



ẢNH HƯỞNG CỦA PHA BAN ĐẦU CỦA LASER LÊN VỊ TRÍ ĐIỂM DỪNG TRONG PHỔ SÓNG ĐIỀU HÒA BẬC CAO CỦA NGUYÊN TỬ RYDBERG

Phan Thị Ngọc Loan, Đỗ Thị Kim Ngân, Nguyễn Tấn Phú, Trần Phi Hùng*

Trường Đại học Sư phạm Thành phố Hồ Chí Minh

Ngày nhận bài: 26-9-2018, ngày nhận bài sửa: 17-10-2018, ngày duyệt đăng: 21-12-2018

TÓM TẮT

Chúng tôi nghiên cứu ảnh hưởng của pha ban đầu (CEP) của laser lên vị trí điểm dừng của phổ sóng điều hòa bậc cao phát ra từ nguyên tử hydro ở trạng thái cơ bản $|1s\rangle$ và trạng thái chồng chập của nguyên tử Rydberg $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle)$. Bằng phương pháp mô phỏng chuyển động của electron trong trường laser bằng tiếp cận cổ điển, chúng tôi đã giải thích thành công sự phụ thuộc của vị trí điểm dừng vào CEP. Mô phỏng cổ điển phù hợp với kết quả giải số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian.

Từ khóa: sóng điều hòa bậc cao, điểm dừng, nguyên tử Rydberg, pha ban đầu.

ABSTRACT

The influence of the carrier-envelope-phase of the laser on the cutoff energy in the high-order harmonic spectra from Rydberg atom

We investigate the influence of the carrier-envelope-phase (CEP) of the laser on the cutoff energy in the high-harmonic spectra generated from hydrogen atom at ground state $|1s\rangle$ and superposition state of Rydberg atom $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle)$. By the classical simulation of the movement of the electron in the laser field, we have successfully interpreted the dependence of the cutoff energy on the CEP. The classical simulation is consistent with the results obtained from the time-dependent Schrödinger method.

Keywords: high-order harmonic generation, cutoff, Rydberg atom, carrier-envelope-phase.

1. Mở đầu

Một trong những hiệu ứng phi tuyến xảy ra khi tương tác giữa nguyên tử, phân tử với laser mạnh, xung cực ngắn, là phát xạ sóng điều hòa bậc cao (High-order Harmonic Generation – viết tắt là HHG) [1], [2]. Sóng HHG là những photon phát ra, có tần số bằng bội số nguyên lần tần số của laser. Phổ HHG có những đặc trưng rất cơ bản với ba vùng rõ rệt [1]. Cường độ HHG giảm nhanh ở vùng tần số thấp. Sau đó, cường độ HHG hầu như

* Email: loanphan@hcmup.edu.vn

không đổi trong một vùng của tần số được gọi là miền phẳng. Miền phẳng này kết thúc tại một điểm gọi là điểm dừng. Sau điểm dừng, cường độ HHG giảm đột ngột.

Để giải thích cơ chế phát xạ phổ HHG, nhóm Corkum [1], [2] đã đề xuất mô hình ba bước hay còn gọi là mô hình Lewenstein. Theo đó, ở bước đầu tiên, laser làm biến dạng thế năng Coulomb của nguyên tử, phân tử, và electron ion hóa xuyên hầm ra miền liên tục. Ở bước thứ hai, electron di chuyển và tích lũy năng lượng dưới tác dụng của điện trường laser. Sau nửa chu kỳ quang học, laser đổi chiều và kéo electron quay ngược trở về gặp ion mẹ. Cuối cùng, electron tái kết hợp với ion mẹ và phát ra sóng thứ cấp là HHG. Mô hình ba bước cung cấp bức tranh vật lý về quá trình phát xạ HHG, và dự đoán khá chính xác vị trí điểm dừng trong phổ HHG theo quy luật $I_p + 3.17U_p$, với I_p, U_p lần lượt là thế ion hóa và thế trọng động của electron trong trường laser [1], [2].

Phổ HHG phát ra ở bước thứ ba, khi electron tái kết hợp với ion mẹ, nên nó mang thông tin cấu trúc của nguyên tử, phân tử. Phổ HHG cho phép trích xuất thông tin khoảng cách liên hạt nhân của phân tử [3], tái tạo HOMO của phân tử [4] hay theo dõi chuyển động của hạt nhân [5]. Ngoài ra, sóng HHG mang năng lượng cao, nên nó là nguồn tạo xung cực ngắn, có độ dài xung cỡ atto ($\sim 10^{-18}$) giây [6], [7], từ đó, cho phép theo dõi các quá trình cực nhanh trong phân tử, nguyên tử như theo dõi động học phân tử hay các quá trình chuyển tiếp [7].

Để tạo ra xung atto giây, có hai yếu tố cần phải quan tâm là (i) năng lượng photon HHG, tức sự mở rộng miền phẳng HHG và (ii) hiệu suất phát xạ HHG. Để thỏa mãn hai điều kiện trên, có nhiều phương pháp được áp dụng như sử dụng laser có bước sóng dài [7], chuẩn bị nguyên tử ở trạng thái chông chập [8], hay kích thích phát xạ sóng điều hòa bậc cao phát ra từ trạng thái chông chập của nguyên tử Rydberg [9] - [11]. Nguyên tử Rydberg là nguyên tử có electron nằm ở trạng thái kích thích cao. Có ba phương pháp tạo ra nguyên tử Rydberg từ việc kích thích nguyên tử từ trạng thái cơ bản, đó là phương pháp trao đổi điện tích, kích thích do va chạm bởi chùm electron, hoặc hấp thụ photon. Năm 2011, Zhai và các cộng sự [9] đã chỉ ra rằng, khi laser tương tác với nguyên tử neon ở chông chập của trạng thái cơ bản và trạng thái Rydberg $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6p\rangle)$ sẽ phát xạ phổ

HHG với điểm dừng vượt xa dự đoán thông thường của mô hình Lewenstein ($I_p + 3.17U_p$) và với hiệu suất phát xạ lớn hơn so với trường hợp nguyên tử ở trạng thái cơ bản. Điều này đã chỉ ra tính ưu việt của nguyên tử Rydberg trong việc ứng dụng phổ HHG nhằm tạo xung atto giây [11]. Đồng thời, Zhai và các cộng sự [9] cũng nghiên cứu ảnh hưởng của độ dài xung laser lên sự mở rộng miền phẳng của phổ HHG. Kết quả cho thấy, sự mở rộng miền phẳng của phổ HHG phát ra từ nguyên tử Rydberg ở trạng thái chông chập so với trường hợp nguyên tử ở trạng thái cơ bản chỉ xảy ra khi laser tương tác có độ dài xung cực ngắn, cỡ vài chu kỳ [9]. Mặt khác, với laser ít chu kỳ, pha ban đầu (Carrier Envelope Phaser – viết

tất là CEP) của laser ảnh hưởng đến điểm dừng [9]. Sự ảnh hưởng của CEP lên vị trí điểm dừng của phổ HHG phát ra từ nguyên tử Rydberg chỉ được Zhai nhắc tới trong [9] và chưa khảo sát quy luật cũng như đưa ra lời giải thích.

Mục tiêu của bài báo này là khảo sát và giải thích sự ảnh hưởng của CEP của laser lên điểm dừng của phổ HHG. Để chi tiết, chúng tôi nghiên cứu cho hai trường hợp (i) nguyên tử hydro ở trạng thái cơ bản $|1s\rangle$, (ii) nguyên tử hydro ở trạng thái chồng chập giữa trạng thái cơ bản $|1s\rangle$ và trạng thái Rydberg $|6s\rangle$ với hệ số đóng góp như nhau. Ở đây, chúng tôi chọn trạng thái Rydberg là $|6s\rangle$, mà không phải là $|6p\rangle$ như trong công trình [9], [10], vì song song nghiên cứu ảnh hưởng của CEP lên vị trí điểm dừng, chúng tôi dự định sẽ nghiên cứu ảnh hưởng của CEP lên hiệu suất phát xạ HHG và sẽ công bố trong tương lai. Tuy nhiên, trạng thái chồng chập $|1s\rangle + |6p\rangle$ sẽ làm xuất hiện những điểm cực tiểu trong phổ HHG [9] nên làm ảnh hưởng đến kết quả hiệu suất phát xạ HHG. Ngoài ra, dù trạng thái chồng chập $|1s\rangle + |6p\rangle$ dễ tạo được trong thực nghiệm hơn so với $|1s\rangle + |6s\rangle$ do quy tắc lọc lựa, nhưng Avetissian và Mkrtchian [12] đã chỉ ra rằng, chồng chập các trạng thái $|1s\rangle + |6s\rangle$ có thể đạt được bằng phương pháp kích thích cộng hưởng đa photon ba mức bằng một xung quang học thích hợp với cường độ mạnh.

Để mô phỏng phổ HHG, chúng tôi giải số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian (Time-Dependent Schrödinger Equation – viết tắt là TDSE). Song song đó, để giải thích năng lượng photon tại điểm dừng, chúng tôi mô phỏng bằng tiếp cận cổ điển chuyển động của electron trong trường laser. Chúng tôi đã chỉ ra quy luật ảnh hưởng của CEP lên điểm dừng và giải thích thành công bằng mô hình cổ điển. Đây sẽ là cơ sở để chúng tôi mở rộng nghiên cứu ảnh hưởng của CEP lên định luật tỉ lệ theo bước sóng của hiệu suất HHG phát ra từ nguyên tử Rydberg.

2. Phương pháp

Trong bài báo này, nghiên cứu ảnh hưởng của CEP lên vị trí điểm dừng của phổ HHG sẽ được tiếp cận theo hai hướng (i) lượng tử bằng phương pháp TDSE và (ii) cổ điển mô tả chuyển động của electron trong trường laser.

2.1. Phương pháp TDSE tính phổ HHG

Phương trình Schrödinger của nguyên tử hydro khi tương tác với laser phân cực thẳng có dạng (trong hệ đơn vị nguyên tử)

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi(\mathbf{r}, t) = \left[-\frac{\nabla^2}{2} - \frac{1}{r} + \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t) \right] \psi(\mathbf{r}, t). \quad (1)$$

Laser tương tác có vectơ phân cực dọc theo trục z , và có dạng

$$E(t) = E_0 \sin^2 \left(\frac{\pi t}{\tau} \right) \sin(\omega t + \varphi), \quad (2)$$

với E_0, ω, φ lần lượt là cường độ cực đại, tần số góc và pha ban đầu (CEP) của laser. τ là độ dài của xung laser. Trong bài báo này, laser được sử dụng có cường độ $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, độ dài xung hai chu kỳ, tức $\tau = 2T_0$, với T_0 là chu kỳ laser.

Trước khi tương tác với laser, nguyên tử hydro được chuẩn bị ở trạng thái cơ bản $|1s\rangle$ hoặc ở trạng thái chồng chập $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle)$. Khi tương tác với laser, phương trình Schrödinger (1) được giải bằng phương pháp biểu diễn biến rời rạc DVR [13] và phương pháp tách toán tử [14].

Gia tốc lưỡng cực của hệ dọc theo trục z được tính theo công thức

$$a_z(t) = \langle \psi(\mathbf{r}, t) | \nabla_z V(\mathbf{r}, t) | \psi(\mathbf{r}, t) \rangle, \quad (3)$$

với $V(\mathbf{r}, t)$ là tổng thế năng Coulomb và thế năng tương tác laser với nguyên tử. Tín hiệu HHG chính là bình phương của Fourier gia tốc lưỡng cực (3).

Xác suất ion hóa của nguyên tử được tính theo công thức

$$P = 1 - \sum_{E_{nlm} < 0} |c_{nlm}|^2, \quad (4)$$

với c_{nlm} là hệ số đóng góp khi electron ở trạng thái ứng với số lượng tử n, l, m .

Để tránh sự phản xạ do sự hữu hạn của r trong tính toán, chúng tôi sử dụng hàm mặt nạ có dạng $\cos^{1/4}[\pi(r - r_{cut})/2(r_{max} - r_{cut})]$ với $r \geq r_{cut}$. Trong bài báo này, chúng tôi sử dụng tham số tính toán với $r_{max} = 450 \text{ a.u.}$, $r_{cut} = 300 \text{ a.u.}$, 2000 điểm chia DVR và 160 hàm cầu. Bước nhảy thời gian được chọn 0.07 a.u. nhằm đảm bảo tính hội tụ của bài toán.

2.2. Mô hình cổ điển mô tả chuyển động của electron trong trường laser

Với hướng tiếp cận cổ điển, chúng tôi chỉ quan tâm đến quá trình chuyển động của electron trong điện trường của laser, tức bước thứ hai của mô hình ba bước Lewenstein. Electron chuyển động dọc theo hướng của vector phân cực của laser.

Giả sử rằng khi nguyên tử hydro tương tác với laser, electron bị ion hóa tại thời điểm t_0 . Định luật II Newton mô tả chuyển động của electron trong điện trường có dạng [15]

$$\ddot{\mathbf{z}}(t) = -\mathbf{E}(t). \quad (5)$$

Phương trình (5) phải thỏa mãn điều kiện ban đầu

$$z(t_0) = z_0, \quad \dot{z}(t_0) = 0, \quad (6)$$

với z_0 là vị trí của electron ngay tại thời điểm ion hóa. Chúng tôi giả thiết $z_0 = 0 \text{ a.u.}$ trong trường hợp electron ở trạng thái cơ bản, và $z_0 \neq 0$ khi electron ở trạng thái Rydberg.

Điện trường của laser đổi chiều sẽ kéo electron quay ngược lại và gặp ion mẹ. Thời điểm tái kết hợp t_r là nghiệm của phương trình

$$z(t_r) = 0. \quad (7)$$

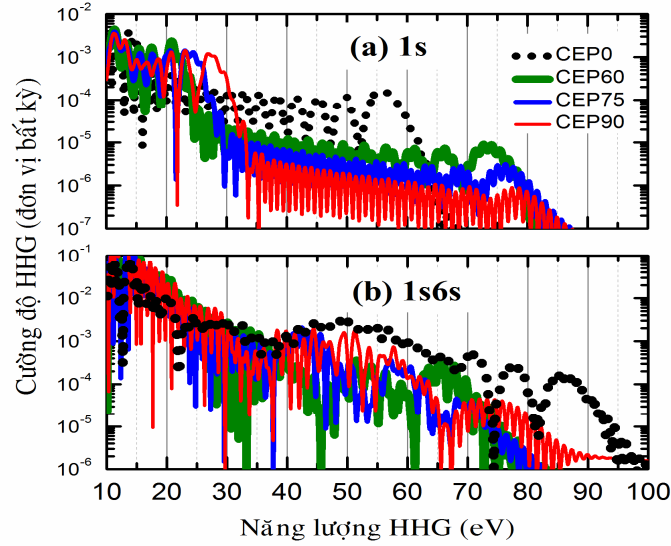
Động năng của electron thu được từ trường laser tại thời điểm tái kết hợp có dạng

$$K(t_r) = \frac{1}{2} \dot{z}(t_r)^2. \quad (8)$$

Electron tái kết hợp với ion mẹ sẽ phát ra photon HHG với năng lượng $I_p + K(t_r)$.

3. Kết quả

3.1. Phổ HHG của nguyên tử hydro ở trạng thái cơ bản và trạng thái Rydberg



Hình 1. Phổ HHG của nguyên tử hydro ở (a) trạng thái cơ bản $|1s\rangle$;

(b) chồng chập giữa trạng thái cơ bản và trạng thái Rydberg $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle)$ khi tương tác

với laser có cường độ $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, bước sóng 1200 nm, độ dài xung 2 chu kỳ và CEP khác nhau

Trong phần này, chúng tôi sẽ trình bày kết quả phổ HHG của nguyên tử hydro ở trạng thái cơ bản $|1s\rangle$ (Hình 1a) và chồng chập trạng thái $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle)$ (Hình 1b) bằng phương pháp giải số TDSE. Laser tương tác có cường độ $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, bước sóng 1200 nm, độ dài xung 2 chu kỳ và CEP khác nhau. Hình 1 cho thấy, phổ HHG có những đặc trưng cơ bản với miền phẳng trải dài trên một vùng của tần số, sau đó, kết thúc bởi điểm dừng.

Từ kết quả tính HHG của nguyên tử hydro ở trạng thái cơ bản $|1s\rangle$ (Hình 1a), chúng tôi nhận thấy vị trí điểm dừng phụ thuộc vào CEP của laser. Vị trí điểm dừng không tuân theo công thức $I_p + 3.17U_p$ [1]. Cụ thể, với $\text{CEP} = 0^0$, điểm dừng tương ứng với photon có năng lượng 55 eV, tức theo công thức $I_p + 2.10U_p$. Tăng dần CEP của laser, miền phẳng của phổ HHG được mở rộng dần với vị trí điểm dừng tăng dần. Điểm dừng tăng lên 71 eV ($I_p + 2.93U_p$) với $\text{CEP} = 60^0$ và 75 eV ($I_p + 3.17U_p$) với $\text{CEP} = 90^0$. Bên cạnh đó, với $\text{CEP} > 30^0$, trên phổ HHG xuất hiện hai miền phẳng rõ rệt với cường độ HHG khác nhau. Gọi điểm dừng ứng với miền phẳng đầu tiên là điểm dừng 1, điểm dừng ứng với miền

phẳng thứ hai là điểm dừng 2. Vị trí điểm dừng 1 và 2 thu được từ phổ HHG của nguyên tử hydro ở trạng thái $|1s\rangle$ được trình bày cụ thể trên Bảng 1. Sự hình thành hai miền phẳng cũng như sự phụ thuộc vị trí điểm dừng vào CEP của laser sẽ được chúng tôi giải thích chi tiết trong mục 3.2.

Bảng 1. Quy luật vị trí điểm dừng 1 và điểm dừng 2 từ phổ HHG và theo mô hình cổ điển của nguyên tử hydro ở trạng thái $|1s\rangle$

CEP	TDSE		Mô hình cổ điển	
	Điểm dừng 1	Điểm dừng 2	Điểm dừng 1	Điểm dừng 2
0^0		$I_p + 2.10U_p$		$I_p + 2.09U_p$
15^0		$I_p + 2.35U_p$		$I_p + 2.33U_p$
30^0	$I_p + 0.17U_p$	$I_p + 2.54U_p$	$I_p + 0.17U_p$	$I_p + 2.55U_p$
45^0	$I_p + 0.26U_p$	$I_p + 2.76U_p$	$I_p + 0.26U_p$	$I_p + 2.76U_p$
60^0	$I_p + 0.37U_p$	$I_p + 2.93U_p$	$I_p + 0.36U_p$	$I_p + 2.92U_p$
75^0	$I_p + 0.52U_p$	$I_p + 3.07U_p$	$I_p + 0.50U_p$	$I_p + 3.06U_p$
90^0	$I_p + 0.67U_p$	$I_p + 3.17U_p$	$I_p + 0.68U_p$	$I_p + 3.14U_p$

Hình 1b biểu diễn phổ HHG của nguyên tử hydro ở trạng thái Ryberg $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle)$. Chúng tôi nhận thấy rằng, ở trạng thái chồng chập $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle)$, nguyên tử hydro cho phổ HHG với cường độ cao hơn 1÷2 bậc so với trạng thái $|1s\rangle$. Bên cạnh đó, miền phẳng của phổ HHG cũng được mở rộng hơn so với trường hợp $|1s\rangle$. Với CEP = 0^0 , HHG của nguyên tử H ở trạng thái chồng chập cho điểm dừng ~ 87 eV, tương ứng với $I_p + 3.58U_p$, lớn hơn so với công thức Lewenstein $I_p + 3.17U_p$. Điều này cho thấy ưu điểm vượt trội của nguyên tử Rydberg trong việc mở rộng miền phẳng và nâng cao hiệu suất phát xạ HHG. Kết quả này đã được chỉ ra trong [9], [10] khi laser tương tác với nguyên tử neon ở trạng thái $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6p\rangle)$. Trong bài báo này, chúng tôi đã kiểm chứng được công trình [9], [10] cho trường hợp nguyên tử hydro ở trạng thái $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle)$.

Ngoài ra, khi nguyên tử hydro ở trạng thái $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle)$ tương tác với laser có CEP khác nhau, kết quả trên Hình 1b cho thấy CEP ảnh hưởng tới vị trí điểm dừng của phổ HHG. Khác với trường hợp $|1s\rangle$, trong trường hợp nguyên tử Rydberg với trạng thái $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle)$, năng lượng photon ứng với điểm dừng giảm dần khi tăng CEP từ 0^0 đến 60^0 , sau đó, tăng dần với CEP tăng từ 75^0 đến 90^0 . Quy luật vị trí điểm dừng với từng CEP được trình bày chi tiết trên Bảng 2.

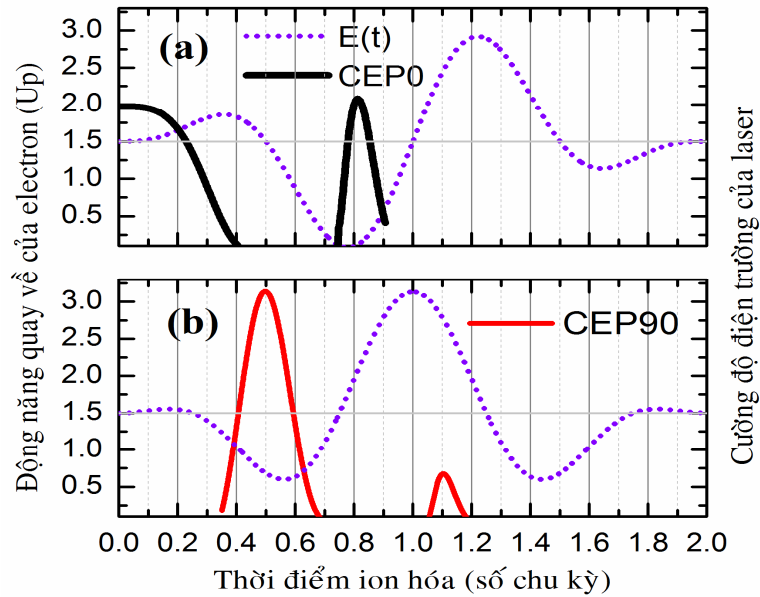
Bảng 2. Quy luật vị trí điểm dừng từ phổ HHG
và theo mô hình cổ điển của nguyên tử Rydberg $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle)$

CEP	TDSE	Mô hình cổ điển
0^0	$I_p + 3.58U_p$	$I_p + 3.55U_p$
15^0	$I_p + 3.48U_p$	$I_p + 3.50U_p$
30^0	$I_p + 3.26U_p$	$I_p + 3.30U_p$
45^0	$I_p + 2.94U_p$	$I_p + 3.00U_p$
60^0	$I_p + 2.64U_p$	$I_p + 2.69U_p$
75^0	$I_p + 3.00U_p$	$I_p + 2.30U_p$
90^0	$I_p + 3.14U_p$	$I_p + 1.89U_p$

3.2. Mô phỏng vị trí điểm dừng bằng mô hình cổ điển

Trong phần này, chúng tôi sẽ áp dụng mô hình cổ điển được mô tả trong mục 2.2. để giải thích sự quy luật phụ thuộc của năng lượng điểm dừng vào CEP của laser.

3.2.1. Trường hợp nguyên tử hydro ở trạng thái cơ bản $|1s\rangle$



Hình 2. Sự phụ thuộc của động năng electron vào thời điểm ion hóa.
Laser tương tác có độ dài xung 2 chu kỳ, (a) CEP = 0^0 và (b). CEP = 90^0
Đường biểu diễn cường độ laser được dịch lên theo chiều dọc để dễ quan sát.
Đường nằm ngang thể hiện điện trường bằng 0.

Ở trạng thái cơ bản $|1s\rangle$, nguyên tử hydro có năng lượng -0.5 a.u. Dưới tác động của điện trường laser, rào thế Coulomb bị biến dạng và electron ion hóa xuyên hầm ra miền liên tục. Electron chuyển động tự do trong miền liên tục và tích năng lượng. Sau đó, khi điện trường laser đổi chiều, electron quay trở về, tái kết hợp với ion mẹ và phát ra HHG [1]. Hình 2 biểu diễn động năng của electron thu được trong trường laser tại thời điểm tái kết hợp với ion mẹ. Chúng tôi mô phỏng cho các trường hợp laser tương tác có CEP khác nhau. Kết quả cho thấy, động năng phụ thuộc vào thời điểm ion hóa của electron. Với CEP = 0^0 (Hình 2a), động năng đạt cực đại ($2.09U_p$) khi electron thoát khỏi nguyên tử H tại thời điểm $t_0 \approx 0.81T_0$, tức khi điện trường laser gần đạt giá trị cực đại. Với CEP = 90^0 , mô phỏng cổ điển cho động năng cực đại $3.14U_p$ tại $t_0 \approx 0.5T_0$. Tuy nhiên, kết quả mô phỏng cổ điển (Hình 2b) còn cho thấy, tại $t_0 \approx 1.1T_0$, electron bị ion hóa sẽ cho năng lượng cực đại $0.68U_p$. Chính điều này đã dẫn đến hình thành hai miền phẳng trong phổ HHG. Hơn nữa, do cường độ điện trường tại đỉnh thứ hai ($t_0 \approx 1.1T_0$) lớn hơn tại đỉnh đầu tiên ($t_0 \approx 0.5T_0$), nên xác suất ion hóa tại $t_0 \approx 1.1T_0$ lớn hơn tại thời điểm $t_0 \approx 0.5T_0$. Điều này dẫn đến cường độ HHG của miền phẳng thứ nhất lớn hơn cường độ của miền phẳng thứ hai. Do đó, trong phổ HHG với CEP = 90^0 (Hình 1b) xuất hiện hai miền phẳng rõ rệt với cường độ khác nhau. Động năng cực đại của electron trong trường laser có CEP khác nhau được tính từ mô phỏng cổ điển được thể hiện trên Bảng 1. Quy luật của điểm dừng ứng với hai miền phẳng khác nhau tính bằng mô hình cổ điển hoàn toàn phù hợp với kết quả mô phỏng từ TDSE.

3.2.2. Trường hợp nguyên tử hydro với chồng chập trạng thái cơ bản và trạng thái Rydberg

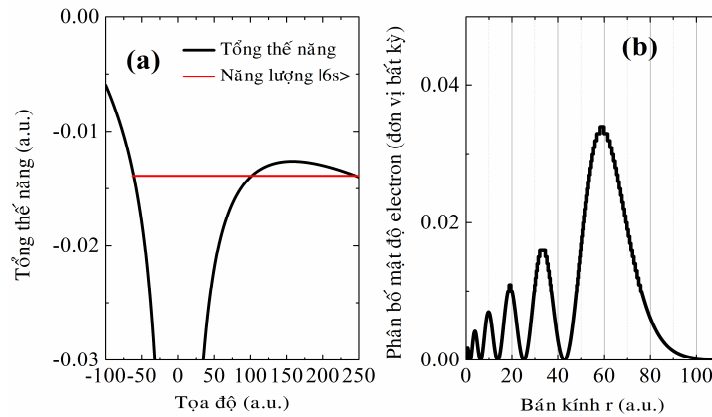
$$\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle)$$

Theo [8], tín hiệu phổ HHG phát ra từ nguyên tử ở trạng thái chồng chập đóng góp từ bốn thành phần gia tốc lưỡng cực khác nhau. Đó là khi electron (i) bị ion hóa từ trạng thái cơ bản và quay về tái kết hợp với trạng thái cơ bản; (ii) bị ion hóa từ trạng thái kích thích và quay về trạng thái kích thích; (iii) ion hóa từ trạng thái cơ bản và quay về trạng thái kích thích; (iv) ion hóa từ trạng thái kích thích và quay về trạng thái cơ bản. Trong đó, thành phần gia tốc lưỡng cực cuối cùng (iv) đóng góp chủ yếu vào cường độ phổ HHG [8]. Do đó, để mô phỏng cổ điển chuyển động của electron trong trường laser, chúng tôi xét electron bị ion hóa từ trạng thái kích thích $|6s\rangle$.

Khác với trường hợp ở trạng thái $|1s\rangle$, khi nguyên tử H bị kích thích lên trạng thái Rydberg $|6s\rangle$, electron có năng lượng liên kết rất yếu (-0.014 a.u.), và rất dễ thoát ra khỏi nguyên tử. Hình 3a biểu diễn tổng thế năng Coulomb của nguyên tử H và thế năng tương

tác của trường laser với electron tại thời điểm $0.015T_0$, tức ngay sau khi xung laser được bật. Năng lượng của electron tại trạng thái Ryberg xấp xỉ đỉnh của rào thế và dễ dàng vượt ra khỏi rào thế ngay sau khi bật laser. Do đó, để đơn giản, chúng tôi chọn thời điểm ion hóa của electron tại thời điểm $t_0 \approx 0$ [9].

Một khía cạnh khác với trường hợp ở trạng thái cơ bản $|1s\rangle$ nữa, đó là electron ở trạng thái Rydberg $|6s\rangle$ ở cách rất xa hạt nhân. Hình 3b mô tả phân bố mật độ của electron khi nguyên tử H bị kích thích ở trạng thái Rydberg $|6s\rangle$. Electron có thể phân bố trong bán kính từ 0 đến 110 a.u. Do đó, theo công thức (8) và kết hợp giả thiết thời điểm ion hóa $t_0 \approx 0$ [9], động năng của electron tích lũy được khi chuyển động tự do trong trường laser chỉ còn phụ thuộc vào vị trí ban đầu của electron. Điều này khác với trường hợp electron ở trạng thái $|1s\rangle$ - động năng electron trong miền tự do chỉ phụ thuộc vào thời điểm ion hóa, do vị trí ion hóa của electron được giả thiết $z_0 = 0$.

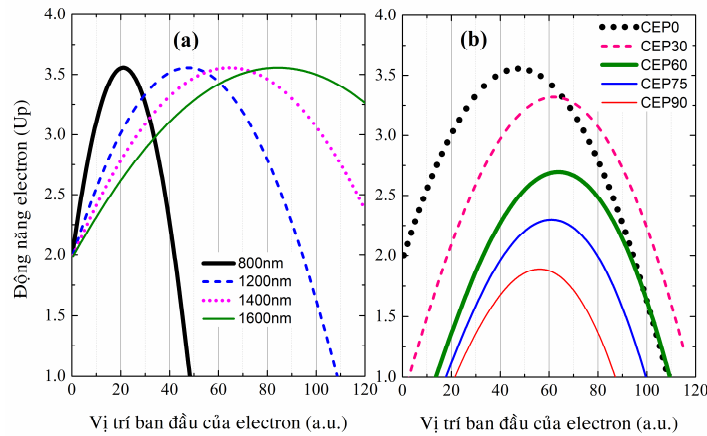


Hình 3. (a) Tổng thể năng của nguyên tử tại thời điểm $0.015T_0$ của laser có $CEP = 90^\circ$ và năng lượng liên kết của electron tại trạng thái $|6s\rangle$;

(b) Phân bố mật độ electron theo bán kính của nguyên tử hydro ở trạng thái $|6s\rangle$

Hình 4 biểu diễn động năng của electron thu được trong trường laser nếu nó bị ion hóa từ vị trí ban đầu z_0 . Với laser độ dài xung hai chu kỳ, có $CEP = 0^0$ và bước sóng 800nm (Hình 4a), electron đạt động năng cực đại $3.55U_p$ nếu vị trí ban đầu của electron là $z_0 = 21$ a.u. Khi tăng dần bước sóng laser, động năng cực đại không đổi ($3.55U_p$), tuy nhiên, ứng với vị trí ban đầu z_0 tăng dần. Mô phỏng bằng mô hình cổ điển này phù hợp với kết quả HHG bằng tính số TDSE với điểm dừng ~ 87 eV, tương ứng với $I_p + 3.58U_p$ (Hình 1b).

Để nghiên cứu ảnh hưởng của CEP lên vị trí điểm dừng của phổ HHG phát ra từ nguyên tử H ở trạng thái chồng chập giữa trạng thái cơ bản và trạng thái Rydberg, chúng tôi mô phỏng động năng của electron thu được trong trường laser với CEP khác nhau (Hình 4b). Mô hình cổ điển cho thấy càng tăng CEP của laser, động năng cực đại của electron càng giảm. Quy luật điểm dừng cụ thể cho từng CEP được trình bày trên Bảng 2. So sánh với kết quả thu được từ TDSE, dễ dàng nhận thấy mô hình cổ điển chỉ phù hợp với CEP < 75°. Còn với CEP > 75° năng lượng của photon ứng với điểm dừng giảm dần bằng mô phỏng cổ điển, nhưng ngược lại, tăng dần bằng phương pháp giải số TDSE.



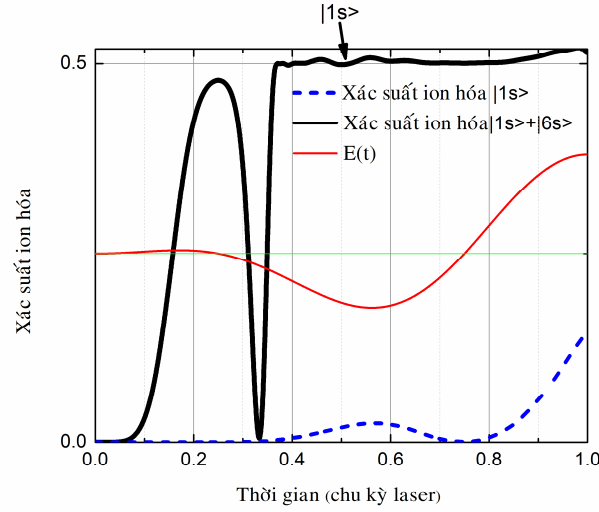
Hình 4. Sự phụ thuộc của động năng của electron vào vị trí ban đầu của electron.

Laser tương tác có độ dài xung 2 chu kỳ,

(a) CEP = 0° và bước sóng khác nhau; (b) bước sóng 1200 nm và CEP khác nhau.

Để giải quyết mâu thuẫn trên, chúng tôi biểu diễn xác suất ion hóa của nguyên tử H ở trạng thái chồng chập $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle)$ khi tương tác với laser có CEP = 90° (Hình 5). Đồ thị cho thấy, electron từ trạng thái $|6s\rangle$ bị ion hóa hết trước $0.37T_0$. Theo mô phỏng cổ điển, những electron bị ion hóa từ trạng thái Rydberg $|6s\rangle$ sẽ cho năng lượng cực đại $1.89U_p$ (tương ứng năng lượng HHG 51 eV). Sau đó, trong khoảng thời gian $0.4T_0$ đến $0.6T_0$, trạng thái $|1s\rangle$ bắt đầu bị ion hóa và theo mô phỏng cổ điển, những electron thoát ra từ trạng thái cơ bản $|1s\rangle$ sẽ cho động năng cực đại $3.14U_p$, tương ứng năng lượng điểm dừng 74 eV (hình 2b). Lưu ý rằng, điểm dừng gây ra bởi electron bị ion hóa từ trạng thái $|1s\rangle$ lớn hơn so với điểm dừng do electron bị ion hóa từ trạng thái $|6s\rangle$. Hơn nữa, theo [8], cường độ phổ HHG đóng góp bởi electron bị ion hóa từ trạng thái kích thích lớn hơn rất nhiều so với cường độ HHG gây ra bởi electron thoát ra từ trạng thái cơ bản. Do đó, trong phổ HHG tính toán bằng TDSE (Hình 1b), có hai điểm dừng ứng với hai miền phẳng có

cường độ khác nhau. Miền phẳng thứ nhất với điểm dừng $I_p + 1.89U_p$ gây ra bởi electron bị ion hóa từ trạng thái kích thích, và điểm dừng $I_p + 3.14U_p$ do electron bị ion hóa từ trạng thái cơ bản. Với $CEP = 75^\circ$, hiện tượng xảy ra tương tự với $CEP = 90^\circ$. Như vậy, chúng tôi kết luận rằng, với $CEP > 75^\circ$, sự tham gia của electron được ion hóa từ trạng thái cơ bản $|1s\rangle$ là nguyên nhân làm tăng năng lượng điểm dừng trong phổ HHG.



Hình 5. Xác suất ion hóa của nguyên tử ở trạng thái cơ bản $|1s\rangle$ và trạng thái chổng chập

$$\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle) \text{ khi tương tác với laser có bước sóng } 1200\text{nm}, CEP=90^\circ.$$

Xác suất ion hóa từ trạng thái $|1s\rangle$ được nhân lên 3 lần cho dễ nhìn.

Đường biểu diễn cường độ laser được dịch lên theo chiều dọc để dễ quan sát.

Đường nằm ngang màu xanh thể hiện điện trường bằng 0.

Như vậy, bằng mô hình cổ điển mô tả chuyển động của electron trong điện trường của laser, chúng tôi đã giải thích thành công quy luật phụ thuộc của vị trí điểm dừng của phổ HHG vào CEP của laser.

4. Kết luận

Bằng phương pháp giải số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian, chúng tôi đã tính được phổ HHG của nguyên tử H ở trạng thái cơ bản $|1s\rangle$ và nguyên tử Rydberg ở trạng thái $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle)$ khi tương tác với laser có CEP khác nhau. Kết quả cho thấy, quy luật của điểm dừng của phổ HHG phụ thuộc vào CEP của laser. Khi nguyên tử ở trạng thái cơ bản $|1s\rangle$, năng lượng điểm dừng tăng dần khi tăng CEP. Trong trường hợp nguyên tử ở

trạng thái $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle)$, năng lượng điểm dừng giảm dần khi tăng CEP của laser từ 0° đến 60° ; sau đó tăng dần khi CEP $> 75^\circ$. Để giải thích ảnh hưởng của CEP laser lên điểm dừng của phổ HHG, chúng tôi đã dùng mô hình cổ điển mô tả động năng của electron chuyển động trong điện trường của laser. Mô phỏng cổ điển phù hợp tốt với kết quả tính số từ TDSE. Lưu ý rằng, trong trường hợp nguyên tử Rydberg $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle)$ tương tác với laser có CEP $> 75^\circ$, sự tham gia của electron bị ion hóa từ trạng thái cơ bản đã làm tăng năng lượng điểm dừng. Như vậy, chúng tôi đã giải thích thành công sự ảnh hưởng của CEP lên vị trí điểm dừng trong phổ HHG của nguyên tử hydro ở trạng thái cơ bản và trạng thái chồng chập $\frac{1}{\sqrt{2}}(|1s\rangle + |6s\rangle)$. Đây sẽ là cơ sở để chúng tôi mở rộng nghiên cứu ảnh hưởng của CEP lên định luật tỉ lệ theo bước sóng của hiệu suất HHG phát ra từ nguyên tử Rydberg.

- ❖ **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 Trường Đại học Sư phạm Thành phố Hồ Chí Minh qua đề tài mã số CS2017.19.49. Các tác giả chân thành cảm ơn TS Hoàng Văn Hưng – Khoa Vật lí, Trường Đại học Sư phạm Thành phố Hồ Chí Minh đã hỗ trợ kĩ thuật giải TDSE tính phổ HHG.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] 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(3), p. 2117, 1994.
- [2] P. B. Corkum, “Plasma perspective on strong field multiphoton ionization.pdf,” *Phys. Rev. Lett.*, 71(13), p. 1994, 1993.
- [3] M. Lein, N. Hay, R. Velotta, J. P. Marangos and P. L. Knight, “Interference effects in high-order harmonic generation with molecules,” *Phys. Rev. A*, 66(2), p. 023805, 2002.
- [4] J. Itatani et al., “Tomographic imaging of molecular orbitals,” *Nature*, 432(7019), p. 867, 2004.
- [5] M. Lein, “Attosecond probing of vibrational dynamics with high-harmonic generation,” *Phys. Rev. Lett.*, 94(5), p. 053004, 2005.
- [6] P. C. Li, C. Laughlin, and S. I. Chu, “Generation of isolated sub-20-attosecond pulses from He atoms by two-color midinfrared laser fields,” *Phys. Rev. A*, 89(2), p. 023431, 2014.

-
- [7] E. Goulielmakis, "Single-Cycle Nonlinear Optics," *Science*, 320, p. 1614, 2008.
- [8] B. Wang, T. Cheng, X. Li, P. Fu, S. Chen and J. Liu, "Pulse-duration dependence of high-order harmonic generation with coherent superposition state," *Phys. Rev. A*, 72(6), p. 063412, 2005.
- [9] Z. Zhai, Q. Zhu, J. Chen, Z. C. Yan, P. Fu and B. Wang, "High-order harmonic generation with Rydberg atoms by using an intense few-cycle pulse," *Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys.*, 83(4), p. 043409, 2011.
- [10] Z. Zhai, J. Chen, Z. C. Yan, P. Fu and B. Wang, "Direct probing of electronic density distribution of a Rydberg state by high-order harmonic generation in a few-cycle laser pulse," *Phys. Rev. A*, 82(4), p. 043422, 2010.
- [11] J. Chen *et al.*, "Frequency-selected enhancement of high-order-harmonic generation by interference of degenerate rydberg states in a few-cycle laser pulse," *Phys. Rev. A*, 86(3), p. 033417, 2012.
- [12] H. K. Avetissian and G. F. Mkrtchian, "Multiphoton resonant excitation of atoms in strong laser fields and implementation of coherent superposition states," *Phys. Rev. A*, 66(3), p. 033403, 2002.
- [13] J. C. Light, I. P. Hamilton and J. V. Lill, "Generalized discrete variable approximation in quantum mechanics," *J. Chem. Phys.*, 82(3), p. 1400, 1985.
- [14] X. Tong and S. Chu, "Theoretical study of multiple high-order harmonic generation by intense ultrashort pulsed laser fields: A new generalized pseudospectral time-dependent method," *Chem. Phys.*, 217, p. 119, 1997.
- [15] G. G. Paulus, W. Becker, W. Nicklich, and H. Walther, "Rescattering effects in above-threshold ionization: a classical model," *J. Phys. B*, 27, p. 703, 1994.