

Уширение и сдвиг эмиссионных линий в плазме филаментов, генерируемых остросфокусированным фемтосекундным лазерным импульсом в воздухе

А.А.Ильин, С.С.Голик, К.А.Шмирко, А.Ю.Майор, Д.Ю.Проценко, Ю.Н.Кульчин

Исследованы уширение и сдвиг линий NI ($\lambda = 746.8$ нм) и OI (777.4 нм) в плазме филаментов, образованных остросфокусированным фемтосекундным лазерным импульсом (0.9 мДж, 48 фс). Показано, что динамический эффект Штарка вносит наибольший вклад в уширение и сдвиг линии NI (746.8 нм). Установлено, что усиленное спонтанное излучение регенеративного усилителя и постимпульсы приводят к разрыву LS-связи для уровня OI $3p^5P$, к генерации боковых полос, связанных с расщеплением Раби уровней, и к импульсному излучению первой положительной системы N_2 .

Ключевые слова: филамент, динамический эффект Штарка, расщепление Раби, уширение и сдвиг линий.

1. Введение

В последние годы исследование процессов филаментации фемтосекундного лазерного излучения в атмосфере вызывает значительный интерес [1–4]. В случае слабой фокусировки или свободно распространяющегося лазерного пучка динамический баланс между процессами плазменной дефокусировки и керровской самофокусировки приводит к формированию длинного плазменного канала, или так называемого филамента, с пиковой интенсивностью $\sim 5 \times 10^{13}$ Вт/см². При острой фокусировке лазерного пучка основную роль в формировании филаментов играет геометрическая фокусировка, при этом интенсивность лазерного излучения в фокусе превышает 5×10^{13} Вт/см² [5]. Кроме того, при острой фокусировке лазерных импульсов вследствие aberrаций линзы наблюдается сложная картина распределения интенсивности излучения в виде светящихся конусообразных структур [6].

Для плазмы филаментов, генерируемых фемтосекундными импульсами, характерны низкие температуры и электронные концентрации [7, 8]. Следствием этого являются малая интенсивность излучения сплошного спектра, интенсивное излучение молекул, а также короткое время существования эмиссионных линий. Временные характеристики излучения филамента в воздухе зависят от длительности τ исходного ультракороткого импульса. Например, при $\tau = 500$ фс на начальном этапе в спектре излучения плазмы филамента доминируют молекулярные компоненты, за которыми следует непрерывное излуче-

ние, затем через несколько наносекунд сплошной спектр сменяется атомарными линиями [9]. При $\tau = 48$ фс сплошной спектр обладает очень низкой интенсивностью, молекулярные линии наблюдаются сразу после воздействия лазерного излучения, тогда как атомарные линии появляются с задержкой 50–80 пс [6]. При этом, как показано в работах [6, 9], в спектре излучения филаментов наблюдаются неразрешенные и аномально уширенные триплеты NI ($3p^4S-3s^4P$) и OI ($3p^5P-3s^5S$). Ранее в работе [9] с учетом данных [10] высказано предположение, что наблюдаемое уширение линий обусловлено эффектом насыщения. Следует также отметить, что чрезвычайно большое значение параметра штарковского уширения электронным ударом для линии OI (777.4 нм) в плазме филаментов было экспериментально определено в работе [11]. Авторы дают этому следующее объяснение: «неизвестный механизм уширения линии атома кислорода может быть связан с его высокой химической активностью». В то же время в научной литературе, кроме работ [6, 9, 11], отсутствуют статьи, в которых рассматриваются аномально уширенные линии на начальных стадиях развития плазмы филамента. Таким образом, целью настоящей работы является исследование динамики ширины и сдвига линий триплетов NI ($3p^4S-3s^4P$) и OI ($3p^5P-3s^5S$) и определение механизма, приводящего к большим ширинам и сдвигам.

2. Экспериментальная установка

На рис.1 приведена схема экспериментальной установки для исследования спектрально-временных характеристик излучения плазмы и лазерного импульса, прошедшего через филамент. Лазерное излучение генерировалось с помощью Ti:сапфирового лазерного комплекса Tsunami + Spifire Pro 40F-1W 1 (центральная длина волны $\lambda = 800$ нм, ширина спектра FWHM 35 нм); диаметр пучка на выходе составлял 7 мм. Филамент 4 формировался в воздухе при фокусировке линзой 3 ($f = 5$ см) фемтосекундных импульсов 2 (длительность импульса 48 фс, энергия 0.9 мДж, пиковая мощность 18 ГВт, частота следования 1 кГц). Спектр лазерного импульса аппроксимировался функцией Гаусса. Излучение плазмы проецировалось на входную щель спектрографа 7 Spectra Pro 2500i (Princeton

А.А.Ильин, С.С.Голик, К.А.Шмирко, А.Ю.Майор, Ю.Н.Кульчин. Институт автоматики и процессов управления ДВО РАН, Россия, 690041 Владивосток, ул. Радио, 5; Дальневосточный федеральный университет, Россия, 690091 Владивосток, ул. Суханова, 8; e-mail: triplecks@mail.ru, golik_s@mail.ru, kshmirko@dvo.ru
Д.Ю.Проценко. Институт автоматики и процессов управления ДВО РАН, Россия, 690041 Владивосток, ул. Радио, 5; Дальневосточный федеральный университет, Россия, 690091 Владивосток, ул. Суханова, 8; Морской государственный университет им. адмирала Г.И.Невельского, Россия, 690059 Владивосток, ул. Верхнепортовая, 50а; e-mail:dima.prsk@mail.ru

Поступила в редакцию 29 августа 2017 г., после доработки – 12 октября 2017 г.

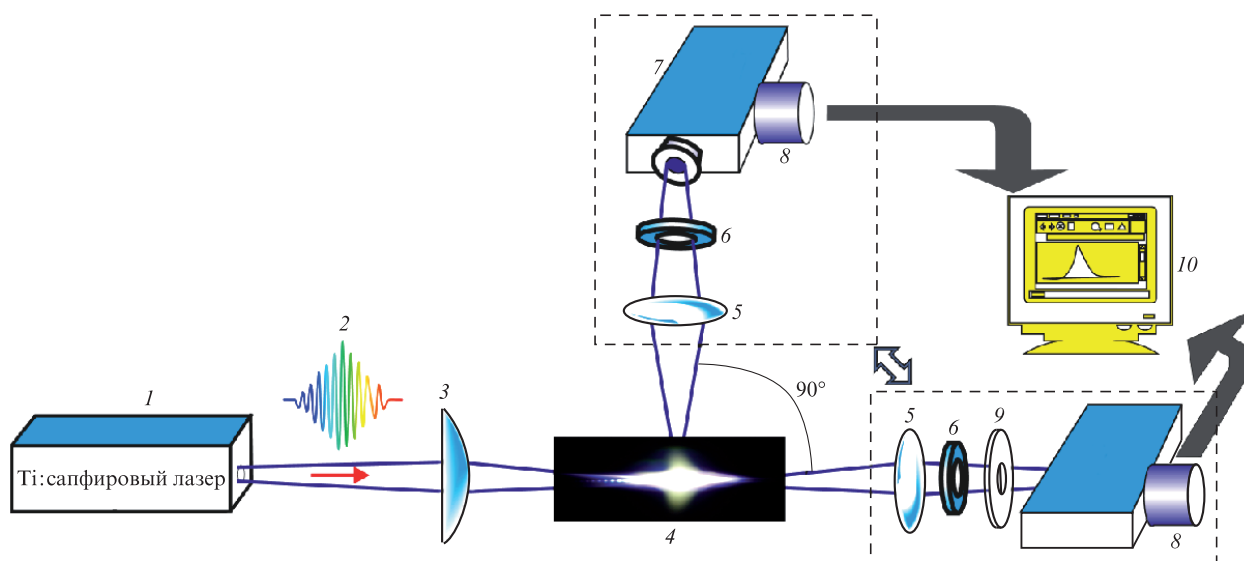


Рис.1. Схема экспериментальной установки.

Instruments) с помощью кварцевой линзы 5. Для подавления линий спектра во втором порядке дифракционной решетки перед щелью спектрографа был установлен фильтр КС15 б. Ширина аппаратной функции спектрографа составляла 0.34 нм. Излучение плазмы филамента регистрировалось под углом 90° относительно направления распространения лазерного пучка. Детектором излучения служила стробируемая ICCD-камера 8 PicoStar HR (12 бит, La Vision). При регистрации триплетов NI ($3p^4S-3s^4P$) и OI ($3p^5P-3s^5S$) использовалась экспозиция 0.2 нс с шагом задержки 1 нс. Характеристики эмиссионных линий представлены в табл.1. Динамика интенсивного импульсного излучения первой положительной системы азота $B^3P_g-A^3\Sigma_u^+$ исследовалась с шагом задержки экспозиции 0.1 нс. Диаметр d_{pl} плазменного канала был оценен из рис.3,а работы [6] и составил ~ 60 мкм. Согласно [9] диаметр лазерного пучка в фокусе линзы $d_{las} = \sqrt{k} d_{pl}$. Число фотонов k , необходимое для ионизации молекул азота и кислорода, определено из зависимости скорости ионизации от интенсивности лазерного излучения (см. работу [12]). В диапазоне интенсивностей $5 \times 10^{13} - 2 \times 10^{14}$ Вт/см² получены $k(N_2) \approx 5.97$ и $k(O_2) \approx 4.77$. Среднее число фотонов, необходимое для ионизации молекулы воздуха, определялось по формуле $k = k(N_2)h(N_2) + k(O_2)h(O_2)$, где h – относительный вклад в ионизацию воздуха из [12]. В результате для энергии $E = 0.9$ мДж и длительности $\tau = 48$ фс лазерного импульса получена пиковая интенсивность $I = 4 \ln 2 E / (\tau \pi d_{las}^2) \approx 9 \times 10^{13}$ Вт/см².

При исследовании динамики излучения атомарных линий было обнаружено сильное импульсное излучение

1^+ -системы азота, обусловленное сдвинутой в синюю область компонентой, связанной с расщеплением Раби уровней атома кислорода в сильном лазерном поле. Такое поведение излучения молекулярного азота при филаментации в воздухе нами зарегистрировано впервые. Для проверки того, что это излучение не является артефактом, экспериментальная установка была изменена. В данном случае комплекс 1 был заменен комплексом Tsunami + Spifire Pro 40F-5W с дополнительным двухпроходным усилителем (800 нм, 65 фс, 1.7 мДж), спектрограф 7 и ICCD-камера 8 были заменены спектрографом Spectra Pro 2300i и камерой Pi-Max3 (16 бит). Лазерное излучение фокусировалось идентичной линзой 5. Новая геометрия эксперимента позволила зарегистрировать спектр лазерных импульсов, прошедших через филамент, и боковой спутник, связанный с расщеплением Раби уровней OI. Чтобы избежать насыщения и блюминга ICCD-камеры лазерным излучением, использовался светофильтр СС1 9 с приблизительно постоянным в диапазоне 700–850 нм коэффициентом ослабления. ICCD-камера Pi-Max3 имеет больший динамический диапазон, что позволило регистрировать спектральные линии, слабые по сравнению с интенсивной линией лазерного излучения. Излучение, прошедшее через филамент, регистрировалось с экспозицией 3 нс.

3. Результаты и их обсуждение

3.1. Уширение и сдвиг линий

Как упоминалось ранее, в работе [6] наблюдались anomalously уширенные линии, характеристики которых приведены в табл.1. На рис.2 показана динамика сдвига и уширения линий, зарегистрированных в работе [6]. Для атомов кислорода ширина и сдвиг соответствуют неразрешенному триплету OI (777.4 нм), для азота – самой интенсивной линии NI (746.8 нм). Сдвиг линии рассчитывался следующим образом: в момент времени $t > 110$ нс определялось среднее значение центра линии, которое затем вычиталось из значения центра линии при $0 < t < 150$ нс. При $t > 110$ нс линии считались несмещенными по следующим причинам. Во-первых, численное моделиро-

Табл.1. Характеристики эмиссионных линий.

Атом	λ (нм)	Энергия терма (эВ)	Переход	Сила линии (а.е.)
N I	742.4			4.56
	744.3	12–10.73	$3p^4S_{3/2}-3s^4P_{1/2,3/2,5/2}$	9.73
	746.8			16.13
O I	777.19			59.9
	777.42	10.73–9.14	$3p^5P_{3,2,1}-3s^5S_2$	42.8
	777.54			25.7

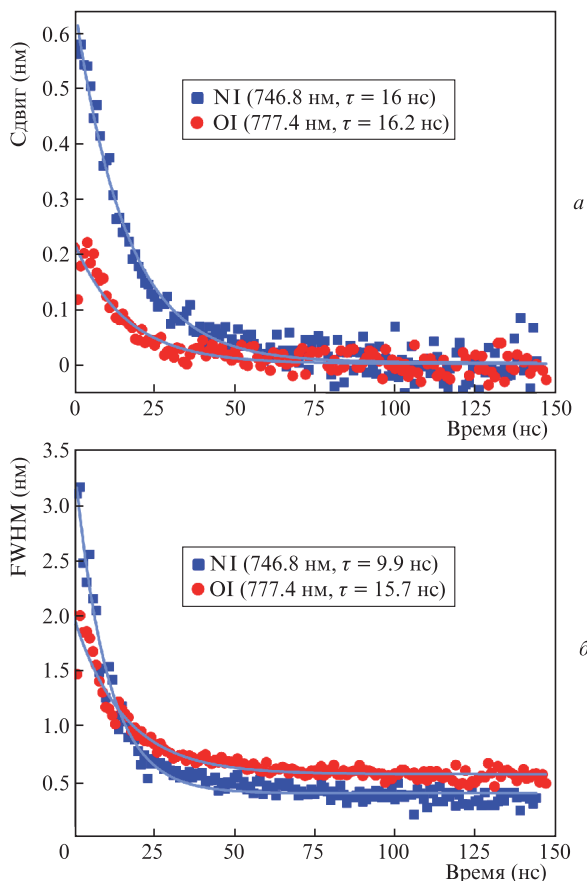


Рис.2. Временные зависимости сдвига и ширины линии. Сплошные кривые – аппроксимации экспоненциальной функцией с временем спада τ .

вание показывает, что при $I = 8 \times 10^{13}$ Вт/см² и $\tau = 100$ фс концентрация электронов уменьшается на три порядка за 100 нс, тогда как температура молекул воздуха остается почти неизменной [13]. Во-вторых, ширина линии NI (746.8 нм) равна инструментальной ширине при $t > 100$ нс (рис.2,б). Следовательно, механизмы Штарка и Ван-дер-Ваальса не могут существенно влиять на сдвиг линии при $t > 110$ нс.

Линии OI и NI имеют красное смещение и, как уже упоминалось ранее, чрезвычайно большую ширину. Начальный сдвиг линии азота в три раза больше, чем линии кислорода, в то же время линия NI (746.8 нм) шире, чем триплет OI при $t < 15$ нс. В работе [6] показано, что плазма филаментов состоит из электронов, молекул, молекулярных ионов и атомов. Чтобы определить влияние различных механизмов на сдвиг и уширение линий, необходимо оценить концентрации перечисленных частиц плазмы. Концентрация электронов n_e может быть оценена следующим образом:

$$n_e \approx (R_{O_2}(I)0.21 + R_{N_2}(I)0.79)\tau N,$$

Табл.2. Ширины (w) и сдвиги (d) линий.

Атом	λ (нм)	Штарковские (нм)		Ван-дер-Ваальсовы (нм)		Резонансная (нм)	Доплеровская (нм)	Инструментальная (нм)
		w_S	d_S	w_V	d_V			
NI	746.8	0.48	0.25	0.04	0.027	5.9×10^{-6}	2.6×10^{-3}	0.34
OI	777.4	0.32	0.07	0.035	0.023	–	2.5×10^{-3}	

где $R(I)$ – скорость ионизации из [12]; $N = 2.5 \times 10^{19}$ см⁻³. При $I = 9 \times 10^{13}$ Вт/см² и $\tau = 48$ фс получаем $n_e \approx 8 \times 10^{17}$ см⁻³. Учитывая быстрое уменьшение концентрации электронов, для дальнейших оценок примем, что в течение первых наносекунд средняя концентрации электронов $n_e = 5 \times 10^{17}$ см⁻³. Эти времена соответствуют большим значениям ширины и сдвига (рис.2). Представленная в работе [14] модель динамики плазмы при филаментации в воздухе дает при $I = 4 \times 10^{13}$ Вт/см² и $t \approx 1$ нс следующие концентрации частиц: $n_O \sim 5 \times 10^{16}$ см⁻³ и $n_N \sim 5 \times 10^{14}$ см⁻³. Согласно этой модели можно считать, что $n(O_2^+) \approx n_e \gg n(N_2^+)$. Таким образом, получаем $n(O_2) \approx 5 \times 10^{18}$ см⁻³ и $n(N_2) \approx 2 \times 10^{19}$ см⁻³. В качестве исходной температуры электронов следует принять $T_e = 10^4$ К, что близко к температуре электронов, полученных в работах [13, 14]. Согласно [14] температура тяжелых частиц $T = 320$ К.

Для плазмы филаментов сдвиг линий d обусловлен эффектами Штарка и Ван-дер-Ваальса, в то же время ширина линии w определяется инструментальным, доплеровским, резонансным, ван-дер-ваальсовым и штарковским уширениями. Ширины и сдвиги эмиссионных линий, рассчитанные с помощью формул из работ [15, 16] и приведенных выше значений температуры и концентрации, представлены в табл.2. Поляризуемости атомов и молекул, необходимые для расчета ван-дер-ваальсова уширения, взяты из работ [17, 18]. Согласно приведенным данным, основной вклад в сдвиг линии вносит эффект Штарка, а уширение определяется инструментальным и штарковским механизмами, что совпадает с результатами работ [9, 11]. Однако данные табл.2 не объясняют максимальных значений ширины и сдвига линии на рис.2.

В работе [9] высказано предположение, что уширение вследствие насыщения является причиной больших ширины линий. Согласно [10] полуширина линии $\Delta\nu_b = \Delta\nu_a \times \sqrt{1 + I/I_{sat}}$, где $\Delta\nu_a$ – полуширина линии в отсутствие насыщения (уширенная в нашем случае электронным ударом); I – интенсивность излучения линии; $I_{sat} = hv/(\sigma\tau_{eff})$ – интенсивность насыщения. Авторы [9] утверждают, что для плазмы филамента $I \gg I_{sat}$, что и приводит к уширению линии. Сечение индуцированного излучения задается соотношением $\sigma = \gamma_r \lambda^2 / (2\pi)^2 \Delta\nu_a$, где γ_r – вероятность спонтанного перехода [6]. Время восстановления населенности уровней $\tau_{eff} = (\gamma_1 + \gamma_{20}) / (\gamma_1 \gamma_2)$, где γ_1 и $\gamma_2 = \gamma_{21} + \gamma_{20}$ – скорости ухода частиц с нижнего лазерного уровня 1 ($3s^5S$) и с верхнего лазерного уровня 2 ($3p^5P$) на все нижележащие уровни [10]. Диаграмма уровней энергии атома кислорода представлена на рис.3. Скорость ухода частиц γ_{21} соответствует переходу $3p^5P - 3s^5S$, γ_{20} – переходу $3p^5P - 2p^4^3P$, γ_1 – переходу $3p^5S - 2p^4^3P$. Радиационные переходы в основное состояние запрещены правилами отбора. Переходы с «лазерных» уровней на уровни $2p^4^1D$ и $2p^4^1S$ имеют нулевые сечения [19]. Скорость ухода частиц выражается следующим соотношением:

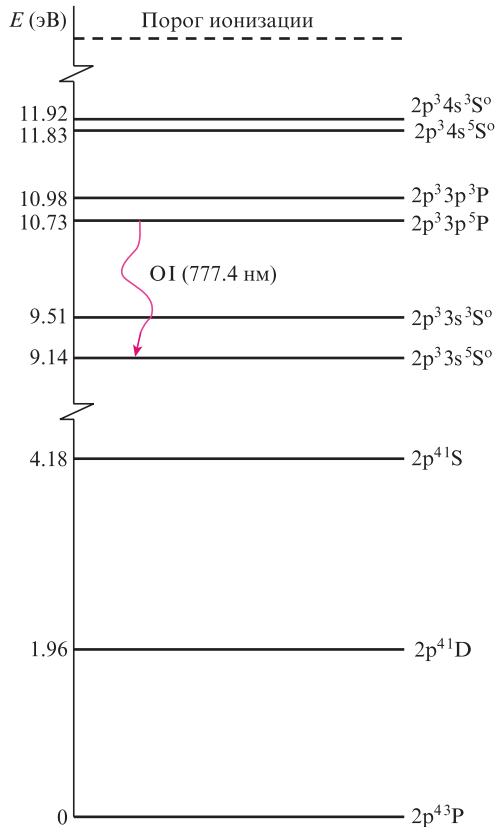


Рис.3. Диаграмма энергетических уровней O I.

$$\gamma_{ji} = k_{ij} \frac{g_i}{g_j} \exp\left(\frac{E_j - E_i}{T_e}\right) n_e,$$

где k_{ij} – константы скорости возбуждения из [19]; E – энергия уровня.

Расчеты показывают, что $\gamma_1 \approx \gamma_{20}, \gamma_{21} \gg \gamma_{20}, \gamma_{21} \gg \gamma_r$. Следовательно, $\tau_{\text{eff}} \approx 2/\gamma_{21}$, а интенсивность насыщения $I_{\text{sat}} \approx 1.7 \times 10^6$ Вт/см². Максимальная интенсивность $I_{\text{max}} = \Delta N_0 / h\nu L / \tau_{\text{eff}}$, где L – размер среды, в которой происходит генерация излучения, ΔN_0 – величина ненасыщенной инверсной населенности. Линия кислорода регистрировалась в поперечном направлении в работе [9], следовательно, $L \sim d_{\text{pl}}/2 = 0.1$ мм. В спектрах, представленных в работах [6, 9], отсутствуют линии N II и O II, т. е. рекомбинационная накачка уровней $3p^5 P$ и $3s^5 S$ пренебрежимо мала. Таким образом, атомы кислорода первоначально генерируются в основном состоянии с помощью реакции диссоциативной рекомбинации [20], после чего происходит переход на уровни $3p^5 P$ и $3s^5 S$. Предполагая $\Delta N_0 \sim n(3s^5 S)$ и больцмановское распределение для уровней $3s^5 S$ и $2p^4 3P$, можно получить $I_{\text{max}} \approx 80$ Вт/см². Таким образом, сделанное в работе [9] предположение, что $I \gg I_{\text{sat}}$, оказывается неверным, и большие ширины линий нельзя объяснить эффектом насыщения.

3.2. Генерация боковых спутников

Для исследования причин появления больших ширин эмиссионных линий при филаментации шаг задержки экспозиции был уменьшен до 0.1 нс. При этом в некоторых случаях наблюдалось мощное импульсное излучение 1^+ -системы $N_2(B^3\Pi_g - A^3\Sigma_u^+)$, которое ранее в научной литературе не описывалось. Времяразрешенные изображе-

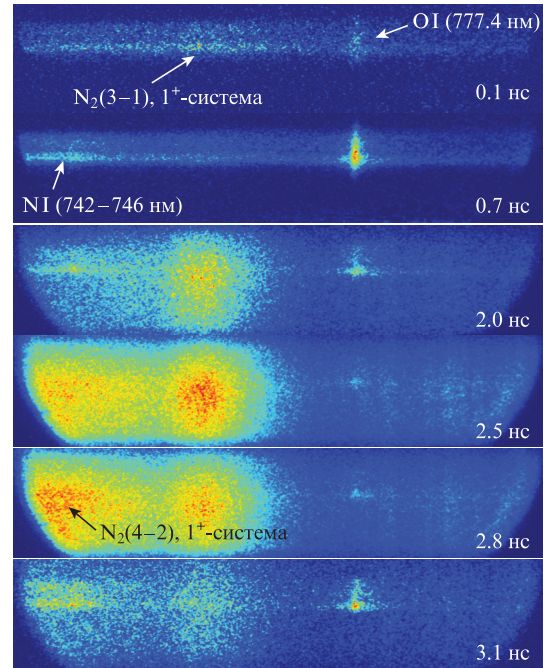


Рис.4. Времяразрешенные изображения спектра излучения плазмы в диапазоне 740–800 нм (3–1 и 4–2 – колебательные числа). Лазерное излучение направлено снизу вверх.

ния спектра излучения плазмы представлены на рис.4. Закругленные нижние углы изображений обусловлены частичным перекрытием ICCD-матрицы и фотокатода. При $t = 0.1$ нс видны слабая линия O I (777.4 нм) и линия $N_2(3-1)$ с центральной длиной волны $\lambda = 760.6$ нм (3 – колебательное число верхнего уровня, 1 – нижнего), как и сообщалось ранее в работе [6]. Спектр излучения состоит из двух пространственно разделенных областей. Наиболее интенсивная область расположена ближе к фокусирующей линзе. Вероятно, aberrации линзы [6] и/или постимпульсы [21] отвечают за пространственное разделение излучения плазмы филамента. Сильно уширенный триплет NI формируется позднее (при $t = 0.7$ нс). Затем интенсивность линии (3–1) быстро растет, линия становится более выраженной в сравнении с линией O I ($t = 2$ нс) и ее интенсивность достигает максимального значения при $t = 2.5$ нс. При 2 нс $\leq t \leq 3.1$ нс на рис.2 наблюдается следующая особенность: размер зоны излучения молекулярных линий (3–1) и (4–2) резко возрастает и превышает первоначальный размер зоны излучения филамента при $t = 0.1$ нс, тогда как размер зоны излучения атомных линий O I и NI остается неизменным. Увеличение размера зоны несимметрично – зона излучения вытянута навстречу лазерному пучку. При $t = 2.8$ нс интенсивность линии (3–1) уменьшается, а линия (4–2) с центром на $\lambda = 748.4$ нм становится более интенсивной. Далее излучение линий 1^+ -системы резко прекращается ($t > 3.1$ нс). Мощное излучение на переходах (3–1) и (4–2) выглядит как вынужденное излучение с характерным временем ~ 1 нс.

Времяразрешенные спектры излучения плазмы, соответствующие рис.4, представлены на рис.5. Видно, что импульсное излучение молекул N_2 изначально сопровождается уширением линий O I и увеличением их интенсивности. Далее непрерывное излучение, соответствующее переходу (7–6) 1^+ -системы, «скрывает» линию кислорода. Следует отметить, что слабое импульсное излучение 1^+ -системы наблюдалась в работе [6] при $t = 2$ и 3 нс.

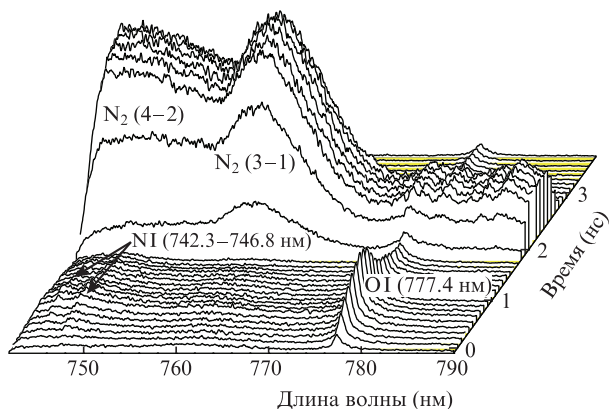


Рис.5. Динамика спектра излучения филамента. Уровень фона показан желтым цветом (цветные варианты рис.5 и 6 см. на 3-й стр. обложки КЭ).

Такое поведение слабоинтенсивной 1^+ -системы (по сравнению с 2^+ - и 1^- -системами N_2) очень странно, поскольку радиационное время жизни колебательных подуровней для уровня V^3P_g с $v' = 3$ и 4 равно 8.3 и 7.5 мкс соответственно [22].

В работах [23, 24] наблюдались широкополосные сателлиты, сдвинутые в синюю и красную области спектра относительно линии излучения Ti :сапфирового лазера, для филаментов, возбуждаемых лазерным импульсом в кислороде. Осцилляции Раби генерировались на переходе OI $3p^5P-3s^5S$ вторым лазерным импульсом с $\tau \sim 1$ пс и $I \sim 10^9-10^{10}$ Вт/см². Следовательно, в нашем случае боковой сателлит, смещенный в синюю область, интенсивность которого на порядок превышает интенсивность сателлита в красной области [23], может приводить к возникновению излучения линий $(3-1)$ и $(4-2)$. В нашем случае второй пикосекундный импульс отсутствует, однако при острой фокусировке излучения постимпульсы и усиленное в регенеративном усилителе спонтанное излучение (УСИ) [7, 25] обладают достаточной интенсивностью для генерации боковых сателлитов, связанных с расщеплением Раби уровней OI . Для проверки наличия в спектре боковых сателлитов экспериментальная установка была изменена, как описано в разд.2.

Спектр лазерного излучения, прошедшего через филамент, показан на рис.6. Время отсчитывается от максимум

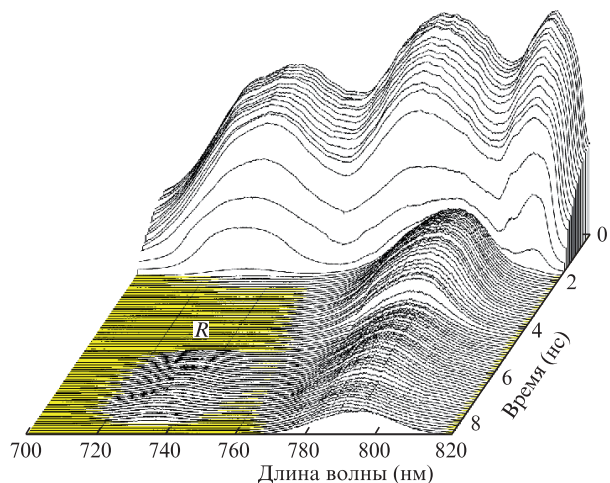


Рис.6. Спектр лазерного импульса, прошедшего через филамент; R – боковой сателлит; уровень фона показан желтым цветом.

ма лазерного импульса на длине волны $\lambda = 813$ нм, т.е. основной импульс длительностью 65 фс заканчивается при $t \approx 1.5$ нс. Спектр основного импульса сильно сдвинут в синюю область и трансформирован в три пика. Такое поведение связано с фазовой самомодуляцией в среде с керровской и плазменной нелинейностями [26]. Интенсивность лазерного излучения быстро убывает со временем, время появления бокового сателлита $t = 5.3$ нс, что отличается от $t = 1.8$ нс для импульса с меньшей энергией (см. рис.4). Учитывая, что время экспозиции равно 3 нс, можно предположить, что длительность излучения боковых сателлитов не превышает 3 нс. В новой геометрии эксперимента боковой сателлит с центром на длине волны $\lambda \approx 735$ нм смещен относительно линий излучения N_2 , 760.6 нм $(3-1)$ и 748.4 нм $(4-2)$. При $t > 2$ нс на рис.6 наблюдается уменьшающийся со временем синий сдвиг длины волны лазера, составляющий $10-15$ нм.

Взаимодействие мощного лазерного излучения на частоте ω с атомами кислорода вблизи перехода $3p^5P-3s^5S$ приводит к появлению боковых сателлитов на частотах $\omega + \Omega'$. Обобщенная частота Раби $\Omega' = \sqrt{\Delta^2 + \Omega^2}$, где Δ – отстройка частоты перехода от центральной частоты возбуждающего лазерного импульса, $\Omega = \mu F/\hbar$ – частота Раби, зависящая от приведенного дипольного матричного элемента μ и амплитуды электрического поля F . Дипольный матричный элемент $\mu = \sqrt{S}$, где S – сила линии из базы данных NIST [27] (ее значения представлены в табл.1). Здесь и далее следует различать силу линии S и полный спиновый момент S . Для лазерного импульса со спектром, смещенным в синюю область на 10 нм, отстройка $\Delta \approx 0.026$ эВ. Отметим, что в приведенном на рис.6 спектре отсутствуют боковые полосы, соответствующие переходам $J' = 3 - J = 2$ и $J' = 2 - J = 2$. Например, для перехода $J' = 3 - J = 2$ и интенсивности $I = 2 \times 10^{10}$ Вт/см² должен наблюдаться пик в окрестности 717 нм, что противоречит экспериментальным результатам, приведенным рис.6, и результатам работ [23, 24]. Повидимому, это противоречие можно объяснить разрывом LS-связи для уровня OI $3p^5P$ в сильном лазерном поле [28–30]. Если возмущение, вызванное сильным лазерным полем, значительно превышает спин-орбитальное возмущение, то, согласно работе [28], состояния атома не могут быть описаны в базисе $|n, L, S, J, M_J\rangle$. При $I \sim 10^{10}$ Вт/см² расщепление Раби $\hbar\Omega' = 0.08$ эВ ($J' = 1 - J = 2$), что на два порядка больше мультиплетного расщепления $\Delta_{LS} = 7 \times 10^{-4}$ эВ для атома кислорода. В таких условиях электрическое поле связывается с полным угловым орбитальным вектором L . Согласно работе [31] S для перехода $nSL-n'L'$ определяется следующим образом:

$$S = |\langle nL \| D \| n'L' \rangle|^2 = \frac{1}{2S+1} \sum_{JJ'} S(SLJ; l'SL'J'). \quad (1)$$

Из (1) легко получить $S = 25.7$ а.е. Следовательно, для $\Delta \approx 0.026$ эВ средняя интенсивность лазерного излучения $I = 2.5 \times 10^{10}$ Вт/см² при $5 \leq t \leq 8$ нс (рис.6) и $I = 1.2 \times 10^{10}$ Вт/см² при $t = 2.5$ нс (см. рис.5) (боковой сателлита на $\lambda \approx 750$ нм).

Отметим, что интенсивность $I \sim 10^{10}$ Вт/см² наносекундной составляющей фемтосекундного импульса достаточна для поддержания волны поглощения (светодетонационная волна, быстрая волна ионизации) при пробе воздуха наносекундным лазерным импульсом (рис.6) [32, 33]. Однако в эксперименте пробой не наблюдался.

Условие возникновения пробоя определяется следующим критерием [34]: в фокальном объеме должно появиться $10^{13} - 10^{14}$ электронов. Если считать фокальный объем цилиндром с диаметром $d_{pl} = 60$ мкм и длиной 2 мм [6], то для электронной концентрации $n_e = 8 \times 10^{17} \text{ см}^{-3}$ получаем 4.5×10^{12} электронов. Принимая во внимание значительно меньший объем плазменного канала, можно сделать вывод, что в нашем случае пробой невозможен.

Исходя из представленных выше результатов, импульсное излучение 1^+ -системы можно описать следующим образом. В эксперименте частота следования лазерных импульсов составляет 1 кГц. Уровень $A^3\Sigma_u^+$ является метастабильным с радиационным временем жизни ~ 2 с, поэтому филамент окружен молекулами $N_2(A^3\Sigma_u^+)$, вытесненными из области филаментации ударной волной предшествующих фемтосекундных импульсов. Сдвиг в синюю область спектра основного фемтосекундного импульса (рис.6) приводит к накачке уровня $B^3\Pi_g$, и через несколько наносекунд лазерное поле (УСИ + постимпульсы) генерирует боковые сателлиты. Более интенсивная компонента вызывает вынужденное излучение и появление интенсивных линий 1^+ -системы (см. рис.4 и 5). Асимметрию зоны излучения на рис.4 можно объяснить как более интенсивным излучением боковых сателлитов в обратном направлении, так и абберациями линзы [6].

3.3. Смещение и уширение линий в сильном лазерном поле

Описанный выше динамический эффект Штарка в околорезонансном сильном лазерном поле приводит к генерации боковых сателлитов и к возможному разрыву LS-связи. Для перехода азота $3p^4S_{3/2} - 3s^4P_{5/2}$ отстройка $\Delta = 0.11$ эВ много больше частоты Раби $\hbar\Omega' = 0.04$ эВ. Таким образом, для азота характерен нерезонансный динамический эффект Штарка, который изменяет энергию уровня атома на величину [35–37]

$$\Delta E = -\frac{F^2}{4} \left[\alpha^s + \alpha^t \frac{3M^2 - J(J+1)}{J(2J-1)} \right], \quad (2)$$

где α^s и α^t – динамические скалярные и тензорные поляризуемости соответственно; M – проекция J . Тензорная часть в (2) ответственна за расщепление уровня и исчезает при усреднении по M . Следовательно, сдвиг линии d_f соответствует разности скалярных поляризуемостей верхнего (u) и нижнего (l) уровней: $d_f = -\lambda^2 F^2 (-\alpha_u^s + \alpha_l^s) / (4hc)$. Принимая во внимание сдвиг d_{col} , связанный со столкновениями с частицами плазмы и представленный в основном эффектом Штарка (см. табл.2), смещение линии можно выразить соотношением $d = d_{col} + d_f$. В нашем случае ширина спектра лазерного импульса составляет ~ 35 нм, поэтому d_f определяется следующим соотношением:

$$d_f = -1.562 \times 10^{-19} \lambda^2 I_0 \frac{\int_0^\infty g(\epsilon) [-\alpha_u^s(\epsilon) + \alpha_l^s(\epsilon)] d\epsilon}{\int_0^\infty g(\epsilon) d\epsilon}, \quad (3)$$

где λ – в нм; ϵ – энергия фотона. Спектр лазерного импульса аппроксимируется функцией $I = I_0 g(\epsilon)$, где I_0 – интенсивность в центре линии (Вт/см^2); $g(\epsilon)$ – нормированный спектр лазерного импульса, описываемый функцией Гаусса.

В отличие от уровня $O\text{I } 3p^5P$, уровень $NI 3s^4P$ имеет значительно более сильную спин-орбитальную связь и расстояние между энергетическими уровнями $\Delta_{LS} = 10^{-2}$ эВ, поэтому α^s определяется следующей формулой [35]:

$$\alpha^s = \frac{\alpha_{nJ}^{(0)}}{\sqrt{3(2J+1)}}, \quad (4)$$

$$\alpha_{nJ}^{(K)} = (-1)^{K+J+1} \sqrt{2K+1} \sum_{n'J'} (-1)^{J'} \begin{Bmatrix} 1 & K & 1 \\ J & J' & J \end{Bmatrix} \frac{|\langle n'J' || D || nJ \rangle|^2}{\hbar} \times \text{Re} \left(\frac{1}{\omega_{n'J'nJ} - \omega - i\omega_{n'J'nJ}/2} + \frac{1}{\omega_{n'J'nJ} + \omega + i\omega_{n'J'nJ}/2} \right).$$

В уравнении (4) $\{ \dots \}$ – $6j$ -символ Вигнера; $\omega_{n'J'nJ}$ – угловая частота перехода $n'J' - nJ$; $\omega_{n'J'nJ}$ – ширина линий, лежащих в диапазоне длин волн, который соответствует спектру лазерного излучения; $K = 0$ и 2 для скалярной и тензорной поляризуемостей соответственно. Для вычисления $\alpha_{nJ}^{(K)}$ необходимы значения силы линии и длины волны для переходов $n'J' - nJ$, представленные в базе ASD [27]. Однако для высоковозбужденных уровней и уровней, лежащих выше потенциала ионизации, эта информация отсутствует. Тем не менее чем больше энергия уровня, тем меньше сила линии. Например, $S(3p^4S_{3/2} - 3s^4P_{5/2}) = 16.13$ а.е. и $S(4p^4S_{3/2} - 3s^4P_{5/2}) = 0.14$ а.е. Следует подчеркнуть, что $\alpha_{nJ}^{(K)}$ в формуле (4) обратно пропорциональна частоте перехода. Таким образом, можно предположить, что вклад высоковозбужденных состояний и состояний с энергией, превышающей порог ионизации, пренебрежимо мал. Результаты наших расчетов разности поляризуемостей $-\alpha^s(4S_{3/2}) + \alpha^s(4P_{5/2})$ на основе формулы (4) показаны на рис.7. Видно, что в пределах спектра лазерного импульса она большей частью отрицательна, т.е. линия $NI (746.8 \text{ нм})$ будет сдвинута в красную область в соответствии с уравнениями (3), (4). В нашем случае полный сдвиг при $t = 1-2$ нс равен 0.58 нм (см. рис.2). Вычитая штарковский сдвиг 0.25 нм (табл.2), получаем сдвиг на 0.33 нм вследствие динамического эффекта Штарка. Для $I = 1.2 \times 10^{10} \text{ Вт/см}^2$ это значение соответствует смещению спектра лазерного импульса в синюю область на 17 нм.

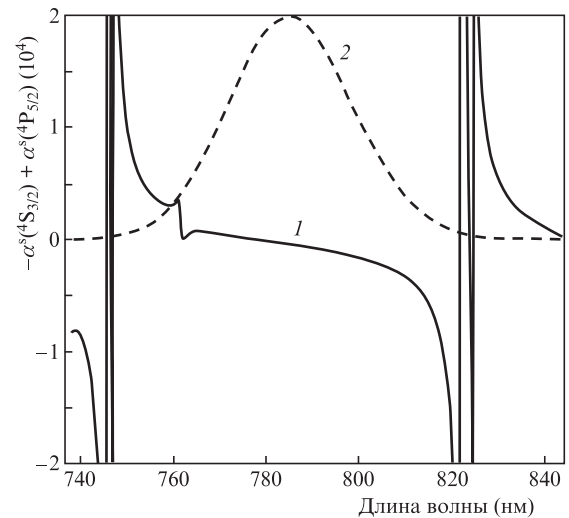


Рис.7. Разность поляризуемостей уровней $NI 4S_{3/2}$ и $4P_{5/2}$ (I) и спектр лазерного импульса (2).

Используя результаты работы [37], ширину линии в сильном лазерном поле можно оценить следующим образом:

$$w_f = 3.336 \times 10^{-18} \lambda^2 [w_f(4S_{3/2}^0) + w_f(4P_{5/2})],$$

где λ – в нм; $w_f(2S^{+1}L_J)$ – ширина уровня, равная интервалу между магнитными подуровнями уровня J . Ширина уровня определяется в соответствии с формулой (3), в которой $[-\alpha_{nl}^s(\epsilon) + \alpha_l^t(\epsilon)]$ заменяется на $3[J(2J-1)]^{-1}|\alpha_l^t(\epsilon)| \times (M^2 - M'^2)$, где разность $M^2 - M'^2$ максимальна. Тензорная поляризуемость определяется следующим соотношением [35]:

$$\alpha_l^t = -\sqrt{\frac{2J(2J-1)}{3(J+1)(2J+1)(2J+3)}} \alpha_{nl}^{(2)}.$$

Таким образом, ширина линии w_f , обусловленная расщеплением уровней в сильном лазерном поле с интенсивностью $I = 1.2 \times 10^{10}$ Вт/см², равна 1.98 нм. Считая, что динамический эффект Штарка приводит к лоренцеву контуру линии, получаем итоговую ширину линии: $w = 0.534w_L + (0.2169w_L^2 + w_{inst}^2)^{1/2}$ [38], где $w_L = w_{col} + w_f$. В пренебрежении ван-дер-ваальсовым уширением полная ширина линии $w = 2.51$ нм, что близко к экспериментальной ширине линии 3,16 нм (см. рис.2,б). Это позволяет сделать вывод о том, что расщепление уровня вследствие динамического эффекта Штарка вносит наибольший вклад в уширение линии. Из приведенной выше формулы видно, что точность расчета w_f сильно влияет на точность определения полной ширины линии. Проведенные нами расчеты уширения и сдвига линии вследствие динамического эффекта Штарка носят приближенный характер по следующим причинам. Во-первых, мгновенная форма спектра лазерных импульсов при задержках 0–3 нс неизвестна и не может быть аппроксимирована функцией Гаусса (рис.6). Во-вторых, положение максимума интенсивности бокового спутника на рис.4 и 5 дано приближенно, т.е. и интенсивность $I = 1.2 \times 10^{10}$ Вт/см² определена приближенно. Следует отметить, что при $I = 1.5 \times 10^{10}$ Вт/см² расчетная ширина линии равна экспериментальной (3.16 нм). Таким образом, нерезонансный динамический эффект Штарка и эффект Штарка, обусловленный взаимодействием с заряженными частицами, приводят к уширению и сдвигу линий в плазме филаментов.

Для линии ОI (777.4 нм) расчет уширения и сдвига линий в результате резонансного динамического эффекта Штарка является очень сложной задачей и требует использования формализма матрицы плотности [23], т.к. необходимо учитывать неупругие и упругие столкновения электронов с атомами в зависимости от температуры электронов и их концентрации. Тем не менее возможны некоторые качественные рассуждения. Временная зависимость ширины и сдвига линий хорошо аппроксимируется функцией $f(t) = a \exp(-t/\tau) + b$, где τ – характерное время спада (см. рис.2). За исключением ширины линии NI (746.8 нм), сдвиги и ширина линии ОI (777.4 нм) имеют примерно одинаковые характерные времена $\tau = 15.7$ – 16.2 нс (рис.2). Учитывая слабую температурную зависимость параметра сдвига линий электронным ударом, можно предположить, что характерное время спада электронной концентрации составляет ~ 16 нс. Следовательно, сдвиг линий определяется прежде всего электронным уда-

ром, а динамический эффект Штарка, из-за быстро спадающей интенсивности УСИ и постимпульсов (рис.6), влияет на сдвиг линий только в начальные моменты эволюции плазмы филамента. Быстрое же уменьшение ширины линии NI (746.8 нм) ($\tau = 10.1$ нс, см. рис.2), скорее всего, связано с уменьшением интенсивности лазерного излучения.

4. Заключение

В настоящей работе показано, что уширение и сдвиг линий при филаментации остросфокусированного фемтосекундного лазерного импульса в воздухе обусловлены, главным образом, лазерным полем УСИ и постимпульсов. Это поле приводит к разрыву LS-связи для уровня ОI 3p⁵P, к генерации боковых спутников и к ранее не описанному в научной литературе мощному излучению 1⁺-системы N₂. Генерация боковых спутников может стать мощным инструментом в случае дистанционного зондирования излучением Ti:сапфирового лазера различных сред при условии, что эмиссионная линия элементов, из которых состоят среды, лежит близко к линии ОI (777.4 нм). При этом следует учитывать тот факт, что вынужденное излучение 1⁺-системы может препятствовать обнаружению линий других элементов, что наблюдалось для филаментов, генерируемых на поверхности воды [39]. Также в фемтосекундной лазерной искровой спектроскопии регистрацию линий элементов целесообразно проводить с некоторой задержкой, при которой лазерное поле УСИ и постимпульсов не влияет на контур регистрируемых линий.

Исследование сдвига спектральных линий осуществлялось в ДВФУ при финансовой поддержке гранта Российского научного фонда (проект №14-50-00034). Анализ уширения линий проводился при поддержке гранта РФФИ (№ 17-02-00802 А), полученного в ходе реализации С.С.Голиком программы «Организация научных исследований» Министерства образования и науки РФ с использованием оборудования уникальных стендов и установок ЦКП ЛаМИ ИАПУ ДВО РАН.

1. Чекалин С.В., Кандидов В.П. *УФН*, **183**, 133 (2013).
2. Кандидов В.П., Шленов С.А., Косарева О.Г. *Квантовая электроника*, **39**, 205 (2009) [*Quantum Electron.*, **39**, 205 (2009)].
3. Алексимов Д.В., Гейнц Ю.Э., Землянов А.А., Кабанов А.М., Матвиенко Г.Г., Ошлаков В.К. *Квантовая электроника*, **45**, 408 (2015) [*Quantum Electron.*, **45**, 408 (2015)].
4. 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. *Laser Phys.*, **22**, 1 (2012).
5. Lim K., Durand M., Baudelet M., Richardson M. *Sci. Rep.*, **4**, 7217 (2014).
6. Ilyin A.A., Golik S.S., Shmirko K.A. *Spectrochim. Acta B*, **112**, 16 (2015).
7. Labutin T.A., Lednev V.N., Ilyin A.A., Popov A.M. *J. Anal. At. Spectrom.*, **31**, 90 (2016).
8. Musazzi S., Umberto P. (Eds) *Laser-induced Breakdown Spectroscopy: Theory and Applications* (Springer, 2014).
9. Martin F., Mawassi R., Vidal F., Gallimberti I., Comtois D., Pépin H., Kieffer J.C., Mercure H.P. *Appl. Spectrosc.*, **56**, 1444 (2002).
10. Siegman A.E. *Lasers* (CA: Mill Valley, 1986).
11. Bernhardt J., Liu W., Theberge F., Xu H.L., Daigle J.F., Chateauuneuf M., Dubois J., Chin S.L. *Opt. Commun.*, **281**, 1268 (2008).
12. Kasparian J., Sauerbrey R., Chin S.L. *Appl. Phys. B*, **71**, 877 (2000).
13. Henis Z., Milikh G., Papadopoulos K., Zigler A. *J. Appl. Phys.*, **103**, 103111 (2008).

14. Shneider M.N., Zheltikov A.M., Miles R.B. *Phys. Plasmas*, **18**, 063509 (2011).
15. Griem H.R. *Spectral Line Broadening by Plasmas* (New York: Academic, 1974).
16. Konjevic N. *Phys. Rep.*, **316**, 339 (1999).
17. Cox A.N. (Ed.) *Allen's Astrophysical Quantities* (New York: Springer-Verlag, 2002).
18. Olney T.N., Cann N.M., Cooper G., Brion C.E. *Chem. Phys.*, **223**, 59 (1997).
19. Barklem P.S. *Astron. Astrophys.*, **462**, 781 (2007).
20. Ильин А.А. *Письма в ЖТФ*, **42**, 1024 (2016) [*Tech. Phys. Lett.*, **42**, 1024 (2016)].
21. Nan Z., Wen-Xia B., Jing-Hui Y., Xiao-Nong Z. *Chin. Phys. B*, **22**, 054209 (2013).
22. Chauveau S., Perrin M.-Y., Riviere Ph., Soufiani A. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, **72**, 503 (2002).
23. Compton R., Filin A., Romanov D.A., Levis R.J. *Phys. Rev. A*, **83**, 053423 (2011).
24. Heck G., Filin A., Romanov D.A., Levis R.J. *Phys. Rev. A*, **87**, 023419 (2013).
25. Keppler S., Savert A., Korner J., Hornung M., Liebetrau H., Hein J., Kaluza M.C. *Laser Photon. Rev.*, **10**, 264 (2016).
26. Апрексимов D.V., Bukin O.A., Bykova E.E., Geints Yu.E., Golik S.S., Zemlyanov A.A., Il'in A.A., Kabanov A.M., Matvienko G.G., Oshlakov V.K., Petrov A.V., Sokolova E.B. *Plasma Phys. Rep.*, **39**, 1056 (2013).
27. NIST, Atomic Spectra Database, <https://www.nist.gov/pml/atomic-spectra-database>.
28. Dubreuil B., Chapelle J. *Physica B+ C*, **94**, 233 (1978).
29. Candler A.C. *Atomic Spectra and Vector Model* (Cambridge: Cambridge University Press, 1937).
30. Компанец А.С. *Курс теоретической физики* (М.: Просвещение, 1972, т. 1).
31. Собельман И.И. *Введение в теорию атомных спектров* (М.: Физматгиз, 1963).
32. Пуин А.А., Nagorny I.G., Bukin O.A. *Appl. Phys. Lett.*, **96**, 171501 (2010).
33. Ильин А.А., Букин О.А., Буланов А.В. *ЖТФ*, **78**, 20 (2008) [*Tech. Phys.*, **53**, 693 (2008)].
34. Райзер Ю.П. *Лазерная искра и распространение разрядов* (М.: Наука, 1974).
35. Kien F.L., Schneeweiss P., Rauschenbeutel A. *Eur. Phys. J. D*, **67**, 92 (2013).
36. Manakov N.L., Ovsiannikov V.D., Rapoport L.P. *Phys. Rep.*, **141**, 320 (1986).
37. Делоне Н.Б., Крайнов В.П. *УФН*, **169**, 753 (1999).
38. Ivković M., Konjević N. *Spectrochim. Acta B*, **131**, 79 (2017).
39. Пуин А.А., Golik S.S. *Spectrochim. Acta B*, **87**, 192 (2013).