物理学报 Acta Physica Sinica

Chinese Physical Society

Institute of Physics, CAS

飞秒激光在空气中成丝诱导氮荧光发射的空间分布

张云 林爽 张云峰 张鹤 常明莹 于淼 王雅秋 蔡晓明 姜远飞 陈安民 李苏宇 金明星

Spatial distribution of nitrogen fluorescence emission induced by femtosecond laser filamentation in air

Zhang Yun Lin Shuang Zhang Yun-Feng Zhang He Chang Ming-Ying Yu Miao Wang Ya-Qiu Cai Xiao-Ming Jiang Yuan-Fei Chen An-Min Li Su-Yu Jin Ming-Xing

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 70, 134206 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20201704

在线阅读 View online: https://doi.org/10.7498/aps.70.20201704

当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

温度对飞秒激光脉冲在NaCl溶液中成丝产生的超连续谱的影响

Influence of temperature on supercontinuum generation induced by femtosecond laser filamentation in NaCl solution

物理学报. 2018, 67(18): 184206 https://doi.org/10.7498/aps.67.20180686

飞秒激光成丝诱导Cu等离子体的温度和电子密度

Temperature and electron density in femtosecond filament–induced Cu plasma

物理学报. 2017, 66(11): 115201 https://doi.org/10.7498/aps.66.115201

整形飞秒激光脉冲的成丝超连续辐射控制

Control of supercontinuum generation from filamentation of shaped femtosecond laser pulses

物理学报. 2020, 69(3): 034206 https://doi.org/10.7498/aps.69.20191438

平顶飞秒激光经圆锥透镜在熔融石英中成丝及超连续辐射

Filamentation and supercontinuum emission generated from flattened femtosecond laser beam by use of axicon in fused silica

物理学报. 2020, 69(4): 044202 https://doi.org/10.7498/aps.69.20191350

基于飞秒激光成丝测量燃烧场温度

Temperature measurement in combustion flow field with femtosecond laser–induced filament

物理学报. 2020, 69(23): 234207 https://doi.org/10.7498/aps.69.20200939

飞秒平顶光束经微透镜阵列在熔融石英中的成丝及其超连续辐射

Filamentation and supercontinuum emission with flattened femtosecond laser beam by use of microlens array in fused silica

物理学报. 2018, 67(17): 174205 https://doi.org/10.7498/aps.67.20180306

飞秒激光在空气中成丝诱导氮荧光发射的空间分布*

张云[1)2)] 林爽[1)2)] 张云峰[1)3)] 张鹤[1)2)] 常明莹[1)2)] 于淼[1)2)]
王雅秋[1)2)] 蔡晓明[1)2)] 姜远飞[1)2)] 陈安民[1)2)]
李苏宇[1)2)†] 金明星[1)2)‡]

1) (吉林大学, 原子与分子物理研究所, 长春 130012)
2) (吉林大学, 吉林省应用原子分子光谱重点实验室, 长春 130012)
3) (中国科学院长春光学精密机械与物理研究所, 长春 130033)

(2020 年 10 月 14 日收到; 2021 年 2 月 2 日收到修改稿)

测量了线偏振飞秒激光脉冲在空气中成丝产生的氮荧光发射的空间分布. 通过改变激光的偏振方向研究成丝过程中氮荧光发射的径向角分布, 发现 N_2^+ 荧光发射在垂直于激光偏振方向上更强, 而在平行于激光偏振方向上较弱; N_2 荧光发射在所有方向上具有近乎相同的强度. 原子和分子的激发、电离等动力学过程受激光强度的影响. 在飞秒激光成丝过程中沿着激光传播方向, 强度呈现先增强后减弱的分布, 从而影响这些过程的产物的空间分布及其荧光发射的空间分布. 沿着激光传播方向, 发现 N_2 荧光先于 N_2^+ 荧光出现且在 N_2^+ 荧光消失之后消失. 激光强度分布和激光偏振方向均会影响氮荧光的空间分布. 基于实验分析, 在短焦距情况下, 系间窜越过程能很好的解释 $N_2(C^3\Pi_u^+)$ 的形成, 这项研究有助于理解飞秒激光成丝过程中氮荧光发射的产生机制.

关键词: 飞秒激光脉冲, 飞秒激光成丝, 氮分子, 荧光
PACS: 42.62.Fi, 42.65.–k, 52.38.Hb, 32.80.–t **DOI:** 10.7498/aps.70.20201704

1 引 言

近年来强飞秒激光脉冲在空气中传输引起的非线性效应比如成丝现象一直备受关注. 由于飞秒激光诱导荧光能够高灵敏、无损伤地对探测物进行实时分析, 这项技术被广泛应用于远程探测大气中的微量成分[1,2]. 飞秒激光在空气中传输时, 当克尔效应导致的自聚焦现象和电离空气后产生的等离子体引起的散焦效应达到动态平衡时, 会形成长而明亮的低密度等离子体通道[3,4,5], 这就是“丝”. 等离子体经历复杂的跃迁过程会辐射特征荧光光谱[6]. 通过测量飞秒激光成丝过程中的荧光光谱, 可以了解激光强度、电子温度、等离子体密度及其他信息[7–10], 也有助于理解原子/分子经历的激发、电离和其他动力学过程[11–13]. 对空气中飞秒激光诱导等离子体发射光谱的研究可以更好地对其产生机制进行描述[14,15].

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2019YFA0307701)、国家自然科学基金 (批准号: 11704145, 11974138, 11674128, 11504129, 11674124) 和吉林省教育厅“十三五”科学研究规划项目 (批准号: JJKH20190181KJ) 资助的课题.
† 通信作者. E-mail: sylee@jlu.edu.cn
‡ 通信作者. E-mail: mxjin@jlu.edu.cn

© 2021 中国物理学会 Chinese Physical Society

氮气作为空气中的主要成分, 在与强激光场相互作用时发出荧光, 荧光来源于N_2^+的第一负带系 ($B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+$跃迁) 和$N_2$的第二正带系 ($C^3\Pi_u^+ \rightarrow B^3\Pi_g^+$跃迁)[16−19]. 研究表明, N_2在高强度飞秒激光的作用下会直接发生光电离产生$N_2^+(B^2\Pi_u^+)$[20], 经由$B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+$跃迁, 产生$N_2^+$荧光发射. 我们主要研究氮分子和氮分子离子的荧光发射, 因为在飞秒激光成丝过程中, 氮分子的电离和激发等动力学过程受激光强度分布和激光偏振方向的影响, 其产物在传播方向和径向呈现出不同的分布情况, 进而影响其光发射. 因此, 有必要进一步通过氮气荧光的空间分布来研究其产生机制.

在本文中, 测量了线偏振飞秒激光脉冲成丝过程中氮荧光发射的空间分布, 根据N_2荧光和N_2^+荧光在径向和传播方向的不同分布情况, 分析了不同荧光谱线的发射行为, 并讨论了$N_2(C^3\Pi_u^+)$的形成机理.

2 实验方法

利用再生放大 Ti: Sapphire 激光器进行实验, 激光脉冲的中心波长为 800 nm, 脉宽为 50 fs, 重复频率为 1 kHz. 实验装置示意图如图 1 所示. 光束经过聚焦透镜 L(焦距为 $f = 400$ mm) 后在空气中成丝. 可变光阑 A 的孔径分别为 7, 10 和 14 mm 时, 激光能量为 2.00, 2.63 和 3.00 mJ, 对应的光斑如图 1 右侧所示, 用以排除脉冲空间分布对实验结果的影响. 在聚焦透镜之前安装了一个半波片 H, 通过旋转半波片 H 来改变激光脉冲的偏振方向, 半波片每旋转角度 φ 时, 激光偏振方向会变化角度 2φ. 利用石英透镜组 ($f = 75$ mm) 收集等离子体荧光, 然后通过光纤将荧光信号引入到光谱仪中 (Spectra Pro 500i, PI Acton, 光栅: 150 grooves/mm), 并通过 ICCD(PI-MAX4, Princeton Instruments, 1024 × 1024 像素) 探测. 其门宽为 20 ns. 一组数据由 1000 个脉冲组成, 每组数据测量 10 次取平均以减小误差. 图中坐标轴的 x 轴代表测量方向, y 轴为激光传播方向, z 轴方向竖直向上, θ 角为激光偏振方向与 z 轴之间的夹角.

3 结果与讨论

为了清楚地研究氮荧光的径向发射行为, 沿着激光传播方向移动平移台, 选取N_2荧光信号最强的位置对氮荧光的径向角分布进行了测量, 如图 2 所示.

图 2 给出了激光能量为 2.00, 2.63 和 3.00 mJ 时, 对应的氮荧光径向角分布图. 其中 337 和 357 nm 谱线分别对应于N_2分子的$C^3\Pi_u^+(v = 0) \rightarrow B^3\Pi_g^+(v' = 0, 1)$跃迁, 从图中可以看出$N_2$荧光在各个方向的发射强度几乎一样, 来自于$N_2$的荧光的径向角分布呈圆形, 并且其径向角分布不受激光能

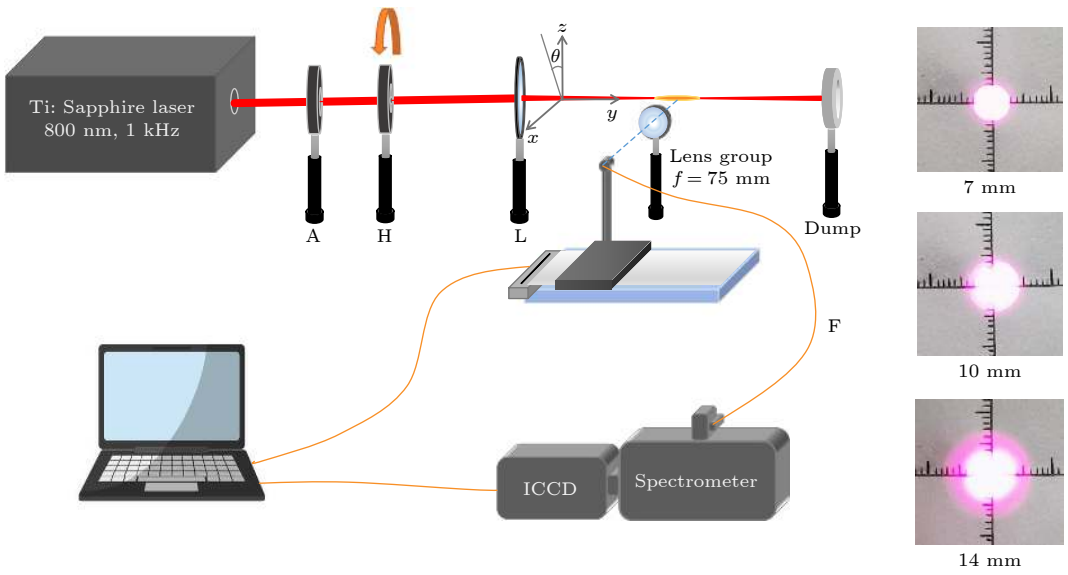

图 1 测定飞秒激光成丝过程中氮荧光空间分布的实验装置示意图. A: 光阑; H: 半波片; L: 聚焦透镜; F: 光纤

Fig. 1. Schematic diagram of experimental setup for measuring the spatial distribution of nitrogen fluorescence during femtosecond laser filament formation. A: Aperture. H: half-wave plate. L: focusing lens. F: optical fiber.

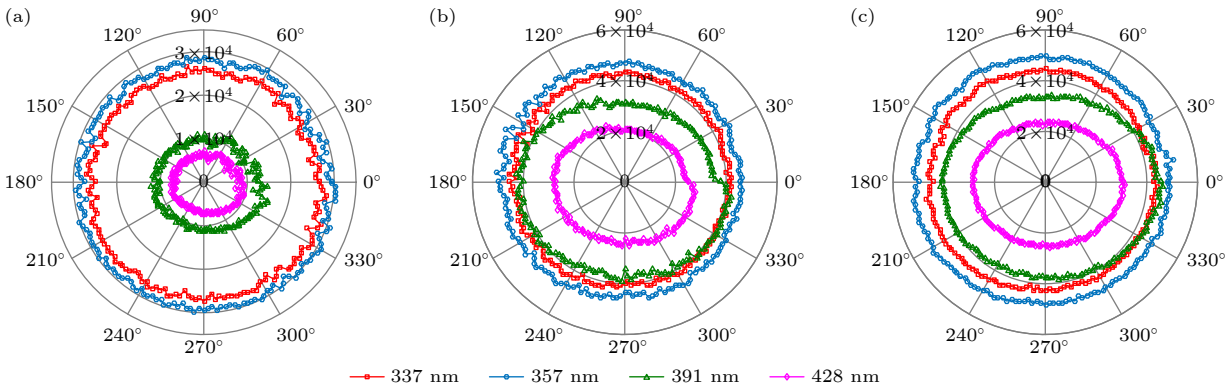

图 2 当脉冲能量为 (a) 2.00, (b) 2.63 和 (c) 3.00 mJ 时氮荧光的径向角分布

Fig. 2. Radial angular distribution of nitrogen fluorescence when pulse energy is (a) 2.00, (b) 2.63 and (c) 3.00 mJ.

量改变的影响. 391 和 428 nm 谱线分别对应于N_2^+的$B^2\Sigma_u^+(v=0)\rightarrow X^2\Sigma_g^+(v'=0,1)$跃迁, 可以看出$N_2^+$的荧光发射在 $\theta=0^o$ 时 (即激光偏振方向与 z 轴平行) 比 $\theta=90^o$ 时 (激光偏振方向与 z 轴垂直) 强度更强, 来自于N_2^+的荧光的径向角分布呈椭圆形, 而且激光能量的大小并不影响其径向角分布特点. 这表明在激光偏振方向与 z 轴平行和垂直时N_2^+荧光发射表现出了较为明显的差异, 这与我们先前的发现一致[21], Su 等[22] 也发现了这一现象. 为了更清晰地反映这种差异, 我们给出了激光能量为 3.00 mJ, 激光偏振方向平行和垂直于 z 轴时的氮荧光光谱, 如图 3(a) 所示.

从图 3(a) 中可以看出, 来自N_2的荧光 (337 和 357 nm 谱线等) 在激光偏振方向平行和垂直于 z 轴时发射强度近乎一致. 而对于N_2^+的荧光 (391 和 428 nm 谱线), 激光偏振方向垂直于 z 轴时的信号与平行于 z 轴时的信号之间的强度比约为 0.85. 图 3(b) 和图 3(c) 表明在传播路径上, 激光偏振方向与 z 轴平行和垂直时N_2荧光信号强度几乎一致, 不受激光偏振方向的影响. 而对N_2^+的荧光信号, 其强度始终在激光偏振方向平行于 z 轴时更强, 如图 3(d) 和图 3(e) 所示.

N_2^+荧光发射的各向异性可能是由其产生通道造成的. 当线偏振飞秒激光脉冲在空气中成丝时, 强激光与空气分子会发生隧穿/多光子电离和准直. 由旋转波包的拉曼激发产生的分子准直, 其发生的概率高于电离的概率, 这是因为从能量或多光子吸收的角度来看, 拉曼效应是低阶 (三阶) 非线性效应, 而电离是高阶非线性效应. 因此在激光强度低于电离阈值时, 分子就已经开始旋转, 这就意味着分子将以某种强度“同时”准直并电离, 并具有不同的概率, 而线性分子的电离几率取决于激光偏振方向和分子轴之间的夹角, 夹角为0^o时电离概率最大, 夹角为90^o时最小[22]. 若激光偏振方向固定, 当N_2^+转动到分子轴的方向与激光偏振方向一致时, 其荧光发射较强. 在实验中, ICCD 的门宽为 20 ns, 远大于N_2^+的转动周期 (8.35 ps), 在这个时间尺度内, N_2^+分子将转动很多圈, 因此观测到的是一个时间平均后的效应: N_2^+荧光在垂直于激光偏振方向上更强. 在实验中使用的是单脉冲, 其目的是产生氮荧光, 准直效应弱. 如果利用另一束激光预先准直N_2分子, 则N_2^+径向角分布的椭圆率更高[23,24].

氮分子的电离和激发等动力学过程受激光强度分布和激光偏振方向的影响, 其产物呈现出不同的分布情况, 进而影响其光发射. 为了排除激光能量对等离子体荧光发射在传播方向上分布情况的影响, 给出了不同激光能量下, 激光偏振方向平行和垂直于 z 轴时N_2和N_2^+荧光信号沿着传播方向的分布情况, 如图 4 所示.

图 4 给出了当激光能量为 2.00, 2.63 和 3.00 mJ 时, 激光偏振方向平行和垂直于 z 轴时N_2和N_2^+荧光信号随传播距离的变化. 从图 4 中可以看出: 传播一开始, N_2荧光 (337 和 357 nm) 先出现, 随后N_2^+荧光 (391 和 428 nm) 出现; 在传播距离末端, N_2荧光在N_2^+荧光消失之后消失. 这是由于在始末位置, 激光强度较低, 不能使N_2电离产生N_2^+($B^2\Sigma_u^+$), 但能将N_2分子激发到激发态, 产生N_2^*经历系间窜越过程发出N_2荧光. N_2和N_2^+荧光信号在激光传播方向上出现及消失的先后关系与激光能量无关. 对于这种差异, 将在下面展开分析.

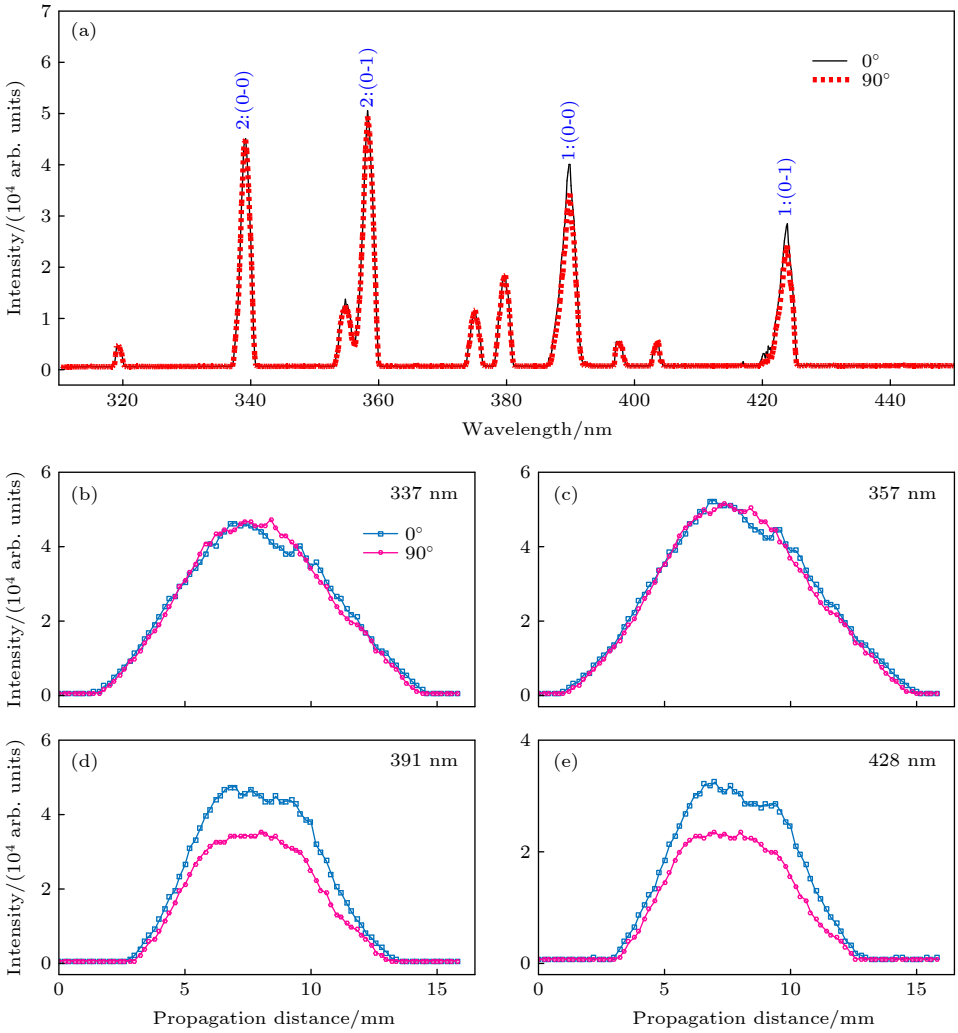

图 3 (a) 激光偏振方向平行 (黑色实线) 和垂直 (红色虚线) 于 z 轴时的氮荧光光谱; 激光偏振方向平行和垂直于 z 轴时 (b) 337, (c) 357, (d) 391 和 (e) 428 nm 荧光信号随传播距离的变化

Fig. 3. (a) Nitrogen fluorescence spectrum when the laser polarization direction is parallel (solid black line) and perpendicular (dashed red line) to the z-axis. Variations of the (b) 337, (c) 357, (d) 391 and (e) 428 nm fluorescence signals with the propagation distance when the laser polarization direction is parallel and perpendicular to z-axis.

对于N_2荧光发射, 考虑到$N_2(C^3\Pi_u^+)$的产生途径, 因为从基态$X^1\Sigma_g^+$到激发态$C^3\Pi_u^+$的跃迁是禁止的, 所以$N_2(C^3\Pi_u^+)$不能由激光场激发直接产生. 因此, 研究者们提出了三种可能的过程来解释$N_2(C^3\Pi_u^+)$的形成: 1) 具有高动能的电子对N_2的碰撞激发过程: $N_2(X^1\Sigma_g^+)+e\rightarrow N_2(C^3\Pi_u^+)+e$[16,25]; 2) 解离复合过程: $N_2^+(X^2\Sigma_g^+)+N_2\rightarrow N_4^+$, $N_4^++e\rightarrow N_2(C^3\Pi_u^+)+N_2$[16,17]; 3) 系间窜越过程: $N_2+m\hbar\omega_0\rightarrow N_2^*$, $N_2^*\xrightarrow{\text{ISC}}N_2(C^3\Pi_u^+)$[18].

首先考虑形成$N_2(C^3\Pi_u^+)$的碰撞激发过程: 通过碰撞激发 ($N_2(X^1\Sigma_g^+)+e\rightarrow N_2(C^3\Pi_u^+)+e$) 产生$N_2(C^3\Pi_u^+)$的前提是存在高动能的电子, 该电子来源于氮分子电离. 而氮分子电离过程也产生N_2^+, 发出N_2^+荧光. 因此, 如果碰撞激发过程主导$N_2(C^3\Pi_u^+)$的形成, 则在激光传播方向上N_2荧光不会出现在N_2^+荧光之前, 这与我们的实验现象矛盾. 因此, 碰撞激发过程不能解释在传播方向上N_2和N_2^+荧光的分布差异.

然后考虑解离复合过程. 本实验使用焦距为$f=400$ mm 的透镜, 在短焦距情况下, 激光束成丝之前的强度很高. 在强激光场作用下, 电离的电子与母体分子离子很可能再次碰撞, N_2^+可能从$X^2\Sigma_g^+$态激发到$B^2\Sigma_u^+$态, 导致氮分子离子的超辐射[26]. 此外, 当激光脉冲强度较高时, 光谱展宽明显, 很容易发生多光子共振效应, 也能将N_2^+从$X^2\Sigma_g^+$态激发到$B^2\Sigma_u^+$态[27]. 通过基于 Floquet 理论的理论

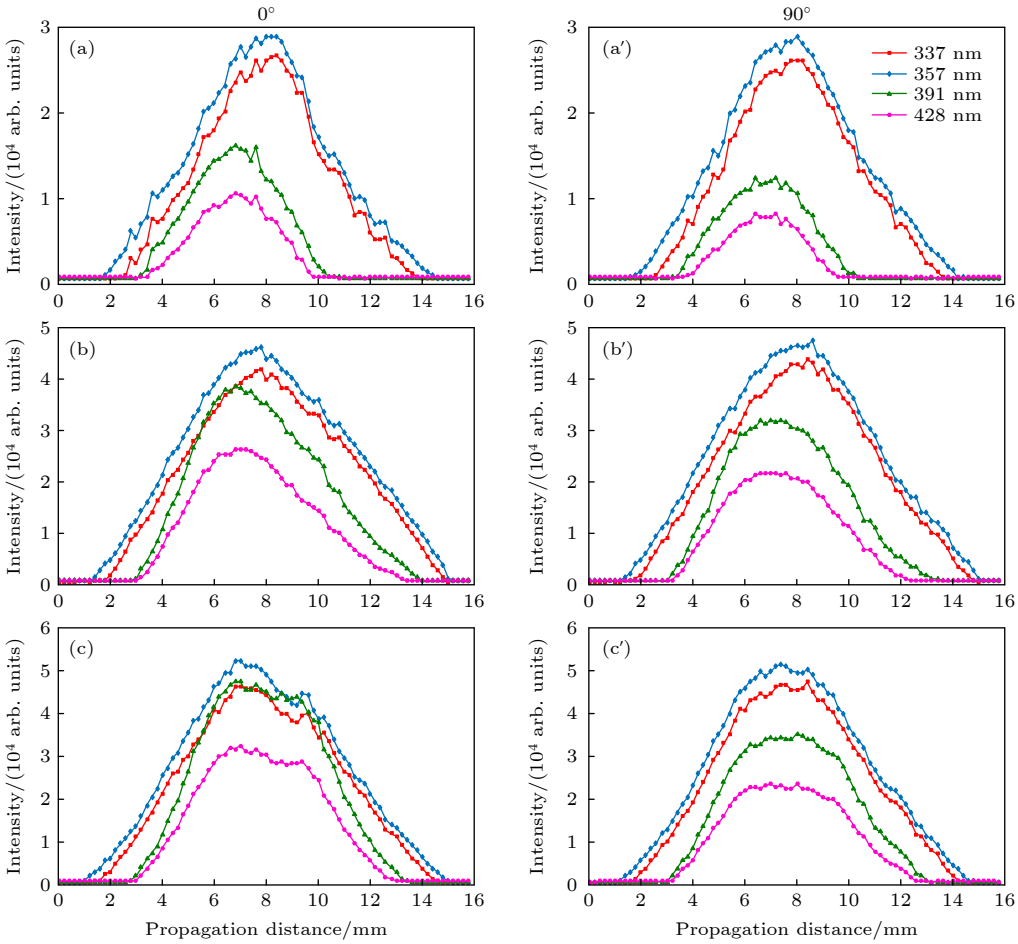

图 4 当脉冲能量为 2.00, 2.63 和 3.00 mJ 时, 激光偏振方向平行 (a), (b), (c) 和垂直 (a′), (b′), (c′) 于 z 轴时 N_2 和 N_2^+ 荧光信号随传播距离的变化

Fig. 4. Variations of the N_2 and N_2^+ fluorescence signal with the propagation distance when the laser polarization direction is parallel (a), (b), (c) and perpendicular (a′), (b′), (c′) to the z-axis and the pulse energy is 2.00, 2.63 and 3.00 mJ.

研究, Zhang 等 [28] 指出, N_2^+ 优先在激光电场的峰值处产生, 它将与激光电场的其余部分相互作用, 从而引起从 $X^2\Sigma_g^+$ 态到 $B^2\Sigma_u^+$ 态的非共振迁移. 此外, 在 N_2^+ 的 $X^2\Sigma_g^+$, $A^2\Pi_g$ 和 $B^2\Sigma_u^+$ 电子态之间存在耦合 [29–31]. 因此, 在短焦距条件下, 一旦形成 N_2^+ 的 $X^2\Sigma_g^+$ 态, 几乎同时形成 $B^2\Sigma_u^+$ 态. 若解离复合过程 $(N_2^+(X^2\Sigma_g^+)+N_2\rightarrow N_4^+,\ N_4^+ + e\rightarrow N_2(C^3\Pi_u^+)+N_2)$ 主导 $N_2(C^3\Pi_u^+)$ 的产生, 则在 N_2 荧光产生的同时, N_2^+ 荧光也出现. 此种机制下, $N_2(C^3\Pi_u^+)$ 的密度取决于 N_2^+. 因此, N_2 和 N_2^+ 的荧光谱线分布应该具有相似性. 很明显, 这与实验现象矛盾, 表明解离复合过程不能解释 $N_2(C^3\Pi_u^+)$ 的产生.

而对于系间窜越过程 $(N_2 + m\hbar\omega_0 \rightarrow N_2^*,\ N_2^* \xrightarrow{\text{ISC}} N_2(C^3\Pi_u^+))$, 通过多光子吸收机制, N_2 有可能被泵浦到能量比 $X^1\Sigma_g^+$ 态高 12 eV 的多个单重激发态 [32], 尽管确定具体是哪一个非常困难, 但是脉冲整形研究表明, $N_2(C^3\Pi_u^+)$ 的形成可能涉及中间态 (单重激发态)[33]. N_2 分子只需约 12 eV 的能量就能到激发态, 比通过 $N_2(X^1\Sigma_g^+)$ 电离产生 $N_2^+(B^2\Sigma_u^+)$ 所需的能量 (18.75 eV) 小得多. 在激光强度不够高的情况下, 不能电离产生 N_2^+ 荧光, 却能产生大量 N_2^*, 随后发生系间窜越过程 $(N_2^* \xrightarrow{\text{ISC}} N_2(C^3\Pi_u^+))$, 产生 $N_2(C^3\Pi_u^+)$, 经由 $C^3\Pi_u^+ \rightarrow B^3\Pi_g^+$ 跃迁, 发出 N_2 荧光. 因此, N_2 荧光出现在 N_2^+ 荧光之前. 在激光强度足够高的位置, 可以使 N_2 发生电离, 就会直接产生 $N_2^+(B^2\Sigma_u^+)$, 经由 $B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+$ 跃迁, 发出 N_2^+ 荧光. 随着激光脉冲进一步的传播, 强度开始下降, 能量不足以使 N_2 电离, 但仍能产生 N_2^*, 经历系间窜越过程产生 $N_2(C^3\Pi_u^+)$. 因此, 在 N_2^+ 荧光消失之后, N_2 荧光依旧存在. 这合理解释了 N_2 和 N_2^+ 荧光信号在激光传播方向上出现及消失的先后关系. 总之, 系间窜越过程的分析与实验

现象相符合, 这表明它可以很好地解释$N_2(C^3\Pi_u^+)$的产生.

4 结 论

我们研究了线偏振飞秒激光脉冲成丝过程中氮荧光发射的空间分布. 实验结果表明, N_2荧光发射在所有方向上具有近乎相同的强度, N_2^+荧光发射强度在垂直于激光偏振方向时更强. 这是由于N_2分子轴平行于激光偏振方向时更容易发生电离, N_2^+的布居数更多, 荧光发射更加强烈. 沿着激光传播方向, N_2荧光先于N_2^+荧光出现, 当N_2^+荧光消失之后N_2荧光依旧存在. 这是由于在激光强度足够高的位置, N_2可以被电离产生$N_2^+(B^2\Sigma_u^+)$, 发射N_2^+荧光. 但是, 在激光传输的始末位置能量不足以使氮分子电离, 但足以激发产生N_2^*, 并通过系间窜越过程产生$N_2(C^3\Pi_u^+)$, 发出N_2荧光. 根据实验结果, 分析讨论了$N_2(C^3\Pi_u^+)$的形成机理, 发现在短焦距情况下系间窜越过程能很好地解释实验现象, 这表明系间窜越过程在$N_2(C^3\Pi_u^+)$的形成中扮演了重要的角色. 这项研究有助于理解氮荧光发射的机理.

参考文献

[1] Xu H, Cheng Y, Chin S L, Sun H B 2015 *Laser Photonics Rev.* **9** 275

[2] Dicaire I, Jukna V, Praz C, Milián C, Summerer L, Couairon A 2016 *Laser Photonics Rev.* **10** 481

[3] Lange H R, Chiron A, Ripoche J F, Mysyrowicz A, Breger P, Agostini P 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 1611

[4] Kasparian J, Sauerbrey R, Chin S L 2000 *Appl. Phys. B* **71** 877

[5] Li S, Chen A, Jiang Y, Jin M 2018 *Opt. Commun.* **426** 105

[6] Chin S L, Xu H L, Luo Q, Théberge F, Liu W, Daigle J F, Kamali Y, Simard P T, Bernhardt J, Hosseini S A, Sharifi M, Méjean G, Azarm A, Marceau C, Kosareva O, Kandidov V P, Aközbek N, Becker A, Roy G, Mathieu P, Simard J R, Châteauneuf M, Dubois J 2009 *Appl. Phys. B* **95** 1

[7] Xu S, Sun X, Zeng B, Chu W, Zhao J, Liu W, Cheng Y, Xu Z, Chin S L 2012 *Opt. Express* **20** 299

[8] Sun X, Xu S, Zhao J, Liu W, Cheng Y, Xu Z, Chin S L, Mu G 2012 *Opt. Express* **20** 4790

[9] Hosseini S A, Luo Q, Ferland B, Liu W, Aközbek N, Roy G, Chin S L 2003 *Appl. Phys. B* **77** 697

[10] Daigle J F, Jaroń-Becker A, Hosseini S, Wang T J, Kamali Y, Roy G, Becker A, Chin S L 2010 *Phys. Rev. A* **82** 023405

[11] Lei M, Wu C, Liang Q, Zhang A, Li Y, Cheng Q, Wang S, Yang H, Gong Q, Jiang H 2017 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **50** 145101

[12] Ran P, Li G, Liu T, Hou H, Luo S 2019 *Opt. Express* **27** 19177

[13] Wang P, Xu S, Li D, Yang H, Jiang H, Gong Q, Wu C 2014 *Phys. Rev. A* **90** 033407

[14] Zhu Z Q, Wang X L 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 085205 (in Chinese) [朱竹青, 王晓雷 2011 物理学报 **60** 085205]

[15] Wu J, Wu Z, Chen T, Zhang H, Zhang Y, Zhang Y, Lin S, Cai X, Chen A, Jiang Y, Li S, Jin M 2020 *Opt. Laser Technol.* **131** 106417

[16] Mitryukovskiy S, Liu Y, Ding P, Houard A, Couairon A, Mysyrowicz A 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 063003

[17] Xu H L, Azarm A, Bernhardt J, Kamali Y, Chin S L 2009 *Chem. Phys.* **360** 171

[18] Arnold B R, Roberson S D, Pellegrino P M 2012 *Chem. Phys.* **405** 9

[19] Li S, Jiang Y, Chen A, He L, Liu D, Jin M 2017 *Phys. Plasmas* **24** 033111

[20] Becker A, Bandrauk A D, Chin S L 2001 *Chem. Phys. Lett.* **343** 345

[21] Li S, Sui L, Chen A, Jiang Y, Liu D, Shi Z, Jin M 2016 *Phys. Plasmas* **23** 023102

[22] Su Q, Sun L, Chu C, Zhang Z, Zhang N, Lin L, Zeng Z, Kosareva O, Liu W, Chin S L 2020 *J. Phys. Chem. Lett.* **11** 730

[23] Pavičić D, Lee K F, Rayner D M, Corkum P B, Villeneuve D M 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 243001

[24] Yao Y H, Lu C H, Xu S W, Ding J X, Jia T Q, Zhang S A, Sun Z R 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 184201 (in Chinese) [姚云华, 卢晨晖, 徐淑武, 丁晶新, 贾天卿, 张诗按, 孙真荣 2014 物理学报 **63** 184201]

[25] Itikawa Y 2006 *J. Phys. Chem. Ref. Data* **35** 31

[26] Liu Y, Ding P, Lambert G, Houard A, Tikhonchuk V, Mysyrowicz A 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 133203

[27] Chin S L, Xu H L, Cheng Y, Xu Z, Yamanouchi K 2013 *Chin. Opt. Lett.* **11** 013201

[28] Zhang Y, Lötstedt E, Yamanouchi K 2017 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **50** 185603

[29] Xu H L, Lötstedt E, Iwasaki A, Yamanouchi K 2015 *Nat. Commun.* **6** 8347

[30] Ando T, Lötstedt E, Iwasaki A, Li H, Fu Y, Wang S, Xu H L, Yamanouchi K 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 203201

[31] Yao J, Jiang S, Chu W, Zeng B, Wu C, Lu R, Li Z, Xie H, Li G, Yu C, Wang Z H, Jiang H, Gong Q, Cheng Y 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 143007

[32] Bernhardt J, Liu W, Théberge F, Xu H L, Daigle J F, Châteauneuf M, Dubois J, Chin S L 2008 *Opt. Commun.* **281** 1268

[33] Plenge J, Wirsing A, Raschpichler C, Meyer M, Rühl E 2009 *J. Chem. Phys.* **130** 244313

Spatial distribution of nitrogen fluorescence emission induced by femtosecond laser filamentation in air*

Zhang Yun [1)2)] Lin Shuang [1)2)] Zhang Yun-Feng [1)3)] Zhang He [1)2)]
Chang Ming-Ying [1)2)] Yu Miao [1)2)] Wang Ya-Qiu [1)2)] Cai Xiao-Ming [1)2)]
Jiang Yuan-Fei [1)2)] Chen An-Min [1)2)] Li Su-Yu [1)2)†] Jin Ming-Xing [1)2)‡]

1) (*Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun* 130012, *China*)

2) (*Jilin Provincial Key Laboratory of Applied Atomic and Molecular Spectroscopy, Jilin University, Changchun* 130012, *China*)

3) (*Changchun Institute of Optics, Fine Mechanics and Physics, Chinese Academy of Sciences, Changchun* 130033, *China*)

(Received 14 October 2020; revised manuscript received 2 February 2021)

Abstract

As a major component in the air, nitrogen emits fluorescence when it interacts with intensive laser field. The fluorescence comes from the first negative band system ($B^2\Sigma_u^+ \rightarrow X^2\Sigma_g^+$ transition) of N_2^+ and the second positive band system ($C^3\Pi_u^+ \rightarrow B^3\Pi_g^+$ transition) of N_2. Under the action of high-intensity femtosecond laser, N_2 can be directly photo-ionized into $N_2^+(B^2\Sigma_u^+)$, which results in fluorescence emission of N_2^+. In the process of femtosecond laser filament formation, the dynamic processes such as ionization and excitation of nitrogen molecules are affected by the laser intensity distribution and laser polarization direction. The products show different distributions in the propagation direction and radial space, which, in turn, affects its light emission. Therefore, it is necessary to further ascertain its generation mechanism through the spatial distribution of nitrogen fluorescence. In this experiment, the spatial distribution of the nitrogen fluorescence emission generated by linearly polarized femtosecond laser pulse filaments in air is measured. By changing the polarization direction of the laser to study the distribution of nitrogen fluorescence in the radial plane, it is found that the fluorescence emission of N_2^+ is more intense in the direction perpendicular to the laser polarization, while it is weaker in the direction parallel to the laser polarization. The nitrogen fluorescence emission has the same intensity in all directions. The ionization probability of a linear molecule depends on the angle between the laser polarization direction and the molecular axis, which is maximum (minimum) when the angle is 0^o (90^o). The N_2 gas is more likely to be ionized in the laser polarization direction, the nitrogen molecular ions N_2^+ and electrons are separated in the direction parallel to the laser polarization. Therefore, more ions (N_2^+) are generated in the direction parallel to the laser polarization, and the fluorescence emission of N_2^+ is more intense. Along the propagation direction of the laser, it is found that the fluorescence of N_2 appears before the fluorescence of N_2^+ and disappears after the fluorescence of N_2^+ has vanished. This is due to the fact that N_2 can be ionized into $N_2^+(B^2\Sigma_u^+)$ at the position of high enough laser intensity, thus emitting fluorescence of N_2^+. However, the laser energy is not enough to ionize nitrogen at the beginning and end of laser transmission, but it can generate N_2^*, which emits nitrogen fluorescence through the process of intersystem crossing $N_2^* \xrightarrow{\text{ISC}} N_2(C^3\Pi_u^+)$. The spatial distribution of nitrogen fluorescence emission during femtosecond laser filament formation shows that in the case of short focal length, the intersystem crossing scheme can explain the formation of $N_2(C^3\Pi_u^+)$. This research is helpful in understanding the mechanism of nitrogen fluorescence emission.

Keywords: femtosecond laser pulse, femtosecond laser filament, nitrogen molecule, fluorescence

PACS: 42.62.Fi, 42.65.–k, 52.38.Hb, 32.80.–t **DOI:** 10.7498/aps.70.20201704

* Project supported by the National Basic Research Program (Grant No. 2019YFA0307701), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11704145, 11974138, 11674128, 11504129, 11674124), and the Scientific Research Project of 13th Five-year Plan of the Education Department of Jilin Province, China (Grant No. JJKH20190181KJ).

† Corresponding author. E-mail: sylee@jlu.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: mxjin@jlu.edu.cn