

中红外飞秒激光多光子共振激发 CO_2^+ 的自由感应衰变研究

罗雨, 卢琦, 张翔, 庄骋轩, 刘一

(上海理工大学 光电信息与计算机工程学院, 上海 200093)

摘要: 对利用中红外飞秒激光激发 CO_2^+ 产生的前向相干辐射现象进行了系统研究。实验发现在泵浦激光与 CO_2^+ 的 $\tilde{A}^2\Pi_u(\nu'=1) \rightarrow \tilde{X}^2\Pi_g(\nu=0)$ 态跃迁发生五光子共振情况下, CO_2^+ 发出的波长为337 nm的前向相干辐射能够被有效激发。更进一步, 利用泵浦-探测方法对该辐射进行了时间分辨研究。利用探测激光导致的辐射损耗效应, 发现在不同的气压条件下, 337 nm相干辐射的持续时间均在0.8 ps左右, 与气压没有明显关系。基于这一观测结果, 提出该辐射的本质是多光子共振导致的自由感应衰变辐射。研究揭示了利用中红外飞秒激光激发二氧化碳离子产生相干辐射的本质, 指出了强场激光与原子、分子体系共振相互作用过程中自由感应衰变效应的普遍性。

关键词: 中红外飞秒激光; 二氧化碳离子; 多光子共振; 自由感应衰变

中图分类号: F 830 **文献标志码:** A

Free induction decay of CO_2^+ pumped by MIR femtosecond laser pulses via multiple photon resonance excitation

LUO Yu, LU Qi, ZHANG Xiang, ZHUANG Chengxuan, LIU Yi

(School of Optical-Electrical and Computer Engineering, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

Abstract: The forward coherent radiation generated by ionic carbon dioxide molecules excited by tunable mid-infrared femtosecond laser pulses was systematically investigated. The coherent radiation corresponding to the $\tilde{A}^2\Pi_u(\nu'=1) \rightarrow \tilde{X}^2\Pi_g(\nu=0)$ transition of the CO_2^+ can be effectively created when the mid-infrared laser was in multiple photon resonance with the transition. Furthermore, a pump-probe method was used to investigate the temporal evolution of the radiation process. Based on the suppression of the 337 nm radiation effect induced by probe laser pulses, it was found that the duration of 337 nm coherent radiation was about 0.8 ps, which showed no obvious dependence on the gas pressure. In view of this observation, the nature of this coherent 337 nm radiation was free induction decay radiation induced by multi-photon resonance. This study not only reveals the nature of coherent emission of carbon dioxide, but also points out the universality of free induction decay effect in the

收稿日期: 2022-03-25

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(12034013); 国家外专局资助项目(G2021013007)

第一作者: 罗雨(1995-), 男, 硕士研究生. 研究方向: 空气激光. E-mail: yu_yan_luo@163.com

通信作者: 刘一(1978-), 男, 教授. 研究方向: 超快非线性光学. E-mail: yi.liu@usst.edu.cn

resonant interaction of high-field laser with atoms and molecules.

Keywords: mid-infrared femtosecond laser; carbon dioxide ions; multi-photon resonance; free induction decay

在过去10年里,空气中无腔激射效应引起了世界范围内诸多研究组的极大兴趣^[1-12],该效应源于超快激光在大气中的非线性成丝传输现象。飞秒激光成丝过程蕴含着丰富的物理效应,如多光子电离和隧穿电离、超连续谱产生、微波和太赫兹辐射、空气激光效应等^[13]。空气激光效应是飞秒激光成丝传输过程中备受关注的新兴研究课题之一,目前,世界范围内约有30多个研究小组致力于研究氧气、氮气、氩气以及二氧化碳等空气组分的空气激光效应^[1-7,14-15],该效应已经成为超快非线性光学领域的一个热点。

研究表明,在适当的泵浦激光波长、激光强度和气压条件下,在氧气、氮气、氩气、二氧化碳及水蒸气中均可获得前向或后向相干“激光”辐射。对于这些不同“空气激光”效应的物理机制,除了氧原子的相干辐射机制被证明为超辐射^[1,11,16],关于 N_2^+ 、Ar和 CO_2^+ 的相干辐射机制仍有较大争议或尚未可知^[4,7,9,14-15,17-23]。近几年,科研人员对 N_2^+ 空气激光效应进行了大量研究^[4,7,9,17-23]。在采用钛蓝宝石激光器输出的800 nm飞秒激光泵浦氮分子离子时,前向391.4 nm辐射相对于泵浦脉冲呈现出气压依赖的皮秒量级特征时间延迟。有研究表明,随着等离子体丝长度的增加,391.4 nm辐射的时域轮廓出现振荡现象。研究者们根据这些特征,认为该相干辐射是超辐射^[7,11,24]。而利用光参量放大器(optical parametric amplification, OPA)输出的中红外(middle infra-red, MIR)可调谐激光脉冲(1.1~2.6 μm)泵浦氮气分子离子时,前向391.4 nm辐射却无显著时间延迟,并没有呈现出超辐射的特征。根据这一重要特征,作者提出在中红外泵浦时, N_2^+ 的高能级激发态 $\text{B}^2\Sigma_g^+$ 和低能级 $\text{X}^2\Sigma_g^+$ 态是被中红外激光脉冲通过三光子或五光子共振激发的,此时391.4 nm辐射本质是自由感应衰变(free induction decay, FID)效应。FID是一种典型的相干瞬态光学效应,是由大量发光原子或分子在具有共同的偶极距相位时产生的相干辐射,在多种原子和分子体系中均已被观察到^[25-27]。

与MIR激光脉冲泵浦 N_2^+ 产生391.4 nm辐射信

号相似,可调谐的MIR激光脉冲泵浦 CO_2 时,可产生来自 CO_2^+ 的波长约为337 nm的相干辐射^[14]。该辐射对应于 CO_2^+ 从 $\tilde{\text{A}}^2\Pi_u(\nu'=1)$ 态到 $\tilde{\text{X}}^2\Pi_g(\nu=0)$ 态的跃迁。然而, CO_2^+ 的这种相干辐射目前很少被关注,其性质和物理机制在很大程度上是未知的。

本实验通过改变泵浦波长、 CO_2 气压等实验参数,系统研究了可调谐中红外激光脉冲泵浦 CO_2^+ 产生的前向337 nm相干辐射。在中红外激光波长1600~1700 nm、气压50~1000 mbar的条件下,观测到窄带的337 nm辐射峰叠加在飞秒激光成丝过程中产生的宽带5次谐波辐射之上。为研究337 nm辐射的时间特性,进一步开展了泵浦-探测实验。实验中,在MIR泵浦脉冲之后,注入波长为800 nm的飞秒激光作为探测脉冲。光谱和时间分辨的结果表明,在时间零点之后,337 nm信号因为800 nm探测脉冲的作用而显著下降。随着泵浦光和探测光时间延迟的增加,337 nm信号的恢复时间约为0.8 ps,这一关键信息给出了337 nm辐射的脉冲持续时间。更重要的是,在气压从50~700 mbar的变化过程中,337 nm辐射持续时间与气压几乎无关,始终保持在0.8 ps左右。这一观测结果表明来自 CO_2^+ 的337 nm相干辐射的本质是自由感应衰变,与超辐射效应的特征完全不同。本研究阐明了飞秒激光泵浦 CO_2^+ 产生的相干辐射的物理性质,也进一步丰富了强场物理中的FID现象,揭示了原子、分子体系与强场飞秒激光共振相互作用过程中FID效应的普遍性。

1 实验装置与过程

实验中使用Spectra-Physics公司的商用飞秒激光及OPA系统。该飞秒激光系统输出中心波长为800 nm、重复频率为1 kHz、脉冲宽度为35 fs的激光脉冲。实验装置如图1(a)所示,图1(b)为对应的离子能级图。

飞秒激光系统(单脉冲能量为5.6 mJ)输出的激光脉冲被分束镜BS分成两束能量均为2.8 mJ的激光。第一束激光通过反射镜M1, M2, M3, 然后泵浦一个OPA系统。OPA系统在中红外范围内

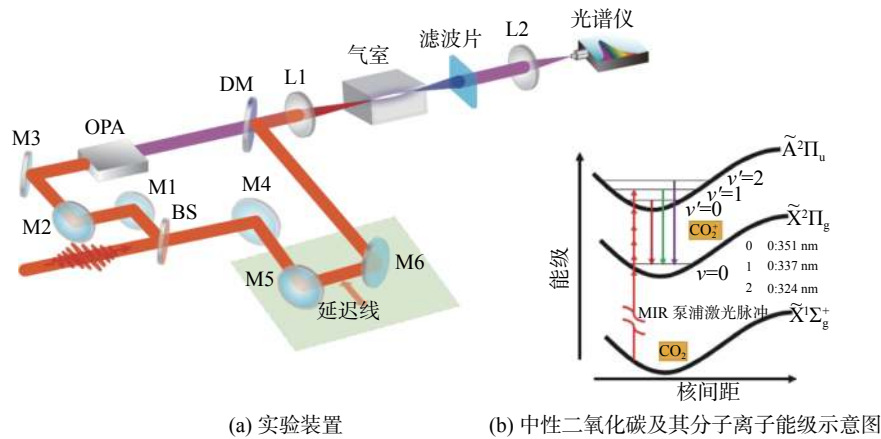


图 1 实验装置及能级示意图

Fig.1 Schematic diagram of the experimental setup and energy level

(1 100~2 600 nm)产生波长可调谐的激光脉冲,作为泵浦脉冲激发 CO₂ 气体。在不同的波长条件下,中红外泵浦激光脉冲的能量在 100~200 μJ 之间变化。在实验过程中,通过使用可调光学衰减片,将不同波长泵浦激光脉冲的能量固定在 110 μJ。第二束 800 nm 激光脉冲在经过光学衰减片后,脉冲能量降低到约 170 μJ,其作为探测光束。探测光先经过反射镜 M4, M5, M6,再经过二向色镜 DM 反射后与中红外泵浦激光脉冲合束。由反射镜 M5 和 M6 组成的光学延迟线可以精确地调节 MIR 泵浦激光脉冲与 800 nm 探测激光脉冲之间的时间延迟。MIR 泵浦激光脉冲和 800 nm 探测激光脉冲通过焦距 35 mm 的光学透镜 L1 聚焦于纯 CO₂ 气体中。

在 MIR 泵浦激光的焦点附近,二氧化碳分子被光场电离,产生肉眼可见的长约 3 mm 的明亮等离子体细丝。在激光传播方向,在光路上放置合适的光学滤波片(BG40 或中心波长在 400 nm 的短波通滤波片)或中心波长为 335 nm 的干涉滤波片(带宽为 20 nm)进行光谱滤波。经过光学滤波片后,利用焦距为 75 mm 的光学透镜 L2 收集前向辐射信号,将该信号耦合进光纤探头从而进入光纤光谱仪(Avantes, AvaSpec-ULS2048CL-EVO)进行光谱分析和记录。

2 结果与讨论

图 2 实验结果展示了 CO₂ 等离子体的前向辐射光谱随泵浦激光波长和气压的变化。在图 2(a)中,气压固定为 140 mbar;在图 2(b)中,泵浦激光波长固定为 1 620 nm。图 2(a)展示了调谐泵浦激

光波长过程中获得的前向辐射光谱。受干涉滤波片 20 nm 带宽的限制,光谱仪仅记录了 325~355 nm 的光谱范围,这一光谱范围对于观测 337 nm 信号是足够的。

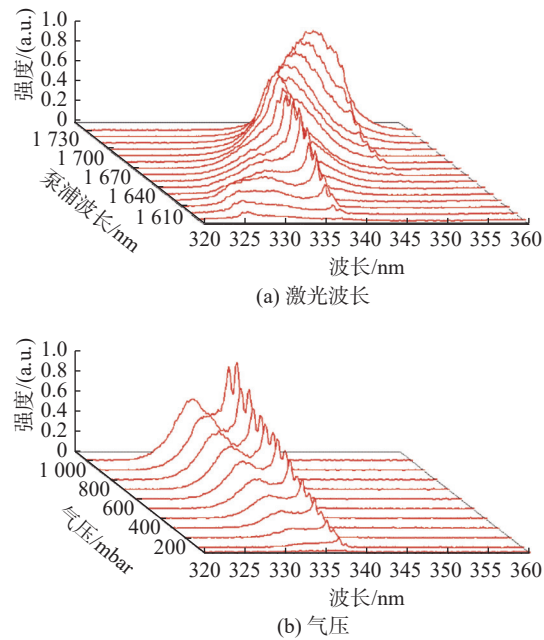


图 2 CO₂ 等离子体的前向辐射光谱随泵浦激光波长和气压的变化

Fig.2 The forward radiation spectra of the CO₂ plasma varies with the wavelength of the pump pulses and the pressure

由图 2(a)可以看出,在泵浦激光波长从 1 590 nm 调谐到 1 670 nm 的过程中,辐射光谱中除了中红外泵浦激光产生的宽带 5 次谐波外,在 337 nm 附近有明显的窄带双峰辐射光谱信号。该 337 nm 辐射来源于 CO₂⁺ 从 $\tilde{A}^2\Pi_u$ ($v'=1$) 态到 $\tilde{X}^2\Pi_g$ ($v=0$) 态的能级跃迁,而光谱分裂导致的双峰结构源于

Renner-Teller 效应^[14]。随着泵浦激光波长的增加, 5次谐波的光谱中心不断红移。当泵浦激光波长进一步调谐到 1670 nm 以上时, 不断红移的 5 次谐波主导了前向辐射光谱, 337 nm 辐射不再显著。进一步研究 337 nm 辐射与 CO_2 气压的关系, 实验结果如图 2 (b) 所示。从图 2 (b) 可以看出, 随着气压从 50 mbar 增加到 1000 mbar, 337 nm 辐射和 5 次谐波信号的光谱强度都逐渐增强, 而光谱线形几乎没有变化。

为了深入理解该辐射的时间动力学过程, 时间分辨测量是必要的。实验中, 337 nm 辐射的强度相当弱, 而且始终叠加在 5 次谐波之上, 因此无法采用广泛应用的和频技术来测量其时域轮廓^[7]。因此, 实验中改变研究思路, 使用一个延迟的 800 nm 飞秒脉冲作为探测脉冲, 抑制该辐射过程^[10, 28]。这一抑制效应基于光谱强度随双光束之间延时的变化, 进而能够提供该辐射持续时间的重要信息。实验中, 控制探测脉冲能量为 170 μJ , 使其可将二氧化碳分子微弱电离。仅用探测激光脉冲激发 CO_2 气体, 用肉眼能观测到非常微弱的等离子体发光, 这证实了电离的发生。此外, 实验中还确保仅有探测脉冲激发情况下, 不存在 337 nm 辐射信号。

在该泵浦-探测实验中, 首先展示了当时间延迟 τ 接近于零点时, 在 403 nm 附近出现一个强度极高的光谱成分。时间延迟零点附近 3 个典型延时的实验结果如图 3 所示。泵浦激光和探测激光脉冲之间的延迟显示在 3 个子图中。为了便于比较, 在图 3(b) 中将 375~425 nm 的光谱强度乘以 0.01。正值时间延迟表示 800 nm 探测激光脉冲滞后于中红外泵浦激光脉冲, 负值延迟时间则相反。在图 3 (a) 中, 当时间延迟 $\tau = -1$ ps 时, 除了 337 nm 处的辐射峰、5 次谐波信号 (在 334 nm 附近) 以及 3 次谐波信号 (在 540 nm 附近) 外, 可以注意到 403 nm 附近探测到微弱的新光谱成分。在 $\tau = 0$ ps 时, 它的强度比 3 次谐波和 5 次谐波的光谱强度高大约 2 个数量级。而在 $\tau = 1$ ps 时, 它的强度降低到几乎无法探测。鉴于该光谱信号所在的波长位置, 可将其归因于泵浦激光脉冲和探测激光脉冲的四波混频效应。

显而易见的是, 泵浦和探测激光脉冲的时间重叠程度对该信号强度变化至关重要, 两者偏离时间零点的情况下, 信号强度则极大降低直至消

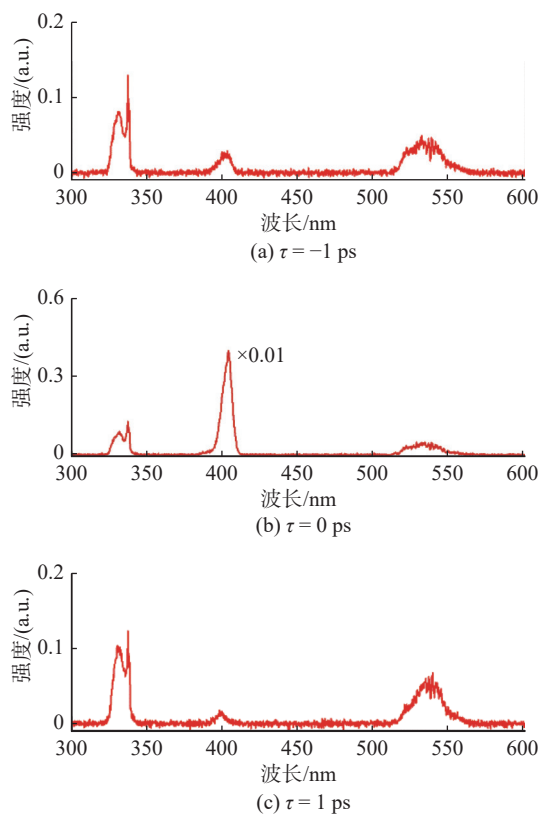


图3 在泵浦激光脉冲和探测激光脉冲不同延时条件下的 CO_2 等离子体前向辐射光谱

Fig.3 Forward radiation spectra of CO_2 plasma with different delay conditions of pump laser pulses and probe laser pulses

失。由于主要关注的是 337 nm 附近的光谱信号, 因此将光学滤波片改为干涉滤波片 (bandpass filter, BP335)。在后续的时间分辨测量中, 过滤出 335 nm 附近的 ± 10 nm 宽的光谱成分。

图 4 展示了在不同的 3 个典型 CO_2 气压条件下, 前向辐射的光谱和时间分辨测量结果, 气压分别为 50, 150, 310 mbar。图 4 (a)~(c) 显示了在不同气压下, 337 nm 附近的光谱成分的时间分辨测量结果。延迟 $-1 \sim -0.5$ ps 的情况下, 800 nm 探测脉冲被关闭, 因此其信号强度为仅有泵浦脉冲情况下的信号强度。在 -0.5 ps 时, 800 nm 探测脉冲开启。图 4(d)~(f) 是 337 nm 光谱强度随着延时的变化, 与上列的图 4(a)~(c) 相对应。

为了全面了解探测激光脉冲对 337 nm 辐射的影响, 探测激光脉冲在 $\tau = -1 \sim -0.5$ ps 的区间内被关闭。因此, 在 $\tau = -1 \sim -0.5$ ps 的区间呈现的辐射光谱对应于仅有泵浦激光脉冲情况下的辐射光谱。在 $\tau = -0.5$ ps 时, 探测激光脉冲开启, 且在时间上领先于泵浦激光脉冲。当探测脉冲开启

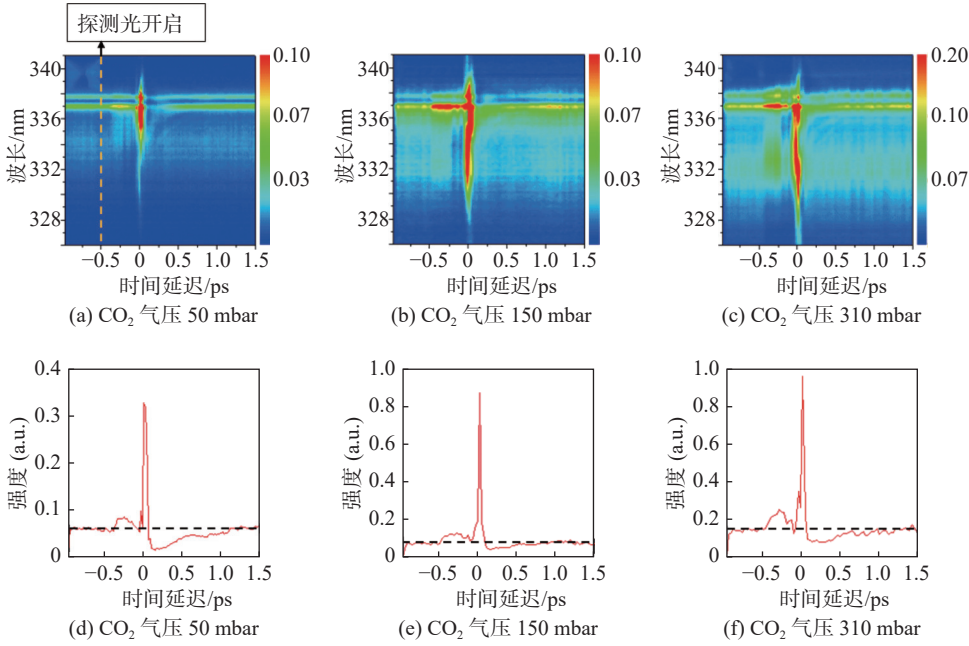


图 4 不同气压条件下 CO₂ 前向辐射光谱与延时的关系

Fig.4 Relation between forward radiation spectra of CO₂ and delay with different atmospheric pressure conditions

后，337 nm 辐射的信号强度在不同气压下均呈现出一定增强。辐射信号的这一增强效应，可以归因于 800 nm 探测激光脉冲对 CO₂ 分子的预电离作用。对于能量为 170 μJ 的探测激光脉冲，在数值孔径为 0.05 的聚焦透镜聚焦下，其激光强度约为 $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 量级，在其焦点附近能够将气体分子电离。在微弱等离子体预先存在的情况下，已经形成了一定浓度的处于基态的 CO₂⁺。对于这部分处于基态的 CO₂⁺，MIR 激光脉冲可以直接和其发生相互作用，而无需 MIR 脉冲电离中性 CO₂ 分子。因此，在不考虑微弱预等离子体对后续 MIR 传输影响的情况下，总的等离子体浓度因为预等离子体的存在而有所上升，从而导致其辐射信号有所增强。这与氧原子空气激光研究中采用预解离脉冲解离 O₂ 分子为氧原子的情况类似。在那种情况下，O₂ 分子的预解离导致氧原子的辐射增强和激发阈值降低^[1, 29]。

其次，图 4 (a)~(c) 中显示出当探测激光脉冲和泵浦激光脉冲在时域上重叠时 ($\tau = 0 \text{ ps}$)，5 次谐波和 337 nm 辐射的信号强度都增加了几乎一个数量级。此情况下的信号增强有两个方面的原因：第一，由于电离率对激光电场强度很敏感，而 1600 nm 和 800 nm 两个激光脉冲在时间上重叠导致两种不同频率的激光电场相干叠加^[13]，这样可以产生更高浓度的等离子体；第二，800 nm 飞秒脉冲将引

起 CO₂ 分子的瞬态准直，经过准直后的 CO₂ 分子在中红外脉冲作用下更易电离，具有更高的电离率。在空气等离子体形成过程中，两个激光脉冲重叠导致等离子体密度增加已经被观测并报道过^[30]。

对于正值的延时，800 nm 探测激光脉冲滞后于 MIR 泵浦激光脉冲。337 nm 光谱信号在 $\tau = 0 \text{ ps}$ 后出现陡然下降，并且在大约 0.8 ps 的时间尺度内呈现出一个缓慢恢复过程。这种 337 nm 光谱信号的降低源于 800 nm 探测激光脉冲对 CO₂ 分子的弱电离而导致的 337 nm 辐射抑制。由 800 nm 探测激光脉冲制备的 CO₂⁺ 绝大部分处于基态 $\tilde{X}^2\Pi_g$ 态，而不是激发态。这是由于非共振的 800 nm 探测激光脉冲强度较弱，最终 CO₂⁺ 在不同能级上的布居以指数形式依赖于电离能，因此电离产生的离子绝大多数处于离子基态，并不具有 $\tilde{A}^2\Pi_u \sim \tilde{X}^2\Pi_g$ 态之间的初始偶极矩。在粒子布居注入到基态 $\tilde{X}^2\Pi_g$ 的情况下，等离子体中 $\tilde{A}^2\Pi_u$ 态和 $\tilde{X}^2\Pi_g$ 态的总体宏观极化将会减小。因此，在 800 nm 探测激光脉冲电离二氧化碳分子并在离子基态注入一定浓度离子的情况下，337 nm 辐射信号会受到抑制。在大约 0.8 ps 后，337 nm 辐射信号的强度恢复到仅有 MIR 泵浦脉冲时的信号强度。这一观测说明 337 nm 辐射在 0.8 ps 之内结束，即该辐射的持续时间约为 0.8 ps。最重要的观测是，在不同气压条件下，该信号的恢复时间始终为 0.8 ps，几乎保持不变，

见图4(a)~(c)。

在 CO_2 气压更大的变化范围内, 337 nm 信号强度随时间延迟 τ 的变化如图5所示。可以看到, 即使在700 mbar以上更高的气压条件下, 信号恢复时间仍然是1 ps左右。这一特征与超辐射过程的性质不同。在超辐射过程中, 由于发光分子或原子之间的协同作用, 随着气压的增加, 辐射过程显著加速, 辐射持续时间与气体压力成反比^[1, 7, 11, 16, 24]。相比之下, 本研究观测到的 CO_2^+ 辐射具备光学自由感应衰变的性质, 即受激发的辐射原子或分子集体以一种相干方式向外辐射, 而各个辐射离子之间的协作效应并未体现, 所以并不能通过增加气体密度来加速辐射过程^[25-27]。可见, 来自于二氧化碳分子离子的337 nm相干辐射在本质上属于自由感应衰变辐射。

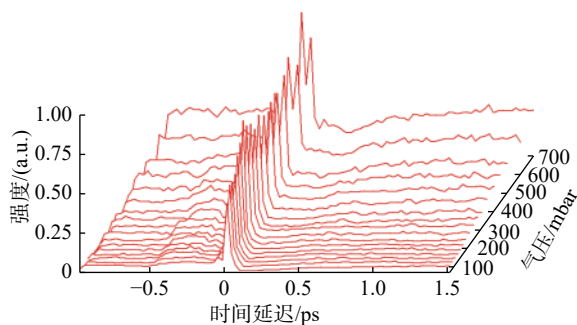


图5 不同气压下337 nm光谱随泵浦与探测脉冲之间延时的变化

Fig.5 Variations of the spectra at 337 nm with the delay time between pump and probe pulses under different pressure conditions

在图5中, 还有一个特征值得注意。在气压相对较低的50~400 mbar范围内, 337 nm信号在探测脉冲开启时($\tau=-0.5$ ps)始终呈显出一定增强。然而, 在气压更高的450~700 mbar的范围内, 这种增强不再显著。可见当气压较高时, 预电离形成的等离子体密度变大, 其对随后的MIR激光脉冲将具有显著的散焦作用。由于预电离形成的等离子体的散焦作用, MIR泵浦激光脉冲的聚焦强度将下降, 导致MIR泵浦 CO_2^+ 效率降低。而当气压较低时, 由于预电离形成的预等离子体密度较低, 这种散焦效应可以忽略。因此, 在较高的气压条件下, 由预电离形成的等离子体引起的辐射增强效应与MIR泵浦激光强度降低导致的辐射减弱效应相互抵消, 最终导致光谱信号在800 nm探测脉冲开启时并无明显变化。

3 结论

对MIR可调谐飞秒激光泵浦 CO_2^+ 产生的337 nm相干辐射进行了系统实验研究。首先测量了该辐射与泵浦激光波长和气压这两个关键实验条件的依赖关系。研究发现, 当泵浦激光的5倍频接近于二氧化碳离子的 $\tilde{A}^2\Pi_u(\nu'=1)\rightarrow\tilde{X}^2\Pi_g(\nu=0)$ 跃迁频率时, 波长为337 nm的信号能够被共振激发, 呈现为叠加在5次谐波之上的窄线宽辐射峰。为了揭示337 nm辐射的时域动力学过程, 实验中采用泵浦探测方法。该方法基于延迟的800 nm飞秒激光由于电离注入基态 CO_2^+ 引起的337 nm信号损耗。在时间零点之后, 在气压从50 mbar增加到700 mbar的过程中, 结果显示337 nm辐射信号的持续时间基本维持在0.8 ps左右。可见, 337 nm辐射的性质是由共振五光子激发的自由感应衰变, 其物理图像类似于可调谐MIR激光脉冲泵浦的 N_2^+ 产生的自由感应衰变过程。本研究阐明了可调谐MIR激光脉冲泵浦 CO_2^+ 产生的337 nm相干辐射的物理机制, 进一步指出了强飞秒激光共振激发不同的原子或分子时自由感应衰变辐射的普遍存在性。

参考文献:

- [1] DOGARIU A, MICHAEL J B, SCULLY M O, et al. High-gain backward lasing in air[J]. *Science*, 2011, 331(6016): 442-445.
- [2] 姚金平, 程亚. 空气激光: 强场新效应和远程探测新技术[J]. *中国激光*, 2020, 47(5): 0500005.
- [3] 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.
- [4] 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.
- [5] 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.
- [6] 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.
- [7] LIU Y, DING P J, LAMBERT G, et al. Recollision-induced superradiance of ionized nitrogen molecules[J]. *Physical Review Letters*, 2015, 115(13): 133203.

- [8] 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.
- [9] 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(1): 8347.
- [10] DANYLO R, LAMBERT G, LIU Y, et al. Quantum erasing of laser emission in N_2^+ [J]. *Optics Letters*, 2020, 45(17): 4670–4673.
- [11] 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.
- [12] LI H L, YAO D W, WANG S Q, et al. Air lasing: phenomena and mechanisms[J]. *Chinese Physics B*, 2019, 28(11): 114204.
- [13] LIU S J, FAN Z Q, LU C H, et al. Coherent control of boosted terahertz radiation from air plasma pumped by a femtosecond three-color sawtooth field[J]. *Physical Review A*, 2020, 102(6): 063522.
- [14] 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.
- [15] DOGARIU A, MILES R B. Three-photon femtosecond pumped backwards lasing in argon[J]. *Optics Express*, 2016, 24(6): A544–A552.
- [16] 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.
- [17] RICHTER M, LYTOVA M, MORALES F, et al. Rotational quantum beat lasing without inversion[J]. *Optica*, 2020, 7(6): 586–592.
- [18] ZHANG X, LU Q, ZHANG Z D, et al. Coherent control of the multiple wavelength lasing of N_2^+ : coherence transfer and beyond[J]. *Optica*, 2021, 8(5): 668–673.
- [19] 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.
- [20] 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.
- [21] LI H X, LÖTSTEDT E, LI H L, et al. Giant enhancement of air lasing by complete population inversion in N_2^+ [J]. *Physical Review Letters*, 2020, 125(5): 053201.
- [22] 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(1): 50.
- [23] AZARM A, CORKUM P, POLYNKIN P. Optical gain in rotationally excited nitrogen molecular ions[J]. *Physical Review A*, 2017, 96(5): 051401.
- [24] 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.
- [25] BENGTTSSON S, LARSEN E W, KROON D, et al. Space-time control of free induction decay in the extreme ultraviolet[J]. *Nature Photonics*, 2017, 11(4): 252–258.
- [26] BREWER R G, SHOEMAKER R L. Optical free induction decay[J]. *Physical Review A*, 1972, 6(6): 2001–2007.
- [27] HOPF F A, SHEA R F, SCULLY M O. Theory of optical free-induction decay and two-photon superradiance[J]. *Physical Review A*, 1973, 7(6): 2105–2110.
- [28] DANYLO R, LAMBERT G, LIU Y, et al. Time-resolved study of laser emission in nitrogen gas pumped by two near IR femtosecond laser pulses[J]. *Optics Letters*, 2021, 46(6): 1253–1256.
- [29] LAURAIN A, SCHELLER M, POLYNKIN P. Low-threshold bidirectional air lasing[J]. *Physical Review Letters*, 2014, 113(25): 253901.
- [30] XU H L, AZARM A, CHIN S L. Controlling fluorescence from N_2 inside femtosecond laser filaments in air by two-color laser pulses[J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 98(14): 141111.

(编辑:董伟)