

强场量子相干辐射及应用*

赵晶^{1#} 刘一^{2#} 吴成印^{3#} 姚金平^{4#} 赵增秀^{1†}

(1 国防科技大学理学院, 长沙 410073)

(2 上海理工大学光电信息与计算机工程学院, 上海 200093)

(3 北京大学物理学院, 北京 100871)

(4 中国科学院上海光学精密机械研究所超强激光科学与技术全国重点实验室, 上海 201800)

摘要

近年来, 强场物理与量子光学两个领域交叉产生的物理效应正逐步成为研究热点。融合超快宽谱激发与共振调控, 可在亚周期内制备电子-电子、电子-离子多体纠缠与相干, 进而产生强场相干性诱导的空气激光、超连续辐射与自由感应衰变等新型相干辐射。本文围绕强场量子光学这一新兴交叉领域, 聚焦强场下量子相干辐射及应用, 综述其理论基础、物理机制及潜在应用等方面的现状和挑战。期望以此推动开放系统多体强场量子光学的理论与实验研究, 以及对多自由度强场量子相干性建立、演化与弛豫规律的探索, 拓展强场量子相干辐射与放大机制, 为构建时-频-空稳定可控的新型辐射源、发展远程探测新技术、实现空气激光在痕量分子检测与燃烧诊断等方面的应用提供参考。

关键词: 强场量子光学, 量子相干性, 空气激光, 阿秒脉冲

基金: 国家自然科学基金重大项目(批准号: 12595340, 12595341, 12595342, 12595343, 12595344)资助的课题。

共同第一作者

† 通信作者 e-mail: zhaozengxiu@nudt.edu.cn

1 引言

强场物理与量子光学两个领域的关键研究主题都是光与物质相互作用。传统量子光学主要利用弱光场与原子共振耦合进行能量交换, 侧重于光的量子特性和原子的相干性。强场物理则聚焦于超快强光场作用物质的极端非线性响应, 侧重光的场效应和电子动力学的半经典特性。近十年来, 结合了强场物理和量子光学两个领域的物理效应逐步成为研究热点。这两个光物理领域的结合, 有望开辟强场量子光学这一新的交叉前沿领域, 促进对强场效应和光量子效应并存时复杂物理的深入理解。融合超快宽谱激发和共振激发, 制备和

利用复杂体系强场量子相干性，为调控光与物质相互作用提供了新的维度，正在开拓新的科学领域和技术应用。

在量子光学研究中，通常利用窄线宽长脉冲的弱光与原子分子共振耦合建立体系的相干性，通过控制光场参量调控激发态布居和相干性，光场包络内的动力学演化起着重要作用，如量子光学中典型的拉比振荡（Rabi oscillation）效应等。但是当光场进一步增强时，实验发现拉比振荡不仅依赖于光脉冲包络，还强烈依赖于载波波形，表现出亚周期的量子态调控和量子相干性演化特性，需要采用含时非微扰理论处理^[1,2]。另一方面，强场物理是超快强激光作用于介质的极端非线性过程，涉及原子分子与十几个甚至数百个光子同时相互作用，通常忽略单个光子的共振激发。比如，在典型的强场隧穿电离过程中，由于原子势场被强烈扭曲，目前的理论很少考虑激发态的贡献。如图 1 所示，最近的实验研究^[3-5]表明，强场效应和共振激发可以并存、协同，超快强光场可以制备包含多个激发态的高度非平衡态，涵盖多体、多自由度、多时间尺度动力学，展现了从阿秒电离到皮秒辐射的独特量子特性，为研究强场复杂量子相干系统演化提供了新契机。

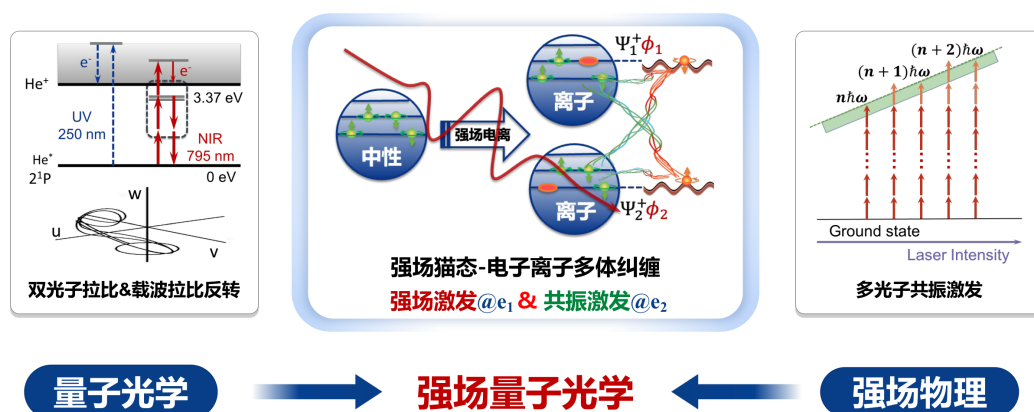


图 1 强场物理与量子光学的交叉。左图为飞秒光场驱动双光子拉比振荡，右图为强场下典型的多光子共振激发，激发能随光强线性增大

Fig. 1 Intersection of strong-field physics and quantum optics. Left panel: two-photon Rabi oscillation driven by a femtosecond laser field; right panel: typical multiphoton resonant excitation in a strong field, where the excitation energy increases linearly with the laser intensity

超快强激光为光与物质相互作用的调控提供了新的手段。以往的工作多关注电子在光场中的亚周期动力学，集中于光电子动力学、阿秒辐射和太赫兹辐射等，对强光驱动体系量子相干特性的关注偏少。超快强光场会导致电离和激发，对体系的态布居和量子相干性有巨大的影响。研究发现在超快强光场下，产生的单价乃至多价离子可以处于多个量子态的相干叠加态^[6-9]。对分子体系而言，电离和激发的同时也建立了振动和转动相干性，与电子运动之间的非绝热耦合导致体系相干性在多个自由度间转移。传统量子光学理论涉及的能级数目较少，典型的例子是三能级模型，如 V 型、 Λ 型和阶梯型耦合结构。强光场下，

能级数目会极大增加，特别是电子运动、核的振动和转动等多自由度存在动力学耦合以及级联过程，涉及的量子态数目可达数万。电子态、振动态以及转动态之间的量子相干性导致体系呈现出独特的光吸收与辐射特性^[10-12]。

在中性分子电离成为离子的过程中，强场驱动在超快时间尺度上形成电子-离子纠缠^[13-16]，产生多通道电离及多通道相干性^[17]。光电子及离子的纠缠，对后续的离子体系相干演化具有重要影响^[18-20]。强光驱动的电子关联可以诱导多电子态相干激发，导致无需核运动参与的相干电荷迁移^[21-23]以及核运动参与的电荷转移。虽然电子运动远快于核运动，但在阿秒尺度的激发过程中，电子和核的非绝热耦合仍不可忽略^[24]。电离、激发和解离制备量子相干性的同时也会导致离子退相干，比如核运动可以导致电荷相干迁移过程出现退相干和复相干现象^[25-27]。对这些现象和机制的深入理解，要求着眼于量子相干性及其效应，发展多体多自由度开放系统的强场量子相干光学理论，以及发展振转分辨的实时探测手段，实现量子相干时空演化的精密诊断。图 2 以氮气分子为例，给出了强场下多电子、多自由度量子相干演化动力学及其辐射效应。

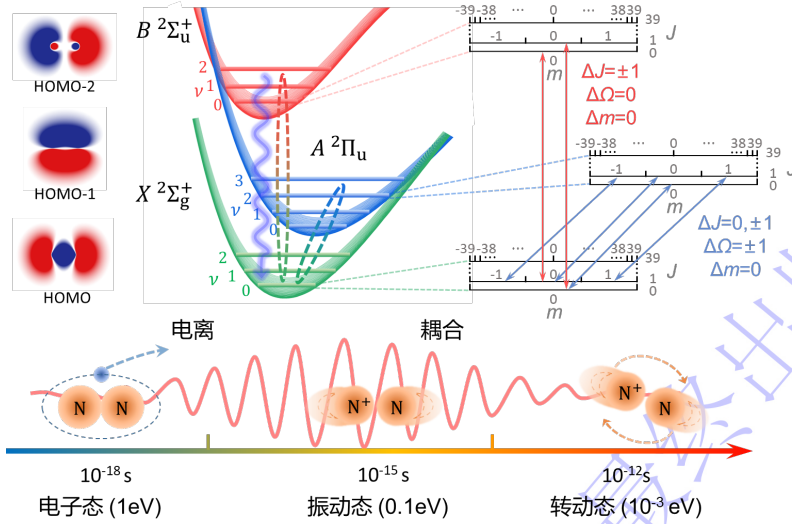


图 2 以氮气分子为例，展示强场下多电子、多自由度量子相干演化动力学及其辐射效应

Fig. 2 Multi-electron, multi-degree-of-freedom quantum evolution dynamics and the associated emission in a strong field, illustrated with the nitrogen molecule

近年来，强场量子光学效应受到物理学界广泛关注。量子相干性的作用并不限于强场领域，它对于提升量子热机功率^[28]、加速视觉过程中的光致异构化^[29]和增强光合作用过程中的能量输运效率^[18]等同样有着重要影响。在原子体系中，围绕强场过程的单电子态相干性已有一系列代表性工作，例如 Pfeifer 等在氦原子中实现法诺线型调控^[30]，L'Huillier 等发现真空紫外波段的自由感应衰变（free induction decay）^[31]，Kern 等实现了电子相干的阿秒调控^[32]。在强场驱动产生的非平衡体系中，量子相干性对空气激光等相干辐射起着

关键作用^[33]，如图 3 所示。例如，Miles 等利用紫外超快光场共振激发氧气，在空气中观测到氧原子的激射^[34]。由于超强超短激光具有宽谱激发特性，在分子体系有可能同时制备电子-振动-转动多体多自由度的复杂量子相干性^[35,36]。2011 年，上海光机所与吉林大学等单位合作，利用超快强光场激发空气分子，发现了强场电离诱导的氮气离子空气激光^[37]。该现象是强光场作用下电子、振动和转动多自由度量子相干性强耦合的结果，其复杂的机理突破了现有的强场物理和量子光学理论，备受争议。各国科学家提出了粒子数反转放大、超辐射、再散射、共振四波混频等机制，但其核心机制尚不清晰^[38,39]。

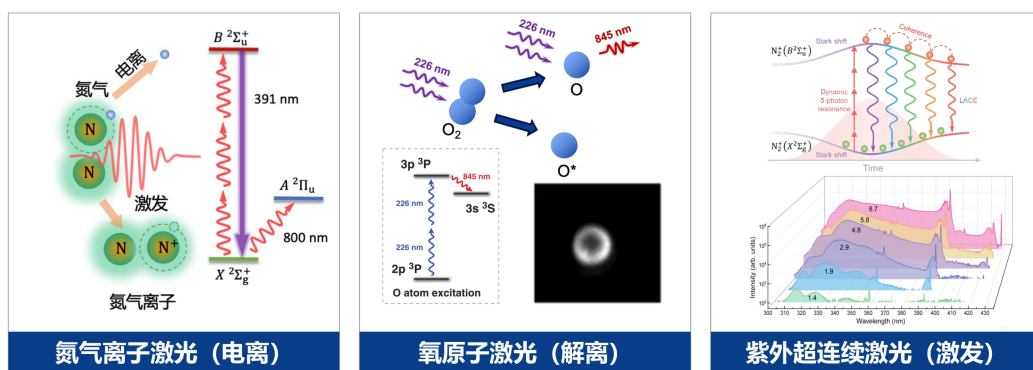


图 3 强场驱动分子电离、解离和激发诱导新型相干辐射（源自文献[11,34,37,40]）

Fig. 3 Novel coherent emission induced by strong-field-driven molecular ionization, dissociation and excitation (adapted from Refs. [11,34,37,40])

围绕这一争议，十余年来国内多家单位开展了系统研究。2016 年上海光机所与北京大学、南京理工大学等单位合作，揭示了多电子态耦合和核波包动力学对于粒子数反转的贡献^[3]。2019 年吉林大学研究团队利用时域偏振整形技术将氮气离子激光辐射强度提升了两个数量级^[41]。2020 年国防科大研究团队提出电离-耦合理论，将强场电离与离子的光耦合同步处理^[42]，并分析了转动相干性的作用^[43]。2021 年上海理工大学研究团队揭示了空气激光产生过程中的振动相干效应^[44]。2022 年国防科大和上海光机所等单位合作，发现了强场多光子共振和隧穿电离协同作用诱导的紫外超连续辐射^[11]；2024 年进一步揭示了高效离子激发新机制^[4]。北京大学、华中科技大学、华东师范大学、南开大学、兰州大学等单位也开展了相关研究^[45-49]，分别从电子态耦合、振动相干与转动相干切入，针对空气激光产生机制开展了系统的研究。

在应用方面，如何产生更远、更强的空气激光以满足遥感需求，国内外还发展了多条技术路线。作为一种新型激光光源，空气激光与传统激光器相比，不需要谐振腔，可以在自由空间远程产生，并具有很好的方向性。与超强超短激光诱导的其他辐射不同，空气激光具有非常细锐的光谱，体现了原子分子体系的共振特性，因此为物质检测提供了精细的

光谱探针。空气激光独特的优势，使其在爆炸物探测、大气检测、燃烧诊断等领域具有重要的应用价值。

以强场量子相干性诱导的空气激光、超连续辐射、自由感应衰变等为代表的强场量子光学研究初见端倪，其中蕴含着光与物质相互作用的新物理与新机制。然而，这一新兴前沿领域存在着前所未有的挑战：

（1）强场量子光学效应对现有理论提出挑战，亟待发展能够处理开放多体强场量子光学效应的理论方法。强场电离制备极端非平衡物质状态，涉及光电子和离子多自由度、多时间尺度复杂动力学及其与光场的后续相互作用。理论上需准确处理同时包含电子态、振动态和转动态，多达数万能级与超快光场的复杂相互作用，实现复杂体系非稳态相干演化的精确刻画。

（2）空气激光的增益机理至今尚未定论。该效应中电子、振动、转动态均被相干激发且不同自由度相互耦合，各自由度对增益的贡献相互交织，核心机制难以甄别。因此，破解空气激光的增益机理，需要发展能够处理多自由度复杂量子系统的理论工具和多维光谱技术等先进实验技术，揭示多自由度相干性的建立、演化、弛豫规律，厘清它们各自的贡献。

（3）多体多自由度量子相干性的表征对现有技术提出重要挑战。强场电离瞬时注入的离子体系具有复杂的多自由度量子相干性，涉及电子-振转耦合、光电子再碰撞动力学、相干布居转移等。对多时间尺度复杂动力学特别是量子相干性进行精确刻画，需要发展具有阿秒时间分辨、振转精细结构分辨能力的精密诊断技术，实现布居演化与相干性转移的时间-频谱分辨测量。

（4）基于强场量子相干性的新型光源距离实际应用仍有明显差距。这类光源虽具备前述独特优势，但输出能量较低，且飞秒激光成丝会产生超连续辐射等强背景噪声。因此，开拓其实际应用，不仅需要通过调控体系的量子相干性获得时-频-空稳定可控的输出与高亮度背向相干辐射，而且需要发展高灵敏度、高精度的远程探测技术。

本文首先分析强场诱导产生量子相干性涉及的各种动力学过程，重点归纳以氮气离子激光为代表的强场诱导辐射研究现状，总结多体多自由度开放系统的强场量子相干光学理论难点，以及强场量子相干性时空诊断对多维光谱和阿秒时间分辨实验技术的需求，最后展望强场量子相干辐射的调控和应用。

2 强场诱导量子相干性基本物理过程

电子在强激光场中的亚周期动力学及其辐射特性已有深入研究^[50,51]，但是目前对原子分子体系在强激光场驱动下体系所产生的复杂量子相干性的认识仍有待深入。下面从基本物理过程出发分析超快强场诱导量子相干性所涉及的各种动力学。对其中规律的探索，有助于推动强场物理与量子光学的融合，发现新的强场量子光学效应。在此基础上，可以通过强场激发、电离、解离和共振耦合等手段实现对原子分子体系量子相干特性的超快调控，并拓展空气激光、超连续相干辐射等新型光源的产生技术与应用。

(1) 强场电离与激发诱导单电子态相干性

强场电离和激发涉及丰富的物理过程，所诱导的量子相干性使体系的动力学与辐射呈现出独特的性质。实验表明隧穿电离包含极化部分，导致存在可逆隧穿过程和电离几率随脉冲周期非单调增长^[52]。进一步的研究表明，强场离子芯的动态极化（相干性）可以导致外壳层电子强场电离的抑制，出现反屏蔽现象^[53]。另外强场电离可以导致中性原子的里德堡态激发，其机制被广泛认为源于隧穿电离产生的光电子被母离子重新俘获，形成中性高激发态^[54]；这一过程不同于高次谐波产生，后者对应光电子复合回到初始基态并伴随辐射。强场激发里德堡态与传统多光子共振激发里德堡态是否存在差异，强场产生的里德堡态与基态是否存在量子相干性及如何确定和调控其量子相干性是目前广泛关注的重要问题。这些相干性的存在与效应，可通过辐射加以检验。实验发现强场激发制备的中性里德堡态与基态构成的猫态，在光场结束后其退相干时间可以很长。较长的相干寿命导致自由感应衰变，产生线宽很窄的极紫外（XUV，extreme ultraviolet）辐射^[33,55]。已有实验^[56]表明离子也存在自由感应衰变，后续研究发现强光驱动猫态可以产生超连续辐射^[11]。基态与低激发态的相干性还会打开其它高次谐波辐射通道。例如电子由激发态电离后复合到基态，产生激发态高次谐波（e-HHG，excited-state high-harmonic generation）过程^[57]。

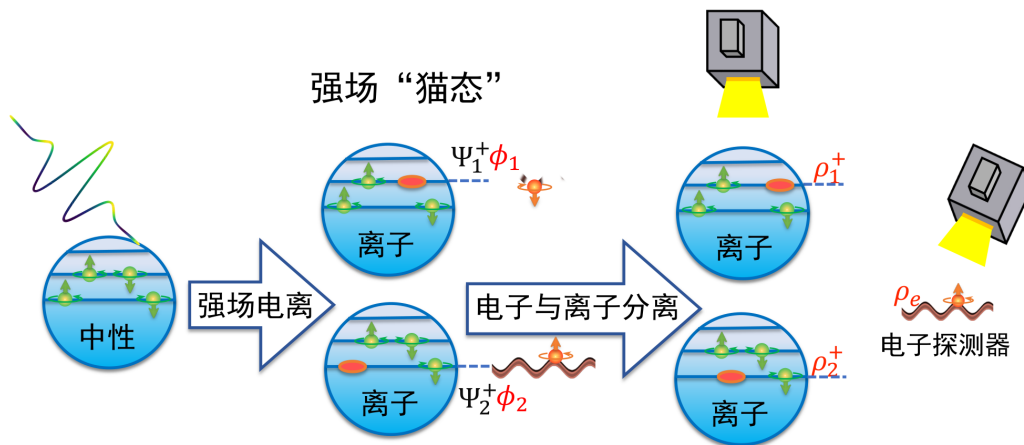


图 4 强场隧穿电离诱导的离子-光电子纠缠及其相干演化

Fig. 4 Ion-photoelectron entanglement induced by strong-field tunneling ionization and its coherent evolution

强场电离使中性分子失去电子，导致光电子发射并产生离子。但是如图 4 所示，在超快光场下，产生的离子可以处于若干电子态的相干叠加^[6,7,9,17,58]，即薛定谔猫态，其相干性对脉冲持续时间有着强烈的依赖性，脉冲越短相干性越强。二价乃至多价电离产生的离子态同样可以是多个量子态的相干叠加^[8,59]。这种量子相干性源于强场电离或激发对瞬时电场的指数依赖，电离和激发发生在亚周期的超短时间内^[60]，大量的量子态同时参与，导致瞬时局域的相干激发。同样，对于阿秒光脉冲激励的光电离和光激发过程^[61]，由于其超短脉冲时间对应超宽光谱，可以覆盖大量的激发态甚至是连续态，从而导致体系的相干布居。与此同时，体系与光场的持续作用，以及电离/激发电子与母核的多电子、多自由度相互作用会导致体系相干性的弛豫和转移，呈现出对泵浦脉冲宽度、电场强度及体系内电子关联依赖的复杂规律。

(2) 强场电离与激发诱导分子体系振转多自由度量子相干性

电子激发的同时伴随着振动相干性和转动相干性的建立。通常认为超快电离时核状态来不及改变，即在每一个核间距下电子态垂直跃迁到对应的离子态或激发态。中性初态波函数由此投影到离子体系的振动本征态，导致离子的振动相干性，其分布为 Franck-Condon (FC) 分布，此即 FC 原理^[62,63]。Zhang 等研究表明在电离的同时离子与光场的进一步耦合，可以导致偏离 FC 分布^[42]。如果电离产生的光电子动量很大（比如阿秒光电离），光电子与核的散射可以进一步产生振动相干，破坏 FC 原理^[64]。除了强场电离可以导致离子产生振动相干性，强激光与分子的强相互作用也可以产生中性分子的振动相干性，如图 5 所示^[35,65]。其机制可以是随核间距 R 变化的电离损耗（R-dependent depletion）^[66]或者键软化^[67]。

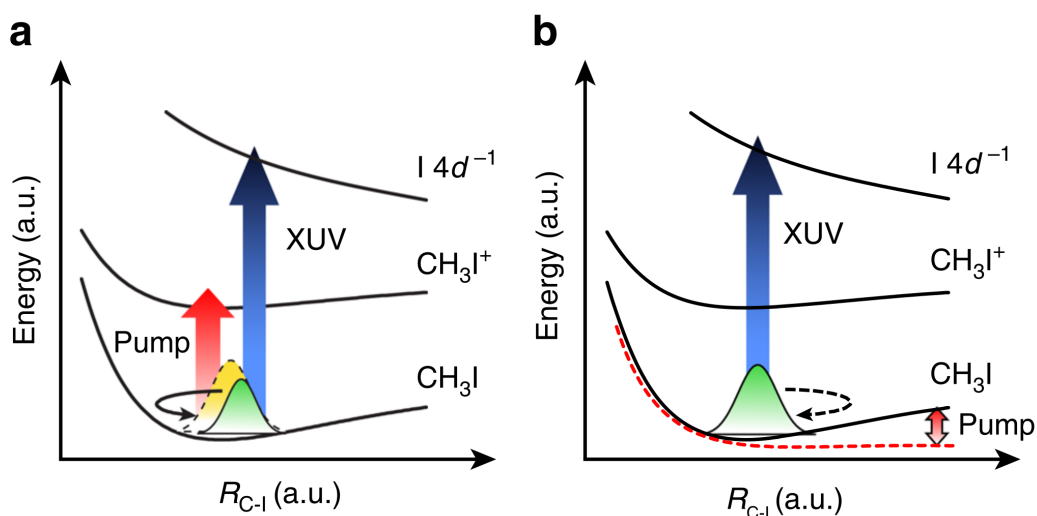


图 5 随核间距变化的电离损耗导致的振动激发和键软化导致的振动激发（源自文献^[65]）

Fig. 5 Vibrational excitation caused by the internuclear-distance-dependent ionization depletion and by bond softening (adapted from Ref. [65])

(3) 非绝热耦合效应诱导电子-核相干性转移

电离或光激发后的分子体系会产生核波包。在其演化过程中，一方面可以通过光场耦合实现电子-振动态之间的相干性转移^[12,42,68,69]，另一方面也可以通过核与电子运动的非绝热耦合诱导相干性的转移与演化。后者在势能面的锥形交叉点表现得尤其明显。光电离或激发制备的核波包在一个势能面上运动，穿过锥形交叉点时有机会跃迁到另一电子态对应的势能面，从而实现相干性转移。该过程对化学反应调控、分子构型重排^[36]、光致异构化^[29]、基因损伤与修复^[70]非常重要。其它研究表明即使在瞬时电离中，核与电子的耦合也不可忽略^[24,71]。核运动对相干性诱导电荷迁移中的退相干和复相干效应起着决定性的作用^[25,26,72]。

(4) 强场电离诱导电子-离子纠缠

光电离产生的光电子与离子态构成纠缠态^[13-16]。纠缠会限制体系相干性^[73]。Vatasescu 等^[74]指出线性纠缠熵相比于冯诺伊曼熵蕴含更多信息，并且用啁啾脉冲调控电子态之间耦合有可能实现电子自由度与离子振动自由度纠缠的控制。德国马普所 Vrakking 等^[19]考虑双阿秒脉冲电离氢分子形成的氢分子离子+光电子复合体系，表明二者之间的纠缠对离子和光电子各自的相干演化有重要影响。通过改变双脉冲时间延迟或对阿秒脉冲施加啁啾，可以控制纠缠^[19,75]并实现纯态到混态的转变^[20]。对阿秒纠缠和相干性进行解析分析，可以获取纠缠和相干性如何形成和转化^[76]。另外，电子关联与纠缠以及电子与核耦合诱导振动相干性对光电离时间延迟也存在影响^[71,77,78]。深入研究强场电离过程中的超快纠缠与相干演化，有助于理解上述现象。

(5) 强场诱导多电子相干性与电荷迁移

单电子态量子相干性的制备可以利用超快泵浦实现多态激发。实际体系多为多电子体系，电子的关联在光电离或者光激发时可以导致多电子态相干激发，其弛豫过程决定了单电子态相干性及单电子辐射通道和各种跃迁过程。特别是，原子的强场激发和电离导致离子跃迁到不同的激发态，形成多通道电离与通道间相干^[17]。电子之间的多体作用可驱动不涉及核运动的电荷迁移^[21-23]，以及有核运动参与的电荷转移。其中电荷迁移持续时间不仅取决于多个参与的离子电子态的相干性^[79,80]，也受核运动自由度的影响^[81-83]。理解强场电离时二者的交互，对于电离分子的演化至关重要^[64]。对于大分子和生物分子，退相干过程起着重要作用^[80]，电荷迁移的不同模式有不同的时间尺度^[84]。图 6 展示了 CO₂ 分子在垂

直于分子的激光电场驱动下产生的电子空穴在亚周期内的演化，空穴振荡时间小于 260 阿秒。

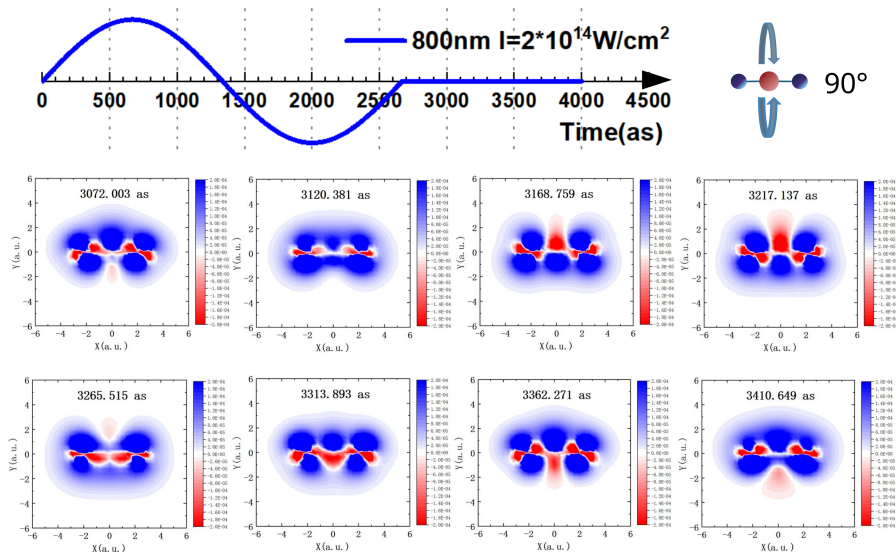


图 6 亚周期强光电离产生空穴密度随时间的演化^[85]

Fig. 6 Temporal evolution of the hole density created by sub-cycle strong-field ionization [85]

同样地，阿秒光瞬时电离也会产生局域电子空穴，其随时间演化导致电子在分子骨架上的迁移。结合红外光产生二价电离，观测到电荷出现小于 5 飞秒的振荡。该振荡快于相干振动的时间尺度，表明在分子结构重排之前电荷已经转移，反映出多电子关联与相干在电荷迁移中的作用^[86]。电子与核相干性在电荷迁移中的作用可以借助时间分辨的阿秒瞬态吸收进行深入研究^[10]。Goulielmakis 等首次借助时间分辨的阿秒瞬态吸收对氦原子的电子相干性实现了诊断^[7]。此后该技术被推广至氦原子二价电离^[8]、其它强场电离的原子与分子体系^[52,87,88]以及固体体系^[89]。运用同样的技术，Matselyukh 等在 SiH₄ 中发现电荷迁移时间约为 690 阿秒，退相干时间长达 15 飞秒，表明原子核运动对相干性的破坏较慢。该过程有中性激发里德堡态的绝热与非绝热动力学共同参与，其中锥形交叉对电子相干性的转移起着重要作用^[35]。深入认识退相干与非绝热耦合对电子相干性及电荷转移的影响，有可能实现以电子相干性为手段的化学动力学操控。强场电离的相干性也可以进一步转移到多价电离的离子^[8,59]。电离的超快特性导致两电子及多电子相互作用的平均场概念失效，提供了超越平均场近似研究电子关联的重要机遇^[90]。

3 基于强场诱导量子相干性的新型辐射

以空气激光为代表的强场量子相干辐射与光放大效应，自被发现以来一直是超快超强光物理领域的研究热点。空气激光具体指以空气中的主要物质成分 (N₂、O₂、Ar) 或其衍生物为增益介质，由强激光驱动的无谐振腔的相干辐射，其概念由加拿大 Laval 大学 S. L.

Chin 小组在 2003 年首次提出^[91]。它具有高亮度、窄线宽、高准直等特性，是远程探测的理想光源。自 2011 年起，不同类型的空气激光效应相继被发现^[31,37]，其增益介质大致分为原子（O、N、Ar），分子（N₂）和离子（N₂⁺）三类。2011 年美国普林斯顿大学 R. Miles 小组率先报道了基于氧原子的空气激光。利用 226nm 的深紫外激光泵浦空气，分别在前向和背向都观测到了来自 O 原子的波长 845nm 的相干辐射信号，掀起了空气激光研究的热潮^[31]。随后研究人员利用深紫外强激光脉冲观测到了来自 N 原子的背向受激辐射^[92,93]。但是，波长小于 230nm 的深紫外激光无法在大气中远程传输（衰减距离小于 150m），所以对实际光学遥感应用而言，基于 O 和 N 原子的空气激光方案存在很大局限性。2016 年，Miles 小组进一步报道了来自 Ar 原子的空气激光，其所采用的 262nm 泵浦激光在大气中所受衰减则不再显著^[94]。2024 年 Nie 等人基于氮气分子参与的能量转移机制，利用 262nm 泵浦光在大气环境中成功实现了 Ar 原子的双向辐射^[45]。这些原子类空气激光的研究进展为其实际应用提供了可能。

上海光机所与吉林大学研究团队于 2011 年在国际上首先报道了强场电离诱导的空气激光^[37]。实验中采用中红外飞秒激光泵浦空气，通过调节泵浦激光波长，实现了不同波长的空气激光辐射，典型波长为 391nm、428nm、471nm 等。图 7 给出了该实验的结果和相应的能级图，这些辐射对应于氮气离子第二电子激发态与基态之间各个振动态的跃迁。随后研究发现利用波长 800nm 的飞秒激光作为泵浦光，不仅能观察到类似的相干辐射^[95-97]，而且还实现了种子光的相干放大^[3]，吸引了世界范围内多个研究小组的高度关注^[98-101]。目前，空气激光已发展成为强场非线性光学的新兴前沿方向^[102]。

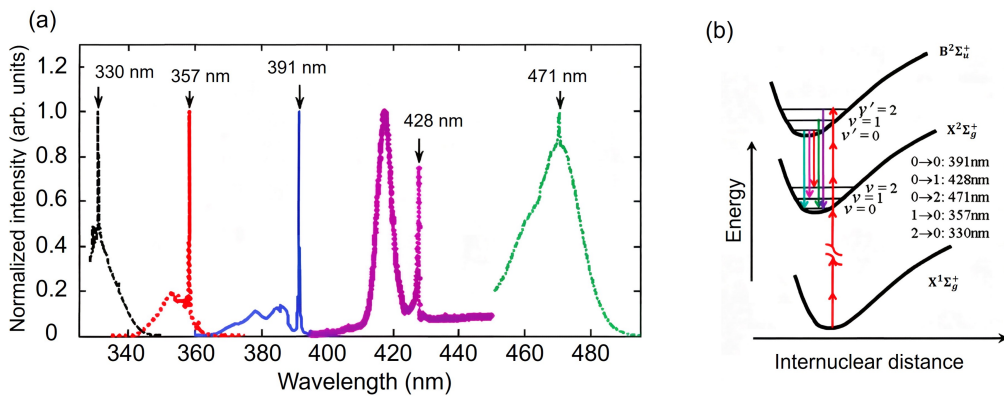


图 7 N₂⁺空气激光效应。(a)氮气离子在不同波长处产生的空气激光辐射；(b)在强激光驱动下氮气分子单电离产生氮气离子，氮气离子 $B^2\Sigma_u^+(v') \rightarrow X^2\Sigma_g^+(v)$ 跃迁的能级图及其对应的辐射波长（源自文献^[37]）

Fig. 7 N₂⁺ air lasing. (a) Air-lasing emission generated from nitrogen molecular ions at different wavelengths; (b) singly ionized nitrogen molecules produced under strong-field driving, together with the energy-level diagram of the $B^2\Sigma_u^+(v') \rightarrow X^2\Sigma_g^+(v)$ transition of N₂⁺ and the corresponding emission wavelengths (adapted from Ref. [37])

在氮气离子空气激光实验研究方面，初期的主要工作包括研究精细的振转光谱结构^[103-106]、探索辐射的时域特性^[43,44,107,108]、揭示泵浦激光波长与光学增益和辐射特性的关系^[3,37,109,110]、基于光场调控增大体系的粒子数反转、实现基于体系相干性的量子相干调控^[44,111]等。2024 年，Yao 等人通过调谐泵浦激光波长观测到了氮气离子激光的极大增强，对应的泵浦激光波长约 1 微米，验证了之前的理论预测^[42,112]，其主要物理机制归因于三光子共振与隧穿电离的协同相互作用^[4]，如图 8 所示。2023 年起，基于光场矢量偏振和涡旋相位分布等方案为增强空气激光强度、调控其时空性质以及揭示体系中空间相干性提供了新的思路和方法^[46,47]。上海理工大学在中性氮气分子的背向空气激光方面取得重要进展^[113]，采用圆偏振的 800nm 飞秒激光激发氮气分子，在背向观察到了方向性较好的相干光束，如图 9(b)所示。在外加种子光时，该辐射能量得到大幅增强，如图 9(c)所示。随后对该辐射机制、增益动力学进行了系统研究^[114,115]，认为其物理机制是强场电离产生的高能量自由电子碰撞激发中性氮分子导致的粒子数反转，如图 9(a)所示，并演示了利用氮气分子空气激光远程（12.5m）探测静电场的可行方案^[116]。

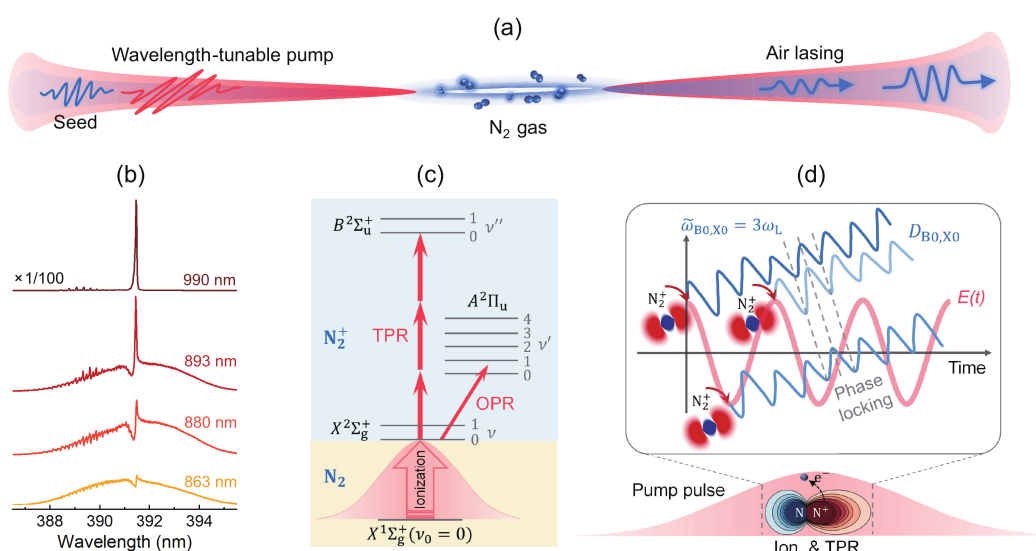


图 8 氮气离子辐射随激发波长的变化。(a)实验原理图；(b)实验观测到的不同泵浦波长下的 391 nm 的辐射强度；(c)氮气电离和后续氮气离子的激发过程；(d)多光子共振与隧穿电离协同作用导致的氮气离子高效光激发的物理机制（源自文献^[4]）

Fig. 8 Dependence of the nitrogen molecular ion emission on the excitation wavelength. (a) Schematic of the experiment; (b) measured 391 nm emission intensity at different pump wavelengths; (c) ionization of nitrogen molecules and the subsequent excitation of nitrogen molecular ions; (d) physical mechanism of the efficient optical excitation of nitrogen molecular ions arising from the interplay between multiphoton resonance and tunneling ionization (adapted from Ref. [4])

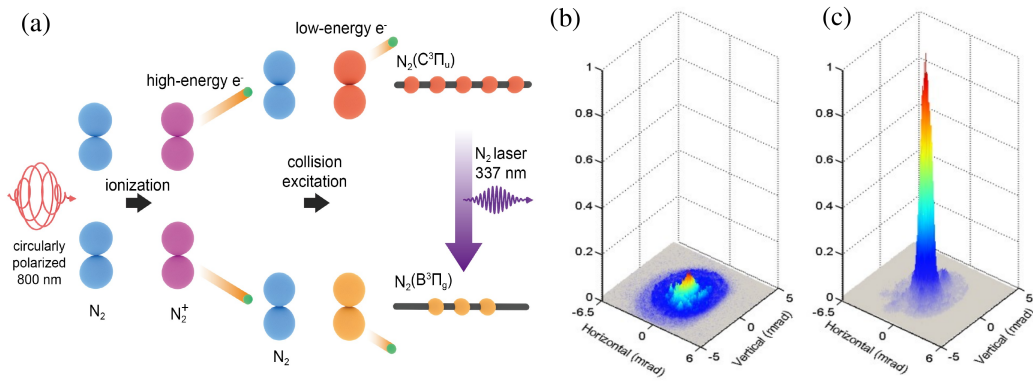


图 9 氮气分子的背向受激辐射。(a)实验原理图，采用圆偏振 800 nm 飞秒脉冲泵浦氮气；(b)背向观察到的放大的自发辐射；(c)背向种子光注入情况下得到的脉冲能量放大（源自文献^[113]）

Fig. 9 Backward stimulated emission from nitrogen molecules. (a) Schematic of the experiment, in which nitrogen is pumped by circularly polarized 800 nm femtosecond pulses; (b) amplified spontaneous emission observed in the backward direction; (c) pulse-energy amplification obtained with backward seed injection (adapted from Ref. [113])

氮气离子激光是超快强光场与分子离子相干波包多体相互作用的结果，其增益机制对传统强场电离理论提出了挑战，为研究强场下的量子相干动力学提供了平台，并与超冷等离子体、X 射线激光一并被视为超强超短激光驱动下高度非平衡等离子体的重要物理效应^[117]。近年来氮气离子激光机理研究方面取得了一系列进展。上海光机所与北京大学、南京理工大学团队合作，提出超快光场与离子多能态耦合机制，为氮气离子激光的粒子数反转提供了直观物理图像^[3]。法国巴黎综合理工大学 Mysyrowicz 团队揭示了氮气离子激光的超辐射特性^[118]。国防科大团队发展了电离-耦合理论，揭示了强场电离注入对于激发态布居的亚周期调控作用^[42]。东京大学 Yamanouchi 团队揭示了氮气离子的电子态、振动态和转动态相干耦合对于空气激光辐射的影响^[119]。上海理工大学团队揭示了振动相干性对于氮气离子激光的精密调控作用^[44]。这些研究从不同侧面揭示了分子体系中强场量子相干效应的作用。

氮气离子空气激光现象丰富且复杂，关于其物理机制的讨论众说纷纭，亟待澄清。具体而言，氮气离子激光难以在现有的强场电离理论框架下得到合理的解释，各种理论模型和猜想被相继提出。目前主流的观点包括：强场电离并激发产生的粒子数反转^[3,41,95,109,120]、强场诱导的无反转量子相干辐射^[121,122]、强场驱动的自由感应衰变^[5,11]、以及转动拍频引起的无反转辐射^[123]。表 1 列出了目前所提出的各种空气激光机制及其物理过程、典型特征、对粒子数反转的要求以及相应的实验判据。这些争议的焦点在于：不同波长强激光作用下其辐射本质是超辐射、自由感应衰变，还是种子脉冲放大？其中粒子数反转是否存在？如果存在，其是否对相干辐射起关键作用？在这一物理机制的探索过程中，强场激发条件下量子相干性的作用首次得到了实验肯定，但仍有多个重要问题亟待解决。

表 1 空气激光不同机制的比较

Table 1 Comparison of different mechanisms of air lasing

机制	物理过程	典型特征	实验判据
直接电离产生上能级 ^[3,42]	从较深分子轨道直接电离，或者通过电离注入瞬时极化效应，产生离子激发态，例如 $N_2^+(B^2\Sigma_u^+)$ 。	本身不足以形成反转；发生于强场电离期间；对分子轨道、取向与泵浦偏振依赖；各电子态分支比不同。	测量各电子态初始布居、电离分支比及取向与偏振依赖。
强场多态布居重分配 ^[3,95]	强激光场耦合 $N_2^+(X)$ 、 $N_2^+(A)$ 和 $N_2^+(B)$ 等多个电子态，使布居在不同电子态之间重新分配。	以形成粒子数反转为目标；在泵浦脉冲内快速发生；同时改变电子态、振动态与转动态布居；可建立电子相干性。	测量泵浦波长、光强、偏振与脉宽依赖；分析各电子态布居及增益随时间的变化。
电子再碰撞激发 ^[118]	隧穿电子在振荡激光场中被加速，与母离子发生非弹性碰撞，将 $N_2^+(X)$ 激发到 $N_2^+(B)$ 。	可形成反转；对泵浦椭圆率与波长敏感；线偏振利于电子返回；长波长提高返回电子能量。	测量输出随泵浦椭圆率、波长、强度与取向的变化；比较线偏振与圆偏振泵浦。
脉冲后自由电子碰撞 ^[113,114]	泵浦脉冲结束后等离子体中的自由电子继续与氮分子或其离子碰撞，建立或改变激发态布居。	可形成反转；增益在泵浦脉冲结束后延迟建立；对气压、电子温度与密度、氧气比例敏感；受电子附着与碰撞猝灭影响。	进行泵浦-种子延迟扫描；测量电子密度与能量分布；比较纯氮、空气及不同氧气比例下输出。
白光连续谱自种子放大 ^[97,124]	飞秒激光成丝产生白光连续谱，其中覆盖增益线的频率成分在等离子体通道被选择性放大。	需净增益，故要求反转；前向输出较强；种子与增益介质天然共线；输出波长由增益谱决定。	测量白光谱与激光谱线的重叠；阻断或衰减相应种子频段；观察输出随成丝长度与白光强度的变化。
放大的自发辐射 (ASE) ^[114]	自发辐射沿细长增益介质长轴传播，在传播中获得指数放大，无需外部种子或谐振腔，此即放大的自发辐射 (amplified spontaneous emission)。	要求粒子数反转；谱线窄化、方向性明显；可同时产生前向和背向辐射；输出随增益长度与粒子密度非线性增加。	测量输出随增益长度、气压与粒子密度的标度；比较前向和背向输出；无外部种子时确认净增益。
超辐射或集体相干辐射 ^[11,118]	大量激发粒子通过共同辐射场建立宏观偶极相干，随后以集体方式产生短而强的方向性辐射。	不要求粒子数反转，增益源于宏观偶极相干；相干自由弛豫时即为自由感应衰变；可出现发射延迟、短脉冲与强非线性标度，峰值强度近似满足 $I_{\max} \propto N^2$ ， N 为参与辐射的激发粒子数；可伴随相干振荡或脉冲分裂。	测量发射延迟、脉宽与粒子数标度；开展时间分辨与相干性测量。
转动波包调制增益 ^[43,119,123,125]	飞秒泵浦相干激发多个转动态，形成周期性复现的转动波包，调制电离率、跃迁偶极矩与瞬态增益。	仅需转动复现期间的局部瞬时反转；输出随泵浦-种子延迟呈周期性调制；周期与转动复现时间相关；对偏振敏感。	进行高时间分辨延迟扫描；比较实验调制周期与理论转动复现时间；测量排列与偏振依赖。
背向 ASE 或散射种子放大 ^[31,113,126]	自发辐射或空气、等离子体产生的微弱背向散射光作为种子，沿与泵浦相反方向通过增益介质被放大。	要求粒子数反转；输出向泵浦源方向传播，适合远程遥感；通常弱于前向，并要求较长增益寿命。	比较前向和背向光谱、阈值与时间延迟；改变散射条件与增益长度。

4 多体多自由度开放系统的强场量子相干光学理论

要描述前述强场诱导量子相干性的动力学过程、阐明相应的辐射机理，需要拓展能够处理强场效应的量子光学理论，并在含时动力学理论中引入相干性。为此尚须克服以下四类挑战。

(1) 多电子问题的挑战。强场导致原子分子体系电离或大量激发，基于静态基态从头计算方法，以及针对激发态的一般含时微扰理论和线性响应理论，难以描述大量高激发态/连续态/光诱导态参与的动力学。因此需要发展多电子含时动力学理论。目前的理论方法主要有含时密度矩阵方法、含时密度泛函（DFT, density functional theory）方法、含时组态相互作用（time-dependent configuration interaction）方法^[127]、多组态 Hartree-Fock（multiconfiguration Hartree-Fock）方法^[27]以及强场多体散射理论^[128]等。直接求解含时薛定谔方程涉及计算量指数增长的挑战。密度矩阵重整化群等张量网络方法^[129]计算量同样巨大，多局限于低维体系。含时密度泛函方法则难以获取多电子相干性。针对强场驱动体系，目前可行的数值计算方法主要是含时多组态方法，但也仅限于处理不超过两个电子同时激发过程。由于强场电离后离子继续与光场作用，可以把离子作为开放系统，光电子作为环境，基于量子主方程的电离-耦合理论由此建立^[42]，其中利用分子 ADK（Ammosov-Delone-Krainov）模型处理强场电离速率^[130]和强场近似半解析处理电离相干性^[9]，利用量子主方程处理残留的离子在激光场中的含时演化。结合阿秒探测，该模型进一步拓展为包含辐射和吸收过程的电离-耦合模型，为强场电离产生离子的光吸收^[12]和发射性质^[11]提供了理论分析工具（图 10）。该理论的最大优势是把中性分子电离与离子-光耦合同步处理，强场电离导致离子的不断注入，相当于提供了阿秒时间尺度（电离时间）的泵浦源。其他理论模型^[19,20]多将二者分步处理：假设第一步电离（隧穿电离或者光电离）制备了离子体系的一个叠加态，重点研究后续离子与光作用过程以及体系相干性的演化^[7]。但是由于电离是持续发生的，这些工作忽略了电离注入导致的退相干效应。未来通过引入光电子与离子的多通道耦合，结合多组态或者多通道等严格计算，可以建立更完备的量子动力学模型，研究强场电离诱导的离子-电子纠缠和相干演化。

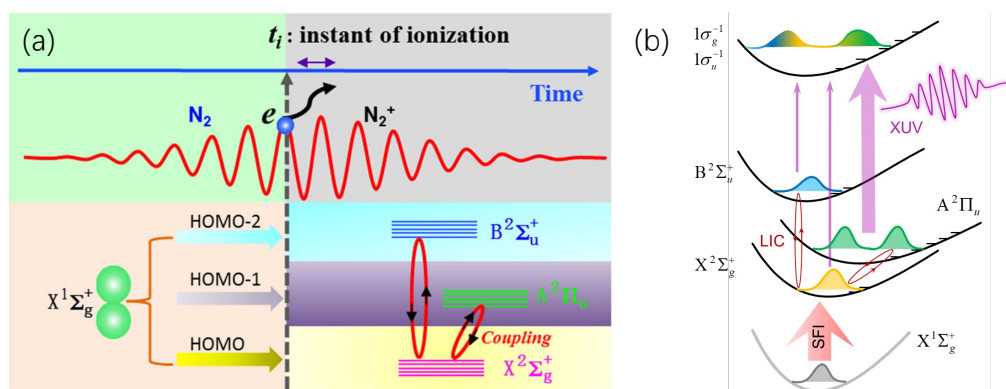


图 10 电离-耦合模型：(a)在强激光脉冲中氮气分子持续电离，产生的离子与后续光场持续耦合，导致氮气分子离子对应三个电子态的振动-转动波包的耦合；(b)利用阿秒脉冲探测氮气分子的 K-边吸收，对价电子波包量子相干性进行诊断（源自文献^[12,42]）

Fig. 10 Ionization-coupling model. (a) Nitrogen molecules are continuously ionized within the strong laser pulse, and the resulting ions keep coupling to the subsequent laser field, which couples the vibrational-rotational wave packets associated with the three electronic states of N_2^+ ; (b) attosecond pulses are used to probe the K-edge absorption of nitrogen molecules, diagnosing the quantum coherence of the valence-electron wave packet (adapted from Refs. [12,42])

(2) 多自由度耦合的挑战。电子、核振动-转动、自旋^[131]等多自由度多时间尺度动力学是强场理论面临的重大挑战。通常由于电子运动时间尺度远快于核运动时间尺度，采用玻恩-奥本海默（Born-Oppenheimer, BO）近似分别处理电子动力学以及核在绝热势能面的运动。但是即使在绝热近似下，光场的驱动仍然会带来不同势能面的耦合。直接基于核振动和转动量子态的理论处理，涉及到巨大的量子态数目，因此需要发展更加有效的算法。另一方面，电子与核的非绝热耦合在阿秒尺度的电离过程是否可以忽略也是一个争议的问题^[24,71]。例如，在静态 DFT 计算中计入电离过程高能光电子与核碰撞所导致的核反冲，即可看到 FC 原理失效。Ghomashi 等基于简化维度下包含振动和电子运动的严格含时薛定谔方程（TDSE, time-dependent Schrödinger equation）求解^[64]，得到了同样的结论。核运动对相干性诱导电荷迁移的退相干与复相干起着决定性作用^[25,26,72]。为了考虑核振动与电子运动的耦合，Despre 等针对电子相干性可以持续多长时间，开展了针对离子的包含电子和核动力学的全量子力学计算^[81]。另外在势能面的锥形交叉处，BO 近似自然失效，导致相干性转移与演化。因此需要在目前的电离-耦合理论中进一步引入非绝热效应^[19,20,76]，深入认识锥形交叉如何影响电子相干^[132]以及电子与核运动相干性的转移^[133]。

(3) 密度矩阵演化及退相干过程的多维光谱理论。实时刻画和诊断量子态布居及态间量子相干性，长久以来是一个科学难题。目前，基于内壳层（K 边或 L 边）吸收的阿秒瞬态吸收光谱（ATAS, attosecond transient absorption spectroscopy）已成为诊断激发态动力学与量子态演化的重要手段^[7,38,87,132]。Bourassin-Bouchet 等利用多维光谱对光电离伴随的退相干过程进行定量诊断^[134]。基于双光子跃迁阿秒拍频重构技术（RABBITT, reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transitions）与阿秒脉冲串干涉的方法，已能对光电子波包的密度矩阵实现重构^[135,136]。针对涉及转动自由度的复杂动力学，Marceau 等基于分子非绝热取向实现时域光电离干涉^[137]。Morrigan 等利用紫外脉冲共振激发科里奥利力耦合的 NH_3 两个电子态，结合时间分辨测量与高精度谱学，实现了分子坐标系下密度矩阵的量子层析^[138]。极紫外与阿秒多维光谱技术的快速发展，要求相应的理论与计算方法同步跟进，以实现测量结果的精确解析与密度矩阵重构。

(4) 从单原子辐射到集体辐射和量子光源。对强场相干辐射现象的深入理解，要求理论能够覆盖从单个原子的强场动力学，到多个原子集体耦合动力学和辐射的传播效应。目前采用的光学布洛赫-麦克斯韦方程，多限于少数几个能级，有待在传播方程中拓展多

态耦合及引入强场驱动效应，揭示增益机理及背向相干放大机制。同时，单个被激发的双能级原子，其辐射性质与耦合到同一个光学模式的多个辐射源的集体辐射有很大差异，会导致超辐射（亮态）或者亚辐射（暗态）。作为产生强脉冲或超稳激光^[139]的一条潜在技术途径，超辐射的研究最近重新受到较多关注。特别是结合强场驱动，研究多体相干集体辐射^[140,141]是重要前沿。另外，目前相关理论多建立在经典光场的框架下。随着强压缩光的逐步应用^[142]，以及对产生具有高阶时间相干特性^[143]量子辐射源的需求，要求发展基于光场量子化的电离-耦合理论，为未来拓展量子光源驱动产生新型辐射提供支撑。

5 多体多自由度体系的量子相干时空诊断

量子态布居及相干性（密度矩阵）对于物质的吸收和辐射特性有重要的影响，是量子操控、量子探测、化学反应控制、生物过程量子效应、光能转换中的关键物理量。2011 年 Goto 等观测到飞秒强激光调控分子波包时，其本征态布居随时间发生振荡现象，这为分子量子逻辑门提供了态分辨操控的新工具^[144]。进一步研究表明：量子态布居与相干性对空气激光^[37]、无反转激光^[100,121,123,145,146]、X 射线激光参量放大^[102,147-150]、自由感应衰变^[55]、超辐射^[40,111,143,151]、吸收谱线线形调控^[32]、量子放大^[152]起决定性作用。不仅如此，量子相干性还能诱导和驱动各种复杂的多时间尺度动力学过程，例如定向电荷迁移^[35]、选择性化学反应^[153]以及光合作用中的能量转移^[154]等。电子间的多体关联和相干可以驱动俄歇-梅特纳（Auger-Meitner）衰变中的电荷迁移^[155]。电子与核运动的非绝热耦合导致的多自由度量子相干在锥形交叉^[132]、内转换^[156]以及分子结构 Jahn-Teller 重排^[36,157,158]中都扮演着重要角色。

量子相干性的完备测量要求获取不同激发态布居数（或几率幅）的大小及其相对相位。其本质是探测物质波的相位信息，需借助量子态的干涉测量。常用手段是利用多束光激发制备量子态波包，实现其通道干涉，并通过改变光脉冲时间延迟获取多维光谱信息，进而解码密度矩阵。在涉及低激发电子态和振动态动力学的研究中，基于可见光波段的二维电子-振动谱学是强有力的多维光谱技术，可实现对光激发后核振动波包的实时分辨^[159,160]。然而，将这些方法直接用于诊断强场驱动下制备的量子相干性，仍存在局限。强场作用下，原子分子的电子态、振动态、转动态等多自由度发生耦合，导致布居和相干性在不同自由度间转移及退相干。Ando 等^[119]利用两束偏振相互垂直的强近红外少周期激光脉冲和氮气分子相互作用，实验发现氮气离子（ N_2^+ ）在波长 391 nm 处的激射强度随两束脉冲之间的时间延迟周期性振荡，证实了强场量子相干性涉及多个量子态以及皮秒至阿秒等多个时间

尺度的动力学耦合。因此亟需发展新的实验方法与态分辨实时测量技术，以刻画此类量子相干演化。

阿秒光脉冲的产生（其发明荣获 2023 年诺贝尔物理学奖）为探测物质内部电子超快动力学提供了强大工具[7]。目前国际上已可稳定产生百阿秒以下的极紫外脉冲，国内亦产生了短至 51 阿秒的极紫外光脉冲^[161-163]。阿秒光脉冲独特的时-频域特性，凭借其极短时间分辨率与宽谱覆盖能力，为超快谱学诊断开辟了新维度^[164]。阿秒瞬态吸收光谱（ATAS）技术利用单个阿秒脉冲或阿秒脉冲串，基于内壳层（K 边或 L 边）吸收，兼具时间-能量分辨与元素分辨的独特优势，正日益广泛地应用于激发态动力学探测及量子态演化诊断^[68,87]。针对 N_2^+ 激光涉及的三个电子态是否存在粒子数反转的问题，Kleine 等^[38]基于 ATAS 技术，利用阿秒软 X 射线对 N_2^+ 的基态与激发态布居进行了初步探测。然而，该研究结果面临两大挑战：其一，涉及 N_2^+ 内壳层复杂的势能面结构，且光谱分辨率不足，导致对振动能级的指认存在困难^[12]；其二，受限于现有探测手段，尚未触及量子相干性这一核心物理量的探测^[12,38]。将阿秒脉冲与红外飞秒/太赫兹脉冲结合，发展的 XUV 多波段多维光谱技术，有望实现对多自由度量子相干性的多尺度综合诊断。

强激光场下原子分子电离的光电子动量谱包含了激光场、光电子以及原子分子量子态的相位信息，实验上通过阿秒精度改变两束激光的相位延迟，测量不同延时的干涉条纹可以获取光电子相位信息。Han 等^[165]构建了双色同向旋圆偏振光场，结合阿秒钟技术和相位之相位光电子动量谱技术，实现了对电子隧穿过程中量子相干性的测量，精确获取了势垒下相位和振幅信息。Gong 等^[166]利用正交双色光场，通过测量相位依赖的光电子角分布，突破了强场多光子相互作用下量子态分辨的瓶颈，实现了对分子电离过程中光电子分波振幅与相位的测量，揭示了多光子过程中额外累积的阿秒量级的相互作用相位。Lin 等^[167]发现了超快 Kapitza-Dirac 效应，他们用一束飞秒脉冲电离原子产生电子脉冲，用一对反向传播的飞秒激光脉冲构筑飞秒驻波光场，通过拍摄电子脉冲在不同时刻穿过驻波脉冲光场产生的衍射条纹，直接观测到电子的相位信息，表明基于超快 Kapitza-Dirac 效应的干涉仪可以作为电子波包相位的精确诊断工具。Laurell 等^[135]采用双红外和阿秒脉冲串对光电子相干性进行探测，基于双脉冲 RABBITT 技术对光电子波包密度矩阵实现了诊断，发现自旋轨道耦合导致离子和电子纠缠弱化了光电子波包的相干性。离子的相干性能否借助纠缠得到强化，以及二者之间的内在联系，都有待进一步研究。Kneller 等^[136]利用参考阿秒脉冲串，对红外整形后的阿秒脉冲串进行干涉探测，获取强光驱动下多个量子通道的相位和振幅信息，以及它们之间的量子相干特性和时域演化动力学信息，发现了持续时间远超预期的电子相干性，揭示了多电子系统中相干保护机制的存在。上述工作分别从隧穿相位、分

波振幅、电子波包衍射以及密度矩阵重构等角度切入，共同表明干涉测量是获取相位信息的有效途径；但这些方法目前的作用对象仍主要是光电子，如何移植到强场持续注入的分子离子体系，仍有待解决。

总之，针对物质体系量子相干性的超快演化，发展量子态分辨的可见至极紫外波段多维光谱技术，结合阿秒瞬态光谱、相干拉曼光谱和光电子动量谱，有望实现对多体、多自由度体系中量子态布居与相干性的精确测量。通过解析不同自由度下量子相干性的时空演化信息，阐明电子关联及电子-核多自由度耦合在强场量子相干性产生中的作用机制，为理解和控制空气激光等新型辐射提供物理依据。

6 强场下量子相干辐射的调控与应用

作为强场量子相干驱动的新型光源，空气激光展现出不同于传统激光的独特性质^[168]。

1) 无腔放大：空气激光以飞秒激光在大气中非线性传输产生的等离子体光丝为增益通道。借助飞秒光丝远距离自导传输的特性及其在远超瑞利长度范围内对强光场的有效约束能力，空气激光无需依赖光学谐振腔，即可在自由空间中实现受激辐射与相干光放大，展现出远程产生、放大与调控的潜力。2) 双向辐射：空气激光不仅能够沿泵浦光传播方向发射，还可沿其相反方向进行背向辐射。这种独特的双向辐射特性，特别是背向定向发射的能力，可以有效克服自发辐射和散射信号随传输距离平方衰减的限制，显著提升远程探测的灵敏度。3) 窄线宽：尽管空气激光源于宽带飞秒激光激发，但由于共振耦合与量子相干效应的作用，其光谱带宽通常仅为几个波数，比泵浦光频谱窄 2~3 个数量级，从而为物质检测提供了一种高精度的光谱探测手段。

为提升空气激光的输出能量与传输距离，各国研究者开展了持续的技术竞争。维也纳科技大学、美国空军实验室和亚利桑那大学组成的国际联合研究团队，利用美国劳伦斯-利弗莫尔国家实验室的 10 焦耳皮秒激光系统开展了相关研究，在真实大气环境中创造了当时最远、最强的空气激光纪录^[169]。法国巴黎综合理工大学研究团队利用百毫焦、太瓦级飞秒激光进行了类似尝试，实现了 2.6 μJ 的氮气离子激光输出^[170]。此外，多个研究团队也积极探索通过调控量子系统的相干布居提升空气激光强度的方案。例如，通过时域偏振整形优化粒子数反转，可使氮气离子激光强度提升两个数量级^[41]。构建最优泵浦光场则可将强度进一步提高五个数量级^[49]。2025 年，上海光机所研究团队采用级联放大方案，实现了目前公开报道最高能量的空气激光输出^[171]。

在提升空气激光输出强度的同时，发展空气激光应用技术也一直是国内外研究者关注的焦点。2011 年，Hemmer 等提出将背向空气激光与双光子吸收和受激拉曼散射技术结合

进行远程分子探测的构想^[126]。2015 年，Malevich 等演示了背向氮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，成功实现了高纯度、高浓度甲烷气体的检测^[172]。近年来，上海光机所研究团队相继发展了基于空气激光的单光束相干拉曼光谱技术^[173]和电子共振增强相干拉曼散射技术^[174]，展示了空气激光指纹谱技术在温室气体探测^[175,176]、同位素分析^[177]和光丝诱导化学反应监测^[178]等方面的应用。与大气检测普遍使用的差分吸收光谱技术相比，空气激光拉曼光谱技术不需要预先知道待测物质的成分，而且可以利用一束激光同时测量多种污染物和温室气体，为多组分大气分子的灵敏探测提供了新的技术途径。

除了大气检测之外，基于空气激光的相干拉曼光谱技术在燃烧诊断方面也具有巨大的应用潜力。燃烧场温度和组分的精确测量对于化石能源的清洁高效利用以及航空发动机等先进动力系统的优化设计均具有重要意义。相干反斯托克斯拉曼散射（CARS, coherent anti-Stokes Raman scattering）技术由于具有非接触测量、空间分辨率高、测温准确等优点而备受瞩目。传统的 CARS 技术通常需要对多束激光进行波长调谐和精密的时空控制。然而，高温燃烧场中往往存在严重的折射率梯度和湍流，容易引起光束偏折和相位失配，导致拉曼信号急剧下降甚至消失。2024 年，上海光机所研究团队利用空气激光成功研制了单光束、单次相干拉曼测温仪，并展示了其千赫兹高帧频测温能力^[179]。空气激光与泵浦光天然重叠且时间上滞后若干皮秒的独特时空特性^[168]，使其抗抖动、抗湍流能力强，能够有效抑制非共振背景，为发展高速、高灵敏、高精度的单光束相干拉曼测温技术提供了有利条件，能够满足复杂大气环境以及高温、高压、高湍流极端燃烧场中温度检测的需求。

经过十余年的发展，空气激光研究已从现象发现拓展至机制探索，并展现出其在实际应用中的潜力。这一过程不仅推动了强场物理与量子光学的交叉，空气激光独特的光学特性也为环境科学与先进制造领域的相关需求提供了新的技术选择。然而，受限于输出能量与成丝产生的强背景，这类光源的实用化仍面临信噪比瓶颈。因此，未来需要充分挖掘并利用强场量子相干辐射的独特优势，发展多元信噪比提升技术，攻克实际应用中的关键技术瓶颈。

7 结语

强场量子相干辐射的研究正处在从现象发现走向机制厘清的阶段，其进展取决于理论与方法诊断技术能否同步推进。该领域未来涉及的关键科学问题，包括如何制备和诊断强场诱导的量子相干性，如何识别和利用强场诱导的各种离子辐射机制，如何结合阿秒瞬态光谱探测和分析电子、振动和转动各种相干性之间的转移动力学，以及如何发展强场多自

由度理论、在更复杂体系中拓展对强场诱导相干性及其辐射特性的调控。其中，发展量子态分辨和时间分辨的探测技术，将有助于实现粒子数布居与多体多自由度量子相干性的实时测量，进而揭示强场量子相干辐射与放大机制。在应用层面，强场量子相干辐射为远程探测提供了不同于传统激光的技术路径。同样可以预期，随着量子光源在超快物理研究中的广泛应用，强场量子光学的内涵将得到进一步拓展。

参考文献

- [1] Ciappina M F, Pérez-Hernández J A, Landsman A S, et al. 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 143902
- [2] Fushitani M, Liu C N, Matsuda A, et al. 2016 *Nat. Photonics* **10** 102
- [3] Yao J, Jiang S, Chu W, et al. 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 143007
- [4] Chen Y, Lei H, Wang Q, et al. 2024 *Phys. Rev. Lett.* **133** 113201
- [5] Zhang X, Lu Q, Zhu Y, et al. 2024 *Ultrafast Sci.* **4** 0051
- [6] Santra R, Dunford R W, Young L 2006 *Phys. Rev. A* **74** 043403
- [7] Goulielmakis E, Loh Z H, Wirth A, et al. 2010 *Nature* **466** 739
- [8] Kobayashi Y, Reduzzi M, Chang K F, et al. 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 233201
- [9] Zhao J, Liu J, Wang X, et al. 2022 *Chin. Phys. Lett.* **39** 123201
- [10] Kobayashi Y, Leone S R 2022 *J. Chem. Phys.* **157** 180901
- [11] Lei H, Yao J, Zhao J, et al. 2022 *Nat. Commun.* **13** 4080
- [12] Zhao J, Bai G, Zhang Q, et al. 2025 *Phys. Rev. Res.* **7** L012070
- [13] Vatasescu M 2013 *Phys. Rev. A* **88** 063415
- [14] Ruberti M, Decleva P, Averbukh V 2018 *J. Chem. Theory Comput.* **14** 4991
- [15] Ruberti M 2019 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **21** 17584
- [16] Nishi T, Lötstedt E, Yamanouchi K 2019 *Phys. Rev. A* **100** 013421
- [17] Rohringer N, Santra R 2009 *Phys. Rev. A* **79** 053402
- [18] Tiersch M, Popescu S, Briegel H J 2012 *Philos. Trans. R. Soc. London A* **370** 3771
- [19] Vrakking M J J 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 113203
- [20] Vrakking M J J 2022 *J. Phys. B* **55** 134001

- [21] Cederbaum L S, Zobeley J 1999 *Chem. Phys. Lett.* **307** 205
- [22] Breidbach J, Cederbaum L S 2003 *J. Chem. Phys.* **118** 3983
- [23] Kraus P M, Mignolet B, Baykusheva D, et al. 2015 *Science* **350** 790
- [24] Leone S R, McCurdy C W, Burgdörfer J, et al. 2014 *Nat. Photonics* **8** 162
- [25] Vacher M, Steinberg L, Jenkins A J, et al. 2015 *Phys. Rev. A* **92** 040502
- [26] Arnold C, Vendrell O, Santra R 2017 *Phys. Rev. A* **95** 033425
- [27] Dey D, Kuleff A I, Worth G A 2022 *Phys. Rev. Lett.* **129** 173203
- [28] Klatzow J, Becker J N, Ledingham P M, et al. 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 110601
- [29] Polli D, Altoè P, Weingart O, et al. 2010 *Nature* **467** 440
- [30] Ott C, Kaldun A, Raith P, et al. 2013 *Science* **340** 716
- [31] Bengtsson S, Larsen E W, Kroon D, et al. 2017 *Nat. Photonics* **11** 252
- [32] Garg M, Kern K 2020 *Science* **367** 411
- [33] Yuan L Q, Liu Y, Yao J P, et al. 2019 *Adv. Quantum Technol.* **2** 1900080
- [34] Dogariu A, Michael J B, Scully M O, et al. 2011 *Science* **331** 442
- [35] Matselyukh D T, Despré V, Golubev N V, et al. 2022 *Nat. Phys.* **18** 1206
- [36] Ridente E, Hait D, Haugen E A, et al. 2023 *Science* **380** 713
- [37] Yao J, Zeng B, Xu H, et al. 2011 *Phys. Rev. A* **84** 051802
- [38] Kleine C, Winghart M O, Zhang Z Y, et al. 2022 *Phys. Rev. Lett.* **129** 123002
- [39] Britton M, Lytova M, Laferrière P, et al. 2019 *Phys. Rev. A* **100** 013406
- [40] Liu Y, Ding P, Ibrakovic N, et al. 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 203205
- [41] Li H, Hou M, Zang H, et al. 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 013202
- [42] Zhang Q, Xie H, Li G, et al. 2020 *Commun. Phys.* **3** 50
- [43] Xie H, Lei H, Li G, et al. 2020 *Phys. Rev. Res.* **2** 023329
- [44] Zhang X, Lu Q, Zhang Z, et al. 2021 *Optica* **8** 668
- [45] Nie Z, Nambu N, Marsh K A, et al. 2024 *Phys. Rev. Lett.* **133** 063201
- [46] Gao J, Zhang X, Wang Y, et al. 2023 *Commun. Phys.* **6** 97

- [47] Hu Y, Ye Z, Li H, et al. 2023 *Optica* **10** 682
- [48] Zheng W, Miao Z, Zhang L, et al. 2019 *J. Phys. Chem. Lett.* **10** 6598
- [49] Li H, Lötstedt E, Li H, et al. 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 053201
- [50] Zhao Z X, Yuan J M 2015 *Physics* **44** 16 (in Chinese) [赵增秀, 袁建民 2015 物理 **44** 16]
- [51] Zhao Z X 2021 *Chin. Sci. Bull.* **66** 913 (in Chinese) [赵增秀 2021 科学通报 **66** 913]
- [52] Sabbar M, Timmers H, Chen Y, et al. 2017 *Nat. Phys.* **13** 472
- [53] Zhang B, Yuan J, Zhao Z 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 163001
- [54] Nubbemeyer T, Gorling K, Saenz A, et al. 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 233001
- [55] Yun H, Mun J H, Hwang S I, et al. 2018 *Nat. Photonics* **12** 620
- [56] Zheng Z, Wang D, Wang M, et al. 2025 *Chin. Phys. Lett.* **42** 053702
- [57] Beaulieu S, Camp S, Descamps D, et al. 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 203001
- [58] Wirth A, Hassan M T, Grguraš I, et al. 2011 *Science* **334** 195
- [59] Uiberacker M, Uphues T, Schultze M, et al. 2007 *Nature* **446** 627
- [60] Pabst S, Lein M, Wörner H J 2016 *Phys. Rev. A* **93** 023412
- [61] Wu H, Yong H 2025 *Phys. Rev. Lett.* **134** 073001
- [62] Franck J, Dymond E G 1926 *Trans. Faraday Soc.* **21** 536
- [63] Condon E U 1928 *Phys. Rev.* **32** 858
- [64] Ghomashi B, Douguet N, Argenti L 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 203201
- [65] Wei Z, Li J, Wang L, et al. 2017 *Nat. Commun.* **8** 735
- [66] Goll E, Wunner G, Saenz A 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 103003
- [67] Saenz A 2000 *Phys. Rev. A* **61** 051402
- [68] Wang L, Bai G, Wang X, et al. 2024 *Nat. Commun.* **15** 2705
- [69] Zhang Q, Bai G, Zhang B, et al. 2024 *Sci. China Phys. Mech. Astron.* **67** 124202
- [70] Schultz T, Samoylova E, Radloff W, et al. 2004 *Science* **306** 1765
- [71] Wang A L, Serov V V, Kamalov A, et al. 2021 *Phys. Rev. A* **104** 063119
- [72] Jia D, Manz J, Yang Y 2019 *J. Phys. Chem. Lett.* **10** 4273

- [73] Carlström S, Mauritsson J, Schafer K J, et al. 2018 *J. Phys. B* **51** 015201
- [74] Vatasescu M 2015 *Phys. Rev. A* **92** 042323
- [75] Koll L M, Maikowski L, Drescher L, et al. 2022 *Phys. Rev. Lett.* **128** 043201
- [76] Nabekawa Y, Midorikawa K 2023 *Phys. Rev. Res.* **5** 033083
- [77] Ossiander M, Siegrist F, Shirvanyan V, et al. 2017 *Nat. Phys.* **13** 280
- [78] Nishi T, Lötstedt E, Yamanouchi K 2020 *Phys. Rev. A* **102** 051101
- [79] Pabst S, Greenman L, Ho P J, et al. 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 053003
- [80] Lara-Astiaso M, Ayuso D, Tavernelli I, et al. 2016 *Faraday Discuss.* **194** 41
- [81] Despré V, Golubev N V, Kuleff A I 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 203002
- [82] Despré V, Marciniak A, Loriot V, et al. 2015 *J. Phys. Chem. Lett.* **6** 426
- [83] Lara-Astiaso M, Palacios A, Decleva P, et al. 2017 *Chem. Phys. Lett.* **683** 357
- [84] Folorunso A S, Bruner A, Mauger F, et al. 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 133002
- [85] Huang Y, Zhao J, Shu Z, et al. 2021 *Ultrafast Sci.* **2021** 9837107
- [86] Calegari F, Ayuso D, Trabattoni A, et al. 2014 *Science* **346** 336
- [87] Timmers H, Zhu X, Li Z, et al. 2019 *Nat. Commun.* **10** 3133
- [88] Saito N, Sannohe H, Ishii N, et al. 2019 *Optica* **6** 1542
- [89] Lucchini M, Sato S A, Ludwig A, et al. 2016 *Science* **353** 916
- [90] Lépine F, Ivanov M Y, Vrakking M J J 2014 *Nat. Photonics* **8** 195
- [91] Luo Q, Liu W, Chin S L 2003 *Appl. Phys. B* **76** 337
- [92] Dogariu A, Miles R B 2013 *Frontiers in Optics 2013* (Orlando: Optica Publishing Group) pLTh2H.2
- [93] Laurain A, Scheller M, Polynkin P 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 253901
- [94] Dogariu A, Miles R B 2016 *Opt. Express* **24** A544
- [95] Xu H, Lötstedt E, Iwasaki A, et al. 2015 *Nat. Commun.* **6** 8347
- [96] Wang T J, Ju J, Daigle J F, et al. 2013 *Laser Phys. Lett.* **10** 125401
- [97] Liu Y, Brelet Y, Point G, et al. 2013 *Opt. Express* **21** 22791

- [98] Azarm A, Corkum P, Polynkin P 2017 *Phys. Rev. A* **96** 051401
- [99] Britton M, Laferrière P, Ko D H, et al. 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 133208
- [100] Arissian L, Kamer B, Rastegari A, et al. 2018 *Phys. Rev. A* **98** 053438
- [101] Arissian L, Kamer B, Rasoulof A 2016 *Opt. Commun.* **369** 215
- [102] Matthews M, Morales F, Patas A, et al. 2018 *Nat. Phys.* **14** 695
- [103] Zeng B, Chu W, Li G, et al. 2014 *Phys. Rev. A* **89** 042508
- [104] Xie H, Zeng B, Li G, et al. 2014 *Phys. Rev. A* **90** 042504
- [105] Zhang H, Jing C, Yao J, et al. 2013 *Phys. Rev. X* **3** 041009
- [106] Liu Z, Yao J, Chen J, et al. 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 083205
- [107] Li G, Jing C, Zeng B, et al. 2014 *Phys. Rev. A* **89** 033833
- [108] Xie H, Li G, Wei Z, et al. 2022 *Phys. Rev. A* **106** 033115
- [109] Wang S, Lötstedt E, Cao J, et al. 2021 *Phys. Rev. A* **104** 032823
- [110] Chen Y, Zhou C, Lu X, et al. 2024 *Phys. Rev. A* **109** 053522
- [111] Zhang A, Liang Q, Lei M, et al. 2019 *Opt. Express* **27** 12638
- [112] Xu L, Zhou C, Fan G, et al. 2024 *Phys. Rev. A* **109** 013518
- [113] Mitryukovskiy S, Liu Y, Ding P, et al. 2014 *Opt. Express* **22** 12750
- [114] Mitryukovskiy S, Liu Y, Ding P, et al. 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 063003
- [115] Ding P, Oliva E, Houard A, et al. 2016 *Phys. Rev. A* **94** 043824
- [116] Zhang X, Lu Q, Mei H, et al. 2023 *Phys. Rev. A* **108** 033513
- [117] Corkum P 2016 *Her. Russ. Acad. Sci.* **86** 426
- [118] Liu Y, Ding P, Lambert G, et al. 2015 *Phys. Rev. Lett.* **115** 133203
- [119] Ando T, Lötstedt E, Iwasaki A, et al. 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 203201
- [120] Li H, Song Q, Yao J, et al. 2019 *Phys. Rev. A* **99** 053413
- [121] Mysyrowicz A, Danylo R, Houard A, et al. 2019 *APL Photonics* **4** 110807
- [122] Tikhonchuk V T, Liu Y, Danylo R, et al. 2021 *New J. Phys.* **23** 023035
- [123] Richter M, Lytova M, Morales F, et al. 2020 *Optica* **7** 586

- [124] Kartashov D, Ališauskas S, Andriukaitis G, et al. 2012 *Phys. Rev. A* **86** 033831
- [125] Zhang Y, Lötstedt E, Yamanouchi K 2020 *Phys. Rev. A* **101** 053412
- [126] Hemmer P R, Miles R B, Polynkin P, et al. 2011 *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **108** 3130
- [127] Greenman L, Ho P J, Pabst S, et al. 2010 *Phys. Rev. A* **82** 023406
- [128] Becker A, Faisal F H M 2005 *J. Phys. B* **38** R1
- [129] Paeckel S, Köhler T, Swoboda A, et al. 2019 *Ann. Phys.* **411** 167998
- [130] Tong X M, Zhao Z X, Lin C D 2002 *Phys. Rev. A* **66** 033402
- [131] Liang H, Tsai M S, Tseng C C, et al. 2025 *Sci. Adv.* **11** eadu9200
- [132] Kobayashi Y, Chang K F, Zeng T, et al. 2019 *Science* **365** 79
- [133] Keefer D, Schnappinger T, de Vivie-Riedle R, et al. 2020 *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **117** 24069
- [134] Bourassin-Bouchet C, Barreau L, Gruson V, et al. 2020 *Phys. Rev. X* **10** 031048
- [135] Laurell H, Luo S, Weissenbilder R, et al. 2025 *Nat. Photonics* **19** 352
- [136] Kneller O, Mor C, Klimkin N D, et al. 2025 *Nat. Photonics* **19** 134
- [137] Marceau C, Makhija V, Platzer D, et al. 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 083401
- [138] Morigan L, Neville S P, Gregory M, et al. 2023 *Phys. Rev. Lett.* **131** 193001
- [139] Ferioli G, Glicenstein A, Robicheaux F, et al. 2021 *Phys. Rev. Lett.* **127** 243602
- [140] Ferioli G, Glicenstein A, Ferrier-Barbut I, et al. 2023 *Nat. Phys.* **19** 1345
- [141] Ferioli G, Pancaldi S, Glicenstein A, et al. 2024 *Phys. Rev. Lett.* **132** 133601
- [142] Dorfman K E, Schlawin F, Mukamel S 2016 *Rev. Mod. Phys.* **88** 045008
- [143] Ferioli G, Ferrier-Barbut I, Browaeys A 2025 *Phys. Rev. Lett.* **134** 153602
- [144] Goto H, Katsuki H, Ibrahim H, et al. 2011 *Nat. Phys.* **7** 383
- [145] Svidzinsky A A, Yuan L, Scully M O 2013 *New J. Phys.* **15** 053044
- [146] Khanin Y I, Kocharovskaya O A 1990 *J. Opt. Soc. Am. B* **7** 2016
- [147] Seres J, Seres E, Hochhaus D, et al. 2010 *Nat. Phys.* **6** 455
- [148] Antonov V A, Han K C, Akhmedzhanov T R, et al. 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 243903

- [149] Serrat C, Roca D, Budesca J M, et al. 2016 *Opt. Express* **24** 8028
- [150] Serrat C 2016 *Phys. Rev. A* **93** 063415
- [151] Xie H, Lei H, Li G, et al. 2021 *Photonics Res.* **9** 2046
- [152] Svidzinsky A A, Yuan L, Scully M O 2013 *Phys. Rev. X* **3** 041001
- [153] Remacle F, Levine R, Ratner M 1998 *Chem. Phys. Lett.* **285** 25
- [154] Engel G S, Calhoun T R, Read E L, et al. 2007 *Nature* **446** 782
- [155] Li S, Driver T, Rosenberger P, et al. 2022 *Science* **375** 285
- [156] Kaufman B, Rozgonyi T, Marquetand P, et al. 2020 *Phys. Rev. Lett.* **125** 053202
- [157] Li M, Zhang M, Vendrell O, et al. 2021 *Nat. Commun.* **12** 4233
- [158] Blavier M, Komarova K, Gonçalves C E M, et al. 2021 *J. Phys. Chem. A* **125** 9495
- [159] Kuramochi H, Takeuchi S, Kamikubo H, et al. 2019 *Sci. Adv.* **5** eaau4490
- [160] Fumero G, Schnedermann C, Batignani G, et al. 2020 *Phys. Rev. X* **10** 011051
- [161] Wang X, Wang L, Xiao F, et al. 2020 *Chin. Phys. Lett.* **37** 023201
- [162] Wang J, Xiao F, Wang L, et al. 2023 *Opt. Express* **31** 43224
- [163] Wang X, Xiao F, Wang J, et al. 2024 *Ultrafast Sci.* **4** 0080
- [164] Young L, Ueda K, Gühr M, et al. 2018 *J. Phys. B* **51** 032003
- [165] Han M, Ge P, Wang J, et al. 2021 *Nat. Photonics* **15** 765
- [166] Gong R, Li Y, Pan S, et al. 2025 *Sci. Adv.* **11** eadw5917
- [167] Lin K, Eckart S, Liang H, et al. 2024 *Science* **383** 1467
- [168] Polynkin P, Cheng Y 2018 *Air Lasing* (Cham: Springer International Publishing)
- [169] Kartashov D, Ališauskas S, Baltuška A, et al. 2013 *Phys. Rev. A* **88** 041805
- [170] Point G, Liu Y, Brelet Y, et al. 2014 *Opt. Lett.* **39** 1725
- [171] Lu X, He S, Xue P, et al. 2025 *Sci. Adv.* **11** eady7458
- [172] Malevich P N, Maurer R, Kartashov D, et al. 2015 *Opt. Lett.* **40** 2469
- [173] Zhang F, Xie H, Yuan L, et al. 2022 *Opt. Lett.* **47** 481
- [174] Zhang N, Xie H, Zhang H, et al. 2023 *Laser Photonics Rev.* **17** 2300020

- [175] Zhang Z, Zhang F, Xu B, et al. 2022 *Ultrafast Sci.* **2022** 9761458
- [176] Zhang N, Li Z, Gong R, et al. 2025 *Opt. Express* **33** 23873
- [177] Wu Y, Zhang N, Lu X, et al. 2024 *J. Phys. Chem. Lett.* **15** 2944
- [178] Li Z, Zhang N, He S, et al. 2025 *J. Phys. Chem. Lett.* **16** 9194
- [179] Lu X, Chen Y, Mazza F, et al. 2024 *Light Sci. Appl.* **13** 315

Strong-field-induced quantum coherent emission and its applications*

ZHAO Jing^{1#} LIU Yi^{2#} WU Cheng-Yin^{3#} YAO Jin-Ping^{4#} ZHAO Zeng-Xiu^{1†}

(1 College of Science, National University of Defense Technology, Changsha 410073, China)

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

(3 School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

(4 State Key Laboratory of Ultra-intense Laser Science and Technology, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

* Project supported by the Major Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 12595340, 12595341, 12595342, 12595343, 12595344).

These authors contributed equally to this work.

† Corresponding author. e-mail: zhaozengxiu@nudt.edu.cn

Abstract Intense ultrashort laser fields can prepare quantum coherence and multi-body entanglement in atoms and molecules on a sub-cycle timescale by combining broadband excitation with resonant coupling. Unlike conventional quantum optics, where coherence is built through the resonant interaction of weak narrowband light with atoms, here the coherence is created in an open, nonequilibrium system that undergoes ionization and radiates while the driven process is still under way. This review surveys the emerging field of strong-field quantum optics, covering the creation, diagnosis and application of such coherence. Five elementary processes are analyzed as sources of strong-field coherence: ionization and excitation that leave the ion in a superposition of electronic states, vibrational and rotational wave-packet formation in molecules, nonadiabatic coupling that redistributes coherence among electronic and nuclear degrees of freedom, entanglement between the photoelectron and the parent ion, and multi-electron coherence that initiates charge migration. These processes give rise to novel coherent emissions, including N₂⁺ air lasing, ultraviolet supercontinuum

radiation and free induction decay. The gain mechanism of N_2^+ air lasing remains controversial, and competing scenarios including population inversion, lasing without inversion, superradiance and post-pulse free induction decay are compared. We present an ionization-coupling theoretical framework that treats strong-field ionization and subsequent laser-ion coupling on the same footing, and discuss the challenges of extending it to many-electron, multi-degree-of-freedom open systems and to collective emission. On the experimental side, multidimensional spectroscopy, attosecond transient-absorption spectroscopy and photoelectron momentum spectroscopy are reviewed as state-resolved probes of coherence dynamics. Finally, the unique properties of air lasing and its potential applications in remote sensing, trace-gas detection and combustion diagnostics are discussed. Realizing air lasing as a practical radiation source with controllable temporal, spectral and spatial properties requires improving the output brightness and suppressing the supercontinuum background generated during filamentation.

Keywords strong-field quantum optics, quantum coherence, air lasing, attosecond pulses

录用稿件，
非最终出版稿