

ВОЗДЕЙСТВИЕ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ НА ВЕЩЕСТВО. ЛАЗЕРНАЯ ПЛАЗМА**Временная динамика свечения плазмы в воздухе при различных условиях фокусировки фемтосекундного импульса излучения****Н.Г.Иванов, В.Ф.Лосев, В.Е.Прокопьев**

Представлены результаты спектрально-временных исследований свечения плазмы в воздухе с временным разрешением ~ 2 пс. Плазма создавалась лазерным излучением с длиной волны 950 нм и с длительностью импульса 60 фс. Показано, что при числовой апертуре $NA > 0.1$ в спектре доминируют атомарные и ионные линии кислорода и азота на фоне интенсивного сплошного спектра в видимой области. Для $NA < 0.07$ в спектре появляются линии второй положительной системы молекулярного азота N_2 и первой отрицательной системы молекулярных ионов N_2^+ . В случае $NA < 0.03$ спектр состоит лишь из молекулярных линий N_2 и N_2^+ . Максимумы интенсивностей излучения этих линий запаздывают относительно лазерного импульса на 10–12 пс, атомарные линии начинают светиться спустя 80–100 пс после момента воздействия. Характерное время спада свечения линий по уровню $1/e$ для N_2^+ составляет 18 пс, для N_2 – 27 пс, для атомарных линий – 20 пс.

Ключевые слова: фемтосекундное лазерное излучение, фокусировка в воздухе, числовая апертура, молекулярные и атомарные линии излучения, длительность импульса излучения, вторая гармоника, спектральная линия, излучение плазмы.

1. Введение

Впервые временная динамика свечения плазмы, образованной фемтосекундным импульсом излучения, изучалась в работе [1]. Для создания плазмы филамента использовалось излучение неодимового лазера с длиной волны $\lambda = 1.053$ мкм и длительностью импульса 500 фс. Регистрация спектров осуществлялась с помощью спектрометра с временными воротами (минимальная ширина 4.5 нс) и стрик-камеры (без спектрального разрешения). Были выделены три стадии свечения плазмы. На первой стадии преобладают молекулярные линии N_2 и N_2^+ (2^+ – система N_2 доминирует), которые появляются непосредственно после лазерного воздействия (время t_0) с характерным временем спада $\tau \approx 60$ пс. На второй стадии через 1 нс после t_0 преобладающим становится сплошной спектр континуума с $\tau \approx 30$ нс. По мере его угасания, на третьей стадии, начинают проявляться атомарные линии кислорода и азота, которые светятся в течение $\tau \approx 1$ мкс. В работе [2] длительность свечения N_2 в филаменте определялась с помощью методики накачка–зондирование и составила ~ 85 пс. В то же время в работе [3] продолжительность только лишь фронта нарастания свечения N_2^+ и N_2 , согласно измерениям, была 150–200 пс. Стоит, однако, отметить, что при этом минимальное время экспозиции сигнала составляло 100 пс. В недавней работе [4] измерение с помощью стрик-камеры с высоким временным разрешением (30 пс) показали, что фронт нарастания свечения N_2^+ определяется временным разрешением, а $\tau = 600$ пс. Авторы этой работы связывают величину τ с временем

жизни свободных электронов в плазме филамента и считают, что оно определяется процессом тушения электронами верхнего состояния N_2^+ ($B^2\Sigma_u^+$).

Применение интерферометрии и методики накачка–зондирование позволяет измерять концентрацию электронов (N_e) в плазме филамента с субпикосекундным временным разрешением [5, 6]. В [6] было показано, что концентрация электронов зависит от давления азота и при 1 атм падает в течение 1 нс более чем на порядок (с 10^{17} до 6×10^{15} см $^{-3}$). Вместе с тем в ряде работ говорится о характерном спаде концентрации N_e в течение 1–10 нс [7–9].

Таким образом, сведения о временной эволюции характеристик свечения и концентрации электронов плазмы, образованной в воздухе импульсом излучения с фемтосекундной длительностью, на данный момент носят довольно противоречивый характер и требуют дальнейшего исследования.

Целью настоящей работы являлось изучение временной динамики спектра излучения и концентрации электронов плазмы, создаваемой импульсом излучения с фемтосекундной длительностью, с помощью стрик-камеры, которая обеспечивает временное разрешение 2 пс. Представлены данные о динамике спектра излучения и концентрации электронов плазмы в воздухе, анализируются механизмы образования возбужденных частиц и кинетика их исчезновения.

2. Эксперимент**2.1. Экспериментальная установка и методики**

В экспериментах использовалась Ti:сапфировая лазерная система (фирма «Авеста-Проект»), которая генерировала лазерное излучение на центральной длине волны $\lambda = 950$ нм с длительностью импульса 60 фс (FWHM), энергией до 15 мДж и частотой следования 10 Гц. Излучение фокусировалось в атмосферном воздухе линзами с

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

Поступила в редакцию 4 апреля 2018 г., после доработки 21 мая 2018 г.

фокусными расстояниями $F = 3 - 326$ см. Стабильность энергии лазерных импульсов составляла $\pm 5\%$. Начальный пучок имел диаметр 10 мм (уровень $1/e^2$), коэффициент качества $M^2 = 1.5$ и близкий к гауссову поперечный профиль интенсивности. Для части экспериментов излучение частично преобразовывалось во вторую гармонику (ВГ) в кристалле KDP толщиной 2 мм. Излучение ВГ служило для регистрации момента лазерного воздействия на временной шкале. Схема экспериментальной установки, используемой для проведения измерений, показана на рис.1.

Измерение динамики свечения различных компонентов плазмы осуществлялось поперек филамента. Для этого излучение плазмы собиралось и фокусировалось на щель спектрометра двумя конденсорами. После спектрометра излучение подавалось на входную щель стрик-камеры, на выходе которой развернутое во времени и по спектру изображение записывалось на ПЗС-матрицу. Далее информация через интерфейс передавалась на компьютер и обрабатывалась. Спектрометр (Acton Spectra Pro SP-2300) имел 3 сменных решетки: 50, 300 и 1200 штрих./мм. Предельное спектральное разрешение при минимальной входной щели составляло 0.27 нм. У стрик-камеры (Hamamatsu, Universal Streak Camera C10910) имелось две временные развертки: быстрая (минимальная развертка 100 пс) и медленная (минимальная развертка 1 нс). Максимальное временное разрешение стрик-камеры составляло 0.644 пс. В режиме накопления импульсов временное разрешение для 10000 выстрелов возрастало до 4.3 пс из-за наличия джиттера в момент срабатывания стрик-камеры. Для его уменьшения запуск камеры при измерениях осуществлялся от рассеянного излучения накачки, которое регистрировалось ррп-диодом, установленным рядом со спектрометром. Результирующий сигнал со стрик-камеры усреднялся по 300 импульсам. Для компенсации времени запаздывания блока развертки стрик-камеры лазерное излучение проходило расстояние около 14 м и лишь потом фокусировалось. Измерение диаметра плазменного канала во времени проводилось в схеме, в которой фокусировка излучения осуществлялась вдоль щели спектрометра. При этом он переключался в режим «0», в котором отсутствовало спектральное разрешение. Для оценки концентрации электронов в экспериментах также изучалась динамика уширения водородной линии H_α под действием эффекта Штарка. При этом лазерное излучение основной гармоники фокусировалось в кювету, наполненную смесью азота с водородом

в соотношении 15/1 при общем давлении 1.5 атм. Интегральные по времени спектры свечения плазмы филамента регистрировались спектрометром HR-4000 (Ocean Optics, 200–1100 нм, спектральное разрешение 0.75 нм).

2.2. Калибровка стрик-камеры

При совмещении спектрометра со стрик-камерой возникает ошибка в регистрации момента появления разных длин волн. Она обусловлена тем, что вследствие дисперсии дифракционной решетки излучение различных длин волн λ проходит разное расстояние до фотокатода стрик-камеры. При развертках менее 1 нс эта ошибка становится значительной. Для нахождения задержек по времени для излучения разных длин волн нами проводилась временная калибровка прибора. В качестве источника света использовался высоконаправленный суперконтинуум в широком спектральном диапазоне (350–1000 нм) [10]. При столь широком спектре суперконтинуума и довольно большом пути его транспортировки возможно влияние дисперсии воздуха на точность калибровки. Однако наши оценки показали, что при транспортировке излучения с $\lambda = 350$ нм ($n_{350} = 1.00028973$) и 1000 нм ($n_{1000} = 1.00027505$) на 14 м разность по времени составляет $\Delta t = \Delta n \times l/c = 0.685$ пс, где Δn – разность показателей преломления воздуха n на этих длинах волн; l – длина пути; c – скорость света. Таким образом, дисперсия воздуха дает вклад, сравнимый с временным разрешением прибора. На рис.2 в качестве примера представлена картина отставания коротковолновых компонентов суперконтинуума от длинноволновых в диапазоне от 350 до 600 нм. Видно, что отставание излучения на $\lambda = 375$ нм от излучения на $\lambda = 600$ нм составляет 5 пс. Найденная разница по времени для излучения разных длин волн учитывалась при регистрации временного поведения спектров свечения плазмы.

Перед проведением экспериментов также была осуществлена калибровка спектрального прибора по положению спектральных линий и их интенсивности с использованием Hg–Ag-лампы и источника излучения черного тела. Для определения предельного временного разрешения стрик-камеры на вход спектрометра подавалось излучение ВГ с длительностью 50 фс в отсутствие конденсоров. Максимальное разрешение при этом составило 2 пс для щели хронографа 5 мкм при накоплении сигналов от 300 импульсов.

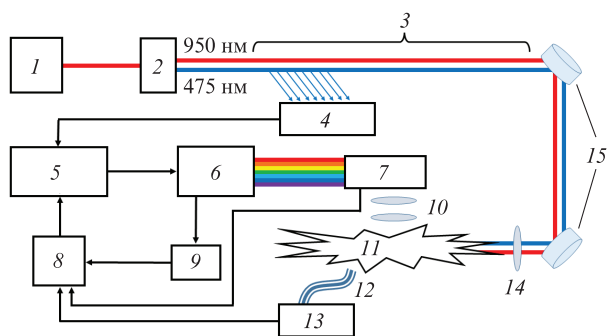


Рис.1. Схема экспериментальной установки:
1 – Ti:сапфировый лазер; 2 – кристалл KDP; 3 – линия оптической задержки; 4 – ррп-диод; 5 – генератор задержек; 6 – стрик-камера; 7 – SP-2300; 8 – ПК; 9 – ПЗС-матрица; 10 – конденсоры; 11 – плазма; 12 – световод; 13 – HR-4000; 14 – линза; 15 – зеркала.

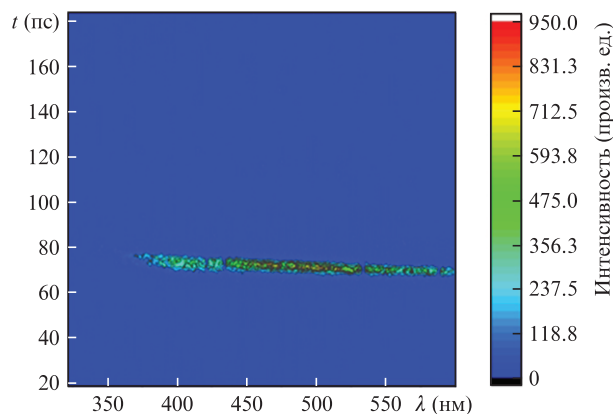


Рис.2. Спектрально-временное изображение свечения направленного суперконтинуума в спектральном диапазоне 350–600 нм.

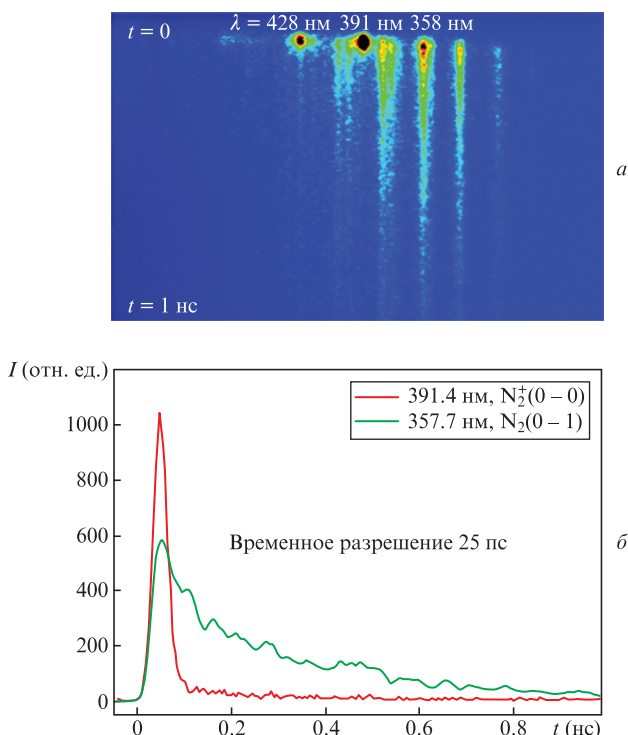


Рис.7. Спектрохронограмма излучения, полученная стрик-камерой в диапазоне 250–530 нм (а), и поведение излучения во времени для N_2^+ и N_2 (б); $E = 13$ мДж, $F = 32$ см, развертка составляет 1 нс.

прибора в конкретных условиях съемки. В пределах этой точности можно утверждать, что максимумы свечения молекул N_2 и ионов N_2^+ отстают относительно лазерного импульса. Длительность свечения ионов N_2^+ составляет ~ 18 пс по уровню $1/e$, ~ 13 пс по уровню 0.5. Длительность свечения молекул N_2 по уровню 0.5 также мала (~ 20 пс).

Из анализа представленных выше данных возникает вопрос: какими процессами задается столь малое время жизни верхних состояний N_2^+ и N_2 ? Известно, что радиационное время жизни для N_2^+ составляет 60 нс и для N_2 – 30 нс [1, 11] и, следовательно, их спонтанный распад не может определять наблюдаемое нами время жизни. Другим процессом дезактивации может являться столкновение с нейтральными частицами. Однако проведенные нами измерения показали, что длительность свечения N_2^+ и N_2 не зависит от давления азота в диапазоне 0.1–3 атм. То же самое наблюдалось в работе [4], но при малых давлениях N_2

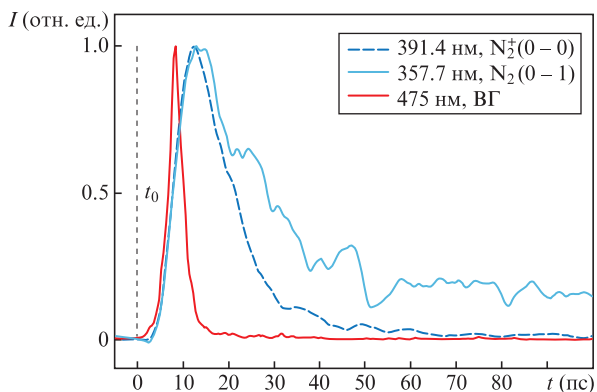


Рис.8. Временные зависимости интенсивности излучения ВГ, N_2^+ и N_2 ; развертка составляет 200 пс.

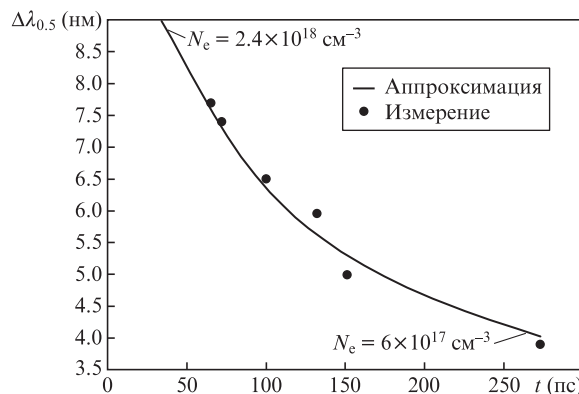


Рис.9. Временная зависимость спектральной ширины линии водорода H_α ; $F = 15$ см, $E = 15$ мДж. Время $t = 0$ пс соответствует моменту воздействия лазерного импульса, $\Delta\lambda_A = 0.65$ нм – спектральное разрешение прибора.

(~ 8 Тор). Более того, в работе [1] было показано, что характерное время жизни состояния $B^2\Sigma_u^+$ при атмосферном давлении составляет ~ 60 пс, что более чем в 3 раза выше значения, измеренного нами. В работе [4] авторы пришли к выводу, что время жизни состояния $B^2\Sigma_u^+$ задается частотой столкновений N_2^+ с электронами. Чтобы оценить, насколько это вероятно в нашем случае, мы измерили концентрацию электронов в плазме для разных моментов времени по уширению линии водорода H_α ($\lambda = 656.3$ нм) [12]. Зависимость ширины линии водорода от времени и значения рассчитанной концентрации электронов приведены на рис.9.

Расчет концентраций электронов осуществлялся в предположении штарковского уширения линии и наличия локального термодинамического равновесия (ЛТР). Такое предположение, согласно оценкам [7], допустимо в наших условиях. Наличие непрерывного спектра вблизи линии $\lambda = 656.3$ нм ограничивало точность измерений в начальные моменты времени (до 50 пс). Чтобы ее повысить, на графике приведена аппроксимационная кривая. Из рис.9 видно, что в течение первых 100 пс происходит резкое падение концентрации электронов, а далее оно замедляется.

Дополнительно нами были проведены оценки концентрации электронов, исходя из интенсивности излучения плазмы. Для оценки диаметра пучка в перетяжке, а затем интенсивности, был измерен диаметр плазменного канала и интенсивность его свечения во времени. В этих экспериментах фокусное расстояние линзы составляло 6.5 см, энергия излучения была 3 мДж. Результаты обработки пространственно-временной съемки представлены на рис.10.

Из рис.10,а видно, что нормированное распределение интенсивности излучения плазменного канала не меняется на отрезке времени 0.5–3 нс, а его диаметр составляет ~ 120 мкм. Из соотношения $d_{pl} = d_{waist}/K^{1/2}$, где $K = 9.6$ [1] – коэффициент Келдыша, а d_{pl} и d_{waist} – диаметры канала и перетяжки соответственно, находим диаметр в перетяжке: $d_{waist} = 0.12 \times 3.1 = 0.37$ мм. Максимальная интенсивность излучения в перетяжке при таком ее размере и энергии 3 мДж составит $I_0 \approx 10^{14}$ Вт/см². Согласно работе [13], в которой изучалась зависимость концентрации электронов N_e от интенсивности I_0 , при $I_0 = 10^{14}$ Вт/см² значение $N_e = 10^{18}$ см⁻³, что близко к измеренному нами по штарковскому уширению линии H_α . Более того, в работе [14] в условиях, подобным нашим, также была получена концентрация электронов в плазме $\sim 10^{18}$ см⁻³. Из рис.10,б видно, что спад интенсивности излучения на оси плазменного кана-

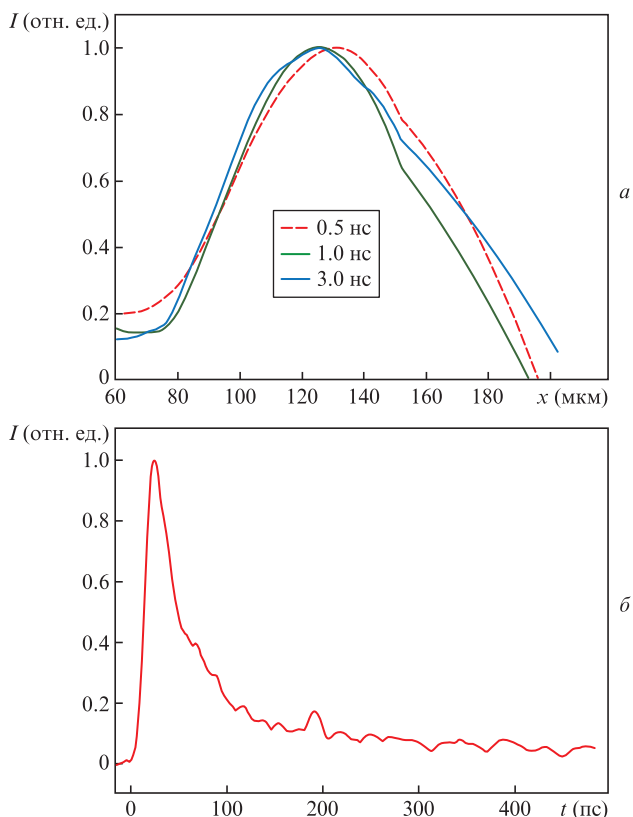


Рис.10. Поперечные распределения интенсивности излучения плазмы (а) и временная зависимость интенсивности излучения на оси (б).

ла по уровню 0.5 составляет 34 пс, по уровню 1/e – 60 пс. Исходя из столь быстрого времени затухания, можно заключить, что в этих условиях основной вклад в свечение плазмы дают линии ионов N₂⁺ и молекул N₂ (см. рис. 7,б).

4. Обсуждение результатов

Различие в пространственных и спектрально-временных параметрах плазмы с изменением NA обусловлено различием в поступлении в нее энергии излучения. При больших NA (короткофокусная фокусировка) нелинейный и геометрический фокусы близки друг к другу. В результате практически все излучение проходит через плазму, что увеличивает долю поглощенной энергии. Вследствие этого повышается концентрация электронов и увеличивается скорость обменных процессов с их участием, в частности скорость диссоциативной рекомбинации молекулярных ионов. Таким образом, излучение на переходе B²Σ_u⁺ – X²Σ_g⁺ может не наблюдаться. Если считать, что N₂ в состоянии C³Π_u образуется через диссоциативную рекомбинацию N₄⁺ [2], то излучение второй положительной системы азота также будет отсутствовать. Наоборот, вероятность образования возбужденных состояний атомов и ионов при этом становится высокой.

При малых NA (длиннофокусная фокусировка) геометрический фактор играет небольшую роль. Действие эффекта Керра начинается намного раньше геометрического фокуса, и сказывается эффект накопления нелинейной фазы. Как результат, в центральной части пучка возникает высокий градиент в распределении фазы с большим ее отставанием по оси. Это ведет к росту осевой интенсивности и к возникновению плазмы. При дальнейшем распространении излучения градиент фазы меняет свой знак,

что ограничивает поступление энергии с периферии и уменьшает осевую интенсивность [15]. Возникающая плазма также способствует этому. Таким образом, при малых NA существует механизм, препятствующий неограниченному росту интенсивности излучения. Малая интенсивность и, следовательно, малая концентрация электронов способствуют увеличению времени жизни возбужденных состояний и росту свечения N₂⁺ и N₂.

Как видно из рис.8, импульсы излучения молекул и молекулярных ионов азота достаточно короткие в отличие от импульсов, описанных в других работах. При этом существует запаздывание максимума интенсивности свечения N₂⁺ и N₂ относительно лазерного импульса, которое говорит о заселении возбужденных уровней после лазерного воздействия. Поскольку форма импульса излучения определяется скоростью механизмов образования и тушения возбужденных частиц, проведем анализ наиболее важных из них.

Начнем с анализа механизмов образования ионов. На рис.11 представлены потенциальные кривые N₂ и N₂⁺, а также зависимость вероятности образования автоионизационных состояний N₂ от энергии возбуждающего кванта [16]. Время жизни автоионизационных состояний является очень коротким: 10⁻¹³–10⁻¹⁴ с. В результате их распада образуются ион и электрон, уносящий дефект энергии. Как видно из вставки на рис.11, максимальной вероятностью образования обладает автоионизационный уровень 3σ_g с энергией 15.58 эВ. Этот уровень находится в абсолютном резонансе с основным состоянием X²Σ_g⁺ (v'' = 0) иона N₂⁺. В то же самое время энергия 12 фотонов с λ = 950 нм составляет 15.66 эВ, таким образом, вероятность заселения уровня X²Σ_g⁺ (v'' = 0) через автоионизационное состояние 3σ_g является очень высокой. При взаимодействии ионов в состоянии X²Σ_g⁺ (v'' = 0) с тремя фотонами накачки возможно заселение колебательно-вращательных уровней состояния B²Σ_u⁺ с v' = 3, поскольку имеет место резонанс между энергиями этих трех фотонов и энергией перехода X²Σ_g⁺ (v'' = 0) – B²Σ_u⁺ (v' = 3). Если интенсивность накачки достаточно высока, то появляется вероятность прямого заселения состояния B²Σ_u⁺ (v' = 3) 15 фотонами. Тем не менее наблюдаемое нами излучение с λ = 391.4 и 427.8 нм соответствует переходам с верхнего состояния B²Σ_u⁺ с нулевым колебательным числом. Известно, что наиболее быстрая релаксация ионов по колебательным

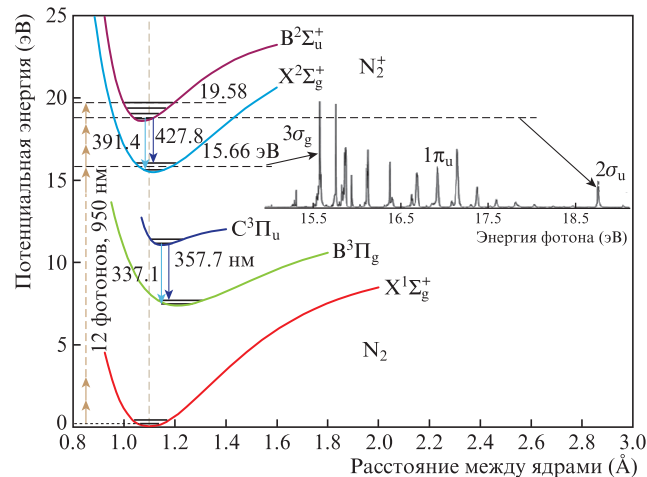


Рис.11. Потенциальные кривые азота, а также наблюдаемые переходы. Вставка показывает автоионизационные состояния молекулы N₂.

степеням свободы возможна в процессе кулоновских столкновений с электронами (так называемая $e-V$ -релаксация). Скорость такого процесса изучалась в теоретической работе [17]. Обмен колебательной энергией в ней рассчитывался с учетом образования автоионизационных состояний в следующей цепочке реакций:

$$N_2^+(v_1^+) + e^-(\epsilon) \rightarrow N_2^*, N_2^{**} \rightarrow N_2^+(v_2^+) + e^-(\epsilon'). \quad (1)$$

На рис.12 представлены результаты расчета скорости деактивации колебательной энергии, начиная с уровня $v'' = 3$ основного состояния N_2^+ в интервале температуры электронов T_e 100–10000 К ($\sim 0.01 - 1$ эВ) [17]. Если принять, что для наших условий $T_e \approx 5000$ К [7], тогда константа скорости $e-V$ -релаксации с $v'' = 3$ на $v'' = 0$ согласно расчетам составляет $\sim 10^{-8}$ см³/с. При $N_e = 10^{16} - 10^{17}$ см⁻³ это дает характерные времена $\tau = 10^{-8} - 10^{-9}$ с. Таким образом, наличие запаздывания максимума свечения линий с $\lambda = 391.4$ и 427.8 нм относительно лазерного импульса трудно объяснить $e-V$ -процессом. Следует отметить, что [17] – это единственная работа, в которой обсуждался $e-V$ -процесс, кроме того, расчеты в ней проводились при условии максвелловского распределения электронов по скоростям. В нашем случае на отрезке времени десятки пикосекунд после воздействия лазерного импульса это условие может быть не выполнено.

Заселение иона N_2^+ в состояние $B^2\Sigma_u^+(v' = 3)$ может также происходить за счет многофотонной ионизации (15 фотонов) основного состояния молекулы N_2 , как отмечалось ранее. Однако этот процесс является маловероятным, поскольку, согласно принципу Франка–Кондона, большей вероятностью обладают переходы между этими состояниями без изменения колебательного квантового числа $v'' - v' = 0 - 0, 1 - 1, 2 - 2, 3 - 3$.

Другим способом возбуждения состояния $B^2\Sigma_u^+(v' = 0)$ из состояния $X^2\Sigma_g^+(v'' = 0)$ является электронный удар [18, 19]. В работе [20] приводится сечение данного перехода σ , измеренное экспериментально и рассчитанное теоретически. Максимум этого сечения достигается при энергии электронов 3.5 эВ и составляет $\sim 3 \times 10^{-16}$ см². Известно, что константу скорости процесса k можно оценивать через сечение как $k = \sigma \langle v \rangle$, где $\langle v \rangle$ – средняя скорость электронов. В работе [18] проводился расчет функции распределения электронов по энергии в плазме филамента в зависимости от поляризации излучения накачки. Для линейной поляризации функция распределения имеет максимум в районе 0.5 эВ, однако значительная доля электронов имеет

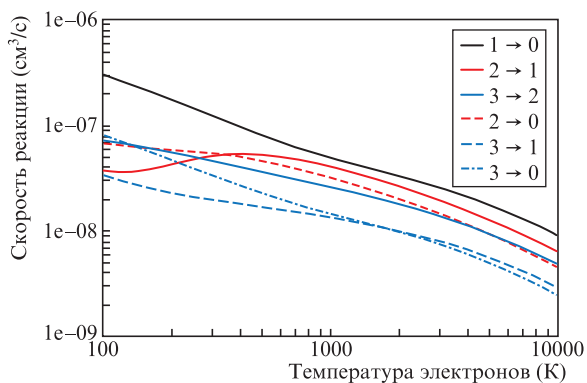


Рис.12. Максвелловский изотропный коэффициент скорости колебательного девозбуждения ионов N_2^+ как функция электронной температуры.

энергию 3.5–4 эВ, которая достаточна для возбуждения рассматриваемого перехода. При данных энергиях скорость электронов составит 1.2×10^8 см/с и для нее $k = 3 \times 10^{-16} \times 1.2 \times 10^8 = 3.6 \times 10^{-8}$ см³/с. Если концентрация для этой части электронов составляет 5×10^{16} см⁻³, то характерное время возбуждения $\tau = (3.6 \times 10^{-8} \times 5 \times 10^{16})^{-1} = 500$ пс. Следовательно, процесс возбуждения состояния $B^2\Sigma_u^+(v' = 0)$ электронным ударом также занимает длительное время.

Исходя из вышесказанного, можно заключить следующее. Механизм прямого многофотонного заселения состояния $B^2\Sigma_u^+(v' = 0)$ исключен из-за наличия запаздывания максимума в свечении линий N_2^+ . Процесс возбуждения перехода $X^2\Sigma_g^+(v'' = 0) - B^2\Sigma_u^+(v' = 0)$ электронным ударом является более быстрым процессом, чем процесс $e-V$ -релаксации в верхнем состоянии $B^2\Sigma_u^+$. Стоит при этом отметить, что факт запаздывания максимума излучения N_2^+ наблюдался и во многих других работах, как при измерениях люминесценции плазмы филамента [2–4], так и сверхизлучения, рождающегося в нем [21, 22].

Проанализируем длительность свечения ионов N_2^+ . Как уже отмечалось ранее, тушение верхнего электронного состояния может происходить либо нейтральными частицами, либо электронами. Оценка скорости наиболее вероятных процессов в плазме приведена в табл.1 при условии, что $N_e = 10^{17}$ см⁻³, а $T_e = 5000$ К.

Исходя из скорости представленных реакций, можно заключить, что основные процессы протекают на временной шкале десятков пикосекунд. Наиболее быстрыми являются трехчастичные реакции. Ионы N_2^+ после появления быстро преобразуются в N_4^+ путем реакции 4. Конкурирующими этому процессу являются реакции 1, 2, 5: все они существенно уменьшают концентрацию N_2^+ . Стоит, однако, отметить, что, если $N_e \approx 10^{16}$ см⁻³, реакция 4 ста-

Табл.1. Параметры реакций тушения.

Номер реакции	Реакция и константа скорости (см³/с)	Ссылка	Характерное время спада (пс)
Реакции с участием электронов			
1	$N_2^+ + e \rightarrow N + N$ $k = 1.34 \times 10^{-7}$	[23]	74
2	$N_2^+ + e + e \rightarrow N_2(X^1\Sigma_g^+) + e$ $k = 6.35 \times 10^{-25}$	[6]	157
3	$N_2^+ + e + N_2(X^1\Sigma_g^+) \rightarrow 2N_2(X^1\Sigma_g^+)$ $k = 5.29 \times 10^{-30}$	[23]	90000
Реакции с участием нейтральных частиц			
4	$N_2^+ + 2N_2 \rightarrow N_4^+ + N_2$ $k = 1 \times 10^{-28}$	[23]	23
5	$N_2^+ + O_2 + N_2 \rightarrow NO^+ + N_2 + NO$	[1, 24]	56
6	$N_2^+ + O_2 \rightarrow NO^+ + N + O$ $k = 8 \times 10^{-10}$	[11]	220
7	$N_2^+ + N_2 \rightarrow N + N_3^+$ $k = 3 \times 10^{-10}$	[11, 23]	159
Реакции тушения N_4^+			
8	$N_4^+ + e \rightarrow N_2(C^3\Pi_u) + N_2$ $k = 1.7 \times 10^{-6}$	[25]	6
9	$N_4^+ + e \rightarrow 2N_2(X^1\Sigma_g^+)$ $k = 4.9 \times 10^{-7}$	[6, 23]	20
10	$N_4^+ + N_2 \rightarrow N_2^+ + 2N_2(X^1\Sigma_g^+)$ $k = 8.3 \times 10^{-13}$	[23]	57000

новится доминирующей. Этот вывод подтверждается экспериментально. Так, при жесткой фокусировке излучения ($NA > 0.1$) и высокой концентрации электронов ($N_e = 10^{18} \text{ см}^{-3}$) молекулярные линии в свечении плазмы не видны и доминируют линии атомов и их ионов. Наоборот, при мягкой фокусировке ($NA < 0.03$) в спектре присутствуют лишь линии N_2^+ и N_2 . Появившиеся N_4^+ за очень короткое время исчезают преимущественно за счет реакции 8 с образованием N_2 в состоянии C^3P_u , являющемся верхним состоянием для переходов 2^+ -системы. Быстрый спад концентрации электронов, наблюдаемый на рис.9, как раз и задает два характерных временных интервала в свечении N_2^+ и N_2 : моменты быстрого и медленного спада.

Процесс проявления атомарных либо молекулярных линий зависит в первую очередь от концентрации и температуры электронов. Низкая температура электронов ($T_e \leq 1000 \text{ К}$) и (или) высокая их концентрация ($N_e \geq 10^{17} \text{ см}^{-3}$) задают высокую скорость реакций 1–3, разрушающих возбужденные состояния N_2^+ . Если электроны успевают набрать от поля волны накачки достаточную энергию (более 1 эВ), то процесс их гибели и исчезновения N_2^+ замедляется, также как и процесс передачи накопленной ими энергии. Именно такой сценарий, на наш взгляд, наблюдался в работе [1], в которой длительность накачки составляла 500 фс.

5. Заключение

Нами проведены измерения спектрально-временной и пространственной динамики плазмы, создаваемой фемтосекундным импульсом излучения в воздухе, с временным разрешением единицы пикосекунд. Показано, что при заданных параметрах лазерного пучка спектр свечения плазмы зависит от условий фокусировки (числовой апертуры NA). При больших (более 0.1) NA в спектре доминируют линии атомов и их ионов, при малых (менее 0.03) NA в спектре присутствуют лишь линии N_2^+ и N_2 . При $NA = 0.3$ начало свечения линий атомов кислорода и азота запаздывает относительно момента создания плазмы на 80–90 пс. Образование молекулярных ионов азота происходит за счет многофотонной (12 фотонов) его ионизации и последующего довозбуждения электронным ударом. Наблюдаемое при $NA = 0.03$ запаздывание максимума в свечении N_2^+ обусловлено конечной скоростью электронного возбуждения состояния $B^2\Sigma_u^+$ ($v' = 0$) и высокой скоростью его гибели в процессе столкновений ионов с электронами и нейтральными частицами. Одинаковый фронт нарастания интенсивности излучения ионов ($\lambda = 391.4 \text{ нм}$) и молекул ($\lambda = 357.7 \text{ нм}$), а также анализ скорости реакций говорят в пользу механизма образования верхнего состояния $N_2(C^3P_u)$ второй положительной системы азота через диссоциативную рекомбинацию N_4^+ . Короткая длительность свечения молекул обусловлена большой скоростью их тушения электронным ударом. В наших условиях длительность импульса излучения ионов азота составляла 18 пс, а

молекулярного азота – 27 пс по уровню $1/e$ амплитуды. Наличие второй, более медленной стадии в свечении N_2 и N_2^+ обусловлено высокой скоростью гибели электронов в первые моменты времени после воздействия. Диаметр плазменного канала остается постоянным в течение 3 нс в то время как интенсивность его свечения падает более чем на порядок, таким образом, плазма филамента, не расширяясь, практически полностью рекомбинирует.

Авторы выражают благодарность К.А.Ситнику за помощь при проведении экспериментов.

- Martin F., Mawassi R., Vidal F., Gallimberti I., Comtois D., Pépin H., Kieffer J.C., Mercure H.P. *Appl. Spectrosc.*, **56**, 1444 (2002).
- Xu H.L., Azarm A., Bernhardt J., Kamali Y., Chin S.L. *Chem. Phys.*, **360**, 171 (2009).
- Ilyin A.A., Golik S.S., Shmirko K.A. *Spectrochimica Acta, Part B*, **112**, 16 (2015).
- Lei M., Wu C., Liang Q., Zhang A., Li Y., Cheng Q., Wang S., Yang H., Gong Q., Jiang H. *Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **50**, 145101 (2017).
- Букин В.В., Воробьев Н.С., Гарнов С.В., Конов В.И., Лозовой В.И., Малютин А.А., Щелев М.Я., Яцковский И.С. *Квантовая электроника*, **36**, 638 (2006) [*Quantum Electron.*, **36**, 638 (2006)].
- Aleksandrov N.L., Bodrov S.B., Tsarev M.V., Murzanev A.A., Sergeev Yu.A., Malkov Yu.A., Stepanov A.N. *Phys. Rev. E*, **94**, 013204 (2016).
- Bernhardt J., Liu W., Théberge F., Xu H.L., Daigle J.F., Châteauneuf M., Dubois J., Chin S.L. *Opt. Commun.*, **281**, 1268 (2008).
- Yang H., Zhang J., Li Y., Yang H., Zhang J., Li Y., Zhang J., Li Yu., Chen Z., Teng H., Wei Z., Sheng Z. *Phys. Rev. E*, **66**, 016406 (2002).
- Papeer J., Botton M., Gordon D., Sprangle P., Zigler A., Henis Z. *New J. Phys.*, **16**, 123046 (2014).
- Ivanov N.G., Losev V.F., Prokop'ev V.E., Sitnik K.A. *Opt. Commun.*, **387**, 322 (2017).
- Valk F., Aints M., Paris P., Plank T., Maksimov J., Tamm A. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **43**, 385202 (2010).
- Grien H. *Phys. Rev.*, **173**, 317 (1968).
- Liu X.L., Lu X., Liu X., Xi T.T., Liu F., Ma J.L., Zhang J. *Opt. Express*, **18**, 26007 (2010).
- Théberge F., Liu W., Simard P.T., Becker A., Chin S.L. *Phys. Rev. E*, **74**, 036406 (2006).
- Ivanov N.G., Losev V.F. *Atm. Ocean. Opt.*, **30**, 331 (2017).
- Madden R.P., Parr A.G. *Appl. Opt.*, **21**, 179 (1982).
- Fifirig M. *Phys. J. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **48**, 085202 (2015).
- Kartashov D., Ališauskas S., Pugžlys A., Shneider M., Baltuška A. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **48**, 094016 (2015).
- Liu Y., Ding P., Lambert G., Houard A., Tikhonchuk V., Mysyrowicz A. *Phys. Rev. Lett.*, **115**, 133203 (2015).
- Nagy O., Ballance C.P., Berrington K.A., Burke P.G., McLaughlin B.M. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, **32**, L469 (1999).
- Yao J., Xie H., Zeng B., Chu W., Li G., Ni J., Zhang H., Jing C., Zhang C., Xu H., Cheng Y., Xu Z. *Opt. Express*, **22**, 19005 (2014).
- Zhong X., Miao Z., Zhang L., Liang Q., Lei M., Jiang H., Liu Y., Gong Q., Wu C. *Phys. Rev.*, **96**, 043422 (2017).
- Vereshagin K.A., Smirnov V.V., Shachatov V.A. *J. Techn. Phys.*, **67**, 34 (1997).
- Mitchell K.B. *Chem. Phys.*, **53**, 1795 (1970).
- Fitaire M., Pointu A.M., Stathopoulos D., Vialle M. *Chem. Phys.*, **81**, 1753 (1984).