

# kHz 脉冲分子束的产生及其在强场原子分子物理实验中的应用

许少华<sup>1</sup> 王鹏<sup>1</sup> 杨宏<sup>1</sup> 吴成印<sup>1,2,†</sup>

1. 北京大学物理学院, 人工微结构与介观物理国家重点实验室, 北京 100871; 2. 量子物质科学协同创新中心, 北京 100871; †通信作者, E-mail: cywu@pku.edu.cn

**摘要** 采用悬臂压电脉冲阀, 制备出最高重复频率达到 3 kHz 的脉冲分子束。通过测量氮气分子束在飞秒激光作用下隧道电离生成的  $N_2^+(B-X)$  荧光光谱, 对脉冲阀的性能做了表征。这种 kHz 脉冲分子束搭配 kHz 飞秒激光器, 将推动飞秒强激光驱动的原子分子动力学实验研究。

**关键词** 脉冲分子束; 高重复频率; 飞秒激光; 隧道电离; 荧光光谱

**中图分类号** O644

## Generation of kHz Pulsed Molecular Beams and Its Application in Experimental Research of Strong Field Atomic and Molecular Physics

XU Shaohua<sup>1</sup>, WANG Peng<sup>1</sup>, YANG Hong<sup>1</sup>, WU Chengyin<sup>1,2,†</sup>

1. State Key Laboratory for Mesoscopic Physics, Department of Physics, Peking University, Beijing 100871; 2. Collaborative Innovation Center of Quantum Matter, Beijing 100871; † Corresponding author, E-mail: cywu@pku.edu.cn

**Abstract** The authors successfully generated pulsed molecular beams with high repetition rate by using a cantilever piezo valve, and the highest repetition rate could reach 3 kHz. The interaction between intense femtosecond laser fields and nitrogen molecular beams were studied, in which the molecular beams were produced by cantilever piezo valve. Strong fluorescence emissions, which could be assigned to  $N_2^+(B-X)$ , were observed. The performance of pulse valve was characterized based on the measurement of the fluorescence emission as a function of the repetition rate and the time delay of the pulsed valve. The results demonstrate that pulsed molecular beams can be generated with high quality and high repetition rate. The combination of such pulsed molecular beams and high-frequency kHz femtosecond lasers will promote the experimental study of molecular dynamics driven by intense femtosecond laser fields.

**Key words** pulsed molecular beam; high repetition rate; femtosecond laser; tunneling ionization; fluorescence spectrum

飞秒激光具有超短的脉冲宽度和超高的峰值功率, 是测量和操控原子分子超快动力学行为的重要工具, 飞秒强激光作用下的原子分子行为已经成为原子分子物理研究的热点之一<sup>[1-8]</sup>。分子束中分子以基本相同的速度做准直很好的定向运动, 分子之间的相互作用和碰撞可以忽略。另外, 分子束的平动温度较低, 分子通常都分布在振动基态和较低的

转动态上。因此, 利用分子束与强激光场相互作用, 可以简化强激光与分子相互作用过程, 提供强激光场与分子相互作用的精确实验数据。分子束一般由高压气体通过喷嘴喷向真空腔产生, 依据喷阀的工作模式, 可分为连续分子束和脉冲分子束, 其中脉冲分子束的重复频率由脉冲阀的重复频率决定。

目前原子分子强场物理研究使用的飞秒激光放

大器的重复频率大多在 1 kHz 或以上。为了与飞秒激光放大器同步,同时减小对真空系统的要求,实验室迫切需要制备 kHz 重复频率、持续时间短的低温脉冲分子束。目前商用脉冲阀重复频率大多不能满足这样的要求。实验室一般是牺牲激光重复频率或者采用连续分子束来研究原子分子在强激光作用下的动力学行为。例如中国科学院上海光学精密机械研究所强场激光物理国家重点实验室的 Liu 等<sup>[9]</sup>和 Li 等<sup>[10]</sup>在强激光驱动的原子分子高次谐波产生的实验中,尽管使用的激光器重复频率为 1 kHz,但是他们采用了重复频率仅几十 Hz 的商用脉冲阀(General Valve, 美国)制备低温的脉冲分子束。这样的设计既浪费激光机时,又延长了数据采集时间。北京大学人工微结构与介观物理国家重点实验室的研究人员在原子分子强场物理研究中,使用的激光器重复频率为 3 kHz,因此他们采用了连续分子束<sup>[11-13]</sup>。连续分子束除对样品需求量大外,也需要庞大的泵组系统维护反应室的真空。2009 年荷兰自由大学 Irimia 等<sup>[14-15]</sup>设计了一种悬臂压电脉冲阀,其工作重复频率达到 5 kHz,并可以在连续模式下工作。结合特殊形状和合适尺寸的喷嘴,可以产生高重复频率的低温脉冲分子束。本文采用这种悬臂压电脉冲阀,在实验室获得 kHz 重复频率的脉冲分子束,并结合本实验室的 kHz 飞秒激光光源,研究氮气分子在强激光场作用下的隧道电离过程。

## 1 实验装置

实验所用的悬臂压电脉冲阀由荷兰自由大学加工,锥形喷嘴的直径为 200  $\mu\text{m}$ ,高压气体通过喷嘴喷向真空腔形成分子束,其平动温度可达到甚至小

于 2 K。黏附在压电悬臂上的 O 圈在脉冲电压驱动下,负责喷嘴的打开或关闭,压电悬臂长度约为 6 mm,悬臂形变位移约为 40  $\mu\text{m}$ ,动态响应时间在 10  $\mu\text{s}$  以下。作用在压电悬臂的脉冲电压决定脉冲阀喷嘴的开启时间以及分子束的长度,脉冲阀工作重复频率通过外触发频率控制,连续可调,最高达到 3 kHz,并可以在连续模式下工作。图 1(a)是悬臂压电脉冲阀的实物照片,气体通过进气口进入,驱动电压通过电线入口导入,脉冲电压最高幅度为 140 V,脉冲宽度 5~200  $\mu\text{s}$  可调。图 1(b)是我们设计的直径为 150 cm 的连接法兰,可以将悬臂压电脉冲阀固定在该法兰上,并且脉冲阀离法兰的距离可以调节。法兰与反应腔体连接,腔内真空由一台 520  $\text{s}^{-1}$  的分子泵(Pfeiffer, 德国)和一台 4  $\text{s}^{-1}$  的干泵(Varian, 美国)维护,不进样时本底真空可以达到  $3 \times 10^{-7}$  hPa。

超短脉冲激光系统采用美国相干公司生产的 Ti:sapphire 啁啾脉冲放大系统(Coherent Legend Elite, Coherent Inc., 美国),其脉冲宽度为 35 fs,中心波长为 800 nm,平均功率为 3.5 W,重复频率为 1 kHz。除脉冲分子束和超短脉冲激光系统外,实验装置系统还包括真空系统、荧光收集系统、单色仪、光电倍增管、数据采集卡和计算机等。如图 2 所示,飞秒激光和分子束产生的离子荧光信号经过凹面反射镜和凸透镜组成的荧光收集系统收集后进入单色仪,通过单色仪分光后被光电倍增管(PMT-R585, Hamamatsu, 日本)接收,光电倍增管输出的模拟电压信号被高速数据采集卡(CS22G8, GAGE, 美国)转换为数字信号,送到计算机保存并进一步处理。

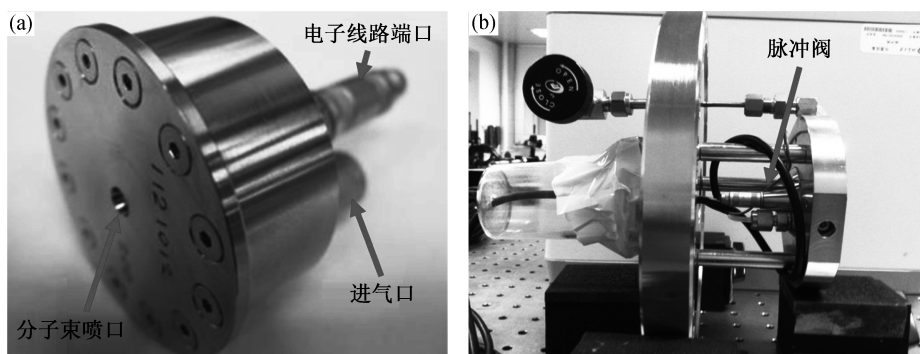


图 1 高重复频率脉冲阀(a)和连接法兰(b)

Fig. 1 Pictures of high repetition rate cantilever piezovalue (a) and its mounting vacuum flange (b)

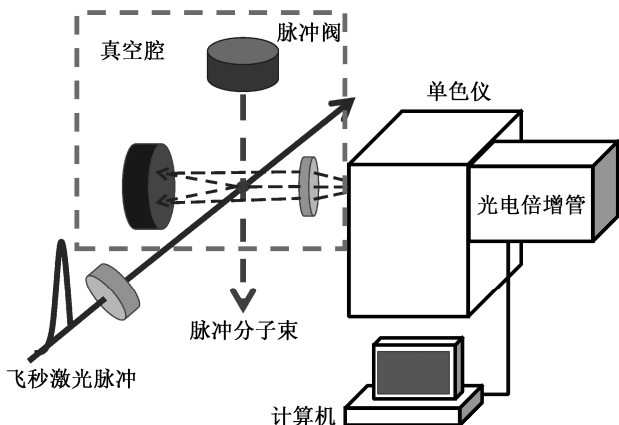


图 2 kHz 脉冲分子束和 kHz 飞秒激光相互作用实验装置

Fig. 2 Experimental setup for studying the interaction between kHz pulsed molecular beams and kHz femtosecond laser pulses

## 2 数据分析和讨论

强激光场下隧道电离是原子分子最基本的动力学过程，电离产生的关联电子和母体离子在激光电场辅助下将会再碰撞<sup>[16]</sup>。电子离子碰撞导致高次谐波产生<sup>[17]</sup>、高能阈上电离电子发射<sup>[18]</sup>或非序列双电离<sup>[19]</sup>等。分子中电子轨道能级间隔不大，并且不同电子轨道能级对称性不同，导致不同轨道电子对分子隧道电离都有贡献<sup>[20]</sup>。考虑到分子内层轨

道电子电离生成的母体离子将处在电子激发态，处在电子激发态的分子离子将通过辐射跃迁弛豫到离子的基电子态，因此通过测量分子离子的荧光光谱，可以将不同分子轨道的电子对隧道电离的贡献区分开<sup>[21-22]</sup>。根据 MO-ADK 模型，分子电离几率随电子束缚能的增加而呈指数下降，并且高度依赖电子相对分子轴的空间分布<sup>[23]</sup>。因此，一般认为最高占有轨道(HOMO)电子最先被电离，离子产量与分子取向角的关系含有分子 HOMO 轨道空间分布方面的信息。飞秒强激光作用下氮气分子电离动力学已经得到深入细致的研究，Pavičić 等<sup>[24]</sup>通过测量电离几率与分子取向角的关系，获得氮气分子 HOMO 轨道电子云的分布形状。但是细致的分析发现，理论值与实验测量值之间还存在一定的差异。当考虑内层轨道电子对隧道电离的贡献时，理论值与实验值的吻合程度得到很大提高<sup>[25]</sup>。飞秒强激光场驱动的氮气分子高次谐波证实了 HOMO-1 轨道对隧道电离的贡献<sup>[26-27]</sup>，氮气分子离子的荧光光谱则证实了 HOMO-2 轨道对隧道电离的贡献<sup>[28-29]</sup>。本实验通过检测飞秒激光作用下氮气分子离子的荧光，对我们的高重复频率脉冲分子束进行测试。

图 3 是飞秒强激光与氮气分子束作用生成的  $N_2^+$ (B-X) 荧光光谱，实验中所用飞秒激光中心波长为 800 nm，脉冲宽度为 35 fs，峰值功率为  $1.5 \times 10^{15}$

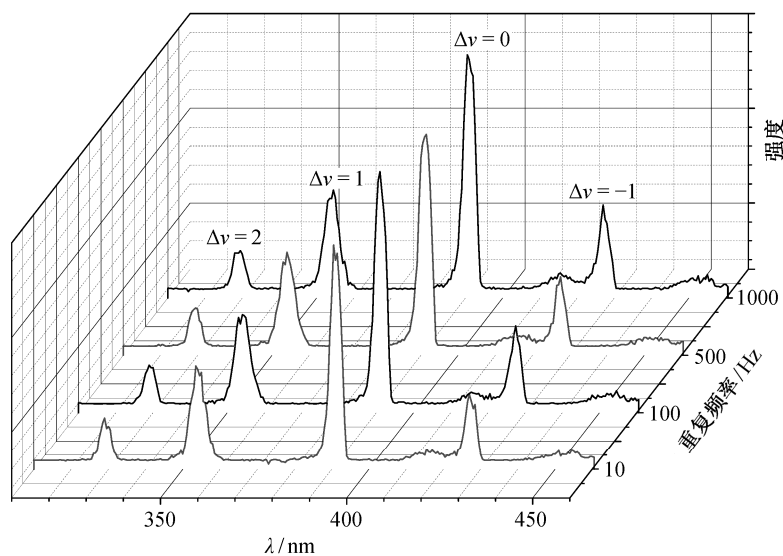


图 3 不同重复频率的氮气分子束和飞秒强激光作用生成的  $N_2^+$ (B-X) 荧光光谱

Fig. 3 Fluorescence spectra of  $N_2^+$ (B-X) produced by intense femtosecond laser fields and nitrogen molecular beams with different repetition rates

W/cm<sup>2</sup>, 激光器的重复频率为 1 kHz。脉冲阀入口处气压保持在 1 个大气压, 脉冲阀分别工作在脉冲模式和连续模式。当脉冲阀工作在脉冲模式时, 我们选用工作频率 10 Hz, 100 Hz, 500 Hz 和 1 kHz, 通过 DG535 (Stanford Research Systems, 美国)实现激光器和脉冲阀的同步。当脉冲阀工作在 10 Hz, 100 Hz, 500 Hz 和 1 kHz 时, 真空腔的真空分别是  $1.2 \times 10^{-6}$ ,  $3.4 \times 10^{-5}$ ,  $2.2 \times 10^{-4}$  和  $3.4 \times 10^{-4}$  hPa。当脉冲阀工作在连续模式时, 真空腔的真空达到  $5.0 \times 10^{-3}$  hPa, 基本上是分子泵能够正常工作的极限。实验结果表明, 不管脉冲阀工作在连续模式还是脉冲模式, N<sub>2</sub><sup>+</sup>(B-X) 荧光强度以及光谱形状基本不变。对于连续模式, 单位时间进气量大, 对真空泵组的要求非常高, 必须选用抽速更大的分子泵, 必要时还需要采用多级差分模式。对于脉冲模式, 一台 520 s<sup>-1</sup> 的分子泵和一台 4 s<sup>-1</sup> 的干泵基本上就能够维护实验需要的真空条件。但是只有当脉冲阀的工作频率和激光器的频率相同时, 才可以充分利用所有激光脉冲, 大幅度减少采样所用时间, 提高实验效率。相对于连续模式, 高重复频率脉冲阀的应用不仅降低了对真空泵组的要求, 而且最大程度地减小样品的消耗量, 使实验设计更加合理。需要特别指出的是, 如果不利用分子束, 而采用微漏阀使氮气分子弥散进入真空腔, 那么在相同的真空压力下, N<sub>2</sub><sup>+</sup>(B-X) 荧光很难探测到。这一方面说明采用分子束可以极大地提高激光作用区的分子浓度, 同时减小对样品的消耗以及对真空的要求。另一方面, 由于分子束内分子之间相互作用和碰撞可以忽略, 因此采用分子束和飞秒激光相互作用可以简化激光和分子相互作用过程。在我们的实验中, N<sub>2</sub><sup>+</sup>(B) 是氮气分子在飞秒激光作用下直接电离产生的, N<sub>2</sub><sup>+</sup>(B) 弛豫到 N<sub>2</sub><sup>+</sup>(X) 时辐射出一个光子。因此通过测量不同参数的激光脉冲作用下 N<sub>2</sub><sup>+</sup>(B-X) 的荧光光谱, 结合理论模拟, 可以揭示强激光场作用下分子内层电子的电离动力学。

为了进一步测试脉冲阀的性能, 我们测量了 N<sub>2</sub><sup>+</sup>(B-X) 荧光强度随脉冲阀时间延迟的关系, 如图 4 所示。这里给出的延迟时间是相对于激光脉冲的触发而言的, 图中上升沿反映脉冲阀的开启时间, 对应分子束的前沿; 下降沿反映脉冲阀的关闭时间, 对应分子束的后沿。通过分析 N<sub>2</sub><sup>+</sup>(B-X) 荧光强度随脉冲阀时间延迟的关系曲线, 可以看出脉冲阀打开比较迅速, 完全关闭则需要 100 μs 左右的时间,

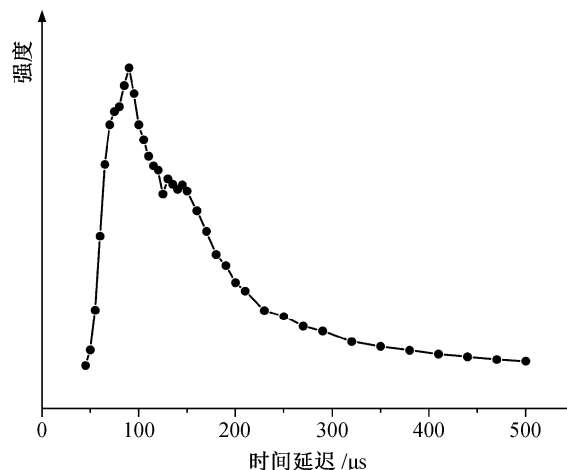


图 4 N<sub>2</sub><sup>+</sup>(B-X) 荧光强度随脉冲阀时间延迟的关系  
Fig. 4 Fluorescence intensity of N<sub>2</sub><sup>+</sup>(B-X) as a function of time delay between the pulsed valve and the laser pulse

因此脉冲阀最高可以工作在 3 kHz。

### 3 结论

我们利用悬臂压电脉冲阀, 在实验室获得高重复频率超声分子束。通过飞秒强激光作用, 采集该脉冲阀产生的氮气分子束所生成的氮气分子离子荧光光谱, 对脉冲阀的性能指标进行表征: 该脉冲阀既可以工作在脉冲模式, 也可以工作在连续模式。工作在脉冲模式时, 其重复频率连续可调, 频率最高可以达到 3 kHz。通过对比 N<sub>2</sub><sup>+</sup>(B-X) 荧光光谱, 我们发现不同重复频率的分子束与飞秒激光作用产生的分子荧光强度和光谱形状基本相同, 但是高重复频率脉冲分子束搭配高频飞秒激光器, 将极大地提高实验数据的采集效率。相对于连续分子束, 高重复频率脉冲分子束在减小对样品的消耗的同时降低了对真空泵组的要求。这种高重复频率脉冲分子束的产生, 将推动飞秒强激光驱动分子动力学的实验研究。

### 参考文献

[1] Yamanouchi K. The next frontier. *Science*, 2002, 295: 1659–1660  
 [2] Niikura H, Légaré F, Hasbani R, et al. Sub-laser-cycle electron pulses for probing molecular dynamics. *Nature*, 2002, 417: 917–922  
 [3] Niikura H, Légaré F, Hasbani R, et al. Probing molecular dynamics with attosecond resolution using correlated wave packet pairs. *Nature*, 2003, 421: 826–

829

- [4] Stapelfeldt H, Seideman T. Colloquium: aligning molecules with strong laser pulses. *Rev Mod Phys*, 2003, 75: 543–557
- [5] Lein M. Attosecond probing of vibrational dynamics with high-harmonic generation. *Phys Rev Lett*, 2005, 94: 053004
- [6] Baker S, Robinson J S, Haworth C A, et al. Probing proton dynamics in molecules on an attosecond time scale. *Science*, 2006, 312: 424–427
- [7] Meckel M, Comtois D, Zeidler D, et al. Laser-induced electron tunneling and diffraction. *Science*, 2008, 320: 1478–1482
- [8] Blaga C I, Xu J, DiChiara A D, et al. Imaging ultrafast molecular dynamics with laser-induced electron diffraction. *Nature*, 2012, 483: 194–197
- [9] Liu P, Yu P, Zeng Z, et al. Laser intensity dependence of high-order harmonic generation from aligned CO<sub>2</sub> molecules. *Phys Rev A*, 2013, 78: 015802
- [10] Li J, Liu P, Yang H, et al. High harmonic spectra contributed by HOMO-1 orbital of aligned CO<sub>2</sub> molecules. *Opt Express*, 2013, 21(6): 7599–7607
- [11] Wu C, Wu C, Song D, et al. Nonsequential and Sequential Fragmentation of CO<sub>2</sub><sup>3+</sup> in Intense Laser Fields. *Phys Rev Lett*, 2013, 110: 103601
- [12] Wu C, Wu C, Yang Y, et al. Coincidence imaging of photoelectrons and photo-ions of molecules in strong laser fields. *J Mod Opt*, 2013, 60(17): 1388–1394
- [13] Wu C, Wu C, Liu X, et al. Application of coincidence measurement in the experimental research of strong field atomic and molecular physics. *Sci Sin-Phys Mech Astron*, 2013, 43: 1206–1211
- [14] Irimia D, Dobrikov D, Kortekaas R, et al. A short pulse (7 micros FWHM) and high repetition rate (dc-5 kHz) cantilever piezvalve for pulsed atomic and molecular beams. *Rev Sci Instrum*, 2009, 80(11): 113303–113310
- [15] Irimia D, Kortekaas R, Janssen M H M. In situ characterization of a cold and short pulsed molecular beam by femtosecond ion imaging. *Phys Chem Chem Phys*, 2009, 11: 3958–3966
- [16] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys Rev Lett*, 1993, 71: 1994–1998
- [17] Paulus G G, Grasbon F, Walther H, et al. Absolute-phase phenomena in photoionization with few-cycle laser pulses. *Nature*, 2001, 414: 182–184
- [18] Itatani J, Levesque J, Zeidler D, et al. Tomographic imaging of molecular orbitals. *Nature*, 2004, 432: 867–971
- [19] Alnaser A S, Voss S, Tong X M, et al. Effects of molecular structure on ion disintegration patterns in ionization of O<sub>2</sub> and N<sub>2</sub> by short laser pulses. *Phys Rev Lett*, 2004, 93: 113003
- [20] Smirnova O, Mairesse Y, Patchkovskii S, et al. High harmonic interferometry of multi-electron dynamics in molecules. *Nature*, 2009, 460: 972–977
- [21] Wu C, Zhang H, Yang H, et al. Tunneling ionization of carbon dioxide from lower-lying orbitals. *Phy Rev A*, 2011, 83: 033410
- [22] Yao J, Li G, Jia X, et al. Alignment-dependent fluorescence emission induced by tunnel ionization of carbon dioxide from lower-lying orbitals. *Phys Rev Lett*, 2013, 111: 133001
- [23] Tong X M, Zhao Z X, Lin C D. Theory of molecular tunneling ionization. *Phys Rev A*, 2002, 66: 033402
- [24] Pavičić D, Kevin F L, Rayner D M, et al. Direct measurement of the angular dependence of ionization for N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, and CO<sub>2</sub> in intense laser fields. *Phys Rev Lett*, 2007, 98: 243001
- [25] Petretti S, Vanne Y V, Saenz A, et al. Alignment-dependent ionization of N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, and CO<sub>2</sub> in intense laser fields. *Phys Rev Lett*, 2010, 104: 223001
- [26] Brian K M, Joseph P F, Philip H B, et al. High harmonic generation from multiple orbitals in N<sub>2</sub>. *Science*, 2008, 322: 1232–1235
- [27] Haessler S, Caillat J, Boutu W, et al. Attosecond imaging of molecular electronic wavepackets. *Nat Phys*, 2010, 6: 200–206
- [28] Wang Y, Wu C, Liu Y X, et al. Fluorescence emission from excited molecular ions in intense femtosecond laser fields. *Front Phys*, 2013, 8(1): 34–36
- [29] Zhang H, Jing C, Yao J, et al. Rotational coherence encoded in an “air-laser” spectrum of nitrogen molecular ions in an intense laser field. *Phys Rev X*, 2013, 3(4): 041009