



## **KHẢO SÁT ẢNH HƯỞNG CỦA PHÂN CỰC ĐỘNG LỖI-ELECTRON LÊN SÓNG ĐIỀU HÒA BẬC CAO CỦA PHÂN TỬ CO<sub>2</sub>**

*Lê Thị Cẩm Tú<sup>1,2\*</sup>, Phan Thị Ngọc Loan<sup>3</sup>, Hoàng Văn Hưng<sup>3</sup>*

<sup>1</sup> Trường Đại học Tôn Đức Thắng

<sup>2</sup> Trường Đại học Khoa học Tự nhiên – ĐHQG TP.HCM

<sup>3</sup> Trường Đại học Sư phạm Thành phố Hồ Chí Minh

Ngày nhận bài: 13-11-2018, ngày nhận bài sửa: 23-11-2018, ngày duyệt đăng: 21-12-2018

### **TÓM TẮT**

Chúng tôi nghiên cứu lý thuyết về ảnh hưởng của phân cực động lõi-electron lên sự phát xạ sóng điều hòa bậc cao của phân tử đối xứng CO<sub>2</sub> bằng cách giải số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian trong gần đúng một electron hoạt động. Dựa vào việc phân tích quy luật từ tốc độ ion hóa, ảnh hưởng của phân cực động lõi-electron được dự đoán là làm thay đổi không đáng kể cường độ HHG của phân tử CO<sub>2</sub>. Các kết quả tính toán HHG cũng cho thấy ảnh hưởng của phân cực động lõi-electron nhìn chung là không đáng kể nhưng sẽ có ảnh hưởng lớn đến cường độ của những bậc xảy ra hiệu ứng giao thoa.

**Từ khóa:** sóng điều hòa bậc cao, hiệu ứng giao thoa, phân cực động lõi-electron.

### **ABSTRACT**

#### ***Investigation of the influence of dynamic core-electron polarization on high-order harmonic generation of CO<sub>2</sub> molecules***

We theoretically investigate the influence of dynamic core-electron polarization on high-order harmonic generation from CO<sub>2</sub> molecules by solving numerically the time-dependent Schrödinger equation within the single active electron approximation. Based on the analysis of the ionization rate, one can predict that the influence of dynamic core-electron polarization is insignificant for the HHG intensity of CO<sub>2</sub>. The result shows that the dynamic core-electron polarization strongly affects on the harmonic orders occurring the interference effect.

**Keywords:** high-order harmonics, interference effect, dynamic core-electron polarization.

### **1. Mở đầu**

Sự phát xạ sóng điều hòa bậc cao (HHG) là một hiệu ứng quang phi tuyến xảy ra khi vật chất tương tác với laser cường độ cao xung cực ngắn [1]. Để khảo sát lý thuyết quá trình này, chúng ta cần giải phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian (TDSE) của hệ khi tương tác với trường điện của laser. Bài toán này chỉ có nghiệm chính xác trong một số trường hợp đơn giản, còn với nguyên tử hay phân tử phức tạp người ta thường sử dụng các phương pháp gần đúng như sử dụng gần đúng một electron hoạt động (SAE) [2] - [4] hoặc

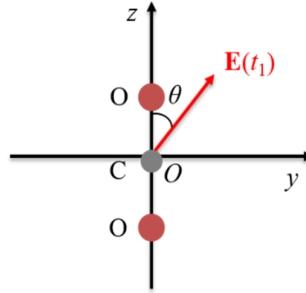
\* Email: lethicamtu@tdtu.edu.vn

phương pháp Hartree Fock đa cấu hình phụ thuộc thời gian (MCTDHF) [5], lý thuyết nhiễu loạn mật độ phụ thuộc thời gian (TDDFT) [6]. Hoặc đơn giản hơn là giải bài toán theo hướng tiếp cận mô hình như mô hình Lewenstein [2]. Mỗi phương pháp đều có thể mạnh và điểm yếu riêng. Tùy vào hệ vật lý, mục đích khảo sát và yêu cầu về độ chính xác mà người ta sử dụng phương pháp phù hợp. Như một số công trình gần đây đã chỉ ra rằng với phân tử phân cực như CO, chúng ta phải tính đến hiệu ứng nhiễu loạn electron hoặc phải tính đến phân cực động lõi-electron (DCEP) khi sử dụng gần đúng SAE thì mới mô tả được kết quả ion hóa thu được từ thực nghiệm [6], [7]. Cũng trong công trình [7], bằng cách sử dụng gần đúng SAE khi giải phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian, các tác giả đã cho thấy DCEP có ảnh hưởng quan trọng đối với xác suất ion hóa (tại thời điểm tắt xung laser) của phân tử CO nhưng không đáng kể đối với một số phân tử thẳng như NO, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, và CO<sub>2</sub>. Với quá trình phát xạ HHG, DCEP làm thay đổi cường độ HHG phát ra từ phân tử CO tùy theo sự định hướng của phân tử trong trường laser [8]. Sự thay đổi này được giải thích là do sự thay đổi tốc độ (xác suất) ion hóa tại thời điểm mà nếu electron bị ion hóa tại thời điểm đó thì sẽ phát ra photon ứng với năng lượng điểm dừng khi tái kết hợp với ion mẹ [9]. Như vậy, câu hỏi đặt ra là nếu DCEP ảnh hưởng không đáng kể đến sự ion hóa của các phân tử không phân cực thì liệu nó có ảnh hưởng đến quá trình phát xạ HHG của các phân tử đó chẳng hạn như CO<sub>2</sub> hay không?

Chúng tôi sẽ trả lời câu hỏi trên bằng cách giải số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian trong gần đúng một electron hoạt động theo mô hình tính toán và phương pháp được nêu trong công trình [9]. Trong đó, hàm sóng phụ thuộc thời gian của TDSE được khai triển theo hệ hàm cơ sở là các nghiệm của phương trình Schrödinger dừng, các hệ số khai triển phụ thuộc thời gian thu được bằng cách giải số bằng phương pháp Runge-Kutta bậc bốn. Một số điểm chính của phương pháp tính toán sẽ được trình bày trong phần tiếp theo, còn nội dung chi tiết có thể tham khảo trong [9].

## 2. Mô hình và phương pháp tính toán lý thuyết

Phân tử CO<sub>2</sub> được định phương trên trục  $z$ , xung laser có vector phân cực nằm trong mặt phẳng  $yOz$  (xem Hình 1). Để khảo sát vai trò của quá trình ion hóa lên sự phát xạ HHG, chúng tôi sử dụng xung laser cực ngắn chỉ chứa ba chu kỳ quang học (độ dài xung  $\tau = 3T$ ) sao cho quá trình ion hóa và tái kết hợp xảy ra trong chu kỳ thứ hai. Khi đó, góc định phương được định nghĩa là góc hợp bởi trục phân tử và vector điện trường của laser tại thời điểm  $t_1$  [9] (sẽ nói rõ sau). Do tính đối xứng của phân tử nên chúng tôi chỉ khảo sát các góc định phương từ  $0^\circ$  đến  $90^\circ$ .



**Hình 1.** Mô hình tính toán HHG khi phân tử  $\text{CO}_2$  tương tác với xung laser cực ngắn

Trong định chuẩn dài và gần đúng lưỡng cực, phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian của hệ khi tương tác với laser phân cực thẳng  $\mathbf{E}(t)$  (trong hệ đơn vị nguyên tử  $e = m_e = \hbar = 1$ ) có dạng sau

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, t) = \left\{ -\frac{\hat{\mathbf{p}}^2}{2} + V_{\text{SAE}}(\mathbf{r}) + V_{\text{L}}(\mathbf{r}, t) + V_{\text{P}}(\mathbf{r}, t) \right\} \Psi(\mathbf{r}, t), \quad (1)$$

trong đó,  $V_{\text{SAE}}(\mathbf{r})$  là thế năng một electron hoạt động của phân tử, được xây dựng theo công trình [4],  $V_{\text{L}}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t)$  là thế năng tương tác của electron hoạt động với điện trường của laser. Trong công trình này, chúng tôi sử dụng xung laser có dạng sau

$$E(t) = E_{\text{max}} \sin^2\left(\frac{\pi t}{\tau}\right) \sin\left(\omega_0 t - \frac{\pi}{2}\right), \quad (2)$$

với  $E_{\text{max}}$  là biên độ cực đại của điện trường laser và  $\omega_0$  là tần số của laser. Còn số hạng  $V_{\text{P}}(\mathbf{r}, t)$  là thế phân cực khi xét đến ảnh hưởng của phân cực động lõi-electron được tạo ra bởi các electron còn lại và hạt nhân phân tử dưới tác dụng của trường laser [6]

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

với  $\hat{\alpha}_c$  là tensor phân cực lõi-electron dưới tác dụng của trường điện laser. Giá trị của tensor này được tham khảo trong công trình [7].

Phương trình (1) được giải theo phương pháp được nêu trong công trình [3] bằng phương pháp Runge-Kutta bậc bốn với các thông số mô phỏng có thể tham khảo trong [9].

Sau khi tìm được nghiệm của TDSE, cường độ HHG được tính theo gia tốc lưỡng cực [10] như sau

$$S(\omega) \propto \left| \int_0^{\tau} \frac{d^2}{dt^2} \langle \mathbf{r}(t) \rangle e^{-i\omega t} dt \right|^2, \quad (4)$$

trong đó,  $\omega$  là tần số HHG,  $\langle \mathbf{r}(t) \rangle = \langle \Psi(\mathbf{r}, t) | \mathbf{r} | \Psi(\mathbf{r}, t) \rangle$  là trị trung bình của moment lưỡng cực phân tử.

Để giải thích sự ảnh hưởng của DCeP lên sự phát xạ HHG, chúng ta cần tính được tốc độ ion hóa theo thời gian [11]

$$\Gamma(t) = -\frac{d[\ln P_b(t)]}{dt}, \quad (5)$$

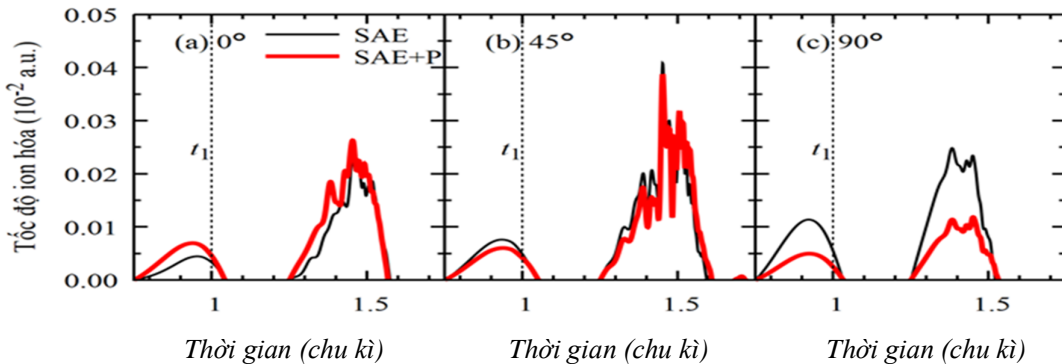
trong đó,  $P_b(t)$  là xác suất ở trạng thái liên kết của phân tử.

### 3. Kết quả

#### 3.1. Dự đoán ảnh hưởng của DCeP lên cường độ HHG dựa vào tốc độ ion hóa phân tử $CO_2$

Trong công trình này, chúng tôi mô phỏng sóng điều hòa bậc cao của phân tử  $CO_2$  khi tương tác với xung laser cực ngắn chứa ba chu kỳ quang học, điện trường được cho bởi công thức (2), bước sóng  $\lambda_0 = 800$  nm (tương ứng với  $\omega_0 = 0.057$  a.u.) và cường độ  $I_0 = 2 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> (tương ứng với  $E_{\max} = 0.0755$  a.u.). Các kết quả được tính trong hai trường hợp: Không tính đến DCeP và tính đến DCeP bằng cách bỏ qua hoặc tính đến thế phân cực (3), kí hiệu lần lượt là SAE và SAE+P.

Trước hết, dựa vào quy luật về mối liên hệ giữa sự tăng, giảm cường độ HHG và tốc độ ion hóa được rút ra cho phân tử CO [9], chúng tôi cũng khảo sát tốc độ ion hóa phân tử theo công thức (5) trong khoảng thời gian  $\Delta t$  từ thời điểm ion hóa,  $t_1 \approx T$ , đến thời điểm tái kết hợp  $t_2 = 1.5T$  [9]. Trong đó,  $t_1$  là thời điểm mà nếu electron bị ion hóa tại thời điểm đó thì khi quay trở về tái kết hợp sẽ phát ra photon với tần số ứng với vị trí điểm dừng. Kết quả thể hiện trên Hình 2 cho thấy tốc độ ion hóa của phân tử  $CO_2$  tại thời điểm  $t_1$  gần như không thay đổi khi tính đến DCeP. Tuy nhiên, chúng ta có thể nhận thấy DCeP sẽ giảm dần ảnh hưởng khi góc định phương tăng dần từ  $0^\circ$  đến  $90^\circ$ . Từ đó, ta có thể đưa ra dự đoán rằng cường độ HHG khi tính đến DCeP sẽ giảm khi góc định phương tăng, nhưng sự giảm này sẽ rất nhỏ so với trường hợp không tính đến DCeP.



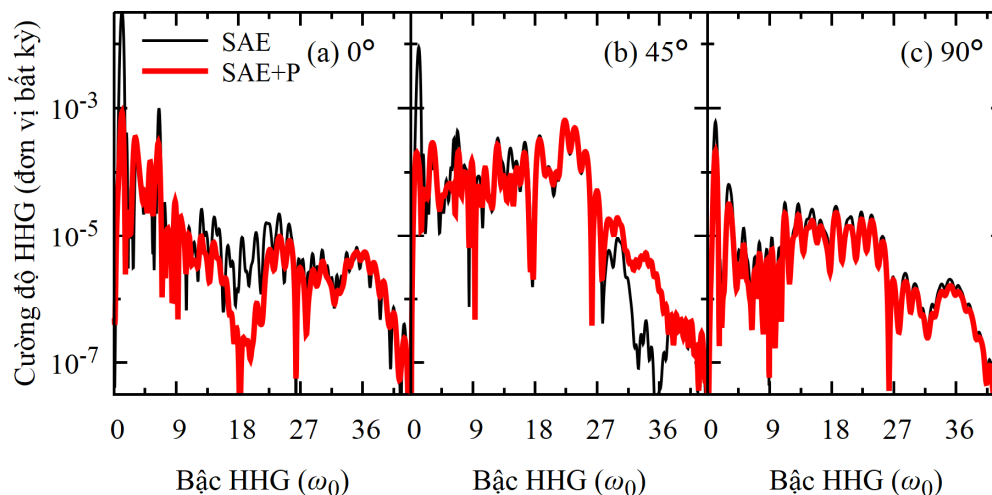
**Hình 2.** Tốc độ ion hóa của phân tử  $CO_2$  theo các góc định phương khác nhau từ  $0^\circ$  đến  $90^\circ$  trong khoảng thời gian  $\Delta t$  trong gần đúng SAE (đường mảnh màu đen) và SAE+P (đường đậm màu đỏ). Thời điểm  $t_1$  được đánh dấu bằng đường nét đứt thẳng đứng.

### 3.2. Vai trò của DCEP trong quá trình phát xạ HHG của phân tử CO<sub>2</sub>

Phổ HHG của phân tử CO<sub>2</sub> thể hiện trong Hình 3 có dạng đặc trưng của một phổ HHG: Giảm nhanh ở những tần số nhỏ, sau đó HHG có cường độ gần như không đổi trong miền phẳng và kết thúc miền phẳng tại điểm dừng. Trước hết, vị trí điểm dừng ở bậc 37, phù hợp với dự đoán của công thức bán cổ điển [2]:  $\omega_{\text{cutoff}} = 3.17U_p + 1.32I_p$ .

Điểm đặc biệt trong phổ HHG của CO<sub>2</sub> là có sự xuất hiện của các cực tiểu giao thoa phụ thuộc rất mạnh vào góc định phương  $\theta$  [12]. Theo dự đoán của mô hình giao thoa hai tâm [12] thì tại góc định phương  $\theta = 0^\circ$ , cực tiểu xuất hiện ở bậc 18 và ở bậc 36 khi góc  $\theta = 45^\circ$ . Với các góc định phương lớn hơn thì cực tiểu giao thoa không còn quan sát được trong miền phẳng HHG nữa.

Điểm đáng chú ý tiếp theo là khi tính đến DCEP, cực tiểu giao thoa trong phổ HHG sẽ sâu hơn do sự biến dạng vận đạo phân tử tại thời điểm tái kết hợp dưới tác dụng của trường laser [13]. Như vậy, về cường độ, sự dự đoán ảnh hưởng DCEP dựa vào tốc độ ion hóa tại thời điểm  $t_1$  không hoàn toàn đúng trong toàn miền năng lượng của phổ HHG. Dự đoán này cũng không hoàn toàn đúng cho mọi góc định phương. Chúng ta có thể dễ dàng nhận thấy đối với góc  $\theta = 45^\circ$ , cường độ HHG tại gần cực tiểu khi tính đến DCEP lại cao hơn so với khi không tính đến DCEP. Điều này có thể giải thích là do bậc xảy ra giao thoa khi tính đến DCEP lớn hơn nên đã vượt ra khỏi miền phẳng, trong khi bậc giao thoa trong SAE xảy ra ở gần điểm dừng. Cả hai trường hợp sự giao thoa đều xảy ra quanh điểm dừng dẫn đến sự suy thoái điểm dừng [14], [15].



**Hình 3.** Phổ HHG của phân tử CO<sub>2</sub> với các góc định phương khác nhau: (a) 0°, (b) 45°, (c) 90° trong hai trường hợp SAE (đường mảnh màu đen) và SAE+P (đường đậm màu đỏ)

#### 4. Kết luận

Như vậy, bằng cách giải phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian trong gần đúng một electron hoạt động, chúng tôi đã tính toán và khảo sát ảnh hưởng của phân cực động lõi-electron lên sự phát xạ sóng điều hòa bậc cao của phân tử đối xứng CO<sub>2</sub>. Các kết quả thu được chỉ ra rằng với phân tử đối xứng CO<sub>2</sub>, DCeP chỉ có ảnh hưởng lớn lên cường độ HHG tại các bậc xảy ra hiệu ứng giao thoa. Điều này có thể được giải thích là do sự biến dạng của vân đạo phân tử tại thời điểm tái kết hợp dưới tác dụng của trường laser. Các nghiên cứu có thể được mở rộng cho các phân tử thẳng đơn giản khác để có được những kết luận phổ quát hơn về sự ảnh hưởng của phân cực động lõi-electron lên quá trình phát xạ sóng điều hòa bậc cao của phân tử.

- ❖ **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 Quỹ phát triển Khoa học và Công nghệ Quốc gia (NAFOSTED) cho đề tài mã số 103.01-2017.371. Chúng tôi xin được cảm ơn GS TSKH Lê Văn Hoàng đã có những góp ý và thảo luận cho nghiên cứu này.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer and C. K. Rhodes, “Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases,” *J. Opt. Soc. Am. B*, *4*, pp. 595-601, 1987.
- [2] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L’Huillier and P. B. Corkum, “Theory of high-harmonic generation by low frequency laser fields,” *Phys. Rev. A*, *49*, pp. 2117-2132, 1994.
- [3] M. Awasthi, Y. V. Vanne, A. Saenz, A. Castro and P. Decleva, “Single active-electron approximation for describing molecules in ultrashort laser pulses and its application to molecular hydrogen,” *Phys. Rev. A*, *77*, pp. 063403-17, 2008.
- [4] M. Abu-samha and L. B. Madsen, “Single-active-electron potentials for molecules in intense laser fields,” *Phys. Rev. A*, *81*, pp. 033416-6, 2010.
- [5] M. A. L. Marques and E. K. U. Gross, “Time-dependent density functional theory,” *Annu. Rev. Phys. Chem.*, *55*, pp. 427-455, 2004.
- [6] B. Zhang, J. Yuan and Z. Zhao, “Dynamic core polarization in strong field ionization of CO molecules,” *Phys. Rev. Lett.*, *111*, pp. 163001-5, 2013.
- [7] V.-H. Hoang, S.-F. Zhao, V.-H. Le and A.-T. Le, “Influence of permanent dipole and dynamic core-electron polarization on tunneling ionization of polar molecules,” *Phys. Rev. A*, *95*, pp. 023407-8, 2017.
- [8] B. Zhang, J. Yuan and Z. Zhao, “Dynamic orbitals in high-order harmonic generation from CO molecules,” *Phys. Rev. A*, *90*, pp. 035402-5, 2014.

- [9] C.-T. Le, V.-H. Hoang, L.-P. Tran, and V.-H. Le, "Effect of the dynamic core-electron polarization of CO molecules on high-order harmonic generation," *Phys. Rev. A*, *97*, pp. 043405-8, 2018.
- [10] K. Burnett, V. C. Reed, J. Cooper and P. L. Knight, "Calculation of the background emitted during high-harmonic generation," *Phys. Rev. A*, *45*, pp. 3347-3349, 1992.
- [11] D. A. Telnov, K. Nasiri Avanaki and S.-I. Chu, "Subcycle transient structures in time-dependent multiphoton-ionization rates," *Phys. Rev. A*, *90*, pp. 043404-5, 2014.
- [12] M. Lein, N. Hay, R. Velotta, J. P. Marangos, and P. L. Knight, "Role of the intramolecular phase in high-harmonic generation," *Phys. Rev. Lett.*, *88*, pp. 183903-4, 2002.
- [13] M. D. Spiewanowski, A. Etches, and L. B. Madsen, "High-orderharmonic generation from field-distorted orbitals," *Phys. Rev. A*, *87*, pp. 043424-5, 2013.
- [14] C. Vozzi, M. Negro, F. Calegari, G. Sansone, M. Nisoli, S. De Silvestri and S. Stagira, "Generalized molecular orbital tomography," *Nat. Phys.*, *7*, pp. 822-826, 2011.
- [15] M. Qin, X. Zhu, Y. Li, Q. Zhang, P. Lan and P. Lu, "Interference of high-order harmonics generated from molecules at different alignment angles," *Phys. Rev. A*, *89*, pp. 013410-5, 2014.