

Bài báo nghiên cứu

BIỂU HIỆN CỦA HIỆU ỨNG PHÂN CỰC ĐỘNG LỖI-ELECTRON
TRONG PHỔ SÓNG ĐIỀU HÒA BẬC CAO CỦA PHÂN TỬ COĐàm Mỹ Hoa¹, Nguyễn Huỳnh Kim Ngân^{2,3,4*},Triệu Doan An¹, Đỗ Công Cương⁵, Phan Thị Ngọc Loan¹¹Trường Đại học Sư phạm Thành phố Hồ Chí Minh, Việt Nam²Viện Nghiên cứu Khoa học Cơ bản và Ứng dụng, Trường Đại học Duy Tân, Thành phố Hồ Chí Minh, Việt Nam³Khoa Khoa học Tự nhiên, Trường Đại học Duy Tân, Đà Nẵng, Việt Nam⁴Trung tâm Đào tạo Hạt nhân, VINATOM, Hà Nội, Việt Nam⁵Viện Khoa học và Kỹ thuật Hạt nhân, VINATOM, Hà Nội, Việt Nam*Tác giả liên hệ: Nguyễn Huỳnh Kim Ngân - Email: nguyenhkimngan2@duytan.edu.vn

Ngày nhận bài: 01-4-2024; ngày nhận bài sửa: 09-5-2024; ngày duyệt đăng: 21-7-2024

TÓM TẮT

Gần đây, chúng tôi đã chỉ ra rằng chỉ khi xét đến hiệu ứng phân cực động lõi electron (DCeP) kết quả mô phỏng quá trình phát xạ sóng điều hòa bậc cao (HHG) chẵn-lẻ cho phân tử CO mới phù hợp với các công trình thực nghiệm. Tuy nhiên, chúng tôi mới chỉ nghiên cứu cho trường hợp khi laser chiếu song song với phân tử, tức góc định hướng bằng 0° . Trong bài báo này, chúng tôi mở rộng nghiên cứu vai trò của DCeP lên phổ HHG chẵn-lẻ trong trường hợp góc định hướng khác 0° . Bên cạnh đó, để có được bức tranh toàn diện, chúng tôi cũng nghiên cứu ảnh hưởng của DCeP lên các xung atto giây, tức HHG trong miền thời gian. Để tính phổ HHG, chúng tôi giải số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian trong gần đúng một electron hoạt động kết hợp với thế năng DCeP. Các kết quả cho thấy vai trò quan trọng của hiệu ứng DCeP lên tỉ số HHG chẵn-lẻ (là tỉ lệ giữa cường độ điều hòa của bậc chẵn và trung bình của hai bậc lẻ liền kề) theo các góc định hướng khác nhau. Chúng tôi đã trình bày chi tiết cho góc định hướng 70° . Khi đó, trong miền tần số, DCeP làm tăng tỉ số HHG chẵn-lẻ so với trường hợp bỏ qua DCeP. Trong miền thời gian, DCeP làm thay đổi đáng kể tỉ số cường độ giữa hai xung atto giây.

Từ khóa: định hướng; phân cực động lõi-electron; tỉ lệ chẵn-lẻ; sóng điều hòa bậc cao

1. Mở đầu

Sự phát xạ sóng điều hòa bậc cao (High-order Harmonic Generation – HHG) là một trong những hiệu ứng quang phi tuyến xảy ra khi vật chất tương tác với laser cường độ cao xung cực ngắn. Sự phát xạ HHG có thể được mô tả theo mô hình ba bước bán cổ điển như sau: (i) điện trường bẻ cong rào thế nguyên tử/phân tử, làm cho electron bị ion hóa và xuyên hầm ra ngoài; (ii) sau đó, electron được gia tốc trong điện trường của laser; (iii) khi

Cite this article as: Dam My Hoa, Nguyen Huynh Kim Ngan, Trieu Doan An, Do Cong Cuong, & Phan Thi Ngoc Loan (2024). Manifestation of dynamic core-electron polarization in high-order harmonic generation spectra. *Ho Chi Minh City University of Education Journal of Science*, 21(8), 1518-1530.

điện trường laser đổi chiều, electron tái kết hợp với ion mẹ và phát ra bức xạ có tần số bằng số nguyên lần tần số laser chiếu tới (Ivanov & Corkum, 1993; Lewenstein et al., 1994). Số nguyên này được gọi là bậc của HHG.

Phổ HHG phản ánh đặc điểm của nguyên tử/phân tử mẹ, do đó chúng được sử dụng để nghiên cứu các thông tin cấu trúc và động học của electron và hạt nhân (Baker et al., 2006; Zhang et al., 2015), tái tạo hình ảnh orbital phân tử (Chen et al., 2013; Itatani et al., 2004; Vozzi et al., 2011). Một trong các thuộc tính được quan tâm trong quá trình sử dụng công cụ HHG để thăm dò chính là tính bất đối xứng của hệ nguyên tử/phân tử và laser. Đối với hệ đối xứng, gồm nguyên tử hoặc phân tử đối xứng tương tác với xung laser nhiều chu kỳ, phổ HHG chỉ chứa toàn các đỉnh ứng với HHG bậc lẻ (McFarland et al., 2008). Đối với hệ bất đối xứng như phân tử phân cực (CO, OCS...) trong trường laser đối xứng (Frumker et al., 2012a, 2012b; Kraus et al., 2012, 2014) hoặc phân tử đối xứng trong trường laser bất đối xứng (Niikura et al., 2010; Trieu et al., 2023; Yun et al., 2015), phổ HHG xuất hiện thêm các đỉnh chẵn, đặc trưng cho tính bất đối xứng của hệ.

Để tính phổ HHG phát ra từ nguyên/phân tử, một trong số các phương pháp thường được sử dụng là giải số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian (Time-Dependent Schrödinger Equation – TDSE). Khi áp dụng cho hệ có chứa nguyên tử nhiều electron hoặc phân tử, việc tính toán trở nên cồng kềnh và tốn kém do thế năng cần xây dựng rất phức tạp. Từ đó, mô hình gần đúng một electron hoạt động (SAE – Single Active Electron) đã được sử dụng để đơn giản hóa quy trình tính toán (Abu-Samha & Madsen, 2010). Theo mô hình này, chỉ một electron ở lớp ngoài cùng bị ion hóa và chuyển động trong điện trường ngoài, các electron còn lại bị đóng băng cùng với hạt nhân. Tuy nhiên, đối với những nguyên tử và phân tử có độ phân cực lớn, ví dụ như CO, sử dụng mô hình SAE cho thấy những sai lệch đáng kể so với các kết quả thực nghiệm, đặt ra câu hỏi về vai trò của hiệu ứng nhiều electron lên phổ HHG phát ra từ phân tử (Gordon et al., 2006; Zhang et al., 2013).

Đã có nhiều nghiên cứu lí thuyết chứng minh rằng hiệu ứng nhiều electron có thể được thể hiện thông qua hiệu ứng phân cực động lõi-electron (Dynamic Core-electron Polarization – DCeP), tức trường laser làm phân cực các electron lõi. DCeP đóng vai trò quan trọng trong tính toán các hiệu ứng quang phi tuyến. Cụ thể, việc bổ sung hiệu ứng DCeP trong quá trình tính toán đã làm cho xác suất ion hóa trên lí thuyết trở nên phù hợp với thực nghiệm (Le et al., 2018; Zhang et al., 2013). Với quá trình phát xạ sóng điều hòa bậc cao, chúng tôi (Nguyen et al., 2022) đã chỉ ra rằng cần phải tính thêm hiệu ứng DCeP để phổ HHG cho phân tử CO tính được từ mô hình SAE trở nên phù hợp với thực nghiệm. Cụ thể, chúng tôi đã tiến hành so sánh tỉ số HHG chẵn-lẻ (được tính bằng tỉ số của cường độ bậc sóng HHG bậc chẵn và bậc lẻ kề bên) khi có tính đến và bỏ qua hiệu ứng DCeP. Kết quả cho thấy tỉ số HHG chẵn-lẻ khi tính đến DCeP phù hợp với thực nghiệm cả về đáng điệu và độ lớn. Tuy nhiên, kết quả mô phỏng này chỉ được thực hiện cho trường hợp trục phân tử cùng phương với vector phân cực của trường laser, nghĩa là góc định hướng θ

= 0° (Nguyen et al., 2022). Tỷ số HHG chẵn-lẻ theo các góc định hướng khác nhau đã được nghiên cứu cho phân tử CO trong công trình của nhóm tác giả (Phan et al., 2019), tuy nhiên, chỉ tại hai bậc HHG đại diện ở giữa và cuối miền phẳng. Từ đó, chúng tôi đặt mục tiêu khảo sát ảnh hưởng của DCeP đến tỷ số HHG chẵn-lẻ trên toàn phổ HHG của phân tử CO khi góc định hướng khác 0°.

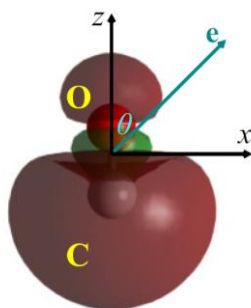
Về mặt cơ chế phát xạ, phổ HHG là kết quả của quá trình giao thoa giữa các xung cỡ atto (10^{-18}) giây theo thời gian. Thông tin các xung atto giây cho phép thăm dò các chuyển động của electron trong khoảng thời gian nhỏ hơn một chu kỳ [cỡ femto (10^{-15}) giây]. Trong thực nghiệm, phổ HHG là đại lượng được đo trong miền tần số, còn các xung cỡ atto giây là đại lượng trong miền thời gian, thu được thông qua phép biến đổi thời gian - tần số. Các xung atto giây này là nguồn gốc của quá trình phát xạ phổ HHG và sự bất đối xứng của chúng chính là nguyên nhân trực tiếp gây ra tính chẵn lẻ của phổ HHG. Tuy nhiên, các phân tích sự bất đối xứng của xung atto giây mới được nghiên cứu cho góc 0° (Nguyen et al., 2022; Nguyen et al., 2022). Do đó, để hiểu rõ đặc điểm chẵn lẻ của phổ HHG, chúng tôi tiến hành nghiên cứu ảnh hưởng của hiệu ứng DCeP lên các xung atto giây với các góc khác 0°.

Mục tiêu của bài báo này là nghiên cứu ảnh hưởng của DCeP lên các đại lượng cả trong miền tần số và miền thời gian, từ đó cho ta bức tranh toàn diện về vai trò của DCeP trong quá trình phát xạ HHG. Ở đây, chúng tôi xét trường hợp góc định hướng khác 0°. Để tính phổ HHG, chúng tôi sử dụng phương pháp giải số phương trình Schrödinger với mô hình thế năng SAE kết hợp với thế DCeP. Các mô tả về mô hình tính toán và phương pháp được chúng tôi nêu ra trong phần 2 của bài báo. Trong phần 3, chúng tôi trình bày các kết quả và thảo luận. Cuối cùng, chúng tôi đưa ra các kết luận trong phần 4.

2. Mô hình và phương pháp tính toán lý thuyết

2.1. Mô hình laser-phân tử CO

Phân tử CO được định phương trên trục z, xung laser có vector phân cực nằm trong mặt phẳng xz theo hướng của vector đơn vị **e**. Góc θ giữa trục z và vector **e** được gọi là góc định hướng.



Hình 1. Mô hình phân tử CO. Laser được đặt trong mặt phẳng xz sao cho điện trường dọc theo vector đơn vị **e**, tạo với trục phân tử góc định hướng θ

Điện trường của xung laser có dạng: $\mathbf{E}(t) = \mathbf{e}E_0f(t) \sin(\omega_0t + \varphi)$. Trong đó, $E_0, f(t), \omega_0$ lần lượt là biên độ của điện trường laser, hàm bao, và tần số của laser.

2.2. Phương pháp giải phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian và tính HHG

Phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian được viết trong hệ đơn vị nguyên tử ($\hbar = e = m_e = 1$) như sau:

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

với Hamiltonian của phân tử khi sử dụng gần đúng SAE, trong trường laser phân cực thẳng có dạng:

$$\hat{H} = \hat{H}_0(\mathbf{r}) + V(\mathbf{r}, t) = -\frac{1}{2} \nabla^2 + V_{\text{SAE}}(\mathbf{r}) + V_L(\mathbf{r}, t) + V_P(\mathbf{r}, t). \quad (2)$$

Trong đó, $V_{\text{SAE}}(\mathbf{r})$ là thế năng SAE của phân tử, được xây dựng theo công trình của các tác giả Abu-Samha & Madsen (2010), $V_L(\mathbf{r}, t) = \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t)$ là thế năng tương tác giữa electron hoạt động và điện trường laser, $V_P(\mathbf{r}, t)$ là thế năng tương tác giữa electron hoạt động với các lõi-electron phân cực động. Thế DCeP được biểu diễn như sau

$$V_P(\mathbf{r}, t) = -\frac{\mathbf{E}(t) \hat{\alpha}_c \mathbf{r}}{r^3}, \quad (3)$$

với $\hat{\alpha}_c$ là tổng tensor phân cực lõi-electron với giá trị như trong công trình của nhóm tác giả (Hoang et al., 2017).

Để giải phương trình (1), chúng tôi khai triển hàm sóng phụ thuộc thời gian $\psi(\mathbf{r}, t)$ theo hệ hàm cơ sở là nghiệm riêng của phương trình Schrödinger dừng. Trong khai triển này, các hệ số phụ thuộc thời gian được giải bằng phương pháp tách toán tử. Sau khi tìm được hàm sóng phụ thuộc thời gian $\psi(\mathbf{r}, t)$, chúng tôi tính gia tốc lưỡng cực theo thời gian như sau

$$a(t) = \frac{d^2}{dt^2} \langle \psi(\mathbf{r}, t) | \mathbf{r} | \psi(\mathbf{r}, t) \rangle, \quad (4)$$

và thu cường độ của phổ HHG theo biểu thức

$$S(\Omega) = \left| \int dt e^{i\omega t} a(t) \right|^2. \quad (5)$$

Để khảo sát các đặc điểm về biên độ và pha của các xung atto giây phát HHG theo thời gian phát xạ, chúng tôi sử dụng phép biến đổi thời gian-tần số, cụ thể là phép biến đổi Gabor có dạng

$$A(\Omega, t) = \int dt' a(t') \frac{\exp[-(t' - t)^2/2\sigma^2]}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp(i\Omega t'), \quad (6)$$

với Ω là tần số của photon phát xạ và $\sigma = 1/(3\omega_0)$ nhằm đảm bảo độ phân giải của cả thời gian và tần số. Biểu diễn của $A(\Omega, t)$ được gọi là trắc đồ thời gian-tần số.

Trong bài báo này, chúng tôi tính toán trong hệ tọa độ cầu với lưới tính toán có kích thước 100 a.u. theo phương bán kính, gồm 380 điểm chia với 180 hàm B-spline. Trên phương góc, chúng tôi sử dụng 50 hàm cầu với 101 điểm chia. Để ngăn sự phản xạ tại biên

tính toán, chúng tôi sử dụng thế hấp thụ có dạng $\cos^{1/8}$ xuất phát từ điểm xa nhất của quỹ đạo gần của electron, nghĩa là tại $1.2E_0/\omega_0^2$ (Yu et al., 2014).

3. Kết quả và thảo luận

Để xem xét ảnh hưởng của hiệu ứng DCeP lên phổ HHG, chúng tôi so sánh một đại lượng đặc trưng cho phổ HHG - tỉ số HHG chẵn-lẻ - khi tính đến và bỏ qua hiệu ứng này (Nguyen et al., 2022; Phan et al., 2019). Tỉ số HHG chẵn-lẻ được tính bằng cường độ bậc chẵn chia cho trung bình cường độ hai bậc lẻ liền kề, tức là

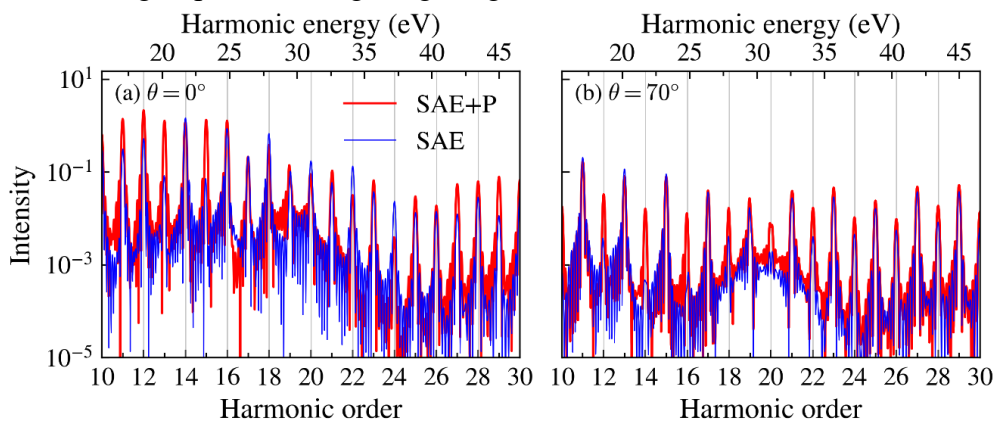
$$\eta(2n) = \frac{2S(2n)}{S(2n+1) + S(2n-1)}, \quad (7)$$

với n là số tự nhiên. Trong bài báo này, chúng tôi nghiên cứu ảnh hưởng của DCeP lên tỉ số HHG chẵn-lẻ trong trường hợp góc định hướng khác 0° , các kết quả này được trình bày trong mục 3.1. Tiếp theo, chúng tôi tính đến các đại lượng trong miền thời gian trong trường hợp có và không có DCeP trong mục 3.2. Các kết quả này cho chúng tôi biết được ảnh hưởng của DCeP lên phổ HHG, cả trong miền tần số và miền thời gian. Sau đó, mối liên hệ giữa các đại lượng bất đối xứng trong miền thời gian và tần số được thể hiện trong mục 3.3.

Để tính phổ HHG, chúng tôi sử dụng laser có cường độ là 1.5×10^{14} W/cm², bước sóng 800 nm, độ dài xung gồm 10 chu kỳ quang học với hàm bao hình thang, trong đó có một chu kỳ tăng tuyến tính và một chu kỳ giảm tuyến tính.

3.1. Tỉ số HHG chẵn-lẻ khi thay đổi góc định hướng

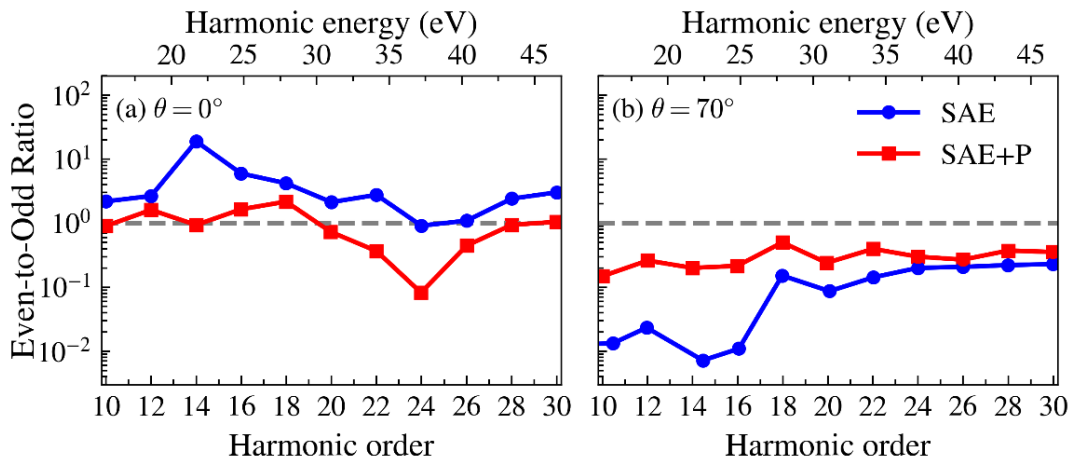
Trong công trình của (Nguyen et al., 2022), các tác giả chỉ ra vai trò quan trọng của hiệu ứng DCeP trong trường hợp góc định hướng 0° . Với mục tiêu khảo sát ảnh hưởng của hiệu ứng DCeP theo góc, chúng tôi đã tiến hành tính toán phổ HHG khi tính đến và bỏ qua DCeP theo các góc định hướng khác nhau. Qua quá trình phân tích, chúng tôi nhận thấy ảnh hưởng của DCeP có sự khác biệt với các góc định hướng. Trong Hình 2, chúng tôi biểu diễn phổ HHG trong trường hợp góc định hướng 70° như một trường hợp đại diện và so sánh với trường hợp định hướng song song (0°).



Hình 2. Phổ HHG trong trường hợp góc định hướng bằng 0° (a) và bằng 70° (b), trong các trường hợp không tính đến DCeP (kí hiệu là SAE, biểu diễn bằng đường màu xanh) và có tính đến DCeP (kí hiệu SAE+P, biểu diễn bằng đường màu đỏ). Chúng tôi sử dụng xung laser dài 10 chu kỳ, cường độ 1.5×10^{14} W/cm² và bước sóng 800 nm

Quan sát phổ HHG ở trường hợp định hướng 0° (Hình 2(a)), dễ dàng nhận thấy cường độ của các bậc lẻ khi tính đến DCEP có giá trị lớn hơn hẳn so với khi bỏ qua hiệu ứng này. Mặt khác, ảnh hưởng của DCEP lên các bậc chẵn là không đáng kể. Tuy nhiên, kết quả tính cho góc định hướng 70° lại cho thấy hiệu ứng ngược lại. Ở Hình 2(b), cường độ các bậc chẵn lại có xu hướng tăng lên đáng kể khi có sự đóng góp của DCEP, nhất là ở vùng đầu và giữa miền phẳng. Trong khi đó, cường độ bậc lẻ hầu như không đổi khi tính thêm hiệu ứng DCEP.

Nhằm làm rõ các kết luận trên, chúng tôi định lượng hóa phổ HHG thông qua việc tính toán đại lượng tỉ số HHG chẵn-lẻ. Khi thay đổi góc định hướng từ 0° lên 70° , tỉ số HHG chẵn-lẻ giảm do tính bất đối xứng theo hướng chiếu laser cũng giảm (Phan et al., 2019). Trên Hình 3, chúng tôi biểu diễn các kết quả trong trường hợp góc định hướng 0° (a) và 70° (b).



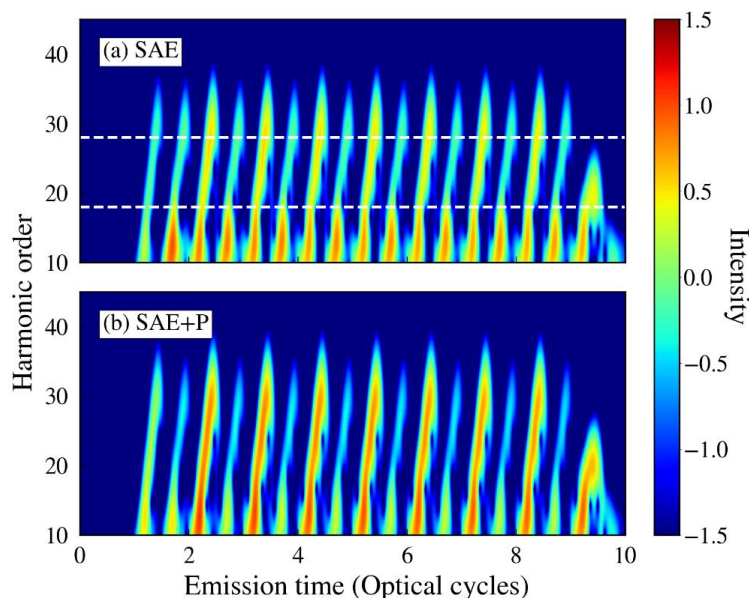
Hình 3. Tỉ số HHG chẵn-lẻ khi góc định hướng bằng 0° (a) và bằng 70° (b), trong các trường hợp không tính đến DCEP và có tính đến DCEP

Hình 3(a) cho thấy khi phân tử được định hướng song song (0°), tỉ số HHG trên toàn phổ dao động quanh giá trị 1 khi tính thêm hiệu ứng DCEP. Việc không tính đến hiệu ứng này làm tỉ số HHG chẵn-lẻ tăng khoảng 1 bậc, dẫn đến sự sai lệch so với kết quả thực nghiệm. Với trường hợp định hướng 70° như biểu diễn trên Hình 3(b), tỉ số HHG chẵn-lẻ giảm trên toàn phổ so với trường hợp định hướng song song. So sánh giữa trường hợp có DCEP và không có DCEP, ta nhận thấy ở vùng tần số thấp (bé hơn bậc 18), tỉ số HHG chẵn-lẻ khi không có DCEP thấp hơn khoảng 2 bậc so với trường hợp tính đến DCEP. Ở vùng tần số lớn hơn (từ bậc 18 trở lên), tỉ số HHG chẵn-lẻ khi có DCEP vẫn có độ lớn cao hơn so với khi không có DCEP, dù hai đường biểu diễn có độ lớn gần bằng nhau.

Từ đó, chúng tôi kết luận rằng ảnh hưởng của hiệu ứng DCEP lên tỉ số HHG chẵn-lẻ hay phổ HHG thay đổi phụ thuộc vào góc định hướng giữa trục phân tử và vector phân cực của trường laser. Đặc biệt, nếu như ở góc 0° , DCEP làm cho tỉ số HHG chẵn-lẻ nhỏ hơn so với khi không có DCEP, thì ở góc 70° , tỉ số HHG chẵn-lẻ khi có DCEP lại cao hơn nhiều so với khi không có DCEP. Hơn nữa, DCEP có xu hướng làm cho tỉ số HHG chẵn-lẻ gần 1

hơn. Để hiểu rõ được nguyên nhân này, tiếp theo, chúng tôi nghiên cứu các đại lượng trong miền thời gian trong cả hai trường hợp có và không có DCEP. Từ đó, chúng tôi rút ra được ảnh hưởng của sự thay đổi HHG chẵn-lẻ này lên các đại lượng vi mô trong quá trình phát xạ.

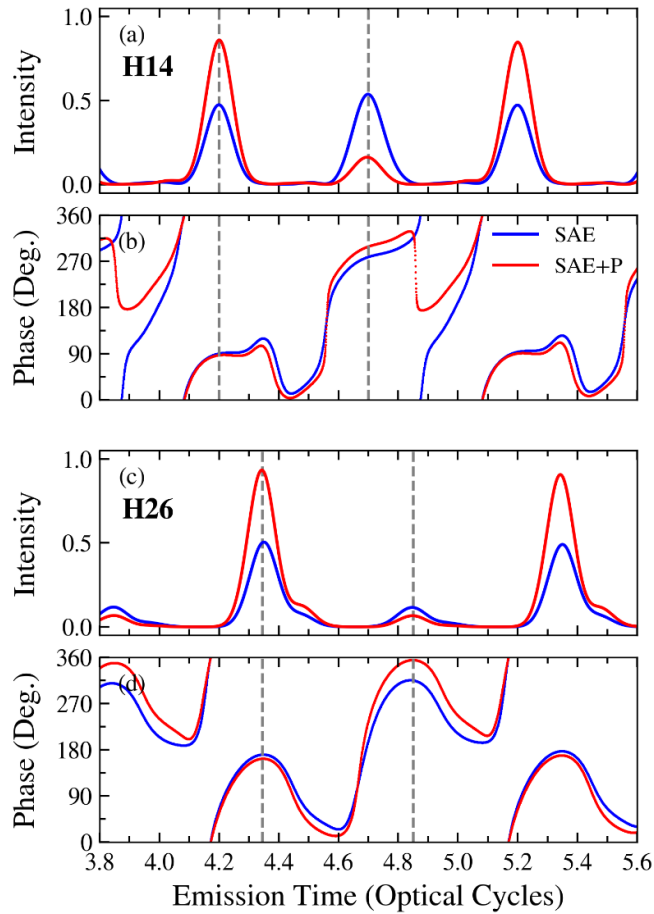
3.2. Ảnh hưởng của DCEP lên trắc đồ thời gian-tần số



Hình 4. Cường độ trắc đồ thời gian – tần số của phổ HHG khi (a) bỏ qua và (b) tính đến hiệu ứng DCEP khi phân tử CO được định hướng ở góc 70°.

Thang màu cho biết cường độ của các xung phát HHG.

Chúng tôi biểu diễn cường độ trắc đồ thời gian – tần số của toàn phổ, được tính bằng phép biến đổi Gabor (Biểu thức (6)), khi có và không có DCEP trên Hình 4 cho trường hợp góc định hướng 70°. Các xung cỡ atto giây phát ra theo thời gian, cách nhau một nửa chu kỳ quang học, giao thoa với nhau, từ đó hình thành nên phổ HHG đo được trong miền tần số. Hình 4(a) cho trường hợp không tính đến DCEP cho thấy, các xung phát HHG liên tiếp có cường độ như nhau ở vùng tần số thấp. Sự giao thoa của các xung có tính bất đối xứng thấp hình thành nên phổ HHG chủ yếu chứa các bậc lẻ, dẫn đến tỉ số HHG chẵn-lẻ có giá trị bé như trong Hình 3(b). Ở vùng tần số cao, các xung liên tiếp trở nên bất đối xứng, làm cho cường độ các bậc chẵn của phổ HHG cao, dẫn đến tỉ số HHG chẵn-lẻ tăng lên. Ngược lại, Hình 4(b) khi tính đến DCEP cho thấy một xu hướng khác trong cường độ trắc đồ thời gian – tần số, tại đây các xung phát HHG liên tiếp luôn có sự bất đối xứng rõ rệt, dẫn đến cường độ bậc chẵn cũng như tỉ số HHG chẵn-lẻ tăng lên ở toàn phổ như trên Hình 3(b). Qua phân tích trên, ta nhận thấy vai trò của hiệu ứng DCEP là làm tăng sự bất đối xứng giữa các xung phát HHG cho tất cả các bậc, dẫn đến cường độ bậc HHG chẵn tăng lên so với khi không có DCEP.



Hình 5. Cường độ trắc đồ thời gian và pha theo thời gian của xung phát HHG tại bậc 14 (a, b) và bậc 26 (c, d)

khi có tính đến và bỏ qua hiệu ứng DCeP. Phân tử CO được định hướng ở góc 70° . Các đường đứt nét màu xám tương ứng với thời điểm phát xạ của xung phát HHG.

Để minh chứng rõ ràng hơn, trên Hình 5, chúng tôi biểu diễn cường độ và pha của trắc đồ thời gian cho bậc 14 và bậc 26, đại diện cho bậc HHG ở vùng tần số thấp và cao. Khi các xung giao thoa với nhau, pha của các xung tại thời điểm phát xung đóng vai trò quan trọng. Chúng tôi đã thể hiện pha của các xung này tại thời điểm phát xung bằng các đường nét đứt màu xám như trên Hình 5(b) và 5(d). Chúng cho thấy, với cả hai bậc 14 và 26, pha của các xung phát HHG khi tính đến và bỏ qua DCeP không có sự chênh lệch nhiều. Mặt khác, độ lệch pha giữa hai xung phát HHG liên tiếp luôn xấp xỉ bằng 180° , cả trong trường hợp bậc sóng điều hòa 14 và 26. Nhận xét này cho thấy ảnh hưởng của DCeP lên pha của xung phát HHG là không đáng kể. Tuy nhiên, vai trò của DCeP lên cường độ trắc đồ thời gian là rất rõ rệt. Cụ thể, tại bậc 14 (Hình 5(a)), các xung phát HHG khi không tính đến DCeP có sự đồng đều rõ ràng so với trường hợp có DCeP. Cùng với việc độ lệch pha xấp xỉ 180° , sự giao thoa của hai xung như nhau làm triệt tiêu bậc chẵn như bậc 14. Ngược lại, khi tính đến DCeP, sự bất đối xứng rõ rệt về cường độ của hai xung liên tiếp

làm xuất hiện bậc chẵn có cường độ cao hơn. Xu hướng bất đối xứng giữa hai xung liên tiếp này được lặp lại ở bậc 26 (Hình 5(c)) cả khi tính đến và bỏ qua hiệu ứng DCeP. Từ đó, tỉ số HHG chẵn-lẻ tại bậc 26 khi có và không có DCeP có độ lớn xấp xỉ nhau như trong Hình 3(b).

Các quan sát trên cho góc định hướng 70° hoàn toàn ngược lại so với góc 0° . Trong công trình của nhóm tác giả (Nguyen et al., 2022), chúng tôi đã chỉ ra rằng ở góc 0° , DCeP làm cho độ lệch pha giữa hai xung atto gây thay đổi từ cùng pha sang ngược pha, dẫn đến thay đổi đáng kể tỉ số HHG chẵn-lẻ. Khi đó, độ lệch pha giữa hai xung atto gây đóng vai trò then chốt trong ảnh hưởng của DCeP lên phổ HHG chẵn-lẻ của góc 0° . Ngược lại, với góc 70° , DCeP hầu như không thay đổi đáng kể độ lệch pha, mà thay đổi sự bất đối xứng về cường độ giữa hai xung atto gây. Lúc này, sự bất đối xứng cường độ của hai xung atto gây đóng vai trò quyết định trong phổ HHG chẵn-lẻ.

3.3. Liên hệ giữa tỉ số HHG chẵn-lẻ và độ bất đối xứng của hai xung atto gây

Tiếp theo, chúng tôi định lượng hóa mối liên hệ giữa tỉ số HHG chẵn lẻ (miền tần số) và sự bất đối xứng và độ lệch pha (miền thời gian). Từ đó, chúng tôi thu được vai trò của DCeP lên phổ HHG chẵn-lẻ thông qua ảnh hưởng lên trắc đồ thời gian. Để làm được việc này, đầu tiên, chúng tôi định lượng hóa các đại lượng bất đối xứng trong trắc đồ thời gian, với độ lệch cường độ giữa hai xung

$$\kappa(2n) = \frac{2|A_1(2n)||A_2(2n)|}{|A_1(2n)|^2 + |A_2(2n)|^2} \quad (8)$$

và độ lệch pha giữa chúng

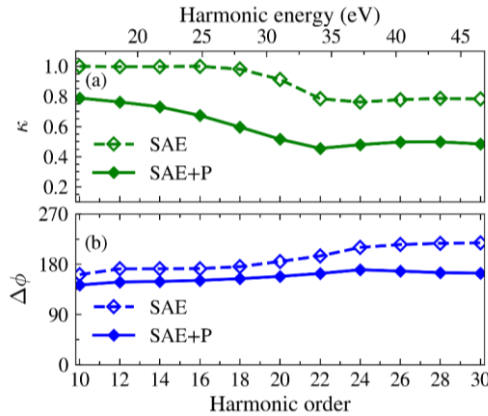
$$\Delta\phi(2n) = \phi_2(2n) - \phi_1(2n). \quad (9)$$

Trong đó, $|A_i(2n)|$ và $\phi_i(2n)$ là biên độ và pha của xung phát HHG của bậc $2n$ tại thời điểm thứ i trong chuỗi xung phát HHG. Giá trị của $\kappa(2n)$ nằm trong khoảng $[0, 1]$, với cận dưới tương ứng với độ bất đối xứng giữa hai xung là cực đại. $\kappa(2n)$ càng tăng thì mức độ bất đối xứng giữa hai xung càng giảm. Tại $\kappa(2n) = 1$, hai xung đối xứng hoàn toàn.

Theo cơ chế giao thoa giữa các xung atto gây tạo sóng điều hòa bậc cao, chúng ta có được mối quan hệ trực tiếp giữa tỉ số HHG chẵn-lẻ (đại lượng trong miền tần số) và độ bất đối xứng về cường độ và pha giữa hai xung phát HHG (đại lượng trong miền thời gian) như sau (Nguyen et al., 2022):

$$\eta(2n) = 1 - \frac{2\kappa(2n) \cos \Delta\phi(2n)}{1 + \kappa(2n) \cos \Delta\phi(2n)}. \quad (10)$$

Do đó, nghiên cứu ảnh hưởng của DCeP lên $\kappa(2n)$ và $\Delta\phi(2n)$ cho ta cái nhìn định lượng về ảnh hưởng của DCeP lên tỉ số HHG chẵn-lẻ. Tại đây, chúng tôi tính toán với hai xung phát HHG xung quanh hai thời điểm $t_1 = 4.3T_0$ và $t_2 = 4.8T_0$, với T_0 là chu kỳ quang học của xung laser. Hai đại lượng $\kappa(2n)$ và $\Delta\phi(2n)$ được chúng tôi biểu diễn trên Hình 6.



Hình 6. Độ bất đối xứng cường độ (a) và độ lệch pha (b) của hai xung phát HHG liên tiếp khi xét đến DCEP và bỏ qua DCEP. Góc định hướng là 70°

Hình 6(a) cho thấy, xét trên toàn phổ HHG ở góc định hướng 70° , độ bất đối xứng cường độ giữa hai xung liên tiếp có khoảng biên thiên không quá lớn. Khi bỏ qua hiệu ứng DCEP, độ bất đối xứng cường độ gần bằng 1 ở những bậc HHG đầu và giảm nhẹ về 0.8 ứng với vùng giữa miền phẳng. Còn khi tính đến, $\kappa(2n)$ có dạng tương tự như khi bỏ qua DCEP, nhưng với cường độ giảm khoảng 0.2. Điều này cho thấy DCEP có tác dụng tăng đều sự bất đối xứng cường độ giữa hai xung phát HHG kề nhau. Với độ lệch pha được thể hiện trên Hình 6(b), ta có thể khẳng định DCEP không ảnh hưởng đến độ lệch pha giữa hai xung phát HHG. Cụ thể, $\Delta\phi(2n)$ giữ giá trị xấp xỉ bằng 180° trên toàn phổ HHG.

Tóm lại, ảnh hưởng của DCEP lên độ bất đối xứng về cường độ và pha của các xung phát HHG liên tiếp đã được nghiên cứu trong trường hợp góc định hướng 70° . Cụ thể, hiệu ứng DCEP tác động đến độ bất đối xứng cường độ thông qua việc làm chênh lệch cường độ giữa hai xung phát HHG liên tiếp. Bên cạnh đó, ở góc định hướng này, DCEP không làm ảnh hưởng đến độ lệch pha giữa hai xung phát HHG kề nhau.

4. Kết luận

Trong bài báo này, chúng tôi nghiên cứu lí thuyết ảnh hưởng của hiệu ứng DCEP lên phổ HHG trong trường hợp góc định hướng khác 0° trên cả hai phương diện: trong miền thời gian và miền tần số. Chúng tôi sử dụng phương pháp giải số phương trình Schrödinger kết hợp với thế năng gần đúng SAE và tính đến thế năng DCEP. So với trường hợp định phương song song, việc định phương khác 0° của phân tử cho thấy ảnh hưởng của DCEP lên phổ HHG có sự khác nhau khi góc định phương thay đổi. Ở góc định phương 70° , hiệu ứng DCEP làm tăng cường độ tỉ số HHG chẵn-lẻ cũng như độ bất đối xứng của phổ HHG so với trường hợp bỏ qua DCEP. Đi sâu về cơ chế vật lí, DCEP làm tăng sự bất đối xứng cường độ của hai xung cỡ atto giây liên tiếp chịu trách nhiệm giao thoa và phát xạ HHG. Tuy nhiên, DCEP không ảnh hưởng đến độ lệch pha của các xung trong miền thời gian này. Điều này hoàn toàn khác biệt so với trường hợp góc định phương 0° khi độ lệch pha đóng vai trò quyết định đến ảnh hưởng của DCEP lên tỉ số HHG chẵn-lẻ. Các kết luận trên cho thấy vai trò quan trọng và không thể bỏ qua của hiệu ứng DCEP trong quá trình tính toán mô phỏng sự phát xạ sóng HHG.

- ❖ **Tuyên bố về quyền lợi:** Các tác giả xác nhận hoàn toàn không có xung đột về quyền lợi.
- ❖ **Lời cảm ơn:** Xin cảm ơn TS Lê Thị Cẩm Tú đã hỗ trợ công cụ source code TDSE. Nghiên cứu này được tài trợ bởi Đề tài nghiên cứu cấp Bộ Giáo dục và Đào tạo (Việt Nam), mã số B2024-SPS-04.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- Abu-Samha, M., & Madsen, L. B. (2010). Single-active-electron potentials for molecules in intense laser fields. *Physical Review A*, *81*, 033416. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.81.033416>
- Baker, S., Robinson, J. S., Haworth, C. A., Teng, H., Smith, R. A., Chirilă, C. C., Lein, M., Tisch, J. W. G., & Marangos, J. P. (2006). Probing proton dynamics in molecules on an attosecond time scale. *Science*, *312*, 424. <https://doi.org/10.1126/science.1123904>
- Chen, Y. J., Fu, L., & Liu, J. (2013). Asymmetric Molecular Imaging through Decoding Odd-Even High-Order Harmonics. *Physical Review Letters*, *111*, 073902. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.073902>
- Frumker, E., Hebeisen, C. T., Kajumba, N., Bertrand, J. B., Wörner, H. J., Spanner, M., Villeneuve, D. M., Naumov, A., & Corkum, P. B. (2012a). Oriented Rotational Wave-Packet Dynamics Studies via high harmonic Generation. *Physical Review Letters*, *109*, 113901. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.109.113901>
- Frumker, E., Kajumba, N., Bertrand, J. B., Wörner, H. J., Hebeisen, C. T., Hockett, P., Spanner, M., Patchkovskii, S., Paulus, G. G., Villeneuve, D. M., Naumov, A., & Corkum, P. B. (2012b). Probing Polar Molecules with High Harmonic Spectroscopy. *Physical Review Letters*, *109*, 233904. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.109.233904>
- Gordon, A., Kärtner, F. X., Rohringer, N., & Santra, R. (2006). Role of many-electron dynamics in high harmonic generation. *Physical Review Letters*, *96*, 223902. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.96.223902>
- Hoang, V. H., Zhao, S. F., Le, V. H., & Le, A. T. (2017). Influence of permanent dipole and dynamic core-electron polarization on tunneling ionization of polar molecules. *Physical Review*, *95*, 023407. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.95.023407>
- Itatani, J., Lévesque, J., Zeidler, D., Niikura, H., Pépin, H., Kieffer, J., Corkum, P. B., & Villeneuve, D. M. (2004). Tomographic imaging of molecular orbitals. *Nature*, *432*, 867. <https://doi.org/10.1038/nature03183>
- Ivanov, M., & Corkum, P. B. (1993). Generation of high-order harmonics from inertially confined molecular ions. *Physical Review A*, *48*, 580. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.48.580>
- Kraus, P. M., Baykusheva, D., & Wörner, H. J. (2014). Two-Pulse Field-Free orientation reveals anisotropy of molecular shape resonance. *Physical Review Letters*, *113*, 023001. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.113.023001>
- Kraus, P. M., Rupenyan, A., & Wörner, H. J. (2012). High-Harmonic spectroscopy of oriented OCS molecules: emission of even and odd harmonics. *Physical Review Letters*, *109*, 233903. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.109.233903>

- Le, C. T., Hoang, V. H., Tran, L. P., & Le, V. H. (2018). Effect of the dynamic core-electron polarization of CO molecules on high-order harmonic generation. *Physical Review*, *97*, 043405. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.97.043405>
- Lewenstein, M., Balcou, P., Ivanov, M., L'Huillier, A., & Corkum, P. B. (1994). Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Physical Review A*, *49*, 2117. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.49.2117>
- McFarland, B. K., Farrell, J., Bucksbaum, P. H., & Gühr, M. (2008). High Harmonic Generation from Multiple Orbitals in N₂. *Science*, *322*, 1232. <https://doi.org/10.1126/science.1162780>
- Nguyen, H. T., Nguyen, K. H., Phan, N. L., Le, C. T., Vu, D., Tran, L. P., & Le, V. H. (2022). Imprints of multielectron polarization effects in odd-even harmonic generation from CO molecules. *Physical Review*, *105*, 023106. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.105.023106>
- Nguyen, K. H., Phan, N. L., Le, C. T., Vu, D., & Le, V. H. (2022). Parameter-free retrieval of subcycle asymmetry of polar molecules by high-order harmonic spectroscopy. *Physical Review*, *106*, 063108. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.106.063108>
- Niikura, H., Dudovich, N., Villeneuve, D. M., & Corkum, P. B. (2010). Mapping molecular orbital symmetry on High-Order Harmonic Generation spectrum using Two-Color laser fields. *Physical Review Letters*, *105*, 053003. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.105.053003>
- Phan, N. L., Le, C. T., Hoang, V. H., & Le, V. H. (2019). Odd-even harmonic generation from oriented CO molecules in linearly polarized laser fields and the influence of the dynamic core-electron polarization. *Physical Chemistry Chemical Physics*, *21*, 24177. <https://doi.org/10.1039/C9CP04064A>
- Trieu, D. A., Phan, N. L., Truong, Q. H., Nguyen, H. T., Le, C. T., Vu, D., & Le, V. H. (2023). Universality in odd-even harmonic generation and application in terahertz waveform sampling. *Physical Review*, *108*, 023109. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.108.023109>
- Vozzi, C., Negro, M., Calegari, F., Sansone, G., Nisoli, M., De Silvestri, S., & Stagira, S. (2011). Generalized molecular orbital tomography. *Nature Physics*, *7*, 822. <https://doi.org/10.1038/nphys2029>
- Yu, S., Zhang, B., Li, Y., Yang, S., & Chen, Y. (2014). Ellipticity of odd-even harmonics from oriented asymmetric molecules in strong linearly polarized laser fields. *Physical Review A*, *90*, 053844. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.90.053844>
- Yun, H., Lee, K., Sung, J. H., Kim, K. T., Kim, H. T., & Nam, C. H. (2015). Resolving multiple molecular orbitals using Two-Dimensional High-Harmonic spectroscopy. *Physical Review Letters*, *114*, 153901. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.153901>
- 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*, 053833. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.92.053833>
- Zhang, B., Yuan, J., & Zhao, Z. (2013). Dynamic core polarization in strong-field ionization of CO molecules. *Physical Review Letters*, *111*, 163001. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.163001>

**MANIFESTATION OF DYNAMIC CORE-ELECTRON POLARIZATION
IN HIGH-ORDER HARMONIC GENERATION SPECTRA***Dam My Hoa¹, Nguyen Huynh Kim Ngan^{2,3,4*},**Trieu Doan An¹, Do Cong Cuong⁵, Phan Thi Ngoc Loan¹**¹Ho Chi Minh City University of Education, Ho Chi Minh City, Vietnam**²Institute of Fundamental and Applied Sciences, Duy Tan University, Ho Chi Minh City, Vietnam**³Faculty of Natural Sciences, Duy Tan University, Da Nang City, Vietnam**⁴Nuclear Training Center, VINATOM, Hanoi, Vietnam**⁵Institute for nuclear Science and Technology, VINATOM, Hanoi, Vietnam***Corresponding author: Nguyen Huynh Kim Ngan - Email: nguyenhkimngan2@duytan.edu.vn**Received: January 01, 2024; Revised: May 09, 2024; Accepted: July 21, 2024***ABSTRACT**

We have recently demonstrated that incorporating Dynamic Core-electron Polarization (DCeP) into simulation aligns the high-order harmonic generation (HHG) of CO molecules with experimental data. However, the previous study was limited to the case where the laser is irradiated parallel to the molecule, corresponding to an orientation angle of 0°. In this paper, we extend the investigation of DCeP's role in odd-even HHG to include various molecular orientations beyond 0°. Additionally, we examine the DCeP effect on attosecond bursts, focusing on harmonic generation in the time domain. To calculate HHG, we numerically solve the time-dependent Schrödinger equation under Single Active-Electron approximation (SAE), incorporating DCeP potential. The results demonstrate the substantial role of DCeP on the even-odd HHG ratio (the ratio of even-order harmonic intensity to the average of two adjacent odd orders) across different molecular orientations. A detailed analysis at an orientation angle of 70° indicates that, in the frequency domain, DCeP increases the even-to-odd ratio compared to the case without DCeP. In the time domain, DCeP remarkably changes the intensity ratio between consecutive attosecond bursts.

Keywords: alignment; dynamic core-electron polarization; even-to-odd ratio; high-order harmonic generation