμιότυπα της κατανομής της έντασης (W/cm ²) σε διάφορα σημεία της διαδοσης (4.47 < z < 9.55 mm)	- 136 -
Εικ. 7-7: Κατανομή της έντασης της δέσμης κατά μήκος του άξονα διάδοσης για διάδοση μέσα σε SiO ₂ .. - 137 -	
Εικ. 7-8: Κατανομή της πυκνότητας ηλεκτρονίων κατά μήκος της διάδοσης, για διάδοση σε SiO ₂ .. - 137 -	
Εικ. 8-1: Μεταφορά του όζοντος στην επιφάνεια της Γης (http://earthobservatory.nasa.gov)	- 141 -
Εικ. 8-2: Εκτίμηση των κλιματολογικών μοντέλων για την αύξηση του τροποσφαιρικού όζοντος (Frater, (1999): CD-ROM Weather & Climate, and Sonnemann, 1992)	- 142 -
Εικ. 8-3: Φάσμα απορρόφησης του όζοντος: Η κύρια περιοχή απορρόφησης (Hartley bands) έχει μέγιστο στα 250 nm περίπου (θυμίζουμε ότι το KrF excimer λέιζερ λειτουργεί στα 248 nm) [Peter Warneck, Chemistry of the Natural Atmosphere (Academic Press, New York, 1988)]	- 143 -
Εικ. 8-4: (a) Αρχή λειτουργίας του συστήματος παραγωγής όζοντος, (b) σύστημα παραγωγής όζοντος (http://www.anseros.de)	- 145 -
Εικ. 8-5: Σύστημα παραγωγής όζοντος από αντίδραση υπεριώδους ακτινοβολίας με οξυγόνο (http://www.uvp.com)	- 146 -
Εικ. 8-6: Θεωρητική περιγραφή της απορρόφησης ακτινοβολίας από υλικό	- 147 -
Εικ. 8-7: Γραφική παράσταση υπολογισμού συγκέντρωσης όζοντος σε συνάρτηση με τον λόγο I ₀ /I .. - 148 -	
Εικ. 8-8: Πειραματική διάταξη: Ozonator: σύστημα παραγωγής όζοντος, Hg: βαθμονομημένη λυχνία υδραργύρου, Chopper: Περιστρεφόμενο σύστημα για τον LIA, XUV: ανιχνευτής, LIA: Lock-In Amplifier, PC: υπολογιστής συνδεδεμένος μέσω RS232 με τον LIA για καταγραφή των μετρήσεων, Circulator: σύστημα κυκλοφορητή αέρα.	- 149 -
Εικ. 8-9: Πειραματική διάταξη μετρήσεων συγκέντρωσης όζοντος	- 150 -
Εικ. 8-10: Θάλαμος από χαλαζία (quartz) για τις μετρήσεις αλληλεπίδρασης του όζοντος με την δέσμη του λέιζερ.	- 151 -
Εικ. 8-11: Γραφική παράσταση παραγωγής όζοντος με το System I (λυχνία υδραργύρου)	- 152 -
Εικ. 8-12: Γραφική παράσταση παραγωγής όζοντος με το System II (ηλεκτρική εκκένωση)	- 152 -

Πίνακες

Πίνακας 1: Ενέργειες ιονισμού των ευγενών αερίων (CRC Handbook of Chemistry and Physics) ...	- 96 -
Πίνακας 2: Σύγκριση των πειραματικών μας αποτελεσμάτων (αναφορά [1]) της ενέργειας απόδοσης μετατροπής των αρμονικών στο Αργό, με αντίστοιχες τιμές της βιβλιογραφίας	- 104 -
Πίνακας 3: Συγκεντρωτικός πίνακας συντελεστών Δk και μηκών συμφωνίας L_{coh} σε πίεση $P=1\text{ Atm}$	- 120 -
Πίνακας 4: Οξειδωτικά δυναμικά διάφορων χημικών ενώσεων (CRC Handbook of Chemistry and Physics)	- 140 -

Κεφάλαιο 1: Εισαγωγή

"What I am going to tell you about is what we teach our physics students in the third or fourth year of graduate school... It is my task to convince you not to turn away because you don't understand it. You see my physics students don't understand it... That is because I don't understand it. Nobody does."

-- Richard Feynman on the quantum theory of light and matter.

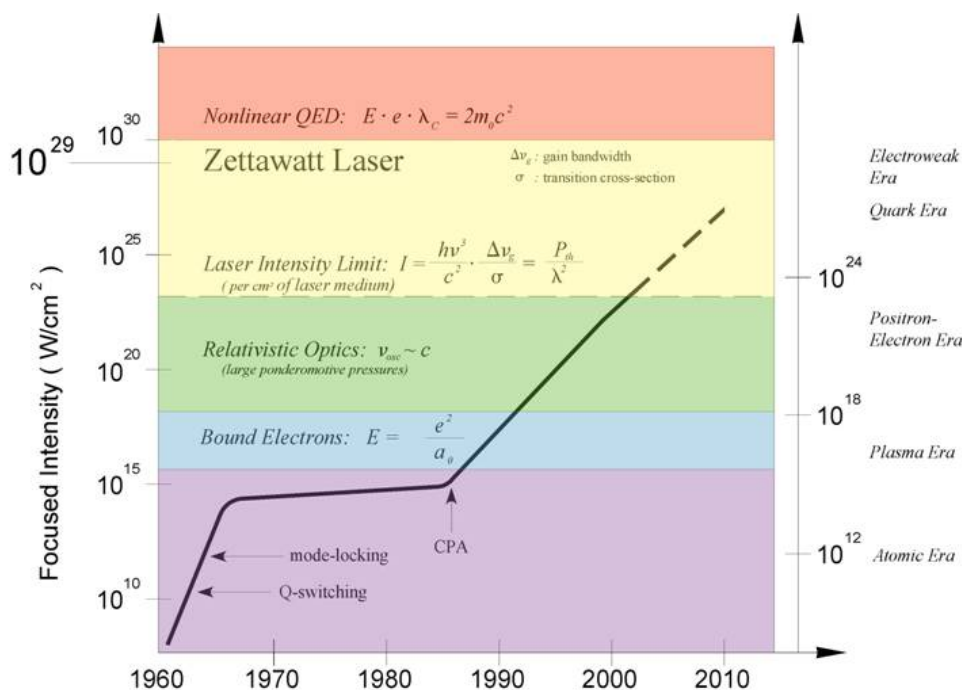
1.1. Πρόλογος

Η συγκεκριμένη διατριβή είναι το αποτέλεσμα μιας επίπονης μελέτης που διήρκεσε 3.5 χρόνια περίπου. Μέσα σε αυτό το χρονικό διάστημα, απαιτήθηκε αρκετός χρόνος τόσο για την θεωρητική μελέτη του θέματος όσο και για την διεξαγωγή πειραμάτων.

Όσον αφορά την θεωρητική εργασία που διήρκεσε για ένα χρόνο περίπου, ο συγγραφέας επικεντρώθηκε στην μελέτη της διεθνούς βιβλιογραφίας μέσω επιστημονικών αναφορών και βιβλίων. Όσον αφορά την πειραματική διαδικασία, λόγω των πολύ υψηλών απαιτήσεων των πειραμάτων, τα οποία πραγματοποιήθηκαν με την βοήθεια λέιζερ τελευταίας τεχνολογίας, όλα τα πειράματα διεξήχθησαν στις εγκαταστάσεις υπεριώδών λέιζερ (*Ultraviolet Laser Facility*, ULF) στο Ίδρυμα Τεχνολογίας και Έρευνας (ITE) στο Ηράκλειο Κρήτης, το οποίο αποτελεί την μόνη ευρωπαϊκών προδιαγραφών εγκατάσταση λέιζερ υψηλής ισχύος στην Ελλάδα. Σε όλα τα πειράματα που διεξήχθησαν ο συγγραφέας συμμετείχε στον σχεδιασμό, στην διαδικασία των μετρήσεων, στην επεξεργασία και στην ανάλυση των πειραματικών δεδομένων. Στο σημείο αυτό πρέπει να σημειωθεί ότι η επίτευξη ενός επιτυχημένου πειράματος είναι πάντα αποτέλεσμα ομαδικής προσπάθειας αρκετών ατόμων.

1.2. Η σπουδαιότητα της αλληλεπίδρασης της ακτινοβολίας λέιζερ με την ύλη στην εξέλιξη της τεχνολογίας

Η μελέτη των φαινομένων που συμβαίνουν κατά την αλληλεπίδραση ηλεκτρομαγνητικής ακτινοβολίας, και ειδικά της ακτινοβολίας λέιζερ βραχύχρονων παλμών υψηλής ισχύος με την ύλη, αποτελεί σήμερα έναν από τους σημαντικότερους κλάδους της σύγχρονης τεχνολογίας. Ειδικότερα στην Φυσική η νέα γενιά των λέιζερ βραχύχρονων παλμών έφερε την επανάσταση στη βασική αλλά και στην εφαρμοσμένη έρευνα. Ενδεικτικά αναφέρεται ότι για πρώτη φορά έγινε εφικτή η παραγωγή σωματιδίων στο κενό (pair production, *Bula et.al.*[2]), η επιτάχυνση δεσμών ηλεκτρονίων (*Zeph et.al.* [3]), πρωτονίων και ιόντων (*Clark et.al.* [4]) καθώς και νετρονίων (*Pretzler et.al.* [5]) με λέιζερ χωρίς χρήση επιταχυντών, η επίτευξη πυρηνικής σχάσης με λέιζερ (*Cowan et.al.* [6]), καθώς και της πυρηνικής σύντηξης με λέιζερ (ICF, Inertial Confinement Fusion, *Tabak et.al.* [7] και *Pukhov et.al.*[8]), η παραγωγή αρμονικών με λέιζερ μέσα σε κρυστάλλους στερεών (*Svanberg* [9]) καθώς και σε αέρια (*Charalambidis et.al.*[155], *Papadogiannis et.al.* [10] και *Li et.al.* [11], *L'Huillier, Balcou* [12] κ.α.), η παραγωγή σύμφωνων πηγών ακτίνων- X και ακτίνων γ (*Gallant et.al.* [13]), η ανίχνευση ρύπων στην ατμόσφαιρα (*Rairoux et. al.*[14] και *Kasparian et.al.*[15]) και πλήθος άλλων εφαρμογών. Το σημαντικότερο όλων είναι ότι όλα τα παραπάνω αποτελούν αντικείμενο έρευνας μόλις των τελευταίων 20 χρόνων, και αυτό γιατί μέχρι και πριν από μερικά χρόνια πιστευόταν ότι η αλληλεπίδραση της ακτινοβολίας από λέιζερ με την ύλη ήταν ήδη γνωστή, αφού τα λέιζερ είχαν φτάσει σε ένα επίπεδο εξέλιξης που την εποχή εκείνη θεωρούνταν ότι είναι τελικό (Εικ. 1-1). Τα ισχύρα λέιζερ στα μέσα της δεκαετίας του 1980 ήταν παλμικά και παρήγαγαν παλμούς της τάξης των picosecond (10^{-12} δευτερόλεπτα) και εντάσεις που δεν ξεπερνούσαν τα 10^{10} W/cm². Μια νέα όμως τεχνική ενίσχυσης της ακτινοβολίας λέιζερ (τεχνική *Chirped Pulse Amplification*, CPA, *D.Strickland and G.Mourou* (1985) [16,70]) έφερε την επανάσταση. Τα νέα λέιζερ που κατασκευάστηκαν ήταν ικανά να παράγουν παλμούς τάξεως femtosecond (10^{-15} δευτερόλεπτα) δηλαδή 3 τάξεις μεγέθους πιο στενοί χρονικά παλμοί [30,69,71] και εντάσεις που σήμερα φτάνουν στα 10^{22} W/cm², δηλαδή 12 τάξεις μεγέθους πιο ισχυρά.



Εικ. 1-1: Ιστορία των λέιζερ (<http://en.wikipedia.org/wiki/Laser>)

Αυτό που θα ρωτήσει κάποιος είναι: *Γιατί είναι τόσο σημαντικά αυτά τα μεγέθη*; Η απάντηση είναι απλή αρκεί να γίνει αντιληπτό το μέγεθος αυτών των στοιχείων: Για εντάσεις ακτινοβολίας μεγαλύτερες από 10^{18} W/cm^2 , τα φαινόμενα αλληλεπίδρασης αρχίζουν και αποκτούν σχετικιστικές ιδιότητες δηλαδή οι ταχύτητες των σωματιδίων που αλληλεπιδρούν πλησιάζουν την ταχύτητα του φωτός. Τα ηλεκτρικά πεδία που σχηματίζονται από αυτές τις εντάσεις είναι της τάξεως του 1 TV/cm^2 , 100 φορές πιο μεγάλα από το ηλεκτρικό πεδίο *Coulomb* που συγκρατεί τα ηλεκτρόνια σε ένα άτομο (Umstadter [17]). Τα ηλεκτρόνια και τα ιόντα που δέχονται αυτές τις εντάσεις κινούνται με ταχύτητες κοντά στην ταχύτητα του φωτός με ενέργειες της τάξεως μερικών MeV.

Σε αυτές τις εντάσεις η πίεση του φωτός που δίνεται από τον τύπο $P=I/c$, όπου I είναι η ένταση της ακτινοβολίας του λέιζερ (W/cm^2) και c είναι η ταχύτητα του φωτός, φτάνει στην τάξη των μερικών GAtm (10^9 Atm), το μαγνητικό πεδίο που δημιουργούν φτάνει μερικά GGauss (10^9 Gauss , όπου $1 \text{ Gauss} = 10^{-4} \text{ Tesla}$) με το μαγνητικό πεδίο της Γης να φτάνει μόλις το 1 Gauss, ενώ η επιτάχυνση των σωματιδίων αυτών φτάνει τα 10^{21} g όπου g η επιτάχυνση της βαρύτητας. Για πρώτη φορά το 2002 επετεύχθη η παραγωγή τέτοιων τεράστιων μαγνητικών πεδίων σε εργαστηριακές συνθήκες (Tatarakis et.al., [18,147]) κάνοντας χρήση λέιζερ υψηλής

ισχύος. Για να αντιληφθεί κανείς το μέγεθος αυτών των πεδίων αρκεί να ειπωθεί ότι τέτοιες ακραίες τιμές ηλεκτρικών και μαγνητικών πεδίων, καθώς και επιταχύνσεων σωματιδίων μπορούν να βρεθούν μόνο στο εσωτερικό άστρων όπως ο Ήλιος, ή πολύ κοντά στον ορίζοντα μιας μαύρης τρύπας!

Ειδικά στον τομέα της αστροφυσικής, ανοίγεται ο δρόμος να μελετηθούν τέτοιου είδους κοσμολογικά φαινόμενα σε κλίμακα εργαστηρίου, αφού τέτοιου είδους συνθήκες μόνο στο διάστημα μπορούν να βρεθούν. Σήμερα οι μεγαλύτερες εγκαταστάσεις λέιζερ υψηλής ισχύος βρίσκονται στην Αμερική (*Lawrence Livermore National Laboratory*, LLNL), στην Μ. Βρετανία (*Petawatt Facility*, *Rutherford Appleton Laboratory*, RAL) καθώς και στην Γαλλία (*Laboratoire d'Optique Appliquee*, LOA και *Laboratoire d'Utilisation des Lasers Intenses*, LULI). Στην Ελλάδα, η μεγαλύτερη εγκατάσταση λέιζερ υψηλής ισχύος βρίσκεται στο Ίδρυμα Τεχνολογίας και Έρευνας (*Foundation for Research and Technology-Hellas*, FORTH) στο Ηράκλειο Κρήτης. Οι εφαρμογές της νέας γενιάς λέιζερ δεν περιορίζονται μόνο στον κλάδο της Φυσικής, αλλά έχουν πεδίο εφαρμογής σχεδόν σε όλες τις επιστήμες της σύγχρονης τεχνολογίας, π.χ. στην Ιατρική με κυριότερα πεδία εφαρμογής στην μελέτη διαγνωστικών, στην Χημεία και την Βιολογία με εφαρμογές στις φασματοσκοπικές μεθόδους ανάλυσης, στην Μετεωρολογία στην τηλεπισκόπηση της ατμόσφαιρας, και φυσικά στην βιομηχανία και στα ηλεκτρονικά στην κατασκευή συσκευών επεξεργασίας υλικών, στις οπτικές ίνες, τις τηλεπικοινωνίες, τους H/Y) κ.α.

1.3. Σκοπός της παρούσας διατριβής

Η παρούσα διατριβή ασχολείται με το θέμα της αλληλεπίδρασης ακτινοβολίας λέιζερ με την ύλη, και ειδικότερα με την διάδοση βραχύχρονων παλμών τάξης femtosecond, (10^{-15} δευτερόλεπτα), υψηλής έντασης ($>10^{12}$ W/cm²) με μήκος κύματος στο υπεριώδες (248 nm) μέσα σε αέρια μέσα, όπως ο ατμοσφαιρικός αέρας το Αργό, αλλά και σε στερεά, όπως το άμορφο διοξείδιο του πυριτίου, SiO₂ (fused silica). Ο βασικός σκοπός της διατριβής είναι η μελέτη των σημαντικότερων φυσικών μηχανισμών που λαμβάνουν χώρα κατά την διάδοση αυτού του είδους παλμών λέιζερ μέσα στην ύλη.

1.4. Περιληπτική σύνοψη της διατριβής

Το παρόν κεφάλαιο είναι η εισαγωγή στην οποία δίνονται κάποια γενικά στοιχεία της αλληλεπίδρασης της ακτινοβολίας λέιζερ με την ύλη. Επίσης περιγράφεται ο σκοπός, η συμβολή του συγγραφέα και η δομή της διατριβής. Στο κεφάλαιο 2 παρουσιάζεται η θεωρία διάδοσης ακτινοβολίας λέιζερ υψηλής έντασης. Ξεκινώντας από τις εξισώσεις *Maxwell*, μπορεί να εξαχθεί η κυματική εξίσωση η οποία περιγράφει την διάδοση ενός ηλεκτρομαγνητικού κύματος στο χώρο και στο χρόνο μέσα σε ένα υλικό. Ειδικότερα στην περίπτωση της διάδοσης ακτινοβολίας λέιζερ υψηλής έντασης η κυματική εξίσωση μετασχηματίζεται σε μη γραμμική λόγω της μη γραμμικής μεταβολής της πόλωσης του ηλεκτρικού πεδίου του λέιζερ. Κάνοντας τους κατάλληλους μετασχηματισμούς η μη γραμμική κυματική εξίσωση μπορεί να αναχθεί σε μια μορφή που να μοιάζει με μια εξίσωση τύπου *Schrödinger*, όπου το ρόλο της κυματοσυνάρτησης παίζει το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ ενώ τον ρόλο του δυναμικού παίζει ένας μη γραμμικός όρος που περιέχει το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ. Εξαιτίας αυτού, η εξίσωση αυτή ονομάζεται *μη γραμμική εξίσωση Schrödinger* (*Non-Linear Schrödinger Equation, NLSE*) και είναι η βασική εξίσωση που περιγράφει την διάδοση παλμών λέιζερ υψηλής έντασης μέσα σε ένα μέσο. Στο κεφάλαιο 3 παρουσιάζονται τα τεχνικά χαρακτηριστικά του συστήματος λέιζερ που χρησιμοποιήθηκε στα πειράματα της παρούσας διατριβής.

Στο κεφάλαιο 4 περιγράφεται η πειραματική διάταξη που χρησιμοποιήθηκε για την διάδοση βραχύχρονων παλμών υψηλής έντασης λέιζερ υπεριώδους μέσα σε ατμοσφαιρικό αέρα σε διαφορετικές πιέσεις (50-1000 mbar). Αρχικά περιγράφεται το θεωρητικό υπόβαθρο που στηρίχθηκε το πείραμα, το οποίο απαιτεί την λύση ενός συστήματος δύο εξισώσεων: α) της μη γραμμικής *Schrödinger* μετασχηματισμένη ώστε να περιλαμβάνει όλα τα φυσικά φαινόμενα που παίρνουν μέρος κατά την αλληλεπίδραση της δέσμης του λέιζερ με τον αέρα, και β) της εξίσωσης της χρονικής εξέλιξης της πυκνότητας ηλεκτρονίων από το δημιουργούμενο πλάσμα. Το συγκεκριμένο σύστημα εξισώσεων λόγω της πολυπλοκότητάς του δεν επιδέχεται αναλυτικές λύσεις και επομένως χρειάζεται να επιλυθεί αριθμητικά. Έτσι, κατασκευάστηκε ένα αριθμητικό μοντέλο προσομοίωσης που επιλύει το σύστημα των δύο εξισώσεων έχοντας ως αρχικές συνθήκες πραγματικές πειραματικές τιμές από αποτελέσματα σε ατμοσφαιρική πίεση. Στο συγκεκριμένο κεφάλαιο περιγράφεται η

πρώτη πειραματική δουλειά της συγκεκριμένης εργασίας. Όσον αφορά τις μετρήσεις, την επεξεργασία και την εξαγωγή των αποτελεσμάτων του πειράματος, αυτά έγιναν αποκλειστικά και μόνο από τον ίδιο τον συγγραφέα. Όσον αφορά την κατασκευή του αριθμητικού μοντέλου προσομοίωσης, έγινε σε συνεργασία με το *Εργαστήριο Οπτοηλεκτρονικής Λέιζερ και Τεχνολογίας Πλάσματος* του τμήματος Ηλεκτρονικής του ΤΕΙ Κρήτης Παράρτημα Χανίων.

Στο κεφάλαιο 5 γίνεται περιγραφή της πειραματικής διάταξης που χρησιμοποιήθηκε για την διάδοση βραχύχρονων παλμών υψηλής έντασης μέσα σε *Αργό* (Ar), σε διαφορετικές πιέσεις (50-1000 mbar). Η επιλογή του Αργού ως μέσου διάδοσης έγινε με γνώμονα την υψηλή απόδοσή του στην παραγωγή αρμονικών. Στο κεφάλαιο αυτό περιγράφεται το δεύτερο πείραμα της εργασίας. Και σε αυτήν την περίπτωση οι μετρήσεις η επεξεργασία και η εξαγωγή των αποτελεσμάτων του πειράματος έγιναν αποκλειστικά από τον συγγραφέα, ενώ όσον αφορά την κατασκευή του αριθμητικού μοντέλου προσομοίωσης, έγινε σε συνεργασία με το *Εργαστήριο Οπτικών Εφαρμογών* (Laboratoire Optique Applique, L.O.A.).

Στο κεφάλαιο 6 περιγράφεται η πειραματική διάταξη παραγωγής αρμονικών κατά την διάδοση αυτό-οδηγούμενων παλμών λέιζερ υπεριώδους στο Αργό. Συγκεκριμένα από τις μετρήσεις προκύπτει η παραγωγή της 3^{ης} τάξης και της 5^{ης} τάξης αρμονικών με μήκη κύματος 82.7 nm και 49.6 nm αντίστοιχα, με αρχικό μήκος κύματος λέιζερ στα 248 nm. Το συγκεκριμένο πείραμα παραγωγής αρμονικών κατά την διάδοση αυτο-οδηγούμενων παλμών εκτελέστηκε για πρώτη φορά για λέιζερ υπεριώδους από όσον είναι σε θέση να γνωρίζει ο συγγραφέας από την διεθνή βιβλιογραφία. Οι παραγόμενες αρμονικές εμφανίζουν έντονα φαινόμενα φασματικής διαπλάτυνσης καθώς και μετατόπιση των μηκών κύματος προς το ιώδες (*blue shift*) τα οποία είναι αποτέλεσμα αυτό-διαμόρφωσης φάσης (*Self-Phase Modulation, SPM*), μη γραμμικού φαινομένου που λαμβάνει χώρα κατά την δημιουργία αυτό-οδηγούμενων παλμών. Επίσης η απόδοση των αρμονικών εμφανίζεται αυξημένη τουλάχιστον κατά ένα παράγοντα 10² από τις αντίστοιχες τιμές της βιβλιογραφίας. Αυτό εκτιμάται ότι συμβαίνει λόγω του τρόπου παραγωγής των αρμονικών, δηλαδή των αυτό-οδηγούμενων παλμών που συγκρατούν την δέσμη του λέιζερ εστιασμένη για μεγάλη απόσταση με αποτέλεσμα να υπάρχουν συνθήκες παραγωγής σε πολλές περιοχές του χώρου κατά μήκος της διάδοσης και όχι μόνο στην περιοχή της γεωμετρικής εστίασης,

όπως συμβαίνει στην συνήθη περίπτωση παραγωγής αρμονικών μέσα σε jet. Για να εξηγηθεί καλύτερα το φαινόμενο της αυξημένης απόδοσης, κατασκευάστηκε ένα αριθμητικό μοντέλο προσομοίωσης της μεταβολής της έντασης των αρμονικών σε συνάρτηση με την πίεση και τα αποτελέσματα της προσομοίωσης έδειξαν ότι όντως το μήκος μέσα στο οποίο παράγονται οι αρμονικές είναι πολύ μεγαλύτερο από το μήκος συμφωνίας (coherence length, L_{coh}) που είναι το μέγιστο θεωρητικό μήκος στο οποίο μπορούν το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ και των αρμονικών να είναι σε φάση. Αυτό το αποτέλεσμα οδηγεί στο συμπέρασμα ότι υπάρχουν φαινόμενα ενισχυμένης συμφωνίας φάσης (*quasi-phase matching*). Στο συγκεκριμένο κεφάλαιο περιγράφεται το τρίτο πείραμα της εργασίας αυτής και όσον αφορά τις μετρήσεις, την επεξεργασία και την εξαγωγή των αποτελεσμάτων του πειράματος, αυτά έγιναν αποκλειστικά από τον συγγραφέα καθώς και η κατασκευή του αριθμητικού μοντέλου προσομοίωσης για την παραγωγή των αρμονικών.

Στο κεφάλαιο 7 περιγράφεται η διάδοση μελέτη της διάδοσης βραχύχρονων παλμών μέσα σε στερεά σε επίπεδο αριθμητικής επίλυσης και συγκεκριμένα μελετήθηκαν ειδικές περιπτώσεις διάδοσης μέσα σε διαφανή στερεά όπως το *άμορφο διοξείδιο του πυριτίου* SiO_2 (fused silica). Αυτό που προέκυψε από την μελέτη ήταν ότι και στην περίπτωση των στερεών υπάρχει εμφάνιση παρόμοιων μη γραμμικών φαινομένων με αυτά που συμβαίνουν κατά την διάδοση σε αέρια.

Στο κεφάλαιο 8 γίνεται περιγραφή των εφαρμογών που προκύπτουν από την διάδοση αυτό-οδηγούμενων παλμών μέσα στον αέρα. Συγκεκριμένα αναφέρεται η χρήση ενός τέτοιου συστήματος για την ανίχνευση του τροποσφαιρικού όζοντος, ενώ τέλος στο κεφάλαιο 9 παρουσιάζονται τα τελικά συμπεράσματα της διατριβής.

Κεφάλαιο 2: Θεωρία διάδοσης βραχύχρονων παλμών λέιζερ υψηλής έντασης μέσα σε αέρια

2.1. Εισαγωγή

Η διάδοση βραχύχρονων παλμών λέιζερ υψηλής έντασης ($>10^{12}$ W/cm²) μέσα στην ύλη είναι πολύ σημαντική σε πάρα πολλές εφαρμογές, όπως στις οπτικές επικοινωνίες, στην ανάπτυξη των λέιζερ, στην επεξεργασία υλικών, καθώς και σε βιολογικές εφαρμογές[24-28]. Το βασικό χαρακτηριστικό στην διάδοση είναι ότι ο δείκτης διάθλασης όλων των οπτικά διάφανων υλικών εξαρτάται γραμμικά από την ένταση του εφαρμοζόμενου εξωτερικού ηλεκτρομαγνητικού πεδίου, που στην προκειμένη περίπτωση είναι το λέιζερ. Όταν βραχύχρονοι παλμοί λέιζερ υψηλής έντασης διαπερνούν ένα υλικό, ο δείκτης διάθλασης αλλάζει σε κάθε σημείο της διάδοσης με αποτέλεσμα να δημιουργούνται μη γραμμικά φαινόμενα στον ίδιο τον παλμό αλλάζοντας του ουσιαστικά τις χωρικές, χρονικές και φασματικές ιδιότητές του.

Όπως είναι γνωστό, ο δείκτης διάθλασης ενός υλικού, υποδηλώνει το πόσο «πυκνό» είναι ένα υλικό μέσο και ορίζεται ως το πηλίκο της ταχύτητας διάδοσης του φωτός c_o στο κενό, προς την ταχύτητα διάδοσης c του φωτός μέσα στο υλικό, δηλαδή: $\eta = \frac{c_o}{c}$.

Ισχύει ότι $c_o \geq c$ άρα και $\eta \geq 1$ αφού η ταχύτητα του φωτός στο κενό είναι η μεγαλύτερη ταχύτητα που υπάρχει στη φύση σύμφωνα με την θεωρία της Σχετικότητας του Einstein. Μοναδική εξαίρεση σε αυτόν τον κανόνα είναι η περίπτωση της κατάστασης πλάσματος, στην οποία ο δείκτης διάθλασης είναι μικρότερος της μονάδας. Βέβαια στην περίπτωση αυτή δεν μπορεί να γίνεται λόγος διάδοση ηλεκτρομαγνητικού κύματος, αφού το φως απορροφάται μέσα στο πλάσμα. Ο δείκτης διάθλασης μπορεί να να εκφραστεί με όρους μήκους κύματος εφαρμόζοντας την θεμελιώδη εξίσωση της κυματικής: $c_o = \lambda_o f$, όπου λ_o το μήκος κύματος στο κενό και f η συχνότητα του φωτός.

Ισχύει ότι: $\eta = \frac{c_o}{c} = \frac{\lambda_o f}{\lambda f} \Rightarrow \eta = \frac{\lambda_o}{\lambda}$ όπου λ το μήκος κύματος μέσα στο υλικό. Ο

παραπάνω ορισμός ισχύει για μονοχρωματική ακτινοβολία που προσπίπτει σε γραμμικά διηλεκτρικά υλικά. Στην γενική περίπτωση που η ακτινοβολία δεν είναι

μονοχρωματική, ο δείκτης διάθλασης είναι συνάρτηση του μήκους κύματος (ή της συχνότητας). Η εξάρτηση αυτή μπορεί να υπολογιστεί για ένα συγκεκριμένο υλικό ως:

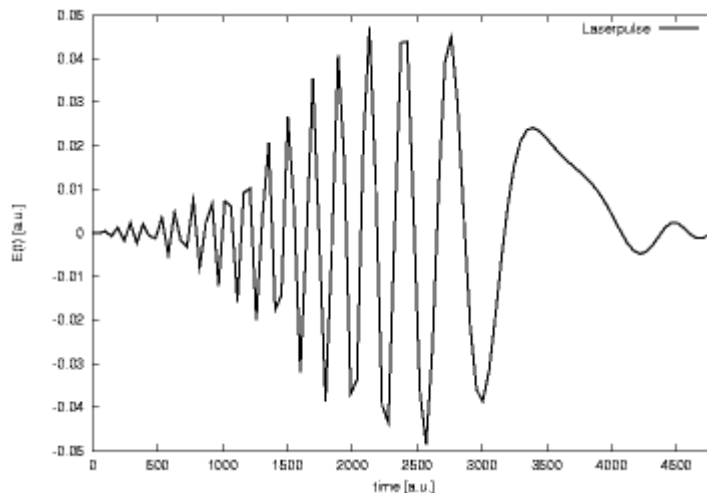
$$\eta^2(\lambda) = 1 + \frac{B_1\lambda^2}{\lambda^2 - C_1} + \frac{B_2\lambda^2}{\lambda^2 - C_2} + \frac{B_3\lambda^3}{\lambda^3 - C_3} \quad (\text{Σχέση του Sellmeir})$$

όπου $B_{1,2,3}$ και $C_{1,2,3}$ είναι σταθερές που εξάγονται από πειραματικά δεδομένα [29].

Η εξάρτηση του δείκτη διάθλασης από το μήκος κύματος ονομάζεται *διασπορά* (*dispersion*) και οφείλεται στο γεγονός ότι το φως διαφορετικών μηκών κύματος «ταξιδεύει» διαμέσου ενός υλικού με διαφορετικές ταχύτητες. Σε ένα υλικό με γραμμική διασπορά, τα μικρότερα μήκη κύματος «ταξιδεύουν» πιο αργά και διαθλώνται περισσότερο από τα μεγαλύτερα μήκη κύματος. Στην περίπτωση που η ηλεκτρομαγνητική ακτινοβολία προέρχεται από λέιζερ βραχύχρονων παλμών οι διάφορες συνιστώσες του παλμού θα «ταξιδεύουν» με μια μοναδική *ταχύτητα φάσης*

που εκφράζεται ως εξής: $u_\phi = \frac{c}{\eta(\lambda)}$ διαμέσου του υλικού. Η διαπλάτυνση του παλμού

συμβαίνει όταν οι γρήγορες συνιστώσες «απλώνουν» το προπορευόμενο τμήμα του παλμού ενώ οι αργές συνιστώσες «καθυστερούν» το πίσω τμήμα του παλμού. Η στιγμιαία ταχύτητα αυτού του παλμού, ή καλύτερα της περιβάλλουσας του ηλεκτρικού του πεδίου, ονομάζεται *ταχύτητα ομάδος* u_g . Η διασπορά της ταχύτητας ομάδος (*Group Velocity Dispersion*, GVD) είναι υπεύθυνη για την παραγωγή μη γραμμικών αλλαγών στην φάση κατά μήκος του παλμού. Το φαινόμενο αυτό της μεταβολής του παλμού ονομάζεται *chirp* (Εικ. 2-1).



Εικ. 2-1: Παλμός λέιζερ που έχει υποστεί chirp

2.2. Ηλεκτρο-οπτικό φαινόμενο Kerr

Ο *John Kerr* το 1875 ανακάλυψε ότι ορισμένα υλικά γίνονται *διπλοθλαστικά*, δηλαδή εμφανίζουν δύο δείκτες διάθλασης, όταν τοποθετηθούν σε περιοχές με ισχυρά ηλεκτρικά πεδία. Αυτό το φαινόμενο ονομάστηκε *ηλεκτρο-οπτικό φαινόμενο Kerr*. Το γεγονός ότι το φαινόμενο περιοριζόταν σε περιοχές με πολύ ισχυρά ηλεκτρικά πεδία, ή μόνο για ορισμένα υλικά σε περιοχές με σχετικά μικρότερα ηλεκτρικά πεδία, υποδεικνύει ότι το φαινόμενο *Kerr* δεν είναι γραμμικό. Το φαινόμενο *Kerr* οφείλεται στην περιστροφή και στον αναπροσανατολισμό του πλέγματος του υλικού σε μοριακό επίπεδο και εμφανίζεται στις τρεις καταστάσεις της ύλης. Τα άτομα του υλικού λόγω της εφαρμογής του εξωτερικού ηλεκτρικού πεδίου εμφανίζουν μια μόνιμη διπολική ροπή. Η διπολική ροπή ανά μονάδα όγκου ονομάζεται *πόλωση* του υλικού P , και συνδέεται με το ηλεκτρικό πεδίο E σύμφωνα με την σχέση:

$$\vec{P} = \epsilon_0 \chi \vec{E}$$

όπου ϵ_0 είναι η διηλεκτρική σταθερά στο κενό και χ είναι η ηλεκτρική επιδεκτικότητα του υλικού. Η παραπάνω σχέση ισχύει στην περίπτωση των γραμμικών διηλεκτρικών ή όταν το εξωτερικό ηλεκτρικό πεδίο είναι μικρό σε σύγκριση με το ηλεκτρικό πεδίο του ατόμου. Όταν σε ένα υλικό εφαρμοστεί ένα πολύ υψηλό εξωτερικό ηλεκτρικό πεδίο σε σχέση με το ηλεκτρικό πεδίο των ατόμων του υλικού, τότε εμφανίζει μη γραμμική συμπεριφορά και η ηλεκτρική επιδεκτικότητα εξαρτάται από το εφαρμοζόμενο εξωτερικό ηλεκτρικό πεδίο και μεταβάλλεται χωρικά.

Στην περίπτωση αυτή, η πόλωση γίνεται *μη γραμμική* [19]:

$$\vec{P} = \epsilon_0 (\chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E}^2 + \chi^{(3)} \vec{E}^3 + \dots)$$

όπου $\chi^{(1)}$ είναι ο γραμμικός όρος πρώτης τάξης της ηλεκτρικής επιδεκτικότητας, και είναι ένας πίνακας 3X3 στοιχείων (και στις 3 διαστάσεις), ο όρος $\chi^{(2)}$ είναι ο δεύτερης τάξης όρος της ηλεκτρικής επιδεκτικότητας και είναι τανυστής διαστάσεων πίνακα 3X3X3 στοιχείων, ενώ ο όρος $\chi^{(3)}$ είναι ο τρίτης τάξης όρος της ηλεκτρικής επιδεκτικότητας και είναι τανυστής (τρισδιάστατος πίνακας του οποίου κάθε στοιχείο αντιστοιχεί σε ένα 3X3 πίνακα για κάθε σημείο του πλέγματος του υλικού). Στην περίπτωση των ισοτροπικών υλικών όπως είναι τα αέρια, οι όροι ζυγής τάξης εξαλείφονται λόγω συμμετρίας:

$$\vec{P} = \varepsilon_o (\chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E}^3 + \dots)$$

Το φαινόμενο *Kerr* είναι φαινόμενο τρίτης τάξης δηλαδή εξαρτάται από το $\chi^{(3)}$. Έτσι, γνωρίζοντας ότι: $\chi^{(1)} = \eta^2 - 1$ και κάνοντας σύγκριση με την παραπάνω σχέση ισχύει ότι: $[\chi^{(1)} + \chi^{(3)} (E_o)^2] = \eta'^2 - 1$ όπου η' είναι ο τροποποιημένος δείκτης διάθλασης υπό την παρουσία του ηλεκτρικού πεδίου του λέιζερ. Μπορεί να αποδειχθεί ότι $\eta' = \eta + \eta_2 I(r, t)$ όπου η_2 είναι η μη γραμμική σταθερά (μονάδες m^2/W) και I είναι η ένταση του λέιζερ όπου $I = \frac{\eta c \varepsilon_o}{2} |E|^2$ (μονάδες W/m^2). Τα φαινόμενα που είναι υπεύθυνα για την διάδοση βραχύχρονων παλμών είναι κυρίως η αλλαγή του δείκτη διάθλασης που προκαλεί την μη γραμμική αυτο-εστίαση (*self-focusing*), την αυτο-διαμόρφωση φάσης (*Self-Phase Modulation, SPM*) και την φασματική διαπλάτυνση του παλμού (*spectral broadening*) λόγω του φαινομένου *Kerr*, και ο πολυφωτονικός ιονισμός (*Multi Photon Ionization, MPI*) που προκαλεί την αποεστίαση λόγω του δημιουργούμενου πλάσματος (*plasma defocusing*) [52-59]

2.3. Βασική θεωρία: Εξισώσεις του Maxwell και κυματική εξίσωση διάδοσης

Σύμφωνα με τις θεμελιώδεις αρχές της Φυσικής όλα τα φαινόμενα που σχετίζονται με την εμφάνιση ηλεκτρομαγνητικών πεδίων μπορούν εκφραστούν μέσα από τις εξισώσεις του Maxwell, οι οποίες για διάδοση μέσα σε ένα υλικό έχουν την μορφή:

$$\begin{aligned} \vec{\nabla} \cdot \vec{D} &= 4\pi\rho \\ \vec{\nabla} \times \vec{H} &= \frac{4\pi}{c} \vec{J} + \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \\ \vec{\nabla} \times \vec{E} + \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} &= 0 \\ \vec{\nabla} \cdot \vec{B} &= 0 \end{aligned}$$

όπου:

$$\begin{aligned} \vec{D} &= \varepsilon_o \vec{E} + \vec{P} \\ \vec{P} &= \vec{P}_L + \vec{P}_{NL} \\ \vec{P}_L &= \varepsilon_o \chi^{(1)} \vec{E} \\ \vec{P}_{NL} &= \varepsilon_o \left(\chi^{(3)} |\vec{E}|^2 \right) \vec{E} \\ \vec{H} &= \vec{B} - 4\pi \vec{M} \end{aligned}$$

D , είναι η ηλεκτρική μετατόπιση που εξαρτάται από το ηλεκτρικό πεδίο E και την πόλωση P (P_L : γραμμικός όρος, P_{NL} : μη γραμμικός όρος), ρ είναι η πυκνότητα διαχωρισμού φορτίων, H είναι το μαγνητικό πεδίο, J είναι η πυκνότητα ρεύματος, B είναι η μαγνητική επαγωγή, c είναι η ταχύτητα του φωτός και M είναι η μαγνήτιση του υλικού. Για να εξαχθεί η κυματική εξίσωση πρέπει να γίνουν ορισμένες παραδοχές, όπως: το υλικό δεν είναι μαγνητισμένο ($M=0$), άρα $H=B$, δεν υπάρχει διαχωρισμός ελεύθερων φορτίων, άρα $\rho=0$, η διάδοση γίνεται σε ισοτροπικό μέσο (αέριο) άρα δεν υπάρχουν ζυγής τάξης όροι στην πόλωση. Με βάση τις παραπάνω παραδοχές αν γίνει η παραγωγή ως προς χρόνο της δεύτερης εξίσωσης του Maxwell θα προκύψει ότι:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\vec{\nabla} \times \vec{B}) = \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{4\pi}{c} \vec{J} + \frac{1}{c} \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} \right) \Rightarrow \vec{\nabla} \times \left(\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \right) = \frac{4\pi}{c} \frac{\partial \vec{J}}{\partial t} + \frac{1}{c} \frac{\partial^2 \vec{D}}{\partial t^2} \Rightarrow$$

$$\vec{\nabla} \times [-c(\vec{\nabla} \times \vec{E})] = \frac{4\pi}{c} \frac{\partial \vec{J}}{\partial t} + \frac{1}{c} \left[\epsilon^{(1)} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2} \right] \Rightarrow -c[\vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \nabla^2 \vec{E}] = \frac{4\pi}{c} \frac{\partial \vec{J}}{\partial t} + \frac{1}{c} \left[\epsilon^{(1)} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2} \right]$$

Από ταυτότητα ισχύει ότι: $\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{E}) = \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{E}) - \nabla^2 \vec{E}$ και: $\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = \rho = 0$ και τελικά είναι:

$$\boxed{\nabla^2 \vec{E} - \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial \vec{J}}{\partial t} - \frac{\epsilon^{(1)}}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2} = 0}$$

Η παραπάνω εξίσωση ονομάζεται *μη γραμμική εξίσωση διάδοσης*. Η συγκεκριμένη εξίσωση επιδέχεται αναλυτικές λύσεις μόνο για ειδικές περιπτώσεις. Το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ μπορεί να εκφραστεί με την μορφή ενός επίπεδου κύματος της μορφής $\vec{E}(\vec{r}, t) = A(\vec{r})e^{i(k_o \vec{r} - \omega_o t)}$ όπου A είναι η μιγαδική περιβάλλουσα του πεδίου, k_o , ω_o είναι ο κυματάρθμος και η κεντρική συχνότητα του λέιζερ αντίστοιχα. Οι παραδοχές που πρέπει να ληφθούν υπόψιν για την εξαγωγή της εξίσωσης με αναλυτικές λύσεις είναι: δεν υπάρχει ιονισμός, δηλαδή $J=0$, η μη γραμμική πόλωση δεν έχει μεγάλη εξάρτηση από το χρόνο, ώστε:

$$\boxed{\frac{\partial^2 \vec{P}_{NL}}{\partial t^2} \approx \omega_o^2 \vec{P}_{NL} = \omega_o^2 \epsilon_o \chi^{(3)} |\vec{E}|^2 \vec{E}}$$

τα φαινόμενα περίθλασης είναι αμελητέα ώστε:

$$\boxed{\nabla^2 \vec{E} = \left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right) \vec{E} \approx \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial z^2}}$$

η διάδοση γίνεται σε ένα άξονα (π.χ. στον z) και χωρίς μεγάλη μεταβολή στην μορφή του ηλεκτρικού πεδίου κατά μήκος του άξονα διάδοσης (*Slowly Varying Envelope approximation*), ώστε:

$$\left| \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial z^2} \right| \ll k_o \left| \frac{\partial \vec{E}}{\partial z} \right|$$

Μετά από αυτές τις παραδοχές, η εξίσωση διάδοσης έχει την μορφή:

$$k_o \frac{\partial \vec{A}}{\partial z} + ia \frac{\partial^2 \vec{A}}{\partial t^2} + ib |A|^2 \vec{A} = 0$$

όπου το E έχει αντικατασταθεί με μια τυχαία συνάρτηση A και a, b , σταθερές.

Η παραπάνω εξίσωση, έχει την μορφή της χρονοεξαρτώμενης εξίσωσης του *Schrodinger* όπου ο μη γραμμικός όρος $|A|^2$ παίζει το ρόλο ενός «κβαντομηχανικού δυναμικού». Αυτή η εξίσωση, ονομάζεται μη γραμμική εξίσωση του *Schrodinger Nonlinear Schrodinger Equation* (NLSE) και επιδέχεται αναλυτικές λύσεις οι οποίες είναι γραμμικός συνδυασμός σολιτονιακών κυμάτων [148-151]. Όμως η μη γραμμική εξίσωση του *Schrodinger* στην απλή της μορφή δεν περιγράφει την διάδοση μέσα σε ένα υλικό [33-38] στο οποίο εμφανίζονται φαινόμενα ιονισμού (άρα $J \neq 0$), υπάρχουν απώλειες από το πλάσμα λόγω πολυφωτονικού ιονισμού, ενώ σε πρώτη προσέγγιση τα φαινόμενα διασποράς μπορούν να θεωρηθούν αμελητέα στην περίπτωση των αερίων. Η κυματική εξίσωση που περιγράφει ικανοποιητικά την διάδοση βραχύχρονων παλμών σε αέρια μέσα είναι:

$$\left(\nabla_{\perp}^2 + 2ik_o \frac{\partial}{\partial z} + \gamma |\vec{E}|^2 - \frac{\omega_p^2}{c^2} + \frac{8\pi k_o}{c} \frac{U_{ion}}{|\vec{E}|^2} \frac{\partial n_e}{\partial \tau} \right) \vec{E} = 0$$

όπου $\gamma = \frac{\omega_o^2 n_o^2 n_2}{4\pi c}$, ο πρώτος όρος περιγράφει την περίθλαση δηλαδή την διάδοση στο εγκάρσιο επίπεδο σε σχέση με τον άξονα διάδοσης, ο δεύτερος όρος περιγράφει την διάδοση στον άξονα z , ο τρίτος όρος περιγράφει την αυτό-εστίαση λόγω του φαινομένου *Kerr*, ο τέταρτος όρος την αποεστίαση λόγω του δημιουργούμενου πλάσματος (ω_p η συχνότητα πλάσματος) ενώ ο τελευταίος όρος περιγράφει τις απώλειες λόγω ιονισμού και σχετίζεται με την χρονική εξέλιξη της πυκνότητας των ηλεκτρονίων n_e , ενώ U_{ion} είναι η ενέργεια ιονισμού του ατόμου.

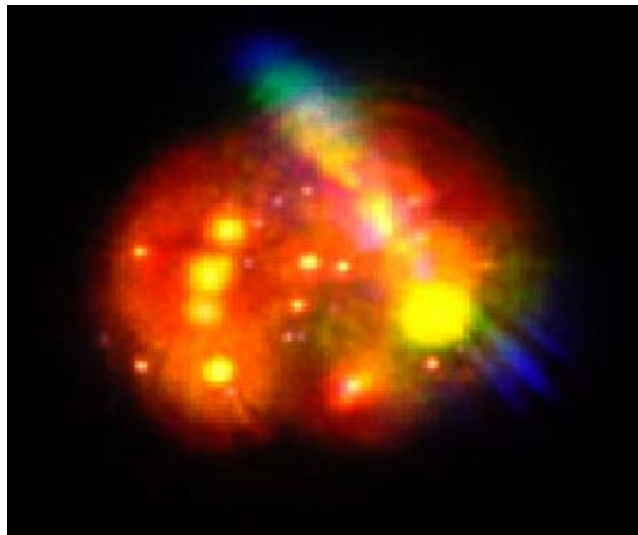
Η παραπάνω μη γραμμική εξίσωση διάδοσης δεν επιδέχεται αναλυτικές λύσεις. Για τον λόγο αυτό είναι απαραίτητο να γίνει αριθμητική επίλυση κάνοντας χρήση μαθηματικού μοντέλου επίλυσης [63-65].

Αρα, η διάδοση αυτο-οδηγούμενων στενών παλμών λέιζερ υψηλής έντασης μέσα σε ένα αέριο προκύπτει ως αποτέλεσμα της δυναμικής ισορροπίας ανάμεσα στην αυτοεστίαση, λόγω του φαινομένου Kerr και την αποεστίαση του πλάσματος, λόγω του πολυφωτονικού ιονισμού των ατόμων ή μορίων του αερίου.

Στην συνέχεια θα περιγραφούν τα διάφορα μη γραμμικά φαινόμενα που εμφανίζονται κατά την διάδοση βραχύχρονων παλμών λέιζερ υψηλής έντασης μέσα σε αέρια.

2.4. Δημιουργία νηματίων υψηλής έντασης (filaments) σε ουδέτερο αέριο

Ένα από το πιο εντυπωσιακά φαινόμενα που λαμβάνουν χώρα κατά την διάδοση βραχύχρονων παλμών λέιζερ υψηλής έντασης, είναι η διαταραχή της χωρικής κατανομής της έντασης της δέσμης του λέιζερ και η διάλυσή της στην εγκάρσια διάσταση (δηλαδή σε διευθύνσεις κάθετες από τον άξονα διάδοσης της) σε πολλά τμήματα. Μέσα στην χωρική κατανομή της έντασης εμφανίζονται περιοχές ως έντονες φωτεινές κηλίδες (*hot spots*) και οι οποίες έχουν πολύ υψηλότερη ένταση από το υπόλοιπο τμήμα της δέσμης (Εικ. 2-2). Αυτά τα κανάλια ή νημάτια (*filaments*) υψηλής έντασης δημιουργούνται μέσα στη δέσμη και ταξιδεύουν κατά μήκος του άξονα διάδοσης μέσα στον παλμό.



Εικ. 2-2: Σχηματισμός πολλαπλών νηματίων (filaments) για ισχύ παλμού πολύ μεγαλύτερη από την κρίσιμη ισχύ P_{cr} (J.Kasparian et.al. “Ultrashort laser applications in lidar and atmospheric sciences”, SPIE, Volume 5226, pp. 238-248 (2003))

Η δημιουργία των νηματίων (από εδώ και στο εξής filaments) είναι αποτέλεσμα δύο αντίθετων φυσικών διεργασιών: της μη γραμμικής αυτοεστίασης και της αποεστίασης λόγω επαγόμενου πλάσματος. Έστω μια δέσμη που διαδίδεται μέσα σε ένα ουδέτερο αέριο για το οποίο η κρίσιμη ισχύ είναι P_{cr} και η εγκάρσια κατανομή της έντασης του λέιζερ είναι ελαφρά διαταραγμένη από μια εντοπισμένη έντονη φωτεινή κηλίδα (filament). Ο ρυθμός της χωρικής αύξησης του filament εξαιτίας της αστάθειας νηματοποίησης (filamentation) δίνεται από τον τύπο [35-36,60]:

$$\Gamma = \frac{\lambda}{\pi x_{\perp}} \left(\frac{3\pi I}{P_{cr}} - \frac{1}{x_{\perp}^2} \right)^{1/2}$$

όπου I είναι η ένταση του λέιζερ και $x_{\perp}$ είναι η χαρακτηριστική εγκάρσια διάσταση του filament δηλαδή το μέγεθος της κηλίδας. Ο ρυθμός αύξησης είναι συνάρτηση της διάστασης του filament, και στην περίπτωση όπου: $x_{\perp} \leq x_{\min} \equiv \left[\frac{P_{cr}}{3\pi I} \right]^{1/2}$ ο ρυθμός μηδενίζεται δηλαδή το filament μένει σταθερό, ενώ στην περίπτωση όπου $x_{\perp} = \sqrt{2}x_{\min}$

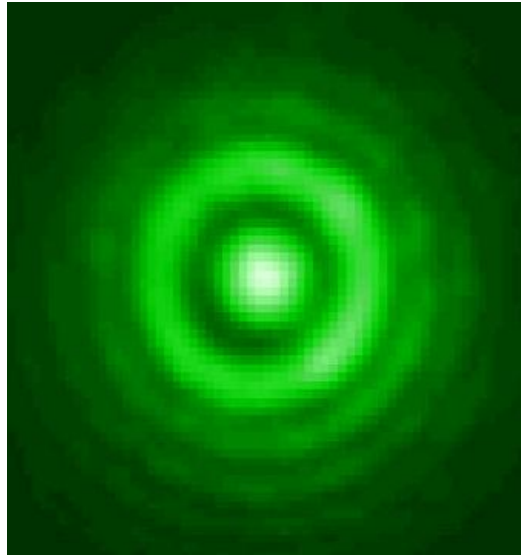
ο ρυθμός παίρνει την μέγιστη τιμή: $\Gamma_{\max} = \frac{3\lambda I}{2P_{cr}}$. Ο ρυθμός αύξησης Γ μειώνεται αντιστρόφως ανάλογα με το $x_{\perp}$ καθώς το $x_{\perp} \rightarrow \infty$. Στο σημείο μέγιστου ρυθμού αύξησης, η ισχύς μέσα στο filament είναι περίπου ίση με P_{cr} . Επομένως, όταν μια δέσμη έχει ισχύ $P > P_{cr}$ θα σπάσει σε πολλαπλά filaments (multi-filamentation) και ο αριθμός των filaments N θα είναι: $N \leq \frac{P}{P_{cr}}$ [154].

Π.χ. η κρίσιμη ισχύς P_{cr} στον ατμοσφαιρικό αέρα για μήκος κύματος λέιζερ $\lambda=1 \mu\text{m}$ και χρονική διάρκεια παλμού 1 ns είναι περίπου $P_{cr} \sim 3 \text{ GW}$ (με $n_2 \sim 5.6 \times 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$). Άρα ένας παλμός λέιζερ ισχύος $P=300 \text{ GW}$ μπορεί να «σπάσει» θεωρητικά σε 100 filaments!

2.5. Αυτοδιαμόρφωση φάσης (Self-phase modulation, SPM)

Είναι η αλλαγή της φάσης του ηλεκτρικού πεδίου του λέιζερ εξαιτίας της μεταβολής του δείκτη διάθλασης. Η σχέση της φάσης μέσα στο ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ αλλάζει από το μέσο μέσα στο οποίο διαδίδεται η δέσμη του λέιζερ. Αυτό γίνεται λόγω της μη-γραμμικής αλλαγής του δείκτη διάθλασης του υλικού μέσα στο οποίο γίνεται η

διάδοση. Αν I είναι η ένταση του λέιζερ τότε: $I = \frac{\eta c \epsilon_0}{2} |A|^2$ όπου $I = I(r, \tau)$, $I(r)$ είναι η χωρική συνιστώσα της έντασης και $I(\tau)$ είναι η χρονική συνιστώσα της έντασης που δίνει και την αυτοδιαμόρφωση φάσης. Η συχνότητα μεταβάλλεται από ω_0 σε $\omega(t) = \omega_0 + \delta\omega(t)$ όπου $\delta\omega(t) = \frac{d\phi_{nl}(t)}{dt}$, $\phi_{nl}(t) = -\frac{\delta_{nl}\omega_0}{c}$ και $\delta_{nl} = n_2 I^2(t)$. Η αυτοδιαμόρφωση φάσης είναι μη γραμμικό φαινόμενο, ενώ ο δείκτης διάθλασης δίνεται από τον τύπο: $n' = n + n_2 I(r, t)$, όπου n_2 είναι η μη γραμμική σταθερά του δείκτη διάθλασης (Εικ. 2-3).



Εικ. 2-3: Αυτό-διαμόρφωση φάσης: Self-phase modulation, SPM (www.inoa.it/~stefanob/cristalli.html)

2.6. Φασματική διαπλάτυνση (spectral broadening)

Η μη γραμμική αλληλεπίδραση ενός στενού χρονικά παλμού λέιζερ υψηλής έντασης με ένα αέριο μπορεί να οδηγήσει σε σημαντική φασματική διαπλάτυνση εξαιτίας του μη γραμμικού φαινομένου της αυτοδιαμόρφωσης φάσης (*self-phase modulation, SPM*). Η φάση του ηλεκτρικού πεδίου του λέιζερ αλλάζει όταν η δέσμη περάσει μέσα από ένα χρονικά εξαρτώμενο δείκτη διάθλασης. Έστω ότι το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ έχει την μορφή ενός επίπεδου κύματος: $E(\vec{r}, \tau) = A(\vec{r}, \tau) e^{i\theta(\vec{r}, \tau)}$, όπου A το πλάτος του και θ η φάση του, και γίνεται η παραδοχή ότι τόσο το πλάτος όσο και η φάση είναι πραγματικές συναρτήσεις των r, τ , τότε η συχνότητα του παλμού στον άξονα διάδοσης ορίζεται ως εξής:

$$\omega(z, \tau) = \omega_o - \frac{\partial \mathcal{G}(z, \tau)}{\partial \tau}$$

όπου ω_o είναι η συχνότητα του λέιζερ και $\frac{\partial \mathcal{G}(z, \tau)}{\partial \tau}$ είναι η χρονική μεταβολή της

φάσης. Ο όρος $\frac{\partial \mathcal{G}(z, \tau)}{\partial \tau}$ μπορεί να οριστεί αν η μη γραμμική εξίσωση διάδοσης γραφεί

στην απλοποιημένη μορφή: $2ik_o \frac{\partial A}{\partial z} = -[n^2(z, \tau) - n_o^2] \frac{\omega_o^2}{c^2} A$ όπου $n(z, \tau)$ είναι ο

χρονοεξαρτώμενος δείκτης διάθλασης και n_o είναι ο γραμμικός δείκτης διάθλασης. Ο

μη γραμμικός δείκτης διάθλασης προκύπτει από τον τύπο:

$\delta n = n(z, \tau) - n_o = \delta n_{Kerr} + \delta n_{Raman} + \delta n_{plasma}$, όπου εμφανίζεται η συνεισφορά από τα μη

γραμμικά φαινόμενα που μεταβάλλουν τον δείκτη διάθλασης. Αναλύοντας τον παραπάνω τύπο προκύπτει ότι:

$$\delta n(\vec{r}, \tau) = n_2 I(\vec{r}, \tau) - n_R \int_{-\infty}^{\tau} d\tau' W(\tau') R(\tau - \tau') I(\vec{r}, \tau') - \frac{\omega_p^2(z, \tau)}{2n_o \omega_o^2}$$

όπου ο πρώτος όρος δίνει την συνεισφορά στην αλλαγή του δείκτη διάθλασης από το φαινόμενο *Kerr*, ο δεύτερος όρος δίνει την συνεισφορά από την σκέδαση *Raman*, ενώ ο τρίτος όρος δίνει την συνεισφορά από το δημιουργούμενο πλάσμα. Στην περίπτωση της σκέδασης *Raman*, η ποσότητα $W(\tau')$ είναι η μεταβλητή του ανάστροφου πληθυσμού

ενώ $R(\tau) = \left(\frac{\omega_R^2 + \Gamma_2^2}{\omega_R} \right) e^{-\Gamma_2 \tau} \sin(\omega_R \tau)$ είναι η κανονικοποιημένη συνάρτηση *Green*

(συνθήκη κανονικοποίησης: $\int_0^{\infty} d\tau R(\tau) = 1$), ω_R είναι η χαρακτηριστική συχνότητα

Raman, ενώ Γ_2 είναι ο ρυθμός απόσβεσης. Εδώ θεωρείται ότι $W(\tau') \approx -I$. Για να εξαχθεί η συχνότητα κατά μήκος του παλμού, αντικαθίσταται η έκφραση του πλάτους A στην απλοποιημένη εξίσωση διάδοσης και το αποτέλεσμα που προκύπτει είναι:

$\frac{\partial \mathcal{G}}{\partial z} \approx \frac{\omega_o}{c} \delta n_r(z, \tau)$ και $\frac{\partial \ln(A)}{\partial z} \approx -\frac{\omega_o}{c} \delta n_i(z, \tau)$, όπου δn_r και δn_i είναι το πραγματικό

και το φανταστικό μέρος του μη γραμμικού δείκτη διάθλασης αντίστοιχα, ο οποίος θεωρείται ότι είναι πολύ μικρότερος από την μονάδα. Επομένως η διασπορά της συχνότητας κατά μήκος του παλμού δίνεται από τον τύπο:

$$\delta \omega(z, \tau) = \omega(z, \tau) - \omega_o = -\frac{\omega_o}{c} \int_0^z \frac{\partial \delta n_r(z', \tau)}{\partial \tau} dz'$$

Εδώ πρέπει να σημειωθεί ότι μόνο οι μη γραμμικοί όροι στο δείκτη διάθλασης θα δημιουργήσουν νέες συχνότητες, ενώ ο γραμμικός όρος του δείκτη διάθλασης θα ανακατανείμει απλά τις συχνότητες αυτές μέσα στον παλμό. Η διασπορά λοιπόν της συχνότητας θα είναι:

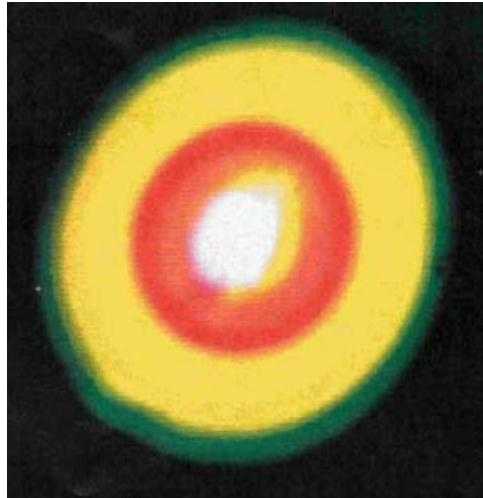
$$\delta\omega = \delta\omega_{Kerr} + \delta\omega_{Raman} + \delta\omega_{plasma}$$

$$\text{ή } \delta\omega(z, \tau) = \left(-n_2 \frac{\partial I}{\partial \tau} + n_R \int_0^\tau d\tau' W(\tau') \frac{\partial R(\tau - \tau')}{\partial \tau} I(\vec{r}, \tau') + \frac{1}{2n_o \omega_o^2} \frac{\partial \omega_p^2}{\partial \tau} \right) \frac{\omega_o z}{c}$$

όπου I είναι η ένταση της δέσμης του λέιζερ. Αποτέλεσμα της αλληλεπίδρασης των μη γραμμικών φαινομένων με την δέσμη του λέιζερ είναι τελικά η φασματική διαπλάτυνση του παλμού. Αυτό εξηγείται ως εξής: Η επίδραση στον παλμό από το φαινόμενο *Kerr*, έχει ως αποτέλεσμα την μείωση του δείκτη διάθλασης και επομένως δημιουργεί μια μετατόπιση προς το ερυθρό στο εμπρός τμήμα του παλμού και μια μετατόπιση προς το ιώδες στο πίσω μέρος του παλμού. Η επίδραση από την σκέδαση *Raman* προκαλεί μια αύξηση του δείκτη διάθλασης στο εμπρός μέρος και στο κέντρο (μέγιστο) του παλμού, ενώ προκαλεί μια μείωση του δείκτη διάθλασης στο πίσω μέρος του παλμού, έχοντας ως αποτέλεσμα να δημιουργείται μια μετατόπιση προς το ερυθρό κοντά στο μέτωπο του παλμού και μια μετατόπιση προς το ιώδες στο πίσω μέρος του παλμού. Τέλος, η επίδραση από το επαγόμενο πλάσμα, προκαλεί μια μείωση του δείκτη διάθλασης σε όλο το μήκος του παλμού, έχοντας ως αποτέλεσμα μια μετατόπιση προς το ιώδες κατά μήκος όλου του παλμού. Ανάλογα τώρα με το μέγεθος της επίδρασης του κάθε φαινομένου θα υπάρχει και η αντίστοιχη συμπεριφορά φασματικής διαπλάτυνσης.

Το τελικό αποτέλεσμα είναι ότι, το εμπρόσθιο τμήμα υπόκειται σε μια μετατόπιση προς το ερυθρό (*red-shift*) δηλαδή προς μεγαλύτερα μήκη κύματος, ενώ το πίσω μέρος του παλμού υπόκειται σε μια μετατόπιση προς το ιώδες (*blue-shift*) δηλαδή προς μικρότερα μήκη κύματος. Το φαινόμενο αυτό δίνει την αίσθηση της δημιουργίας φάσματος υπερ-συνεχούς (*Super-Continuum Generation, SCG*) δηλαδή την δημιουργία λευκού φωτός και είναι χαρακτηριστικό των βραχύχρονων παλμών εξαιτίας της μεγάλης διασποράς που εμφανίζουν, το οποίο είναι εντονότερο για μήκη κύματος λέιζερ στο υπέρυθρο ($\lambda > 800 \text{ nm}$), ενώ για μήκη κύματος λέιζερ στο υπεριώδες ($\lambda < 300 \text{ nm}$) το φαινόμενο είναι μικρότερης ισχύος ενώ όπως έχει δειχθεί και από τις πειραματικές μετρήσεις κυριαρχεί η μετατόπιση προς το ιώδες (*blue-shift*). Στο σημείο αυτό πρέπει να

σημειωθεί ότι η δημιουργία λευκού φωτός λαμβάνει χώρα μόνο όταν η ισχύς του παλμού της δέσμης του λέιζερ υπερβαίνει την κρίσιμη ισχύ (Εικ. 2-4).



Εικ. 2-4: Κωνική εκπομπή από ένα μόνο νημάτιο (filament), λόγω του φαινομένου της αυτοδιαμόρφωσης φάσης (SPM). Παρατηρείται η εκπομπή λευκού φωτός από το νημάτιο στο κέντρο της δέσμης. Η ισχύς του παλμού εδώ είναι λίγο μεγαλύτερη από την κρίσιμη ισχύ P_{cr} . (J.Kasparian et.al. “*Ultrashort laser applications in lidar and atmospheric sciences*”, SPIE, Volume 5226, pp. 238-248 (2003))

2.7. Διάδοση αυτο-οδηγούμενων παλμών λέιζερ σε κατάσταση ιονισμού

Η απόσταση διάδοσης του παλμού του λέιζερ περιορίζεται από έναν αριθμό από φυσικές διεργασίες. Οι δύο βασικοί μηχανισμοί που είναι θεμελιώδεις για την διάδοση παλμών σε μεγάλες αποστάσεις είναι: i) ο μηχανισμός της «κινούμενης» εστίας (*moving focus*) και ii) ο μηχανισμός της αυτοεστίασης (*self-focusing*). Στην περίπτωση του μηχανισμού της «κινούμενης» εστίας το μήκος εστίασης εξαρτάται από την ισχύ του λέιζερ διαμέσου του φαινομένου Kerr, έχοντας ως αποτέλεσμα διαφορετικά χρονικά τμήματα του παλμού να εστιάζουν σε διαφορετικές αποστάσεις [61-62]. Αυτό δίνει μια ψευδαίσθηση ότι ο παλμός διαδίδεται σε μεγάλες αποστάσεις. Στην περίπτωση του μηχανισμού της αυτοεστίασης, επιτυγχάνεται η διάδοση σε μεγάλες αποστάσεις λόγω της δυναμικής ισορροπίας δύο φαινομένων: α) της μη γραμμικής εστίασης λόγω του φαινομένου Kerr και β) της αποεστίασης λόγω δημιουργίας πλάσματος το οποίο αποεστιάζει την δέσμη. Στην αυτοεστίαση, οι ενεργειακές απώλειες προέρχονται κυρίως από ιονισμό και περιορίζουν σημαντικά την απόσταση διάδοσης.

Η βασική διαφορά των δύο μηχανισμών διάδοσης αυτο-οδηγούμενων παλμών μέσα σε αέριο για μεγάλες αποστάσεις έχει να κάνει με το πόσο μεγάλη είναι η απόσταση αυτή συγκρινόμενη με το μήκος *Rayleigh* z_R που είναι και η μέγιστη απόσταση (απουσία μη γραμμικών φαινομένων) που μπορεί να διαδοθεί η δέσμη πριν αποεστιαστεί. Έτσι στην περίπτωση της «κινούμενης» εστίας, η απόσταση διάδοσης περιορίζεται μέσα στο μήκος *Rayleigh* δηλαδή ισχύει: $z_{mf} \leq z_R$, ενώ στην περίπτωση της αυτοεστίασης, η απόσταση διάδοσης είναι πολύ μεγαλύτερη από το μήκος *Rayleigh*, δηλαδή ισχύει ότι: $z_{sf} \gg z_R$. Αυτό είναι και το βασικό κριτήριο για τον σχηματισμό filament. Το μήκος *Rayleigh* ορίζεται ως εξής:

$$z_R = \frac{\pi w_o^2 n}{\lambda}$$

όπου w_o είναι η διάμετρος στο $1/e^2$ της κατανομής της έντασης της δέσμης, n είναι ο δείκτης διάθλασης, λ το μήκος κύματος και ορίζεται για μια δέσμη που έχει κατανομή έντασης τύπου *Gauss*:

$$I(r) = I_o e^{-r^2/w_o^2}$$

2.8. Υπολογισμός του ρυθμού μεταβολής της ενέργειας του παλμού

Ο ρυθμός μεταβολής της ενέργειας του παλμού δίνεται από την σχέση:

$$\frac{\partial E_{pulse}}{\partial z} = -\frac{\pi}{2} \frac{U_{ion}}{\ell} \int_0^{\tau_L} d\tau R^2 \frac{\partial n_{e^0}}{\partial \tau}$$

όπου $E_{pulse}(z) = \int_0^{\tau_L} d\tau P(z, \tau)$ είναι η ενέργεια του παλμού και τ_L είναι η χρονική του

διάρκεια. Η παραπάνω εξίσωση μπορεί να λυθεί, λαμβάνοντας υπόψη ότι, το μέγεθος της δέσμης είναι σχεδόν σταθερό δηλαδή ανεξάρτητο από το τ , και τότε θα είναι:

$$\frac{\partial E_{pulse}}{\partial z} \approx -\frac{U_{ion}}{4r_e} \frac{(\ell+1)^2}{\ell^2} \left(\frac{P(\tau_L)}{P_{cr}} - 1 \right)$$

Ο ρυθμός απωλειών της ενέργειας είναι ανεξάρτητος από τον αριθμό φωτονίων που απαιτούνται να ιονιστούν τα μόρια ενός αερίου όταν το ℓ είναι μεγάλο.

2.9. Μέγιστη απόσταση διάδοσης

Η μέγιστη θεωρητική απόσταση L_{max} που μπορεί να διαδοθεί ένας αυτο-οδηγούμενος παλμός λέιζερ μπορεί να υπολογιστεί υποθέτοντας ότι όλη η ενέργεια του παλμού πάει στο να ιονιστεί το αέριο:

$$L_{max} \sim \frac{4r_e}{U_{ion}} \frac{\ell^2}{(\ell+1)^2} \frac{E_{pulse}(0)}{(P/P_{cr}-1)}$$

όπου $E_{pulse}(0)$ είναι η αρχική ενέργεια του παλμού, $r_e = q^2/mc^2 = 2.8 \times 10^{-13}$ cm είναι η ακτίνα του ηλεκτρονίου. Θεωρητικά, η διάδοση αυτο-οδηγούμενων παλμών είναι δυνατή μόνον όταν η ισχύς του παλμού του λέιζερ είναι περίπου ίση αλλά ελαφρώς μεγαλύτερη από την κρίσιμη ισχύ, δηλαδή μόνο όταν $P \geq P_{cr}$. Η τιμή του P_{cr} στον αέρα έχει τιμή περίπου $P_{cr} \sim 3$ GW για μήκη κύματος στο υπέρυθρο, ενώ στο υπεριώδες $P_{cr} \sim 0.1$ GW.

Κεφάλαιο 3: Περιγραφή συστήματος λέιζερ που χρησιμοποιήθηκε στην παρούσα διατριβή

3.1. Εισαγωγή

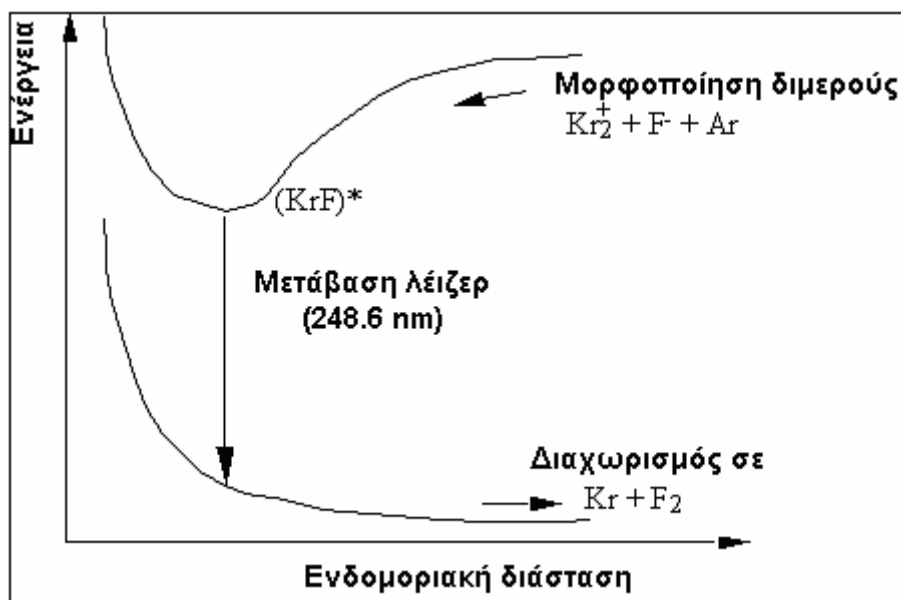
Όλα τα πειράματα της παρούσας διατριβής πραγματοποιήθηκαν στις εγκαταστάσεις Υπεριωδών Λέιζερ του Ιδρύματος Τεχνολογίας και Έρευνας (ΙΤΕ) στο Ηράκλειο Κρήτης. Το Ίδρυμα Τεχνολογίας και Έρευνας είναι το μεγαλύτερο ερευνητικό κέντρο στην Ελλάδα και οι συγκεκριμένες εγκαταστάσεις υπεριωδών λέιζερ είναι οι μοναδικές εγκαταστάσεις ευρωπαϊκών προδιαγραφών στην Ελλάδα καθώς ανήκουν στο ευρωπαϊκό δίκτυο εγκαταστάσεων LASERLAB-EUROPE το οποίο αποτελείται από 17 εργαστήρια λέιζερ από 9 χώρες της Ευρωπαϊκής Ένωσης. Το δίκτυο αυτό προσφέρει πρόσβαση στις εγκαταστάσεις των συγκεκριμένων εργαστηρίων σε ερευνητικές ομάδες από όλη την Ευρώπη. Η πρόσβαση γίνεται μόνο κατόπιν υποβολής συγκεκριμένης πρότασης που εγκρίνεται από την Ευρωπαϊκή Επιτροπή Ερευνών.

Τα πειράματα της παρούσας διατριβής έγιναν σε συνεργασία του Εργαστηρίου Δομής της Ύλης και Φυσικής Λέιζερ του Πολυτεχνείου Κρήτης με το Εργαστήριο Οπτικών Εφαρμογών (*Laboratoire Optique Appliqué, LOA*) της Γαλλίας κατόπιν έγκρισης πρότασης πρόσβασης στην εγκατάσταση ULF-FORTH, με τίτλο: “*Improving Human Potential –Access to Research Infrastructures*” (contract no: HPRI-CT 1999-00074). Στα πειράματα συμμετείχαν ερευνητές και των δύο εργαστηρίων, καθώς και ερευνητικό και τεχνικό προσωπικό της εγκατάστασης. Το σύστημα λέιζερ με το οποίο πραγματοποιήθηκαν τα πειράματα, αποτελείται από ένα υβριδικό σύστημα αέριας (excimer)/ υγρής (Dye) κατάστασης (Εικ. 3-1). Η λέξη *excimer* είναι ακρωνύμιο των λέξεων excited dimer (διεγερμένο διμερές) και χαρακτηρίζει μια ολόκληρη σειρά από μόρια που εκπληρώνουν τις κατάλληλες συνθήκες για την δημιουργία αντιστροφής πληθυσμών και επομένως την δημιουργία λέιζερ. Στην περίπτωση των *excimers* υπάρχει μία θεμελιώδη κατάσταση που είναι θερμικά ασταθής (με ενέργεια δυναμικού της τάξης του $k_B T$, όπου k_B σταθερά Boltzmann και T η θερμοκρασία σε Kelvin) και διεγερμένες στάθμες με μικρό χρόνο αποδιέγερσης (Εικ. 3-2).



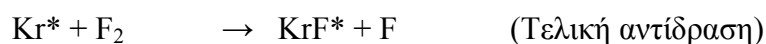
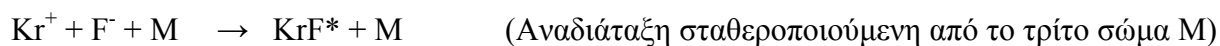
Εικ. 3-1: Υβριδικό σύστημα λέιζερ τύπου KrF/Dye (Ίδρυμα Τεχνολογίας και Έρευνας, ΙΤΕ)

Ο όρος *excimer* ουσιαστικά αντιστοιχεί μόνο σε διμερή ίδιων μορίων (δηλαδή άτομα με ίδια διάσταση πυρήνα). Ο σωστός όρος για διμερή διαφορετικών μορίων είναι *exciplex* (*excited molecular complex*), αν και σήμερα, ο όρος *excimer* έχει επικρατήσει για όλα τα λέιζερ διεγερμένων διμερών.

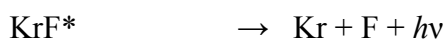


Εικ. 3-2: Ενεργειακό διάγραμμα λέιζερ excimer τύπου KrF

Μία μετάβαση από την πάνω ενεργειακή στάθμη στη θεμελιώδη κατάσταση έχει ως αποτέλεσμα τον ταχύ διαχωρισμό (10^{-13} δευτερόλεπτα) αυτών των μορίων στα άτομα από όπου αποτελούνται. Για τον λόγο αυτό, η θεμελιώδη κατάσταση παραμένει πάντα ακατοίκητη και κάθε πληθυσμός διεγερμένης κατάστασης θα αποτελεί με την θεμελιώδη τις δύο βασικές στάθμες για να συμβεί αντιστροφή πληθυσμών και επομένως λέιζερ. Το μήκος κύματος του λέιζερ καθορίζεται από ενεργειακή διαφορά των καταστάσεων. Οι χημικές αντιδράσεις που δημιουργούν το *lasing* σε ένα excimer τύπου KrF δίνονται από τις παρακάτω εξισώσεις, όπου το * δηλώνει ότι το μόριο (ή άτομο) βρίσκεται σε διεγερμένη κατάσταση και το M είναι ο καταλύτης (δεν αλληλεπιδράει με τα αντιδρώντα μέρη, απλώς επιταχύνει ή βοηθάει την αντίδραση). Σε αντιδράσεις με αέρια όπως στα excimer το M ονομάζεται συνήθως ουδέτερο αέριο ή *buffer gas*.



Μετά από το *lasing*, τα προϊόντα της αντίδρασης επαναδιατάσσονται στα αρχικά αντιδρώντα μέσω των παρακάτω αντιδράσεων:

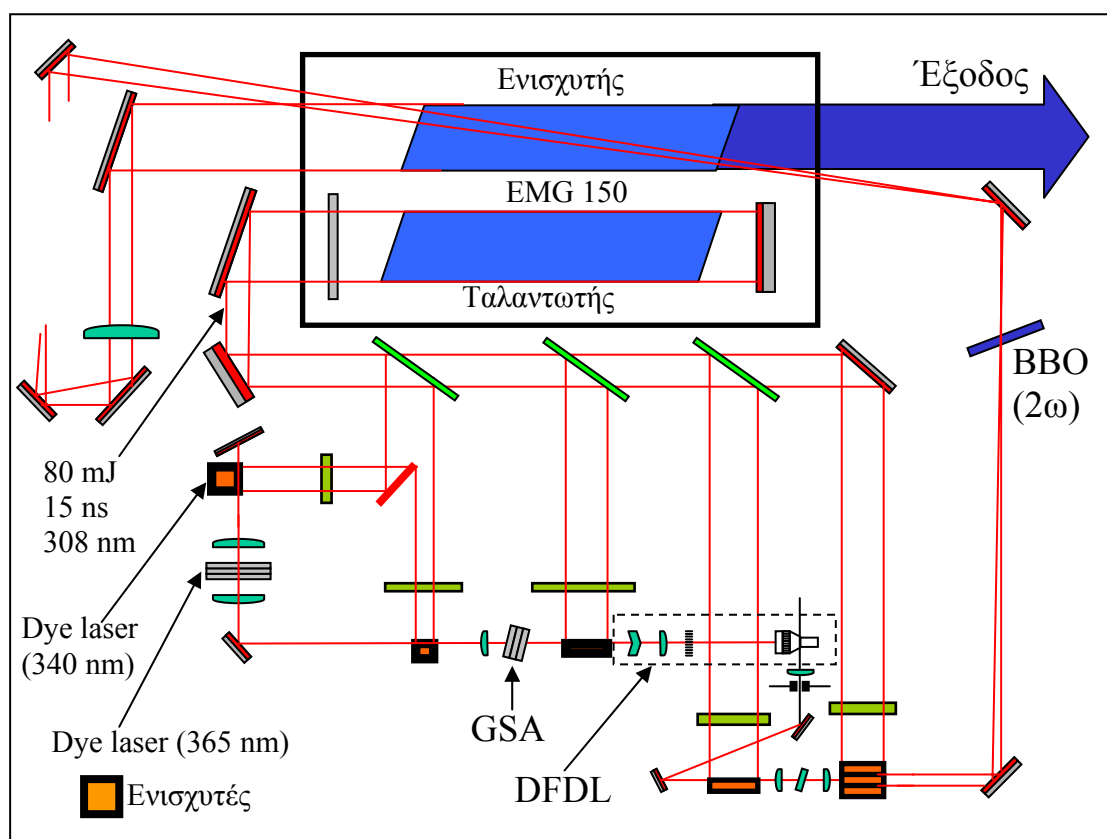


Θεωρητικά αυτή η ανασύσταση των μορίων προϋποθέτει ότι το αέριο μίγμα του λέιζερ διαρκεί για πάντα, αλλά στην πράξη φυσικά αυτό είναι αδύνατον και το λέιζερ πρέπει να επανατροφοδοτείται σε τακτά χρονικά διαστήματα διότι το φθόριο είναι εξαιρετικά δραστικό ως αέριο και η δραστικότητά του μειώνεται κάθε φορά που συμβαίνει η αντίδραση σχηματισμού του διμερούς μέσα στην κοιλότητα καθώς και λόγω διαρροών μέσα στην κοιλότητα.

Το λέιζερ λειτουργεί σε σχετικά υψηλές πιέσεις (περίπου 3 Atm) και το αέριο μίγμα αποτελείται από 0.16% F_2 , και 6.3% Kr σε ισορροπία με το σώμα M που εδώ είναι το Νέον (Ne). Η διάρκεια των παλμών των excimer λέιζερ εξαρτάται από τον μηχανισμό άντλησης. Η συνήθης άντληση σε αυτού του είδους τα λέιζερ είναι με ηλεκτρική εκκένωση και η χρονική διάρκεια των παλμών είναι της τάξεως των μερικών δεκάδων nanosecond. Μικρότερης διάρκειας παλμοί (60 fs – 5 ps) απαιτούν άντληση από ένα ενισχυτή excimer σε συνδυασμό με λέιζερ χρωστικών βραχύχρονων παλμών.

3.2. Υβριδικό σύστημα λέιζερ KrF/Dye

Η πειραματική διάταξη αυτού του συστήματος περιγράφεται λεπτομερώς στην βιβλιογραφία [21,72-75] και το σχηματικό της διάγραμμα φαίνεται παρακάτω (Εικ. 3-3).

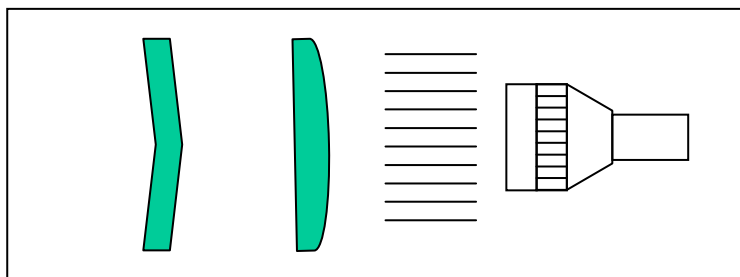


Εικ. 3-3: Σχηματικό διάγραμμα του υβριδικού συστήματος KrF/Dye λέιζερ

Η διάταξη αυτή συμπεριλαμβάνει ένα σύστημα ενός ενισχυτή excimer οπτικής άντλησης συνδυασμένο με ένα σύστημα λέιζερ χρωστικών. Για τον λόγο αυτό χρησιμοποιείται ένα εμπορικό σύστημα excimer τύπου XeCl της εταιρίας *Lambda Physik* (Model EMG 150) το οποίο έχει διπλή χρήση: α) ως λέιζερ άντλησης (στα 308

nm) για να αντλήσει μία ειδική διάταξη ενισχυτή που αποτελείται από ένα σύστημα λέιζερ χρωστικών (dye) και β) ως ενισχυτής (στα 248 nm) για το σύστημα dye που προκύπτει από λέιζερ διπλασιασμένης συχνότητας. Η κοιλότητα του ταλαντωτή (oscillator) του λέιζερ EMG 150 περιέχει αέριο μίγμα που αποτελείται από 4.5 mbar υδροχλωρικού οξέως (HCl), 70 mbar Ξένον (Xe) με αδρανές αέριο (buffer gas) Ήλιο (He) με όλο το σύστημα να φτάνει σε τελική πίεση 2.5 bar. Το σύστημα αυτό δίνει παλμούς λέιζερ, ενέργειας 80 mJ, χρονικής διάρκειας 15 ns στα 308 nm. Η ενέργεια άντλησης κατανέμεται μεταξύ των διαφόρων θαλάμων χρωστικών όπως φαίνεται και στο σχήμα (Εικ. 3-3).

Η δέσμη άντλησης σε συνδυασμό με τα δύο πρώτα πλακίδια quartz χρησιμοποιείται για να αντλήσει των σύστημα των λέιζερ χρωστικών, το οποίο αποτελείται από δύο λέιζερ χρωστικών διατεταγμένων σε σειρά, ενισχυτές δύο επιπέδων ενίσχυσης και ένα ολοκληρωμένο απορροφητή κορεσμού (*Gated Saturable Absorber, GSA*) ο οποίος είναι τοποθετημένος ανάμεσα στους ενισχυτές. Ο σκοπός των λέιζερ χρωστικών είναι να «στενέσουν» χρονικά το αρχικό τμήμα του παλμού ενώ ο απορροφητής κορεσμού GSA αποκόβει το πίσω τμήμα του παλμού. Το πρώτο από τα δύο λέιζερ χρωστικών (με κοιλότητα μήκους 5 mm) έχει ως ενεργό μέσο διάλυμα p-Terphenyl (LC 3400) με διαλύτη κυκλοεξάνιο (cyclohexane) και δίνει παλμούς στα 340 nm με χρονική διάρκεια ~100 ps. Ο τελικός καθρέπτης στο πρώτο λέιζερ χρωστικών δεν έχει καμία επίδραση στην τελική χρονική διάρκεια του παλμού αλλά κόβει τις ανεπιθύμητες μεγάλες χρονικές συνιστώσες (στην περιοχή των ns) που έχει στο πίσω μέρος του παλμού από το πρώτο κιόλας στάδιο και με αυτόν τον τρόπο αποφεύγεται η ενδεχόμενη καταστροφή των οπτικών στα επόμενα στάδια ενίσχυσης. Το δεύτερο λέιζερ χρωστικών το οποίο έχει πολύ μικρή κοιλότητα (μήκους 0.5 mm) έχει ως ενεργό μέσο διάλυμα butyl-PBD (LC 3640) με διαλύτη μεθανόλη. Βγάζει στην έξοδό του παλμούς στα 365 nm χρονικής διάρκειας ~10 ps.



Εικ. 3-4: Περιγραφή συστήματος DFDL (Distributed Feedback Dye Laser)

Οι ενισχυτές που ακολουθούν έχουν ενεργό μέσο διάλυμα butyl-PBD (LC 3640) με διαλύτη αιθανόλη. Ο ολοκληρωμένος απορροφητής κορεσμού (GSA) αποτελείται από ένα διάλυμα BBOT σε μία κεκλιμένη κοιλότητα που έχει δημιουργηθεί από δύο όμοιους διχροϊκούς καθρέπτες οι οποίοι έχουν 10% περίπου ανακλαστικότητα στα 365 nm και 100% ανακλαστικότητα στα 430 nm δρώντας ταυτόχρονα και ως παράθυρα των θαλάμων των χρωστικών. Ο συνδυασμός των δύο λέιζερ χρωστικών με τους ενισχυτές και τον GSA δίνουν τελικό αποτέλεσμα παλμούς με κεντρικό μήκος κύματος στα 365 nm χρονικής διάρκειας ~ 8 ps. Αυτοί οι παλμοί έχουν ενέργεια περίπου ~ 4 μ J και χρησιμοποιούνται για να αντλήσουν τον κύριο ταλαντωτή του συστήματος λέιζερ χρωστικών «κατανεμημένης ανάδρασης» (*Distributed Feedback Dye Laser, DFDL*) και χρησιμοποιείται ως λέιζερ άντλησης για το σύστημα excimer λέιζερ τύπου KrF που είναι και το τελικό σύστημα. Το σύστημα DFDL (Εικ. 3-4) είναι μία διάταξη μεταβλητού μήκους κύματος και αποτελείται από ένα φράγμα περίθλασης ευρείας διέλευσης, ένα αντικειμενικό φακό μικροσκοπίου και ένα ειδικό θάλαμο χρωστικών (κυβέτα) με ενεργό μέσο κουμαρίνη 307 (Coumarin 307). Το σύστημα DFDL είναι κατασκευασμένο ειδικά για να επιτρέπει την δημιουργία βραχύχρονων παλμών λέιζερ τάξης femtosecond από παλμούς μεγαλύτερης χρονικής διάρκειας ως αρχικούς παλμούς (seed pulses).

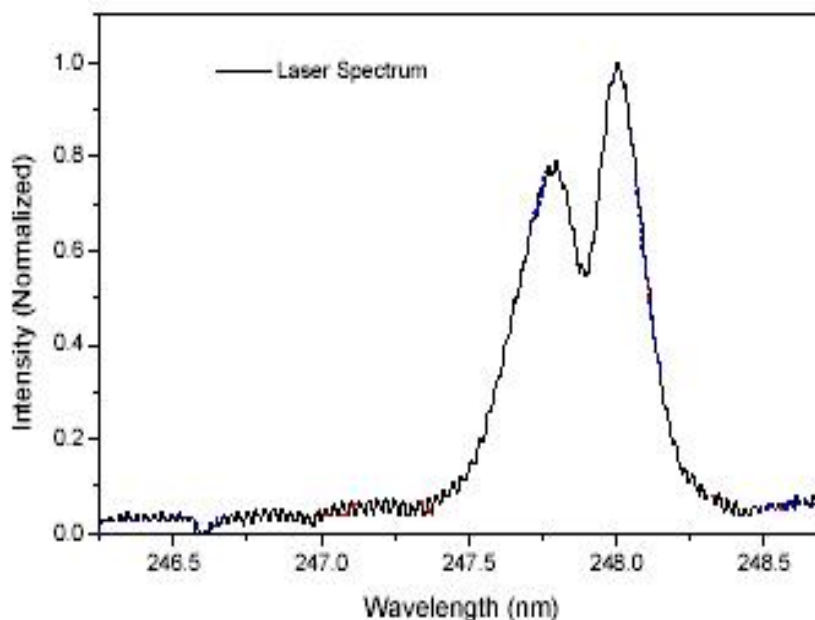
Ο μηχανισμός λειτουργίας του συστήματος DFDL βασίζεται στο φαινόμενο εμφάνισης κροσσών συμβολής οι οποίοι δημιουργούνται εισάγοντας το φράγμα περίθλασης στο εσωτερικό του θαλάμου χρωστικών και με την χρήση του αντικειμενικού φακού μικροσκοπίου. Η δέσμη άντλησης αρχικά διευρύνεται από ένα κυλινδρικό τηλεσκόπιο ώστε να μπορεί να φωτιστεί το φράγμα περίθλασης και το ενεργό μέσο. Μόνο οι δύο πρώτες τάξεις περίθλασης χρησιμοποιούνται για τον σχηματισμό των κροσσών συμβολής ενώ η μηδενική τάξη μπλοκάρεται από ένα οπτικό εμπόδιο. Αυτή η διάταξη εξασφαλίζει την δημιουργία ενός μοτίβου συμβολής μικρών διαστάσεων αλλά υψηλής ορατότητας ακόμη και με μια δέσμη άντλησης χαμηλής χωρικής και χρονικής συμφωνίας. Αυτός είναι και ο λόγος που χρησιμοποιούνται αυτού του είδους τα συστήματα λέιζερ για άντληση διότι δεν χρειάζονται μεγάλες απαιτήσεις στο φασματικό εύρος. Ένα άλλο πλεονέκτημα αυτής της διάταξης είναι η ευκολία στην αλλαγή του μήκους κύματος (tunability) με απλή μετακίνηση του φράγματος περίθλασης. Το μήκος κύματος εξόδου του συστήματος DFDL ρυθμίζεται στο διπλάσιο του μήκους κύματος του excimer λέιζερ τύπου KrF

δηλαδή στα 496 nm (2 x 248 nm). Η έξοδος του συστήματος DFDL ενισχύεται εκ νέου μέσω ενός ενισχυτή διπλού επιπέδου ενίσχυσης, ο οποίος είναι χωρισμένος με ένα απορροφητή κορεσμού και ένα μη γραμμικό κρύσταλλο διπλασιασμού συχνότητας τύπου BBO (Beta-Barium Borate) ώστε να εξαχθούν παλμοί τάξης femtosecond στα 248 nm. Αυτοί οι παλμοί αντλούν την δεύτερη κοιλότητα του excimer λέιζερ EMG 150 το οποίο περιέχει KrF, (6 mbar F₂, 150 mbar Kr, και He ως buffer gas μέχρι τελικής πίεσης 2 bar) μέσω μίας οπτικής διάταξης διπλού περάσματος παίρνοντας τελικά ενέργεια της τάξης 10-15 mJ και γραμμικά πολωμένους παλμούς χρονικής διάρκειας 450 fs με ρυθμό επανάληψης έως 5 Hz στα 248 nm. Το ίδιο σύστημα μπορεί να λειτουργήσει και με παλμούς χρονικής διάρκειας 5 ps εισάγοντας ένα πλακίδιο etalon πολλαπλών ανακλάσεων μέσα στο σύστημα των λέιζερ χρωστικών.

3.3. Διαγνωστικά υβριδικού συστήματος λέιζερ KrF/Dye

Το συγκεκριμένο σύστημα λέιζερ έχει μόνιμες διαγνωστικές διατάξεις ώστε να υπάρχει έλεγχος της κατάστασής του σε πραγματικό χρόνο. Οι διαγνωστικές διατάξεις χωρίζονται σε δύο βασικές κατηγορίες και αφορούν: α) την μέτρηση του χωρικού προφίλ της δέσμης (φάσμα) σε συνδυασμό με την μέτρηση της συνολικής ενέργειας ανά παλμό, και β) την μέτρηση του χρονικού προφίλ της δέσμης σε συνδυασμό με την μέτρηση της χρονικής διάρκειας του παλμού. Το βασικό διαγνωστικό για την μέτρηση του χωρικού προφίλ της εξερχόμενης δέσμης (φάσμα) αποτελείται από έναν φασματογράφο τύπου Littrow μήκος 1 μέτρου, ο οποίος χρησιμοποιεί φράγμα περίθλασης (grating) με ανάλυση 1200 γραμμές/mm. Ο φασματογράφος έχει ως ανιχνευτή μία κάμερα τύπου CCD ανάλυσης 16 bit. Το φάσμα της εξερχόμενης δέσμης από τον φασματογράφο φαίνεται στο παρακάτω σχήμα (Εικ. 3-5). Από το σχήμα παρατηρείται ότι το εύρος του φάσματος είναι ~0.6-0.7 nm με κεντρικό μήκος κύματος τα 248 nm, ενώ η κατανομή της έντασης παρουσιάζει δύο μέγιστα αντί για ένα όπως θα περίμενε κάποιος. Αυτή η μορφή οφείλεται σε δύο κυρίως φαινόμενα: α) στο φαινόμενο της μη γραμμικής απορρόφησης από τα οπτικά φίλτρα (τα οποία είναι ημιαγωγοί ντοπαρισμένοι με προσμίξεις) που χρησιμοποιούν οι ενισχυτές του συστήματος και συγκεκριμένα από το οπτικό φίλτρο OG 530 που είναι τοποθετημένο ανάμεσα στους ενισχυτές και λειτουργεί ως απορροφητής κορεσμού και β) στο φαινόμενο της μη ομογενούς

φασματικής διεύρυνσης που συμβαίνει στην κοιλότητα του ενισχυτή του excimer. Λεπτομέρειες πάνω σε αυτό το θέμα μπορεί να βρει κανείς στην βιβλιογραφία [21,72-75].



Εικ. 3-5: Φάσμα της δέσμης του υβριδικού λέιζερ KrF/Dye

Στην συνέχεια μετρήθηκε η συνολική ενέργεια ανά παλμό με ένα βαθμονομημένο Joulemeter. Οι μετρήσεις έδωσαν συνολική ενέργεια που κυμαινόταν από 10-15 mJ ανά παλμό. Τέλος μετρήθηκε και ο θόρυβος από ενισχυμένη αυθόρμητη εκπομπή (Amplified Spontaneous Emission, ASE) στην έξοδο της δέσμης του λέιζερ και βρέθηκε ότι η αναλογία θορύβου:σήματος ήταν $10^{-6}:1$. Η χωρική κατανομή της τελικής δέσμης έχει την μορφή παραλληλόγραμμου διαστάσεων 26 mm x 8 mm ενώ η γωνία απόκλισης είναι $\theta=0.15$ mrad. Η κατανομή της ενέργειας είναι σταθερή κατά μήκος της μεγάλης διάστασης και σχεδόν τύπου Gauss στην μικρή διάσταση. Για την μέτρηση της χρονικής διάρκειας του παλμού της εξερχόμενης δέσμης χρησιμοποιείται ένα σύστημα αυτοσυσχετιστή (autocorrelator) πολλαπλών περασμάτων ο οποίος λειτουργεί στα 248 nm. Στο σημείο αυτό πρέπει να αναλύσουμε την τεχνική της αυτοσυσχέτισης η οποία αποτελεί την βασική μέθοδο μέτρησης χρονικής διάρκειας βραχύχρονων παλμών. Η τεχνική της αυτοσυσχέτισης σημάτων ξεκίνησε την δεκαετία του 1960, και είναι η πρώτη τεχνική που χρησιμοποιήθηκε για να μετρήσει την χρονική διάρκεια βραχύχρονων παλμών λέιζερ

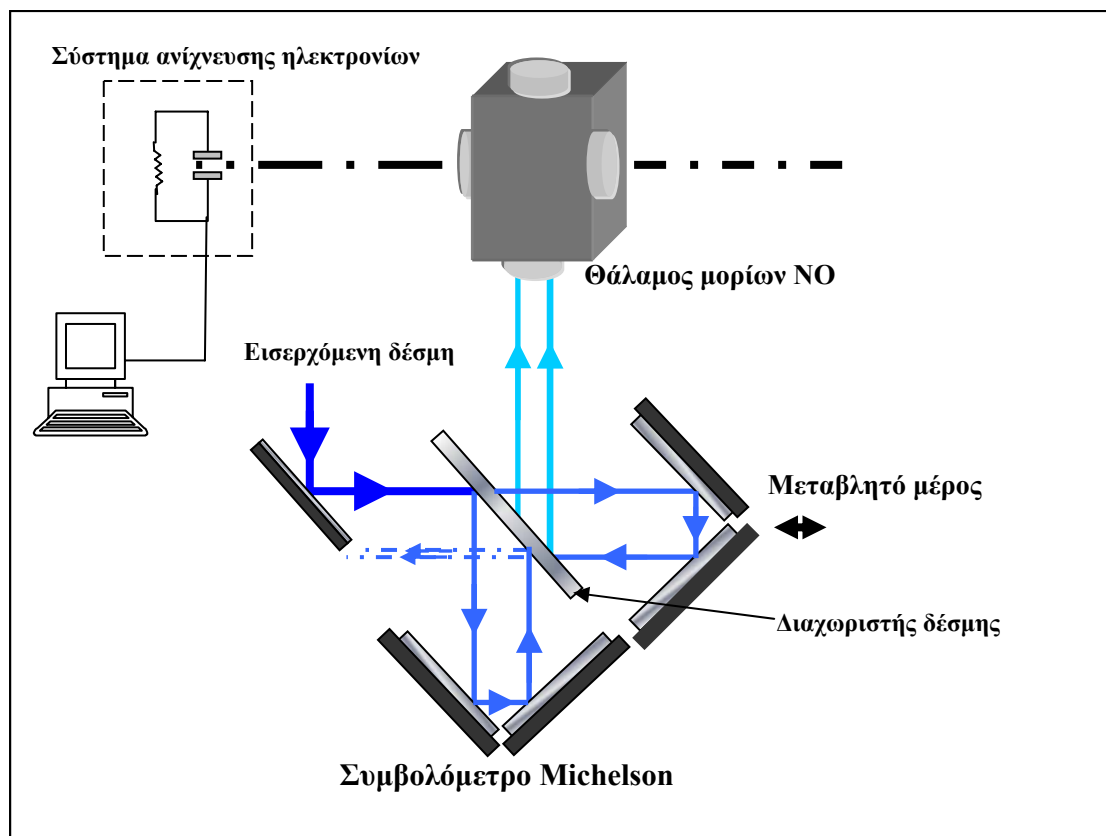
που ήταν αδύνατο να μετρηθούν με τις συμβατικές μεθόδους. Βασίζεται στο φαινόμενο της συμβολής δύο κυμάτων με παρόμοια χαρακτηριστικά. Συγκεκριμένα, η αρχική δέσμη των παλμών λέιζερ χωρίζεται σε δύο μέρη και στην συνέχεια γίνεται χρονική καθυστέρηση του ενός τμήματος σε σχέση με το άλλο μεταβάλλοντας την διαφορά δρόμων των δύο δεσμών.

Στο δρόμο του ενός από τα δύο τμήματα παρεμβάλλεται ένα μη γραμμικό οπτικό μέσο ώστε να αλλάξουν οι ιδιότητες της δέσμης και στην συνέχεια το διαφοροποιημένο τμήμα και το τμήμα που δεν υπέστη καμία αλλαγή φτάνουν μαζί σε έναν ανιχνευτικό σύστημα επικαλύπτοντας το ένα το άλλο στο χώρο. Επιλέγοντας την κατάλληλη διαφορά δρόμων μπορούν να δημιουργηθούν συνθήκες ενισχυτικής ή καταστρεπτικής συμβολής. Στην περίπτωση αυτή εμφανίζονται κροσσούς συμβολής το σήμα των οποίων λαμβάνεται στον ανιχνευτή. Η εμφάνιση των femtosecond λέιζερ έφερε ένα νέο πρόβλημα μέτρησης της χρονικής διάρκειας αυτού του είδους των παλμών. Συμβατικές μέθοδοι όπως η χρήση μιας φωτοδιόδου σε συνδυασμό με έναν παλμογράφο δεν ήταν πλέον επαρκείς να μετρήσουν την χρονική διάρκεια τόσο γρήγορων παλμών. Οι γρηγορότεροι οπτικοί ανιχνευτές έχουν χρόνους απόκρισης $\sim 10^{-11}$ δευτερόλεπτα και έτσι είναι ουσιαστικά αδύνατον να μετρήσουν παλμούς διάρκειας μερικών δεκάδων picosecond (10^{-12} δευτερόλεπτα) ή femtosecond (10^{-15} δευτερόλεπτα). Το μόνο πράγμα αρκετά γρήγορο για να μετρήσει αυτούς τους παλμούς είναι ο ίδιος ο παλμός. Δύο είναι οι βασικές τεχνικές αυτοσυσχέτισης: η αυτοσυσχέτιση *δεύτερης τάξης* που βασίζεται στην παραγωγή δεύτερης αρμονικής κυρίως μέσα σε μη γραμμικούς κρυστάλλους και η τεχνική αυτοσυσχέτισης *τρίτης τάξης* που βασίζεται κυρίως σε μη γραμμικά φαινόμενα μέσα σε αέρια όπως ο πολυφωτονικός ιονισμός.

Το βασικό πλεονέκτημα της αυτοσυσχέτισης τρίτης τάξης σε σχέση με την δεύτερη τάξη είναι ότι, η τρίτης τάξης αυτοσυσχέτιση είναι μεγαλύτερης διακριτικής ικανότητας και τα σήματα που λαμβάνονται είναι πολύ ισχυρότερα (είναι πιο αποδοτική). Η τεχνική που χρησιμοποιείται ως διαγνωστικό στο συγκεκριμένο σύστημα λέιζερ της παρούσας διατριβής είναι η τεχνική αυτοσυσχέτισης *τρίτης τάξης* και βασίζεται στον διφωτονικό ιονισμό μορίων μονοξειδίου του αζώτου (NO) και η οποία περιγράφεται παρακάτω.

3.4. Αυτοσυσχετιστής τρίτης τάξης από διφωτονικό ιονισμό μορίων NO

Γενικά, υπάρχουν δύο βασικές τεχνικές συσχέτισης: Η πρώτη είναι η *διασταυρωτική συσχέτιση* (cross correlation) και είναι η τεχνική κατά την οποία ένα ή περισσότερα ξεχωριστά σήματα συσχετίζονται μεταξύ τους, ενώ η δεύτερη είναι η *αυτοσυσχέτιση* (autocorrelation) κατά την οποία υπάρχουν δύο ή περισσότερα τμήματα ενός σήματος (εδώ παλμού λέιζερ) τα οποία δημιουργούνται από τον παλμό με διαχωρισμό σε ίσα μέρη με κατάλληλο οπτικό διαχωριστή (π.χ. beam-splitter). Η τεχνική της αυτοσυσχέτισης επιτρέπει την μετατροπή του προβλήματος της δυσκολίας μέτρησης χρονικών παλμών διάρκειας μερικών femtosecond σε μια πιο απλή τεχνική μέτρησης μηκών της τάξεως μερικών μm (10^{-6} μέτρα). Για παράδειγμα, τα 100 fs έχουν ισοδύναμο οπτικό δρόμο μήκους 30 μm . Στις μετρήσεις παλμών λέιζερ συνηθίζεται να διαιρείται η ένταση ενός παλμού σε δύο ίσα μέρη και στην συνέχεια να σχετίζονται αυτά τα δύο μέρη. Στο σχήμα (Εικ. 3-6) φαίνεται η πειραματική διάταξη αυτοσυσχετιστή τρίτης τάξης από διφωτονικό ιονισμό μορίων NO, που χρησιμοποιήθηκε στα πειράματα της παρούσας διατριβής. Όπως φαίνεται από το παρακάτω σχήμα, ένα μέρος της εξερχόμενης δέσμης εκτρέπεται από την πορεία της με την βοήθεια ενός καθρέπτη από γυαλί BK7 το οποίο έχει τοποθετηθεί σε γωνία 45° . Η εκτρεπόμενη δέσμη εισέρχεται σε ένα συμβολόμετρο τύπου *Michelson* μέσω ενός διαχωριστή δέσμης 50-50, ο οποίος την διαχωρίζει σε δύο ίσα μέρη. Το ένα μέρος προσπίπτει στον ακίνητο βραχίονα του συμβολόμετρου ενώ το άλλο μέρος προσπίπτει στον μεταβλητό βραχίονα του συμβολόμετρου. Ο μεταβλητός βραχίονας μπορεί να μετακινηθεί εμπρός και πίσω μεταβάλλοντας έτσι τον οπτικό δρόμο της δέσμης που προσπίπτει πάνω του.

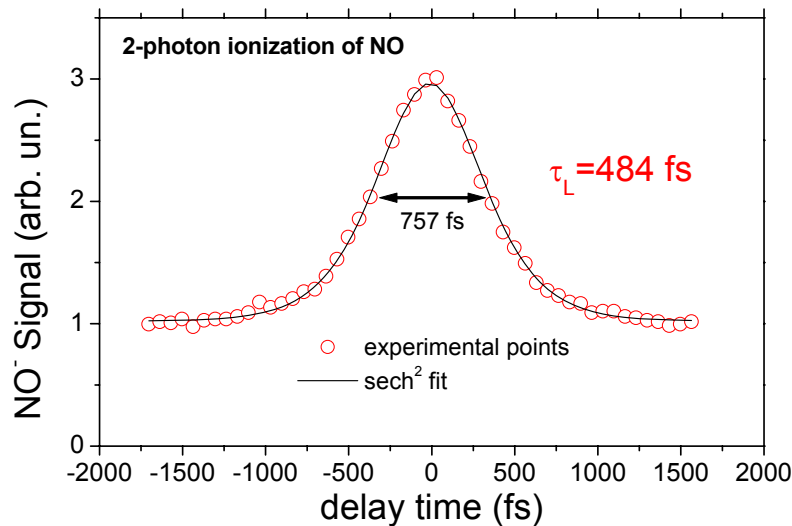


Εικ. 3-6: Σχηματικό διάγραμμα αυτοσυσχετιστή τρίτης τάξης

Με αυτόν τον τρόπο μπορεί να δημιουργηθεί η καθυστέρηση και ο συσχετισμός ή η υπέρθεση των δύο μερών της δέσμης (κροσσοί συμβολής) που έχει σχεδιαστεί να γίνεται μέσα στον θάλαμο ο οποίος περιέχει μόρια καθαρού μονοξειδίου του αζώτου NO σε χαμηλή πίεση (~ 100 mbar). Από την αλληλεπίδραση της δύο μερών της δέσμης (τα οποία έχουν υπερτεθεί) με τα μόρια του μονοξειδίου του αζώτου προκύπτει το φαινόμενο του διφωτονικού ιονισμού των μορίων του NO και η παραγωγή ελεύθερων ηλεκτρονίων τα οποία ανιχνεύονται μέσω ενός συστήματος ανίχνευσης ηλεκτρονίων που αποτελείται από ένα κύκλωμα αντίστασης-πυκνωτή σε σειρά. Τα ηλεκτρόνια παγιδεύονται και φορτίζουν τον πυκνωτή ο οποίος κατά την εκφόρτισή του δίνει ένα σήμα σε ένα παλμογράφο. Για να λειτουργήσει το συγκεκριμένο κύκλωμα εφαρμόζεται στα άκρα του υψηλή τάση ($\sim 1-2$ kV). Το σήμα που λαμβάνεται με αυτήν την τεχνική είναι ανάλογο με τον αριθμό των ελεύθερων ηλεκτρονίων που παράγονται από τον διφωτονικό ιονισμό και εκφράζεται μέσω της σχέσης:

$$S(\tau) = 1 + \frac{2 \int I(t)I(t+\tau)dt}{\int I^2(t)dt}$$

όπου I είναι η ένταση του λέιζερ, ενώ τ είναι η χρονική καθυστέρηση. Από την παραπάνω σχέση, έχουμε ότι: για $\tau \rightarrow \infty$ είναι $S(\tau)=1$ ενώ για $\tau=0$ είναι $S(\tau)=3$. Αυτή είναι και η αναμενόμενη αναλογία (3:1) που πρέπει να έχει το μέγιστο σήμα σε σχέση με το σήμα υποβάθρου. Αυτή η αναλογία αποτελεί και το πειραματικό κριτήριο για την αξιοπιστία της μεθόδου. Στο παρακάτω σχήμα (Εικ. 3-7) φαίνεται η μέτρηση του ίχνους αυτοσυσχέτισης για την δέσμη λέιζερ του συγκεκριμένου συστήματος που χρησιμοποιήθηκε στα πειράματα. Οι πειραματικές μετρήσεις συγκρίνονται με μία θεωρητική καμπύλη με την οποία προσομοιάζεται θεωρητικά femtosecond παλμούς που και έχει την μορφή του τετραγώνου του υπερβολικού αντίστροφου του ημίτονου $\text{sech}^2(x)$.



Εικ. 3-7: Μέτρηση της χρονικής διάρκειας των παλμών λέιζερ μέσω του ίχνους αυτοσυσχέτισης

Η πραγματική διάρκεια των παλμών τ_p υπολογίζεται από την σχέση: $\tau_p = \frac{\tau_{ac}}{K}$

όπου τ_{ac} είναι το πλάτος του ίχνους (στο *full-width half-maximum, FWHM*) αυτοσυσχέτισης, και K είναι μία σταθερά η οποία εξαρτάται από το σχήμα του παλμού. Για ένα λέιζερ femtosecond παλμών το σχήμα του παλμού θεωρείται ότι έχει την μορφή ενός sech^2 και η σταθερά K παίρνει την τιμή $K = 1,564$. Τέλος το γινόμενο χρόνου – φασματικού εύρους για τέτοιου είδους παλμούς είναι $\Delta\tau \cdot \Delta\lambda = 0,315$. Η διάρκεια των παλμών όπως μετρήθηκε με την τεχνική της αυτοσυσχέτισης βρέθηκε ότι είναι ~ 450 fs.

Κεφάλαιο 4: Διάδοση βραχύχρονων παλμών λέιζερ υπεριώδους υψηλής έντασης στον ατμοσφαιρικό αέρα σε διαφορετικές πιέσεις

4.1. Εισαγωγή

Σε αυτό το κεφάλαιο περιγράφεται η θεωρητική και η πειραματική ανάλυση του φαινομένου της μη γραμμικής διάδοσης βραχύχρονων παλμών λέιζερ υψηλής έντασης με μήκος κύματος στο υπεριώδες (248 nm) μέσα στον ατμοσφαιρικό αέρα σε διαφορετικές πιέσεις ($50\text{-}1000\text{ mbar}$). Υπάρχουν αρκετές μελέτες από πολλά εργαστήρια στο κόσμο [76-78,85,95] τα οποία ασχολούνται με την φυσική ερμηνεία του φαινομένου της μη γραμμικής διάδοσης παλμών και της δημιουργίας αυτο-οδηγούμενων καναλιών (filaments) χρησιμοποιώντας λέιζερ υπέρυθρου (IR) αλλά και υπεριώδους (UV). Από την έρευνα αυτή, έχει ήδη δειχθεί ότι η βασική παράμετρος για την μη γραμμική διάδοση είναι ο πολυφωτονικός ιονισμός (*multi-photon ionization, MPI*). Στην εργασία των Schillinger και Sauerbrey [79] καθώς και στην εργασία των Tzortzakis *et. al.*[80-81], έχει γίνει μέτρηση της ηλεκτρικής αγωγιμότητας του ατμοσφαιρικού αέρα στην διεύθυνση διάδοσης των filaments και έχει γίνει εκτίμηση για την πυκνότητα ηλεκτρονίων στο filament, δίνοντας μια τιμή της τάξεως του $10^{16}\text{-}10^{17}\text{ cm}^{-3}$. Η συγκεκριμένη μελέτη έγινε με λέιζερ υπέρυθρου. Ο σκοπός της μελέτης που περιγράφεται εδώ είναι η μη γραμμική διάδοση βραχύχρονων παλμών λέιζερ υψηλής έντασης στον ατμοσφαιρικό αέρα σε διαφορετικές πιέσεις και η εξέταση της επίδρασης της πίεσης στο φαινόμενο της διάδοσης. Παρόλο, που έχουν γίνει μελέτες πάνω στην διάδοση παλμών UV στον αέρα [82-83], η μελέτη της διάδοσης σε διαφορετικές πιέσεις γίνεται για πρώτη φορά.

4.2. Περιγραφή του θεωρητικού μοντέλου της διάδοσης υψηλής έντασης βραχύχρονων παλμών λέιζερ υπεριώδους στον ατμοσφαιρικό αέρα

Το φαινόμενο της διάδοσης ενός femtosecond παλμού υψηλής έντασης μέσα στον αέρα περιλαμβάνει κυρίως: το φαινόμενο της αυτό-εστίασης λόγω του φαινομένου *Kerr*, το φαινόμενο του ιονισμού των μορίων του ατμοσφαιρικού αέρα και της δημιουργίας πλάσματος καθώς και το φαινόμενο της περίθλασης.

Η μελέτη που έχει γίνει τα τελευταία χρόνια έχει επικεντρωθεί στην αναπαραγωγή των πειραματικών παρατηρήσεων των αυτο-οδηγούμενων καναλιών καθώς και στην προσπάθεια πρόβλεψης της χωρικής και χρονικής εξέλιξης του φαινομένου. Για να είναι αξιόπιστο ένα θεωρητικό μοντέλο θα πρέπει να μπορεί να αναπαράγει τις πειραματικές παρατηρήσεις του φαινομένου χρησιμοποιώντας πραγματικές φυσικές παράμετρους και αρχικές συνθήκες πολύ κοντά στις πειραματικές. Το συγκεκριμένο μοντέλο αποτελείται από: α) την μη γραμμική εξίσωση του *Schrödinger* και β) την εξίσωση της χρονικής εξέλιξης της πυκνότητας ηλεκτρονίων του πλάσματος που δημιουργείται από τον πολυφωτονικό ιονισμό και βασίζεται στο μοντέλο του *Drude* [82]. Η αρχική δέσμη θεωρείται ότι είναι γραμμικά πολωμένη με κεντρικό μήκος κύματος $\lambda_o=248\text{ nm}$ (ή αντίστοιχα συχνότητας ω_o) που είναι και το μήκος κύματος του λέιζερ που χρησιμοποιήθηκε στο πείραμα. Αντίστοιχα ο αρχικός κυματαριθμός θα είναι $k_o=\omega_o/c$. Ο παλμός έχει ακτινική συμμετρία και η περιβάλλουσα του ηλεκτρικού πεδίου $E(r,t,z)$ εξελίσσεται χωρικά σύμφωνα με την σχέση [20]:

$$2i\frac{\partial E}{\partial z} + \frac{1}{k_o}\nabla_{\perp}E + k_o n_2 |E|^2 E - k_o \frac{\omega_{pe}^2(\rho)}{\omega_o^2} E + i \sum_m \beta_m^{K_m} |E|^{2K_m-2} E = 0 \quad (\text{Εξ. 4.1})$$

Ενώ η χρονική εξέλιξη της πυκνότητας των ηλεκτρονίων δίνεται από την σχέση:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = \sum_m \frac{\beta_m^{K_m}}{K_m \hbar \omega_o} |E|^{2K_m} \left(1 - \frac{\rho_m}{\rho_{at}} \right) \quad (\text{Εξ. 4.2})$$

Για διάδοση στον αέρα, θεωρείται ότι αποτελείται μόνο από μόρια οξυγόνου O_2 και αζώτου N_2 σε αναλογία 20% και 80% αντίστοιχα. Στις εξισώσεις (Εξ. 4.1), (Εξ. 4.2) το m παριστάνει τα δύο στοιχεία και το K είναι ο αντίστοιχος αριθμός των φωτονίων που απαιτούνται για να γίνει ο πολυφωτονικός ιονισμός που στην περίπτωσή εδώ είναι $K=3$ για το O_2 ($U_i=12.06\text{ eV}$) και $K=4$ για το N_2 ($U_i=15.58\text{ eV}$). Η πυκνότητα ηλεκτρονίων του πλάσματος ρ , δίνεται από την σχέση: $\rho = \rho_{O_2} + \rho_{N_2}$ ενώ $\rho_{at}=2.7 \times 10^{19}\text{ cm}^{-3}$ είναι η ατομική πυκνότητα του μη ιονισμένου αέρα. Η σχέση που πρέπει να ικανοποιείται ώστε να έχουμε ιονισμό είναι: $\rho/\rho_{at} \leq 1\%$.

Ο δεύτερος όρος στην εξίσωση Εξ.4.1. περιγράφει την περίθλαση σε επίπεδο εγκάρσιο από το επίπεδο διάδοσης, ο επόμενος όρος περιγράφει το φαινόμενο της αυτό-εστίασης (*Kerr effect*) και η μη γραμμική σταθερά του δείκτη διάθλασης έχει τιμή: $n_2=8 \times 10^{-19}\text{ cm}^2/W$. Στην συνέχεια ο επόμενος όρος περιγράφει το φαινόμενο

της αποεστίασης λόγω της δημιουργίας του πλάσματος από τον πολυφωτονικό ιονισμό που περιλαμβάνει την πυκνότητα ηλεκτρονίων που υπεισέρχεται στην συχνότητα πλάσματος $\omega_{pe}^2(\rho) = q_e^2 \rho / m_e \epsilon_0$, με q_e και m_e να είναι το φορτίο και η μάζα του ηλεκτρονίου αντίστοιχα ενώ ϵ_0 είναι η διηλεκτρική σταθερά του κενού. Ο τελευταίος όρος στην εξίσωση 4.1. περιγράφει το φαινόμενο της πολυφωτονικής απορρόφησης με τους αντίστοιχους συντελεστές β^{km} . Η δημιουργία ελεύθερων ηλεκτρονίων εξαρτάται από την ένταση του λέιζερ και το φαινόμενο περιγράφεται από τα αντίστοιχα μοντέλα: το μοντέλο του πολυφωτονικού ιονισμού (*MPI*) ή το μοντέλο του ιονισμού σήραγγας (*tunneling ionization*).

4.3. Ιονισμός λόγω του ηλεκτρικού πεδίου του λέιζερ (Optical field induced, OFI, ionization)

Είναι ο ιονισμός εξαιτίας του ηλεκτρικού πεδίου του λέιζερ. Σε μεγάλες εντάσεις ($>10^{14}$ W/cm²) και για χαμηλής πυκνότητας πλάσμα, ο ρυθμός ιονισμού τύπου OFI μπορεί να είναι αρκετά μεγαλύτερος από τον ιονισμό λόγω συγκρούσεων. Έτσι μέσα σε ένα αέριο, η πυκνότητα των ελεύθερων ηλεκτρονίων μπορεί να αλλάξει εξαιτίας: α) του ιονισμού, β) της επανασύνδεσης ηλεκτρονίων-ιόντων ή γ) της προσκόλλησης ηλεκτρονίων σε άτομα δημιουργώντας νέα ιόντα. Η εξίσωση χρονικής εξέλιξης της πυκνότητας ηλεκτρονίων n_e δίνεται από τον τύπο:

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = W n_n - \eta n_e - \beta_r n_e^2$$

όπου n_n είναι η πυκνότητα των ουδέτερων ατόμων του αερίου, W είναι ο ρυθμός φωτοϊονισμού, η είναι ο συντελεστής ρυθμού ηλεκτρονίου-προσκόλλησης και β_r είναι ο συντελεστής επανασύνδεσης. Για παλμούς χρονικής διάρκειας μερικών εκατοντάδων femtosecond, οι φυσικές διεργασίες της επανασύνδεσης και της προσκόλλησης παίζουν αμελητέο ρόλο στην διάδοση των παλμών [39–41]. Για πιο στενούς χρονικά παλμούς, δηλαδή μερικά femtosecond, τα ελεύθερα ηλεκτρόνια δημιουργούνται από δύο φυσικές διεργασίες: i) τον πολυφωτονικό ιονισμό και ii) από τον ιονισμό σήραγγας, ενώ ο ιονισμός «χιονοστιβάδας» (*avalanche ionization*) δεν είναι τόσο σημαντικός στην περίπτωση αυτή. Ο ρυθμός ιονισμού εκφράζεται με την μία ή την άλλη φυσική διεργασία ιονισμού, ανάλογα με την τιμή που παίρνει η

παράμετρος του *Keldysh* [42] γ_K , όπου $\gamma_K = 2.31 \times 10^6 \left(\frac{U_{ion} [eV]}{\lambda^2 [\mu m] (I [W/cm^2])} \right)^{1/2}$

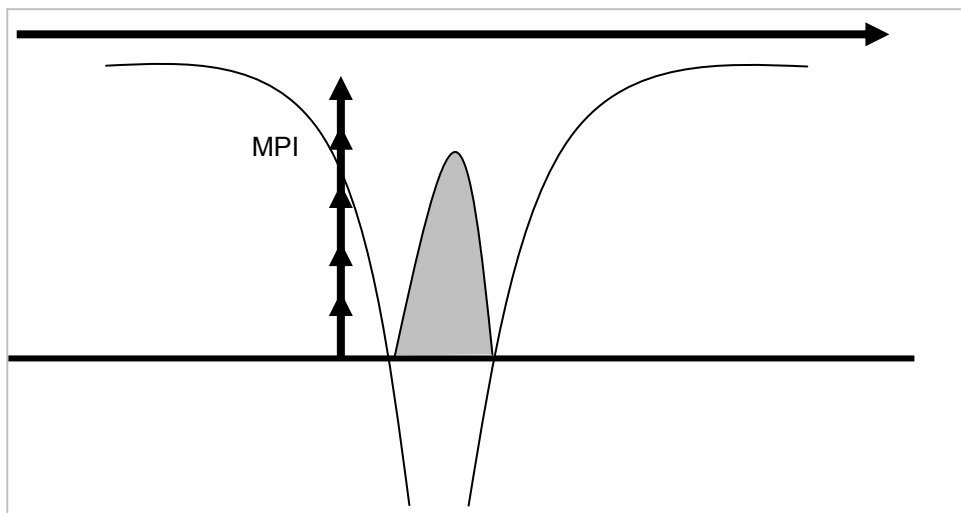
όπου U_{ion} είναι το δυναμικό ιονισμού. Μια ισοδύναμη έκφραση για την παράμετρο

Keldysh είναι: $\gamma_K = \left(\frac{\varepsilon_i}{2\varepsilon_p} \right)^{1/2}$ όπου ε_i είναι το δυναμικό ιονισμού και ε_p το δυναμικό

που δημιουργείται λόγω της πίεσης ακτινοβολίας του λέιζερ (ponderomotive force)

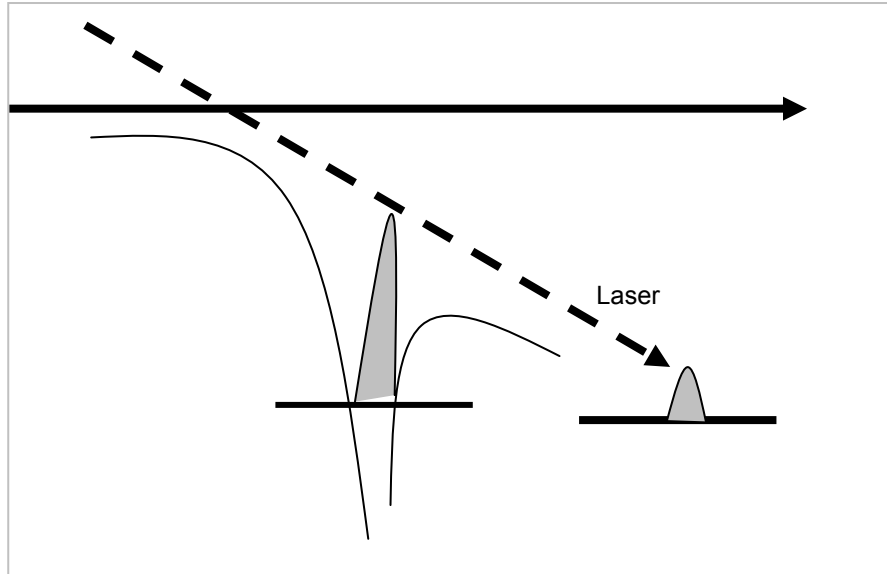
$\varepsilon_p = \frac{e^2 E^2}{4m_e \omega_0^2}$. Οι τιμές που μπορεί να πάρει η παράμετρος *Keldysh* είναι:

- Για $\gamma_K \gg 1$ ($\varepsilon_i \gg \varepsilon_p$) : *Πολυφωτονικός Ιονισμός* (Multi-photon ionization, MPI, Εικ. 4-1)

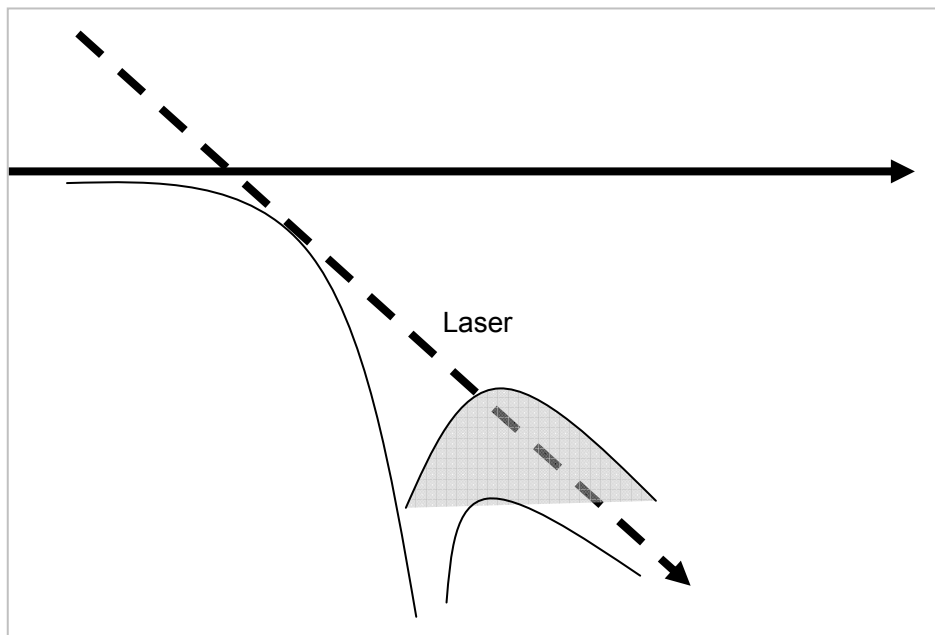


Εικ. 4-1: Πολυφωτονικός Ιονισμός (Multi-photon ionization, MPI)

- $\gamma_K \ll 1$ ($\varepsilon_i \ll \varepsilon_p$): *Ιονισμός σήραγγας* (Tunneling ionization, TI, Εικ. 4-2)
- $\gamma \ll \ll 1$ Αν το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ είναι αρκετά μεγάλο (η ένταση παίρνει τιμές $I > 10^{15} \text{ Wcm}^{-2}$) ώστε να καταστείλει εντελώς το ηλεκτροστατικό δυναμικό *Coulomb* του πυρήνα, τότε μιλάμε για *ιονισμό πάνω από το κατώφλι του φράγματος δυναμικού* (Above Threshold Ionization, ATI, Εικ. 4-3).



Εικ. 4-2: Ιονισμός σήραγγας (Tunneling ionization, TI)



Εικ. 4-3: Ιονισμός πάνω από το κατώφλι του φράγματος δυναμικού (Above Threshold Ionization, ATI)

Στην περίπτωση του πολυφωτονικού ιονισμού ο ρυθμός ιονισμού δίνεται από τον τύπο[43]:

$$W_{MPI} = \frac{2\pi\omega_o}{(\ell-1)!} \left(\frac{I(r, z, \tau)}{I_{MPI}} \right)^\ell$$

όπου $I(r,z,t)$ είναι η ένταση, I_{MPI} είναι χαρακτηριστική ένταση από πολυφωτονικό ιονισμό και είναι: $I_{MPI} = \frac{\hbar\omega_o^2}{\sigma_{MPI}}$ όπου σ_{MPI} είναι η ενεργός διατομή και καθορίζεται

πειραματικά [44–45]. Στην περίπτωση των βραχύχρονων παλμών (femtosecond) έχει προσδιοριστεί ότι είναι ίση με $\sigma_{MPI}=6.4 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$. Έτσι, π.χ. η χαρακτηριστική ένταση από πολυφωτονικό ιονισμό για παλμούς με μήκος κύματος $\lambda=1 \mu\text{m}$ είναι: $I_{MPI}= 5.8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, ενώ στην περίπτωση που το μήκος κύματος είναι στην περιοχή του υπερϊόδους (π.χ. $0.3 \mu\text{m}$) τότε η ένταση είναι περίπου μια τάξη μεγέθους μικρότερη δηλαδή $I_{MPI} \sim 10^{12} \text{ W/cm}^2$. Ο ακέραιος αριθμός ℓ εκφράζει τον ελάχιστο

αριθμό φωτονίων που απαιτούνται για ιονισμό και ορίζεται ως: $\ell = \text{Int} \left[\frac{U_{ion}}{\hbar\omega_o + 1} \right]$,

όπου το Int συμβολίζει την συνάρτηση του ακέραιου μέρους.

Βέβαια, ένα ηλεκτρόνιο μπορεί να απορροφήσει περισσότερα φωτόνια από ότι χρειάζεται για να γίνει πολυφωτονικός ιονισμός. Αυτή είναι η περίπτωση του ιονισμού πάνω από το κατώφλι του φράγματος δυναμικού (*Above Threshold Ionization, ATI*). Στην περίπτωση αυτή, όταν ένα ηλεκτρόνιο απορροφάει $s > \ell$ φωτόνια, εισέρχεται σε μια ενεργειακή κατάσταση συνεχούς με περίσσεια ενέργειας $\hbar\omega_o (s - \ell)$. Αυτή η περίσσεια ενέργειας προέρχεται από την ταλαντωτική κίνηση του ιονισμένου ηλεκτρονίου. Για αρκετά υψηλές εντάσεις, η σύζευξη αυτών των καταστάσεων συνεχούς μπορούν να γίνουν αρκετά σημαντικές. Το φαινόμενο του ιονισμού πέρα από το κατώφλι παρατηρήθηκε για πρώτη φορά από τον *Agostini* [46], ο οποίος ανέφερε την ύπαρξη αρκετών διακριτών μεγίστων στο φάσμα της ενέργειας των ηλεκτρονίων που ξεχωρίζουν το ένα από το άλλο κατά $\hbar\omega_o$. Στην κλασική θεωρητική περιγραφή, ο ιονισμός πάνω από το κατώφλι περιγράφεται ως μια διαδικασία δύο σταδίων που συμπεριλαμβάνει το στάδιο του ιονισμού και το στάδιο πάνω από το κατώφλι ιονισμού [47-49]. Το στάδιο πάνω από το κατώφλι ιονισμού περιγράφει την διεργασία ενός ηλεκτρονίου το οποίο επηρεάζεται ασθενώς από το ατομικό δυναμικό, έτσι ώστε η κίνησή του να κυριαρχείται από το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ. Οι λύσεις αυτής της αλληλεπίδρασης βασίζονται στην κβαντομηχανική και ονομάζονται καταστάσεις *Volkov* [50] οι οποίες είναι οι ακριβείς λύσεις που περιγράφουν ένα ελεύθερο ηλεκτρόνιο (στο κενό) που αλληλεπιδρά με ένα ταλαντούμενο ηλεκτρομαγνητικό πεδίο. Παρόλο που οι φυσικές διεργασίες του

ιονισμού πάνω από το κατώφλι έχουν κληρονομήσει τις κβαντομηχανικές ιδιότητες αφού οι λύσεις βασίζονται στην κβαντομηχανική, ορισμένες λύσεις μπορούν να εξηγηθούν με κλασικό τρόπο [51]. Όταν ο αριθμός των φωτονίων ανά κυβικό μήκος κύματος είναι πολύ μεγαλύτερος από την μονάδα, τότε το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ μπορεί να περιγραφεί κλασικά. Επίσης, από την στιγμή που το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ είναι ταλαντωτικό, ένα ηλεκτρόνιο θα αποκτήσει ταλαντωτική κίνηση με μια

μέση κινητική ενέργεια: $E_{osc} = \frac{q^2 |A|^2}{4m\omega_o^2}$. Η ενέργεια που συνδέεται με την ταλάντωση

του ηλεκτρονίου θα πρέπει να είναι πολύ μεγαλύτερη από την ενέργεια του φωτονίου $\hbar\omega_o$ για να μπορεί να εφαρμοστεί η κλασική περιγραφή.

Παράδειγμα: για εντάσεις $I \sim 10^{14} \text{ W/cm}^2$, και μήκος κύματος $\lambda = 1 \mu\text{m}$, ο αριθμός των

φωτονίων ανά κυβικό μήκος κύματος είναι: $N_{photon} = \frac{I\lambda^3}{\hbar\omega_o c} \sim 2 \times 10^{10}$ και η ενέργεια

ταλάντωσης είναι $E_{osc} \sim 10 \text{ eV}$ δηλαδή περίπου 8 φορές μεγαλύτερη από την ενέργεια του φωτονίου ($\hbar\omega_o \sim 1.2 \text{ eV}$). Επομένως το φαινόμενο μπορεί να περιγράφει κλασικά.

Στην περίπτωση του ιονισμού σήραγγας (*tunneling ionization*)[121], ο μέσος ρυθμός ιονισμού (ολοκληρωμένος στον χρόνο) για έναν γραμμικά πολωμένο παλμό λέιζερ δίνεται από την σχέση [42]:

$$W_{tun} = 4a_{tun}\Omega_o \left(\frac{U_{ion}}{U_H} \right)^{\frac{7}{4}} \left(\frac{I_H}{I} \right)^{\frac{1}{4}} e^{-\frac{2}{3} \left(\frac{U_{ion}}{U_H} \right)^{\frac{3}{2}} \left(\frac{I_H}{I} \right)^{\frac{1}{2}}}$$

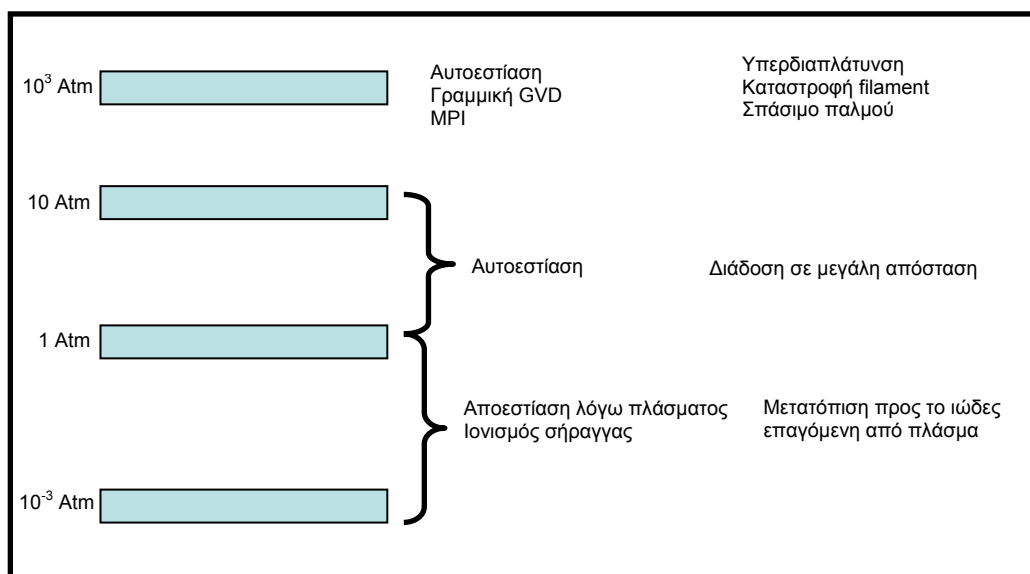
όπου $\Omega_o = 4.1 \times 10^{16} \text{ s}^{-1}$ είναι η θεμελιώδης ατομική συχνότητα, $I_H = 3.6 \times 10^{16} \text{ W/cm}^2$ και $U_H = 13.6 \text{ eV}$ είναι η ένταση και η ενέργεια ιονισμού του ατόμου του υδρογόνου αντίστοιχα. Τέλος, λόγω του ότι η μέγιστη ένταση του λέιζερ σε ένα αυτο-οδηγούμενο παλμό είναι τυπικά $I \sim 10^{13} \text{ W/cm}^2$, η φυσική διεργασία που περιγράφει τον ιονισμό δίνει παράμετρο *Keldysh* $\gamma_K \sim I$ δηλαδή βρίσκεται ανάμεσα στις δύο περιοχές μεταξύ του πολυφωτονικού ιονισμού ($I > 10^{12} \text{ W/cm}^2$) και του ιονισμού σήραγγας ($I < 10^{14} \text{ W/cm}^2$). Σε αυτήν την περίπτωση δίνεται μια αναλυτική προσέγγιση για τον ρυθμό ιονισμού που είναι της μορφής: $W_x = a_x I^{[k_1 + k_2 \ln(I)]}$ όπου k_1 , k_2 είναι συντελεστές κανονικοποίησης.

Στην περίπτωση της παρούσας διατριβής, δηλαδή για εντάσεις $< 10^{14}$ W/cm² κυριαρχεί ο πολυφωτονικός ιονισμός. Οι συντελεστές β^{Km} της πολυφωτονικής απορρόφησης μπορούν να υπολογιστούν από την θεωρία του *Keldysh* όπως περιγράφεται αναλυτικά στην βιβλιογραφία[86] και είναι: $\beta^3 \approx 2.14 \times 10^{-32}$ m³/W² και $\beta^4 \approx 1.13 \times 10^{-50}$ m⁵/W³ για τα μόρια του O₂ και του N₂ αντίστοιχα.

4.4. Επίδραση της πίεσης στην διάδοση υψηλής έντασης βραχύχρονων παλμών λέιζερ υπερϊόδους στον ατμοσφαιρικό αέρα

Ένας παράγοντας που σχετίζεται άμεσα με την δημιουργία αυτό-οδηγούμενων παλμών λέιζερ είναι η πίεση του αερίου μέσου. Ο λόγος είναι ότι, η πίεση συνδέεται άμεσα με τον αριθμό των μορίων και των ατόμων και συνεπώς επηρεάζει άμεσα μακροσκοπικά μεγέθη της διάδοσης όπως είναι ο δείκτης διάθλασης του μέσου. Αυτό έχει εξαιρετικά μεγάλη σημασία σε εφαρμογές που σχετίζονται με την ανίχνευση ατμοσφαιρικών ρύπων με λέιζερ σε μεγάλα υψόμετρα όπου η πίεση είναι πολύ μικρότερη από ότι στην επιφάνεια της Γης. Επομένως η μελέτη της επίδρασης της πίεσης στην διάδοση υψηλής έντασης βραχύχρονων παλμών λέιζερ έχει εκτός από καθαρά ερευνητικό ενδιαφέρον και πρακτικό όσον αφορά τις εφαρμογές. Στο σημείο αυτό πρέπει να σημειωθεί ότι η μελέτη της επίδρασης της πίεσης στην περιοχή από 0-1 Atm κατά την διάδοση υψηλής έντασης βραχύχρονων παλμών λέιζερ με μήκος κύματος στο υπεριώδες γίνεται για πρώτη φορά σε πειραματικό επίπεδο. Στην βιβλιογραφία αναφέρεται ότι στην περιοχή χαμηλής πίεσης ή αλλιώς περιοχή χαμηλού αριθμού μοριακών και ατομικών κρούσεων (δηλαδή όπου $P \ll 1$ Atm) τα κυρίαρχα φυσικά φαινόμενα είναι ο πολυφωτονικός ιονισμός [87-89], η μετατόπιση προς το ιώδες (*blue-shift*) των παλμών [90-94], η αποεστίαση της δέσμης λόγω παρουσίας του πλάσματος[96-97], καθώς και η δημιουργία filaments [98]. Τα φαινόμενα της αυτοδιαμόρφωσης φάσης και η αποεστίαση είναι αυτά που κυριαρχούν σε αυτήν την περιοχή πιέσεων. Αυτό που ισχύει είναι ότι η ενεργός διατομή σ που ελέγχει την απορρόφηση του πλάσματος σε χαμηλές πιέσεις μειώνεται δραματικά, αλλά η αυτοδιαμόρφωση φάσης επιβιώνει αφού περιλαμβάνει μόνο κρούσεις ηλεκτρονίων ρυθμού, ο οποίος με την σειρά του αυξάνει όσο πέφτει πίεση (και επομένως και η πυκνότητα). Στην περιοχή υψηλής πίεσης ($P > 1$ Atm) ή αλλιώς περιοχή υψηλού αριθμού μοριακών και ατομικών κρούσεων, το φαινόμενο της μη γραμμικής αυτό-εστίασης (*self-focusing*) γίνεται ιδιαίτερα σημαντικό όταν η μέγιστη

ισχύ του λέιζερ υπερβεί την κρίσιμη ισχύ (*critical power*) [99-101], οδηγώντας τελικά σε δημιουργία φάσματος υπερ-συνεχούς (*supercontinuum*) και αλλοίωση των οπτικών χαρακτηριστικών της δέσμης (*optical breakdown*) [102-105]. Στην περιοχή πολύ υψηλής πίεσης ($P \geq 1000$ Atm) τα φαινόμενα της διασποράς ταχύτητας ομάδος, αυτοεστίασης, και πολυφωτονικού ιονισμού έχουν γραμμική εξάρτηση από την πίεση και μάλιστα αύξουσα. Αυτό εξηγείται λόγω του ότι η αύξηση της πίεσης σημαίνει αυτόματα αύξηση της πυκνότητας για μια σταθερή θερμοκρασία, επομένως τα φαινόμενα αυτά είναι τα κυρίαρχα σε πολύ υψηλές πιέσεις. Στο παρακάτω σχήμα (Εικ. 4-4) απεικονίζονται οι χαρακτηριστικές περιοχές πιέσεων και τα αντίστοιχα φαινόμενα που επικρατούν στις περιοχές αυτές.

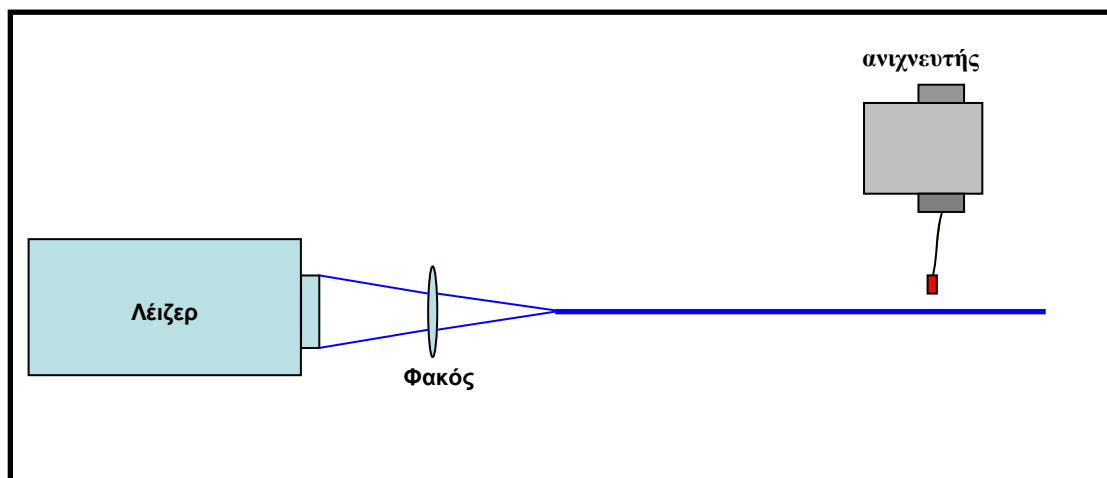


Εικ. 4-4: Επίδραση της πίεσης στην διάδοση

4.5. Πειραματική μελέτη της διάδοσης υψηλής έντασης βραχύχρονων παλμών λέιζερ υπερϊώδους στον ατμοσφαιρικό αέρα

Οι μετρήσεις της έντασης της δέσμης στην περίπτωση δημιουργίας αυτό-οδηγούμενων παλμών (filaments) είναι τεχνικά αδύνατες εξαιτίας της πολύ μεγάλης έντασης που αναπτύσσεται από την αυτό-εστίαση και η οποία έχει ως αποτέλεσμα την καταστροφή κάθε οπτικού ανιχνευτικού συστήματος που βρεθεί στο μονοπάτι διάδοσης της δέσμης. Για τον λόγο αυτό δεν γίνεται άμεσα η μέτρηση της έντασης της διαδιδόμενης δέσμης αλλά αντί για αυτό, γίνεται μέτρηση της ακτινοβολίας φθορισμού (*fluorescence*) που προκύπτει από την αλληλεπίδραση της υπερϊώδους ακτινοβολίας με τα μόρια του αέρα, ενώ τα ανιχνευτικά συστήματα δεν μετράνε

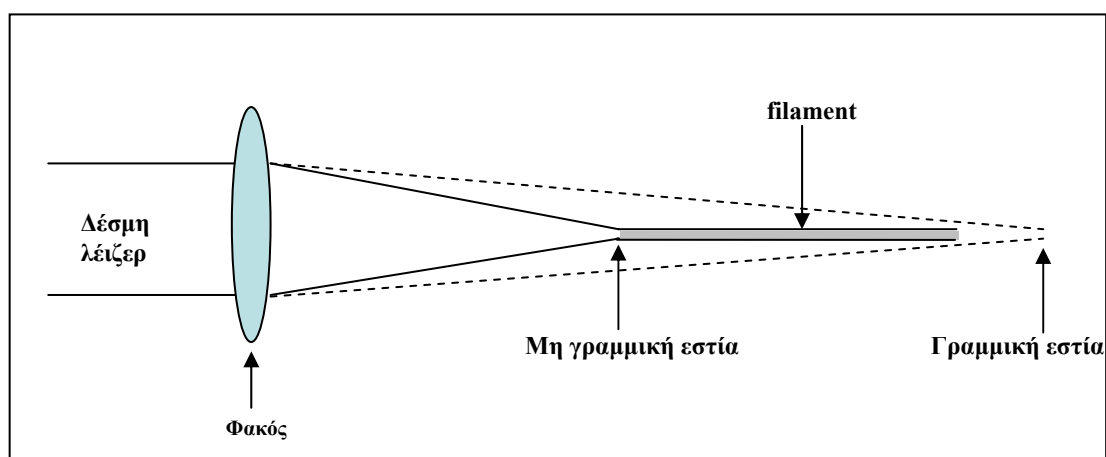
πάνω στον άξονα διάδοσης αλλά ακτινικά γύρω από αυτόν όπως μπορεί να φανεί και στο παρακάτω σχήμα (Εικ. 4-5).



Εικ. 4-5: Ανίχνευση της ακτινοβολίας φθορισμού κατά την διάδοση της δέσμης λέιζερ στον αέρα

4.6. Μη γραμμική αυτοεστίαση

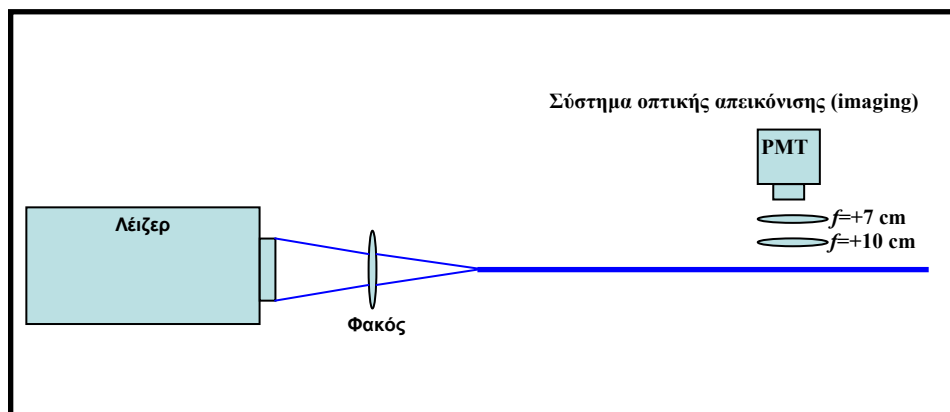
Ο λόγος που χρησιμοποιείται φακός εστίασης και μάλιστα μεγάλης εστιακής απόστασης είναι διότι πρέπει να επιτευχθεί όσον το δυνατόν πιο ομαλή αλλά και σχετικά γρήγορη εστίαση της δέσμης για την δημιουργία του φαινομένου της μη γραμμικής αυτό-εστίασης. Εδώ πρέπει να σημειωθεί ότι το φαινόμενο της αυτό-εστίασης θα εμφανιστεί ανεξάρτητα από το αν υπάρχει φακός ή όχι, απλά απουσία του φακού, το φαινόμενο θα δημιουργηθεί μετά από αρκετά μέτρα διάδοσης και σε διαφορετικά σημεία στο χώρο και αυτό θα δυσκόλευε το πείραμα λόγω των περιορισμένων διαστάσεων που έχει ένας εργαστηριακός χώρος.



Εικ. 4-6: Δημιουργία μη γραμμικής εστίασης με φακό μεγάλης εστιακής απόστασης

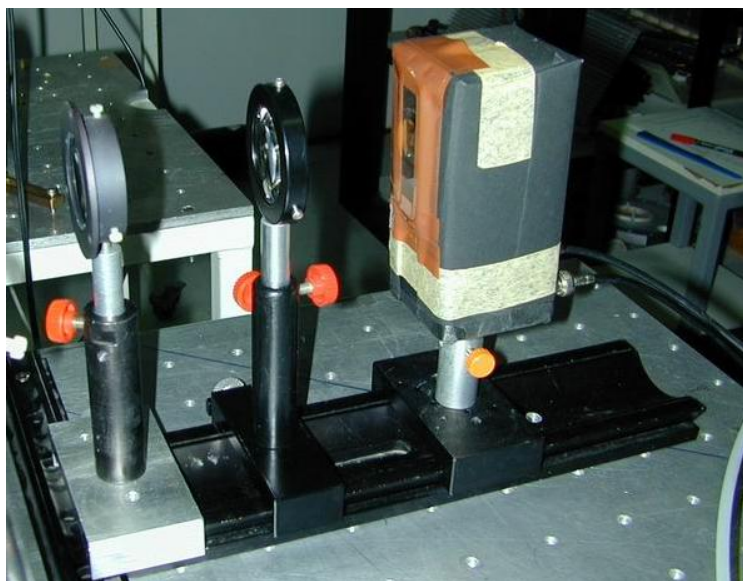
Η τεχνική μέτρησης της ακτινοβολίας φθορισμού βασίζεται στην οπτική απεικόνιση (imaging) της δέσμης του λέιζερ. Η οπτική απεικόνιση έγινε με την χρήση δύο

φακών: α) έναν εστιακής απόστασης $f1=+10\text{ cm}$ για να συγκεντρώσει τα φωτόνια που αλληλεπιδρούν με τα ηλεκτρόνια από το πλάσμα του filament και β) έναν δεύτερο εστιακής απόστασης $f2=+7\text{ cm}$ ώστε να εστιαστεί η ακτινοβολία στον φωτοπολλαπλασιαστή. Το ανιχνευτικό σύστημα αποτελείται από ένα φωτοπολλαπλασιαστή (Photo-Multiplier Tube, PMT) με χρήση ειδικών φίλτρων, ώστε να λαμβάνονται μόνο οι μετρήσεις μέσα στο κατάλληλο φασματικό εύρος στην περιοχή του UV.



Εικ. 4-7: Σχηματικό διάγραμμα του ανιχνευτικού συστήματος και της οπτικής απεικόνισης (imaging).

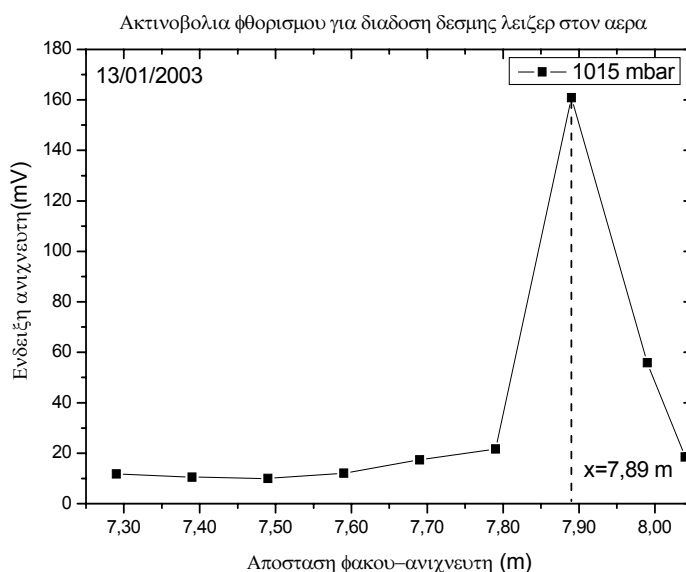
Τα φίλτρα που χρησιμοποιήθηκαν ήταν: α) ένα φίλτρο από γυαλί BK7 διαπερατό πάνω από τα 300 nm και β) ένα υψιπερατό (*high-pass*) φίλτρο από γυαλί διαπερατό κάτω από τα 400 nm. Με την χρήση και των δύο φίλτρων δημιουργείται το επιθυμητό φασματικό «παράθυρο» παρατήρησης στα 300-400 nm.



Εικ. 4-8: Σύστημα οπτικής απεικόνισης (imaging) και φωτοπολλαπλασιαστή (PMT)

4.7. Μετρήσεις οπτικής παρατήρησης του φαινομένου Kerr

Η πρώτη πειραματική δοκιμή έγινε για διάδοση της δέσμης αρχικής ενέργειας 8.72 mJ στον ατμοσφαιρικό αέρα. Για την εστίαση της χρησιμοποιήθηκε συγκλίνων φακός εστιακής απόστασης $f=+9.5$ m. Χρησιμοποιώντας το ανιχνευτικό σύστημα που περιγράφηκε παραπάνω, μετρήθηκε η ακτινοβολία φθορισμού σε κάθετη διεύθυνση από την διεύθυνση διάδοσης με τον ανιχνευτή να τοποθετείται αρχικά σε απόσταση 7.24 m από τον φακό εστίασης ενώ οι μετρήσεις έγιναν κατά μήκος του άξονα διάδοσης ανά 10 cm. Τα αποτελέσματα των μετρήσεων φαίνονται στο παρακάτω διάγραμμα (Εικ. 4-9). Όπως φαίνεται ξεκάθαρα στο διάγραμμα, το σημείο της μέγιστης έντασης της ακτινοβολίας φθορισμού, η οποία υποδηλώνει και το σημείο εστίασης της δέσμης, βρίσκεται σε απόσταση 7.89 m από τον φακό, και όχι σε απόσταση 9.5 m από τον φακό που θα περίμενε κανείς αν σε συνθήκες γεωμετρικής εστίασης. Αυτή είναι η πρώτη πειραματική ένδειξη που υποδηλώνει την ύπαρξη μη γραμμικών φαινομένων κατά την διάδοση και συγκεκριμένα του φαινομένου της μη γραμμικής αυτό-εστίασης που οφείλεται όπως στο φαινόμενο *Kerr*.

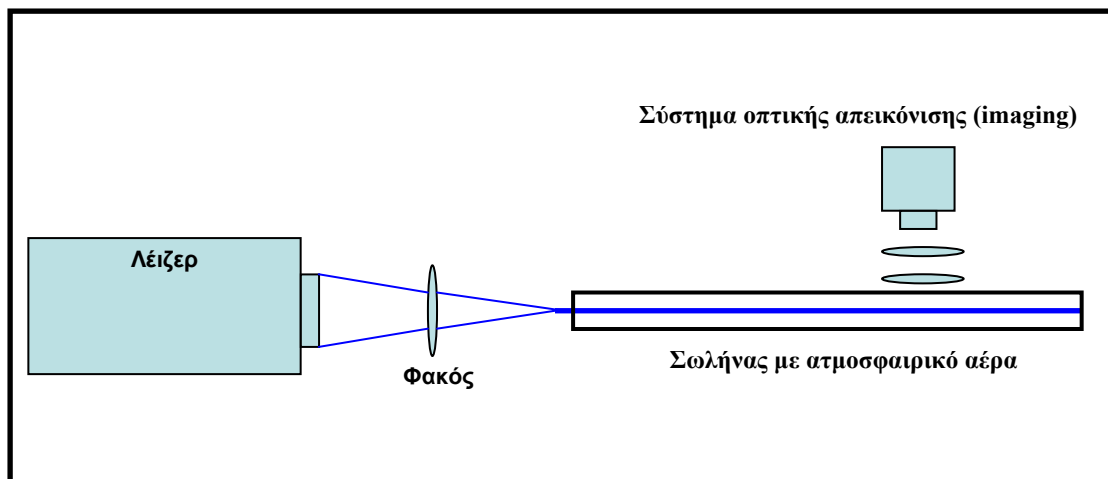


Εικ. 4-9: Μέτρηση ακτινοβολίας φθορισμού για διάδοση στον αέρα κατά μήκος του άξονα διάδοσης εστιάζοντας με φακό $f=9.5$ m

4.8. Μετρήσεις διάδοσης στον ατμοσφαιρικό αέρα σε πίεση διαφορετική από την ατμοσφαιρική

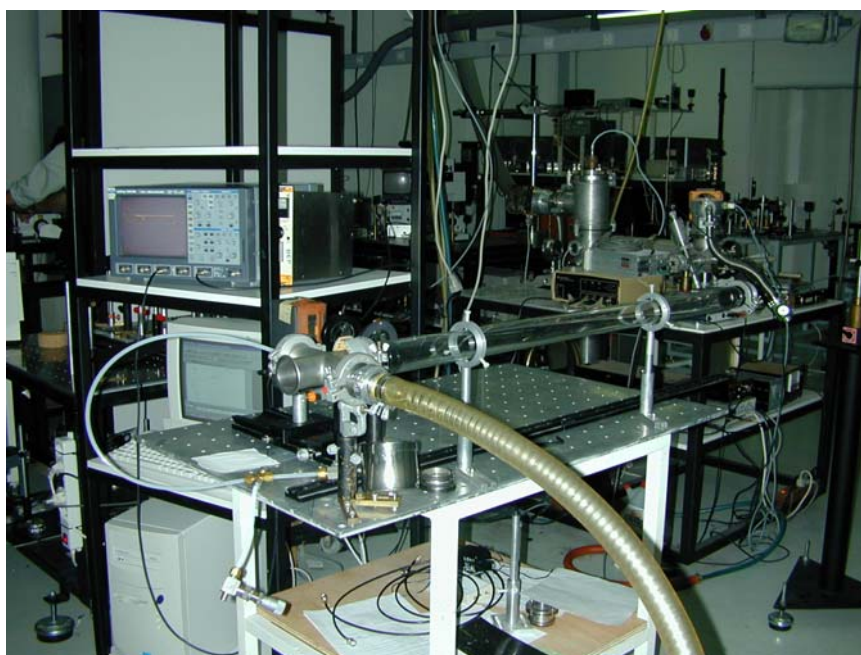
Στην συνέχεια μετρήθηκε η ακτινοβολία φθορισμού σε ελεγχόμενες συνθήκες πίεσης μικρότερη από την ατμοσφαιρική. Αυτό έγινε με την χρήση ενός σωλήνα μήκους 1 m

από χαλαζία (*quartz*) ο οποίος είναι διαπερατός για μήκη κύματος >160 nm (υπεριώδες), ενώ η επίτευξη χαμηλότερων πιέσεων από την ατμοσφαιρική έγινε με άντληση του ατμοσφαιρικού αέρα από μια περιστροφική αντλία κενού, η οποία διέθετε κατάλληλο μετρητικό σύστημα ώστε να μετράται κάθε φορά η πίεση του αέρα μέσα στον σωλήνα.



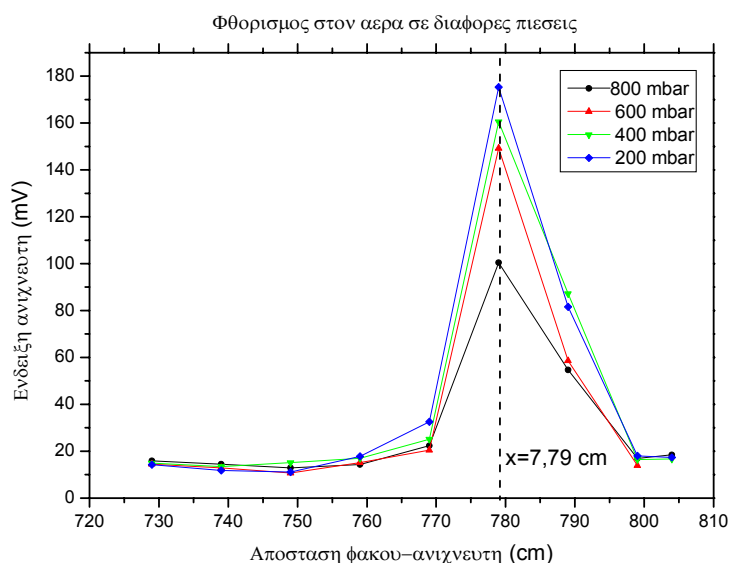
Εικ. 4-10: Σχηματικό διάγραμμα της διάταξης ελεγχόμενης πίεσης για την διάδοση σε ατμοσφαιρικό αέρα

Στις μετρήσεις που έγιναν, η απόσταση ανάμεσα στον φακό (εστιακής απόστασης $f=+9.5$ m) και στο παράθυρο του σωλήνα ήταν 7.24 m ενώ η πίεση κυμαινόταν από 200-800 mbar.



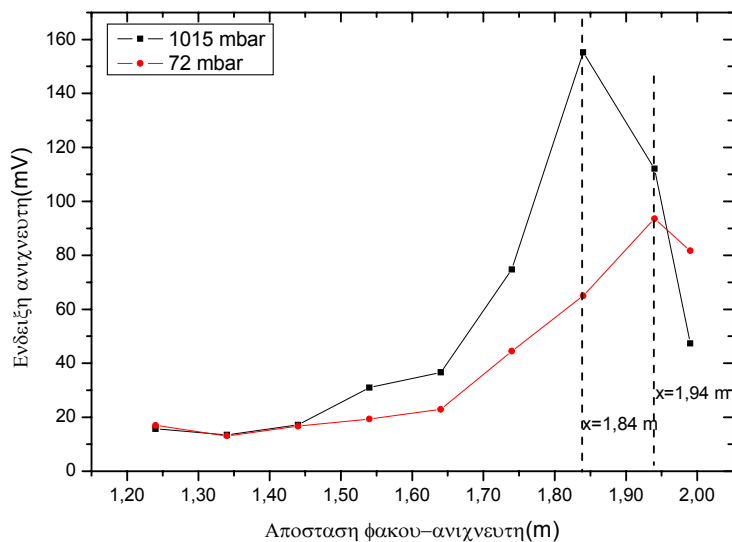
Εικ. 4-11: Πειραματική διάταξη ελεγχόμενης πίεσης για την διάδοση σε ατμοσφαιρικό αέρα

Τα αποτελέσματα των μετρήσεων αυτών φαίνονται στο παρακάτω διάγραμμα.



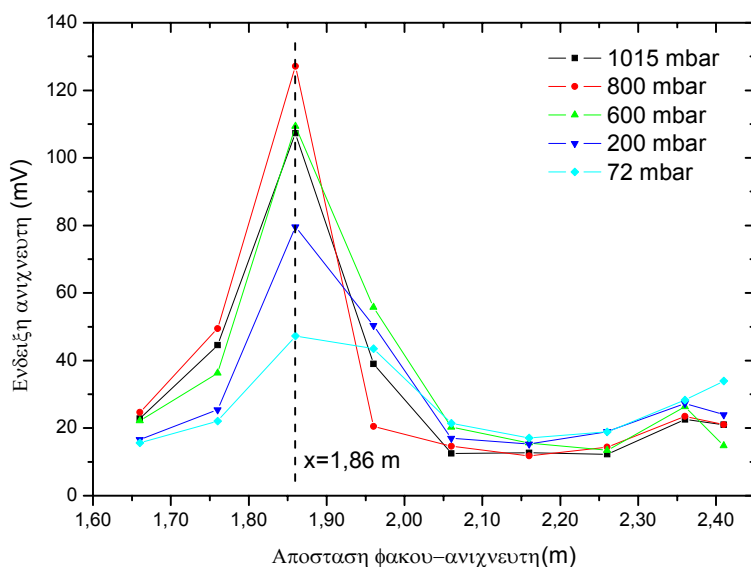
Εικ. 4-12: Μέτρηση ακτινοβολίας φθορισμού για διάδοση στο αέρα σε πιέσεις διαφορετικές της ατμοσφαιρικής εστιάζοντας με φακό $f=9.5\text{m}$ σε απόσταση 7.24 m από τον σωλήνα.

Όπως φαίνεται από το παραπάνω σχήμα, εμφανίζεται η μη γραμμική εστίασης σε απόσταση 7.79 m από τον φακό, ενώ η γραμμική εστίαση θα έπρεπε να συμβαίνει σε απόσταση 9.5 m από τον φακό. Επίσης παρατηρείται ότι σε σχέση με την διάδοση σε ατμοσφαιρική πίεση, στην διάδοση σε μικρότερες πιέσεις υπάρχει μια μετατόπιση της μη γραμμικής εστίας κατά 10 cm πιο μπροστά. Η επίδραση της πίεσης στο φαινόμενο της αυτό-εστίασης αρχίζει να γίνεται αισθητή για τιμές της πίεσης μικρότερες από 200 mbar. Για πιέσεις $P < 200$ mbar, οι μετρήσεις δείχνουν την εξασθένηση των μη γραμμικών φαινομένων. Στην επόμενη μέτρηση που πραγματοποιήθηκε χρησιμοποιήθηκε φακός μικρότερης εστιακής απόστασης για να επιβεβαιωθεί η επαναληψιμότητα των μετρήσεων. Ο φακός που χρησιμοποιήθηκε ήταν εστιακής απόστασης $f=+2$ m και τοποθετήθηκε σε απόσταση 1.24 m μπροστά από τον σωλήνα. Οι μετρήσεις έγιναν σε διαφορετικές πιέσεις, 1015 mbar και 72 mbar και τα αποτελέσματα των μετρήσεων αυτών, φαίνονται στο παρακάτω διάγραμμα (Εικ. 4-13). Από το διάγραμμα φαίνεται ότι στην περίπτωση της πίεσης των 1015 mbar (ατμοσφαιρική πίεση) η γραμμική εστίαση γίνεται σε απόσταση 1.84 m μπροστά από την γραμμική εστία που είναι στα 2 m, ενώ στην περίπτωση που η πίεση είναι μικρή (72 mbar) το φαινόμενο της μη γραμμικής εστίασης είναι ασθενέστερο και η μη γραμμική εστίαση γίνεται πιο κοντά στην γεωμετρική δηλαδή σε απόσταση 1.94 m από τον φακό.



Εικ. 4-13: Μέτρηση ακτινοβολίας φθορισμού για διάδοση στον αέρα εστιάζοντας με φακό $f=+2\text{m}$ σε απόσταση 1.24 m από τον σωλήνα

Επαναλαμβάνοντας τις μετρήσεις με τον ίδιο φακό εστίασης αλλά για αρχική απόσταση σωλήνα-φακού στα 1.66 m και για περισσότερες πιέσεις εμφανίζονται τα αποτελέσματα του παρακάτω διαγράμματος (Εικ. 4-14).

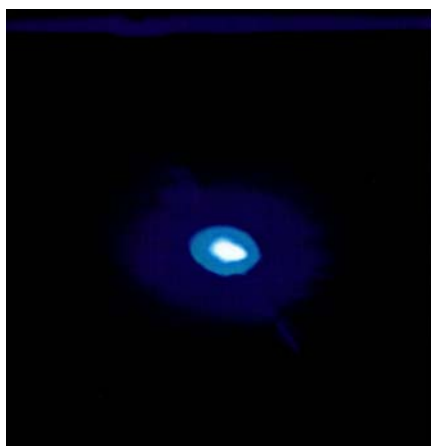


Εικ. 4-14: Μέτρηση ακτινοβολίας φθορισμού για διάδοση σε αέρα σε διαφορετικές πιέσεις εστιάζοντας με φακό $f=+2\text{m}$ σε απόσταση 1.66 m από τον σωλήνα

Όπως μπορεί να φανεί και από το διάγραμμα η μη γραμμική εστίαση εμφανίζεται σε απόσταση 1.86 m μπροστά από τον φακό εστιακής απόστασης 2 m.

4.9. Μετρήσεις ύπαρξης νηματίων υψηλής έντασης (filament)

Το επόμενο βήμα είναι η μελέτη ύπαρξης νηματίων υψηλής έντασης δηλαδή filaments τα οποία είναι φυσικό επακόλουθο της μη γραμμικής εστίασης. Από τους υπολογισμούς που έχουν γίνει, έχει υπολογιστεί ότι η κρίσιμη ισχύς για το λέιζερ που χρησιμοποιείται ($\lambda=248$ nm, $\tau=450$ fs FWHM) είναι $P_{cr}=0.12$ GW ενώ η αρχική ισχύς είναι $P_{in}=6.8$ GW (λαμβάνοντας υπόψη ότι η αρχική ενέργεια είναι 8.72 mJ ανά παλμό ενώ η χρονική διάρκεια είναι $\tau=450$ fs FWHM). Λαμβάνοντας τώρα υπόψη ότι στην πραγματικότητα, η ισχύς είναι μικρότερη κατά 10% λόγω ενεργειακών απωλειών, όπως προκύπτει και από τους υπολογισμούς του μοντέλου, έχουμε ότι είναι 5.6 φορές περίπου μεγαλύτερη από την κρίσιμη ισχύ δηλαδή θεωρητικά υπάρχει δυνατότητα δημιουργίας filaments αφού $P_{in} > P_{cr}$. Η πρώτη ένδειξη σχηματισμού filament πειραματικά, είναι η εμφάνιση μιας πολύ έντονης φωτεινής κηλίδας μικρών διαστάσεων (διαμέτρου τάξεως των 150-200 μm) στο κέντρο της δέσμης όταν απεικονιστεί η ακτινοβολία φθορισμού πάνω σε ένα φωτοευαίσθητο χαρτί. Αυτό βέβαια δεν αποτελεί την πιο ασφαλή μέθοδο για την επιβεβαίωση της ύπαρξης των filaments στην διάδοση της δέσμης, αλλά αποτελεί μια πρώτη διαγνωστική μέθοδο.

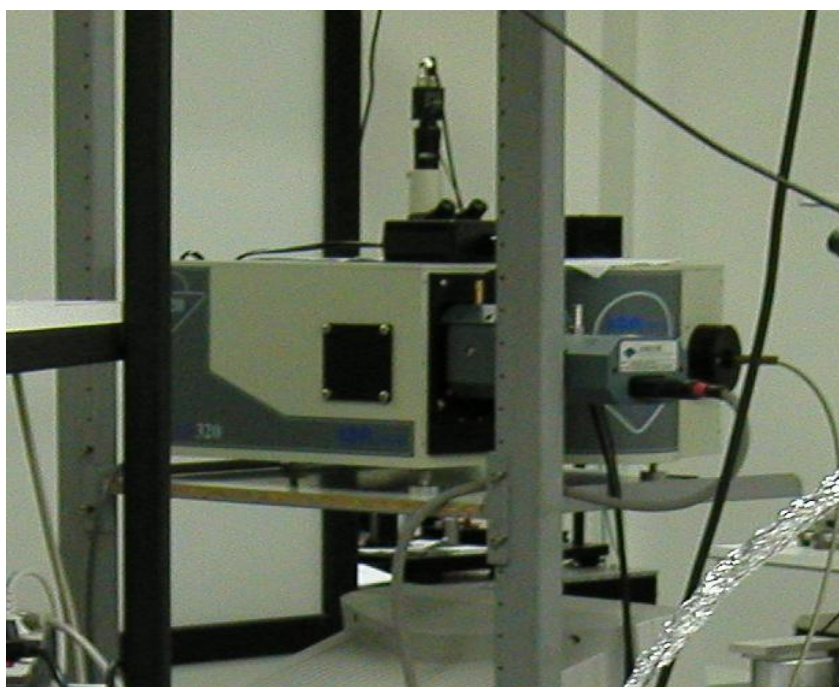


Εικ. 4-15: Οπτικός έλεγχος σχηματισμού filament σε φωτοευαίσθητο χαρτί: παρατηρείται ότι η διάμετρος της δέσμης είναι περίπου 3 mm, ενώ η διάμετρος της φωτεινής κηλίδας μέσα στην δέσμη (filament) είναι 150 μm περίπου.

4.10. Έλεγχος ύπαρξης filaments: Φασματοσκοπική ανάλυση

Σύμφωνα με την θεωρία της διάδοσης παλμών υψηλής έντασης ($>10^{12}$ W/cm²) δημιουργείται πλάσμα λόγω του φαινομένου του ιονισμού. Έτσι, κατά την διάρκεια

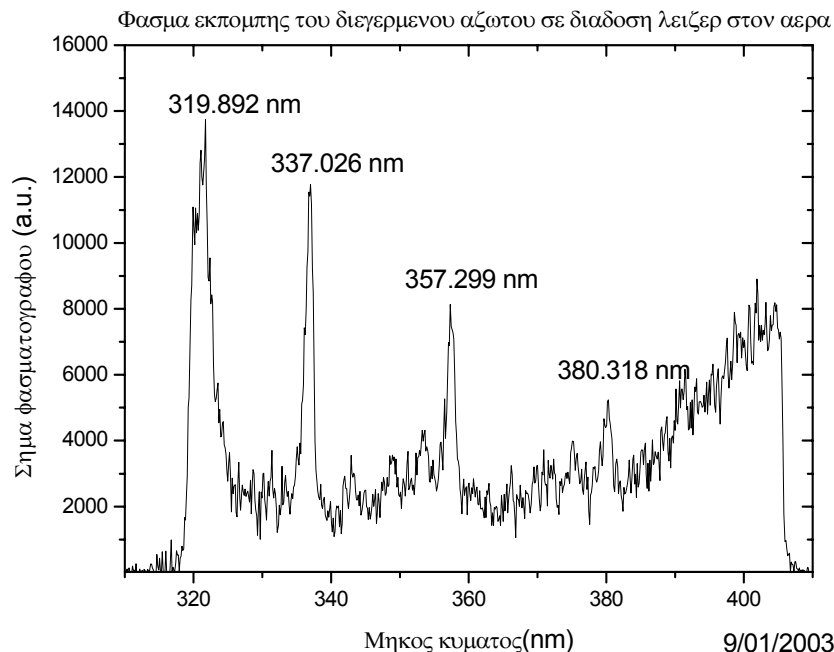
σχηματισμού του πλάσματος λόγω της ισχυρής εστίασης από το φαινόμενο της αυτό-εστίασης (*self focusing*), τα ταχέως κινούμενα ηλεκτρόνια συγκρούονται με τα μόρια του αέρα (κυρίως οξυγόνο και άζωτο) με αποτέλεσμα την διέγερσή τους ή ακόμη και τον ιονισμό τους. Όπως έχει ήδη δειχθεί [106], η ύπαρξη των filaments είναι συνδεδεμένη με την δημιουργία διεγερμένου μοριακού αζώτου N_2^+ του οποίου το φάσμα εκπομπής μπορεί να μετρηθεί χρησιμοποιώντας την κατάλληλη μέθοδο φασματοσκοπικής ανάλυσης. Το σύστημα που χρησιμοποιήθηκε για να πραγματοποιηθεί η φασματοσκοπική ανάλυση, αποτελείται από ένα μονοχρωμάτορα της εταιρίας *Horiba Jobin Yvon* μοντέλο TRIAX 320 που λειτουργεί και ως φασματογράφος, ο οποίος έχει ως ανιχνευτή ένα ενισχυμένο ολοκληρωμένο CCD πολύ υψηλής ανάλυσης (ICCD).



Εικ. 4-16: Μονοχρωμάτορας TRIAX 320

Η δέσμη του λέιζερ εστιάστηκε μέσω του φακού εστιακής απόστασης $f=9.5$ m και στην συνέχεια διαδόθηκε στον αέρα σε ατμοσφαιρική πίεση (απουσία σωλήνα). Έχοντας ήδη καταγράψει προηγουμένως ότι η μη γραμμική εστίαση λαμβάνει χώρα σε απόσταση περίπου 7.8 m πριν από την γεωμετρική εστία, ο μονοχρωμάτορας τοποθετήθηκε κοντά στο σημείο εστίασης και συγκεκριμένα τοποθετήθηκε η άκρη μιας οπτικής ίνας που συνδέεται με τον μονοχρωμάτορα σε κοντινή απόσταση από την δέσμη (< 1 mm) κάθετα στον άξονα διάδοσης της δέσμης. Ο μονοχρωμάτορας βαθμονομήθηκε στο φασματικό εύρος στο οποίο εκπέμπει το διεγερμένο άζωτο (300-

400 nm). Η βαθμονόμηση έγινε χρησιμοποιώντας μια λυχνία βαθμονόμησης υδραργύρου (Hg) και τα αποτελέσματα από αυτήν την μέτρηση φαίνονται στο σχήμα (Εικ. 4-17).



Εικ. 4-17: Φάσμα του διεγερμένου αζώτου N_2^+ στον αέρα στο φασματικό εύρος 300-400 nm

Όπως φαίνεται και από το παραπάνω διάγραμμα επιβεβαιώνεται η δημιουργία filaments κατά την μη γραμμική διάδοση των παλμών του λέιζερ στην ατμόσφαιρα. Τα αποτελέσματα συμφωνούν απόλυτα με αυτά της βιβλιογραφίας [106].

4.11. Υπολογισμός μήκους Rayleigh

Τέλος, συγκρίθηκε το μήκος *Rayleigh* z_R , με το μήκος των δημιουργούμενων filaments. Για να υπάρχει σχηματισμός filaments θα πρέπει να ισχύει ότι $L > z_R$, όπου L είναι το μήκος διάδοσης των filaments ενώ z_R είναι το μήκος *Rayleigh*. Στην περίπτωση τώρα που υπάρχει φακός εστιακής απόστασης f , το μέγεθος της δέσμης w_o

εξαρτάται από τα στοιχεία της εστίασης και δίνεται από την σχέση: $w_o = \frac{f \lambda}{\pi n w_f}$ όπου

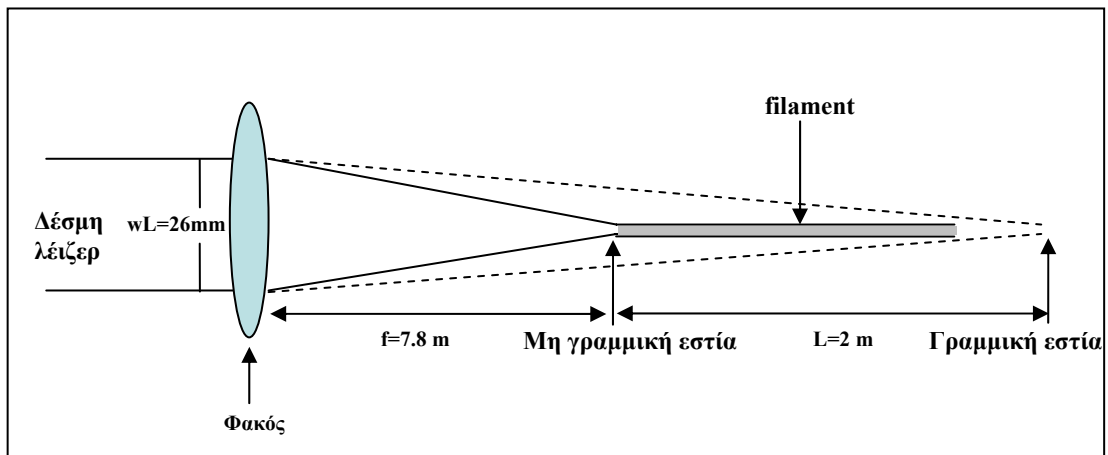
f είναι η εστιακή απόσταση, ενώ το w_f είναι το μέγεθος της δέσμης πάνω στον φακό εστίασης. Επίσης αλλάζει και η μορφή της κατανομής *Gauss* και το αρχικό ηλεκτρικό πεδίο της δέσμης δίνεται από την σχέση:

$$E(r, 0, t) = \sqrt{\frac{2P_{in}}{\pi w_o^2}} \exp \left[-\frac{r^2}{w_o^2} \left(1 + \frac{ikw_o^2}{2f} \right) - \frac{t^2}{t_p^2} \right]$$

όπου, P_{in} είναι η αρχική μέγιστη ισχύς με $P(t) = \int 2\pi r dr |E(r, z=0, t)|^2 = P_{in} \exp(-2t^2/t_p^2)$ w_o είναι το μέγεθος της δέσμης ενώ $t_p=2 t_p$ είναι το μέγιστο χρονικό εύρος στο $1/e^2$ της κατανομής της έντασης. Αυτό που συνήθως χρησιμοποιείται στους υπολογισμούς είναι ο χρόνος στο FWHM και είναι $\tau_{FWHM} = \sqrt{2 \ln 2} t_p$. Το μήκος *Rayleigh* όταν η

δέσμη εστιάζεται θα δίνεται από την σχέση: $z_R = \frac{f^2 \lambda}{\pi n w_L^2}$. Για να υπολογιστεί το z_R

χρειάζονται τα γεωμετρικά χαρακτηριστικά του πειράματος. Όπως φαίνεται και στο παρακάτω σχήμα (Εικ. 4-18), αρχικά το μέγεθος της δέσμης πάνω στον φακό είναι $w_L=26 \text{ mm}$, ενώ ο φακός εστίασης είναι 9.5 m , με μη γεωμετρική εστίαση σε απόσταση $f=7.8 \text{ m}$. Μετά την μη γεωμετρική εστία κάνοντας χρήση φωτοευαίσθητου χαρτιού παρατηρήθηκε η έντονη φωτεινή κηλίδα που δημιουργείται από το filament σε απόσταση $L=2 \text{ m}$ περίπου από την μη γεωμετρική εστία. Έχοντας λοιπόν όλα τα παραπάνω γεωμετρικά χαρακτηριστικά και ότι: $\lambda=248 \text{ nm}$ (μήκος κύματος του λέιζερ), $n=1$ (δείκτης διάθλασης του αέρα), υπολογίστηκε το μήκος *Rayleigh*: $z_R=7.10 \text{ mm}$. Συγκρινόμενο με την απόσταση $L=2 \text{ m}$ είναι $L/z_R \sim 282$ φορές μεγαλύτερο από το μήκος *Rayleigh*, άρα όντως ο σχηματισμός της φωτεινής κηλίδας δεν οφείλεται σε φαινόμενα γεωμετρικής εστίασης αλλά σε μη γραμμικά φαινόμενα.



Εικ. 4-18: Γεωμετρία εστίασης

4.12. Περιγραφή του υπολογιστικού μοντέλου

Διεθνώς, δύο είναι οι βασικές ερευνητικές ομάδες που ασχολούνται με το συγκεκριμένο θέμα τόσο από πλευράς πειράματος, όσο και από πλευράς υπολογιστικής προσομοίωσης: η ομάδα του πανεπιστημίου της Αριζόνα (*Mlejnek, Wright και Moloney* [83]) στις Ηνωμένες Πολιτείες Αμερικής, και η ομάδα του Εργαστηρίου Οπτικών Εφαρμογών, *Laboratoire d'Optique Appliquee* (LOA) [84] στην Γαλλία. Στην παρούσα διατριβή, κατασκευάστηκε ένα υπολογιστικό μοντέλο προσομοίωσης σύμφωνα με τα πρότυπα της ομάδας του LOA[82]. Το συγκεκριμένο μοντέλο μελετήθηκε και κατασκευάστηκε εξ' ολοκλήρου στην Κρήτη στα πλαίσια της διδακτορικής διατριβής, σε συνεργασία του Εργαστηρίου Δομής της Ύλης και Φυσικής Λέιζερ του Πολυτεχνείου Κρήτης με το εργαστήριο Οπτοηλεκτρονικής, Laser & Τεχνολογιών Πλάσματος του τμήματος Ηλεκτρονικής του ΤΕΙ Κρήτης-Παράρτημα Χανίων.

Ο αριθμητικός κώδικας του μοντέλου είναι γραμμένος σε *Mathematica*. Η επιλογή του συγκεκριμένου υπολογιστικού πακέτου επίλυσης μαθηματικών εξισώσεων έγινε με γνώμονα την ευκολία και την ταχύτητα επίλυσης των μαθηματικών προβλημάτων πρώτα σε συμβολική και αναλυτική μορφή και έπειτα αριθμητικά, καθώς και το φιλικό ως προς τον χρήστη περιβάλλον του, γεγονός που καθιστά το συγκεκριμένο πακέτο πολύ πιο ευέλικτο από την χρήση αντίστοιχων γλωσσών προγραμματισμού, όπως είναι π.χ. η FORTRAN και η C/C++. Η εξίσωση διάδοσης επιλύεται αριθμητικά χρησιμοποιώντας την τεχνική αριθμητικής επίλυσης *Crank-Nicholson* η οποία βασίζεται στην μέθοδο των πεπερασμένων διαφορών. Η μέθοδος στηρίζεται στην προσεγγιστική αντικατάσταση των μερικών παραγωγών με την βοήθεια της σειράς Taylor σε απλές «διαφορές » μεταξύ γειτονικών τιμών της συνάρτησης . Για παράδειγμα η πρώτη παράγωγος γίνεται:

$$\frac{df}{dx} = \frac{f(x + \Delta x) - f(x - \Delta x)}{2\Delta x} + O(\Delta x^2)$$

όπου Δx είναι το μοναδιαίο τμήμα διαχωρισμού της διάστασης x . Τελικά η επίλυση ανάγεται στην επίλυση ενός συστήματος με άγνωστους συντελεστές (μη γραμμικό) το οποίο μετασχηματίζοντάς το σε μια συνάρτηση σφάλματος με γνωστούς συντελεστές (στο χρόνο που είμαστε) και εφαρμόζοντας την μέθοδο *Newton-Raphson* προκύπτει:

$$x^m = x^{m-1} - \frac{f(x^{m-1})}{df(x^{m-1})/dx} \Rightarrow (x^m - x^{m-1}) \cdot \frac{df(x^{m-1})}{dx} = -f(x^{m-1})$$

Όπου x είναι η άγνωστη συνάρτηση στο χρόνο m και $-f(x^{m-1})$ η συνάρτηση σφάλματος στο χρόνο. Η εξίσωση μπορεί να γραφεί σε μορφή πινάκων (matrices):

$$A.X = B$$

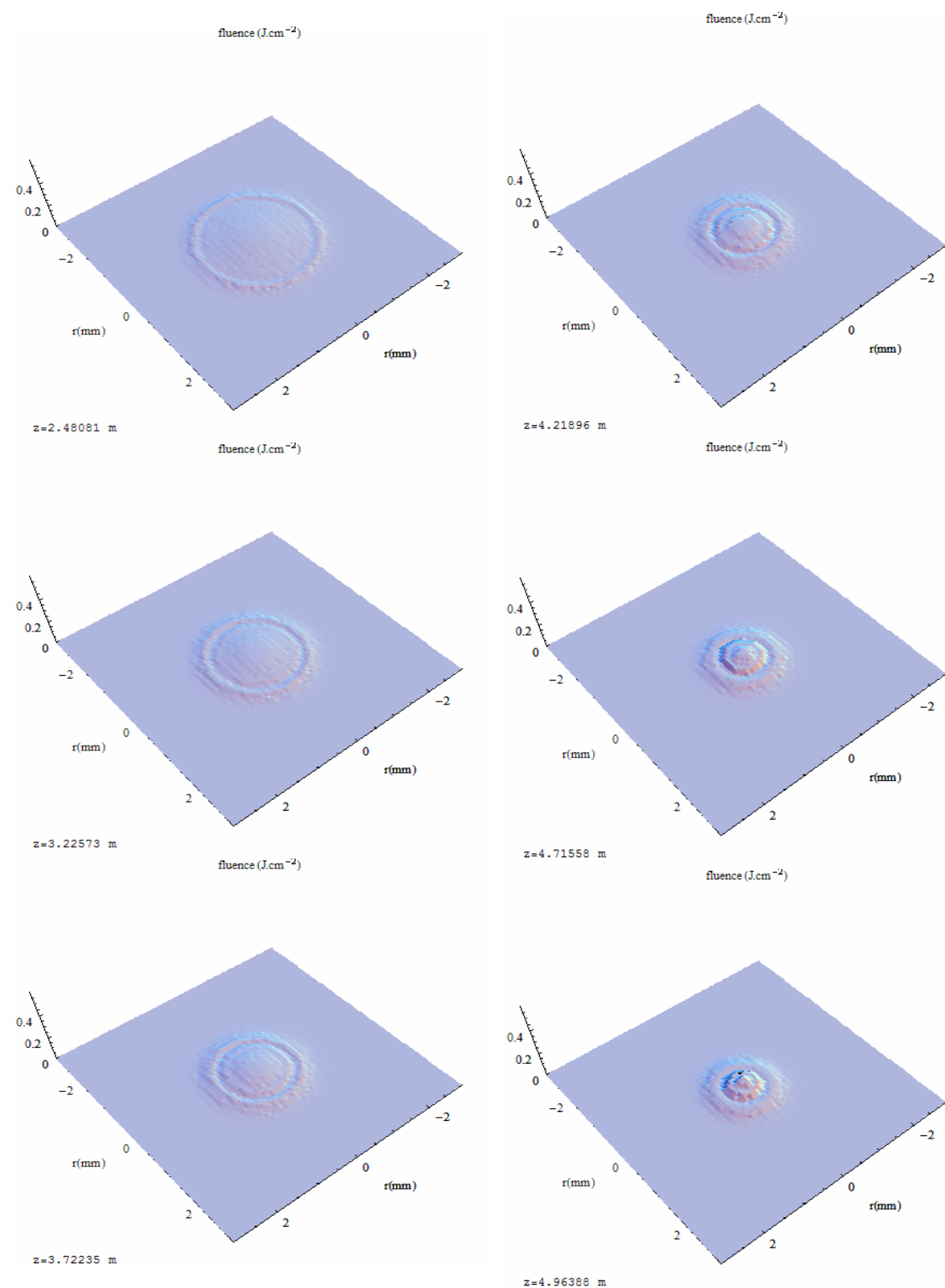
$$\text{όπου: } A = \frac{df(x^{m-1})}{dx}, X = (x^m - x^{m-1}) \text{ και } B = -f(x^{m-1})$$

το οποίο αποτελεί ένα σύστημα γραμμικών εξισώσεων με σταθερούς συντελεστές και καλείται να ενημερώνει τους συντελεστές μέχρι η συνάρτηση σφάλματος συγκλίνει στο μηδέν. Η εξίσωση του ρυθμού ιονισμού επιλύεται αριθμητικά για κάθε σημείο του χώρου με τη μέθοδο *Runge –Kutta* 4^{ης} τάξης για κάθε χρονικό διάστημα και ενημερώνει τον αντίστοιχο συντελεστή της εξίσωσης του ηλεκτρικού πεδίου. Ακόμη, χρησιμοποιείται μια συνάρτηση σταθεροποίησης που υπολογίζει την απώλεια ενέργειας και μεταβάλλει ηλεκτρικό πεδίο έτσι ώστε να διορθώνει το ισοζύγιο της ενέργειας. Ως συνοριακή συνθήκη έχει χρησιμοποιηθεί μια συνάρτηση απορρόφησης (*damp-function*) [Krause et.al., *Phys. Rev. A* **45**, pp. 4998 (1992)] για να αποκλειστούν οι ανακλάσεις στα όρια του πλέγματος. Το ηλεκτρικό πεδίο $E(r,t,z)$ αναπαριστάται από ένα «πλέγμα» μοναδιαίων χωρικών διαστάσεων Δz και Δr κατά μήκος του άξονα διάδοσης και κατά μήκος του κάθετου στον άξονα διάδοσης αντίστοιχα. Ως αρχικές συνθήκες έχει οριστεί ότι η αρχική δέσμη έχει χωρικό προφίλ τύπου *super-Gauss* (αυτό προκύπτει κάνοντας προσομοίωση στο σχήμα του διαφράγματος του πείραματος) με ένα εγκάρσιο εύρος $w_0 = 3 \text{ mm}$. Το χρονικό προφίλ της αρχικής δέσμης θεωρείται ότι έχει μορφή ενός παλμού *sech*² με διάρκεια παλμού $\tau_0 = 450 \text{ fs}$. Αυτό προκύπτει από την προσομοίωση των πειραματικών δεδομένων που από το λέιζερ. Η σύγκλιση της δέσμης αντιστοιχεί στην εστίαση με ένα φακό μεγάλης εστιακής απόστασης $f = 9.5 \text{ m}$. Στους υπολογισμούς που έγιναν δεν συμπεριλήφθηκαν φαινόμενα που οφείλονται σε καθυστερημένα μη γραμμικά φαινόμενα όπως το καθυστερημένο φαινόμενο *Kerr* ή φαινόμενο *Raman* που λαμβάνει χώρα κατά το τελευταίο τμήμα του παλμού. Αυτή η προσέγγιση δικαιολογείται από το γεγονός ότι το φάσμα του λέιζερ δεν εμφανίζει σημαντική φασματική απόκλιση σε χαμηλές ενέργειες στην περιοχή που δεν έχουμε ιονισμό δηλαδή πριν την εστίαση. Επίσης έχει παραλειφθεί από τους υπολογισμούς και το φαινόμενο της διασποράς ταχύτητας

ομάδος λόγω της σχετικά μεγάλης χρονικής διάρκειας των παλμών(450 fs) και λαμβάνοντας υπόψη ότι η διάδοση των παλμών γίνεται για μερικά μέτρα αλλά κυρίως και για λόγους μείωσης του χρόνου υπολογισμού του μοντέλου.

4.13. Χωρική εξέλιξη της πυκνότητας ενέργειας των διαδιδόμενων παλμών

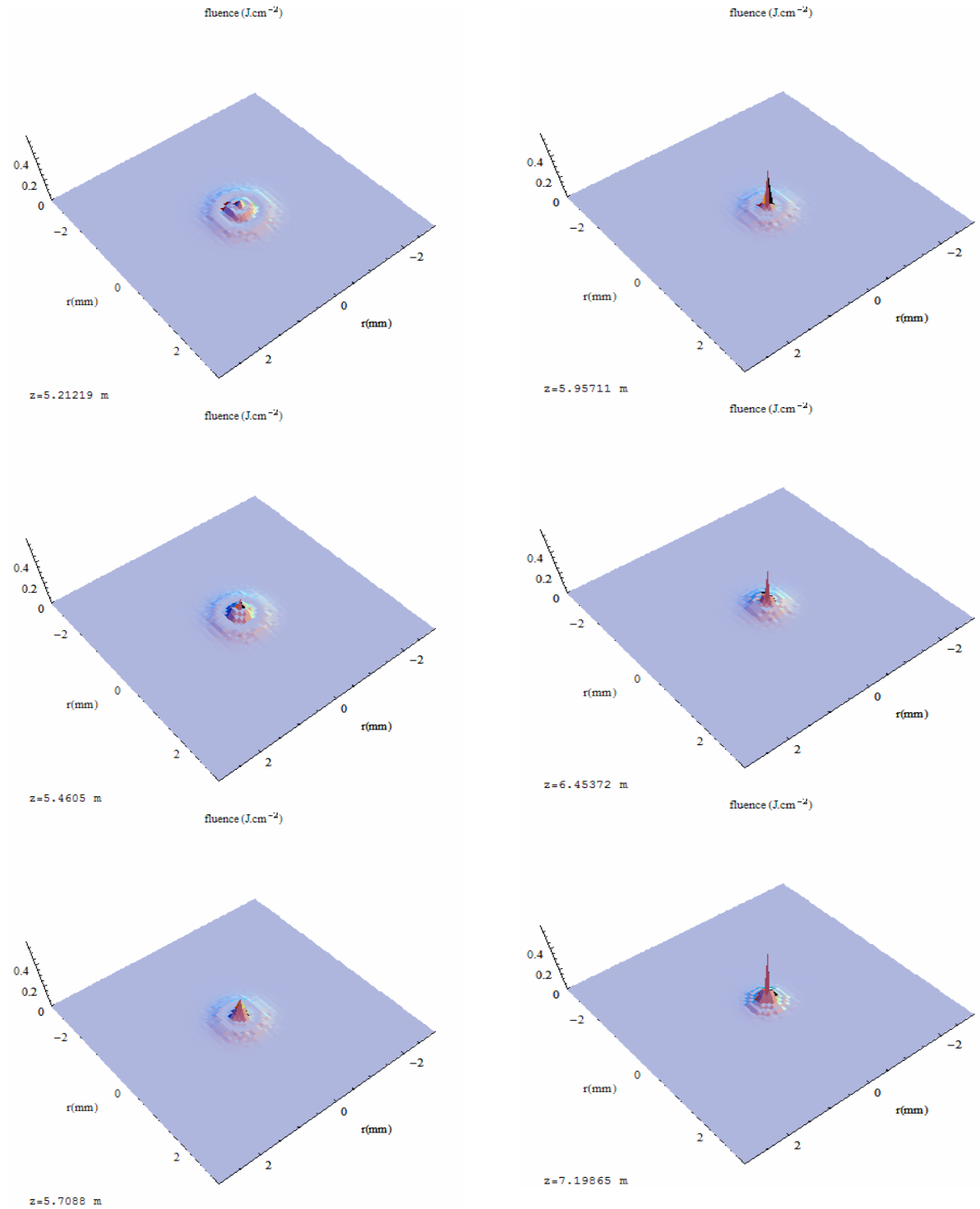
Τα διαγράμματα του παρακάτω σχήματος (Εικ. 4-19) δείχνουν την χωρική εξέλιξη της πυκνότητας ενέργειας (J/cm^2) της δέσμης του λέιζερ σε διαφορετικές αποστάσεις κατά μήκος του άξονα διάδοσης z πριν από την δημιουργία μη γραμμικών φαινομένων, δηλαδή πριν από την δημιουργία αυτο-οδηγούμενων φαινομένων στην δέσμη. Η επιλογή της πυκνότητας ενέργειας (*fluence*), που έχει μονάδες ενέργειας (σε Joule) ανά μονάδα επιφάνειας (σε cm^2), στους υπολογισμούς αντί της βασικής έννοιας της έντασης (*intensity*), δηλαδή της ισχύος (σε Watt) ανά μονάδα επιφάνειας (σε cm^2) γίνεται για λόγους απλότητας αφού η διάρκεια των παλμών δεν μεταβάλλεται (450 fs). Στο σημείο αυτό πρέπει να σημειωθεί ότι στο μοντέλο προσομοίωσης η δέσμη έχει αρχική ενέργεια 8 mJ ανά παλμό. Στα συγκεκριμένα διαγράμματα (Εικ. 4-19) απεικονίζεται η πυκνότητα ενέργειας για αποστάσεις $2 < z < 5$ m. Όπως παρατηρείται, η αρχική δέσμη ακτίνας 3 mm βαθμιαία μειώνεται συγκλίνοντας. Εδώ θεωρείται ότι η σύγκλιση είναι λόγω του φακού εστίασης, διότι δεν μπορεί να ειπωθεί με ακρίβεια ότι υπάρχει φαινόμενο αυτο-εστίασης (*Kerr effect*). Για τα πρώτα μέτρα διάδοσης, δηλαδή αμέσως μετά τον φακό, υπολογίζεται με βάση και τα αντίστοιχα διαγράμματα του σχήματος (Εικ. 4-19) ότι η πυκνότητα ενέργειας της δέσμης είναι της τάξεως του $0.1 \text{ J}/\text{cm}^2$ ή αλλιώς $2.2 \times 10^{11} \text{ W}/\text{cm}^2$ σε μονάδες έντασης. Όσο αυξάνει η απόσταση διάδοσης, τα φαινόμενα εστίασης γίνονται πιο έντονα, όπως φαίνεται στην δεύτερη στήλη του σχήματος Εικ. 4-19, σε αποστάσεις μεταξύ 4 και 5 περίπου μέτρων από τον φακό εστίασης. Επίσης φαίνεται ότι η ακτίνα της δέσμης είναι μικρότερη από 2 mm, ενώ η πυκνότητα ενέργειας αρχίζει σταδιακά να αυξάνεται ακόμη περισσότερο. Το γεγονός της απότομης μείωσης της ακτίνας της δέσμης σε τόσο μικρή απόσταση από τον φακό εστίασης, είναι η αρχική ένδειξη της εμφάνισης μη γραμμικών φαινομένων εστίασης, τα οποία επιβεβαιώνονται πλήρως σε μεγαλύτερες αποστάσεις διάδοσης όπως θα φανεί και από τα επόμενα σχήματα που ακολουθούν.



Εικ. 4-19: Προσομοίωση της χωρικής κατανομής της πυκνότητας ενέργειας σε J/cm^2 σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης z , πριν από την αυτο-εστίαση ($2 < z < 5$) m.

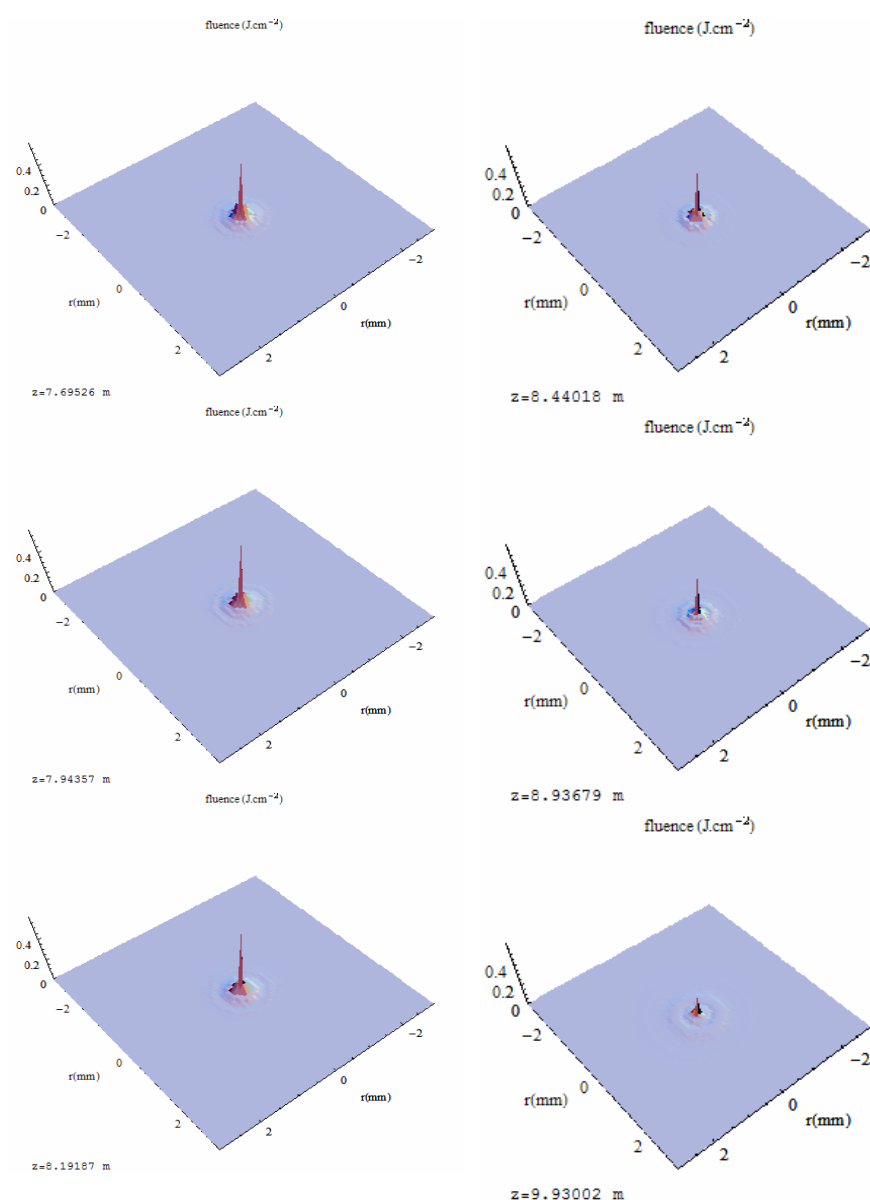
Στο επόμενο σχήμα (Εικ. 4-20) απεικονίζεται η πυκνότητα ενέργειας για αποστάσεις διάδοσης $5 < z < 7$ m. Όπως μπορεί να φανεί από τα διαγράμματα αυτά, η δέσμη από τα 5.5 μέτρα περίπου, εμφανίζει έντονα φαινόμενα εστίασης ενώ παράλληλα μειώνεται η ακτίνα της. Η πυκνότητα ενέργειας έχει φτάσει στα 0.2 J/cm^2 (ή $4.4 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$) και η ακτίνα είναι στα 100 μm περίπου. Αυτό το αποτέλεσμα έρχεται σε αντίθεση με την κλασική γεωμετρική οπτική, στην οποία θα περίμενε κανείς η δέσμη να αρχίζει να εστιάζεται κοντά στην εστιακή απόσταση του φακού που είναι στα 9.5 m. Αυτό το αποτέλεσμα, είναι η πρώτη σαφής απόδειξη ότι υπάρχει η εμφάνιση του μη γραμμικού φαινομένου της αυτο-εστίασης. Όσον αυξάνεται η απόσταση διάδοσης, τα φαινόμενα της μη γραμμικής εστίασης γίνονται ολοένα και πιο έντονα. Έτσι, όπως φαίνεται και στο τελευταίο διάγραμμα της δεύτερης στήλης του σχήματος (Εικ. 4-20), στα 7.2 m από τον φακό η δέσμη έχει εστιαστεί αρκετά ώστε η ακτίνα της να έχει φτάσει σε διαστάσεις μικρότερες από 100 μm , ενώ η πυκνότητα ενέργειας έχει φτάσει περίπου στα 0.4 J/cm^2 (ή $0.7 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$). Όπως φαίνεται και από τα παραπάνω, τα έντονα μη γραμμικά φαινόμενα συμβαίνουν για εντάσεις της τάξεως του 10^{12} W/cm^2 , όπως προβλέπει και η θεωρία αλληλεπίδρασης ακτινοβολίας λέιζερ με αέρια.

Στα διαγράμματα του σχήματος (Εικ. 4-21) που ακολουθούν απεικονίζεται η πυκνότητα ενέργειας για αποστάσεις διάδοσης $7 < z < 10$ m, και φαίνεται καθαρά από τα δύο πρώτα διαγράμματα της πρώτης στήλης του σχήματος, ότι η μη γραμμική εστίαση έχει μέγιστη τιμή σε απόσταση που κυμαίνεται από 7.69 – 7.94 m από το φακό εστίασης, δηλαδή 1.8 m περίπου πριν από την γεωμετρική εστία $f=9.5$ m. Στην περιοχή αυτή, η πυκνότητα ενέργειας παίρνει την μέγιστη της τιμή που είναι 0.6 J/cm^2 περίπου ή $1.3 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ σε μονάδες έντασης, ενώ η ακτίνα της δέσμης παραμένει σταθερή στα 70-80 μm περίπου. Στην συνέχεια, για απόσταση μεγαλύτερη από τα 8 μέτρα, η ακτίνα της δέσμης φαίνεται ότι διατηρείται σταθερή, ενώ η πυκνότητα ενέργειας φαίνεται ότι μειώνεται στα 0.2 J/cm^2 στα 10 m. Το μοντέλο προβλέπει ότι σε αποστάσεις μεγαλύτερες από 10 m, η δέσμη αποκτά μια σταθερή πυκνότητα ενέργειας 0.2 J/cm^2 , με σταθερή ακτίνα περίπου 80 μm . Η πρόβλεψη αυτή επιβεβαιώνεται και πειραματικά.



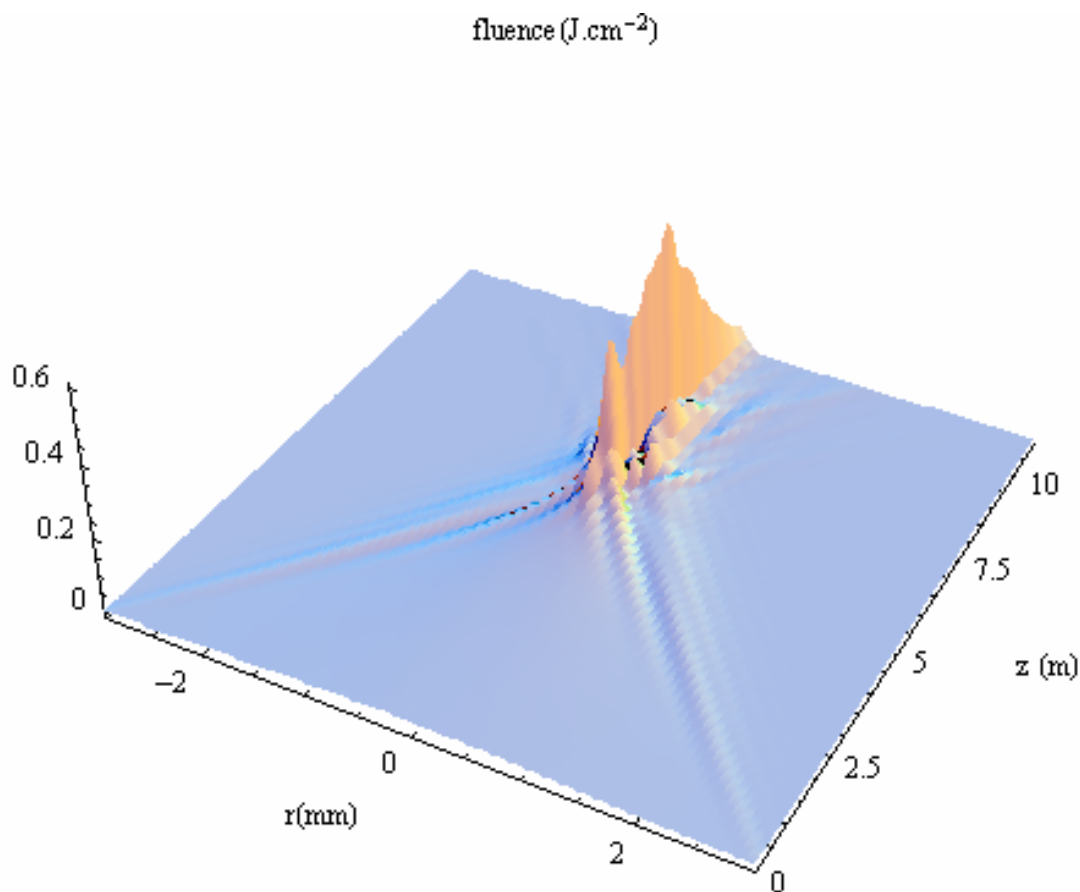
Εικ. 4-20: Προσομοίωση της χωρικής κατανομής της πυκνότητας ενέργειας σε J/cm^2 σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης z , κατά την δημιουργία της αυτο-εστίασης ($5 < z < 7$).

Αυτή η συμπεριφορά της δέσμης εξηγείται φυσικά, και συμβαίνει λόγω της δυναμικής ισορροπίας μεταξύ της αύξησης της ενέργειας λόγω αυτο-εστίασης και των έντονων φαινομένων περίθλασης (οι ομόκεντροι δακτύλιοι γύρω από την μέγιστη τιμή) αλλά και του δημιουργούμενου πλάσματος που έχει κατώφλι έντασης στα 10^{12} W/cm², με τελικό αποτέλεσμα την σταθεροποίηση της ενέργειας σε μια τιμή μικρότερη από αυτή που είχε η δέσμη στο σημείο μέγιστης αυτο-εστίασης, ενώ οι διαστάσεις της δέσμης παραμένουν σταθερές για μεγάλες αποστάσεις.



Εικ. 4-21: Προσομοίωση της χωρικής κατανομής της πυκνότητας ενέργειας σε J/cm² σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης z , κατά την δημιουργία της αυτο-εστίασης ($7 < z < 10$).

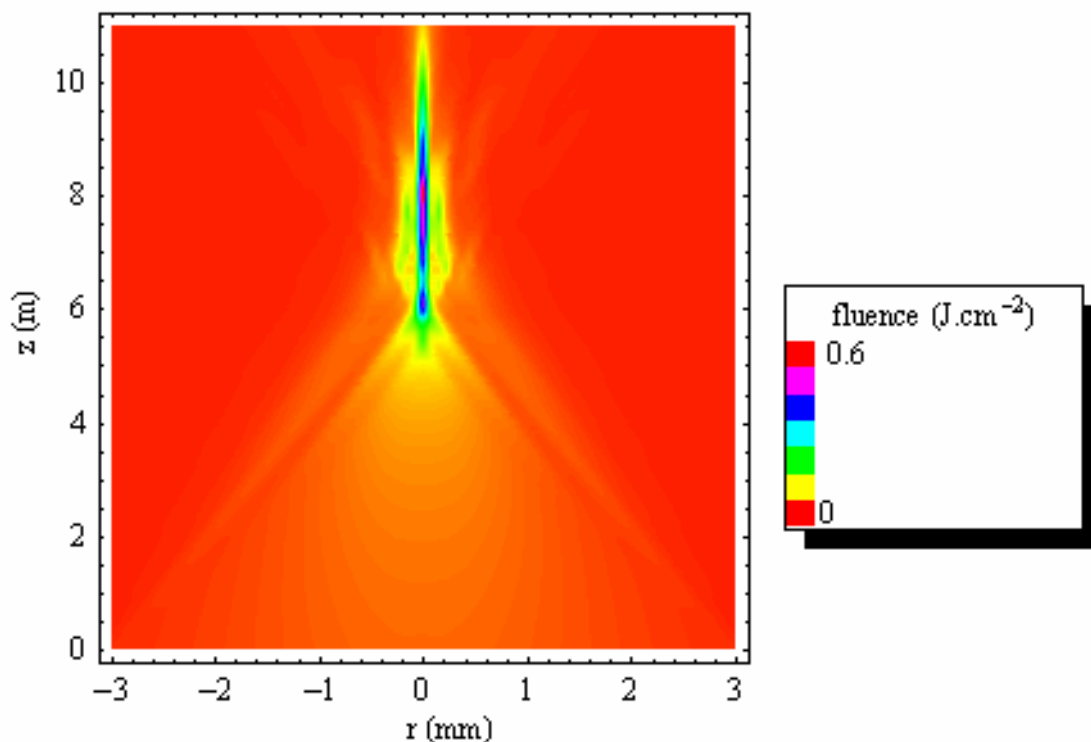
Στο σχήμα που ακολουθεί (Εικ. 4-22), απεικονίζεται η πυκνότητα ενέργειας ως συνάρτηση της ακτίνας της δέσμης και της απόστασης διάδοσης σε τρισδιάστατη απεικόνιση.



Εικ. 4-22: Υπολογισμός της πυκνότητας ενέργειας (J/cm²) ως συνάρτηση της διαμέτρου της δέσμης r σε mm και της απόστασης διάδοσης z σε m (τρειςδιάστατη απεικόνιση).

Από το παραπάνω σχήμα φαίνεται καθαρά όλο το φαινόμενο που περιγράφηκε παραπάνω για την συνολική απόσταση διάδοσης από 0-10 m. Όπως μπορεί να φανεί, η αυτο-εστίαση συμβαίνει μετά τα 7.8 m διάδοσης ενώ η μέγιστη τιμή της πυκνότητας στο σημείο της αυτο-εστίασης φτάνει την τιμή των 0.6 J/cm² και η ακτίνα της δέσμης από 3 mm που ήταν αρχικά, μειώνεται στα 70-80 μ m περίπου όταν εστιαστεί και παραμένει σταθερή για αρκετά μεγάλη απόσταση. Επίσης παρατηρείται ότι σε απόσταση περίπου 6 μέτρων εμφανίζεται το πρώτο μέγιστο στην πυκνότητα ενέργειας με τιμή 0.4 J/cm² περίπου, ενώ στην συνέχεια η πυκνότητα ενέργειας μειώνεται λίγο για να φτάσει στην απόσταση των 7.8 μέτρων περίπου που έχει την μέγιστη τιμή η πυκνότητα ενέργειας.

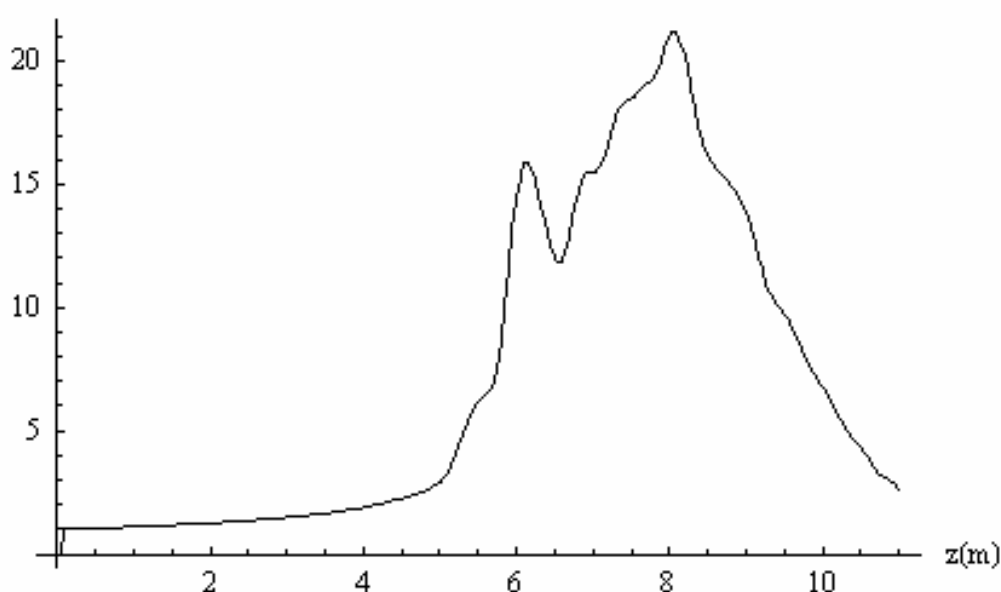
Το φαινόμενο αυτό εξηγείται ως εξής: Στην αρχή του φαινομένου, η αυτο-εστίαση λόγω φαινομένου *Kerr* είναι πολύ έντονη με αποτέλεσμα η δέσμη όντως να αρχίσει να αυτο-εστιάζεται σε απόσταση 6 μέτρων περίπου από τον φακό. Στην συνέχεια όμως λόγω της υψηλής εστιασμένης ενέργειας, η περιοχή ιονίζεται και παράγεται πλάσμα το οποίο λειτουργεί ως αποκλίνων φακός και απο-εστιάζει την δέσμη, η οποία στην συνέχεια θα αρχίσει να αυτο-εστιάζεται και πάλι σε απόσταση 7.8 μέτρων από τον φακό εστίασης για να απο-εστιαστεί και πάλι λόγω του δημιουργούμενου πλάσματος. Στις ενδιάμεσες αποστάσεις υπάρχει δυναμική ισορροπία και των δύο φαινομένων με αποτέλεσμα να εμφανίζεται αυτο-οδήγηση της δέσμης. Στο επόμενο σχήμα (Εικ. 4-23) απεικονίζεται η πυκνότητα ενέργειας ως συνάρτηση της ακτίνας της δέσμης και της απόστασης διάδοσης σε ισοϋψής απεικόνιση (*contour*). Στο σχήμα αυτό φαίνεται καθαρά η κατανομή της πυκνότητας ενέργειας καθώς και τα χαρακτηριστικά της αυτο-εστίασης όπως περιγράφηκαν παραπάνω. Ενδιαφέρον παρουσιάζει η διασπορά της ενέργειας στην περιοχή της αυτο-εστίασης δηλαδή μετά τα 7.8 μέτρα της διάδοσης καθώς και το μέγεθος της δέσμης που φαίνεται ότι έχει ακτίνα και που κυμαίνεται από 70-80 μm . Το αποτέλεσμα αυτό έρχεται σε πλήρη συμφωνία με τα πειραματικά αποτελέσματα.



Εικ. 4-23: Υπολογισμός της πυκνότητας ενέργειας (J/cm^2) ως συνάρτηση της διαμέτρου της δέσμης r σε mm και της απόστασης διάδοσης z σε m σε ισοϋψής απεικόνιση (*contour*).

Στην συνέχεια, στο σχήμα (Εικ. 4-24) εμφανίζεται το ποσοστό της αρχικής ενέργειας της δέσμης που υπόκειται σε αυτο-εστίαση κατά μήκος της άξονα διάδοσης. Όπως φαίνεται καθαρά, η αρχική αυτο-εστίαση της δέσμης γίνεται στα 6 μέτρα περίπου από τον φακό εστίασης, η οποία στην συνέχεια λόγω του δημιουργούμενου πλάσματος μειώνεται και μετά από 7.8 μέτρα από τον φακό εμφανίζεται να υπάρχει η βέλτιστη συνθήκη αυτο-εστίασης, και τελικά αυτό που προκύπτει είναι ότι το 21% περίπου της αρχικής ενέργειας πηγαίνει στην αυτο-εστίαση της δέσμης, ενώ το υπόλοιπο μέρος διαχέεται στον περιβάλλοντα χώρο λόγω των έντονων φαινομένων της απο-εστίασης που οφείλονται στο πλάσμα αλλά και στην περίθλαση.

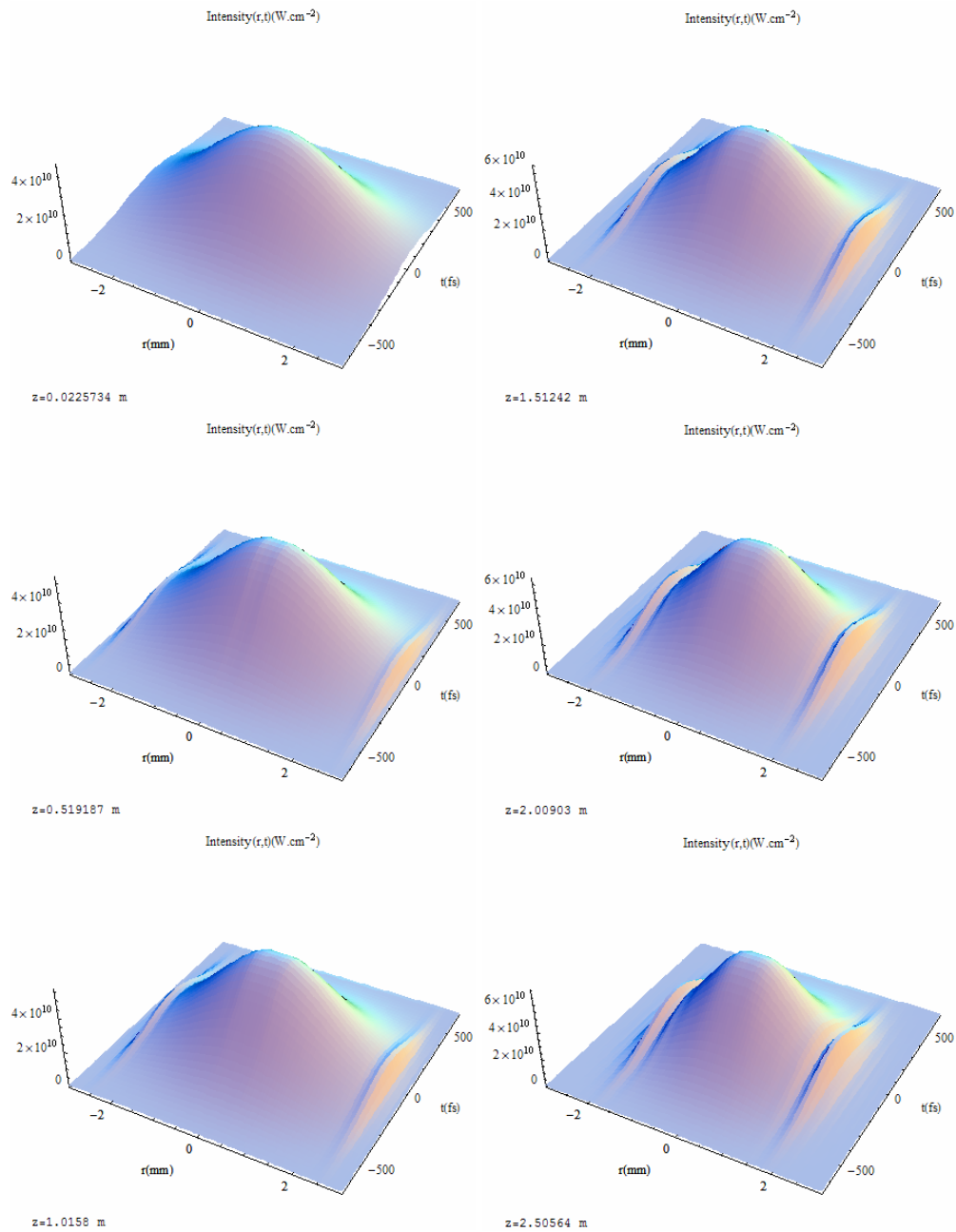
energyfraction(r=0,z)



Εικ. 4-24: Ποσοστό της αρχικής ενέργειας της δέσμης που υπόκειται σε αυτο-εστίαση κατά μήκος του άξονα διάδοσης z.

4.14. Εξέλιξη χωρικής και χρονικής κατανομής της έντασης της δέσμης

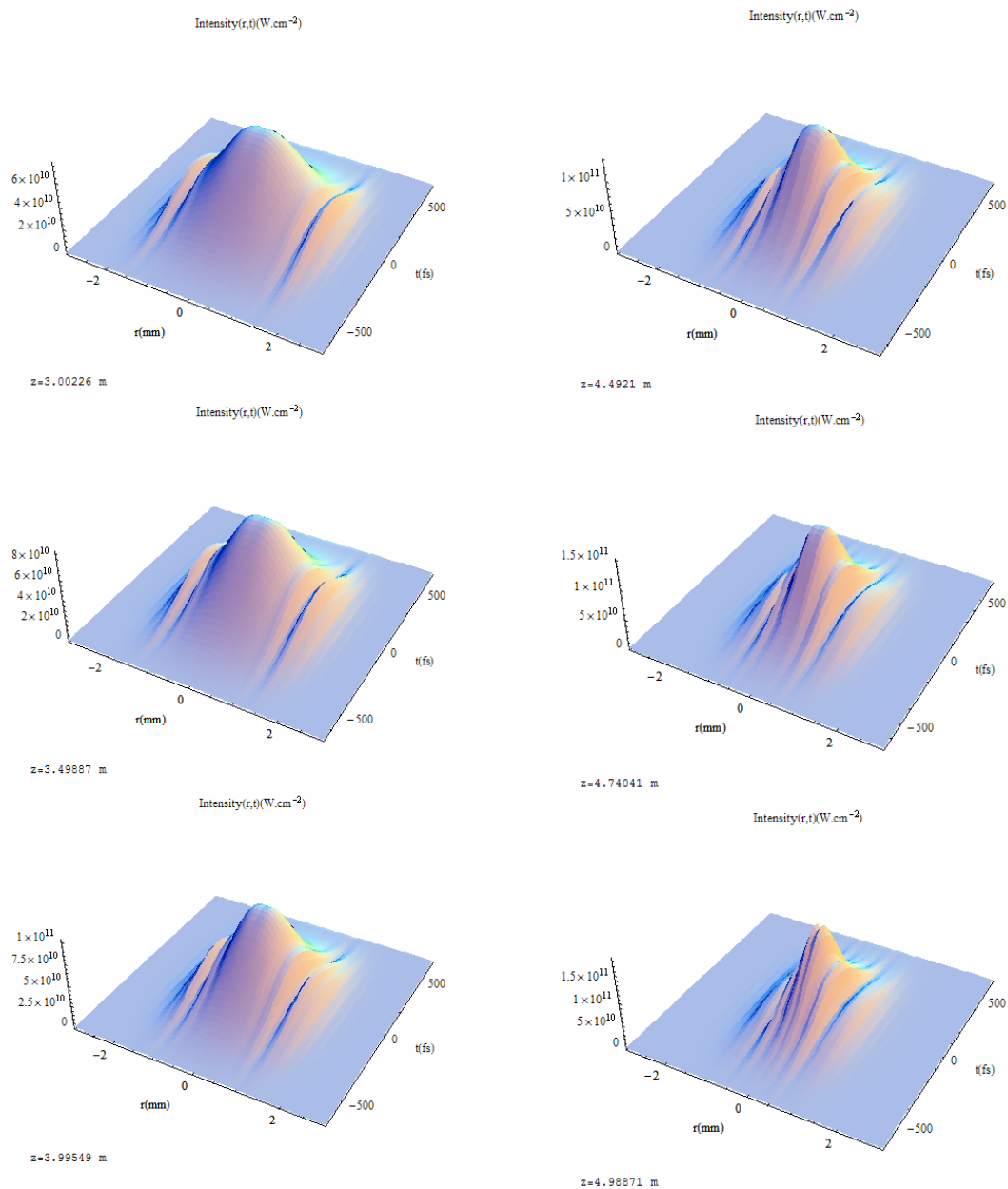
Στην συνέχεια υπολογίστηκε η χωρική και η χρονική κατανομή της έντασης της δέσμης ως συνάρτηση της ακτίνας της και της χρονικής διάρκειας του παλμού για διαφορετικές αποστάσεις διάδοσης. Στο σχήμα που ακολουθεί (Εικ. 4-25), απεικονίζεται η κατανομή της έντασης της δέσμης στα πρώτα μέτρα διάδοσης $0 < z < 2$ m. Η αρχική κατανομή έχει μορφή Gauss αρχικής έντασης περίπου 4×10^{10} W/cm². Παρατηρείται ότι από τα πρώτα κιόλας μέτρα της διάδοσης εμφανίζονται έντονα φαινόμενα εστίασης με ταυτόχρονη αύξηση της έντασης από 4×10^{10} σε 6×10^{10} W/cm², ενώ αρχίζει να αλλάζει και το χρονικό προφίλ της δέσμης.



Εικ. 4-25: Υπολογισμός της κατανομής της έντασης της δέσμης στα πρώτα μέτρα διάδοσης ($0 < z < 2$) m.

Στη συνέχεια στο σχήμα (Εικ. 4-26) απεικονίζεται η μεταβολή της έντασης της δέσμης για απόσταση διάδοσης $3 < z < 5$ m, και παρατηρείται ότι η ένταση αυξάνεται

από $6 \times 10^{10} \text{ W/cm}^2$ (το πρώτο διάγραμμα της πρώτης στήλης σε απόσταση $z=3 \text{ m}$), σε $1.5 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ (το τρίτο διάγραμμα της δεύτερης στήλης), ενώ ταυτόχρονα η δέσμη εστιάζεται περισσότερο μειώνοντας ακόμη την ακτίνα της. Το χρονικό προφίλ της δέσμης στα πρώτα αυτά μέτρα διάδοσης αρχίζει και αυτό να διαταράσσεται με τα άκρα της δέσμης να φαίνεται ότι αρχίζουν να «καθυστερούν» σε σχέση με το κεντρικό μέρος της δέσμης.



Εικ. 4-26: Υπολογισμός της κατανομής της έντασης της δέσμης για διάδοση από $3 < z < 5 \text{ m}$.

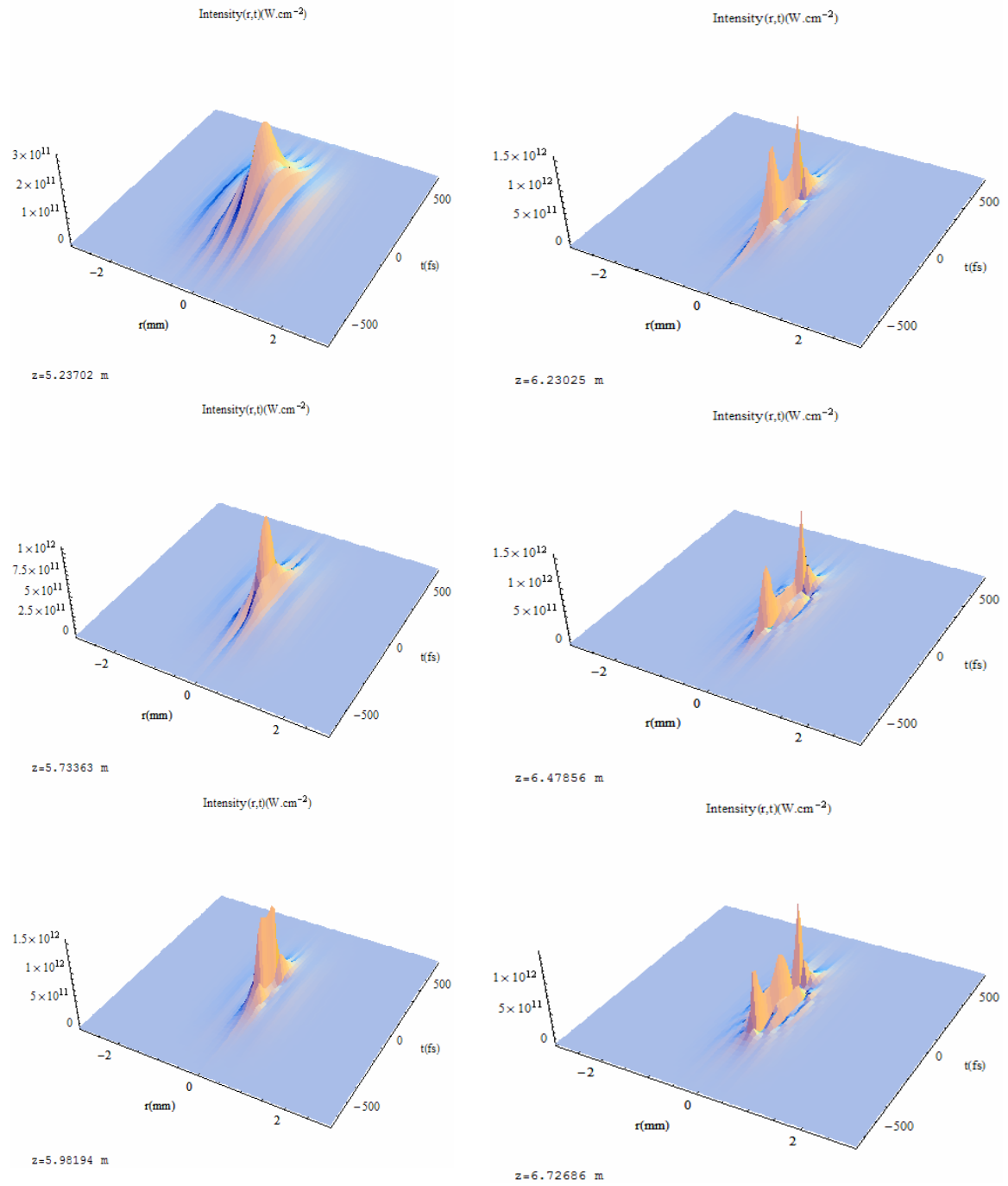
Στην συνέχεια απεικονίζεται η μεταβολή της έντασης σε αποστάσεις $5 < z < 7$ m (Εικ. 4-27). Όπως φαίνεται καθαρά στο πρώτο διάγραμμα της δεύτερης στήλης σε απόσταση $z=6$ m περίπου, το χρονικό προφίλ του παλμού «σπάει» σε δύο υπο-παλμούς (*pulse splitting*) ενώ όσο αυξάνει η απόσταση διάδοσης ο παλμός φαίνεται να «σπάει» σε περισσότερα από δύο μέρη, με την ένταση να φτάνει στα 10^{12} W/cm² στα μέγιστα σημεία της κατανομής.

Το φαινόμενο αυτό οφείλεται στην αυτο-διαμόρφωση φάσης (*self-phase modulation*) και ξεκινάει ταυτόχρονα με την αυτο-εστίαση, η οποία όπως έχει ήδη ειπωθεί ξεκινάει και αυτή στα 6 m περίπου. Το φαινόμενο της διάσπασης του αρχικού παλμού σε δύο υπο-παλμούς κατά την διάδοση, οφείλεται κυρίως στο φαινόμενο του πολυφωτονικού ιονισμού και το οποίο εξηγείται από την φυσική ως εξής:

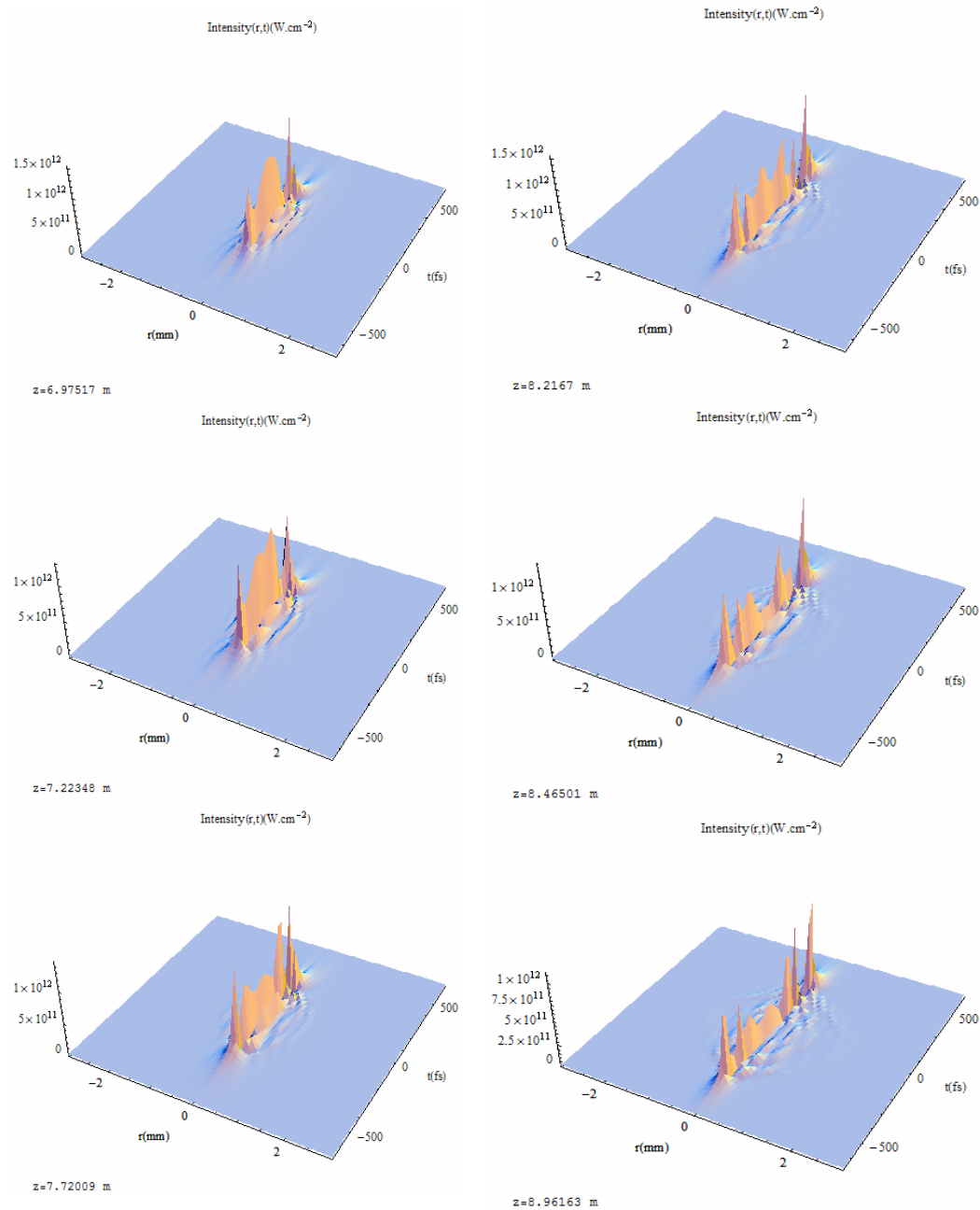
Καθώς υπάρχει απότομη αύξηση της ενέργειας λόγω του φαινομένου της αυτό-εστίασης στο κέντρο του παλμού εμφανίζεται ταυτόχρονα και ο πολυφωτονικός ιονισμός ο οποίος δημιουργεί πλάσμα στην κεντρική περιοχή με αποτέλεσμα να μειώνεται η ενέργεια στο κέντρο από το φαινόμενο της αποεστίασης. Αυτό έχει ως τελικό αποτέλεσμα την εμφάνιση του «σπασίματος» στην μέση και την δημιουργία δύο μεγίστων εκατέρωθεν του παλμού, δηλαδή το εμπρόσθιο τμήμα του παλμού που ταξιδεύει πιο «γρήγορα» από το οπίσθιο τμήμα του παλμού που ταξιδεύει πιο «αργά». Αυτό είναι το φαινόμενο της αυτο-διαμόρφωσης φάσης.

Στα διαγράμματα του σχήματος Εικ. 4-28, τα οποία απεικονίζουν την μεταβολή της έντασης σε αποστάσεις $7 < z < 9$ m, παρατηρείται ότι στην περιοχή της μέγιστης αυτο-εστίασης δηλαδή μεταξύ 7.7 – 8.2 m, η ένταση παίρνει την μέγιστη τιμή της και είναι 1.5×10^{12} W/cm², ενώ από τα 9 m και μετά εμφανίζονται έντονα φαινόμενα περίθλασης που μειώνουν την ένταση της δέσμης.

Ταυτόχρονα, παρατηρείται ότι το χρονικό προφίλ της δέσμης έχει μεταβληθεί πλήρως και η αρχική κατανομή έχει «σπάσει» σε πολλούς υπο-παλμούς γενικό γνώρισμα της αυτο-διαμόρφωσης φάσης, ενώ η ακτίνα της δέσμης έχει μειωθεί κάτω από 100 μm, όπως έχει ήδη φανεί και στην προηγούμενη ενότητα.

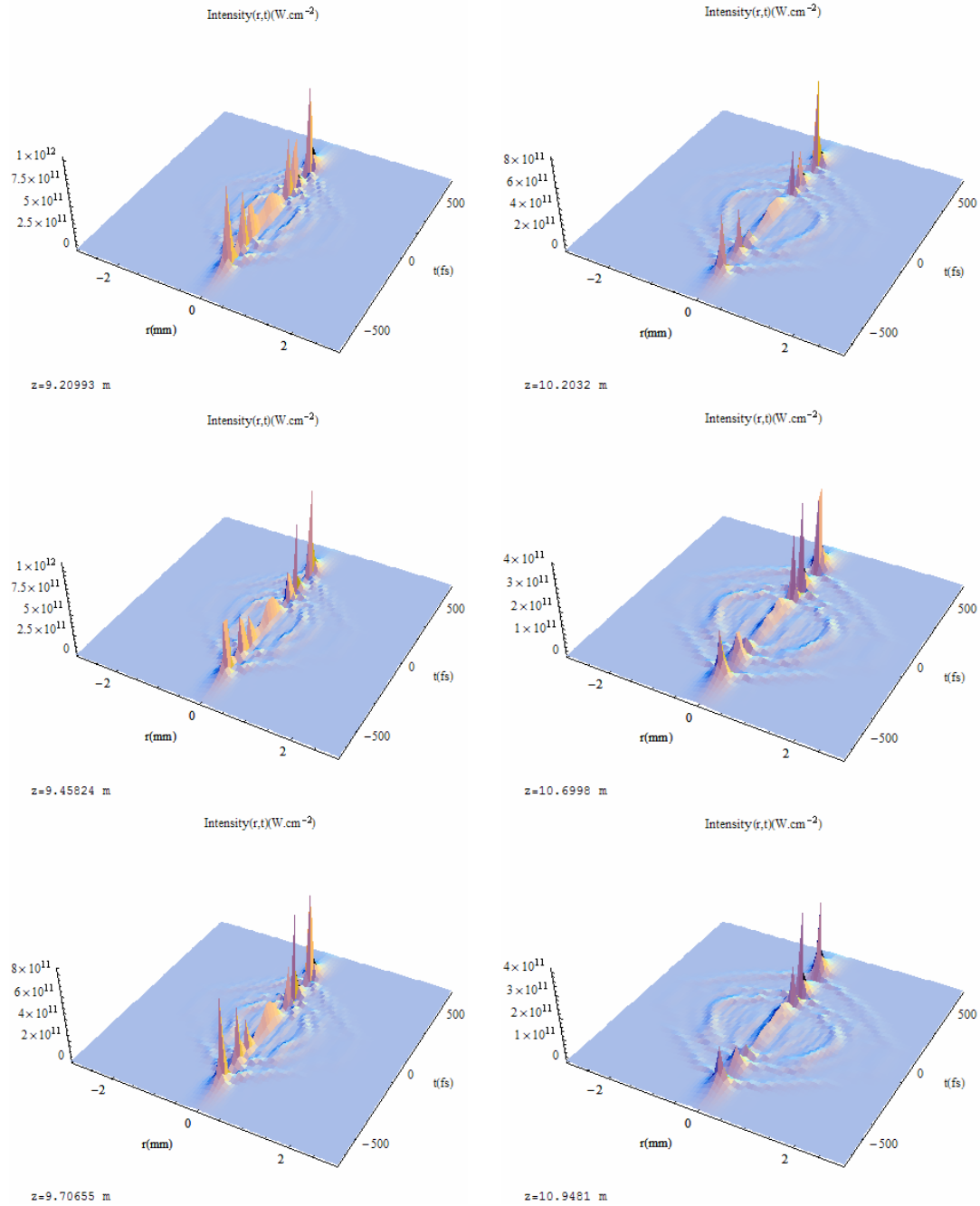


Εικ. 4-27: Υπολογισμός της κατανομής της έντασης της δέσμης για διάδοση από $5 < z < 7 \text{ m}$.



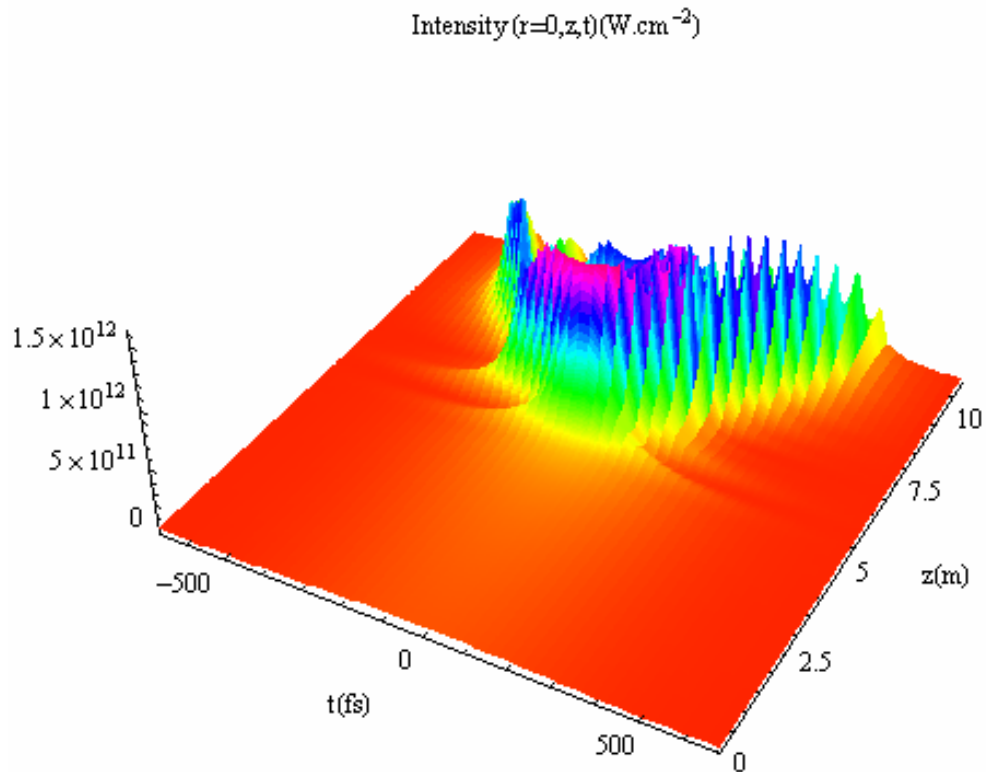
Εικ. 4-28: Υπολογισμός της κατανομής της έντασης της δέσμης για διάδοση από $7 < z < 9$ m.

Στα διαγράμματα του σχήματος Εικ. 4-29 απεικονίζεται η μεταβολή της έντασης για αποστάσεις $9 < z < 11$ m, και στα οποία παρατηρείται ότι η ένταση φαίνεται ότι μειώνεται αλλά παραμένει γύρω στα 10^{12} W/cm². Η μείωση αυτή της έντασης οφείλεται στα φαινόμενα περίθλασης που είναι εμφανή (ομόκεντροι δακτύλιοι γύρω από τα μέγιστα της κατανομής).

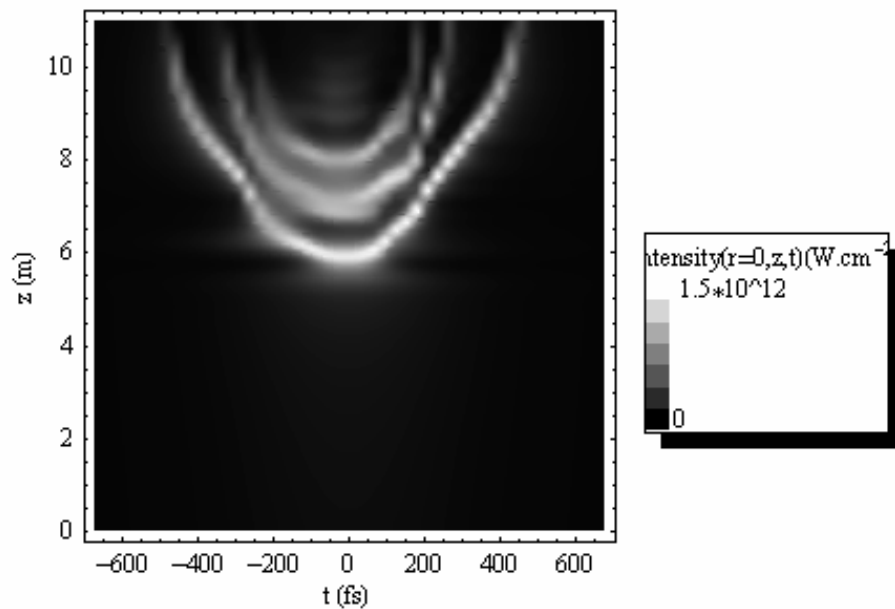


Εικ. 4-29: Υπολογισμός της κατανομής της έντασης της δέσμης για διάδοση από $9 < z < 11$ m.

Στο παρακάτω σχήμα (Εικ. 4-30) απεικονίζεται η χρονική εξέλιξη του παλμού σε ολόκληρο το μήκος διάδοσης και για $r=0$, δηλαδή στο κέντρο της δέσμης. Στο σχήμα αυτό φαίνεται καθαρά το φαινόμενο της αυτο-διαμόρφωσης φάσης, δηλαδή το «σπάσιμο» του παλμού σε πολλά τμήματα που το καθένα «ταξιδεύει» με διαφορετική ταχύτητα. Το ίδιο ακριβώς αποτέλεσμα, φαίνεται και στο αντίστοιχο σχήμα (Εικ. 4-31) που απεικονίζει τα ίδια αποτελέσματα ισοϋψή κατανομή (*contour*).



Εικ. 4-30: Χρονικό προφίλ της έντασης των διαδιδόμενων παλμών σε όλο το μήκος διάδοσης

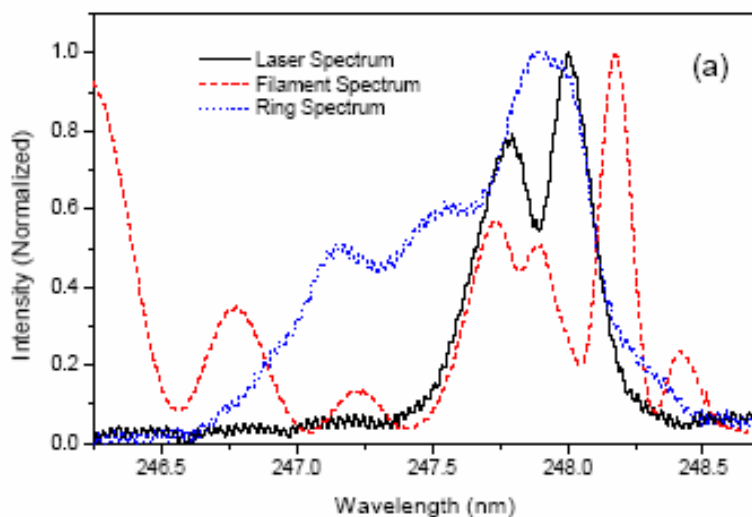


Εικ. 4-31: Χρονική εξέλιξη των διαδιδόμενων παλμών σε ολόκληρο το μήκος διάδοσης (contour)

4.15. Μεταβολή φάσματος του διαδιδόμενου παλμού

Το φαινόμενο της αυτο-διαμόρφωσης φάσης συνδέεται άμεσα με τα φασματικά χαρακτηριστικά των παλμών που διαδίδονται. Έτσι, λόγω της χρονικής διασποράς

του παλμού εμφανίζεται ταυτόχρονα και φασματική διαπλάτυνση του παλμού. Στο επόμενο σχήμα (Εικ. 4-32), έχει καταγραφεί πειραματικά το φάσμα του παλμού γύρω από το κεντρικό μήκος κύματος (248 nm) πριν τοποθετηθεί ο φακός εστίασης (*Laser Spectrum*), το φάσμα που δημιουργείται από το filament (*Filament Spectrum*) καθώς και το φάσμα της περιβάλλουσας περιμετρικά του filament (*Ring Spectrum*). Η συγκεκριμένη μέτρηση έχει γίνει για αρχική ενέργεια 1.7 mJ ανά παλμό και σε απόσταση ενός μέτρου μετά την γεωμετρική εστία του φακού (9.5 m). Παρατηρείται ότι το αρχικό φάσμα του παλμού (η χαρακτηριστική καμπύλη των δύο κορυφών που οφείλεται σε φαινόμενα απορρόφησης καθώς και στην κατασκευή του λέιζερ) εμφανίζει διασπορά σε μεγάλο φασματικό εύρος (φασματική διαπλάτυνση) καθώς και μια έντονη μετατόπιση κυρίως σε μικρότερα μήκη κύματος (μετατόπιση προς το ιώδες, *blue shift*) όταν εμφανιστούν τα μη γραμμικά φαινόμενα (φάσμα του filament και της περιβάλλουσάς του). Το φαινόμενο της φασματικής διαπλάτυνσης οφείλεται στην αυτό-διαμόρφωση φάσης (*self-phase modulation, SPM*), ενώ το φαινόμενο της μετατόπισης προς το ιώδες οφείλεται σύμφωνα και με την θεωρία στον πολυφωτονικό ιονισμό (MPI). Η εμφάνιση αυτών των δύο φαινομένων είναι άλλη μια απόδειξη της εμφάνισης μη γραμμικών φαινομένων που οδηγούν στον σχηματισμό αυτό-οδηγούμενων παλμών.



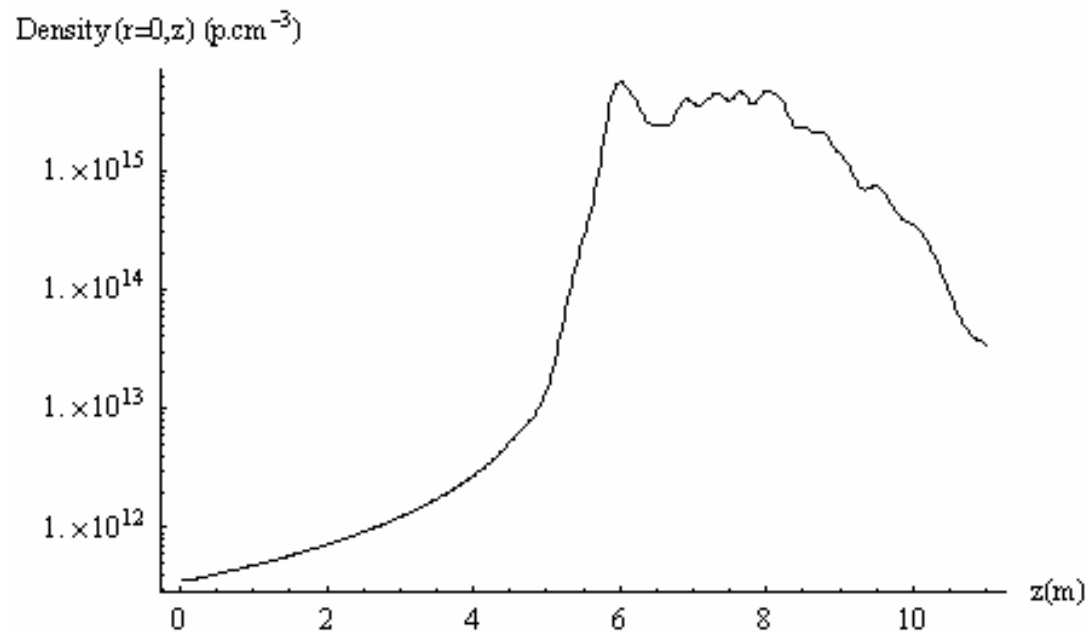
Εικ. 4-32: Φάσμα του παλμού σε απόσταση μετά την γεωμετρική εστία (9.5 m). Παρατηρείστε το αρχικό φάσμα του λέιζερ πριν την χρήση φακού (*Laser spectrum*), το φάσμα που δημιουργείται από το filament (*Filament Spectrum*), καθώς και το φάσμα περιμετρικά από το filament (*Ring Spectrum*). Παρατηρείστε επίσης την έντονη μετατόπιση των φασμάτων του filament και της περιβάλλουσας του προς το ιώδες (*blue shift*).

4.16. Υπολογισμός της πυκνότητας ηλεκτρονίων

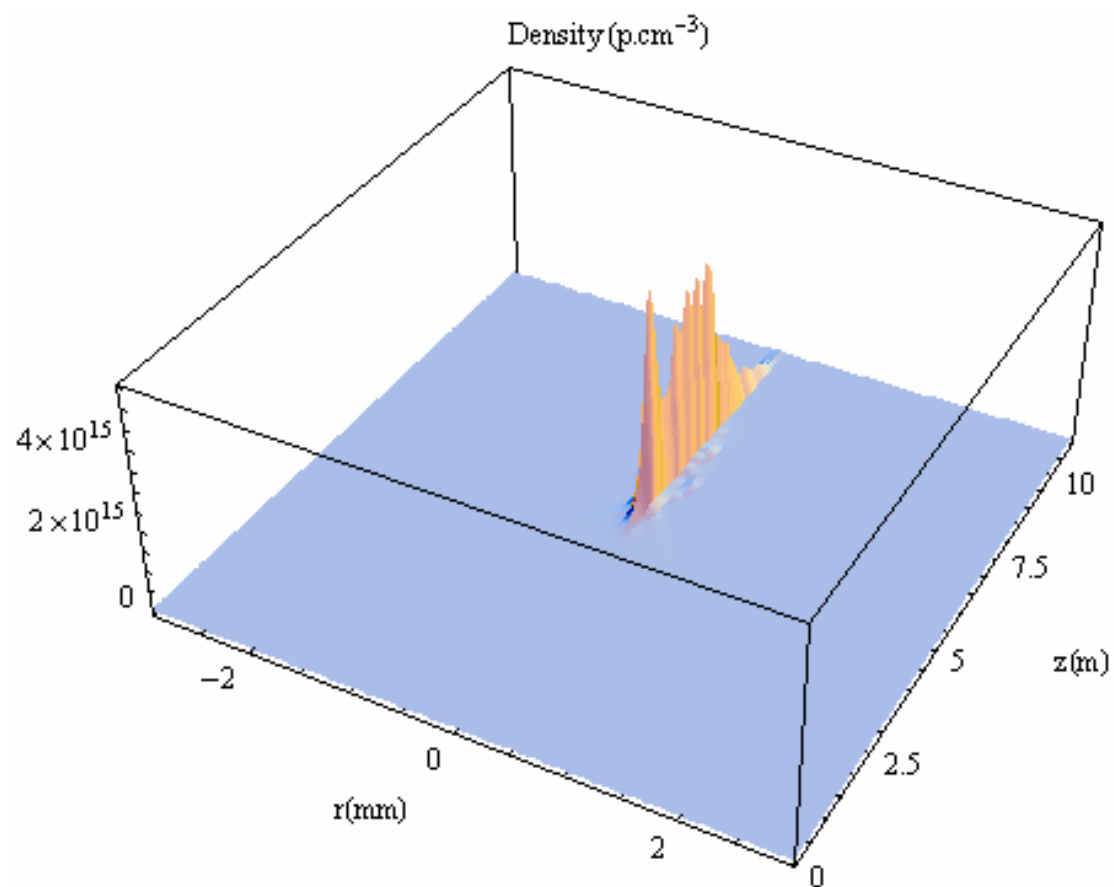
Καθώς η δέσμη αυτο-εστιάζεται δημιουργείται ιονισμός του αέριου μέσου (εδώ το αέριο μέσο είναι ο ατμοσφαιρικός αέρας) με αποτέλεσμα την δημιουργία πλάσματος. Με την δημιουργία πλάσματος μειώνεται ο δείκτης διάθλασης του μέσου και η δέσμη ενώ αρχικά σύγκλινε, παρουσία πλάσματος θα αρχίσει να αποκλίνει, έως ότου μειωθεί η πυκνότητα ηλεκτρονίων του πλάσματος και να ξαναρχίσει το φαινόμενο της αυτο-εστίασης. Η δυναμική ισορροπία μεταξύ αυτών των αντίθετων φαινομένων είναι υπεύθυνη για την δημιουργία αυτο-οδηγούμενων παλμών. Επομένως, η πυκνότητα ηλεκτρονίων από το επαγόμενο πλάσμα λόγω της αυτο-εστίασης αποτελεί ένα βασικό παράγοντα που πρέπει να ληφθεί υπόψη κατά την επίλυση του μοντέλου. Στο σχήμα που ακολουθεί (Εικ. 4-33) έχει υπολογιστεί η πυκνότητα ηλεκτρονίων κατά μήκος του άξονα διάδοσης της δέσμης. Όταν η δέσμη αρχίζει να αυτο-εστιάζεται γύρω στα 6 m υπάρχει απότομη αύξηση της πυκνότητας ηλεκτρονίων στην τιμή των $6 \times 10^{15} \text{ e}^-/\text{cm}^3$ περίπου.

Στην συνέχεια λόγω του πλάσματος, η δέσμη αρχίζει να αποκλίνει έχοντας ως αποτέλεσμα μια μικρή μείωση της πυκνότητας ηλεκτρονίων στην τιμή των $4 \times 10^{15} \text{ e}^-/\text{cm}^3$, ενώ στην συνέχεια στην περιοχή της μέγιστης αυτο-εστίασης στα 8 μέτρα περίπου, η πυκνότητα παραμένει σταθερή γύρω στα $3 \times 10^{15} \text{ e}^-/\text{cm}^3$ για μια απόσταση 2.5 m περίπου και έπειτα αφού έχουν ήδη σχηματιστεί αυτο-οδηγούμενοι παλμοί δεν υπάρχει μεγάλη αύξηση του ιονισμού και η πυκνότητα ηλεκτρονίων μειώνεται δραματικά μετά τα 10 μέτρα της διάδοσης.

Στη συνέχεια, στο σχήμα (Εικ. 4-34) απεικονίζεται σε τρισδιάστατη αναπαράσταση η κατανομή της πυκνότητας των ηλεκτρονίων σε συνάρτηση με την ακτίνα της δέσμης και την απόσταση διάδοσης. Όπως φαίνεται και στα δύο σχήματα, για αποστάσεις μικρότερες από 5 m εμφανίζεται αρχικά πολύ μικρή πυκνότητα ($< 10^{13} \text{ e}^-/\text{cm}^3$), απόδειξη ότι το φαινόμενο είναι μη γραμμικό και εμφανίζεται μόνο όταν ικανοποιηθούν οι αρχικές συνθήκες της έντασης που θα εκκινήσουν την διαδικασία της αυτο-εστίασης.



Εικ. 4-33: Υπολογισμός της πυκνότητας ηλεκτρονίων από το επαγόμενο πλάσμα κατά μήκος του άξονα διάδοσης



Εικ. 4-34: Υπολογισμός της πυκνότητας ηλεκτρονίων λόγω επαγόμενου πλάσματος σε συνάρτηση με την ακτίνα της δέσμης και της απόστασης διάδοσης

4.17. Συμπεράσματα

Από τα αποτελέσματα των παραπάνω μετρήσεων φαίνεται η ύπαρξη του φαινομένου της μη γραμμικής εστίασης, το οποίο αποτελεί την πρωταρχική και βασική ένδειξη εμφάνισης μη γραμμικών φαινομένων που συμβαίνουν κατά την διάδοση παλμών υψηλής έντασης. Η επίδραση της πίεσης στην διάδοση φαίνεται να παίζει σημασία για πιέσεις μικρότερες από 200 mbar όπου τα μη γραμμικά φαινόμενα φαίνεται ότι εξασθενούν. Αυτό αιτιολογείται από το γεγονός της πολύ μικρής πυκνότητας αέρα άρα και μικρής πυκνότητα ηλεκτρονίων αντίστοιχα. Τα πειραματικά αποτελέσματα συμφωνούν με τα αποτελέσματα του υπολογιστικού μοντέλου προσομοίωσης όσον αφορά την εμφάνιση της μη γραμμικής εστίασης. Συγκεκριμένα το υπολογιστικό μοντέλο προβλέπει ότι αρχικά η δέσμη εστιάζεται στα 6 m και η εμφάνιση της μη γραμμικής εστίασης γίνεται τελικά σε απόσταση 7.69 – 7.94 m από τον φακό εστίασης. Οι μετρήσεις έδειξαν ότι η μη γραμμική εστίαση συμβαίνει σε απόσταση 7.8 m περίπου. Οι αποκλίσεις του μοντέλου και των πειραματικών μετρήσεων έχουν να κάνουν με τις διαφορετικές αρχικές συνθήκες που υπήρχαν κατά την διάρκεια του πειράματος, όπως το χωρικό προφίλ της δέσμης δεν παραμένει σταθερό σε όλη την διάρκεια των μετρήσεων κατά την διάρκεια της μέρας αλλά μεταβάλλεται και από μέρα σε μέρα, οι κλιματολογικές συνθήκες του χώρου (π.χ. υγρασία) επηρεάζουν τις μετρήσεις κ.α.. Παρόλα αυτά, υπάρχει καλή ταύτιση των αποτελεσμάτων του πειράματος με το μοντέλο προσομοίωσης.

Τέλος, η μη γραμμική εστίαση της δέσμης κατά την διάδοση της δέσμης στο αέρα καταλήγει στην δημιουργία αυτο-οδηγούμενων καναλιών (filaments) κατά την διάδοση της δέσμης, όπως αποδείχθηκε από την τεχνική της φασματοσκοπικής ανάλυσης, αλλά και από την σύγκριση της απόστασης που δημιουργούνται τα filaments με το μήκος περίθλασης Rayleigh και η οποία βρέθηκε να είναι πολύ μεγαλύτερη από το μήκος αυτό.

Κεφάλαιο 5: Διάδοση βραχύχρονων παλμών λέιζερ υπεριώδους υψηλής έντασης στο Αργό σε διαφορετικές πιέσεις

5.1. Εισαγωγή

Στο κεφάλαιο αυτό θα μελετηθεί το φαινόμενο διάδοσης βραχύχρονων παλμών λέιζερ υψηλής έντασης με μήκος κύματος στο υπεριώδες μέσα σε ευγενή αέρια και συγκεκριμένα στο Αργό (Argon, Ar). Η επιλογή του Αργού ως μέσου διάδοσης αναλύεται παρακάτω. Στις ενότητες που ακολουθούν περιγράφεται η θεωρητική μελέτη της διάδοσης καθώς και τα πειράματα που διεξήχθησαν.

5.2. Επιλογή του Αργού ως μέσου διάδοσης

Ένα βασικό φαινόμενο αλληλεπίδρασης ακτινοβολίας λέιζερ με τα αέρια είναι η παραγωγή αρμονικών που δημιουργούνται κατά την αλληλεπίδραση αερίων με δέσμη λέιζερ που βρίσκεται σε ισχυρή εστίαση. Μέχρι τώρα, η παραγωγή αρμονικών γινόταν μέσα σε jets ή σε στατικούς θαλάμους μικρών διαστάσεων (τάξεως mm). Για την παραγωγή αρμονικών πρέπει να ικανοποιούνται δύο βασικές προϋποθέσεις: α) η εξεύρεση του κατάλληλου αερίου μέσου ώστε να υπάρχει μεγαλύτερη δυνατή απόδοση στην παραγωγή και β) η διάδοση της δέσμης του λέιζερ πρέπει να γίνει σε συνθήκες χαμηλής πίεσης ($< 1 \text{ Atm}$). Όσον αφορά την πρώτη προϋπόθεση, χρειάζεται ένα αέριο το οποίο να μην αλλάζει την χημική σύσταση του μέσου δημιουργώντας χημικές ενώσεις, και να έχει σχετικά χαμηλό έργο ιονισμού ώστε να είναι αποδοτικό στην παραγωγή αρμονικών. Οι βασικοί υποψήφιοι στην περίπτωση μας είναι τα αδρανή ή ευγενή αέρια τα οποία δεν σχηματίζουν άλλες χημικές ενώσεις κατά την αλληλεπίδραση τους με ακτινοβολία λέιζερ. Το πιο αποδοτικό από τα ευγενή αέρια για την παραγωγή αρμονικών από αλληλεπίδραση με λέιζερ υπεριώδους είναι σύμφωνα με μελέτες, το Αργό [107]. Όσον αφορά την δεύτερη προϋπόθεση, η παρουσία της χαμηλής πίεσης απαιτείται, ώστε να αποφευχθούν φαινόμενα απορρόφησης της παραγόμενης ακτινοβολίας από τις αρμονικές, από το ίδιο το αέριο αλλά και λόγω απορρόφησης της ίδιας της ακτινοβολίας του λέιζερ.

5.3. Θεωρία διάδοσης βραχύχρονων παλμών λέιζερ μέσα στο Αργό

Η βασική διαφορά με την διάδοση βραχύχρονων παλμών λέιζερ υψηλής έντασης στον ατμοσφαιρικό αέρα, είναι ότι στην περίπτωση του Αργού υπάρχει ένα χημικό στοιχείο αντί για δύο όπως στην περίπτωση του αέρα, οπότε η μη γραμμική εξίσωση διάδοσης (μη γραμμική εξίσωση του *Schrödinger*) απλοποιείται στην:

$$2i \frac{\partial E}{\partial z} + \frac{1}{k_o} \nabla_{\perp}^2 E + k_o n_2 |E|^2 E - k_o \frac{\omega_p^2(n_e)}{\omega_o^2} E + i\beta^K |E|^{2K-2} E = 0$$

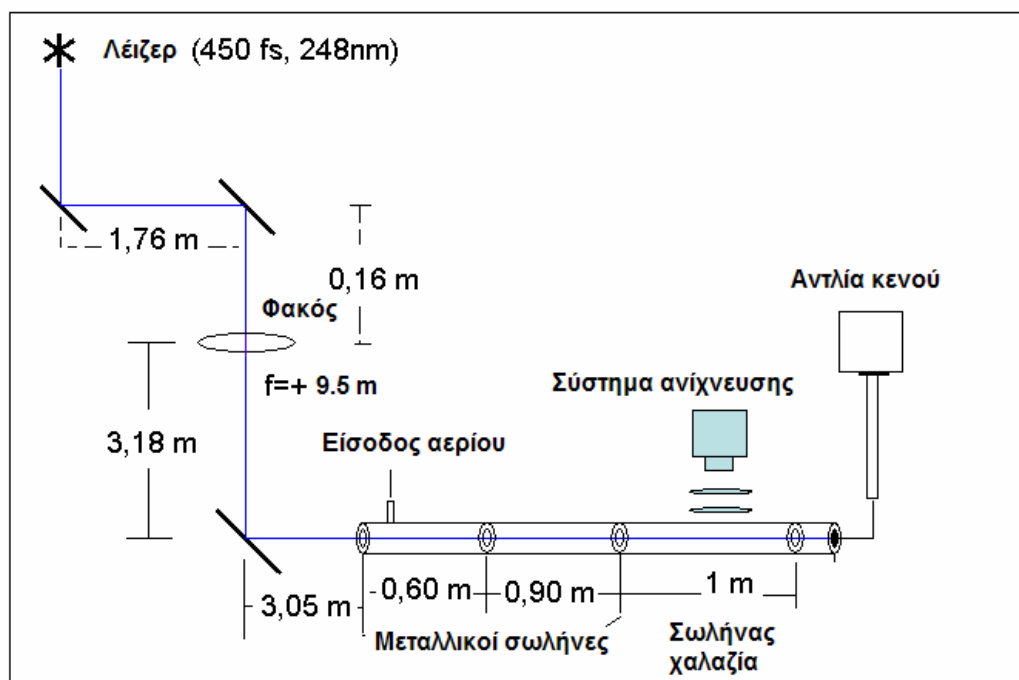
όπου ο πρώτος όρος περιγράφει την διάδοση κατά μήκος του άξονα διάδοσης, ο δεύτερος όρος την εγκάρσια περίθλαση της δέσμης, ο τρίτος όρος την μη γραμμική αυτοεστίαση λόγω φαινομένου *Kerr* (*self-focusing*), ο τέταρτος όρος την αποεστίαση λόγω του πλάσματος (*plasma defocusing*) και ο τελευταίος όρος περιγράφει την απορρόφηση λόγω πολυφωτονικού ιονισμού για K αριθμό φωτονίων. Το ω_o είναι η συχνότητα του λέιζερ, $|E|^2$ είναι η ένταση, $k_o = n\omega/c$, το n_2 είναι η μη γραμμική σταθερά του δείκτη διάθλασης του Αργού και για το μήκος κύματος του λέιζερ ($\lambda_o = 248$ nm) έχει την τιμή $n_2 = 2.9 \cdot 10^{-19}$ cm²/Watt [1] σε ατμοσφαιρική πίεση, ενώ τέλος, β^K είναι η μη γραμμική σταθερά για απορρόφηση K φωτονίων και υπολογίζεται βάση της θεωρίας του Keldysh[86]. Η τάξη K του πολυφωτονικού ιονισμού καθορίζεται από την σχέση $K = [U_i / \hbar\omega + 1]$ που δίνει τον ελάχιστο αριθμό φωτονίων ενέργειας $\hbar\omega$ που απαιτείται για να ξεπεράσει την ενέργεια ιονισμού U_i και να απελευθερωθεί ένα ηλεκτρόνιο. Στην περίπτωση του Αργού η ενέργεια ιονισμού του είναι $U_{\text{ion}} = 15.76$ eV, ενώ η ενέργεια του ενός φωτονίου είναι $\hbar\omega = 5.01$ eV, άρα ο αριθμός των φωτονίων που χρειάζονται για να γίνει ιονισμός είναι $K=3$, είναι δηλαδή 3-φωτονική διαδικασία. Το θεωρητικό μοντέλο συμπληρώνεται από την εξίσωση της χρονικής εξέλιξης της πυκνότητας των ηλεκτρονίων (μοντέλο του *Drude* [82]) που δίνεται από την σχέση:

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = \frac{\beta^K}{K\hbar\omega_o} |E|^{2K} \left(1 - \frac{n_{Ar}}{n_{at}} \right)$$

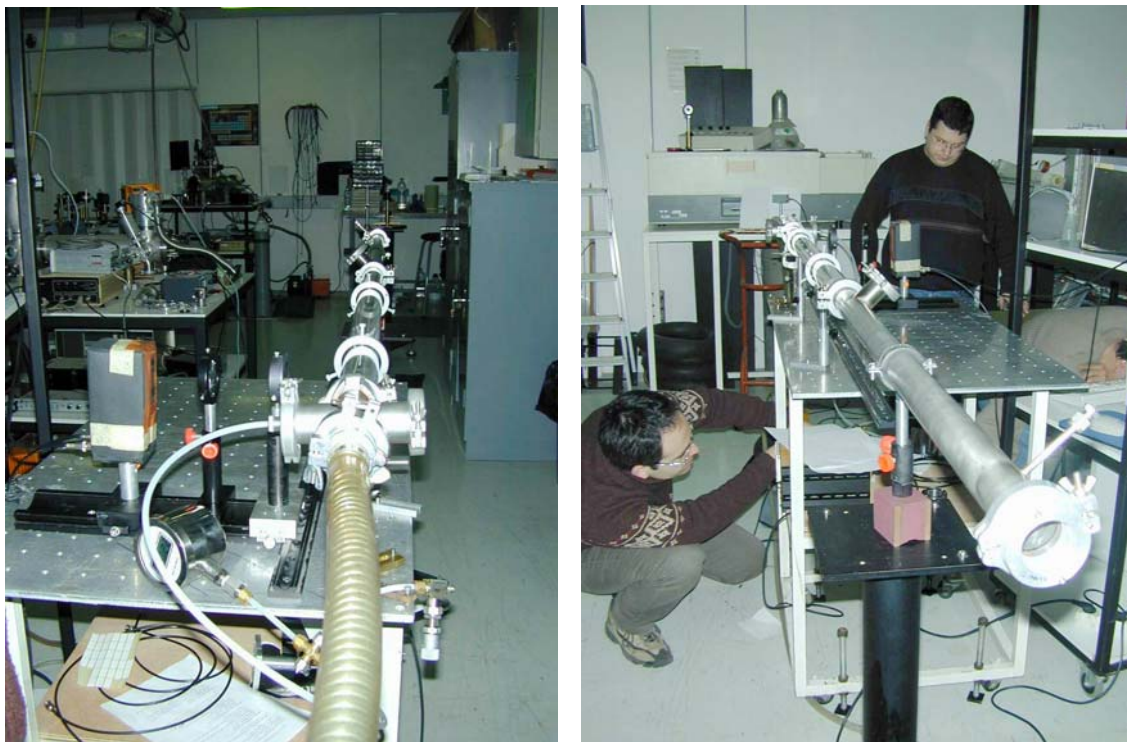
όπου n_{Ar} είναι η πυκνότητα ηλεκτρονίων του Αργού, ενώ n_{at} είναι η πυκνότητα του μη ιονισμένου Αργού.

5.4. Πειραματική ανάλυση της διάδοσης βραχύχρονων παλμών λέιζερ υπερϊόδους υψηλής έντασης στο Αργό

Η πειραματική διαδικασία είναι παρόμοια με αυτή που ακολουθήθηκε στο πείραμα της διάδοσης στον ατμοσφαιρικό αέρα με την βασική διαφορά ότι στο συγκεκριμένο πείραμα υπάρχει μόνο Αργό, το οποίο για λόγους ασφάλειας εισάγεται σε ειδικούς σωλήνες που αρχικά αντλούνται ώστε δημιουργούνται συνθήκες κενού και στην συνέχεια εισάγεται στην επιθυμητή πίεση, ενώ η δέσμη του λέιζερ εισάγεται μέσα σε αυτό το σύστημα των σωλήνων. Η παραγωγή των παλμών λέιζερ υπερϊόδους έγινε από το ίδιο σύστημα λέιζερ και τις ίδιες αρχικές συνθήκες που χρησιμοποιήθηκε και για την μελέτη διάδοσης των βραχέων παλμών λέιζερ υπερϊόδους σε ατμοσφαιρικό αέρα. Στο παρακάτω σχήμα (Εικ. 5-1) φαίνεται το σχηματικό διάγραμμα της πειραματικής διάταξης για το πείραμα αυτό. Η δέσμη των παλμών του λέιζερ, εστιάζεται διαμέσου του φακού εστιακής απόστασης $f=+9.5\text{ m}$, που είναι τοποθετημένος σε απόσταση 2 m περίπου από την έξοδο του λέιζερ. Έπειτα η δέσμη του λέιζερ διαδίδεται στον αέρα και περίπου 6.25 m από τον φακό εισέρχεται μέσα στο σύστημα των σωλήνων διαμέτρου 40 mm και οι οποίοι περιέχουν καθαρό Αργό του οποίου η πίεση ελέγχεται με κατάλληλα μετρητικά πίεσης χρησιμοποιώντας περιστροφική αντλία κενού.

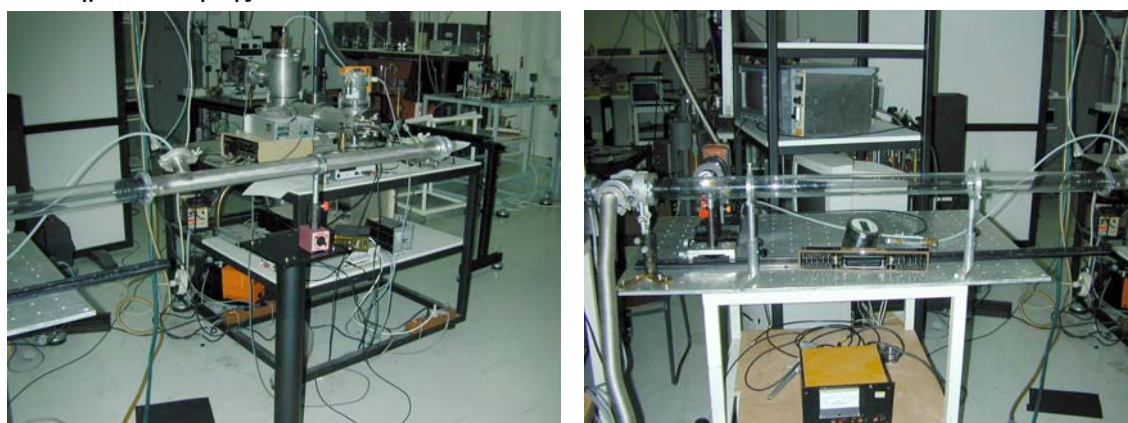


Εικ. 5-1: Σχηματικό διάγραμμα της πειραματικής διάταξης για την διάδοση παλμών λέιζερ υπερϊόδους μέσα σε Αργό



Εικ. 5-2: Πειραματική διάταξη διάδοσης παλμών λέιζερ υπεριώδους μέσα σε Αργό (ULF –ITE)

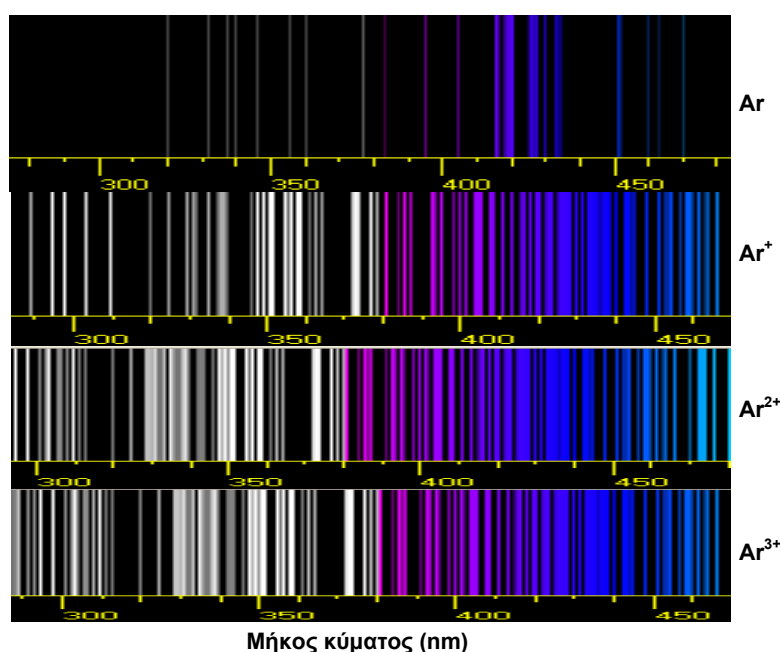
Οι δύο πρώτοι σωλήνες είναι μεταλλικοί και έχουν μήκος 0.60 m ο πρώτος και 0.90 m ο δεύτερος. Ο επόμενος σωλήνας είναι από χαλαζία (*quartz*) διαπερατός στο υπεριώδες δηλαδή στην περιοχή >160 nm. Το συνολικό μήκος των σωλήνων που συνδέονται μεταξύ τους είναι 2.5 m. Το παράθυρο εισόδου είναι επίσης από χαλαζία (διαμέτρου 40 mm) ώστε να μπορεί να εισέρχεται η δέσμη χωρίς απορρόφηση, ενώ στο παράθυρο εξόδου έχει προσαρμοστεί εύκαμπτος σωλήνας που συνδέεται με το σύστημα άντλησης κενού.



Εικ. 5-3: Σύστημα σωλήνων (μεταλλικό μέρος και χαλαζίας)

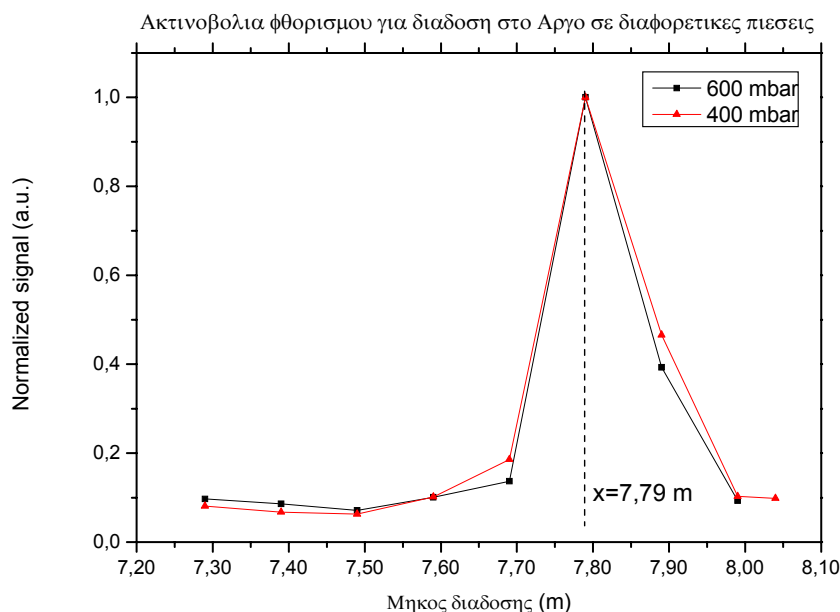
5.5. Μετρήσεις και ανάλυση αποτελεσμάτων

Το σύστημα ανίχνευσης και μέτρησης που χρησιμοποιήθηκε στο συγκεκριμένο πείραμα είναι το ίδιο με το σύστημα με αυτό του κεφαλαίου 4, δηλαδή έγινε χρήση ενός φωτοπολλαπλασιαστή (PMT) ο οποίος βαθμονομήθηκε (με κατάλληλα φίλτρα) στο φασματικό εύρος από 300-450 nm που είναι και το βασικό φάσμα εκπομπής του Αργού στο UV (Εικ. 5-4) , ενώ το σύστημα ανίχνευσης συμπληρώνεται από δύο φακούς που κάνουν την οπτική απεικόνιση (*imaging*). Οι μετρήσεις έγιναν κατά μήκος του σωλήνα του χαλαζία δηλαδή σε 1 m ανά 10 cm και σε διεύθυνση κάθετη προς την διεύθυνση διάδοσης.



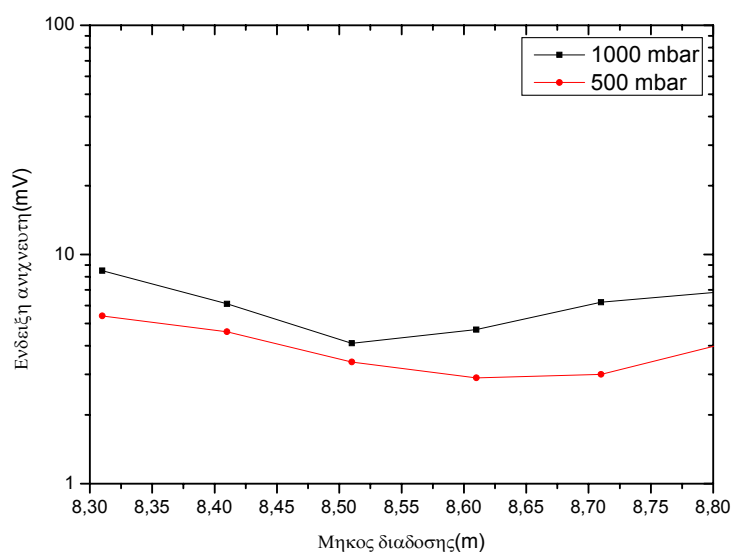
Εικ. 5-4: Φάσματα εκπομπής του Αργού στην φασματική περιοχή 300-450 nm (Spektrus 1.0)

Για να βρεθεί το σημείο της μη γραμμικής εστίασης, τοποθετήθηκε μόνο ο σωλήνας χαλαζία σε απόσταση 7.24 m από τον φακό εστίασης (γνωρίζοντας από την πρόβλεψη του μοντέλου ότι η μη γραμμική εστίαση είναι περίπου στα 7.8 m) και καταγράφηκε η ακτινοβολία φθορισμού κατά μήκος του σωλήνα. Στο παρακάτω σχήμα απεικονίζονται οι μετρήσεις που έγιναν για διάδοση στο Αργό σε πίεση 400 mbar και 600 mbar.



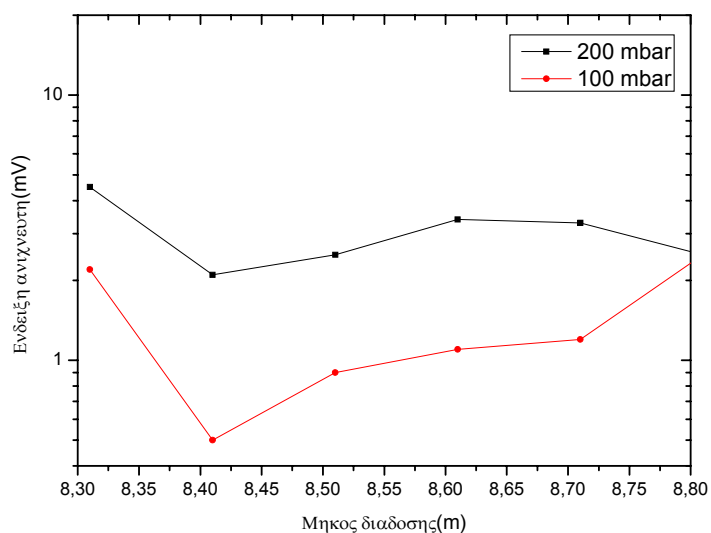
Εικ. 5-5: Μέτρηση της ακτινοβολίας φθορισμού του Αργού κατά μήκος του άξονα διάδοσης σε πίεση 400 και 600 mbar

Όπως μπορεί να φανεί και από το σχήμα, το μέγιστο σήμα είναι σε απόσταση 7.79 m από τον φακό εστίασης δηλαδή υπάρχει μη γραμμική εστίαση. Επίσης φαίνεται ότι για την περιοχή πιέσεων (400-600 mbar) η επίδραση της πίεσης δεν αλλοιώνει το φαινόμενο της μη γραμμικής εστίασης. Στην συνέχεια, καταγράφηκε η επίδραση της πίεσης στην δημιουργία filament μετά από το σημείο της μη γραμμικής εστίασης και για μεγαλύτερο εύρος πιέσεων. Για τον λόγο αυτό τοποθετήθηκαν δύο πρόσθετοι μεταλλικοί σωλήνες μπροστά από τον φακό εστίασης σε απόσταση 6.23 m από αυτόν και τους ενώθηκαν με τον σωλήνα του χαλαζία και το συνολικό μήκος αλληλεπίδρασης έγινε 2.5 m για διάδοση μέσα στο Αργό. Στο στάδιο αυτό έγιναν μετρήσεις ακτινοβολίας φθορισμού στην περιοχή πιέσεων $P > 500$ mbar. Τα αποτελέσματα αυτών των μετρήσεων φαίνονται στο σχήμα που ακολουθεί (Εικ. 5-6). Στο συγκεκριμένο διάγραμμα, εμφανίζεται η μέτρηση της ακτινοβολίας φθορισμού σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης μετά από το σημείο της μη γραμμικής εστίασης (> 8 m) για δύο τιμές πίεσης 500 και 1000 mbar. Παρατηρείται ότι η ένταση της ακτινοβολίας φθορισμού (συνεπώς και η ακτινοβολία από το filament) παραμένει σχεδόν σταθερή για τις δύο τιμές της πίεσης. Επίσης παρατηρείται ότι η ένταση της ακτινοβολίας φθορισμού είναι μικρότερη για $P=500$ mbar από την αντίστοιχη τιμή της πίεσης $P=1000$ mbar λόγω της μειωμένης πυκνότητας του μέσου διάδοσης. Οι διαφορές που εμφανίζονται είναι της τάξης των 30-40%.



Εικ. 5-6: Μέτρηση της ακτινοβολίας φθορισμού στο Αργό μετά το σημείο μη γραμμικής εστίασης για πιέσεις 500 και 1000 mbar

Στην συνέχεια πραγματοποιήθηκαν μετρήσεις στην περιοχή πίεσης $P < 500 \text{ mbar}$ ώστε να υπολογιστεί το κατώτερο όριο πίεσης για σχηματισμό filaments. Στο παρακάτω σχήμα εμφανίζονται μετρήσεις της ακτινοβολίας φθορισμού κατά μήκος της διάδοσης μετά το σημείο της μη γραμμικής εστίασης ($> 8 \text{ m}$) και για δύο τιμές της πίεσης: $P=200 \text{ mbar}$ και $P=100 \text{ mbar}$.



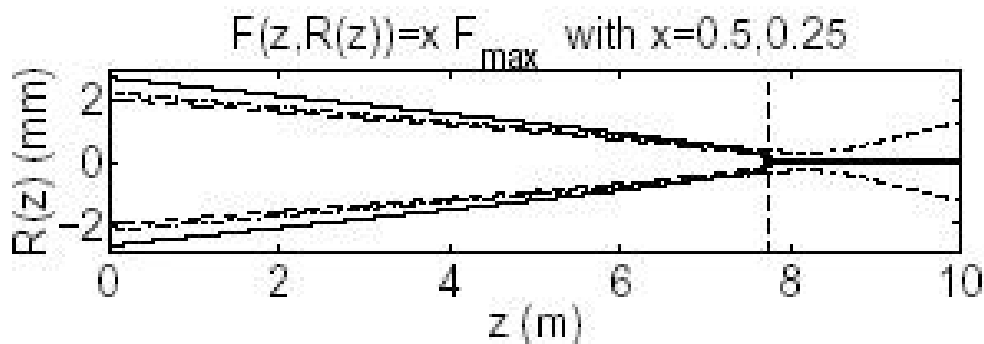
Εικ. 5-7: Μέτρηση της ακτινοβολίας φθορισμού στο Αργό μετά το σημείο μη γραμμικής εστίασης για πιέσεις 200 και 100 mbar

Φαίνεται ότι για πίεση $P=200 \text{ mbar}$ η ένταση του filament παραμένει σχεδόν σταθερή, ενώ για πίεση $P=100 \text{ mbar}$ η ένταση παύει να είναι σταθερή γεγονός που υποδηλώνει

ότι σε αυτή την περιοχή πιέσεων δεν υπάρχει σχηματισμός filaments λόγω χαμηλής συγκέντρωσης. Άρα το όριο της πίεσης για διάδοση στο Αργό είναι $P > 200 \text{ mbar}$. Το συγκεκριμένο αποτέλεσμα είναι πολύ σημαντικό διότι ως τώρα δεν είχε εμφανιστεί στα μοντέλα προσομοίωσης το κατώφλι κατώτερης τιμής της πίεσης σε ελεγχόμενες συνθήκες.

5.6. Υπολογιστικό μοντέλο προσομοίωσης

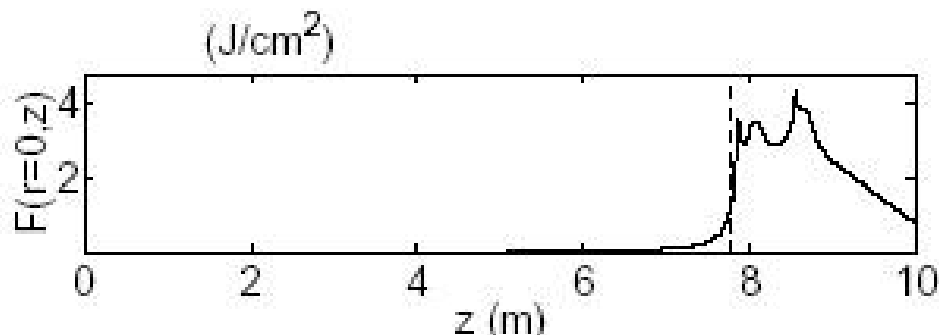
Το υπολογιστικό μοντέλο προσομοίωσης που χρησιμοποιήθηκε στο συγκεκριμένο πείραμα κατασκευάστηκε σε συνεργασία με την ομάδα του εργαστηρίου του LOA και βασίζεται στην ίδια αρχή με αυτό της διάδοσης στον αέρα. Οι αρχικές συνθήκες που εισήχθησαν είναι $\lambda = 248 \text{ nm}$, $\tau = 450 \text{ fs}$, $E_{in} = 8 \text{ mJ}$ ανά παλμό, ενώ η κατανομή της έντασης είναι τύπου *Gauss* και έχει προσομοιωθεί σύμφωνα με τα πειραματικά χαρακτηριστικά του συστήματος λέιζερ. Η δέσμη εστιάζεται μέσω του φακού εστιακής απόστασης $f = +9.5 \text{ m}$ και έπειτα διαδίδεται μέσα στο Αργό σε διαφορετικές πιέσεις. Στο σχήμα που ακολουθεί (Εικ. 5-8), παρατηρείται η μεταβολή της ακτίνας R (σε mm) της δέσμης του λέιζερ ως συνάρτηση του μήκους διάδοσης για δύο διαφορετικές πιέσεις 250 και 500 mbar για διάδοση μέσα στο Αργό. Η δέσμη έχει αρχική ακτίνα $R = 4 \text{ mm}$ και καθώς διαδίδεται, εστιάζεται σε απόσταση περίπου 7.8 m (μη γραμμική εστίαση) αντί να εστιαστεί σε απόσταση 9.5 m που είναι το σημείο της γραμμικής εστίασης, με την ακτίνα να μειώνεται σε $R \sim 200 \mu\text{m}$.



Εικ. 5-8: Μεταβολή της ακτίνας της δέσμης κατά την διάδοσή της στο Αργό σε πίεση 250 και 500 mbar. Η δέσμη εστιάζει στα 7.8 m (μη γραμμική εστία) και όχι στα 9.5 m (γραμμική εστία).

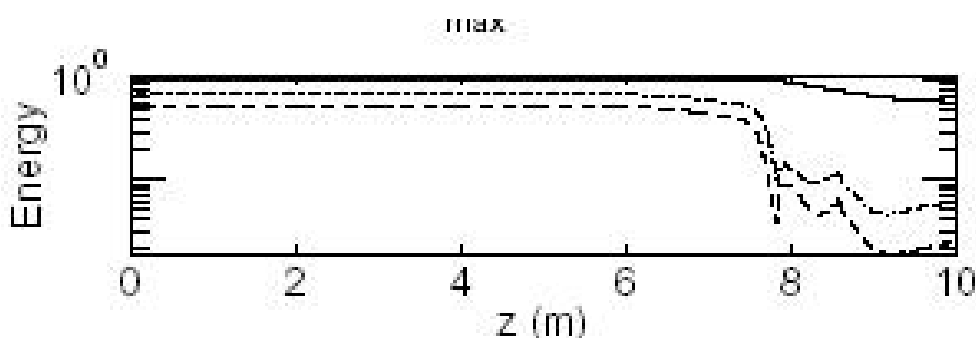
Στην συνέχεια, εξετάστηκε η μεταβολή της πυκνότητας ενέργειας της δέσμης του λέιζερ (σε J/cm^2) καθώς αυτή διαδίδεται μέσα στο Αργό, σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης σε πίεση 500 mbar (Εικ. 5-9). Παρατηρείται ότι η πυκνότητα ενέργειας αυξάνει απότομα στο σημείο της μη γραμμικής εστίασης (7.8 m) και παραμένει

σχεδόν σταθερή για μια απόσταση περίπου 1.5 m. Το αποτέλεσμα αυτό συμφωνεί με την θεωρία αλλά και με τα πειραματικά αποτελέσματα αφού στο σημείο της μη γραμμικής εστίας θεωρείται ότι σχηματίζεται το filament.



Εικ. 5-9: Μεταβολή της πυκνότητας ενέργειας της διαδιδόμενης δέσμης μέσα στο Αργό σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης σε πίεση 500 mbar.

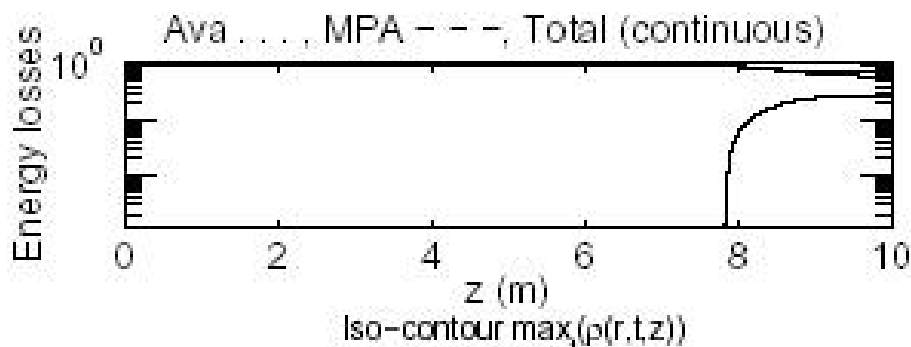
Η μεταβολή της αρχικής ενέργειας της δέσμης σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης καθώς αυτή διαδίδεται στο Αργό για διαφορετικές πιέσεις μικρότερες της ατμοσφαιρικής απεικονίζεται στο παρακάτω σχήμα (Εικ. 5-10). Παρατηρείται ότι στο σημείο μη γραμμικής εστίασης η ενέργεια μειώνεται δραματικά. Αυτό εξηγείται θεωρητικά διότι στο σημείο αυτό δημιουργείται πλάσμα με αποτέλεσμα η δέσμη να απο-εστιάζεται με άμεση συνέπεια η συνολική ενέργεια που παραμένει μετά την δημιουργία των filaments να είναι πολύ μικρότερη της αρχικής, αλλά η ένταση της να είναι πολύ υψηλή λόγω των μικρών διαστάσεων του filament (διάμετρος τάξης 150-200 μm).



Εικ. 5-10: Μεταβολή της αρχικής ενέργειας της δέσμης καθώς αυτή διαδίδεται μέσα στο Αργό.

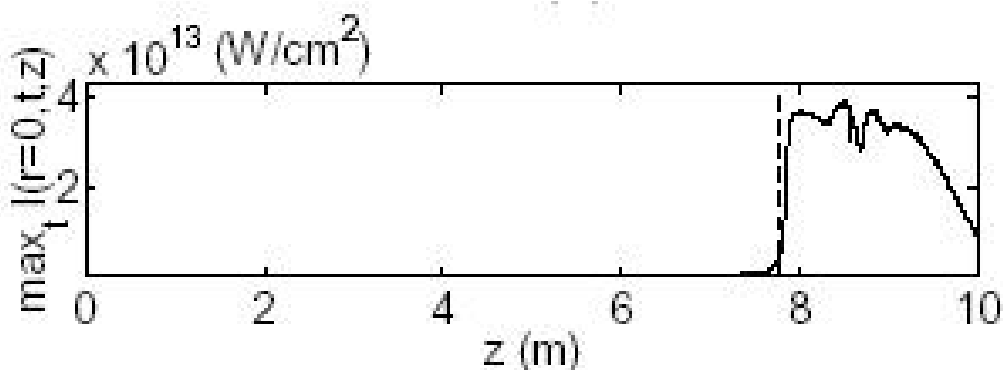
Το παραπάνω αποτέλεσμα ενισχύεται και από το σχήμα που ακολουθεί (Εικ. 5-11), όπου απεικονίζονται οι ενεργειακές απώλειες λόγω του φαινομένου της πολυφωτονικής απορρόφησης (*Multiphoton Absorption, MPA*) σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης για πίεση 500 mbar. Όπως φαίνεται στο σχήμα (Εικ. 5-11), μετά το

σημείο της μη γραμμικής εστίασης οι ενεργειακές απώλειες λόγω της πολυφωτονικής απορρόφησης αυξάνονται απότομα και στην συνέχεια σταθεροποιούνται για αρκετά μεγάλη απόσταση διάδοσης (>2 m). Αυτό εξηγείται λόγω της μη γραμμικής εστίασης και της δημιουργίας πλάσματος, το οποίο με την σειρά του λειτουργεί ως αποκλίνων φακός και απο-εστιάζει την δέσμη.



Εικ. 5-11: Μεταβολή των ενεργειακών απωλειών της δέσμης λόγω πολυφωτονικής απορρόφησης σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης.

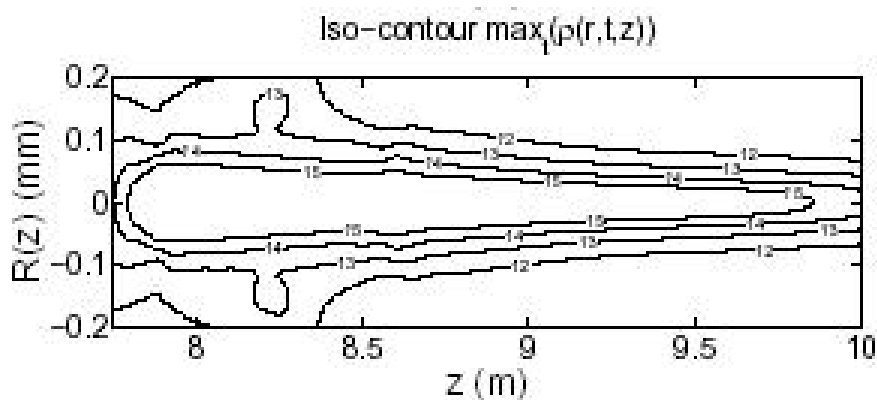
Στην συνέχεια, απεικονίζεται η μεταβολή της μέγιστης έντασης της ακτινοβολίας της δέσμης του λέιζερ καθώς αυτή διαδίδεται μέσα στο Αργό σε πίεση 250 mbar (Εικ. 5-12). Παρατηρείται ότι πριν από την μη γραμμική εστία, η ένταση της δέσμης του λέιζερ είναι πολύ μικρότερη από 10^{13} W/cm², ενώ έχει υπολογιστεί αρχικά ότι είναι της τάξης του 10^{11} W/cm². Στο σημείο της γραμμικής εστίας, η ένταση της δέσμης εκτινάσσεται απότομα περίπου στα 3×10^{13} W/cm² και παραμένει σταθερή για μια απόσταση περίπου 1.5 m. Το αποτέλεσμα αυτό συμφωνεί απόλυτα με τις πειραματικές μετρήσεις.



Εικ. 5-12: Μεταβολή της μέγιστης έντασης της δέσμης του λέιζερ (W/cm²) για διάδοση στο Αργό σε πίεση 250 mbar σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης.

Στο επόμενο σχήμα (Εικ. 5-13), απεικονίζεται η μεταβολή της πυκνότητας ηλεκτρονίων του δημιουργούμενου πλάσματος από την μη γραμμική εστίαση για διάδοση στο Αργό σε πίεση 250 mbar σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης και για αποστάσεις μεγαλύτερες από την μη γραμμική εστία (> 8 m).

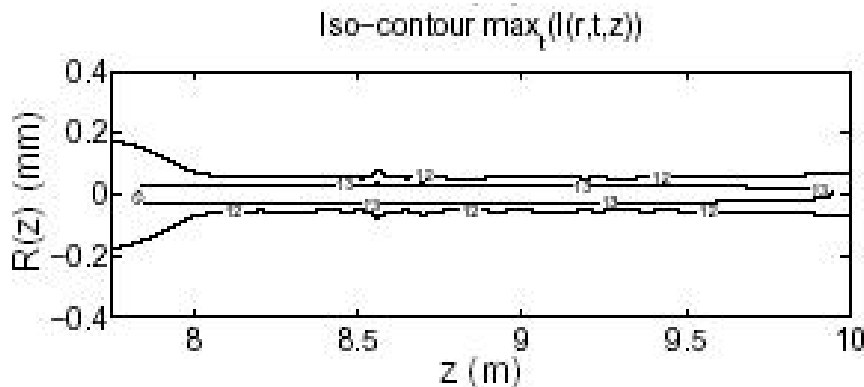
Παρατηρείται ότι η πυκνότητα των ηλεκτρονίων κυμαίνεται από 10^{12} cm⁻³ (στον εξωτερικό φλοιό του filament ακτίνας $R=200$ μm) έως 10^{15} cm⁻³ (στον εσωτερικό φλοιό του filament ακτίνας $R < 50$ μm) και επίσης ότι παραμένει σταθερή για απόσταση διάδοσης τουλάχιστον 2 m.



Εικ. 5-13: Μεταβολή της πυκνότητας ηλεκτρονίων λόγω επαγόμενου πλάσματος κατά την διάδοση της δέσμης μέσα στο Αργό σε πίεση 250 mbar και για αποστάσεις διάδοσης > 8 m. Η πυκνότητα ηλεκτρονίων παραμένει σχεδόν σταθερή για όλο το μήκος διάδοσης και κυμαίνεται από 10^{12} - 10^{15} cm⁻³.

Τέλος, στο σχήμα (Εικ. 5-14), απεικονίζεται η μεταβολή της κατανομής της έντασης της ακτινοβολίας της δέσμης του λέιζερ για διάδοση στο Αργό σε πίεση 250 mbar σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης και για αποστάσεις μεγαλύτερες από το σημείο της μη γραμμικής εστίας.

Παρατηρείται ότι η ένταση κυμαίνεται από 10^{12} - 10^{13} W/cm² από το εξωτερικό προς το εσωτερικό του filament, το οποίο έχει διαστάσεις ~ 200 μm. Η ένταση παραμένει σταθερή για αποστάσεις μεγαλύτερες από 2 m.



Εικ. 5-14: Μεταβολή της κατανομής της έντασης της δέσμης του λέιζερ καθώς διαδίδεται στο Αργό σε πίεση 250 mbar σε συνάρτηση με το μήκος διάδοσης και την ακτίνα του filament. Η ένταση κυμαίνεται από 10^{12} - 10^{13} W/cm² σε όλη το μήκος του filament και σε όλη την απόσταση διάδοσης.

5.7. Συμπεράσματα

Στο κεφάλαιο αυτό μελετήθηκε η διάδοση βραχύχρονων παλμών λέιζερ υπερϊώδους μέσα στο Αργό για διάφορες τιμές πίεσης μικρότερης της ατμοσφαιρικής. Η θεωρία διάδοσης παλμών λέιζερ μέσα σε αέρια εφαρμόζεται και στην περίπτωση του Αργού με την διαφορά από την διάδοση στον αέρα ότι υπάρχει ένα μόνο χημικό στοιχείο άρα η εξίσωση διάδοσης και της χρονικής εξέλιξης του επαγόμενου πλάσματος απλοποιείται σημαντικά. Η επιλογή του Αργού ως μέσου διάδοσης έγινε με βασικό κριτήριο ότι αποτελεί ιδανική περίπτωση για την παραγωγή αρμονικών, ένα από πιο σημαντικά φαινόμενα αλληλεπίδρασης ακτινοβολίας λέιζερ με αέρια, το οποίο θα μελετηθεί εκτενώς παρακάτω στην παρούσα διατριβή.

Οι μετρήσεις που έγιναν ήταν έλεγχος δημιουργίας της μη γραμμικής εστίασης, και έλεγχος σχηματισμού filaments σε συνάρτηση με την πίεση. Οι μετρήσεις αυτές έδειξαν ότι για πίεση μικρότερη από 200 mbar, τα μη γραμμικά φαινόμενα εξασθενούν. Αυτό αποτελεί ένα πολύ σημαντικό αποτέλεσμα διότι για πρώτη φορά υπολογίστηκε πειραματικά το κατώτερο όριο πίεσης για το οποίο υπάρχουν συνθήκες αυτο-οδηγούμενων παλμών. Το αποτέλεσμα αυτό δεν έχει υπολογιστεί στα μοντέλα προσομοίωσης και η μέτρηση αυτή αποτελεί ένα πολύ σπουδαίο εύρημα το οποίο μπορεί να χρησιμοποιηθεί για την καλύτερη δυνατή προσομοίωση με πραγματικές συνθήκες.

Ακολουθώντας τις υποδείξεις της θεωρητικής μελέτης κατασκευάστηκε ένα υπολογιστικό μοντέλο προσομοίωσης που περιγράφει τις συνθήκες διάδοσης μέσα στο Αργό. Τα αποτελέσματα της υπολογιστικής προσομοίωσης έδειξαν την εμφάνιση μη γραμμικής εστίασης σε απόσταση 7.8 m από τον φακό αντί των 9.5 m που θα έπρεπε να εστιάζει στην γραμμική περίπτωση. Το αποτέλεσμα αυτό έρχεται σε απόλυτη συμφωνία με τις μετρήσεις της ακτινοβολίας φθορισμού (προερχόμενη από το λέιζερ) που πραγματοποιήθηκαν κατά μήκος του άξονα διάδοσης. Επιπλέον το υπολογιστικό μοντέλο προβλέπει τον σχηματισμό filament με ακτίνα της τάξης των 150-200 μm , των οποίων η ένταση της κυμαίνεται από 10^{12} - 10^{13} W/cm^2 . Τέλος η ηλεκτρονική πυκνότητα που επάγεται από το δημιουργούμενο πλάσμα κυμαίνεται από 10^{12} - 10^{15} e^-/cm^3 .

Κεφάλαιο 6: Παραγωγή αρμονικών λόγω διάδοσης αυτο-οδηγούμενων παλμών λέιζερ υπεριώδους στο Αργό

6.1. Εισαγωγή

Ο σκοπός του συγκεκριμένου κεφαλαίου είναι η μελέτη παραγωγής αρμονικών κατά την διάδοση αυτο-οδηγούμενων παλμών και η εξέταση των φυσικών φαινομένων που προκύπτουν από την αλληλεπίδραση αυτή. Ήδη έχειδειχθεί ότι στην περίπτωση της διάδοσης αυτο-οδηγούμενων παλμών τα νημάτια υψηλής έντασης (filaments) που δημιουργούνται, «εγκλωβίζουν» χωρικά ένα τμήμα της δέσμης σε ένα πολύ μικρό κανάλι (διαμέτρου της τάξεως των 150-200 μm) και την διατηρούν εστιασμένη για αρκετά μεγάλη απόσταση (μερικά μέτρα) χωρίς να χάνει ενέργεια. Αυτό που παρουσιάζει ενδιαφέρον είναι η εξέταση των φυσικών μηχανισμών διάδοσης αυτο-οδηγούμενων παλμών κάτω από συνθήκες παραγωγής αρμονικών και είναι κάτι που δεν είχε επιχειρηθεί ως τώρα τουλάχιστον στο υπεριώδες και για μεγάλες αποστάσεις ($> 1 \text{ m}$). Η πειραματική μελέτη που περιγράφεται στην παρούσα διατριβή είναι η πρώτη που έγινε για λέιζερ υπεριώδους ([1],[23]), ενώ υπάρχουν μελέτες που αναφέρονται στην παραγωγή αρμονικών από αυτο-οδηγούμενους παλμούς λέιζερ στο υπέρυθρο, όπως η εργασία των *Lange et. al.* (1998) [110], η οποία αναφέρει την παραγωγή αρμονικών από αυτο-οδηγούμενους παλμούς λέιζερ μέσα στο Ξένο, και σε σχετικά μικρό μήκος αλληλεπίδρασης (μερικών mm), καθώς και η εργασία των *Akozbe et.al.* (2002) [111], η οποία αναφέρει την παραγωγή 3^{ης} αρμονικής σε διάδοση παλμών λέιζερ υπέρυθρου μέσα σε ατμοσφαιρικό αέρα. Τα συγκεκριμένα πειράματα είναι σε διαφορετικές συνθήκες από αυτές της παρούσας διατριβής αλλά παρουσιάζουν ερευνητικό ενδιαφέρον ως προς τις ειδικές συνθήκες παραγωγής των αρμονικών και εξετάστηκαν συγκριτικά.

6.2. Θεωρία παραγωγής αρμονικών λόγω αλληλεπίδρασης ακτινοβολίας λέιζερ με αέριο μέσο

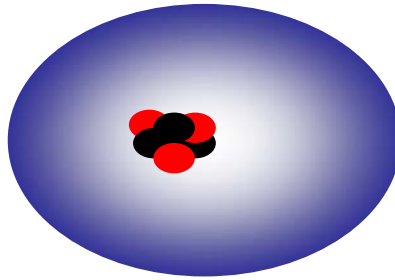
Ένα από τα πιο ενδιαφέροντα φαινόμενα αλληλεπίδρασης βραχύχρονων παλμών λέιζερ υπεριώδους υψηλής έντασης με αέρια, είναι η δημιουργία δευτερογενών πηγών σύμφωνης ακτινοβολίας [31-32,123-128] σε περιοχές του φάσματος που δεν υπάρχουν λέιζερ, όπως στην περιοχή του κοντινού υπεριώδους VUV ($< 100 \text{ nm}$) και

του μακρινού υπεριώδους XUV(<10 nm). Αυτές οι σύμφωνες πηγές δημιουργούνται από ελεγχόμενη παραγωγή αρμονικών (*harmonic generation*). Τέτοιες πηγές, ειδικά όταν παράγονται από λέιζερ υπεριώδους [108], βρίσκουν πάρα πολλές εφαρμογές, όπως π.χ. στην συμβολομετρία μακρινού υπεριώδους XUV [109] ή στην μελέτη της μοριακής φασματοσκοπίας XUV [10]. Αυτού του είδους η αλληλεπίδραση στα αέρια οδηγεί σε παραγωγή αρμονικών περιττής τάξης λόγω ισοτροπικότητας του μέσου. Αν το αρχικό μήκος κύματος της δέσμης του λέιζερ είναι στην περιοχή του UV (248 nm) οι αρμονικές που δημιουργούνται είναι στην περιοχή του VUV (η 3^{ης} τάξης παράγεται στα 82.7 nm ενώ η 5^{ης} τάξης στα 49.6 nm αντίστοιχα). Η δημιουργία δευτερογενών πηγών σύμφωνης ακτινοβολίας από την παραγωγή αρμονικών που προκύπτουν από την αλληλεπίδραση ακτινοβολίας λέιζερ υψηλής έντασης με αέρια έχει μελετηθεί εκτενώς τα τελευταία χρόνια (*Charalambidis et.al.*, [155], *Papadogiannis et.al.* [10], *Balcou et.al.* [112], *Li et.al.* [11], *L'Huillier et.al.* [12], *Chambers* [22] κ.α.), ενώ έχει μελετηθεί και το θεωρητικό υπόβαθρο των φαινομένων που λαμβάνουν χώρα (*L'Huillier et.al.* [113], *Krause et.al.* [114], *Corkum* [115], *Lewenstein et.al.* [116], *Sanpera et.al.* [117] κ.α.). Η παραγωγή αρμονικών από την αλληλεπίδραση ακτινοβολίας λέιζερ με αέρια προτάθηκε αρχικά σε θεωρητική βάση το 1987 από τους *Shore* και *Knight* [118], ενώ τα πρώτα πειράματα έγιναν από τον *McPherson* [119]. Η αλληλεπίδραση αυτή συμβαίνει μόνο σε σχετικά χαμηλή πίεση ώστε να αποφευχθούν φαινόμενα απορρόφησης της παραγόμενης ακτινοβολίας από τις αρμονικές, από το ίδιο το αέριο αλλά και λόγω απορρόφησης της ίδιας της ακτινοβολίας του λέιζερ. Το αέριο εισάγεται στον χώρο αλληλεπίδρασης συνήθως μέσω ενός παλμικού πίδακα αερίου με στενό άνοιγμα (*nozzle* ή *jet*) ή σε μερικές περιπτώσεις βρίσκεται σε στατικό θάλαμο μικρών σχετικά διαστάσεων (τάξεως mm) με παράθυρα διαπερατά στο μήκος κύματος του λέιζερ. Στην περίπτωση της αλληλεπίδρασης ακτινοβολίας λέιζερ χαμηλής έντασης με αέρια οι αρμονικές που παράγονται είναι συνήθως πολύ μικρής απόδοσης και μικρής τάξης (*C. Vidal* [120]). Η παραγωγή αρμονικών από αυτού του είδους την αλληλεπίδραση μπορεί να υπολογιστεί με ακρίβεια με βάση την θεωρία διαταραχών. Το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ είναι σχετικά μικρό συγκρινόμενο με το ηλεκτροστατικό δυναμικό *Coulomb* του ατόμου, επομένως μπορεί να θεωρηθεί ως το πεδίο διαταραχής. Όταν το άτομο εκτίθεται σε ένα εξωτερικό ηλεκτρικό πεδίο, όπως είναι αυτό του λέιζερ, ο πυρήνας του ατόμου μετακινείται από το κέντρο του νέφους ηλεκτρονίων του ατόμου το οποίο τον περιβάλλει.

Αυτό δημιουργεί ένα ηλεκτρικό δίπολο μέσα στο ίδιο το άτομο, όπως φαίνεται στο παρακάτω σχήμα (Εικ. 6-1). Αν το ηλεκτρικό πεδίο είναι αρκετά ασθενές, η μετατόπιση του πυρήνα είναι επίσης μικρή, και τότε η δύναμη επαναφοράς είναι γραμμική. Έχει ήδη δειχθεί ότι η πόλωση P που είναι το μέγεθος που εκφράζει την συνολική διπολική ροπή ανά μονάδα όγκου, δίνεται από την σχέση:

$$P = \epsilon_0 \chi E \quad (\text{Εξ. 6.1})$$

όπου ϵ_0 είναι η διηλεκτρική σταθερά του κενού, χ είναι η γραμμική ηλεκτρική επιδεκτικότητα και E το εφαρμόζόμενο εξωτερικό ηλεκτρικό πεδίο.



Εικ. 6-1: Άτομο στο οποίο φαίνεται η μετατόπιση του πυρήνα σε σχέση με το κέντρο του νέφους ηλεκτρονίων, εξαιτίας του εξωτερικού ηλεκτρικού πεδίου του λέιζερ.

Επίσης έχει ήδη ειπωθεί ότι αν το ηλεκτρικό πεδίο αυξηθεί, η πόλωση γίνεται μη γραμμική και δίνεται από την σχέση:

$$P = \sum_{n=1}^{\infty} \epsilon_0 \chi^n E^n \quad (\text{Εξ. 6.2})$$

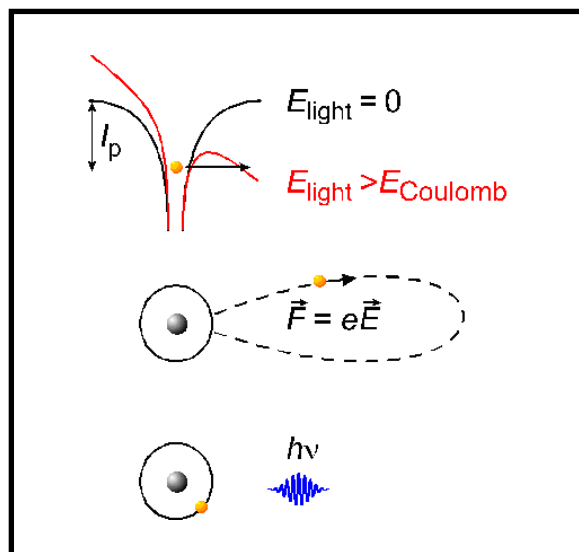
Αν το ηλεκτρικό πεδίο που εφαρμόζεται προέρχεται από μονοχρωματική πηγή όπως είναι το λέιζερ είναι της μορφής $E_L \sin \omega t$, ένα από τα φαινόμενα της μη γραμμικής πόλωσης είναι η παραγωγή αρμονικών της συχνότητας του λέιζερ, αν αντικατασταθεί το E από το $E_L \sin \omega t$, όπου E_L είναι το πλάτος του ηλεκτρικού πεδίου του λέιζερ και ω είναι η συχνότητα του λέιζερ:

$$P = \epsilon_0 \left\{ \chi_1 E_L \sin \omega t + \chi_2 E_L^2 \sin^2 \omega t + \chi_3 E_L^3 \sin^3 \omega t + \dots \right\} \quad (\text{Εξ. 6.3})$$

$$\begin{aligned}
 P = \varepsilon_0 \left\{ \chi_1 E_L \sin \omega t + \frac{\chi_2}{2} E_L^2 (1 - \cos 2 \omega t) \right. \\
 \left. + \frac{\chi_3}{4} E_L^3 (3 \sin \omega t - \sin 3 \omega t) + \dots \right\}
 \end{aligned}
 \tag{Εξ. 6.4}$$

Η συμμετρία που έχει το άτομο του αερίου, εξασφαλίζει ότι θα παραχθούν αρμονικές μόνο περιττής τάξης ($3^{\text{ης}}$, $5^{\text{ης}}$, $7^{\text{ης}}$, κ.τ.λ.). Σε υλικά χωρίς συμμετρία όπως π.χ. σε ορισμένους κρυστάλλους, μπορούν να παραχθούν όλες οι τάξεις των αρμονικών (άρτιες και περιττές). Καθώς το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ αυξάνει, αυξάνεται και η πιθανότητα ιονισμού του ατόμου. Ο ιονισμός θα αρχίσει όταν το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ μειώσει το φράγμα του ατομικού δυναμικού τόσο ώστε τα εξωτερικά ηλεκτρόνια να μην δέχονται πλέον την έλξη από το δυναμικό του πυρήνα. Ωστόσο, πρακτικά ο ιονισμός θα αρχίσει να λαμβάνει χώρα σε εντάσεις πολύ μικρότερες από αυτό το όριο και συγκεκριμένα σε εντάσεις τουλάχιστον δύο ή τρεις τάξεις μικρότερες. Αυτό γίνεται λόγω του κβαντικού *φαινομένου σήραγγας* το οποίο συμβαίνει σε αυτές τις εντάσεις και ο ιονισμός γίνεται με περισσότερα από ένα φωτόνια (*πολυφωτονικός ιονισμός*). Η κυματοσυνάρτηση του ηλεκτρονίου θα είναι περιοδική μέσα στα όρια του ατομικού δυναμικού αλλά θα υποστεί μια εκθετική μείωση καθώς περνάει το φράγμα δυναμικού. Επομένως η κυματοσυνάρτηση θα είναι μη μηδενική και πέρα από τα όρια του δυναμικού του ατόμου. Όσο πιο στενό είναι το φράγμα τόσο μεγαλύτερη είναι η κυματοσυνάρτηση έξω από το άτομο και μεγαλύτερη η πιθανότητα του ηλεκτρονίου να διαφύγει από το ηλεκτρικό πεδίο του ατόμου. Στην περίπτωση που δημιουργείται ιονισμός σήραγγας, το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ δεν μπορεί πλέον να θεωρείται μικρό σε σχέση με το ατομικό δυναμικό *Coulomb*. Καθώς η ένταση του λέιζερ αυξάνει πέρα από το όριο, η θεωρία διαταραχών παύει να ισχύει και δεν είναι πλέον σε θέση να περιγράψει το φαινόμενο της παραγωγής αρμονικών με ακρίβεια. Από την στιγμή που η ένταση του ηλεκτρικού πεδίου του λέιζερ γίνει συγκρίσιμη με το ατομικό δυναμικό *Coulomb*, θα αρχίσει ο ιονισμός του ατόμου. Όταν ένα ηλεκτρόνιο ξεφύγει από το ατομικό δυναμικό και γίνει ελεύθερο, η κίνησή του θα επηρεάζεται μόνο από το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ και θα οδηγηθεί μακριά από τον πυρήνα του ατόμου. Όταν το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ αντιστραφεί μετά από μισή περίοδο το ηλεκτρόνιο θα οδηγηθεί πίσω στο άτομο εκτελώντας έτσι μια ταλάντωση γύρω από το άτομο (Εικ. 6-2). Εξαιτίας της διάχυσης της κυματοσυνάρτησης, η πιθανότητα το ηλεκτρόνιο να επανασυνδεθεί με το άτομο γίνεται ολοένα και μικρότερη σε κάθε περίοδο

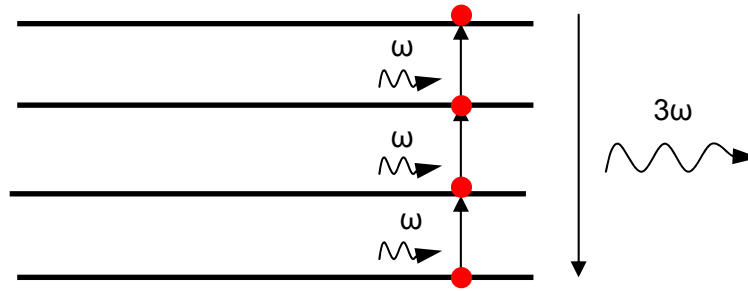
ταλάντωσης του ηλεκτρικού πεδίου του λέιζερ. Πράγματι, η πιθανότητα μπορεί να θεωρηθεί αμελητέα μετά από την πρώτη κιάλας περίοδο και επομένως έπειτα από μερικές περιόδους το άτομο μπορεί να θεωρηθεί πλέον ιονισμένο.



Εικ. 6-2: Ημι-κλασική προσέγγιση της παραγωγής αρμονικών (μοντέλο Corkum).

Στην περίπτωση της επανασύνδεσης, η ενέργεια που απελευθερώνεται θα είναι υπό μορφή ενός φωτονίου με μήκος κύματος μικρότερο από το αρχικό μήκος κύματος του λέιζερ και συγκεκριμένα σε αρμονικό μήκος κύματος ($\lambda/3$, $\lambda/5$, $\lambda/7$, κ.τ.λ.). Η παραπάνω θεωρητική περιγραφή αποτελεί την βάση του μοντέλου της ημικλασικής προσέγγισης όσον αφορά την αλληλεπίδραση ατόμου με ακτινοβολία λέιζερ για την συγκεκριμένη περιοχή των υψηλών εντάσεων και αναπτύχθηκε από τον Corkum [115].

Περιέχει την βασική φυσική της αλληλεπίδρασης χωρίς να υπεισέρχεται στα λεπτομερή μαθηματικά που απαιτούνται για να γίνει η πλήρη κβαντομηχανική περιγραφή του φαινομένου η οποία περιγράφει με ακρίβεια την παραγωγή αρμονικών (Εικ. 6-3). Το συγκεκριμένο μοντέλο αν και δεν έχει την ακρίβεια του πλήρους κβαντομηχανικού μοντέλου που απαιτείται για την λεπτομερέστατη ανάλυση, μπορεί να χρησιμοποιηθεί σε πρώτη προσέγγιση με αρκετά καλή ακρίβεια ώστε να προβλέψει την διεργασία παραγωγής αρμονικών.



Εικ. 6-3: Κβαντομηχανική περιγραφή παραγωγής αρμονικών

Για να υπολογιστεί το φάσμα των αρμονικών χρησιμοποιώντας το ημικλασικό μοντέλο του *Corkum*, θεωρείται ότι η κίνηση του ηλεκτρονίου καθορίζεται μόνο από το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ, δηλαδή ότι έχει απελευθερωθεί από το ατομικό δυναμικό. Το ηλεκτρόνιο αρχικά θα διαφύγει μακριά από το άτομο πριν από την αντιστροφή του ηλεκτρικού πεδίου του λέιζερ. Αν κατά την επιστροφή του το ηλεκτρόνιο (λόγω αντιστροφής του πεδίου του λέιζερ) συνδεθεί με το άτομο εκπέμπεται ένα φωτόνιο σε αρμονική συχνότητα. Οι εξισώσεις που δίνουν την κίνηση του ηλεκτρονίου μέσα στο ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ είναι:

$$\frac{d^2 z}{dt^2} = \frac{eE_L \cos \omega t}{m_e} \quad (\text{Εξ. 6.5})$$

$$\frac{dz}{dt} = v = \frac{eE_L \sin \omega t}{m_e \omega} + v_i \quad (\text{Εξ. 6.6})$$

$$z = -\frac{eE_L \cos \omega t}{m_e \omega^2} + v_i t + z_i \quad (\text{Εξ. 6.7})$$

Για $t = t_0$ (ο χρόνος ιονισμού) έστω $z = 0$, $v = 0$ και τότε:

$$v = \frac{eE_L}{m_e \omega} \{ \sin \omega t - \sin \omega t_0 \} \quad (\text{Εξ. 6.8})$$

$$z = -\frac{eE_L}{m_e \omega^2} \{ \cos \omega t + \omega t \sin \omega t_0 - \cos \omega t_0 - \omega t_0 \sin \omega t_0 \} \quad (\text{Εξ. 6.9})$$

όπου z είναι η μετατόπιση από τον πυρήνα, e είναι το φορτίο του ηλεκτρονίου, E_L είναι το πλάτος του ηλεκτρικού πεδίου του λέιζερ, ω είναι η συχνότητα του λέιζερ και m_e η μάζα του ηλεκτρονίου. Λύνοντας αυτές τις εξισώσεις ως προς v για την επιστροφή του ηλεκτρονίου στο άτομο ($z = 0$) υπολογίζεται η κινητική ενέργεια που απαιτείται για εκπομπή αρμονικών που είναι $E_K = \frac{1}{2} m v^2$. Η ενέργεια αυτή είναι η μέση ενέργεια (ολοκληρωμένη ως προς τον χρόνο) του ηλεκτρονίου καθώς ταλαντώνεται στο ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ και δίνεται από την σχέση:

$$U_p = \frac{e^2 E^2}{4 m_e \omega^2} \quad (\text{Εξ. 6.10})$$

όπου e είναι το φορτίο του ηλεκτρονίου, m_e είναι η μάζα του ηλεκτρονίου, E είναι το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ, και ω είναι η συχνότητα του λέιζερ. Αυτή δεν είναι η συνολική ενέργεια καθώς υπάρχει και η ενέργεια που απαιτείται για να απελευθερωθεί το ηλεκτρόνιο από το πεδίο του ατόμου και αυτή είναι η ενέργεια ιονισμού U_i . Αυτή επίσης η ενέργεια θα απελευθερωθεί κατά την επανασύνδεση του ηλεκτρονίου με το άτομο. Επομένως η μέγιστη συνολική ενέργεια U για την εκπομπή αρμονικών θα είναι:

$$U = U_i + 3.17 U_p \quad (\text{Εξ. 6.11})$$

Η παραπάνω σχέση δίνει την τιμή της μέγιστης ενέργειας που μπορεί να δοθεί σε μια αρμονική, αν όλη η ενέργεια που είναι διαθέσιμη, εκπέμπεται μέσω ενός μοναδικού φωτονίου, για συγκεκριμένη ενέργεια ιονισμού και ενέργεια του λέιζερ και αντιστοιχεί σε μια συγκεκριμένη συχνότητα που ονομάζεται *συχνότητα αποκοπής*. Η παραπάνω σχέση είναι ημι-εμπειρική και έχει προκύψει από πειραματικά αποτελέσματα και σύγκριση με την θεωρία. Αν αυξηθεί η ένταση του λέιζερ για σταθερή διάρκεια παλμού, υπάρχει αύξηση της ενέργειας του λέιζερ και κατά συνέπεια αύξηση της συχνότητας αποκοπής. Το αποτέλεσμα αυτό δίνει μεγαλύτερο αριθμό αρμονικών. Καθώς όμως αυξάνει η ένταση του λέιζερ, αυξάνει και ο βαθμός ιονισμού. Έτσι ορίζεται ως *ένταση κορεσμού*, η ένταση στην οποία το 20% των ατόμων παραμένει σε ουδέτερη κατάσταση μετά από την αλληλεπίδραση του λέιζερ με τα άτομα του αερίου [114]. Πάνω από αυτήν την ένταση θα παραχθούν πολύ μικρός αριθμός αρμονικών από τα ουδέτερα άτομα εξαιτίας της μείωσης του πληθυσμού τους.

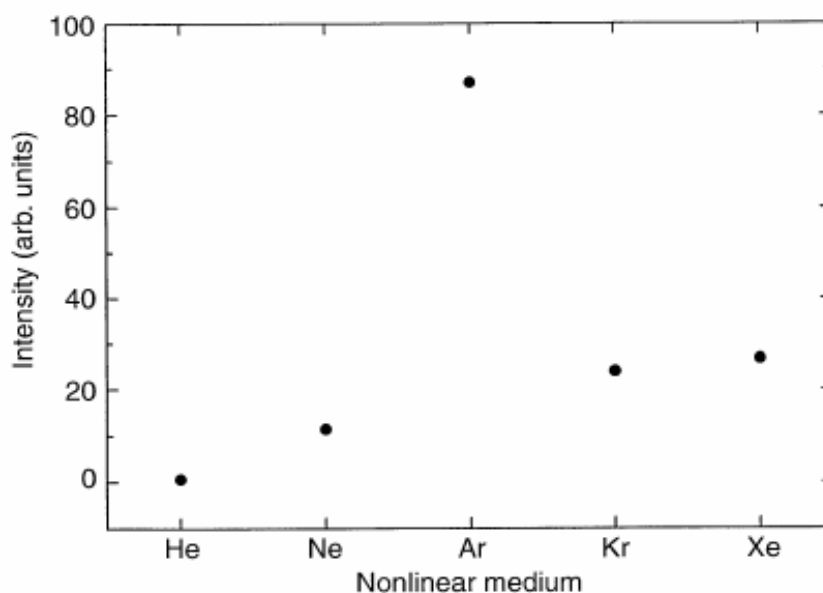
6.3. Επιλογή του Αργού για παραγωγή αρμονικών υψηλής απόδοσης στο υπεριώδες

Τα ευγενή αέρια είναι οι βασικοί εκπρόσωποι των αερίων που λειτουργούν ως γεννήτριες παραγωγής αρμονικών. Στον πίνακα που ακολουθεί (Πίνακας 1), απεικονίζονται οι ενέργειες ιονισμού των ευγενών αερίων.

Πίνακας 1: Ενέργειες ιονισμού των ευγενών αερίων (CRC Handbook of Chemistry and Physics)

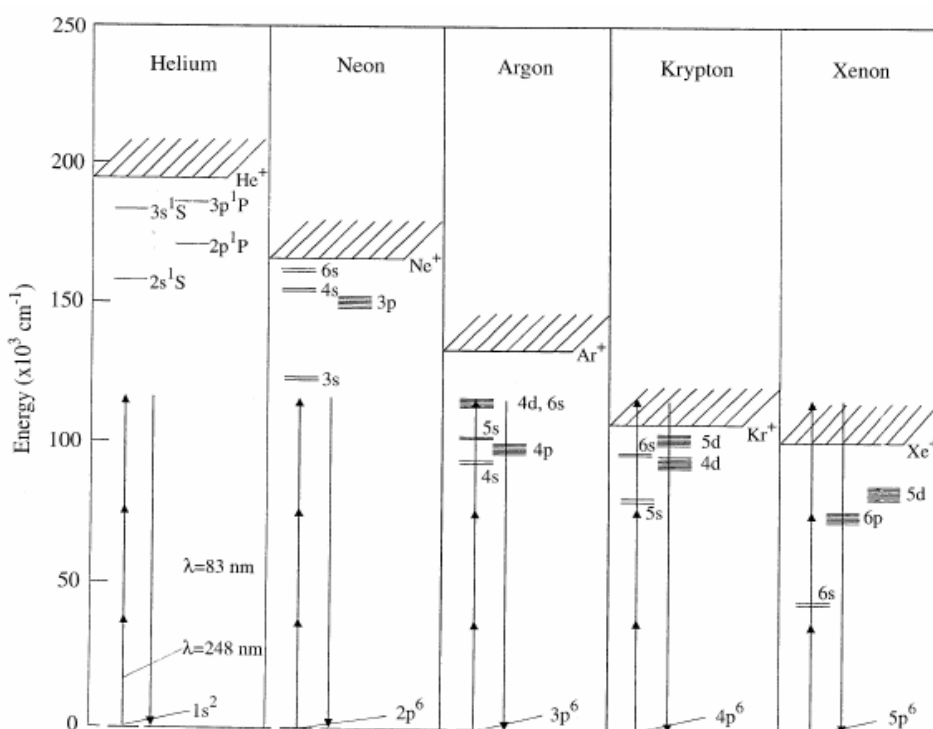
Αέριο	He	Ne	Ar	Kr	Xe
I_0 (eV)	24.58	21.56	15.76	14.00	12.13

Για να επιτευχθεί αποδοτική παραγωγή σε αρμονικές συχνότητες, θα πρέπει το αέριο μέσα στο οποίο θα παραχθούν οι αρμονικές να έχει συχνότητες συντονισμού στην περιοχή μηκών κύματος των αρμονικών ώστε να γίνει επιλεκτική εκπομπή. Όπως μπορεί να φανεί και στην εργασία των *Wellegehausen et.al* [122], σε πειράματα παραγωγής αρμονικών από αλληλεπίδραση λέιζερ υπεριώδους με ευγενή αέρια έδειξαν ότι το Αργό εμφανίζει την υψηλότερη απόδοση ειδικά στην παραγωγή της 3^{ης} αρμονικής (Εικ. 6-4)



Εικ. 6-4: Μέτρηση ακτινοβολίας προερχόμενης από την 3^η αρμονική (83 nm) λέιζερ υπεριώδους τύπου KrF ($\lambda_0=248$ nm), για διαφορετικά ευγενή αέρια (Wellegehausen et.al.(1996)[122])

Θεωρητικά, το σήμα από την $3^{\text{η}}$ αρμονική μειώνεται όσο πιο μικρό σε μάζα είναι το ευγενές αέριο. Όπως μπορεί να φανεί και από το σχήμα (Εικ. 6-4), το Αργό είναι το μόνο αέριο από όλα τα άλλα το οποίο έχει διαφορετική συμπεριφορά και εμφανίζει υψηλότερο σήμα στην $3^{\text{η}}$ αρμονική. Αυτό συμβαίνει εξαιτίας της ενίσχυσης του όρου τρίτης τάξης της ηλεκτρικής επιδεκτικότητας $\chi^{(3)}$, λόγω της διαδικασίας του 3-φωτονικού συντονισμού στην περιοχή μηκών κύματος της $3^{\text{ης}}$ αρμονικής, όπως φαίνεται και στο σχήμα (Εικ. 6-5). Στα ελαφρύτερα από το Αργό ευγενή αέρια (He, Ne), αυτές οι συνθήκες συντονισμού δεν ικανοποιούνται, ενώ στα βαρύτερα από το Αργό ευγενή αέρια (Kr, Xe) οι 3-φωτονικές μεταβάσεις βρίσκονται πάνω από το κατώφλι ιονισμού.



Εικ. 6-5: Διαγράμματα ενεργειακών μεταβάσεων των ευγενών αερίων (Wellegehausen et.al.(1996)[122])

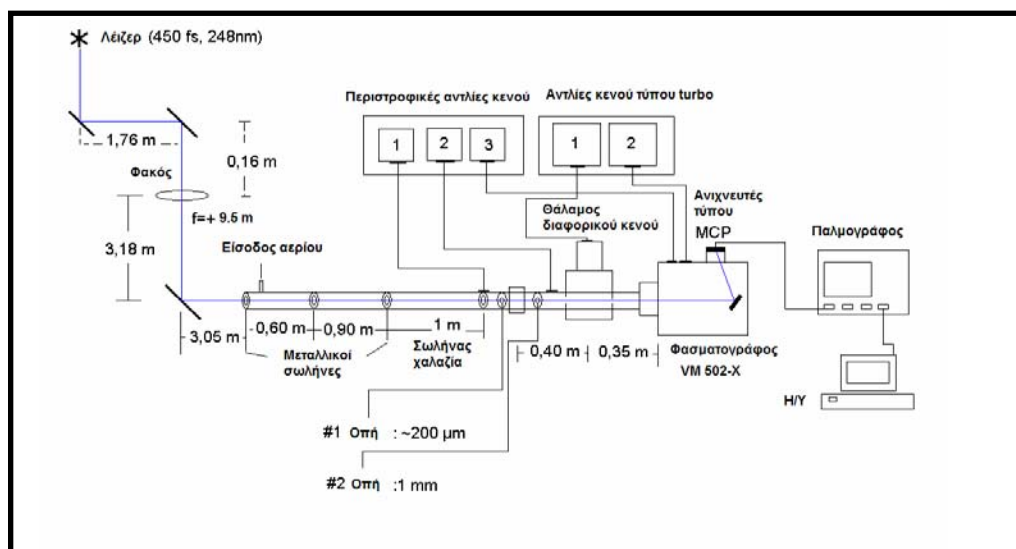
Επομένως, το Αργό είναι το πιο κατάλληλο μέσο διάδοσης για παραγωγή αρμονικών (ειδικά της $3^{\text{ης}}$ αρμονικής) για λέιζερ υπεριώδους και για τον λόγο αυτό χρησιμοποιείται στην παρούσα διατριβή. Για μία καθορισμένη ένταση λέιζερ υπάρχει μια καθορισμένη σχέση φάσης ανάμεσα στις αρμονικές και στο λέιζερ που τις παράγει. Το σήμα από τις αρμονικές θα αυξηθεί σταδιακά με την απόσταση εφόσον οι αρμονικές διατηρήσουν αυτήν την σταθερή σχέση φάσης με το λέιζερ. Όσο μεγαλύτερο είναι το μήκος του παραγόμενου μέσου που παραμένει σταθερή η φάση, τόσο μεγαλύτερη θα είναι και η ένταση των παραγόμενων αρμονικών.

6.4. Πειραματικός προσδιορισμός παραγωγής αρμονικών στο Αργό

Οι μετρήσεις που ελήφθησαν χωρίζονται σε δύο κατηγορίες: α) μετρήσεις φάσματος της ακτινοβολίας του λέιζερ καθώς διαδίδεται μέσα στο Αργό σε συγκεκριμένες συνθήκες χαμηλής πίεσης ($< 1 \text{ Atm}$) και β) μετρήσεις της έντασης των παραγόμενων αρμονικών ως συνάρτηση της πίεσης. Από τις μετρήσεις του φάσματος, υπολογίστηκε η απόδοση των παραγόμενων αρμονικών, η οποία όπως προέκυψε και από την μελέτη που πραγματοποιήθηκε, εμφανίζει πολύ υψηλή τιμή σε σχέση με τιμές απόδοσης στην βιβλιογραφία. Αυτό αποτελεί ένα πολύ σημαντικό αποτέλεσμα της μελέτης. Από τις μετρήσεις της έντασης των αρμονικών μεταβάλλοντας την πίεση του αερίου, προέκυψαν ενδιαφέροντα συμπεράσματα για τις συνθήκες «συμφωνίας φάσης» που υπάρχουν στο πείραμα. Τέλος, παράλληλα με τις μετρήσεις, κατασκευάστηκε ένα υπολογιστικό μοντέλο προσομοίωσης του πειράματος της παραγωγής των αρμονικών, το οποίο έδειξε ότι η αυξημένη απόδοση των αρμονικών οφείλεται κατά κύριο λόγο στο φαινόμενο της μη γραμμικής διάδοσης των παλμών και του φαινομένου «συμφωνίας φάσης».

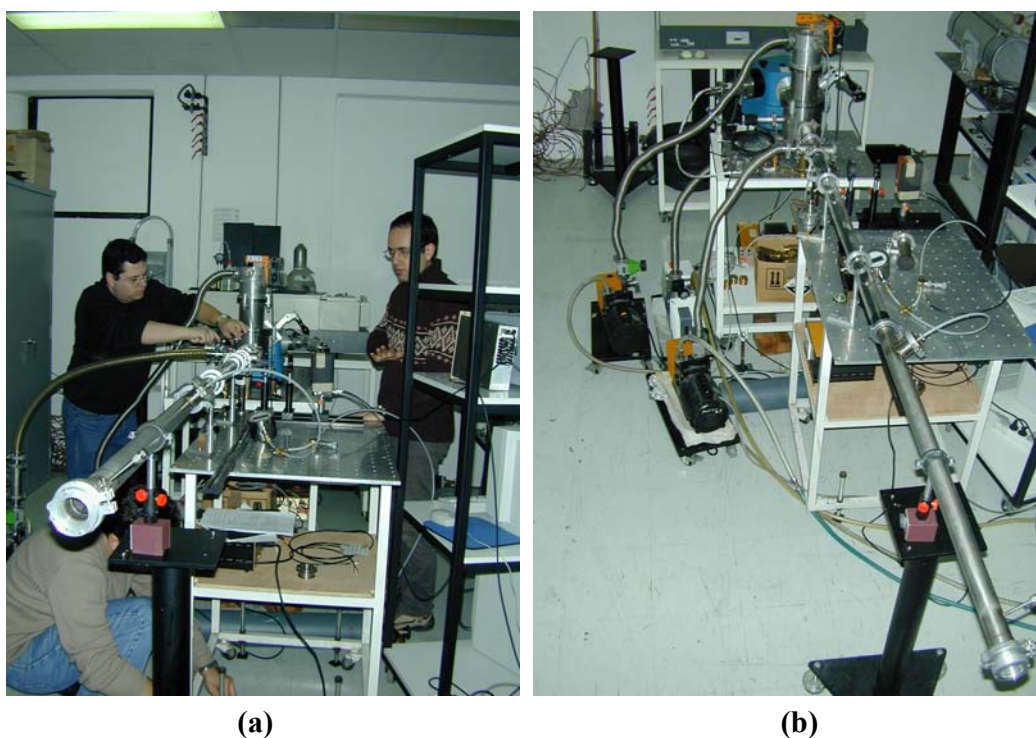
6.5. Πειραματική διάταξη

Το σχηματικό διάγραμμα της πειραματικής διάταξης φαίνεται στο σχήμα (Εικ. 6-6). Το σύστημα λέιζερ που χρησιμοποιείται είναι το ίδιο σύστημα σε όλα τα πειράματα της παρούσας διατριβής.



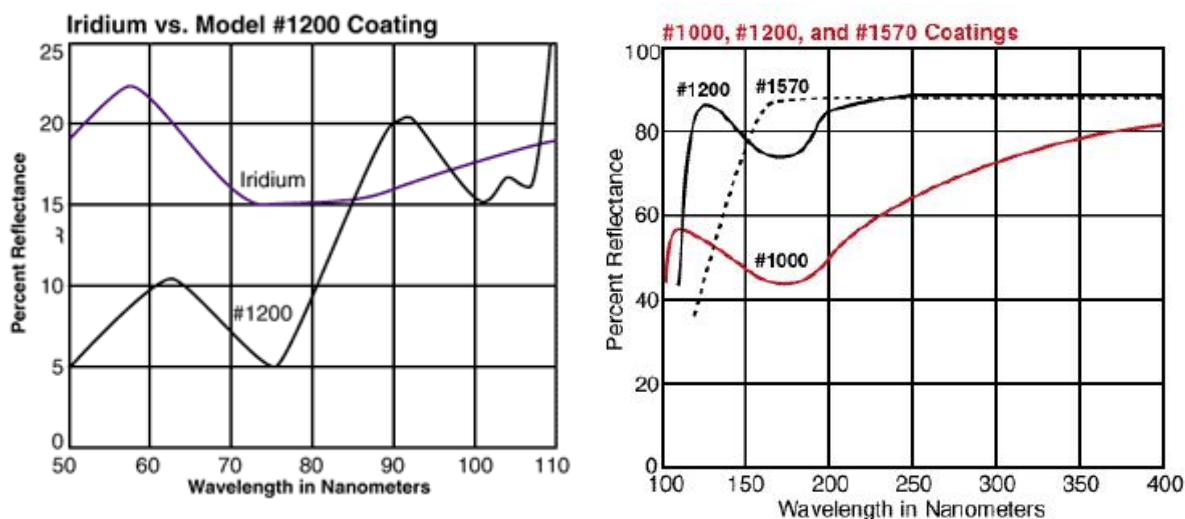
Εικ. 6-6: Πειραματική διάταξη πειράματος μέτρησης φάσματος αρμονικών

Στο πείραμα, η δέσμη του λέιζερ εστιάζεται μέσω του επιπεδόκυρτου φακού εστιακής απόστασης $f=9.5$ m μέσα στο σύστημα των σωλήνων συνολικού μήκους 2.5 m, που περιέχει Αργό υψηλής καθαρότητας ($> 99.99\%$). Ο φακός είναι τοποθετημένος σε απόσταση περίπου 6.3 m από το παράθυρο εισόδου του πρώτου σωλήνα όπως φαίνεται και στο σχήμα(Εικ. 6-6). Το σύστημα των σωλήνων αποτελείται από δύο μεταλλικά μέρη συνολικού μήκους 1.5 m (0.60 και 0.90 m) και από ένα σωλήνα από χαλαζία (*quartz*) μήκους 1 m. Η πίεση του Αργού μέσα στον σωλήνα μπορεί να ελεγχθεί μέσω ενός συστήματος αντλιών και μπορεί να πάρει τιμές από 50 ως 1000 mbar (Εικ. 6-7).



Εικ. 6-7: (a): Κατασκευάζοντας την πειραματική διάταξη, (b) Τελική μορφή

Η λήψη του φάσματος της ακτινοβολίας του λέιζερ γίνεται με ένα φασματογράφο υψηλού κενού της εταιρίας Acton Research (μοντέλο *VM502-X*) ο οποίος χρησιμοποιεί ολογραφικό φράγμα περίθλασης 1200 γραμμών/mm με επίστρωση *Al* και *MgF₂* και λειτουργεί στο φασματικό εύρος από 30 ως 400 nm (Εικ. 6-8). Ο ανιχνευτής, που χρησιμοποιεί ο φασματογράφος είναι ένας ανιχνευτής ηλεκτρονίων «πολλαπλών καναλιών» μιας βαθμίδας (*single stage*), τύπου MCP (*Multi-Channel Plate*) ο οποίος λειτουργεί σε τάση 1-2 kV. Το σήμα από τον ανιχνευτή συλλέγεται από ένα ψηφιακό παλμογράφο (*LeCroy*, 450 MHz).

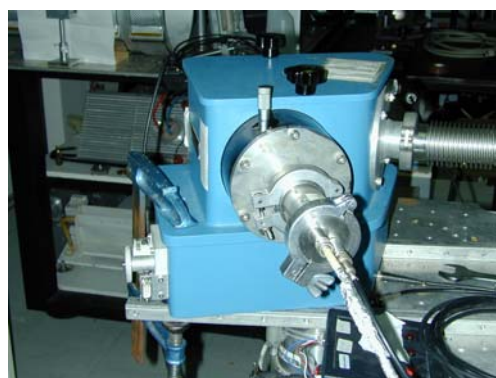


Εικ. 6-8: Καμπύλες ανακλαστικότητας του φράγματος περίθλασης (#1200) του φασματογράφου

Ο συγκεκριμένος τύπος ανιχνευτή, είναι πολύ υψηλής ανάλυσης και εξαιρετικά ευαίσθητος σε ασθενή σήματα και για τον λόγο αυτό χρειάζεται να λειτουργεί σε πολύ χαμηλή πίεση ($< 10^{-6}$ mbar). Έτσι, έγινε χρήση ενός συστήματος διαφορικού κενού με το οποίο μπορεί να επιτευχθεί πίεση τάξεως μερικών mbar στο σωλήνα του Αργού και χαμηλή πίεση ($< 10^{-6}$ mbar) στο θάλαμο του φασματογράφου. Πρακτικά αυτό γίνεται, τοποθετώντας δύο μικρές οπές (η πρώτη διαμέτρου 200 μm , και 1 mm η δεύτερη), όπως μπορεί να φανεί και στο σχήμα (Εικ. 6-6). Τόσο το φράγμα περίθλασης όσο και ο ανιχνευτής MCP είναι κατάλληλα βαθμονομημένοι στο επιθυμητό φασματικό εύρος (40-300 nm). Η καλύτερη δυνατή ανάλυση που μπορεί να επιτευχθεί με το σύστημα μέτρησης είναι της τάξεως των 2 nm, με εύρος σχισμής στην έξοδο του φασματογράφου στα 0.5 mm.



(a)



(b)

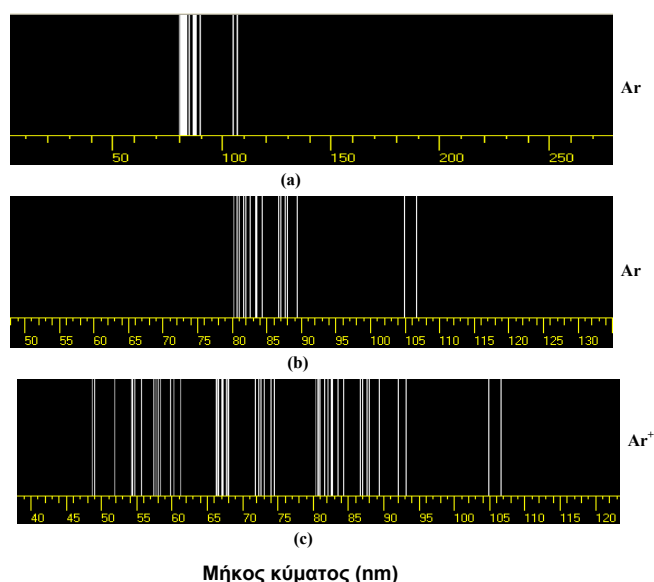
Εικ. 6-9: (a): Σύστημα διαφορικό κενού, (b): Φασματογράφος Acton Research VM502-X

6.6. Μετρήσεις και ανάλυση αποτελεσμάτων

Όπως ειπώθηκε και παραπάνω, πραγματοποιήθηκαν δύο ειδών μετρήσεις: α) μετρήσεις του φάσματος της ακτινοβολίας του λέιζερ στην περιοχή του VUV (40-250 nm) καθώς διαδίδεται μέσα στο Αργό και β) μετρήσεις της έντασης της ακτινοβολίας από τις παραγόμενες αρμονικές μεταβάλλοντας την πίεση. Επειδή είναι γνωστό ότι η απευθείας έκθεση της δέσμης των αυτο-οδηγούμενων παλμών θα καταστρέψει οποιοδήποτε ανιχνευτικό ή και οπτικό σύστημα λόγω της υψηλής έντασης, η δέσμη πέφτει πάνω στην πρώτη οπή διαμέτρου 200 μm , στην οποία καταστρέφεται το filament και επομένως αυτό που φτάνει στον φασματογράφο είναι η διάχυτη ακτινοβολία από το λέιζερ. Λόγω της φασματικής διακριτικής ικανότητας του φασματογράφου που φτάνει πρακτικά μέχρι τα >40 nm, οι αρμονικές που μπορούν να ανιχνευθούν είναι $3^{\text{ης}}$ τάξης με $\lambda_3 = \lambda_0/3 = 248/3 = 82.7$ nm και $5^{\text{ης}}$ τάξης με $\lambda_5 = \lambda_0/5 = 248/5 = 49.6$ nm.

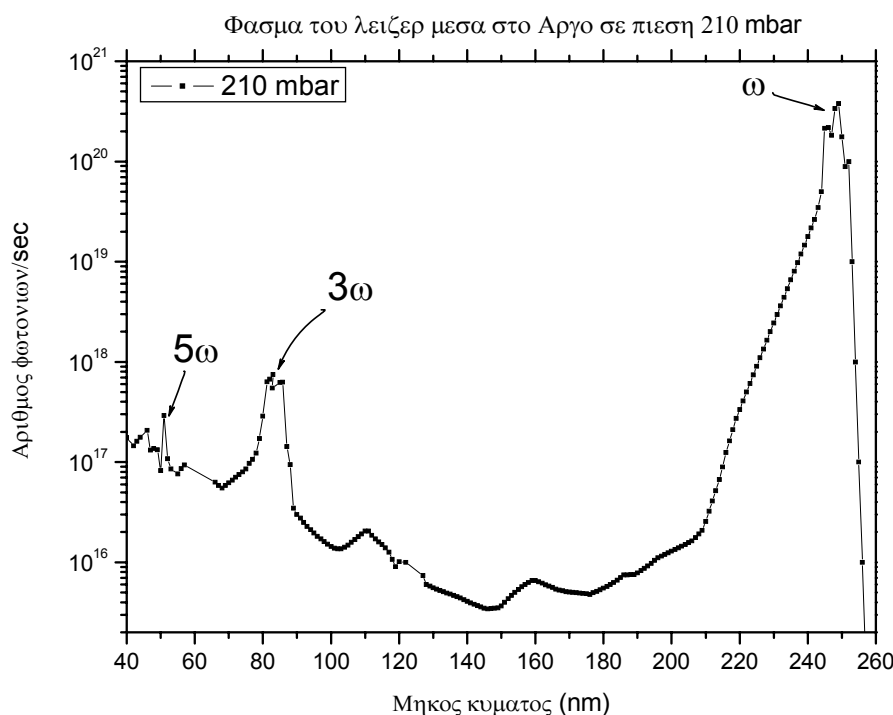
6.7. Φασματικές μετρήσεις κατά την διάδοση της δέσμης λέιζερ στο Αργό

Όπως έχει ήδη ειπωθεί, το Αργό είναι το πιο κατάλληλο μέσο διάδοσης για την παραγωγή αρμονικών (ειδικά της $3^{\text{ης}}$ αρμονικής) διότι έχει καταστάσεις συντονισμού στην περιοχή της $3^{\text{ης}}$ αρμονικής (82.7 nm). Αυτό μπορεί να φανεί και από το φάσμα εκπομπής του (Εικ. 6-10).



Εικ. 6-10: Φάσμα εκπομπής του Αργού: (a) Ουδέτερο Αργό (Ar) στην περιοχή 50-250 nm, (b) Ουδέτερο Αργό (Ar) στην περιοχή 50-130 nm (zoom), (c) Μια φορά ιονισμένο Αργό (Ar^+) στην περιοχή 40-120 nm

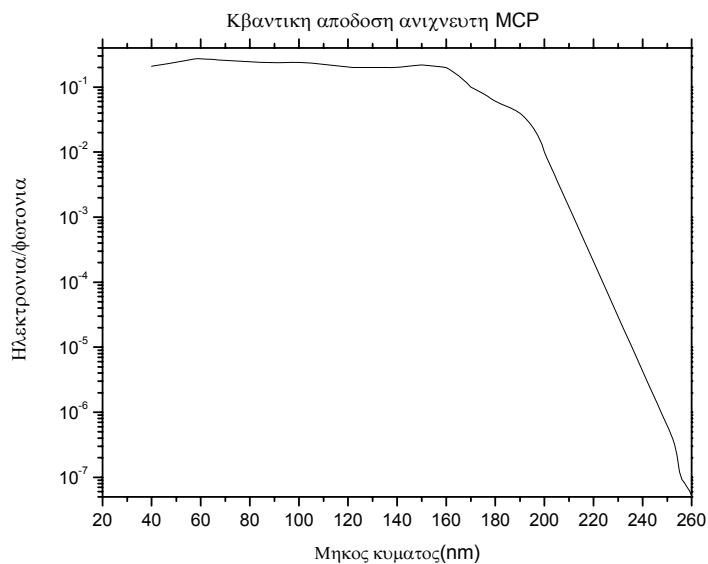
Με βάση λοιπόν όλα τα παραπάνω, πραγματοποιούνται μετρήσεις του φάσματος εκπομπής της ακτινοβολίας της δέσμης του λέιζερ μετά την διάδοσή της μέσα στο Αργό σε πίεση 210 mbar του λέιζερ στην περιοχή 40-250 nm. Όπως φαίνεται από το παρακάτω σχήμα (Εικ. 6-11), η ακτινοβολία του λέιζερ στην περιοχή από 40-250 nm, εμφανίζει μέγιστα, στο μήκος κύματος του λέιζερ λ_0 (στα 248 nm), στην 3^η αρμονική λ_3 (82.7 nm) και στην 5^η αρμονική λ_5 (49.6 nm).



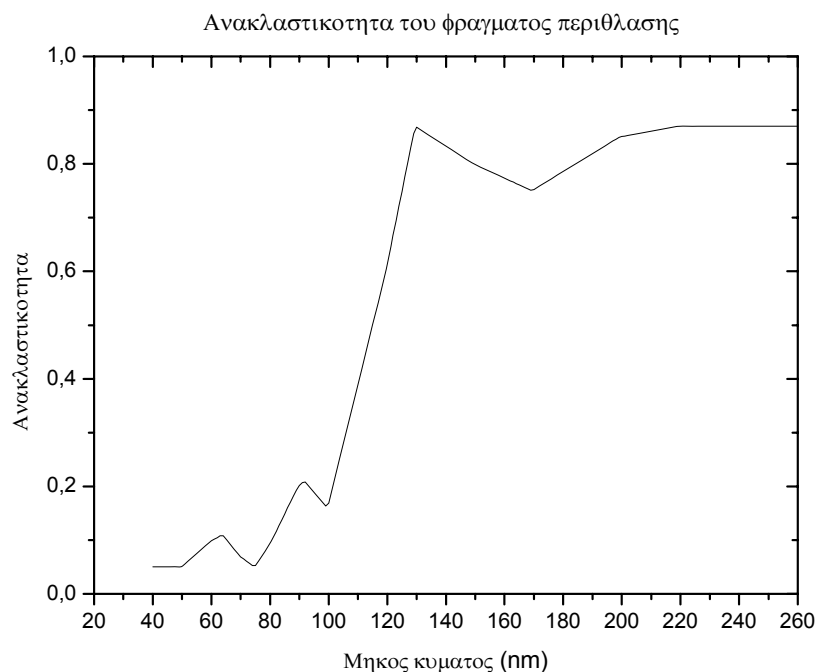
Εικ. 6-11: Φάσμα εκπομπής της δέσμης του λέιζερ μετά την διάδοσή της μέσα στο Αργό σε πίεση 210 mbar

Στον κατακόρυφο άξονα στο σχήμα (Εικ. 6-11) απεικονίζεται ο αριθμός των φωτονίων ανά δευτερόλεπτο και είναι σε πραγματική κλίμακα, καθώς ο ανιχνευτής MCP που χρησιμοποιήθηκε στο πείραμα έχει διαφορετική κβαντική απόδοση στην περιοχή μηκών κύματος των αρμονικών από ότι στην περιοχή του θεμελιώδους μήκους κύματος του λέιζερ όπως φαίνεται στο παρακάτω σχήμα (Εικ. 6-12). Επίσης οι μετρήσεις έχουν διορθωθεί λαμβάνοντας την ανακλαστικότητα του φράγματος περίθλασης του φασματογράφου το οποίο εμφανίζει διαφορετικές τιμές στο μελετούμενο φασματικό εύρος, όπως μπορεί να φανεί από τις καμπύλες

ανακλαστικότητα του κατασκευαστή για τις διάφορες περιοχές (Εικ. 6-8) αλλά και από το συνολικό διάγραμμα στην περιοχή από 40-260 nm (Εικ. 6-13).



Εικ. 6-12: Κβαντική απόδοση ανιχνευτή MCP σε συνάρτηση με το μήκος κύματος



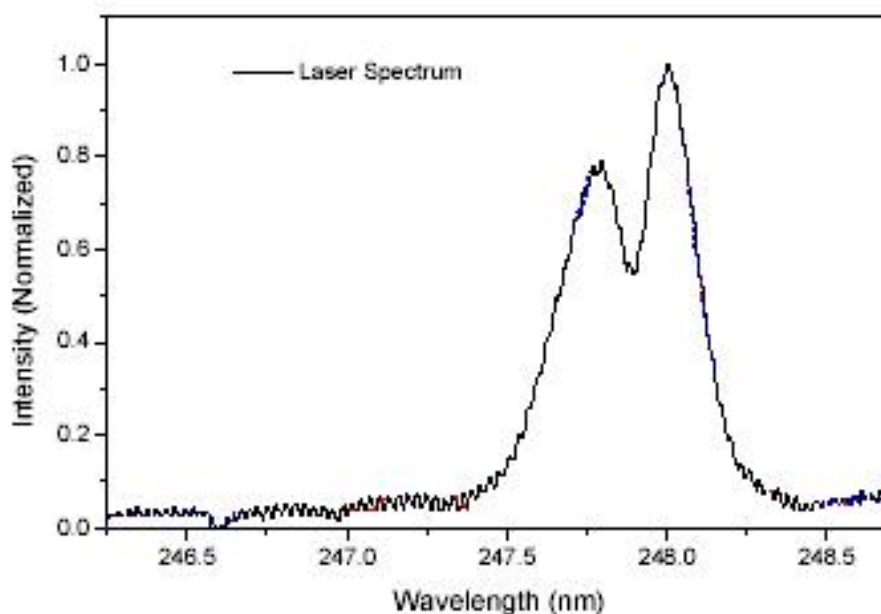
Εικ. 6-13: Διάγραμμα ανακλαστικότητας του φράγματος περίθλασης του φασματογράφου στην περιοχή από 40-260 nm.

Κάνοντας λοιπόν τις απαραίτητες διορθώσεις υπολογίστηκε η απόδοση των αρμονικών και βρέθηκε ότι για την 3^η τάξης αρμονική είναι 0.02% , ενώ για την 5^η τάξης αρμονική είναι 0.01%. Οι τιμές αυτές είναι υψηλότερες από αυτές της βιβλιογραφίας κατά ένα παράγοντα της τάξης του 10^2 ως 10^4 (Πίνακας 2). Αυτή η εξαιρετικά υψηλή απόδοση στην παραγωγή των αρμονικών είναι μια ένδειξη του φαινομένου «συμφωνίας φάσης» κατά μήκος της διάδοσης των αυτό-οδηγούμενων παλμών λέιζερ. Στο πίνακα που ακολουθεί, εμφανίζονται οι τιμές που ελήφθησαν από το πείραμα καθώς και τιμές αντίστοιχων πειραμάτων παραγωγής αρμονικών που χρησιμοποιούν ως μη γραμμικό μέσο το Αργό για διάφορες εντάσεις δέσμης στο σημείο εστίασης I_p και καταγράφονται στην βιβλιογραφία.

Πίνακας 2: Σύγκριση των πειραματικών μας αποτελεσμάτων (αναφορά [1]) της ενέργειας απόδοσης μετατροπής των αρμονικών στο Αργό, με αντίστοιχες τιμές της βιβλιογραφίας

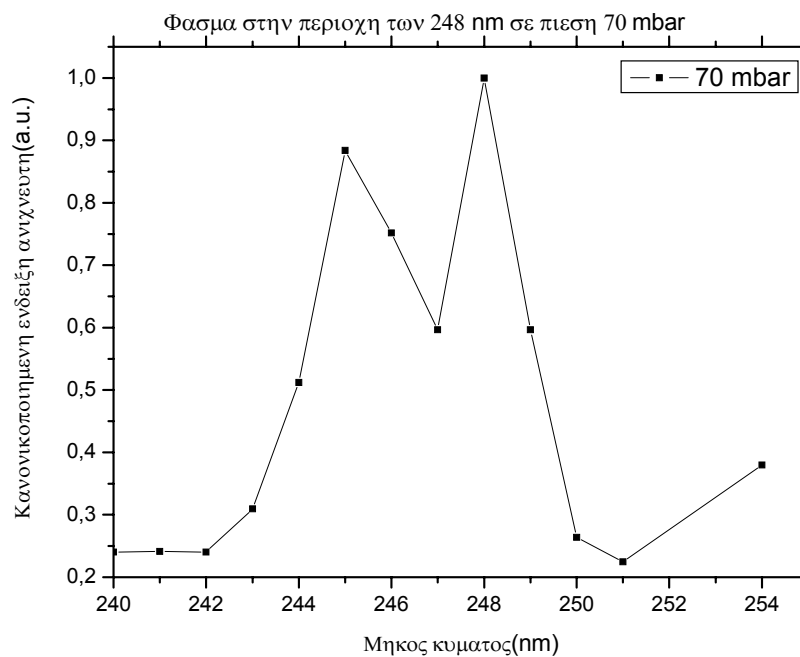
Τάξη αρμονικής	Μήκος κύματος αρμονικής (nm)	Πίεση (mbar)	Μήκος κύματος λέιζερ(nm)	Ένταση στην εστία I_p (W/cm ²)	Απόδοση της ενέργειας μετατροπής	Αριθμός αναφοράς
30	26	300	790	5×10^{14}	10^{-6}	[129]
3	267	40	800	10^{16}	10^{-6}	[130]
3	267	665	800	10^{16}	10^{-4}	[130]
3	355	20	1064	$>10^{13}$	10^{-10}	[11]
3	82.7	70	248	$<10^{14}$	2×10^{-4}	[1]
3	82.7	250	248	$<10^{14}$	1×10^{-4}	[1]
5	49.6	70	248	$<10^{14}$	1.6×10^{-4}	[1]

Ένα άλλο ενδιαφέρον φαινόμενο που παρατηρήθηκε είναι η φασματική διαπλάτυνση τόσο του φάσματος στην περιοχή του θεμελιώδους μήκους κύματος του λέιζερ λ_0 αλλά και στην περιοχή των αρμονικών. Έχει ήδη δειχθεί ότι το φάσμα της δέσμης του λέιζερ στον αέρα πριν εστιαστεί και εμφανίσει μη γραμμικά φαινόμενα είναι της μορφής που εμφανίζεται στο παρακάτω σχήμα(Εικ. 6-14), δηλαδή παρουσιάζει μια μορφή δύο κορυφών, λόγω κατασκευής της δέσμης, ενώ το συνολικό φασματικό εύρος (*FWHM*) είναι 0.6 nm περίπου.

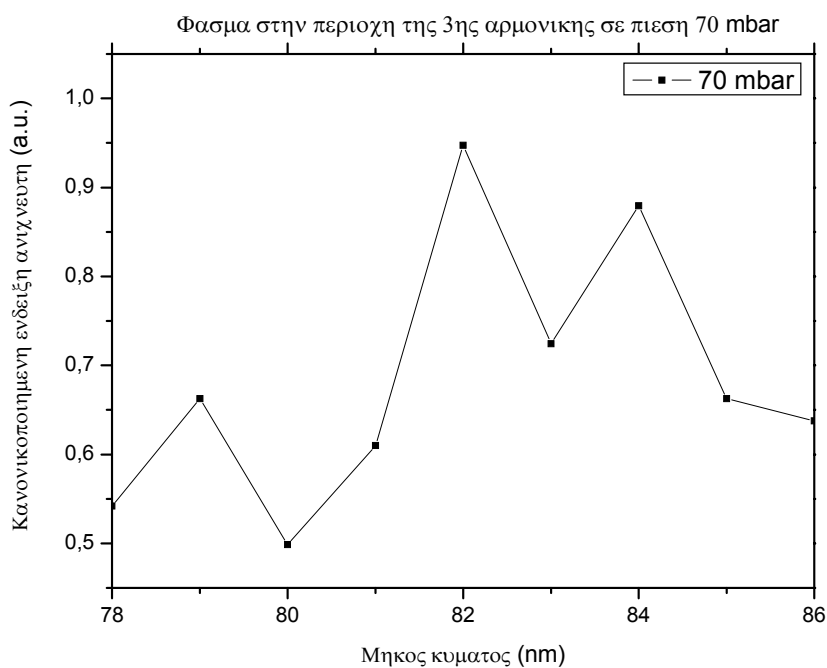


Εικ. 6-14: Φάσμα της δέσμης του λέιζερ πριν την διάδοση

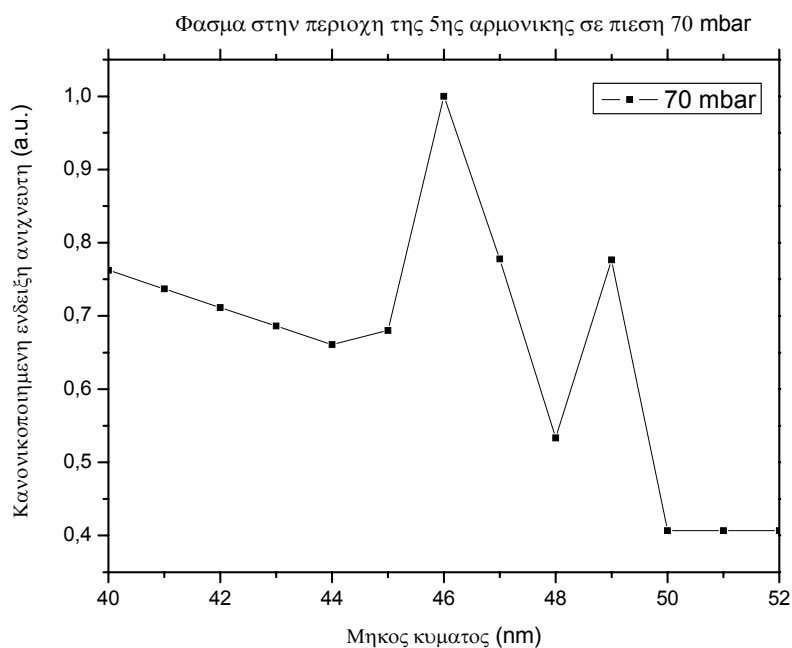
Πραγματοποιώντας τώρα μετρήσεις του φάσματος στην περιοχή του μήκους κύματος του λέιζερ και στην περιοχή των αρμονικών για διάδοση μέσα στο Αργό σε χαμηλή πίεση (70 mbar) ελήφθησαν τα παρακάτω αποτελέσματα (Εικ. 6-15, Εικ. 6-16, Εικ. 6-17).



Εικ. 6-15: Φάσμα της δέσμης του λέιζερ (248 nm)



Εικ. 6-16: Φάσμα της 3^{ης} αρμονικής (82.7 nm)



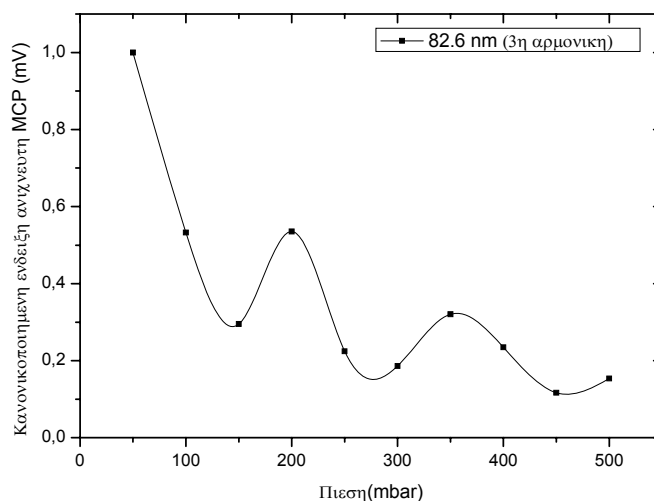
Εικ. 6-17: Φάσμα της 5^{ης} αρμονικής (49.6 nm)

Παρατηρείται ότι όλα τα φάσματα διατηρούν την μορφή της διπλής κορυφής όπως ήταν αναμενόμενο, αλλά έχουν υποστεί μια μετατόπιση προς μικρότερα μήκη

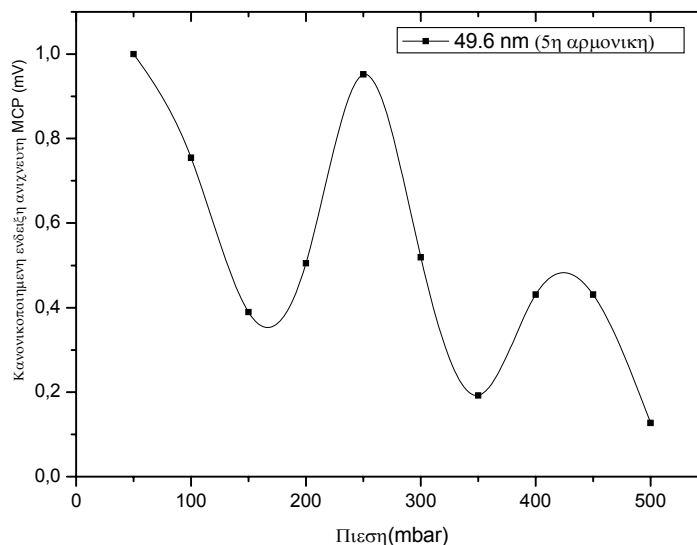
κύματος (*blue shift*) καθώς επίσης και φασματική διαπλάτυνση. Συγκεκριμένα, το φάσμα της δέσμης του λέιζερ στην περιοχή του θεμελιώδους μήκους κύματος (Εικ. 6-15) έχει υποστεί μια φασματική διαπλάτυνση 5 nm (*FWHM*), δηλαδή είναι 8 φορές πιο πλατύ από το φάσμα της δέσμης που δεν έχει υποστεί κανένα γραμμικό φαινόμενο (Εικ. 6-14), γεγονός που επαληθεύει την δημιουργία αυτο-οδηγούμενων παλμών κατά την διάδοση. Όσον αφορά τα φάσματα των αρμονικών, παρατηρείται ότι το φάσμα της 3^{ης} αρμονικής (Εικ. 6-16) έχει υποστεί διαπλάτυνση 3 nm περίπου, ενώ το φάσμα της 5^{ης} αρμονικής έχει υποστεί διαπλάτυνση 4 nm περίπου. Η φασματική διαπλάτυνση είναι μη γραμμικό φαινόμενο 3^{ης} τάξης και οφείλεται μερικώς στην αυτοδιαμόρφωση φάσης (*self-phase modulation, SPM*) και στην μετατόπιση προς το ιώδες (*blue-shift*) και είναι απόδειξη της ύπαρξης αυτο-οδηγούμενων παλμών [131-132]. Αυτό που προκύπτει ως άμεσο συμπέρασμα από τις παραπάνω μετρήσεις είναι ότι οι παραγόμενες αρμονικές εμφανίζεται να «κληρονομούν» τα φασματικά χαρακτηριστικά της θεμελιώδους συχνότητας ω_0 που τις δημιουργήσε, γεγονός που καταγράφεται για πρώτη φορά σε ερευνητική μελέτη.

6.8. Μέτρηση της ακτινοβολίας των αρμονικών ως συνάρτηση της πίεσης

Στην συνέχεια καταγράφεται η επίδραση της πίεσης σε συνάρτηση με την ένταση της ακτινοβολίας των αρμονικών. Τα αποτελέσματα των μετρήσεων φαίνονται στα σχήματα που ακολουθούν (Εικ. 6-18, Εικ. 6-19).



Εικ. 6-18: Μεταβολή της έντασης της 3^{ης} αρμονικής σε συνάρτηση με την πίεση



Εικ. 6-19: Μεταβολή της έντασης της 5^{ης} αρμονικής σε συνάρτηση με την πίεση

Από τα παραπάνω σχήματα, παρατηρείται ότι υπάρχει μια περιοδική συμπεριφορά στην εξάρτηση της έντασης της αρμονικής σε συνάρτηση με την πίεση. Μπορεί να υπολογιστεί η ημιπερίοδος αυτής της περιοδικής συμπεριφοράς και είναι $\Delta P_3 = 0.085$ Atm και $\Delta P_5 = 0.095$ Atm για την 3^η και την 5^η αρμονική αντίστοιχα. Αυτή η περιοδική συμπεριφορά είναι γνωστή ότι συμβαίνει σε πειράματα παραγωγής αρμονικών και ονομάζεται συμπεριφορά *κροσσών Maker* [133]. Η ύπαρξη αυτής της συμπεριφοράς υποδηλώνει ότι υπάρχουν συνθήκες «συμφωνίας φάσης» (*phase-matching*) και όπως θα δειχθεί και παρακάτω, οφείλεται κυρίως στην διασπορά της ταχύτητας ομάδος (*group velocity dispersion*) η οποία περιορίζει την ενισχυτική υπέρθεση των παραγόμενων αρμονικών κατά περιοδικό τρόπο.

6.9. Απόδοση αρμονικών λόγω «συμφωνίας φάσης» (Phase-matching)

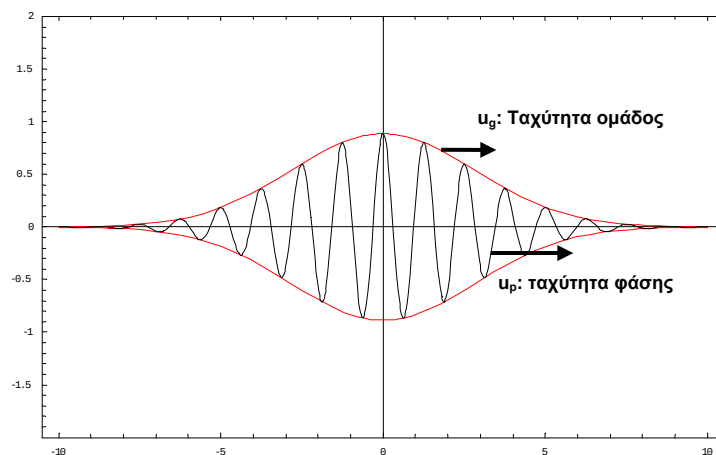
Για να είναι αποδοτική μια μετατροπή μήκους κύματος (συχνότητας) εκτός από την απαίτηση για το υλικό μέσο να έχει μη γραμμικές ιδιότητες, είναι επίσης απαραίτητο οι φασικές ταχύτητες των κυμάτων που αλληλεπιδρούν να «ταιριάζουν» ώστε να είναι απρόσκοπτη η μεταφορά ενέργειας τρόπο από το αρχικό πεδίο (του λέιζερ) προς τα παραγόμενα πεδία (αρμονικές). Για παράδειγμα, στην περίπτωση παραγωγής δεύτερης αρμονικής σε κρυστάλλους, η συνθήκη «συμφωνίας φάσης» απαιτεί ότι οι δείκτες διάθλασης της θεμελιώδους συχνότητας ω (π.χ. του λέιζερ) και της

συχνότητας της $2^{\text{ης}}$ αρμονικής 2ω (από τον κρύσταλλο) πρέπει να είναι ίσοι: $n_{\omega}=n_{2\omega}$. Εξαιτίας τώρα της διασποράς του μη γραμμικού μέσου ο δείκτης διάθλασης είναι εξαρτώμενος από το μήκος κύματος, $n=n(\lambda)$, ή ισοδύναμα ο κυματάριθμος k είναι εξαρτώμενος από την συχνότητα, $k=k(\omega)$. Αυτό έχει ως αποτέλεσμα ότι η συνθήκη της «συμφωνίας φάσης» δεν ικανοποιείται πάντα για γραμμικά πολωμένα ηλεκτρικά πεδία όπως του λέιζερ και των παραγόμενων αρμονικών του. Η λύση αυτού του προβλήματος έγκειται συνήθως στην επιλογή υλικών με φυσική διπλοθλαστικότητα ώστε να εξασφαλίζεται η συμφωνία των φασικών ταχυτήτων ανάμεσα σε ορθογώνια πολωμένα ηλεκτρικά πεδία. Συγκρίνοντας την μη γραμμική μετατροπή συχνότητας στενού φασματικού εύρους (ns, ps λέιζερ) παλμών, η χρήση των πολύ βραχύχρονων παλμών με μεγάλο φασματικό εύρος συχνοτήτων (fs λέιζερ) εισάγει επιπλέον προβλήματα όσον αφορά την διασπορά του μέσου διάδοσης. Γενικά, όταν ένας παλμός ενός λέιζερ μικρής χρονικής διάρκειας (μεγάλου φασματικού εύρους) ταξιδεύει στο χώρο έχει δύο ειδών ταχύτητες: την *ταχύτητα φάσης* (*phase velocity*) u_p , η οποία ορίζεται ως:

$$u_p = \frac{\omega(k)}{k}$$

και είναι η ταχύτητα με την οποία ταξιδεύουν οι διαφορετικές συνιστώσες του παλμού μέσα στο κυματοπακέτο όπως μπορεί να φανεί και στο παρακάτω σχήμα(Εικ. 6-20). Η δεύτερη ταχύτητα, είναι η ταχύτητα με την οποία ταξιδεύει ουσιαστικά ο παλμός ή καλύτερα η περιβάλλουσά του, και είναι η ταχύτητα η οποία μπορεί να μετρηθεί ονομάζεται *ταχύτητα ομάδος* (*group velocity*) u_g και ορίζεται ως εξής:

$$u_g = \left(\frac{dk}{d\omega} \right)^{-1}$$



Εικ. 6-20: Ταχύτητες διάδοσης ενός μη μονοχρωματικού παλμού

Στους παλμούς με μεγάλο φασματικό εύρος συχνοτήτων το φαινόμενο της διασποράς προκαλεί τα διαφορετικά μήκη κύματος που βρίσκονται μέσα στον παλμό να διαδίδονται με διαφορετικές ταχύτητες ομάδος. Αυτό το φαινόμενο οδηγεί σε χρονική απομάκρυνση (*temporal walk-off*) μεταξύ της θεμελιώδους συχνότητας και των αρμονικών.

Αυτή η «μη συμφωνία» (*mismatch*) της ταχύτητας ομάδος, ονομάζεται *group velocity mismatch* (GVM) και βάζει ένα περιορισμό στο μήκος αλληλεπίδρασης για τις αρμονικές που μπορούν να παραχθούν μέσα σε ένα μέσο, χωρίς να υπάρχει σημαντική φασματική διαπλάτυνση συγκρινόμενες με την θεμελιώδη συχνότητα. Το χαρακτηριστικό αυτό μήκος ονομάζεται μήκος απομάκρυνσης ή *μήκος walk-off* L_v και στην περίπτωση παραγωγής αρμονικών σε αέρια ορίζεται ως εξής:

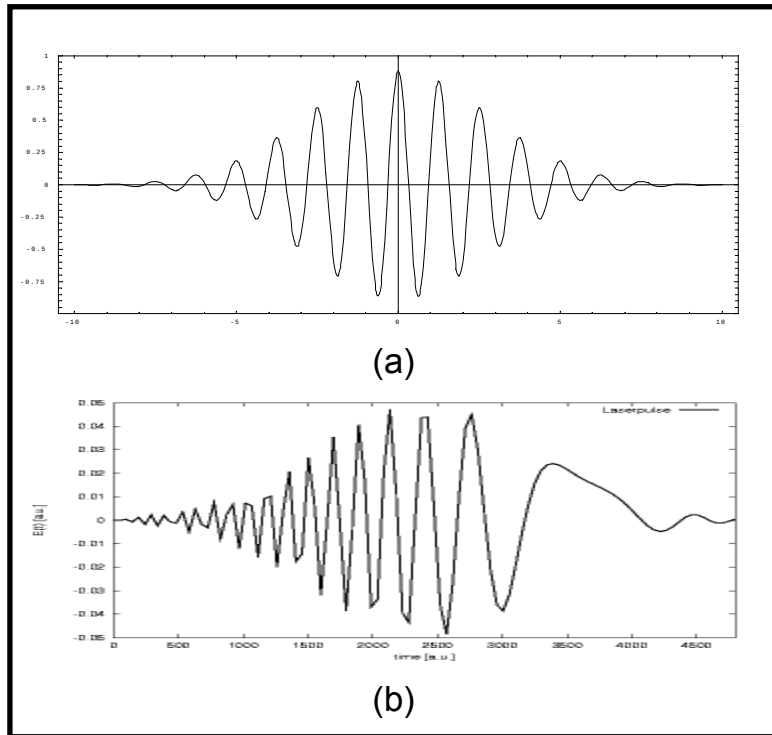
$$L_v = \frac{c\tau}{n_g(q\omega) - n_g(\omega)}$$

όπου c , είναι η ταχύτητα του φωτός, τ είναι η χρονική διάρκεια του παλμού του λέιζερ, και $n_g(q\omega)$, $n_g(\omega)$ είναι οι δείκτες διάθλασης της ταχύτητας ομάδος, για την συχνότητα αρμονικής q τάξης και για την θεμελιώδη συχνότητα αντίστοιχα.

Υπάρχει επίσης και η εσωτερική διασπορά της ταχύτητας ομάδος (*group velocity dispersion, GVD*), το οποίο είναι δεύτερης τάξης φαινόμενο, σε σύγκριση με το φαινόμενο του GVM, χαρακτηρίζεται από μια σταθερά β για κάθε υλικό που ορίζεται ως εξής [22]:

$$\beta = \frac{d^2k}{d\omega^2}$$

Στην περίπτωση διάδοσης ενός βραχύχρονου παλμού λέιζερ μέσα σε ένα μέσο, υπάρχει ένα μήκος αλληλεπίδρασης για το φαινόμενο του GVD το οποίο δεν είναι αμελητέο και ο παλμός υπόκειται σε *chirp*, δηλαδή το προπορευόμενο τμήμα του παλμού κινείται πιο «γρήγορα» και «απλώνει» ενώ το πίσω τμήμα του παλμού κινείται πιο «αργά» και «συρρικνώνεται» (Εικ. 6-21).



Εικ. 6-21: (a) Παλμός χωρίς chirp, (b) παλμός που έχει υποστεί chirp

Το χαρακτηριστικό μήκος, L_d πέρα από το οποίο το φαινόμενο του GVD γίνεται σημαντικό είναι:

$$L_d = \frac{\tau_o^2}{|\beta|}$$

όπου τ_o είναι η χρονική διάρκεια του παλμού. Για να υπάρχει ενισχυμένη συμφωνία φάσης θα πρέπει η απαιτούμενη περίοδος της διαμόρφωσης να επιλεγεί με τέτοιο τρόπο ώστε να έχει την διπλάσια απόσταση από το χαρακτηριστικό μήκος L_d . Το μήκος αυτό ονομάζεται *μήκος συμφωνίας (coherence length)* L_{coh} και είναι το χαρακτηριστικό μήκος μετά το οποίο, ο παλμός του λέιζερ (θεμελιώδους συχνότητας) και ο παλμός που έχει δημιουργηθεί από αρμονικές συχνότητες έχουν διαφορά φάσης π . Για μήκη μεγαλύτερα από το L_{coh} δεν υπάρχει ενίσχυση του σήματος των αρμονικών. Το μήκος συμφωνίας δίνεται από την σχέση[22]:

$$L_{coh} = \frac{\pi}{\Delta k}$$

όπου

$$\Delta k = q \frac{2\pi}{\lambda_0} (n_{q\omega} - n_{\omega})$$

το Δk είναι ο συντελεστής μη συμφωνίας φάσης (*phase mismatch*), λ_0 το μήκος κύματος του λέιζερ, $n_{q\omega}, n_\omega$ είναι οι δείκτες διάθλασης της αρμονικής q-τάξης και της θεμελιώδους συχνότητας αντίστοιχα.

6.10. Περιπτώσεις μη συμφωνίας φάσης (*phase mismatch*)

Υπάρχουν τρεις διαφορετικές περιπτώσεις μη συμφωνίας φάσης ανάμεσα στην θεμελιώδη συχνότητα του λέιζερ και στην συχνότητα των αρμονικών. Η πρώτη περίπτωση είναι η *διασπορά* (*dispersion*) μέσα στο ίδιο το παραγόμενο μέσο καθώς ο δείκτης διάθλασης μεταβάλλεται λόγω των διαφορετικών μηκών κύματος που δημιουργούνται. Για κρυσταλλικά υλικά αυτό αποτελεί μεγάλο πρόβλημα για την παραγωγή ακόμη και της δεύτερης αρμονικής, η οποία δημιουργείται μόνο για συγκεκριμένους προσανατολισμούς του κρυστάλλου με το να επιτρέπει την φυσική διπλοθλαστικότητα του μέσου να συμβαίνει και να δημιουργεί μια μετατροπή που η φάση μεταξύ θεμελιώδους και αρμονικής είναι «ταιριασμένη» [66]. Όμως, για τα ευγενή αέρια, η αλλαγή στο δείκτη διάθλασης μπορεί να θεωρηθεί αμελητέα συγκρινόμενη με τους άλλους μηχανισμούς μη συμφωνίας φάσης που συμβαίνουν σε εντάσεις λέιζερ και σε πυκνότητες αερίων που χρησιμοποιούνται στην πλειοψηφία σε πειράματα παραγωγής αρμονικών [67], όπως θα δείχθει και στην περίπτωση του Αργού. Για να δημιουργηθούν εντάσεις ικανές για την παραγωγή αρμονικών, η δέσμη του λέιζερ πρέπει να εστιαστεί μέσα στο αέριο μέσο. Δεδομένου ότι η σχέση φάσης μεταξύ των αρμονικών και της θεμελιώδους είναι εξαρτώμενη από την ένταση, η μεταβολή στην ένταση καθώς η δέσμη του λέιζερ εστιάζεται μέσα στο μέσο θα δημιουργήσει ένα βαθμό μη συμφωνίας φάσης. Όμως, το πιο σημαντικό αποτέλεσμα της εστίασης είναι το γνωστό φαινόμενο *μετατόπισης φάσης Guoy* το οποίο δημιουργεί μια αλλαγή φάσης κατά π καθώς το λέιζερ εστιάζεται μέσα στο αέριο [68]. Για μια κατανομή δέσμης τύπου *Gauss*, αυτή θα προκαλέσει μια μεταβολή στην φάση που δίνεται από την σχέση:

$$\Delta\phi(z) = (1 - q) \tan^{-1} \left(\frac{z}{b} \right) \quad (\text{Εξ. 6.12})$$

όπου $\Delta\phi(z)$ είναι η μεταβολή της φάσης στην διεύθυνση διάδοσης του λέιζερ, q είναι η τάξη της αρμονικής, και b είναι ο *ομοεστιακός συντελεστής* που δίνεται από την σχέση:

$$b = \frac{2\pi r_o^2 n}{\lambda} \quad (\text{Εξ. 6.13})$$

όπου r_o είναι η ακτίνα της δέσμης στην εστία, και n είναι ο δείκτης διάθλασης του μέσου στο θεμελιώδες μήκος κύματος του λέιζερ λ . Αυτά δίνουν ένα μήκος συμφωνίας:

$$L_{coh} = b \tan\left(\pi / (q - 1)\right) \quad (\text{Εξ. 6.14})$$

το οποίο σε υψηλής τάξης αρμονικές απλοποιείται στην σχέση:

$$L_{coh} = \frac{b\pi}{(q-1)} \quad (\text{Εξ. 6.15})$$

Στην περιοχή χαμηλών εντάσεων, και με αέριο χαμηλής πίεσης, αυτός ο όρος είναι ο κυρίαρχος στην συνολική μεταβολή της φάσης και δίνει μια καλή προσέγγιση του μήκους συμφωνίας [67]. Όπως έχει ήδη ειπωθεί παραπάνω, η ένταση κορεσμού ιονίζει το 80% όλων των ατόμων μέσα στο αέριο επομένως θα δημιουργηθεί ένας αρκετά μεγάλος αριθμός ελεύθερων ηλεκτρονίων. Όμως στην περίπτωση αυτή, το αέριο μέσο μπορεί να θεωρηθεί ότι βρίσκεται σε κατάσταση πλάσματος και όχι στην αέρια κατάσταση όπως βρισκόταν πριν τον ιονισμό. Ο δείκτης διάθλασης η_{plasma} του πλάσματος δίνεται από την σχέση:

$$\eta_{plasma} = \sqrt{1 - \frac{N_e}{N_{cr}}} \quad (\text{Εξ. 6.16})$$

όπου N_e είναι η πυκνότητα ηλεκτρονίων και N_{cr} είναι η *κρίσιμη πυκνότητα ηλεκτρονίων* πάνω από την οποία δεν μπορεί να διαδοθεί ακτινοβολία μέσα στο πλάσμα [146]. Η κρίσιμη πυκνότητα εξαρτάται από το μήκος κύματος και δίνεται από την σχέση:

$$N_{cr} = \frac{\epsilon_o m_e \omega_o^2}{e^2} \quad (\text{Εξ. 6.17})$$

όπου m_e είναι η μάζα του ηλεκτρονίου, ϵ_o είναι η διηλεκτρική σταθερά στο κενό, e είναι το φορτίο του ηλεκτρονίου και ω είναι η συχνότητα της ακτινοβολίας που

προσπίπτει στο πλάσμα (εδώ του λέιζερ). Εδώ θεωρείται ότι για όλες τις συχνότητες το πλάσμα θα βρίσκεται κάτω από την κρίσιμη πυκνότητα (*underdense plasma*) δηλαδή όλα τα μήκη κύματος θα διαδίδονται μέσα στο πλάσμα. Αυτό το μήκος κύματος το οποίο εξαρτάται από τον δείκτη διάθλασης, οδηγεί σε μια αλλαγή φάσης που δίνεται από την σχέση:

$$\Delta\varphi(z) = \frac{q\pi z}{\lambda} \left(\frac{N_e}{N_{cr}} \right) \quad (\text{Εξ. 6.18})$$

όπου το μήκος κύματος λ και η κρίσιμη πυκνότητα N_{cr} αναφέρονται στην θεμελιώδη συχνότητα του λέιζερ. Η παραπάνω σχέση δίνει ένα μήκος συμφωνίας[22]:

$$L_{coh} = \frac{\lambda}{q} \left(\frac{N_{cr}}{N_e} \right) \quad (\text{Εξ. 6.19})$$

Ο όρος λ/q θα είναι ανεξάρτητος από το θεμελιώδες μήκος κύματος του λέιζερ για ένα συγκεκριμένο μήκος κύματος αρμονικής. Βέβαια, η κρίσιμη πυκνότητα εξαρτάται από το τετράγωνο της συχνότητας του λέιζερ, ω^2 και επομένως όσο πιο μικρό είναι το μήκος κύματος του λέιζερ τόσο το καλύτερο. Έτσι, η παραγωγή αρμονικών από λέιζερ τύπου Krf με μήκος κύματος στα 248 nm θα έχει 16 φορές μεγαλύτερο μήκος συμφωνίας από ένα λέιζερ τύπου νεοδυμίου:γυαλιού με μήκος κύματος στα 1053 nm.

6.11. Συνθήκες «συμφωνίας φάσης» (phase-matching) για παραγωγή αρμονικών στο Αργό

Η παραγωγή των αρμονικών εξαρτάται από την συνθήκη «συμφωνίας φάσης» ανάμεσα στο ηλεκτρικό πεδίο του δέσμης του λέιζερ και στο ηλεκτρικό πεδίο των παραγόμενων αρμονικών. Ο συντελεστής μη συμφωνίας φάσης (*phase-mismatch*), Δk , καθορίζει την ποιότητα απόδοσης των παραγόμενων αρμονικών. Για ένα μέσο διάδοσης που δεν εμφανίζει φαινόμενα διασποράς (δηλαδή ο δείκτης διάθλασης του μέσου δεν μεταβάλλεται με το μήκος κύματος) έχουμε $\Delta k=0$, δηλαδή το κύμα του ηλεκτρικού πεδίου του λέιζερ και τα αντίστοιχα ηλεκτρικά πεδία από τις αρμονικές ταξιδεύουν στο χώρο σε απόλυτη συμφωνία φάσης μεταξύ τους. Στην περίπτωση όπου $\Delta k=\pi$, το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ και τα παραγόμενα από τις αρμονικές βρίσκονται εντελώς εκτός φάσης και πρακτικά δεν υπάρχει διάδοση των αρμονικών. Μεταξύ αυτών των δύο ακραίων καταστάσεων του Δk υπάρχει μερική συμφωνία

φάσης. Το μήκος που ορίζεται μεταξύ των δύο ακραίων καταστάσεων ονομάζεται μήκος συμφωνίας L_{coh} , όπου $L_{coh} = \pi/\Delta k$. Για παραγωγή αρμονικών μέσα σε αέρια, ο συντελεστής μη συμφωνίας φάσης Δk , προκύπτει από την σύνθεση τριών βασικών φυσικών διεργασιών οι οποίες συνεισφέρουν στην μη συμφωνία φάσης μεταξύ των αρμονικών και του λέιζερ[25] και ορίζουν η κάθε μια ένα διαφορετικό Δk καθώς και ένα αντίστοιχο μήκος συμφωνίας. Οι διεργασίες αυτές είναι: α) ο *ιονισμός* λόγω του επαγόμενου πλάσματος, β) *μετατόπιση της φάσης κατά την εστίαση* (φαινόμενο *Gouy*) και γ) η *διασπορά της ταχύτητας ομάδος* των ατόμων του μέσου διάδοσης, που οφείλεται στην αλλαγή του δείκτη διάθλασης.

6.12. Η επίδραση του ιονισμού στη μη συμφωνία φάσης

Ο ιονισμός κατά την παραγωγή αρμονικών είναι ένα αναπόφευκτο φαινόμενο λόγω της εστίασης της δέσμης. Η δημιουργία ελεύθερων ηλεκτρονίων από το επαγόμενο πλάσμα συνεισφέρει στην διασπορά του μέσου και δίνει έναν συντελεστή μη συμφωνίας φάσης, που ορίζεται ως εξής [22]:

$$\Delta k_{ion} = \frac{q\pi}{\lambda_o} \left(\frac{N_e}{N_{cr}} \right)$$

όπου q είναι η τάξη της αρμονικής, λ_o το μήκος κύματος του λέιζερ, N_e είναι η πυκνότητα ηλεκτρονίων του επαγόμενου πλάσματος και N_{cr} είναι η κρίσιμη πυκνότητα πλάσματος η οποία είναι η μέγιστη τιμή που μπορεί να πάρει η πυκνότητα ηλεκτρονίων και δίνεται από την σχέση:

$$N_{cr} = \frac{\epsilon_o m_e \omega_o^2}{e^2}$$

όπου $\omega_o = \frac{2\pi c}{\lambda_o}$ είναι η συχνότητα του λέιζερ, $\epsilon_o = 8.8542 \times 10^{-12}$ J/mV², είναι η

διηλεκτρική σταθερά στο κενό, $m = 0.91 \times 10^{-27}$ Kg, $e = 1.6 \times 10^{-19}$ Cb, είναι η μάζα και το φορτίο του ηλεκτρονίου αντίστοιχα, ενώ c είναι η ταχύτητα του φωτός. Η κρίσιμη πυκνότητα N_{cr} , υπολογίστηκε για τα δεδομένα του πειράματος ($\lambda_o = 248$ nm) ότι έχει την τιμή, $N_{cr} = 1.8 \times 10^{22}$ cm⁻³, ενώ η πυκνότητα ηλεκτρονίων από το επαγόμενο πλάσμα υπολογίστηκε για διάδοση μέσα στο Αργό ότι είναι: $N_e = 10^{15}$ e⁻/cm³ (στην μέγιστη ένταση της χρησιμοποιούμενης δέσμης). Επομένως, ο συντελεστής μη συμφωνίας φάσης Δk από το ιονισμό υπολογίζεται για τις τιμές των 2 αρμονικών (3^{ης}

και 5^{ης} τάξης) και παίρνει τις τιμές: $\Delta k_{ion}(\lambda_3) = 2.11 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ και $\Delta k_{ion}(\lambda_5) = 3.52 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ για την 3^η και την 5^η αρμονική αντίστοιχα. Όπως μπορεί να φανεί, το Δk και για τις δύο αρμονικές είναι πολύ μικρό. Αυτό σημαίνει ότι η συνεισφορά στη μη συμφωνία φάσης λόγω του ιονισμού είναι πρακτικά αμελητέα. Παράλληλα με το Δk , μπορεί να υπολογιστεί και το αντίστοιχο μήκος συμφωνίας για τις δύο αρμονικές, το οποίο ορίζεται ως [22]:

$$L_{coh}^{ion} = \frac{\pi}{\Delta k_{ion}} = \frac{\lambda}{q} \left(\frac{N_{cr}}{N_e} \right)$$

Κάνοντας τις πράξεις, υπολογίστηκε ότι το μήκος συμφωνίας είναι: $L_{coh}^{ion}(\lambda_3) = 1.49 \text{ m}$, και $L_{coh}^{ion}(\lambda_5) = 0.89 \text{ m}$, για την 3^η και την 5^η αρμονική αντίστοιχα. Όπως ήταν αναμενόμενο, υπάρχει ένα πολύ μεγάλο μήκος συμφωνίας και στις δύο αρμονικές, αποτέλεσμα που δηλώνει ότι η συνεισφορά του ιονισμού δεν αλλοιώνει σχεδόν καθόλου η συμφωνία φάσης μεταξύ του λέιζερ και των αρμονικών, δηλαδή αν υπήρχε μόνο το φαινόμενο του ιονισμού, οι αρμονικές θα ταξίδευαν σε φάση με το λέιζερ για αποστάσεις τουλάχιστον 1.49 m (για την 3^η αρμονική) και 0.89 m (για την 5^η αρμονική) αντίστοιχα. Στο σημείο αυτό σημειώνεται ότι το συνολικό μήκος στο οποίο υπάρχουν αυτό-οδηγούμενοι παλμοί είναι περίπου $L = 1 \text{ m}$ (απόσταση μη γραμμικής εστίασης και πρώτη οπή). Όλα τα παραπάνω συμβαίνουν σε πίεση $< 1 \text{ Atm}$.

6.13. Η επίδραση της εστίασης στη μη συμφωνία φάσης

Η αλλαγή της φάσης λόγω εστίασης της δέσμης του λέιζερ εισάγει έναν επιπλέον παράγοντα στην συνθήκη μη συμφωνίας φάσης. Έτσι, ορίζεται ένας συντελεστής Δk_{geom} που σχετίζεται με την γεωμετρία εστίασης της δέσμης και δίνεται από την σχέση [22]:

$$\Delta k_{geom} = \frac{(q-1)}{b}$$

όπου το q είναι η τάξη της αρμονικής, το z είναι το μήκος διάδοσης, ενώ το b η ομοεστιακή παράμετρος (*confocal parameter*), και δίνεται από την σχέση [22]:

$$b = \frac{2\pi r_o^2 n}{\lambda_o}$$

όπου r_o είναι η ακτίνα της δέσμης στο σημείο εστίασης, n είναι ο δείκτης διάθλασης του μέσου και λ_o είναι το μήκος κύματος του λέιζερ. Για τα δεδομένα του πειράματος: $r_o \sim 100 \mu\text{m}$ (ακτίνα του filament), $n=1.00034$ (δείκτης διάθλασης του Αργού σε πίεση 1 Atm στα 248 nm), και $\lambda_o=248 \text{ nm}$, προκύπτει ότι $b=25.34 \text{ cm}$. Έτσι μπορεί να υπολογιστεί η συνεισφορά του συντελεστή Δk για τις δύο αρμονικές: $\Delta k_{geom}(\lambda_3)=7.89 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ και $\Delta k_{geom}(\lambda_5)=1.58 \times 10^{-1} \text{ cm}^{-1}$ για την 3^η και την 5^η αρμονική αντίστοιχα. Όπως φαίνεται από τις παραπάνω τιμές και στην περίπτωση της αλλαγής φάσης λόγω εστίασης, η συνεισφορά στη μη συμφωνία φάσης είναι μικρή. Αυτό σημαίνει ότι το μήκος συμφωνίας θα είναι αρκετά μεγάλο ώστε το λέιζερ και οι αρμονικές να βρεθούν σε φάση για μεγάλη απόσταση. Πράγματι, το αντίστοιχο μήκος συμφωνίας L_{coh}^{geom} , δίνεται από την σχέση [22]:

$$L_{coh}^{geom} = b \frac{\pi}{q-1}$$

Υπολογίζοντας τις τιμές που παίρνει για την κάθε αρμονική, προκύπτει ότι: $L_{coh}^{geom}(\lambda_3)=39.8 \text{ cm}$ και $L_{coh}^{geom}(\lambda_5)=19.9 \text{ cm}$ για την 3^η και την 5^η αρμονική αντίστοιχα. Δηλαδή από την συνεισφορά του φαινομένου αλλαγής φάσης λόγω εστίασης, το πεδίο του λέιζερ και οι αρμονικές μπορούν να βρίσκονται σε φάση για αποστάσεις 40 cm περίπου για την 3^η αρμονική και 20 cm περίπου για την 5^η αρμονική. Όπως και στην περίπτωση του ιονισμού, έτσι και εδώ οι υπολογισμοί έγιναν για ατμοσφαιρική πίεση. Σε μικρότερη πίεση αλλάζει ο δείκτης διάθλασης του μέσου και θα έχουμε διαφορετικά αποτελέσματα, τα οποία θα δούμε σε επόμενη ενότητα.

6.14. Η επίδραση της διασποράς ταχύτητας ομάδος στη μη συμφωνία φάσης

Η διασπορά της ταχύτητας ομάδος (*group velocity dispersion*) σχετίζεται με την αλλαγή του δείκτη διάθλασης ο οποίος μεταβάλλεται ως συνάρτηση του μήκους κύματος. Γνωρίζουμε από την θεωρία ότι ο δείκτης διάθλασης ενός μέσου εξαρτάται από την πίεση, την θερμοκρασία και το μήκος κύματος της προσπίπτουσας ακτινοβολίας. Ο αντίστοιχος συντελεστής Δk που συνεισφέρει στην μεταβολή της φάσης λόγω διασποράς της ταχύτητας ομάδος δίνεται από την σχέση [110]:

$$\Delta k_{disp} = k_q - qk_o$$

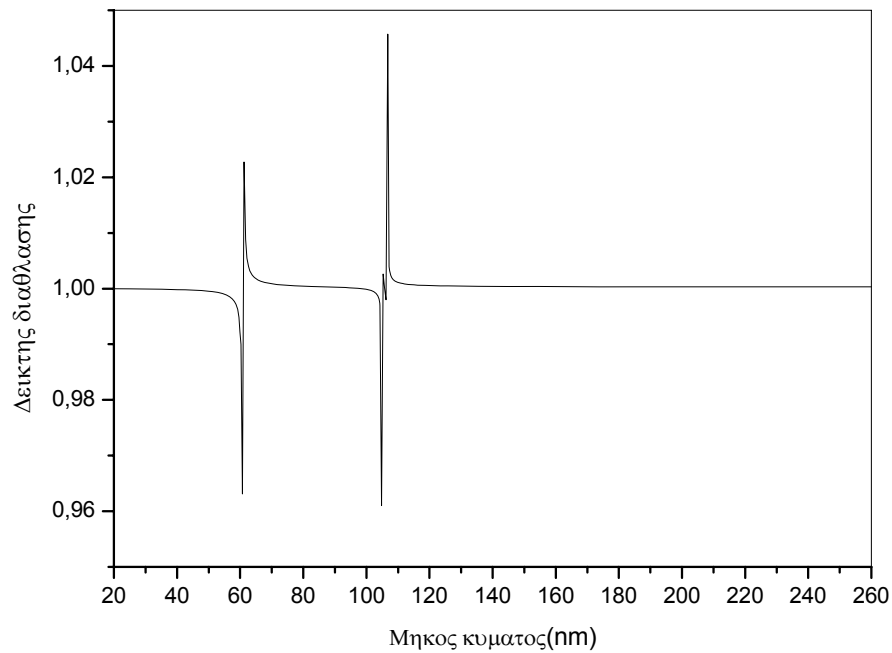
όπου: $k_o = \frac{n_o \omega_o}{c}$, είναι ο κυματάριθμος της θεμελιώδους συχνότητας του λέιζερ, n_o είναι ο δείκτης διάθλασης της θεμελιώδους, ω_o είναι η συχνότητα της θεμελιώδους και c η ταχύτητα του φωτός, $k_q = \frac{n_q \omega_q}{c}$ είναι ο κυματάριθμος της αρμονικής συχνότητας q -τάξης, n_q είναι ο δείκτης διάθλασης της q -ιστής τάξης αρμονικής, ω_q είναι η αντίστοιχη συχνότητα της αρμονικής. Στο σημείο αυτό, πρέπει να εξεταστεί η μεταβολή του δείκτη διάθλασης με το μήκος κύματος. Έτσι για το πείραμα είναι: $\lambda_0 = 248 \text{ nm}$ (μήκος κύματος του λέιζερ), $\lambda_3 = \lambda_0 / 3 = 82.7 \text{ nm}$ (μήκος κύματος 3^{ης} αρμονικής) και $\lambda_5 = \lambda_0 / 5 = 49.6 \text{ nm}$ (μήκος κύματος 5^{ης} αρμονικής). Για τον υπολογισμό του δείκτη διάθλασης χρησιμοποιείται η σχέση του *Sellmeier* [24]:

$$\frac{3}{2} \frac{n_0^2 - 1}{n_0^2 + 2} = \frac{C_1}{\lambda_1^{-2} - \lambda_0^{-2}} + \frac{C_2}{\lambda_2^{-2} - \lambda_0^{-2}} + \frac{C_3}{\lambda_3^{-2} - \lambda_0^{-2}}$$

όπου n_0 είναι ο δείκτης διάθλασης για μήκος κύματος λ_0 σε πίεση 1 Atm, τα C_1, C_2, C_3 είναι σταθερές που εξαρτώνται από το μήκος κύματος, ενώ τα $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3$ είναι μήκη κύματος στα οποία το Αργό βρίσκεται σε συντονισμό και έχουν τιμές: $\lambda_1 = 106 \text{ nm}$, $\lambda_2 = 104.8 \text{ nm}$, και $\lambda_3 = 60.9 \text{ nm}$. Οι σταθερές C_1, C_2, C_3 δίνονται στον ακόλουθο πίνακα:

C_1 (x 10^4 cm^{-2})	C_2 (x 10^4 cm^{-2})	C_3 (x 10^4 cm^{-2})	λ_1^{-2} (x 10^8 cm^{-2})	λ_1^{-2} (x 10^8 cm^{-2})	λ_1^{-2} (x 10^8 cm^{-2})
25.2582	25.2582	595.379	87.882	91.001	269.636

Στο σχήμα που ακολουθεί (Εικ. 6-22), φαίνεται η μεταβολή του δείκτη διάθλασης του Αργού ως συνάρτηση του μήκος κύματος.



Εικ. 6-22: Δείκτης διάθλασης του Αργού ως συνάρτηση του μήκους κύματος

Χρησιμοποιώντας το παραπάνω διάγραμμα, υπολογίζεται ο δείκτης διάθλασης του Αργού στο μήκος κύματος του λέιζερ καθώς και στα μήκη κύματος των αρμονικών και είναι: $n(\lambda_o) = 1.000304$, $n(\lambda_3) = 1.000391$, $n(\lambda_5) = 0.9995437$ αντίστοιχα. Οι τιμές αυτές αντιστοιχούν σε πίεση $P_o = 1 \text{ Atm}$ και σε θερμοκρασία $T_o = 273.15 \text{ K}$. Επίσης υπολογίστηκαν και οι αντίστοιχοι δείκτες διάθλασης που προκύπτουν αν αντικατασταθεί η φασική ταχύτητα με την ταχύτητα ομάδος και είναι: $n_g(\lambda_o) = 1.000364$, $n_g(\lambda_3) = 1.001987$, $n_g(\lambda_5) = 1.002221$ για το μήκος κύματος του λέιζερ και για την 3^η και 5^η τάξης αρμονική αντίστοιχα. Και οι τιμές αυτές αντιστοιχούν σε πίεση P_o και σε θερμοκρασία T_o . Έχοντας λοιπόν όλα τα στοιχεία, υπολογίστηκε το Δk για τις δύο αρμονικές και βρέθηκε ότι: $\Delta k_{disp}(\lambda_3) = 66.13 \text{ cm}^{-1}$ και $\Delta k_{disp}(\lambda_5) = -963.13 \text{ cm}^{-1}$ για την 3^η και την 5^η τάξης αρμονική αντίστοιχα. Από τις τιμές αυτές παρατηρείται ότι είναι πολύ πιο μεγάλες από τις αντίστοιχες συνεισφορές των δύο άλλων φαινομένων (ιονισμού και εστίασης). Άρα η μη συμφωνία φάσης συμβαίνει κυρίως λόγω του φαινομένου της διασποράς της ταχύτητας ομάδος. Επίσης παρατηρείται ότι ο συντελεστής μη συμφωνίας φάσης για την 5^η αρμονική έχει αρνητικό πρόσημο. Αυτό έχει την φυσική επεξήγηση ότι η 5^η αρμονική προηγείται χρονικά σε σχέση με την θεμελιώδη (του λέιζερ). Το

αντίστοιχο μήκος συμφωνίας για την περίπτωση της διασποράς, δίνεται από την σχέση[110]:

$$L_{coh}^{disp} = \frac{\pi}{k_q - qk_o}$$

το οποίο υπολογίστηκε για πίεση 1 Atm , και είναι: $L_{coh}^{disp}(\lambda_3) = 4.75 \times 10^{-4} \text{ m}$, και $L_{coh}^{disp}(\lambda_5) = -3.26 \times 10^{-5} \text{ m}$, για την 3^η και την 5^η τάξης αρμονική αντίστοιχα. Όπως παρατηρείται από τις παραπάνω τιμές το μήκος συμφωνίας λόγω διασποράς είναι πάρα πολύ μικρό, σε σχέση με τα άλλα δύο φαινόμενα που συνεισφέρουν στη μη συμφωνία φάσης. Τέλος, υπολογίστηκε και το χαρακτηριστικό μήκος μη συμφωνίας φάσης λόγω χρονικής απομάκρυνσης (*temporal walk-off*) από την διασπορά, το οποίο δίνεται από την σχέση[22]:

$$L_v^{disp} = \frac{c\tau}{n_g(\lambda_q) - n_g(\lambda_o)}$$

όπου, c η ταχύτητα του φωτός, τ είναι η χρονική διάρκεια του παλμού ($\tau = 450 \text{ fs}$), ενώ $n_g(\lambda_q)$, $n_g(\lambda_o)$, είναι οι δείκτες διάθλασης για την ταχύτητα ομάδος στο μήκος κύματος της αρμονικής q -τάξης και του μήκους κύματος του λέιζερ αντίστοιχα. Οι τιμές που προέκυψαν είναι: $L_v^{disp}(\lambda_3) = 8.32 \times 10^{-2} \text{ m}$, και $L_v^{disp}(\lambda_5) = 7.27 \times 10^{-2} \text{ m}$ για την 3^η και την 5^η αρμονική αντίστοιχα. Η φυσική σημασία του μήκους αυτού είναι ότι, μετά από απόσταση 8.32 cm για την 3^η αρμονική και 7.27 cm για την 5^η αρμονική αντίστοιχα, έχουμε χρονική απομάκρυνση των αρμονικών από το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ. Τα παραπάνω αποτελέσματα συνοψίζονται στον πίνακα που ακολουθεί (Πίνακας 3).

Πίνακας 3: Συγκεντρωτικός πίνακας συντελεστών Δk και μηκών συμφωνίας L_{coh} σε πίεση $P=1 \text{ Atm}$

Ιονισμός		Γεωμετρία εστίασης		Διασπορά	
$\Delta k(\lambda_3) (\text{cm}^{-1})$	$\Delta k(\lambda_5) (\text{cm}^{-1})$	$\Delta k(\lambda_3) (\text{cm}^{-1})$	$\Delta k(\lambda_5) (\text{cm}^{-1})$	$\Delta k(\lambda_3) (\text{cm}^{-1})$	$\Delta k(\lambda_5) (\text{cm}^{-1})$
2.11×10^{-2}	3.52×10^{-2}	7.89×10^{-2}	1.58×10^{-1}	66.13	-963.13
$L_{coh}(\lambda_3) (\text{m})$	$L_{coh}(\lambda_5) (\text{m})$	$L_{coh}(\lambda_3) (\text{m})$	$L_{coh}(\lambda_5) (\text{m})$	$L_{coh}(\lambda_3) (\text{m})$	$L_{coh}(\lambda_5) (\text{m})$
1.49	0.89	0.39	0.19	4.75×10^{-4}	3.26×10^{-5}

Ο τελικός συντελεστής Δk θα δίνεται από την σχέση:

$$\Delta k_{tot} = \Delta k_{ion} + \Delta k_{geom} + \Delta k_{disp} \approx \Delta k_{disp}$$

αφού όπως φαίνεται από τον παραπάνω πίνακα ισχύει: $\Delta k_{ion} \ll \Delta k_{geom} \ll \Delta k_{disp}$

Για το μήκος συμφωνίας ισχύει ότι:

$$L_{tot}^{coh} = \frac{L_{ion} L_{geom} L_{disp}}{L_{ion} L_{geom} + L_{ion} L_{disp} + L_{geom} L_{disp}} \approx L_{disp}$$

Επομένως για τα δεδομένα του πειράματος της παρούσας διατριβής, το *κυρίαρχο* φαινόμενο στην συνθήκη μη συμφωνίας φάσης είναι το φαινόμενο της *διασποράς της ταχύτητας ομάδος*. Επομένως οι υπολογισμοί που γίνονται από εδώ και στο εξής και αφορούν τον συντελεστή μη συμφωνίας φάσης Δk και το μήκος συμφωνίας L_{coh} θα αναφέρονται μόνο στην συνεισφορά του φαινομένου της διασποράς. Όπως έχει ήδη ειπωθεί και παραπάνω όλοι οι παραπάνω υπολογισμοί έχουν γίνει σε πίεση 1 Atm. Στην συνέχεια θα δειχθεί η επίδραση της πίεσης στον συντελεστή μη συμφωνίας φάσης Δk , αφού εξαρτάται από τον δείκτη διάθλασης, που είναι το μέγεθος το οποίο έχει ισχυρή εξάρτηση από την πίεση.

6.15. Η επίδραση της πίεσης στη μη συμφωνία φάσης

Η εξάρτηση του συντελεστή Δk από την πίεση οφείλεται κυρίως στον δείκτη διάθλασης, ο οποίος με την σειρά του εμφανίζει εξάρτηση από την πίεση και την θερμοκρασία, όπως μπορεί να φανεί και στην παρακάτω σχέση [134]:

$$n_1(P) = \frac{\sqrt{2 \frac{n_{10}^2 - 1}{n_{10}^2 + 2} \frac{PT_o}{P_o T} + 1}}{\sqrt{1 - \frac{n_{10}^2 - 1}{n_{10}^2 + 2} \frac{PT_o}{P_o T}}}$$

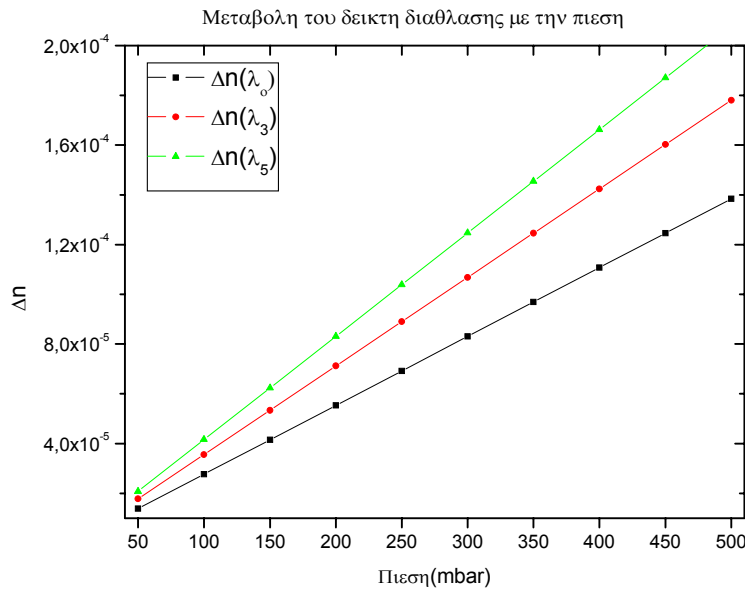
όπου n_{10} είναι ο δείκτης διάθλασης για το Αργό στα 248 nm σε θερμοκρασία T_o , και πίεση P_o , ενώ P και T είναι οι τιμές τις πίεσης και της θερμοκρασίας αντίστοιχα στις συνθήκες του πειράματος. Εδώ θεωρείται ότι δεν υπάρχει μεταβολή στην θερμοκρασία την ώρα του πειράματος και ορίζεται $T=296$ K ως σταθερή θερμοκρασία, ενώ η πίεση μεταβάλλεται από 50-1000 mbar. Αντίστοιχα ορίζονται και οι εξαρτώμενοι από την πίεση δείκτες διάθλασης για την 3^η αρμονική:

$$n_3(P) = \frac{\sqrt{2 \frac{n_{30}^2 - 1}{n_{30}^2 + 2} \frac{PT_o}{P_o T} + 1}}{\sqrt{1 - \frac{n_{30}^2 - 1}{n_{30}^2 + 2} \frac{PT_o}{P_o T}}}$$

όπου το n_{30} ο δείκτης διάθλασης της 3^{ης} αρμονικής ($\lambda_3=82.7 \text{ nm}$) σε συνθήκες θερμοκρασίας και πίεσης T_o , P_o αντίστοιχα, ενώ για την 5^η αρμονική ισχύει:

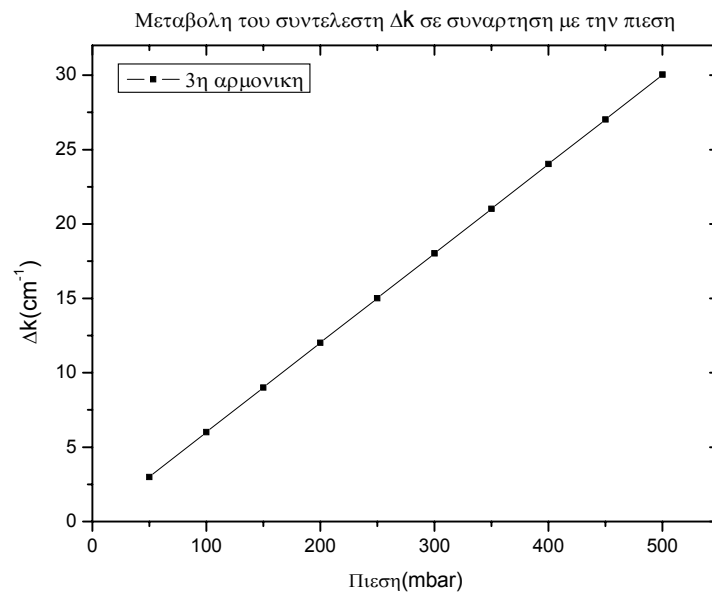
$$n_5(P) = \frac{\sqrt{2 \frac{n_{50}^2 - 1}{n_{50}^2 + 2} \frac{PT_o}{P_o T} + 1}}{\sqrt{1 - \frac{n_{10}^2 - 1}{n_{50}^2 + 2} \frac{PT_o}{P_o T}}}$$

όπου και εδώ το n_{50} είναι ο δείκτης διάθλασης της 5^{ης} αρμονικής ($\lambda_5=49.6 \text{ nm}$) σε συνθήκες θερμοκρασίας και πίεσης T_o , P_o αντίστοιχα. Στο διάγραμμα που ακολουθεί (Εικ. 6-23), υπολογίστηκε η μεταβολή του δείκτη διάθλασης $\Delta n = n_o - n(P)$ ως συνάρτηση της πίεσης από 50-500 mbar και για σταθερή θερμοκρασία $T=296 \text{ K}$ και για τα τρία μήκη κύματος (λ_o : θεμελιώδες, λ_3 : 3^η αρμονική, λ_5 : 5^η αρμονική). Όπως φαίνεται η αύξηση της πίεσης συνδέεται με αύξηση της μεταβολής Δn και μάλιστα με γραμμικό τρόπο, άρα και αύξηση του δείκτη διάθλασης αφού $\Delta n > 0$.

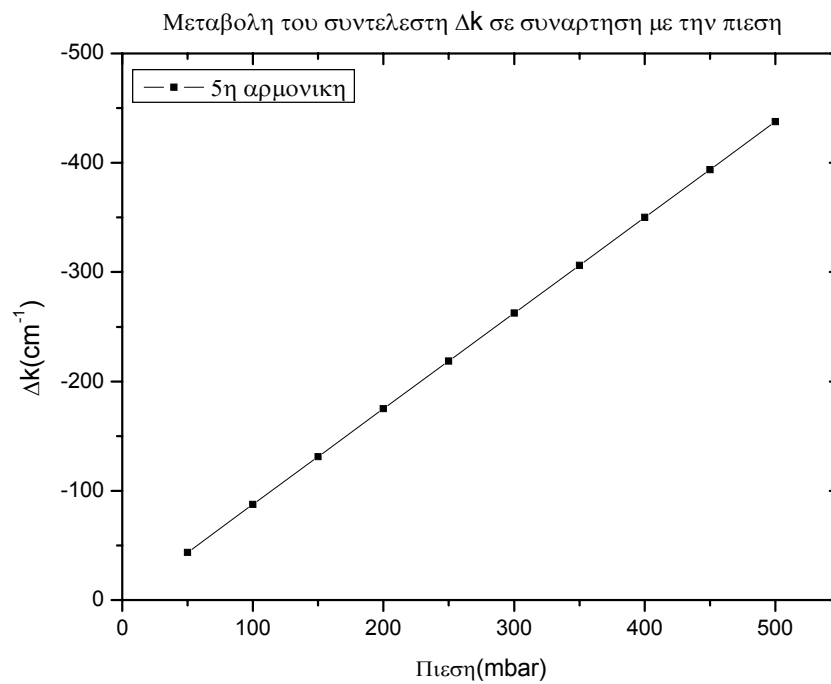


Εικ. 6-23: Μεταβολή του δείκτη διάθλασης Δn , του Αργού ως συνάρτηση της πίεσης

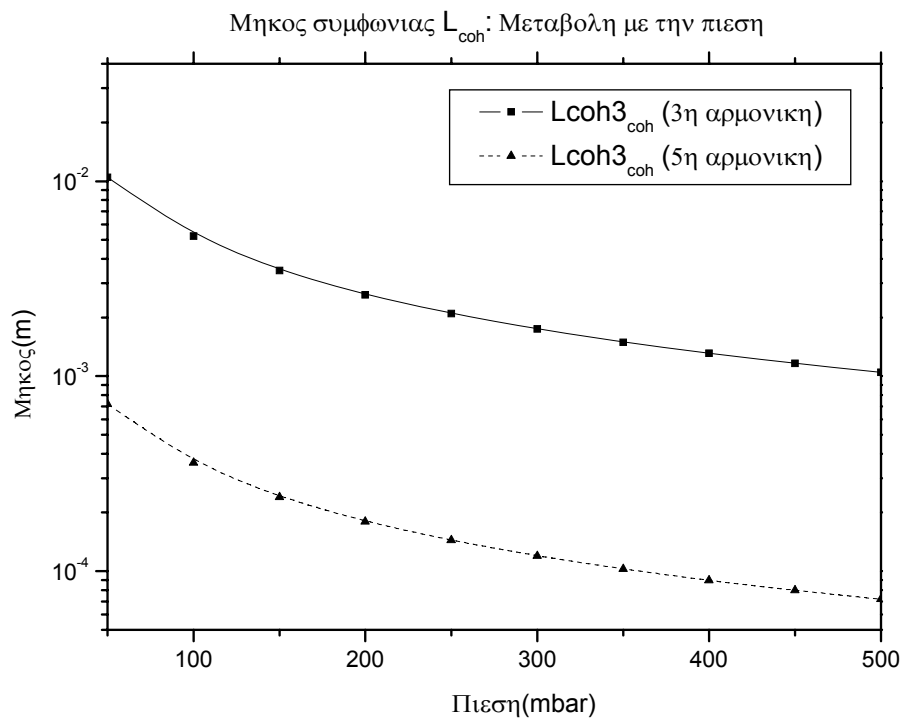
Στα παρακάτω διαγράμματα, εμφανίζεται η εξάρτηση από την πίεση του συντελεστή Δk (Εικ. 6-24, Εικ. 6-25), του μήκους συμφωνίας L_{coh} (Εικ. 6-26) καθώς και του μήκους walk-off L_v (Εικ. 6-27), για τις περιπτώσεις των δύο αρμονικών (3^{ης} και 5^{ης} τάξης).



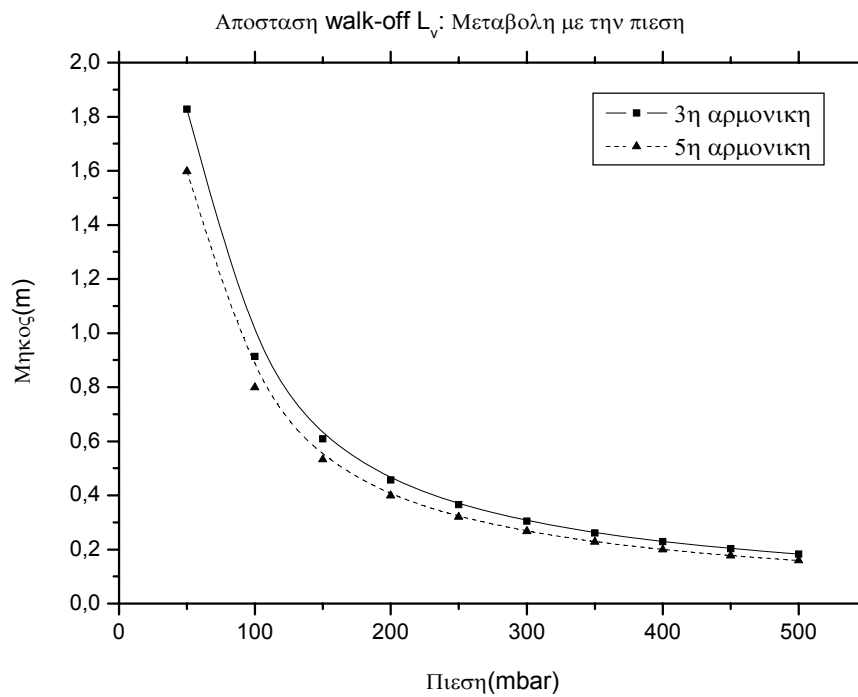
Εικ. 6-24: Μεταβολή του συντελεστή Δk με την πίεση (3^η αρμονική)



Εικ. 6-25: Μεταβολή του συντελεστή Δk με την πίεση (5^η αρμονική)



Εικ. 6-26: Μεταβολή του μήκους συμφωνίας L_{coh} σε συνάρτηση με την πίεση



Εικ. 6-27: Μεταβολή του μήκους walk-off L_v σε συνάρτηση με την πίεση

6.16. Σύγκριση αποτελεσμάτων με υπολογιστικό μοντέλο προσομοίωσης

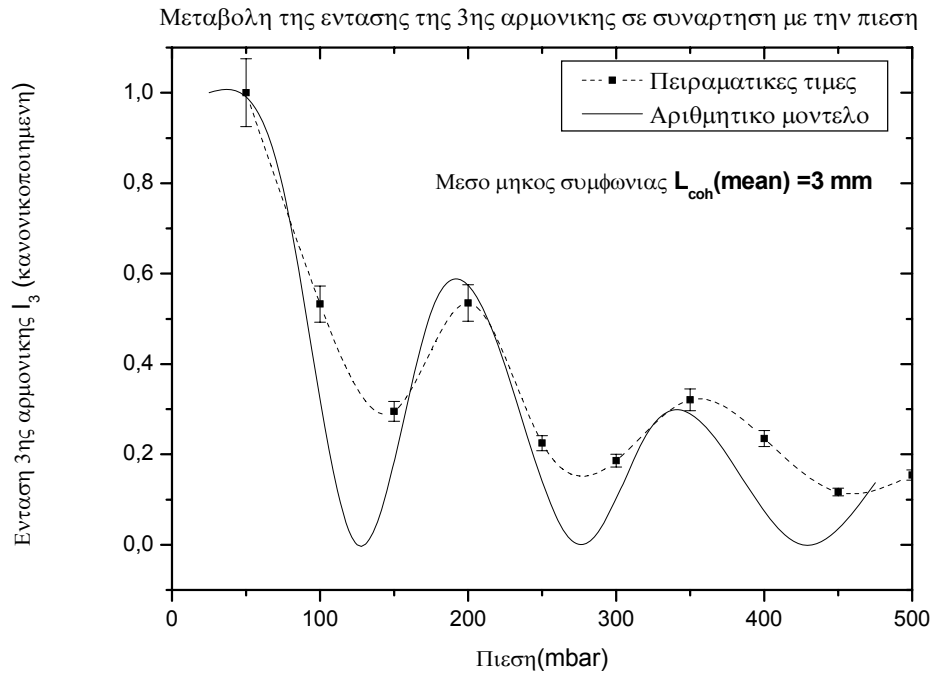
Για να μελετηθεί καλύτερα το φαινόμενο της μεταβολής της έντασης των αρμονικών σε συνάρτηση με την πίεση, κατασκευάστηκε ένα μοντέλο προσομοίωσης παραγωγής αρμονικών για σύγκριση με τα πειραματικά δεδομένα. Σύμφωνα με την θεωρία παραγωγής αρμονικών, η ένταση ακτινοβολίας της αρμονικής q -τάξης, I_q , ως συνάρτηση της πίεσης δίνεται από την σχέση [134]:

$$I_q(P) = \frac{\omega_q^2}{n_q(P)(n_o(P))^q c^4 \varepsilon_o^2} \left| \chi^{(3)}(P) \right|^2 I_1^q \frac{\sin^2(\Delta k_q(P)L_q/2)}{(\Delta k_q(P)L_q/2)^2} \quad (1)$$

όπου $I_1(r,t) = I_{10} e^{-r^2/r_o^2} e^{-t^2/\tau_o^2}$ είναι η αρχική ένταση του παλμού του λέιζερ με κατανομή *Gauss* (με I_{10} να είναι το πλάτος της έντασης), $n_o(P), n_q(P)$ είναι οι δείκτες διάθλασης για το θεμελιώδες μήκος κύματος του λέιζερ λ_o και για το μήκος κύματος της αρμονικής q -τάξης λ_q αντίστοιχα οι οποίοι εξαρτώνται από την πίεση, το $\omega_q = 2\pi c/\lambda_q$ είναι η συχνότητα στην αρμονική q -τάξης, $\chi^{(3)}(P)$ είναι η ηλεκτρική επιδεκτικότητα 3^{ης} τάξης η οποία εξαρτάται από την πίεση με βάση την σχέση: $\chi^{(3)}(P) = (n_o(P))^2 - I$, c είναι η ταχύτητα του φωτός, ε_o είναι η διηλεκτρική σταθερά του κενού, το $\Delta k_q(P)$ είναι ο συντελεστής μη συμφωνίας φάσης λόγω διασποράς, της αρμονικής q -τάξης ο οποίος είναι εξαρτώμενος από την πίεση, ενώ τέλος το L_q είναι το μήκος αλληλεπίδρασης για κάθε αρμονική q -τάξης μέσα στο οποίο γίνεται η παραγωγή αρμονικών. Έπειτα, αφού ορίστηκε η γενική σχέση για την ένταση της αρμονικής q -τάξης, καταγράφονται οι εκφράσεις για την 3^η και την 5^η αρμονική. Έτσι με βάση την σχέση (1), η ένταση της 3^{ης} αρμονικής ως συνάρτηση της πίεσης, δίνεται από την σχέση [134]:

$$I_3(P) = \frac{\omega_3^2}{n_3(P)(n_o(P))^3 c^4 \varepsilon_o^2} \left| \chi^{(3)}(P) \right|^2 I_1^3 \frac{\sin^2(\Delta k_3(P)L_3/2)}{(\Delta k_3(P)L_3/2)^2} \quad (2)$$

Με βάση την σχέση (2) και τα πειραματικά δεδομένα, κατασκευάστηκε ένα αριθμητικό μοντέλο υπολογισμού της έντασης της 3^{ης} αρμονικής. Στο παρακάτω σχήμα (Εικ. 6-28), απεικονίζεται η σύγκριση των πειραματικών μετρήσεων με το υπολογιστικό μοντέλο προσομοίωσης.

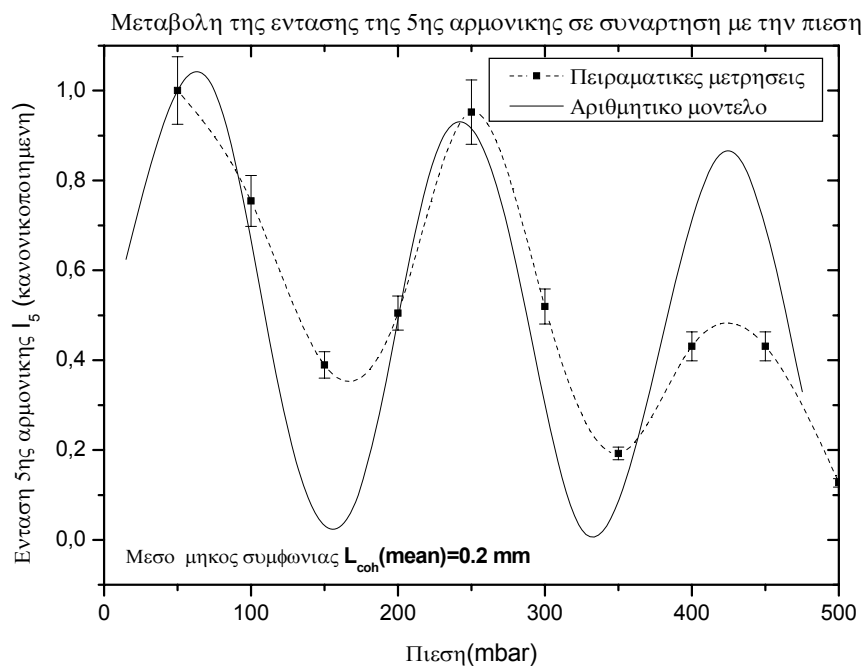


Εικ. 6-28: Σύγκριση του θεωρητικού μοντέλου και των μετρήσεων για μεταβολή της έντασης της 3^{ης} αρμονικής σε συνάρτηση με την πίεση

Όπως φαίνεται από το παραπάνω σχήμα, το μοντέλο είναι σε αρκετά καλή συμφωνία με τις πειραματικές τιμές τουλάχιστον όσον αφορά το τμήμα της περιοδικότητας. Τα σφάλματα στις πειραματικές μετρήσεις (*errorbars*) οφείλονται σε στατιστικό θόρυβο. Με βάση το μοντέλο, υπολογίστηκε το μήκος αλληλεπίδρασης L_3 για το οποίο γίνεται η παραγωγή της 3^{ης} αρμονικής και βρέθηκε ότι είναι: $L_3=85\text{ cm}$ ενώ το μέσο μήκος συμφωνίας για την 3^η αρμονική είναι $L_{coh}(\lambda_3)(mean)=3\text{ mm}$. Το αποτέλεσμα αυτό υποδηλώνει ότι υπάρχει ενίσχυση των αρμονικών λόγω των αυτο-οδηγούμενων παλμών. Επίσης είναι ένδειξη ότι υπάρχει μεγάλη πιθανότητα *ενισχυμένης συμφωνίας φάσης* (*quasi phase-matching*), δηλαδή ενίσχυση των αρμονικών λόγω της διάδοσης [111]. Στην συνέχεια, καταγράφεται η έκφραση για την ένταση της 5^{ης} αρμονικής ως συνάρτηση της πίεσης:

$$I_5(P) = \frac{\omega_5^2}{n_5(P)(n_o(P))^5 c^4 \epsilon_o^2} |\chi^{(3)}(P)|^2 I_1^5 \frac{\sin^2(\Delta k_5(P)L_5/2)}{(\Delta k_5(P)L_5/2)^2} \quad (3)$$

Με βάση την σχέση (3), υπολογίστηκαν οι τιμές της έντασης της 5^{ης} αρμονικής και συγκρίθηκαν τα αποτελέσματα του μοντέλου με τα πειραματικά αποτελέσματα όπως φαίνεται και στο σχήμα (Εικ. 6-29).



Εικ. 6-29: Σύγκριση του θεωρητικού μοντέλου και των μετρήσεων για μεταβολή της έντασης της 5^{ης} αρμονικής σε συνάρτηση με την πίεση

Από το παραπάνω σχήμα, παρατηρείται ότι και στην περίπτωση της 5^{ης} αρμονικής υπάρχει σχετικά καλή συμφωνία των πειραματικών μετρήσεων και του θεωρητικού μοντέλου. Το αντίστοιχο μήκος αλληλεπίδρασης για την 5^η αρμονική υπολογίστηκε από το μοντέλο και έχει την τιμή: $L_5=35 \text{ cm}$, ενώ το μέσο μήκος συμφωνίας για την 5^η αρμονική είναι: $L_{coh}(\lambda_5)=0.2 \text{ mm}$. Τα αποτελέσματα αυτά έρχονται σε πλήρη συμφωνία με τα αντίστοιχα της 3^{ης} αρμονικής. Η παρατηρούμενη απόσβεση του πλάτους των ταλαντώσεων στα πειραματικά δεδομένα είναι αποτέλεσμα της μεταβαλλόμενης διαμέτρου της δέσμης. Αυτό το σημείο είναι κρίσιμο καθώς για ένα δεδομένο μήκος αλληλεπίδρασης, μεταβάλλεται ο ενεργός όγκος μέσα στον οποίο παράγονται οι αρμονικές. Άλλες παράμετροι που πιθανόν παίζουν σημαντικό ρόλο είναι, η μικρή αλλά σταθερή απόκλιση της δέσμης καθώς και η μικρή ελάττωση της ενέργειας της δέσμης για το αντίστοιχο μήκος.

6.17. Συμπεράσματα

Στο κεφάλαιο αυτό μελετήθηκε η παραγωγή αρμονικών κατά την διάδοση αυτο-οδηγούμενων παλμών λέιζερ μέσα στο Αργό. Οι μετρήσεις του φάσματος ακτινοβολίας έδειξαν την ύπαρξη αρμονικών 3^{ης} και 5^{ης} τάξης με έντονα χαρακτηριστικά αυτό-οδηγούμενων παλμών (self-phase modulation, spectral broadening), απόδειξη ότι οι αρμονικές «κληρονομούν» τις ιδιότητες των αυτο-οδηγούμενων παλμών. Αυτό το αποτέλεσμα εμφανίζεται για πρώτη φορά στην διεθνή βιβλιογραφία σύμφωνα με τις πηγές του συγγραφέα. Η απόδοση των αρμονικών υπολογίστηκε ότι είναι τουλάχιστον δύο τάξεις μεγέθους μεγαλύτερη από αυτήν που υπάρχει στην βιβλιογραφία, γεγονός που ενισχύει την θεωρία της «κληρονομιάς» των φασματικών χαρακτηριστικών των αρμονικών από το τον αρχικό αυτο-οδηγούμενο παλμό που τις δημιουργήσε. Επίσης, για να παραχθούν οι αρμονικές θα πρέπει το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ και το ηλεκτρικό πεδίο των παραγόμενων αρμονικών να βρίσκεται σε φάση για μεγάλη σχετικά απόσταση. Το φαινόμενο αυτό ονομάζεται «συμφωνία φάσης» (*phase-matching*). Κατά την παραγωγή των αρμονικών λαμβάνουν χώρα διάφορα φαινόμενα που εμποδίζουν τη «συμφωνία φάσης». Τα φαινόμενα αυτά είναι ο ιονισμός, η αλλαγή φάσης λόγω της γεωμετρίας εστίασης και η αλλαγή του δείκτη διάθλασης λόγω του φαινομένου της διασποράς της ταχύτητας ομάδος των ατόμων. Υπολογίστηκε ότι για τα δεδομένα του συγκεκριμένου πειράματος το κυρίαρχο φαινόμενο που εμποδίζει τη «συμφωνία φάσης» είναι το φαινόμενο της διασποράς. Στην συνέχεια, για να αποδειχθεί η ισχύς της θεωρίας της ενίσχυσης των αρμονικών πραγματοποιήθηκαν μετρήσεις της έντασης της ακτινοβολίας των αρμονικών μεταβάλλοντας την πίεση μέσα στο Αργό. Αυτό που παρατηρήθηκε ήταν μια περιοδική συμπεριφορά της έντασης των παραγόμενων αρμονικών σε συνάρτηση με την πίεση που ονομάζεται στην βιβλιογραφία *κροσσοί Maker* και είναι απόδειξη ύπαρξης συνθήκης «συμφωνίας φάσης». Για την επιβεβαίωση του φαινομένου κατασκευάστηκε ένα αριθμητικό μοντέλο προσομοίωσης και συγκρίθηκε με τα πειραματικά αποτελέσματα. Η σύγκριση έδειξε ότι το μήκος των παραγόμενων αρμονικών είναι πολύ μεγαλύτερο από το θεωρητικό μήκος συμφωνίας. Αυτό είναι η απόδειξη ότι υπάρχει ενίσχυση των αρμονικών και μάλιστα υπάρχει πιθανότητα να ισχύει το φαινόμενο της «ενισχυμένης συμφωνίας φάσης» (*quasi phase-matching*) το οποίο είναι υπεύθυνο για την ενίσχυση της απόδοσης των αρμονικών.

Κεφάλαιο 7: Διάδοση βραχύχρονων παλμών λέιζερ υπερϊόδους υψηλής έντασης σε στερεά

7.1. Εισαγωγή

Στην παρούσα διατριβή, εκτός από την μελέτη της διάδοσης βραχύχρονων παλμών μέσα σε αέρια, επιχειρήθηκε και η μελέτη της διάδοσης μέσα σε στερεά. Αυτό που προέκυψε από την μελέτη, ήταν ότι και στην περίπτωση των στερεών υπάρχει εμφάνιση παρόμοιων μη γραμμικών φαινομένων με αυτά που συμβαίνουν κατά την διάδοση σε αέρια.

Το συγκεκριμένο αριθμητικό μοντέλο μελετήθηκε και κατασκευάστηκε εξ' ολοκλήρου στην Κρήτη στα πλαίσια της διδακτορικής διατριβής, σε συνεργασία του Εργαστηρίου Δομής της Ύλης και Φυσικής Λέιζερ του Πολυτεχνείου Κρήτης με το εργαστήριο Οπτοηλεκτρονικής, Laser & Τεχνολογιών Πλάσματος του τμήματος Ηλεκτρονικής του ΤΕΙ Κρήτης-Παράρτημα Χανίων.

7.2. Επίλυση αριθμητικού μοντέλου

Η διάδοση βραχύχρονων παλμών λέιζερ στα στερεά περιγράφεται από ένα παρόμοιο σύστημα εξισώσεων όπως αυτών για την διάδοση στα αέρια. Συγκεκριμένα, η διάδοση στα στερεά περιγράφεται από την μη γραμμική κυματική εξίσωση στην οποία έχουν προστεθεί επιπλέον όροι, όπως π.χ. αυτός που περιγράφει την διασπορά της ταχύτητας ομάδος (*group velocity dispersion, GVD*), όροι που σχετίζονται με απώλειες από το πλάσμα, κ.α. Ταυτόχρονα με την κυματική εξίσωση επιλύεται και η εξίσωση της χρονικής εξέλιξης της ηλεκτρονικής πυκνότητας, η μορφή της οποίας είναι παρόμοια με αυτήν της περίπτωσης της διάδοσης στα αέρια. Τα φαινόμενα που εμφανίζονται κατά την διάδοση βραχύχρονων παλμών λέιζερ υψηλής ισχύος στα στερεά είναι παρόμοια με αυτά της διάδοσης σε αέρια, δηλαδή και στην διάδοση στα στερεά υπάρχει: η εμφάνιση της αυτο-εστίασης λόγω φαινομένου *Kerr*, η πολυφωτονική διεργασία, η δημιουργία αυτο-οδηγούμενων παλμών υψηλής έντασης (*filaments*), η φασματική διαπλάτυνση του διαδιδόμενου παλμού λόγω της αυτο-διαμόρφωσης φάσης και η μετατόπιση προς το ιώδες. Στην περίπτωση των στερεών, η διαπλάτυνση του παλμού οφείλεται και στο φαινόμενο της διασποράς της ταχύτητας ομάδος.

Το μοντέλο επιλύει το σύστημα εξισώσεων που αποτελείται από την μη γραμμική εξίσωση του *Schrödinger* και την χρονικά εξαρτώμενη εξίσωση της πυκνότητας ηλεκτρονίων που παράγονται από πολυφωτονικές διαδικασίες. Η δέσμη του λέιζερ θεωρείται ότι είναι γραμμικά πολωμένη με κεντρική συχνότητα ω_o και κυματάριθμο $k = n_o k_o$ ($k_o = \omega_o/c$) και ότι ο παλμός έχει ακτινική συμμετρία, ενώ η μιγαδική περιβάλλουσα του πλάτους του ηλεκτρικού πεδίου, $A(r,t,z)$ εξελίσσεται σύμφωνα με την σχέση:

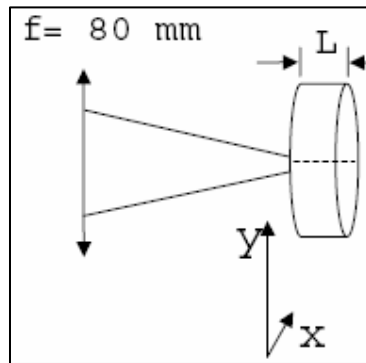
$$2i \frac{\partial A}{\partial z} + \frac{1}{k_o} \nabla_{\perp} A + k_o n_2 |A|^2 A + \frac{ik''}{2} \frac{\partial^2 A}{\partial \tau^2} + \left(\frac{n_o^2 U_{ion} a}{2} + \frac{ik_o}{2n_{cr}} \right) nA + \frac{iK \hbar \omega_o \sigma_K n_{at}}{2} |A|^{2K_m-2} A = 0$$

όπου, τ είναι η «καθυστερημένη» σταθερά χρόνου $t-z/u_g$ όπου u_g είναι η ταχύτητα ομάδος. Ο πρώτος όρος της παραπάνω εξίσωσης περιγράφει την διάδοση στον άξονα z , υποθέτοντας ότι υπάρχει η προσέγγιση της αργά μεταβαλλόμενης περιβάλλουσας (SVEA), ο δεύτερος όρος περιγράφει την περίθλαση στο εγκάρσιο επίπεδο, ο τρίτος όρος την γραμμική διασπορά της ταχύτητας ομάδος (*group velocity dispersion, GVD*) με σταθερά $k'' = \partial^2 k / \partial \omega^2|_{\omega_o} = 361 \text{ fs/cm}^2$, ο τέταρτος όρος την αυτό-εστίαση από το φαινόμενο *Kerr*, ο πέμπτος όρος την απορρόφηση από το πλάσμα ($\sim n_o^2 U_{ion} a$) την αποεστίαση που εξελίσσεται με την πυκνότητα ηλεκτρονίων n_e που δημιουργείται λόγω πολυφωτονικού ιονισμού (MPI), ενώ ο τελευταίος όρος περιγράφει την πολυφωτονική απορρόφηση (MPA). Οι δύο τελευταίοι όροι σχετίζονται με την κρίσιμη πυκνότητα πλάσματος n_{cr} και την ατομική πυκνότητα του υλικού n_{at} σε ουδέτερη κατάσταση όπου για το SiO_2 είναι $n_{at} = 2.1 \times 10^{22} \text{ άτομα/cm}^3$. Το έργο ιονισμού U_{ion} για το SiO_2 είναι 7.6 eV [152], ενώ η ενεργός διατομή για πολυφωτονικό ιονισμό είναι $\sigma_K = 1.3 \times 10^{-55} \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{2K}/\text{W}^K$, ενώ K είναι ο αριθμός των φωτονίων που χρειάζονται για να έχουμε πολυφωτονικό ιονισμό. Η χρονικά εξαρτώμενη εξίσωση της πυκνότητας ηλεκτρονίων δίνεται παρακάτω και στο δεξιό άκρο της εξίσωσης αποτελείται από τον πρώτο όρο ο οποίος περιγράφει την συνεισφορά στην πυκνότητα ηλεκτρονίων από πολυφωτονικό ιονισμό, τον δεύτερο όρο που περιγράφει τον ιονισμό από κρούσεις (*avalanche ionization*) όπου $\alpha = \sigma/n_o^2 U_{ion}$ και σ είναι η ενεργός διατομή της ανάστροφης ακτινοβολίας πέδησης (*inverse bremsstrahlung*), ενώ ο τελευταίος όρος αναπαριστά την επανασύνδεση των

ηλεκτρονίων(*recombination*), όπου τ_r είναι ο χαρακτηριστικός χρόνος επανασύνδεσης και είναι: $\tau_r=150$ fs για το SiO_2 [153].

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = \sigma_K |A|^{2K} \left(1 - \frac{n_m}{n_{at}} \right) + a n_e |A|^2 - \frac{n_e}{\tau_r}$$

Η εξίσωση διάδοσης επιλύεται με το σχήμα Crank-Nicholson ενώ η εξίσωση της χρονικής εξέλιξης με την μέθοδο Runge-Kutta 4^{ης} τάξης, όπως ακριβώς στην περίπτωση της διάδοσης μέσα σε αέρια. Οι αρχικές συνθήκες για την επίλυση του μοντέλου, ήταν: αρχική χωρική κατανομή του παλμού είναι τύπου *Gauss* με αρχικό εύρος δέσμης $w_o=60$ μm . Το χρονικό εύρος του παλμού (FWHM) επελέγη να είναι 160 fs ώστε να αποφευχθούν θερμικά φαινόμενα, η αρχική ενέργεια είναι $E_{in}=2$ μJ , η αρχική ισχύς $P_{in} \approx 5 P_{cr}$ όπου $P_{cr} = \lambda_o^2 / 2\pi n_o n_2 = 0.22$ MW, με $\lambda_o=248$ nm, $n_o=1.435$ και $n_2=3.2 \times 10^{-16}$ cm^2/W για το SiO_2 . Τέλος, το πάχος του δείγματος είναι $L=10$ mm, ενώ η δέσμη εστιάζεται με ένα συγκλίνοντα φακό εστιακής απόστασης $f=+80$ mm, σε απόσταση 3 mm μέσα στο υλικό (Εικ. Εικ. 7-1).

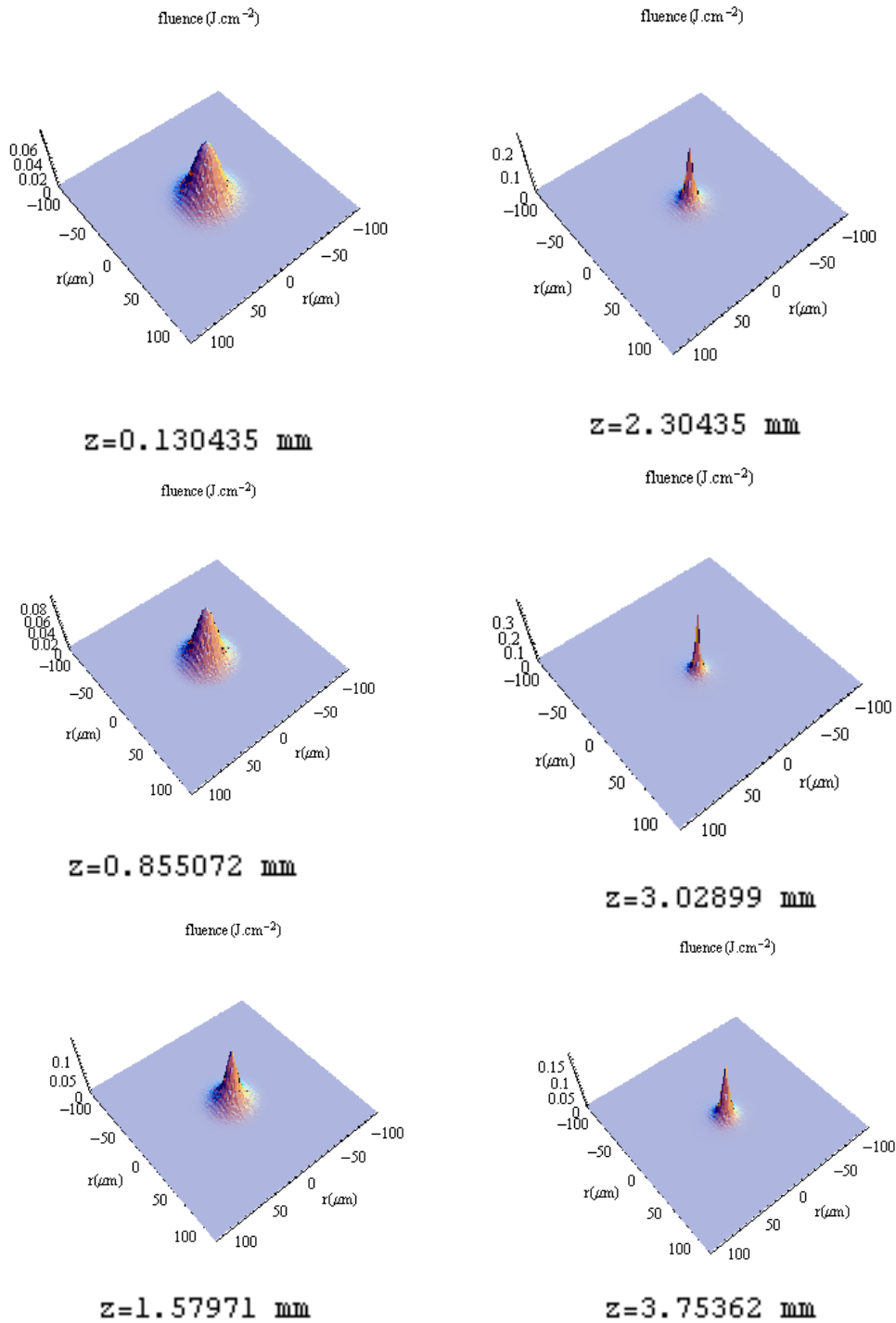


Εικ. 7-1: Γεωμετρικά στοιχεία της προσομοίωσης: Φακός εστιακής απόστασης $f=+80$ mm, πάχος δείγματος $L=10$ mm, ενώ η δέσμη εστιάζεται σε απόσταση 3 mm μέσα στο υλικό.

Στην συνέχεια, περιγράφονται τα αποτελέσματα που έδωσε το αριθμητικό μοντέλο για τις παραπάνω αρχικές συνθήκες για διάδοση σε SiO_2 .

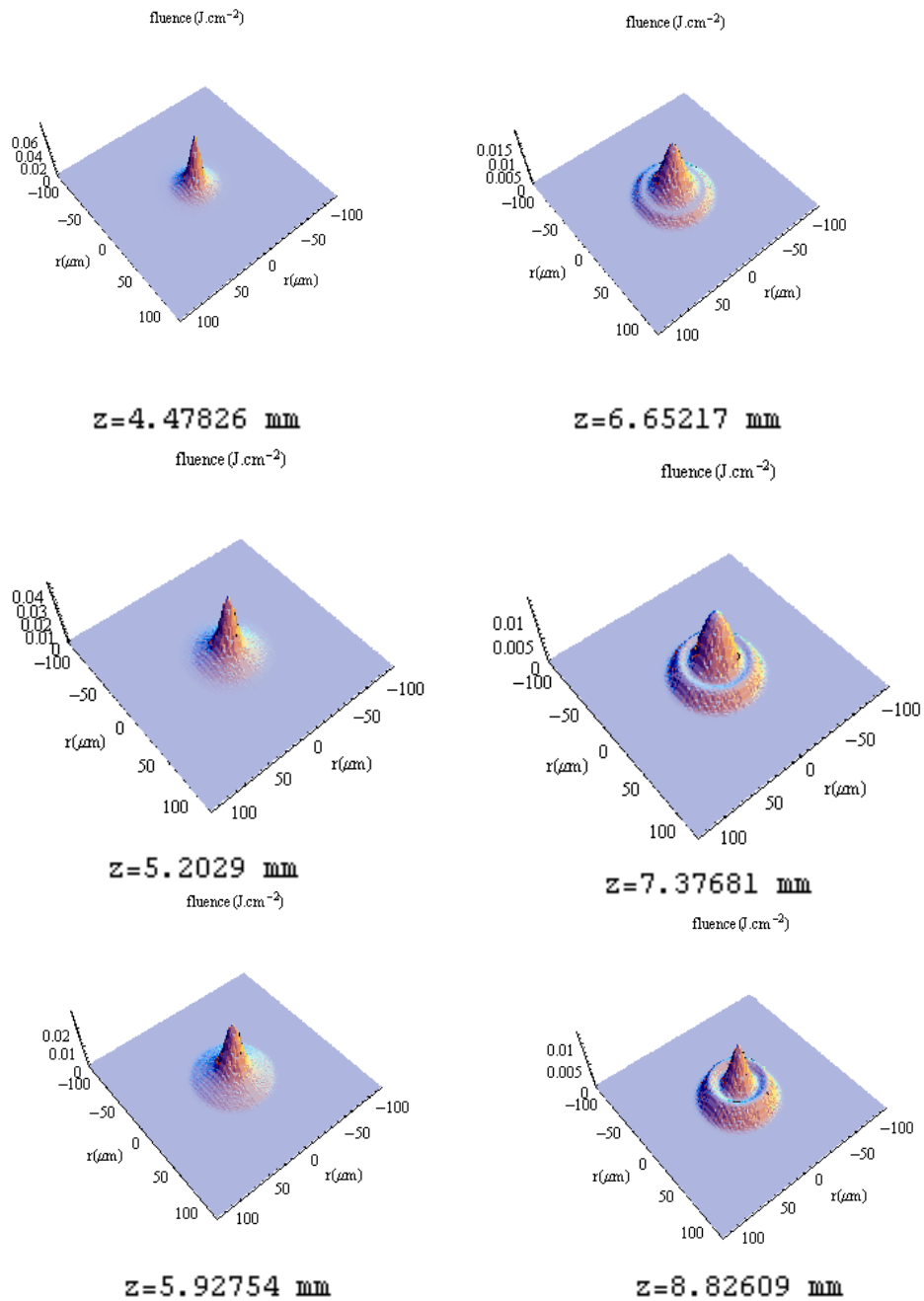
7.3. Αποτελέσματα αριθμητικού μοντέλου

Από το παρακάτω σχήμα παρατηρείται ότι πυκνότητα ενέργειας της δέσμης αυξάνει από 0.06 J/cm^2 που ήταν αρχικά για $z=0.13$ mm σε 0.15 J/cm^2 για $z=3.75$ mm ενώ ταυτόχρονα μειώνονται και οι διαστάσεις της, από 30 μm που ήταν η αρχική της ακτίνα, σε 10 μm περίπου για $z=3.75$ mm.



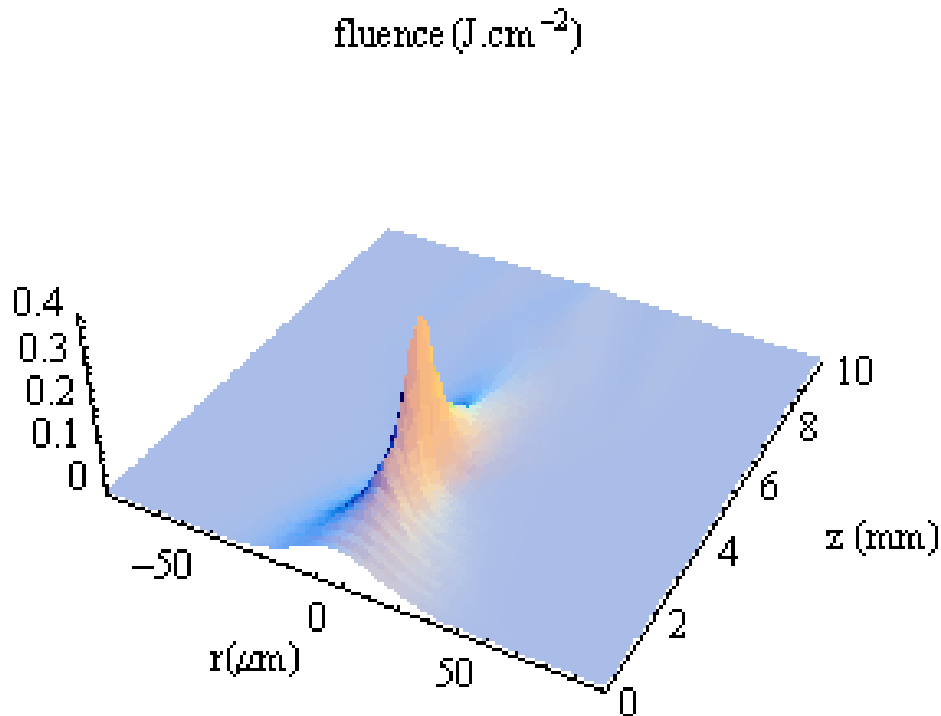
Εικ. 7-2: Στιγμιότυπα της κατανομής της πυκνότητας ενέργειας (J/cm²) σε διάφορα σημεία της διαδοσης ($0 < z < 3.7$ mm)

Αυτή η συμπεριφορά υποδηλώνει συνθήκες μη γραμμικής εστίασης αφού η γεωμετρική γραμμική εστίαση έπρεπε να συμβαίνει σε απόσταση 80 mm από την δέσμη (φακός $f=80$ mm).



Εικ. 7-3: Στιγμιότυπα της κατανομής της πυκνότητας ενέργειας (J/cm^2) σε διάφορα σημεία της διαδοσης ($4.47 \text{ mm} < z < 8.82 \text{ mm}$)

Στην συνέχεια, όπως φαίνεται και από το παραπάνω σχήμα, η πυκνότητα της δέσμης εμφανίζει μείωση λόγω του φαινομένου του πολυφωτονικού ιονισμού, ενώ ταυτόχρονα εμφανίζονται έντονα φαινόμενα περίθλασης (ομόκεντρος δακτύλιος γύρω από το *filament*).



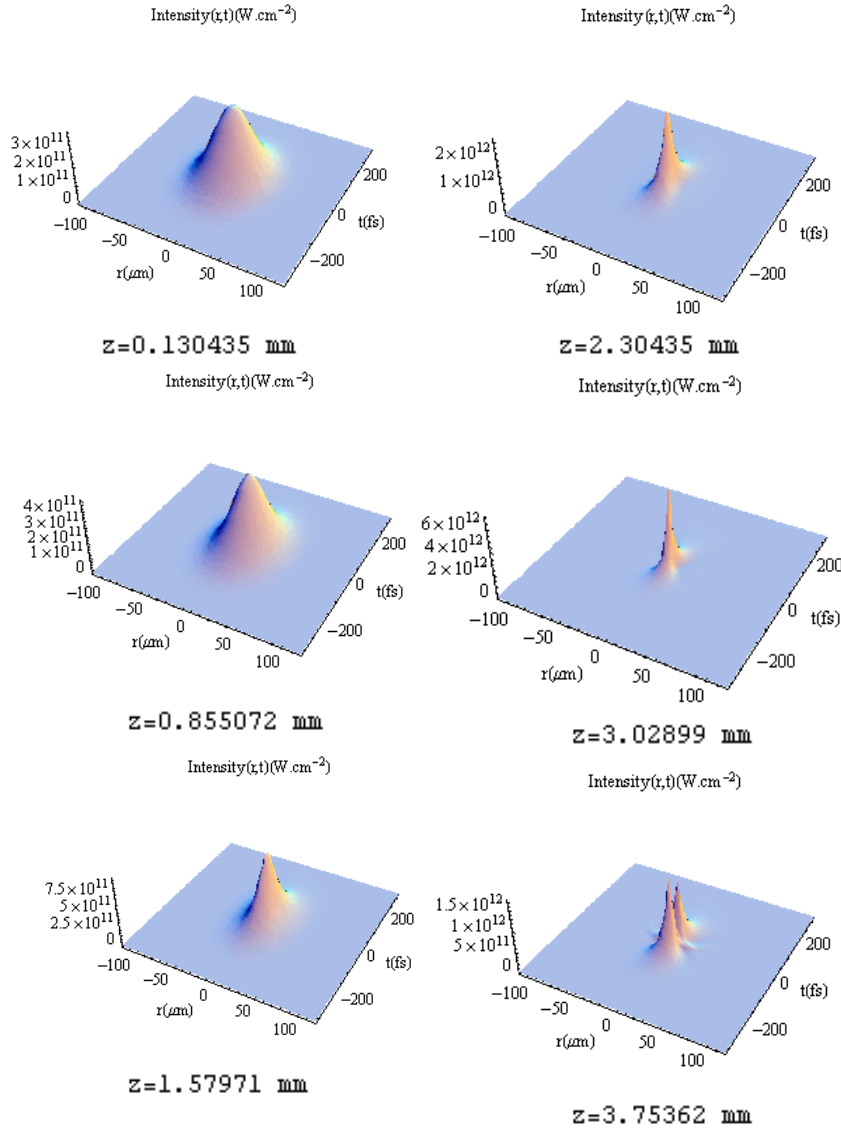
Εικ. 7-4: Κατανομή της πυκνότητας ενέργειας της δέσμης κατά μήκος του άξονα διάδοσης για διάδοση μέσα σε SiO_2 .

Στο παραπάνω σχήμα απεικονίζεται η συνολική κατανομή της πυκνότητας ενέργειας της δέσμης καθώς διαδίδεται μέσα στο υλικό (SiO_2) σε απόσταση z (0-10 mm). Παρατηρείται η μείωση της ακτίνας από 30 μm αρχικά σε $\sim 10 \mu\text{m}$ για $z > 3 \text{ mm}$, ενώ η μέγιστη τιμή που παίρνει η πυκνότητα ενέργειας στην περιοχή της αυτό-εστίασης είναι 0.3 J/cm^2 περίπου.

Στο σχήμα που ακολουθεί, απεικονίζεται η κατανομή της έντασης της δέσμης $I(\text{W/cm}^2)$ σε διάφορα στιγμιότυπα κατά μήκος του άξονα διάδοσης ($0 < z < 3.75 \text{ mm}$). Παρατηρείται ότι αρχικά η κατανομή της έντασης της δέσμης στο κέντρο της είναι $I = 3 \times 10^{11} \text{ W/cm}^2$ (άξονας z της γραφικής παράστασης), η αρχική ακτίνα είναι $r = 30 \mu\text{m}$ (άξονας x της γραφικής παράστασης), ενώ το αρχικό εύρος του παλμού (FWHM) είναι $\tau = 160 \text{ fs}$ (άξονας y της γραφικής παράστασης).

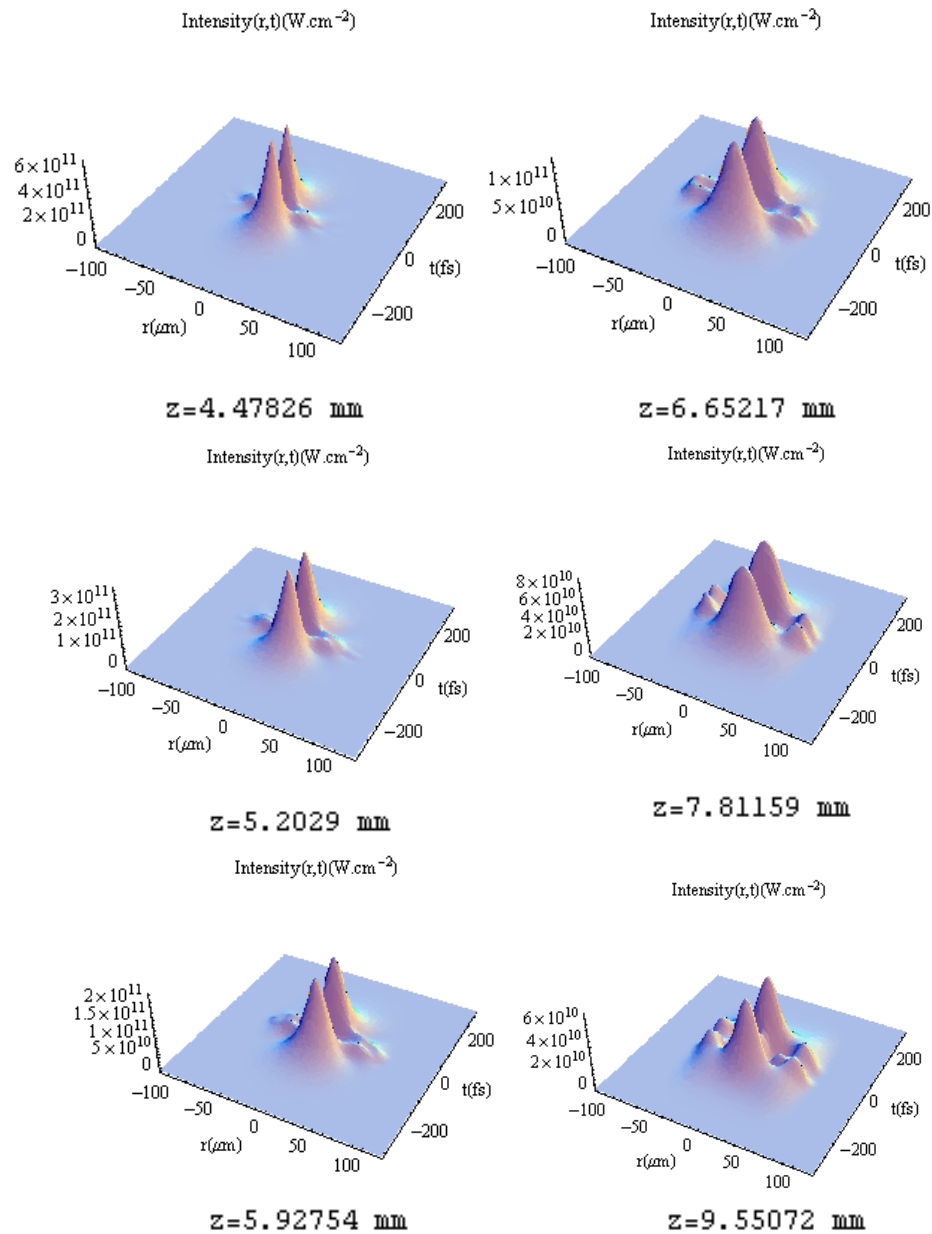
Καθώς η δέσμη διαδίδεται μέσα στο υλικό παρατηρείται αύξηση της έντασης που εξηγείται λόγω του φαινομένου *Kerr* με ταυτόχρονη μείωση των διαστάσεών της. Όσον αφορά την χρονική κατανομή της δέσμης, αρχίζει να εμφανίζει έντονα φαινόμενα διασποράς για απόσταση διάδοσης $z > 3 \text{ mm}$, και συγκεκριμένα για $z =$

3.75 mm, η δέσμη έχει ήδη φτάσει σε ένταση $I > 10^{12}$ W/cm², η ακτίνα της έχει μειωθεί στα 10 μm περίπου, λόγω της αυτό-εστίασης (φαινόμενο *Kerr*). Όσον αφορά την χρονική κατανομή του παλμού, εμφανίζεται να υπάρχει «διάσπαση» στο χρόνο σε δύο υπο-παλμούς (pulse splitting), φαινόμενο που οφείλεται στην αυτοδιαμόρφωση φάσης και στο φαινόμενο της διασποράς της ταχύτητας ομάδας.



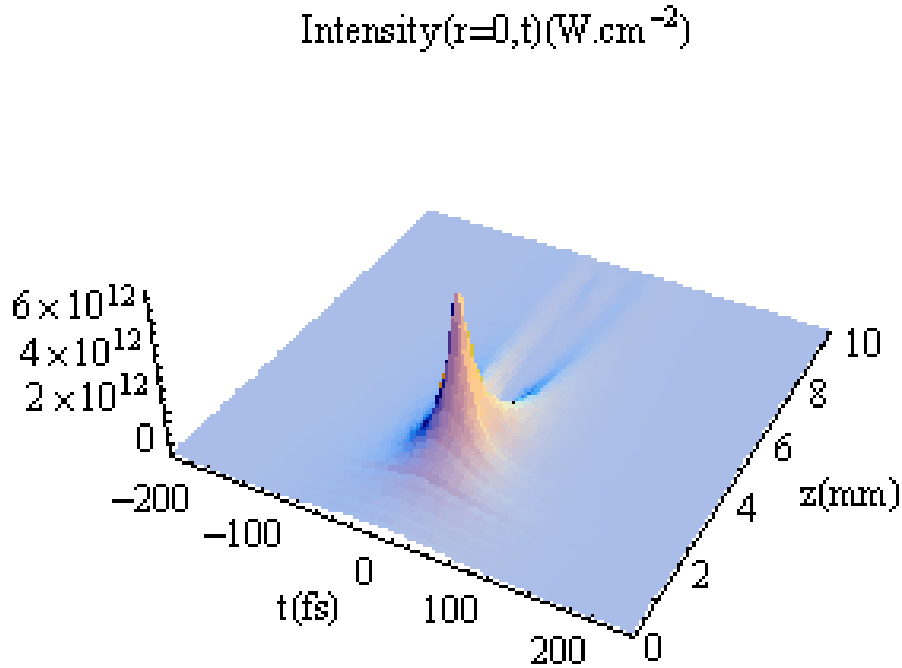
Εικ. 7-5: Στιγμιότυπα της κατανομής της έντασης (W/cm²) σε διάφορα σημεία της διαδοσης ($0 < z < 3.7$ mm)

Καθώς η δέσμη διαδίδεται σε μεγαλύτερα μήκη μέσα στο υλικό ($4.47 < z < 9.55$ mm), το φαινόμενο δημιουργίας των δύο υποπαλμών γίνεται ακόμη πιο έντονο, η ένταση εμφανίζεται να παραμένει σχεδόν σταθερή καθώς και η ακτίνα της παραμένει επίσης σταθερή. Τα παραπάνω υποδηλώνουν την δημιουργία filament μέσα στο υλικό.



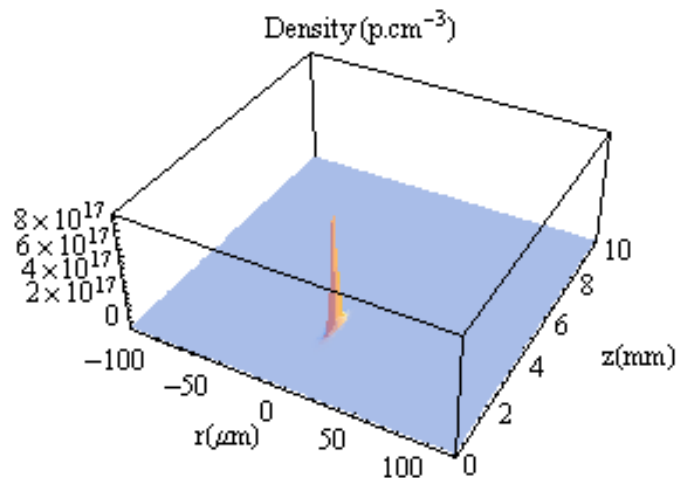
Εικ. 7-6: Στιγμιότυπα της κατανομής της έντασης (W/cm²) σε διάφορα σημεία της διάδοσης (4.47 < z < 9.55 mm)

Στο επόμενο σχήμα εμφανίζεται η συνολική κατανομή της έντασης της δέσμης κατά μήκος του άξονα διάδοσης.



Εικ. 7-7: Κατανομή της έντασης της δέσμης κατά μήκος του άξονα διάδοσης για διάδοση μέσα σε SiO₂.

Τέλος, έχει υπολογιστεί η ηλεκτρονική πυκνότητα που δημιουργείται λόγω του πολυφωτονικού ιονισμού. Στο σχήμα που ακολουθεί εμφανίζεται η κατανομή της πυκνότητας ηλεκτρονίων κατά μήκος της διάδοσης. Παρατηρείται ότι για $z > 3 \text{ mm}$, πυκνότητα παίρνει την μέγιστη τιμή της $n_e = 8 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$, δηλαδή είναι πολύ μεγαλύτερη από την αντίστοιχη στην περίπτωση των αερίων κατά 3 τάξεις μεγέθους. Αυτό είναι λογικό αφού κατά την διάδοση σε στερεά τα φαινόμενα του ιονισμού είναι εντονότερα από αυτά στην περίπτωση της διάδοσης σε αέρια.



Εικ. 7-8: Κατανομή της πυκνότητας ηλεκτρονίων κατά μήκος της διάδοσης, για διάδοση σε SiO₂

Κεφάλαιο 8: Εφαρμογή της διάδοσης αυτό-οδηγούμενων παλμών στην ατμοσφαιρική φυσική: Μελέτη τροποσφαιρικού όζοντος

8.1. Εισαγωγή

Σε αυτό το κεφάλαιο της διατριβής παρουσιάζεται μια από τις εφαρμογές που σχετίζονται με την διάδοση αυτό-οδηγούμενων παλμών λέιζερ μέσα σε αέρια και ειδικότερα στην ατμοσφαιρική φυσική. Η μεγάλη απόσταση διάδοσης των αυτό-οδηγούμενων παλμών αποτελεί ένα εξαιρετικά ελκυστικό διαγνωστικό μέσο φασματοσκοπικής ανάλυσης για την ανίχνευση και τηλεπισκόπηση (*monitoring*) στοιχείων της ατμόσφαιρας και ειδικά των ρύπων [135].

8.2. Μελέτη φυσικοχημείας όζοντος με αυτό-οδηγούμενους παλμούς

Εξαιρετικό ενδιαφέρον παρουσιάζει η περίπτωση της αλληλεπίδρασης των αυτό-οδηγούμενων παλμών με το τροποσφαιρικό όζον O_3 , το οποίο αποτελεί έναν από τους πιο βασικούς ρυπογόνους παράγοντες στην τροπόσφαιρα με τεράστιες επιδράσεις στο περιβάλλον. Η φυσικοχημεία του όζοντος παρουσιάζει μεγάλη πολυπλοκότητα λόγω του ισχυρά οξειδωτικού του χαρακτήρα και αποτελεί ένα βασικό συστατικό της δομής της τροπόσφαιρας, αφού συμμετέχει σε πληθώρα χημικών διεργασιών. Είναι γνωστό από την ατμοσφαιρική φυσική, ότι το όζον το οποίο βρίσκεται στην στρατόσφαιρα (>30 km), αποτελεί μια πολύ σπουδαία χημική ένωση που προστατεύει την επιφάνεια της Γης από την βλαβερή υπεριώδη ηλιακή ακτινοβολία. Η μείωση της συγκέντρωσης του όζοντος στην στρατόσφαιρα ονομάζεται «*τρύπα του όζοντος*» και αποτελεί ένα πολύ σοβαρό πρόβλημα για το περιβάλλον στην Γη. Η μελέτη της τρύπας του όζοντος είναι από τις βασικότερες μελέτες στην έρευνα της ατμοσφαιρικής φυσικής και πολλά εργαστήρια στον κόσμο ασχολούνται με το θέμα αυτό. Εκτός όμως από το όζον της στρατόσφαιρας, υπάρχει όζον και στην τροπόσφαιρα (0-20 km). Το τροποσφαιρικό όζον είναι εξίσου σημαντικό στοιχείο, με την βασική διαφορά ότι ενώ το στρατοσφαιρικό όζον είναι απαραίτητο για την διατήρηση της ζωής στην Γη, το τροποσφαιρικό όζον αποτελεί έναν από τους πιο δραστικούς ατμοσφαιρικούς ρύπους τόσο για το γήινο οικοσύστημα (χλωρίδα και

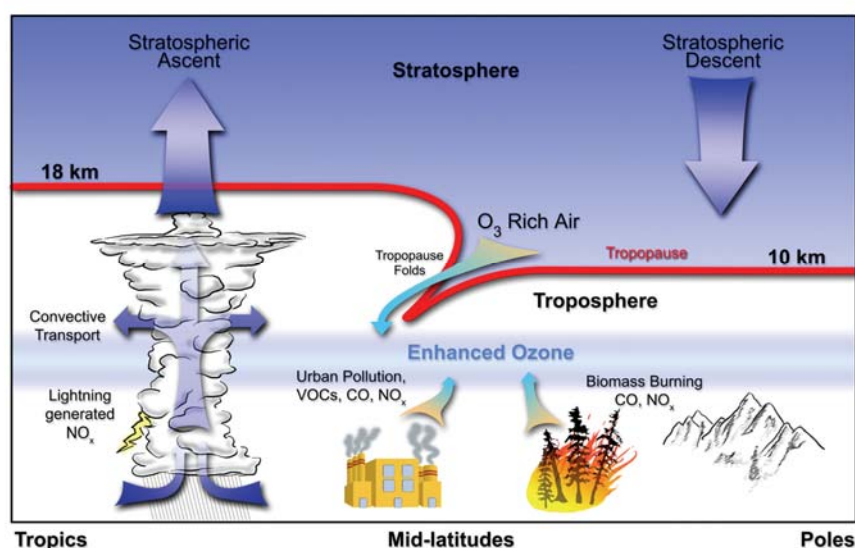
πανίδα) αλλά και για τον ίδιο τον άνθρωπο (πρόκληση αναπνευστικών προβλημάτων, προβλήματα όρασης κ.α.). Το πρόβλημα είναι πιο έντονο σε αστικές περιοχές με έντονη βιομηχανική δραστηριότητα [136]. Επίσης το τροποσφαιρικό όζον αποτελεί ένα από τα βασικά στοιχεία του φαινομένου του θερμοκηπίου το οποίο ως γνωστόν ευθύνεται για την αύξηση της παγκόσμιας θερμοκρασίας της Γης με ανεξέλεγκτες συνέπειες στο περιβάλλον.

8.3. Χαρακτηριστικά του τροποσφαιρικού όζοντος

Η συγκέντρωση του όζοντος στην τροπόσφαιρα αποτελεί το 8 % περίπου της συνολικής συγκέντρωσης στην ατμόσφαιρα. Λόγω του ισχυρά οξειδωτικού του χαρακτήρα (Πίνακας 4) οξειδώνει όλες σχεδόν τις χημικές ενώσεις και ελέγχει την φυσικοχημεία της τροπόσφαιρας. Το τροποσφαιρικό όζον προέρχεται από δύο κυρίως πηγές: Η πρώτη πηγή είναι η παρείσφρηση από την στρατόσφαιρα λόγω φαινομένων μεταφοράς αέριων μαζών από την περιοχή της στρατόσφαιρας στην περιοχή της τροπόσφαιρας. Η δεύτερη πηγή δημιουργίας τροποσφαιρικού όζοντος είναι η παραγωγή του από φωτοχημικές αντιδράσεις σε ισχυρά οξειδωτικά περιβάλλοντα όπως μονοξειδίου του άνθρακα CO, οξειδίων του αζώτου τύπου NO_x καθώς και υδρογονανθράκων παρουσία υπεριώδους ηλιακής ακτινοβολίας. Αυτές οι φωτοχημικές αντιδράσεις ευθύνονται και για την δημιουργία *φωτοχημικής αιθάλης (smog)* σε αστικές περιοχές.

Χημική ένωση/στοιχείο	Οξειδωτικό δυναμικό (V)
Ρίζα υδροξυλίου OH [•]	2.8
Όζον (O ₃)	2.1
Υπεροξείδιο του υδρογόνου (H ₂ O ₂)	1.8
Χλώριο (Cl)	1.4

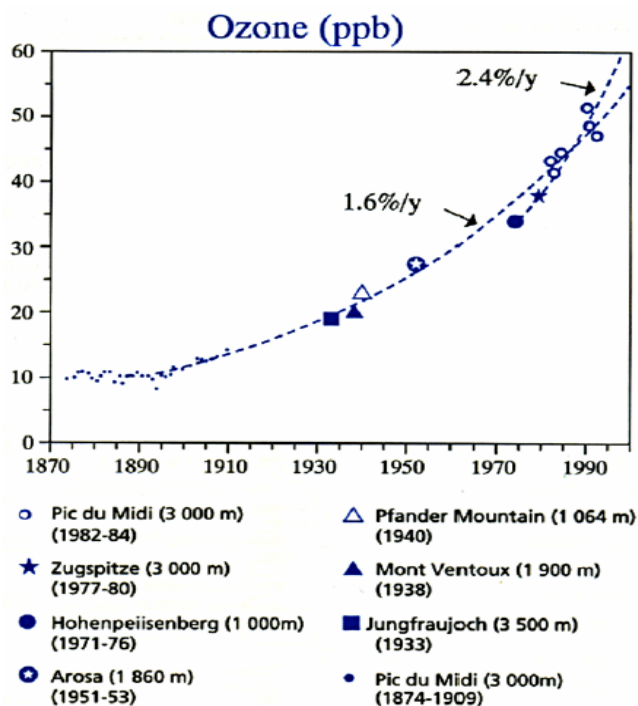
Πίνακας 4: Οξειδωτικά δυναμικά διάφορων χημικών ενώσεων (CRC Handbook of Chemistry and Physics)



Εικ. 8-1: Μεταφορά του όζοντος στην επιφάνεια της Γης (<http://earthobservatory.nasa.gov>)

Συγκεκριμένα το όζον σχηματίζεται από την υψηλή εκπομπή CO και NO_x τα οποία παράγονται από τις μηχανές εσωτερικής καύσης, καθώς από οργανικές ενώσεις υδρογονανθράκων (αλκάλια, αλκένια, αρωματικοί υδρογονάνθρακες κ.α.) που προκύπτουν από καύσεις, χρήσεις διαλυμάτων, βιοχημική επεξεργασία, αλλά και από φυσικές πηγές όπως την πυκνή βλάστηση π.χ. από πευκοδάση. Ο μέσος χρόνος παραμονής του όζοντος στην τροπόσφαιρα είναι περίπου 1-2 μήνες. Ο κύκλος παραγωγής και καταστροφής του όζοντος στην τροπόσφαιρα. Εκτός από την επίδραση στην χλωρίδα και την πανίδα το όζον βλάπτει και τον άνθρωπο διότι οξειδώνει τους βιολογικούς ιστούς. Έχει υπολογιστεί ότι σε καθαρή ατμόσφαιρα, η συγκέντρωση του όζοντος κυμαίνεται από 5-30 ppbv (10-59 μg/m³). Σε χώρες με αναπτυγμένη βαριά βιομηχανία όπως η Γερμανία, το όριο επικινδυνότητας είναι 120 ppbv για διάστημα 30 λεπτών για τον άνθρωπο και 300-1000 ppbv για την χλωρίδα. Το όριο της μέγιστης συγκέντρωσης σε χώρους εργασίας έχει οριστεί στα 200 ppbv, ενώ για συγκεντρώσεις πάνω από 180 μg/m³, περιορίζεται το όριο ταχύτητας στους αυτοκινητοδρόμους και δίνεται απαγόρευση κυκλοφορίας στις πόλεις [136]. Τα πρώτα συμπτώματα στον άνθρωπο εμφανίζονται σε συγκεντρώσεις >100 μg O₃/ m³ αέρα και είναι συνήθως ερεθισμός των ματιών και πονοκέφαλος. Υψηλότερες συγκεντρώσεις όζοντος, διαταράσσουν την όσφρηση, ξηραίνουν τις μεμβράνες των πνευμόνων και δυσχεραίνουν την αναπνευστική λειτουργία, αλλοιώνουν την όραση με τελικό αποτέλεσμα την λιποθυμία. Συνεχιζόμενη αύξηση των καύσεων

(περισσότερα αυτοκίνητα στους δρόμους), έχει οδηγήσει στην αύξηση και του τροποσφαιρικού όζοντος. Αυτό επιβεβαιώνεται και από τους περισσότερους επίγειους μετεωρολογικούς σταθμούς μέτρησης συγκέντρωσης όζοντος, οι οποίοι τα τελευταία χρόνια δείχνουν αύξηση στις τιμές του όζοντος στην τροπόσφαιρα. Οι προβλέψεις των κλιματολογικών μοντέλων δείχνουν ότι το τροποσφαιρικό όζον αυξάνεται με ρυθμούς αύξησης της τάξης του 2.4% ανά έτος (Εικ. 8-2).

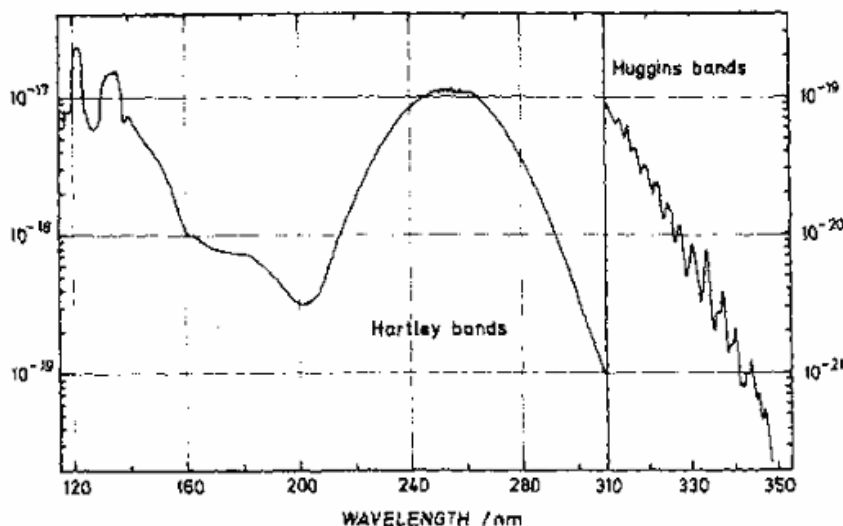


Εικ. 8-2: Εκτίμηση των κλιματολογικών μοντέλων για την αύξηση του τροποσφαιρικού όζοντος (Frater, (1999): CD-ROM Weather & Climate, and Sonnemann,1992)

8.4. Μέτρηση τροποσφαιρικού όζοντος

Μέχρι στιγμής, η μέτρηση της συγκέντρωσης του τροποσφαιρικού όζοντος, γίνεται επίγεια με μεθόδους τηλεπισκόπησης που αφορούν κυρίως τις κλασικές μεθόδους LIDAR ή την παραλλαγή της μεθόδου για το όζον την τεχνική *DIAL* (*Differential Absorption LIDAR*). Στην τεχνική *DIAL* χρησιμοποιούνται δύο δέσμες λέιζερ με διαφορετικά μήκη κύματος η κάθε μια. Το μήκος κύματος της μιας δέσμης είναι στην περιοχή όπου το όζον απορροφάει και είναι συνήθως στην περιοχή του υπεριώδους, ενώ η δεύτερη δέσμη δεν αλληλεπιδρά με το όζον και το μήκος κύματος είναι συνήθως στο ορατό. Αυτή η δεύτερη δέσμη χρησιμοποιείται ως αναφορά για την μέτρηση. Η μέτρηση γίνεται ως εξής: Οι δύο δέσμες στέλνονται στην ατμόσφαιρα

στην περιοχή που πιθανολογείται η ύπαρξη όζοντος και η ανίχνευση της ακτινοβολίας φθορισμού από τις δέσμες γίνεται με ένα επίγειο σύστημα τηλεσκοπίου. Η δέσμη που έχει μήκος κύματος στην περιοχή απορρόφησης του όζοντος παρουσιάζει μειωμένο σήμα σε σχέση με την δέσμη που το μήκος κύματος της δεν είναι στην περιοχή απορρόφησης του όζοντος. Η διαφορά των δύο σημάτων από τις δύο δέσμες είναι ανάλογη της συγκέντρωσης του όζοντος και με αυτόν τον τρόπο ανιχνεύεται τόσο η συγκέντρωση όσο και το ύψος στο οποίο βρίσκεται το όζον. Η ιδέα της νέας τεχνικής τηλεπισκόπισης με αυτό-οδηγούμενους παλμούς δίνει μια επιπλέον παράμετρο, αυτήν της αλληλεπίδρασης του όζοντος με την δέσμη. Η συγκεκριμένη μελέτη ξεκίνησε με πρωτοβουλία του *Εργαστηρίου Δομής της Ύλης και Φυσικής Λείζερ* και έχει κατατεθεί σχετική ερευνητική πρόταση για εκτέλεση πειραμάτων στις εγκαταστάσεις του *Ιδρύματος Τεχνολογίας και Έρευνας* (Ι.Τ.Ε.). Το πρωτοποριακό αυτής της τεχνικής συνίσταται στο ότι η αλληλεπίδραση της δέσμης των αυτό-οδηγούμενων παλμών μπορεί να οδηγήσει σε πιθανό έλεγχο της συγκέντρωσης του όζοντος, επιλέγοντας τις κατάλληλες συνθήκες διάδοσης. Αυτό είναι θεωρητικά εφικτό, διότι το μήκος κύματος του λείζερ που προτίθεται να χρησιμοποιηθεί είναι στο υπεριώδες (248 nm) και είναι μέσα στο φασματικό εύρος απορρόφησης του όζοντος, όπως μπορεί να φανεί και από το παρακάτω σχήμα.



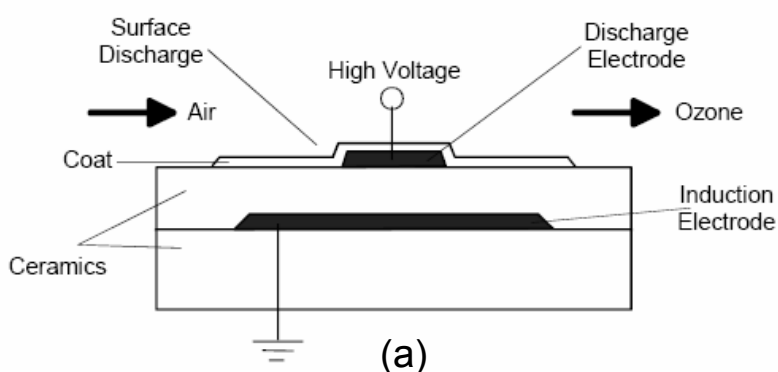
Εικ. 8-3: Φάσμα απορρόφησης του όζοντος: Η κύρια περιοχή απορρόφησης (Hartley bands) έχει μέγιστο στα 250 nm περίπου (θυμίζουμε ότι το KrF excimer λείζερ λειτουργεί στα 248 nm) [Peter Warneck, *Chemistry of the Natural Atmosphere* (Academic Press, New York, 1988)]

8.5. Προτεινόμενη πειραματική διάταξη

Στην συγκεκριμένη διατριβή προτείνεται η μελέτη της φωτοχημείας του τροποσφαιρικού όζοντος κατά την διάδοση αυτό-οδηγούμενων βραχύχρονων παλμών υψηλής έντασης λέιζερ υπεριώδους. Πιθανολογείται, με βάση την θεωρία ότι το υψηλής έντασης ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ και το δημιουργούμενο πλάσμα από τους αυτό-οδηγούμενους παλμούς θα αλλάξει εντελώς τις συνθήκες παραγωγής /καταστροφής του όζοντος. Η συγκεκριμένη μελέτη της φωτοχημείας του τροποσφαιρικού όζοντος χρησιμοποιώντας λέιζερ θα περιλαμβάνει: α) την ανίχνευση μέσω τηλεπισκόπησης *DIAL* [137-140], β) οπτικά διαγνωστικά για την ανίχνευση του όζοντος καθώς και των υπολοίπων ενώσεων που συμμετέχουν στον καταλυτικό κύκλο του όζοντος (NO_x , CO , OH) και που παράγονται κατά την διάρκεια παλμικών εκκενώσεων από πλάσμα για την παραγωγή του όζοντος [141-142] και γ) την αριθμητική προσομοίωση της συγκέντρωσης του όζοντος σε πραγματικές ατμοσφαιρικές συνθήκες για σύγκριση με τα πειραματικά αποτελέσματα που λαμβάνονται με την τεχνική *DIAL* [143]. Ως τώρα στην διεθνή βιβλιογραφία υπάρχει μόνο μία μελέτη που αναφέρει την αλληλεπίδραση ενός λέιζερ έντασης 10^{10} W/cm^2 με όζον σε ατμοσφαιρικές συνθήκες και σε εργαστηριακές συνθήκες [144]. Υπάρχει δηλαδή έλλειψη δεδομένων για την αλληλεπίδραση με λέιζερ βραχύχρονων παλμών υψηλής έντασης. Η μόνη πειραματική έρευνα για ανίχνευση ατμοσφαιρικών ρύπων με την χρήση αυτό-οδηγούμενων femtosecond παλμών λέιζερ αναφέρει μετρήσεις υδρατμού και μεθανίου αλλά όχι όζοντος [14]. Με την προτεινόμενη πειραματική διάταξη, δηλαδή η αλληλεπίδραση αυτό-οδηγούμενων παλμών λέιζερ υπεριώδους με όζον, δίνεται για πρώτη φορά, η δυνατότητα να μελετηθούν φαινόμενα παραγωγής/καταστροφής όζοντος που με τις υπάρχουσες πειραματικές διατάξεις δεν ήταν εφικτές, λόγω του ότι το ενδιαφέρον μέχρι τώρα επικεντρωνόταν στην ανίχνευση και στην μέτρηση της συγκέντρωσης μόνο. Μέχρι στιγμής, η συγκεκριμένη μελέτη βρίσκεται στο στάδιο της βαθμονόμησης των διαγνωστικών συστημάτων καθώς και των συστημάτων παραγωγής όζοντος σε εργαστηριακές συνθήκες.

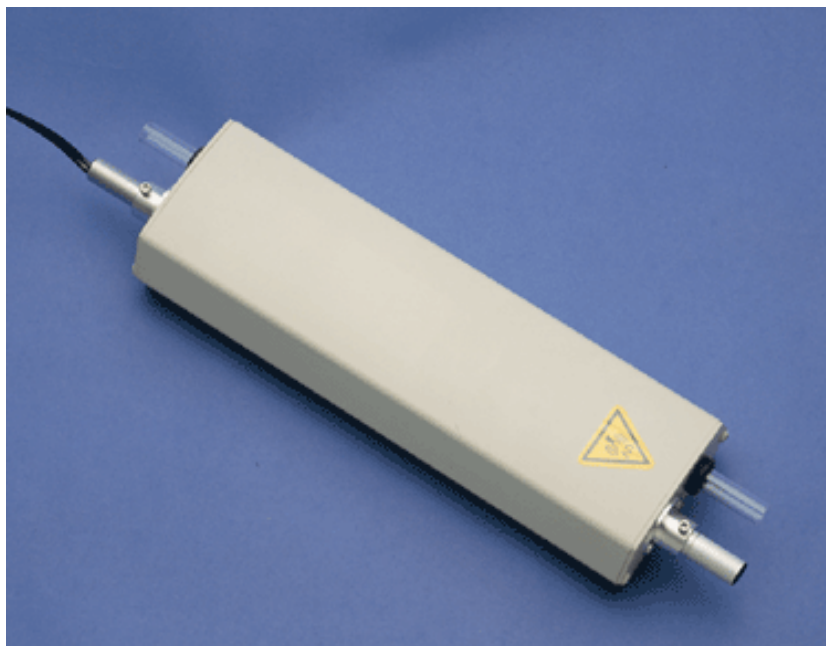
8.6. Συστήματα παραγωγής όζοντος σε εργαστηριακές συνθήκες

Για την παραγωγή όζοντος χρησιμοποιήθηκαν δύο διαφορετικά συστήματα, τα οποία βασίζονται σε διαφορετικές αρχές λειτουργίας. Συγκεκριμένα, το πρώτο σύστημα παραγωγής όζοντος, παράγει όζον μέσω της διέλευσης ατμοσφαιρικού αέρα ανάμεσα σε ηλεκτρόδια στα οποία δημιουργείται ηλεκτρική εκκένωση υψηλής τάσης χωρίς να σπάσει σπινθήρας (*silent electric discharge*). Το σύστημα αυτό είναι της εταιρίας *Anseros (model COM-SD-30)* και μπορεί να παράγει 30 mg/l όζοντος (Εικ. 8-4.).



Εικ. 8-4: (a) Αρχή λειτουργίας του συστήματος παραγωγής όζοντος, (b) σύστημα παραγωγής όζοντος (<http://www.anseros.de>)

Στο δεύτερο σύστημα παραγωγής όζοντος που χρησιμοποιήθηκε, το όζον παράγεται μέσω φωτοχημικής αντίδρασης υπεριώδους ακτινοβολίας με μήκος κύματος 185 nm που παράγεται από μια λάμπα υδραργύρου με το οξυγόνο του ατμοσφαιρικού αέρα. Το σύστημα αυτό είναι της εταιρίας *Ultra-Violet Products (model 97-0066-02)* (Εικ. 8-5) και μπορεί να παράγει 3 ppm συγκέντρωση όζοντος με σταθερή ροή 1 L/min.



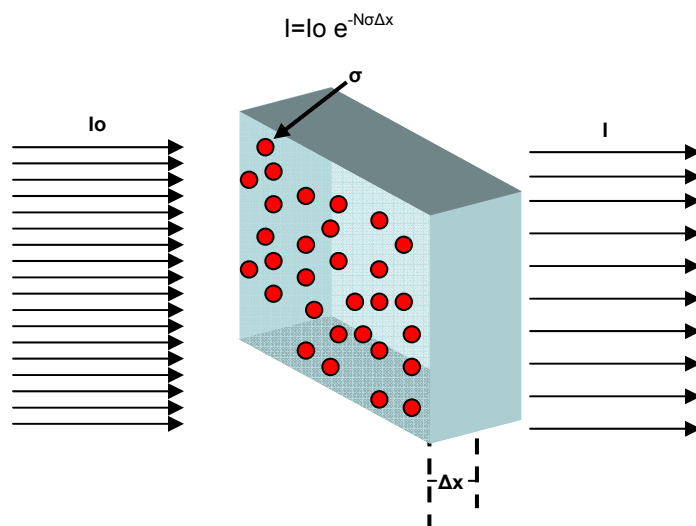
Εικ. 8-5: Σύστημα παραγωγής όζοντος από αντίδραση υπεριώδους ακτινοβολίας με οξυγόνο (<http://www.uvp.com>)

Το σύστημα μέτρησης της συγκέντρωσης του όζοντος βασίζεται στην μέθοδο της οπτικής απορρόφησης. Συγκεκριμένα, γνωρίζοντας ότι το όζον απορροφάει έντονα στην περιοχή του UV και συγκεκριμένα στην περιοχή γύρω στα 250 nm, χρησιμοποιείται μια βαθμονομημένη λυχνία υδραργύρου (*Oriel Instruments, Hg-calibration lamp pencil-like, model 6035*), η οποία εκπέμπει γραμμικό φάσμα και από την οποία μπορεί να επιλεγεί η φασματική γραμμή των 253.65 nm κάνοντας χρήση μιας φωτολυχνίας (*Hamamatsu XUV phototube, solar blind, model R765*) που έχει φασματική απόκριση στην περιοχή αυτή.

8.7. Μέθοδος οπτικής απορρόφησης

Είναι γνωστό από την θεωρία ότι όταν ηλεκτρομαγνητική ακτινοβολία πέσει πάνω σε ένα υλικό, τότε συμβαίνουν τρία βασικά φαινόμενα αλληλεπίδρασης: ένα μέρος της ακτινοβολίας διέρχεται μέσα από το υλικό, ένα μέρος ανακλάται προς τα πίσω, ενώ τέλος ένα άλλο απορροφάται από το υλικό με αποτέλεσμα την διέγερση ή τον ιονισμό των ατόμων αν το μήκος κύματος της ακτινοβολίας αυτό είναι κατάλληλο για αυτές τις διεργασίες ή σε άλλη περίπτωση απλώς αυξάνεται η κινητική ενέργεια των ατόμων. Υποθέτοντας ότι το υλικό είναι αέριο, όπως στην περίπτωση που εξετάζεται

στην παρούσα διατριβή και η ένταση της ακτινοβολίας είναι σχετικά μικρή, είναι εφικτό σε πρώτη προσέγγιση να θεωρηθεί ότι η ανάκλαση της ακτινοβολίας είναι πολύ μικρή και τα δύο κυρίαρχα φαινόμενα είναι η απορρόφηση και η διέλευση. Όταν λοιπόν η ακτινοβολία πέσει στο υλικό, ένα μέρος της περνάει ενώ ένα μέρος της απορροφάται, όπως φαίνεται και στο παρακάτω διάγραμμα (Εικ. 8-6).



Εικ. 8-6: Θεωρητική περιγραφή της απορρόφησης ακτινοβολίας από υλικό

Συμβολίζοντας με I_0 την αρχική ένταση της ακτινοβολίας πριν περάσει το υλικό, και με I , την ένταση της ακτινοβολίας αφού έχει περάσει το υλικό, τότε η σχέση που συνδέει τα I_0 και I , δίνεται από τον τύπο:

$$I = I_0 e^{-N\sigma\Delta x}$$

όπου, N είναι ο αριθμός των ατόμων (ή μορίων αν πρόκειται για μόριο) ανά μονάδα όγκου (δηλαδή εκφράζει την συγκέντρωση του υλικού), το Δx είναι η διάσταση στην διεύθυνση διάδοσης της ακτινοβολίας, ενώ τέλος το σ είναι η ενεργός διατομή του υλικού και εκφράζει το πόσο μεγάλο στόχο προσφέρει το άτομο (μόριο) στα προσπίπτοντα φωτόνια της ακτινοβολίας. Η ενεργός διατομή εξαρτάται πάντα από το υλικό και από το μήκος κύματος της προσπίπτουσας ακτινοβολίας και έχει διαστάσεις εμβαδού. Για να υπολογιστεί η συγκέντρωση του όζοντος μέσα σε ένα σωλήνα συγκεκριμένων διαστάσεων, εφαρμόζεται η παραπάνω θεωρία της ατομικής απορρόφησης λαμβάνοντας υπόψη τα στοιχεία της πειραματικής διάταξης που είναι:

μήκος σωλήνα $\Delta x=L=53$ cm, ενεργός διατομή του όζοντος στα 253.65 nm (μήκος κύματος απορρόφησης του υδραργύρου), $\sigma_{O_3}(253.6\text{ nm})=1.14 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ [145].

Άρα:

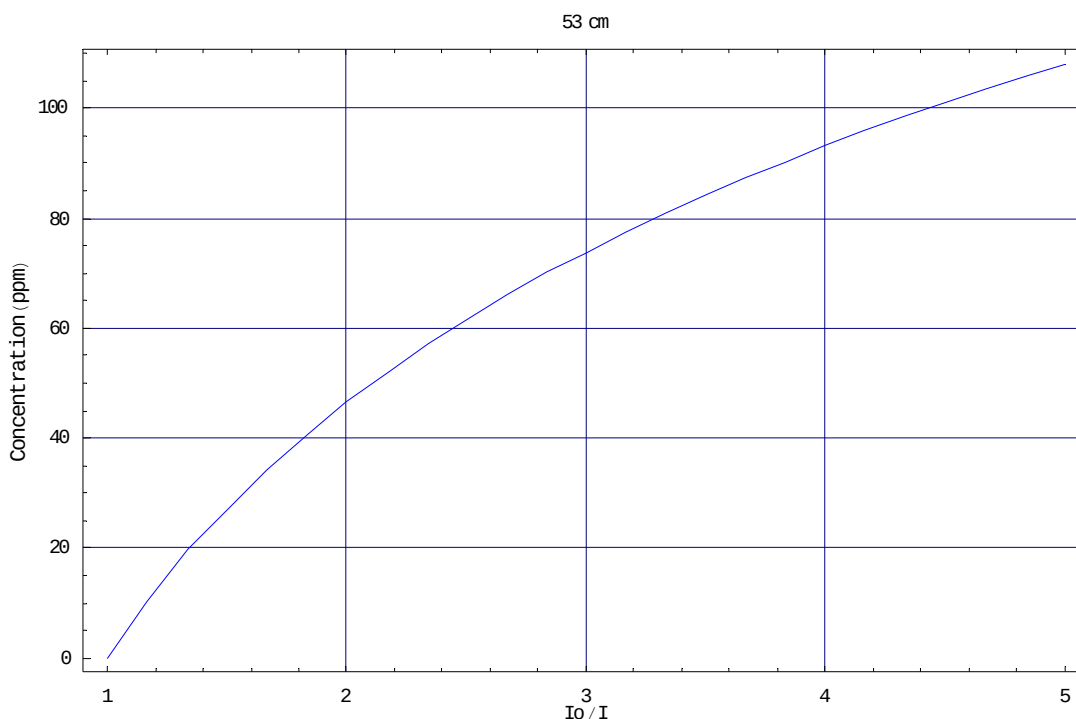
$$I_{(\lambda=253,65\text{ nm})} = I_o e^{-N\sigma_{(253,65\text{ nm})}L}$$

Λύνοντας ως προς την συγκέντρωση n , προκύπτει: $N = \frac{1}{\sigma L} \ln\left(\frac{I_o}{I}\right)$

ή τελικά:

$$N = 1.66 \times 10^{15} \ln\left(\frac{I_o}{I}\right)$$

Στο παρακάτω διάγραμμα απεικονίζονται διάφορες τιμές συγκέντρωσης όζοντος για συγκεκριμένες τιμές του πηλίκου I_o/I (Εικ. 8-7).

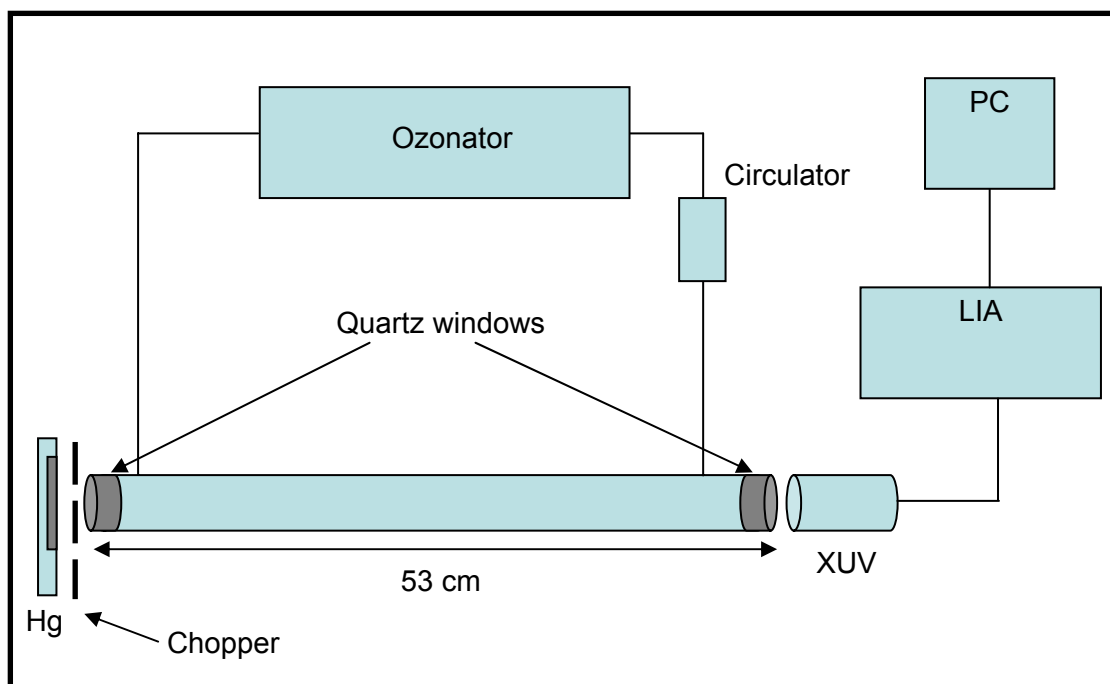


Εικ. 8-7: Γραφική παράσταση υπολογισμού συγκέντρωσης όζοντος σε συνάρτηση με τον λόγο I_o/I .

8.8. Μετρήσεις βαθμονόμησης συστημάτων παραγωγής όζοντος σε εργαστηριακές συνθήκες

Για να πραγματοποιηθούν μετρήσεις βαθμονόμησης της συγκέντρωσης του όζοντος, κατασκευάστηκε η παρακάτω πειραματική διάταξη (Εικ. 8-8). Η συγκεκριμένη διάταξη αποτελείται από το σύστημα παραγωγής όζοντος (*ozonator*) το οποίο προσαρμόζεται είτε το ένα είτε το άλλο σύστημα παραγωγής όζοντος, ένα κυκλοφορητή αέρα για μεγαλύτερη παραγωγή όζοντος, μια βαθμονομημένη λυχνία

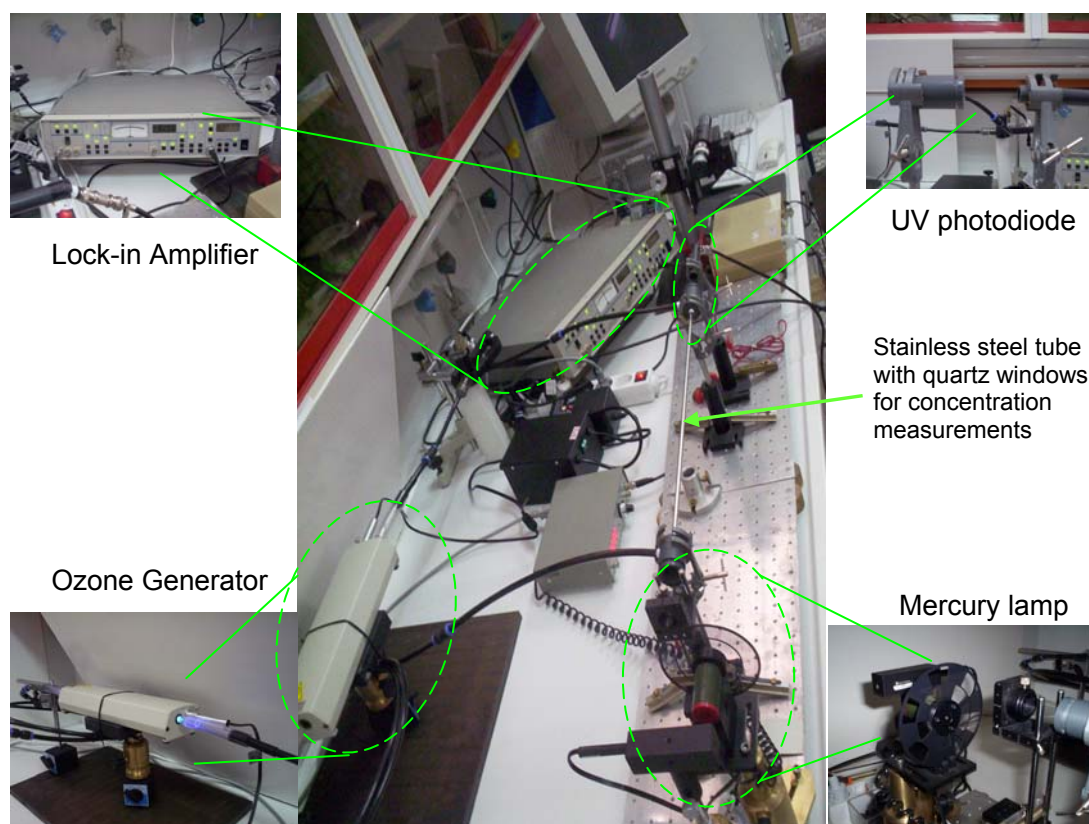
υδραργύρου και την φωτοδίοδο XUV που έχει φασματική απόκριση στην περιοχή $250\text{-}260\text{ nm}$. Ο θάλαμος μέτρησης της συγκέντρωσης του όζοντος είναι από ανοξειδωτο ατσάλι (λόγω οξειδωτικότητας του όζοντος) μήκους $L=53\text{ cm}$ και στα άκρα του έχουν προσαρμοστεί παράθυρα από χαλαζία (*quartz*) τα οποία είναι διαπερατά στην υπεριώδη ακτινοβολία. Οι πρώτες μετρήσεις έδειξαν ότι το σήμα που λαμβάνεται από την συγκεκριμένη διάταξη είναι πολύ μικρό (τάξεως μV). Έτσι χρειάστηκε η βοήθεια ενός ενισχυτή *lock-in* (*Lock-In Amplifier*, SRS, Model SR510) και ενός περιστρεφόμενου συστήματος (*chopper*) που μπαίνει αμέσως μετά την λυχνία του υδραργύρου για να γίνει το σήμα εναλλασσόμενο ώστε να μπορεί να μετρήσει ο ενισχυτής *lock-in*. Οι μετρήσεις καταγράφονται από τον *lock-in* μέσω της σειριακής θύρας RS-232 ενός υπολογιστή (*PC*), ώστε να γίνεται *on-line* καταγραφή.



Εικ. 8-8: Πειραματική διάταξη: **Ozonator:** σύστημα παραγωγής όζοντος, **Hg:** βαθμονομημένη λυχνία υδραργύρου, **Chopper:** Περιστρεφόμενο σύστημα για τον LIA, **XUV:**ανιχνευτής, **LIA:** Lock-In Amplifier, **PC:** υπολογιστής συνδεδεμένος μέσω RS232 με τον LIA για καταγραφή των μετρήσεων, **Circulator:** σύστημα κυκλοφορητή αέρα.

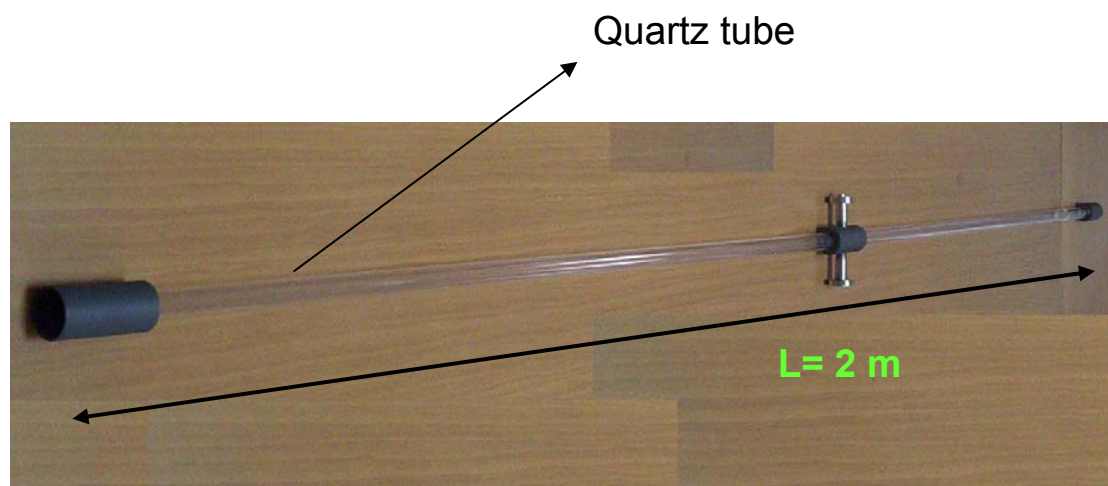
Εδώ πρέπει να τονιστεί ότι εκτός από τον θάλαμο μετρήσεων που είναι από ανοξειδωτο ατσάλι, όλες οι άλλες συνδέσεις μεταξύ του συστήματος παραγωγής και συστήματος μέτρησης είναι από PVC, λόγω της οξειδωτικότητας του όζοντος.

Στο επόμενο σχήμα φαίνεται η πειραματική διάταξη όπως είναι στην πραγματικότητα (Εικ. 8-9).



Εικ. 8-9: Πειραματική διάταξη μετρήσεων συγκέντρωσης όζοντος

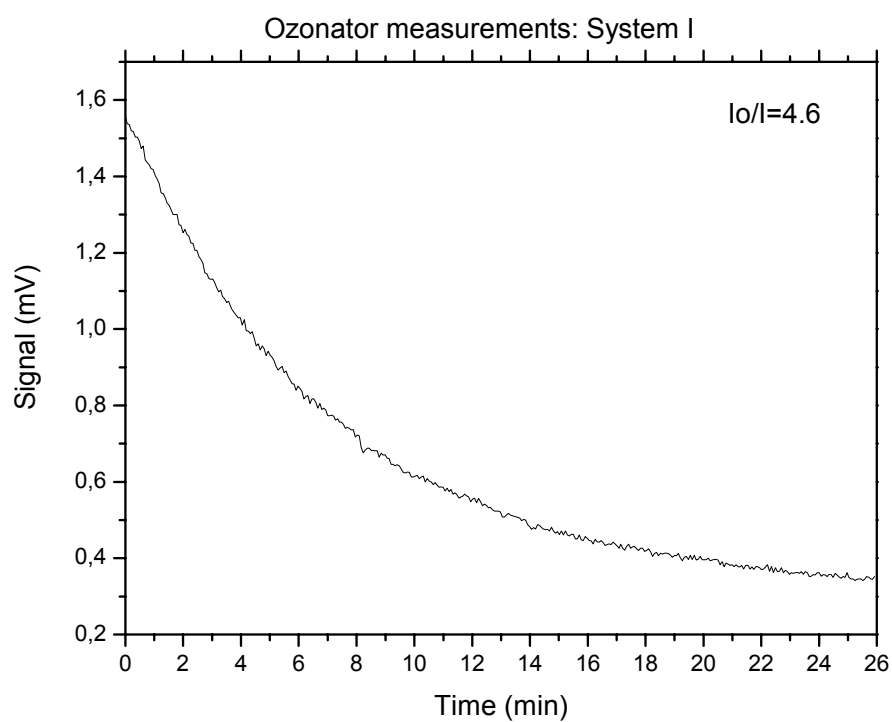
Στην συγκεκριμένη διάταξη υπάρχει πρόβλεψη ώστε αντί για ατμοσφαιρικό αέρα να μπορεί να λειτουργήσει και με καθαρό οξυγόνο για μεγαλύτερη απόδοση στην παραγωγή του όζοντος ενώ επίσης μπορεί να λειτουργήσει και σε πίεση κάτω από την ατμοσφαιρική, ώστε να μπορεί να γίνει καλύτερα η προσομοίωση σε πραγματικές ατμοσφαιρικές συνθήκες. Ο τελικός θάλαμος στον οποίο εισέρχεται το όζον μετά, είναι εξ' ολοκλήρου από χαλαζία (*quartz*) έχει διαστάσεις 2 m περίπου (Εικ. 8-10) και σε αυτόν τον θάλαμο θα εισέρχεται η δέσμη από το λέιζερ για την αλληλεπίδραση με το όζον. Η επιλογή του χαλαζία ως θαλάμου μετρήσεων έγινε με γνώμονα την πρόβλεψη μετρήσεων κατά μήκος του άξονα διάδοσης της δέσμης του λέιζερ με σύστημα οπτικής απεικόνισης (*imaging*).



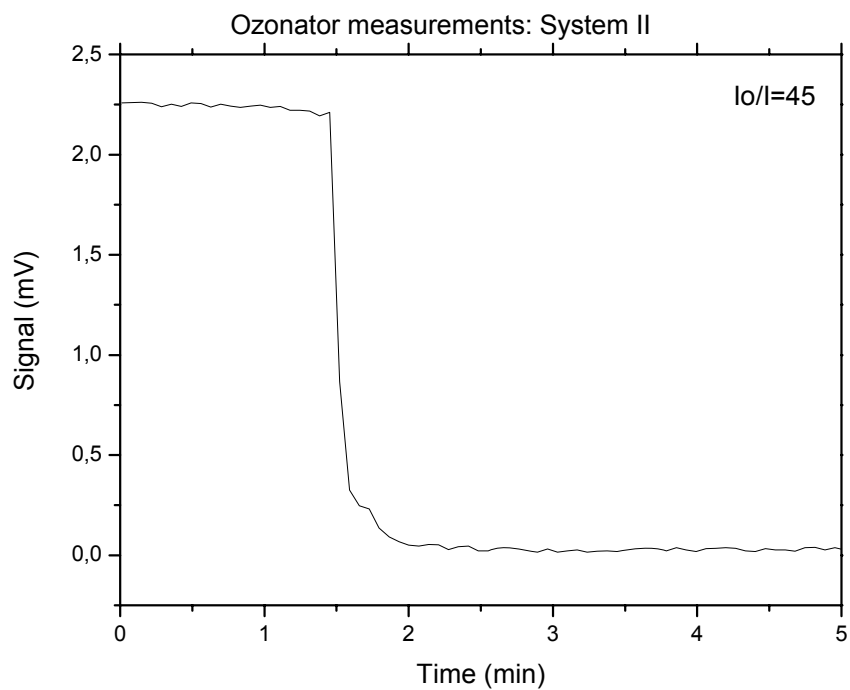
Εικ. 8-10: Θάλαμος από χαλαζία (*quartz*) για τις μετρήσεις αλληλεπίδρασης του όζοντος με την δέσμη του λέιζερ.

Οι αρχικές μετρήσεις παραγωγής όζοντος έδωσαν ενδιαφέροντα αποτελέσματα. Συγκεκριμένα, για το σύστημα παραγωγής με την λυχνία υδραργύρου (το οποίο ονομάζεται εδώ *System I*), η παραγωγή του όζοντος απαιτεί αρκετή ώρα, ενώ η τελική συγκέντρωση που πετυχαίνεται είναι για $I_o/I = 4.6$ το οποίο αντιστοιχεί σε 100 ppm περίπου όζοντος, ενώ με το σύστημα παραγωγής με την ηλεκτρική εκκένωση (το ονομάζεται εδώ *System II*), η παραγωγή του όζοντος γίνεται σχεδόν ακαριαία και σε πολύ μεγαλύτερη συγκέντρωση, με $I_o/I = 45$, δηλαδή περίπου 10 φορές πιο μεγάλη συγκέντρωση όζοντος.

Τα αποτελέσματα αυτά εμφανίζονται στα παρακάτω διαγράμματα για το *System I* (Εικ. 8-11) και το *System II* αντίστοιχα (Εικ. 8-12). Στην συνέχεια της μελέτης, η οποία είναι εκτός των χρονικών ορίων της παρούσας διατριβής και αποτελεί μελλοντική ερευνητική ενασχόληση του συγγραφέα, χρειάζεται να διερευνηθεί η συμπεριφορά των δύο συστημάτων σε πίεση μικρότερη της ατμοσφαιρικής, η παραγωγή με καθαρό οξυγόνο αντί με ατμοσφαιρικό αέρα, ο χρόνος διάρκειας σταθερής παραγωγής, ο χρόνος καταστροφής, κ.α.



Εικ. 8-11: Γραφική παράσταση παραγωγής όζοντος με το System I (λυχνία υδραργύρου)



Εικ. 8-12: Γραφική παράσταση παραγωγής όζοντος με το System II (ηλεκτρική εκκένωση)

Κεφάλαιο 9: Τελικά συμπεράσματα - Επίλογος

9.1. Περιγραφή τελικών συμπερασμάτων - Επίλογος

Στην παρούσα διατριβή μελετήθηκε εκτενώς η διάδοση βραχύχρονων παλμών υψηλής έντασης λέιζερ με μήκος κύματος στο υπεριώδες μέσα σε αέρια μέσα σε διαφορετικές πιέσεις αλλά και σε στερεά. Όσον αφορά τα αέρια μέσα, αυτά ήταν ο ατμοσφαιρικός αέρας και το ευγενές αέριο Αργό (Ar), ενώ όσον αφορά τα στερεά η μελέτη επικεντρώθηκε στο άμορφο διοξείδιο του πυριτίου (*fused silica*). Ο σκοπός της διατριβής ήταν η μελέτη των φυσικών μηχανισμών που λαμβάνουν χώρα κατά την διάδοση αυτού του είδους παλμών λέιζερ μέσα στην ύλη και η εξέταση των φαινομένων που συμβαίνουν κατά την διάρκεια της αλληλεπίδρασης αυτής.

Για τον λόγο αυτό, αρχικά μελετήθηκε η θεωρητική προσέγγιση του θέματος και η εξαγωγή των βασικών μαθηματικών εξισώσεων που περιγράφουν το φαινόμενο της διάδοσης. Ξεκινώντας από τις εξισώσεις του κλασικού ηλεκτρομαγνητισμού (εξισώσεις Maxwell), εξάγεται η κυματική εξίσωση, η οποία περιγράφει την διάδοση ενός ηλεκτρομαγνητικού κύματος στο χώρο και στο χρόνο μέσα σε ένα υλικό. Ειδικότερα τώρα, στην περίπτωση της διάδοσης ακτινοβολίας λέιζερ, η κυματική εξίσωση μετασχηματίζεται στην διάδοση του ηλεκτρικού πεδίου του λέιζερ (λόγω της πολύ υψηλής έντασης το μαγνητικό πεδίο από το λέιζερ είναι πρακτικά αμελητέο), μέσα σε ένα μέσο. Από την αλληλεπίδραση της ακτινοβολίας του λέιζερ με μόρια ή άτομα ενός υλικού αλλάζει η πόλωση του μέσου και σε μεγάλες εντάσεις ηλεκτρικού πεδίου του λέιζερ, η πόλωση του υλικού γίνεται μη γραμμική και αρχίζει να εξαρτάται από το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ. Στην περίπτωση αυτή η διάδοση περιγράφεται από μη γραμμικά φαινόμενα και η κυματική εξίσωση γίνεται επίσης μη γραμμική. Κάνοντας τους κατάλληλους μετασχηματισμούς, η μη γραμμική κυματική εξίσωση εμφανίζεται σε μια μορφή που μοιάζει με την εξίσωση *Schrödinger*, όπου το ρόλο της κυματοσυνάρτησης τον παίζει το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ ενώ τον ρόλο του δυναμικού τον παίζει ένας μη γραμμικός όρος που περιέχει το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ. Η εξίσωση αυτή ονομάζεται *μη γραμμική εξίσωση Schrödinger (Non-Linear Schrödinger Equation, NLSE)*. Η συγκεκριμένη εξίσωση επιδέχεται για συγκεκριμένες περιπτώσεις, αναλυτικές λύσεις οι οποίες όπως προκύπτουν από την βιβλιογραφία είναι γραμμικός συνδυασμός σολιτονιακών κυμάτων. Όμως η

συγκεκριμένη εξίσωση δεν μπορεί να περιγράψει με ακρίβεια την διάδοση σε ένα μέσο στο οποίο συμβαίνουν και άλλα μη γραμμικά φαινόμενα τα οποία περιπλέκουν το φαινόμενο της διάδοσης. Στην περίπτωση αυτή, η κυματική εξίσωση που σχηματίζεται δεν μπορεί να επιλυθεί αναλυτικά λόγω της πολυπλοκότητας των μη γραμμικών όρων και χρειάζεται να γίνει αριθμητική επίλυση.

Αφού ολοκληρώθηκε το θεωρητικό μοντέλο της διάδοσης, πραγματοποιήθηκε πειραματική διάταξη για την διάδοση βραχύχρονων παλμών υψηλής έντασης λέιζερ υπεριώδους μέσα σε ατμοσφαιρικό αέρα σε διαφορετικές πιέσεις. Το θεωρητικό μοντέλο της διάδοσης αποτελείται από ένα σύστημα δύο εξισώσεων: α) της μη γραμμικής *Schrödinger* μετασχηματισμένης με τέτοιο τρόπο ώστε να περιλαμβάνει όλα τα φυσικά φαινόμενα που παίρνουν μέρος κατά την αλληλεπίδραση της δέσμης του λέιζερ με τον αέρα, και β) της εξίσωσης της χρονικής εξέλιξης της πυκνότητας ηλεκτρονίων του δημιουργούμενου πλάσματος που προκύπτει λόγω διεργασιών πολυφωτονικού ιονισμού. Το αποτέλεσμα αυτό επίσης επιβεβαιώνεται από τις πειραματικές μας μετρήσεις μέσω της φασματοσκοπικής ανάλυσης. Οι μετρήσεις που πραγματοποιήθηκαν ήταν μετρήσεις φασματοσκοπικής ανάλυσης σε διαφορετικές πιέσεις και οι οποίες έδειξαν την ύπαρξη αυτο-οδηγούμενων παλμών που δημιουργούνται για πίεση μεγαλύτερη από 200 mbar . Παράλληλα με τις μετρήσεις, κατασκευάστηκε ένα αριθμητικό μοντέλο προσομοίωσης έχοντας ως αρχικές συνθήκες πραγματικές πειραματικές τιμές. Τα αποτελέσματα του μοντέλου έδειξαν την ύπαρξη μη γραμμικής εστίασης που οφείλεται στο φαινόμενο *Kerr* , την δημιουργία αυτο-οδηγούμενων παλμών (κανάλια υψηλής έντασης μέσα στο εσωτερικό της δέσμης τα οποία ονομάζονται filaments), την φασματική διαπλάτυνση του παλμού λόγω του φαινομένου της αυτοδιαμόρφωσης φάσης καθώς και την μετατόπιση προς το ιώδες (*blue shift*). Τα παραπάνω αποτελέσματα δείχνουν πολύ καλή συμφωνία με τις πειραματικές μετρήσεις.

Στο επόμενο στάδιο της διατριβής πραγματοποιήθηκε η πειραματική διάταξη για την διάδοση βραχύχρονων παλμών υψηλής έντασης μέσα σε Αργό (Ar) σε διαφορετικές πιέσεις (50-1000 mbar). Η επιλογή του Αργού ως μέσου διάδοσης έγινε με βάση τις ιδιότητες του στην παραγωγή αρμονικών. Για την καλύτερη κατανόηση του φαινομένου της διάδοσης μέσα στο Αργό, κατασκευάστηκε ένα αριθμητικό μοντέλο προσομοίωσης το οποίο έδειξε την ύπαρξη filaments άρα και αυτο-οδηγούμενων

παλμών σε πίεση μεγαλύτερη από 200 mbar, αποτελέσματα τα οποία συμφωνούν πλήρως με τις πειραματικές μετρήσεις.

Στην συνέχεια κατασκευάστηκε πειραματική διάταξη για την μελέτη της παραγωγής αρμονικών κατά τη διάδοση αυτό-οδηγούμενων παλμών λέιζερ υπεριώδους στο Αργό. Το συγκεκριμένο πείραμα έδειξε: παραγωγή της 3^{ης} και της 5^{ης} τάξης αρμονικής ενώ εμφανίζεται ότι οι παραγόμενες αρμονικές έχουν «κληρονομήσει» τα φασματικά χαρακτηριστικά των αυτο-οδηγούμενων παλμών που τις δημιούργησαν, δηλαδή εμφανίζουν φαινόμενα φασματικής διαπλάτυνσης το οποίο είναι αποτέλεσμα αυτό-διαμόρφωσης φάσης (*Self-Phase Modulation, SPM*), μη γραμμικού φαινομένου που λαμβάνει χώρα κατά την δημιουργία αυτό-οδηγούμενων παλμών, καθώς και μετατόπιση μηκών κύματος προς το ιώδες (*blue shift*). Επίσης, η απόδοση των αρμονικών εμφανίζεται αυξημένη τουλάχιστον κατά ένα παράγοντα 10^2 από τις αντίστοιχες τιμές της βιβλιογραφίας. Αυτό εκτιμάται ότι συμβαίνει λόγω του τρόπου παραγωγής των αρμονικών, δηλαδή των αυτό-οδηγούμενων παλμών που συγκρατούν την δέσμη του λέιζερ εστιασμένη για μεγάλη απόσταση με αποτέλεσμα να δημιουργούνται συνθήκες παραγωγής σε πολλές περιοχές του χώρου κατά μήκος της διάδοσης και όχι μόνο στην περιοχή γεωμετρικής εστίασης, όπως συμβαίνει στην κλασική περίπτωση παραγωγής αρμονικών μέσα σε *jet*. Για να εξηγηθεί καλύτερα το φαινόμενο της αυξημένης απόδοσης, κατασκευάστηκε ένα αριθμητικό μοντέλο προσομοίωσης της μεταβολής της έντασης των αρμονικών σε συνάρτηση με την πίεση. Τα αποτελέσματα της προσομοίωσης έδειξαν ότι το μήκος μέσα στο οποίο παράγονται οι αρμονικές είναι πολύ μεγαλύτερο από το μήκος συμφωνίας (*coherence length, L_{coh}*) που είναι το μέγιστο θεωρητικό μήκος στο οποίο μπορούν το ηλεκτρικό πεδίο του λέιζερ και των αρμονικών να είναι σε φάση. Αυτό το αποτέλεσμα, οδηγεί στο συμπέρασμα ύπαρξης φαινομένων ενίσχυσης της συμφωνίας φάσης (*quasi-phase matching*).

Στο επόμενο στάδιο της διατριβής μελετήθηκε η διάδοση βραχύχρονων παλμών μέσα σε στερεά και συγκεκριμένα στην θεωρητική μελέτη και στην αριθμητική επίλυση του μοντέλου διάδοσης σε στερεά ενώ μελετήθηκαν σε επίπεδο υπολογιστικής προσομοίωσης ειδικές περιπτώσεις διάδοσης μέσα σε διαφανή στερεά όπως το άμορφο διοξείδιο του πυριτίου SiO₂ (fused silica). Αυτό που προέκυψε από την

μελέτη, ήταν ότι και στην περίπτωση των στερεών υπάρχει εμφάνιση παρόμοιων μη γραμμικών φαινομένων με αυτά που συμβαίνουν κατά την διάδοση σε αέρια.

Στο τελευταίο τμήμα της διατριβής γίνεται περιγραφή μιας από τις εφαρμογές που προκύπτουν από την διάδοση αυτό-οδηγούμενων παλμών μέσα στον αέρα. Συγκεκριμένα αναφέρεται η χρήση ενός τέτοιου συστήματος για την ανίχνευση ατμοσφαιρικών ρύπων συγκεκριμένα γίνεται αναφορά στην ανάπτυξη ενός συστήματος μελέτης της φυσικοχημείας του τροποσφαιρικού όζοντος το οποίο αποτελεί ρυπογόνο παράγοντα για την χλωρίδα και την πανίδα αλλά και για ίδιο τον άνθρωπο, σε αστικές περιοχές με βαριά βιομηχανία. Σε αυτήν την φάση έχει ήδη δημιουργηθεί το σύστημα παραγωγής και ελέγχου της συγκέντρωσης του όζοντος σε εργαστηριακές συνθήκες. Σε μελλοντική φάση θα γίνουν μετρήσεις αλληλεπίδρασης με δέσμη βραχύχρονων παλμών υψηλής έντασης με τελικό στόχο την κατασκευή ενός φορητού συστήματος ελέγχου τροποσφαιρικού όζοντος σε πραγματικές συνθήκες.

Παράρτημα : “Enhanced harmonic conversion efficiency in the self-guided propagation of femtosecond ultraviolet laser pulses in Argon”, Applied Physics B: Lasers and Optics 80, 211-214 (2005).

Appl. Phys. B 80, 211–214 (2005)

DOI: 10.1007/s00340-004-1683-3

Applied Physics B

Lasers and Optics

N. KORTSALIOUDAKIS¹
M. TATARAKIS²
N. VAKAKIS¹
S.D. MOUSTAIZIS¹
M. FRANCO³
B. PRADE³
A. MYSYROWICZ³
N.A. PAPADOGIANNIS⁴
A. COUAIRON⁵
S. TZORTZAKIS⁶✉

Enhanced harmonic conversion efficiency in the self-guided propagation of femtosecond ultraviolet laser pulses in argon

¹ Matter Structure and Laser Physics Laboratory, Department of Sciences, Physics Section, Technical University of Crete, Chania 73100, Greece

² Technological Educational Institute of Crete, Chania, Crete, Greece

³ Laboratoire d'Optique Appliquée, CNRS UMR 7639, ENSTA – Ecole Polytechnique, 91761 Palaiseau, France

⁴ Technological Educational Institute of Crete, Rethimno, Crete, Greece

⁵ Centre de Physique Théorique, Ecole Polytechnique, CNRS UMR 7644, 91128 Palaiseau, France

⁶ Laboratoire d'Utilisation des Lasers Intenses, Ecole Polytechnique, CNRS UMR 7605, 91128 Palaiseau, France

Received: 20 September 2004

Published online: 10 November 2004 • © Springer-Verlag 2004

ABSTRACT Harmonic generation during the self-guided propagation of femtosecond ultraviolet (UV) laser pulses (248-nm, 450-fs) in argon is investigated. The third (82.7-nm) and fifth (49.6-nm) harmonics are generated in the UV filament. The energy-conversion efficiencies for the harmonics are found to be at least two orders of magnitude higher than those reported in the literature for similar gas pressures. The enhancement is attributed to the quasi-phase matching of the harmonics due to the self-guiding of the driving pulse.

PACS 42.25.Bs; 42.65.Jx; 42.65.Re; 42.65.Ky

1 Introduction

Nonlinear propagation of femtosecond laser pulses in gases and associated effects have been intensively investigated during the last decade. Phenomena such as self-focusing, self-phase modulation, filamentation and conical emission have been studied under various conditions [1–5]. One of the most interesting nonlinear phenomena is the generation of secondary coherent radiation sources in the VUV (vacuum ultraviolet) and XUV spectral regions. Such secondary sources find interesting applications, e.g. in XUV interferometry [6] or in the study of molecular dynamics and XUV spectroscopy [7]. The efficient generation of such sources is directly connected to the phase-matching control between the involved light waves. For a recent review on phase-matching control in gases see e.g. [8] and references therein. Lately, approaches using self-guided femtosecond pulses for phase-matching control of harmonic generation have been explored [9–11].

More recently, Aközbek et al. [12] demonstrated, both experimentally and theoretically, self-phase locking between the fundamental and the third (266.7 nm) harmonic in an IR femtosecond filament propagating in air at atmospheric pressure. The third-harmonic pulse maintained both its peak intensity

and energy over distances much longer than the characteristic phase-mismatch length. They showed that this is due to a nonlinear phase-locking mechanism between the two pulses in the filament and is independent of the initial material wave-vector mismatch. We will come back to this point with more details later on. For clarity reasons, we notice that the term phase locking (used in [12]) stands for a constant phase difference while, in the case of absolute phase matching, this difference is equal to zero.

In this paper, we report the first demonstration of (quasi-) self-phase matching for the third and the fifth harmonics produced by a UV femtosecond laser filament in argon. Experiments were performed for different gas pressures, between 50 and 1000 mbar. Important conversion efficiencies of the produced harmonics are shown. Numerical simulations reveal the crucial role of the nonlinear propagation in the process.

2 Experimental setup

A schematic diagram of the experiment is shown in Fig. 1. A femtosecond excimer (KrF) oscillator–amplifier system in conjunction with a dye laser [13] is used. It produces linearly polarized pulses at 248 nm with a duration of 450 fs and an energy up to 10 mJ at a repetition rate of 5 Hz. The laser system consists of a double-chamber Lambda-Physik excimer laser and an ultra-short dye-laser system. The XeCl excimer laser oscillator beam pumps a series of dye lasers to produce a sub-picosecond green (496-nm) laser pulse. These pulses are frequency doubled in a nonlinear BBO crystal and amplified twice in the KrF cavity of the excimer laser. Laser diagnostics were performed on-line with a 1-m Littrow-type spectrograph and a multiple-shot autocorrelator at 248 nm. The amplified spontaneous emission (ASE) in the laser output was 10^{-6} :1. The final laser beam had a rectangular profile of 26 mm × 8 mm and a full divergence angle of 0.15 mrad. The energy distribution was flat along the largest dimension and roughly Gaussian along the smallest one.

The laser beam was slightly focused into a 2.5-m-long tube containing the argon gas with a flat–convex lens ($f = 9.4$ m) located 6.3 m from the entrance window of the tube (Fig. 1). Argon was chosen as the best-suited nonlin-

✉ Fax: +33-169333009, E-mail: stzortz@greco2.polytechnique.fr

A series of harmonic energy measurements have been performed as a function of argon pressure. Results for the third and the fifth harmonics are shown in Fig. 4a and b, respectively. The error bar on the experimental data is estimated to be around 15%, which is mainly due to fluctuations of the laser energy. A sinusoidal-like response is found with half-period of $\Delta P_3 = 0.085$ atm and $\Delta P_5 = 0.095$ atm for the third and the fifth harmonics, respectively. This sinusoidal-form response is well known under the name of Maker fringes [17] and is due to the group-velocity dispersion that limits the constructive superposition of the produced harmonics. In the following it is shown that the observed dispersion is much smaller than expected and actually results from the self-guiding of the driving laser pulse.

As is well known, the intensity of the harmonic depends on the phase matching between the pump and the harmonic waves. Three major effects contribute to the dephasing between the fundamental and the harmonics [18], (a) ionization, (b) the Gouy phase shift on focusing and (c) the phase change due to atomic group velocity dispersion. For our experiment the dephasing due to ionization is negligible, because of the relatively low electron density, which has been measured previously [1, 2] and calculated by numerical simulations in our present experimental conditions to be less than 10^{17} cm⁻³. Therefore, the total phase mismatch Δk for the q th-harmonic generation mainly depends on the atomic dispersion and on the Gouy phase shift and can be expressed as [19]

$$\Delta k = \Delta k_{\text{disp}} + \Delta k_{\text{geom}},$$

where (a) $\Delta k_{\text{disp}} = k_q - qk_1$ is the dispersive part, with $k_1 = n_1\omega_1/c$ (n_1 the refractive index of the fundamental, ω_1 the frequency of the fundamental and c the speed of light in vac-

uum) and $k_q = n_q\omega_q/c$ (n_q the refractive index of the q th harmonic and ω_q the frequency of the q th harmonic) and (b) $\Delta k_{\text{geom}} = (1 - q) \tan^{-1}(z/b)$, where z denotes the direction of propagation and b is the confocal parameter, which is given by $b = 2\pi r_0^2 n/\lambda_0$ (where r_0 is the radius of the beam at focus, n is the refractive index of the fundamental and λ_0 is the fundamental wavelength). In our calculations, the values of Δk_{geom} as a function of pressure were found to be three orders of magnitude smaller than Δk_{disp} ; thus Δk_{geom} can also be neglected in the calculations and thus one can simply admit $\Delta k \approx \Delta k_{\text{disp}}$. To calculate this dispersion one needs to know the index of refraction that is calculated using a three-pole Sellmeier equation:

$$\frac{3n_i^2 - 1}{2n_i^2 + 2} = \frac{C_1}{\lambda_1^{-2} - \lambda_i^{-2}} + \frac{C_2}{\lambda_2^{-2} - \lambda_i^{-2}} + \frac{C_3}{\lambda_3^{-2} - \lambda_i^{-2}}, \quad (1)$$

where n_i is the index of refraction at the wavelength λ_i at one atmosphere. In the calculation, for argon, three resonances are included at $\lambda_1 = 106$ nm, $\lambda_2 = 104.8$ nm and $\lambda_3 = 60.9$ nm. The values of the constants are $C_1 = C_2 = 25.2528 \times 10^4$ cm⁻² and $C_3 = 595.379 \times 10^4$ cm⁻².

Now, let us retrieve the relation of the third-harmonic intensity as a function of gas pressure as in the experimental procedure. The third-harmonic intensity is given by

$$I_3(z) = \frac{\omega_3^2}{n_3 n_1^2 c^4 \epsilon_0^2} |\chi^{(3)}|^2 I_1^3 \frac{\sin^2(\Delta k z/2)}{(\Delta k/2)^2}, \quad (2)$$

where $I_1(r, t) = I_{10} e^{-r^2/r_0^2} e^{-t^2/\tau_0^2}$ is the input intensity for a Gaussian laser pulse, $\chi^{(3)}$ is the third-order susceptibility, Δk is the phase mismatch and z is the interaction length.

Relation (2) can be expressed as a function of pressure by replacing $\Delta k = \Delta k_0 P$ and $\chi^{(3)} = \chi_0^{(3)} P$, where $P = P_i/P_0$ with P_i the given pressure (in mbar) and $P_0 = 1000$ mbar. Then one has

$$I_3(z) \propto |\chi_0^{(3)}|^2 P^2 \frac{\sin^2(\Delta k_0 P z/2)}{(\Delta k_0 P/2)^2}. \quad (3)$$

Relation (3) goes through minima and maxima whose amplitude does not depend on the gas pressure. The pressure difference between a minimum and a maximum is then given by

$$\Delta P = \frac{\pi}{\Delta k_0 z} = \frac{L_{d3}}{z},$$

where $L_{d3} = \pi/\Delta k_0$ is the phase-mismatch length. Using the values for the dispersion of argon calculated by the Sellmeier equation (1) one has $L_{d3} = 0.5$ mm and $L_{d5} = 0.032$ mm. The last parameter left in the above expression is the interaction length. In our experiment the interaction length coincides with the filament length, which was at least 1 m. Nevertheless, in the case of a pulsed laser source (like fs pulses) an effective interaction length has to be defined, which is limited by the coherence length, L_{coh} , of the source ($L_{\text{coh}} > z > L_d$). If $\Delta\lambda$ is the spectral width of the harmonic, the coherence length L_{coh}

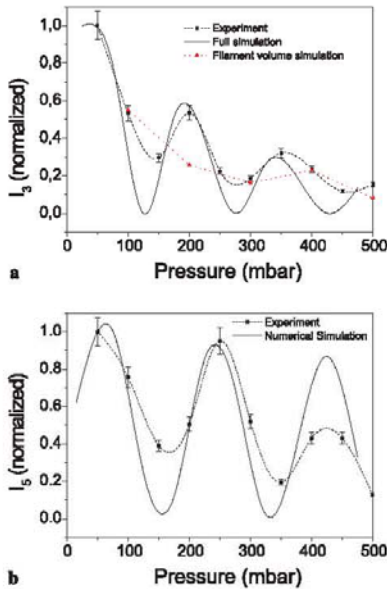


FIGURE 4 The third (a) and fifth (b) harmonic intensities as a function of pressure (see text)

is defined as

$$\frac{2\pi}{\lambda} \Delta n L_{\text{coh}} = \frac{2\pi}{\lambda + \Delta\lambda} \Delta n L_{\text{coh}} + \frac{\pi}{2},$$

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \frac{L_d}{2L_{\text{coh}}}.$$

In our case $\Delta\lambda = 1$ nm and $L_{\text{coh}3} = 62$ mm; $L_{\text{coh}5} = 2$ mm. If we assume that these values limit the interaction length, we obtain a system of Maker fringes with half-period $\Delta P_3 = 0.008$ atm and $\Delta P_5 = 0.015$ atm, while experimentally we have $\Delta P_3 = 0.085$ atm and $\Delta P_5 = 0.095$ atm. There is a factor 10 in the estimated and observed periods, in the sense that the measured mismatch is smaller.

These results suggest (partial) phase-matching conditions in our experiment. Indeed, if the phase mismatch is taken 10-times smaller the experimental results are reproduced with high accuracy, as represented by the solid lines in Fig. 4a and b. This is the first experimental demonstration of (partial) phase matching in harmonic generation using an ultraviolet self-guided driving pulse (filament).

As mentioned in the introduction the same phenomenon has been previously observed in infrared laser pulse filamentation by Aközbek et al. [12]. In order to illustrate the key physical elements that lead to this effect, let us examine the amplitude variation of the laser electric field in the presence of the third harmonic. This can be expressed in a simplified form as

$$\frac{1}{2} \frac{\partial A_\omega^2}{\partial z} = -\frac{1}{4} \nabla_\perp^2 (A_\omega^2 \nabla_\perp^2 \phi_\omega)$$

$$+ \frac{1}{2} I_0 n_2 w_0^2 k_\omega^2 A_\omega^3 A_{3\omega} \sin(3\phi_\omega - \phi_{3\omega}),$$

where A_ω , $A_{3\omega}(\phi_\omega, \phi_{3\omega})$ are the amplitudes (slowly varying phases) of the fundamental and the third harmonic, respectively, n_2 is the nonlinear index of refraction and w_0 is the beam waist. Now, it has been proven both experimentally and numerically that the intensity in the filamented pulse is clamped due to the dynamic-equilibrium between Kerr self-focusing and plasma defocusing [10, 20], that is: $\partial A_\omega^2 / \partial z \approx 0$. Also, the wavefront in the filament is nearly flat [10], that is: $\nabla_\perp^2 \phi_\omega \approx 0$. Thus, in order to preserve the intensity clamping in the presence of the third harmonic one must have $\sin(3\phi_\omega - \phi_{3\omega}) \approx 0$. This means that the phase difference between the fundamental and the harmonic is maintained. The phase difference is also independent of the medium, as experiments ([12] and the present work) in both air and argon prove. For a more detailed analysis the reader is invited to refer to [12].

A last point that deserves our attention is the observed attenuation in the amplitude of the oscillations in Fig. 4a and b as a function of the gas pressure. This is an original result which can easily be explained by the variation of the filament diameter, and in consequence the filament volume, with gas pressure. This point is crucial as for a given interaction length, the effective volume in which harmonics are produced changes. Our propagation code shows a reduction of the filament diameter as the pressure increases and reproduces well

the observed harmonic amplitude attenuation as shown by the triangle-dotted line in Fig. 4a.

4 Conclusion

In conclusion, we have provided the first experimental demonstration of (partial) phase matching in the generation of the third (82.7-nm) and fifth (49.6-nm) harmonics produced by an ultraviolet self-guided femtosecond laser pulse (248 nm, 450 fs) in argon. Numerical simulations of the filamentation itself and the resulting harmonic generation reproduce well the experiments. Intensity clamping in the filamented laser pulse is the key element for the observed (partial) phase matching and the consequent increased conversion efficiency in the harmonic generation. The efficient generation of XUV radiation, shown here, can find various applications, for example, in XUV spectroscopy and interferometry.

ACKNOWLEDGEMENTS The authors would like to acknowledge the assistance of A. Eglezis and D. Anglos in the experimental procedure. This study was made possible through the access to the Ultraviolet Laser Facility at FORTH – IESL under the ‘Improving Human Potential – Access to Research Infrastructures’ Program (Contract No. HPRI-CT 1999-00074) of the EU. Also, M.T. greatly acknowledges the support of the EU for the Marie Curie individual project FU05-CT-2002-50501.

REFERENCES

- 1 S. Tzortzakis, B. Lamouroux, A. Chiron, S.D. Moustazis, D. Anglos, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz: Opt. Commun. **197**, 131 (2001)
- 2 S. Tzortzakis, B. Lamouroux, A. Chiron, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, S.D. Moustazis: Opt. Lett. **25**, 1270 (2000)
- 3 J. Schwarz, P. Rambo, J.-C. Diels, M. Kolesik, E.M. Wright, J.V. Moloney: Opt. Commun. **180**, 383 (2000)
- 4 E.T.J. Nibbering, P.F. Curley, G. Grillon, B.S. Prade, M.A. Franco, F. Salin, A. Mysyrowicz: Opt. Lett. **21**, 62 (1996)
- 5 P. Simon, J. Bekesi, C. Dolle, J.-H. Klein-Wiele, G. Marowsky, S. Szatmari, B. Wellegehausen: Appl. Phys. B **74**, 189 (2002)
- 6 D. Descamps, C. Lynga, J. Norin, A.L. Huiller, C.-G. Wahlstrom: Opt. Lett. **25**, 135 (2000)
- 7 N.A. Papadogiannis, C. Kalpouzos, E. Goulielmakis, G. Nersisyan, D. Charalambidis, F. Aue, F. Weihe, P. Balcou: Appl. Phys. B **73**, 687 (2001)
- 8 P. Balcou, R. Haroutunian, S. Serban, G. Grillon, A. Rousse, G. Mullot, J.-P. Chambaret, G. Rey, A. Antonetti, D. Hulin, L. Roos, D. Descamps, M.B. Gaarde, A. L’Huiller, E. Constant, E. Mevel, D. Von der Linde, A. Orisch, A. Tarasevitch, U. Teubner, D. Klopfel, W. Theobald: Appl. Phys. B **74**, 509 (2002)
- 9 S. Backus, J. Peatross, Z. Zeek, A. Rundquist, G. Taft, M.M. Mumane, H.C. Kapteyn: Opt. Lett. **21**, 665 (1996)
- 10 H.R. Lange, A. Chiron, J.-F. Ripoché, A. Mysyrowicz, P. Breger, P. Agostini: Phys. Rev. Lett. **81**, 1611 (1998)
- 11 Y. Tamaki, J. Itatani, Y. Nagata, M. Obara, K. Midorikawa: Phys. Rev. Lett. **82**, 1422 (1999)
- 12 N. Aközbek, A. Iwasaki, A. Becker, M. Scalora, S.L. Chin, C.M. Bowden: Phys. Rev. Lett. **89**, 143901 (2002)
- 13 S. Szatmari, F.P. Schafer: Appl. Phys. B **46**, 305 (1989)
- 14 B. Wellegehausen, K. Mossavi, A. Egbert, B.N. Chichkov, H. Welling: Appl. Phys. B **63**, 451 (1996)
- 15 A. Talebpour, S. Petit, S.L. Chin: Opt. Commun. **171**, 285 (1999)
- 16 A. Couairon, L. Bergé: Phys. Rev. Lett. **88**, 135003 (2002)
- 17 P.D. Maker, R.W. Terhune, M. Nisenoff, C.M. Savage: Phys. Rev. Lett. **8**, 21 (1962)
- 18 T. Brabec, F. Krausz: Rev. Mod. Phys. **72**, 545 (2000)
- 19 C. Dolle, C. Reinhardt, P. Simon, B. Wellegehausen: Appl. Phys. B **75**, 629 (2002)
- 20 A. Becker, N. Aközbek, K. Vijayalakshmi, E. Oral, C.M. Bowden, S.L. Chin: Appl. Phys. B **73**, 287 (2001)

Βιβλιογραφία

- [1] N.Kortsalioudakis, M.Tatarakis, N.Vakakis, S.D. Moustazis, M.Franco, B.Prade, A.Mysyrowicz, N.A. Papadogiannis, A. Couairon, S. Tzortzakis, “*Enhanced harmonic conversion efficiency in the self-guided propagation of femtosecond ultraviolet laser pulses in argon*”, Appl. Phys. B,**8**, pp.211-214, (2005)
- [2] C. Bula et. al., Phys.Rev.Lett.,**76**, pp.3116, (1996)
- [3] M.Zeph, D.G.Tsakiris, G.Pretzler, I.Watts, D.M.Chambers, P.A. Norreys, U.Andiel, A.E.Dangor, K.Eidman, C.Gahn, A.Machacek, J.S. Wark, K.Witte, Phys. Rev. E,**58**, pp.R5253, (1998)
- [4] E.L. Clark, K.Krushelnick, M. Zepf, F.N.Beg, M.Tatarakis, A.Machacek, M.I.Santala, I.Watts, P.A.Norreys, A.E. Dangor, Phys.Rev.Lett.,**85**, pp.1654, (2000)
- [5] G. Pretzler, A.Saemann, A.Pukhov, D.Rudolph, T.Schatz, U.Schramm, P.Thiriolf, D.Habs, K.Eidmann, D.G. Tsakiris, J.Meyer-ler-Vehn, K.J.Witte, Phys. Rev. E,**58**, pp.1165, (1998)
- [6] T.E. Cowan, A.W. Hunt, T.W. Philips, S.C. Wilks, M.D. Perry, C.Brown, W.Fountain, S.Hatchett, J.Johnson, M.H.Key, T.Parnel, D.M.Pennington, R.A. Snavely, Y.Takahashi, Phys.Rev.Lett.,**84**, pp.903, (2000)
- [7] M.Tabak, J.Hammer, M.E.Glinsky, W.L.Kruer, S.C.Wilks, “*Ignition and high gain with ultrapowerful lasers*”, Phys. Plasmas,**1**, pp.1626-1634, (1994)
- [8] A.Pukhov, J.Meyer-ter-Vehn, “*Laser Hole Boring into Overdense Plasma and Relativistic Electron Currents for Fast Ignition of ICF Targets*”, Phys.Rev.Lett.,**79**, pp.2686-2689, (1997)
- [9] S.Svanberg, Adv. Quantum Chem.,**3**, pp.209, (1998)
- [10] N.A.Papadogiannis, C.Kalpouzos, E.Goulielmakis, G.Nersisyan, D.Charalambidis, F.Auge, F.Weihe, P.Balcou, “*Kilohertz extreme-ultraviolet light-source based on*

femtosecond high order harmonic generation from noble atomic gases”,Appl. Phys. B,**73**, pp.687, (2001)

[11] X.F. Li, A. L'Huillier, M. Ferray, L.A. Lompre, G. Mainfray, “*Multiple-harmonic generation in rare gases at high laser intensity*”,Phys. Rev. A,**39**, pp.5751-5761, (1989)

[12] A. L'Huillier, P. Balcou, “*High order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser*”,Phys.Rev.Lett.,**7**, pp.774, (1993)

[13] P.Gallant, Z.Jiang, C.Y.Chien, P.Forget, F.Dorchies, J.C. Kieffer, H.Pepin, O.Peyrusse, G.Mourou, A.Krol,J.Quant.Spectrosc. Radiat.Transfer,**65**, pp.243, (2000)

[14] P.Rairoux, H.Schillinger, S.Niedermeier, M.Rodriguez, F.Ronneberger, R.Sauerbrey, B.Stein, D.Waite, C.Wedekind, H.Wille, L.Woste, C.Ziener, “*Remote sensing of the atmosphere using ultrashort laser pulses*”,Appl. Phys. B,**71**, pp.573-580, (2000)

[15] J.Kasparian,R.Sauerbrey, D.Mondelain, S.Niedermeier, J.Yu, J.P.Wolf, Y.B.Andre, M.Franco, B.Prade, S.Tzortzakis, M.Rodriguez, H.Wille, L.Woste, “*Infrared extension of the supercontinuum generated by femtosecond terawatt laser pulses propagating in the atmosphere*”,Opt. Lett.,**25**, pp.1397-1399, (2000)

[16] D.Strickland, G.Mourou, “*Compression of amplified chirped optical pulses*”,Opt. Comm.,**56**, pp.219-222, (1985)

[17] D.Umstadter,Phys. Plasmas,**8**, pp.1774, (2001)

[18] M. Tatarakis, I. Watts, F. N. Beg, E. L. Clark, A. E. Dangor, A. Gopal, M. G. Haines, P. A. Norreys, U. Wagner, M.-S. Wei, M. Zepf,K. Krushelnick, “*Laser technology: Measuring huge magnetic fields*”,Nature,**415**, pp.280, (2002)

[19] Y.R. Shen, “*The Principles of Nonlinear Optics*”,John Wiley & Sons, (1984)

[20] S.Tzortzakis, “*Femtosecond laser pulse filamentation in nonlinear transparent media*”,PhD Thesis, (2001)

[21] S.Szatmari, F.P.Schafer, “*Simplified laser system for the generation of 60 fs pulses at 248 nm*”,Opt. Comm.,**68**, pp.196-202, (1988)

- [22] D.M.Chambers, “*Investigations of the brightness of high order harmonics generated by intense laser interactions with solid and gaseous targets*”, PhD Thesis, (1998)
- [23] S.Tzortzakis, N. Kortsalioudakis, M.Tatarakis, N.Vakakis, S.D.Moustazis, M.Franco, B.Prade, A.Mysyrowicz, N.A.Papadogiannis, A.Couaïron, “*Self-guided propagation of fs UV laser pulses and efficient harmonic generation in low pressure Argon*”, CLEO/QELS, San Francisco California USA, (2004)
- [24] P.Gibbon, E.Forster, “*Short-pulse laser-plasma interactions*”, Plasm.Phys. and Contr. Fus., **38**, pp.769-793, (1996)
- [25] T.Brabec, F.Krausz, “*Intense few-cycle laser fields: Frontier of nonlinear optics*”, Rev.Mod.Phys., **72**, pp.585-591, (2000)
- [26] D.Umstadter, “*Review of physics and applications of relativistic plasmas driven by ultra-intense lasers*”, Phys. Plasmas, **8**, pp.1774-1785, (2001)
- [27] S.Backus, C.G.Durfee III, M.M.Murnane, H.C.Kapteyn, “*High power ultrafast lasers*”, Rev. Sci. Instr., **69**, pp.1207-1223, (1998)
- [28] M.Henesian, C.D.Swift, and J.R. Murray, Opt. Lett., **1**, pp.565, (1985)
- [29] Landolt-Bornstein, “*Zahlenwerte und Funktionen*”, Optische Konstanten, Springer Verlag, **2**, (1965)
- [30] <http://www.femtolasers.com>, “*Femtosecond Lasers*”
- [31] S.Kohlweyer, G.D. Tsakiris, C-G.Wahlstrom, C.Tilman, and I.Mercer, Opt. Comm., **117**, pp.431-8, (1995)
- [32] D. Von der Linde, T.Engers, G.Jenke, P.Agostini, G.Grillon, E.Nibbering, A.Mysyrowicz, and A.Antonetti, Phys. Rev. A, **52**, pp.R25-7, (1995)
- [33] G.P. Agrawal, “*Nonlinear Fiber Optics*”, Academic, San Diego, (1995)
- [34] R.W. Boyd, “*Nonlinear Optics*”, Academic, San Diego, (1992)

- [35] P.Sprangle, E.Esarey, and B. Hafizi, Phys.Rev.Lett.,**79**, pp.1046, (1997)
- [36] P.Sprangle, E.Esarey, and B. Hafizi, Phys. Rev. E,**56**, pp.5894, (1997)
- [37] P.Sprangle, J.R. Penano, and B.Hafizi, “*Propagation of intense laser pulses in the atmosphere*”, Phys. Rev. E,**66**, pp.46418, (2002)
- [38] P.Sprangle, E.Esarey, and A.Ting, Phys. Rev. A,**41**, pp.4463, (1990)
- [39] R.F. Fernsler and H.L. Rowland, J.Geophys. Res. [Atmos],**11**, pp.29653, (1996)
- [40] S.P. Splinker, A.W. Ali, and R.D. Taylor, J. Appl. Phys.,**67**, pp.679, (1990)
- [41] H.D. Ladouceur, A.P. Baronavski, D.Lohrmann, P.W. Grounds, and P.G. Girardi, Opt. Comm.,**189**, pp.107, (2001)
- [42] L.V. Keldysh, Sov.Phys.-JETP,**2**, pp.1307, (1964)
- [43] C. Grey-Morgan, Rep.Prog.Phys.,**38**, pp.621, (1975)
- [44] J.Kasparian, R.Sauerbrey, and S.L. Chin, Appl. Phys. B,**71**, pp.877, (2000)
- [45] A.Talebpour, J. Yang, and S.L.Chin, Opt. Comm.,**163**, pp.29, (1999)
- [46] P.Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, and N.K. Rahman, Phys.Rev.Lett.,**42**, pp.1127, (1979)
- [47] F.H.M. Faisal, J. Phys. B,**6**, pp.L89, (1973)
- [48] H.R. Reiss, Phys. Rev. A,**22**, pp.1786, (1980)
- [49] J.Kupersztych, Europhys. Lett.,**4**, pp.23, (1987)
- [50] D.M. Volkov, Z.Phys.,**94**, pp.250, (1935)
- [51] P.B. Corkum, N.H. Burnete, and F. Brunel, Phys.Rev.Lett.,**62**, pp.1259, (1989)

- [52] T. Auguste, P. Monot, L-A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus, Opt. Comm., **89**, pp.145-8, (1992)
- [53] W. Leemans, C.E. Clayton, W.B. Mori, K.A. Marsh, P.K. Kaw, A. Dyson, C. Joshi, and J.M. Wallace, Phys. Rev. A, **46**, pp.1091-105, (1992)
- [54] S.C. Rae, Opt. Comm., **97**, pp.25-33, (1993)
- [55] A.J. Mackinnon, M. Borghesi, A. Iwase, O. Willi, “*Interaction of Intense Laser Pulses with Preformed Density Channels*”, Phys. Rev. Lett., **8**, pp.5349-5352, (1998)
- [56] K. Krushelnick, A. Ting, C.I. Moore, H.R. Burris, E. Esarey, P. Sprangle, M. Baine, “*Plasma channel formation and guiding during high intensity short pulses laser plasma experiments*”, Phys. Rev. Lett., **78**, pp.4047-4050, (1997)
- [57] F. Dorchies, J.R. Marques, B. Cros, G. Matthieussent, C. Courtois, T. Velikoroussov, P. Audebert, J.P. Geindre, S. Rebibo, G. Hamoniaux, F. Amiranoff, “*Monode Guiding of 10^{16} W/cm² Laser Pulses over 100 Rayleigh Lengths in Hollow Capillary Dielectric Tubes*”, Phys. Rev. Lett., **82**, pp.4655-4658, (1999)
- [58] W L Kruer, “*The Physics of Laser Plasma Interactions*”, NY: Addison-Wesley, (1988)
- [59] Z. Najmudin, PhD Thesis, Imperial College UK, (1995)
- [60] C.J. McKinstrie, and R. Bingham, Phys. Fluids B, **4**, pp.2626, (1992)
- [61] A. Brodeur, C.Y. Chien, F.A. Ilkov, S.L. Chin, O.G. Kosareva, and V.P. Kandidov, Opt. Lett., **22**, pp.304, (1997)
- [62] P. Sprangle, and B. Hafizi, Phys. Plasmas, **6**, pp.1683, (1999)
- [63] A.B. Shamardan, “*The numerical treatment of the nonlinear Schrodinger equation*”, Comp. and Math. Appl., **19**, pp.67-73, (1990)

- [64] T.R.Taha, “*Numerical simulation of the nonlinear Schrodinger equation*”,Math. and Comp. in Simulation,**32**, pp.309-312, (1990)
- [65] G.Fibich, B.Ilan, G.Papanicolaou, “*Self-focusing with fourth-order dispersion*”,J. of Appl. Math.,**62**, pp.1437-1462, (2002)
- [66] A. Yariv, “*Optical electronics, Fourth edition*”,Saunders College Publishing: Orlando, (1991)
- [67] P. Balcou, A. L'Huillier, “*Phase-matching effects in strong-field harmonic generation*”,Phys. Rev. A,**47**, pp.1447-1457, (1993)
- [68] A.E. Siegman, “*Lasers*”,University Science Books, (1986)
- [69] D.E. Spence, P.N. Kean, W. Sibbett, “*60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:Sapphire laser*”,Opt. Lett.,**16**, pp.42-44, (1991)
- [70] P.Maine, D.Strickland, P.Bado, M.Pessot, G.Mourou, “*Generation of Ultrahigh Peak Power Pulses by Chirped Pulse Amplification*”,IEEE J. of Quant. Electr.,**24**, pp.398-403, (1988)
- [71] L. Xu, G. Tempea, A. Poppe, M. Lenzner, C. Spielmann, F. Krausz, A. Stingl, K. Ferencz, “*High-power sub-10-fs Ti:sapphire oscillators*”,Appl. Phys. B,**65**, pp.151-159, (1997)
- [72] P.Simon, H.Gerhardt, “*Simple method for temporal study of subpicosecond distributed feedback dye lasers*”,Opt. Comm.,**71**, pp.305-310, (1989)
- [73] S.Szatmari, F.P.Schafer, “*Subpicosecond, Widely Tunable Distributed Feedback Dye Laser*”,Appl. Phys. B,**46**, pp.305-311, (1988)
- [74] S.Szatmari, “*Pulse shortening of 5×10^3 by the combined pulse forming of dye oscillators, saturated amplifiers and gated saturable absorbers*”,Opt. Quant.Electr.,**21**, pp.55-61, (1989)
- [75] S.Szatmari,Appl. Phys. B,**58**, pp.211, (1994)

- [76] A.Braun, G.Korn, X.Liu, D.Du, J.Squier, G.Mourou, *Opt. Lett.*, **2**, pp.73-75, (1995)
- [77] E.T.J.Nibbering, P.F.Curley, G.Grillon, B.S.Prade, M.A.Franco, F.Salin, A.Mysyrowicz, “*Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air*”, *Opt. Lett.*, **21**, pp.62-64, (1996)
- [78] A.Brodeur, C.Y. Chien, F.A. Ilkov, S.L. Chin, O.G. Kosareva, and V.P. Kandidov, *Opt. Lett.*, **22**, pp.304, (1997)
- [79] H.Schillinger, R.Sauerbrey, “*Electrical conductivity of long plasma channels in air generated by self-guided femtosecond laser pulses*”, *Appl. Phys. B*, **68**, pp.753-756, (1999)
- [80] S.Tzortzakis, M.A.Franco, Y.-B.Andre, A.Chiron, B.Lamoureux, B.S. Prade, and A.Mysyrowicz, “*Formation of a conducting channel in air by self-guided femtosecond laser pulses*”, *Phys. Rev. E*, **6**, pp.R3505-R3507, (1999)
- [81] S.Tzortzakis, B.Prade, M.Franco, A.Mysyrowicz, “*Time-evolution of the plasma channel at the trail of a self-guided IR femtosecond laser pulse in air*”, *Opt. Comm.*, **181**, pp.123-127, (2000)
- [82] S.Tzortzakis, B.Lamoureux, A.Chiron, S.D.Moustaizis, D.Anglos, M.Franco, B.Prade, A.Mysyrowicz, “*Femtosecond and picosecond ultraviolet laser filaments in air: experiments and simulations*”, *Opt. Comm.*, **197**, pp.131-143, (2001)
- [83] M.Mlejnek, E.M. Wright, J.V. Moloney, *Opt. Lett.*, **23**, pp.382-384, (1998)
- [84] L.Berge, A.Couairon, *Phys.Rev.Lett.*, **86**, pp.1003-1006, (2000)
- [85] A.A.Zozulya, S.A.Diddams, A.G.Van.Engsten, T.S.Clement, “*Propagation Dynamics of Intense Femtosecond Pulses: Multiple Splittings, Coalescence and Continuum Generation*”, *Phys.Rev.Lett.*, **82**, pp.1430-1433, (1999)
- [86] A.Chiron, B.Lamoureux, R.Lange, J.-F.Ripoche, M.Franco, B.Prade, G.Bonnaud, G.Riazuelo, A.Mysyrowicz, “*Numerical simulations of the nonlinear propagation of femtosecond optical pulses in gases*”, *Eur.Phys. J. D*, **6**, pp.383-396, (1999)
- [87] A.L.Huillier, L.A. Lompre, G.Mainfray, C.Manus, *Phys. Rev. A*, **27**, pp.2503, (1983)

- [88] T.S. Luk, H.Pummer, K.Boyer, M.Shahidi, H.Egger, C.K. Rhodes,Phys.Rev.Lett.,**51**, pp.110, (1983)
- [89] M.D. Perry, O.L. Landen, A.Szoke, E.M. Campell,Phys. Rev. A,**37**, pp.747, (1988)
- [90] W.M. Wood, G. Focht, M.C. Downer,Opt. Lett.,**13**, pp.984, (1988)
- [91] M.C. Downer, W.M. Wood, J.I. Trisnadi,Phys.Rev.Lett.,**65**, pp.2832, (1990)
- [92] W.M. Wood, C.W. Siders, M.C. Downer,Phys.Rev.Lett.,**67**, pp.3523, (1991)
- [93] S.C. Rae, K. Burnett,Phys. Rev. A,**46**, pp.1084, (1992)
- [94] S.P. LeBlanc, R.Sauerbrey, S.C. Rae, K.Burnett,J.Opt.Soc.Am. B,**1**, pp.1801, (1993)
- [95] B. La Fontaine, et.al.,Phys. Plasmas,**6**, pp.1615-1621, (1999)
- [96] R. Rankin, C.E. Capjack, N.H. Burnett, P.B. Corkum,Opt. Lett.,**16**, pp.835, (1988)
- [97] S.C. Rae,Opt. Comm.,**97**, pp.25-33, (1993)
- [98] C.G. Durfee III, H.M. Milchberg,Phys.Rev.Lett.,**71**, pp.2409, (1993)
- [99] P.L.Kelley, “*Self-focusing of optical beams*”,Phys.Rev.Lett.,**15**, pp.1005-1008, (1965)
- [100] V.E. Zakharov, V.V. Sobolev, V.C. Synakh,Sov.Phys.-JETP,**33**, pp.77, (1971)
- [101] J.H.Marburger, “*Self-focusing: Theory*”,Prog.Quant.Electr.,**4**, pp.35-110, (1975)
- [102] N. Bloembergen,Opt. Comm.,**8**, pp.285, (1973)
- [103] P.B. Corkum, C.Rolland, T.Srinivasan-Rao,Phys.Rev.Lett.,**57**, pp.2268, (1986)
- [104] V. Francois, F.A. Ilkov, S.L. Chin,J.Phys. B,**25**, pp.2709, (1992)

- [105] F.A. Ilkov, L.S. Ilkova, S.L. Chin, Opt. Lett., **18**, pp.681, (1993)
- [106] A.Talebpour, S.Petit, S.L.Chin, “*Re-focusing during the propagation of a focused femtosecond Ti:Sapphire laser pulses in air*”, Opt. Comm., **171**, pp.285-290, (1999)
- [107] B. Wellegehausen, K. Mossavi, A. Egbert, B. N. Chichkov, H. Welling, “*Short-pulse high-intensity excimer lasers – A powerful tool for the generation of coherent VUV and XUV radiation*”, Appl. Phys. B, **63**, pp.451-461, (1996)
- [108] P.Simon, J.Bekesi, C.Dolle, J.-H.Klein-Wiele, G.Marowsky, S.Szatmari, B.Wellegehausen, Appl. Phys. B, **74**, pp.S189, (2002)
- [109] D. Descamps, C.Lynga, J.Norin, A.L.'Huiller, C.-G.Wahlstrom, Opt. Lett., **25**, pp.135, (2000)
- [110] H.R.Lange, A.Chiron, J.-F.Ripoche, A.Mysyrowicz, P.Breger, P.Agostini, “*High-Order Harmonic Generation and Quasiphase Matching in Xenon Using Self-Guided Femtosecond Pulses*”, Phys.Rev.Lett., **81**, pp.1611-1613, (1998)
- [111] N.Akozbeq, A.Iwasaki, A.Becker, M.Scalora, S.L.Chin, C.M.Bowden, “*Third-Harmonic Generation and Self-Channelling in Air Using High-Power Femtosecond Laser Pulses*”, Phys.Rev.Lett., **89**, pp.143901-1 143901-4, (2002)
- [112] P.Balcou, R.Haroutunian, S.Serban, G.Grillon, A.Rousse, G.Mullot, J.-P. Chambaret, G.Rey, A.Antonetti, D.Hulin, L.Roos, D.Descamps, M.B.Gaarde, A.L.'Huiller, E.Constant, E.Mevel, D.Von der Linde, A.Orisch, A.Tarasevitch, U.Teubner, D.Klopfel, W.Theobald, Appl. Phys. B, **74**, pp.509, (2002)
- [113] A. L'Huillier, K.J. Schafer, K.C. Kulander, “*Theoretical aspects of intense field harmonic generation*”, J. Phys. B, **24**, pp.3315-3341, (1991)
- [114] J.L. Krause, K.J. Schafer, K.C. Kulander, “*High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime*”, Phys.Rev.Lett., **68**, pp.3535, (1992)
- [115] P.B. Corkum, “*Plasma perspective on strong-field multiphoton ionisation*”, Phys.Rev.Lett., **71**, pp.1994-1997, (1993)

- [116] M. Lewenstein, P. Balcou, M.Y. Ivanov, A. L'Huillier, P.B. Corkum, "*Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields*", Phys. Rev. A, **49**, pp.2117-2132, (1994)
- [117] A. Sanpera, P. Jonson, J.B. Watson, K. Burnett, "*Harmonic generation beyond the saturation intensity in Helium*", Phys. Rev. A, **51**, pp.3148-3153, (1995)
- [118] B.W. Shore, P.L. Knight, "*High optical harmonics excess-photon ionisation*", J. Phys. B, **2**, pp.413, (1987)
- [119] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T.S. Luk, I.A. McIntyre, K. Boyer, C.K. Rhodes, "*Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases*", J. Opt. Soc. Am., **4**, pp.595, (1987)
- [120] C.R. Vidal, "*4-wave frequency mixing in gases in tunable lasers, Topics in applied physics*", Springer: Heidelberg, (1987)
- [121] M.V. Ammosov, N.B. Delone, V.P. Krainov, "*Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field*", Sov. Phys.- JETP, **64**, pp.1191-1194, (1986)
- [122] B. Wellegehausen, K. Mossavi, A. Egbert, B. N. Chichkov, H. Welling, "*Short-pulse high-intensity excimer lasers – A powerful tool for the*", Appl. Phys. B, **63**, pp.451-461, (1996)
- [123] K. Kondo, T. Tamida, Y. Nabekawa, S. Watanabe, "*High-order harmonic generation and ionization using ultrashort KrF and Ti:sapphire lasers*", Phys. Rev. A, **49**, pp.3881-3889, (1994)
- [124] S.G. Preston, A. Sanpera, M. Zepf, W.J. Blyth, C.G. Smith, K. Burnett, M.H. Key, J.S. Wark, D. Neely, A.A. Offenberger, "*High-order harmonics of 248.6 nm KrF laser from Helium and Neon ions*", Phys. Rev. A, **53**, pp.R31-R34, (1996)
- [125] J. Zhou, J. Peatross, M.M. Murnane, H.C. Kapteyn, "*Enhanced high-harmonic generation using 25 femtosecond laser pulses*", Phys. Rev. Lett., **76**, pp.752-755, (1996)

- [126] Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, M.M. Murnane, H.C. Kapteyn, “*Generation of coherent soft x-rays at 2.7 nm using high harmonics*”,*Phys.Rev.Lett.*,**79**, pp.2967-2970, (1997)

- [127] M. Schnurer, C. Spielmann, P. Wobrauschek, C. Streli, N.H. Burnett, C. Kan, K. Ferencz, R. Koppitsch, Z. Cheng, T. Brabec, F. Krausz, “*Coherent 0.5-KeV X-ray emission from helium driven by a sub-10-fs laser*”,*Phys.Rev.Lett.*,**8**, pp.3236-3239, (1998)

- [128] I.P. Christov, M.M. Murnane, H.C. Kapteyn, “*Generation and propagation of attosecond x-ray pulses in gaseous media*”,*Phys. Rev. A*,**57**, pp.R2285-R2288, (1988)

- [129] M.Schnurer, Z.Cheng, M.Hentschel, G.Tempea, P.Kalman, T.Brabec, F.Krausz, “*Absorption-Limited Generation of Coherent Ultrashort Soft-X-Rays Pulses*”,*Phys.Rev.Lett.*,**83**, pp.722-725, (1999)

- [130] C.W.Siders, N.C.Turner III, M.C.Downer, A.Babine, A.Stepanov, A.M. Sergeev, “*Blue-shifted third-harmonic generation and correlated self-guiding during ultrafast barrier suppression ionization of subatmospheric density noble gases*”,*J.Opt.Soc.Am.B*,**13**, pp.330-335, (1996)

- [131] S.P. Le Blanc, Z. Qi, R. Sauerbrey,*Appl. Phys. B*,**61**, pp.439, (1995)

- [132] S.P. Le Blanc, Z. Qi, R. Sauerbrey,*Opt. Lett.*,**2**, pp.312, (1995)

- [133] P.D. Maker, R.W. Terhune, M.Nisenoff, C.M. Savage,*Phys.Rev.Lett.*,**8**, pp.21, (1962)

- [134] H.J.Lehmeier, W.Leupacher, A.Penzkofer, “*Nonresonant Third Order Hyperpolarizability of Rare Gases and N2 Determined by Third Harmonic Generation*”,*Opt. Comm.*,**56**, pp.67-72, (1985)

- [135] H. Wille, M. Rodriguez, J. Kasparian, D. Mondelain, J. Yu, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, J.P. Wolf, and L.Woste, “*Teramobile: A mobile femtosecond-terawatt laser and detection system*”,*Eur. Phys. J. AP*,**2**, pp.183–190, (2002)

- [136] B. Rappengluck, C. Forster, G. Jakobi, M. Pesch, “*Unusually high levels of PAN and ozone over Berlin, Germany, during nighttime on August 7, 1998*”, *Atm. Env.*, **38**, pp.6125–6134, (2004)
- [137] E.Duriex, L.Fiorani, B.Calpini, M.Flamm, L.Jaquet and H.van den Bergh, “*Tropospheric ozone measurements over the Great Athens area during the MEDCAPHOT-TRACE campaign with a new shot-per-shot dial instrument: Experimental system and results*”, *Atm. Env.*, **32**, pp.2141-2150, (1998)
- [138] B. Lazzarotto, V. Simeonov, P. Quaglia, G. Larcheveque, H. van den Bergh, and B. Calpini, “*Retrieval of Ozone and Water Vapor in the Lower Troposphere by Raman DIAL*”, *Proceedings of the 19th ILRC, Annapolis USA*, (1998)
- [139] B.Lazzarotto, M.Frioud, G.Que, V.Mitev, P.Quaglia, V.Simeonov, A.Thompson, H.van den Bergh, B.Calpini, “*Ozone and Water-Vapor Measurements by Raman Lidar in the Planetary Boundary Layer: Error Sources and Field Measurements*”, *Appl. Opt.*, **4**, pp.2985-2997, (2001)
- [140] V.A. Kovalev, M.P. Bristow, and J.L. McElroy, “*Nonlinear-approximation technique for determining vertical ozone-concentration profiles with a differential-absorption lidar*”, *Appl. Opt.*, **35**, pp.4803-4811, (1996)
- [141] R. Ono and T. Oda, “*Dynamics of ozone and OH radicals generated by pulsed corona discharge in humid-air flow reactor measured by laser spectroscopy*”, *J. Appl. Phys.*, **93**, pp.5876-5882, (2003)
- [142] C.Eipel, P.Jeroschewski, I.Steinke, “*Determination of ozone in ambient air with a chemiluminescence reagent film detector*”, *Anal. Chim. Acta.*, **491**, pp.145–153, (2003)
- [143] O. Duclaux, E. Frejafon, H. Schmidt, A. Thomasson, D. Mondelain, J. Yu, C. Guillaumond, C. Puel, F. Savoie, P. Ritter, J.P. Boch, J.P. Wolf, “*3D-air quality model evaluation using the Lidar technique*”, *Atm. Env.*, **36**, pp.5081–5095, (2002)
- [144] I.B. Gornushkin, C.L. Stevenson, G.Galbacs, B.W.Smith, J.D.Winefordner, “*Measurement and modeling of ozone and nitrogen oxides produced by laser breakdown in oxygen-nitrogen atmospheres*”, *Appl. Spectrosc.*, **57**, pp.1442-1450, (2003)

- [145] K.Yoshino, J.R.Esmond, D.E.Freedman, and W.H.Parkinson, J.Geophys.Res. [Oceans],**98**, pp.5205, (1993)
- [146] F.F. Chen, *"Introduction to Plasma Physics"*,Plenum Press, (1974)
- [147] M. Tatarakis,PhD Thesis, Imperial College UK, (1997)
- [148] P.G. Drazin & R.S. Johnson, *"Solitons: an introduction"*,Cambridge University Press, (1984)
- [149] V.E. Zakharov, A.B. Shabat, *"Exact theory of two-dimensional self-focusing and one-dimensional self-modulation of waves in nonlinear media"*,Sov.Phys.- JETP,**34**, pp.62-9, (1972)
- [150] P.D. Lax, *"Integrals of nonlinear equations of evolution and solitary waves"*,Comm. Pure Appl. Math.,**21**, pp.467-490, (1968)
- [151] M.J. Ablowitz & H.Segur, *"Solitons and the inverse scattering transform"*,SIAM, (1981)
- [152] R. Tohmon, H.Mizuno, Y.Ohki, K.Sasagane, K.Nagasawa, Y. Hama, Phys. Rev.B., **39**, 1337 (1989)
- [153] P.Audebert et.al., Phys.Rev.Lett. **73**, 1990 (1994)
- [154] G. Méchain, A. Couairon , Y.-B. André, C. D. Amico, M. Franco, B. Prade, S. Tzortzakis, A. Mysyrowicz, and R. Sauerbrey, *"Long-range self-channeling of infrared laser pulses in air: a new propagation regime without ionization"*, Appl. Phys. B **79**, 379-382 (2004)
- [155] D. Charalambidis, N.A. Papadogiannis, E. Goulielmakis, G. Nersysian, G. D. Tsakiris and K. Witte *"A transmission grating interferometer for the temporal characterization of harmonics"*, J. of Mod. Optics, **50**, 387 (2003)

