

·特邀综述·

空气激光的原理、产生及应用

李贺龙^{1,2}, 王思琪¹, 付尧¹, 徐淮良^{1,3*}

¹吉林大学电子科学与工程学院, 吉林 长春 130012;

²吉林大学原子与分子物理研究所, 吉林 长春 130012;

³中国科学院超强激光科学研究中心, 上海 201800

摘要 近年来,空气激光因在大气传感和环境监测等领域具有重要的潜在应用价值而备受关注。空气激光通常是指强激光诱导大气组分粒子布居数反转,进而产生的远场无腔光放大的激射现象。氮气和氧气作为两种主要的大气组分,均可在强激光激发下产生激射行为。光增益介质可以是氧原子、氮原子、氮分子和氮分子离子。本文以飞秒光丝诱导氮分子和氮分子离子激光为例,讨论了空气激光的现象观测、机理探索和应用前景,并着重介绍了光场偏振效应对氮分子离子激射行为影响的研究进展。

关键词 光谱学; 空气激光; 粒子数反转; 大气传感

中图分类号 O436

文献标志码 A

doi: 10.3788/CJL202047.0500017

Air Lasing: Principle, Generation, and Applications

Li Helong^{1,2}, Wang Siqu¹, Fu Yao¹, Xu Huailiang^{1,3*}

¹College of Electronic Science and Engineering, Jilin University, Changchun, Jilin 130012, China;

²Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun, Jilin 130012, China;

³Center for Excellence in Ultra-Intense Laser Science, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China

Abstract Recently, air lasing has attracted significant attention owing to its promising applications in atmospheric sensing and environmental monitoring. Air lasing usually refers to strong-laser-induced population inversion of atmospheric constituents, resulting in no-cavity light amplification over a remote distance. It has been revealed that with the excitation of intense laser pulses, molecules of the two primary atmospheric constituents, i. e., nitrogen and oxygen, can exhibit lasing behaviors. The gain media can be atomic oxygen and nitrogen, as well as neutral nitrogen molecules and nitrogen molecular ions. Herein, we present the phenomena, underlying mechanisms, and potential applications of air lasing with a focus on the gain media of neutral and single-ionized nitrogen molecules. Moreover, the influence of the laser polarization state on the N_2^+ lasing is discussed in more detail.

Key words spectroscopy; air lasing; population inversion; atmospheric sensing

OCIS codes 300.6360; 320.7120; 350.5400

1 引言

在梅曼博士成功设计第一台红宝石激光器后不久,人们在石英晶体中观测到了倍频效应,开启了具有重要意义的非线性光学时代^[1-2]。近年来,超快激光技术的迅猛发展使其峰值功率被快速提升,最高可达到 10 PW 量级^[3]。在超强激光场中,粒子(原子、分子、离子等)与激光的高阶非线性相互作用会出现有趣的非线性效应,其中最诱人的现象之一便

是空气激光^[4-6]。空气激光通常是指超强飞秒激光成丝诱导大气组分产生粒子数反转,实现远场无腔光放大的现象。目前,尚未被完全了解的空气激光的物理机制,以及空气激光在环境监测等领域展示出的潜在应用前景,使其成为强场激光物理研究的前沿之一。

超强飞秒激光成丝现象是一种独特的非线性光学行为^[7]。近年来,人们发现超强飞秒激光具有高峰值功率的优势,其在气体环境中传输时可以克服

收稿日期: 2020-02-21; 修回日期: 2020-03-19; 录用日期: 2020-03-23

基金项目: 国家自然科学基金(61625501,11904121)

* E-mail: huailiang@jlu.edu.cn

衍射和色散等效应的限制产生成丝现象^[8]。飞秒激光成丝过程伴随着许多独特的物理现象,因此在大气遥感、天气控制、非线性光频转换等^[9-12]方面展现出了良好的应用潜能。有研究表明,飞秒激光成丝主要是由克尔自聚焦效应和等离子体散焦效应共同作用达到动态平衡后形成的^[13-14]。在激光成丝后,气体介质内会留下一条长为几厘米到百米量级、直径为百微米量级的丝状等离子通道,人们将该等离子通道形象地称为“飞秒光纤”^[15]。

光纤最显著的特性之一是光强钳制效应。研究表明,空气中光纤核区内的激光功率密度被钳制在 $10^{13} \sim 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ^[16]范围内,如此高强度的激光场会使大气环境中的各种原子、分子发生电离或解离,电离后的原子、分子或解离的分子碎片在经历光激发、复合等物理过程后发射“指纹”光谱^[17-18]。通过分析“指纹光谱”,可以实现多组分同步探测。该项技术通常被称为“飞秒光纤诱导非线性光谱学”,近年来已在大气痕量分子检测、燃烧诊断等方面展现出了广阔的应用前景^[19-24]。

2003年,Laval大学Chin研究小组^[25]在背向测量空气中的光纤诱导非线性光谱时,首次发现了氮分子(N_2)荧光强度随着光纤长度增大而呈指数增加的现象。他们认为 N_2 在光纤激励下实现了粒子数反转,产生了荧光自发辐射放大现象,从而提出了光纤诱导空气激光的概念。结合光纤开始位置可控以及在复杂环境(如雨、雪等极端天气)下仍可成丝等特点^[26-28],人们很容易联想到如果将超快激光成丝诱导的空气激光作为远场激光源,就可以在大气传感领域有效地提高信噪比^[18]。

随后,受光纤诱导 N_2 产生荧光自发辐射放大的启发,人们发现光纤也可以诱导其他分子或分子碎片产生类似的荧光自发辐射放大现象^[29-32],如燃烧场中的中间产物CN、光纤对有机小分子(如甲烷 CH_4 、乙炔 C_2H_2)光解离形成的分子碎片CH,以及空气中的水分子 H_2O 在光纤中形成的OH和NH自由基团等。

空气中主要包含两种大气组分,即氮气和氧气,因此,人们期望利用这两种气体与激光的非线性相互作用来产生高强度的空气激光。到目前为止,通过采用不同的泵浦激光条件,人们发现氧原子^[33-34]、氮原子^[34]、氮分子^[25]以及氮分子离子(N_2^+)^[35-39]可以转变为增益介质,在激光传输的前向或后向产生激射现象。目前,人们已基本了解了前三种激射行为产生的物理图像,但超快强场激光诱导 N_2^+ 产生

粒子数反转的物理机制尚在争论之中。本文将主要讨论飞秒激光成丝诱导 N_2 和 N_2^+ 的激光的最新研究进展,而有关利用皮秒强激光诱导氧分子、氮分子解离后所产生的氧原子、氮原子激射现象已在几篇英文综述和专著中有过详细介绍,本文不再赘述^[4-6,40]。

近年来,人们在研究空气内后向和前向光纤诱导非线性光谱时发现光纤本身可以作为光增益放大通道。飞秒激光在空气中成丝后会留下一条亮光线,光谱分析显示亮线主要是 N_2 的 $\text{C}^3\Pi_u \rightarrow \text{B}^3\Pi_g$ 和 N_2^+ 的 $\text{B}^2\Sigma_u^+ \rightarrow \text{X}^2\Sigma_g^+$ 的光辐射^[41],来自 N_2 以及 N_2^+ 的光辐射在其内部传输时会被有效放大,产生激射行为。本文将首先概述 N_2 在超快强激光场中的激射现象和物理机制;然后介绍中红外和近红外激光场中 N_2^+ 的激射现象,讨论几种可能产生 N_2^+ 光增益的物理机制,并着重探讨激光偏振效应对 N_2^+ 激射行为影响的最新研究进展;最后介绍空气激光的应用前景并对相关研究进行展望。

2 N_2 的激射行为

2003年,加拿大Laval大学Chin小组^[25]首次发现了光纤诱导空气中的 N_2 产生的背向荧光自放大行为,展示了飞秒强激光诱导大气组分产生空气激光的可行性。然而,此方法得到的光增益较小,仅为 0.3 cm^{-1} 。实现高强度的后向 N_2 激光输出是当下空气激光领域的研究热点之一。 N_2 粒子数反转是在激发态 $\text{C}^3\Pi_u$ 和 $\text{B}^3\Pi_g$ 之间建立的,因而,加大激发态 $\text{C}^3\Pi_u$ 的粒子数分布是获得高强度 N_2 激光的关键。值得强调的是,在电偶极近似下, N_2 在基态 $\text{X}^1\Sigma_g$ 和激发态 $\text{C}^3\Pi_u$ 之间的跃迁是禁阻跃迁,因而,无法直接通过光激发将 $\text{X}^1\Sigma_g$ 态上的粒子抽运到 $\text{C}^3\Pi_u$ 态上,加大 N_2 在 $\text{C}^3\Pi_u$ 态和 $\text{B}^3\Pi_g$ 态间的粒子数反转。通常,人们认为光纤内处于激发态 $\text{C}^3\Pi_u$ 的 N_2 主要是通过碰撞激发产生的^[42-43]。为了增加处于激发态 $\text{C}^3\Pi_u$ 的 N_2 粒子数密度,人们陆续提出了一些新颖的激发方法,如共振转移激发^[44]、高能电子碰撞激发^[45-46]、电离后再加热^[47-50]、gain-sweep^[51]等。值得强调的是,人们已经利用前两种方法通过实验实现了高强度 N_2 激光的输出,下文将对其进行详细介绍。

2.1 共振转移激发体系下光纤诱导的后向 N_2 激光

2012年,Kartashov等^[44]发现中红外飞秒激光在高压 N_2 -Ar混合气体内成丝时可沿后向产生高强度的 N_2 激光。泵浦激光的中心波长为 $3.9 \mu\text{m}$,脉宽为

80 fs, 重复频率为 20 Hz, 单脉冲能量为 7 mJ。图 1 展示了后向测量得到的光丝诱导的 N₂ 发射光谱。光谱分析显示中心波长分别为 337 nm 和 357 nm 的窄带宽激光信号分别来自 N₂ 的 C³Π_u (ν′=0)→B³Π_g (ν=0) 和 C³Π_u (ν′=0)→B³Π_g (ν=1) 辐射跃迁。输出的 N₂ 激光能量高达微焦量级, 该方法的能量转化率可比拟于电泵浦 N₂ 激光的能量转化率^[52]。

在 N₂ 粒子数反转建立过程中, 处于亚稳态 4³P₂ 上的 Ar 原子与 N₂ 之间碰撞的共振能量转移过程被认为起着关键作用。在高强度飞秒光丝内, 处于激发态 4³P₂ 的氩原子是通过如下三体碰撞过程产生的: 1) Ar⁺ + 2Ar → Ar₂⁺ + Ar; 2) Ar₂⁺ + e → Ar (4³P₂) + Ar; 3) 处于激发态 4³P₂ 的 Ar 原子与 N₂ 碰撞发生能量共振转移, 即 Ar (4³P₂) + N₂ (X¹Σ_g) → Ar + N₂ (C³Π_u), 将 N₂ 从基态 X¹Σ_g 激发至激发态 C³Π_u, 最终在 N₂ 的 C³Π_u 态和 B³Π_g 态之间建立粒子数反转。

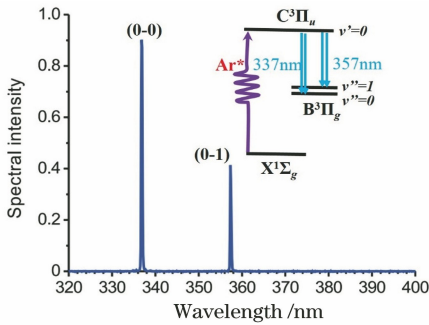


图 1 后向测量得到的中红外飞秒光丝诱导 N₂-Ar 混合气体的发射光谱^[44] (插图为 Ar 原子碰撞激发下 N₂ 激光的能级示意图, 泵浦激光能量为 7 mJ, N₂ 和 Ar 的分压分别为 0.1 MPa 和 0.5 MPa)

Fig. 1 Backward mid-infrared femtosecond filament-induced emission spectrum from N₂ and Ar mixture^[44] (inset: energy diagram for N₂ lasing by Ar collision excitation. The laser energy was set to 7 mJ, partial pressures of N₂ and Ar were 0.1 MPa and 0.5 MPa, respectively)

随后, Xie 等^[53] 以 800 nm 飞秒激光作为泵浦光, 研究了其在 N₂-Ar 混合气体内诱导 N₂ 产生后向激射的光增益动力学。通过对比前向和后向 N₂ 激光增益动力学发现, 只有当 N₂ 的光增益寿命超过 1 ns 时, 后向 N₂ 激光才能被有效观测到。也就是说, 在该实验条件下产生后向 N₂ 空气激光时, 光增益寿命存在一个最小值, 该值约为 1 ns。

2.2 基于高能电子碰撞获得光丝诱导 N₂ 激光

2013 年, Liu 研究小组^[45] 报道了高能量圆偏振

近红外飞秒激光在氮气中成丝时, N₂ 荧光沿光丝背向传输会发生荧光自发辐射放大现象, 产生高强度 N₂ 激光。泵浦激光 (9.3 mJ, 40 fs, 800 nm, 1 kHz) 被聚焦透镜 (焦距 f = 1 m) 聚焦至充有高纯度氮气的真空腔中形成光丝, 腔内压力为 0.1 MPa。图 2 (a) 展示了后向测量得到的圆偏振和线偏振条件下激光成丝诱导的 N₂ 发射光谱, 比较后发现, 圆偏振条件下 337 nm 处 N₂ 信号 [C³Π_u (ν′=0)→B³Π_g (ν=0)] 的强度比线偏振条件下高一个数量级。此外, 他们还测量了激光能量和偏振效应对 N₂ 信号强度的影响, 结果表明在高能圆偏振激光场中 N₂ 的激发态 C³Π_u (ν′=0) 和 B³Π_g (ν″=0) 形成了粒子数反转。Liu 研究小组认为 N₂ 的粒子数反转是高能电子与 N₂ 碰撞导致的^[54]。在圆偏振光场中, 电离产生的电子会被激光持续加速; 当光强为 10¹⁴ W/cm² (光丝内的典型光强) 量级时, 电子动能峰值在 14 eV 附近, 如图 2 (b) 所示; 能量处于 10~20 eV 的高能电子会发生碰撞反应 e + N₂ (X¹Σ_g) → N₂ (C³Π_u), 将大量处于基态 X¹Σ_g 的 N₂ 激发至激发态 C³Π_u, 导致在激发态 C³Π_u 和 B³Π_g 之间建立粒子数反转^[55]。而在线偏振飞秒激光场中, N₂ 电离产生的电子在光场驱动下作往复运动, 最终大部分电子的动能处于 0 eV 附近, 无法产生大量的高能电子, 如图 2 (c) 所示。也就是说, 在线偏振光场下, N₂ 从基态 X¹Σ_g 由高能电子碰撞激发到激发态 C³Π_u 的反应通道被关闭, 无法产生高强度的后向 N₂ 激光。随后, 人们基于泵浦-探测实验和引入种子脉冲的方法发现了 N₂ 的受激辐射放大现象, 证实了 N₂ 可以在圆偏振激光场激励下产生粒子数反转^[56-59]。

值得强调的是, 空气中的另一种主要组分氧气对高强度 N₂ 激光的产生具有负面影响^[52]。这是由于氧分子通过碰撞反应 O₂ + N₂ (C³Π_u) → N₂ (X¹Σ_g) + O + O 消耗处于激发态 C³Π_u 的 N₂, 导致 N₂ 激光增益降低。

目前, 直接在空气中产生 N₂ 空气激光的方法是将高能量皮秒激光 (1053 nm/10 ps/10 J) 作为泵浦光, 通过激光诱导击穿过程产生的高能电子碰撞诱导 N₂ 产生粒子数反转。由于泵浦光三次谐波的波段能够覆盖 C³Π_u (ν′=0) 和 B³Π_g (ν″=0) 跃迁, 因此三次谐波可以作为种子光在粒子数反转的 N₂ 内被放大, 最终在泵浦激光传输的同向产生 N₂ 受激辐射放大信号^[60]。

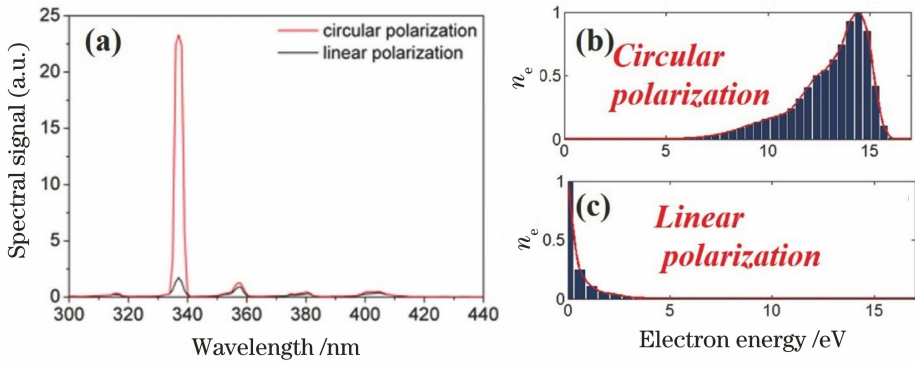


图 2 后向收集的圆偏振和线偏振条件下光纤诱导氮气的发射光谱^[45]以及圆偏振和线偏振下光纤内的电子能量分布^[54]。(a)发射光谱;(b)圆偏振下光纤内的电子能量分布;(c)线偏振下光纤内的电子能量分布
Fig. 2 Backward emission spectra induced by circularly (red) and linearly (black) polarized femtosecond laser in pure nitrogen gas^[45] and calculated electron energy distributions in the circularly and linearly polarized femtosecond laser fields^[54]. (a) Emission spectra; (b) calculated electron energy distribution in the circularly polarized femtosecond laser field; (c) calculated electron energy distribution in the linearly polarized femtosecond laser field

3 N₂⁺ 的激射行为

另外一种诱人的空气激光现象是强飞秒激光诱导 N₂⁺ 的激射行为。2011 年, Yao 等^[35] 在研究中红外飞秒激光于空气中成丝产生的谐波辐射时发现, 当调谐激光的中心波长到特殊位置时, 在三次或五次谐波光谱上, 会观测到 N₂⁺ 在激发态 B²Σ_u⁺ (ν′=0, 1, 2) 与基态 X²Σ_g⁺ (ν=0, 1, 2) 之间跃迁的窄带宽光谱线。这种独特的激射现象被认为来自如下两个过程: 1) 中红外飞秒激光诱导 N₂⁺ 产生光增益; 2) 激光成丝过程中产生的谐波脉冲作为种子在光纤内放大产生 N₂⁺ 激射信号。然而, 在利用中红外飞秒激光诱导 N₂⁺ 产生激射行为时, 谐波种子是伴随着激光成丝过程产生的。也就是说, 无法通过改变谐波种子和泵浦激光之间的相对延迟来深入理解强激光场下 N₂⁺ 增益的建立过程。

为了克服上述困难, 人们提出利用实验室经常使用的以掺钛蓝宝石为工作介质输出的 800 nm 飞秒激光诱导 N₂⁺ 产生光增益。基于泵浦-探测方法 (800 nm 基频光作为泵浦光, 400 nm 倍频光作为种子光), 通过改变泵浦光和种子光的相对传输方向、种子光谱形状和强度等, 人们确认了光参量过程 (如受激拉曼辐射和四波混频等) 并没有在 800 nm 强飞秒激光诱导 N₂⁺ 产生激射信号过程中起着关键作用^[61]。目前, 粒子数反转被认为是产生 N₂⁺ 光增益的最可能的机制。随后, 人们基于此实验方法研究了 N₂⁺ 光增益动力学、激发态转动能级的粒子数分布和动力学等物理过程^[36, 52-77], 为深入理解强飞秒激光诱导 N₂⁺ 激射行为提供了数据支持。

然而, 到目前为止, 人们就强激光诱导 N₂⁺ 产生粒子数反转的物理机制尚未达成共识。在强场物理中, 人们普遍认为强激光电离 N₂ 后, 大部分 N₂⁺ 会处于基态 X²Σ_g⁺, 因此, 直接电离是不能在 N₂⁺ 的激发态 B²Σ_u⁺ 与基态 X²Σ_g⁺ 之间建立粒子数反转的^[78-79]。有研究表明, N₂⁺ 粒子数反转的建立过程是在“瞬态”完成的, 时间尺度大约与泵浦激光的脉冲宽度相当^[36]。图 3(a) 展示了前向测量得到的少周期飞秒激光脉冲 (6 fs, 5 kHz, 0.2 mJ) 在空气中诱导的发射光谱。在 391 nm 处 (B²Σ_u⁺ (ν′=0) → X²Σ_g⁺ (ν=0)) 可以清晰地观测到 N₂⁺ 自种子 (自相位调制过程产生的白光) 的激射信号, 表明 N₂⁺ 粒子数反转过程甚至可以在几个飞秒尺度内完成^[80]。

基于上述分析, 人们认为电离后泵浦激光与电子、离子间的相互作用对建立 N₂⁺ 粒子数反转起着关键作用。到目前为止, 人们已提出了多种物理模型对其进行解释, 如电子重碰撞激发模型^[81-82]、电离后光耦合模型^[80, 83]、不同电子态内转动态上粒子数分布差异^[84]、转动相干导致的瞬态反转^[85]、近共振的拉曼放大^[86-87] 和电子态相干导致无反转放大^[88] 等, 其中前两种模型受到了大家的广泛关注, 下面将对其进行着重介绍。

2015 年, Liu 研究小组^[81-82] 基于高次谐波产生过程中的“三步模型” (电离-加速-复合)^[89], 提出电子回核碰撞激发可能是强飞秒激光诱导 N₂⁺ 产生粒子数反转的原因。N₂ 被电离后产生电子, 电子会在激光场驱动下作往复运动, 部分电子会与母核离子发生非弹性碰撞, 将能量传递给母核离子, 使母核

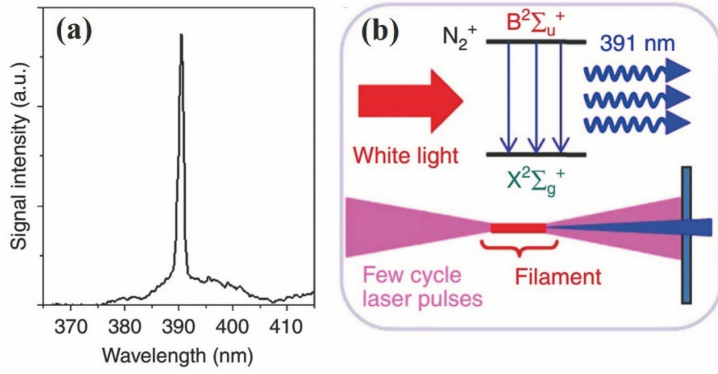


图 3 少周期飞秒激光诱导 N_2^+ 的激射行为^[80]。(a) 少周期飞秒激光在空气中诱导 N_2^+ 前向发射光谱;(b) 实验装置以及 N_2^+ 能级示意图

Fig. 3 Lasing action of N_2^+ by the pump of few-cycle laser pulses^[80]. (a) Few-cycle laser-induced emission spectrum of N_2^+ in air recorded in the forward direction; (b) schematics of experimental setup and energy diagram of the lasing action of N_2^+

离子从基态 $X^2\Sigma_g^+$ 跃迁至激发态 $B^2\Sigma_u^+$, 最终在这两种态之间产生粒子数反转。此外, 人们还发现 N_2^+ 激射强度与泵浦激光的脉宽、中心波长密切相关, 该现象被认为是来自电子重碰撞导致的 N_2^+ 偶极矩干涉^[90]。

同年, 人们认为电离后激光诱导 N_2^+ 发生的多态耦合效应在 N_2^+ 粒子数反转建立过程中起着关键作用^[80, 83]。 N_2 在泵浦激光脉冲电场峰值附近发生电离后, 产生大量的处于基态 $X^2\Sigma_g^+$ 的 N_2^+ ; 电离后, N_2^+ 仍处于泵浦激光场中, 基态 $X^2\Sigma_g^+$ 和激发态 $B^2\Sigma_u^+$ 、中间态 $A^2\Pi_u$ 间会发生耦合, 导致处于基态 $X^2\Sigma_g^+$ 的 N_2^+ 被大部分抽运到中间态 $A^2\Pi_u$, 最终在激发态 $B^2\Sigma_u^+$ 和基态 $X^2\Sigma_g^+$ 间建立粒子数反转。随后, 人们利用光诱导多态耦合模型成功地解释了分子准直效应对强飞秒激光诱导 N_2^+ 激射行为的影响^[91]。

在“三步模型”中, 电离后的电子在强激光场中的运动轨迹受泵浦激光的控制, 与激光偏振态密切相关^[90]; 同时, N_2^+ 在基态 $X^2\Sigma_g^+$ 和激发态 $B^2\Sigma_u^+$ 间的跃迁为平行跃迁, 在基态 $X^2\Sigma_g^+$ 与中间态 $A^2\Pi_u$ 间的跃迁为垂直跃迁, 也就是说, N_2^+ 多态间耦合强度也与激光的偏振态密切相关。近年来, 为了深入理解 N_2^+ 粒子数反转的建立过程, 人们从光场调控角度出发研究了激光偏振效应对激光场下 N_2^+ 激射行为的影响。

2018 年, Corkum 小组^[92] 研究了泵浦激光偏振效应对 N_2^+ 激射行为的影响, 通过比较 N_2^+ 激射强度与高次谐波产生过程对激光偏振的依赖关系后发现二者存在明显差异。因此, 他们认为电子重碰撞

激发过程在 N_2^+ 增益建立过程中并未起着关键作用。随后, 人们提出将圆偏振的 800 nm 飞秒基频光和圆偏振的二倍频激光的组合光场作为泵浦光来诱导 N_2^+ 产生激射信号^[93]。值得强调的是, 当基频光和倍频光的旋向相反时, 电子重碰撞截面要远大于二者旋向相同条件下的重碰撞截面。比较两种旋向组合下 N_2^+ 激射强度的大小可以发现二者并没有明显差别。因此, 光场驱动电子重碰撞激发被认为在 N_2^+ 粒子数反转建立过程中并未起关键作用。到目前为止, 该过程对 N_2^+ 激光产生过程的影响尚在争论之中。

2019 年, 人们研究了偏振整形激光脉冲诱导的 N_2^+ 激射行为^[94]。偏振整形激光是线偏振激光脉冲通过由多级 $\lambda/4$ 波片和零级 $\lambda/4$ 波片组成的偏振门后获得的^[95]。整形后激光脉冲在电场峰值处的偏振态是线性的, 而脉冲前后沿的偏振态是由两个波片光轴的夹角 θ 确定的。图 4(a) 展示了激光偏振整形的实验装置。当 $\theta = 0^\circ$ 时, 前后沿偏振态也为线偏振, 但线偏振方向彼此垂直, 且与峰值处的线偏振方向均呈 45° ; 当 $\theta = 45^\circ$ 时, 前后沿偏振态为圆偏振态, 但彼此旋向相反。图 4(b) 展示了在偏振整形激光场 ($\theta = 0^\circ$) 与线偏振激光场中, 前向记录的外部注入种子条件下的 N_2^+ 激射光谱。此工作中, 泵浦激光和种子激光的能量分别为 0.6 mJ 和 100 nJ, 气体介质为高纯度氮气, 压力为 1 kPa, 聚焦透镜的焦距为 40 cm。由于泵浦激光能量低, 自相位调制效应较弱, 故未观测到 N_2^+ 的自种子激射信号。值得强调的是, 在 391 nm 处, 偏振整形激光诱导 N_2^+ 激射信号的强度比线偏振条件下的约高一个数量级。

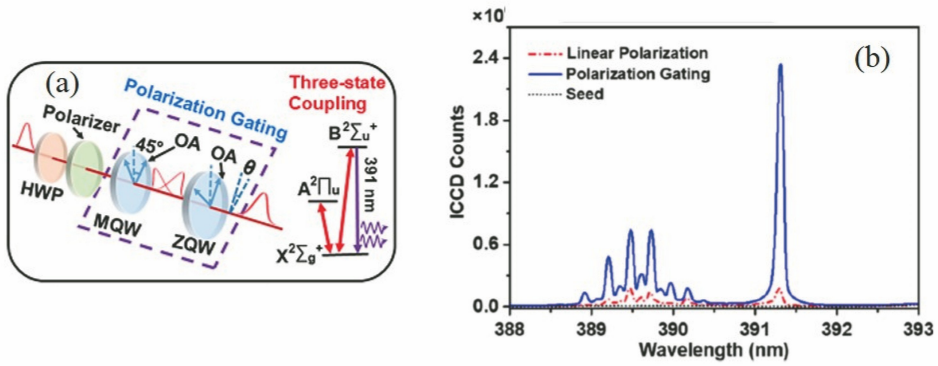


图 4 利用偏振门技术对激光脉冲进行偏振整形的实验装置示意图及光谱^[94]。(a)实验装置,其中 HWP 为半波片,MQW 为多级四分之一波片,ZQW 为零级四分之一波片,OA 为波片的光轴, θ 为波片光轴之间的夹角,插图 为光耦合模型示意图;(b)偏振整形($\theta=0^\circ$, 蓝色实线)和线偏振(红色点划线)激光脉冲下外部种子注入的 N_2^+ 前向 激光光谱以及外部种子脉冲光谱(黑色虚线)

Fig. 4 Experimental setup of the laser polarization shape by polarization gating technique and spectra^[94]. (a) Experimental set up, where HWP indicates a half wave plate, and OA is the optical axis of the multiple order quarter wave plate (MQW) and that of the zero-order quarter wave plate (ZQW), the angle θ is the angle between the OAs of MQW and ZQW; the inset shows schematic of light-induced coupling; (b) spectra of the forward probe pulses captured with the pump pulses of the linear-polarized ($\theta=0^\circ$, red dash dotted line) and polarization-modulated (blue solid line) laser pulses, respectively; external seed spectrum is also shown, which is indicated by the black dash line

结合侧向荧光和理论模拟分析发现, N_2^+ 光增益的增加是因为在偏振调制激光场中,脉冲尾部线偏振指向发生了旋转,导致 N_2^+ 基态 $X^2\Sigma_g^+$ 和中间态 $A^2\Pi_u$ 之间的垂直耦合强度明显增强,导致基态 $X^2\Sigma_g^+$ 上的粒子数到中间态 $A^2\Pi_u$ 上的抽运能力显著增强,加大了激发态 $B^2\Sigma_u^+$ 和基态 $X^2\Sigma_g^+$ 间的粒子数反转。进一步,旋转零级波片的光轴可以发现, N_2^+ 激射信号随着后沿偏振态从线偏振演变到圆偏振而逐渐减少,但侧向荧光信号保持不变。因而,人们认为偏振整形激光脉冲后沿偏振态会强烈地影响 N_2^+ 基态 $X^2\Sigma_g^+$ 上的粒子数分布,这表明 N_2^+ 基态 $X^2\Sigma_g^+$ 和中间态 $A^2\Pi_u$ 耦合的确在建立 N_2^+ 粒子数反转过程中起着关键作用。

由于上述使用的偏振门整形激光场内偏振状态变化复杂,因此人们又提出了采用基于泵浦-耦合-探测的方法来观测基态 $X^2\Sigma_g^+$ 和中间态 $A^2\Pi_u$ 耦合对 N_2^+ 粒子数反转产生过程的作用^[96]。实验中,在泵浦光和探测光间引入一束与泵浦光偏振方向相垂直的耦合光,泵浦光与耦合光的延时固定为 70 fs。利用 $\lambda/2$ 波片旋转耦合光的线偏振指向,改变耦合光与泵浦光偏振方向的夹角。结果发现,随着夹角从 0° 增大到 90° 时, N_2^+ 激射信号强度逐渐增加而侧向荧光强度几乎保持不变。这表明与泵浦光偏振垂直的耦合光的加入使基态 $X^2\Sigma_g^+$ 粒子数减少,从而增大了激发态 $B^2\Sigma_u^+$ 和基态 $X^2\Sigma_g^+$ 间的粒子数反

转。研究还发现, N_2^+ 激射信号强度随着垂直偏振耦合光能量的增加而呈线性增加,这是因为在耦合光场下, N_2^+ 在基态 $X^2\Sigma_g^+$ 和中间态 $A^2\Pi_u$ 间的跃迁为共振跃迁。

为进一步展示光诱导多态耦合效应对 N_2^+ 粒子数反转产生过程的作用,人们提出利用一对少周期飞秒激光脉冲来诱导 N_2^+ 产生激射行为^[97]。如图 5(a) 所示,高能量激光脉冲(电离光,约 7 fs, 800 nm, 40 μ J)诱导 N_2^+ 的激发态 $B^2\Sigma_u^+$ 和基态 $X^2\Sigma_g^+$ 间产生相干辐射;随后,另一束低能量的激光脉冲(激发光,约 7 fs, 800 nm, 20 μ J)将处于基态 $X^2\Sigma_g^+$ 的 N_2^+ 激发至中间态 $A^2\Pi_u$ 。图 5(b) 展示了两脉冲间的延迟对 N_2^+ 在 391 nm 处激射强度的影响。需要特别注意的是,激射信号强度随着延迟的变化出现了周期性调制。对图 5(b) 数据进行傅里叶变换后发现,其调制频率对应于 $B^2\Sigma_u^+ - X^2\Sigma_g^+ - A^2\Pi_u$ 间跃迁的光频率,这表明电离后光诱导多态耦合作用的确在建立 N_2^+ 光增益过程中起着关键作用。

最近,人们利用光诱导多态耦合模型成功地解释了激光偏振效应对 N_2^+ 激射信号强度的影响^[98-99]。如前文所述,与高次谐波不同, N_2^+ 的 $B^2\Sigma_u^+ (\nu'=0) \rightarrow X^2\Sigma_g^+ (\nu=0)$ 的激射强度随着激光椭圆率的增大而先增强而后降低。众所周知,激射信号强度与该跃迁上下能级的粒子数分布之差密

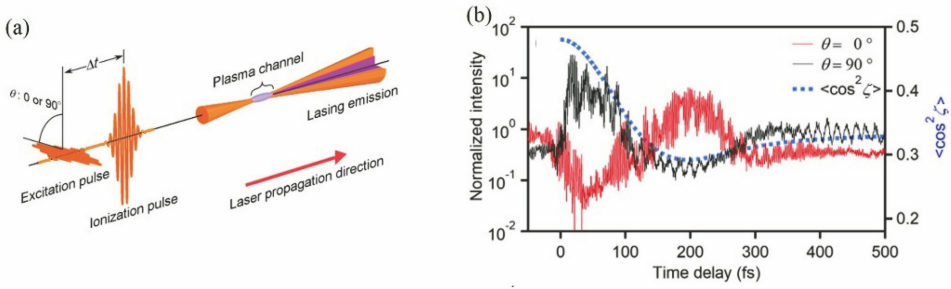


图 5 一对近红外少周期激光脉冲诱导 N_2^+ 产生相干辐射^[97]。(a)装置示意图, θ 代表电离光与激发光偏振的夹角; (b) θ 为 0° (红色)和 90° (黑色)时脉冲对内不同延迟下 N_2^+ 激光信号强度及在温度为 298 K 时, 峰值光强为 $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 脉宽为 7 fs 的激光引起的 N_2^+ 排布演化

Fig. 5 Coherent emission of N_2^+ induced by a pair of near-infrared few-cycle laser pulses^[97]. (a) Schematic of the experimental setup; θ indicates the angle between the polarization of ionization pulse and that of excitation pulse; (b) dependence of the 391-nm N_2^+ lasing intensity on the delay between the ionization and excitation pulses at $\theta = 0^\circ$ (red) and $\theta = 90^\circ$ (black) and the time-dependent alignment (blue dash line) of N_2^+ by the laser field with the laser intensity of $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ and pulse duration of 7 fs at 298 K

切相关,而上能级的粒子数随着激光椭圆偏率的增大而减少。因此,人们认为激光偏振效应对基态 $X^2\Sigma_g^+(\nu=0)$ 粒子数分布的影响导致了偏振激光场中独特的 N_2^+ 激光行为。在电离后的瞬间, N_2^+ 的轴向主要沿着激光偏振方向分布^[100]; N_2^+ 在基态 $X^2\Sigma_g^+(\nu=0)$ 与激发态 $A^2\Pi_u$ 间的跃迁是垂直跃迁。因此,与线偏振条件相比,在椭圆偏激光场,基态 $X^2\Sigma_g^+(\nu=0)$ 与激发态 $A^2\Pi_u$ 的耦合效果更显著,最终导致在椭圆偏激光场中,尽管处于 $B^2\Sigma_u^+(\nu'=0)$ 的粒子数减少,但激发态 $B^2\Sigma_u^+(\nu'=0)$ 和基态 $X^2\Sigma_g^+(\nu=0)$ 间的光增益增大了。需要强调的是,激光偏振效应对 N_2^+ 的 $B^2\Sigma_u^+(\nu'=0) \rightarrow X^2\Sigma_g^+(\nu=1)$ 强度的影响是随着激光椭圆偏率的增大而逐渐减小的,这是由于电离后,处于 $X^2\Sigma_g^+(\nu=1)$ 上的粒子数密度较小,因此, $X^2\Sigma_g^+(\nu=1)$ 粒子数密度变化受垂直耦合调控的作用小,从而导致 N_2^+ 的 $B^2\Sigma_u^+(\nu'=0) \rightarrow X^2\Sigma_g^+(\nu=1)$ 与 $B^2\Sigma_u^+(\nu'=0) \rightarrow X^2\Sigma_g^+(\nu=0)$ 两种激光行为对泵浦激光偏振态具有不同的依赖特性。

由此,人们提出了利用多级 $\lambda/4$ 波片产生的偏振调控激光场来提高 N_2^+ 激光信号强度的方法^[98]。图 6(a)展示了不同多级 $\lambda/4$ 波片下光轴与激光偏振夹角对 N_2^+ 的 $B^2\Sigma_u^+(\nu'=0) \rightarrow X^2\Sigma_g^+(\nu=1)$ 的激光信号的影响。如图 6(a)所示,391 nm 的最强激光信号随着波片级次的增加(0→10)而增强。这是因为在多级偏振调制光场下,用于基态 $X^2\Sigma_g^+(\nu=0)$ 与中间态 $A^2\Pi_u$ 耦合的电场分量随着级次的增加而增大,如图 6(b)所示,处于基态 $X^2\Sigma_g^+(\nu=$

0)的 N_2^+ 粒子抽运到中间态 $A^2\Pi_u$ 的现象更加明显,增加了 N_2^+ 的 $B^2\Sigma_u^+(\nu'=0) \rightarrow X^2\Sigma_g^+(\nu=0)$ 的粒子数反转。

利用 7 级 $\lambda/4$ 波片调控 N_2^+ 激光信号时,人们还发现改变波片光轴与入射激光偏振方向的夹角时, N_2^+ 的 391 nm 激光信号呈非对称式分布。随着光轴与入射激光偏振方向的夹角从 0° 增大到 45° 再增大到 90° 时,激光的偏振态从线偏振变为圆偏振再变为线偏振。与零级 $\lambda/4$ 波片强度对称分布不同的是,在 $0^\circ \sim 45^\circ$ 间 391 nm 激光信号的最大值约为 $45^\circ \sim 90^\circ$ 间最大值的 1/5。结合光诱导耦合模型,人们认为 391 nm 激光信号随着激光偏振变化呈非对称分布的特性是由不同夹角范围内,电离后 N_2^+ 的基态 $X^2\Sigma_g^+(\nu=0)$ 与中间态 $A^2\Pi_u$ 耦合效率的差异导致的。

4 结束语

空气激光作为一个远场二次“辐射”光源,已在探索分子转动相干性、大气传感、光频梳的产生等领域展示了广阔的应用前景。2013 年, Zhang 等^[63] 在测量利用外部注入种子方式产生的 N_2^+ 前向激光信号时发现,飞秒强激光诱导 N_2^+ 产生转动波包,而且分子波包的转动相干性可通过空气激光的傅里叶变换光谱重构。随后, Malevich 等^[101] 展示了利用后向 N_2 激光探测大气内温室气体的可行性。在实验中,他们利用共振转移的激发方式产生了背向 N_2 激光,其在前向传输过程中在探测区与向前传输的 Stokes 光相互作用产生沿后向传输的受激拉曼

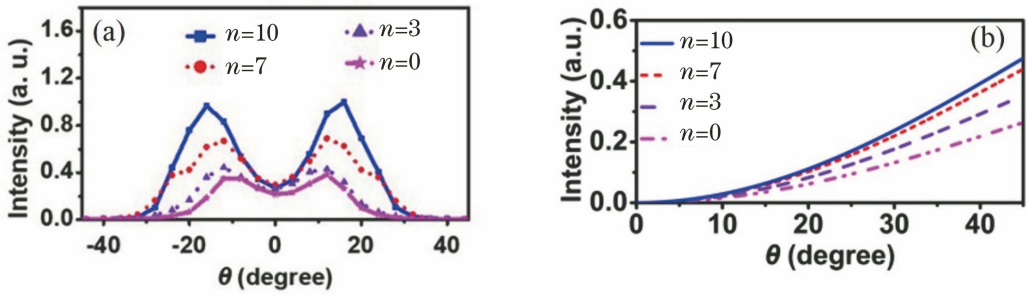


图 6 利用不同级次 $\lambda/4$ 波片调制激光场诱导 N_2^+ 产生激射行为^[98]。(a) 四种级次($n=0, 3, 7, 10$) $\lambda/4$ 波片调制激光场下激光偏振特性对 N_2^+ 的 391 nm 激射信号的影响;(b) 利用不同级次 $\lambda/4$ 波片调整激光偏振时,不同 θ 角下用于 N_2^+ 的基态 $X^2\Sigma_g^+$ 与中间态 $A^2\Pi_u$ 耦合的电场分量,积分时间范围为 $0 < t < +\infty$

Fig. 6 N_2^+ lasing actions induced by the femtosecond laser pulses modulated by the quarter-wavelength plates with different orders^[98]. (a) Dependences of lasing intensity of N_2^+ at 391 nm on the angle θ between the laser polarization and the fast axis of quarter-wavelength plate with four different orders of $n=0, 3, 7$ and 10 , respectively; (b) integrated intensity of the electric component of the laser pulse for the coupling between the $X^2\Sigma_g^+$ and $A^2\Pi_u$ states over the temporal range of $0 < t < +\infty$ as a function of θ for the four quarter-wave plate cases

信号;通过分析拉曼信号可以获得探测区内污染物的种类、浓度等信息。最近,Cheng 研究小组^[102]发现,CO₂ 分子在强飞秒激光脉冲和 N_2^+ 激光共线激发下可以产生多级拉曼散射信号,拉曼位移可以达到 2000 cm^{-1} ,形成了准周期的拉曼光频梳。该现象表明 N_2^+ 空气激光在超快非线性光谱和光频梳等领域具有广阔的应用前景。

自 2003 年被首次提出以来,空气激光已成为当下强场激光物理研究的热点。本文以超强飞秒激光成丝诱导的 N_2 和 N_2^+ 激射行为为例,从现象观测、机理探索以及潜在应用等方面,综述了空气激光的研究进展,并着重介绍了激光偏振效应对 N_2^+ 相干辐射的影响。就目前的研究现状而言,空气激光领域仍面临着一些挑战:1)加深理解各种大气环境、强激光场条件下大气组分电离、解离等产物产生粒子数反转的物理、化学过程;2)寻找新的激发方式和产生手段,提高空气激光的能量转化效率,实现远距离、高强度的空气激光输出;3)研究空气激光与大气污染组分的相互作用过程,拓展空气激光在大气环境方面的应用。总之,飞秒激光技术的发展,尤其是超高功率以及长波长飞秒激光的产生,为空气激光领域的研究提供了更丰富的工具;同时,人们对原子、分子在强激光场下物理性质的更深入了解也会为空气激光的发展提供新思路。随着各种新颖的激发方案的不断提出,不久的将来会实现高强度空气激光的输出。

参 考 文 献

[1] Maiman T H. Stimulated optical radiation in ruby [J]. Nature, 1960, 187(4736): 493-494.

[2] Franken P A, Hill A E, Peters C W, et al. Generation of optical harmonics [J]. Physical Review Letters, 1961, 7(4): 118-119.

[3] Li R X, Leng Y X, Xu Z Z. Progress in superintense ultrafast lasers and their applications [J]. Physics, 2015, 44(8): 509-517.

李儒新, 冷雨欣, 徐至展. 超强超短激光及其应用新进展[J]. 物理, 2015, 44(8): 509-517.

[4] 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.

[5] 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): 1970071.

[6] Li H L, Yao D W, Wang S Q, et al. Air lasing: phenomena and mechanisms[J]. Chinese Physics B, 2019, 28(11): 114204.

[7] Chin S L. Femtosecond laser filamentation [M]. New York: Springer, 2010.

[8] 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.

[9] Xu H L, Chin S L. Femtosecond laser filamentation for atmospheric sensing[J]. Sensors, 2010, 11(1): 32-53.

[10] Liu Y, Chen Z S, Shi J M. Research progress on electromagnetic wave transmission via femtosecond-laser plasma channel [J]. Laser & Optoelectronics Progress, 2019, 56(9): 090002.

刘洋, 陈宗胜, 时家明. 飞秒激光等离子体通道电磁波传输研究进展[J]. 激光与光电子学进展, 2019, 56(9): 090002.

- [11] Xu Q, Su Q, Lu D, et al. Review of terahertz time-domain spectroscopy systems based on laser filament [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2019, 46(6): 0614010.
徐强, 苏强, 鲁丹, 等. 基于激光成丝的太赫兹时域光谱系统研究综述[J]. *中国激光*, 2019, 46(6): 0614010.
- [12] Wang T J, Xu H L. Nonlinear frequency conversion in laser filamentation in air[J]. *Progress in Physics*, 2018, 38(2): 82-91.
王铁军, 徐淮良. 激光大气成丝中的非线性光频转换[J]. *物理学进展*, 2018, 38(2): 82-91.
- [13] Couairon A, Mysyrowicz A. Femtosecond filamentation intransparent media [J]. *Physics Reports*, 2007, 441(2/3/4): 47-189.
- [14] Chin S L, Wang T J, Marceau C, et al. Advances in intense femtosecond laser filamentation in air [J]. *Laser Physics*, 2012, 22(1): 1-53.
- [15] Daigle J F, Kosareva O, Panov N, et al. Formation and evolution of intense, post-filamentation, ionization-free low divergence beams [J]. *Optics Communications*, 2011, 284(14): 3601-3606.
- [16] Liu X L, Cheng W B, Petrarca M, et al. Measurements of fluence profiles in femtosecond laser filaments in air [J]. *Optics Letters*, 2016, 41(20): 4751-4754.
- [17] Yuan S, Chin S L, Zeng H P. Femtosecond filamentation induced fluorescence technique for atmospheric sensing [J]. *Chinese Physics B*, 2015, 24(1): 014208.
- [18] 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.
- [19] Xu H L, Daigle J F, Luo Q, et al. Femtosecond laser-induced nonlinear spectroscopy for remote sensing of methane [J]. *Applied Physics B*, 2006, 82(4): 655-658.
- [20] Li H L, Xu H L, Yang B S, et al. Sensing combustion intermediates by femtosecond filament excitation [J]. *Optics Letters*, 2013, 38(8): 1250-1252.
- [21] Zang H W, Li H L, Su Y, et al. Third-harmonic generation and scattering in combustion flames using a femtosecond laser filament [J]. *Optics Letters*, 2018, 43(3): 615-618.
- [22] Li H L, Zang H W, Xu H L, et al. Robust remote sensing of trace-level heavy-metal contaminants in water using laser filaments [J]. *Global Challenges*, 2019, 3(1): 1800070.
- [23] Fu Y, Hou M Y, Zang H W, et al. Remote discrimination of willow, pine and poplar trees and their growing environments by femtosecond filament-induced breakdown spectroscopy [J]. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 2019, 155: 107-114.
- [24] Hou M Y, Wang S Q, Yao D W, et al. Effects of pulse duration and polarization on femtosecond filament-induced fluorescence of combustion intermediates [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2019, 46(5): 0508024.
侯梦瑶, 王思琪, 姚丹雯, 等. 激光脉宽和偏振效应对飞秒光纤诱导燃烧中间产物荧光光谱的影响 [J]. *中国激光*, 2019, 46(5): 0508024.
- [25] Luo Q, Liu 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.
- [26] Rodriguez M, Bourayou R, Méjean G, et al. Kilometer-range nonlinear propagation of femtosecond laser pulses [J]. *Physical Review E*, 2004, 69(3): 036607.
- [27] Salamé R, Lascoux N, Salmon E, et al. Propagation of laser filaments through an extended turbulent region [J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 91(17): 171106.
- [28] Méjean G, Kasparian J, Yu J, et al. Multifilamentation transmission through fog [J]. *Physical Review E*, 2005, 72(2): 026611.
- [29] 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.
- [30] Hosseini S, Azarm A, Daigle J F, et al. Filament-induced amplified spontaneous emission in air-hydrocarbons gas mixture [J]. *Optics Communications*, 2014, 316: 61-66.
- [31] 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.
- [32] Yuan S, Wang T J, Lu P F, et al. Humidity measurement in air using filament-induced nitrogen monohydride fluorescence spectroscopy [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 104(9): 091113.
- [33] Dogariu A, Michael J B, Scully M O, et al. High-gain backward lasing in air [J]. *Science*, 2011, 331(6016): 442-445.
- [34] Laurain A, Scheller M, Polynkin P. Low-threshold bidirectional air lasing [J]. *Physical Review Letters*, 2014, 113(25): 253901.
- [35] 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.
- [36] 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.
- [37] 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.
- [38] 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.
- [39] 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.
- [40] Polynkin P, Cheng Y. *Air lasing [M]*. Cham: Springer International Publishing, 2018.
- [41] 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.
- [42] Xu H L, Azarm A, Bernhardt J, et al. The mechanism of nitrogen fluorescence inside a femtosecond laser filament in air [J]. *Chemical Physics*, 2009, 360(1/2/3): 171-175.
- [43] Danylo R, Zhang X, Fan Z Q, et al. Formation dynamics of excited neutral nitrogen molecules inside femtosecond laser filaments [J]. *Physical Review Letters*, 2019, 123(24): 243203.
- [44] 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.
- [45] 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.
- [46] Li Z T, Chu W, Zeng B, et al. Comparative investigations of the spontaneous and stimulated emissions from nitrogen molecules in air with femtosecond laser excitation pulses[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2016, 49(6): 065602.
- [47] 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.
- [48] Sprangle P, Peñano J, Hafizi B, et al. Remotely induced atmospheric lasing [J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 98(21): 211102.
- [49] Peñano J, Sprangle P, Hafizi B, et al. Remote lasing in air by recombination and electron impact excitation of molecular nitrogen [J]. *Journal of Applied Physics*, 2012, 111(3): 033105.
- [50] Kartashov D, Shneider M N. Femtosecond filament initiated, microwave heated cavity-free nitrogen laser in air [J]. *Journal of Applied Physics*, 2017, 121(11): 113303.
- [51] Kocharovskiy V, Cameron S, Lehmann K, et al. Gain-swept superradiance applied to the stand-off detection of trace impurities in the atmosphere[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2005, 102(22): 7806-7811.
- [52] Kunabenchi R S, Gorbal M R, Savadatti M I. Nitrogen lasers [J]. *Progress in Quantum Electronics*, 1984, 9(4): 259-329.
- [53] 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.
- [54] 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.
- [55] Itikawa Y. Cross sections for electron collisions with nitrogen molecules [J]. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 2006, 35(1): 31-53.
- [56] 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.
- [57] 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.
- [58] 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.
- [59] 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.
- [60] 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.
- [61] Ni J L, Chu W, Jing C R, et al. Identification of the physical mechanism of generation of coherent N_2^+ emissions in air by femtosecond laser excitation[J]. *Optics Express*, 2013, 21(7): 8746-8752.
- [62] 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.
- [63] 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.
- [64] 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.
- [65] Xie H Q, Zeng B, Li G H, et al. Coupling of N_2^+ rotational states in an air laser from tunnel-ionized nitrogen molecules[J]. *Physical Review A*, 2014, 90(4): 042504.
- [66] 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.
- [67] 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.
- [68] Lei M W, Wu C Y, Zhang A, et al. Population inversion in the rotational levels of the superradiant N_2^+ pumped by femtosecond laser pulses [J]. *Optics Express*, 2017, 25(4): 4535-4541.
- [69] 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.
- [70] 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.
- [71] 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.
- [72] Arissian L, Kamer B, Rastegari A, et al. Transient gain from N_2^+ in light filaments [J]. *Physical Review A*, 2018, 98(5): 053438.
- [73] Xu B, Jiang S C, Yao J P, et al. Free-space N_2^+ lasers generated in strong laser fields: the role of molecular vibration[J]. *Optics Express*, 2018, 26(10): 13331-13339.
- [74] Chen J M, Yao J P, Zhang H S, et al. Electronic quantum coherence induced by strong field molecular ionization [J]. *Physical Review A*, 2019, 100: 031402.
- [75] 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.
- [76] 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.
- [77] Clerici M, Bruhács A, Faccio D, et al. Terahertz control of air lasing[J]. *Physical Review A*, 2019, 99(5): 053802.
- [78] Lofthus A, Krupenie P H. The spectrum of molecular nitrogen [J]. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 1977, 6(1): 113-307.
- [79] Zhao S F, Jin C, Le A T, et al. Determination of structure parameters in strong-field tunneling ionization theory of molecules[J]. *Physical Review A*, 2010, 81(3): 033423.
- [80] 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.
- [81] Liu Y, Ding P J, Lambert G, et al. Recollision-induced superradiance of ionized nitrogen molecules [J]. *Physical Review Letters*, 2015, 115(13): 133203.
- [82] Tikhonchuk V T, Tremblay-Bugeaud J F, Liu Y, et al. Excitation of nitrogen molecular ions in a strong laser field by electron recollisions[J]. *The European Physical Journal D*, 2017, 71(11): 292.
- [83] 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.
- [84] Azarm A, Corkum P, Polynkin P. Optical gain in rotationally excited nitrogen molecular ions [J]. *Physical Review A*, 2017, 96(5): 051401.
- [85] Baltuska A, Kartashov D. 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.

- [86] 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.
- [87] 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.
- [88] Mysyrowicz A, Danylo R, Houard A, et al. Lasing without population inversion in N_2^+ [J]. *APL Photonics*, 2019, 4(11): 110807.
- [89] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization[J]. *Physical Review Letters*, 1993, 71(13): 1994.
- [90] 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.
- [91] 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.
- [92] 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.
- [93] 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.
- [94] Li H L, Hou M Y, Zang H W, et al. Significant enhancement of N_2^+ lasing by polarization-modulated ultrashort laser pulses [J]. *Physical Review Letters*, 2019, 122: 013202.
- [95] Chang Z H. Single attosecond pulse and xuv supercontinuum in the high-order harmonic plateau [J]. *Physical Review A*, 2004, 70(4): 043802.
- [96] Wang S Q, Fu Y, Yao D W, et al. Observation of the optical $X^2\Sigma_g^+ - A^2\Pi_u$ coupling in N_2^+ lasing induced by intense laser field [J]. *Chinese Physics B*, 2019, 28(12): 123301.
- [97] 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.
- [98] 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.
- [99] 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 photoexcited intermediate state [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2019, 36(10): 57-61.
- [100] Pavičić D, Lee K F, Rayner D M, et al. Direct measurement of the angular dependence of ionization for N_2 , O_2 , and CO_2 in intense laser fields [J]. *Physical Review Letters*, 2007, 98(24): 243001.
- [101] 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.
- [102] 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/OL]. [2020-02-20]. <https://arxiv.org/abs/1910.13596>.