

Исследование спектрально-временных параметров сверхизлучения на ионах молекулярного азота в воздушном филаменте

И.А.Зятиков, Н.Г.Иванов, В.Ф.Лосев, В.Е.Прокопьев

Приведены результаты исследования с высоким временным разрешением формирования в плазме воздушного филамента сверхизлучения (СИ) на первой отрицательной системе ионов молекулярного азота. Филамент создавался импульсом лазерного излучения фемтосекундной длительности с длиной волны $\lambda = 950$ нм. Впервые измерена реальная длительность импульса СИ на $\lambda = 428$ нм, которая составила 1.15 пс (FWHM). Согласно измерениям ширины спектра, равной 0.26 нм, эта длительность импульса близка к спектрально-ограниченной (1 пс). Показано, что существует запаздывание максимума импульса СИ относительно накачки на 6 пс.

Ключевые слова: филамент, инверсия населенностей, сверхизлучение, фемтосекундная длительность, лазерный импульс, спектр, молекула, ионы.

1. Введение

Сверхизлучение (СИ) в филаменте на первой отрицательной системе иона молекулярного азота, излучающего на длинах волн $\lambda = 391.4$ и 427.8 нм в направлении вперед, впервые получено в 2011 г. при накачке коротким и интенсивным ИК лазерным импульсом на длине волны в средней ИК области ($\lambda = 1.2$ – 2.9 мкм) [1]. Для возникновения СИ на указанных длинах волн использовалось дополнительное излучение на третьей или пятой гармонике накачки, длина волны которого совпадала с длиной волны соответствующего перехода иона молекулярного азота. Несколько позже СИ на указанных переходах наблюдалось при накачке излучением с различными длинами волн, а именно 800 [2–7], 400 [5], 950 [8, 9] и 1500 нм [10]. При этом СИ возникало как в присутствии внешнего излучения на длинах волн генерации [2, 3, 5], так и без него [4–6]. В последнем случае считается, что в качестве внешнего запускающего импульса излучения выступает излучение суперконтинуума, возникающего в филаменте одновременно с излучением ионов молекулярного азота. В работе [7] в качестве запускающего сигнала использовалось излучение второй гармоники с центральной длиной волны 400 нм. В работе [11] показано, что интенсивность линий СИ на длинах волн 391.4 и 427.8 нм зависит от наличия чирпа у импульса накачки. В работе [12] установлено, что поляризация излучения накачки влияет на степень усиления излучения N_2^+ в филаменте.

Несмотря на большое количество работ, посвященных изучению свойств и условий появления СИ, природа его возникновения остается неизвестной. На данный момент существует несколько версий появления оптического усиления в плазме филамента [12–14]. В одной из них

считается, что появление возбужденного состояния $B^2\Sigma_u^+$ происходит в результате повторного столкновения электронов с родительским ионом [12]. Однако при этом трудно объяснить наличие запаздывания максимума свечения относительно момента воздействия. В другой версии предполагается, что после многофотонной ионизации ион N_2^+ из основного состояния $X^2\Sigma_g^+$ переходит в возбужденное состояние $B^2\Sigma_u^+$ за счет поглощения трех фотонов накачки [13], но убедительного экспериментального подтверждения этому нет. В версии [14] считается, что инверсная населенность между состояниями $B^2\Sigma_u^+$ и $X^2\Sigma_g^+$ возникает за счет эффективного заселения состояния $A^2\Pi_u$ из состояния $X^2\Sigma_g^+$ при взаимодействии иона с фотонами накачки. Однако при этом должно возникать излучение на переходе $A^2\Pi_u - X^2\Sigma_g^+$, которое не наблюдается на практике. Существуют и другие версии реализации усиления на переходе $B^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+$, но они слабо доказуемы.

Для понимания природы возникновения СИ важно наиболее полно знать его характеристики и условия появления. Наиболее распространенные методы измерения временного профиля СИ с субпикосекундным разрешением, такие как pump-probe или кросс-корреляционная технология, не позволяют корректно измерить форму импульса усиленного излучения. В методе pump-probe [15] усиливается излучение короткой длительности проходит плазму филамента в различные моменты времени. Суммарная картина усиления во времени отражает временное поведение только лишь инверсной населенности на переходе $B^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+$. В кросс-корреляционном методе [12, 16] регистрируется сигнал суммарной частоты при сложении в нелинейном кристалле излучения накачки и СИ. При этом, как хорошо известно, процесс генерации суммарной частоты является нелинейным. В результате временной профиль импульса излучения суммарной частоты будет отличаться от профиля импульса СИ. Отметим, что характерные времена, измеряемые этими методами, составляют единицы и десятки пикосекунд, поэтому реальную временную форму импульса излучения возможно измерить только лишь с использованием стрик-камеры с высоким временным разрешением. Максимальное вре-

И.А.Зятиков, Н.Г.Иванов, В.Ф.Лосев, В.Е.Прокопьев. Институт сильноточной электроники СО РАН, Россия, 634055 Томск, Академический просп., 2/3; e-mail: lossev@ogl.hcei.tsc.ru

Поступила в редакцию 21 мая 2019 г., после доработки – 17 июля 2019 г.

менное разрешение при регистрации свечения ионов азота было продемонстрировано в работе [17], где использовалась стрик-камера с временным разрешением 30 пс, что совершенно недостаточно для корректного измерения длительности импульса СИ.

В настоящей работе представлены результаты исследований спектральных и временных параметров сверхизлучения на ионах N_2^+ с использованием стрик-камеры с субпикосекундным разрешением без внешнего запускающего сигнала на соответствующем переходе иона.

2. Аппаратура и методика экспериментов

Для создания филамента (лазерной плазмы) использовалось излучение, формируемое твердотельным стартовым комплексом Start-480, который входит в состав мультитераваттной лазерной системы ТНЛ-100 [18]. Комплекс включает в себя титан-сапфировый лазер (задающий генератор) с непрерывным лазером накачки, решетчатый стретчер, регенеративный и два многопроходных усилителя, решетчатый компрессор. На выходе лазерной системы формировались импульсы спектрально-ограниченного излучения с центральной длиной волны 950 нм, диаметром 1.5 см по уровню интенсивности $1/e^2$, длительностью 60 фс (FWHM), энергией до 15 мДж и гауссовым распределением интенсивности. Схема эксперимента показана на рис.1. Филамент формировался в воздухе при фокусировке излучения линзой Л1 с фокусным расстоянием $F = 165$ мм. Линза была несколько повернута относительно оси пучка для придания его волновому фронту определенного астигматизма. В отдельных экспериментах излучение частично преобразовывалось в кристалле KDP во вторую гармонику (ВГ). Излучение ВГ служило в качестве временной реперной точки и использовалось для определения аппаратной функции стрик-камеры.

Спектральный состав свечения, создаваемого филаментом, измерялся как в направлении распространения излучения накачки (СИ), так и поперек его (спонтанное излучение – СПИ). При проведении измерений спектрально-временных характеристик использовалась стрик-камера

Universal Streak Camera C10910 (Hamamatsu), совмещенная со спектрометром Acton SpectraPro SP-2300. Камера имела две временные развертки: быструю (минимальная длительность 100 пс) и медленную (1 нс). Максимальное временное разрешение стрик-камеры в одиночном режиме составляло 0.644 пс. В режиме накопления импульсов временное разрешение для 300 импульсов возрастало до 2 пс из-за наличия джиттера стрик-камеры. Для его уменьшения запуск камеры осуществлялся сигналом с pin-диода, установленного рядом со спектрометром.

В спектрометре имелись три сменные решетки с числом штрихов 50, 300 и 1200 на миллиметр при соответствующем разрешении 2.65, 0.62 и 0.23 нм. Наши измерения проводились с решеткой 1200 штр./мм. Для компенсации времени запаздывания блока развертки стрик-камеры лазерное излучение проходило расстояние около 14 м и лишь потом фокусировалось для создания филамента. Интегральные по времени спектры СИ регистрировались с помощью спектрометра Ocean Optics HR4000 (190–1100 нм, 0.7 нм). Спектр СПИ регистрировался спектрометром Shamrock SR-500i-D1 с разрешением 0.07 нм, совмещенным со стрик-камерой iStar 334T серии AndorTM с временным разрешением 3 нс. При измерении значений параметров, близких к разрешению прибора, реальный параметр A (длительность импульса или спектральная ширина линии) рассчитывался по формуле $A = (B^2 - C^2)^{0.5}$, где B – измеренный параметр, а C – разрешение прибора.

3. Результаты экспериментов и их обсуждение

Как уже отмечалось выше, волновому фронту фокусируемого пучка придавался некоторый астигматизм. При этом длина светящейся плазмы в области фокальной перетяжки увеличивалась, а интенсивность свечения снижалась. СИ на ионах молекулярного азота наблюдалось по направлению распространения накачки при определенном повороте линзы. На рис.2 представлена фотография светящейся плазмы в области перетяжки при наличии аберрации и в ее отсутствие. Продольный размер плаз-

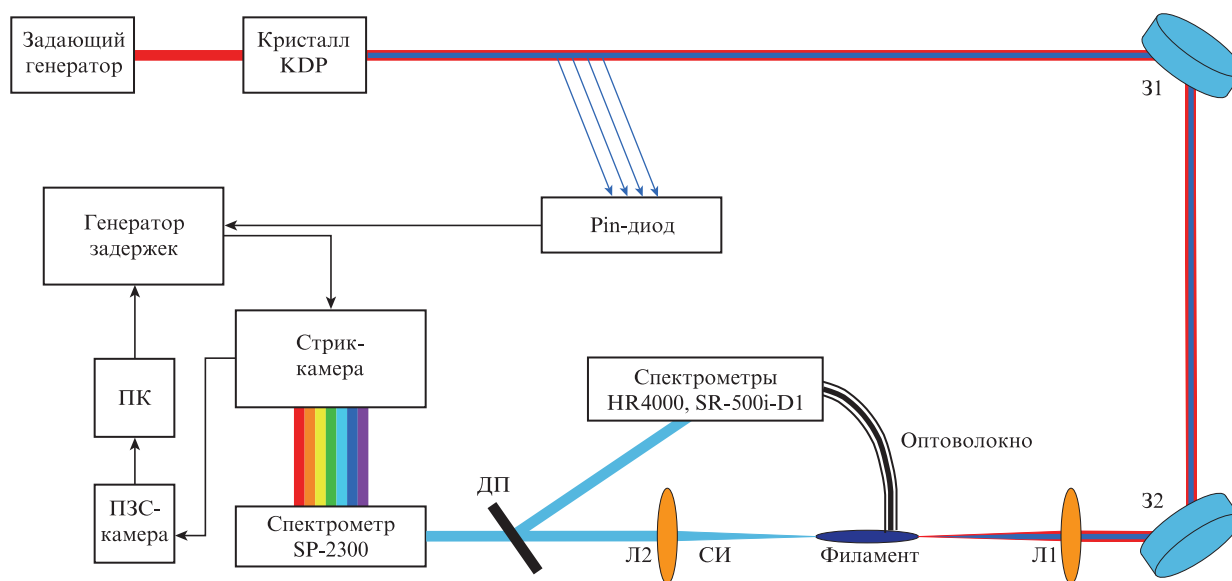


Рис.1. Схема эксперимента: 31 и 32 – поворотные зеркала; Л1 и Л2 – положительные линзы с $F = 16.5$ см; ДП – делительная пластинка; ПК – персональный компьютер.

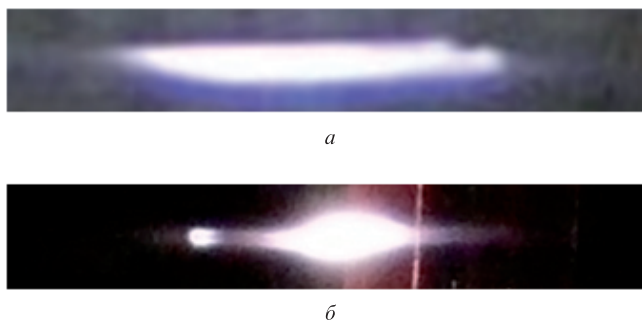


Рис.2. Фотографии светящейся плазмы при наличии (а) и отсутствии (б) астигматизма у фокусируемого пучка. Излучение накачки распространяется справа налево.

менного образования на рис.2,а составляет 3 мм, его диаметр – 0.3 мм. Наличие СИ только лишь в условиях абберации вполне объяснимо. Действительно, в работе [19] показано, что при жесткой фокусировке в свечении плазмы филамента отсутствуют молекулярные линии, а доминируют линии атомов и их ионов. С увеличением фокусного расстояния линзы, наоборот, атомные линии в спектре исчезают, а остаются лишь линии молекулярного азота и его иона. Объяснение такой зависимости состоит в следующем. При короткой фокусировке концентрация плазмы достигает крайне высоких значений ($\sim 10^{18}$ см⁻³). В результате этого скорость тушения образующихся молекулярных ионов азота становится столь высокой, что они не успевают высвечиваться. Создание астигматизма в фокусируемом пучке уменьшает концентрацию электронов в плазме и увеличивает длину, на которой возможно усиление.

На рис.3,а представлен интегральный спектр СИ, снятый по ходу распространения накачки в диапазоне 370–440 нм. Соотношение между интенсивностями линий с $\lambda = 391.4$ и 427.8 нм регулировалось за счет изменения угла поворота линзы. Интенсивность линии с $\lambda = 427.8$ нм была максимальной в случае, когда максимум свечения плазмы филамента находился в передней его части. При определенных условиях наблюдались также другие линии перехода $V^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+$ молекулярного иона азота: 358.2 (1–0), 388.4 (1–1) и 470.9 (0–2) нм. Отметим, что СИ имело существенно большую мощность и высокую направленность по сравнению со СПИ. Поскольку в эксперименте всегда регистрировался суперконтинуум, то мы, как и авторы других работ, считаем его запускающим сигналом для СИ.

На рис.3,б приведены спектры СИ и СПИ на длине волны 427.8 нм. Видно, что полуширина спектров практически одинакова (0.35 нм). Однако с учетом аппаратной функции регистрирующего прибора полуширина спектра СИ составляет 0.26 нм, а СПИ – 0.34 нм.

Измерение временного профиля излучения осуществлялось с помощью стрик-камеры Hamamatsu, совмещенной со спектрометром. При этом СИ регистрировалось в однократном режиме, а СПИ – в режиме накопления в направлении поперек филамента. В последнем случае для уменьшения временного разброса использовался режим выборки импульсов. На рис.4 представлены совмещенные во времени профили интенсивности излучения второй гармоники, характеризующей момент воздействия, сверхизлучения и спонтанного излучения.

Для корректного измерения проводилась калибровка прибора при регистрации им излучений второй и третьей

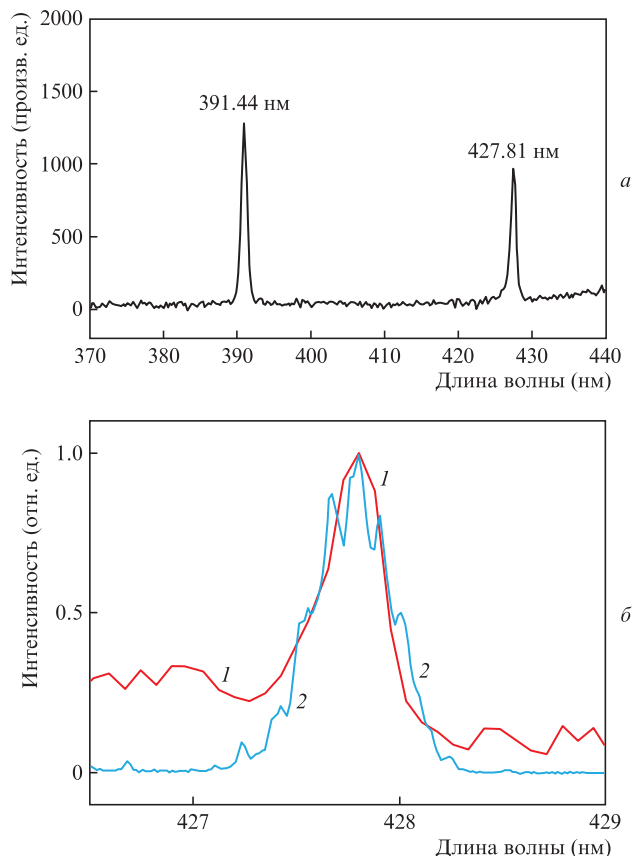


Рис.3. Интегральный спектр линий сверхизлучения N_2^+ (а) и спектры СПИ (1) и СИ (2) на длине волны 427.8 нм (б).

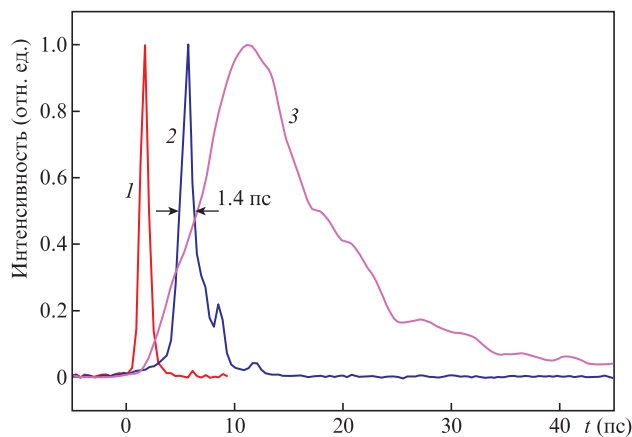


Рис.4. Временные профили импульсов излучения второй гармоники (1), сверхизлучения (2) и спонтанного излучения (3) на длине волны 427.8 нм. Ноль времени соответствует приходу импульса накачки.

гармоник, а также белого света [20]. Найденные таким образом поправки учитывались при построении временных профилей излучения. Профиль ВГ на рис.4 отражает аппаратную функцию прибора, начало роста ее интенсивности (нулевая точка) соответствует моменту фемтосекундного воздействия. Как видно из рисунка, максимум интенсивности СИ отстает от этого момента на 6 пс. Такое поведение импульса генерации можно объяснить следующим образом. С одной стороны, это обусловлено тем, что излучение СИ отвечает узкополосному переходу, а поскольку длительность импульса обратно пропорцио-

нальна ширине линии перехода, то возникает запаздывание и увеличение длительности импульса СИ по сравнению с длительностью импульса накачки. С другой стороны, как видно из рис.4, максимум интенсивности спонтанного излучения запаздывает относительно импульса накачки на 12 пс, что говорит о медленном росте населенности верхнего состояния $V^2\Sigma_u^+$. Резкий спад интенсивности СИ после 6 пс также может быть обусловлен «снятием» инверсной населенности усиливаемым излучением, в то время как спад интенсивности спонтанного излучения после 12 пс вызван тушением уровня $V^2\Sigma_u^+$ электронами [3]. Наличие дополнительных максимумов на импульсе генерации, отстоящих друг от друга на 4 пс, связано, скорее всего, с полупериодом вращения молекулярного иона азота, что также отмечалось в работах [3, 14, 16].

С учетом измеренной аппаратной функции прибора (0.8 пс) длительность импульса СИ составляет 1.15 пс. Исходя из соотношения неопределенности для гауссовой формы импульса и ширины спектра 0.26 нм, можно заключить, что длительность СИ (1 пс) близка к спектрально-ограниченной.

4. Заключение

Таким образом, показано, что импульсы сверхизлучения на молекулярных ионах азота имеют практически спектрально-ограниченную длительность. Это следует из результатов измерений длительности импульса и его спектрального состава. Данное излучение возникает лишь в условиях астigmatизма пучка накачки, при которых реализуется пониженная концентрация плазмы филамента. Задержка максимума интенсивности СИ на переходе $V^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+$ относительно импульса накачки составляет 6 пс, что обусловлено узкой шириной линии СИ и медленным ростом населенности верхнего уровня $V^2\Sigma_u^+$.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научных проектов № 19-48-700016 р-сибирь и № 18-08-00383 а.

1. Yao J., Zeng B., Xu H., et al. *Phys. Rev. A*, **84** (5), 051802 (2011).
2. Ni J., Chu W., Jing C., et al. *Opt. Express*, **21** (7), 8746 (2013).
3. Yao J., Li G., Jing C., et al. *New J. Phys.*, **15** (2), 023046 (2013).
4. Liu Yi., Brelet Y., Point G., et al. *Opt. Express*, **21** (19), 22791 (2013).
5. Wang Tie-Jun, Ju Jingjing, Daigle Jean-Francois, et al. *Laser Phys. Lett.*, **10**, 1 (2013).
6. Wang Tie-Jun, Daigle Jean-Francois, Ju Jingjing, Yuan Shuai *Phys. Rev. A*, **88**, 053429 (2013).
7. Helong Li, Hongwei Zang, Yue Su, et al. *J. Opt.*, **19**, 124006 (2017).
8. Prokopiev V.E., Ivanov N.G., Krivonosenko D.A., Losev V.F. *Proc. Conf. «The Interaction of Highly Concentrated Flows of Energy Materials in Advanced Technology and Medicine»* (Novosibirsk, 2013, p. 6).
9. Прокопьев В.Е., Иванов Н.Г., Кривonosенко Д.А., Лосев В.Ф. *Изв. вузов. Физика*, **56** (11), 66 (2013).
10. Azarm A., Corkum P., Polynkin P. *Proc. CLEO: Applications and Technology 2016* (San Jose, CA, US, 2016, paper JTh4B.9).
11. Chenrui Jing, Hongqiang Xie, Guihua Li, et al. *Laser Phys. Lett.*, **12**, 015301 (2015).
12. Yi Liu, Pengji Ding, Guillaume Lambert, et al. *Phys. Rev. Lett.*, **115**, 133203 (2015).
13. Chin S.L., Xu H., Cheng Y., Xu Z. *Chin. Opt. Lett.*, **10**, 013201 (2013).
14. Jinping Yao, Wei Chu, Zhaoxiang Liu, et al. *Appl. Phys. B*, **124**, 73 (2018).
15. Xu H.L., Azarm A., Bernhardt J., Kamali Y., Chin S.L. *Chem. Phys.*, **360**, 171 (2009).
16. Xunqi Zhong, Zhiming Miao, Linlin Zhang, et al. *Phys. Rev. A*, **96**, 043422 (2017).
17. Mingwei Lei, Chengyin Wu, Qingqing Liang. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **50**, 145101 (2017).
18. Alekseev S.V., Aristov A.I., Ivanov N.G., et al. *Laser Partical Beams*, **31** (1), 17 (2013).
19. Ivanov N.G., Losev V.F., Prokop'ev V.E., et al. *Opt. Commun.*, **431**, 120 (2019).
20. Ivanov N.G., Losev V.F., Prokop'ev V.E., Sitnik K.A. *Opt. Commun.*, **387**, 322 (2017).