

利用强场多光子电离技术实现对多原子分子离子振动量子态的光学操控

刘玉柱 Gerber Thomas Knopp Gregor

Optical control of the vibrational excitation of the polyatomic ions via strong field multi-photon ionization

Liu Yu-Zhu Gerber Thomas Knopp Gregor

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, **63**, 244208 (2014) DOI: 10.7498/aps.63.244208

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.244208>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2014/V63/I24>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

分子双电离对激光偏振性的依赖关系

[Laer polarization dependence of double ionization of molecules](#)

物理学报.2014, 63(2): 023303 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.023303>

多周期双色场方案下附加脉冲频率对阿秒脉冲产生的影响

[Effects of additional pulse wavelength at different frequencies on attosecond pulse generation in multicycle two-color laser field](#)

物理学报.2012, 61(20): 203202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.203202>

高激发态原子的相干效应

[Coherence effect of high excited state atoms](#)

物理学报.2012, 61(19): 193302 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.193302>

少周期激光脉冲与气体作用产生的离化电流和 THz 波辐射

[Ionization currents and terahertz emission from the interaction of few-cycle laser pulses with gas targets](#)

物理学报.2012, 61(17): 174205 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.174205>

氦原子非次序双电离对正交双色场强度比的依赖关系

[Dependence of nonsequential double ionization of He on intensity ratio of orthogonal two-color field](#)

物理学报.2012, 61(9): 093303 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.093303>

# 利用强场多光子电离技术实现对多原子分子离子 振动量子态的光学操控\*

刘玉柱<sup>1)†</sup> Gerber Thomas<sup>2)</sup> Knopp Gregor<sup>2)</sup>

1)(南京信息工程大学物理与光电工程学院, 南京 210044)

2)(Paul Scherrer Institute, 5232 Villigen, Switzerland)

(2014年9月25日收到; 2014年10月10日收到修改稿)

利用飞秒光电子影像技术研究了碘甲烷分子在飞秒强激光场作用下的多光子电离动力学, 在实验上实现了运用飞秒强场多光子电离技术对多原子分子离子的振动量子态进行光学操控. 提高了飞秒激光的强度, 从  $1.6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  提高到  $2.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ . 在增大的激光强度范围内, 发现了新的能量组分, 并对此进行归属. 通过采集光电离的光电子影像可以得到强场电离后光电子的动能分布和角度分布两方面的信息, 前期的研究主要侧重于讨论光电子动能随光强的变化, 重点讨论了光电子角度分布随光强的变化, 通过观察光电子角度分布的变化趋势对振动量子态调控机理进一步认识.

**关键词:** 强场电离, 多光子电离, 光学操控, 角分辨

**PACS:** 42.50.Hz, 82.50.Pt, 33.80.Rv, 33.80.-b

**DOI:** 10.7498/aps.63.244208

## 1 引言

强场多光子物理 (high-intensity multi-photon physics) 作为多光子过程 (multi-photon process) 研究的一个重要分支<sup>[1]</sup>, 成为理论物理和实验物理研究的热点. 通过测量多光子电离的光电子能谱和对应的离子态光谱可以深入认识其深层的物理机理. 在强激光场作用下, 通过中间态 (如 Rydberg 态) 共振而引起的 Stark 平移是一个很普遍的物理现象, 已在多种原子的多光子电离中被发现, 如 Xe<sup>[2-5]</sup>, H<sup>[6]</sup>, Ar<sup>[7]</sup> 和 Kr<sup>[8]</sup>.

由于分子的振动自由度使得对分子类似的多光子电离研究更为复杂<sup>[9]</sup>, 该方面的报道较少. 近年, Urbain 等<sup>[10]</sup> 和 Posthumus 等<sup>[11]</sup> 在双原子分子体系中实现了利用强场多光子电离对双原子分子离子态的振动进行调控. 他们选用氢气分子, 在实验上通过改变电离激光的光强, 实现了对氢气离子

进行振动量子态的精确调控.

近期, 我们在实验室通过变换飞秒激光强度实现了对多原子分子离子的振动量子态的调控. 实验上选用碘甲烷作为多原子分子的模型分子, 探测手段采用角度分辨的光电子影像技术. 通过变换光强得到了强度分辨的光电子影像. 光电子影像可以提供电离后光电子的动能分布和角度分布两方面信息, 文献<sup>[12]</sup>介绍了基于强度分辨的光电子能量分布. 本文重点研究光电子角度分布随光强的变化, 通过观察光电子角度分布的变化趋势对振动量子态调控机理进一步认识. 另外本文的研究大大拓展了光强范围, 从前期的最大光强  $1.6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$  拓展到现在的  $2.5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ .

## 2 实验

光电子影像的采集工作在自行设计的双极光电子/离子影像装置上完成, 详细的装置描述可参

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11304157) 和瑞士国家自然科学基金 NCCR-MUST 项目资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: yuzhu.liu@gmail.com

考文献 [13, 14]. 装置主要包括真空腔体、脉冲超声分子束、双极飞行时间质谱仪、双极光电子/离子影像探测装置、数据探测和采集系统以及飞秒激光系统等几个部分, 装置的测试和校准通过重复碘甲烷的光解离来完成, 方法与文献 [15] 中一致. 真空腔体包括束源室和电离室两个部分. 实验样品以  $2.0 \times 10^5$  Pa 的 He 为载气由脉冲阀喷入束源室形成超声分子束, 再经一个孔径为 1 mm 的撇勺 (skimmer) 限束、准直、进一步冷却后进入电离室, 与飞秒激光作用. 电离室里的飞行时间质谱仪分成电离区和自由飞行区, 在电离区产生的产物 (光电子和离子) 分别由电场加速和离子透镜 [16] 聚焦后经过自由飞行区飞向光电子/离子敏感探测器接收. 位置敏感探测器由微通道板 (MCP) 和荧光屏 (PS) 组成. 飞行时间质谱信号由 MCP 直接读取然后输入到示波器, 而光电子/离子速度影像是通过 CCD 相机读取. 整个系统的控制数据读取通过 Labview 编程实现. 实验中使用的红外光波长为 800 nm, 为钛宝石飞秒激光器输出的基频光, 详细的激光参数请参考文献 [17].

实验样品碘甲烷从 Sigma-aldrich 试剂公司购买, 纯度为 99.9%, 使用时未作进一步纯化.

### 3 实验结果与讨论

#### 3.1 更高光强下的光电子动能分布

本文实验拓展了光强范围, 图 1 给出了  $2.0 \times 10^{13}$  和  $2.5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> 强场作用下的光电子影像. 为方便比较和参考,  $1.0 \times 10^{13}$  和  $1.6 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> 强度下的光电子影像也在图 1 一起给出. 在  $1.0 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> 光强作用下, 主要观察到三个组分, 标记为峰 a, 峰 b 和峰 c, 如图 1 所示. 在文献 [12] 中, 我们已对这些组分进行了归属. 峰 a 和峰 b 分别对应于碘甲烷分子吸收 7 个光子后电离到  $\tilde{X}^2E_{1/2}$  和  $\tilde{X}^2E_{3/2}$  离子态的光电子组分, 而峰 c 对应于  $\tilde{X}^2E_{3/2}$  离子态的不同振动量子态. 从图 1 可以明显看出, 随着激光强度增大到  $2.0 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>, 峰 a 和峰 b 基本全部消失, 峰 c 逐渐增强, 这显示了  $\tilde{X}^2E_{3/2}$  离子态振动布居随激光强度的变化.

通过自行编制的 lin-Basex 计算程序 [18] 对光电子影像进行反 Abel 变化再进行校准后可以得到光电子的动能分布, 如图 2 所示. 在更高光强

( $1.6 \times 10^{13}$ — $2.5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>) 作用下, 随着光强的增加, 可以明显观察到有比峰 c 能量更高的组分出现, 即峰 d (见图 2). 而比峰 c 能量低的组分也有增加的趋势, 使得峰 c 随光强增加逐渐变宽. 比较峰 c 左边的低组分和峰 c 右边的高组分峰 d, 可以发现它们的差值约为 1.5 eV, 与一个光子的能量 1.55 eV 非常接近.

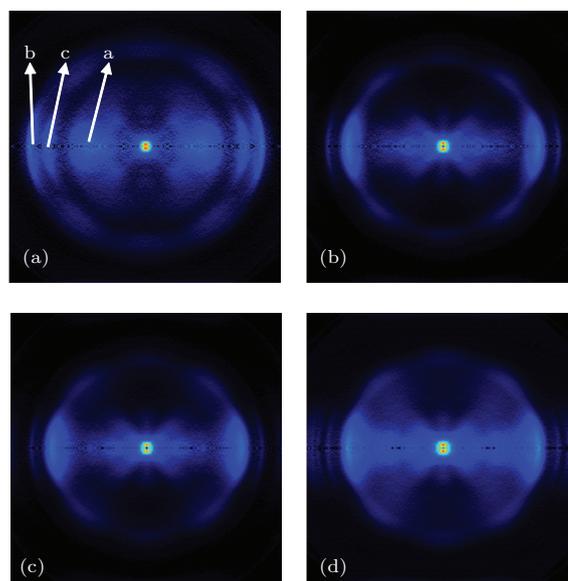


图 1 (网刊彩色) 碘甲烷在不同光强下的强场多光子电离的光电子影像, 激光的偏振方向为图片的平行方向 (a)  $1.0 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>; (b)  $1.6 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>; (c)  $2.0 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>; (d)  $2.5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>

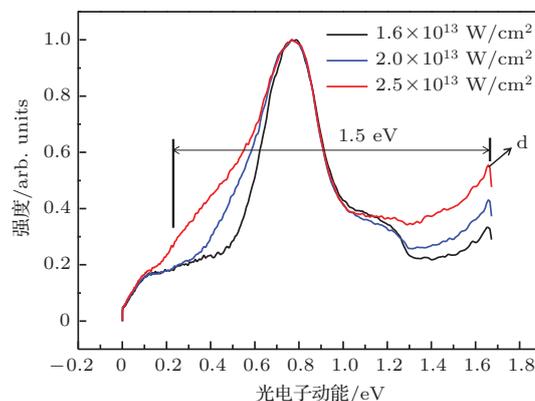


图 2 (网刊彩色) 更高光强 ( $1.6 \times 10^{13}$ — $2.5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>) 作用下多光子电离的光电子动能分布

为了更清晰地呈现光电子动能分布随光强的变化, 图 3 给出了光强和动能的二维分布. 从图 3 可见, 随着光强增加, 在  $1.0 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> 附近, 发生了  $\tilde{X}^2E_{3/2}$  离子的动能谱的突然变化, 这是由于光强变化导致 Stark 效应的变化, 从而导致共振中间变化, 最终引起  $\tilde{X}^2E_{3/2}$  离子的振动量子态

的变化,这在文献[12]中已经给出了详细的描述.这里我们主要关注在更高能量范围内观察到的新现象.如图3所示,光强增强后,  $\tilde{X}^2E_{3/2}$  离子对应的峰c逐渐变宽,而同时也有更高能量组分的峰d出现.在图3的二维图上发现峰c变宽是由于峰左边低能量组分的出现,而低能量组分随光强增加的斜率与高能量组分峰d的出现斜率是一致的(如图3中的两条白色箭头所示).

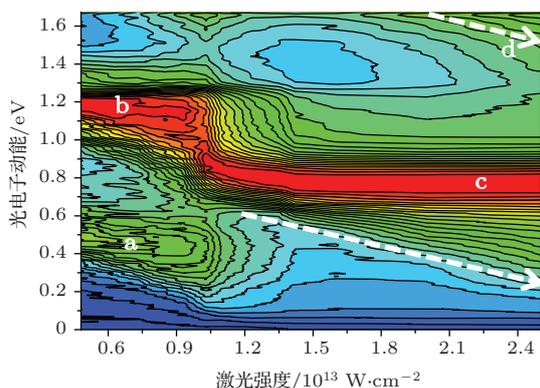
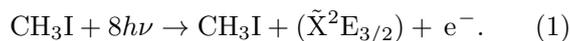


图3 (网刊彩色) 光强和光电子动能的二维分布图

由图3可见,峰c的低能量部分来自于与峰c相同的离子态,即  $\tilde{X}^2E_{3/2}$ ,而与峰c的差异是它们的振动能量不同.随着光强逐渐增强, Stark效应也增强,引起了振动量子态的继续变化.从测量的动能来分析,低能量组分的动能低是由于它来自于  $\tilde{X}^2E_{3/2}$  离子态的更高振动能级.对以上实验结果的分析,已经确认峰d与峰c低能量组分的能量差约为一个光子的能量,而且它们随光强的变化斜率都是一致的.因此可以将它们归属于来自于不同光子吸收电离到相同能态的组分,即峰d也来自于相同的离子态  $\tilde{X}^2E_{3/2}$ ,因此峰d可以归属为碘甲烷

分子吸收8个光子之后电离到被调控后的高振动能级,如(1)式所示:



### 3.2 光电子角度分布

通过光电子影像不仅可以得到光电子的动能分布信息,同时还可以得到光电子角度分布信息.本部分着重讨论主要组分a, b, c的角度分布随光强的变化.通过对光电子动能分布的分析[12]已经认识到主要组分a, b, c都是碘甲烷分子吸收7个光子后发生多光子电离后的能量组分,光电子分布在实验室坐标系下可以表示为[19]

$$I(\theta; t) = \sigma(t)[1 + \beta_2(t)P_2(\cos \theta) + \beta_4(t)P_4(\cos \theta) + \beta_6(t)P_6(\cos \theta) + \beta_8(t)P_8(\cos \theta) + \beta_{10}(t)P_{10}(\cos \theta) + \beta_{12}(t)P_{12}(\cos \theta) + \beta_{14}(t)P_{14}(\cos \theta)], \quad (2)$$

其中  $\sigma(t)$  是积分截面,  $\beta_L(t)$  为各向异性参数,  $P_L(\cos \theta)$  是勒让德多项式,  $\theta$  是激光偏振方向和光电子电离出射速度方向的夹角.对光电子三维分布进行速度积分,得到角度分布  $I(\theta; t)$ .因为光电子分布满足柱对称,所以只用  $\theta$  描述其角度分布.对采集的光电子影像进行处理,分别得到了峰a, 峰b和峰c在不同光强的角度分布图谱.从得到的角度分布图上可以看出,峰c的角度分布随着光强的变化非常明显,而峰a, 峰b的变化不大.峰c在不同光强下的角度分布如图4所示,随着电离激光强度的增加,角度分布呈现更加各向异性,然后趋于稳定.

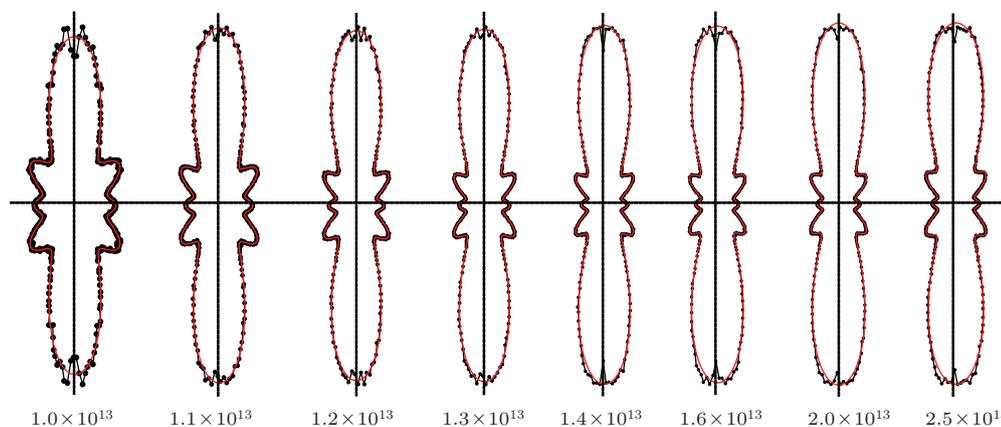


图4 (网刊彩色) 峰c在不同光强下 ( $W/cm^2$ ) 的角度分布

为了得到更为量化的角度分布信息,对光电子角分布用方程(2)拟合即可得到峰a,峰b和峰c的各向异性参数( $\beta_2, \beta_4, \beta_6, \beta_8, \beta_{10}, \beta_{12}$ 和 $\beta_{14}$ ).比较拟合结果发现,高阶参数 $\beta_{10}, \beta_{12}$ 和 $\beta_{14}$ 值比较小,而且信噪比较差,这里没有给出.图5给出了各向异性参数 $\beta_2, \beta_4, \beta_6$ 和 $\beta_8$ 值.峰a的各向异性参数 $\beta_2, \beta_4, \beta_6, \beta_8$ 在激光强度呈现杂乱无章的波动,波动范围在实验测量和拟合的误差范围内,因此我们认为峰a的角度分布随光强增加无明显变化,观察到的波动属于实验测量和拟合的误差.而峰b的各向异性随着光强的增加呈现减小的趋势,特别是从两个最主要的各向异性参数 $\beta_2$ 和 $\beta_4$ 值可以看出该趋势, $\beta_2$ 值由 $0.48 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>光强下的1.19减小为 $0.93 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>光强下的0.94; $\beta_4$ 值由 $0.48 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>光强下的0.94减小为 $0.93 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>光强下的0.67.它们减小的范围明显大于实验和拟合的误差.而对于峰c的变化极为明显,随着电离光强的变化,峰c的角度分布各向异性逐渐增强,然后趋于稳定.这个趋势在峰c的各个异性参数中都有一致的体现.具体变化幅度较大, $\beta_2$ 值由 $1.0 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>光强下的0.67增加为 $2.5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>光强下的1.25; $\beta_4$ 值由 $1.0 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>光强下的0.29增加为 $2.5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>光强下的0.87;

$\beta_6$ 值由 $1.0 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>光强下的0.44增加为 $2.5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>光强下的0.89; $\beta_8$ 值由 $1.0 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>光强下的0.77增加为 $2.5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>光强下的1.18.

从以上详细的数值比较可见,随着电离激光的强度增加,三个峰的角度分布随光强变化有不同的趋势.首先我们来看 $0.48 \times 10^{13}$ — $0.93 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>光强范围内的结果.从图3的光电子能谱可见,在该光强范围内有峰a和峰b.在测量精度范围内,峰a的各向异性保持不变,峰b的各向异性稍有变小.实验研究表明,强场电离在对分子电离的同时进行准直<sup>[20,21]</sup>,而从峰a的角度分布变化情况来看,在观察的光强范围内( $0.48$ — $0.93 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>)没有发现角度分布随激光强度的明显变化,而峰b在相同的光强范围内各向异性有减小的趋势.因此峰b的各向异性减小是无法通过光强变化对分子准直程度的影响来解释的.由图3可见,随着激光强度的增加(从 $0.48 \times 10^{13}$ — $0.93 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>),光电子的能量分布从峰b逐渐向峰c转移,呈现了离子态的振动能级逐渐变化的过程.相对于光电子动能谱,光电子角度分布对能级的变化更为敏感<sup>[22]</sup>,峰b的各向异性的减小也正反映了离子态 $\tilde{X}^2E_{3/2}$ 振动能级布居的逐渐变化.

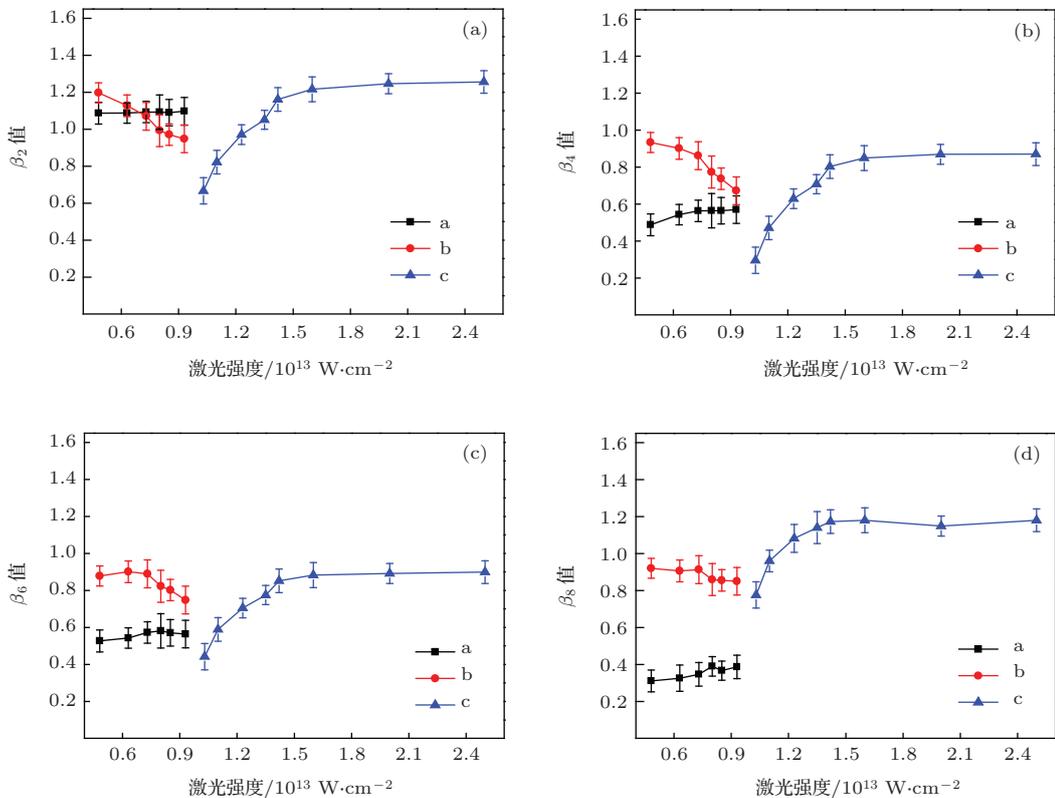


图5 峰a, b和c角度分布的各向异性参数 $\beta_2, \beta_4, \beta_6, \beta_8$ 值随光强的变化

在更高的光强范围( $1.0 \times 10^{13}$ — $2.5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>), 在图3的光电子能谱上观察到峰a和峰b消失, 只剩下峰c. 从图5可见, 峰c在该光强范围的角度分布变化非常明显, 角分布的各向异性随光强增加有明显的上升趋势. 在这个更强的光强范围, 激光对分子的准直不容忽视<sup>[20,21]</sup>. 而且在该光强下, 没有对应别的组分可以参照, 在这里无法排除强场激光对分子的准直作用对光电子角度分布的影响. 因此我们将峰c角度分布的各向异性分布随强度变化有明显增强, 归属为以下两种可能或者是这两种可能的结合: 第一是强激光场对分子的物理准直, 实验采用的电离激光是线偏振光, 随着强激光场的增加, 分子在被电离同时在光偏振方向被物理准直, 从而使得角度分布更加朝向激光偏振方向分布, 即各向异性增加; 第二是随着激光强度的增加, Stark效应增强, 多光子电离中间共振能级的变化导致了最终离子态 $\tilde{X}^2E_{3/2}$ 的振动能级布居的变化. 而振动能级的变化将直接在光电子影像分布中反映出来.

## 4 结 论

本文扩大了对碘甲烷分子在强激光场作用下的多光子电离动力学研究的光强范围, 在 $1.6 \times 10^{13}$ — $2.5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>光强范围内, 从光电子能谱中观察到了新的组分, 归属为碘甲烷分子吸收8个光子之后电离到被调控后的高振动能级对应的光电子能量组分. 文中详细分析了光电子角度分布随激光场强度的变化, 发现在观察的光强范围内( $0.48$ — $0.93 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>), 峰a的各向异性保持不变, 峰b的各向异性稍有变小, 它反映了 $\tilde{X}^2E_{3/2}$ 离子态的振动能级逐渐变化的过程. 在更高的光强范围内( $1.0$ — $2.5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>), 峰c的各向异性有很明显的增加. 它的增加机理归结为两种可能, 一是强场对分子的物理准直, 二是强场变化对振动能级调控引起的.

本文的部分工作在瑞士Paul Scherrer Institute激光光谱开放实验室完成, 感谢该室全体同仁在实验期间给予

的热心帮助.

## 参考文献

- [1] Smith S J, Knight P L 1988 *Multiphoton Processes* (Cambridge: Cambridge University Press)
- [2] Freeman R R, Bucksbaum P H, Milchberg H, Darack S, Schumacher D, Geusic M E 1987 *Phys. Rev. Lett.* **59** 1092
- [3] Freeman R R, Bucksbaum P H 1991 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **24** 325
- [4] Kang H P, Wang C L, Lin Z Y, Chen Y J, Wu M Y, Quan W, Liu H P, Liu X J 2011 *Chin. Phys. Lett.* **28** 083201
- [5] Lin Z Y, Wu M Y, Quan W, Liu X J, Chen J, Cheng Y 2014 *Chin. Phys. B* **23** 023201
- [6] Alber G 1989 *Phys. Rev. A* **40** 1321
- [7] Potvliege R M, Vucic S 2006 *Phys. Scr.* **74** 55
- [8] Mevel E, Breger P, Trainham R, Petite G, Agostini P, Chambaret J P, Migus A, Antonetti A 1992 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **25** 401
- [9] Posthumus J H 2004 *Rep. Prog. Phys.* **67** 623
- [10] Urbain X, Fabre B, Staicu-Casagrande E M, Ruetten N, Andrianarijaona V M, Jureta J, Posthumus J H 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 163004
- [11] Posthumus J H, Fabre B, Cornaggia C, Ruetten N, Urbain X 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 233004
- [12] Liu Y, Gerber T, Radi P, Sych Y, Knopp G 2014 *Chem. Phys. Lett.* **610–611** 153
- [13] Liu Y, Knopp G, Hemberger P, Sych Y, Radi P, Boedi A, Gerber T 2013 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15** 18101
- [14] Liu Y, Gerber T, Radi P, Sych Y, Knopp G 2013 *Opt. Express* **21** 16639
- [15] Liu Y Z, Xiao S R, Zhang C Y, Zheng G G, Chen Y Y 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 193301 (in Chinese) [刘玉柱, 肖韶荣, 张成义, 郑改革, 陈云云 2012 物理学报 **61** 193301]
- [16] Eppink A T J B, Parker D H 1999 *J. Chem. Phys.* **110** 832
- [17] Walser A M, Meisinger M, Radi P, Gerber T, Knopp G 2009 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **11** 8456
- [18] Gerber T, Liu Y, Knopp G, Hemberger P, Boedi A, Radi P, Sych Y 2013 *Rev. Sci. Instrum.* **84** 033101
- [19] Yang C N 1948 *Phys. Rev.* **74** 764
- [20] Seideman T 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 4971
- [21] Reid K L 2003 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **54** 397
- [22] Suzuki Y I, Horio T, Fuji T, Suzuki T 2011 *J. Chem. Phys.* **134** 184313

# Optical control of the vibrational excitation of the polyatomic ions via strong field multi-photon ionization\*

Liu Yu-Zhu<sup>1)†</sup> Gerber Thomas<sup>2)</sup> Knopp Gregor<sup>2)</sup>

1) (*School of Physics and Optoelectronic Engineering, Nanjing University of Information Science and Technology, Nanjing 210044, China*)

2) (*Paul Scherrer Institute, 5232 Villigen, Switzerland*)

( Received 25 September 2014; revised manuscript received 10 October 2014 )

## Abstract

The dynamics of multi-photon ionization of CH<sub>3</sub>I under strong field has been studied experimentally by femtosecond photoelectron imaging. Ultrafast optical control of the vibrational excitation in a polyatomic ion by strong field multi-photon ionization is experimentally realized. The present work enhances the intensity of the ionization beam from  $1.6 \times 10^{13}$  to  $2.5 \times 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>. In the order of this higher field, a new energy component is observed and attributed. From the photoelectron imaging, photoelectron kinetic energy distributions and the photoelectron angular distributions are obtained. The discussions of the previous letter are mostly based on the photoelectron kinetic energy information, and the present study emphasizes on the trend of the photoelectron angular anisotropy. More detailed dynamics on vibrational optical control is further explored.

**Keywords:** strong field ionization, multi-photon ionization, optical control, angular-resolved

**PACS:** 42.50.Hz, 82.50.Pt, 33.80.Rv, 33.80.-b

**DOI:** 10.7498/aps.63.244208

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11304157) and the Swiss National Centre of Competence in Research-Molecular Ultrafast Science and Technology (NCCR-MUST).

† Corresponding author. E-mail: [yuzhu.liu@gmail.com](mailto:yuzhu.liu@gmail.com)