

专题: 超快强激光驱动的原于分子过程

## 双色圆偏振飞秒脉冲驱动CO分子不对称解离\*

林康 官晓春 宋其迎 季琴颖 马俊杨 张文斌 陆培芬†

曾和平 吴健

(华东师范大学, 精密光谱科学与技术国家重点实验室, 上海 200062)

(2016年9月26日收到; 2016年11月4日收到修改稿)

利用反旋圆偏振双色飞秒激光脉冲, 结合电子-离子三维动量符合测量, 实验研究了CO分子的单电离和双电离解离过程. 在激光偏振平面内观测到碳离子 $C^+$ 三叶草状的不对称动量分布. 通过调节双色场中基频光和倍频光的相对相位, 可以控制 $C^+$ 的出射方向, 实现CO分子的二维不对称解离.

**关键词:** 超短激光脉冲, 电离解离, 双色光场

**PACS:** 42.65.Re, 82.37.Np, 87.15.mk, 87.15.mn

**DOI:** 10.7498/aps.65.224209

## 1 引言

自Zewail<sup>[1]</sup>提出飞秒化学概念以来, 利用超短激光脉冲控制化学反应过程的研究引起了科学家的广泛关注<sup>[2,3]</sup>. 化学反应的本质是化学键的断裂和重构, 其中价电子扮演着至关重要的角色. 物质内电子的超快运动发生在阿秒( $1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$ )时间尺度, 利用超短激光脉冲操控电子的运动已经成为控制分子化学反应的重要手段. 2006年, Kling等<sup>[4]</sup>利用载波包络相位(carrier envelope phase, CEP)稳定的周期量级超短激光脉冲, 第一次在 $D_2$ 分子中实现了电子的局域化控制, 进而诱导 $D_2^+$ 解离过程中化学键的定向断裂.

光场的不对称性是导致电子局域的重要因素之一. 目前, 利用飞秒激光脉冲获得不对称光场的方法主要有两种. 第一种是通过调节CEP改变周期量级飞秒脉冲<sup>[4-10]</sup>光场的不对称性. 对于多周期飞秒激光脉冲, 由基频光(fundamental wave, FW)和倍频光(second harmonic, SH)叠加而成的双色场具有很强的不对称性, 并且可以通过改变双色场的相对相位进行调节<sup>[11-22]</sup>. 除了不对称光场, 利用一束极紫外阿秒脉冲和一束近红外飞秒脉冲,

通过改变两束光与分子相互作用的时间延迟, 同样可以实现电子局域的操控<sup>[23-26]</sup>. 最近的研究发现,  $H_2$ 单电离解离过程中化学键断裂的方向由电离时刻的光场相位决定, 对称的圆偏振光也能实现 $H_2$ 的不对称解离<sup>[27]</sup>. 回顾之前的研究<sup>[4-19]</sup>, 我们发现大部分工作都局限于沿激光偏振方向的一维激发. 通过调节线偏光的CEP或者平行双色场的相对相位, 只能控制分子化学键向上或向下断裂. 最近, 我们分别利用正交和圆偏振双色场实现了二维平面内的电子局域操控<sup>[20,22]</sup>.

反旋圆偏振双色场由圆偏基频光( $\omega$ )和与其旋性相反的倍频光( $2\omega$ )组成. 与单色圆偏光不同, 反旋圆偏双色场电离产生的自由电子经激光场加速后可能返回母核一次甚至多次<sup>[28]</sup>. 返回电子具有很大的动能, 可能被母核非弹性散射同时撞击出另一个电子使母核发生非序列双电离<sup>[29,30]</sup>, 也有可能被母核重新俘获并以发射一个高能光子的形式释放获得的能量<sup>[31-33]</sup>, 这对于阿秒脉冲的产生具有重要意义. 而被弹性散射的高能电子会携带母核的结构信息, 可以用于分子成像相关的应用<sup>[34]</sup>. 反旋圆偏双色场还可以用来直接产生圆偏振的高次谐波<sup>[35]</sup>、多个方向同时取向分子<sup>[36]</sup>、区分重散射电子和直接电离电子<sup>[37]</sup>、研究分子的对称性<sup>[38]</sup>等.

\* 上海市青年科技英才扬帆计划(批准号: 16YF1402900)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: pflu@lps.ecnu.edu.cn

本文以CO分子为例,利用反旋圆偏双色场将二维电子局域推广到多电子分子体系,在激光偏振平面内实现CO<sup>+</sup>的不对称解离.通过改变基频光和倍频光的相位差,控制C<sup>+</sup>在激光偏振平面内的出射方向,即分子解离过程中化学键的断裂方向.CO分子的最高占据轨道(highest-occupied molecular orbital, HOMO)本身具有不对称性,因此,选择性电离是导致其不对称解离的主要因素之一[39-42].

## 2 实验方法

我们采用非共线方案产生反旋圆偏振双色场.一束中心波长为790 nm、脉宽为25 fs的线偏振光以10 kHz的重复频率从多通放大器输出,经过一片厚度为150 μm的硼酸钡( $\beta$ -barium borate,  $\beta$ -BBO)晶体后产生中心波长为395 nm的倍频光,随后经由一片二向色镜分开.在两束光路中分别放置一片相应波段的四分之一波片,将基频光和倍频光从线偏调整为圆偏,最后再通过一片二向色镜将两束光进行合束.两束飞秒脉冲通过基频光一路的电机平移台进行时间同步.为了精确调节基频光和倍频光的相位差,同时消除气流扰动和机械振动对相位差的影响,我们引入一束波长为532 nm的单纵模连续光作为参考光经同一片分束片入射,分别经过与基频光和倍频光相同的光路后从同一片合束片射出[43,44].用CCD摄像机对参考光在合束后形成的干涉条纹进行实时采集,从条纹的偏移量便可以计算出基频光和倍频光的光程差,然后通过倍频光一路的压电陶瓷进行补偿和调节,形成相位差可调的闭环反馈系统.反旋圆偏双色场在一个周期内有三个极大值,电场随时间的演化及其在偏振平面内的投影如图1插图所示.

反旋圆偏双色场入射到超高真空冷靶反冲离子动量谱仪[45,46] (cold target recoil ion momentum spectroscopy, COLTRIMS)后,经过一面焦距为7.5 cm的凹面银镜聚焦到CO超声分子束上.作用区域处基频光和倍频光的光强分别为 $I_{FW} \sim 5.7 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 和 $I_{SH} \sim 3.8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ .通过扫描两束光单电离产率的互相关信号,测得作用区域处两束光的脉宽约为60 fs. COLTRIMS装置原理如图1所示,分子与激光相互作用产生的电子和离子经腔内匀强静电场( $\sim 7 \text{ V/cm}$ )和磁场( $\sim 8 \text{ Gauss}$ )加速和引导后分别向上和向下飞行,最终被谱仪上下两端的多通道板采集到,经过倍增后

被阳极延迟线探测器俘获.根据落点位置和飞行时间,便可以恢复出电子和离子的初始三维动量.考虑到反旋圆偏双色场的偏振面为Y-Z平面,接下来的结果和讨论都限于Y-Z平面内.

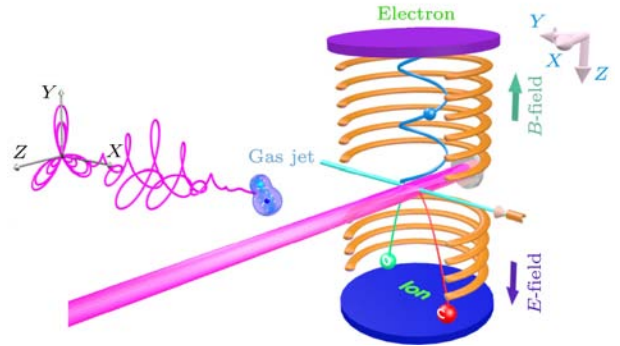


图1 实验装置原理图 左上角插图为时变三叶草光场形状及其在偏振平面内的投影,光场沿着X轴传播,偏振面为Y-Z平面

Fig. 1. Schematic diagram of the experimental apparatus. The inset on the upper-left depicts the electric vector of the trefoil laser field and its projection in the polarization plane. The trefoil laser pulse propagates along the X-axis and is polarized in the Y-Z plane.

## 3 结果与讨论

为了定量表征CO分子单电离解离过程中CO<sup>+</sup>化学键的断裂方向,即C<sup>+</sup>的出射方向,我们定义不对称参数 $A(p_y, p_z, \phi_L) = [N(p_y, p_z, \phi_L) - N(p_y, p_z, \phi_L + \pi)] / [N(p_y, p_z, \phi_L) + N(p_y, p_z, \phi_L + \pi)]$ ,其中 $N(p_y, p_z, \phi_L)$ 表示动量为 $p = (p_y, p_z)$ 的C<sup>+</sup>在三叶草光场相位为 $\phi_L$ 时的产率.这里约定,当三叶草激光场的某一极大值沿Y轴方向时相位 $\phi_L = 0$ ,如图1所示.三叶草光场相位 $\phi_L = 0$ 时,C<sup>+</sup>在Y-Z平面内的不对称动量分布如图2(a)所示.可以发现,不同于CEP稳定的线偏振光或平行双色场激发的一维不对称解离,三叶草光场诱导的产物离子C<sup>+</sup>在Y-Z平面内也呈现出与光场形状相似的三瓣状分布,这意味着CO<sup>+</sup>在激光偏振平面内发生了二维不对称解离.当三叶草光场相位 $\phi_L$ 改变 $\pi$ 时,如图2(b)所示,C<sup>+</sup>的出射方向转动 $\pi/3$ ,呈现出与 $\phi_L = 0$ 时完全反向的不对称动量分布.连续改变相位 $\phi_L$ 可以控制C<sup>+</sup>在偏振平面内的不对称动量分布像风扇一样转动起来,从而实现CO分子单电离解离过程中化学键断裂方向的操控.根据分子Ammosov-Delone-Krainov(MO-ADK)理论和强场近似理论,对于具有不对称轨道的异核双原子分子,选择性电离是导致其解离

过程中化学键不对称断裂的主要原因<sup>[39–42]</sup>. 相对于激光电场方向沿着氧原子指向碳原子时, CO 分子在激光电场方向沿着碳原子指向氧原子时更容易被电离<sup>[39–42]</sup>. 在激光场作用下, CO 分子首先发生隧穿电离, 被电离的自由电子经剩余激光场加速后最终被探测器俘获. 利用角条纹技术 (angular streaking), 根据测得的自由电子的动量分布, 我们可以确定电离时刻三叶草激光场的绝对相位.

为进一步探索单电离解离过程中 C<sup>+</sup> 的不对称性随能量  $E_{C^+}$  和三叶草激光场相位  $\phi_L$  的依赖关系, 我们选取出射方向在  $90^\circ < \phi_{C^+} < 150^\circ$  范围内的 C<sup>+</sup>, 得到结果如图 3(a) 所示. 分别选取白色虚线内低能区 ( $0.6 \text{ eV} < E_{C^+} < 0.7 \text{ eV}$ ) 和高能区

( $1.3 \text{ eV} < E_{C^+} < 1.4 \text{ eV}$ ) 进行积分, 得到不对称参数随着三叶草激光场相位  $\phi_L$  变化的曲线如图 3(b) 所示. 利用公式  $A = A_0 \sin(\phi_L + \phi_{A_0})$  对曲线进行拟合, 其中,  $A_0$  为不对称幅值,  $\phi_{A_0}$  为不对称相位. 我们发现 C<sup>+</sup> 的高能区和低能区的不对称参数随激光场相位变化的曲线近似同相, 而之前 H<sub>2</sub> 单电离解离的实验<sup>[22]</sup> 发现对 H<sup>+</sup> 的高能区和低能区拟合得到的相位  $\phi_{A_0}$  相差几乎为  $\pi$ , 这是由于 H<sub>2</sub> 和 CO 的不对称解离机理不同导致. 同核双原子分子 H<sub>2</sub> 具有对称的 HOMO, 因此电离过程不具有方向性. H<sub>2</sub><sup>+</sup> 的基态  $1s \sigma_g^+$  和第一激发态  $2p \sigma_u^+$  具有相反的宇称, 这两个态上的解离波包通过光场耦合发生干

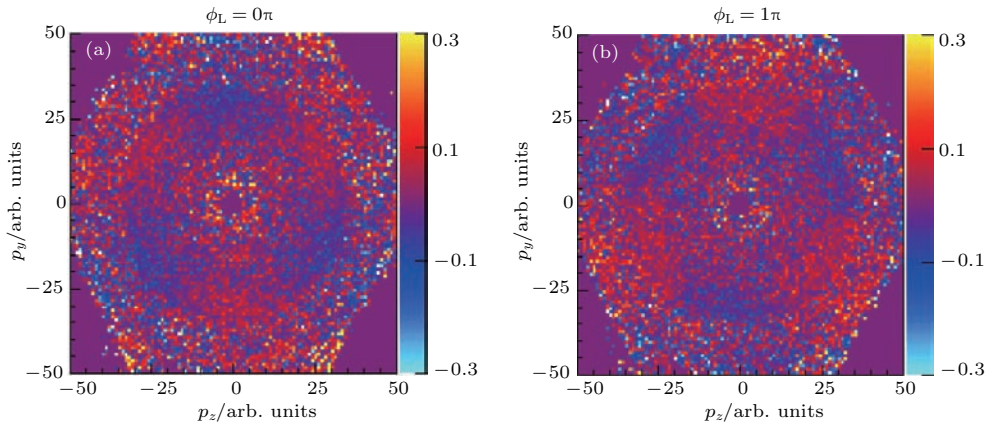


图 2 符合测量得到的 C<sup>+</sup> 在三叶草光场相位分别为 (a)  $\phi_L = 0$  和 (b)  $\phi_L = \pi$  时的不对称动量分布  
Fig. 2. Asymmetric momentum distributions of C<sup>+</sup> in the polarization plane for (a)  $\phi_L = 0$  and (b)  $\phi_L = \pi$ , respectively.

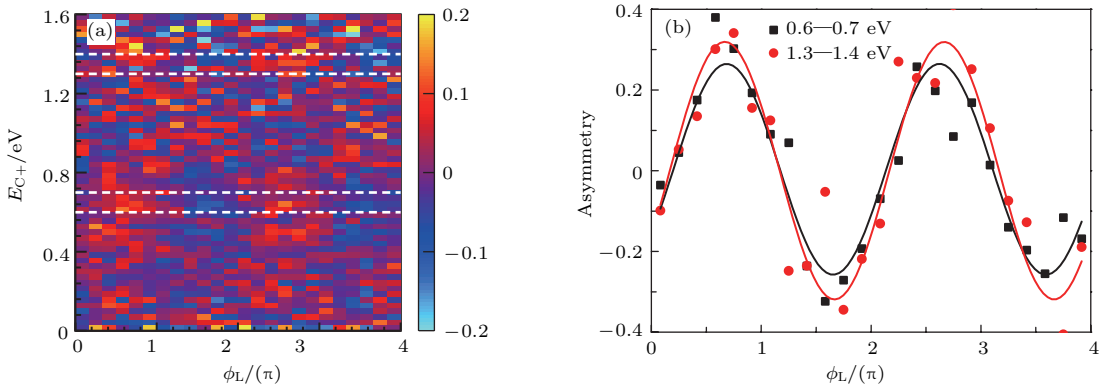


图 3 (a) 出射方向在  $90^\circ < \phi_{C^+} < 150^\circ$  范围内的产物离子 C<sup>+</sup> 的不对称参数与三叶草激光场相位  $\phi_L$  以及能量  $E_{C^+}$  的依赖关系, (b) 为对 (a) 图中白色虚线内低能区 ( $0.6 \text{ eV} < E_{C^+} < 0.7 \text{ eV}$ ) 和高能区 ( $1.3 \text{ eV} < E_{C^+} < 1.4 \text{ eV}$ ) 分别进行积分得到的不对称参数随三叶草激光场相位  $\phi_L$  的变化曲线, 实线为拟合曲线

Fig. 3. (a) Measured asymmetries as functions of the phase  $\phi_L$  of the trefoil laser field and the kinetic energy  $E_{C^+}$  of C<sup>+</sup> emitted in the range of  $90^\circ < \phi_{C^+} < 150^\circ$ ; (b) asymmetry parameter of the directional emission of C<sup>+</sup> versus  $\phi_L$  at the low- $E_{C^+}$  ( $0.6 \text{ eV} < E_{C^+} < 0.7 \text{ eV}$ ) and the high- $E_{C^+}$  ( $1.3 \text{ eV} < E_{C^+} < 1.4 \text{ eV}$ ) as indicated between the white dashed lines in (a), the solid curves are the numerical fits of the measured data.



涉相长或相消, 导致电子相应地被局域在其中一个原子核附近, 最终导致  $\text{H}_2$  分子的不对称解离, 具体讨论见参考文献 [22].  $\text{CO}$  分子的 HOMO 本身具有不对称性, 当光场沿 C 指向 O 时,  $\text{CO}$  分子更容易被电离, 导致解离产物  $\text{C}^+$  更倾向于沿着光场相反方向出射.

除了单电解除离, 我们还对  $\text{CO}$  分子的双电解除离通道  $\text{CO} + n\hbar\omega \rightarrow \text{C}^+ + \text{O}^+ + 2e$  进行了研究. 为提高双电离产率, 我们将总光强增加到  $\sim 6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , 此时电子的产率过高, 因此不适合进行电子-离子符合测量. 该光强下双电解除离主要来自于顺序电离的贡献 [47],  $\text{CO}$  分子在强激光场中被迅速移除两个电子后发生库仑爆炸. 考虑到分子的转动周期 (皮秒量级) 远大于解离过程 (飞秒量级) 所需的时间, 因此可以忽略解离过程中分子的转动. 根据动量守恒定律, 我们可以筛选出来自同一分子的  $\text{C}^+$  和  $\text{O}^+$ , 进而还原出库仑爆炸前分子轴的空间取向. 此时, 分子轴的取向信息直接反映了激光场的相位. 我们定义方位角  $\theta$  为  $\text{CO}$  分子轴在  $Y$ - $Z$  平面内的投影与  $Y$  轴的夹角. 为去除背景噪声, 将任意相位时刻测得的分子轴取向分布归一化并减去相位  $\phi_L = 0$  时的分布, 得到分子轴的角度分布随三叶草激光场相位的变化如图 4 所示. 连续改变三叶草激光场相位, 可以在激光偏振平面内控制双电解除离过程中  $\text{CO}$  分子轴的断裂方向.

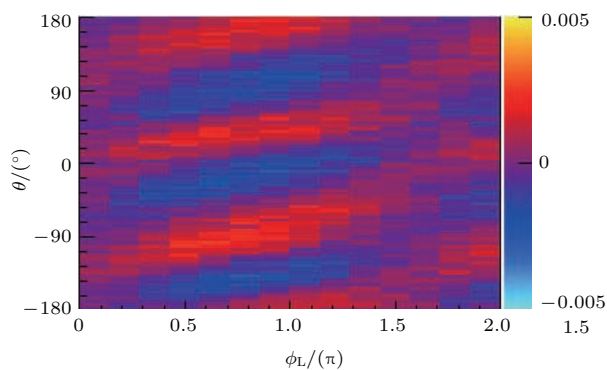


图 4 归一化的分子轴取向分布随三叶草激光场相位的变化

Fig. 4. Normalized molecular axis distribution of the fragmented molecules evolves with the phase of the trefoil laser field.

## 4 结 论

本文实验研究了  $\text{CO}$  分子在反旋圆偏振双色飞秒激光脉冲作用下的单电离和双电解除离过程. 利用三叶草激光场实现了对  $\text{CO}$  分子在激光偏振平面内不对称解离的控制, 观测到了产物离子  $\text{C}^+$  三瓣

形的不对称动量分布. 通过改变双色场的相对相位, 可以控制  $\text{C}^+$  的出射方向. 目前反旋圆偏振双色场是非序列双电离以及产生圆偏振高次谐波等相关方向的研究热点, 本文为其在分子超快动力学操控方面的应用提供了新思路.

## 参考文献

- [1] Zewail A H 1988 *Science* **242** 1645
- [2] Assion A, Baumert T, Bergt M, Brixner T, Kiefer B, Seyfried V, Strehle M, Gerber G 1998 *Science* **282** 919
- [3] Shapiro M, Brumer P 2012 *Quantum Control of Molecular Processes* (New York: Wiley-VCH)
- [4] Kling M F, Siedschlag C, Verhoef A J, Khan J I, Schultze M, Uphues T, Ni Y, Uiberacker M, Drescher M, Krausz F, Vrakking M J J 2006 *Science* **312** 246
- [5] Kremer M, Fischer B, Feuerstein B, de Jesus V L B, Sharma V, Hofrichter C, Rudenko A, Thumm U, Schröter C D, Moshhammer R, Ullrich J 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 213003
- [6] Fischer B, Kremer M, Pfeifer T, Feuerstein B, Sharma V, Thumm U, Schröter C D, Moshhammer R, Ullrich J 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 223001
- [7] McKenna J, Anis F, Sayler A M, Gaire B, Johnson N G, Parke E, Carnes K D, Esry B D, Ben-Itzhak I 2012 *Phys. Rev. A* **85** 023405
- [8] Xu H, Xu T Y, He F, Kielbinski D, Sang R T, Litvinyuk I V 2014 *Phys. Rev. A* **89** 041403
- [9] Rathje T, Sayler A M, Zeng S, Wustelt P, Figger H, Esry B D, Paulus G G 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 093002
- [10] Kling N G, Betsch K J, Zohrabi M, Zeng S, Anis F, Ablikim U, Jochim B, Wang Z, Kübel M, Kling M F, Carnes K D, Esry B D, Ben-Itzhak I 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 163004
- [11] Charron E, Giusti-Suzor A, Mies F H 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 692
- [12] Ohmura H, Saito N, Tachiya M 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 173001
- [13] Wu J, Vredenburg A, Schmidt L P H, Jahnke T, Czasch A, Dörner R 2013 *Phys. Rev. A* **87** 023406
- [14] Sheehy B, Walker B, DiMauro L F 1995 *Phys. Rev. Lett.* **74** 4799
- [15] Ray D, He F, De S, Cao W, Mashiko H, Ranitovic P, Singh K P, Znakovskaya I, Thumm U, Paulus G G, Kling M F, Litvinyuk I V, Cocke C L 2009 *Phys. Rev. Lett.* **103** 223201
- [16] Betsch K J, Pinkham D W, Jones R R 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 223002
- [17] Kotsina N, Kaziannis S, Danakas S, Kosmidisa C 2013 *J. Chem. Phys.* **139** 104313
- [18] Kaziannis S, Kotsina N, Kosmidis C 2014 *J. Chem. Phys.* **141** 104319
- [19] Ohmura H, Saito N 2014 *J. Phys. B* **47** 204007
- [20] Gong X C, He P L, Song Q Y, Ji Q Y, Pan H F, Ding J X, He F, Zeng H P, Wu J 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 203001

- [21] Song Q Y, Gong X C, Ji Q Y, Lin K, Pan H F, Ding J X, Zeng H P, Wu J 2015 *J. Phys. B* **48** 094007
- [22] Lin K, Gong X C, Song Q Y, Ji Q Y, Zhang W B, Ma J Y, Lu P F, Pan H F, Ding J X, Zeng H P, Wu J 2016 *J. Phys. B* **49** 025603
- [23] He F, Ruiz C, Becker A 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 083002
- [24] He F, Ruiz C, Becker A 2008 *J. Phys. B* **41** 081003
- [25] Singh K P, He F, Ranitovic P, Cao W, De S, Ray D, Chen S, Thumm U, Becker A, Murnane M M, Kapteyn H C, Litvinyuk I V, Cocke C L 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 023001
- [26] Sansone G, Kelkensberg F, Pérez-Torres J F, Morales F, Kling M F, Siu W, Ghafur O, Johnsson P, Swoboda M, Benedetti E, Ferrari F, Lépine F, Sanz-Vicario J L, Zherebtsov S, Znakovskaya I, L'Huillier A, Ivanov M Y, Nisoli M, Martín F, Vrakking M J J 2010 *Nature* **465** 763
- [27] Wu J, Magrakvelidze M, Schmidt L P H, Kunitski M, Pfeifer T, Schöffler M, Pitzer M, Richter M, Voss S, Sann H, Kim H, Lower J, Jahnke T, Czasch A, Thumm U, Dörner R 2013 *Nat. Commun.* **4** 3177
- [28] Chaloupka J L, Hickstein D D 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 143005
- [29] Mancuso C A, Dorney K M, Hickstein D D, Chaloupka J L, Ellis J L, Dollar F J, Knut R, Grychtol P, Zusin D, Gentry C, Gopalakrishnan M, Kapteyn H C, Murnane M M 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 133201
- [30] Eckart S, Richter M, Kunitski M, Hartung A, Rist J, Henrichs K, Schlott N, Kang H, Bauer T, Sann H, Schmidt L Ph H, Schöffler M, Jahnke T, Dörner R 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 133202
- [31] Bandrauk A D, Lu H Z 2003 *Phys. Rev. A* **68** 043408
- [32] Pisanty E, Sukiasyan S, Ivanov M 2014 *Phys. Rev. A* **90** 043829
- [33] Yuan K J, Bandrauk A D 2015 *Phys. Rev. A* **92** 063401
- [34] Blaga C I, Xu J, DiChiara A D, Sistrunk E, Zhang K, Agostini P, Miller T A, DiMauro L F, Lin C D 2012 *Nature* **483** 194
- [35] Kfir O, Grychtol P, Turgut E, Knut R, Zusin D, Popmintchev D, Popmintchev T, Nembach H, Shaw J M, Fleischer A, Kapteyn H, Murnane M, Cohen O 2015 *Nat. Photon.* **9** 99
- [36] Chen C, Wu J, Zeng H P 2010 *Phys. Rev. A* **82** 033409
- [37] Mancuso C A, Hickstein D D, Grychtol P, Knut R, Kfir O, Tong X M, Dollar F, Zusin D, Gopalakrishnan M, Gentry C, Turgut E, Ellis J L, Chen M C, Fleischer A, Cohen O, Kapteyn H C, Murnane M M 2015 *Phys. Rev. A* **91** 031402
- [38] Baykusheva D, Ahsan M S, Lin N, Wörner H J 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 123001
- [39] Betsch K J, Pinkham D W, Jones R R 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 223002
- [40] Li H, Ray D, De S, Znakovskaya I, Cao W, Laurent G, Wang Z, Kling M F, Le A T, Cocke C L 2011 *Phys. Rev. A* **84** 043429
- [41] Wu J, Schmidt L Ph H, Kunitski M, Meckel M, Voss S, Sann H, Kim H, Jahnke T, Czasch A, Dörner R 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 183001
- [42] Wu J, Vredenburg A, Schmidt L P H, Jahnke T, Czasch A, Dörner R 2013 *Phys. Rev. A* **87** 023406
- [43] Mashiko H, Gilbertson S, Li C Q, Khan S D, Shakya M M, Moon E, Chang Z 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 103906
- [44] Chini M, Mashiko H, Wang H, Chen S, Yun C, Scott S, Gilbertson S, Chang Z 2009 *Opt. Express* **17** 21459
- [45] Dörner R, Mergel V, Jagutzki O, Spielberger L, Ullrich J, Moshhammer R, Schmidt-Böcking H 2000 *Phys. Rep.* **330** 95
- [46] Ullrich J, Moshhammer R, Dorn A, Dörner R, Schmidt L Ph H, Schmidt-Böcking H 2003 *Rep. Prog. Phys.* **66** 1463
- [47] Guo C 2006 *Phys. Rev. A* **73** 041401

SPECIAL TOPIC — Atomic and molecular processes driven by ultrafast intense laser fields

# Directional bond breaking of CO molecules by counter-rotating circularly polarized two-color laser fields\*

Lin Kang Gong Xiao-Chun Song Qi-Ying Ji Qin-Ying Ma Jun-Yang  
Zhang Wen-Bin Lu Pei-Fen<sup>†</sup> Zeng He-Ping Wu Jian

(State Key Laboratory of Precision Spectroscopy, East China Normal University, Shanghai 200062, China)

( Received 26 September 2016; revised manuscript received 4 November 2016 )

## Abstract

We experimentally studied the dissociative single and double ionization of CO molecules by counter-rotating circularly polarized two-color (CRTC) laser fields. By coincidentally measuring the electrons and the fragmented ions, trefoil asymmetric momentum distributions of  $C^+$  in the polarization plane were observed, which are mainly determined by the selective ionization of CO with asymmetric orbitals. The threefold pattern could rotate continuously in the two-dimensional space by finely tuning the relative phase of the CRTC fields, providing a new method to manipulate the directional bond breaking of molecules by strong laser fields.

**Keywords:** ultrashort laser pulse, dissociative ionization, two-color fields

**PACS:** 42.65.Re, 82.37.Np, 87.15.mk, 87.15.mn

**DOI:** 10.7498/aps.65.224209

---

\* Project supported by the Shanghai Sailing Program, China (Grant No. 16YF1402900).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [pflu@lps.ecnu.edu.cn](mailto:pflu@lps.ecnu.edu.cn)