



Bài báo nghiên cứu

CHỤP ẢNH CẮT LỚP PHÂN TỬ N_2 ĐỊNH PHƯƠNG KHÔNG HOÀN TOÀN TỪ PHỔ SÓNG ĐIỀU HÒA BẬC CAO

Trần Công Minh¹, Trương Quân Hào¹, Trần Phúc Khang¹,
Lê Thị Cẩm Tú², Phan Thị Ngọc Loan^{1*}

¹Trường Đại học Sư phạm Thành phố Hồ Chí Minh, Việt Nam

²Trường Đại học Tôn Đức Thắng, Việt Nam

*Tác giả liên hệ: Phan Thị Ngọc Loan – Email: loanptn@hcmue.edu.vn

Ngày nhận bài: 18-01-2021; ngày nhận bài sửa: 22-4-2021; ngày duyệt đăng: 08-6-2021

TÓM TẮT

Chúng tôi tái tạo hình ảnh chụp cắt lớp đám mây electron lớp ngoài cùng (HOMO) từ phổ phát xạ sóng điều hòa bậc cao (HHG) của phân tử N_2 khi xét đến hiệu ứng định phương không hoàn toàn. Chúng tôi đã sử dụng hai cách khác nhau để mô tả hàm phân bố định phương – (i) giải chính xác bằng số phương trình Schrödinger phụ thuộc vào thời gian, và (ii) gần đúng bằng hàm giải tích. Kết quả cho thấy rằng, mức độ định phương giảm dần, độ chính xác của HOMO của phân tử giảm dần. Khi mức độ định phương nhỏ hơn 0.5, thì không còn tái tạo được chính xác HOMO của phân tử. Ngoài ra, sử dụng hai cách mô tả hàm phân bố định phương đều cho kết quả tương tự nhau.

Từ khóa: sóng điều hòa bậc cao; phân tử N_2 ; định phương không hoàn toàn; chụp ảnh cắt lớp

1. Giới thiệu

Kể từ khi ra đời vào năm 1960 (Maiman, 1960), laser ngày càng tạo ra nhiều đột phá trong khoa học, kỹ thuật và công nghệ. Khi laser xung cực ngắn, cường độ cao tương tác với vật chất, một trong những hiệu ứng quang phi tuyến xảy ra là sự phát xạ sóng điều hòa bậc cao (High-order Harmonic Generation – viết tắt là HHG), tức là phát ra sóng HHG có tần số bằng số nguyên lần tần số của laser chiếu vào) (Lewenstein, Balcou, Ivanov, & Huillier, 1994). Phổ HHG có dạng đặc trưng với ba vùng rõ rệt: (i) đầu tiên là vùng nhiễu loạn ở vùng tần số thấp, tại đó cường độ HHG giảm nhanh; (ii) sau đó là miền phẳng trải dài trên một miền của tần số, ở đó, cường độ HHG được giữ ổn định; (iii) cuối cùng, miền phẳng kết thúc tại điểm dừng, sau đó, cường độ HHG giảm nhanh đột ngột.

HHG có nhiều ứng dụng quan trọng như thu nhận thông tin cấu trúc nguyên tử, phân tử (Baker et al., 2006; Haessler et al., 2015); thăm dò động lực học của electron (Zhang, Yu, Chen, Jiang, & Sun, 2015) và hạt nhân (Jin et al., 2012); chụp ảnh cắt lớp orbital lớp ngoài cùng (Highest-Occupied Molecular Orbital – viết tắt là HOMO) của phân tử (Itatani et al.,

Cite this article as: Tran Cong Minh, Trương Quân Hào, Trần Phúc Khang, Lê Thị Cẩm Tú, & Phan Thị Ngọc Loan (2021). Tomography of partially aligned N_2 molecules from high-order harmonic generation. *Ho Chi Minh City University of Education Journal of Science*, 18(6), 1085-1099.

2004, Qin, & Zhu, 2017). Trong đó, phương pháp chụp ảnh cắt lớp HOMO phân tử lần đầu tiên được thực hiện bởi Itatani và các cộng sự (Itatani et al., 2004) từ HHG đo đặc từ thực nghiệm cho phân tử N_2 . Sau đó, các tác giả (Le, Le, Xie, & Lin, 2007) đã bằng lí thuyết, chụp ảnh cắt lớp cho phân tử đối xứng như N_2 và O_2 . Các tác giả (Le et al., 2007) đã chỉ ra những hạn chế của quy trình chụp ảnh cắt lớp của Itatani (Itatani et al., 2004), và đồng thời, đề xuất rằng, để nâng cao hiệu quả của hình ảnh tái tạo HOMO, nên sử dụng laser có bước sóng dài. Bên cạnh đó, một số các công trình đã phát triển phương pháp để khắc phục những khuyết điểm của mô hình được đề xuất bởi Itatani, như sử dụng hàm sóng tán xạ thay vì sóng phẳng của electron ở vùng liên tục (Zhai et al., 2016). Sau đó, phương pháp chụp ảnh cắt lớp đã được ứng dụng khi HHG phát xạ khi tương tác với laser hai màu (Zhai et al., 2018). Gần đây, phương pháp chụp ảnh cắt lớp đã được mở rộng cho phân tử bất đối xứng CO (Qin, Zhu, Zhang, & Lu, 2012; Chen, Fu, & Liu, 2013; Xie, Yu, Li, Wang, & Chen, 2018; Zhai et al., 2018; Yuan et al., 2018).

Theo quy trình chụp ảnh cắt lớp HOMO của phân tử, đầu tiên, các phân tử cần phải được định phương trước khi tương tác với laser mạnh để phát ra HHG, nhằm tránh hiệu ứng trung bình (Itatani et al., 2004). Trong các công trình trước đây, các phân tử được giả thuyết là định phương hoàn toàn trong quá trình phát xạ HHG (Itatani et al., 2004; Le et al., 2007; Qin et al., 2012; Chen et al., 2013; Zhai et al., 2018; Yuan et al., 2018). Tuy nhiên, trong thực tế, các phân tử chỉ có thể định phương một phần (Zhou, Tong, Zhao, & Lin, 2005; Qin, & Zhu, 2017). Đại lượng đặc trưng cho chất lượng định phương của một khối khí phân tử được gọi là mức độ định phương. Các kĩ thuật định phương hiện nay được ứng dụng trong thực nghiệm sử dụng phương pháp va chạm (Pullman, Friedrich, & Herschbach, 1990; Aquilanti et al., 1994), phương pháp trường điện tĩnh (Cho, & Bernstein, 1991; Friedrich, & Herschbach, 1991; Seideman, 1995) và phương pháp định phương bằng trường laser yếu (Bretislav Friedrich, & Herschbach, 1995; Stapelfeldt, & Seideman, 2003). Hiện nay, trong thực nghiệm, người ta đã có thể định phương khối khí với mức độ định phương cao, đến 0,8 (De et al., 2009).

Các công trình nghiên cứu trước đây (Zhou, Tong, Zhao, & Lin, 2005; Qin, & Zhu, 2017) đã chỉ ra rằng, tín hiệu HHG của phân tử nhạy với góc định phương và mức độ định phương. Nguyên nhân là do HHG phát ra phụ thuộc vào sự phân bố của electron, hay nói cách khác, sự đối xứng của orbital phân tử (Zhou et al., 2005). Chú ý rằng theo mô hình chụp ảnh cắt lớp của Itatani (Itatani et al., 2004), HHG là công cụ nhằm tái tạo HOMO của phân tử. Do đó, sự định phương không hoàn toàn của phân tử ảnh hưởng đến chất lượng hình ảnh HOMO của phân tử được tái tạo từ HHG. Trong công trình (Qin, & Zhu, 2017), các tác giả đã tiến hành chụp ảnh cắt lớp có tính đến sự định phương không hoàn toàn cho các phân tử với orbital phân tử có đối xứng khác nhau. Các tác giả nhận thấy ảnh hưởng của mức độ định phương đến hình ảnh chụp cắt lớp phụ thuộc vào dạng đối xứng của orbital và vùng tần số HHG được sử dụng để chụp ảnh cắt lớp. Cụ thể, với phân tử có đối xứng π_g như CO_2 , thì

hình ảnh orbital tái tạo được từ vùng HHG không chứa cực tiểu giao thoa sẽ không bị ảnh hưởng bởi mức độ định phương phân tử. Trong khi đó, hình ảnh được tái tạo từ vùng HHG có chứa cực tiểu giao thoa bị ảnh hưởng đáng kể bởi sự định phương phân tử. Còn đối với phân tử có đối xứng σ_g như N_2 , dù lấy bất cứ vùng tần số HHG nào, thì hình ảnh orbital tái tạo được đều nhạy với mức độ định phương của phân tử.

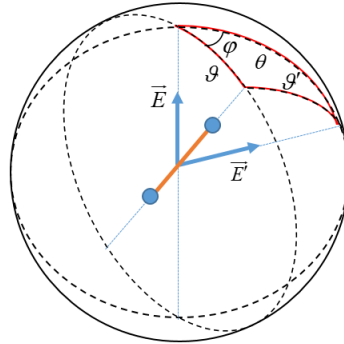
Tuy nhiên, trong công trình trên (Qin, & Zhu, 2017), các tác giả tái tạo orbital phân tử chỉ từ một vùng tần số trong miền phẳng của phổ HHG, vì vậy, hình ảnh HOMO tái tạo được có nhiều cấu trúc phụ, chưa thể hiện cấu trúc của orbital phân tử. Các công trình về chụp ảnh cắt lớp HOMO phân tử trước đây (Itatani et al., 2004; Le et al., 2007; Qin et al., 2012; Yuan et al., 2018; Zhai et al., 2018) đều sử dụng toàn bộ miền phẳng của HHG cho mục đích chụp ảnh cắt lớp. Do đó, trong bài báo này, chúng tôi nghiên cứu ảnh hưởng của sự định phương phân tử lên hình ảnh HOMO tái tạo được từ toàn bộ miền phẳng của HHG phân tử. Chúng tôi khảo sát sự tương quan giữa mức độ định phương phân tử và hình ảnh HOMO được tái tạo từ toàn bộ miền tần số – tương ứng với miền phẳng của phổ HHG được sử dụng.

Bên cạnh đó, để mô tả sự phân bố định phương phân tử bởi trường laser yếu, người ta thường giải phương trình Schrödinger (TDSE) cho phân tử quay trong điện trường laser (Lin, Le, Jin, & Wei, 2018). Tuy nhiên, để giảm khối lượng tính toán, nhiều công trình sử dụng gần đúng bằng hàm giải tích để mô tả sự định phương phân tử (Lein et al., 2005; Kraus, Baykusheva, & Wörner, 2014; Yu, Li, Li, & Chen, 2017). Do đó, chúng tôi sẽ kiểm chứng tính chính xác của việc áp dụng hàm phân bố định phương giải tích bằng việc so sánh chúng với kết quả giải chính xác TDSE trong bài toán chụp ảnh cắt lớp HOMO của phân tử.

Cấu trúc của bài báo được trình bày như sau. Trong mục 2, chúng tôi sẽ trình bày phương pháp định phương phân tử bằng TDSE; phương pháp tính HHG cho khối khí phân tử định phương không hoàn toàn; và quy trình chụp ảnh cắt lớp HOMO phân tử từ HHG. Trong mục 3, chúng tôi lần lượt trình bày kết quả định phương phân tử, và HOMO tái tạo được từ HHG phát ra từ phân tử định phương không hoàn toàn với mức độ định phương khác nhau. Cuối cùng là so sánh kết quả khi sử dụng hai phương pháp mô tả hàm định phương khác nhau – chính xác từ TDSE và gần đúng bằng hàm giải tích.

2. Phương pháp

Để tái tạo HOMO của phân tử, chúng tôi cần có nguồn dữ liệu HHG thực nghiệm. Tuy nhiên, do không có đủ dữ liệu HHG thực nghiệm cần thiết, chúng tôi tạo dữ liệu HHG “thực nghiệm” bằng cách mô phỏng bằng số. Trong phần này, trước tiên, chúng tôi sẽ mô phỏng sự định phương phân tử bằng giải chính xác bằng số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian (TDSE). Sau đó, chúng tôi mô phỏng HHG phát ra từ khối khí phân tử N_2 định phương không hoàn toàn bằng mô hình Lewenstein. Cuối cùng, chúng tôi trình bày tóm tắt quy trình chụp ảnh cắt lớp HOMO phân tử từ phổ HHG.



Hình 1. Mô hình phân tử và chùm laser định phương \vec{E}' , laser thăm dò \vec{E}

Để định phương phân tử, chúng tôi sử dụng phương pháp dùng laser yếu – hay còn gọi là laser định phương (Bretislav Friedrich, & Herschbach, 1995; Stapelfeldt, & Seideman, 2003). Mô hình bài toán được thể hiện trên Hình 1, trong đó \vec{E}' là vector phân cực của laser định phương, hợp với trục phân tử góc \mathcal{G}' . Sau đó chiếu chùm laser mạnh hay còn gọi là laser thăm dò \vec{E} để kích thích quá trình tương tác trường mạnh, tức tạo phổ HHG. Góc tạo bởi vector \vec{E} với trục phân tử được kí hiệu là \mathcal{G} ; góc giữa \vec{E} và \vec{E}' là θ ; góc hợp bởi mặt phẳng chứa phân tử và vectơ \vec{E} với mặt phẳng chứa \vec{E} , \vec{E}' là φ .

2.1. Tính hàm định phương phân tử bằng giải số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian

Chúng tôi sử dụng phương pháp giải trực tiếp phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian, được mô tả cụ thể trong nhiều tài liệu, như trong công trình (Lin et al., 2018). Xét phân tử đối xứng, được đặt trong trường laser yếu với cường độ và tần số sao cho không gây ra sự ion hóa. Hamiltonian của hệ laser-phân tử có dạng

$$H_{eff} = B\hat{J}^2 - \frac{1}{2}\vec{E}'(t)\alpha\vec{E}(t), \tag{1}$$

trong đó, \hat{J} là toán tử quay của phân tử, $B = \frac{1}{2}I$ là hằng số quay và I là moment quán tính của phân tử. α là tensor phân cực của phân tử có thể được phân tích thành thành phần song song và thành phần vuông góc với phân tử α_{\parallel} và α_{\perp} . Phương trình (1) trở thành

$$H_{eff} = B\hat{J}^2 - \frac{E'(t)^2}{2} [(\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp})\cos^2 \mathcal{G}' + \alpha_{\perp}], \tag{2}$$

trong đó, $E'(t)$ là vector phân cực của laser chỉ phương, \mathcal{G}' là góc giữa trục phân tử vectơ chỉ phương của điện trường của laser $E'(t)$. Thành phần α_{\perp} không phụ thuộc vào góc \mathcal{G}' nên có thể bỏ qua.

Ban đầu, các phân tử ở trạng thái cân bằng nhiệt ở nhiệt độ T , với các trạng thái quay $|JM\rangle$ được phân bố bởi hàm phân bố Boltzmann như sau

$$\omega_{JM}(T) = \frac{1}{Z(T)} \exp\left[-\frac{J(J+1)}{2Ik_B T}\right], \tag{3}$$

trong đó, k_B là hằng số Boltzmann và $Z(T)$ là hàm tổng thống kê của các trạng thái. Đối với phân tử đối xứng, xác suất spin của hạt nhân cần được tính đến. Đối với N_2 , công thức trên phải được nhân với một hệ số bổ sung $g_s = 2$ cho các trạng thái có số lượng tử quay J chẵn và $g_s = 1$ cho các J lẻ.

Khi các phân tử thẳng được đặt trong trường điện của một laser, điện trường của laser kích thích sự chông chấp của các trạng thái quay hay còn gọi là bố sóng quay của từng phân tử. Sự tiến hóa của bố sóng quay theo thời gian từ trạng thái ban đầu là $\Psi_{JM}(\mathcal{G}, \phi, t = -\infty) = |JM\rangle$, với ϕ là góc phương vị, được tính từ TDSE với Hamiltonian tương tác trong phương trình trên

$$i \frac{\partial \Psi_{JM}(\mathcal{G}, \phi, t)}{\partial t} = \left[B\bar{J}^2 - \frac{E'(t)^2}{2} (\alpha_{\parallel} - \alpha_{\perp}) \cos^2 \mathcal{G}' \right] \Psi_{JM}(\mathcal{G}, \phi, t). \quad (4)$$

Phương trình trên phải được giải cho từng trạng thái $|JM\rangle$ ban đầu. Cần chú ý, với các chuyển dời trạng thái quay của phân tử, tức chuyển dời Raman, quy tắc lọc lựa với $\Delta J = 0, \pm 2$ được áp dụng. Khi sử dụng laser phân cực thẳng, số lượng tử M được bảo toàn, nên nghiệm phương trình trên có dạng như sau

$$\Psi_{JM}(\mathcal{G}, \phi, t) = \sum_{J'} C_{J'}(JM, t) Y_{JM}(\mathcal{G}, \phi). \quad (5)$$

Phương trình này được giải số bằng phương pháp tách toán tử (Lin et al., 2018).

Đối với phương pháp định phương gần đúng đoạn nhiệt, sau khi tắt trường laser yếu tại thời điểm t_f , bố sóng quay sẽ tiếp tục tiến hóa theo thời gian

$$\Psi_{JM}(\mathcal{G}, \phi, t) = \sum_{J'} C_{J'}(JM, t) e^{-iE_{J'} t_f} Y_{JM}(\mathcal{G}, \phi), \quad (6)$$

với $E_{J'} = BJ'(J'+1)$ là trị riêng của hàm cầu.

Sau khi giải phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian cho từng trạng thái ban đầu $|JM\rangle$, mật độ xác suất phân bố định phương theo góc và thời gian của các phân tử được biểu diễn như sau

$$\rho(\mathcal{G}', t) = \sum_{JM} \omega_{JM} |\Psi_{JM}(\mathcal{G}', \phi, t)|^2. \quad (7)$$

Mức độ định phương lúc này được tính như sau

$$\langle \cos^2 \mathcal{G}' \rangle = 2\pi \int_0^{\pi} \rho(\mathcal{G}', t) \cos^2 \mathcal{G}' \sin \mathcal{G}' d\mathcal{G}'. \quad (8)$$

2.2. Phương pháp tính HHG của phân tử định phương không hoàn toàn

Sau khi khối khí N_2 được định phương, laser mạnh được chiếu vào nhằm thu nhận HHG. Hàm phân bố định phương (7) được chuyển từ hệ quy chiếu gắn với laser định phương sang hệ quy chiếu gắn với laser mạnh như sau

$$\rho_{\theta}(\mathcal{G}, \varphi, t) = \rho(\mathcal{G}'(\theta, \mathcal{G}, \varphi), t), \quad (9)$$

trong đó, định lí cosin trong hình cầu mô tả mối liên hệ giữa các góc như sau

$$\cos \mathcal{G}' = \cos \mathcal{G} \cos \theta + \sin \mathcal{G} \sin \theta \cos \varphi.$$

Cường độ HHG của khối khí, được phát ra theo hai phương song song (được kí hiệu với chỉ số z), và vuông góc (chỉ số x) với vector phân cực của laser mạnh, được mô tả

$$S_{\theta_z}(\omega) \sim \left| \iint A_z(\mathcal{G}, \varphi, \omega) \rho_\theta(\mathcal{G}, \varphi) \sin \mathcal{G} d\mathcal{G} d\varphi \right|^2, \tag{10}$$

$$S_{\theta_x}(\omega) \sim \left| \iint A_x(\mathcal{G}, \varphi, \omega) \rho_\theta(\mathcal{G}, \varphi) \sin \mathcal{G} d\mathcal{G} d\varphi \right|^2.$$

$S_{\theta_z}(\omega)$ và $S_{\theta_x}(\omega)$ được gọi là HHG song song và HHG vuông góc, được lấy trung bình theo hàm phân bố định phương. $A_x(\mathcal{G}, \varphi, \omega)$ và $A_z(\mathcal{G}, \varphi, \omega)$ là biên độ của HHG song song và vuông góc của phân tử, được định phương cố định với góc \mathcal{G} và φ trong không gian. Biên độ HHG của một phân tử được chúng tôi tính bằng mô hình Lewenstein, được trình bày chi tiết trong (Lewenstein et al., 1994).

2.3. Phương pháp chụp ảnh cắt lớp HOMO của phân tử

Quy trình chụp ảnh cắt lớp HOMO của phân tử được đưa ra bởi Itatani và các cộng sự (Itatani et al., 2004). Chúng tôi trình bày lại phương pháp này cho trường hợp phân tử cố định trong không gian với góc \mathcal{G} và φ . Khi khối khí định phương không hoàn toàn, quy trình tương tự.

Trong gần đúng trường mạnh cường độ HHG được biểu diễn như sau

$$S(\omega, \mathcal{G}) \sim N(\mathcal{G}) \omega^4 \left| a[k(\omega)] \vec{d}(\omega, \mathcal{G}) \right|^2, \tag{11}$$

trong đó, $S(\omega, \mathcal{G})$ là cường độ HHG mà phân tử, nguyên tử phát ra với tần số ω . $N(\mathcal{G})$ là tốc độ ion hóa của phân tử, nguyên tử. $a[k(\omega)]$ là biên độ sóng phẳng mô tả electron quay trở lại tương tác với ion mẹ, $\vec{d}(\omega, \mathcal{G}) = (2\pi)^{-3/2} \int d\vec{r} \Psi_0(r, \mathcal{G}) \vec{r} \exp[ik(\omega)x]$ là vector lưỡng cực chuyển dời từ trạng thái ban đầu $\Psi_0(r, \mathcal{G})$ – được mô tả bởi hàm sóng HOMO, lên trạng thái electron tự do. Hệ số tán sắc $k(\omega) = \sqrt{2(\omega - I_p)}$ thể hiện mối liên hệ giữa số sóng của electron tự do và tần số HHG, với I_p là thế ion hóa của phân tử.

Để tính giá trị $a[k(\omega)]$ ta sẽ dùng nguyên tử tham chiếu có thế ion hóa tương đương thế ion hóa của phân tử cần khảo sát, từ đó tính được biên độ sóng phẳng như sau

$$a[k(\omega)] = \omega^{-2} \left[S_{ref}(\omega) \right]^{\frac{1}{2}} \left| \vec{d}_{ref}(k) \right|^{-\frac{1}{2}}, \tag{12}$$

với $S_{ref}(\omega)$ và $\vec{d}_{ref}(k)$ lần lượt là cường độ HHG và lưỡng cực dịch chuyển của nguyên tử tham chiếu tương ứng. Từ biểu thức (11) và (12) ta có thể tính được giá trị tuyệt đối của lưỡng cực dịch chuyển của phân tử

$$\left| \vec{d}(k, \omega) \right| = N^{-1}(\mathcal{G}) \left| \vec{d}_{ref}(k) \right| \sqrt{S(\omega, \mathcal{G}) / S_{ref}(\omega)}. \tag{13}$$

Hàm sóng trong hệ quy chiếu phân tử thu được từ dữ liệu lưỡng cực dịch chuyển bằng cách áp dụng định lý cắt lớp Fourier (Kak, & Slaney, 2001)

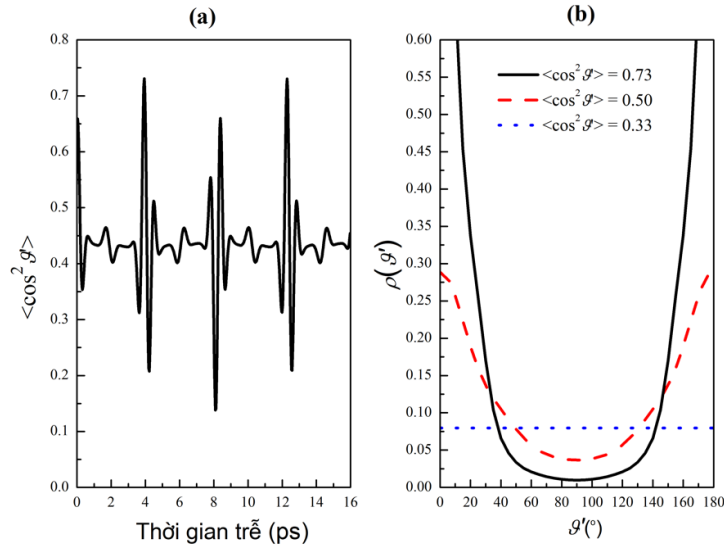
$$\begin{aligned}
 x\Psi(x, y) &= \int_0^\pi d\vartheta \int_0^{+\infty} d\omega e^{ik(x\cos\vartheta+y\sin\vartheta)} \times [\cos\vartheta d_x(\omega, \vartheta) + \sin\vartheta d_y(\omega, \vartheta)], \\
 y\Psi(x, y) &= \int_0^\pi d\vartheta \int_0^{+\infty} d\omega e^{ik(x\cos\vartheta+y\sin\vartheta)} \times [-\sin\vartheta d_x(\omega, \vartheta) + \cos\vartheta d_y(\omega, \vartheta)], \\
 \Psi(x, y) &= \frac{1}{2}(x\Psi(x, y)/x + y\Psi(x, y)/y).
 \end{aligned}
 \tag{14}$$

Chú ý rằng trong công thức (14), lưỡng cực dịch chuyển được trích xuất từ “thực nghiệm” bằng công thức (13), tức là trong hệ quy chiếu gắn với phòng thí nghiệm, đã được xoay về hệ quy chiếu gắn với phân tử. Từ đó, ta thu được hàm sóng của HOMO phân tử.

3. Kết quả và thảo luận

Trong phần này, trước tiên, chúng tôi trình bày kết quả mô phỏng sự định phương của phân tử N₂ trong trường laser yếu. Sau đó, chúng tôi trình bày kết quả tính toán phổ HHG “thực nghiệm” với các mức độ định phương khác nhau. Từ đó, tái tạo hình ảnh HOMO của phân tử. Cuối cùng, chúng tôi sẽ so sánh chất lượng hình ảnh chụp cắt lớp HOMO của phân tử khi sử dụng cách mô phỏng sự định phương phân tử khác nhau – sử dụng gần đúng bằng hàm giải tích, và hàm chính xác giải từ TDSE.

3.1. Kết quả mức độ định phương của phân tử N₂ sử dụng trường laser yếu



Hình 2. (a) Sự phụ thuộc của mức độ định phương theo thời gian trễ; (b) hàm phân bố định phương $\rho(\vartheta, t)$. Xung laser được sử dụng có bước sóng 800 nm, độ dài xung 60 fs, và cường độ $7 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, và $5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ để đạt mức độ định phương lần lượt là 0.73, 0.50, và 0.33. Nhiệt độ của khối khí là 20K

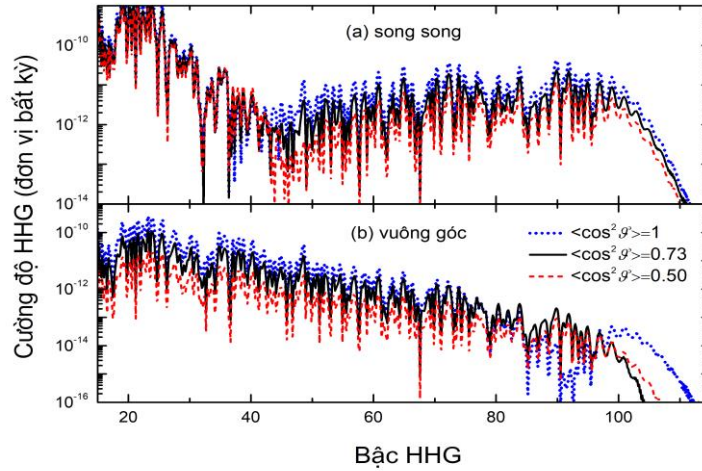
Đầu tiên, chúng tôi trình bày kết quả TDSE định phương cho khối khí phân tử N₂ ở nhiệt độ 20 K, sử dụng laser định phương có bước sóng 800 nm với chu kỳ của laser là 60 fs,

cường độ laser là 7×10^{13} W/cm². Hình 2(a) thể hiện sự phụ thuộc của mức độ định phương $\langle \cos^2 \mathcal{G}' \rangle$ vào thời gian trễ, tức thời gian sau khi tắt laser định phương. Kết quả cho thấy, mức đạt giá trị cực đại (≈ 0.73) vào khoảng thời điểm ≈ 3.9 ps sau khi tắt laser định phương. Bên cạnh đó, giá trị chất lượng định phương đạt cực đại tại thời điểm ≈ 12.3 ps. Ở các thời điểm cực đại này, phân tử ưu tiên sắp xếp theo phương phân cực của laser định phương. Tuy nhiên, vào thời điểm ≈ 8.1 ps, giá trị mức độ định phương đạt cực tiểu, tức là các phân tử định phương vuông góc với vector phân cực của laser định phương. Kết quả này phù hợp với công trình nghiên cứu trước đây (Lin et al., 2018). Để khảo sát các quá trình trường mạnh của phân tử, người ta thường chọn thời điểm các phân tử được định phương tốt nhất để chiếu laser mạnh vào. Trong bài báo này, để khảo sát hình ảnh chụp ảnh cắt lớp HOMO của phân tử N₂ chúng tôi lấy mức độ định phương cao nhất trong quá trình định phương.

Tại thời điểm thời gian trễ ≈ 3.9 ps, tức mức độ định phương đạt $\langle \cos^2 \mathcal{G}' \rangle = 0.73$, hàm phân bố định phương $\rho(\mathcal{G}', t)$ được biểu diễn trên Hình 2(b). Đồng thời, chúng tôi cũng biểu diễn hàm phân bố định phương cho các trường hợp mức độ định phương $\langle \cos^2 \mathcal{G}' \rangle = 0.50$, và $\langle \cos^2 \mathcal{G}' \rangle = 0.33$ ứng với laser định phương có cường độ 2×10^{13} W/cm², và 5×10^{12} W/cm². Kết quả cho thấy, các phân tử hầu như tập trung xung quanh góc $\mathcal{G}' = 0^\circ$ hoặc $\mathcal{G}' = 180^\circ$. Khi mức độ định phương giảm dần, mật độ phân bố ở các góc này giảm dần, và tăng sự phân bố ở các góc khác. Với $\langle \cos^2 \mathcal{G}' \rangle = 0.33$ hàm phân bố có dạng phân bố đều, tức ứng với khối khí phân tử phân bố đẳng hướng.

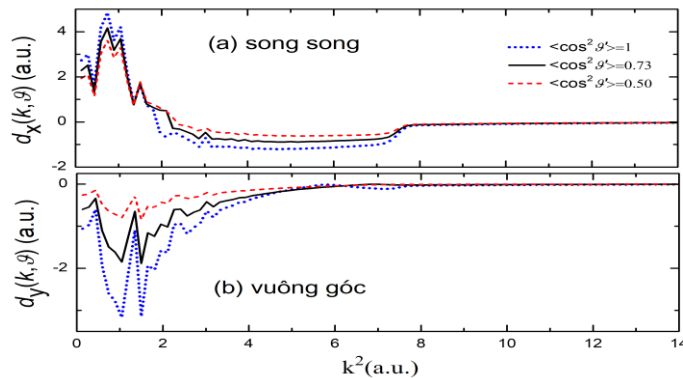
3.2. Chụp ảnh cắt lớp HOMO phân tử N₂ định phương không hoàn toàn

Sử dụng hàm phân bố định phương thu được ở mục trên, chúng tôi áp dụng công thức (10) để tính HHG trung bình của khối khí định phương không hoàn toàn. Kết quả được tính bằng mô hình Lewenstein với hàm sóng ban đầu của phân tử N₂ được tính từ phần mềm GAUSSIAN (Frisch, Plata, & Singleton, 2009). Laser mạnh có bước sóng 1200 nm, cường độ 2×10^{14} W/cm², độ dài xung 11 chu kỳ quang học. Chúng tôi sử dụng xung laser có hàm bao là hàm Gaussian. Kết quả được thể hiện trên Hình 3(a) cho HHG song song và Hình 3(b) cho HHG vuông góc trong hệ quy chiếu gắn với phòng thí nghiệm, phát ra từ khối khí N₂, khi góc $\theta = 30^\circ$, với mức độ định phương 1 (hoàn toàn), 0.73, và 0.50 (không hoàn toàn). Kết quả cho thấy, sự định phương không ảnh hưởng đến điểm dừng của phổ HHG, tại bậc 99, phù hợp bậc 97 theo định luật điểm dừng $I_p + 3.17U_p$, với U_p là thế trọng động. Tuy nhiên, mức độ định phương ảnh hưởng đến cường độ HHG và vị trí điểm cực tiểu trong phổ HHG. Cụ thể, khi mức độ định phương giảm, cường độ HHG giảm, điểm giao thoa cực tiểu dịch về phía bậc HHG cao. Nguyên nhân là do khi mức độ định phương giảm, đóng góp của HHG gây ra bởi các góc \mathcal{G}' lớn trở lên đáng kể, làm ảnh hưởng đến cường độ và cấu trúc phổ HHG.

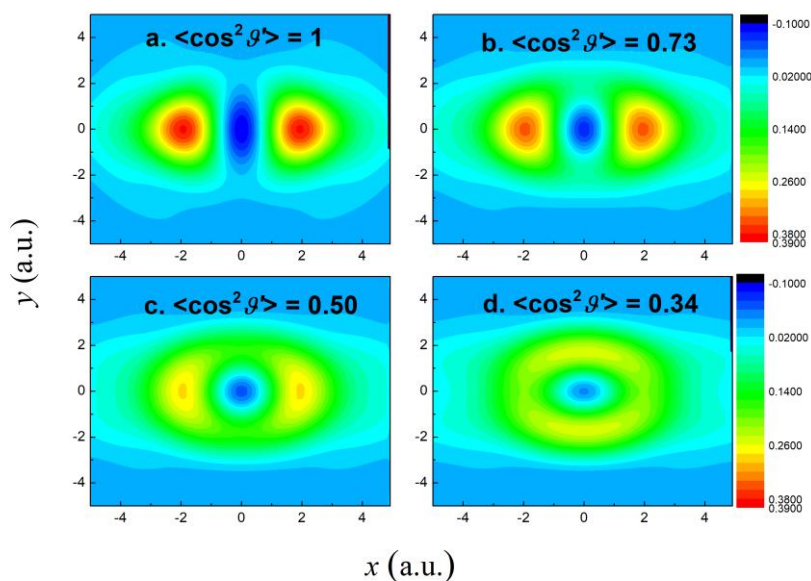


Hình 3. Cường độ HHG song song (a) và vuông góc (b) với các mức độ định phương khác nhau, khi $\theta = 30^\circ$. Xung laser với bước sóng 1200 nm, cường độ $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, độ dài xung 11 chu kỳ quang học được sử dụng

Từ phổ HHG, chúng tôi tách lưỡng cực dịch chuyển theo phương song song và vuông góc theo công thức (13). Hình 4 biểu diễn độ lớn của lưỡng cực dịch chuyển trong hệ tọa độ gắn với phòng thí nghiệm cho giá trị $k^2 = [0.13, 13.96]$, tức sử dụng các bậc HHG trong vùng miền phẳng từ bậc 17 đến điểm dừng – bậc 99. Kết quả cho thấy khi phân tử định phương hoàn toàn, $\langle \cos^2 \theta' \rangle = 1$, lưỡng cực dịch chuyển phụ thuộc mạnh vào k^2 . Tuy nhiên, khi giảm dần mức độ định phương, độ lớn của lưỡng cực dịch chuyển thay đổi, và tiến dần về 0. Sự giảm dần về 0 ngụ ý rằng, lưỡng cực dịch chuyển mất dần tính cấu trúc theo k^2 , tức theo năng lượng; tiên đoán sự mất dần cấu trúc trong không gian đảo của nó, tức không gian tọa độ. Như vậy, mức độ định phương phân tử ảnh hưởng đến lưỡng cực dịch chuyển, do đó, dự đoán sẽ ảnh hưởng đến hình ảnh chụp cắt lớp của HOMO của phân tử.



Hình 4. Lưỡng cực dịch chuyển của phân tử N_2 với mức độ định phương khác nhau. Góc định phương là $\theta = 30^\circ$. Laser có thông số như trên Hình 3 được sử dụng



Hình 5. HOMO của phân tử N_2 được tái tạo từ HHG định phương không hoàn toàn với mức độ định phương khác nhau

Với lưỡng cực dịch chuyển gắn với hệ quy chiếu phòng thí nghiệm thu được từ HHG “thực nghiệm”, chúng tôi dùng phép quay để chuyển chúng về hệ quy chiếu gắn với phân tử, sau đó dùng phép biến đổi Fourier ngược để thu được hàm sóng (xem phương trình (14)). Hình ảnh HOMO phân tử N_2 được tái tạo từ HHG với mức độ định phương khác nhau được trình bày trên Hình 5. Hình 5(a) thể hiện hình ảnh mô phỏng HOMO của khối khí phân tử N_2 được định phương hoàn toàn. Chúng tôi nhận thấy, HOMO của N_2 có cấu trúc ba thùy rõ rệt, phù hợp với kết quả các công trình công bố trước đây [Itatani et al., 2004; Le et al., 2007; Qin, & Zhu, 2017]. Hình 5(b)-5(d) thể hiện hình ảnh HOMO của phân tử N_2 khi mức độ định phương giảm dần. Ở Hình 5(a)-5(b), khi mức độ định phương cao, chúng tôi vẫn có thể nhìn thấy rõ các thùy của phân tử N_2 . Tuy nhiên, khi giảm mức độ định phương, sự tương phản giữa các thùy giảm càng rõ rệt. Ở Hình 5(c) và 5(d), với mức độ định phương thấp, chúng tôi không còn thấy rõ hai thùy của phân tử N_2 . Lúc này, hình ảnh HOMO của phân tử gần giống như orbital của nguyên tử, tức phân bố của đám mây electron không còn phụ thuộc vào góc cực. Điều này có thể giải thích là do khi khối khí được định phương kém, thì hiệu ứng trung bình làm mất đi tính cấu trúc của phổ HHG, và lưỡng cực dịch chuyển. Do đó, sử dụng HHG trung bình hóa bị mất tính cấu trúc, sẽ không còn phù hợp để chụp ảnh cắt lớp HOMO của phân tử. Chúng tôi kết luận rằng, với mức độ định phương đạt được trong phòng thí nghiệm hiện nay (~ 0.8), thì cấu trúc của HOMO của phân tử vẫn có thể được tái tạo từ phổ HHG với chất lượng tốt. Tuy nhiên, khi mức độ định phương thấp, không còn thu nhận được HOMO phân tử. Chúng tôi nhận thấy mức độ định phương giới hạn để hình ảnh thu được vẫn còn thấy rõ hai thùy của phân tử N_2 là 0.50.

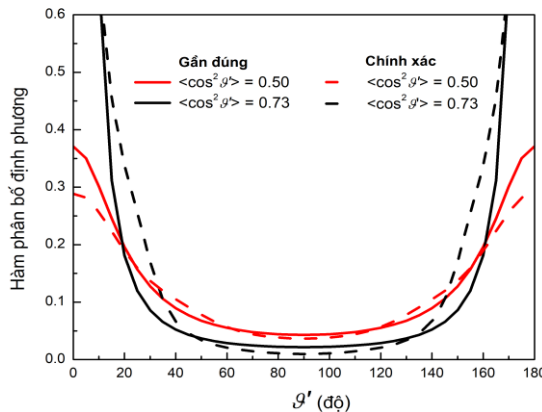
3.3. Sử dụng gần đúng bằng hàm giải tích mô tả hàm phân bố định phương

Ngoài việc sử dụng hàm phân bố định phương thu được bằng cách giải chính xác bằng số TDSE (xem mục 2.1), trong nhiều công trình như (Lein et al., 2005; Kraus et al., 2014; Yu et al., 2017), các tác giả sử dụng gần đúng bằng hàm giải tích để mô tả chúng. Sử dụng gần đúng bằng hàm giải tích cho phép tính toán nhanh, tiết kiệm thời gian và tài nguyên tính toán, và cho phép đưa ra các kết luận cả về mặt định tính và định lượng về ảnh hưởng của mức độ định phương lên các hiệu ứng vật lý trường mạnh (Lein et al., 2005). Trong tiểu mục này, chúng tôi kiểm tra xem, liệu rằng việc sử dụng gần đúng bằng hàm phân bố giải tích (Lein et al., 2005) có ảnh hưởng đến kết luận về ảnh hưởng của chất lượng định phương đến hình ảnh HOMO tái tạo từ HHG của khối khí phân tử N₂ định phương không hoàn toàn.

Hàm phân bố định phương được mô tả gần đúng bằng hàm giải tích như sau

$$\rho(\vartheta') = A \frac{\beta}{2\pi \ln \frac{\beta+1}{\beta-1}} \frac{1}{\beta^2 - \cos^2 \vartheta'}, \tag{15}$$

trong đó, tham số $\beta > 1$ để kiểm soát hàm phân bố và mức độ định phương (Lein et al., 2005). Khi $\beta = 1$, các phân tử được định phương hoàn toàn. A là hệ số chuẩn hóa.

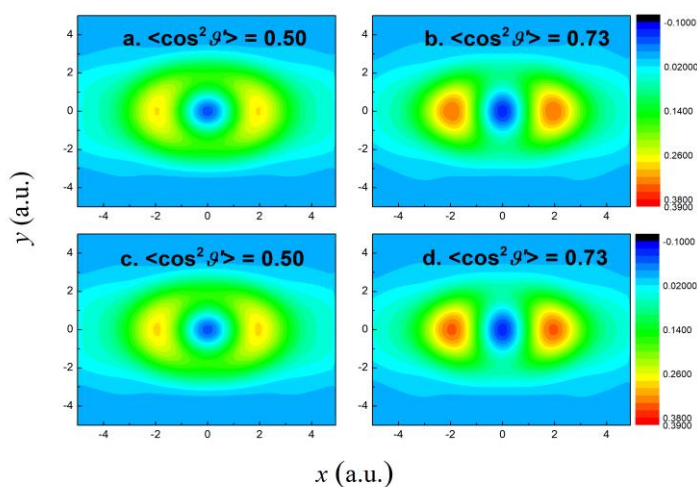


Hình 6. Phân bố định phương của hàm giải tích (nét đứt) và hàm chính xác từ TDSE (nét liền) cho hai mức độ định phương 0.73 và 0.50

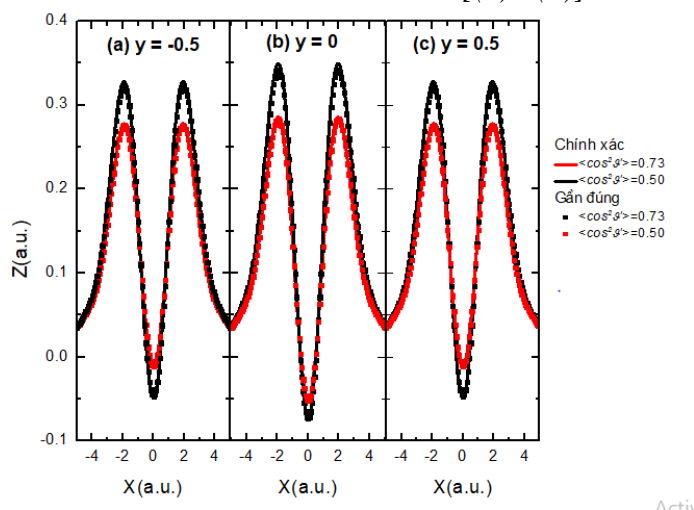
Để so sánh trực quan hàm phân bố định phương giải tích (15), và phân bố định phương giải chính xác từ TDSE (mục 2.1), trên Hình 6, chúng tôi biểu diễn chúng cho hai trường hợp mức độ định phương $\langle \cos^2 \vartheta' \rangle = 0.73$ và $\langle \cos^2 \vartheta' \rangle = 0.50$. Kết quả cho thấy, hai cách biểu diễn hàm phân bố (gần đúng và chính xác) dạng và độ lớn tương tự nhau. Sự tương tự này sẽ dẫn đến sự tương tự về HHG, và lưỡng cực dịch chuyển khi sử dụng hai cách biểu diễn khác nhau của hàm phân bố.

Cuối cùng, chúng tôi sử dụng HHG phát ra từ phân tử N₂ định phương không hoàn toàn, mà sự định phương được mô tả bằng hàm giải tích gần đúng, để tái tạo hình ảnh HOMO.

Kết quả được biểu diễn trên Hình 7, và so sánh với trường hợp hàm định phương được giải chính xác từ TDSE. Kết quả cho thấy, với cùng một mức độ định phương, về mặt định tính, chất lượng hình ảnh HOMO tái tạo được từ HHG với hai cách mô tả hàm định phương khác nhau, là tương đương nhau. Để phân tích định lượng, trên Hình 8, chúng tôi trình bày ảnh chụp lát cắt hàm sóng cho các trường hợp $y = -0.5$, $y = 0$, $y = 0.5$ khi so sánh hai cách mô tả định phương ở các mức độ định phương lần lượt là $\langle \cos^2 \vartheta \rangle = 0.50$, và $\langle \cos^2 \vartheta \rangle = 0.73$. Kết quả cho thấy, mặc dù sử dụng cách mô tả hàm phân bố định phương khác nhau, nhưng lát cắt của HOMO giống nhau. Như vậy, chúng tôi kết luận rằng mô tả định phương phân tử gần đúng bằng hàm giải tích, vẫn cho kết quả chính xác về mặt định tính và định lượng.



Hình 7. So sánh HOMO của phân tử N_2 với các mức độ định phương khác nhau. Sự định phương của phân tử được mô tả gần đúng bằng hàm giải tích [(a) – (b)], và hàm chính xác từ TDSE [(c) - (d)]



Hình 8. Lát cắt tại (a) $y = -0.5$, (b) $y = 0$, (c) $y = 0.5$

của HOMO phân tử N_2 với các mức độ định phương khác nhau. Sự định phương của phân tử được mô tả gần đúng bằng hàm giải tích [(a) – (b)], và hàm chính xác từ TDSE [(c) - (d)]

4. Kết luận

Trong bài báo này, chúng tôi đã khảo sát ảnh hưởng của sự định phương không hoàn toàn lên hình ảnh HOMO tái tạo được từ phổ HHG. Kết quả cho thấy, sự định phương ảnh hưởng rõ rệt đến chất lượng hình ảnh HOMO. Mức độ định phương giảm dần đến giảm sự tương phản, tức làm mất đi tính cấu trúc của hình ảnh HOMO. Khi mức độ định phương nhỏ hơn 0.5, hình ảnh HOMO của phân tử N₂ không thể hiện được cấu trúc của phân tử, mà gần có đối xứng cầu tương tự như nguyên tử. Cuối cùng, chúng tôi kết luận rằng sử dụng gần đúng bằng hàm giải tích để mô tả hàm định phương phân tử vẫn cho kết quả đáng tin cậy, và giảm được khối lượng tính toán so với giải chính xác từ TDSE.

- ❖ **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 đề tài cơ sở trọng điểm của Trường Đại học Sư phạm Thành phố Hồ Chí Minh, mã số CS2020.19.05TĐ.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- Aquilanti, V., Ascenzi, D., Cappelletti, D., & Pirani, F. (1994). Velocity dependence of collisional alignment of oxygen molecules in gaseous expansions. *Nature*, 371, 399-402.
- Baker, S., Robinson, J. S., Haworth, C. A., Teng, H., Smith, R. A., Chirilă, C. C.,... Marangos, J. P. (2006). Probing proton dynamics in molecules on an attosecond time scale. *Science*, 312(5772), 424-427.
- Chen, Y. J., Fu, L. B., & Liu, J. (2013). Asymmetric Molecular Imaging through Decoding Odd-Even High-Order Harmonics. *Physical Review Letters*, 111(7), 073902.
- Cho, V. A., & Bernstein, R. B. (1991). Tight focusing of beams of polar polyatomic molecules via the electrostatic hexapole lens. *Journal of Physical Chemistry*, 95(21), 8129-8136.
- De, S., Znakovskaya, I., Ray, D., Anis, F., Johnson, N. G., Bocharova, I. A.,... & Kling, M. F. (2009). Field-Free Orientation of CO Molecules by Femtosecond Two-Color Laser Fields. *Physical Review Letters*, 103(15), 153002.
- Friedrich, B., & Herschbach, D. R. (1991). On the possibility of orienting rotationally cooled polar molecules in an electric field. *Zeitschrift Für Physik D Atoms, Molecules and Clusters*, 18(2), 153-161.
- Frisch, Æ., Plata, R. E., & Singleton, D. A. (2009). Gaussian 09W Reference. *J. Am. Chem. Soc.*, 137, 3811-3826.
- Haessler, S., Caillat, J., Boutu, W., Ruchon, T., Diveki, Z., Breger, P., ... & Ruchon, T. (2015). Attosecond imaging of molecular electronic wave-packets. *Nature Physics*, 200-206.
- Itatani, J., Levesque, J., Zeidler, D., Niikura, H., Pépin, H., Kieffer, J. C.,... & Villeneuve, D. M. (2004). Tomographic imaging of molecular orbitals. *Nature*, 432(7019), 867-871.
- Jin, C., Bertrand, J. B., Lucchese, R. R., Wörner, H. J., Corkum, P. B., Villeneuve, D. M.,... & Lin, C. D. (2012). Intensity dependence of multiple orbital contributions and shape resonance in high-order harmonic generation of aligned N₂ molecules. *Physical Review A*, 85(1), 013405.

- Kak, A. C., & Slaney, M. (2001). Principles of Computerized Tomographic Imaging. *Society for Industrial and Applied Mathematics*, New York.
- Kraus, P. M., Baykusheva, D., & Wörner, H. J. (2014). Two-pulse field-free orientation reveals anisotropy of molecular shape resonance. *Physical Review Letters*, *113*(2), 023001.
- Le, V.-H., Le, A.-T., Xie, R.-H., & Lin, C. D. (2007). Theoretical analysis of dynamic chemical imaging with lasers using high-order harmonic generation. *Physical Review A*, *76*(1), 013414.
- Lein, M., De Nalda, R., Heesel, E., Hay, N., Springate, E., Velotta, R.,... & Marangos, J. P. (2005). Signatures of molecular structure in the strong-field response of aligned molecules. *Journal of Modern Optics*, *52*(2-3), 465-478.
- Lewenstein, M., Balcou, P., Ivanov, M. Y., & Huillier, A. L. (1994). Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Physical Review A*, *49*(3), 2117-2132.
- Lin, C. D., Le, A. T., Jin, C., & Wei, H. (2018). Attosecond and Strong-Field Physics: Principles and Applications. In *Cambridge University Press*.
- Maiman, T. H. (1960). Stimulated Optical Radiation in Ruby. *Nature*, *187*(4736), 493-494.
- Pullman, D. P., Friedrich, B., & Herschbach, D. R. (1990). Facile alignment of molecular rotation in supersonic beams. *The Journal of Chemical Physics*, *93*(5), 3224-3236.
- Qin, M., & Zhu, X. (2017). Molecular orbital imaging for partially aligned molecules. *Optics and Laser Technology*, *87*, 79-86.
- Qin, M., Zhu, X., Zhang, Q., & Lu, P. (2012). Tomographic imaging of asymmetric molecular orbitals with a two-color multicycle laser field. *Optics Letters*, *37*(24), 5208.
- Seideman, T. (1995a). On the selection of magnetic states in angle-resolved photodissociation. *The Journal of Chemical Physics*, *102*(16), 6487-6498.
- Seideman, T. (1995b). On the selection of magnetic states in angle-resolved photodissociation. *The Journal of Chemical Physics*, *102*(16), 6487-6498.
- Stapelfeldt, H., & Seideman, T. (2003). Colloquium: Aligning molecules with strong laser pulses. *Reviews of Modern Physics*, *75*, 543-557.
- Xie, X., Yu, S., Li, W., Wang, S., & Chen, Y. (2018). Routes of odd-even harmonic emission from oriented polar molecules. *Optics Express*, *26*(14), 18578.
- Yu, S. J., Li, W. Y., Li, Y. P., & Chen, Y. J. (2017). Probing degrees of orientation of top molecules with odd-even high-order harmonics. *Physical Review A*, *96*(1), 013432.
- Yuan, H., He, L., Wang, F., Wang, B., Zhu, X., Lan, P., & Lu, P. (2018). Tomography of asymmetric molecular orbitals with a one-color inhomogeneous field. *Optics Letters*, *43*(4), 931.
- Zhai, C., He, L., Lan, P., Zhu, X., Li, Y., Wang, F.,... & Lu, P. (2016). Coulomb-corrected molecular orbital tomography of nitrogen. *Scientific Reports*, *6*, 23236.
- Zhai, C., Zhang, X., Zhu, X., He, L., Zhang, Y., Wang, B.,... & Lu, P. (2018). Single-shot molecular orbital tomography with orthogonal two-color fields. *Optics Express*, *26*(3), 314573.
- Zhang, B., Yu, S., Chen, Y., Jiang, X., & Sun, X. (2015). Time-resolved dynamics of odd and even harmonic emission from oriented asymmetric molecules. *Physical Review A*, *92*(5), 053833.
- Zhou, X., Tong, X. M., Zhao, Z. X., & Lin, C. D. (2005). Alignment dependence of high-order harmonic generation from N₂ and O₂ molecules in intense laser fields. *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics*, *72*(3), 033412.

**TOMOGRAPHY OF PARTIALLY ALIGNED N₂ MOLECULES
FROM HIGH-ORDER HARMONIC GENERATION**

**Tran Cong Minh¹, Truong Quan Hao¹, Tran Phuc Khang¹,
Le Thi Cam Tu², Phan Thi Ngoc Loan^{1*}**

¹Ho Chi Minh City University of Education, Vietnam

²Ton Duc Thang University, Vietnam

*Corresponding author: Phan Thi Ngoc Loan – Email: loanptn@hcmue.edu.vn

Received: January 18, 2021; Revised: April 22, 2021; Accepted: June 08, 2021

ABSTRACT

Using the molecular tomography method, we reconstruct the highest-occupied molecular orbital (HOMO) from the high-order harmonic generation (HHG) emitted from N₂ molecules when considering the alignment effect. We utilize two different approaches to describe the alignment distribution – (i) exactly by numerically solving the time-dependent Schrödinger equation and (ii) by an approximately analytical function. The results show that when lowering the degree of alignment, the accuracy of the reconstructed molecular HOMO decreases. When the alignment degree is less than 0.5, the HOMO cannot be reconstructed exactly. Also, the two different approaches of the alignment distribution offer the same results.

Keywords: high-order harmonic generation; N₂ molecules; partially alignment; tomography