

02:04

## Невозможность регистрации эмиссионных линий иона азота в плазме филаментов

© А.А. Ильин

Институт автоматизации и процессов управления Дальневосточного  
отделения РАН, Владивосток  
Дальневосточный федеральный университет, Владивосток  
E-mail: kunashir@gmail.com

Поступило в Редакцию 29 апреля 2016 г.

Показано, что эмиссионные линии ионов азота N II не могут вносить вклад в излучение других линий и наблюдаться в спектре излучения плазмы филаментов, генерируемых фемтосекундными лазерными импульсами с пиковой интенсивностью  $\sim 50 \text{ TW/cm}^2$  в воздухе. Представлена простая процедура, позволяющая оценивать соотношение интенсивностей линий при филаментации в воздухе.

Филаментация фемтосекундного лазерного излучения широко используется для дистанционного зондирования атмосферы, дистанционного спектрального анализа и др. [1,2]. Важной характеристикой плазмы филаментов, позволяющей детектировать эмиссионные линии, является их интенсивность. Как правило, в спектре плазмы филаментов наблюдаются атомарные и молекулярные линии, для воздуха характерны  $1^- \text{ N}_2^+ B^2 \sum_u^+ - X^2 \sum_g^+$  и  $2^+ \text{ N}_2 C^3 \Pi_u - B^3 \Pi_g$  системы, триплет N I 742.4, 744.2, 746.8 nm и трудноразрешаемый триплет O I 777 nm [3]. Недавно S.-Y. Li и др. опубликовали статью [4], в которой показали, что в излучение в области  $1^-$  системы  $\text{N}_2^+$  (391.2 nm) вносят значительный вклад линии иона азота N II. Характеристики линий N II в исследуемом авторами [4] спектральном диапазоне, а также линий  $\text{N}_2^+$  и  $\text{N}_2$  представлены в табл. 1, для молекулярных линий показаны энергии переходов только для колебательных чисел верхнего  $v' = 0$  и нижнего уровня  $v'' = 0$ . Для перехода  $3p^3 D^o - 4p^3 P$  указано максимальное значение вероятности перехода  $A$  для линии 391.54 nm. В работе [4] лазерное излучение (800 nm, 2–3.1 mJ, 50 fs) фокусировалось в воздухе линзой с фокусным расстоянием 1 m.

Таблица 1. Характеристики линий

Молекула (ион)	$\lambda$ , nm	Энергия уровня (терма), eV	Переход	$A$ , s <sup>-1</sup>	Энергия ионизации, eV
N <sub>2</sub>	337.0	11.03–7.35	$C^3\Pi_u - B^3\Pi_g$	$1.3 \cdot 10^7$	15.58
N <sub>2</sub> <sup>+</sup>	391.2	3.17–0	$B^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+$	$1.1 \cdot 10^7$	27.12, 30.85, 37.84 [2]
N II	391.39, 391.54 391.56, 391.96, 392.46, 393.04	28.35–25.19	$3p^3D^\circ - 4p^3P$	$3.2 \cdot 10^7$ (391.54)	29.6, 36.7
N II	399.5	21.6–18.5	$3p^1D - 3s^1P^\circ$	$1.2 \cdot 10^8$	

Задача данной работы — исследование процессов диссоциации молекулярных ионов N<sub>2</sub><sup>+</sup> и накачки возбужденных уровней ионов N<sup>+</sup> в плазме филаментов.

Рассмотрим процесс диссоциации молекулярного иона N<sub>2</sub><sup>+</sup> и образования ионов N<sup>+</sup> в плазме филаментов более подробно. Авторы [4] определяют значение интенсивности в эксперименте  $I \sim 5 \cdot 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>. Для данной интенсивности в работах [5,6] наблюдалось следующее отношение плотности молекулярных ионов при многофотонной ионизации молекул азота  $N_2^{2+}/N_2^+ \sim 10^{-2}$ . С другой стороны, пороговые энергии образования ионов N<sup>2+</sup> при ударной ионизации электронами молекул азота — 70 eV [7]. Для похожих экспериментальных условий (800 nm, ~ 2 mJ, 40–42 fs, фокусное расстояние линзы 1 m) [8,9] электронная температура плазмы филаментов  $T_e < 1$  eV, т.е. вероятность образования ионов N<sup>2+</sup> электронным ударом пренебрежимо мала. Следовательно, ионы N<sup>+</sup> большей частью должны образоваться не за счет рекомбинации ионов N<sup>2+</sup>, а за счет реакции диссоциации (1) [10] (табл. 2), при этом уровни  $X^2\Sigma_g^+$ ,  $A^2\Pi_u$  и  $B^2\Sigma_u^+$  населяются при многофотонной ионизации N<sub>2</sub> [11]. Хорошо известно, что интенсивность линии  $I \propto n(i)A$ , где  $n(i)$  — населенности уровня  $i$  и  $A$  — вероятность спонтанного перехода. Выше было показано, что плотность ионов N<sup>2+</sup> пренебрежимо мала, значит, рекомбинационная накачка уровня  $3p^3D^\circ$

Таблица 2. Характерные времена реакций

	Реакция	Характерное время, s
(1)	$N_2^+(X, A, B) + e \rightarrow N^+(2p^2^3P) + N(^4S)$	$7.7 \cdot 10^{-6}(X), 1.3 \cdot 10^{-6}(A),$ $8 \cdot 10^{-7}(B)$
(2)	$N^+(2p^2^3P) + e \rightarrow N^+(3p^3D^0) + e$	$3.4 \cdot 10^4$
(3)	$N_2^+ + e \rightarrow N(^4S) + N(^4S)$	$7.4 \cdot 10^{-10}$

(близкого по энергии к потенциалу ионизации, см. табл. 1) несущественна. Таким образом, уровень  $3p^3D^0$  будет накачиваться за счет реакции (2) (табл. 2).

Оценим времена, характеризующие процессы появления линий N II 391.39–393.04 nm, как  $\tau_d = (k_d N_e)^{-1}$  — характерное время диссоциации и  $N_2^+$  и  $\tau_{ex} = (k_{ex} N_e)^{-1}$  — время накачки уровня  $3D^0$  за счет реакции (2), т.е. изначально образуется ион  $N^+$  в результате реакции (1), а затем происходит переход на уровень  $3p^3D^0$ . Выражения для констант диссоциации  $k_d$  представлены в работе [12], методика расчета констант скоростей возбуждения  $k_{ex}$  описана в работах [13,14]. Важным параметром для расчета  $\tau_d$  и  $\tau_{ex}$  является начальная электронная температура, которая меняется в широких пределах от 3900 К [8] до 1 eV [15]. В работе [9] с похожими экспериментальными условиями работы [4] получено усредненное за интервал 20 ns значение температуры  $T_e = 5800$  К, поэтому в расчетах, представленных в табл. 2, выбрано  $T_e = 1$  eV. Электронную плотность  $N_e$  можно оценить из соотношения

$$N_e = (R_{N_2}(I)[N_2] + R_{O_2}(I)[O_2])t_p,$$

где  $R(I)$  — скорость ионизации из работы [16],  $[N_2]$  и  $[O_2]$  — плотности молекул кислорода и азота. Для длительности импульса  $t_p = 50$  fs [4] получаем  $N_e \approx 3 \cdot 10^{16}$  см<sup>-3</sup>. Стоит отметить, что температура электронов очень быстро падает с характерным временем  $\sim 0.6$ – $10$  ns [8,15], поэтому из рассмотрения исключены каскадные переходы, приводящие к накачке уровня  $3p^3D^0$ . Из данных табл. 2 видно, что характерные времена реакций диссоциации и накачки уровня  $3p^3D^0$  намного превышают время жизни плазмы филаментов (длительность излучения молекул и атомов  $\sim 1$  и  $150$  ns соответственно [3]). Также в таблице показано характерное время реакции диссоциативной рекомбинации (3) [17],

которое почти на 3–4 порядка меньше времени диссоциации, т.е. в плазме филаментов ионы  $N_2^+$  большей частью рекомбинируют с образованием атомов азота. Таким образом, исходя из вышесказанного, плотность частиц  $n(N \text{ II } 3p^3D^o) \rightarrow 0$  по сравнению с населенностью уровня  $N_2^+ B^2 \sum_u^+$ , который населяется в процессе многофотонной ионизации. А значит, линии  $N \text{ II } 391.39\text{--}393.04 \text{ nm}$  не могли быть зарегистрированы в работе [4] и не могут вносить вклад в излучение линии  $1^-$  системы в области  $391 \text{ nm}$ .

Избежать ошибки, допущенной авторами при расшифровке спектра, поможет простое правило: если линии  $N \text{ II } 391.39\text{--}393.04 \text{ nm}$  присутствуют в спектре, то должны наблюдаться линии с бóльшим значением  $A$  и меньшими энергиями верхнего уровня, например  $N \text{ II } 399.5 \text{ nm}$ . В соответствии с работой [18] в фемтосекундной плазме основную роль играет накачка из основного состояния, следовательно, отношение населенностей уровней иона  $N \text{ II}$  определяется как

$$\frac{n(3p^1D)}{n(3p^3D^o)} \sim \frac{k_{ex}(2p^2^3P - 3p^1D)}{k_{ex}(2p^2^3P - 3p^3D^o)}.$$

Таким образом, отношение интенсивностей линий определяется следующей формулой:

$$\frac{I(399.5)}{I(391.54)} \sim \frac{k_{ex}(2p^2^3P - 3p^1D)A_{399.5}}{k_{ex}(2p^2^3P - 3p^3D^o)A_{391.54}}.$$

Для  $T_e = 1 \text{ eV}$  получаем  $I(399.5)/I(391.54) \sim 2 \cdot 10^2$ , но в спектрах работы [4] отсутствует такая линия. Наблюдается лишь молекулярная линия  $N_2 399.7 \text{ nm } 2^+$ -системы. В случае плазмы, возбуждаемой импульсом  $CO_2$ -лазера, где большую роль играют каскадные переходы и рекомбинационная накачка, наблюдается следующее отношение интенсивностей  $I(399.5)/I(391.54) \sim 5$  при  $T_e = 21000 \text{ K}$  [19].

Таким образом, в плазме филаментов с начальной температурой  $T_e \sim 1 \text{ eV}$  невозможна регистрация эмиссионных линий  $N \text{ II } 391.39\text{--}393.04$  в силу как высокой энергии верхнего уровня  $28.35 \text{ eV}$ , так и малой плотности ионов  $N \text{ II}$ . Также представляется сомнительной регистрация других линий  $N \text{ II}$  при пиковой интенсивности  $I \sim 5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ , так как в основном ионы  $N_2^+$  исчезают в процессе диссоциативной рекомбинации с образованием нейтральных атомов.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (соглашение № 14-50-00034). Константы скоростей возбуждения рассчитаны с использованием оборудования ЦКП ЛаМи ИАПУ ДВО РАН.

## Список литературы

- [1] Букин О.А., Бабий М.Ю., Голик С.С. и др. // Квант. электрон. 2014. Т. 44. № 6. С. 563. [Bukin O.A., Babii M.Yu., Golik S.S. et al. // Quantum Electron. 2014. V. 44. P. 563.]
- [2] Li H.-L., Xu H.-L., Yang B.-S. et al. // Opt. Lett. 2013. V. 38. P. 1250.
- [3] Ilyin A.A., Golik S.S., Shmirko K.A. // Spectrochim. Act. B. 2015. V. 112. P. 16.
- [4] Li S.-Y., Li S.-C., Sui L.-Z. et al. // Phys. Rev. A. 2016. V. 93. P. 013405.
- [5] Cornaggia C., Hering Ph. // J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 1998. V. 31. P. L503.
- [6] Cornaggia C., Hering Ph. // Phys. Rev. A. 2000. V. 62. P. 023 403.
- [7] Itikawa Y. // J. Phys. Chem. Ref. Data. 2006. V. 35. P. 31.
- [8] Sun Z., Chen J., Rudolph W. // Phys. Rev. E. 2011. V. 83. P. 046 408.
- [9] Bernhardt J., Liu W., Theberge F. et al. // Opt. Commun. 2008. V. 281. P. 1268.
- [10] Lofthus A., Krupenie P.H. // J. Phys. Chem. Ref. Data. 1977. V. 6. P. 113.
- [11] Becker A., Bandrauk A.D., Chin S.L. // Chem. Phys. Lett. 2001. V. 343. P. 345.
- [12] Teulet P., Sarrette J.P., Gomes A.M. // J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf. 1999. V. 62. P. 549.
- [13] Ilyin A.A., Sokolova E.B. // Proc. SPIE. 2012. V. 8696. P. 86960D.
- [14] Ильин А.А., Голик С.С. // Письма в ЖТФ. 2014. Т. 40. В. 6. С. 7. [Ilyin A.A., Golik S.S. // Tech. Phys. Lett. 2014. V. 40. P. 234.]
- [15] Shneider M.N., Zheltikov A.M., Miles R.B. // Phys. Plasmas. 2011. V. 18. P. 063 509.
- [16] Kasparian J., Sauerbrey R., Chin S.L. // Appl. Phys. B. 2000. V. 71. P. 877.
- [17] Kossiy I.A., Kostinsky A.Yu., Matveev A.A., Silakov V.P. // Plasma Sources Sci. Technol. 1992. V. 1. P. 207.
- [18] Ilyin A.A., Golik S.S. // Spectrochim. Acta. Part B. 2013. V. 87. P. 192.
- [19] Camacho J.J., Poyato J.M.L., Diaz L., Santos M. // J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 2007. V. 40. P. 4573.