

· 特邀综述 ·

# 空气激光:强场新效应和远程探测新技术

姚金平<sup>1,2\*</sup>, 程亚<sup>1,2,3\*\*</sup>

<sup>1</sup>中国科学院上海光学精密机械研究所强场激光物理国家重点实验室, 上海 201800;

<sup>2</sup>中国科学院超强激光科学卓越创新中心, 上海 201800;

<sup>3</sup>华东师范大学精密光谱科学与技术国家重点实验室, 上海 200062

**摘要** 空气激光是以空气为增益介质产生的相干辐射, 具有高准直度、高相干性、高强度以及自由空间传输等优点, 为远程探测提供了全新的技术途径。同时, 空气激光是强场超快激光与空气中的原子分子相互作用的结果, 蕴含了新颖而丰富的强场物理效应。综述了空气激光近年来的主要研究进展。首先介绍了三类空气激光的产生途径及基本特征, 然后从氮气离子激光的增益机制以及量子相干性两个层面阐述了空气激光所蕴含的新物理效应, 并讨论了空气激光在远程探测中的应用, 最后总结了空气激光研究的意义, 展望了该方向面临的机遇与挑战。

**关键词** 超快光学; 空气激光; 强场激光物理; 远程探测

中图分类号 O437

文献标志码 A

doi: 10.3788/CJL202047.0500005

## Air Lasing: Novel Effects in Strong Laser Fields and New Technology in Remote Sensing

Yao Jinping<sup>1,2\*</sup>, Cheng Ya<sup>1,2,3\*\*</sup>

<sup>1</sup>State Key Laboratory of High Field Laser Physics, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China;

<sup>2</sup>CAS Center for Excellence in Ultra-Intense Laser Sciences, Shanghai 201800, China;

<sup>3</sup>State Key Laboratory of Precision Spectroscopy, East China Normal University, Shanghai 200062, China

**Abstract** Air lasing refers to the coherent emission produced with air as the gain medium. Air lasing has numerous advantages such as high directionality, high coherence, high intensity, and free-space propagation. Therefore, air lasing provides a novel pathway for remote sensing. Air lasing, which is generated by the interaction between a strong ultrafast laser and atoms or molecules in air, includes many new strong-field effects. In this paper, we reviewed the major advances in air lasing in recent years. First, generation methods and basic characteristics of three types of air lasing were introduced. Next, new physical effects involved in air lasing were revealed based on two aspects, gain mechanism of molecular nitrogen ion lasing and quantum coherence. Moreover, applications of air lasing in remote sensing were discussed. Conclusively, the research significance of air lasing was summarized, and the opportunities and challenges in this topic were highlighted.

**Key words** ultrafast optics; air lasing; strong field laser physics; remote sensing

**OCIS codes** 320.7120; 020.2649; 010.0280

## 1 引言

随着激光的出现<sup>[1]</sup>, 光与物质相互作用的研究进入了一个崭新的时代。光不仅可以作为信号的载

体来探测物质的内部结构, 而且能够改变甚至操纵物质的结构, 如激光冷却原子<sup>[2]</sup>、激光操纵病毒和细菌<sup>[3]</sup>、激光焊接<sup>[4]</sup>等。近 30 年来, 超强超短激光技术的迅速发展, 进一步将光与物质相互作用的研究

收稿日期: 2020-03-05; 修回日期: 2020-04-03 录用日期: 2020-04-10

基金项目: 国家自然科学基金(11822410)、中国科学院战略性先导专项(XDB16030300)、中国科学院前沿科学重点研究项目(QYZDJ-SSW-SLH010)、上海市科委重点项目(18DZ1112700)、上海市青年科技启明星计划(17QA1404600)、中国科学院青年创新促进会项目(2018284)

\* E-mail: jinpingyao@siom.ac.cn; \*\* E-mail: ya.cheng@siom.ac.cn

推进到了非微扰的强场范畴,极大地拓展了科学研究的参数区间,开启了激光科学的新篇章<sup>[5-6]</sup>。超强超短激光不仅会产生阈上电离<sup>[7]</sup>、非序列双电离<sup>[8]</sup>、高次谐波产生<sup>[9-10]</sup>等丰富的物理现象,而且在阿秒科学<sup>[11]</sup>、高能电子和离子加速<sup>[12-13]</sup>、微纳加工<sup>[14]</sup>、飞秒激光眼科手术<sup>[15]</sup>、大气遥感<sup>[16,17]</sup>等领域具有重要应用,推动了物理、化学、生物医学、环境科学等多个学科领域的发展。

近几年,空气激光作为一个新颖的强场超快现象,引起了国内外研究人员的关注。空气激光是指以空气的主要物质成分或其衍生物为增益介质,通过无腔放大的方式产生的具有高准直度、高相干性及高强度的辐射。与荧光辐射相比,空气激光沿特定方向传输,具有良好的空间指向性(即高准直度),并具有很高的空间相干性以及皮秒到纳秒量级的时间相干性,其强度比荧光信号高若干数量级。这些特征使其成为远程遥感技术的理想光源。空气激光的最早研究可追溯到1988年,当时,Vaulin等<sup>[18]</sup>利用高功率微波脉冲泵浦空气分子产生了激光辐射。然而,微波脉冲很容易发散,难以在空气中实现远距离传输。超强超短激光技术的发展,特别是啁啾脉冲放大技术的发明<sup>[19]</sup>,使得激光强度有了前所未有的提升。峰值功率超过几个GW( $1\text{ GW}=10^9\text{ W}$ )的飞秒激光在大气中非线性传输时可以克服自然衍射,产生一个内核直径为 $100\ \mu\text{m}$ 、峰值光强高达 $50\sim 100\text{ TW}/\text{cm}^2$ ( $1\text{ TW}=10^{12}\text{ W}$ )的自导引通道,即飞秒光丝<sup>[20]</sup>。飞秒激光成丝现象的发现为远程空气激光研究提供了新机遇。2003年,Luo等<sup>[21]</sup>研究了飞秒激光在大气中成丝诱导的背向荧光辐射,发现背向氮气荧光辐射随着光丝长度的增加呈指数增长的趋势。他们将该现象归因于放大的自发辐射(ASE),并首次提出了空气激光的概念。2011年,Dogariu等<sup>[22]</sup>和Yao等<sup>[23]</sup>分别报道了紫外皮秒激光驱动的氧原子激光和中红外飞秒激光泵浦的氮分子离子激光,并从实验上证实了它的高强度和um准直度等特点。自此之后,空气激光的研究迅速升温,各类空气激光相继被报道<sup>[24-26]</sup>。

在强场超快条件下开展远程空气激光研究不仅对强场分子物理、超快非线性光学、量子光学等基础研究具有重要意义,而且为光学遥感提供了一条全新的技术途径。因此,空气激光迅速发展成为强场超快光学领域中的一个独立分支,国内外有近20个研究小组在开展相关研究。目前,人们不仅可以产生以氮气和氧气为增益介质的激光<sup>[21-23,27-32]</sup>,而且

探索了在稀有气体<sup>[33]</sup>、二氧化碳<sup>[34]</sup>、水<sup>[35,36]</sup>等空气中含量较低的介质中产生激光辐射的可能性。一方面,空气激光具有高准直度、高相干性和高强度等优点,在大气痕量污染物遥感、爆炸物远程探测、核泄漏预警等环境科学和国防安全领域具有广阔的应用前景。因此,自远程空气激光被报道之后,国内外多个研究小组就对其遥感应用进行了探索<sup>[37-42]</sup>。另一方面,远程空气激光涉及强激光与空气分子多种物质形态(原子、分子、离子)的相互作用,涵盖电离、解离、光激发、多轨道作用、分子核波包运动等多个时间尺度的动力学过程,物理内涵丰富而新颖。因此,在空气激光的研究中,人们发现了很多新奇的强场物理、非线性光学和量子光学效应,为探索强激光与物质相互作用提供了新的视角<sup>[43-57]</sup>。

为了纪念激光器诞生60周年,本文综述了近几年来空气激光的主要研究进展。首先介绍了三类空气激光的产生方法和基本特征,然后重点阐述了氮气离子( $\text{N}_2^+$ )激光所蕴含的新物理效应,并讨论了空气激光在远程探测中发挥的作用,最后从基础研究与应用技术两个层面对空气激光的研究意义以及面临的机遇和挑战进行了简要总结与展望。与已发表的空气激光综述相比<sup>[25,26,43]</sup>,本文从 $\text{N}_2^+$ 激光的增益机制以及量子相干性行为这两个方面重点揭示了离子类空气激光涉及的新效应、新机制与新理论,并探讨了空气激光在远程探测中的应用。

## 2 空气激光的产生途径

按照增益介质的类型,空气激光可以分为原子类、分子类、离子类三种。原子类空气激光主要以空气中含量较多的氮气或氧气分子解离产生的氮、氧原子以及空气中含量甚微的稀有气体为增益介质。这类激光通常采用紫外光泵浦,增益寿命较长,并具有双向传输特性。分子类激光主要是以空气中的氮气分子为增益介质,通过激发态氩原子或者热电子碰撞激发实现粒子数反转。由于氧气的淬灭作用,在空气中产生的氮分子激光信号通常较弱。离子类空气激光主要以光电离产生的氮分子离子作为增益介质,增益寿命较短,主要沿前向传输。这类激光的物理机制备受争议,已成为研究者关注的焦点。本章将介绍三类空气激光的产生方法以及各自的特点。

### 2.1 原子类空气激光

2011年,Dogariu等<sup>[22]</sup>报道了以氧原子为增益介质的空气激光现象。他们采用中心波长为226 nm的紫外皮秒激光脉冲激发空气分子,在前向

和背向均观测到了波长为 845 nm 的激光信号,其产生机制如图 1(a)所示。在 226 nm 泵浦激光作用下,氧气分子通过双光子共振解离产生氧原子,为空气激光提供增益介质。泵浦激光进一步通过双光子共振激发将氧原子从基态  $2p^3P$  激发至激发态  $3p^3P$ ,进而导致  $3p^3P$  态和  $3s^3S$  态之间形成粒子数反转,产生波长为 845 nm 的氧原子激光。该激光辐射的光谱和远场光斑分布如图 1(b)所示,空间发散角约为 40 mrad。实验测得的氧原子激光的脉宽约为 300 ps,比侧向荧光寿命短两个数量级。背向激光信号不仅具有良好的方向性,而且比非相干侧向荧光信号强两个数量级,如图 1(c)所示,由此估

算其光学增益高达  $62\text{ cm}^{-1}$ 。如此高的光学增益是同时产生强的前向和背向激光信号的重要因素之一。2013 年,Dogariu 等<sup>[27]</sup>试图采用相似的紫外泵浦方案产生氮原子激光,但是,由于氮的解离能明显高于氧原子,一束紫外激光难以同时完成解离和激发这两个过程;因此,他们利用钛宝石激光器输出的 826 nm 强激光解离氮气分子,并用它的四次谐波双光子共振激发氮原子形成粒子数反转,最终获得了氮原子激光。通过测量光斑的形状和相干性,证实了它的激光特性。除了氮和氧原子激光外,Dogariu 等<sup>[36]</sup>还利用紫外激光泵浦空气中的  $\text{H}_2\text{O}$  分子产生了氢原子激光。

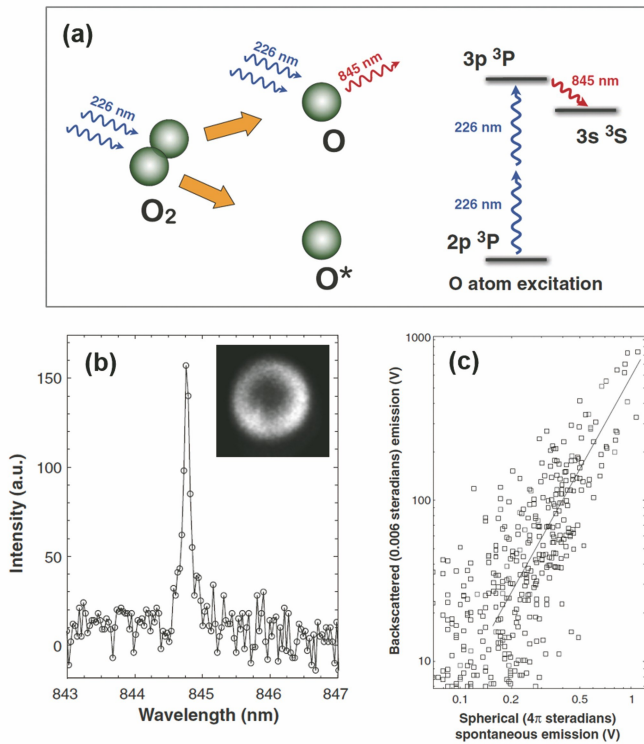


图 1 氧原子激光的产生机制与基本特性<sup>[22]</sup>。(a) 226 nm 紫外皮秒激光驱动产生氧原子激光的示意图;(b)背向采集的氧原子激光光谱,插图为背向氧原子激光的远场光斑;(c)背向相干辐射与  $4\pi$  立体角积分的侧向非相干辐射的比较  
Fig. 1 Generation mechanism and basic properties of oxygen atomic lasing<sup>[22]</sup>. (a) Schematic of oxygen atomic lasing pumped by a 226 nm ultraviolet picosecond laser; (b) the spectrum of oxygen atomic lasing measured from backward direction along the pump laser propagation path, and the inset shows the far-field profile of backward oxygen atomic lasing; (c) the backward coherent emission versus the side incoherent emission integrated over the solid angle of  $4\pi$  steradians

空气中的氮气和氧气以分子形式存在,因此要产生氮原子激光或氧原子激光,必须先将空气分子解离为原子,这无疑对泵浦激光的强度提出了很高的要求。在单光束紫外光泵浦方案中<sup>[22]</sup>,氧原子激光产生的阈值高达  $100\text{ GW/cm}^2$ ,而紫外光能量有限,必须采用紧聚焦方式才能达到如此高的光强,从而大大限制了激光辐射的强度和传输距离。2014

年,Laurain 等<sup>[28]</sup>利用一束高能量纳秒激光脉冲预解离氮气和氧气分子,随后利用紫外光进行双光子激发,极大地降低了氮原子激光和氧原子激光的阈值,获得了单脉冲能量高达  $1\ \mu\text{J}$  的背向激光输出。虽然目前已经获得了较强的背向氮、氧原子激光,但是深紫外泵浦光在大气中的强吸收限制了其在远程探测中的应用。

稀有气体是空气中天然存在的原子气体,也是产生空气激光的备选增益介质。氩气由于是空气中含量最高(接近1%)的稀有气体而引起了研究人员的关注。最近,Dogariu等<sup>[33]</sup>采用波长为262 nm左右的飞秒或皮秒激光共振激发氩原子,观测到了波长为1327 nm、双向传输的氩原子激光。相对于氮、氧和氢原子激光,氩原子激光不需要预解离,并且262 nm波段的泵浦激光在大气中的吸收显著降低,为实际应用提供了可能。然而,他们的研究表明,只有当空气中氩气的摩尔分数达到10%以上时才能观测到氩原子激光<sup>[33]</sup>,这与真实的大气环境还有一定差距。采用更高能量的飞秒激光泵浦来提高氩原子激光的增益,有望解决这一问题。

在人们探索各种原子空气激光产生方法的同时,原子空气激光的增益机制也得到了关注<sup>[44,58]</sup>。2012年,Traverso等<sup>[44]</sup>利用高能量紫外纳秒激光泵浦产生了氧原子激光,发现激光辐射在时域上出现了不规则的振荡结构,由此认为原子间的相干性对激光增益具有重要贡献。2013年,Yuan等<sup>[58]</sup>通过系统的理论研究,揭示了量子相干性是导致氧原子激光特殊时域结构的重要原因。

## 2.2 分子类空气激光

氮气在空气中的含量最高,是产生空气激光的首选增益介质。氮分子的发光主要来自第二正带系统,对应三重态 $C^3\Pi_u$ (以下简称“C”)到 $B^3\Pi_g$ (以下简称“B”)的跃迁<sup>[59]</sup>。由于 $N_2$ 的基态 $X^1\Sigma_g$ 到这两个三重态的光跃迁是禁戒的,因此氮分子激光主要靠碰撞激发实现粒子数反转。目前,产生氮分子激光的泵浦机制可分为两类:一类是通过激发态氩原子( $Ar^*$ )与氮分子碰撞建立粒子数反转<sup>[29]</sup>,另一类则是靠热电子碰撞激发<sup>[30-31,60-61]</sup>。下面将对这两种机制逐一介绍。

利用激发态原子碰撞激发产生氮分子激光的物理过程如图2(a)所示。该泵浦机制利用激发态氩原子的共振激发将能量传递给氮气分子,从而将氮气分子激发到C态产生粒子数反转<sup>[62]</sup>,这与He-Ne激光器中氦的作用类似。基于这一机制,2012年,Kartashov等<sup>[29]</sup>采用 $3.9\ \mu m$ 的中红外飞秒激光进行泵浦,在氮气和氩气的混合气体中产生了波长约为337 nm和358 nm的背向氮分子激光。在该实验中,激发态氩原子靠飞秒光丝内的三体碰撞和解离复合过程产生,即 $Ar^+ + 2Ar \rightarrow Ar_2^+ + Ar, Ar_2^+ + e$

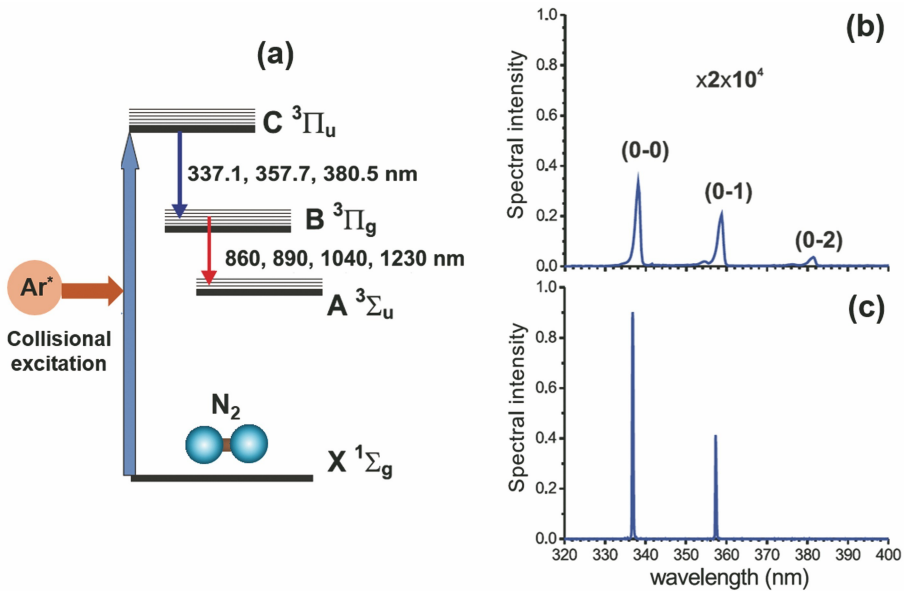


图2 激发态氩原子碰撞激发产生的氮分子激光<sup>[29]</sup>。(a)激发态氩原子碰撞激发产生氮分子激光的能级图;(b)  $3.9\ \mu m$ 激光脉冲在0.1 MPa氮气中产生的荧光光谱,这些辐射对应氮分子从C态到B态不同振动能级的跃迁;(c)  $3.9\ \mu m$ 激光脉冲在0.1 MPa氮气和0.5 MPa氩气的混合气体中产生的背向氮分子激光光谱

Fig. 2  $N_2$  lasing produced by collisional excitation of excited argon atoms<sup>[29]</sup>. (a) Energy-level diagram of  $N_2$  lasing produced by the collisional excitation of excited argon atoms ( $Ar^*$ ); (b) spectrum of fluorescence from the 0.1 MPa nitrogen gas induced by  $3.9\ \mu m$  laser pulses, these radiations correspond to the electronic transition from C state to B state of nitrogen molecules, and the corresponding vibrational levels are assigned; (c) spectrum of backward  $N_2$  lasing from the gas mixture of 0.1 MPa nitrogen and 0.5 MPa argon

→Ar\*(4<sup>3</sup>P<sup>2</sup>)+Ar,因此要求氩气的浓度较高。在最优化的氮气和氩气气压下,输出的氮分子激光单脉冲能量为 3.5 μJ,转换效率为 0.5%。如图 2(b)、(c)所示,337 nm 和 358 nm 背向激光的光谱带宽只有相应侧向荧光的 1/3 和 1/4 左右,表明其在放大过程中存在光谱窄化效应。他们测得的氮分子激光的光斑呈超高斯分布,发散角为 1.6 mrad。此外,他们还通过 2 mm 玻璃片前后表面的干涉证实了氮分子激光具有良好的相干性。值得一提的是,氩原子的 4<sup>3</sup>P<sup>2</sup>激发态为亚稳态,能级寿命较长,因此粒子数反转寿命可以达到纳秒量级<sup>[29,62]</sup>,这是产生背向空气激光的关键因素。2015 年,Xie 等<sup>[63]</sup>通过关联测量前向与背向氮分子激光的增益动力学,在实验上证实了激发态氩原子碰撞产生的氮分子激光的增益寿命长达几纳秒,并指出实现背向氮分子激光所

需要的最小增益时间约为 0.8 ns。

电子碰撞激发是产生氮分子激光的另一个重要机制,主要通过热碰撞将电子能量传递给周围的氮分子从而实现粒子数反转。电子碰撞激发截面的大小与电子能量密切相关<sup>[64]</sup>,如图 3(a)所示,当电子能量处于 13~30 eV 区间时,氮分子 C 态的激发截面高于 B 态,因此能够建立粒子数反转。传统的氮分子激光器正是通过放电激励的方式产生合适的电子能量的<sup>[65]</sup>。但是,要产生无腔的远程氮分子激光,必须利用高能泵浦激光加热电子,目前可行的方法有三种。第一种是 Mitryukovskiy 等<sup>[30]</sup>提出的圆偏振飞秒激光脉冲泵浦方案。他们测量了背向 337 nm 辐射随泵浦激光椭圆偏振度的变化,发现背向传输的氮气辐射在圆偏振泵浦条件下显著增强,如图 3(b)所示,形成方向性良好的相干光束。这一

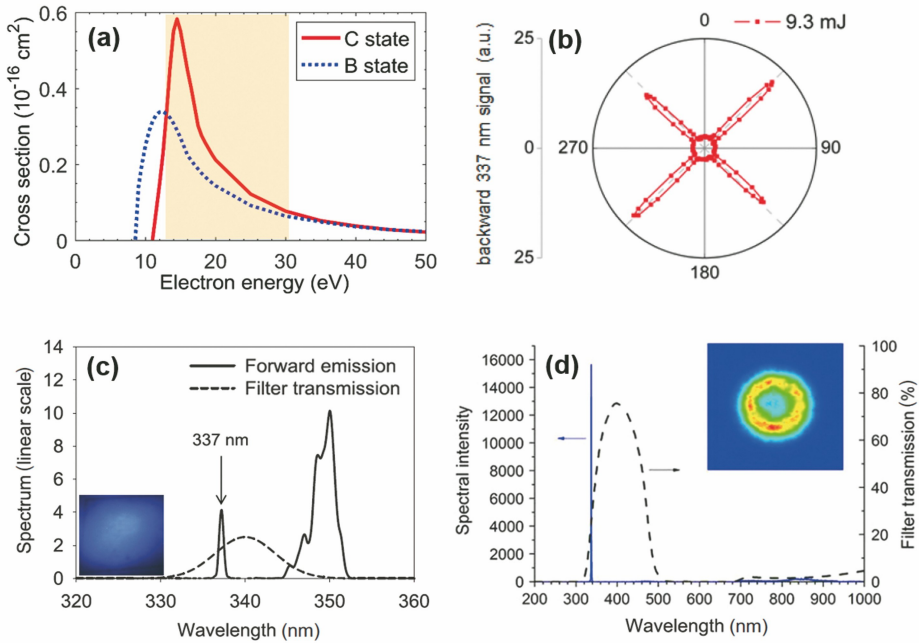


图 3 电子碰撞激发产生的氮分子激光。(a)氮分子 B 态和 C 态的电子碰撞激发截面,阴影区表示可以产生粒子数反转的电子能量区域<sup>[64]</sup>; (b) 9.3 mJ、800 nm 飞秒激光脉冲驱动产生的背向 337 nm 辐射的强度随四分之一波片角度的变化,0°、90°、180°、270°对应线偏振光,45°、135°、225°、315°对应圆偏振光<sup>[30]</sup>; (c) 10 J、10 ps、1053 nm 激光脉冲驱动产生的前向 337 nm 辐射,插图为泵浦光三次谐波的远场光斑<sup>[31]</sup>; (d) 8 mJ、3.9 μm 飞秒激光脉冲驱动产生的前向 337 nm 辐射,插图为 337 nm 辐射的远场光斑<sup>[60]</sup>

Fig. 3 N<sub>2</sub> lasing produced by electron impact excitation. (a) Electron impact excitation cross sections for B state and C state of N<sub>2</sub> molecules, electrons residing in the shaded region are capable of producing population inversion<sup>[64]</sup>; (b) backward emission at 337 nm induced by the 9.3 mJ and 800 nm femtosecond laser pulses as a function of the angle of the quarter wave plate, angles 0°, 90°, 180°, 270° correspond to the linearly polarized light, whereas angles 45°, 135°, 225°, 315° correspond to the circularly polarized light<sup>[30]</sup>; (c) spectrum of forward 337 nm emission induced by 10 J, 10 ps and 1053 nm laser pulses, and the inset shows the far-field profile of the third harmonic of the pump beam<sup>[31]</sup>; (d) spectrum of forward 337 nm emission induced by 8 mJ and 3.9 μm laser pulses, and the inset shows a far-field beam profile of 337 nm emission<sup>[60]</sup>

重要发现为氮分子激光研究注入了新活力。随后,人们对该辐射的增益动力学、粒子数反转机制以及时间特性进行了系统的实验和理论研究<sup>[45,60,66-69]</sup>。Mitryukovskiy等<sup>[45]</sup>的研究表明,圆偏振泵浦激光可以将电离后的自由电子加速到足够高的能量,为产生氮分子激光提供所需的粒子数反转条件;相反,线偏振、中心波长为800 nm的飞秒激光无法有效加热电子。第二种是采用高能量长脉冲有效加热电子。2011年,Sprangle等<sup>[61]</sup>在理论上提出了在飞秒激光脉冲之后额外增加一束能量高、脉宽长的加热脉冲来产生氮分子激光的方案。2013年,Kartashov等<sup>[31]</sup>在实验上利用能量为10 J、波长为1053 nm的皮秒激光器加热电子,在远程大气环境中产生了最高能量为2.5  $\mu\text{J}$ 、中心波长为337 nm的氮分子激光,其光谱分布如图3(c)所示。他们通过研究氮分子激光输出强度与泵浦激光脉宽的关系后指出,泵浦激光的脉宽是形成粒子数反转、产生氮分子激光的关键因素。第三种方法是利用3.9  $\mu\text{m}$ 的长波长飞秒激光脉冲加热电子产生氮分子激光<sup>[60]</sup>,测得的光谱和光斑分布如图3(d)所示。

由此可见,通过调控泵浦激光的偏振、脉宽和波长,能够将电子加速到实现氮分子粒子数反转所需的能量,从而打开了远程氮分子激光的可能性。但是,由于超快激光在大气中传输时具有光强钳制效应,电子浓度通常较低,直接影响了碰撞激发的效率。更为重要的是,电子在超快激光场中获得的能量难以长时间维持,致使粒子数反转寿命只有几十皮秒<sup>[66-67]</sup>。这样,沿着泵浦激光相反方向传输的背向辐射不能被有效地放大。因此,与激发态氩原子碰撞激发相比,电子碰撞激发产生的背向氮分子激光信号要弱很多。此外,与传统氮分子激光器类似,氧分子对于氮分子激光具有很强的淬灭作用<sup>[30,66-67]</sup>。就遥感应用而言,延长增益寿命、抑制氧气的不良影响,是目前氮分子激光研究的重点。

### 2.3 离子类空气激光

空气分子不仅可以解离产生原子激光,而且经过多光子或隧穿电离之后能够产生离子,为激光辐射提供新的增益介质。离子类空气激光的研究以氮分子离子为主,其产生过程涉及的物理效应更为丰富,产生机制备受争议,是人们研究得最多的一类空气激光<sup>[23,32,41-43,46-57,70-111]</sup>。

2011年,Yao等<sup>[23]</sup>利用中红外可调谐飞秒激光激发空气分子,发现了氮分子离子激光现象。当1.9  $\mu\text{m}$ 、0.5 mJ的飞秒激光脉冲聚焦到空气中时,

五倍频光谱上出现一个波长约为391 nm的细锐尖峰。该波长对应氮分子离子 $B^2\Sigma_u^+$  ( $v'=0$ )态到 $X^2\Sigma_g^+$  ( $v=0$ )态的跃迁。同时,该信号具有不同于荧光的特性。例如,该信号只沿前向传输,其强度比侧向或背向荧光强2~3个数量级,辐射立体角比荧光小4个数量级,并具有线偏振特性。随着作用长度的增加,其辐射强度指数增大,增益系数约为 $5\text{ cm}^{-1}$ 。基于这些特征,该相干辐射被称为 $N_2^+$ 激光。更加有趣的是,通过调节泵浦激光的波长,可以激发 $N_2^+$ 的 $B^2\Sigma_u^+$ 态和 $X^2\Sigma_g^+$ 态之间不同振动态的跃迁产生相干辐射,进而产生不同波长的 $N_2^+$ 激光输出,结果如图4所示。通过调节泵浦激光的波长可以灵活地选择空气激光的辐射波长,这对于多种目标分子的远程探测具有重要意义。

2013年,Yao等<sup>[32]</sup>利用钛宝石激光器开展了 $N_2^+$ 激光研究,并提出了以中心波长800 nm的飞秒激光为泵浦光,其倍频光为探测光产生 $N_2^+$ 激光的新方案。该方案如图5(a)所示。当中心波长为400 nm左右的探测光注入到800 nm泵浦激光电离产生的 $N_2^+$ 时,该探测光在391 nm和428 nm两个波长处得到显著放大,如图5(b)、(c)所示。通过测量放大的信号随泵浦-探测延时的演化发现,该放大效应可以持续数皮秒,远远超出了泵浦光与探测光时间重叠的窗口,由此表明 $N_2^+$ 体系存在光学增益。此外,借助互相关测量,Yao等也获得了 $N_2^+$ 激光的时间结构信息。该泵浦-探测方案为探索 $N_2^+$ 激光机理<sup>[47,51,70-78]</sup>、开拓 $N_2^+$ 激光在分子超快动力学探测中的应用<sup>[46,79-80]</sup>奠定了重要基础。此外,钛宝石飞秒激光放大技术已经成熟,TW级峰值功率的车载激光器已经商品化。因此,基于钛宝石激光器的泵浦方案打开了 $N_2^+$ 激光研究的新局面。例如,该泵浦-探测方案提出后不久,三个研究团队几乎同时独立研究了一束800 nm激光脉冲产生 $N_2^+$ 激光的可能性<sup>[81-83]</sup>。最近,人们还利用偏振调控光场<sup>[84-85]</sup>、周期量级激光场<sup>[50,86]</sup>、双色圆偏振激光场<sup>[87]</sup>,以及近红外与太赫兹组合光场<sup>[88]</sup>开展了 $N_2^+$ 激光的研究,所有这些研究都是基于钛宝石激光器开展的。基于钛宝石激光器发展的各类光场调控技术,在提高 $N_2^+$ 激光强度、揭示 $N_2^+$ 激光的物理机制中发挥了重要作用。

不同于其他两类空气激光, $N_2^+$ 激光涉及的物理过程更为丰富,增益机制颇受争议,因此激起了强场科学领域研究者极大的兴趣。关于 $N_2^+$ 激光所蕴含的新物理效应将在下一章节单独阐述。就应用而

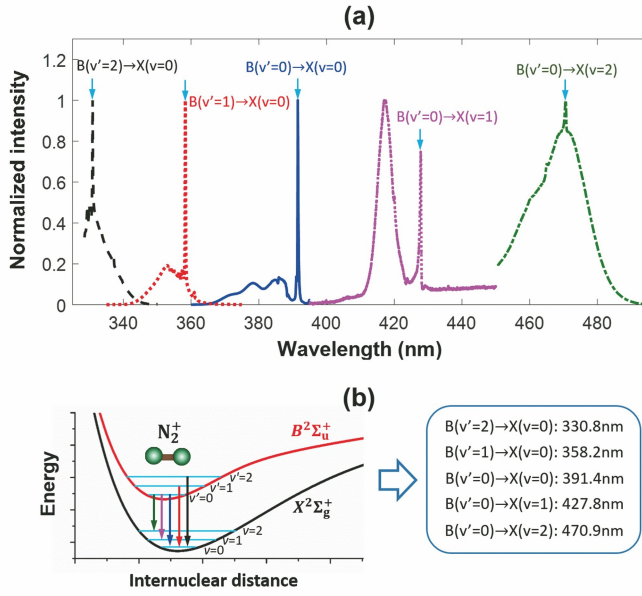


图 4 中红外飞秒激光脉冲驱动产生的  $N_2^+$  激光。(a)中红外飞秒激光脉冲激发空气分子产生的不同波长的  $N_2^+$  激光,从左到右泵浦激光波长依次为 1682,1760,1920,2050,1415 nm<sup>[23]</sup>; (b)氮分子离子从  $B^2\Sigma_u^+$  态到  $X^2\Sigma_g^+$  态跃迁的能级图 和不同振动能级对应的辐射波长<sup>[43]</sup>

Fig. 4  $N_2^+$  lasing driven by mid-infrared femtosecond laser pulses. (a) Multi-wavelength  $N_2^+$  lasing signals produced by mid-infrared femtosecond laser pulses in air, and the lasing radiation shown from left to right is generated by the pump laser with the central wavelength of 1682, 1760, 1920, 2050 and 1415 nm, respectively<sup>[23]</sup>; (b) energy-level diagram of the electronic transitions from  $B^2\Sigma_u^+$  state to  $X^2\Sigma_g^+$  state of molecular nitrogen ions and the corresponding radiation wavelengths<sup>[43]</sup>

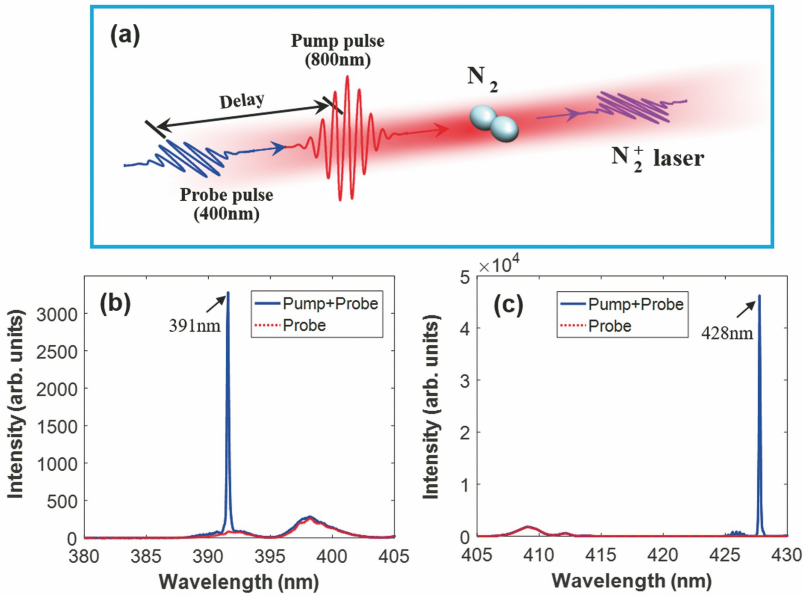


图 5 800 nm(泵浦)和 400 nm(探测)飞秒激光脉冲诱导的  $N_2^+$  激光。(a)  $N_2^+$  激光的泵浦-探测方案示意图<sup>[43]</sup>; (b)探测光在  $N_2^+$  中放大产生的 391 nm 激光谱<sup>[32]</sup>; (c)探测光在  $N_2^+$  中放大产生的 428 nm 激光谱<sup>[32]</sup>

Fig. 5  $N_2^+$  lasing induced by 800 nm (pump) and 400 nm (probe) femtosecond laser pulses. (a) Schematic for generating  $N_2^+$  lasing with the pump-probe configuration<sup>[43]</sup>; (b) spectrum of  $N_2^+$  lasing at the wavelength of 391 nm produced by amplification of the probe laser in molecular nitrogen ions<sup>[32]</sup>; (c) spectrum of  $N_2^+$  lasing at the wavelength of 428 nm produced by amplification of the probe laser in molecular nitrogen ions<sup>[32]</sup>

言,  $N_2^+$  激光的增益寿命较短, 增益系数不高, 通常依靠前向传输的自种子或者外加种子进行有效放大, 这些因素限制了背向  $N_2^+$  激光的产生及其遥感应用。但是,  $N_2^+$  激光在分子探测方面仍然具有独特的优势(将在第 4 部分介绍)。除此之外, 提升信号强度和传输距离也是  $N_2^+$  激光研究的重要内容。例如, 2012 年, Kartashov 等<sup>[89]</sup> 利用空间光调制器对 1030 nm 泵浦激光的波形进行调控, 优化了  $N_2^+$  激光的强度。2014 年, Point 等<sup>[90]</sup> 采用 TW 级 800 nm 飞秒激光脉冲获得了单脉冲能量高达 2.6  $\mu$ J 的  $N_2^+$  激光, 这是目前报道的最高能量的  $N_2^+$  激光。2019 年初, Li 等<sup>[84]</sup> 利用偏振控制技术显著提升了  $N_2^+$  激光的强度, 并通过数值模拟得到了对泵浦激光偏振态进行调控可以有效增加粒子数反转浓度的结论。之后不久, Xie 等<sup>[85]</sup> 提出了另一种增强  $N_2^+$  激光辐射的偏振调控技术。最近, Chen 等<sup>[53]</sup> 利用近红外和中红外双波长泵浦方案, 将  $N_2^+$  激光信号提高了 3 个数量级, 并揭示了电子态的量子相干性对增强  $N_2^+$  激光的关键贡献。此外, Jing 等<sup>[91]</sup> 发现利用望远镜系统聚焦代替传统单透镜聚焦, 可以有效拓展空气激光的产生距离。除了上述研究外, 研究人员还探索了氮分子离子在  $B^2\Sigma_u^+$  与  $X^2\Sigma_g^+$  之间的一些高振动能级跃迁产生的相干辐射<sup>[92-93]</sup> 以及  $CO_2^+$  的激光行为<sup>[34]</sup>。

### 3 $N_2^+$ 激光的强场新效应

与原子类和分子类空气激光相比, 离子类空气激光的产生同时包含中性分子和分子离子两个体系与强激光场的作用, 涉及强场电离、内层分子轨道激发、多电子态耦合、核波包的振动和转动等过程, 因此它的物理效应更为丰富, 增益机制更为复杂。本章将从  $N_2^+$  激光的增益机制以及  $N_2^+$  激光产生过程中的量子相干行为两个方面揭示其背后蕴含的强场新效应。

#### 3.1 $N_2^+$ 激光的增益机制

自  $N_2^+$  激光被报道以来, 其增益机制由于在现有的强场电离理论框架下难以理解而备受争议。根据经典图像, 要产生  $N_2^+$  激光, 必须在  $N_2^+$  的激发态  $B^2\Sigma_u^+$  (以下简称“B 态”)与基态  $X^2\Sigma_g^+$  (以下简称“X 态”)之间形成布居反转。然而, B 态和 X 态的离子分别来自氮分子 HOMO-2 轨道和 HOMO 轨道的电离, 由于内层轨道 HOMO-2 具有更高的电离能, 所以两能态之间的粒子数反转是隧穿电离理论所不能解释的<sup>[112]</sup>。因此, 如何突破强场电离理论框架

在  $N_2^+$  中产生光学增益成为空气激光研究的重要科学问题, 引起了强场科学领域研究者的兴趣。各种机制相继被提出, 主要包括电子再碰撞激发<sup>[47-48]</sup>、多电子态耦合<sup>[50-52]</sup>、共振四波混频<sup>[94]</sup>、分子转动引起的光学增益<sup>[95-96]</sup>等。在这些可能的机制中, 电子再碰撞激发和多态耦合这两种机制研究得比较多, 本节将重点讨论, 而分子转动引起的光学增益将在 3.2 节简述。

电子再碰撞激发机制是 Liu 等<sup>[47]</sup> 首次提出的。其基本思想是: 在线偏振强激光场作用下, 隧穿电离的电子波包被激光场加速后能够再返回到母离子, 并与母离子碰撞, 将  $N_2^+$  从 X 态激发到 B 态。在实验中, 他们对比了  $N_2^+$  激光辐射与高次谐波辐射对泵浦激光椭圆偏振度的依赖, 结果表明两者都是在线偏振附近达到最强圆偏振时消失。基于这一事实, 他们认为强场下电子再碰撞激发对  $N_2^+$  激光增益具有重要贡献。2017 年, Liu 等<sup>[48]</sup> 发现  $N_2^+$  激光辐射对泵浦激光波长和脉宽极为敏感, 并利用电子再碰撞机制解释了这一现象。2018 年, Britton 等<sup>[49]</sup> 再次分析了电子再碰撞效应的贡献。他们发现, 在高能量泵浦条件下, 圆偏振光场也能够产生  $N_2^+$  激光, 却不能将电子拉回到原子核, 由此推断电子再碰撞激发不是主要的增益机制。2019 年, Li 等<sup>[87]</sup> 利用双色圆偏振飞秒激光对  $N_2^+$  激光展开了研究, 发现  $N_2^+$  激光强度与双色场的相对旋向几乎无关。该结果清晰地表明电子再碰撞效应对  $N_2^+$  激光产生的贡献较小。

多态耦合是理解  $N_2^+$  激光增益的另一个重要机制, 由 Xu 等<sup>[50]</sup> 和 Yao 等<sup>[51]</sup> 独立提出。Xu 等<sup>[50]</sup> 研究了周期量级超短激光脉冲诱导的  $N_2^+$  激光行为, 并借助含时薛定谔方程揭示了  $N_2^+$  的不同电子态之间的耦合对超快粒子数反转的关键贡献。Yao 等<sup>[51]</sup> 通过考虑  $N_2^+$  的三态耦合, 揭示了中间电子态对粒子数反转的重要作用, 并强调了泵浦波长和分子核运动的贡献。Yao 等的实验结果表明: 当在三个不同波长的泵浦激光场中注入相同的外加种子光时, 只有在 800 nm 激光场中, 外加种子能够实现皮秒尺度的放大, 而在另外两个中红外激光场中, 外加种子被吸收。这一实验结果揭示了光学增益对泵浦激光波长的敏感性。Yao 等在理论上研究了泵浦激光对  $N_2^+$  布居的影响。通过对比研究可以清晰地发现中间态  $A^2\Pi_u$  (以下简称“A 态”)对 B 态和 X 态之间的粒子数反转起到关键作用, 如图 6 所示。模拟结果重现了粒子数反转与



泵浦波长的关系。其背后的物理根源是,800 nm 激光场恰好能够使 X 态和 A 态之间满足单光子共振条件,因此这两个态之间就可以通过拉比振荡进行有效的粒子数传递。核密度的计算表明,分子核波包的运动打破了传统拉比振荡对泵浦激光脉冲面积的强烈依赖,降低了粒子数反转对激光参数的敏感性。基于这些事实得到的粒子数反转形成过程的宏观物理图像如图 7 所示。首先,在

泵浦激光的上升沿,光强较弱,大部分分子处于中性态。在激光场峰值附近,光电离发生,产生  $N_2^+$ , 并且大部分  $N_2^+$  位于 X 态。随后,在激光场尾沿的作用下,X 态的粒子数被有效抽运到 A 态,从而导致 B 态和 X 态之间形成布居反转。同时,分子核波包的超快运动破坏了 X 态和 A 态之间粒子数传递的对称性,大大降低了粒子数反转对激光参数的敏感性。

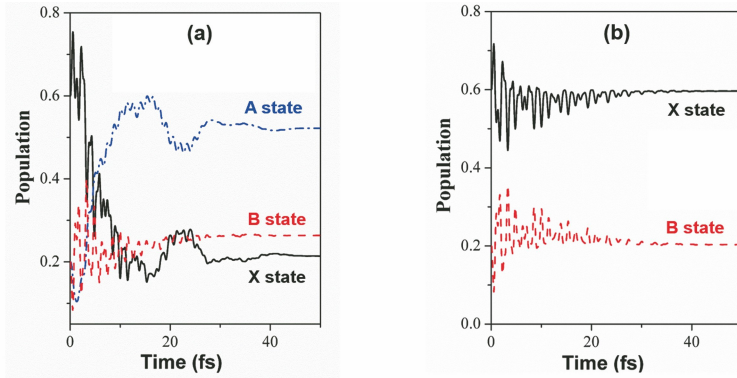


图 6 在 800 nm 激光场作用下,  $N_2^+$  三个电子态(X 态、A 态、B 态)的布居随时间的演化<sup>[51]</sup>。

(a)考虑 X-A 耦合得到的结果;(b)不考虑 X-A 耦合得到的结果

Fig. 6 Dynamic evolution of the populations in three electronic states of  $N_2^+$  (i. e., X, A and B) driven by the 800 nm laser pulses<sup>[51]</sup>. (a) With X-A coupling; (b) without X-A coupling

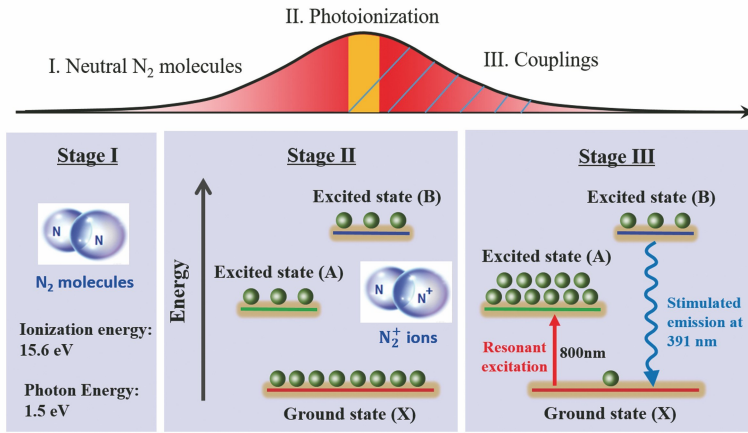


图 7 800 nm 飞秒激光脉冲在氮分子离子中建立粒子数反转的示意图<sup>[43]</sup>

Fig. 7 Schematic for establishing population inversion in molecular nitrogen ions with 800 nm femtosecond laser pulses<sup>[43]</sup>

三态耦合模型通过考虑中间态以及激光场与电子态的共振相互作用,解决了  $N_2^+$  激发态与基态之间粒子数反转与强场隧穿电离理论的矛盾,为  $N_2^+$  激光增益提供了较为合理的解释。这一机制在氮气分子预取向增强  $N_2^+$  激光<sup>[97]</sup>、偏振调控光场增强  $N_2^+$  激光<sup>[84-85]</sup>、 $N_2^+$  激光的椭圆偏振依赖<sup>[98-99]</sup>,以及双波长共振激发产生  $N_2^+$  激光<sup>[53]</sup>等研究中均得到了证实。然而, $N_2^+$  激光的产生是强激光场与中性氮分子和分子离子两个体系中多个电子态、振动态

以及数十个转动态共同作用的结果,这对理论模拟提出了极大挑战。值得指出的是,三态耦合模型的理论计算<sup>[51]</sup>将电离和耦合分开处理,假定光电离发生在激光脉冲峰值附近,激光场与分子离子的作用发生在脉冲的后沿,如图 7 所示。这些近似可能会影响  $N_2^+$  在三个电子态布居的定量结果。此外,模拟中只考虑了分子核波包的振动,而未考虑转动波包的影响。但是,实验结果表明转动波包的激发以及转动能级间的耦合也会影响  $N_2^+$  激光辐

射<sup>[46,73,79-80]</sup>。因此,为了更好地揭示  $N_2^+$  激光的增益机制,需要发展更为完备的理论模型。

最近,Zhang 等<sup>[52]</sup>建立了中性分子及其单电离产生的分子离子在激光场中同时进行动力学演化的物理模型,即瞬时电离耦合模型。该模型同时包含整个激光脉冲内的电离与耦合过程,弥补了之前三态耦合模型的不足,并揭示了阿秒电离门对  $N_2^+$  粒子数分布的重要贡献。如图 8(a)所示,在飞秒激光脉冲内的任意时刻,氮分子可能被电离至三个不同的  $N_2^+$  态,且  $N_2^+$  系统内的耦合过程伴随着电离过程的发生而开始。如图 8(b)所示,如果只考虑电离过程,三个电子

态的相对布居完全遵循强场电离理论;但如果同时考虑电离和耦合过程,情况将截然不同,X 态布居反而最少,B 态和 X 态之间会产生布居反转。尤为重要的是,在没有 A 态参与且 X 态到 B 态的跃迁远离共振条件时,B 态和 X 态之间也具有很强的粒子数传递,如图 8(c)所示。理论分析表明,这主要是  $N_2^+$  产率在阿秒时间尺度内瞬时增加的结果。由此可见,阿秒电离门打破了拉比振荡的一般规律,导致非共振条件下 X 态与 B 态粒子数发生了实质交换。随着理论模型的日趋完善, $N_2^+$  激光的增益机制将会日渐明晰,更多新的强场效应将被揭示。

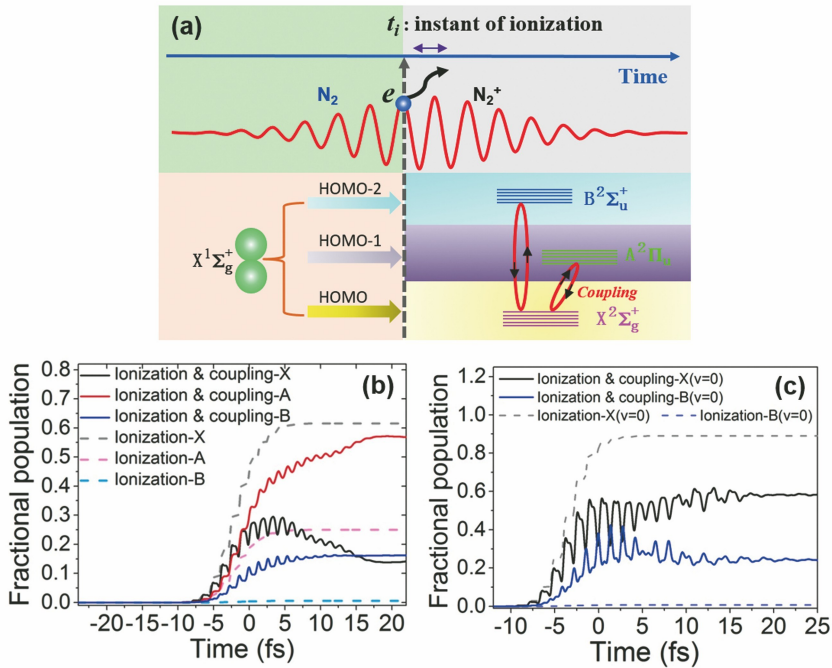


图 8 基于瞬时电离耦合模型计算的  $N_2^+$  布居演化<sup>[52]</sup>。(a)强激光场中氮分子和氮分子离子的超快动力学过程;(b)只考虑电离与同时考虑电离和耦合两种情况下, $N_2^+$  三个电子态(X 态、A 态、B 态)的布居随时间的演化;(c)不考虑 X-A 耦合得到的 X 态和 B 态布居随时间的演化

Fig. 8 Dynamic evolution of electronic state population of  $N_2^+$  ions calculated with the transient ionization-coupling model<sup>[52]</sup>. (a) Schematic for studying ultrafast dynamics of nitrogen molecules and nitrogen molecular ions in an intense laser field; (b) dynamic evolution of populations in three electronic states of  $N_2^+$  (i. e., X, A and B) for the case considering only ionization (dashed lines) and considering both ionization and coupling (solid curves); (c) dynamic evolution of populations in X and B states for the case without X-A coupling

### 3.2 $N_2^+$ 激光产生过程中的量子相干行为

氮分子的瞬时电离以及泵浦激光与氮分子离子的共振相互作用,不仅导致粒子数在各电子态重新布居,而且建立了电子态、振动态和转动态的相干性。这些量子相干性的建立增加了  $N_2^+$  激光的增益,放松了对布居反转的要求,并极大地提升了  $N_2^+$  的非线性光学响应。研究  $N_2^+$  激光产生过程中的量子相干现象,不仅可为理解空气激光现象提供新的

视角,而且将传统量子光学研究推进到了强场超快的新条件、分子离子的新体系以及远距离的新场景。在这些全新的条件下,将会产生量子光学新效应,并激发一些重要应用。本节将对  $N_2^+$  激光产生过程中的量子相干行为进行详细阐述。

对  $N_2^+$  激光产生过程中量子相干行为的关注最早始于  $N_2^+$  激光辐射的反常时域特性。2013 年,Yao 等<sup>[32]</sup>的实验结果表明:在 800 nm 飞秒激光产生的

$N_2^+$  中,外加种子能够被有效放大产生  $N_2^+$  激光,但是  $N_2^+$  激光辐射却明显滞后于种子脉冲。之后, Liu 等<sup>[47]</sup>和 Li 等<sup>[71]</sup>对  $N_2^+$  激光的时域特性开展了深入研究,通过分析  $N_2^+$  激光强度与传输距离、气压的定量关系,揭示了它的超辐射特征。 $N_2^+$  激光的超辐射特性正是电子态相干性的一个重要体现。最近,电子态相干性对  $N_2^+$  激光产生的贡献引起了越来越多的关注<sup>[53-55,86,100]</sup>。Chen 等<sup>[53]</sup>利用近红外(800 nm)和中红外(1580 nm)双波长组合泵浦技术,将  $N_2^+$  激光的强度提高了 2~3 个数量级,并且当两束泵浦激光分开几皮秒之后,增强效果依然非常显著,如图 9(a)

所示。相反,当两束泵浦激光在时间上错开后,背向荧光没有任何增强,这表明  $N_2^+$  激光的增强并不是源于上能态布居的增加。为了解释这一现象,Chen 等<sup>[53]</sup>构建了三能级量子体系的理论模型,如图 9(b)所示,通过求解 Bloch 方程发现两个泵浦激光的作用有效增加了 X-A、A-B 以及 B-X 的相干性,如图 9(c)所示。因为  $N_2^+$  激光的强度正比于 B-X 相干性时间积分的平方,所以电子相干性的增加是引起  $N_2^+$  激光增强的主要机制。该工作直接揭示了电子态之间的相干性对于  $N_2^+$  激光增益的重要贡献,为提升空气激光强度提供了有效方法。

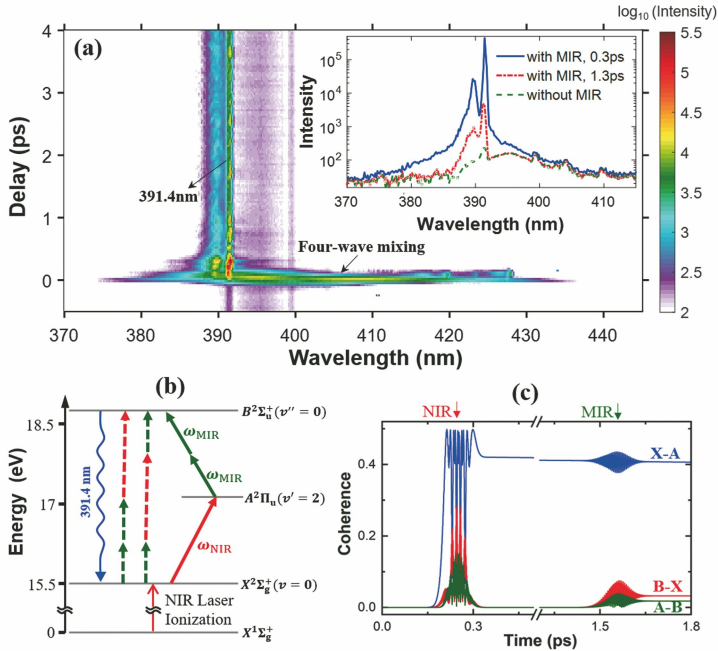


图 9 近红外(800 nm)和中红外(1580 nm)激光共同泵浦产生的  $N_2^+$  激光<sup>[53]</sup>。(a)近红外和中红外激光共同泵浦产生的  $N_2^+$  激光光谱随两束光延时的演化,正延时表示近红外光超前于中红外光,插图为在 0.3 ps 和 1.3 ps 延时处采集的光谱与近红外光单独泵浦产生的光谱的对比;(b)双波长泵浦激光共振激发产生的 391.4 nm 激光辐射的能级图;(c)近红外和中红外光场诱导的电子态相干性随时间的演化,箭头表示两束泵浦光的注入时刻

Fig. 9  $N_2^+$  lasing produced by near-infrared (800 nm) and mid-infrared (1580 nm) pump lasers<sup>[53]</sup>. (a)  $N_2^+$  lasing spectra produced by near-infrared (NIR) and mid-infrared (MIR) pump lasers as a function of the time delay between two pump lasers, the positive delay indicates that the NIR pump laser is ahead of the MIR pump laser, and the inset shows the comparison of spectra captured at time delays of 0.3 and 1.3 ps with that generated with the single NIR laser; (b) energy-level diagram of the resonant excitation with two pump lasers for generating 391.4 nm lasing radiation; (c) the dynamic evolution of coherence between each pair of electronic states caused by the NIR and MIR pump lasers and the injection moments of two pump lasers are denoted by arrows

在基于钛宝石激光器的泵浦-探测机制中, 800 nm 飞秒泵浦光构建了  $N_2^+$  的 X 态与 A 态之间的相干性,400 nm 飞秒探测光诱导了  $N_2^+$  的 X 态与 B 态之间的相干性,因此构成了如图 10(a)所示的 V 型三能级量子体系。Zhang 等<sup>[54]</sup>在 800 nm 泵浦激光之后注入一对 400 nm 的种子光,结果发现,  $N_2^+$

激光强度随两束种子光延时的变化出现周期性调制,如图 10(b)所示,从而实现对 X-B 相干性的量子调控。通过研究调制度随泵浦探测延时以及两束种子光强比的变化,他们获得了  $N_2^+$  激光宏观偶极相干性的建立和演化过程。Mysyrowicz 等<sup>[55]</sup>通过对两个 800 nm 泵浦激光的延时进行高精度控制,

实现了对 X-A 相干性的量子调控,结果如图 10(c) 所示。他们结合理论模拟揭示了电子态的相干性对  $N_2^+$  激光的重要贡献,并认为  $N_2^+$  激光是无粒子数反转的相干辐射。Ando 等<sup>[86]</sup>通过精密调控两束周期量级泵浦激光的延时来控制  $N_2^+$  激光辐射,实现了电子态、振动态和转动态的相干控制。Zhang

等<sup>[100]</sup>采用泵浦-种子-探测三光束实验装置,进一步研究了  $N_2^+$  激光三个电子态的布居和相干性的关系,观察到了三个电子态之间交叉调制引起的相干性破坏现象。由此可见,电子态相干性的存在在产生  $N_2^+$  激光增益、提高  $N_2^+$  激光强度、实现  $N_2^+$  激光精密控制等方面发挥了重要作用。

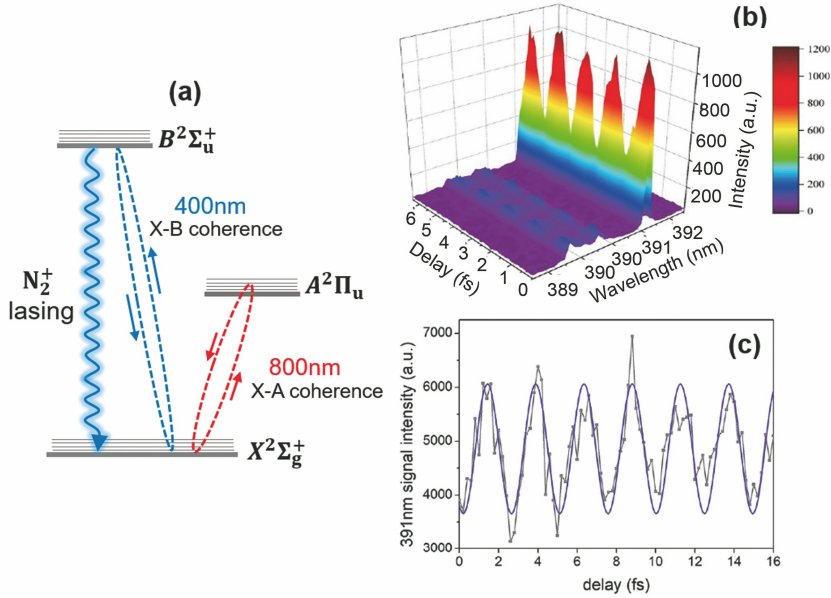


图 10  $N_2^+$  激光的相干控制。(a) 800 nm 和 400 nm 飞秒激光与  $N_2^+$  共振相互作用形成的 V 型三能级量子体系;(b) 在 800 nm 泵浦激光之后注入两束时间间隔约为 3 ps 的 400 nm 激光脉冲调控 X-B 的量子相干性时,产生的  $N_2^+$  激光光谱随两束 400 nm 激光脉冲精细延时的变化<sup>[54]</sup>;(c) 在 2 mJ、800 nm 激光脉冲之后 3 ps 附近注入另一束 0.1 mJ、800 nm 激光脉冲调控 X-A 的量子相干性时,产生的  $N_2^+$  激光强度随两束光精细延时的变化<sup>[55]</sup>

Fig. 10 Coherent control of  $N_2^+$  lasing. (a) Schematic of a V-type three-level quantum system created in  $N_2^+$  by the resonant excitation of the 800 nm and 400 nm femtosecond lasers; (b)  $N_2^+$  lasing spectra as a function of the fine delay between two 400 nm pulses when injecting two 400 nm laser pulses separated by around 3 ps after the 800 nm pump laser to control X-B coherence<sup>[54]</sup>; (c)  $N_2^+$  lasing signal as a function of the fine delay between two 800 nm pulses when injecting a 0.1 mJ, 800 nm laser pulse around 3 ps after a 2 mJ, 800 nm laser pulse to control X-A coherence<sup>[55]</sup>

此外,振动相干性在  $N_2^+$  激光产生过程中也扮演着不可忽视的角色。2018 年,Yao 等<sup>[56]</sup>的实验结果表明,中红外强激光场与稀薄的氮气分子相互作用不仅可以产生窄带的  $N_2^+$  相干辐射,而且在近紫外波段形成了近 80 nm 带宽的超连续谱,其与氙气的非线性光谱相比有着本质差异,结果如图 11(a)、(b)所示。系统的实验研究表明,这些超连续辐射是  $N_2^+$  体系中多个共振非线性过程共同作用的结果。正是由于振动相干性的存在,五次谐波才可以通过近共振振动拉曼散射产生  $N_2^+$  激光。同年,Miao 等<sup>[74]</sup>在 800 nm 激光场中注入 357 nm 的外加种子,观测到了 391 nm 的  $N_2^+$  激光辐射,这清晰地揭示了振动相干性对  $N_2^+$  激光的贡献。2019 年,Xu 等<sup>[101]</sup>利用波长可调谐的激光脉冲开展了  $N_2^+$  的拉

曼散射研究,结果表明,激光场与氮分子离子的共振作用可以极大地增强振动拉曼散射。利用这一效应,可以在 391 nm 种子光注入条件下产生 428 nm 的  $N_2^+$  激光。这些研究结果不仅表明氮分子在隧穿电离的同时激发了分子离子的振动相干性,而且揭示了这些振动相干性可以极大地增强离子的非线性光学效应,为产生  $N_2^+$  激光提供新途径。

除了电子态和振动态的相干性,转动相干性也是  $N_2^+$  激光研究的重要内容。2013 年,Zhang 等<sup>[46]</sup>在光谱上观测到了转动量子态可分辨的  $N_2^+$  激光辐射,并且  $N_2^+$  激光随泵浦-探测延时的变化出现了调制结构。这些结果表明  $N_2^+$  激光记录了分子的相干转动,从  $N_2^+$  激光辐射谱中可以获取分子转动态的相干分布信息。以转动态分辨的  $N_2^+$

激光为探针,还可以揭示不同转动能级之间的相干耦合和超快动力学<sup>[79-80]</sup>。2018年,Liu等<sup>[57]</sup>研究了中红外激光驱动产生的 $N_2^+$ 转动波包与一束弱探测光的相互作用。实验结果表明,当探测光谱覆盖氮分子离子B态到X态的转动跃迁时,在共振波长附近出现了精细吸收峰,吸收谱随泵浦-探测延时的变化出现了一些调制,如图11(c)所示。这些调制结构直接反映了分子转动态间的强耦合作用。同时,探测光与 $N_2^+$ 相干转动波包的近共振相互作用产生了强的拉曼散射,导致探测光谱在共振跃迁频率之外被显著增强并形成多平

台结构,如图11(d)所示。这一工作不仅为揭秘中红外飞秒激光驱动产生 $N_2^+$ 激光的物理机制提供了重要线索,而且揭示了转动相干性对增强非线性效应的贡献。基于转动相干性,Kartashov等<sup>[95]</sup>提出了无反转放大的猜想,其基本思想为: $N_2^+$ 的B态和X态具有不同的转动周期且B态到X态的跃迁为平行跃迁,因此即使B态的总粒子数小于X态,在某些时刻平行于电场的B态粒子数仍可以高于X态而实现反转。随后,多个研究团队分别从不同角度研究了转动相干性对 $N_2^+$ 激光增益的贡献<sup>[73,76-77,96,102]</sup>。

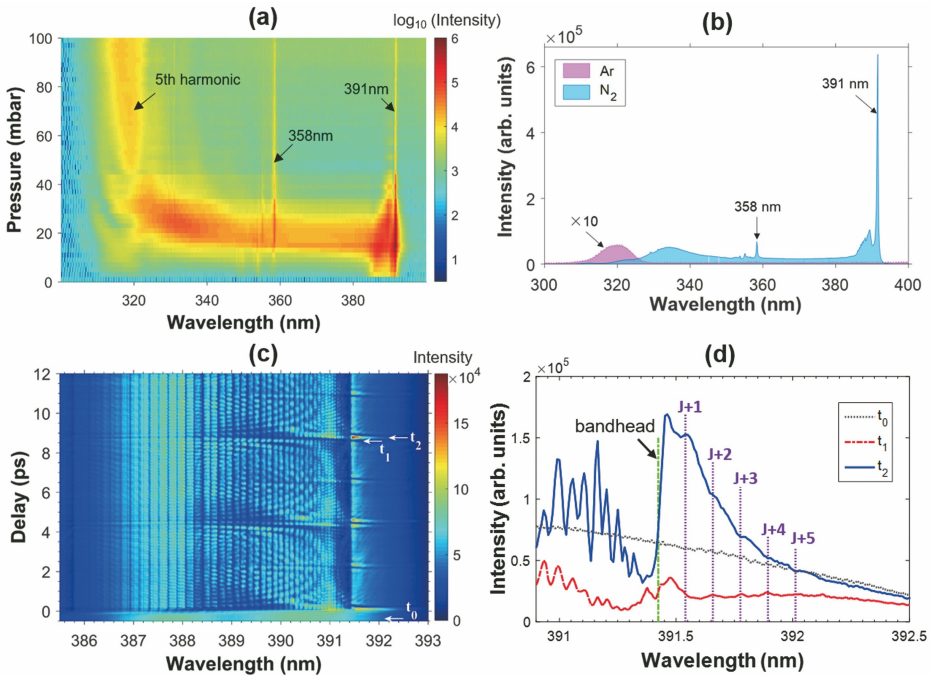


图 11 氮分子离子中的共振非线性光学效应。(a) 1580 nm 泵浦激光在氮气中产生的紫外辐射谱随气压的变化<sup>[56]</sup>; (b) 在相同的条件下, 2 kPa 氮气和 2 kPa 氩气产生的紫外辐射谱的对比<sup>[56]</sup>; (c) 在 1580 nm 泵浦激光激发的  $N_2^+$  中注入一束紫外探测光后, 测得的探测光谱随泵浦-探测延时的变化<sup>[57]</sup>; (d) 在  $t_0$ 、 $t_1$ 、 $t_2$  三个延时点采集的探测光谱的对比<sup>[57]</sup>

Fig. 11 Resonant nonlinear optical effects in nitrogen molecular ions. (a) Ultraviolet spectra in the nitrogen gas excited by the 1580 nm pump laser as a function of gas pressures<sup>[56]</sup>; (b) the comparison of ultraviolet spectra from the 2-kPa nitrogen gas and 20-kPa argon gas in the same conditions<sup>[56]</sup>; (c) measured probe spectra as a function of the pump-probe delay when injecting an ultraviolet probe laser into  $N_2^+$  ions produced with the 1580 nm pump laser<sup>[57]</sup>; (d) the comparison of the probe spectra measured at the time delay of  $t_0$ ,  $t_1$  and  $t_2$ <sup>[57]</sup>

#### 4 空气激光在远程探测中的应用

空气激光具有高准直度、高相干性、高强度以及自由空间传输等优点,因此在远程遥感领域具有广阔的应用前景。遥感技术通常采用线性光学的方法进行测量,地面观测站接收的是待测物的背向散射等非相干信号<sup>[113]</sup>。由于散射信号没有特定的方向性,因此随着传输距离增加,收集到的信号表现为平

方衰减规律,严重影响了远程探测的信噪比和灵敏度。利用空气激光指向性好、强度高等优点,有望将远程遥感的灵敏度提高若干个数量级。因此,自空气激光现象报道之后,人们便对其在远程探测中的应用进行了探索<sup>[37-42]</sup>。

2011年,Hemmer等<sup>[37]</sup>指出:将背向空气激光与双光子吸收或受激拉曼散射技术结合,可以进行远程分子探测。2012年,Malevich等<sup>[38]</sup>利用背向

传输的激光脉冲模拟背向空气激光,对背向受激拉曼散射方案进行了原理性验证,证实了背向空气激光用于远程探测的可能性。2015年, Malevich 等<sup>[39]</sup>利用氮气和氩气的混合气体产生的背向氮分子激光演示了背向空气激光在气体分子检测方面的应用,他们利用背向氮分子激光和另一束可调谐激光的受激拉曼效应,成功地对 CH<sub>4</sub> 气体进行了检测。然而,这一技术的探测灵敏度较低,目前只能探测纯净的、气压较高的分子气体。另外,该方案使用的背向氮分子激光是在氮气和氩气的混合气体中产生的,而混合气体必须用空气代替才能真正用于远程探测。

基于空气激光的转动拉曼散射研究也取得了一些进展。2014年, Ni 等<sup>[41]</sup>利用高能量的800 nm飞秒激光脉冲驱动产生了 N<sub>2</sub><sup>+</sup> 激光,在 N<sub>2</sub><sup>+</sup> 激光光谱中观测到了氮分子的转动拉曼信号。由于拉曼散射过程发生在飞秒激光脉冲对目标气体的转动态进行预激发之后,且 N<sub>2</sub><sup>+</sup> 激光与飞秒激发脉冲在空间上自然重合,因此拉曼散射转换效率高达 0.8%。这一

简单有效的方法推动了空气激光在大气遥感中的应用。最近, Liu 等<sup>[42]</sup>利用 N<sub>2</sub><sup>+</sup> 激光产生了高阶级联拉曼散射,基本实验光路如图 12(a)所示,分为 N<sub>2</sub><sup>+</sup> 激光产生和相干拉曼散射两部分,两个过程均由一束飞秒激光脉冲完成。在 800 nm 泵浦光束中放置一块倍频晶体便可以产生 428 nm 的 N<sub>2</sub><sup>+</sup> 激光信号。N<sub>2</sub><sup>+</sup> 激光具有非常窄的光谱结构和较好的光斑模式,如图 12(b)插图所示。随后, N<sub>2</sub><sup>+</sup> 激光和剩余的泵浦光一起聚焦到拉曼散射气体中。在这一阶段,飞秒泵浦光用于激发分子的相干转动,而窄带 N<sub>2</sub><sup>+</sup> 激光与分子转动波包作用,产生高阶拉曼散射。在二氧化碳和氧气中产生的拉曼光谱如图 12(b)所示,在这两种气体中产生的拉曼频移均大于 2000 cm<sup>-1</sup>,对应数十个拉曼级次和数百个拉曼边带。基于 N<sub>2</sub><sup>+</sup> 激光的高阶拉曼散射,充分发挥了空气激光线宽窄(约 2 cm<sup>-1</sup>)、脉宽合适、相干度高等独特优势,开启了空气激光在非线性和光谱领域的重要应用。由于拉曼光谱具有指纹特征,因此这些研究为远程分子检测提供了可行的技术方案。

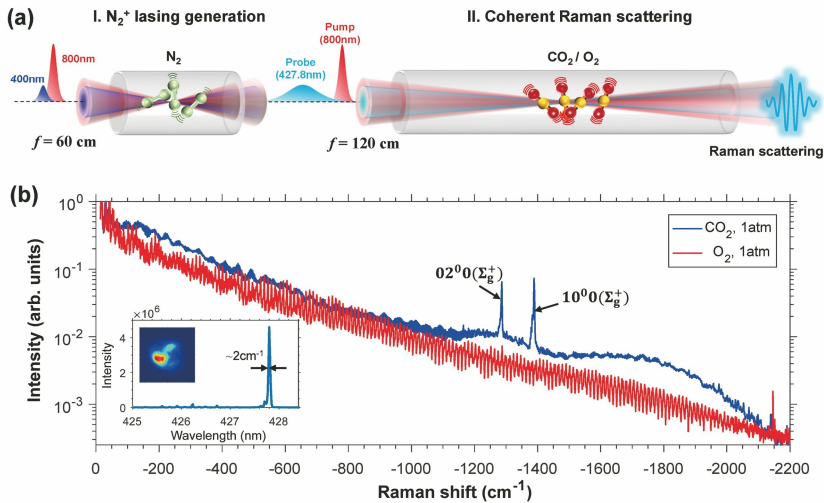


图 12 利用 N<sub>2</sub><sup>+</sup> 激光产生的高阶拉曼散射<sup>[42]</sup>。(a)利用 N<sub>2</sub><sup>+</sup> 激光产生高阶拉曼散射的实验装置简图;

(b) N<sub>2</sub><sup>+</sup> 激光在相干激发的二氧化碳和氧气分子中产生的高阶转动拉曼散射光谱,插图为 N<sub>2</sub><sup>+</sup> 激光的光谱和光斑

Fig. 12 High-order Raman scattering based on N<sub>2</sub><sup>+</sup> lasing<sup>[42]</sup>. (a) Schematic of the experimental setup for high-order Raman scattering produced with N<sub>2</sub><sup>+</sup> lasing; (b) spectra of high-order rotational Raman scattering produced by the interaction of N<sub>2</sub><sup>+</sup> lasing with coherently excited CO<sub>2</sub> and O<sub>2</sub> molecules, and the inset shows the spectrum and the spatial profile of N<sub>2</sub><sup>+</sup> lasing

利用超短激光脉冲作为泵浦源,人们还研究了有机分子燃烧过程中产生的激光行为,为高灵敏度远程燃烧诊断提供了有效途径<sup>[114-117]</sup>。此外,利用空气激光特有的光学特性,也有望拓展出其它方面的应用。例如,利用空气激光与太赫兹辐射的关系可能发展出新的太赫兹测量技术<sup>[88]</sup>。

## 5 结束语

纵观空气激光的发展历程不难发现,空气激光不仅对强场物理、非线性光学、量子光学等基础研究具有重要意义,而且在远程探测等技术领域具有显著优势。

从基础研究角度看,空气激光是强激光场与空气中多种物质形态相互作用的结果,物理内涵新颖而丰富。首先,空气激光来源于激发态原子、离子、分子的相干辐射,强调了激发态以及共振效应在强场物理中的贡献,为研究强场条件下激发态的行为以及强场共振相互作用提供了光学探针。其次, $N_2^+$ 激光的增益机制备受争议。对 $N_2^+$ 激光行为的理解需要同时考虑强场电离以及激光场与 $N_2^+$ 电子态、振动态和转动态之间复杂的相互作用。因此,对 $N_2^+$ 激光产生机制与物理本质的探索推动了强场相互作用理论的发展,揭示了强场相互作用的新机制。最后, $N_2^+$ 激光的产生构建了一个电子态、振动态以及转动态全相干的量子体系。这些量子相干性的建立极大地增强了分子离子的非线性效应,为理解 $N_2^+$ 激光的增益机制提供了新视角,并使得空气激光的相干控制成为可能。

从应用层面看,空气激光具有高准直度、高相干性和高强度等优点,在远程探测中具有显著优势。首先,空气激光具有良好的方向性,从而有效克服了传统光学遥感的平方衰减定律。同时,空气激光的强度比荧光信号强若干个数量级,并具有良好的相干性,可以激发污染物或爆炸物分子产生非线性指纹谱,实现多种污染物的同时测量。因此,空气激光与非线性指纹谱技术相结合能够发展出一种普适的、高灵敏度的新型遥感技术,用于环境科学以及军事国防领域。此外,空气激光一般以飞秒激光作为泵浦源。利用飞秒激光成丝效应,车载TW级泵浦激光脉冲可以实现长距离无衍射传输,为发展基于空气激光的远程探测新技术奠定了重要基础。同时,利用飞秒激光成丝独特的光强钳制效应,还可以有效避免激光抖动、大气中颗粒散射、气流不稳、复杂云雾环境等因素对信号采集的影响,提高远程探测的稳定性。

目前,各类空气激光已相继被发现, $N_2^+$ 激光蕴含的新物理效应已被逐渐揭示,背向激光用于远程探测的可能性也得以证实。然而,作为一个方兴未艾的研究方向,空气激光仍存在一些科学问题和技术挑战亟待解决。

在基础研究层面,下述问题值得进一步探讨。第一,虽然 $N_2^+$ 激光的宏观图像已经明晰,但粒子数反转问题仍然存在争议。激光脉冲的相干激发不仅可以产生粒子数传递,而且能够建立各能态间的相干性,粒子数反转和量子相干性对光学增益的贡献难以区分。第二,空气激光的产生包含电子、原子、

分子、离子等多种物质形态与强激光场的相互作用,建立包含这些物理过程的完备的理论模型,对于理论研究来说是一个极大的挑战。第三,强激光场共振激发分子将产生很多新奇的强场物理、非线性光学和量子光学效应,空气激光现象只是其中的一个例子,更为丰富有趣的效应有待进一步研究和探索。这些研究将拓宽强场物理的理论框架,弥补激发态非线性光学以及分子离子非线性光学研究的空白,将量子光学研究推进到强场超快的新条件、分子离子的新体系以及远距离的新场景。

在应用技术方面,空气激光的研究刚刚起步,仍存在一些关键问题需要攻克:第一,在真实大气环境中产生高亮度背向运转的空气激光是将其用于远程探测的关键,目前仍是一个重要的技术挑战。现有的背向空气激光只在原子或中性氮分子中产生。然而,原子类激光主要以紫外光为泵浦源,大气在紫外波段的强吸收以及紫外激光器较低的能量限制了其在遥感中的应用。由于电子碰撞激发难以维持长时间的增益,并且氧气具有很强的淬灭效应,背向氮分子激光难以在大气中运转。因此,提高增益寿命、抑制氧气的负面影响,是实现背向氮分子激光必须解决的问题。第二,将空气激光用于远程分子检测时必须将待测分子置于大气环境中,因此如何抑制大气的背景信号,进而实现痕量气体分子的高灵敏度检测,也是需要解决的关键问题。第三,空气激光在非线性超快光谱、燃烧诊断等领域也具有广阔的应用前景,值得进一步研究。

综上所述,在强场超快条件下开展远程空气激光研究有望在强场分子物理、超快非线性光学、量子光学等基础研究领域取得重要突破,并将推动远程探测、非线性光谱、燃烧诊断等应用技术的发展。

## 参 考 文 献

- [1] Maiman T H. Stimulated optical radiation in ruby [J]. *Nature*, 1960, 187(4736): 493-494.
- [2] Cohen-Tannoudji C N. Nobel lecture: manipulating atoms with photons [J]. *Reviews of Modern Physics*, 1998, 70(3): 707-719.
- [3] Ashkin A, Dziedzic J. Optical trapping and manipulation of viruses and bacteria [J]. *Science*, 1987, 235(4795): 1517-1520.
- [4] Cao X, Jahazi M, Immarigeon J P, et al. A review of laser welding techniques for magnesium alloys [J]. *Journal of Materials Processing Technology*, 2006, 171(2): 188-204.
- [5] Mourou G A, Tajima T, Bulanov S V. Optics in the

- relativistic regime[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2006, 78(2): 309-371.
- [6] Mourou G, Tajima T. The extreme light infrastructure: optics' next horizon[J]. *Optics and Photonics News*, 2011, 22(7): 47-51.
- [7] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, et al. Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms[J]. *Physical Review Letters*, 1979, 42(17): 1127-1130.
- [8] Fittinghoff D N, Bolton P R, Chang B, et al. Observation of nonsequential double ionization of helium with optical tunneling[J]. *Physical Review Letters*, 1992, 69(18): 2642-2645.
- [9] L'Huillier A, Balcou P. High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser [J]. *Physical Review Letters*, 1993, 70(6): 774-777.
- [10] Krause J L, Schafer K J, Kulander K C. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime [J]. *Physical Review Letters*, 1992, 68(24): 3535-3538.
- [11] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics [J]. *Reviews of Modern Physics*, 2009, 81(1): 163-234.
- [12] Esarey E, Schroeder C B, Leemans W P. Physics of laser-driven plasma-based electron accelerators [J]. *Reviews of Modern Physics*, 2009, 81(3): 1229-1285.
- [13] Henig A, Kiefer D, Markey K, et al. Enhanced laser-driven ion acceleration in the relativistic transparency regime[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 103(4): 045002.
- [14] Sugioka K, Cheng Y. Ultrafast lasers: reliable tools for advanced materials processing [J]. *Light: Science & Applications*, 2014, 3(4): e149.
- [15] Wang C, Fomovsky M, Miao G X, et al. Femtosecond laser crosslinking of the cornea for non-invasive vision correction [J]. *Nature Photonics*, 2018, 12(7): 416-422.
- [16] Kasparian J. White-light filaments for atmospheric analysis[J]. *Science*, 2003, 301(5629): 61-64.
- [17] Xu H L, Cheng Y, Chin S L, et al. Femtosecond laser ionization and fragmentation of molecules for environmental sensing [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2015, 9(3): 275-293.
- [18] Vaulin V A, Slinko V N, Sulakshin S S. Air ultraviolet laser excited by high-power microwave pulses[J]. *Soviet Journal of Quantum Electronics*, 1988, 18(11): 1457-1458.
- [19] Strickland D, Mourou G. Compression of amplified chirped optical pulses[J]. *Optics Communications*, 1985, 56(3): 219-221.
- [20] Braun A, Korn G, Liu X, et al. Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air[J]. *Optics Letters*, 1995, 20(1): 73-75.
- [21] Luo Q, Liu W W, Chin S L. Lasing action in air induced by ultra-fast laser filamentation[J]. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 2003, 76(3): 337-340.
- [22] Dogariu A, Michael J B, Scully M O, et al. High-gain backward lasing in air[J]. *Science*, 2011, 331(6016): 442-445.
- [23] Yao J P, Zeng B, Xu H L, et al. High-brightness switchable multiwavelength remote laser in air[J]. *Physical Review A*, 2011, 84(5): 051802.
- [24] Polynkin P, Cheng Y. *Air lasing [M]*. Cham: Springer International Publishing, 2018.
- [25] Yuan L Q, Liu Y, Yao J P, et al. Recent advances in air lasing: a perspective from quantum coherence [J]. *Advanced Quantum Technologies*, 2019, 2(11): 1900080.
- [26] Li H L, Yao D W, Wang S Q, et al. Air lasing: phenomena and mechanisms[J]. *Chinese Physics B*, 2019, 28(11): 114204.
- [27] Dogariu A, Miles R B. Nitrogen lasing in air[C]// *Conference on Lasers and Electro-Optics*. San Jose, California, United States: Optical Society of America, 2013: QW1E.1.
- [28] Laurain A, Scheller M, Polynkin P. Low-threshold bidirectional air lasing[J]. *Physical Review Letters*, 2014, 113(25): 253901.
- [29] Kartashov D, Ališauskas S, Andriukaitis G, et al. Free-space nitrogen gas laser driven by a femtosecond filament [J]. *Physical Review A*, 2012, 86(3): 033831.
- [30] Mitryukovskiy S, Liu Y, Ding P J, et al. Backward stimulated radiation from filaments in nitrogen gas and air pumped by circularly polarized 800 nm femtosecond laser pulses[J]. *Optics Express*, 2014, 22(11): 12750-12759.
- [31] Kartashov D, Ališauskas S, Baltuška A, et al. Remotely pumped stimulated emission at 337 nm in atmospheric nitrogen[J]. *Physical Review A*, 2013, 88(4): 041805.
- [32] Yao J P, Li G H, Jing C R, et al. Remote creation of coherent emissions in air with two-color ultrafast laser pulses[J]. *New Journal of Physics*, 2013, 15(2): 023046.
- [33] Dogariu A, Miles R B. Three-photon femtosecond pumped backwards lasing in argon [J]. *Optics Express*, 2016, 24(6): A544-A552.
- [34] Chu W, Zeng B, Yao J P, et al. Multiwavelength amplified harmonic emissions from carbon dioxide



- pumped by mid-infrared femtosecond laser pulses [J]. *Europhysics Letters*, 2012, 97(6): 64004.
- [35] Yuan S, Wang T J, Teranishi Y, et al. Lasing action in water vapor induced by ultrashort laser filamentation[J]. *Applied Physics Letters*, 2013, 102(22): 224102.
- [36] Dogariu A, Chng T L, Miles R B. Remote backward-propagating water lasing in atmospheric air[C]//Conference on Lasers and Electro-Optics. San Jose, California. Washington, D. C.: OSA, 2016: AW4K.5.
- [37] Hemmer P R, Miles R B, Polynkin P, et al. Standoff spectroscopy via remote generation of a backward-propagating laser beam [J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2011, 108(8): 3130-3134.
- [38] Malevich P N, Kartashov D, Pu Z, et al. Ultrafast-laser-induced backward stimulated Raman scattering for tracing atmospheric gases[J]. *Optics Express*, 2012, 20(17): 18784-18794.
- [39] Malevich P N, Maurer R, Kartashov D, et al. Stimulated Raman gas sensing by backward UV lasing from a femtosecond filament [J]. *Optics Letters*, 2015, 40(11): 2469-2472.
- [40] Dogariu A. Remote trace detection of hazardous substances using nonlinear optics [C]//Light, Energy and the Environment. Canberra. Washington, D.C.: OSA, 2014: EF4A.4.
- [41] Ni J L, Chu W, Zhang H S, et al. Impulsive rotational Raman scattering of  $N_2$  by a remote “air laser” in femtosecond laser filament [J]. *Optics Letters*, 2014, 39(8): 2250-2253.
- [42] Liu Z X, Yao J P, Zhang H S, et al. Extreme nonlinear Raman interaction of an ultrashort nitrogen ion laser with an impulsively excited molecular wavepacket [J]. *Physical Review A*, 2020, 101(4): 043404.
- [43] Yao J P, Chu W, Liu Z X, et al. An anatomy of strong-field ionization-induced air lasing[J]. *Applied Physics B*, 2018, 124(5): 73.
- [44] Traverso A J, Sanchez-Gonzalez R, Yuan L Q, et al. Coherence brightened laser source for atmospheric remote sensing[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2012, 109(38): 15185-15190.
- [45] Mitryukovskiy S, Liu Y, Ding P J, et al. Plasma luminescence from femtosecond filaments in air: evidence for impact excitation with circularly polarized light pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2015, 114(6): 063003.
- [46] Zhang H S, Jing C R, Yao J P, et al. Rotational coherence encoded in an “air-laser” spectrum of nitrogen molecular ions in an intense laser field[J]. *Physical Review X*, 2013, 3(4): 041009.
- [47] Liu Y, Ding P J, Lambert G, et al. Recollision-induced superradiance of ionized nitrogen molecules [J]. *Physical Review Letters*, 2015, 115(13): 133203.
- [48] Liu Y, Ding P J, Ibrakovic N, et al. Unexpected sensitivity of nitrogen ions superradiant emission on pump laser wavelength and duration [J]. *Physical Review Letters*, 2017, 119(20): 203205.
- [49] Britton M, Laferrière P, Ko D H, et al. Testing the role of recollision in  $N_2^+$  air lasing [J]. *Physical Review Letters*, 2018, 120(13): 133208.
- [50] Xu H L, Lötstedt E, Iwasaki A, et al. Sub-10-fs population inversion in  $N_2^+$  in air lasing through multiple state coupling [J]. *Nature Communications*, 2015, 6: 8347.
- [51] Yao J P, Jiang S C, Chu W, et al. Population redistribution among multiple electronic states of molecular nitrogen ions in strong laser fields [J]. *Physical Review Letters*, 2016, 116(14): 143007.
- [52] Zhang Q, Xie H Q, Li G H, et al. Sub-cycle coherent control of ionic dynamics via transient ionization injection [J]. *Communications Physics*, 2020, 3: 50.
- [53] Chen J M, Yao J P, Zhang H S, et al. Electronic-coherence-mediated molecular nitrogen-ion lasing in a strong laser field[J]. *Physical Review A*, 2019, 100(3): 031402.
- [54] Zhang A, Liang Q Q, Lei M W, et al. Coherent modulation of superradiance from nitrogen ions pumped with femtosecond pulses [J]. *Optics Express*, 2019, 27(9): 12638-12646.
- [55] Mysyrowicz A, Danylo R, Houard A, et al. Lasing without population inversion in  $N_2^+$  [J]. *APL Photonics*, 2019, 4(11): 110807.
- [56] Yao J P, Chu W, Liu Z X, et al. Generation of Raman lasers from nitrogen molecular ions driven by ultraintense laser fields[J]. *New Journal of Physics*, 2018, 20(3): 033035.
- [57] Liu Z X, Yao J P, Chen J M, et al. Near-resonant Raman amplification in the rotational quantum wave packets of nitrogen molecular ions generated by strong field ionization[J]. *Physical Review Letters*, 2018, 120(8): 083205.
- [58] Yuan L Q, Hokr B H, Traverso A J, et al. Theoretical analysis of the coherence-brightened laser in air[J]. *Physical Review A*, 2013, 87(2): 023826.
- [59] Talebpour A, Abdel-Fattah M, Bandrauk A D, et

- al. Spectroscopy of the gases interacting with intense femtosecond laser pulses[J]. *Laser Physics*, 2001, 11(1): 68-76.
- [60] Kartashov D, Ališauskas S, Pugžlys A, et al. Theory of a filament initiated nitrogen laser [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2015, 48(9): 094016.
- [61] Sprangle P, Peñano J, Hafizi B, et al. Remotely induced atmospheric lasing [J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 98(21): 211102.
- [62] Shneider M N, Baltuška A, Zheltikov A M. Population inversion of molecular nitrogen in an Ar: N<sub>2</sub> mixture by selective resonance-enhanced multiphoton ionization [J]. *Journal of Applied Physics*, 2011, 110(8): 083112.
- [63] Xie H Q, Li G H, Chu W, et al. Backward nitrogen lasing actions induced by femtosecond laser filamentation: influence of duration of gain[J]. *New Journal of Physics*, 2015, 17(7): 073009.
- [64] Itikawa Y. Cross sections for electron collisions with nitrogen molecules [J]. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 2006, 35(1): 31-53.
- [65] Heard H G. Ultra-violet gas laser at room temperature[J]. *Nature*, 1963, 200(4907): 667.
- [66] Yao J P, Xie H Q, Zeng B, et al. Gain dynamics of a free-space nitrogen laser pumped by circularly polarized femtosecond laser pulses [J]. *Optics Express*, 2014, 22(16): 19005-19013.
- [67] Ding P J, Mitryukovskiy S, Houard A, et al. Backward lasing of air plasma pumped by circularly polarized femtosecond pulses for the saKe of remote sensing (BLACK) [J]. *Optics Express*, 2014, 22(24): 29964-29977.
- [68] Ding P J, Oliva E, Houard A, et al. Lasing dynamics of neutral nitrogen molecules in femtosecond filaments [J]. *Physical Review A*, 2016, 94(4): 043824.
- [69] Ding P J, Escudero J C, Houard A, et al. Nonadiabaticity of cavity-free neutral nitrogen lasing [J]. *Physical Review A*, 2017, 96(3): 033810.
- [70] Ni J L, Chu W, Jing C R, et al. Identification of the physical mechanism of generation of coherent N<sub>2</sub><sup>+</sup> emissions in air by femtosecond laser excitation[J]. *Optics Express*, 2013, 21(7): 8746-8752.
- [71] Li G H, Jing C R, Zeng B, et al. Signature of superradiance from a nitrogen-gas plasma channel produced by strong-field ionization [J]. *Physical Review A*, 2014, 89(3): 033833.
- [72] Zhong X Q, Miao Z M, Zhang L L, et al. Vibrational and electronic excitation of ionized nitrogen molecules in intense laser fields [J]. *Physical Review A*, 2017, 96(4): 043422.
- [73] Lei M W, Wu C Y, Zhang A, et al. Population inversion in the rotational levels of the superradiant N<sub>2</sub><sup>+</sup> pumped by femtosecond laser pulses[J]. *Optics Express*, 2017, 25(4): 4535-4541.
- [74] Miao Z M, Zhong X Q, Zhang L L, et al. Stimulated-Raman-scattering-assisted superfluorescence enhancement from ionized nitrogen molecules in 800-nm femtosecond laser fields [J]. *Physical Review A*, 2018, 98(3): 033402.
- [75] Xu B, Jiang S C, Yao J P, et al. Free-space N<sub>2</sub><sup>+</sup> lasers generated in strong laser fields: the role of molecular vibration [J]. *Optics Express*, 2018, 26(10): 13331-13339.
- [76] Arissian L, Kamer B, Rastegari A, et al. Transient gain from N<sub>2</sub><sup>+</sup> in light filaments[J]. *Physical Review A*, 2018, 98(5): 053438.
- [77] Britton M, Lytova M, Laferrière P, et al. Short- and long-term gain dynamics in N<sub>2</sub><sup>+</sup> air lasing [J]. *Physical Review A*, 2019, 100: 013406.
- [78] Zheng W, Miao Z M, Zhang L L, et al. Enhanced coherent emission from ionized nitrogen molecules by femtosecond laser pulses [J]. *The Journal of Physical Chemistry Letters*, 2019, 10(21): 6598-6603.
- [79] Xie H Q, Zeng B, Li G H, et al. Coupling of N<sub>2</sub><sup>+</sup> rotational states in an air laser from tunnel-ionized nitrogen molecules [J]. *Physical Review A*, 2014, 90(4): 042504.
- [80] Zeng B, Chu W, Li G H, et al. Real-time observation of dynamics in rotational molecular wave packets by use of air-laser spectroscopy[J]. *Physical Review A*, 2014, 89(4): 042508.
- [81] Liu Y, Brelet Y, Point G, et al. Self-seeded lasing in ionized air pumped by 800 nm femtosecond laser pulses[J]. *Optics Express*, 2013, 21(19): 22791-22798.
- [82] Wang T J, Ju J J, Daigle J F, et al. Self-seeded forward lasing action from a femtosecond Ti : sapphire laser filament in air [J]. *Laser Physics Letters*, 2013, 10(12): 125401.
- [83] Chu W, Li G H, Xie H Q, et al. A self-induced white light seeding laser in a femtosecond laser filament[J]. *Laser Physics Letters*, 2014, 11(1): 015301.
- [84] Li H L, Hou M Y, Zang H W, et al. Significant enhancement of N<sub>2</sub><sup>+</sup> lasing by polarization-modulated ultrashort laser pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2019, 122: 013202.
- [85] Xie H Q, Zhang Q, Li G H, et al. Vibrational

- population transfer between electronic states of  $N_2^+$  in polarization-modulated intense laser fields [J]. *Physical Review A*, 2019, 100(5): 053419.
- [86] Ando T, Lötstedt E, Iwasaki A, et al. Rotational, vibrational, and electronic modulations in  $N_2^+$  lasing at 391 nm: evidence of coherent  $B^2\Sigma_u^+-X^2\Sigma_g^+-A^2\Pi_u$  coupling[J]. *Physical Review Letters*, 2019, 123(20): 203201.
- [87] Li H X, Song Q Y, Yao J P, et al. Air lasing from singly ionized  $N_2$  driven by bicircular two-color fields [J]. *Physical Review A*, 2019, 99(5): 053413.
- [88] Clerici M, Bruhács A, Faccio D, et al. Terahertz control of air lasing[J]. *Physical Review A*, 2019, 99(5): 053802.
- [89] Kartashov D, Möhring J, Andriukaitis G, et al. Stimulated amplification of UV emission in a femtosecond filament using adaptive control [C]// *Conference on Lasers and Electro-Optics 2012*, San Jose, California. Washington, D.C.: OSA, 2012: QTh4E.6.
- [90] Point G, Liu Y, Brelet Y, et al. Lasing of ambient air with microjoule pulse energy pumped by a multi-terawatt infrared femtosecond laser [J]. *Optics Letters*, 2014, 39(7): 1725-1728.
- [91] Jing C R, Zhang H S, Chu W, et al. Generation of an air laser at extended distances by femtosecond laser filamentation with telescope optics[J]. *Optics Express*, 2014, 22(3): 3151-3156.
- [92] Jing C R, Yao J P, Li Z T, et al. Free-space air molecular lasing from highly excited vibrational states pumped by circularly-polarized femtosecond laser pulses [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2015, 48(9): 094001.
- [93] Zhai K X, Li Z T, Xie H Q, et al. Ultrafast gain dynamics in  $N_2^+$  lasing from highly excited vibrational states pumped by circularly polarized femtosecond laser pulses [J]. *Chinese Optics Letters*, 2015, 13(5): 050201.
- [94] Andriukaitis G, Möhring J, Kartashov D, et al. Intense, directional UV emission from molecular nitrogen ions in an adaptively controlled femtosecond filament[J]. *EPJ Web of Conferences*, 2013, 41: 10004.
- [95] Kartashov D, Haessler S, Ališauskas S, et al. Transient inversion in rotationally aligned nitrogen ions in a femtosecond filament [C]// *Research in Optical Sciences*, Messe Berlin, Berlin. Washington, D.C.: OSA, 2014: HTh4B.5.
- [96] Azarm A, Corkum P, Polynkin P. Optical gain in rotationally excited nitrogen molecular ions [J]. *Physical Review A*, 2017, 96(5): 051401.
- [97] Xu H L, Lötstedt E, Ando T, et al. Alignment-dependent population inversion in  $N_2^+$  in intense few-cycle laser fields[J]. *Physical Review A*, 2017, 96(4): 041401.
- [98] Wan Y X, Xu B, Yao J P, et al. Polarization ellipticity dependence of  $N_2^+$  air lasing: the role of coupling between the ground state and a photo-excited intermediate state[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2019, 36(10): G57-G61.
- [99] Fu Y, Lötstedt E, Li H L, et al. Optimization of  $N_2^+$  lasing through population depletion in the  $X^2\Sigma_g^+$  state using elliptically modulated ultrashort intense laser fields[J]. *Physical Review Research*, 2020, 2: 012007.
- [100] Zhang A, Lei M W, Gao J S, et al. Subfemtosecond-resolved modulation of superfluorescence from ionized nitrogen molecules by 800-nm femtosecond laser pulses [J]. *Optics Express*, 2019, 27(10): 14922-14930.
- [101] Xu B, Yao J P, Wan Y X, et al. Vibrational Raman scattering from coherently excited molecular ions in a strong laser field[J]. *Optics Express*, 2019, 27(13): 18262-18272.
- [102] Arissian L, Kamer B, Rasoulof A. Effect of rotational wave packets on the stimulated emission of nitrogen with light filament [J]. *Optics Communications*, 2016, 369: 215-219.
- [103] Chin S L, Xu H L, Cheng Y, et al. Natural population inversion in a gaseous molecular filament [J]. *Chinese Optics Letters*, 2013, 11(1): 013201.
- [104] Zhang H S, Jing C R, Li G H, et al. Abnormal dependence of strong-field-ionization-induced nitrogen lasing on polarization ellipticity of the driving field[J]. *Physical Review A*, 2013, 88(6): 063417.
- [105] Zhong X Q, Miao Z M, Zhang L L, et al. Optimizing the 391-nm lasing intensity from ionized nitrogen molecules in 800-nm femtosecond laser fields [J]. *Physical Review A*, 2018, 97(3): 033409.
- [106] Wang T J, Daigle J F, Ju J J, et al. Forward lasing action at multiple wavelengths seeded by white light from a femtosecond laser filament in air [J]. *Physical Review A*, 2013, 88(5): 053429.
- [107] Wang P, Wu C Y, Lei M W, et al. Population dynamics of molecular nitrogen initiated by intense femtosecond laser pulses [J]. *Physical Review A*, 2015, 92(6): 063412.
- [108] Ni J L, Chu W, Zhang H S, et al. Harmonic-seeded remote laser emissions in  $N_2$ -Ar,  $N_2$ -Xe and

- $N_2$ -Ne mixtures: a comparative study [J]. *Optics Express*, 2012, 20(19): 20970-20979.
- [109] Li Z T, Zeng B, Chu W, et al. Generation of elliptically polarized nitrogen ion laser fields using two-color femtosecond laser pulses [J]. *Scientific Reports*, 2016, 6: 21504.
- [110] Li H L, Zang H W, Su Y, et al. Generation of air lasing at extended distances by coaxial dual-color femtosecond laser pulses [J]. *Journal of Optics*, 2017, 19(12): 124006.
- [111] Jing C R, Xie H Q, Li G H, et al. Dynamic wavelength switching of a remote nitrogen or air laser with chirped femtosecond laser pulses [J]. *Laser Physics Letters*, 2015, 12(1): 015301.
- [112] Tong X M, Zhao Z X, Lin C D. Theory of molecular tunneling ionization [J]. *Physical Review A*, 2002, 66(3): 033402.
- [113] Campbell J B, Wynne R H. Introduction to remote sensing [M]. New York: The Guilford Press, 2011.
- [114] Chu W, Li H L, Ni J L, et al. Lasing action induced by femtosecond laser filamentation in ethanol flame for combustion diagnosis [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 104(9): 091106.
- [115] Ding P J, Ruchkina M, Liu Y, et al. Femtosecond two-photon-excited backward lasing of atomic hydrogen in a flame [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(5): 1183-1186.
- [116] Ding P J, Ruchkina M, Cont-Bernard D D, et al. Detection of atomic oxygen in a plasma-assisted flame via a backward lasing technique [J]. *Optics Letters*, 2019, 44(22): 5477-5480.
- [117] Ruchkina M, Ding P J, Ehn A, et al. Single-shot, spatially-resolved stand-off detection of atomic hydrogen via backward lasing in flames [J]. *Proceedings of the Combustion Institute*, 2019, 37(2): 1281-1288.