Письма в ЖЭТФ, том 122, вып. 2, с. 87 – 92

Суперлюминесценция при филаментации фемтосекундных лазерных импульсов с длиной волны 950 нм в углекислом газе

Я. В. Грудцын, А. А. Ионин, И. О. Киняевский[1], Ю. М. Климачев, А. В. Корибут

Физический институт им. П. Н. Лебедева РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 24 апреля 2025 г.
После переработки 4 июня 2025 г.
Принята к публикации 5 июня 2025 г.

При филаментации в углекислом газе фемтосекундного излучения титан-сапфирового лазера с длиной волны 950 нм получена узконаправленная суперлюминесценция на большом числе линий в диапазоне длин волн 310–470 нм. Линии идентифицированы как линии переходов между колебательными уровнями электронно-возбужденных состоянийA $^2\Pi_u$ и $X^2\Pi_g$ ионов CO_2^+. Изучено влияние давления на спектр полученного излучения, обсуждаются механизмы наблюдаемого явления.

DOI: 10.31857/S0370274X25070123, EDN: IYWVNI

Введение. В ряде работ продемонстрировано, что при филаментации ультракоротких лазерных импульсов в различных газах возможна безрезонаторная генерация узконаправленного когерентного излучения (суперлюминесценция (СЛ)) на переходах ионов этих газов. Такая генерация была продемонстрирована на ионах азота (см., например, [1–4]), кислорода (см., например, [5, 6]), углекислого газа [3, 7, 8], а также некоторых других газов, загрязняющих атмосферу [9]. СЛ в филаменте обусловлена сложным одновременным действием ряда физических эффектов: ионизация, нелинейное поглощение, фазовая самомодуляция (ФСМ), генерация гармоник. При этом какая-либо гармоника излучения накачки, например, третья или пятая, должна попадать в спектральную окрестность перехода иона газа, потому что она является затравкой для СЛ [7]. Также необходимо отметить, что в связи со сложностью возникновения такой генерации, полной ясной физической картины этого явления на данный момент нет [2, 6, 7, 10].

Возникающая при филаментации ультракоротких лазерных импульсов СЛ привлекает внимание как источник многоволнового фемтосекундного излучения в УФ области спектра. Поскольку СЛ в филаменте может происходить на переходах ионов газовых компонент атмосферы (N_2, CO_2, O_2 и другие), то этот эффект имеет огромный потенциал для дистанционной диагностики атмосферы, в частности, за счет высокой направленности СЛ, по сравнению с некогерентным рассеянием [11, 12]. При этом место возникновения СЛ может контролироваться местом возникновения филамента лазерных импульсов [13].

Наша работа направлена на исследование СЛ при филаментации фемтосекундных лазерных импульсов в CO_2 в условиях мягкой фокусировки. Ранее [7, 8] СЛ в CO_2 наблюдалась только при “жесткой” фокусировке лазерных импульсов (линзой с фокусным расстоянием 7 см, NA ~ 0.06). Следует отметить, что режимы филаментации лазерных импульсов при “жесткой” (NA $> 5 \cdot 10^{-3}$ [14]) и “мягкой” фокусировке существенно отличаются по физике [14], а также характеризуются различными значениями параметров, таких как интенсивность излучения в филаменте и длина филамента. Для задач лидарного зондирования и создания источника СЛ на значительном удалении представляет интерес “мягкая” фокусировка. Поэтому вопрос возможного получения СЛ и ее характеризация при “мягкой” фокусировке требует экспериментального исследования.

Другим важным фактором, влияющим на СЛ, является выбор длины волны лазерного излучения. В работе [4] было продемонстрировано сильное влияние длины волны накачки на спектр СЛ ионов азота, наблюдаемое в диапазоне 300–460 нм. В работе длина волны накачки перестраивалась от УФ диапазона до ближнего-ИК. Было показано, что наибольшая инверсия населенностей для переходов 391 и 428 нм наблюдается для длин волн лазера 900–1050 нм, и это явление объясняется близостью длины волны излучения к трехфотонным переходам. Зависимость спектра СЛ ионов CO_2^+ для лазерного излучения с различными длинами волн (1200, 1284 и 1370 нм) исследована в [7]. При использовании длины волн накачки 1284 в работе [7] спектр СЛ ионов CO_2^+

[1]e-mail: kinyaevskiyio@lebedev.ru

был наиболее широкий и состоял из четырех сдвоенных линий, каждая пара из которых была вблизи 315, 326, 337 и 351 нм. Однако используемые в [7] длины волн лазера накачки были не оптимальными, поскольку в этом случае в нужную полосу поглощения попадает излучение не третьей гармоники (ТГ), а пятой, что существенно слабее по эффективности, чем накачка ТГ. В наших экспериментах использовался титан-сапфировый лазер с длиной волны ~950 нм, чья ТГ (~317 нм) оказывается вблизи переходов иона CO_2^+.

Схема эксперимента. Оптическая схема эксперимента представлена на рис. 1. В эксперименте

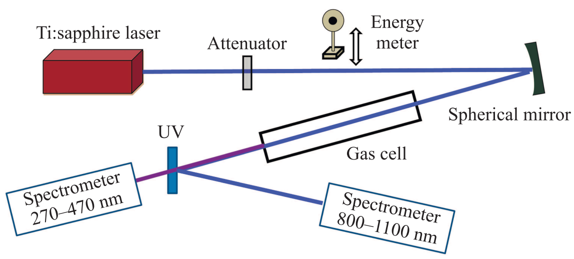

Рис. 1. (Цветной онлайн) Оптическая схема эксперимента

использовался титан-сапфировый лазер Старт 480М (Авеста проект, Россия): энергия лазерного импульса до 10 мДж, длительность импульса 100 фс, центральная длина волны 950 нм, частота следования импульсов 10 Гц. Энергия лазерного импульса регулировалась дифракционным ослабителем. Лазерный импульс (радиус пучка 0.6 см по уровню e^{-2}) фокусировался сферическим зеркалом с фокусным расстоянием 2 м в ячейку длиной 1.46 м, заполненную CO_2. Давление в ячейке варьировалось от 0.3 до 4.5 бар. В качестве входного и выходного окон ячейки использовались кварцевые плоскопараллельные пластины толщиной ~1 мм. Далее излучение через УФ фильтры (УФС-5 либо СЗС 22) направлялось в спектрометр ASP-150 (Авеста проект, Россия), а френелевское отражение от фильтра в спектрометр ASP-960 (Авеста проект, Россия), что позволяло одновременно измерять излучение в УФ области и ИК области спектра соответственно.

Результаты эксперимента. На рисунке 2 представлен поперечный профиль лазерного пучка после газовой ячейки (на расстоянии ~2 м), измеренный в диапазоне длин волн 800–1120 нм. В профиле пучка можно выделить изменения, характерные для процесса филаментации: формирование узкого максимума и широкополосного пьедестала, обусловленного рассеянием заднего фронта импульса на плазме [15].

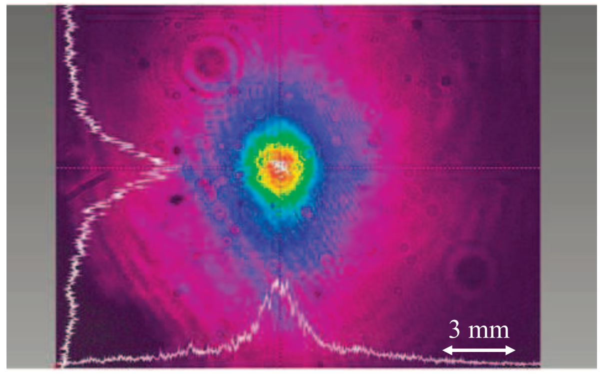

Рис. 2. (Цветной онлайн) Профиль пучка на выходе из газовой ячейки после филаментации

Отметим, что вариация давления газа и энергии лазерного импульса в эксперименте осуществлялась в таких пределах, при которых сохранялся режим одиночного филамента, т.е. сохранялся профиль, проиллюстрированный на рис. 2.

Кроме изменения пространственной формы, филаментация в газовой ячейке сопровождалась изменением спектральных характеристик излучения: уширением спектра из-за ФСМ, генерацией ТГ и в определенных условиях появлением выделенных узких линий в видимой и УФ области спектра. При этом излучение на новых спектральных компонентах (ТГ и выделенные узкие линии), возникающих в процессе филаментации, имело такую же поляризацию, как у излучения на основной частоте, и близкую расходимость.

На рисунке 3 представлены спектры лазерного импульса на основной частоте, λ_ω, до (сплошная кри-

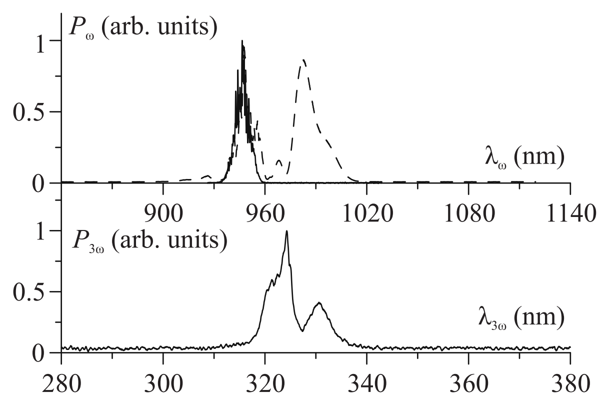

Рис. 3. Сравнение спектров накачки (вверху) и УФ сигнала (внизу) при давлении CO_2 0.3 бар

вая) и после филаментации (пунктирная кривая), а также спектр импульса после филаментации в районе длины волны ТГ $\lambda_{3\omega}$. Результаты экспериментов, представленные на рис. 3, получены при давлении CO_2 – 0.3 бар и энергии лазерного импульса 4.3 мДж.

Ширина спектра исходного лазерного импульса (импульс накачки) составляла ~ 12 нм. После филаментации спектр излучения накачки был уширен, при этом уширение, вызванное ФСМ, доминирует в стоксовом крыле, что согласуется с результатами других работ по исследованию филаментации в CO_2 [16]. В диапазоне длин волн 310–340 нм зарегистрирован спектр излучения ТГ, который был уширен и смещен в длинноволновую область относительно утроенной частоты исходного лазерного импульса. Отметим, что форма спектра ТГ может отличаться от формы спектра утроенного по частоте излучения накачки, что обусловлено рядом факторов: отличием нелинейного показателя преломления на различных длинах волн и кросс-фазовой модуляцией ТГ в поле мощной волны накачки [17], а также поглощением в плазменном канале филамента. Также необходимо отметить, что спектральные максимумы, возникающие из-за ФСМ, имеют ширину, сопоставимую с шириной исходного лазерного импульса. При давлении углекислого газа 0.3 атмосферы явная генерация специфических узких линий в диапазоне длин волн ТГ не наблюдалась.

В диапазоне длин волн ТГ при более высоком давлении CO_2 (0.5, 0.9, 1.5 и 2.5 бар) в спектре излучения наблюдалось формирование выделенных узких линий (см. рис. 4). Отметим, что в этой серии экспериментов при вариации давления CO_2 энергия лазерного импульса была постоянной – 3 мДж. При давлении 0.5 бар (рис. 4a) четко виден узкий пик на длине волны 325 нм. При давлении 0.9 бар (рис. 4b) уже наблюдается генерация двух спектральных полос, состоящих из множества узких пиков: в районе длины волны 325 и 337 нм. При дальнейшем увеличении давления до 2.5 бар полоса линий в районе $\lambda \sim 325$ нм пропадает, однако появляется новая полоса в более длинноволновой области спектра: $\lambda \sim 352$ нм.

Ранее подобную генерацию узкополосных линий в CO_2 наблюдали при филаментации лазерных импульсов с длительностью 100 фс и длиной волны накачки 1220 нм в условиях “жесткой” фокусировки [7, 8]. Отметим, что “мягкая” фокусировка ($\mathrm{NA} \sim 3 \cdot 10^{-3}$), используемая в нашем эксперименте, представляет больший практический интерес с точки зрения создания удаленного когерентного лазерного источника или диагностики среды на большом расстоянии. Наблюдаемые узкие линии были идентифицированы так же, как и в [7, 8], как СЛ на переходе иона CO_2^+ между электронно-возбужденными состояниями $A^2\Pi_u$ (верхнее) и $X^2\Pi_g$ (нижнее) с различными колебательными уровнями. Линии $\lambda = 313$, $\lambda = 324$, $\lambda = 337$, $\lambda = 352$ нм соответствуют колебательным переходам 3-0, 2-0, 1-0 и 0-0 и отмечены на рис. 4 пунктирными линиями. К сожалению, в данном случае в виду близости длины волны мы не можем различить переходы, соответствующие различным колебательным модам ионов CO_2 $100 \to 000$ от $110 \to 010$ или, например, $000 \to 000$ от $010 \to 010$, поэтому переходы на рис. 4 обозначены одной цифрой.

В настоящий момент в литературе предлагаются два основных пути возбуждения состояния $A^2\Pi_u$: либо многофотонное поглощение, либо прямое поглощение излучения гармоник (третьей, пятой и т.п.) [7, 8]. На каждом спектре на рис. 4 на основной частоте излучения имеется ярко выраженный провал в районе длины волны 970 нм, который попадает в трехфотонный резонанс с переходом 2-0 (отмечен пунктирной линией). Оценки, проведенные путем сравнения теоретической формы спектра при ФСМ [18] с экспериментальной формой спектра (рис. 4), показывают, что в нашем случае трехфотонное поглощение составляет порядка 1–10 %. Эффективность генерации ТГ в газах при “мягкой” фокусировке составляет 10^{-5}–10^{-4} [19]. Таким образом, трехфотонное поглощение выглядит как более сильный эффект для возбуждения состояния $A^2\Pi_u$, чем поглощение излучения ТГ. На рисунке 4a, b можно отметить интересную особенность – одновременное трехфотонное поглощение ($\lambda \sim 970$ нм) и генерацию ($\lambda \sim 324$ нм) на одном и том же переходе 2-0. Это связано с тем, что эти переходы имеют тонкую структуру, которую ясно можно наблюдать на примере перехода 1-0 на рис. 4c. Тонкая структура связана с эффектом Ренера–Теллера [20, 21]. Таким образом, происходит поглощение на переходах в “тонкой структуре” с меньшей длиной волны, а СЛ происходит на переходах этой же полосы с большей длиной волны.

Необходимо отметить, что в нашем случае излучение с $\lambda_{3\omega} < 320$ нм, которое могло возникнуть при генерации ТГ от основной части спектра импульса накачки (~ 950 нм), практически не наблюдалось (см. рис. 3, 4). Этот факт можно объяснить тем, что это излучение попадает в диапазон практически сплошного спектра поглощения колебательных полос с большими ($v \geq 3$) квантовыми числами верхнего электронно-возбужденного состояния $A^2\Pi_u$, с сильным расщеплением уровней за счет эффекта Ренера–Теллера [21] и их уширением при высоком давлении. Также необходимо отметить, что в отличие от [7] мы наблюдали существенно больший

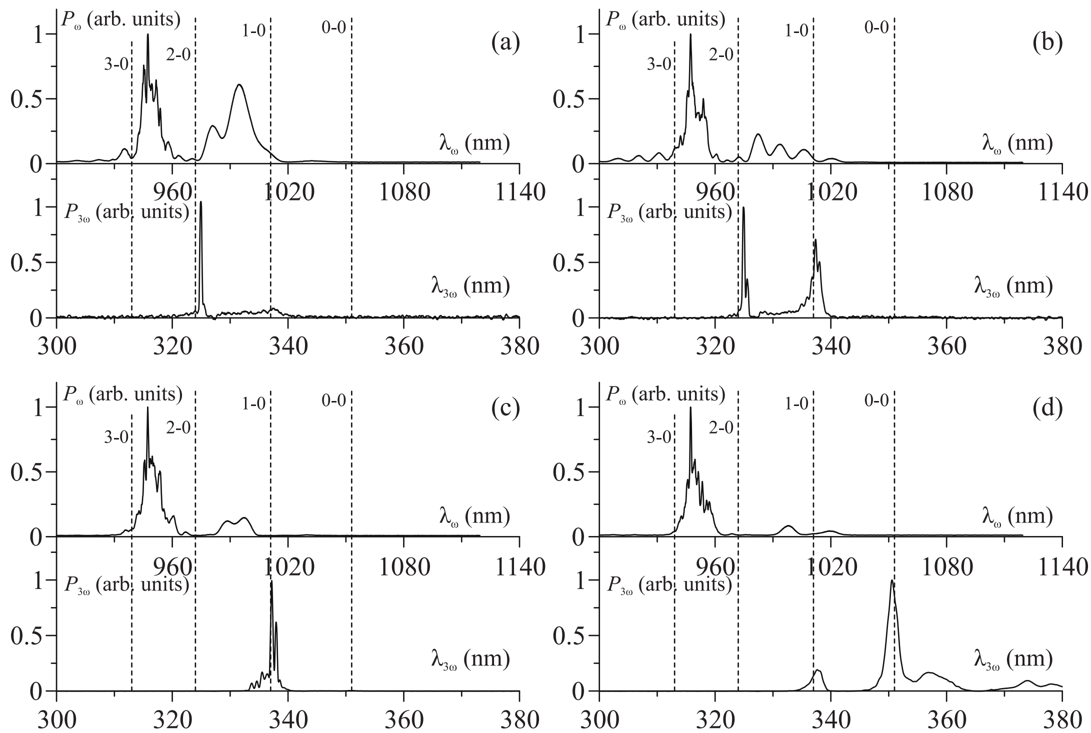

Рис. 4. Сравнение спектров накачки λ_ω и УФ сигнала в диапазоне длин волн ТГ $\lambda_{3\omega}$ при давлении CO_2: 0.5 бар (a); 0.9 бар (b); 1.5 бар (c) и 2.5 бар (d)

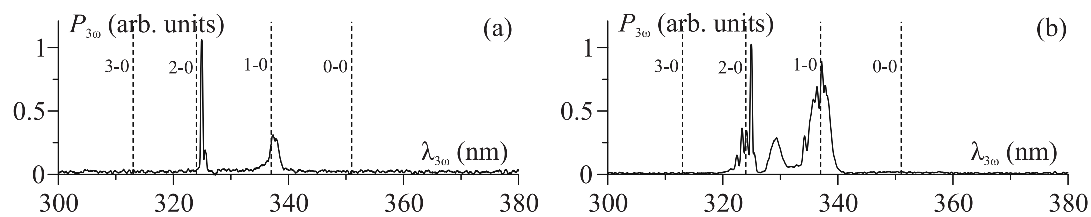

Рис. 5. Спектр УФ излучения в диапазоне длин волн ТГ $\lambda_{3\omega}$ при давлении CO_2 0.9 бар и энергии лазерного импульса 2.3 мДж (a) и 3.4 мДж (b)

контраст линий СЛ ($\lambda = 352$, $\lambda = 337$, $\lambda = 324$ нм) относительно широкополосного излучения ТГ, что связано с более подходящей длиной волны лазера накачки, а также с "мягкой" фокусировкой и большей длиной филамента и, как следствие, большей длиной усиления излучения на переходах иона CO_2^+.

Как видно из рис. 4, при повышении давления спектр СЛ становится богаче и сдвигается в длинноволновую область. Отметим, что при высоком давлении (2.5 атм) из-за столкновительного уширения отдельные узкие линии сливаются в единые полосы. Смещение спектра в длинноволновую область может быть связано с тем, что при большем давлении увеличивается нелинейный показатель преломления среды, что приводит к большему уширению спектра накачки (и ТГ, соответственно), вызванного эффектом ФСМ. Такой же эффект наблюдался и при фиксированном давлении CO_2 при увеличении энергии лазерного импульса. На рисунке 5 представлены спектры УФ излучения в диапазоне длин волн ТГ $\lambda_{3\omega}$ при давлении CO_2 0.9 бар и двух разных энергиях лазерного импульса накачки. При маленькой энергии (и небольшом давлении) в спектре СЛ может проявиться одна или несколько наиболее сильных линий вблизи утроенной частоты лазерного импульса накачки. Увеличение энергии лазерного импульса при прочих равных условиях приводит к увеличению длины филамента, т.е. длины "активной среды", а также к большему уширению спектра, вызванного эффектом ФСМ. Это в свою очередь приводит к обогащению спектра СЛ и его смещению в длинноволновую область.

Проведен эксперимент с максимальным давлением, доступным с нашей газовой ячейкой, – 4.5 атм.

Чтобы охватить широкий диапазон длин волн были использованы несколько УФ-фильтров. Объединенный спектр излучения, полученный с различными фильтрами, при энергии лазерного импульса 1.2 мДж представлен на рис. 6. В этих условиях, помимо уже ранее наблюдаемых полос с $\lambda \sim 325$ нм, $\lambda \sim 337$ нм, и $\lambda \sim 350$ нм, наблюдался ряд других полос, простирающихся до видимой области спектра: с $\lambda \sim 410$ нм, $\lambda \sim 425$ нм, $\lambda \sim 450$ нм и $\lambda \sim 470$ нм. Отметим, что СЛ на переходах с $\lambda > 350$ нм в CO_2 ранее не наблюдали, хотя удавалось зарегистрировать люминесценцию в поперечном направлении переходов с длиной волны до 400 нм [7].

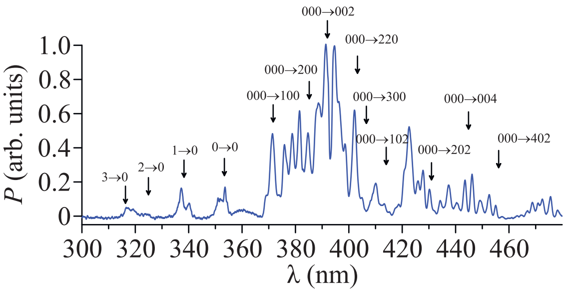

Рис. 6. (Цветной онлайн) Спектр СЛ филамента в CO_2 при давлении газа 4.5 бар с идентификацией переходов

Мы полагаем, что большое число линий СЛ при давлении 4.5 атм связано со следующими факторами: 1) увеличивается число частиц и коэффициент усиления для СЛ, соответственно; 2) как отмечалось выше, с увеличением давления увеличивается нелинейный показатель преломления среды и уширение спектра, соответственно, что может приводить к возбуждению переходов с более высокими колебательными состояниями иона CO_2^+; 3) резкое увеличение ширины антистоксового крыла в спектре излучения накачки до видимого диапазона при возникновении эффекта самоукручения заднего фронта импульса [22]. Отметим также, что широкий диапазон спектра 300–480 нм был охвачен с применением нескольких УФ-фильтров. Таким образом, нами впервые реализована СЛ на ряде длинноволновых полос иона CO_2^+, возбуждаемая при филаментации лазерного импульса.

Идентификация новых переходов в диапазоне длин волн 360–470 нм была осуществлена благодаря данным работы [23]. Однако, необходимо отметить, что она существенно затруднена нерегулярностью структуры уровней, перекрытием различных колебательных полос (у молекулы CO_2 три колебательные моды), а также из-за наличия расщепления уровней благодаря эффекту Ренера–Теллера. Наш анализ (см. рис. 6) показывает, что в генерацию СЛ вовлечены и другие колебательные моды, которые не возбуждаются напрямую 3-х фотонным поглощением.

Выводы и заключение. Экспериментально исследована СЛ в видимой и УФ области спектра, возникающая при филаментации лазерных импульсов с длиной волны 950 нм в CO_2 в условиях “мягкой” фокусировки ($\mathrm{NA} = 3 \cdot 10^{-3}$) . Появление СЛ иона CO_2^+ между состояниями $A^2\Pi_u$ и $X^2\Pi_g$ наблюдалось при давлении CO_2 более 0.5 бар, и при повышении давления спектр излучения обогащался и сдвигался в длинноволновую область. При давлении CO_2 4.5 бар наблюдалась СЛ на более, чем 10 колебательных полосах перехода $A^2\Pi_u$–$X^2\Pi_g$ иона CO_2^+ в диапазоне длин волн 310–470 нм. Мы полагаем, что большему количеству линий, наблюдаемых в наших экспериментах по сравнению с [7, 8], способствовали следующие экспериментальные факторы: более мягкая фокусировка, как следствие более длинный филамент, и более протяженная среда для усиления излучения, а также близость частоты излучения ТГ к спектральным линиям оптической накачки переходов ионов.

Показано, что при умеренных давлениях CO_2 (0.5–2.5 бар) основным механизмом создания инверсии на переходах $A^2\Pi_u$ и $X^2\Pi_g$ при филаментации лазерных импульсов с длиной волны 950 нм является трехфотонное поглощение излучения накачки, уширенного за счет эффекта ФСМ. Отметим, что наличие трехфотонного поглощения на ионах молекул может являться причиной появления аномальных провалов в структуре спектра лазерного излучения после филаментации в атмосфере, наблюдаемой в [24]. Полученные результаты указывают на перспективность применения этого эффекта в задачах лидарного зондирования атмосферы.

Финсирование работы. Данная работа финансировалась за счет средств бюджета Физического института имени П. Н. Лебедева Российской академии наук. Никаких дополнительных грантов на проведение или руководство данным конкретным исследованием получено не было.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. D. Kartashov, M. N. Shneider, and A. Baltuska, *Filament-Initiated Lasing in Neutral Molecular Nitrogen* in *Air lasing*, P. Polynkin and Y. Cheng (eds.), Springer, Cham (2018), v. 206, p. 89.
2. И. А. Зятиков, В. Лосев, Оптика и спектроскопия **130**(4), 511 (2022).
3. X. Zhang, Q. Lu, Y. Zhu, J. Zhao, R. Danylo, L. Xu, and Y. Liu, Ultrafast Science **4**, 0051 (2024).

4. L. Xu, Ch. Zhou, G. Fan, H. Cheng, A. Houard, A. Mysyrowicz, V. Tikhonchuk, Y. Liu, Phys. Rev. A **109**(1), 013518 2024; DOI: https://doi.org/10.1103/PhysRevA.109.013518.
5. J. Bernhardt, W. Liu, F. Theberge, H.L. Xu, J.F. Daigle, M. Chateauneuf, J. Dubois, and S.L. Chin, Opt. Commun. **281**, 1268 (2008).
6. N.G. Ivanov, V.F. Losev, V.E. Prokop'ev, K.A. Sitnik, I.A. Zyatikov, Opt. Commun. **431**, 120 (2019).
7. W. Chu, B. Zeng, J. Yao, H. Xu, J. Ni, G. Li, H. Zhang, F. He, C. Jing, Y. Cheng, and Z. Xu, Europhysics Letters **97**(6), 64004 (2012).
8. H. Xu, J. Yao, W. Chu, B. Zeng, J. Ni, G. Li, T. Cheng, Z. Xu, D. Kartashov, S. Alisauskas, A. Pugzlys, A. Baltushka, K. Yamanouchi, and S.L. Chin, in *Progress in Ultrafast Intense Laser Science*, Springer International Publishing Cham (2014), v. X, p. 95.
9. P. Qi, W. Qian, L. Guo, J. Xue, N. Zhang, Y. Wang, Z. Zhang, Z. Zhang, L. Lin, C. Sun, L. Zhu, and W. Liu, Sensors **22**, 7076 (2022); https://doi.org/10.3390/s22187076.
10. И. А. Зятиков, В. Ф. Лосев, Квантовая электроника **53**(7), 533 (2023) [Bull. Lebedev Physics Institute **50**(suppl. 11), S1200 (2023)].
11. P.R. Hemmer, R.B. Miles, P. Polykin, T. Siebert, A.V. Sokolov, P. Sprangle, and M.O. Scully, Proc. Natl. Acad. Sci. USA **108**, 3130 (2011).
12. P.N. Malevich, R. Maurer, D. Kartashov, S. Alisauskas, A.A. Lanin, A.M. Zheltikov, M. Marangoni, G. Cerullo, A. Baltuska, and A. Pugzlys, Opt. Lett. **40**, 2469 (2015).
13. Г. Г. Матвиенко, П. А. Бабушкин, С. М. Бобровников и др., Оптика атмосферы и океана **32**(9), 726 (2019).
14. Y.E. Geints, D.V. Mokrousova, D.V. Pushkarev, G.E. Rizaev, L.V. Seleznev, I.Y. Geints, A.A. Ionin, and A.A. Zemlyanov, Optics & Laser Technology **143**, 107377 (2021).
15. P.B. Corkum, C. Rolland, and T. Srinivasan-Rao, Phys. Rev. Lett. **57**(18), 2268 (1986).
16. И. О. Киняевский, Я. В. Грудцын, А. В. Корибут, М. В. Ионин, Квантовая электроника **54**(4), 231 (2024).
17. Y.B. Band, Phys. Rev. A **42**(9), 5530 (1990).
18. R.H. Stolen and C. Lin, Phys. Rev. A **17**(4), 1448 (1978).
19. A.A. Ionin, S.I. Kudryashov, L.V. Seleznev, D.V. Sinitsyn, E.S. Sunchugasheva, and V.Y. Fedorov, Laser Physics **21**, 500 (2011).
20. C. Jungen, J. Mol. Spectrosc. **363**, 111172 (2019).
21. D. Gauyacq, C. Larcher, and J. Rostas, Can. J. Phys. **57**, 1634 (1979).
22. С. В. Чекалин, В. О. Компанец, А. Е. Дормидонов, Е. Д. Залозная, В. П. Кандидов, Квантовая электроника **47**(3), 252 (2017).
23. N. Varfalvy, M. Larzilliere, C. Frigon, R. Bacis, and A.J. Ross, Molecular Physics: An International Journal at the Interface Between Chemistry and Physics **105**(5–7), 627 (2007); DOI: 10.1080/00268970701222706.
24. D.V. Mokrousova, G.E. Rizaev, A.V. Koribut, Ya.V. Grudtsyn, M.I. Gorymov, M.I. Kuznetsova, L.V. Seleznev, and A.A. Ionin, JOSA B **38**(7), 2230 (2021).