

THEO DÕI DAO ĐỘNG HẠT NHÂN PHÂN TỬ H_2^+ BẰNG PHỔ SÓNG ĐIỀU HÒA BẬC CAO

LÊ THỊ THANH THỦY*,
NGUYỄN NGỌC TY**, PHAN THỊ NGỌC LOAN**

TÓM TẮT

Bằng việc giải số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian (TDSE) khi cho phân tử H_2^+ đang dao động tương tác với laser cường độ cao xung cực ngắn, chúng tôi thu được phổ sóng điều hòa bậc cao (HHG). Hạt nhân phân tử được chuẩn bị ở trạng thái chồng chất của ba trạng thái dao động đầu tiên với hệ số đóng góp bất kì. Kết quả cho thấy phổ HHG phụ thuộc mạnh vào cấu hình phân tử và vận tốc ban đầu của hạt nhân. Từ đó chúng tôi chỉ ra khả năng sử dụng HHG để theo dõi được dao động hạt nhân của phân tử H_2^+ .

Từ khóa: TDSE, HHG, dao động hạt nhân, chồng chất trạng thái.

ABSTRACT

Probing nuclear vibration of H_2^+ using high – order harmonic generation

By numerically solving the Time – Dependent Schrödinger Equation (TDSE), we calculate the High – order Harmonic Generation (HHG) spectra from H_2^+ , exposed to an ultra-short intense laser pulse. The molecular nuclei are prepared in the state as a superposition of the three lowest vibrational levels with arbitrary contributions. The results show that the intensity of HHG strongly correlated with the molecular configuration and the initial velocity of nuclei. Basing on those facts, we point out the possibility of probing nuclear vibration of H_2^+ using HHG.

Keywords: TDSE, HHG, nuclear vibration, superposition state.

1. Giới thiệu

Trong các thập kỉ vừa qua, sự phát triển của kĩ thuật chế tạo laser cường độ cao xung cực ngắn giúp cho việc nghiên cứu quá trình tương tác của laser với vật chất ở cấp nguyên tử, phân tử được đẩy mạnh. Quá trình tương tác đó có thể xảy ra theo các cơ chế ion hóa đa photon, ion hóa xuyên hầm hoặc vượt rào. Trong đó, electron sau khi bị ion hóa xuyên hầm sẽ quay trở về và tái kết hợp với hạt nhân mẹ dẫn đến sự phát xạ sóng điều hòa bậc cao (HHG) [6]. Do đó, HHG phát ra mang thông tin về cấu trúc của nguyên tử, phân tử. Từ đó mở ra hướng nghiên cứu mới là tìm hiểu thông tin cấu trúc

* HVCH, Trường Đại học Sư phạm TPHCM; Email: lethuy35102094@gmail.com

** TS, Trường Đại học Sư phạm TPHCM

phân tử, theo dõi chuyển động của điện tử - hạt nhân bằng cách phân tích phổ HHG. [1,7,8,11]

HHG phát ra từ phân tử phức tạp hơn so với từ nguyên tử. Đối với phân tử, có nhiều hơn một tâm nên khi quay về electron chịu thế hai tâm hoặc đa tâm. Các nghiên cứu cho thấy HHG của phân tử phụ thuộc vào khoảng cách liên hạt nhân cũng như nhảy với dao động và chuyển động quay của phân tử. Do đó, HHG được sử dụng như một công cụ để trích xuất thông tin của phân tử như khoảng cách liên hạt nhân, các thông tin động của phân tử [4,7]. Năm 2005, Manfred Lein chỉ ra rằng cường độ của HHG nhảy với dao động hạt nhân và kết luận có thể theo dõi dao động của hạt nhân nhờ phổ HHG ở độ phân giải cấp fs [5]. Sau đó, các công trình khảo sát và nghiên cứu sự phụ thuộc của cường độ HHG vào cấu hình phân tử và mức dao động hạt nhân được thực hiện. Năm 2010, Ya Hui Guo chỉ ra rằng HHG nhảy với trạng thái ban đầu của ion phân tử. Khi so sánh phổ HHG phát ra từ H_2^+ và đồng vị D_2^+ thì thấy HHG phát ra mạnh hơn với đồng vị nhẹ hơn [3]. Công trình này cũng chỉ ra rằng cường độ HHG phụ thuộc vào khoảng cách liên hạt nhân, xét đến dao động của hạt nhân ở mức $v=0, 1, 2, 3$ và khi phân tử ban đầu ở trong trạng thái cao hơn, hạt nhân dao động nhanh dẫn đến HHG phát ra được tăng cường. Trong bài báo [9], các tác giả đã khảo sát và chỉ rõ sự phụ thuộc của cường độ HHG phát ra vào các bậc dao động v của hạt nhân (từ $v=0$ đến 21). Song song đó, hướng nghiên cứu sử dụng HHG để khảo sát dao động hạt nhân được phát triển. Năm 2008, Jing Zhao và Zengxiu Zhao áp dụng cụ thể cho H_2^+ , nghiên cứu sự phụ thuộc của HHG vào trạng thái ban đầu dao động của phân tử và mối tương quan giữa cường độ HHG với khoảng cách liên hạt nhân. Năm 2013, Nguyễn Ngọc Ty và cộng sự đã theo dõi dao động hạt nhân H_2^+ từ phổ HHG khi hạt nhân dao động với mức $v=0, 1$ [7]. Kết quả thu được cho thấy cường độ của HHG không chỉ phụ thuộc vào khoảng cách liên hạt nhân mà còn phụ thuộc vào vận tốc của hạt nhân. Tuy nhiên, các nghiên cứu trên chỉ mới xét đến các dao động hạt nhân ở trạng thái riêng và trạng thái chồng chất của hai mức hoặc ba mức dao động đầu tiên với hệ số đóng góp của từng mức là như nhau [3,5,7,11]. Trong thực tế, bằng cách sử dụng laser có cường độ và tần số thích hợp, người ta có thể kích thích hạt nhân dao động chồng chập của các trạng thái khác nhau, với hệ số đóng góp khác nhau [2,10]. Do đó, trong bài báo này, chúng tôi sẽ khảo sát khả năng theo dõi dao động hạt nhân của phân tử H_2^+ khi xét đến trạng thái dao động ban đầu là chồng chất của ba mức dao động đầu tiên của hạt nhân với hệ số đóng góp khác nhau.

Nội dung bài báo gồm ba phần chính. Ngoài phần mở đầu, phần thứ hai là phương pháp TDSE tính đến dao động hạt nhân để tìm hàm sóng phụ thuộc thời gian và cường độ của HHG. Sau đó là kết quả thu được khi áp dụng phương pháp trên cho ion phân tử H_2^+ khi tương tác với laser. Cuối cùng, chúng tôi tóm tắt lại một số kết quả và đưa ra kết luận và hướng phát triển.

2. Phương pháp TDSE cho H_2^+ tính đến dao động của hạt nhân

Trong phần này, chúng tôi áp dụng phương pháp TDSE cho ion phân tử H_2^+ một chiều tính đến dao động hạt nhân. Phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian cho phân tử khi tương tác laser viết trong hệ đơn vị nguyên tử ($\hbar = e = m_e = 1$) như sau

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(x, R, t_{del}, t) = \left(-\frac{\partial^2}{2\partial x^2} - \frac{\partial^2}{2\mu\partial R^2} + V_C(x, R) + V_L(x, t) \right) \Psi(x, R, t_{del}, t), \quad (1)$$

trong đó, x là tọa độ của electron, R là khoảng cách giữa hạt nhân, μ là khối lượng rút gọn của hai hạt nhân, $V_C(x, R)$ là thế Coulomb của hệ và $V_L(x, t)$ là thế năng tương tác giữa điện trường của laser với electron. Để tránh điểm kì dị trong thế Coulomb, chúng tôi thêm vào một tham số a gọi là soft – Coulomb sao cho năng lượng của hệ nhận được bằng với năng lượng của hệ thực. Trong bài báo này, chúng tôi sử dụng $a(R)$ thay đổi theo R . Nên, thế Coulomb có dạng

$$V_C(x, R) = -\frac{1}{\sqrt{\left(x + \frac{R}{2}\right)^2 + a(R)}} - \frac{1}{\sqrt{\left(x - \frac{R}{2}\right)^2 + a(R)}} + \frac{1}{R}. \quad (2)$$

Thế năng của trường laser tương tác với electron là

$$V_L(x, t) = x.E(t) = x.E_0 f(t) \sin(\omega_0 t), \quad (3)$$

với E_0 , $f(t)$ và ω_0 tương ứng lần lượt là cường độ đỉnh, hàm bao và tần số xung laser chiếu vào.

Để thu được hàm sóng phụ thuộc thời gian $\Psi(x, R, t_{del}, t)$, chúng tôi áp dụng phương pháp tách toán tử tác động lên hàm sóng ở thời điểm ban đầu khi chưa tương tác với laser $\Psi(x, R, t_{del}, 0)$. Nghiệm của phương trình (1) có dạng tổng quát theo công thức

$$\Psi(x, R, t_{del}, t) = e^{-i\hat{H}t} \Psi(x, R, t_{del}, 0). \quad (4)$$

Với gần đúng Born – Oppenheimer, hàm sóng ban đầu khi chưa tương tác với laser $\Psi(x, R, t_{del}, 0)$ của ion phân tử H_2^+ với mức dao động hạt nhân được đặc trưng bởi chỉ số lượng tử v được viết dưới dạng

$$\Psi(x, R, t_{del}, 0) = \sum_v C_v \varphi(x, R) \chi_v(R) e^{-iE_v t_{del}}, \quad (5)$$

trong đó, C_v là hệ số đóng góp của các mức dao động hạt nhân vào hàm sóng toàn phần của ion phân tử. Trong bài báo, chúng tôi khảo sát mức đóng góp khác nhau của ba

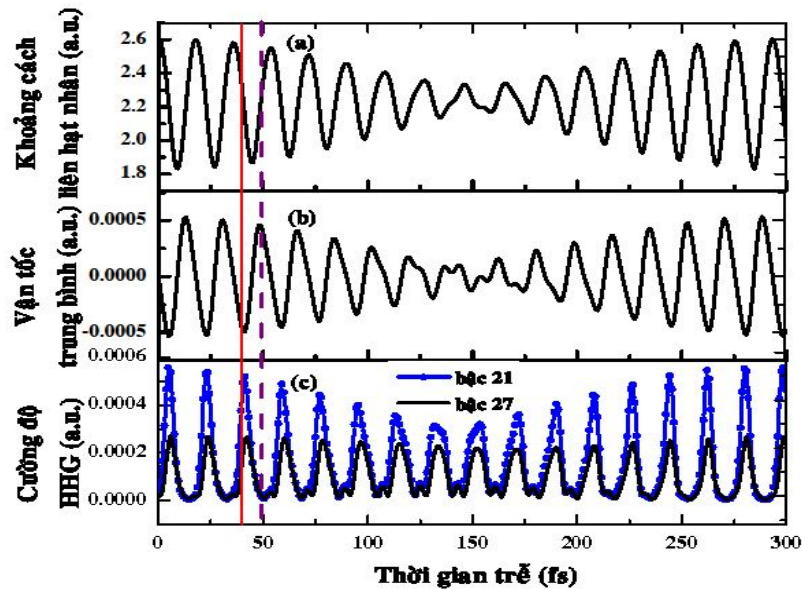
trạng thái dao động đầu tiên là $\nu = 0, 1, 2$. $\varphi(x, R)$, $\chi_\nu(R)$ lần lượt là hàm sóng của electron và hạt nhân dao động được giải bằng phương pháp gần đúng Born – Oppenheimer.

Sau khi thu được hàm sóng phụ thuộc thời gian (4), chúng tôi thu được gia tốc của moment lưỡng cực điện $a(t) = \ddot{d}(t) = \frac{d^2}{dt^2} \langle x \rangle$ và cường độ của HHG là

$$S_{HHG}(\omega) \text{ qua công thức biến đổi } S_{HHG}(\omega) = \left| \int_{-\infty}^{+\infty} a(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2.$$

3. Kết quả

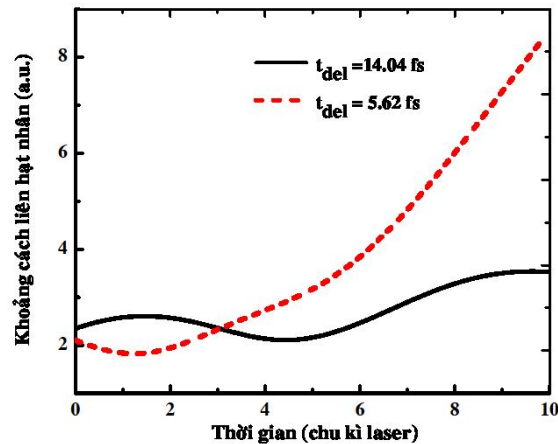
Phần này, chúng tôi trình bày kết quả phổ HHG là hàm thay đổi theo thời gian trễ và mối tương quan giữa khoảng cách liên hạt nhân R , vận tốc dao động hạt nhân với cường độ HHG. Chúng tôi đã khảo sát với ba mức dao động đầu tiên của hạt nhân với hệ số đóng góp khác nhau.



Hình 1. Khoảng cách liên hạt nhân thay đổi theo thời gian trễ t_{del} (a) và vận tốc trung bình dao động của hạt nhân (b). Cường độ HHG bậc 21 và bậc 27 phát ra từ ion phân tử H_2^+ khi tương tác với laser cường độ $3.0 \times 10^{14} \text{ W / cm}^2$, bước sóng 800 nm và độ dài xung 26.7 fs (c)

Hình 1 biểu diễn khoảng cách liên hạt nhân, vận tốc trung bình và cường độ của HHG phát ra biến thiên theo thời gian trễ t_{del} khi cho ion phân tử tương tác với laser có

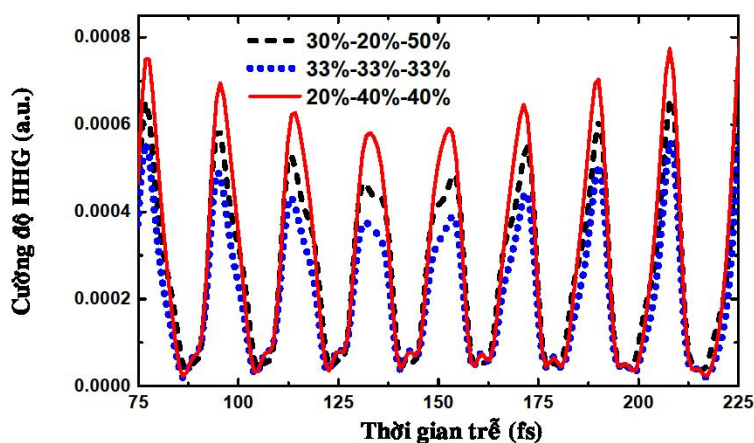
cường độ đỉnh $3.0 \times 10^{14} \text{ W / cm}^2$, bước sóng 800 nm và độ dài xung 26.7 fs (10 chu kỳ quang học). Đầu tiên, chúng tôi giả thiết rằng hạt nhân của ion phân tử dao động tự do ở trạng thái chồng chất ba mức dao động đầu tiên với hệ số đóng góp như nhau. Kết quả cho thấy cường độ HHG biến thiên theo thời gian trễ cùng chu kỳ với khoảng cách liên hạt nhân và vận tốc trung bình của hạt nhân ($\sim 18 \text{ fs}$). Ngoài ra, biên độ của khoảng cách liên hạt nhân, vận tốc trung bình dao động hạt nhân và cường độ HHG cũng biến điệu giống nhau. Biên độ đạt cực tiểu tại $t_{del} = 146 \text{ fs}$ và chu kỳ biến điệu $\sim 300 \text{ fs}$. Điều này được giải thích là do có mức dao động $\nu = 0, 1, 2$ nên khoảng cách liên hạt nhân, vận tốc và cường độ HHG tỉ lệ với thành phần $e^{-i(E_1-E_0)t_{del}}, e^{-i(E_2-E_1)t_{del}}, e^{-i(E_2-E_0)t_{del}}$, với E_0, E_1, E_2 là năng lượng của hạt nhân ở các mức dao động tương ứng, được tính bằng phương pháp thời gian ảo. Các thành phần này tương ứng các dao động điều hòa với các chu kỳ lần lượt là 8.9 fs, 17.3 fs và 18.3 fs. Do đó, ở trạng thái tổng hợp của ba mức dao động trên, biên độ của khoảng cách liên hạt nhân và cường độ HHG biến điệu với chu kỳ $\sim 300 \text{ fs}$ (bội chung nhỏ nhất của ba chu kỳ trên).



Hình 2. Khoảng cách liên hạt nhân thay đổi theo thời gian tương tác với laser

Quan sát hình 1, chúng tôi nhận thấy khi cường độ phổ HHG đạt cực đại thì lúc đó khoảng cách liên hạt nhân đạt giá trị cân bằng, vận tốc trung bình đạt cực tiểu và hai hạt nhân đang chuyển động đang hướng lại gần nhau (đường thẳng nét liền). Ngược lại, cũng khoảng cách liên hạt nhân cân bằng nhưng hai hạt nhân chuyển động ra xa nhau thì cường độ HHG đạt cực tiểu (đường thẳng nét đứt). Điều này được giải thích dựa vào sự thay đổi của khoảng cách liên hạt nhân trong thời gian tương tác và mối tương quan giữa khoảng cách với thế ion hóa phân tử. Với cùng khoảng cách liên hạt nhân ban đầu, khoảng cách này có thể thay đổi theo hai cách khác nhau phụ thuộc vào vận tốc của hạt nhân ban đầu. Kết quả biểu diễn trên hình 2 cho thấy tại thời điểm cuối của

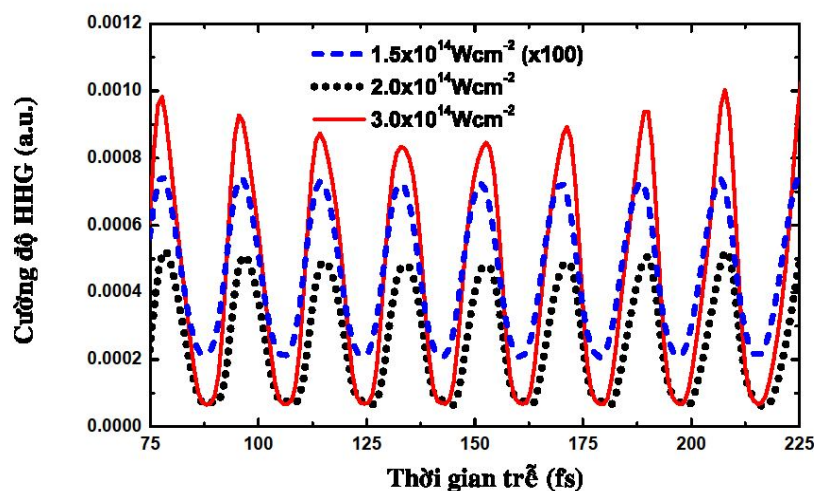
xung laser, khoảng cách liên hạt nhân tương ứng với thời gian trễ $t_0 = 5.62$ fs (lúc vận tốc đạt cực tiểu) có thể đạt giá trị 8.46 a.u., trong khi đó nó chỉ đạt 3.5 a.u. nếu xung laser được mở lúc 14.04 fs (lúc vận tốc đạt cực đại). Khi khoảng cách liên hạt nhân lớn hơn thì thế ion hóa phân tử giảm xuống, do đó electron xuyên hầm dễ hơn và dẫn đến cường độ HHG phát ra được tăng cường. Điều này cho thấy, cường độ HHG không chỉ phụ thuộc vào khoảng cách liên hạt nhân mà còn phụ thuộc rất mạnh vào vận tốc ban đầu của phân tử. Chúng tôi cũng thu được kết quả nhận được tương tự như hình 1 cho các HHG có bậc khác trong miền phẳng.



Hình 3. Cường độ HHG bậc 19 thay đổi theo thời gian trễ t_{del} ứng với xác suất tìm thấy hạt nhân ở ba trạng thái đầu tiên $v = 0, 1, 2$ khác nhau.

Laser tương tác có thông số giống như ở hình 1.

Để nghiên cứu khả năng theo dõi dao động hạt nhân khi hạt nhân phân tử H_2^+ là chồng chập của nhiều trạng thái dao động khác nhau với hệ số đóng góp khác nhau, trong hình 3 chúng tôi trình bày kết quả thu được ứng với các trường hợp xác suất tìm thấy hạt nhân ở ba trạng thái đầu tiên $v = 0, 1, 2$ là như nhau; lần lượt là 0.3, 0.2, 0.5 và 0.2, 0.4, 0.4. Các tỉ lệ được chọn là ngẫu nhiên. Kết quả cho thấy, với các hệ số đóng góp khác nhau của ba mức dao động đầu tiên của hạt nhân ion phân tử, ta thu được phổ HHG thay đổi theo thời gian trễ đạt giá trị cực đại và cực tiểu tại những thời gian trễ giống nhau. Hơn nữa, sự biến điệu biên độ của khoảng cách liên hạt nhân và cường độ HHG vẫn không thay đổi (chu kỳ 300 fs). Như vậy, hệ số đóng góp chỉ làm ảnh hưởng đến biên độ mà không thay đổi tần số biến điệu và ta có thể theo dõi dao động của hạt nhân ion phân tử H_2^+ bằng phổ HHG trong những trường hợp này.



Hình 4. Cường độ HHG bậc 19 phát ra từ ion phân tử H_2^+ khi tương tác với laser có cường độ khác nhau

Chúng tôi tiếp tục nghiên cứu khả năng theo dõi dao động hạt nhân phân tử H_2^+ khi tương tác với laser có cường độ đỉnh khác nhau. Kết quả được biểu diễn trên hình 4 khi xác suất tìm thấy hạt nhân ở ba trạng thái đầu tiên $\nu = 0, 1, 2$ lần lượt là 0.1, 0.2, 0.7. Khi thay đổi cường độ của xung laser, cường độ HHG thu được khác nhau. Tuy nhiên, vị trí cực đại và cực tiểu vẫn không thay đổi. Như vậy, dao động của hạt nhân phân tử H_2^+ có thể khảo sát được từ phổ HHG.

4. Kết luận

Bằng phương pháp TDSE, chúng tôi thu được phổ HHG của ion phân tử H_2^+ khi tương tác với laser cường độ cao, xung cực ngắn. Kết quả cho thấy ứng với trạng thái phân tử chồng chất ba mức dao động hạt nhân đầu tiên với các hệ số đóng góp khác nhau, cường độ HHG thay đổi theo thời gian trễ cùng chu kỳ với khoảng cách liên hạt nhân của phân tử và đạt cực đại khi hạt nhân ở trạng thái cân bằng và chuyển động lại gần nhau. Ngược lại, với cùng cấu hình phân tử, hai hạt nhân chuyển động xa nhau, cường độ HHG phát ra sẽ giảm rõ rệt. Từ đây, chúng tôi có thể theo dõi dao động hạt nhân ion phân tử H_2^+ bằng phổ HHG. Công trình này có thể mở rộng nghiên cứu cho trường hợp hạt nhân phân tử H_2^+ ở trạng thái chồng chập của tất cả các mức dao động của hạt nhân. Đồng thời, thông tin dao động của hạt nhân như tần số dao động cũng có thể được trích xuất từ phổ HHG.

Ghi chú: Nghiên cứu này được tài trợ bởi Quỹ phát triển khoa học và công nghệ quốc gia (NAFOSTED) trong đề tài mã số 103.01-2013.37.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Bredtmann T., Chelkowski S., Bandrauk A.D. (2011), “Monitoring attosecond dynamics of coherent electron-nuclear wave packets by molecular high-order-harmonic generation”, *Phys.Rev.A* **84**, 021401(R).
2. Dunn G. H. (1966), “Franck – Condon factors for the ionization of H_2 and D_2 ”, *J. Chem. Phys.* **44**(7), 2592.
3. Guo Y. H., He H. X., Liu J. Y., He G. Z. (2010), “Sensitivity of high-order harmonic generation to nuclear motion”, *J. Mol.Struct. Theor.chem.* **947**, pp. 119-122.
4. Lein M., Hay N., Velotta R., Marangos J.P., Knight P.L. (2002), “Interference effects in high-order harmonic generation with molecules”, *Phys. Rev. A* **66**, 023805.
5. Lein. M (2005), “Attosecond probing of vibrational dynamics with high harmonic generation”, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 053004-4.
6. Lewenstein M., Balcou Ph., Ivanov M. Y., L’Huillier A., Corkum P. B. (1994), “Theory of High-Harmonic Generation by Low-Frequency Laser Fields”, *Phys. Rev.Lett.* **49**, 2117.
7. Nguyen N. T., Hoang V. H., Le V. H. (2013), “Probing nuclear vibration using high-order harmonic generation”, *Phys. Rev. A* **88**, 023834-5.
8. Niikura H., Villeneuve D.M., Corkum P.B. (2005), “Mapping attosecond electron wave packet motion”, *Phys.Rev.Lett* **94**, 083003.
9. Phan NL, Truong TC, Nguyen NT (2015), “Ionization and high-order harmonic generation from highly vibrational H_2^+ ”, *Comp. Theor.Chem.* **1057**, 39-42.
10. Sukharev M. E., Krajnov V. P. (1996), “Franck – Condon factors for the ionization of hydrogen and deuterium molecules in laser fields”, *JETP.* **110**, 832-836.
11. Zhao J., Zhao Z. (2008), “Probing H_2^+ vibrational motions with high-order harmonic generation”, *Phys. Rev. A* **78**, pp. 053414-5.

(Ngày Tòa soạn nhận được bài: 28-11-2015; ngày phản biện đánh giá: 08-12-2015;
ngày chấp nhận đăng: 22-12-2015)