

НЕЛИНЕЙНЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ ЯВЛЕНИЯ В АТМОСФЕРЕ И ОКЕАНЕ

УДК 535.14, 535.232/.233

Трансформация спектральных характеристик фемтосекундного лазерного импульса при распространении в атмосфере

В.Е. Прокопьев^{1, 2}, Д.М. Лубенко^{1, 3*}

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

²Национальный исследовательский Томский государственный университет
634050, г. Томск, пр. Ленина, 36

³Национальный исследовательский Томский политехнический университет
634050, г. Томск, пр. Ленина, 30

Поступила в редакцию 25.12.2023;
после доработки 25.04.2024;
принята к печати 07.06.2024

Приводятся результаты экспериментальных исследований по изучению механизмов трансформации спектра фемтосекундного лазерного импульса, возникающего при его распространении в атмосфере и в чистом молекулярном азоте в режиме филаментации. При этом спектральное уширение излучения накачки является результатом совместного действия стокового вынужденного комбинационного рассеяния на вращательных переходах молекул азота воздуха, когерентного антистоксова рассеяния света и параметрического четырехволнового смешения. Уширение происходит в широком диапазоне: от 350 до 1100 нм. Исследование таких процессов в перспективе позволит создавать высокоэффективные источники белого света для атмосферной спектроскопии и дистанционного зондирования.

Ключевые слова: фемтосекундный лазер, ультракороткий лазерный импульс, уширение спектра, вынужденное комбинационное рассеяние, четырехволновой параметрический процесс; femtosecond laser, ultrashort laser pulse, spectrum broadening, simulated Raman scattering, four-wave parametric process.

Введение

Создание фемтосекундных лазеров привело к открытию и исследованию множества интересных физических явлений при распространении ультракоротких световых импульсов в различных средах. Генерация суперконтинуума (СК) белого цвета, происходящая в области филамента (тонкой светящейся плазменной нити, возникающей в области фокальной перетяжки) является одним из них. Самофокусировка и филаментация, наблюдаемые при распространении света в различных средах, начали изучаться еще в 1960-х гг. [1–7]. Видимый СК впервые наблюдали и исследовали Р. Альфано и С. Шапиро при распространении интенсивных пикосекундных импульсов излучения в твердых телах в конце 1960-х гг. [7].

С появлением пикосекундных и фемтосекундных лазеров особое внимание стало уделяться исследованию филаментации в воздухе и возникающему при этом СК. Филаментация при распространении излучения Ti:Sapphire-лазера с длиной волны $\lambda = 775$ нм в воздухе, сопровождаемая генерацией СК, впервые была описана в работе [8]. При ли-

дарных исследованиях фемтосекундных лазерных импульсов группа проекта Teramobile ввела понятия white-light continuum и white-light filament [9, 10]. В работе [11] выделили различные области одиночной филаментации, наиболее полно отражающие доминирующие физические процессы и определяющие поведение эффективных параметров излучения: предфиламент, филамент, постфиламент и область энергетического резервуара.

В работах [12–21] рассмотрены процессы, приводящие к уширению спектра, возникающего при распространении мощного коллимированного лазерного пучка фемтосекундной длительности в атмосфере. Рассматривались такие явления, как фазовая самомодуляция, вынужденное комбинационное рассеяние (ВКР), четырехволновое смешение, черенковское излучение и т.д.

Ранее в наших экспериментальных работах [22, 23] исследовались формирование и пространственная структура двойного плазменного филамента, возникающего при абберационной фокусировке и приводящего к формированию двух узконаправленных пучков белого света. Причина появления этих двух лучей — дифракция излучения на плазменной нити, возникающей ортогонально пучку накачки в фокальной области первого филамента [24, 25], в то время как при осесимметричном распространении и самофокусировке (или фо-

* Владимир Егорович Прокопьев (prokop@ogl.hcei.tsc.ru); Дмитрий Михайлович Лубенко (lubenkodm@gmail.com).

кусировке линзой) образуется кольцевая структура рассеянного излучения и постфиламент, вызванный дифракцией на плазменной нити, возникающей по оси пучка накачки [26–28]. Наблюдаемый при этом СК отличался от описываемого в известных работах [20, 29, 30] высокой эффективностью преобразования (порядка 10%) и наличием регулярных пиков в синем крыле спектра. Было показано влияние абберационной фокусировки на геометрическую структуру филамента и сделаны предположения о каскадном четырехволновом параметрическом процессе (КЧПП), наблюдающемся в филаменте и постфиламентационных каналах [22, 31]. Однако процессы, приводящие к начальной трансформации спектра и способствующие возникновению КЧПП, рассмотрены не были.

Цель настоящей работы — анализ механизмов трансформации и уширения спектральных параметров фемтосекундного лазерного импульса при абберационном распространении в атмосфере. Для этого были экспериментально измерены спектры на различных участках оптического пути и проведено сравнение экспериментальных данных, полученных в настоящей статье, с результатами, опубликованными ранее в [8, 18, 26].

Экспериментальная установка и методики измерения

Экспериментальная часть работ проведена на стартовом фемтосекундном комплексе «Старт 480-М». Он включает в себя задающий генератор, стретчер, регенеративный усилитель, два многопроходовых усилителя и компрессор на дифракционных решетках. Параметры излучения комплекса: $\lambda = 940$ нм, длительность импульса $\tau = 60 \pm 10$ фс, энергия в импульсе $E = 5–15$ мДж. Спектральные параметры излучения регистрировались прибором Ocean Optics HR4000 с разрешением 0,75 нм и диапазоном измерения 200–1100 нм. Энергетические параметры пучка определялись измерителями мощности и энергии Gentec Maestro и Ophir Nova II. Длительность лазерных импульсов регистрировалась посредством автокоррелятора Avesta ASF-20. Профиль пучка контролировался при помощи профилометра Ophir SP620U.

Схема эксперимента приведена на рис. 1. Исследования проводились в условиях абберационной фокусировки. Лазерное излучение направлялось

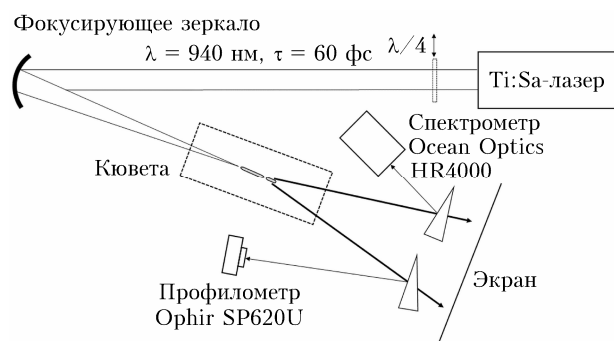


Рис. 1. Схема экспериментальной установки

на сферическое зеркало, угол падения пучка к поверхности составлял 10° . Использовались зеркала с фокусным расстоянием $F = 500, 750$ и 1000 мм. Фокусировка осуществлялась как на открытом воздухе, так и в кювете, заполненной азотом с давлением до 3 атм. Увеличение длительности лазерного импульса, вызванное прохождением через кварцевое окно кюветы (стекло КУ1, толщина 5 мм), не оказывало существенного влияния на результаты.

Результаты и обсуждение

Структура филамента при абберационной фокусировке показана на рис. 2, направление распространения излучения слева направо. Область филаментации сфотографирована сверху (рис. 2, а). Схематичное изображение построено с учетом перспективы для лучшего отображения основных параметров филаментации (рис. 2, б). При абберационной фокусировке происходит формирование филаментов в двух астигматических фокусах — меридиональном и сагиттальном, в каждом из которых филамент растягивается в одной из плоскостей. Это хорошо видно на фотографии: первый по ходу пучка филамент растянут по вертикали (его ширина мала), второй — по горизонтали (его ширина увеличена).

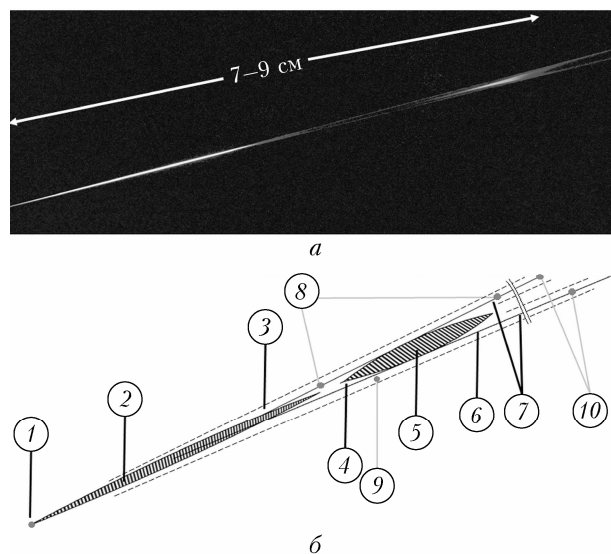


Рис. 2. Фотография области филаментации при абберационной фокусировке (а) и схематичное изображение этой области (б): 1 — первый нелинейный фокус оптической схемы; 2 — первый филамент; 3 — первый геометрический фокус схемы; 4 — второй нелинейный фокус оптической схемы; 5 — второй филамент; 6 — второй геометрический фокус схемы; 7 — лучи белого света; 8–10 — области регистрации спектров

Спектры излучения регистрировались по всей длине оптической схемы: от выходного окна лазера до экрана, расположенного на расстоянии 10 м от области филаментации. Геометрическая структура филамента в такой постановке эксперимента описана в [25]. Рассмотрим подробнее спектры, зарегистрированные в ключевых точках (рис. 2, б)

оптического пути: выходное излучение лазера, первый нелинейный фокус (точка 1 на рис. 2, б), белые лучи в области второго филамента (точки 8), область энергетического резервуара вблизи второго филамента (точка 9) и белые лучи на удалении 10 м от области филаментации (точки 10).

Спектры, зарегистрированные на выходе лазера и в первом нелинейном фокусе оптической системы, приведены на рис. 3. Можно выделить триплетную структуру, состоящую из ряда пиков в стоксовой области и интенсивного антистоксового пика.

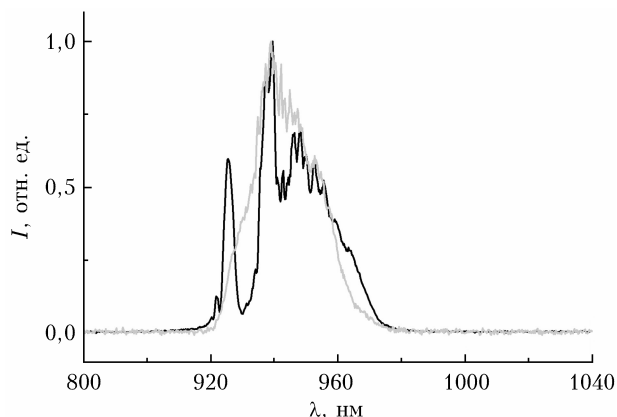


Рис. 3. Спектры излучения на выходе фемтосекундного лазера (серая кривая) и на оси в области первого нелинейного фокуса (черная кривая)

Анализ литературных данных [17–19], описывающих распространение лазерного излучения в газах, показывает, что в нашем случае при распространении мощного фемтосекундного импульса в воздухе будет наблюдаться ВКР на вращательных переходах (ВВКР) азота благодаря широкому спектру фемтосекундного импульса. При этом на коэффициент усиления, определяющий интенсивность ВКР, будут влиять длина волны и концентрация молекул рамановской среды [32]:

$$g \propto (d\sigma/d\Omega) N \lambda_n \lambda_c^3, \quad (1)$$

где $(d\sigma/d\Omega)$ — дифференциальное сечение спонтанного комбинационного рассеяния; N — плотность рамановской среды (концентрация молекул газа в объеме); λ_n и λ_c — длины волн накачки и стоксовой компоненты соответственно.

Максимальная интенсивность рассеяния в эксперименте наблюдается для стоксового пика второго порядка, соответствующего вращательным переходам 6–8 и 8–10. Одновременно происходящее когерентное антистоксовое рассеяние света приводит к появлению пика в синем крыле спектра (рис. 3). Интенсивность антистоксовой компоненты при этом зависит от квадрата кубической нелинейности среды [33]:

$$I \propto |\chi^{(3)}|^2, \quad (2)$$

а та, в свою очередь, от концентрации возбужденных молекул газа.

Подобный триплет также наблюдается в экспериментальных спектрах в работах [8, 26] и в меньшей степени в [17]. Несомненно, как указано в [8, 17], ФСМ вносит существенный вклад в уширение спектра, однако при этом имеют место процессы ВКР. Преобладающий вклад тех или иных процессов определяется параметрами экспериментальной схемы, включающими в себя как геометрические параметры фокусирующей системы, так и энергетические и временные параметры лазерного пучка.

На рис. 4, а представлены экспериментальные спектры вблизи второго геометрического фокуса системы.

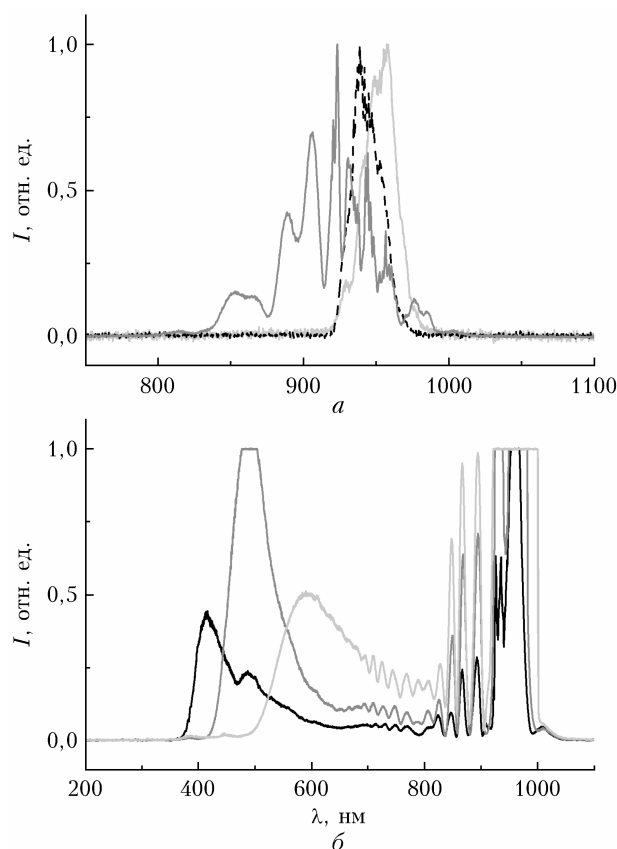


Рис. 4. Спектры излучения в конце второго филамента (пунктиром обозначен спектр излучения накачки, не наблюдаемый в данной области) (а) и в постфиламентационном канале (б)

На оси возникающих лучей белого света наблюдается КЧПП в антистоксовой области, частота которого $\omega_{AC} = 2\omega_{\text{лаз}} - \omega_c$, а в области энергетического резервуара — стоксов сдвиг, аналогичный таковому в работах [8, 17, 26]. Для наглядного отображения сдвигов на рис. 4, а также приведен спектр накачки (пунктирная кривая). Разница частот между пиками в антистоксовой области при этом соответствует частоте расщепления триплета (см. рис. 3). В обоих случаях происходит перераспределение энергии излучения в спектре с истощением накачки.

С окончания области филаментации и на протяжении всего постфиламентационного канала спектр излучения расширяется вплоть до 350 нм. Данный спектр также характеризуется пиками, отстоящими друг от друга на одну и ту же частоту, кратную частоте расщепления триплета (см. рис. 3). Это объясняется тем, что в области второго фокуса (рис. 4, б) образуется нелинейная среда, в которой запускается КЧПП в антистоксову область. В отличие от процесса ФСМ, наблюдаемого в [20, 26], КЧПП обеспечивает высокую эффективность преобразования, что и наблюдается в нашем эксперименте.

Интенсивность четырехволнового параметрического процесса (ЧВП) описывается как

$$I_{\text{ЧВП}} \propto N^2 |\chi^{(3)}|^2 \frac{1}{\lambda_{\text{АС}}^2}, \quad (3)$$

где $\chi^{(3)}$ — нелинейная восприимчивость; $\lambda_{\text{АС}}$ — длина волны антистоксовой компоненты.

В уравнениях (1)–(3) прослеживаются зависимости: увеличение сечения рассеяния, а значит, и увеличение коэффициента усиления с уменьшением длины волны, а также увеличение коэффициента усиления и интенсивности четырехволнового параметрического процесса с ростом концентрации молекул. Первое хорошо иллюстрирует тот факт, что в проведенном эксперименте появление двух лучей белого света наблюдалось при энергии в импульсе > 12 мДж, тогда как такой же эффект наблюдался в [26] при 8–10 мДж на $\lambda = 800$ нм. Для проверки второй зависимости был проведен эксперимент, в котором фокусировка осуществлялась в протяженной кювете, заполненной азотом. Давление азота менялось от 1 до 3 атм, что также приводило к уменьшению минимального порогового значения энергии, необходимого для генерации СК. Результаты этого эксперимента хорошо согласуются с оценками, выполненными согласно уравнениям (1)–(3).

Отдельно стоит отметить работы, посвященные исследованию влияния поляризации излучения на порог ВВКР [34, 35], согласно которым снижение порога наблюдается при переходе от линейно поляризованного излучения к эллиптически поляризованному. Данный факт также нашел подтверждение в проведенных экспериментах.

Заключение

Представлены результаты экспериментальных измерений спектров в различных принципиальных точках оптического пути распространения фемтосекундного лазерного излучения с центральной длиной волны 940 нм при абберационной фокусировке в воздухе и преобразования лазерного излучения в различных точках области филаментации и окружающего пространства.

Эксперименты и численные оценки показали, что к генерации белого суперконтинуума в данном случае приводит совокупность процессов, происхо-

дящих при абберационной фокусировке. В области предфиламента уширение спектра происходит за счет вынужденного комбинационного рассеяния на вращательных переходах молекул азота, что приводит к генерации стоксовых линий первого и второго порядка. В результате связи электромагнитных волн накачки и возникших стоксовых волн благодаря нелинейной восприимчивости $\chi^{(3)}$ среды происходит генерация антистоксовой линии, что формирует триплет. В области филамента выполняются условия для усиления линии когерентного антистоксова рассеяния; далее в постфиламентационных каналах происходит запуск каскадного процесса четырехволнового смешения в антистоксовой области спектра, который подпитывается из приосевого резервуара. Геометрия филамента, возникающая при абберационной фокусировке с помощью зеркала, обеспечивает условия усиления излучения.

Финансирование. Работа выполнена при поддержке РНФ (грант № 23-22-00023).

Список литературы

1. Аскаръян Г.А. Воздействие градиента поля интенсивного электромагнитного луча на электроны и атомы // ЖЭТФ. 1962. Т. 42, № 6. С. 1567–1570.
2. Таланов В.И. О самофокусировке волновых пучков в нелинейных средах // Письма в ЖЭТФ. 1965. Т. 2, № 5. С. 218–222.
3. Chiao R.Y., Townes C.H. Stimulated brillouin scattering and coherent generation of intense hypersonic waves // Phys. Rev. Lett. 1964. V. 12, N 21. P. 592–595. DOI: 10.1103/PhysRevLett.12.592.
4. Пилипецкий Н.Ф., Рустамов А.Р. Наблюдение самофокусировки света в жидкостях // Письма в ЖЭТФ. 1965. Т. 2, № 2. С. 88–90.
5. Korobkin V.V., Alcock A.J. Self-focusing effects associated with laser-induced air breakdown // Phys. Rev. Lett. 1968. V. 21, N 20. P. 1433–1436. DOI: 10.1103/PhysRevLett.21.1433.
6. Басов Н.Г., Крюков П.Г., Сенатский Ю.В., Чекалин С.В. Получение мощных ультракоротких импульсов света в лазере на неодимовом стекле // ЖЭТФ. 1969. Т. 57. С. 1175–1183.
7. Alfano R.R., Shapiro S.L. Observation of self-phase modulation and small-scale filaments in crystals and glasses // Phys. Rev. Lett. 1970. V. 24, N 11. P. 592–594. DOI: 10.1103/PhysRevLett.24.592.
8. Braun A., Korn G., Liu X., Du D., Squier J., Mourou G. Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air // Opt. Lett. 1995. V. 20, N 1. P. 73–75. DOI: 10.1364/OL.20.000073.
9. Wille H., Rodriguez M., Kasparian J., Mondelain D., Yu J., Mysyrowicz A., Sauerbrey R., Wolf J.-P., Wöste L. Teramobile: A mobile femtosecond-terawatt laser and detection system // Europ. Phys. J. Appl. Phys. 2002. V. 20. P. 183–190. DOI: 10.1051/epjap:2002090.
10. Kasparian J., Rodriguez M., Méjean G., Yu J., Salmon E., Wille H., Bourayou R., Frey S., André Y.-B., Mysyrowicz A., Sauerbrey R., Wolf J.-P., Wöste L. White-light filaments for atmospheric analysis // Science. 2003. V. 301. P. 61–64. DOI: 10.1126/science.1085020.
11. Chin S.L., Chen Y., Kosareva O., Kandidov V.P., Théberge F. What is filament? // Laser Phys. 2008. V. 18, N 8. P. 962–964. DOI: 10.1134/S1054660X08080070.

12. *Théberge F., Aközbek N., Liu W., Becker A., Chin S.-L.* Tunable ultrashort laser pulses generated through filamentation in gases // *Phys. Rev. Lett.* 2006. V. 97. P. 023904. DOI: 10.1103/PhysRevLett.97.023904.
13. *Peñano J.R., Sprangle P., Serafim P., Hafizi B., Ting A.* Simulated Raman scattering of intense laser pulses in air // *Phys. Rev. E.* 2003. V. 68. P. 056502. DOI: 10.1103/PhysRevE.68.056502.
14. *Peñano J.R., Sprangle P., Hafizi A., Ting A., Gordon D.F., Kapetanakis C.A.* Propagation of ultrashort, intense laser pulses in air // *Phys. Plasm.* 2004. V. 11, N 5. P. 2865–2874. DOI: 10.1063/1.1648020.
15. *Кандидов В.П., Голубцов И.С., Косарева О.Г.* Источники суперконтинуума в мощном фемтосекундном лазерном импульсе при распространении в жидкости и газе // *Квант. электрон.* 2004. Т. 34, № 4. С. 348–354.
16. *Liu W., Chin S.L.* Abnormal wavelength dependence of the self-cleaning phenomenon during femtosecond-laser-pulse filamentation // *Phys. Rev. A.* 2007. V. 76, N 1. P. 013826. DOI: 10.1103/PhysRevA.76.013826.
17. *Daigle J.-F., Kosareva O., Panov N., Wang T.-J., Hosseini S., Yuan S., Roy G., Chin S.L.* Formation and evolution of intense, post-filamentation, ionization-free low divergence beams // *Opt. Commun.* 2011. V. 284. P. 3601–3606. DOI: 10.1016/j.optcom.2011.03.077.
18. *Daigle J.-F., Wang T.-J., Hosseini S., Yuan Sh., Roy G., Chin S.-L.* Dynamic behavior of postfilamentation Raman pulses // *Appl. Opt.* 2011. V. 50, N 33. P. 6234–6238. DOI: 10.1364/AO.50.006234.
19. *Kawano H., Hirakawa Y., Imasaka T.* Generation of high-order rotational lines in hydrogen by four-wave Raman mixing in femtosecond regime // *IEEE J. Quantum. Electron.* 1998. V. 34, N 2. P. 260–268. DOI: 10.1063/1.3467525.
20. *Курилова М.В., Урюпина Д.С., Мажорова А.В., Горгуца С.Р., Волков Р.В., Косарева О.Г., Савельев А.Б.* Исследование трансформации спектра фемтосекундного лазерного излучения при его филаментации в газовой среде // *Опт. и спектроскоп.* 2009. Т. 107, № 3. С. 455–460.
21. *Théberge F., Lassonde P., Payeur S., Châteauneuf M., Dubois J., Kieffer J.-C.* Efficient spectral-step expansion of a filamenting laser pulse // *Opt. Lett.* 2013. V. 38, N 9. P. 1576–1578. DOI: 10.1364/OL.38.001576.
22. *Ivanov N.G., Losev V.F., Prokop'ev V.E., Sitnik K.A.* Generation of highly directional supercontinuum in the visible spectrum range // *Opt. Commun.* 2017. V. 387. P. 322–327. DOI: 10.1016/j.optcom.2016.11.057.
23. *Ivanov N.G., Losev V.F., Lubenko D.M., Prokop'ev V.E., Sitnik K.A.* Forming of supercontinuum in the visible upon filamentation of a femtosecond pulse in air // *Proc. SPIE.* 2018. V. 10228. P. 1022809-2. DOI: 10.1117/12.2265987.
24. *Лубенко Д.М., Иванов Н.Г., Алексеев С.В., Прокопьев В.Е., Лосев В.Ф.* Формирование высоконаправленного излучения белого света в воздушном филаменте // *Изв. РАН. Сер. физ.* 2020. Т. 84, № 7. С. 934–937. DOI: 10.31857/S0367676520070145.
25. *Прокопьев В.Е., Лубенко Д.М., Лосев В.Ф.* Исследование пространственной структуры фемтосекундного лазерного пучка в области филамента при его аберрационной фокусировке в воздухе // *Оптика атмосф. и океана.* 2020. Т. 33, № 9. С. 685–689. DOI: 10.15372/AOO20200904.
26. *Алексимов Д.В., Багаев С.Н., Гейнц Ю.Э., Землянов А.А., Кабанов А.М., Кирпичников А.В., Кистинев Ю.В., Креков Г.М., Крекова М.М., Матвиенко Г.Г., Ошлаков В.К., Панина Е.К., Петров В.В., Пестряков Е.В., Пономарев Ю.Н., Суханов А.Я., Тихомиров Б.А., Трунов В.И., Уозинтас С.Р., Фролов С.А., Худорожков Д.Г.* Фемтосекундная атмосферная оптика / под общ. ред. С.Н. Багаева, Г.Г. Матвиенко. Новосибирск: Изд-во СО РАН, 2010. 238 с.
27. *Алексимов Д.В., Гейнц Ю.Э., Землянов А.А., Кабанов А.М., Матвиенко Г.Г., Ошлаков В.К.* Филаментация фемтосекундных лазерных импульсов в воздухе / под общ. ред. д.ф.м.н., проф. А.А. Землянова. Томск: Изд-во ИОА СО РАН, 2017. 162 с.
28. *Self-focusing: Past and Present. Fundamentals and Prospects* / R.W. Boyd, S.G. Lukishova, Y.R. Shen (eds.). New York: Springer, 2009. DOI: 10.1007/978-0-387-34727-1.
29. *Théberge F., Liu W., Luo Q., Chin S.L.* Ultrabroadband continuum generated in air (down to 230 nm) using ultrashort and intense laser pulses // *Appl. Phys. B.* 2005. V. 80. P. 221–225. DOI: 10.1007/s00340-004-1689-x.
30. *Chin S.L., Wang T.-J., Marceau C., Wu J., Liu J.S., Kosareva O., Panov N., Chen Y.P., Daigle J.-F., Yuan S., Azarm A., Liu W.W., Seideman T., Zeng H.P., Richardson M., Li R., Xu Z.Z.* Advances in intense femtosecond laser filamentation in air // *Laser Phys.* 2011. V. 22, N 1. P. 1–53. DOI: 10.1134/S1054660X11190054.
31. *Lubenko D.M., Prokopen V.E.* Generation of broadband radiation during filamentation of a femtosecond laser pulse in the atmosphere // *J. Siberian Federal University. Math. Phys.* 2022. V. 15, N 6. P. 718–723. DOI: 10.17516/1997-1397-2022-15-6-718-723.
32. *Шен И.Р.* Принципы нелинейной оптики М.: Наука, 1989. 150 с.
33. *Ахманов С.А., Вислоух В.А., Чиркин А.С.* Оптика фемтосекундных лазерных импульсов. М.: Наука, 1988. 149 с.
34. *Венкин Г.В., Ильинский Ю.А., Михеев Г.М.* Влияние поляризации излучения на энергетические характеристики и порог ВКР на вращательных переходах // *Квант. электрон.* 1985. Т. 12, № 3. С. 608–611.
35. *Chen N., Wang T.-J., Zhu Zh., Guo H., Liu Y., Yin F., Sun H., Leng Yu., Li R.* Laser ellipticity-dependent supercontinuum generation by femtosecond laser filamentation in air // *Opt. Lett.* 2020. V. 45, N 16. P. 4444–4447. DOI: 10.1364/OL.399206.

V.E. Prokop'ev, D.M. Lubenko. Transformation of the spectrum of a femtosecond laser pulse during propagation in the atmosphere.

Experimental results and the analysis of the reasons for the transformation of spectral parameters of a femtosecond laser pulse propagating in atmosphere and in pure molecular nitrogen are presented. The experiment was carried out under aberration focusing conditions. It is shown that the main contribution to the anti-Stokes spectrum broadening is made by cascade parametric four-wave mixing initiated in the filamentation domain by stimulated Raman Stokes scattering on rotational transitions of nitrogen.