

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ  
имени М.В. ЛОМОНОСОВА

*На правах рукописи*

**Закускин Александр Сергеевич**

**Лабораторное моделирование и диагностика газоплазменных  
сред, представляющих астрофизический интерес**

1.4.4. Физическая химия

АВТОРЕФЕРАТ

диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Москва – 2025

Диссертация подготовлена в лаборатории лазерной диагностики кафедры лазерной химии химического факультета МГУ имени М.В.Ломоносова

- Научный руководитель** – *Лабутин Тимур Александрович,*  
кандидат химических наук
- Официальные оппоненты** – *Сурин Леонид Аркадьевич,*  
доктор физико-математических наук,  
Институт спектроскопии РАН,  
заместитель директора по научной  
работе
- Пазюк Елена Александровна,*  
доктор физико-математических наук,  
доцент, химический факультет МГУ  
имени М.В. Ломоносова, кафедра  
физической химии, профессор
- Ильин Алексей Анатольевич,*  
кандидат физико-математических наук,  
Институт автоматизации и процессов  
управления Дальневосточного отделения  
РАН, лаборатория лазерных методов  
исследования вещества, старший научный  
сотрудник

Защита диссертации состоится «6» июня 2025 г. в 17 часов 00 минут на заседании диссертационного совета МГУ.014.3 Московского государственного университета имени М.В.Ломоносова по адресу: 119991, Москва, ГСП-1, Ленинские горы, дом 1, строение 3, Химический факультет МГУ, аудитория СХА (преп.).

E-mail: mish@kinet.chem.msu.ru

С диссертацией можно ознакомиться в отделе диссертаций научной библиотеки МГУ имени М.В. Ломоносова (Ломоносовский просп., д. 27) и на портале: <https://dissovet.msu.ru/dissertation/3414/>

Автореферат разослан «\_\_\_» \_\_\_\_\_ 2025 г.

Ученый секретарь  
диссертационного совета,  
кандидат химических наук, доцент

Шилина М.И.

## Общая характеристика работы

**Актуальность темы и степень ее разработанности.** Лазерно-индуцированная плазма является многообещающим источником для моделирования в лабораторных условиях спектральных и других характеристик ряда удаленных и недоступных для прямого исследования плазменных источников, включая космические объекты и метеоры, входящие в плотные слои планетарной атмосферы [1, 2]. Доступный диапазон условий в плазме (температура  $\approx 0.2 - 4$  эВ, электронная плотность  $10^{14} - 10^{19}$  см<sup>-3</sup>), возможность выбора испаряемого материала, давления и состава окружающей атмосферы, точной настройки параметров регистрации спектров позволяют выполнять поиск условий, в которых спектры лазерно-индуцированной плазмы служили бы хорошей моделью спектров других плазменных объектов. Применительно к метеорам такой подход к лабораторному моделированию значительно повышает точность качественного и количественного элементного анализа, определения макроскопических характеристик объекта, идентификации и привязки по происхождению к родительскому телу. В частности, большой интерес представляет анализ спектров излучения основных элементов состава метеоров (Fe, Ca, Si, Al и др.) и простых молекул с их участием (FeO, CaO, CN) для оценки параметров плазмы или изучения динамики изменения концентрации частиц в ходе эволюции метеорной плазмы. Однако, реализация лабораторного моделирования требует разработки подходов для сопоставления условий в лазерно-индуцированной плазме с условиями в удаленном плазменном объекте по одним лишь спектральным данным, и совершенствования подходов по диагностике лазерной плазмы и изучению процессов, происходящих в объеме лазерного факела.

Одной из сохраняющихся проблем диагностики плазмы, моделирования и интерпретации эмиссионных спектров удаленных плазменных источников остается отсутствие данных по штарковским параметрам для большей части наблюдаемых эмиссионных линий [3]. Существует потребность в создании

высокопроизводительных расчетных методов для определения штарковских параметров, продолжении работ по их экспериментальному измерению и тщательному сопоставлению качества данных, получаемых одним и другим методом. Другими проблемами, стоящими перед методами диагностики плазмы, являются ее возможная неоднородность, а также сложность описания процессов гидродинамического разлета, распространения ударной волны, столкновительных и рекомбинационных процессов. Для решения этого класса проблем возможно использование методов диагностики с высоким пространственным разрешением, основанных на обратных преобразованиях Абеля или Радона или же на использовании зондовых методов, таких как томсоновское рассеяние или лазерно-индуцированная флуоресценция.

**Целью настоящей работы** было лабораторное моделирование плазменных источников и оценка их физико-химических свойств при заданных условиях окружающей среды.

Для достижения поставленной цели требовалось решить следующие **задачи**:

1. Создание экспериментальной установки для регистрации спектров томсоновского рассеяния и лазерно-индуцированной флуоресценции в лазерно-индуцированной плазме при различных давлениях окружающей среды с высоким пространственным разрешением.
2. Определение экспериментальных условий, при которых спектры лазерно-индуцированной плазмы наилучшим образом воспроизводят спектры плазмы метеора на заданной высоте.
3. Реализация схем атомной (Ca, Fe, Ti) и молекулярной (CaO, FeO) флуоресценции для измерений в режиме насыщения в плазме. Теоретический анализ кинетики флуоресценции частицы при её возбуждении из различных состояний.
4. Разработка способов определения параметров плазмы по спектрам томсоновского рассеяния, а также по данным атомной лазерно-

индуцированной флуоресценции.

5. Регистрация спектров атомной и молекулярной лазерно-индуцированной флуоресценции в лазерно-индуцированной плазме с высоким пространственным разрешением для изучения закономерностей распределения частиц и градиента температуры в пространстве.
6. Создание алгоритма для предсказания методами машинного обучения параметров штарковского уширения и сдвига линий атомов и ионов, требующихся для изучения плазменных источников.

**Объектами исследования** являлись лазерно-индуцированная плазма, получаемая при испарении Ca, Fe и Ti-содержащих мишеней и штарковские параметры эмиссионных линий.

**Предметом исследования** были физико-химические свойства газоплазменных объектов различного происхождения.

**Методология и методы исследования.** Комплекс лазерно-спектральных методов для получения лазерно-индуцированной плазмы при атмосферном и пониженном давлении, регистрации ее эмиссионных спектров, спектров томсоновского рассеяния и лазерно-индуцированной флуоресценции в плазме. Методы машинного обучения для языка программирования Python.

**Научная новизна.** В работе впервые:

1. Предложены схемы нерезонансной флуоресценции атомов Ca, Fe и Ti, молекул CaO и FeO, которые позволили добиться многократного превышения интенсивности флуоресценции относительно спонтанной эмиссии и регистрировать сигнал в режиме насыщения при больших концентрациях возбуждаемых частиц, а также наблюдать одновременную флуоресценцию CaO и Fe.
2. Получен профиль распределения температуры в сечении лазерной плазмы с разрешением 400 мкм по данным лазерно-индуцированной флуоресценции атомов Ti.

3. На основании карт распределения интенсивности флуоресценции Ca и CaO в сечении плазмы с разрешением 200 мкм показано, что частицы распространяются за пределы интенсивной светящейся области плазмы, при этом с ростом давления окружающей среды значимым становится механизм образования CaO на её периферии при взаимодействии атомов Ca с кислородом атмосферы.
4. Показано, что наилучшее совпадение спектров лазерно-индуцированной плазмы и спектров метеора на высоте 39 км над поверхностью Земли достигается при давлении окружающей среды  $\approx 100$  Торр, а температура и электронная плотность плазмы мало меняются при вариации условий вблизи оптимальной точки, что позволяет сделать предположение о том, что давление в хвосте метеора в 20 – 30 раз превышает атмосферное давление на соответствующей высоте.
5. Создана модель машинного обучения для предсказания параметров штарковского уширения и сдвига атомных и ионных переходов с точностью, сопоставимой с точностью экспериментально измеренных параметров, использованных для обучения модели.

#### **Теоретическая и практическая значимость:**

Подход по сопоставлению спектров лазерно-индуцированной плазмы со спектрами метеоров открывает перспективы для оценки условий, реализующихся при сгорании метеоров в земной атмосфере, улучшения интерпретации спектров других удаленных высокоскоростных газоплазменных объектов и повышения точности моделирования пространственной динамики метеоров на основе их спектральных особенностей. Использование предсказанных штарковских параметров значительно улучшает сходимость алгоритма моделирования спектров плазмы, что может быть использовано для повышения точности определения ее температуры и электронной плотности, а также для поиска линий, экспериментальное определение параметров которых представляет интерес. Разработанные алгоритмы предобработки спектров с

помощью вейвлет-преобразований позволяют выделять сигналы малой интенсивности с высоким уровнем шумов, в частности, для измерения интенсивности сателлитов томсоновского рассеяния и последующего определения температуры и электронной плотности плазмы.

**Положения, выносимые на защиту:**

1. Достигнутое с использованием разработанных схем флуоресценции Ca, Fe, Ti и CaO пространственное разрешение позволяет изучать структуру лазерного факела при пониженном давлении, в том числе особенности распределения частиц на границе с окружающей средой.
2. В лазерно-индуцированной плазме при пониженном давлении (10 – 100 Торр) частицы распространяются за пределы светящегося факела. На периферии плазмы важным механизмом образования CaO становится рекомбинация атомов Ca с кислородом воздуха.
3. Фильтрация шумов с использованием вейвлет-преобразований обеспечивает возможность одновременного определения по сигналу томсоновского рассеяния температуры и электронной плотности лазерно-индуцированной плазмы с погрешностью 5 – 7%.
4. Совпадение профилей спектров лазерно-индуцированной плазмы при различных давлениях и спектров метеоров в верхних слоях атмосферы показывает, что давление в хвосте метеора превышает атмосферное давление на соответствующей высоте в 20 – 30 раз.
5. Способность ансамблей моделей машинного обучения предсказывать ударные штарковские параметры спектральных линий на уровне экспериментальной точности, в том числе с возможностью экстраполяции на неизвестные модели химические элементы, повышает точность определения температуры и электронной плотности плазмы за счет улучшения сходимости алгоритмов при термодинамическом моделировании.

**Степень достоверности** проведённых соискателем ученой степени

Закускиным А. С. исследований обеспечивается публикациями в ведущих рецензируемых научных международных журналах, включая находящиеся в первом квартиле баз данных Scopus и Web of Science.

### **Апробация работы:**

Результаты настоящей работы представлены на устных и стендовых докладах в рамках международных конференций: European Astronomical Society Annual Meeting - EAS 2020 (Leiden, Netherlands), International Symposium on Molecular Spectroscopy ISMS-2021 (Urbana-Champaign, USA), European Conference on Laboratory Astrophysics ECLA 2020 (Anacapri, Italy), International Symposium on Molecular Spectroscopy ISMS-2022 (Urbana-Champaign, USA), Physics and Chemistry of Combustion and Processes in Extreme Environments ComPhysChem'22 (Самара, Россия), International Conference on Atomic and Molecular Data and Their Applications ICAMDATA 2022 (Mola di Bari, Italy), Euro-Mediterranean Symposium on Laser-induced Breakdown Spectroscopy EMSLIBS 2023 (Porto, Portugal), International Meeting & II Latin American Meeting on Laser Induced Breakdown Spectroscopy LIBS 2024 (Iguazú, Argentina).

**Личный вклад автора** заключается в проектировании и сборке экспериментальной установки для регистрации спектров томсоновского рассеяния и флуоресценции в лазерно-индуцированной плазме с высоким пространственным разрешением, разработке и практической реализации схем флуоресценции атомов Ca, Fe и Ti и молекул CaO и FeO, разработке моделей машинного обучения для предсказания штарковских параметров линий атомов и ионов, их тестированию и применению результатов для диагностики плазмы, в проведении экспериментов по регистрации спектров лазерно-индуцированной плазмы, подготовке результатов исследований к публикации и апробации. В работах, опубликованных в соавторстве, вклад соискателя является определяющим и составляет от 50 до 80%.

### **Публикации**

Основное содержание работы изложено в 7 научных работах автора общим

объемом 5.5 п.л. в рецензируемых научных изданиях, индексируемых в базах данных Web of Science, Scopus, RSCI и рекомендованных к защите в диссертационном совете МГУ по специальности 1.4.4 – Физическая химия.

### **Структура и объём работы**

Полный текст работы состоит из 7 разделов, включающих введение, обзор литературы, экспериментальную часть, обсуждение результатов, заключение, список сокращений и обозначений и список цитируемой литературы. Работа изложена на 153 страницах машинописного текста, содержит 57 рисунков, 19 таблиц и 214 библиографических ссылок.

### **Основное содержание работы**

Во **введении** продемонстрирована и обоснована актуальность работы, сформулированы цель задачи исследования, раскрыта научная новизна работы и показана ее практическая значимость, приведены положения, выносимые на защиту, описаны апробация результатов, указан личный вклад автора.

В главе **Обзор литературы** рассматриваются физические основы используемых в работе методов лазерной спектроскопии, представлено описание подходов по лабораторному моделированию метеорных процессов, применению для этого лазерно-индуцированной плазмы, применению методов машинного обучения для решения задач в области спектроскопии. Раздел «лазерно-индуцированная плазма» содержит описание основ формирования лазерно-индуцированной плазмы, принципов формирования эмиссионных спектров, уширения спектральных линий, теоретических основ диагностики плазмы по спектрам томсоновского рассеяния, а также наблюдению лазерно-индуцированной флуоресценции атомов и молекул в лазерно-индуцированной плазме. В данном разделе приводятся как теоретические основы лазерно-искровой эмиссионной спектроскопии, так и анализ современных проблем диагностики лазерной плазмы. В разделе «лабораторное моделирование метеорных процессов» дан обзор современных подходов к моделированию спектров таких объектов в условиях лаборатории. Рассмотрены различные

подходы к имитации метеорных процессов и их спектров, особое внимание уделено применению лазерно-индуцированной плазмы. Описаны основные пути совершенствования этого подхода и потенциал применения. Раздел «машинное обучение в задачах спектроскопии» содержит краткое описание основных методов и алгоритмов машинного обучения, применяющихся для задач, в том числе специфичных для спектроскопии. Дано описание основных особенностей и формулировок задач спектроскопии, так или иначе решаемых с применением методов машинного обучения.

Глава **Экспериментальная часть** состоит из 5 разделов и включает в себя информацию о созданной в рамках работы экспериментальной установке и ее модификациях, схемах атомной и молекулярной лазерно-индуцированной флуоресценции, использованных в работе, методах диагностики плазмы по спектрам эмиссии и томсоновского рассеяния, а также описание моделей машинного обучения и данных для их.

В разделе «экспериментальная установка» описываются схемы двух модификаций экспериментальной установки: для сочетания лазерно-искровой эмиссионной спектрометрии и лазерно-индуцированной флуоресценции при пониженном давлении и для регистрации спектров эмиссии и томсоновского рассеяния при атмосферном давлении. Для испарения мишени использовался импульсный Nd:YAG лазер, а для возбуждения флуоресценции или получения спектров томсоновского рассеяния - перестраиваемый титан-сапфировый лазер или второй Nd:YAG лазер, соответственно. Система позиционирования зондирующего излучения обеспечивала перемещение луча с точностью до 100 мкм вдоль двух координат. Собственное излучение плазмы, флуоресценция или рассеянное излучение направлялось на торец оптоволоконна, второй торец которого проецировал излучение на регулируемую входную щель спектрографа. Излучение регистрировалось стробируемой ПЗС камерой с усилителем яркости. В качестве мишени использовались прессованные таблетки из порошков карбоната кальция ( $\text{CaCO}_3$ ) (Sigma Aldrich, 99.995 мас.%)

и оксида железа (II, III) ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) (Sigma Aldrich, 99.99 мас.%), а также фрагмент каменного метеорита Чуг Чуг 023 и металлический титан (Sigma Aldrich, 99.99 мас.%).

Раздел «Разработка схем возбуждения и регистрации лазерно-индуцированной флуоресценции» включает все схемы флуоресценции Ca, Fe, Ti, CaO и FeO, рассмотренные в работе. Приведены, где это возможно, диаграммы энергетических уровней частиц с обозначением переходов, задействованных для возбуждения и регистрации флуоресценции и спектры флуоресценции в сравнении со спектрами спонтанной эмиссии плазмы. Приведены полученные экспериментально кривые насыщения для некоторых схем, зависимости интенсивности флуоресценции от числа испаряющих импульсов. Для атомной флуоресценции Ti выполнено решение системы дифференциальных уравнений, описывающих кинетику процессов в трехуровневой схеме флуоресценции:

$$\begin{cases} \frac{dN_1}{dt} = -N_1(\rho B_{12} + A_1) + N_2(\rho B_{21} + A_{21}) \\ \frac{dN_2}{dt} = N_1\rho B_{12} - N_2(\rho B_{21} + A_{23} + A_2) \\ \frac{dN_3}{dt} = N_2A_{23} - N_3A_3 \end{cases} \quad (1)$$

где 1, 2, 3 – индексы уровней, с которого происходит возбуждение, на который происходит возбуждение и на который происходит переход при испускании флуоресценции;  $N_1, N_2, N_3$  – заселенности уровней 1, 2 и 3;  $A_{23}$  – вероятность спонтанного испускания с уровня 2 на уровень 3;  $A_{21}$  – вероятность спонтанного испускания с уровня 2 на уровень 1;  $A_1, A_2, A_3$  – суммы вероятностей всех спонтанных переходов с уровней 1, 2 и 3, не учитываемых детально в схеме;  $B_{12}$  – вероятность поглощения излучения;  $B_{21}$  – вероятность вынужденного испускания с уровня 2 на уровень 1;  $\rho$  – объемная спектральная плотность энергии [(Дж×с)/м<sup>3</sup>]. Получено выражение для интенсивности флуоресценции:

$$I_{fluo} = \int_0^\tau A_{23}N_2(t)dt = N_0\left(1 - \frac{\xi_2 \exp(-\xi_1\tau) - \xi_1 \exp(-\xi_2\tau)}{\xi_2 - \xi_1}\right), \quad (2)$$

где  $\xi_{1,2} = \frac{\alpha + \beta + \omega}{2} \mp \sqrt{\left(\frac{\alpha + \beta + \omega}{2}\right)^2 - \alpha\omega}$ ,  $\rho B_{12} = \alpha$ ,  $\rho B_{21} + A_{21} = \beta$  и  $A_{23} = \omega$ .

Методики определения температуры плазмы методом графика Больцмана, определения электронной плотности по штарковскому уширению и сдвигу спектральных линий и диагностики обоих параметров по спектрам томсоновского рассеяния описаны в разделе «Диагностика лазерно-индуцированной плазмы». Для диагностики плазмы по спектрам томсоновского рассеяния описан алгоритм предобработки спектров, в том числе с использованием фильтрации шумов вейвлет-преобразованиями, и процедура определения температуры и электронной плотности путем аппроксимации спектров функцией Солпитера или с использованием номограмм.

Описание принципов формирования набора данных по штарковским параметрам и анализ их распределения приводится в разделе «Данные для предсказания штарковских параметров методами машинного обучения». Всего из литературных источников собрано 6620 записей о 2883 уникальных переходах. Для предсказания штарковских параметров используется до 60 входных признаков, представленных в табличной форме. Признаки включают в себя информацию о числе электронов на оболочках, термах, энергиях уровней и о температуре, для которой было определено значение штарковского параметра.

В разделе «Методы и подходы по обучению моделей машинного обучения» описаны используемые процедуры подготовки данных, оптимизации гиперпараметров моделей и оценки качества предсказаний. Из набора данных 80% записей выделялись в обучающий набор, все записи, содержащие информацию о параметрах переходов S, Mg и Mn выделялись в отдельный проверочный набор для тестирования способностей моделей к обобщению, остальные записи формировали классический проверочный набор. При решении задачи предсказания параметра штарковского уширения применялись процедуры поквартильного разбиения на обучающий и проверочный наборы и процедура масштабирования целевых значений. В некоторых случаях значения энергетических признаков нормировались на значение энергии ионизации.

Описан оригинальный алгоритм аугментации данных. В работе были использованы 7 алгоритмов: классические методы k ближайших соседей и случайного леса, методы градиентного бустинга: XGBoost, LightGBM и CatBoost, а также нейронная сеть на основе трансформеров TabNet.

Глава **Обсуждение результатов** состоит из 3 разделов и содержит описание полученных результатов и их обсуждение.

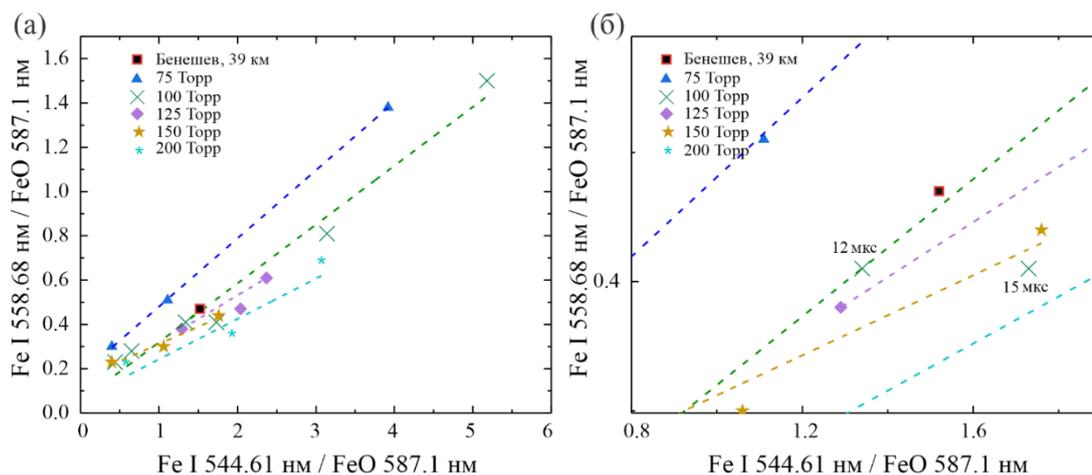


Рисунок 1. Критерий сходства спектров в пространстве соотношений между интенсивностями атомных линий Fe I и интенсивности молекулярной полосы FeO. (а): все исследованные точки в диапазоне давлений 75 – 200 Торр и задержек регистрации 7 – 20 мкс; (б): экспериментальные точки, обеспечивающие наибольшее сходство между лабораторными и метеорными спектрами.

В разделе «Лабораторное моделирование спектров болида Бенешев» представлены результаты поиска экспериментальных условий, в которых эмиссионные спектры лазерно-индуцированной плазмы при испарении мишени из  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  наилучшим образом совпадают со спектрами плазмы следа метеора в верхних слоях земной атмосферы. Для этого предложен критерий, основанный на измерении интенсивности атомных линий Fe и оранжевой полосы FeO. Рассчитывались соотношения интенсивностей двух линий Fe I (544.61 нм и 558.69 нм) к интенсивности полосы FeO на длине волны 587.1 нм и значения этих отношений откладывались на графике (Рисунок 1). Предложенный критерий косвенно учитывает температуру возбуждения и равновесие между атомами и молекулами в плазме. Спектры лазерно-индуцированной плазмы

исследовались в диапазоне давлений окружающей среды от 75 до 200 Торр и диапазоне задержек регистрации от 7 до 20 мкс.

На основе данного критерия, визуального и численного сопоставления спектров установлено, что спектр лазерно-индуцированной плазмы при давлении 100 Торр и задержке регистрации 15 мкс наиболее близок к спектру болида Бенешев на высоте 39 км (Рисунок 2). Об этом свидетельствует сходство профиля молекулярной полосы и относительных интенсивностей атомных линий Fe и полос FeO. Для нескольких комбинаций давления и задержки, обеспечивающих наилучшее подобие спектров по предложенному критерию (Рисунок 1б) были определены температура и электронная плотность плазмы. Вариация параметров плазмы сопоставима с погрешностями их определения, поэтому можно сделать вывод, что предложенный критерий обеспечивает надежный выбор условий, соответствующих плазме метеора.

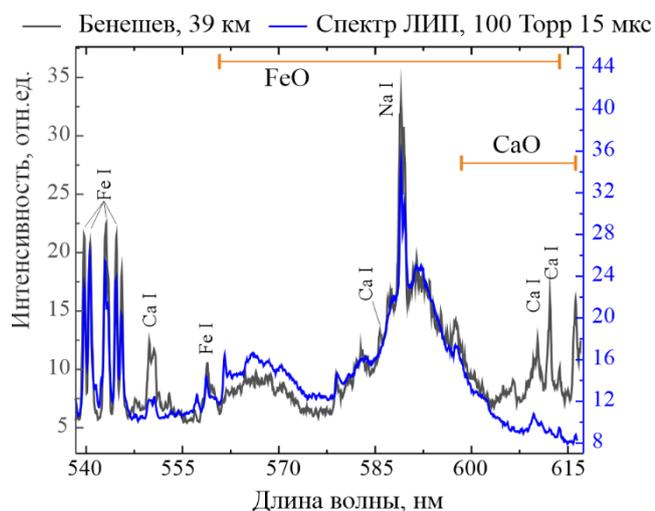


Рисунок 2. Спектр лазерно-индуцированной плазмы при испарении мишени из Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> при давлении 100 Торр и задержке регистрации 15 мкс с наибольшей степенью сходства со спектром следа болида Бенешев на высоте 39 км.

Результаты лабораторного моделирования спектров болида показали, что давление в следе болида значимо выше (в 20 – 30 раз), чем атмосферное давление на данной высоте. Такая оценка в лабораторных условиях полезна в том числе для проверки и сопоставления результатов моделирования процесса

входа метеороида в атмосферу, поскольку другие подходы оценивают преимущественно давление в слое плазмы перед метеорным телом [4].

Раздел «Предсказание штарковских параметров» содержит результаты применения методов машинного обучения для предсказания параметров штарковского уширения и сдвига. Среди всех комбинаций алгоритмов машинного обучения и способов предобработки данных (нормирование значений энергии, аугментация, стандартизация) (всего 48 комбинаций) выделены несколько, обеспечивающих наилучшую точность по двум функциям потерь: средней квадратичной ошибке предсказания и средней относительной ошибке предсказания для двух проверочных наборов.

Ансамблевое обучение демонстрирует лучшие результаты по сравнению с индивидуальными моделями (Таблица 1). Среди всех ансамблей, составленных из 8 лучших индивидуальных моделей, наилучший результат показал ансамбль, составленный из двух моделей XGBoost, двух моделей LightGBM и модели CatBoost (№1 в Таблице 1), каждая из которых была обучена со своими оптимальными значениями гиперпараметров и способами предобработки данных. Наибольшее улучшение точности наблюдается в значении средней квадратичной ошибкой на проверочной выборке с «новыми» химическими элементами.

Ансамбль моделей №1 демонстрирует среднюю относительную ошибку предсказания 18.11%, что значительно меньше, чем среднее значение погрешности исходных литературных данных, на которых он был обучен – 34.4% (Рисунок 3). Можно утверждать, что созданная модель машинного обучения способна предсказывать значения штарковского уширения на том же уровне точности, что и у данных, на которых она была обучена.

Таблица 1. Ансамбли моделей для предсказания параметра штарковского уширения и лучшая индивидуальная модель и значения функций потерь для них

Ансамбль или модель	RMSE (проверочный набор)	MRE (проверочный набор), %	RMSE («элементы»)	MRE («элементы»), %
№1	0.2599	18.11	0.7286	81.18
LightGBM	0.2625	18.68	0.9752	76.78

Модели для предсказания параметра сдвига, обученные только на базовых признаках (число электронов на каждой оболочке, термы, энергии верхнего и нижнего состояния, температура), демонстрируют меньшие значения средней квадратичной ошибки на обеих проверочных выборках (0.67 – 0.72), а модели, обученные с добавлением известных значений параметра уширения в качестве входного признака, показывают меньшие значения средних относительных ошибок (58 – 62% против 90 – 105%). Т.к. целевая величина (параметр сдвига) имеет неравномерное распределение, опираться на среднюю относительную ошибку более правильно.

При аппроксимации участка спектра моделью плазмы в приближении ЛТР [5] функция потерь демонстрирует широкое плато около минимума из-за того, что профиль каждой линии в спектре зависит одновременно от большого числа параметров. Поэтому отклонение используемых значений штарковских параметров от истинных может привести к неправильной диагностике плазмы, несмотря на кажущееся точным описание профиля спектра и низкие значения функции потерь. По умолчанию все параметры уширения и сдвига при работе алгоритма моделирования спектра считаются равными. Участок спектра плазмы шириной  $\approx 3.5$  нм был аппроксимирован алгоритмом моделирования спектров со штарковскими параметрами «по умолчанию» и с использованием значений параметра уширения, предсказанных моделью машинного обучения (ансамбль №1). Включение предсказанных значений штарковских параметров в

алгоритм моделирования позволяет ему сходиться к значениям параметров плазмы, близким к тем, которые определены независимой диагностикой (температура 7100 К и  $6900 \pm 300$  К, электронная плотность  $4.5 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$  и  $4.5 \times 10^{16} \text{ см}^{-3}$ ). Включение предсказанных штарковских параметров оказывает большее влияние на точность определения электронной плотности.

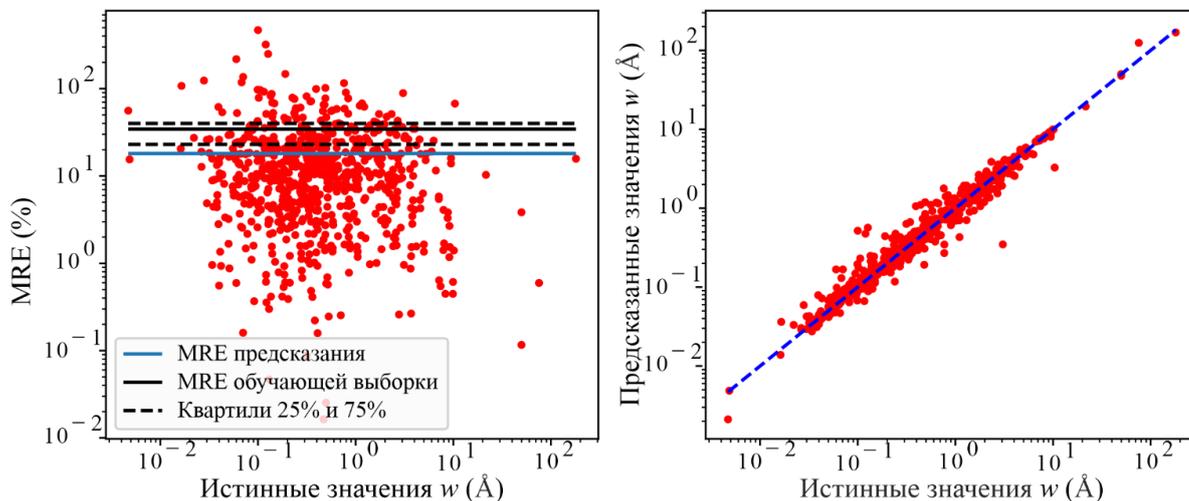


Рисунок 3. Распределение относительной ошибки предсказания в зависимости от величины параметра штарковского уширения (а) и график предсказанных и истинных значений параметра уширения (б) для ансамбля №1 (Таблица 1).

В разделе «Диагностика плазмы с высоким пространственным разрешением» приведены результаты диагностики лазерно-индуцированной плазмы по спектрам томсоновского рассеяния и изучения распределения частиц и градиента температуры в плазме по данным атомной и молекулярной лазерно-индуцированной флуоресценции.

На наборе синтетических спектров томсоновского рассеяния была проанализирована эффективность 106 доступных в пакете PyWavelets [6] вейвлетов, а также Фурье-преобразования при фильтрации шумов в диапазоне значений параметра  $\alpha$  от 0.8 до 2. Фильтрация с помощью преобразования Фурье уступает фильтрации почти всеми вейвлетами для любого  $\alpha$ . Сами же вейвлеты можно разделить на две группы. Первая группа демонстрирует лучшие результаты для низких значений  $\alpha$  (от 0.8 до  $\approx 1.7$ ), когда сателлиты электронной компоненты рассеяния не полностью отделены от центрального

пика. Вторая группа уступает первой для малых  $\alpha$ , но обладает таким же или даже лучшим качеством фильтрации шумов при  $\alpha > 1.7$ . Высокая эффективность многих вейвлетов для больших значений  $\alpha$  может быть объяснена отсутствием спектральных помех со стороны центрального максимума. В то же время качество фильтрации уменьшается с дальнейшим ростом  $\alpha$  из-за недостатка спектрального разрешения.

Диагностика лазерно-индуцированной плазмы методом аппроксимации спутников функцией Солпитера и с использованием номограмм дает достаточно близкие результаты. Диагностика по спектрам томсоновского рассеяния путем аппроксимации спутников функцией Солпитера требует гораздо более трудоемкой обработки спектров, чем подход с использованием номограмм. Из-за высокой сложности нелинейной оптимизации и относительно высокого уровня шумов решение задачи аппроксимации может быть найдено в локальном минимуме. Чтобы избежать этого, требуется более точное вычитание фона и выбор границ спектрального диапазона для аппроксимации. Напротив, подход с использованием номограмм более устойчив к любым видам помех.

Исследования методом лазерно-индуцированной флуоресценции являются одноэлементными, однако это ограничение снимается, если атомный переход, задействованный в возбуждении атомной флуоресценции, перекрывается с широкой молекулярной полосой. Близость канта полосы  $\text{CaO } B^1\Pi \rightarrow X^1\Sigma^+$  (397.37 нм) и интенсивной линии Fe I 396.926 нм позволила установить длину волны возбуждения флуоресценции 396.926 нм без значительной потери в интенсивности флуоресценции CaO и наблюдать флуоресценцию частиц CaO и Fe одновременно при испарении фрагмента метеорита Чуг Чуг 023 (Рисунок 4).

На созданной в рамках данной работы установке для регистрации сигнала флуоресценции в лазерно-индуцированной плазме с высоким пространственным разрешением было проанализировано распределение интенсивности флуоресценции Ca и CaO, а также их соотношения (Рисунок 5).

Флуоресценция регистрируется на больших расстояниях от точки образования плазмы, намного дальше, чем наблюдается собственное излучение плазмы. Это, вероятно, связано с движением испаренного вещества мишени во фронте ударной волны. Вблизи поверхности мишени флуоресценция наблюдается на расстоянии  $\approx 8$  мм и  $>10$  мм от оси плазмы при 100 и 10 Торр, соответственно.

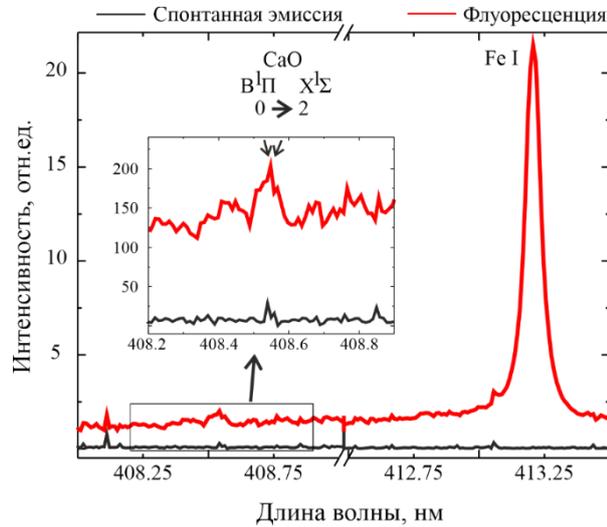


Рисунок 4. Спектры спонтанной эмиссии и одновременной флуоресценции Fe и CaO в лазерно-индуцированной плазме при испарении фрагмента метеорита Чуг Чуг 023.

При давлении 100 Торр область наибольшей интенсивности атомной флуоресценции вдоль оси плазмы меньше ( $\approx 1.5$  мм), чем интенсивно излучающая зона плазмы, зафиксированная при её фотографировании ( $\approx 3$  мм). В направлении вдоль поверхности мишени наблюдается противоположное поведение. При давлении 10 Торр плазма более однородна, и область наибольшей интенсивности флуоресценции и Ca, и CaO в целом совпадает с наиболее яркой излучающей зоной плазмы. Максимум интенсивности флуоресценции Ca, расположенный на  $\approx 1 - 1.5$  мм выше поверхности, соответствует зоне низкой яркости плазмы (темная область вблизи оси плазмы на 0.5 – 1.5 мм выше поверхности (Рисунок 5IV)). Это можно объяснить тем, что флуоресценция возбуждается из нижнего триплетного состояния  $^3P^o$ , которое не связано радиационно с основным (синглетным) состоянием. Из-за пониженного давления окружающей среды (10 Торр) столкновительная

деактивация рассматриваемого триплетного состояния происходит медленно. Поэтому относительно высокая заселенность этого состояния приводит к высокой интенсивности флуоресценции. Общая яркость этой зоны, которая определяется равновесными населенностями более высоколежащих состояний, демонстрирует локальный минимум, т.е. флуоресценция может быть чувствительна к частицам (или определенным состояниям), которые не вносят значимый вклад в сигнал спонтанного излучения. Область максимальной интенсивности флуоресценции CaO находится около поверхности. Это, и более высокое значение соотношения CaO/Ca в центральной части плазмы (Рисунок 5Ш), позволяет предположить, что молекулы CaO поступают в плазму преимущественно из материала мишени и, подобно атомам Ca, распространяются за пределы лазерного факела с фронтом ударной волны.

Во внешних слоях плазмы наблюдается резкое увеличение соотношения CaO/Ca при обоих рассмотренных значениях давления. При давлении 10 Торр этот эффект более выражен и наблюдается вдоль оси плазмы, и перпендикулярно ей. Это может быть связано с образованием CaO путем рекомбинации атомов Ca с кислородом воздуха ( $\text{Ca} + \text{O} \leftrightarrow \text{CaO}$ ), происходящей вместе с распространением ударной волны. Вклад этого механизма образования оксида CaO, по-видимому, становится более значимым с увеличением давления. При давлении 100 Торр интенсивная флуоресценция CaO наблюдается и за пределами интенсивно светящейся области плазмы. Внутри этой зоны соотношение CaO/Ca ниже, чем за ее пределами, хотя абсолютная интенсивность флуоресценции CaO также высока.

На карте распределения градиента температуры, определенной по данным атомной флуоресценции Ti (Рисунок 6), вблизи оси плазмы наблюдается симметричная область радиусом  $\approx 2$  мм с примерно постоянной температурой ( $\approx 4000$  К). По мере удаления от центра плазмы наблюдается значительный рост температуры до 6000-8000 К. При этом границы области высокой температуры нечеткие, она занимает достаточно большой объем. Это наблюдение

согласуется с данными по флуоресценции Ca и CaO. Рост температуры в этой области может быть связан с прохождением ударной волны, вызывающей локальный разогрев на границе плазмы (прохождение ее в этой области на данной задержке соответствует скорости 0.5 – 1 км/с [7]).

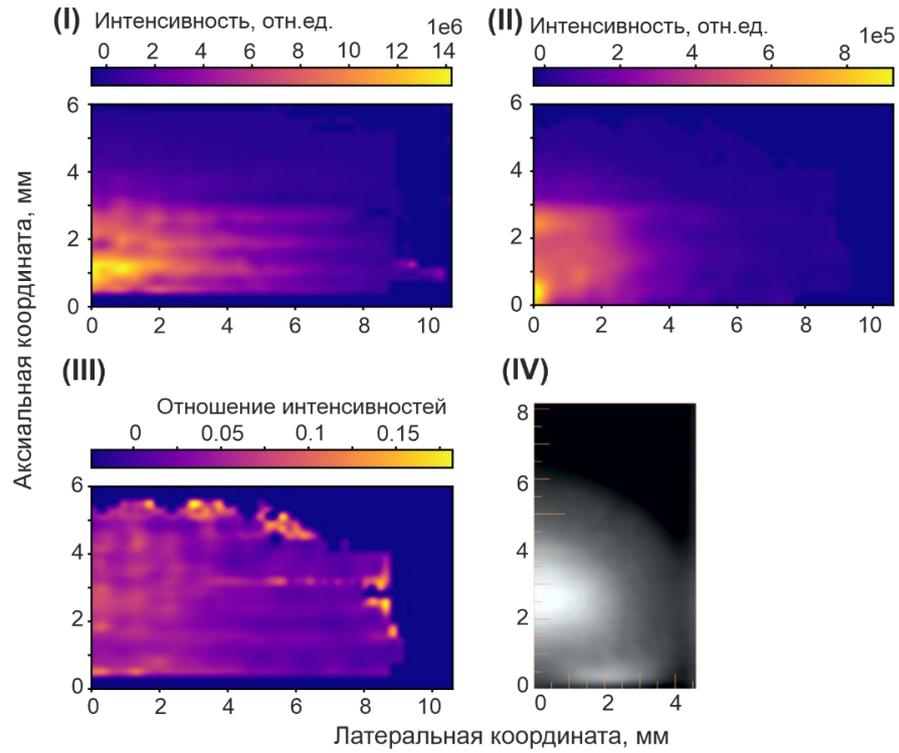


Рисунок 5. Распределение интенсивности атомной флуоресценции Ca (I), молекулярной флуоресценции CaO (II) и их соотношения CaO/Ca (III) в каждой точке центрального сечения плазмы при давлении 100 Торр и задержке регистрации 15 мкс). Изображение плазмы (IV), полученное при тех же условиях регистрации. Все данные представлены для половины сечения плазмы, значение латеральной координаты 0 мм соответствует оси плазмы.

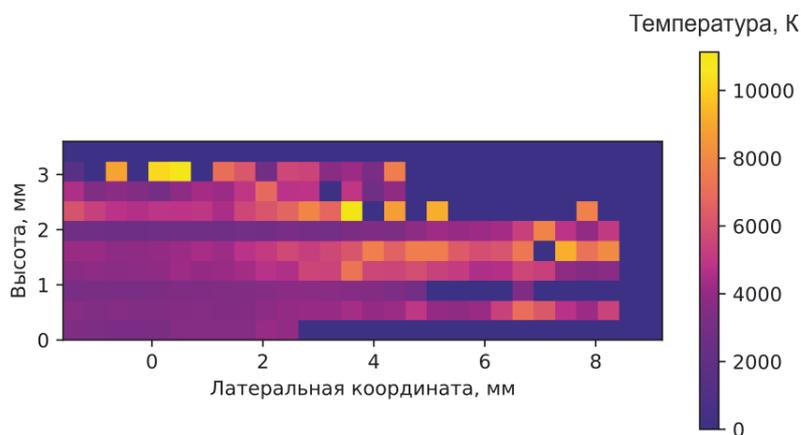


Рисунок 6. Градиент температуры в сечении лазерно-индуцированной плазмы при давлении 100 Торр и задержке регистрации 5 мкс по данным флуоресценции атомов титана.

В главе **Заключение** представлены основные итоги выполненного исследования, результаты и выводы.

## Основные результаты и выводы

1. В реализованных схемах нерезонансной атомной и молекулярной лазерно-индуцированной флуоресценции частиц Ca, Fe, Ti и CaO достигается режим насыщенной флуоресценции в лазерно-индуцированной плазме при испарении мишеней из CaCO<sub>3</sub>, металлического Ti и Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>. Высокая интенсивность флуоресценции по сравнению со спонтанной эмиссией данных частиц обеспечивает достаточную чувствительность флуоресценции для изучения распределения плотности частиц в объеме плазмы.
2. По данным лазерно-индуцированной флуоресценции в лазерно-индуцированной плазме установлено, что частицы распространяются на большие расстояния от точки абляции по сравнению с размерами светящегося плазменного факела при пониженном давлении (10 и 100 Торр). Молекула CaO вблизи точки абляции образуется преимущественно за счет разложения материала мишени, а на периферии плазмы рекомбинация атомов Ca с кислородом окружающего воздуха является значимым механизмом образования CaO.

3. Алгоритм обработки спектральных данных с использованием вейвлет-преобразований обеспечивает относительную ошибку определения положения максимума и ширины сателлита электронной компоненты в спектрах томсоновского рассеяния, не превышающую 1.5%. Диагностика лазерно-индуцированной плазмы при пробое на воздухе по спектрам томсоновского рассеяния и с аппроксимацией контура сателлита функцией Солпитера, и с использованием номограмм позволяет одновременно определять температуру и электронную плотность с погрешностью не более 5 – 7%.
4. С использованием предложенного в данной работе подходов найдены условия в лазерно-индуцированной плазме, в которых достигается наилучшее совпадение ее эмиссионных спектров со спектрами плазмы метеора в верхних слоях земной атмосферы. Установлено, что давление в хвосте метеора может в 20 – 30 раз превышать атмосферное давление на соответствующей высоте.
5. Предсказание параметров штарковского уширения и сдвига линий атомов и ионов ансамблем моделей машинного обучения обеспечивает среднюю относительную ошибку предсказания  $\approx 18\%$ . Разработанная модель позволяет получать предсказания для частиц и химических элементов, не представленных в обучающем наборе. Использование значения параметра штарковского уширения в качестве одного из признаков для предсказания параметра сдвига снижает среднюю относительную ошибку на 30 – 40% для проверочного набора и на 100 – 120% для химических элементов, не представленных в обучающем наборе.
6. Использование предсказанных методами машинного обучения штарковских параметров переходов при термодинамическом моделировании спектров плазмы повышает точность определения температуры и электронной плотности плазмы при аппроксимации ее

спектров термодинамической моделью за счет улучшения сходимости алгоритмов.

### **Список литературы**

1. Milley E. P., Hawkes R. L., Ehrman J. M. Meteor luminosity simulation through laser ablation of meteorites // *Mon. Not. R. Astron. Soc.: Letters*. – 2007. – Т. 382, № 1. – С. L67-L71.
2. Popov A. M., Berezhnoy A. A., Borovička J., Labutin T. A., Zaytsev S. M., Stolyarov A. V. Tackling the FeO orange band puzzle in meteor and airglow spectra through combined astronomical and laboratory studies // *Mon. Not. R. Astron. Soc.* – 2021. – Т. 500, № 4. – С. 4296-4306.
3. Dimitrijević M. S. *Spectral Line Shapes in Astrophysics and Related Topics.* / Dimitrijević M. S., Popović L. Č. – Switzerland: MDPI, 2020. – 268 с.
4. Borovička J., Spurný P., Brown P., Wiegert P., Kalenda P., Clark D., Shrubený L. The trajectory, structure and origin of the Chelyabinsk asteroidal impactor // *Nature*. – 2013. – Т. 503, № 7475. – С. 235-237.
5. Zaytsev S. M., Popov A. M., Labutin T. A. Stationary model of laser-induced plasma: Critical evaluation and applications // *Spectrochim Acta B*. – 2019. – Т. 158. – С. 105632.
6. Lee G., Gommers R., Waselewski F., Wohlfahrt K., O'Leary A. PyWavelets: A Python package for wavelet analysis // *J. Open Source Softw.* – 2019. – Т. 4, № 36. – С. 1237.
7. Chiba R., Ishikawa Y., Hasegawa J., Horioka K. Time evolution of laser-ablation plumes and induced shock waves in low-pressure gas // *Physics of Plasmas*. – 2017. – Т. 24, № 6.

## Список опубликованных работ по теме диссертации

Научные статьи, опубликованные в рецензируемых научных журналах, индексируемых в базах данных Web of Science, Scopus, RSCI и рекомендованных для защиты в диссертационном совете МГУ по специальности 1.4.4 – Физическая химия:

1. **A. S. Zakuskin** and T. A. Labutin. Processing of Thomson scattering spectra for diagnostics of laser-induced plasma. *Spectrochimica Acta - Part B: Atomic Spectroscopy*, 2022. V. 190. P. 106394 – 106402. 1.04 п.л. DOI: 10.1016/j.sab.2022.106394 Вклад автора 80% (JIF WoS 3.200)
2. Б. Г. Бегларян, **А. С. Закускин** и Т. А. Лабутин. Наблюдение атомной флуоресценции кальция в лазерно-индуцированной плазме с высоким пространственным разрешением. *Оптика и спектроскопия*, 2022. Т. 130. № 8. С. 1137 – 114 0.58 п.л. DOI: 10.21883/OS.2022.08.52897.3491-22 Вклад автора 60% (ИФ РИНЦ 0.691)  
B. G. Beglaryan, **A. S. Zakuskin**, and T. A. Labutin. Observation of calcium atomic fluorescence in laser-induced plasma with high spacial resolution. *Optics and Spectroscopy (English translation of Optika i Spektroskopiya)*, 2022. V. 130. № 6. P. 419 – 424 0.58 п.л. DOI: 10.1134/S0030400X2208001X Вклад автора 60% (JIF WoS 0.800)
3. **А. С. Закускин**, Б. Г. Бегларян и Т. А. Лабутин. Флуоресценция CaO ( $B^1\Pi \rightarrow X^1\Sigma^+$ ) в лазерно-индуцированной плазме. *Журнал прикладной спектроскопии*, 2022. Т. 89. № 6. С. 762 – 766 0.58 п.л. DOI: 10.47612/0514-7506-2022-89-6-777-781 Вклад автора 70% (ИФ РИНЦ 0.573)  
**A. S. Zakuskin**, B. G. Beglaryan, and T. A. Labutin. Fluorescence of CaO ( $B^1\Pi \rightarrow X^1\Sigma^+$ ) in a laser-induced plasma. *Journal of Applied Spectroscopy*, 2022. V.89. № 6. P. 1035 – 1039. 0.58 п.л. DOI: 10.1007/s10812-023-01463-4 Вклад автора 70% (JIF WoS 0.800).
4. **A. S. Zakuskin**, B. G. Beglaryan, and T. A. Labutin. Laboratory modeling in

- laser-induced plasma to estimate the pressure in bolide wake. *Astronomy and Astrophysics*. 2023. V. 670(L13). P. 1 – 6. 0.69 п.л. DOI: 10.1051/0004-6361/202245462 Вклад автора 70% (IF WoS 5.400)
5. **A. S. Zakuskin** and T. A. Labutin. StarkML: application of machine learning to overcome lack of data on electron-impact broadening parameters. *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society*, 2024. V. 527. № 2. P. 3139 – 3145 0.81 п.л. DOI: 10.1093/mnras/stad3387 Вклад автора 80% (JIF WoS 4.700)
  6. B. G. Beglaryan, **A. S. Zakuskin**, S. M. Zaytsev, and T. A. Labutin. Studying species distribution in laser-induced plasma by molecular and atomic fluorescence. *Plasma Sources Science and Technology*, 2024. V. 33. P. 075010 – 075018 1.04 п.л. DOI: 10.1088/1361-6595/ad5eba Вклад автора 50% (JIF WoS 3.300)
  7. **А. С. Закускин** и Т. А. Лабутин. Система флуоресцентного зондирования лазерной плазмы с высоким пространственным разрешением. *Журнал прикладной спектроскопии*, 2025. Т. 92. № 2. С. 145 – 151 0.81 п.л. Вклад автора 70% (ИФ РИНЦ 0.573)

### **Благодарности**

Автор выражает искреннюю благодарность и признательность научному руководителю, к.х.н., доц. Лабутину Т.А. за помощь в постановке задач, обсуждении результатов, нескончаемый интерес к работе и всестороннюю поддержку в освоении новых направлений работы; к.х.н., доц. Попову А.М. за полезные дискуссии и обсуждение научных результатов; к.х.н., с.н.с. Зайцеву С.М. и инж. Крылову И.Н. за техническую поддержку в проведении эксперимента и расчетов; заведующему лабораторией лазерной диагностики д.х.н., проф. Зорову Н.Б. и заведующему кафедрой лазерной химии д.ф.-м.н. Столярову А.В. за ценные советы и помощь в реализации новых идей. Отдельную благодарность автор выражает всему коллективу лаборатории лазерной диагностики и студентам, выполнявшим курсовые и дипломную работы под его руководством.