

## Сверхизлучение на ионах молекулярного азота в филаменте

Н.Г. Иванов<sup>1</sup>, В.Ф. Лосев<sup>1,2</sup>, В.Е. Прокопьев<sup>1,3</sup>, К.А. Ситник<sup>1\*</sup>

<sup>1</sup> Институт сильноточной электроники СО РАН  
634055, г. Томск, пр. Академический, 2/3

<sup>2</sup> Национальный исследовательский Томский политехнический университет  
634050, г. Томск, пр. Ленина, 30

<sup>3</sup> Национальный исследовательский Томский государственный университет  
634050, г. Томск, пр. Ленина, 36

Поступила в редакцию 10.12.2015 г.

Приводятся экспериментальные результаты исследования условий возникновения сверхизлучения на резонансном электронном переходе ионов азота  $B^3P_g - A^3\Sigma_u^+$  при оптической накачке атмосферного воздуха и чистого азота импульсом лазерного излучения фемтосекундной длительности с длиной волны 950 нм. Показано, что сверхизлучение возникает в результате селективного заселения возбужденного состояния  $N_2^+(B^2\Sigma_u^+, v' = 0)$  при многофотонном возбуждении автоионизационного состояния молекулы азота с энергией 18,7 эВ. Заправочными фотонами для сверхизлучения на переходах иона молекулярного азота являются фотоны осевого суперконтинуума, возникающего в филаменте на соответствующих длинах волн. Реализован режим сверхизлучения на длине волны 358,4 нм, отнесенный к переходам молекулы CN.

**Ключевые слова:** филамент, инверсия населенностей, фемтосекундный лазерный импульс, многофотонная ионизация, молекула, ионы; filament, population inversion, femtosecond laser pulse, multiphoton ionization, molecule, ions.

### Введение

Генерация на молекулах и ионах азота была получена достаточно давно при накачке электрическим разрядом и электронным пучком [1–6]. При этом генерация на молекулах азота наблюдается в УФ-области спектра (337,1 нм, 357,7 нм) и на ионах в синей области (427,8 нм). Отличительным признаком указанных выше линий генерации при всех видах возбуждения являются большие коэффициенты усиления, поэтому они могут генерировать в режиме сверхизлучения при длине активной среды порядка единиц сантиметров без применения резонаторов.

Именно по этой причине в 2003 г. было получено первое сверхизлучение на второй положительной системе молекулы азота в филаменте при накачке атмосферного воздуха пучком фемтосекундного лазера (ФЛ) с длиной волны 800 нм [7]. Затем это было подтверждено при накачке пучком ФЛ воздуха [8] и смеси азота с аргоном [9]. В 2011 г. была получена генерация на первой отрицательной системе  $B^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+$  иона молекулярного азота, излучающего на длинах волн 391,4 нм (переход  $v' = 0 - v'' = 0$ ) и 427,8 нм (переход  $v' = 0 - v'' = 1$ )

в направлении вперед при накачке коротким и интенсивным инфракрасным лазерным импульсом на длинах волн в средней ИК-области ( $\lambda = 1200$ – $2900$  нм) [10]. Для возникновения генерации на указанных выше длинах волн длина волны третьей или пятой гармоник лазера накачки должна была совпадать с ними. Позднее было показано, что генерация на указанных переходах возникает и при накачке фемтосекундным лазером с длиной волны 800 нм в присутствии второго лазера, работающего на длинах волн вблизи 400 нм [11, 12]. В последнем случае второй лазер является аналогом третьей или пятой гармоник лазеров накачки, работающих в среднем ИК-диапазоне.

В наших работах [13, 14] было показано, что сверхизлучение на длине волны  $\lambda = 427,8$  нм можно получить при накачке чистого азота в кювете (при атмосферных давлениях) излучением фемтосекундного лазера с  $\lambda = 950$  нм. Чуть позднее в том же году сверхизлучение на той же длине волны было получено при облучении чистого азота в кювете [15] и атмосферном воздухе [16, 17] излучением фемтосекундного лазера с  $\lambda = 800$  нм. При этом в работах [11, 12, 15–17] было отмечено, что в качестве инициирующего излучения, приводящего к экспоненциальному увеличению фотонов на лазерных переходах ионов молекулярного азота, служат фотоны суперконтинуума (лазер белого света).

Несмотря на то что в настоящее время число экспериментальных работ в этом направлении рас-

\* Николай Георгиевич Иванов (ivanov.ng@sibmail.com); Валерий Федорович Лосев (losev@ogl.hcei.tsc.ru); Владимир Егорович Прокопьев (prokop@ogl.hcei.tsc.ru); Кирилл Александрович Ситник (ska\_science@mail.ru).

тет, механизмы создания инверсии населенности и генерации в плазме филамента на указанных выше переходах в молекулярном ионе азота до конца не ясны.

В настоящей статье приведены результаты экспериментального исследования механизма создания инверсии на резонансном электронном переходе иона  $N_2^+$  при оптической накачке атмосферного воздуха и чистого азота фемтосекундным лазерным излучением с длиной волны 950 нм. Особое внимание при этом уделяется вопросу эффективно формирования осевого суперконтинуума.

## 1. Аппаратура и методики эксперимента

Для формирования филамента использовалось излучение, формируемое твердотельным стартовым комплексом «Start-480», который входит в состав мультитераваттной лазерной системы THL-100 [18–20]. Комплекс включает в себя: Ti:Sa-задающий генератор с непрерывным лазером накачки, решетчатый стретчер, регенеративный и многопроходные усилители с импульсными лазерами накачки на длине волны 532 нм, решетчатый компрессор. На выходе лазерной системы излучение на длинах волн 940–950 нм имело диаметр 1 см, длительность импульса 50 фс и энергию до 15 мДж. Филамент формировался в сфокусированном пучке в воздухе либо в кювете с азотом. Фокусное расстояние сферического зеркала при этом изменялось в широком диапазоне от 3 см до 12 м. Спектральный состав свечения, создаваемого филаментом, измерялся как в направлении распространения излучения накачки, так и поперек него. Для проведения измерений спектров использовались спектрометры Ocean Optics HR4000 с разрешением 0,03 нм в диапазоне длин волн 250–425 нм и широполостный (200–1100 нм) спектрометр HR4000 с разрешением 0,75 нм.

## 2. Результаты экспериментов

При использовании большой длины фокусировки (6–12 м) излучения в воздухе мы наблюдали филамент длиной до 5 м. При энергии излучения 5–7 мДж этот филамент являлся источником направленного белого света (осевого суперконтинуума – СК). На рис. 1 представлено пятно белого света на удалении 12 м от конечного участка филамента. Согласно нашим измерениям расходимость белого света была близка к дифракционной. Типичный спектр данного излучения представлен на рис. 2. Видно, что в спектре наблюдаются мощное свечение в области 762 нм, сравнимое по интенсивности с накачкой, и некоторая регулярно модулированная структура в сторону коротких длин волн. С увеличением энергии накачки до 15 мДж направленность белого света исчезала, разные спектральные компоненты СК распространялись под разными углами относительно оси распространения излучения с  $\lambda = 950$  нм.

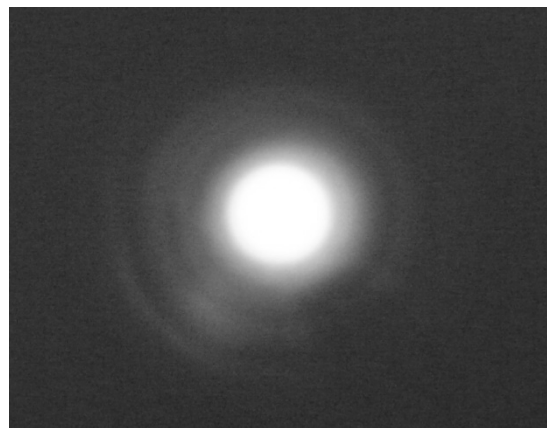


Рис. 1. Пятно осевого СК

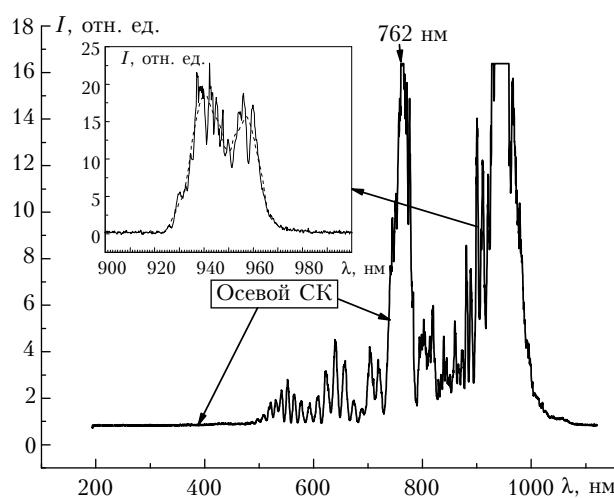


Рис. 2. Спектр осевого СК и излучения накачки

С уменьшением длины фокусировки и ростом интенсивности излучения в фокальной перетяжке спектр СК уширялся в УФ-диапазон вплоть до  $\lambda = 300$  нм. На рис. 3 представлен спектр СК при использовании линзы с фокусным расстоянием  $F = 15$  см.

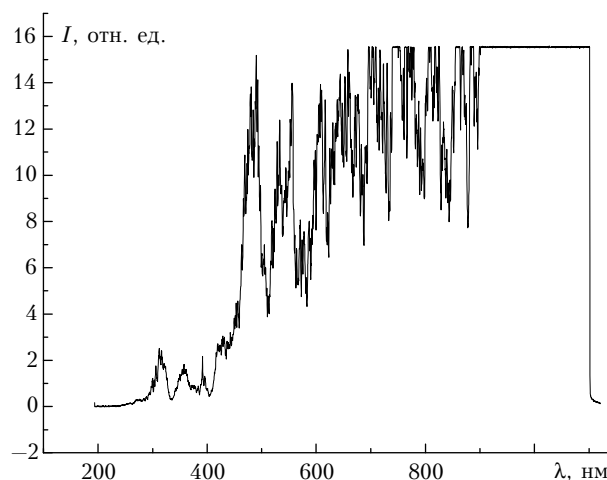


Рис. 3. Спектр излучения, распространяющегося по направлению накачки,  $F = 15$  см

Модуляция в спектре носила нерегулярный характер и менялась от импульса к импульсу. По направлению накачки наблюдалось лишь коническое излучение СК, которое имело также стохастический характер. Однако при определенных условиях, прежде всего это небольшое снижение энергии накачки (12–14 мДж) и изменение формы каустики фокусируемого излучения, регистрировался направленный СК (осевой СК). В этом случае на спектре, снимаемом в воздухе по направлению распространения накачки, строго на оси пучка наблюдалась линия сверхизлучения на ионах  $N_2^+$  с  $\lambda = 427,8$  нм (рис. 4, а). В аналогичных условиях накачки при создании филамента в кювете с чистым азотом при повышенном давлении (4–6 атм) наблюдалось сверхизлучение на ионах  $N_2^+$  с  $\lambda = 391,4$  нм (рис. 4, б). Наличие сверхизлучения на этих линиях однозначно было связано с ростом интенсивности СК в области 350–450 нм, а также с наличием третьей гармоники ( $\lambda = 317$  нм), распространяющейся по оси. Полуширина линий сверхизлучения по нашим измерениям составляла 0,9 нм.

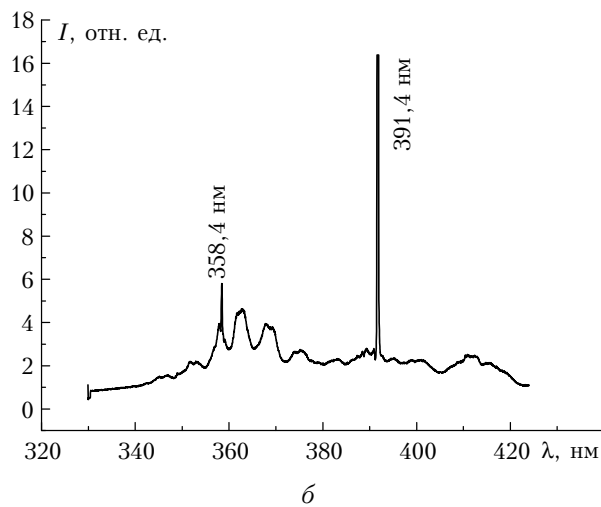
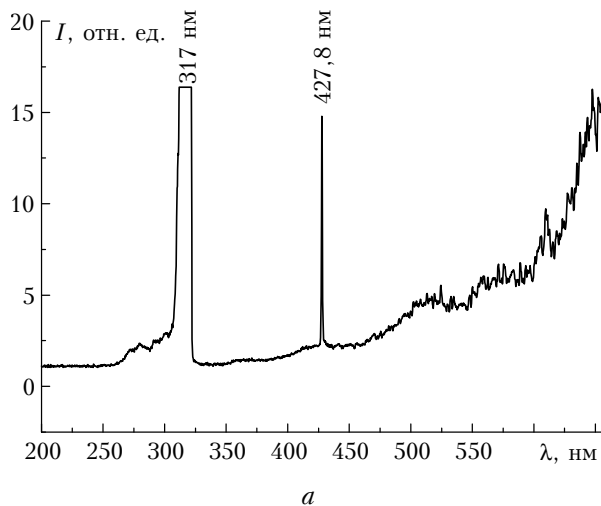


Рис. 4. Спектры излучения, распространяющегося по направлению накачки: а – филамент в воздухе; б – филамент в кювете, 6 атм  $N_2$

Одновременно с генерацией на переходах иона молекулярного азота наблюдалось сверхизлучение на длине волны  $\lambda = 358,4$  нм. При этом филамент возникал в кювете с азотом, находящимся под давлением 6 атм, и небольшим количеством паров спирта (рис. 4, б). Наблюдаемая линия, по нашему мнению, принадлежит переходам молекулы CN. На рис. 5 представлен спектр свечения филамента в направлении, перпендикулярном его оси. Обращает на себя внимание тот факт, что переходы на молекулярном азоте представлены в широком объеме, тогда как для иона молекулярного азота наблюдаются лишь переходы на первой отрицательной системе  $B^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+$  между колебательными состояниями 0–0 и 0–1 (линия не показана).

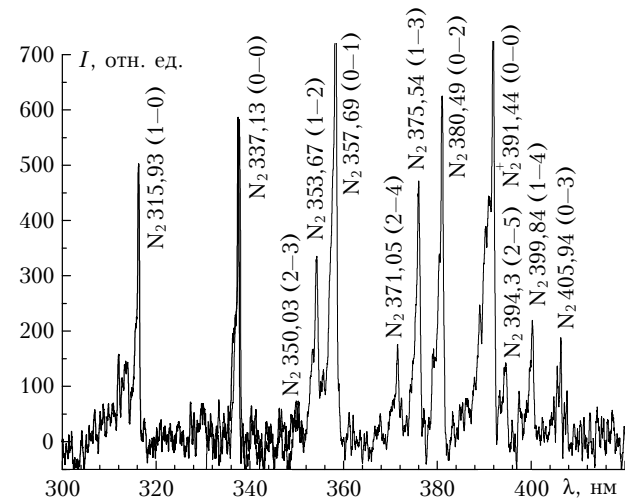


Рис. 5. Спектр свечения филамента в направлении, перпендикулярном его оси

Интенсивность линий для  $N_2^+$  сравнима с интенсивностью линий  $N_2$ . Обе эти особенности не характерны для свечения воздуха (азота), возбуждаемого высоковольтным разрядом [13].

### 3. Обсуждение

Особенность нашего эксперимента заключается в том, что нам удалось получить сверхизлучение на двух длинах волн – 427,8 и 391,4 нм, при этом использовалось только излучение накачки с  $\lambda = 950$  нм. Известно, что ионизация молекул азота происходит преимущественно через автоионизационные (AI) состояния [21]. Специфика молекулы азота состоит в том, что для нее существуют AI-состояния, квазирезонансные возбужденным состояниям иона молекулярного азота  $B^2\Sigma_u^+$  и  $X^2\Sigma_g^+$  с колебательным числом  $v' = 0$ . В нашем случае при многофотонной ионизации молекул азота излучением ФЛ с  $\lambda = 950$  нм энергия 15 фотонов накачки превышает энергию верхнего лазерного уровня (18,7 эВ)  $B^2\Sigma_u^+$  ( $v' = 0$ ) на 0,88 эВ. С другой стороны, энергия 12 фотонов практически совпадает с энергией AI-состояния нижнего лазерного уровня  $X^2\Sigma_g^+$  ( $v'' = 0$ ). Так как время жизни AI-состояния

составляет десятки фемтосекунд, возникает возможность получить инверсную населенность в течение воздействия ФЛ-излучения. Однако создать инверсию на переходе  $V^2\Sigma_u^+$  ( $v' = 0$ ) –  $X^2\Sigma_g^+$  ( $v'' = 0$ ) достаточно трудно. Намного проще ее получить на переходе  $V^2\Sigma_u^+$  ( $v' = 0$ ) –  $X^2\Sigma_g^+$  ( $v'' = 1$ ), поскольку населенность первого колебательного уровня  $X^2\Sigma_g^+$  ( $v'' = 1$ ) будет существенно меньше, чем нулевого  $X^2\Sigma_g^+$  ( $v'' = 0$ ). По нашему мнению, именно с этим связано наблюдение всеми авторами в воздушном филаменте сверхизлучения на длине волны 427,8 нм, что соответствует переходу электрона между колебательными подуровнями  $v' = 0 - v'' = 1$ .

Одним из условий существования сверхизлучения в нашем случае являлось наличие осевого СК. Его появление во многом зависит от интенсивности накачки. При малых ее интенсивностях осевой СК имеется лишь до длин волн 450–500 нм. При больших интенсивностях СК расширяется до  $\lambda = 300$ –350 нм, но становится преимущественно коническим. То есть условия существования осевого СК в нужном диапазоне длин волн очень ограничены. В этом плане использование внешней подсветки, как это было сделано в работе [12], несомненно выгодно.

Важным параметром сверхизлучения на линиях 427,8 и 391,4 нм является их короткая длительность, которая может быть использована при изучении быстрых процессов. В наших условиях спектральная ширина этих линий была примерно одинаковой и составляла 0,8–0,9 нм на полувысоте интенсивности. Из соотношения неопределенности для гауссова пучка  $\Delta\nu \cdot \Delta t \geq 0,441$  длительность импульса данного излучения должна быть не менее 250–350 фс. Отметим, что в работе [15] эта длительность составляла 900 фс.

Таким образом, реализация в наших условиях сверхизлучения на линиях 427,8 и 391,4 нм при накачке излучением основной гармоники обусловлена, по нашему мнению, рядом благоприятных факторов. Прежде всего, это связано с длиной волны 950 нм. Поскольку для нее энергия фотона составляет 1,3 эВ, то для многофотонной ионизации молекулярного азота в верхнем лазерном уровне (18,7 эВ) требуется 15 фотонов. При этом превышение энергии над уровнем  $V^2\Sigma_u^+$  ( $v' = 0$ ) составляет 0,88 эВ, в то время как в работах с  $\lambda = 800$  нм [11, 12, 15–17] требуется 13 фотонов, что дает суммарную энергию 20,15 эВ и превышение верхнего лазерного уровня на 1,45 эВ. То есть резонансная передача энергии на верхний лазерный уровень для 950 нм является более эффективной, чем для 800 нм. Кроме того, в нашем случае многофотонная ионизация может также эффективно осуществляться пятью фотонами третьей гармоники.

Этого нельзя сказать для накачки с  $\lambda = 800$  нм, когда третья гармоника может создавать верхний лазерный уровень тоже лишь только пятью фотонами, но при этом превышение энергии над верхним лазерным уровнем составит 4,55 эВ. Возможно, что более эффективной многофотонной ионизацией азота излучением с  $\lambda = 950$  нм объясняется

наблюдаемое нами сверхизлучение на  $\lambda = 391,4$  нм, в то время как в работе [17] оно получено только при накачке второй гармоникой либо с помощью внешнего излучения (затравки) мощного СК. Наблюдение нами сверхизлучения на  $\lambda = 391,4$  нм при повышенном давлении азота, возможно, также связано с тем, что с ростом давления осевой суперконтинуум переходит в конический. При этом длинноволновая его компонента отклоняется от оси сильней и осевая интенсивность на  $\lambda = 391,4$  нм становится более 427,8 нм.

## Заключение

Таким образом, нами впервые экспериментально получено сверхизлучение в атмосферном воздухе ( $\lambda = 427,8$  нм) и чистом азоте ( $\lambda = 391,4$  нм) на ионах молекулярного азота при накачке фемтосекундным импульсом излучения на длинах волн вблизи 950 нм.

Показано, что инверсия населенности на переходе  $V^2\Sigma_u^+$  –  $X^2\Sigma_g^+$  молекулярного иона азота возникает в результате селективного заселения возбужденного состояния  $N_2 + (V^2\Sigma_u)$  при многофотонном возбуждении автоионизационного состояния молекулы азота с энергией 18,7 эВ. Затравочными фотонами для сверхизлучения на переходах иона молекулярного азота являются фотоны осевого суперконтинуума, возникающего в филаменте на соответствующих длинах волн.

Одновременно с генерацией на переходах иона молекулярного азота был реализован режим сверхизлучения на  $\lambda = 358,4$  нм. Данное излучение нами было отнесено к переходам молекулы CN.

Работа поддержана Российским Фондом фундаментальных исследований, гранты № 14-28-02023-офи-м, 15-08-02905, 16-08-00204.

1. Heard H.G. Ultra-violet Gas Laser at Room Temperature // Nature. 1963. V. 200. P. 667–672.
2. Svedberg A., Hogborg L., Nilsson R. Observation of superradiant laser action in spark discharges in air at atmospheric pressure // Appl. Phys. Lett. 1968. V. 12, N 3. P. 102–108.
3. Antonov V.C., Knyazev I.N., Movshev V.G. Generation UV nitrogen laser in the open air of the cuvette with transverse excitation // Quantum Electron. 1974. V. 1, N 2. P. 433–435.
4. Searles S.K. Superfluorescent laser emission from electron-beam pumped Ar + N<sub>2</sub> mixtures // Appl. Phys. Lett. 1974. V. 25, N 12. P. 735–737.
5. Collins C.B., Conningham A.J., Curry S.M. Stimulated emission from charge-transfer reactions in the afterglow of an e-beam discharge in N<sub>2</sub> + He high pressure mixtures // Appl. Phys. Lett. 1974. V. 24, N 10. P. 477–478.
6. Ishchenko V.N., Lisitsyn V.N., Razhev A.M., Starinsky V.N., Chapovsky P.L. The N<sub>2</sub><sup>+</sup> Laser // Opt. Commun. 1975. V. 13, N 3. P. 231–234.
7. Luo Q., Lu W., Chin S.L. Lasing action in air induced by ultra-fast laser filamentation // Appl. Phys. B. 2003. V. 76, N 3. P. 337–340.
8. Kartashov D., Alisauskas S., Andriukaitis G., Pugzlys A., Shneider M., Zheltikov A., Chin S.L., Baltuška A.

- Free-space nitrogen gas laser driven by a femtosecond filament // *Phys. Rev. A*. 2012. V. 86. 033831.
9. *Shneider M.N., Bakuška A., Zheltikov A.M.* Population inversion of molecular nitrogen in an Ar : N<sub>2</sub> mixture by selective resonance-enhanced multiphoton ionization // *J. Appl. Phys.* 2011. V. 110. 083112.
  10. *Yao J., Zeng B., Xu H., Li G., Chu W., Ni J., Zhang H., Chin S.L., Cheng Y., Xu Z.* High-brightness switchable multiwavelength remote laser in air // *Phys. Rev. A*. 2011. V. 84, N 5. 051802.
  11. *Ni J., Chu W., Jing C., Zhang H., Zeng B., Yao J., Li G., Xie H., Zhang C., Xu H., Chin S.L., Cheng Y., Xu Z.* Identification of the physical mechanism of generation of coherent N<sub>2</sub> emissions in air by femtosecond laser excitation // *Opt. Express*. 2013. V. 21, N 7. P. 8746–8752.
  12. *Yao J., Li G., Jing C., Zeng B., Chu W., Ni J., Zhang H., Xie H., Zhang C., Li H., Xu H., Chin S.L., Cheng Y., Xu Z.* Remote creation of coherent emissions in air with two-color ultrafast laser pulses // *New J. Phys.* 2013. V. 15, N 2. 023046.
  13. *Prokopyev V.E., Ivanov N.G., Krivonosenko D.A., Losev V.F.* A study of elementary physical processes in the plasma regions filamentation and optical breakdown in the propagation of fs laser pulses with a wavelength of 950 nm in air at atmospheric pressure // Program of V Russian Conference «The interaction of highly concentrated flows of energy materials in advanced technology and medicine». Novosibirsk, 26–29 March 2013. Новосибирск: Изд-во ООО «Параллель», 2013. P. 6.
  14. *Prokopyev V.E., Ivanov N.G., Krivonosenko D.A., Losev V.F.* Investigation of the elementary physical processes in plasma of filamentation and optical breakdown regions accompanying the propagation of the femtosecond laser pulse with wavelength of 950 nm in air at atmospheric pressure // *Russian Phys. J.* 2014. V. 56, N 11. P. 1274–1280.
  15. *Liu Yi., Brelet Y., Point G., Houard A., Mysyrowicz A.* Self-seeded lasing in ionized air pumped by 800 nm femtosecond laser pulses // *Opt. Express*. 2013. V. 21, N 19. P. 22791–22798.
  16. *Wang Tie-Jun, Ju Jingjing, Daigle Jean-Francois, Yuan Shuai, Li Ruxin, See Leang Chin.* Self-seeded forward lasing action from a femtosecond Ti:Sapphire laser filament in air // *Laser Phys. Lett.* 2013. V. 10, N 12. P. 1–4.
  17. *Tie-Jun Wang, Jean-Francois Daigle, Jingjing Ju, Shuai Yuan, Ruxin Li, See Leang Chin.* Forward lasing action at multiple wavelengths seeded by white light from a femtosecond laser filament in air // *Phys. Rev. A*. 2013. V. 88, iss. 5. 053429 (5 p).
  18. *Алексеев С.В., Иванов Н.Г., Ковальчук Б.М., Лосев В.Ф., Месяц Г.А., Мухеев Л.Д., Панченко Ю.Н., Ратахин Н.А., Ястремский А.Г.* Тераваттная гибридная лазерная система THL-100 на базе фотодиссоционного XeF(C–A) усилителя // *Оптика атмосферы и океана*. 2012. Т. 25, № 3. С. 221–225.
  19. *Alekseev S.V., Aristov A.I., Ivanov N.G., Kovalchuk B.M., Losev V.F., Mesyats G.A., Mikheev L.D., Panchenko Yu.N., Ratakhin N.A.* Multiterawatt femtosecond laser system in the visible with photochemically driven XeF(C–A) boosting amplifier // *Laser Part. Beams*. 2013. V. 31, N 1. P. 17–21.
  20. *Алексеев С.В., Иванов М.В., Иванов Н.Г., Лосев В.Ф., Месяц Г.А., Панченко Ю.Н., Ратахин Н.А.* Параметры гибридной фемтосекундной лазерной системы THL-100 после модернизации // *Изв. вузов. Физ.* 2015. Т. 58, № 8. С. 50–54.
  21. *Madden R.P., Parr A.G.* Resonance phenomena in molecular photoionization: Impact of synchrotron radiation // *Appl. Optics*. 1982. V. 21, N 2. P. 179–188.

*N.G. Ivanov, V.F. Losev, V.E. Prokop'ev, K.A. Sitnik.* **Superradiance on ions of molecular nitrogen in filaments.**

The experimental results of the study of population inversion in the resonant electronic transition  $B^3\Pi_g - A^3\Sigma_u^+$  of nitrogen ions by optical pump of air and pure nitrogen by a femtosecond laser pulse at a wavelength of 950 nm are presented. It is shown that the inversion results from selective settling of  $N_2^+$  ( $B^2\Sigma_u^+, v' = 0$ ) excited state during multiphoton excitation of the autoionization state of the nitrogen molecule with energy of 18.7 eV. Seed photons for superradiance at transitions of molecular nitrogen ions are photons of the axial supercontinuum occurring in a filament at the corresponding wavelengths. The mode of the superradiance at the wavelength  $\lambda = 358.4$  nm, referred to the transition of the CN molecules, was implemented.