



# TRÍCH XUẤT THÔNG TIN DAO ĐỘNG HẠT NHÂN TỪ PHỔ SÓNG ĐIỀU HÒA BẬC CAO CỦA ION PHÂN TỬ BẤT ĐỐI XỨNG KHI TƯƠNG TÁC VỚI LASER HỒNG NGOẠI SÓNG TRUNG

Phan Thị Ngọc Loan<sup>1\*</sup>, Nguyễn Thị Hiền<sup>2</sup>, Hoàng Văn Hưng<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Khoa Vật lý – Trường Đại học Sư phạm TP Hồ Chí Minh

<sup>2</sup> Trường Đại học Tây Nguyên

Ngày nhận bài: 21-12-2017; ngày nhận bài sửa: 16-01-2018; ngày duyệt đăng: 19-6-2018

## TÓM TẮT

Phổ phát xạ sóng điều hòa bậc cao (HHG) của phân tử bất đối xứng khối lượng  $HD^+$  xét đến dao động hạt nhân được tính bằng phương pháp giải số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian. Laser tương tác có bước sóng dài, nằm ở vùng hồng ngoại sóng trung. Kết quả cho thấy, ngoài các đỉnh chính tại các bậc HHG nguyên, trong phổ HHG còn xuất hiện các đỉnh phụ, cách đỉnh chính đúng bằng tần số dao động của hạt nhân. Sự tách đỉnh này không chỉ xảy ra tại bậc HHG lẻ, mà còn xảy ra với bậc HHG chẵn. Từ đây, chúng tôi trích xuất thành công thông tin tần số dao động hạt nhân từ phổ HHG của phân tử  $HD^+$ .

**Từ khóa:** HHG, dao động hạt nhân, phân tử bất đối xứng, tần số dao động.

## ABSTRACT

*Extracting information of the nuclear vibration from the high-order harmonic spectra of an asymmetric molecular ion exposed to mid-infrared lasers*

High-order harmonic generation (HHG) of the mass-asymmetric molecule  $HD^+$  considering the vibrational effects is calculated by numerically solving the time-dependent Schrödinger equation. The mid-infrared laser with the long wavelength is used. The results showed that, beside the main peaks at the integer HHG orders, the satellite peaks appear and surround the main peaks with equal intervals of nuclear vibrational frequency. This peak cleavage is not only observed at the odd HHG orders, but also at the even ones. In consequence, we successfully extract the nuclear vibrational frequency from HHG spectra of  $HD^+$  molecule.

**Keywords:** HHG, nuclear vibration, asymmetric molecule, vibrational frequency.

## 1. Giới thiệu

Một trong những hiệu ứng phi tuyến xảy ra khi laser mạnh tương tác với vật chất, là sự phát xạ sóng điều hòa bậc cao (HHG) [1, 2]. Sóng điều hòa bậc cao là tập hợp các photon phát ra khi laser tương tác với vật liệu, có năng lượng lớn gấp nhiều lần năng lượng của photon laser.

Phổ HHG khi laser tương tác với phân tử, nguyên tử khí có tính chất đặc trưng với ba vùng rõ rệt [1, 2]. Ở vùng tần số thấp, cường độ HHG giảm nhanh. Sau đó, cường độ HHG

\* Email: loanphan@hcmup.edu.vn

gần như không đổi trong một miền của tần số, được gọi là miền phẳng. Miền phẳng kết thúc bởi điểm dừng; sau đó, cường độ HHG giảm đột ngột. Để giải thích cơ chế phát xạ HHG, năm 1994, nhóm Lewenstein [2] đã đề xuất mô hình ba bước và gọi là mô hình Lewenstein. Theo mô hình này, ban đầu, điện trường laser làm electron ion hóa xuyên hầm ra vùng năng lượng liên tục. Bước tiếp theo, electron chuyển động tự do trong trường điện của laser. Cuối cùng, khi điện trường đổi chiều, electron bị lái ngược trở về và tái kết hợp với ion mẹ, nhảy mức năng lượng và phát ra các photon có năng lượng cao gọi là HHG.

Sóng HHG phát ra có năng lượng cao, do đó, HHG là nguồn tạo xung laser có độ dài xung siêu ngắn, cỡ atto ( $10^{-18}$ ) giây, mở ra hướng nghiên cứu mới – vật lý atto giây [3, 4]. Bên cạnh đó, HHG phát ra khi electron va chạm với ion mẹ, do đó nó mang thông tin cấu trúc phân tử, nguyên tử. Từ phổ HHG có thể trích xuất được thông tin cấu trúc như khoảng cách liên hạt nhân [5] hay lớp vỏ đạo ngoài cùng của phân tử (HOMO) [6, 7]. Tuy nhiên, các thông tin cấu trúc trên đều là “tĩnh” và dao động hạt nhân được bỏ qua.

Trong một thập kỉ gần đây, trích xuất thông tin cấu trúc động của phân tử như dao động hạt nhân được nghiên cứu sôi động [8-12]. Đáng chú ý, vào 2007, nhóm Corso [10, 11] đã trích xuất thành công tần số dao động của hạt nhân trực tiếp từ phổ HHG. Các tác giả [10, 11] đã chỉ ra rằng, khi ion  $H_2^+$ ,  $D_2^+$ , phân tử  $H_2$ ,  $D_2$  tương tác với laser nhiều chu kì, ngoài các đỉnh HHG tại các bậc lẻ, còn xuất hiện các đỉnh phụ cách đỉnh chính bằng năng lượng dao động của hạt nhân. Sau đó, chúng tôi đã mở rộng nghiên cứu sự tách đỉnh trong phổ HHG của  $H_2^+$  và các đồng vị cho các bậc dao động cao hơn, và đã chỉ ra rằng, vẫn có thể trích xuất được tần số dao động hạt nhân từ phổ HHG [12]. Tuy nhiên, các công trình trên [10-12] mới chỉ nghiên cứu cho các phân tử đối xứng. Đối với các phân tử bất đối xứng, khả năng trích xuất thông tin tần số dao động hạt nhân từ sự tách đỉnh trong phổ HHG vẫn chưa được nghiên cứu. Do đó, phân tử bất đối xứng khối lượng đơn giản như  $HD^+$  sẽ là đối tượng nghiên cứu của chúng tôi trong bài báo này.

Nguồn laser Ti:sapphire với bước sóng hồng ngoại 800nm, thường được dùng trong nghiên cứu HHG [3, 5, 6, 8-12]. Trong những năm gần đây, các nhà khoa học chú ý đến những nguồn laser bước sóng dài, nằm ở vùng hồng ngoại sóng trung bởi những ưu việt của nó. Những nguồn laser mới này được ứng dụng để rút ngắn độ dài xung atto giây [4]. Mặt khác, trong công trình [7], các tác giả đã khẳng định rằng, sử dụng laser có bước sóng dài sẽ nâng cao chất lượng hình ảnh HOMO của phân tử được tái tạo từ phổ HHG. Như vậy, laser hồng ngoại sóng tầm trung có vai trò quan trọng trong nghiên cứu vật lý atto giây, đặc biệt, trong thu nhận thông tin cấu trúc phân tử từ phổ HHG. Trích xuất tần số dao động hạt nhân trực tiếp từ phổ HHG [10-12] mới chỉ được nghiên cứu cho laser bước sóng 800 nm. Trong bài báo này, chúng tôi sẽ kiểm chứng sự tách đỉnh HHG khi phân tử tương tác với laser có bước sóng dài 1200 nm.

Mục tiêu của chúng tôi là nghiên cứu trích xuất thông tin tần số dao động hạt nhân từ sự tách đỉnh HHG của phân tử bất đối xứng khối lượng  $\text{HD}^+$  khi tương tác với laser hồng ngoại sóng trung. Phổ HHG sẽ được tính bằng phương pháp giải số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian (TDSE). Dao động hạt nhân bắt cặp với chuyển động của hệ electron và được giải đầy đủ lượng tử bằng phương pháp phi Born-Oppenheimer. Chúng tôi chỉ ra khả năng trích xuất tần số dao động hạt nhân trực tiếp từ phổ HHG của phân tử bất đối xứng. Đây sẽ là bài toán khởi đầu cho những nghiên cứu tiếp theo về khả năng trích xuất thông tin dao động hạt nhân cho các phân tử không chỉ bất đối xứng khối lượng, mà còn bất đối xứng điện tích.

## 2. Phương pháp TDSE tính phổ HHG cho phân tử bất đối xứng xét đến dao động hạt nhân

Trong phần này, chúng tôi sẽ trình bày phương pháp giải số phương trình Schrödinger cho phân tử bất đối xứng. Ion phân tử có hai hạt nhân và một electron. Để giảm bớt lượng tính toán, hạt nhân và electron chuyển động một chiều, cùng phương với vectơ phân cực của trường laser.

Phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian trong hệ đơn vị nguyên tử với  $\hbar = e = m_e = 1$  có dạng

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(x, R, t) = \hat{H} \Psi(x, R, t), \quad (1)$$

$$\hat{H} = -\frac{1}{2\mu_e} \frac{\partial^2}{\partial x^2} - \frac{1}{2\mu_n} \frac{\partial^2}{\partial R^2} + V_C(x, R) + V_L(x, t),$$

với  $x$  là tọa độ của điện tử tính từ khối tâm của hệ;  $R$  là khoảng cách giữa hai hạt nhân.

$\mu_n = \frac{m_1 m_2}{(m_1 + m_2)}$  và  $\mu_e = \frac{(m_1 + m_2)}{(m_1 + m_2 + 1)}$  lần lượt là khối lượng rút gọn của hai hạt nhân và electron, với  $m_1, m_2$  là khối lượng của hai hạt nhân.

Thế Coulomb của hệ

$$V_C(x, R) = -\frac{q_1}{\sqrt{(x - z_1)^2 + \alpha}} - \frac{q_2}{\sqrt{(x + z_2)^2 + \alpha}} + \frac{q_1 q_2}{\sqrt{R^2 + \beta}}, \quad (2)$$

với hệ số làm mềm Coulomb  $\alpha, \beta$  lần lượt nhận các giá trị bằng 1 và 0.03 [11].  $q_1, q_2$  lần

lượt là điện tích của hai hạt nhân.  $z_1 = \frac{m_2}{(m_1 + m_2)} R$  và  $z_2 = \frac{m_1}{(m_1 + m_2)} R$  lần lượt là vị trí

của hai hạt nhân so với khối tâm của hai hạt nhân. Ban đầu, phân tử  $\text{HD}^+$  có khoảng cách liên hạt nhân là 2.636 a.u. với năng lượng  $-0.7770$  a.u.

Thế tương tác của trường laser với điện tử được viết trong định chuẩn dài như sau

$$V_L(x,t) = \hat{D} \cdot E(t) = \left[ - \left( 1 + \frac{q_1 + q_2 - 1}{m_1 + m_2 + 1} \right) x - \lambda R \right] E(t), \quad (3)$$

với  $\hat{D}$  là toán tử lưỡng cực. Với  $\lambda = \frac{(q_1 m_2 - q_2 m_1)}{m_1 + m_2}$  là tham số bất đối xứng. Laser được sử dụng có dạng  $E(t) = E_0 f(t) \sin \omega_0 t$ , với  $E_0$  và  $\omega_0$  lần lượt là cường độ đỉnh và tần số của laser,  $f(t)$  là hàm bao của laser.

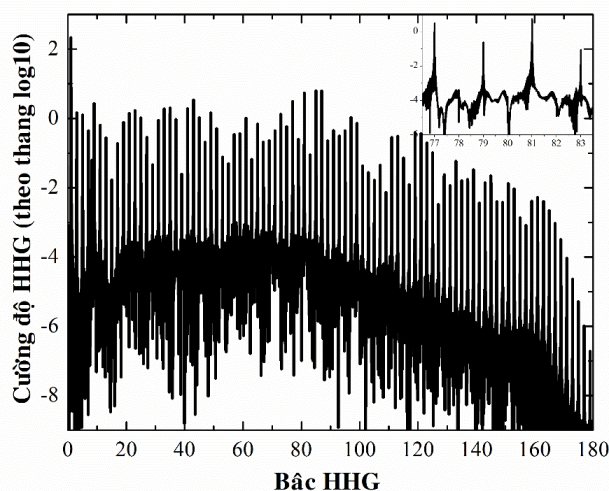
Phương trình Schrödinger được giải số bằng phương pháp TDSE. Chi tiết phương pháp giải số phương trình (1) đã được chúng tôi trình bày trong các công trình trước [9, 12]. Từ hàm sóng phụ thuộc thời gian, gia tốc lưỡng cực được tính theo định lý Ehrenfest

$$\begin{aligned} a(t) &= \frac{d^2}{dt^2} \langle \Psi(x, R, t) | \hat{D} | \Psi(x, R, t) \rangle = \\ &= \frac{1}{\mu_e} \left\langle \Psi(x, R, t) \left| \frac{\partial \hat{H}}{\partial x} \right| \Psi(x, R, t) \right\rangle + \frac{\lambda}{\mu_n} \left\langle \Psi(x, R, t) \left| \frac{\partial \hat{H}}{\partial R} \right| \Psi(x, R, t) \right\rangle \\ &= a_e(t) + \lambda a_n(t), \end{aligned} \quad (4)$$

với  $a_e(t)$  và  $a_n(t)$  là gia tốc lưỡng cực của electron và hạt nhân. Phổ HHG chính là bình phương của biến đổi Fourier của gia tốc lưỡng cực của hệ. Trong bài báo này, chúng tôi sử dụng lưới tính toán với các thông số tương tự như trong [12] để mô phỏng HHG.

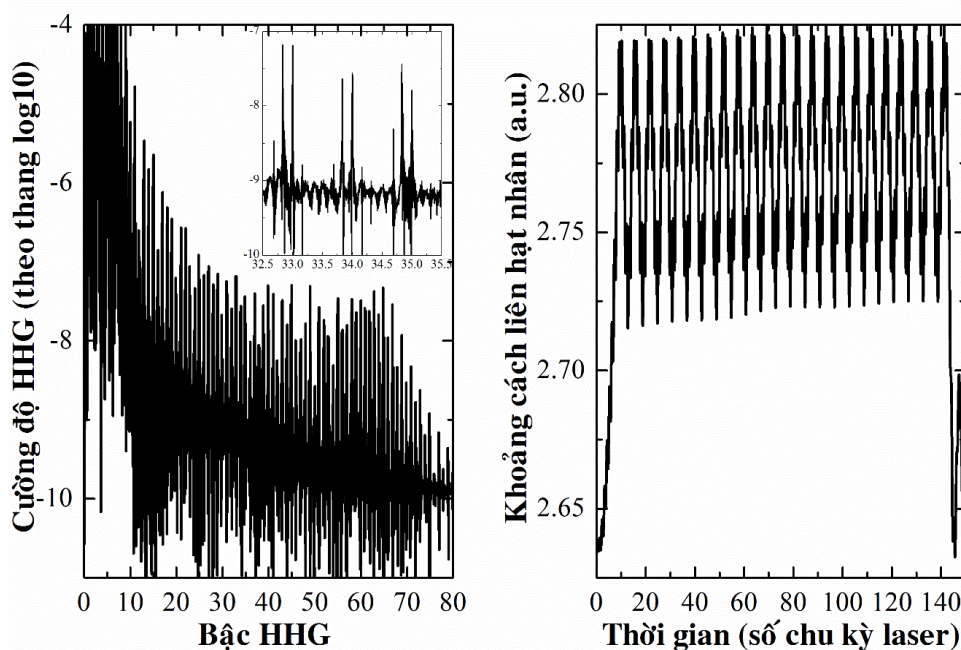
### 3. Kết quả và thảo luận

Trong phần này, chúng tôi sẽ trình bày kết quả tính phổ HHG cho phân tử bất đối xứng. Đầu tiên, trên Hình 1, chúng tôi biểu diễn phổ HHG cho phân tử  $\text{HD}^+$  khi bỏ qua dao động hạt nhân, tương tác với laser cường độ  $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , 1200 nm, 150 chu kỳ. Kết quả cho thấy, khi không xét đến dao động hạt nhân, phổ HHG xuất hiện các đỉnh đều đặn tại các bậc HHG lẻ. Hơn nữa, do laser tương tác có nhiều chu kỳ, các đỉnh của phổ HHG xuất hiện rất cao, sắc nét. Kết quả này tương tự phổ HHG của phân tử đối xứng  $\text{H}_2^+$  khi không xét đến dao động hạt nhân [12]. Mặt khác, laser hồng ngoại bước sóng dài 1200 nm cho phép kéo dài miền phẳng lên tới năng lượng 72 eV, cao hơn so với 62 eV khi sử dụng 800 nm [12].



**Hình 1.** Phổ HHG của phân tử  $HD^+$  khi không xét đến dao động hạt nhân khi tương tác với laser có cường độ  $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , 1200 nm, 150 chu kì. Hình nhỏ biểu diễn chi tiết phổ HHG các từ bậc 77 đến bậc 83.

Tiếp theo, chúng tôi tiếp tục tính phổ HHG của phân tử bất đối xứng  $HD^+$  khi xét đến dao động hạt nhân và được thể hiện trong Hình 2a. Trong trường hợp này, ngoài các đỉnh tại bậc lẻ, trong phổ HHG còn có các bậc chẵn. Sự xuất hiện bậc chẵn trong phổ HHG là do sự phá vỡ đối xứng trong Hamiltonian (1) khi có bất đối xứng khối lượng hạt nhân phân tử qua phép biến đổi  $P_2 : x \rightarrow -x, t \rightarrow t + T_0/2$ . Đặc biệt, nếu phóng to chi tiết các đỉnh HHG (hình nhỏ góc phải Hình 2a), chúng tôi nhận thấy các đỉnh HHG bị tách ra thành nhiều đỉnh phụ, mỗi đỉnh phụ cách nhau đều đặn, và cách đỉnh chính với tần số  $\Delta\omega_{HD^+} = 0.168\omega_0 = 0.0064 \text{ a.u.}$  Sự tách đỉnh HHG của các phân tử đối xứng như  $H_2^+$  và các đồng vị của nó đã được quan sát bởi nhóm Corso và các cộng sự [10, 11] tại các bậc HHG lẻ. Tuy nhiên, chúng tôi chỉ ra rằng, đối với phân tử bất đối xứng như  $HD^+$ , sự tách đỉnh không chỉ xảy ra với bậc HHG lẻ, mà còn quan sát được tại cả bậc HHG chẵn. Bên cạnh đó, sự thay đổi của khoảng cách hạt nhân trung bình theo thời gian được biểu diễn trên Hình 2b. Kết quả cho thấy, hạt nhân phân tử  $HD^+$  bị kéo dãn từ trạng thái cân bằng với  $R = 2.64 \text{ a.u.}$  cho đến  $R = 2.81 \text{ a.u.}$  Sau đó, hạt nhân dao động điều hòa với chu kì dao động  $T_{vib.} \approx 6T_0$ . Sự dao động của hạt nhân làm xuất hiện thêm thành phần thế năng dao động với chu kì  $T_{vib.}$  [10], do đó, trong phổ HHG xuất hiện sự tách đỉnh HHG với khoảng cách giữa các đỉnh  $\omega_{vib} = 1/6T_0 = 0.167\omega_0 = 0.0063 \text{ a.u.}$  Giá trị này tương ứng với khoảng cách cách đỉnh phụ  $\Delta\omega_{HD^+} = 0.0064 \text{ a.u.}$  quan sát được từ phổ HHG (Hình 2a).

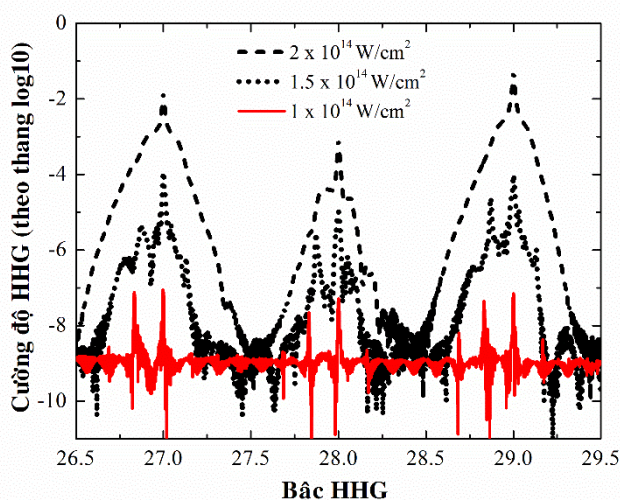


**Hình 2.** (a) Phổ HHG của phân tử  $HD^+$  khi xét đến dao động hạt nhân

(b) Giá trị trung bình khoảng cách liên hạt nhân theo thời gian

Laser được sử dụng có cường độ  $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , 1200 nm, 150 chu kỳ

Chúng tôi cũng đã khảo sát khả năng trích xuất thông tin dao động hạt nhân của  $HD^+$  từ sự tách đỉnh HHG khi thay đổi cường độ laser và được biểu diễn trên Hình 3. Cũng tương tự như trường hợp  $H_2^+$  [12], sự tách đỉnh HHG của  $HD^+$  chỉ quan sát được trong một vùng cường độ laser thích hợp. Với laser có cường độ  $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , sự tách đỉnh HHG mờ dần và mất hẳn với cường độ laser lớn hơn  $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . Nguyên nhân là do khi cường độ laser tương tác lớn, hai hạt nhân phân tử bị kéo dẫn ra, với khoảng cách liên hạt nhân lệch đáng kể so với giá trị cân bằng. Khi này, khoảng cách liên hạt nhân mất dần sự dao động, do đó trong phổ HHG không còn quan sát được sự tách đỉnh [12]. Với cường độ laser yếu, xác suất ion hóa electron rất thấp, do đó, không hình thành được phổ HHG. Như vậy, tương tự như trường hợp phân tử đối xứng  $H_2^+$ , đối với  $HD^+$ , sự tách đỉnh trong phổ HHG chỉ quan sát được trong vùng cường độ laser tương tác thích hợp. Hơn nữa, hiệu ứng này cũng được quan sát khi sử dụng laser bước sóng tầm trung.



**Hình 3.** Phổ HHG của phân tử  $HD^+$  khi xét đến dao động hạt nhân tương tác với laser 1200 nm, 150 chu kỳ, cường độ khác nhau

#### 4. Kết luận

Trong bài báo này, chúng tôi đã chỉ ra rằng, có thể trích xuất thông tin tần số dao động hạt nhân từ phổ HHG của phân tử bất đối xứng  $HD^+$ . Khi xét đến dao động hạt nhân xảy ra sự tách đỉnh HHG thành các đỉnh phụ, các đều nhau và bằng tần số dao động của hạt nhân. Đặc biệt, sự tách đỉnh này không chỉ quan sát được ở các bậc lẻ mà còn thấy được ở các bậc chẵn. Hơn nữa, sự tách đỉnh HHG này chỉ quan sát được khi laser tương tác có cường độ thích hợp.

- ❖ **Tuyên bố về quyền lợi:** Các tác giả xác nhận hoàn toàn không có xung đột về quyền lợi.
- ❖ **Lời cảm ơn:** Nghiên cứu này được tài trợ bởi Bộ Giáo dục và Đào tạo cho đề tài mã số B2016.19.10.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] P. B. Corkum, "Plasma perspective on strong field multiphoton ionization," *Phys. Rev. Lett.* **71**, p.1994, 1993.
- [2] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'huillier and P. B. Corkum, "Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields," *Phys. Rev. A* **49**, pp. 2117, 1994.
- [3] F. Calegari, D. Ayuso, A. Trabattoni et al., "Ultrafast electron dynamics in phenylalanine initiated by attosecond pulses," *Science* **346**, pp.336-339, 2014.
- [4] T. Gaumnitz, A. Jain, Y. Pertot, M. Huppert, I. Jordan, F. Ardana-Lamas et al. "Streaking of 43-attosecond soft-X-ray pulses generated by a passively CEP-stable mid-infrared driver," *Opt Express* **25**, pp.27506, 2017.

- [5] M. Lein, N. Hay, R. Velotta, J. P. Marangos and P. L. Knight, "Role of the intramolecular phase in high-harmonic generation," *Phys. Rev. Lett.* **88**, pp.183903, 2002.
- [6] J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler and H. Niikura, "Tomographic imaging of molecular orbitals," *Nature* **432**, pp.867, 2004
- [7] V. H. Le, A. T. Le, R. H. Xie, and C. D. Lin, "Theoretical analysis of dynamic chemical imaging with lasers using high-order harmonic generation," *Phys. Rev. A* **76**, pp.013414-13, 2007.
- [8] N. T. Nguyen, V. H. Hoang and V. H. Le, "Probing nuclear vibration using high-order harmonic generation," *Phys. Rev. A* **88**, pp.023824, 2013.
- [9] N. T. Nguyen, T. T. Le and N. L. Phan, "Probing nuclear vibration using high-order harmonic generation beyond two-level model," *Comput. Theor. Chem.* **1094**, pp.8, 2016.
- [10] P. P. Corso, E. Fiordilino, and F. Persico, "Direct theoretical evidence of nuclear motion in  $H_2^+$  by means of high harmonic generation," *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **40**, pp.1383, 2007.
- [11] R. Daniele, G. Castiglia, P. P. Corso, E. Fiordilino, F. Morales, and G. Orlando, "Nuclear molecular dynamics investigated by using high-order harmonic generation spectra," *J. Mod. Opt.* **56**, pp.751-757, 2009.
- [12] N. L. Phan, "Extraction of the nuclear vibration from the high-order harmonic spectra in molecular ions  $H_2^+$ ,  $D_2^+$ ,  $T_2^+$ ," *HCMUP Journal of Science* **14**, pp.12, 2018.