N_2^+的结构化空气激光

Jingsong Gao[1], Xiang Zhang[2], Yang Wang[1],Yiqi Fang[1], Qi Lu[2], Zheng Li[1], Yi Liu[2, *], Chengyin Wu[1], Qihuang Gong[1], Yunquan Liu[1, †], Hongbing Jiang[1, ‡]/北京大学物理学院介观物理国家重点实验室，中国北京 *100871*[2] 上海理工大学上海现代光学系统重点实验室，中国上海 *200093**yi.liu@usst.edu.cn

†yunquan.liu@pku.edu.cn

‡hbjiang@pku.edu.cn

摘要

结构光在科学和技术领域引起了广泛关注。在此，我们展示了首个由800纳米飞秒激光脉冲驱动的N_2^+结构化空气激光。将800纳米涡旋泵浦光束聚焦于N_2气体中，可产生波长为391纳米的N_2^+涡旋超荧光辐射，其携带与泵浦光束相同的光子轨道角动量。注入391纳米高斯种子光束后，相干辐射得到放大，但涡旋性保持不变。我们揭示了N_2^+涡旋超荧光辐射中的一种新物理机制：涡旋泵浦光束将空间螺旋相位传递到N_2^+增益介质中，高斯种子光束获得该空间螺旋相位，随后被放大为涡旋光束。此外，当采用具有柱矢量模式的泵浦光束时，高斯种子光束会相应地被放大为柱矢量光束。令人惊讶的是，无论高斯种子光束是线偏振、椭圆偏振还是圆偏振，放大后辐射的空间偏振态都与矢量泵浦光束相同。通过求解三维耦合波方程，我们展示了高斯光束如何在柱对称增益介质中转变为柱矢量光束。本研究为利用N_2^+空气激光产生结构光提供了一种新方法。

引言

随着新兴激光雕刻技术的发展，基模高斯激光模式的振幅、相位和偏振均可得到完全控制，从而产生许多有趣的时空模式[1]，，例如光学涡旋（OV）[2] 和矢量光束（VB）[3]。光学涡旋是一种具有空间螺旋相位结构和内禀光子轨道角动量（OAM）的光场，通常用拉盖尔–高斯（LG）模式[4]描述。由于光子的轨道角动量具有多值性，它为许多领域的应用提供了高维自由度，例如超分辨显微术[5]，、光镊[6,7]，、旋转物体检测[8]，以及通过轨道角动量复用实现高容量光通信[9,10]。相比之下，矢量光束是一种偏振态随空间变化的光场。柱矢量光束（CVB）是矢量光束的一种典型形式，具有柱对称偏振[3]。得益于其独特的动力学特性，柱矢量光束在多个科学领域引起了广泛关注，应用范围涵盖光学俘获[11]　、高分辨率成像[12,13]　、通信[14,15] 和量子存储器[16]。尤其是柱矢量涡旋光束，即携带轨道角动量的柱矢量光束，近来已被用于研究光的自旋-轨道相互作用[17,18]。传统上，光学涡旋和柱矢量光束的产生依赖于线性光学过程和光子器件，例如螺旋相位板（SPP）[19]，、空间变化半波片（SWP、半波q板）[20]，以及空间光调制器[21,22]。近年来，非线性强光-物质相互作用推动了宽波长范围结构光场的产生。例如，可利用高次谐波产生来生成随时间变化的轨道角动量[23]，并同时控制极紫外光子[24]的自旋-轨道态。事实上，探索利用光与物质相互作用产生结构光场的新方案十分有意义，这将为全面调控结构光场提供一种稳健而有前景的工具。

空气激光是一种无腔激光作用，由高功率飞秒激光脉冲的等离子体丝化过程在空气中产生[25,26]。尤其是，800纳米飞秒激光脉冲泵浦产生的391纳米N_2^+ 相干发射，因其丰富的物理机制而日益受到关注[27–36]。如今普遍认为，391纳米N_2^+ 的相干发射本质上是一种超荧光[34,35]，　，这是一种独特的量子光学

现象[37-39]，由宏观偶极子集体发射[40]。如果向等离子体中注入光谱覆盖391纳米的外部种子光，391纳米N_2^+ 的相干发射将被放大数个数量级[35]。目前，许多关于增强N_2^+空气激光强度的研究正在进行[41,42]。然而，具有空间变化相位或偏振态的激光束，即光学涡旋或矢量光束，尚未应用于N_2^+ 空气激光。

在此，我们报告了结构化 N_2^+空气激光中的一种新型物理现象。我们首次利用空间结构光驱动 N_2^+空气激光。将一束 p 偏振涡旋泵浦光束聚焦到 800 纳米处的 N_2 气体上，可产生一束具有与泵浦光束相同轨道角动量的 N_2^+空气激光涡旋信号，其波长为 391 纳米。注入一束具有最佳延迟的 p 偏振高斯种子光束后，相干信号的强度放大了近三个数量级。放大信号同样是具有相同轨道角动量的光学涡旋。 这表明，涡旋泵浦光束将空间螺旋相位传递给 N_2^+ 增益介质，而高斯种子光束则获得空间螺旋相位，随后被放大为光学涡旋。注入种子光束后， 我们将涡旋泵浦光束改为柱矢量光束泵浦光束。有趣的是，无论种子光束的偏振态是线偏振、椭圆偏振还是圆偏振，放大信号始终保持与泵浦光束相同的柱矢量光束模式。我们通过数值求解三维耦合波方程，展示高斯光束如何最终在柱对称增益介质中演变为柱矢量光束模式。

结果

实验示意图如图 1 所示（实验装置的更多细节见方法）。我们利用螺旋相位板将 800 nm 的 p 偏振强飞秒激光脉冲转换为拓扑荷为 $l = 1$ 的光学涡旋（光子的轨道角动量为 $l\hbar$）。如图 1a 所示，光学涡旋作为泵浦光束，用于电离 N_2 分子。泵浦光束经焦距为 30 cm 的透镜聚焦后，在激光等离子体丝中发生电离。氮分子主要被电离至 N_2^+ 的三个电子态。如图 1a 左侧插图所示，这三个态构成一个 V 型三能级系统，由 $X^2\Sigma_g^+$、$A^2\Pi_u$ 和 $B^2\Sigma_u^+$ 态组成。

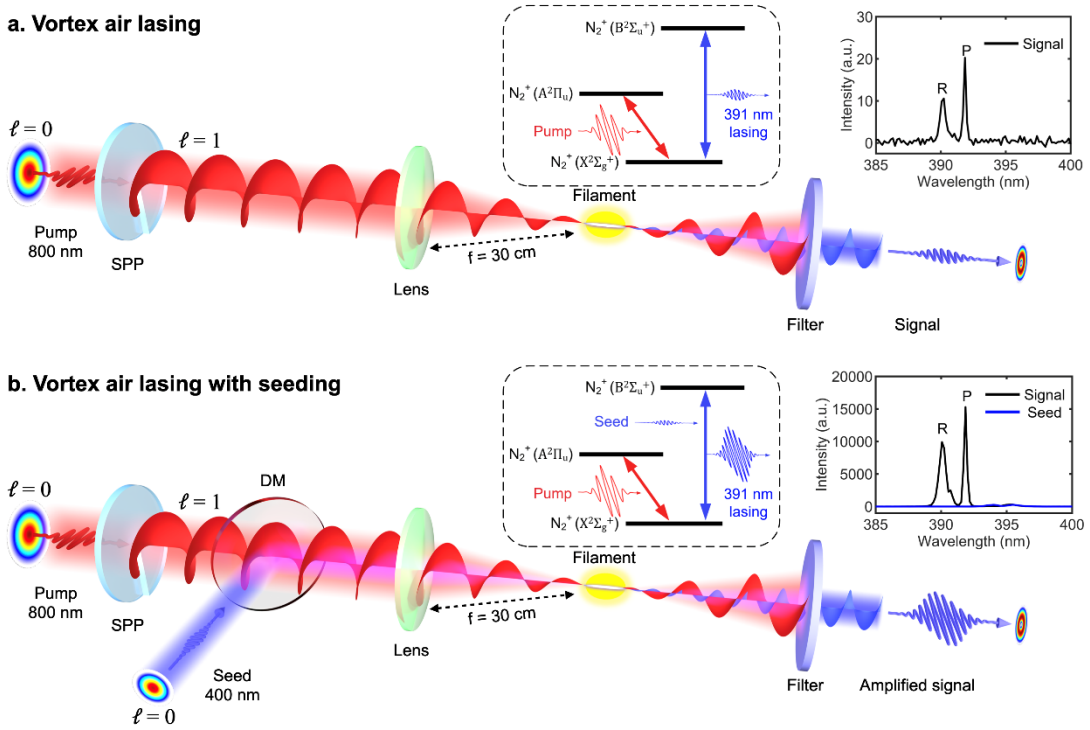

图 1 实验示意图。展示无种子注入（**a**）和有种子注入（**b**）时涡旋光束空气激光的产生过程示意图。**a**，使用 800 纳米的强涡旋光束单独泵浦 N_2 分子。**b**，使用 800 纳米的强涡旋光束泵浦 N_2分子，并注入一束光谱覆盖 391纳米的弱高斯光束，以激发 N_2^+ 离子。左侧虚线框内：无种子注入（**a**）和有种子注入（**b**）时，N_2^+在 391纳米处空气激光的三能级系统示意图。右侧插图：光谱（**a**）N_2^+ 空气激光信号；（**b**）N_2^+ 空气激光的放大信号及种子光。滤光片为带通滤光片，中心波长为 390 纳米，半峰全宽为 10 纳米。

检测到的信号光谱以黑线绘于图 1a 右侧插图中。该信号被确认为 N_2^+ 空气激光在 391纳米处的相干辐射，由 $B^2\Sigma_u^+(v''=0)\rightarrow X^2\Sigma_g^+(v=0)$ 跃迁发射，并包含 P支（转动跃迁：J→J+1）和 R支（转动跃迁：J→J-1）。信号的光束轮廓呈甜甜圈形，并由电荷耦合器件（电荷耦合器件）记录，如图 2b 所示。信号在每个空间点的电场偏振方向均与泵浦光束相同，为 *p* 偏振。光束中心的奇点源于螺旋相位结构。为测量信号的拓扑荷，我们采用柱面透镜[41–43]的动量空间映射，其示意图如图 2a 所示。柱面透镜焦点处扭曲光的图样取决于轨道角动量。柱面透镜焦平面处的模拟图像如图 2f 所示，其中光学涡旋变成了变形图样

具有 l ＋1 倾斜亮条纹。相邻的两条亮条纹构成一个变形涡旋核，涡旋核的数量等于拓扑荷。实验中，使用焦距为 1 m 的柱面透镜对信号光束进行聚焦。如图 2c 所示，相应的焦平面图像呈现两条亮条纹。与模拟结果相比，显然信号光束是拓扑荷为 l = 1 的光学涡旋。这意味着泵浦光束的空间相位结构已完全印刻到 391纳米处 N_2^+ 的相干信号上。

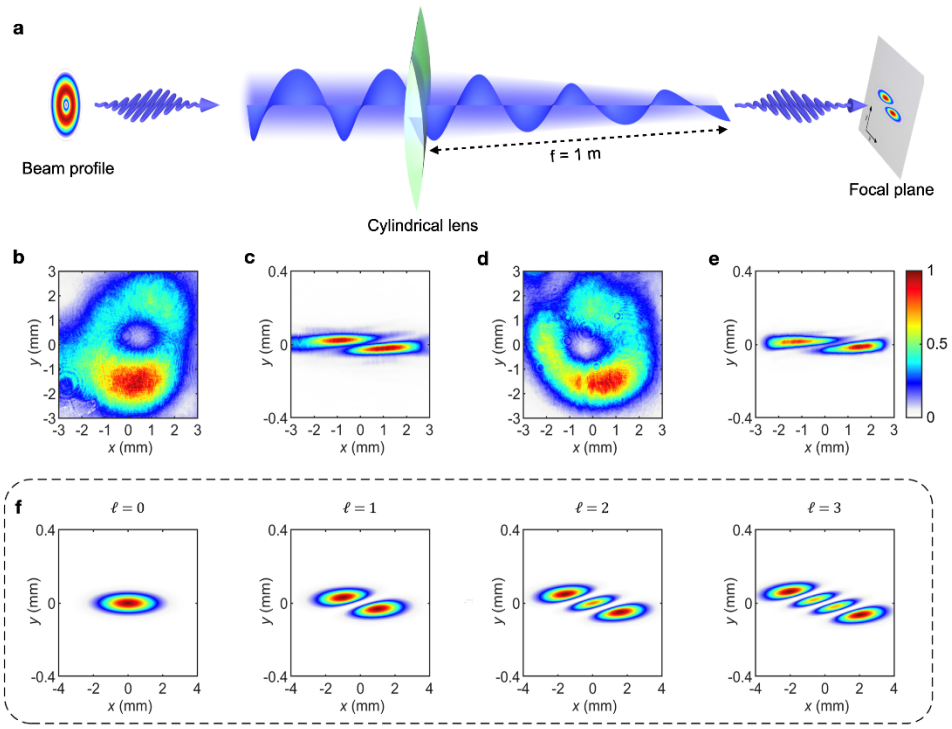

图 2 N_2^+ 光学涡旋泵浦的 391纳米 空气激光强度分布和焦平面图像。a，柱面透镜动量空间映射示意图。**b-c**，无种子注入时 N_2^+ 391纳米 空气激光的测得强度分布和焦平面图像。**d-e**，种子注入时 N_2^+ 391纳米 空气激光的测得强度分布和焦平面图像。**f**，拓扑荷分别为 0、1、2 和 3 的涡旋光束的模拟焦平面图像。所有光束均由柱面透镜沿 y 方向聚焦。实验和计算中柱面透镜的焦距均为 1 m。

在最佳延迟下注入 p偏振高斯种子光束（种子光束的中心波长为 400 纳米，光谱覆盖 391纳米）后，信号的强度得到放大，如图 1b 所示。放大信号的强度几乎比未注入种子的信号高三个数量级。放大信号的光谱由图 1b 右侧插图中的黑线表示。如图所示

在图 2d 中，放大信号的强度分布同样呈甜甜圈形。类似地，放大信号束经柱面透镜聚焦，其焦平面图像如图 2e 所示。这表明，放大信号也具有与泵浦光束相同的拓扑荷。然而，在超荧光理论中，通常认为如果注入外部种子光，它将主导宏观极化的建立。从理论上讲，放大信号的空间相位分布应当独立于涡旋泵浦光束的空间相位分布。有趣的是，我们的结果表明，泵浦光束的空间相位会通过 N_2^+ 增益介质同时传递至放大信号，这表明除现有的超荧光理论之外，N_2^+ 空气激光中还存在一种新的物理机制。

受光学涡旋种子注入结果的启发，我们用螺旋波片替换螺旋相位板，将泵浦光束转换为柱矢量光束。旋转螺旋波片的方位角，使泵浦光束变为径向偏振。以相同方式，将*p*偏振高斯种子光束以最佳延迟注入等离子体丝中，随后观测到391纳米处的 N_2^+ 空气激光放大信号。如图 3a 中标题为$|E|^2$ 的图所示，放大信号的强度分布同样呈现边界清晰的甜甜圈形图案。与光学涡旋不同，此处的奇点是由空间变化偏振态所致。在电荷耦合器件前放置偏振片，以观测空间偏振分布。图 3a 中的图$|E_x|^2$、$\left|E_x+E_y\right|^2/2$ 和 $\left|E_y\right|^2$分别显示放大空气激光通过偏振轴角度为 0°、45° 和 90° 的偏振片后的强度分布。可以看出，放大信号光束经过偏振片滤光后，其强度分布呈现两个波瓣，并随偏振片的偏振轴角度旋转。*x* 和 *y* 分量 $|E_x|^2$ 和 $\left|E_y\right|^2$, 分别具有 HG_{01} 和 HG_{10} 模式的特征（HG 模式，即厄米–高斯模式[44]）。众所周知，径向偏振光束可以表示为*p*偏振 HG_{01} 模式与*s*偏振 HG_{10} 模式的相干叠加[3]。结果表明，放大信号呈现径向偏振模式的特征，与泵浦光束相同。随后，我们依次将种子光束改为椭圆偏振态和圆偏振态（椭圆率分别为 0.73 和 0.92），相应结果同样具有径向偏振模式的特征，如图 3b 和图 3c 所示。显然，放大信号的偏振态完全由矢量泵浦光束决定，

且与高斯种子光束无关。

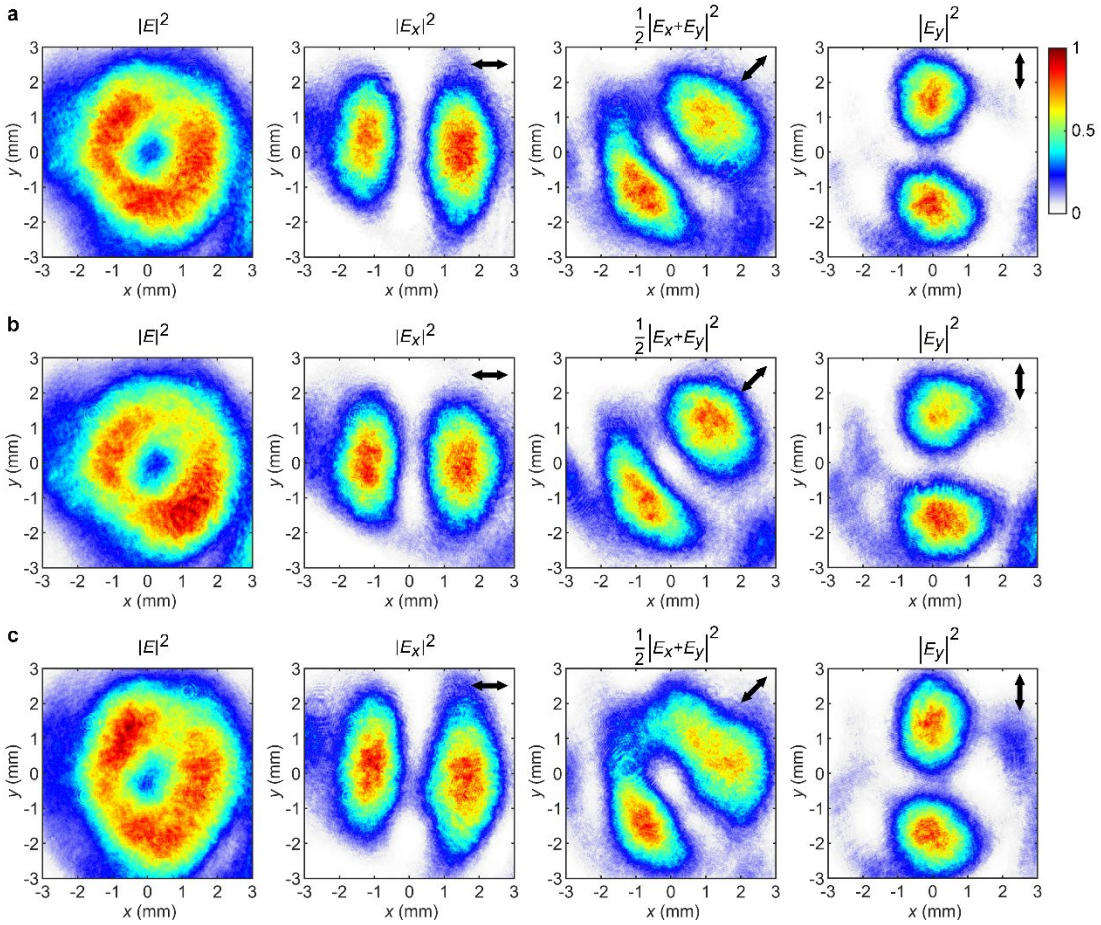

图 3 由径向偏振柱矢量光束泵浦并由外部高斯种子光束激发的 391纳米 N_2^+ 空气激光的强度分布。a-c分别表示种子光束的偏振态为线偏振、椭圆偏振和圆偏振。标题为 $|E|^2$ 的图像显示电荷耦合器件直接记录的信号强度分布。标题为 $|E_x|^2$、1 2 $\left|E_x+Ey\right|^2$, 和 $|Ey|^2$ 的图像显示经过不同角度（分别为 0°、45° 和 90°）偏振片滤波后的强度分布。每一行的强度分布均以第一幅图为基准进行归一化。黑色箭头表示偏振片的偏振轴方向。

为进一步确认，我们旋转螺旋波片，使泵浦光束变为方位角偏振。与图3所示结果类似，无论种子光束是线偏振、椭圆偏振还是圆偏振，相应的放大信号始终呈现方位角偏振模式的特征，如图4所示。此外，如果泵浦光束处于径向偏振模式与方位角偏振模式之间的任意柱矢量光束模式，放大信号也将具有相同的柱矢量光束

模式。因此，可以简单地实现 N_2^+ 空气激光的柱矢量光束模式调控。

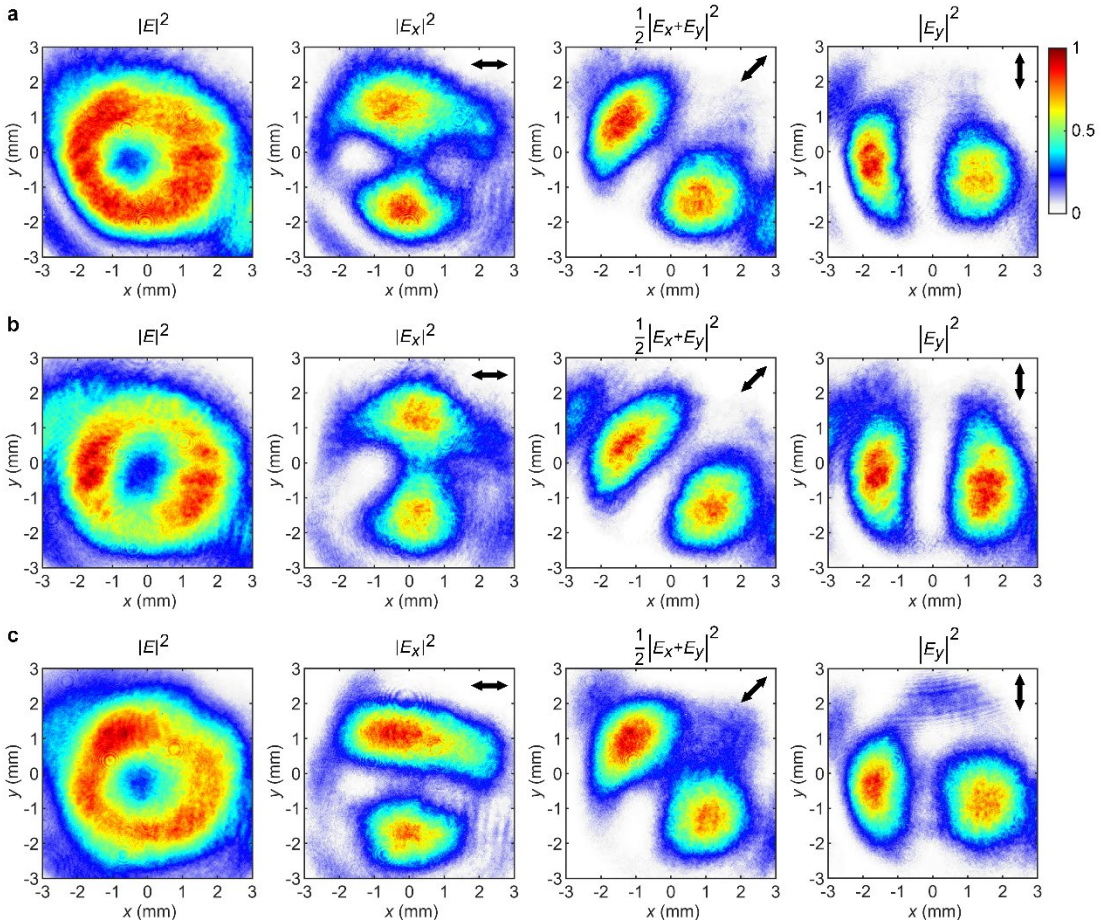

图4 N_2^+ 空气激光的强度分布：由方位偏振柱矢量光束泵浦，并由外部高斯种子光束在391纳米处激发。a-c，种子光束的偏振态分别为线偏振、椭圆偏振和圆偏振。标题为$|E|^2$的面板显示由电荷耦合器件直接记录的信号强度分布。标题为$|E_x|^2$、1 2 $\left|E_x+E_y\right|^2$ 和$|E_y|^2$ 的面板显示经不同角度（即0°、45°和90°）偏振片滤波后的强度分布。每一行的强度分布均采用与第一个面板相同的标准进行归一化。黑色箭头表示偏振片的偏振轴方向。

讨论

为了解释高斯光束如何被放大为柱矢量光束（CVB），我们构建了柱对称增益介质的理论模型。在先前实验中，泵浦光束和种子光束通常均为线偏振，其偏振态共同决定放大信号的偏振方向[45]。

放大信号为线偏振，其偏振方向介于泵浦光束和种子光束的偏振方向之间。 此外，放大信号的强度取决于泵浦光束与种子光束偏振方向之间的夹角。夹角为 0° 时，放大倍数最大[46]。随着夹角增大，放大倍数逐渐减小，直至夹角为 90° 时达到最小值。这表明，最大和最小增益方向分别与泵浦光束的偏振方向平行和垂直。 我们认为，这是由泵浦光束诱导的 N_2^+ 平均取向造成的。首先，在电离前后，泵浦光束使氮分子沿激光的偏振方向排列。此外，N_2 的最高占据分子轨道（HOMO）和 HOMO-2轨道的最佳电离方向与分子轴平行[47]。如果 N_2 分子从 HOMO 或 HOMO-2 轨道中脱出一个外层价电子，就会形成处于 $X^2\Sigma_g^+$ 或 $B^2\Sigma_u^+$[48]态的 N_2^+ 离子。这两个因素使得大多数处于 $X^2\Sigma_g^+$ 和 $B^2\Sigma_u^+$ 态的 N_2^+离子沿泵浦光束的偏振方向排列[49]。由于 $X^2\Sigma_g^+$ 与 $B^2\Sigma_u^+$ 之间的跃迁偶极矩也与分子轴平行[29], , 种子光束中平行于泵浦光束偏振方向的电场分量获得最大放大，而垂直于泵浦光束偏振方向的分量获得最小放大。

因此，如果泵浦光束为径向（方位角）偏振，N_2^+ 介质中的最大增益方向将在细丝中呈径向（方位角）分布；相应地，最小增益方向将为方位角（径向）。基于此，我们构建了一个具有柱对称增益的介质理论模型，该模型由两个三维耦合波方程描述（模型详情见方法）。在此模型中，我们重点研究信号在各向异性增益介质中如何从高斯模式空间演化为柱矢量光束模式。因此，我们忽略 N_2^+ 基态和激发态布居分布的时间变化，即在计算中将放大项视为常数。光致折射率变化的影响也可以忽略，因为它不会影响结果的柱对称性。

理论模型的数值结果如图5所示。图中展示了一个演化过程：p偏振高斯种子光束在径向增益介质中传播时，逐渐转变为

径向偏振光束。当传播距离为 0 mm 时，强度的y分量为零，强度分布 $|E|^2$与x分量 $|E_x|^2$相同。随着传播距离增加，光场强度以及y分量与x分量之比均有所增加。在增益介质的出口处，种子光束已被放大数千倍，最终变为径向偏振光束，如图5c所示。同样，如果介质的增益分布为方位角分布，p偏振种子光束将被放大为方位角偏振光束。该模型适用于种子的任何偏振态。我们还模拟了圆偏振种子光束的注入，该光束同样被放大为柱矢量光束。

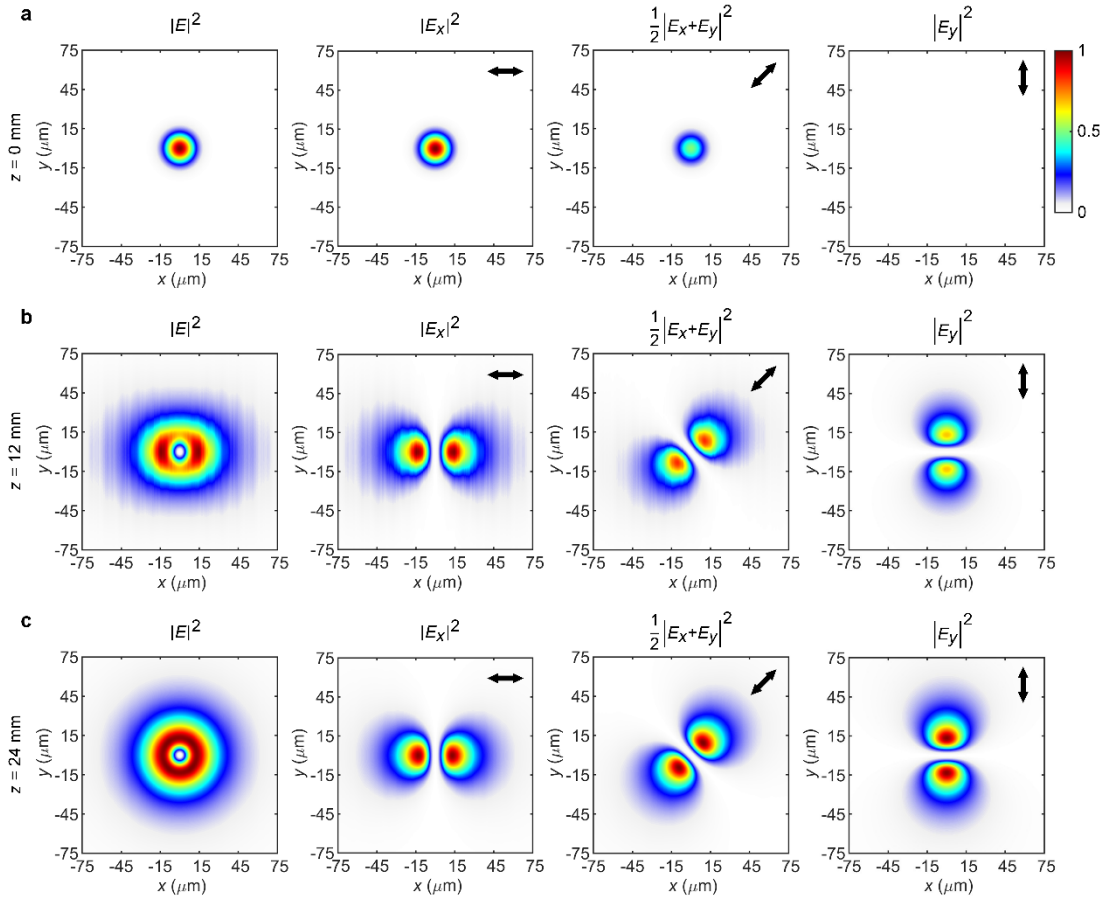

图5 径向增益介质中由p偏振高斯种子光束激发的光强分布模拟结果。 **a-c**，分别为增益介质中不同距离处（0 mm、12 mm 和 24 mm）的模拟强度分布。放大倍数分别约为 1 倍（**a**）、154 倍（**b**）和 6647 倍（**c**）。每行的强度分布均以第一幅图为标准进行归一化。黑色箭头表示偏振分量的方向。

通常，柱对称增益介质提供了一种可行途径，使电场的一个分量能够被放大为与其正交的分量，即E_y可以由E_x放大而来。然而，当各向异性增益介质由高斯光束进行种子注入时，无法在中心对称点之间提供形成柱矢量光束所需的 π 突变横向相位差。有趣的是，将空间相位从泵浦光束传递至放大信号，可以补偿这一相位差。在计算中，我们通过在增益介质入口处将泵浦光束的空间相位施加到种子光束上，来处理相位传递问题。因此，弱高斯种子光束在柱对称增益介质中传播时，会演变为强柱矢量光束。

在不进行种子注入、使用涡旋泵浦光束的空气激光中，391纳米处的 N_2^+ 空气激光相干信号继承了涡旋泵浦光束的螺旋相位结构。这与先前的认识一致：391纳米处的 N_2^+ 空气激光由源自泵浦光束超连续谱的白光进行自种子注入。细丝中的超连续谱通过自相位调制[50]，将泵浦光束的光谱从红外区域扩展至紫外区域，并由此自然地将泵浦光的螺旋相位结构带入白光中。

使用高斯光束进行种子注入时，相干信号会得到放大，且仍具有与泵浦光束相同的拓扑荷。根据目前的超荧光理论，人们可能会认为，在 V 型三能级系统中，泵浦光束的空间相位信息会在放大信号中丢失，因为通常认为 N_2^+ 介质的宏观极化主要由外部种子光诱导。 从理论上讲，放大信号的空间相位分布应与高斯种子光束相同。有趣的是，泵浦光束的空间螺旋相位最终转移到了 391 纳米处 N_2^+ 空气激光的放大信号上，也就是说，泵浦光束的轨道角动量通过激光丝化过程中的 N_2^+ 介质转移到了放大信号上。这表明，除了现有的超荧光理论之外，N_2^+ 空气激光还存在一种新的物理机制，有待进一步研究。

在存在种子注入的情况下，若使用柱矢量光束进行泵浦，高斯种子光束会相应地被放大为柱矢量光束。放大信号的偏振态完全由矢量泵浦光束决定。无论种子

光束是线偏振、椭圆偏振还是圆偏振，放大信号始终都是与泵浦光束模式相同的柱矢量光束。有种子注入时的矢量结果与先前的实验结果不同；在先前的实验中，泵浦光束和种子光束均为线偏振[45]。在此前的情形中，泵浦光束和种子光束协同控制放大信号的偏振方向。因此，放大信号为线偏振，其偏振方向介于泵浦光束和种子光束之间。这两种不同现象都源于泵浦光束诱导的 N_2^+ 激光取向，即激光取向决定了 N_2^+ 介质最大增益方向的空间特征。线偏振泵浦光束会产生最大增益方向为水平方向的 N_2^+ 介质，而柱矢量光束诱导的 N_2^+ 介质的最大增益方向则呈柱状分布。矢量结果表明，激光诱导取向有望应用于商用分子激光器，以产生高功率柱矢量光束或其他类型的矢量光束。

总之，我们首次实现了结构化空气激光。我们通过 N_2^+ 空气激光实验产生了两种典型的结构光，即光学涡旋和柱矢量光束。我们发现，800 nm 的光学涡旋将空间螺旋相位传递给 N_2^+ 增益介质，种子光束获取该空间螺旋相位后，便被放大为 391纳米的涡旋光束。泵浦光束向种子光束的相位传递揭示了 N_2^+ 空气激光的一种值得进一步研究的新机制。800 nm 的柱矢量光束使氮离子沿其偏振方向排列，从而产生 N_2^+的柱对称增益介质。这种各向异性增益介质能够将具有任意空间均匀偏振态的种子光束放大为柱矢量光束。从技术角度而言，这项工作提供了一种颇具前景的结构光生成方法：无需复杂的光学系统，通过无腔激光作用即可将高斯光束直接放大为结构光。

方法

实验详情。中心波长为800纳米的 p偏振高斯激光脉冲由钛蓝宝石激光器的再生放大系统发出，该系统可产生脉宽为35飞秒、重复频率为1千赫兹的脉冲。随后，激光脉冲被分成两条光束路径。第一条用作泵浦光束，单脉冲能量为1.8毫焦。首先，在光束路径中放置一块螺旋相位板，将泵浦

光束转换为涡旋光束（拓扑荷为$\mathrm{l}=1$）。然后，用螺旋波片替换螺旋相位板，将泵浦光束转换为柱矢量光束。通过旋转螺旋波片的方位角，可使柱矢量光束模式在径向偏振和方位偏振之间连续调节。第二条光路通过一块半波片和一块厚度为0.1毫米的β-硼酸钡晶体（BBO），产生中心波长为400纳米、光谱覆盖391纳米的p偏振二次谐波。二次谐波用作弱种子光束，并通过四分之一波片改变其偏振态（线偏振、椭圆偏振或圆偏振）。两束光经焦距为30厘米的透镜共线聚焦进入气室，产生一根细丝。气室中充有压力为30毫巴的纯N_2气体。在信号探测前，泵浦光束由两个带通光学滤波器滤除。N_2^+在391纳米处的激光发射由连接到光栅光谱仪的光纤探头收集，或由电荷耦合器件记录。

理论模型。 具有径向增益的介质的三维耦合波方程（在慢变近似条件下）表示为

$$\frac{\partial^2 E_x}{\partial x^2}+\frac{\partial^2 E_x}{\partial y^2}+2ik\frac{\partial E_x}{\partial z}=-\mu\omega^2 P_x, \tag{1}$$

and

$$\frac{\partial^2 E_y}{\partial x^2}+\frac{\partial^2 E_y}{\partial y^2}+2ik\frac{\partial E_y}{\partial z}=-\mu\omega^2 P_y, \tag{2}$$

其中，E_x 和E_y 分别是电场慢变振幅的x分量和y分量，k 是电场的波数，ω 是电场的角频率，μ 是磁导率，P_x 和P_y 分别是介质宏观极化慢变部分的x分量和y分量。宏观极化是E_x 和E_y的函数，即，

$$P_x = C\langle\cos^2\theta\rangle\left(E_x\cos^2\varphi+E_y\sin\varphi\cos\varphi\right)$$
$$+C\langle\sin^2\theta\rangle\left(E_x\sin^2\varphi-E_y\sin\varphi\cos\varphi\right), \tag{3}$$
$$P_y = C\langle\cos^2\theta\rangle\left(E_x\sin\varphi\cos\varphi+E_y\sin^2\varphi\right)$$
$$-C\langle\sin^2\theta\rangle\left(E_x\sin\varphi\cos\varphi-E_y\cos^2\varphi\right). \tag{4}$$

参数 C 由下式给出

$$C=-\frac{i}{\hbar\gamma}d_{BX}^2 N(\rho_{22}-\rho_{11}), \tag{5}$$

其中 $\hbar$ 是约化普朗克常数，γ 是衰减率，d_{BX} 是 $X^2\Sigma_g^+$ 和 $B^2\Sigma_u^+$ 态之间的跃迁偶极矩，N 表示单位体积平均粒子数，ρ_{11} 和 ρ_{22} 分别是处于上态和下态的概率，$N(\rho_{22}-\rho_{11})$ 表示单位体积内上态和下态的布居差，该布居差由泵浦光的强度决定，并表征放大；φ 是 xy 平面的方位角，而 $\cos^2\theta$ 和 $\sin^2\theta$ 分别是 N_2^+ 的平均排列度，其中 分子分别平行和垂直于泵浦光束的偏振方向（推导详情将随正式发表的论文以补充信息的形式提供）。方程采用分步傅里叶法求解。在计算中，忽略基态和激发态布居分布随时间的变化，即将 ρ_{22} 和 ρ_{11} 视为常数。种子光束和增益介质（等离子体丝）的束腰均设为 15 μm。增益介质的横截面设为 $l=1$ 的拉盖尔-高斯模式（因为柱矢量光束的强度分布与 $l=1$ 的光学涡旋具有相同的图样）。$\cos^2\theta$ 与 $\sin^2\theta$ 的比值设为 2。增益介质的长度设为 24 mm。参数 C 设定为使种子光放大约 8000 倍。若增益分布具有方位角依赖性，则方程中的 $\cos^2\theta$ 和 $\sin^2\theta$ 将互换。

致谢

本研究得到国家重点研发计划（项目编号：2018YFA0306302）和国家自然科学基金（项目编号：41527807、12034013）的资助

参考文献

1. Forbes, A., de Oliveira, M. & Dennis, M. R. 结构光。《自然·光子学》15, 253–262 (2021)。2. Shen, Y. 等。光学涡旋问世30年：从拓扑荷到多重奇点的轨道角动量操控。《Light Sci. Appl.》8, 90 (2019)。3. Zhan, Q. 柱矢量光束：从数学概念到应用。《Adv. Opt. Photon.》1, 1-57 (2009)。4. Allen, L., Beijersbergen, M. W., Spreeuw, R. J. C. & Woerdman, J. P. 光的轨道角动量与拉盖尔-高斯激光模式的变换

。Phys. Rev. A 45, 8185–8189 (1992)。5. Vicidomini, G., Bianchini, P. & Diaspro, A. 受激发射损耗超分辨显微术。Nat. Methods 15, 173–182 (2018)。6. Grier, D. G. 光学操控领域的一场革命。Nature 424, 810–816 (2003)。7. Padgett, M. & Bowman, R. 带有旋转的镊子。《自然·光子学》5, 343–348 (2011)。8. Lavery, M. P. J., Speirits, F. C., Barnett, S. M. & Padgett, M. J. 利用光的轨道角动量探测旋转物体。《科学》341, 537–540 (2013)。9. Wang, J. 等。利用轨道角动量复用实现太比特级自由空间数据传输。《自然·光子学》6, 488–496 (2012)。10. Ren, H., Li, X., Zhang, Q. & Gu, M. 宽带光的片上无干扰角动量复用。《科学》352, 805–809 (2016)。11. Moradi, H., Shahabadi, V., Madadi, E., Karimi, E. & Hajizadeh, F. 利用柱矢量光束实现高效光学俘获。光学快报27, 7266–7276 (2019)。12. Chen, R., Agarwal, K., Sheppard, C. J. R. & Chen, X. 在高数值孔径显微系统中利用柱矢量光束成像。光学快报38, 3111–3114 (2013)。13. Neugebauer, M., Woźniak, P., Bag, A., Leuchs, G. & Banzer, P. 利用偏振控制定向散射，实现纳米级位置传感。《自然·通讯》7, 11286 (2016)。14. Wang, J. 光学涡旋通信研究进展。《光子学研究》4, B14–B28 (2016)。15. Ndagano, B. 等。利用经典光的不可分态表征量子信道。《Nat. Phys.》13, 397–402 (2017)。16. Parigi, V. 等。将光的矢量光束存储并读取于多自由度量子存储器中。《自然·通讯》6, 7706 (2015)。17. Fang, Y. 等。强光场自旋–轨道相互作用的光电映射。《自然·光子学》15, 115–120 (2021)。18. Stav, T. 等。利用超材料实现光子的自旋与轨道角动量量子纠缠。《科学》361, 1101–1104 (2018)。19. Beijersbergen, M., Coerwinkel, R., Kristensen, M. & Woerdman, J. 螺旋状

用螺旋相位板产生的波前激光束。《光学通讯》112, 321–327 (1994)。20. Naidoo, D. 等. 激光产生的高阶庞加莱球光束的可控生成。《自然·光子学》10, 327–332 (2016)。21. Liu, S. 等. 高效生成偏振、相位和振幅可调的任意矢量光束。《光子学研究》6, 228-233 (2018)。22. Ngcobo, S., Litvin, I., Burger, L. & Forbes, A. 按需产生激光模式的数字激光器。《自然·通讯》4, 2289 (2013)。23. Rego, L. 等. 生成轨道角动量随时间变化的极紫外光束。《科学》364, eaaw9486 (2019) 24. Dorney, K. M. 等. 通过自旋—轨道动量守恒, 同时控制阿秒高次谐波光束的偏振和涡旋荷。《自然·光子学》13, 123–130 (2019) 25. Dogariu, A., Michael, J. B., Scully, M. O. & Miles, R. B. 空气中的高增益反向激光。《科学》331, 442–445 (2011)。26. Yao, J. 等. 空气中的高亮度可切换多波长远程激光。《物理评论A》84, 051802 (2011)。27. Xu, H., Lötstedt, E., Iwasaki, A. & Yamanouchi, K. 通过多态耦合实现空气激光中 N_2^+ 的亚 10 飞秒粒子数反转。《自然·通讯》6, 8347 (2015)。28. Yao, J. 等. 强激光场中氮分子离子多个电子态之间的粒子数再分布。《物理评论快报》116, 143007 (2016)。29. Liu, Y. 等. 氮离子超辐射发射对泵浦激光波长和脉宽的异常敏感性。《物理评论快报》119, 203205 (2017)。30. Britton, M. 等. 检验再碰撞在 N_2^+ 空气激光中的作用。《物理评论快报》120, 133208 (2018)。31. Zhang, A. 等. 飞秒脉冲泵浦的氮离子超辐射的相干调制。《光学快报》27, 12638–12646 (2019)。32. Ando, T. 等. N_2^+ 在 391纳米 激光中的转动、振动和电子调制：相干 $B^2\Sigma_u^+$-$X^2\Sigma_g^+$-$A^2\Pi_u$ 耦合的证据。《物理评论快报》123, 203201 (2019)。33. Richter, M. 等. 无反转转动量子拍频激光。Optica 7, 586-592 (2020)。

34. Liu, Y. 等. 电离氮分子的再碰撞诱导超辐射。《物理评论快报》115, 133203 (2015)。35. Zhang, A. 等. 通过 800纳米飞秒激光脉冲对电离氮分子超荧光进行亚飞秒分辨调制。《光学快报》27, 14922–14930 (2019)。36. Zhang, X. 等. 对 N_2^+ 多波长激光的相干控制：相干转移及更多。《Optica》8, 668-673 (2021)。37. Findik, G. 等. 甲基铵碘化铅中的高温超荧光。《自然·光子学》15, 676–680 (2021)。38. Biliroglu, M. 等. 杂化钙钛矿中的室温超荧光及其起源。《自然·光子学》16, 324–329 (2022)。39. Huang, K. 等. 室温上转换超荧光。《自然·光子学》16, 737–742 (2022)。40. Bonifacio, R. & Lugiato, L. A. 二能级系统中的协同辐射过程：超荧光。《物理评论A》11, 1507-1521 (1975)。41. Li, H. 等. 偏振调制超短激光脉冲显著增强 N_2^+ 激光。《物理评论快报》122, 013202 (2019)。42. Li, H. 等. 完全粒子数反转大幅增强 N_2^+ 中的空气激光。《物理评论快报》125, 053201 (2020)。43. Alperin, S. N., Niederriter, R. D., Gopinath, J. T. & Siemens, M. E. 使用单个固定透镜定量测量光的轨道角动量。《光学快报》41, 5019-5022 (2016)。44. Kogelnik, H. & Li, T. 激光束与谐振腔。《应用光学》5, 1550–1567 (1966)。45. Xie, H. 等. 转动相干性在飞秒脉冲驱动的氮离子激光中的作用。《物理评论研究》2, 023329 (2020)。46. Lei, M., Wu, C., Zhang, A., Gong, Q. & Jiang, H. 飞秒激光脉冲泵浦的超辐射 N_2^+ 的转动能级中的粒子数反转。《Opt

.

快报 **25**, 4535-4541 (2017年). 47. Petretti, S., Vanne, Y. V., Saenz, A., Castro, A. & Decleva, P. 强激光场中 N_2, O_2, 和 CO_2 的取向依赖电离。物理学. 评论.快报.**104**, 223001 (2010年). 48. Becker, A., Bandrauk, A. D. & Chin, S. L. 氮分子内价电子非共振多光子电离的S矩阵分析。化学

.

物理学.快报. **343**, 345–350 (2001). 49. Pavičić, D., Lee, K. F., Rayner, D. M., Corkum, P. B. & Villeneuve, D. M. 强激光场中 N_2, O_2, 和 CO_2 电离角度依赖性的直接测量。物理学.评论.快报. **98**, 243001 (2007). 50. Bergé, L., Skupin, S., Nuter, R., Kasparian, J. & Wolf, J. P. 弱电离光学透明介质中的超短光丝。综述.进展.物理学. **70**, 1633- 1713 (2007).