

控制双激光脉冲的宽度提高 N_2 分子的取向*

杨增强^{1,2)} 周效信^{1)†}

1) 西北师范大学物理与电子工程学院, 兰州 730070)

2) 石河子大学师范学院物理系, 石河子 832003)

(2007 年 7 月 11 日收到, 2007 年 9 月 16 日收到修改稿)

提出了通过控制双激光脉冲宽度的方法来提高 N_2 分子取向程度. 利用数值方法求解了 N_2 分子刚性转子模型在双激光脉冲作用下的薛定谔方程, 计算了双原子分子 N_2 在总强度固定的两束激光脉冲作用下, 不同脉冲宽度对于 N_2 分子取向的影响. 研究表明, 通过调整两束激光脉冲的宽度, 选择合适的延迟时间能够有效提高 N_2 分子的取向程度.

关键词: 双激光脉冲, 分子取向, 脉冲宽度

PACC: 3280, 4250

1. 引 言

相对于原子而言, 分子是各向异性的体系, 分子的一些重要性质都与它的取向(alignment)和定向(orientation)行为密切相关, 如分子的光电离和光离解^[1,2]、分子在强激光场中产生的高次谐波(HHG)^[3,4]、量子信息^[5]以及化学反应动力学^[6-9]等过程都与分子的取向和定向行为密切相关. 目前, 分子的取向和定向行为已成为一个极为活跃的研究领域. 有多种方法可以实现分子取向和定向, 而用激光驱动分子实现取向和定向已经成为一种较为理想的途径^[9]. 近年来对分子取向的研究, 在实验^[10-13]和理论方法方面^[14,15]都有很大的进展. 一般用一个脉冲宽度远远小于分子转动周期的短激光作用到分子系综上, 形成一个转动波包, 当激光脉冲结束后, 波包不会消失, 反而形成周期性的恢复, 这样分子由于波包的周期性恢复而出现周期性的取向现象, 从而为研究分子的各种性质与取向间的关系提供了便利条件. 对于由大量分子组成的系综, 其取向程度用 $\cos^2\theta$ 描述, 其中 θ 是激光极化方向与分子轴之间的夹角, 尖括号表示对整个分子系综进行统计平均.

大量研究表明, 分子的取向程度与激光参数密切相关. 通过选择合适的激光参数能够有效提高分子的取向程度, 如增加激光强度^[16]和选择合适的激光脉冲宽度^[17], 以及降低分子所处的环境温度^[18]等. 但是这些手段都受一定条件的限制, 激光太强会导致分子电离及光离解, 脉冲太长又会破坏分子周期性的取向现象, 降低温度也受到实验条件的限制. 为了实现更好的分子取向, 有人提出通过优化控制理论方法来优化激光参数, 从而可以提高分子的取向^[19,20], 但是这种方法对激光脉冲有很苛刻的要求, 实验上不易实现. 近年来有人提出用两束或三束甚至多束激光脉冲提高分子取向^[21,22], 并且在实验已观察到对氮分子^[23]和碘苯分子^[24]在两束激光脉冲作用下分子的取向程度有明显提高. 已有的研究结果显示, 当两束激光脉冲作用到分子上时, 无论是选择两束激光合适的延迟时间^[23,25], 还是两束激光的强度比^[24], 都会提高分子的取向程度.

但在以前的研究中^[23,25], 往往是通过分光装置将一束激光分为两束强度不同, 但脉宽相同的激光作用到分子上, 由于激光的脉宽也会影响到分子的取向程度^[17], 因此我们提出将分光后的两束脉宽相同的激光脉冲通过脉冲展宽技术, 使这两束激光脉冲具有不同的宽度, 然后利用这两束不同脉宽的激

* 国家自然科学基金(批准号:10674112), 甘肃省自然科学基金(批准号:3ZS061-A25-013), 甘肃省教育厅基金(批准号:0601-23)和西北师大创新项目(批准号:NWNU-KJXCXGC-03-21)资助的课题.

† E-mail: zhouxx@nwnu.edu.cn

光去驱动分子,以使分子的取向程度有进一步提高.为此,本文通过数值求解 N_2 分子刚性转子模型在两束不同脉宽激光场驱动下的薛定谔方程,通过优化两束激光脉冲的宽度给出了 N_2 分子取向最佳时的激光参数.

2. 理论方法

分子有多个自由度,在不考虑分子平动和电子自旋的情况下,分子在激光场中的运动应包括分子中电子运动,分子振动和分子转动.但对于一个相对较弱的短激光脉冲而言,在不发生共振情况下,不必考虑分子中电子激发和分子振动激发,当然也没有电离.我们仅考虑分子的转动而忽略其他自由度的运动,这时,我们可以将分子当作刚性转子来处理.由量子力学可知,在激光场中刚性转子的哈密顿量(Hamiltonian)可写为(以下采用原子单位)

$$\hat{H}(t) = B J^2 + V_\mu(\theta) + V_\alpha(\theta), \quad (1)$$

其中 B 是分子转动常数, $B = \frac{1}{2I}$, I 为转动惯量.而

$$V_\mu(\theta) = -\mu_0 E(t) \cos\theta, \quad (2)$$

$$V_\alpha(\theta) = -\frac{E^2(t)}{2} (\alpha_{//} \cos^2\theta + \alpha_{\perp} \sin^2\theta) \quad (3)$$

分别表示激光与分子固有偶极矩和感生偶极矩的相互作用.其中 μ_0 是分子的固有偶极矩,对于同核双原子分子,激光与分子固有偶极矩的作用项 $V_\mu(\theta)$ 为 0; θ 是分子轴与激光极化方向之间的夹角; $\alpha_{//}$ 和 α_{\perp} 分别是分子极化率沿平行于分子轴的分量和垂直于分子轴的分量,对于双原子分子而言,由于是线性分子^[9],其 $\alpha_{//} = \alpha_{xx}$, $\alpha_{\perp} = \alpha_{yy} = \alpha_{zz}$ (x - y - z 为固定在分子上的坐标系, z 轴沿分子轴).

刚性转子在激光场中的含时薛定谔方程为

$$i \frac{\partial \Psi(\theta, \varphi, t)}{\partial t} = \hat{H}(t) \Psi(\theta, \varphi, t), \quad (4)$$

其中 φ 是分子轴的方位角.

当激光脉冲作用在分子上,采用伪谱方法^[26, 27]求解(4)式的含时薛定谔方程.先将算符在球坐标中分裂,刚性转子的含时波函数可表示为

$$\begin{aligned} & \Psi(\theta, \varphi, t + \Delta t) \\ & \approx \exp[-i\hat{H}_0\Delta t/2] \\ & \times \exp[-i\hat{V}_\alpha(\theta, \varphi, t + \Delta t/2)\Delta t] \\ & \times \exp[-i\hat{H}_0\Delta t/2]\Psi(\theta, \varphi, t) + O(\Delta t^3), \end{aligned} \quad (5)$$

其中 $\hat{H}_0 = BJ^2$, \hat{H}_0 只含有动能项, \hat{V}_α 只依赖于空间

和时间,该演化过程的误差约在 Δt^3 量级.(5)式说明,波函数从时刻 t 到 $t + \Delta t$ 的演化分三步:

1) 波函数 $\Psi(\theta, \varphi, t)$ 在 \hat{H}_0 张成的能量空间中演化 $\Delta t/2$ 时间:

$$\exp(-i\hat{H}_0\Delta t/2)\Psi(\theta, \varphi, t) = \Psi_1(\theta, \varphi, t). \quad (6)$$

2) 波函数 $\Psi_1(\theta, \varphi, t)$ 回到坐标空间,在激光与分子的相互作用项 \hat{V}_α 的作用下演化 Δt 时间:

$$\begin{aligned} & \exp[-i\hat{V}_\alpha(\theta, \varphi, t + \Delta t/2)\Delta t]\Psi_1(\theta, \varphi, t) \\ & = \Psi_2(\theta, \varphi, t). \end{aligned} \quad (7)$$

3) 波函数 $\Psi_2(\theta, \varphi, t)$ 重新返回到 \hat{H}_0 张成的能量空间中再次演化 $\Delta t/2$ 的时间:

$$\exp(-i\hat{H}_0\Delta t/2)\Psi_2(\theta, \varphi, t) = \Psi(\theta, \varphi, t + \Delta t). \quad (8)$$

这样不断重复(5)式的演化过程,直到激光脉冲结束为止,就可得到刚性转子的含时波函数

$$\Psi(\tau_p) = \sum_J C_J |JM\rangle, \quad (9)$$

其中 $|JM\rangle$ 为无外场情况下刚性转子转动态的本征函数, τ_p 为脉冲结束的时间.然后在无外场的情况下,分子含时波函数持续自由演化

$$\Psi(t + \tau_p) = \sum_J C_J e^{-iBJ(J+1)t} |JM\rangle. \quad (10)$$

对于同核双原子分子,整个系综分子取向的程度用 $\cos^2\theta$ 描述.首先给出不同态 $|JM\rangle$ 的取向平均值为

$$\cos^2\theta_{JM} = \int_0^\pi \cos^2\theta \sin\theta d\theta \int_0^{2\pi} |\Psi_{JM}(\theta, \varphi, t)|^2 d\varphi. \quad (11)$$

然后对该系综中处于不同转动态的分子求 Boltzman 统计平均

$$\cos^2\theta = Q^{-1} \sum_J \exp\left[-\frac{BJ(J+1)}{k_B T}\right] \sum_{M=-J}^J \cos^2\theta_{JM}, \quad (12)$$

其中 Q 是配分函数(partition function),即

$$Q = \sum_J (2J+1) \exp\left[-\frac{BJ(J+1)}{k_B T}\right], \quad (13)$$

k_B 和 T 分别是 Boltzman 常数和系综温度.对于一个分子随机分布的系综,即分子没有特殊的取向, $\cos^2\theta$ 为 1/3. 当系综中的分子轴都平行于激光的极化方向时, $\cos^2\theta = 1$. 反之,当分子轴都垂直于激光的极化方向时, $\cos^2\theta = 0$. 当处于其他状态时, $\cos^2\theta$ 的值介于 0 和 1 之间.

3. 计算结果与讨论

不同脉宽的双激光脉冲可以通过下述途径实

现,当一束固定强度的短脉冲激光输出后,利用某种分光装置和脉冲展宽技术将该激光分为强度和脉宽都不同的两束脉冲,将这种双脉冲激光作用到 N_2 分子上,通过控制两束脉冲的延迟时间,优化两束激光的脉宽,研究 N_2 分子的取向程度.利用前面的理论方法,我们计算了双原子分子 N_2 在这种不同脉冲宽度双脉冲激光作用下的取向行为.在计算中采用高斯(Gauss)型激光脉冲:

$$E(t) = E_1 e^{-2\ln 2 \left((t-t_{01})/t_{w1} \right)^2} \cos \omega t + E_2 e^{-2\ln 2 \left((t-t_{02})/t_{w2} \right)^2} \cos \omega t, \quad (14)$$

其中 E_1 和 E_2 分别是两束激光脉冲电场的振幅, t_{01} 和 t_{02} 分别为两束脉冲中心位置, t_{w1} 和 t_{w2} 分别是两束激光脉冲的宽度(FWHM), ω 为角频率.

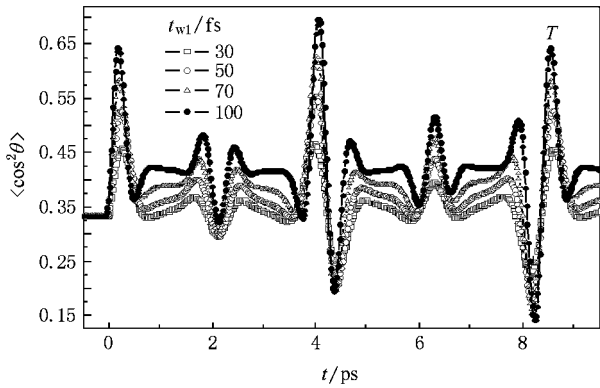


图 1 在不同脉宽单束激光脉冲作用下 N_2 分子的取向

首先我们计算了在单束激光脉冲驱动下,不同脉宽的激光对 N_2 分子产生的取向参数 $\cos^2 \theta$.图 1 给出了系综温度为 30 K 时, N_2 分子在一个转动恢复(revival)周期(T)之内的取向行为.计算中所用的激光强度为 $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, 波长 800 nm, 脉宽 t_{w1} 取四组不同的数值, 脉冲中心位置固定在零时刻.从图中可以看出激光还没有与分子作用前, N_2 分子取向完全处于无规则分布, 此时取向参数 $\cos^2 \theta$ 为 1/3; 激光作用到分子上以后, $\cos^2 \theta$ 会很快地增加, 达到一最大值后, 又会迅速下降, 此后呈现周期性取向现象.还可以看出, 在不同脉冲宽度下, 分子的取向参数 $\cos^2 \theta$ 最大值是不同的.这说明当激光强度一定时, 脉冲宽度对于分子取向有很大影响.

为了确定在双激光脉冲驱动下激光脉冲宽度对 N_2 分子取向的影响, 我们研究了当一束激光脉宽固定, 另一束激光脉宽变化时 N_2 分子取向参数的变

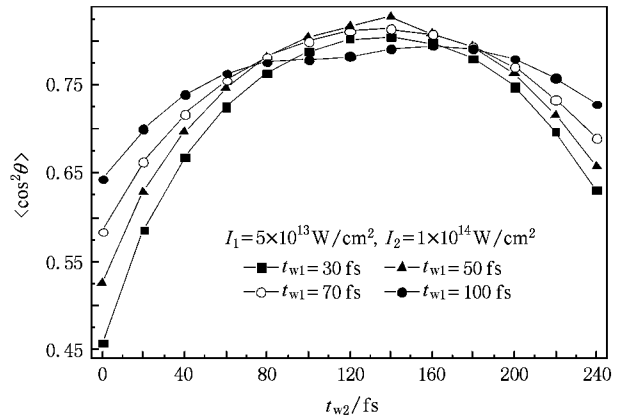


图 2 第二束激光脉冲宽度对 N_2 分子取向的影响

化.为了与文献[25]中相同脉冲宽度的双激光驱动下 N_2 分子取向的结果比较, 我们采用和文献[25]相同的激光总强度和两束激光的强度比, 因为这时的取向最好.图 2 给出了 N_2 分子在总强度为 $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 分光后两束激光强度分别为 $I_1 = 5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $I_2 = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 的作用下, 当第一束激光脉宽不变, 但第二束激光脉宽变化对 N_2 分子取向参数最大值 $\cos^2 \theta_{\max}$ 的影响.我们选择在第一个恢复周期附近的最佳时间加上第二束激光脉冲, 在第二个周期观察取向程度的变化.可以看出, 当第一束脉冲的宽度 t_{w1} 取不同数值时, 随着第二束脉冲宽度 t_{w2} 的增加, N_2 分子取向参数最大值的变化趋势是一样的, 都是随着第二束脉冲宽度的增加而增大, 当第二束激光脉冲宽度 $t_{w2} = 140 \text{ fs}$ 时, $\cos^2 \theta_{\max}$ 达到最大, 然后又随着脉宽的增加而减小.同时还可以看出, 第一束激光脉冲宽度也对 N_2 分子取向程度有很大影响, 当第一束激光脉冲宽度 $t_{w1} = 50 \text{ fs}$, 而第二束激光脉冲宽度 $t_{w2} = 140 \text{ fs}$ 时, 分子的取向参数最大数值可以达到 0.83, 而当 t_{w1} 取其它值时, 无论第二束激光脉冲宽度取多大值, $\cos^2 \theta_{\max}$ 都小于 0.83, 这说明当一束激光脉冲的宽度给定以后, 第二束激光脉冲的宽度对取向有较大的影响.因为系综中的分子在第一束激光脉冲作用后, 形成一个转动波包, 当选择在第一束激光脉冲产生的取向即将达到最大值时加上第二束脉冲, 此时分子轴与激光极化方向的夹角 θ 预先控制在一个很小的范围内, 该转动波包中的各成分开始重相(rephase), 系综中大量分子的分子轴与激光极化方向之间的夹角 θ 都比较小.随着第二束脉冲在合适的时间内给予分子

沿激光极化方向的力矩作用,这时导致分子在不同的角度向激光极化方向转动,通过角向挤压(angular squeezing)^[22],又开始重相,从而提高了分子的取向程度,而第二束激光脉冲的宽度在此过程中起着重要作用,如果第二束脉冲持续时间太长(即脉宽较大),这会破坏转动波包的重相,使得分子的取向程度降低,同理如果脉冲持续时间太短,分子感受到的扭力不能很好的使分子沿着激光极化方向转动,从而影响到分子取向的改善.因此,当激光强度 $I_1 = 5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $I_2 = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 固定时,无论第一束脉冲宽度取多大,只要第二束脉冲宽度是在 140 fs 左右,通过选择两束脉冲的延迟时间, N_2 分子取向最大参数 $\cos^2 \theta_{\max}$, 尤为当 $t_{w1} = 50 \text{ fs}$ 时,这一极大值达到最大.

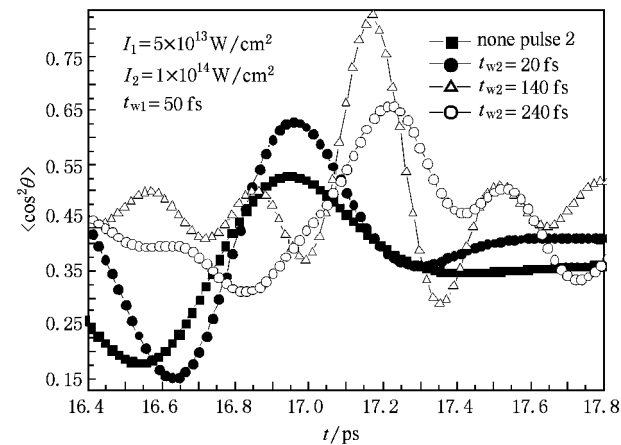


图3 第一束脉宽为 50 fs 时, N_2 分子取向参数随时间的变化

为了清楚的给出 N_2 分子取向参数 $\cos^2 \theta$ 在第二个恢复周期附近随时间的变化,我们在图 3 给出了在激光强度与图 2 相同, $t_{w1} = 50 \text{ fs}$ 时, N_2 分子取向参数 $\cos^2 \theta$ 在第二个恢复周期附近的变化情况,同时图中也给出了只用第一束激光脉冲作用下 N_2 分子的取向参数随时间的变化.显然 N_2 分子在双

脉冲激光的作用下,分子取向的程度都有所提高,当仅用强度为 $I_1 = 5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 单束脉冲作用时, N_2 分子的取向参数最大值 $\cos^2 \theta_{\max}$ 为 0.53,而当用有一定延迟时间的两束激光脉冲与 N_2 分子作用时,取向程度都有所改善,当 $t_{w2} = 140 \text{ fs}$ 时, N_2 分子取向程度最佳,取向参数最大值 $\cos^2 \theta_{\max}$ 可以达到 0.83,比单束脉冲作用下提高了 57%. 在文献[25]中, N_2 分子在两束相同脉宽激光作用下的取向参数最大也只有 0.72,而在两束不同脉宽的激光脉冲驱动下, N_2 分子的取向参数最大值可达 0.83,比用相同脉宽的两束激光驱动提高了 14.7%,这说明在不改变两束激光总强度的情况下,只要调整两束脉冲的宽度,可进一步提高 N_2 分子的取向程度.从图 3 还可以看出, N_2 分子取向参数 $\cos^2 \theta$ 取得最大值的时间也是不同的,这主要是由于第二束脉冲的宽度不同,在选择最佳延迟时间时,第二束激光脉冲与分子作用的时间长短不同,第二束脉冲越长,取向参数 $\cos^2 \theta$ 达到最大的时间就越滞后.

4. 结 论

在分子刚性转子模型的基础上,用伪谱方法求解了 N_2 分子在不同脉宽的双激光脉冲驱动下的含时薛定谔方程,研究了 N_2 分子在激光总强度保持不变的两束不同脉宽的激光脉冲作用下,脉冲宽度对于 N_2 分子取向的影响.固定两束激光脉冲的强度比,通过选择最佳的脉冲宽度,能很好地改善分子的取向程度,本文预言了当激光强度分别为 $I_1 = 5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $I_2 = 1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 时,选择两束脉冲的宽度分别为 $t_{w1} = 50 \text{ fs}$, $t_{w2} = 140 \text{ fs}$, N_2 分子的取向程度达到最佳.这些结论有待于实验进一步验证,而利用双脉冲激光控制其它分子取向时,脉冲宽度对取向的影响仍在研究当中.

[1] Litvinyuk I V, Lee K F, Dooley P W, Rayner D M, Villeneuve D M, Corkum P B 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 233003
 [2] Seideman T 1995 *J. Chem. Phys.* **103** 887
 [3] Zhou X X, Tong X M, Zhao Z X, Lin C D 2005 *Phys. Rev. A* **72** 033412
 [4] Itatani J, Levesque J, Zeidler D, Niikura H, Pepin H, Kieffer J C, Corkum P B, Villeneuve D M 2004 *Nature* **432** 867

[5] Lee K F, Villeneuve D M, Corkum P B, Shapiro E A 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 233601
 [6] Friedrich B, Pullman D P, Herschbach D R 1991 *J. Phys. Chem.* **95** 8118
 [7] Cho V A, Berstein R B 1991 *J. Phys. Chem.* **95** 8129
 [8] Cong S L, Han K L, Lou N Q 2000 *Science in China B* **30** 517 (in Chinese) [丛书林、韩克利、楼南泉 2000 中国科学 B **30** 517]

- [9] Stapelfeldt H , Seideman T 2003 *Rev. Mod. Phys.* **75** 543
- [10] Hering P , Cornaggia C 1999 *Phys. Rev. A* **59** 2836
- [11] Dooley P W , Litvinyuk I V , Lee K F , Rayner D M , Spanner M , Villeneuve D M , Corkum P B 2003 *Phys. Rev. A* **68** 023406
- [12] Rouzee A , Guerin S , Boudon V , Lavorel B , Faucher , O 2006 *Phys. Rev. A* **73** 033418
- [13] Wu C Y , Huang J , Xu N , Ma R , Yang H , Jiang H B , Gong Q H 2006 *J. Phys. B* **39** 1035
- [14] Friedrich B , Herschbach D 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 4623
- [15] Machholm M , Henriksen N E 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 193001
- [16] Machholm M 2001 *J. Chem. Phys.* **23** 115
- [17] Zhao Z X , Tong X M , Lin C D 2003 *Phys. Rev. A* **67** 043404
- [18] Yang Z Q , Zhou X X 2006 *Acta Phys.-Chim. Sin.* **22** 932 (in Chinese)[杨增强、周效信 2006 物理化学学报 **22** 932]
- [19] Hoki K , Fujimura Y 2001 *Chem. Phys.* **167** 187
- [20] Ben Haj-Yedder A , Auger A , Dion C M , Cances E , Keller A , Le Bris C , Atabek O 2002 *Phys. Rev. A* **66** 063401
- [21] Averbukh I S , Arvieu R 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 163601
- [22] Leibscher M , Averbukh I S , Rabitz H 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 213001
- [23] Lee K F , Litvinyuk I V , Dooley P W , Spanner M , Villeneuve D M , Corkum P B 2004 *J. Phys. B* **37** L43
- [24] Bisgaard C Z , Poulsen M D , Peronne E , Viftrup S S , Stapelfeldt H 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 173004
- [25] Yang Z Q , Zhou X X 2007 *Acta Phys.-Chim. Sin.* **23** 751 (in Chinese)[杨增强、周效信 2007 物理化学学报 **23** 751]
- [26] Tong X M , Chu S I 1997 *Chem. Phys.* **217** 1191
- [27] Zhang H , Han K L , Zhao Yi , He G Z , Lou N Q 1997 *Chem. Phys. Lett.* **271** 204

Controlling pulse duration of two-pulse laser to enhance alignment of N₂ molecules *

Yang Zeng-Qiang^{1,2)} Zhou Xiao-Xin¹⁾

¹ *College of Physics and Electronic Engineering of Northwest Normal University , Lanzhou 730070 , China)*

² *Physics Department of Normal College of Shihezi University , Shihezi 832003 , China)*

(Received 11 July 2007 ; revised manuscript received 16 September 2007)

Abstract

The method of enhancing the alignment of N₂ molecules by controlling pulse duration of two-pulse laser is proposed. The time-dependent Schrödinger equation of the rigid rotor model of N₂ molecule in the two-pulse laser is solved numerically by using the pseudospectral method. The degree of alignment for N₂ molecules by laser pulses with different durations is calculated. The results show that the alignment can be optimized by selecting the pulse duration and the delay time between the two pulses.

Keywords : two-pulse laser , molecular alignment , pulse duration

PACC : 3280 , 4250

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10674112) , the Natural Science Foundation of Gansu Province , China (Grant No. 3ZS061-A25-013) , Foundation of Educational Bureau of Gansu Province , China (Grant No. 0601-23) and Foundation of Northwest Normal University (Grant No. NWNNU-KJXCXGC-03-21).