

飞秒激光脉冲对 N_2 分子非绝热准直的调控*郑悦 张宇璇 孙少华[†] 丁鹏基 胡碧涛 刘作业[‡]

(兰州大学核科学与技术学院, 兰州 730000)

(2022年11月3日收到; 2022年12月31日收到修改稿)

介质内分子在飞秒激光场中的准直会诱导介质内部折射率发生变化并产生光谱调制效应. 本文实验上采用泵浦-探测方法测量了 N_2 中探测光波长偏移量的时间演化, 提取了 N_2 分子的准直度信息; 理论上通过求解含时薛定谔方程, 计算了分子非绝热准直的时间演化, 探究了分子非绝热准直和克尔效应两种机制共同影响所诱导的双折射效应对探测光光谱的调制作用. 实验和理论结果符合良好, 证实了光谱测量法可以用来表征分子的准直度. 进一步采用双脉冲泵浦方式对分子准直进行调控, 发现双脉冲泵浦可以有效增强分子的准直度. 通过调节双脉冲间的延迟时间, 即在分子的一个转动恢复周期及半个转动恢复周期处引入第二束泵浦脉冲, 可以分别控制分子准直的增强与消失, 起到“准直开关”的作用. 双脉冲调控方式同样适用于其他多个分子体系, 具有一定的普适性.

关键词: 飞秒激光, 非绝热分子准直, 双折射, 准直调控**PACS:** 42.65.-k, 42.81.Gs, 52.38.Hb**DOI:** 10.7498/aps.72.20222112

1 引言

激光诱导分子准直作为一个热门的研究课题, 最早由 Zon 和 Katsnelson^[1] 提出. 分子在线偏振激光场中受到强场作用产生诱导偶极矩, 而后续激光场与偶极矩作用产生扭力, 使分子轴向激光场偏振方向偏转而产生准直效果. 当激光场的持续时间远小于分子的转动周期时, 这一过程称为非绝热准直. 在该过程中, 激光脉冲对分子转动波包的瞬态调制使分子的准直度迅速增加, 而在激光消失后, 分子各转动能级的相干性并不会立即消失, 转动波包会周期性演化一段时间, 表现为分子准直的周期性变化. 目前, 对分子准直度的表征方法主要有库仑爆炸法^[2]、弱光偏振法^[3]和空间交叉聚焦散焦法^[4]. 库仑爆炸法通过测量解离的分子碎片获得其空间

角分布, 从而推出分子的准直度. 该测量方案最直接, 但仪器设备较大, 实验操作繁琐, 存在较大误差, 且库仑爆炸会破坏准直分子, 无法开展基于分子准直的后续实验测量. 分子准直会引起介质的双折射现象, 导致探测光偏振方向的变化, 测量垂直于初始探测光偏振方向的探测光分量强度, 可提取分子准直度, 即弱光偏振法. 该方法需要精确测量探测光的椭圆偏率, 容易引入较大的实验误差, 影响测量结果的准确性. 空间交叉聚散焦测量法利用分子准直后探测光空间强度分布随介质折射率的变化, 对探测光光斑中心区域的强度进行积分, 得出分子的准直度. 相较于前两种方法, 其实验操作和测量精度方面有较大进步, 但数据处理较为复杂. 研究人员发现, 准直分子波包周期性演化使气体介质产生双折射效应, 会对探测光产生光谱调制^[5-7]. 因此, 可通过测量探测光光谱变化来表征分子的准

* 国家自然科学基金(批准号:12027809)、中央高校基本科研业务费专项资金(批准号:lzujbky-2022-ey05)和北京大学核物理与核技术国家重点实验室开放课题(批准号:NPT2020KFY17)资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: sunshaohua@lzu.edu.cn[‡] 通信作者. E-mail: zyl@lzu.edu.cn

直度. 相比于其他方法, 光谱法能在短时间内通过多次重复测量减小统计误差, 且操作方便, 但光谱无法直接得出准直度, 需要进一步数据处理.

良好的分子准直在选择性控制同位素排列^[8]、分子结构成像^[9]、分子束纳米光刻^[10]、分子轨道重建^[11–13]及高次谐波^[14–18]等领域有重要作用. 为了提高分子的准直度, 研究人员在尝试提高泵浦脉冲能量、降温等手段外, 还发展了多脉冲泵浦法. Bisgarrd 研究小组^[19]使用两束 1.4 ps 的长激光脉冲诱导碘苯分子的无场准直, 发现当在第一束脉冲产生最大准直时刻附近加入第二束脉冲, 将明显提高分子的准直度, 并且在两束脉冲的强度比为 1:3 时分子准直度最佳. Ma 等^[20]在利用电子衍射对 CO₂ 分子结构进行研究时, 使用四个能量相同的脉冲对 CO₂ 分子进行准直, 发现当这些脉冲间的时间延迟为 CO₂ 分子的恢复周期 (约 42.7 ps) 时, 可以极大地提高 CO₂ 分子的准直度.

本文首先基于泵浦-探测方法运用光谱测量法, 研究了单脉冲作用下 N₂ 分子的准直情况, 其次探究了双脉冲对分子准直度的调控, 指出双脉冲的延迟时间可以有效控制分子的准直. 为分子准直度的表征和控制指出了一个可行方案, 有利于基于分子准直的超快动力学和相关非线性效应的研究.

2 N₂ 分子的非绝热准直

通过求解含时薛定谔方程, 考虑整个分子体系在不同转动态的玻尔兹曼分布及分子奇、偶转动态权重的影响, 分子的准直度表示为

$$\langle\langle \cos^2\theta \rangle\rangle(t) = \frac{\sum_J \sum_{M=-J}^J g_J(2J+1) \langle \cos^2\theta \rangle_{JM}(t) e^{-\frac{E_J}{k_B T}}}{\sum_J \sum_{M=-J}^J g_J(2J+1) e^{-\frac{E_J}{k_B T}}}, \quad (1)$$

式中, J 和 M 分别为转动量子数和磁量子数, $\langle \cos^2\theta \rangle_{JM}$ 表示任一分子转动态的准直度, g_J 为分子的核自旋统计权重, E_J 为不同转动态上分子的能量, T 为系统的初始温度, k_B 为玻尔兹曼常数. 在非绝热准直模型中, 将 N₂ 分子近似为刚性转子, 考虑离心畸变效应对其进行修正, 不同转动态上的分子具有的能量为 $E_J = BJ(J+1) - D[J(J+1)]^2$. 这里, B 为刚性转子转动常数, D 为非刚性转子转

动常数, 代表转动能级的非刚性效应. 对于 N₂ 分子, $B_{N_2} = 1.9896 \text{ cm}^{-1}$, $D_{N_2} = 5.76 \times 10^{-6} \text{ cm}^{-1}$ ^[21].

主要计算参数设置: 激光场包络是高斯型 ($t=0$ 时刻对应激光场峰值位置), 中心波长 800 nm, 泵浦激光功率密度 $3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, 脉宽 35 fs, 系统初始温度 300 K. 图 1 为 N₂ 分子的非绝热准直时间演化, 当 $t=0$ 时即激光强度的峰值时刻, 准直度并未达到最大, 这是因为转动波包的演化需要一定时间, 并非瞬时. 在脉冲作用结束后, 分子的准直度约在 0.075 ps 处首次达到极大值, 此时 $\langle\langle \cos^2\theta \rangle\rangle$ 约为 0.36. N₂ 分子的转动恢复周期约为 8.4 ps. 随着分子转动波包的自由演化, 依次在 1/4, 1/2, 3/4 和 1 个转动恢复周期处出现准直与反准直快速交替的现象. 从图 1 可以看出, 在长延迟下, 准直信号出现一系列振荡, 这是因为不同转动态上分子具有的能量与离心畸变常数有关. 当转动量子数 J 越大时, 离心畸变效应越显著, 在长延迟下, 离心畸变导致转动波函数的失谐, 导致后续准直信号出现振荡.

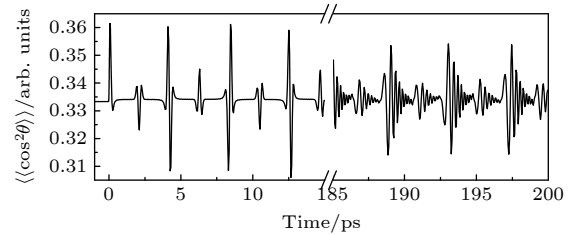


图 1 N₂ 分子非绝热准直的时间演化
Fig. 1. Time evolution of non-adiabatic alignment of N₂ molecules.

3 分子准直的实验测量及光谱表征

实验测量采用的飞秒激光器为 Astrella (Coherent, Inc.), 可输出中心波长 800 nm, 脉冲宽度 35 fs, 单脉冲最大能量 7 mJ, 重复频率 1 kHz 的激光脉冲. 如图 2 所示, 分束器 (beam splitter, BS) 将出射激光分为两束, 较强的一束经透镜 (lens, L) 聚焦后进入充有 130 kPa 氮气的真空腔中, 作为泵浦脉冲对分子进行准直; 较弱的一束经 β -BBO 晶体倍频后作为探测脉冲. 通过调节 1/2 波片 (half wave plate, HWP), 可改变探测光的偏振方向. 泵浦光路中存在由精密位移台和反射镜组成的延时光路, 可以调节两束光的相对延迟时间.

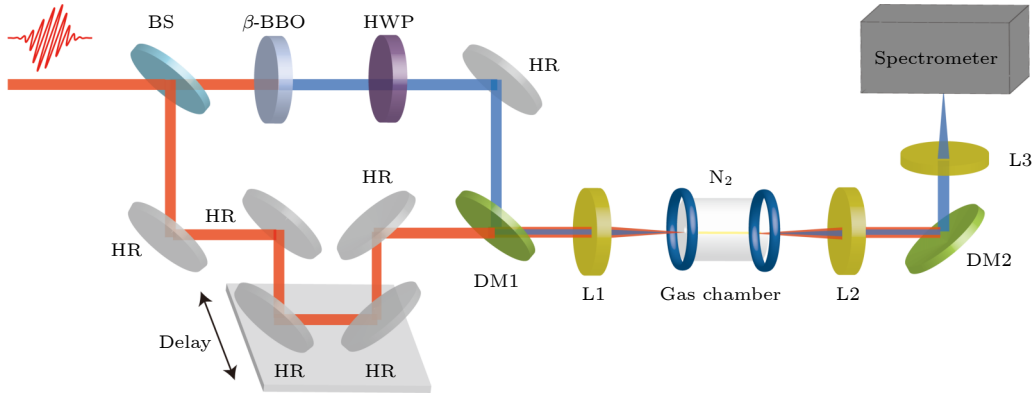


图 2 实验装置示意图 (HR, 高反射镜; DM, 二向色镜)

Fig. 2. Schematic diagram of the experimental setup (HR, high reflectivity mirror; DM, dichroic mirror).

当探测光与泵浦光偏振方向相互垂直时, 探究了 N_2 分子准直诱导的双折射效应对探测光光谱的调制作用. 图 3(a) 为实验测量的探测光光谱, 图 3(b) 为探测光平均波长

$$\lambda_{\text{mean}}(t) = \int_{\lambda} \lambda \times I(\lambda) d\lambda / \int_{\lambda} I(\lambda) d\lambda$$

的时间演化, $I(\lambda)$ 表示光谱强度. 可以发现时间演化到零时刻附近后, 探测光的强度发生了明显衰减. 这是因为介质在泵浦激光作用下形成了等离子体, 导致探测光发生散射和衍射现象, 进而难以被完全收集探测 [22]. 此外, 零时刻附近泵浦光与探测光的重合会发生电离增强和能量转移等效应 [23], 导致探测光强度的减弱. 在长延迟下, 转动态间的退相干导致了调制作用的减弱. 当探测光和泵浦光

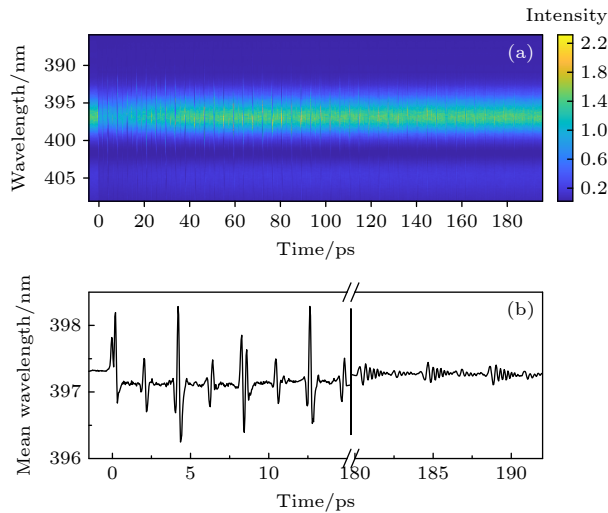


图 3 光谱调制的时间演化 (a) 实验测量的探测激光光谱; (b) 探测激光的平均波长

Fig. 3. Time evolution of spectral modulation: (a) Probe laser spectra measured experimentally; (b) the average wavelength of the probe laser.

的偏振方向垂直时, 等离子体及分子的永久偶极矩对探测光的散焦作用导致在零延迟附近实验所测得的探测光光谱产生较明显的蓝移.

光谱调制来自于分子准直与克尔效应的共同影响, 克尔效应与三阶非线性极化率有关, 为瞬时效应, 仅存在于激光场存续期间. 克尔效应影响的大小是与激光场强度成正比 [24]. 分子非绝热准直是分子自身的演化, 激光脉冲与分子作用后, 为分子各个转动态的波函数引入了一个附加的相位, 分子被激发到转动波包的相干叠加态上, 靠其自身的相干性维持后续演化, 不因脉冲的消失而立即终止.

为了解释实验所测得的光谱调制, 考虑分子准直与克尔效应的共同影响, 结合分子非绝热准直物理模型进行了理论计算. 当分子经过泵浦脉冲准直后, 介质折射率会在空间和时间上发生改变. 在平行于和垂直于泵浦脉冲偏振方向上, 非绝热分子准直导致的介质折射率变化为 [24]

$$\begin{cases} \Delta n_{\text{aligned},//}(r, t) = \frac{2\pi N}{n_0} \Delta a \left[\langle \langle \cos^2 \theta \rangle \rangle (r, t) - \frac{1}{3} \right], \\ \Delta n_{\text{aligned},\perp}(r, t) = -\frac{\pi N}{n_0} \Delta a \left[\langle \langle \cos^2 \theta \rangle \rangle (r, t) - \frac{1}{3} \right], \end{cases} \quad (2)$$

式中, $\langle \langle \cos^2 \theta \rangle \rangle (r, t)$ 是 (1) 式计算得出的准直系数; $\Delta a = a_{//} - a_{\perp}$, 其中 $a_{//}$ 和 a_{\perp} 分别为平行分子轴和垂直分子轴方向上的极化率分量; N 为分子数密度; n_0 是介质的线性折射率. 除分子准直外, 克尔效应对介质折射率在平行和垂直于泵浦脉冲偏振方向上分量的影响为 [24]

$$\begin{cases} \Delta n_{\text{Kerr},//}(r, t) = 2n_2 I_{\text{pump}}(r, t), \\ \Delta n_{\text{Kerr},\perp}(r, t) = \frac{2}{3} n_2 I_{\text{pump}}(r, t), \end{cases} \quad (3)$$

式中, n_2 为非线性折射率, I_{pump} 为泵浦光强度. 计算时, 取 $n_2 = 1.1 \times 10^{-23} \text{ m}^2/\text{W}$ [25].

介质折射率的变化会导致探测激光光谱的变化. 将光丝近似为长度为 L 的均匀圆柱体, 探测脉冲在光丝内传播, 光丝内部折射率的变化会诱导探测光相位改变 [26]

$$\phi_{NL}(r, t) = -\frac{\Delta n(r, t)\omega L}{c_0}. \quad (4)$$

这里, $\Delta n(r, t)$ 是折射率的变化, ω 是激光中心角频率, c_0 是真空中光速, r 是径向坐标, t 是泵浦脉冲与探测脉冲之间的时间延迟. 因此, 探测激光频移为

$$\delta\omega(t) = \frac{d}{dt}\phi_{NL}(t) = -\frac{d}{dt}\Delta n(t)\frac{\omega_0 L}{c_0}. \quad (5)$$

根据 $\lambda = 2\pi c_0/(n\omega)$, 可进一步得到光谱的波长变化为

$$\Delta\lambda(t) \approx \frac{L\lambda_0}{c_0} \frac{d}{dt}\Delta n(t), \quad (6)$$

其中, λ_0 为探测激光的中心波长.

由于热效应等因素会破坏分子转动系统的相干性, 因此需要引入衰减系数. 同时考虑分子准直与克尔效应的影响, 由 (6) 式可以计算得到探测激光平均波长的偏移量随泵浦-探测相对延迟时间的演化图像, 如图 4(a) 所示. 图 4(b) 为利用图 3 结果得到的探测激光平均波长偏移量的时间演化实验结果, 与理论计算结果基本一致. 这说明分子准

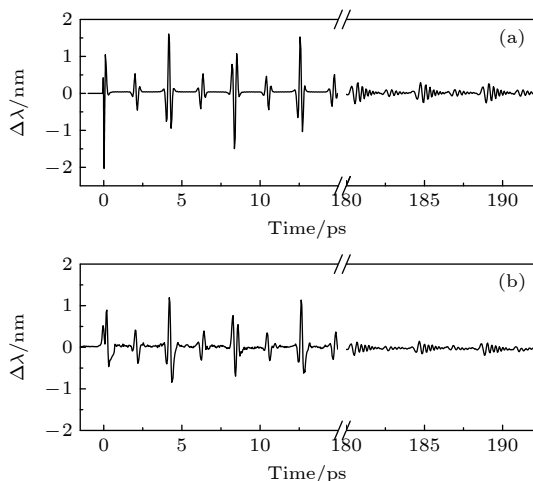


图 4 探测激光波长偏移量的时间演化 (a) 理论计算; (b) 实验测量

Fig. 4. Time evolution of the probe laser's wavelength offset: (a) Theoretical calculation; (b) experimental measurement.

直诱导的双折射效应对探测光光谱的调制可以用来表征分子准直度, 同时也证明了分子准直和克尔效应对折射率的调制作用及其偏振依赖性.

4 双脉冲泵浦对分子准直度的调控

常见的单脉冲调控手段是通过调节系统温度 [27]、激光功率密度、激光脉冲宽度等方法改变分子准直度, 但这些措施都存在实验条件、准直度饱和或分子电离阈值限制等问题, 在实际应用中存在一定的局限性. 这里, 我们引入了双激光脉冲泵浦的方式 [28,29] 来调控分子的准直度.

图 5(a) 中黑色实线为使用一束功率密度为 $3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, 脉宽为 35 fs 的 800 nm 脉冲对 N_2 分子进行非绝热准直的结果. 在第一束脉冲作用后 8.4 ps (图中蓝色虚线) 处引入相同的第二束脉冲, N_2 分子准直情况如图 5(a) 中红色虚线所示. 与单脉冲作用结果类似, 引入第二束脉冲后, 转动波包迅速演化, 并在 8.47 ps 左右达到准直极大值. 相比于单脉冲作用的结果, 引入第二束脉冲后分子的准直度明显增大, $\langle\langle\cos^2\theta\rangle\rangle$ 约为 0.39. 除了在 $\langle\langle\cos^2\theta\rangle\rangle$ 极大值处的增大效果外, 第二束脉冲还使得 $\langle\langle\cos^2\theta\rangle\rangle$ 极小值处进一步减小, 即增强了其反

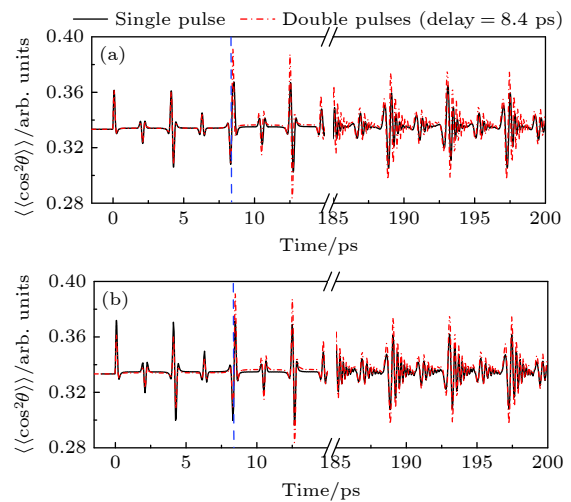


图 5 延迟时间为 8.4 ps 的双脉冲泵浦与单脉冲泵浦下 N_2 分子准直度的时间演化 (a) 激光功率密度为 $3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 的单脉冲泵浦; (b) 激光功率密度为 $6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 的单脉冲泵浦

Fig. 5. Time evolution of alignment of N_2 molecules for double pulses pumping with a delay of 8.4 ps and single-pulse pumping: (a) Single-pulse pumping with the same laser power density; (b) single-pulse pumping with double laser power density.

准直度,如在 12.65 ps 附近, $\langle\langle\cos^2\theta\rangle\rangle$ 由单脉冲情况下的 0.31 减小为双脉冲情况下的 0.28. 当转动波包演化至近 200 ps (超过 20 个转动周期) 时, 第二束脉冲带来的增强和减弱效果仍然存在. 这可以用干涉相长的原理来解释, 即两束脉冲对分子各转动能级引入的相位对转动波包产生了相干叠加的效果, 形成了空间各向异性分布更加明显的转动波包.

需要注意的是, 两束脉冲与分子作用的总功率密度为单脉冲时的两倍. 为了排除总功率密度增加对准直度的影响, 在图 5(b) 中对比了单脉冲功率密度为 6×10^{13} W/cm² 和双脉冲功率密度均为 3×10^{13} W/cm² 时 N₂ 分子准直度的区别. 很显然, 在单脉冲的功率密度与双脉冲的总功率密度相同的情况下, 使用双脉冲可以有效提高分子准直度, 这在实际实验操作中更有意义. 在强激光脉冲与分子相互作用时, 分子的电离率与脉冲的功率密度呈正相关, 因此通过增强激光功率密度来提高分子的准直度会受电离因素的限制. 在利用飞秒激光进行分子准直时, 必须综合考虑分子准直度要求与分子电离程度影响等因素. 若要将分子电离控制在较低水平, 则要用低功率密度的激光脉冲, 因此分子准直度较低. 相对而言, 双脉冲准直可以在保证较低电离水平的前提下, 提高分子准直度. 同时相同功率密度的激光脉冲对不同分子体系的电离水平和准直度是不同的, 在实际应用中, 需要根据分子体系的不同选择不同功率密度的激光脉冲.

进一步地, 改变两束泵浦激光脉冲间的延迟时间, 研究其对分子准直的影响. 发现当泵浦激光脉冲间的时间延迟为 4.2 ps 时, 双脉冲激光场对分子的准直作用近乎消失, 如图 6 所示. 这是因为两束泵浦脉冲作用 N₂ 产生的转动波包为竞争关系, 干涉相消导致了分子准直的消失. 也就是说, 引入第二束激光脉冲后, 两束脉冲对分子各转动能级引入的相位对转动波包产生了相互抵消的效果, 形成了空间各向同性分布的转动波包. 这就表明利用双脉冲可以有效增强分子准直度, 而且可以通过控制泵浦脉冲间的时间间隔, 来调控分子准直的出现与消失, 达到“准直开关”的效果.

此外, 将研究体系拓展到 CO₂ 和 O₂ 分子, 得到了这两种分子的准直和反准直时刻, 确定了双脉冲在这些分子体系中作为“准直开关”的可行性. 如图 7(a)—(d) 中黑色实线所示, CO₂ 和 O₂ 的转动恢复周期分别为 42.7 ps 和 11.6 ps, 在 CO₂ 和 O₂

一个恢复周期及半恢复周期 (即蓝色虚线) 处加入第二束脉冲, 由红色虚线可知, 其结果与 N₂ 一致,

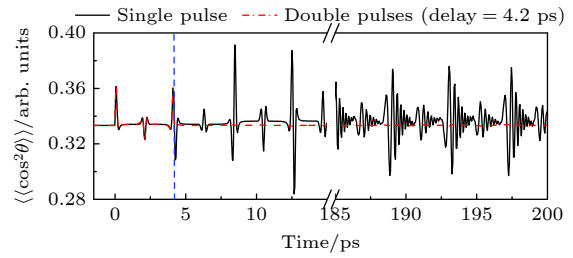


图 6 延迟时间为 4.2 ps 的双脉冲泵浦与单脉冲泵浦下 N₂ 分子准直度的时间演化

Fig. 6. Time evolution of alignment of N₂ molecules for double pulses pumping with a delay of 4.2 ps and single pulse pumping.

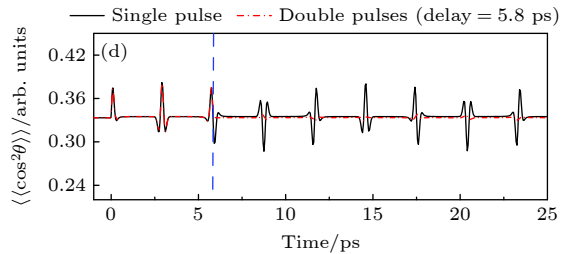
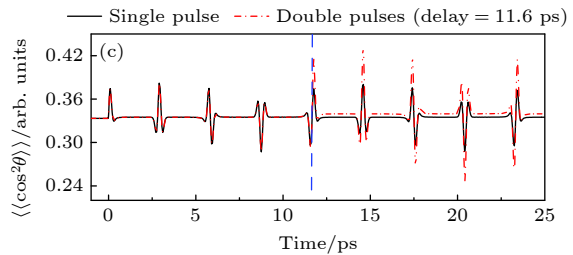
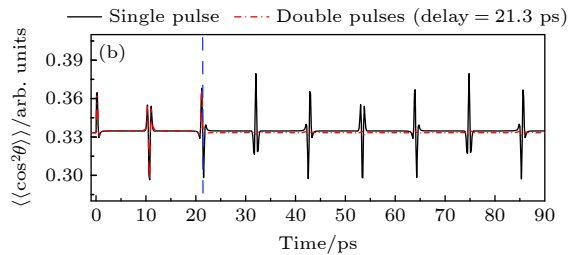
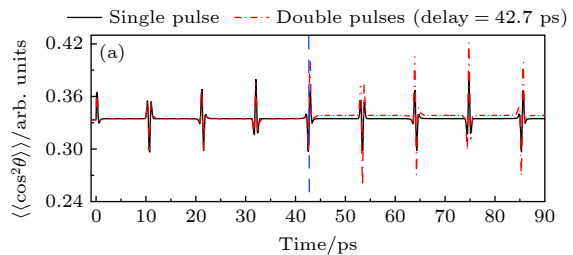


图 7 不同延迟时间的双脉冲泵浦与单脉冲泵浦下 CO₂ 和 O₂ 的准直度的时间演化 (a), (b) CO₂ 分子体系; (c), (d) O₂ 分子体系

Fig. 7. Time evolution of the alignment degree of CO₂ molecules and O₂ molecules for double pulse pump with different delays and single pulse pump: (a), (b) Molecular system of CO₂; (c), (d) molecular system of O₂.

均实现了准直的增强与消失,这说明双脉冲泵浦对分子准直进行调控具有一定的普适性.

5 结 论

线偏振的飞秒激光与极性分子介质作用,会诱导分子准直并引起介质折射率的变化,从而产生光谱调制效应.本文使用泵浦-探测方法对 N_2 分子非绝热准直及其导致的转动波包自由演化过程进行了研究,证明了光谱探测是测量、表征分子准直度的有效方法.相比于现有测量方法,该方案具有操作简单、误差小的特点.此外,着重研究了双激光脉冲对分子准直的调控作用,相比于单脉冲调控的结果,分子的准直度得到了明显提升.同时,还发现通过简单改变双脉冲间的相对延迟时间就可以控制分子准直,即延迟时间的改变可以控制分子准直的开启与关闭,起到“准直开关”的作用.本研究可为分子超快动力学和非线性过程研究中分子准直的特征与操控提供一个可行方案.

参考文献

- [1] Zon B A, Katsnelson B G 1975 *Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **69** 1166
- [2] Litvinyuk I V, Lee K F, Dooley P W, Rayner D M, Villeneuve D M, Corkum P B 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 233003
- [3] Cai H, Wu J, Couairon A, Zeng H 2009 *Opt. Lett.* **34** 827
- [4] Feng Y H, Pan H F, Liu J, Chen C, Wu J, Zeng H P 2011 *Opt. Express* **19** 2852
- [5] Marceau C, Chen Y P, Théberge F, Châteauneuf M, Dubois J, Chin S L 2009 *Opt. Lett.* **34** 1417
- [6] Yu Z Q, Su Q, Zhang N, Gao H, Zhang Z, Chu C Y, Xu Q, Zhang Y, Liu W W 2021 *Opt. Laser Technol.* **141** 107179
- [7] Kaya N, Kaya G, Boran Y, Kolomenski A, Schuessler H A 2021 *Optik* **242** 167360
- [8] Akagi H, Kumada T, Ootobe T, Itakura R, Hasegawa H, Ohshima Y 2018 *Appl. Phys. B* **124** 14
- [9] Itatani J, Levesque J, Zeidler D, Niikura H, Pepin H, Kieffer J C, Corkum P B, Villeneuve D M 2004 *Nature* **432** 867
- [10] Gordon R J, Zhu L, Schroeder W A, Seideman T 2003 *J. Appl. Phys.* **94** 669
- [11] Guo X L, Jin C, He Z Q, Yao J P, Zhou X X, Cheng Y 2021 *Opt. Express* **29** 1613
- [12] Qin M Y, Zhu X S 2017 *Opt. Laser Technol.* **87** 79
- [13] Zhai C, Zhang X, Zhu X, He L, Zhang Y, Wang B, Zhang Q, Lan P, Lu P 2018 *Opt. Express* **26** 2775
- [14] Wang J, Liu A H, Yuan K J 2020 *Opt. Commun* **460** 125216
- [15] Jiang C Z, Jiang H R, Chen Y B, Li B C, Lin C D, Jin C 2022 *Phys. Rev. A* **105** 023111
- [16] Yang Z, Cao W, Mo Y, Xu H, Mi K, Lan P, Zhang Q, Lu P 2021 *Natl. Sci. Rev.* **8** nwa211
- [17] Jin C, Wang S J, Zhao S F, Le A T, Lin C D 2020 *Phys. Rev. A* **102** 013108
- [18] He Y, He L, Lan P, Wang B, Li L, Zhu X, Cao W, Lu P 2019 *Phys. Rev. A* **99** 053419
- [19] Bisgaard C Z, Poulsen M D, Péronne E, Viftrup S S, Stapelfeldt H 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 173004
- [20] Ma Z R, Zou X, Zhao L R, Qi F F, Jiang T, Zhu P F, Xiang D, Zhang J 2022 *Proc. Natl. Acad. Sci.* **119** e2122793119
- [21] Langevin D, Brown J M, Gaarde M B, Couairon A 2019 *Phys. Rev. A* **99** 063418
- [22] Wang Q J, Chen R, Zhao J C, Sun C L, Wang X Z, Ding J J, Liu Z Y, Hu B T 2020 *Chin. Phys. B* **29** 013301
- [23] Ding J J, Ding P J, Liu Z Y, Hu B T 2016 *Sci. Chin. Phys. Mech. Astron.* **59** 633001
- [24] Yuan S, Li M, Feng Y, Li H, Zheng L, Chin S L, Zeng H 2015 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **48** 094018
- [25] Loriot V, Hertz E, Faucher O, Lavorel B 2010 *Opt. Express* **18** 3011
- [26] Boyd R W 2020 *Nonlinear Optics* (4th Ed.) (New York: Academic Press) p358
- [27] Kumarappan V, Bisgaard C Z, Viftrup S S, Holmegaard L, Stapelfeldt H 2006 *J. Chem. Phys.* **125** 194309
- [28] Averbukh I S, Arvieu R 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 163601
- [29] Karamatskos E T, Raabe S, Mullins T, Trabatttoni, Stammer P, Goidsztein G, Johansen R R, Dlugolecki K, Stapelfeldt H, Vrakking M J J, Trippel S, Rouzée A, Küpper J 2019 *Nat. Commun.* **10** 3364

Modulation of non-adiabatic alignment of N₂ molecule by femtosecond laser pulses*

Zheng Yue Zhang Yu-Xuan Sun Shao-Hua[†] Ding Peng-Ji
Hu Bi-Tao Liu Zuo-Ye[‡]

(School of Nuclear Science and Technology, Lanzhou University, Lanzhou 730000, China)

(Received 3 November 2022; revised manuscript received 31 December 2022)

Abstract

The alignment of molecules in the femtosecond laser field induces the refractive index of the propagation medium to change, resulting in the spectral modulation effect. In this paper, the time evolution of the wavelength offset of a probe laser pulse under the influence of the non-adiabatic molecular alignment and Kerr effect is measured experimentally by the pump-probe method in nitrogen medium, and the alignment degree of N₂ molecules is obtained. By solving the time-dependent Schrödinger equation theoretically, the expression of the degree of molecular non-adiabatic alignment is obtained, and the time evolution of non-adiabatic alignment of N₂ molecules is calculated. Taking into account the combined influence of the non-adiabatic molecular alignment and Kerr effect on the change of refractive index of the propagation medium, the modulation effect of birefringence on the spectrum of the probe pulse is achieved. The experimental result accords well with the theoretical calculation, demonstrating that the spectral modulation results obtained by experimental measurement can be used to characterize the alignment degree. Further, the double pulse pump method is used to control the degree of molecular alignment. It is found that the degree of molecular alignment can be enhanced by the double pulse pump method. Moreover, by adjusting the delay time between the two pump laser pulses, that is, adding the second pump laser pulse at one rotational period and half rotational period, respectively, the enhancement and loss of the alignment of N₂ molecules can be achieved, which is named the “alignment switch” effect. The molecular alignment control induced by the double pulse pump method can also be applied to the other molecular systems with different alignment and anti-alignment times, such as CO₂ molecules and O₂ molecules, indicating that the double pulse pump method can be used universally.

Keywords: femtosecond laser, non-adiabatic molecular alignment, birefringence, alignment modulation

PACS: 42.65.-k, 42.81.Gs, 52.38.Hb

DOI: 10.7498/aps.72.20222112

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 12027809), the Fundamental Research Funds for the Central Universities of Ministry of Education of China (Grant No. lzujbky-2022-ey05), and the Open Project of State Key Laboratory of Nuclear Physics and Technology, Peking University, China (Grant No. NPT2020KFY17).

[†] Corresponding author. E-mail: sunshaohua@lzu.edu.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: zyl@lzu.edu.cn

飞秒激光脉冲对N₂分子非绝热准直的调控

郑悦 张宇璇 孙少华 丁鹏基 胡碧涛 刘作业

Modulation of non-adiabatic alignment of N₂ molecule by femtosecond laser pulses

Zheng Yue Zhang Yu-Xuan Sun Shao-Hua Ding Peng-Ji Hu Bi-Tao Liu Zuo-Ye

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 72, 064203 (2023) DOI: 10.7498/aps.72.20222112

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222112>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

飞秒激光辐照二硫化钨的超快动态响应及时域整形调制

Ultrafast dynamic response and temporal shaping modulation of tungsten disulfide irradiated by femtosecond laser
物理学报. 2021, 70(20): 205201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210737>

不同散射介质对飞秒脉冲激光传输特性影响研究

Influence of different scattering medium on propagation characteristics to femtosecond laser pulses
物理学报. 2019, 68(19): 194207 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190430>

飞秒激光加工熔融石英的理论和实验研究

Theoretical and experimental research of femtosecond laser processing fused silica
物理学报. 2022, 71(24): 247901 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221496>

基于光纤中超短脉冲非线性传输机理与特定光谱选择技术的多波长飞秒激光的产生

Generation of multi-wavelength femtosecond laser pulse based on nonlinear propagation of high peak power ultrashort laser pulse in single-mode fiber and spectral selectivity technology
物理学报. 2018, 67(18): 184205 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181026>

激光器内腔频差对双折射外腔激光回馈系统输出影响的理论及实验研究

Theoretical and experimental research on influence of cavity frequency difference in birefringent laser feedback system
物理学报. 2018, 67(15): 154201 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180230>

基于飞秒激光成丝测量燃烧场温度

Temperature measurement in combustion flow field with femtosecond laser-induced filament
物理学报. 2020, 69(23): 234207 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200939>