

АППАРАТУРА И МЕТОДЫ ДИАГНОСТИКИ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ

УДК 535.530.182;538.935; 533.9.082.5

Управление спектральным составом когерентного излучения на ионах молекулярного азота в лазерной плазме при двухцветной накачке

И.А. Зятиков, В.Ф. Лосев^{✉*}

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

Поступила в редакцию 11.07.2024;
после доработки 10.09.2024;
принята к печати 11.09.2024

В последние годы бурно развиваются лазерные источники, создаваемые в воздушной лазерной плазме мощными фемтосекундными импульсами излучения. В настоящей работе представлены результаты исследования генерации когерентного излучения на ионах молекулярного азота в лазерной плазме при использовании двухцветной накачки на длинах волн 950 и 475 нм. Показано, что добавление излучения второй гармоники, длина волны которой расположена ближе к линиям генерации на N_2^+ по сравнению с первой гармоникой, повышает интенсивность и стабильность излучения суперконтинуума, выступающего в качестве затравочного излучения для генерации. Такая накачка позволяет получать генерацию на новых линиях и управлять интенсивностью и спектральным составом генерации. Результаты исследования могут быть полезны для установления механизма(-ов) создания инверсии населенности в лазерной плазме на ионах молекулярного азота.

Ключевые слова: двухцветная накачка, длина волны, генерация, первая и вторая гармоники, спектр, угол синхронизма, поляризация; two-color pumping, wavelength, generation, first and second harmonics, spectrum, synchronism angle, polarization.

Введение

Интенсивные лазерные поля в атмосфере могут ионизировать и возбуждать молекулы азота, на которых создается инверсная населенность и возникает генерация когерентного излучения [1–14]. Формирование такого излучения в атмосфере представляет большой интерес для дистанционного зондирования и нелинейной спектроскопии. Кроме того оно может быть полезно для исследования процессов в биологических тканях с пикосекундным временным разрешением.

В большинстве работ для накачки используют фемтосекундные импульсы излучения с длиной волны $\lambda = 800$ нм и получают генерацию в воздухе на линиях 391,4 или 427,8 нм, которые соответствуют первой отрицательной системе N_2^+ (переход $B^2\Sigma_u^+(v' = 0) - X^2\Sigma_g^+(v'' = 0, 1)$). Длительность импульса генерации в разных работах составляет 1–8 пс [3, 6–8, 12–14], а типичная энергия — единицы микроджоулей [9, 13]. Для достижения генерации

требуется импульс затравочного излучения на рабочей длине волны, которое либо подается дополнительно синхронно с излучением накачки [2, 3, 5], либо само создается накачкой в лазерной плазме на основе суперконтинуума (СК) [1, 4, 6–8]. Линейная поляризация генерируемого излучения всегда соответствует поляризации затравочного импульса и служит основным доказательством ее лазерного свойства [1, 3, 5]. Следует отметить, что при накачке излучением с $\lambda = 800$ нм поляризация внешней затравки практически всегда противоположна накачке, поскольку она формируется за счет второй гармоники (ВГ).

В ряде работ было показано, что использование различных длин волн позволяет изменять и расширять диапазон линий, на которых получают генерацию на ионах молекулярного азота. Так, при накачке излучением с $\lambda = 1,2$ – $2,4$ мкм и внешним затравочным излучением была получена генерация на следующих линиях ионов молекулярного азота: 330, 357, 391, 428 и 471 нм [5]. Использование для накачки фемтосекундных импульсов с $\lambda = 950$ нм без внешнего затравочного излучения позволяет получать генерацию на $\lambda = 391,4$ или 427,8 нм [6–8].

* Илья Александрович Зятиков (kidnapper66@gmail.com); Валерий Федорович Лосев (losev@ogl.hcei.tsc.ru).

В [9] при использовании в качестве накачки ВГ с $\lambda = 400$ нм без внешнего затравочного излучения наблюдалась генерация только на $\lambda = 391,4$ нм, а с $\lambda = 800$ нм наблюдалась генерация только на $\lambda = 427,8$ нм. Однако в этой же работе применение внешнего затравочного излучения на основе широкополосного СК позволило в разных экспериментах получить генерацию на четырех линиях N_2^+ : 388, 391, 428 и 471 нм. В работе [10] в качестве накачки использовалась вторая гармоника Ti:Sa-лазера с центральной длиной волны $\lambda = 394,5$ нм. Эксперимент проводился как при наличии внешней затравки на рабочих переходах, так и без нее. Линейная поляризация излучения затравки была параллельна излучению накачки. Авторами была получена одновременная генерация на $\lambda = 427,8$ и $423,6$ нм, соответствующих переходам $B^2\Sigma_u^+(v' = 0) - X^2\Sigma_g^+(v'' = 1)$ и $B^2\Sigma_u^+(v' = 1) - X^2\Sigma_g^+(v'' = 2)$. При этом генерация на $\lambda = 423,6$ нм была получена впервые. Основная мощность излучения наблюдалась именно на этой линии, и она превышала более чем в три раза мощность излучения на $\lambda = 427,8$ нм. Авторы связали получение генерации на $\lambda = 423,6$ нм с новым механизмом создания инверсии, а именно с резонансным колебанием Раби, которое было вызвано вибрационной накачкой рамановского типа. Этот механизм является характерным для молекулярных систем, в которых колебательное движение связано с колебаниями Раби между двумя возбужденным и невозбужденным электронными состояниями.

В работе [11] исследовалась зависимость излучения генерации на N_2^+ от коэффициента эллиптичности поляризации лазера накачки с $\lambda = 900$ и 980 нм. Было показано, что при накачке лазером с эллиптической поляризацией с $\lambda = 900$ нм мощность излучения на $\lambda = 391,4$ нм была выше, чем с линейной. При накачке с $\lambda = 980$ нм, наоборот, мощность генерации монотонно уменьшалась с увеличением коэффициента эллиптичности. При этом генерация на $\lambda = 427,8$ нм была наиболее мощной при линейной поляризации накачки на обеих длинах волн. Такое поведение мощности генерации в зависимости от поляризации и длины волны излучения накачки авторы связывают со сложным механизмом создания инверсии населенности в ионной системе, который так и не установлен до настоящего времени. Также не установлен и механизм генерации на различных длинах волн.

Цель настоящей работы — исследование возможности управления спектральным составом лазерного излучения на ионах молекулярного азота в воздухе и чистом азоте при двухцветной накачке с $\lambda = 950$ и 475 нм.

Материалы и методы

Эксперименты проводились с помощью Ti:Sa-лазерной системе, которая формировала спектрально-ограниченный импульс излучения первой гармоники (ПГ) с центральной длиной волны $\lambda = 950$ нм. Длительность импульса составляла 60 фс на полувысоте амплитуды, энергия до 8 мДж, диаметр пучка 1,5 см (уровень интенсивности $1/e^2$), частота следования импульсов 10 Гц. Для создания лазерной плазмы и получения генерации в воздухе или азоте пучок накачки проходил через нелинейный кристалл дигидрофосфата калия (KDP) толщиной 2 мм частично преобразовывался во ВГ с центральной длиной волны $\lambda = 475$ нм и затем фокусировался плоско-выпуклой линзой с фокусным расстоянием $F = 30$ см. Изменяя угол синхронизма в кристалле, мы изменяли соотношение энергий на ПГ и ВГ. Экспериментальная схема представлена на рис. 1.

Эксперименты осуществлялись как с газовой камерой, так и без нее. Окна камеры закрывались пластинками из плавленного кварца. Давление азота в камере изменялось от 30 до 1000 мбар. В воздухе или азоте зажигался плазменный канал длиной $\sim 7-10$ мм и диаметром $\sim 0,2-0,3$ мм в зависимости от энергии накачки. Он являлся активной средой для генерации на N_2^+ . Лазерное излучение регистрировалось по ходу пучка накачки спектрометром HR-4000 (Ocean Optics, 200–1100 нм, спектральное разрешение 0,75 нм). Спектр регистрировался либо за один импульс, либо за десять. Для фильтрации накачки использовалось дихроичное зеркало с высокими коэффициентами отражения ($> 98\%$) на $\lambda = 950$ нм и пропускания ($> 94\%$) на рабочих длинах волн. Энергия излучения накачки регистрировалась пироэлектрическим датчиком энергии Gentec QE50LP-H-MB-D0. Энергия ВГ измерялась после отражения от двух селективных зеркал в области 475 нм. Поляризация генерируемого излучения определялась с помощью пленочного поляризатора.

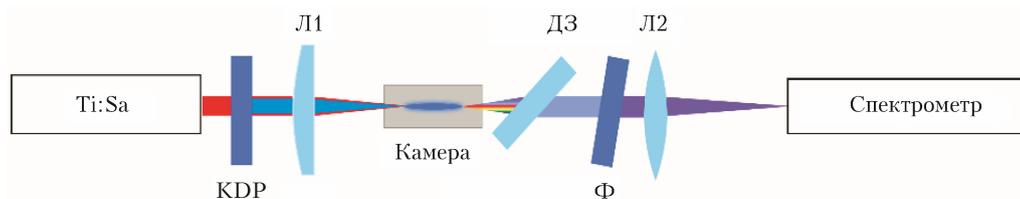


Рис. 1. Схематическое изображение экспериментальной установки: L_1 — линза с $F = 30$ см; L_2 — линза с $F = 10$ см; ДЗ — дихроичное зеркало с высоким отражением в области $\lambda = 950$ нм; Ф — фильтр для ослабления излучения ВГ

Результаты и обсуждение

Основная идея наших экспериментов с использованием двухцветной схемы накачки заключалась в том, чтобы повысить интенсивность затравочного излучения СК за счет его формирования не от ПГ, а от ВГ. При использовании накачки только на $\lambda = 950$ нм достаточно сложно формировать мощный и стабильный осевой СК на $\lambda = 390\text{--}430$ нм. Намного легче это сделать при формировании необходимого спектра СК от ВГ на $\lambda = 475$ нм, что подтверждается нашими экспериментами. В этих условиях в формировании плазмы и создании инверсной населенности азота одновременно участвуют излучение ПГ и ВГ. Мы изменяли соотношение энергий импульсов излучения на ПГ и ВГ для разных энергий накачки путем выбора оптимального или неоптимального угла синхронизма нелинейного кристалла Θ . В таблице приведены энергии излучения ПГ и ВГ для этих условий, а также эффективность преобразования во ВГ.

Энергия импульса излучения ВГ ($E_{475 \text{ нм}}$) и эффективность ее получения для разных энергий ПГ (E) при оптимальном и неоптимальном углах синхронизма нелинейного кристалла Θ

Параметр	E , мДж					
	4,4		6		8	
	$\Theta_{\text{опт}}$	$\Theta_{\text{неопт}}$	$\Theta_{\text{опт}}$	$\Theta_{\text{неопт}}$	$\Theta_{\text{опт}}$	$\Theta_{\text{неопт}}$
$E_{475 \text{ нм}}$, мДж	0,44	0,32	0,8	0,62	1,35	1
Эффективность, %	10	7,2	13	10	16,8	12,5

Следует отметить, что для всех случаев плазма зажигалась излучением ПГ. При использовании только ВГ визуально мы плазму не наблюдали. Следовательно, ионы и инверсия создавались в основном излучением ПГ. Вторая же гармоника обеспечивала излучение СК для последующего его усиления. Подтверждением этого служила параллельность линейной поляризации излучения ВГ и генерации, которые были перпендикулярны поляризации ПГ.

Кроме получения более мощного излучения СК, использование данной оптической схемы позволило получить новую для нас линию генерации на переходе $N_2^+ B^2\Sigma_u^+(v' = 1) - X^2\Sigma_g^+(v'' = 2)$ с $\lambda = 423,6$ нм (рис. 2). Одновременно с ней возникали линии генерации на $\lambda = 391,4$ и $427,8$ нм, которые соответствуют переходам $B^2\Sigma_u^+(v' = 0) - X^2\Sigma_g^+(v'' = 0, 1)$. Наряду с линиями генерации на N_2^+ наблюдалась линия третьей гармоники с $\lambda = 317$ нм.

Генерацию на $\lambda = 423,6$ и $427,8$ нм можно было получать как в чистом азоте при различных давлениях, так и в воздухе (рис. 3). При этом за счет изменения давления азота так же можно было менять относительную интенсивность между линиями генерации.

Как уже отмечалось выше, генерация на $\lambda = 423,6$ нм была получена ранее в единственной работе [10] при накачке ВГ с $\lambda = 394,5$ нм. Для ее

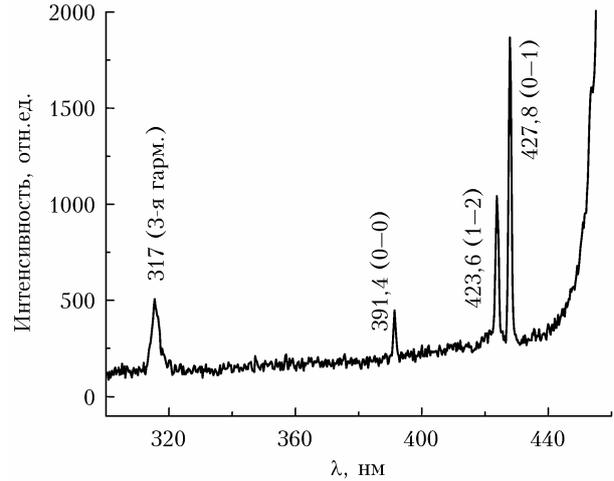


Рис. 2. Типичная картина генерации на трех линиях; $E = 8$ мДж, давление азота 30 мбар

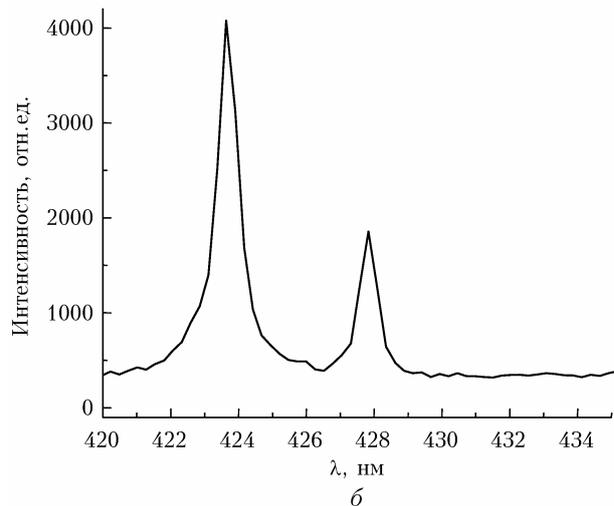
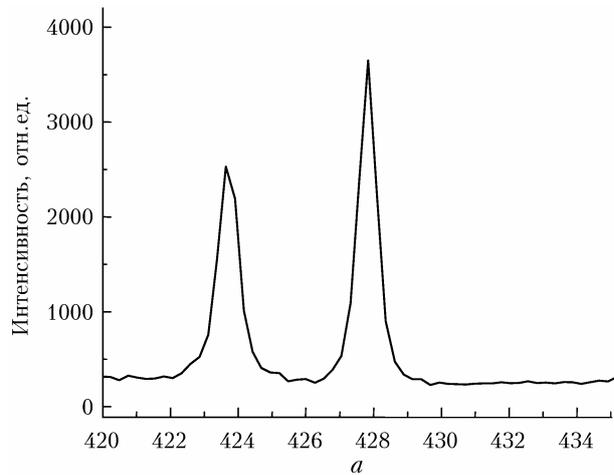


Рис. 3. Изменение интенсивностей двух линий при генерации в азоте давлением 30 мбар (а) и в воздухе (б); $E = 7$ мДж; $\Theta = \Theta_{\text{опт}}$

возникновения авторы предложили новый механизм создания инверсии, согласно которому энергия фотона накачки совпадает с рабочим переходом $B^2\Sigma_u^+(v' = 1) - X^2\Sigma_g^+(v'' = 2)$. Однако в нашем случае

для накачки использовалась ПГ с $\lambda = 950$ нм, а ВГ обеспечивала только затравочное излучение СК на рабочих длинах волн $\lambda = 423,6$ и $427,8$ нм. При этом энергия фотона ВГ намного меньше частоты рабочего перехода. Следовательно, данный механизм создания инверсии в нашем случае не работает. Причина появления генерации на $\lambda = 423,6$ нм в наших условиях остается неизвестной и требует дальнейших исследований.

Изменяя угол синхронизма в KDP также можно было изменять спектральный состав генерации и интенсивность линий. На рис. 4 показано изменение мощности генерации на $\lambda = 391,4$ нм в азоте при давлении 100 мбар. Видно, что при оптимальном угле синхронизма (рис. 4, а) мощность генерации небольшая, а при нарушении синхронизма она резко возрастает.

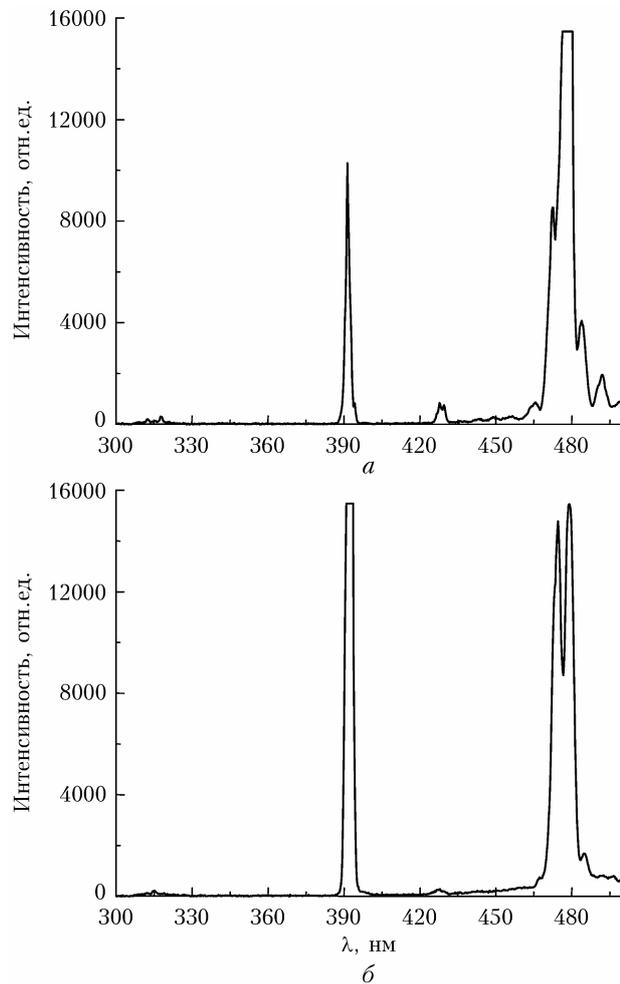


Рис. 4. Интенсивность генерации на $\lambda = 391,4$ нм в азоте при давлении 100 мбар: $\Theta = \Theta_{\text{опт}}$ (а), $\Theta = \Theta_{\text{неопт}}$ (б); $E = 5,6$ мДж

При оптимальном угле синхронизма (рис. 4, а) энергия ПГ преобразуется в ВГ и интенсивность СК максимальная. Однако при этом снижается мощность накачки на ПГ, которая отвечает за создание инверсной населенности. При нарушении синхронизма (рис. 4, б) возрастает мощность на-

качки на ПГ, что приводит к росту инверсии населенности и интенсивности генерации.

Заключение

В настоящей работе продемонстрирована возможность управления спектральным составом генерации на N_2^+ в лазерной плазме при использовании двухцветной накачки на $\lambda = 950$ и 475 нм. Показано, что добавление в оптическую схему нелинейного кристалла повышает интенсивность и стабильность излучения суперконтинуума, выступающего в качестве затравочного излучения на рабочей длине волны. Это обусловлено его формированием излучением второй гармоники, длина волны которой расположена ближе к линиям генерации по сравнению с первой гармоникой. Изменения давления азота, энергии на основной гармонике и соотношения энергий на первой и второй гармониках позволяют менять интенсивность и спектр линий генерации. Продемонстрирована возможность получения генерации на $\lambda = 423,6$ нм и управления ее интенсивностью.

Финансирование. Работа выполнена в рамках госзадания Министерства науки и высшего образования РФ (проект № FWRM-2021-0014).

Список литературы

1. Wang T.-J., Ju J., Daigle J.-F., Yuan S., Li R., Chin S.L. Self-seeded forward lasing action from a femtosecond Ti:Sapphire laser filament in air // *Laser Phys. Lett.* 2013. V. 101. P. 25401. DOI: 10.1088/1612-2011/10/12/125401.
2. 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_2 emissions in air by femtosecond laser excitation // *Opt. Express.* 2013. V. 21, N 7. P. 8746–8752. DOI: 10.1364/OE.21.008746.
3. 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. P. 023046. DOI: 10.1088/1367-2630/15/2/023046.
4. Liu Yi., Brelet Yohann, Point Guillaume, Houard Aurélien, Mysyrowicz André. Self-seeded lasing in ionized air pumped by 800 nm femtosecond laser pulses // *Opt. Express.* 2013. V. 21, N 19. P. 22791–22798. DOI: 10.1364/OE.21.022791.
5. 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. P. 051802. DOI: 10.1103/PhysRevA.84.051802.
6. Зятиков И.А., Иванов Н.Г., Лосев В.Ф., Прокопьев В.Е. Исследование спектрально-временных параметров сверхизлучения на ионах молекулярного азота в воздушном филаменте // *Квант. электрон.* 2019. Т. 49, № 10. С. 945–948. DOI: 10.1070/QEL17065.
7. Zyatikov I.A., Losev V.F., Lubenko D.M., Sandabkin E.A. Analysis of the active medium parameters of molecular nitrogen ions in ambient air // *Opt. Lett.* 2020. V. 45, N 23. P. 6518–6521. DOI: 10.1364/OL.403577.

8. *Ivanov N.G., Zyatikov I.A., Losev V.F., Prokop'ev V.E.* Temporal behavior of air lasing by molecular nitrogen ions // *Opt. Commun.* 2020. V. 456. P. 124573. DOI: 10.1016/j.optcom.2019.124.
9. *Wang T.-J., Daigle J.-F., Ju J., Yuan S., Li R., Chin S.L.* Forward lasing action at multiple wavelengths seeded by white light from a femtosecond laser filament in air // *Phys. Rev. A.* 2013. V. 88. P. 053429(1–5). DOI: 10.1103/PhysRevA.88.053429.
10. *Wang S., Lötstedt E., Cao J., Fu Y., Zang H., Li H., Ando T., Iwasaki A., Yamanouchi K., Xu H.* Population inversion in N_2^+ by vibrationally mediated Rabi oscillation at 400 nm // *Phys. Rev. A.* 2021. V. 104. P. 032823. DOI: 10.1103/PhysRevA.104.032823.
11. *Chen Y., Zhou C., Lu X., Xu L., Yuan Q., He S., Gong R., Zhang N., Wang Q., Huang S., Wu Y., Liu Y., Yao J.* Influence of polarization ellipticity on N_2^+ lasing in a strong laser field // *Phys. Rev. A.* 2024. V. 109. P. 053522. DOI: 10.1103/PhysRevA.109.053522.
12. *Yao J., Chu W., Liu Z., Chen J., Xu B., Cheng Y.* An anatomy of strong-field ionization-induced air lasing // *Appl. Phys. B.* 2018. V. 124, N 5. P. 73. DOI: 10.1007/s00340-018-6940-y.
13. *Li G., Jing C., Zeng B., Xie H., Yao J., Chu W., Ni J., Zhang H., Xu H., Cheng Y., Xu Z.* Signature of superradiance from a nitrogen-gas plasma channel produced by strong-field ionization // *Phys. Rev. A.* 2014. V. 89. P. 033833. DOI: 10.1103/PhysRevA.89.033833.
14. *Lei M., Wu C., Liang Q., Zang A.* The fast decay of ionized nitrogen molecules in laser filamentation investigated by a picosecond streak camera // *J. Phys. B. Atom. Mol. Opt. Phys.* 2017. V. 50. P. 145101. DOI: 10.1088/1361-6455/aa75f8.

I.A. Zyatikov, V.F. Losev. **Control of the spectral composition of coherent radiation on molecular nitrogen ions in laser plasma in the case of two-color pumping.**

In recent years, laser sources created in airborne laser plasma by powerful femtosecond radiation pulses have been rapidly developing. This work studies coherent radiation generation on N_2^+ ions in laser plasma using two-color pumping at $\lambda = 950$ and 475 nm. It is shown that the addition of second harmonic radiation, wavelength of which is closer to the lasing lines on N_2^+ ions compared to the first harmonic, increases the intensity and stability of supercontinuum radiation which acts as seed radiation for the lasing. Such pumping allows lasing on new lines and controlling the intensity and spectral composition of the generated radiation. The results can be useful for establishing the way(s) of creating population inversion in laser plasma on molecular nitrogen ions.