

# ẢNH HƯỞNG CỦA DAO ĐỘNG HẠT NHÂN LÊN VỊ TRÍ ĐIỂM GIAO THOA CỰC TIỂU TRONG PHỔ SÓNG ĐIỀU HÒA BẬC CAO CỦA PHÂN TỬ $H_2^+$

PHAN THỊ NGỌC LOAN<sup>\*</sup>,  
LÊ NGUYỄN MINH PHƯƠNG<sup>\*\*</sup>, TRẦN TUẤN ANH<sup>\*\*\*</sup>

## TÓM TẮT

*Bằng việc giải số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian, chúng tôi thu được phổ sóng điều hòa bậc cao phát ra từ phân tử  $H_2^+$  đang dao động tương tác với chùm laser cường độ cao nhằm khảo sát vị trí điểm giao thoa cực tiểu. Kết quả cho thấy khi hạt nhân dao động, cường độ sóng điều hòa đạt cực tiểu tại bậc nhỏ hơn so với khi hạt nhân cố định. Ngoài ra, pha của sóng điều hòa sẽ nhảy pha một góc xấp xỉ bằng  $\pi$  radian khi đi qua một góc định phương “tới hạn” khi xét đến dao động hạt nhân.*

**Từ khóa:** laser cường độ cao, sóng điều hòa bậc cao, dao động phân tử, giao thoa, khoảng cách liên hạt nhân.

## ABSTRACT

### *Effects of nuclear vibration on positions of the destructive interference in high-order harmonic generation spectra of $H_2^+$*

*By solving numerically the time-dependent Schrödinger equation, we obtain the high-order harmonic spectra emitted from the vibrating molecule  $H_2^+$  exposed to an intense laser pulse in order to investigate the positions of the destructive interference. The results show that with nuclear motion, the intensity of the harmonic is minimized at the harmonic order less than that in case of fixed nucleus. Besides, the phase of harmonic of vibrating molecule undergoes a jump by about  $\pi$  radians at a “critical orientation angle”.*

**Keywords:** ultrashort intense laser, high-harmonic generation, vibrating molecule, interference, internuclear separation.

## 1. Giới thiệu

Trong vài thập kỷ trở lại đây, tương tác giữa laser xung siêu ngắn, cường độ cao với nguyên tử, phân tử là một trong những hướng nghiên cứu sôi động, thu hút sự tham gia của nhiều nhóm nghiên cứu trên thế giới. Tương tác này dẫn đến một số hiệu ứng phi tuyến tính và phi nhiễu loạn như kích thích phát xạ sóng điều hòa bậc cao (high-order harmonic generation - HHG) [1], hiệu ứng phân li trên ngưỡng (above-threshold

<sup>\*</sup> TS, Trường Đại học Sư phạm TPHCM; Email: loan2vietnam@gmail.com

<sup>\*\*</sup> SV, Trường Đại học Sư phạm TPHCM

<sup>\*\*\*</sup> TS, Trường Đại học Sư phạm Kỹ thuật TPHCM

dissociation - ATD) và ion hóa tăng cường do cộng hưởng điện tích (resonance-enhanced ionization- CREI) [2]. Trong đó phổ HHG là kết quả của tương tác giữa điện tử sau khi ion hóa xuyên hầm khỏi nguyên tử, phân tử với ion mẹ [1], có độ phân giải thời gian thang atto giây được xem như là nguồn cung cấp thông tin đáng tin cậy về cấu trúc của nguyên tử, phân tử.

Khi bức tranh tương tác giữa laser với nguyên tử dựa vào mô hình gần đúng một điện tử (Single Active Electron approximation - SAE) khá hoàn chỉnh, các nhà khoa học tiếp tục phát triển bài toán đối với nguyên tử nhiều điện tử và phân tử. Tuy nhiên, vì phân tử có nhiều bậc tự do hơn so với nguyên tử nên khi tính HHG cho phân tử sẽ phức tạp hơn. Việc sử dụng mô hình gần đúng ba bước để tính HHG cho phân tử sẽ làm giảm đáng kể khối lượng tính toán này. Bên cạnh phương pháp trên, một phương pháp khác cũng đang phát triển là phương pháp giải chính xác bằng số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian (the Time – Dependent Schrödinger Equation – viết tắt là TDSE). Tuy nhiên, phương pháp này đòi hỏi nhiều tài nguyên máy tính nên hiện nay mới chỉ được áp dụng đối với các phân tử đơn giản như  $H_2, H_2^+, H_3^{2+}$ .

Bằng phương pháp giải TDSE cho phân tử  $H_2^+$  và  $H_2$  khi tương tác với trường laser, Lein và các cộng sự [3,4] đã phát hiện rằng trong phổ sóng điều hòa bậc cao xuất hiện bậc HHG mà tại đó cường độ HHG đạt cực tiểu, vị trí điểm cực tiểu này không phụ thuộc vào thông số laser. Khảo sát sự phụ thuộc cường độ HHG vào góc định phương [3] chỉ ra rằng, tồn tại một góc định phương “tới hạn” mà tại đó, cường độ HHG đạt cực tiểu. Hơn nữa, tại góc định phương này có sự nhảy pha HHG gần bằng  $\pi$  radian. Các công trình thực nghiệm đã được tiến hành với phân tử  $CO_2$  nhằm quan sát hiện tượng giao thoa [5]. Năm 2008, Chen và Liu [6] đã tính toán HHG cho phân tử với khoảng cách liên hạt nhân lớn sử dụng phương pháp gần đúng trường mạnh. Các tác giả đã chỉ ra rằng với khoảng cách liên hạt nhân lớn, trong biểu thức tính cường độ HHG chứa thành phần phụ thuộc vào trường ngoài, do đó vị trí điểm giao thoa cực đại và giao thoa cực tiểu trong phổ HHG nhạy với thông số laser tương tác ví dụ như cường độ.

Tuy nhiên, trong các công trình trên, để đơn giản bài toán, các tác giả đã giả thiết rằng hạt nhân phân tử đứng yên, và bỏ qua thành phần dao động của hạt nhân. Khảo sát vị trí điểm giao thoa từ dữ liệu phổ HHG của phân tử tính đến chuyển động hạt nhân mới được quan tâm trong một vài công trình gần đây [7,8]. Nghiên cứu lý thuyết bằng phương pháp bán cổ điển [7] đã dự đoán rằng vị trí điểm giao thoa bị biến mất khỏi phổ phát xạ HHG khi xét đến dao động hạt nhân. Tuy nhiên, bằng phương pháp thực nghiệm Baker và các cộng sự [8] đã đưa ra kết luận rằng hiệu ứng dao động hạt nhân của phân tử  $H_2$  là nguyên nhân khiến cho hiện tượng giao thoa được quan sát đối với những sóng điều hòa có tần số thấp hơn so với trường hợp hạt nhân phân tử bị “đóng băng”. Để giải quyết những mâu thuẫn trên, trong công trình này, chúng tôi tiến hành

nghiên cứu lí thuyết ảnh hưởng của dao động hạt nhân lên vị trí điểm giao thoa cực tiểu trong phổ phát xạ sóng điều hòa bậc cao của phân tử  $H_2^+$ .

Nhằm mục đích trên, chúng tôi sử dụng phương pháp giải số TDSE kết hợp gần đúng Born – Oppenheimer (BO) để tính toán hàm sóng phụ thuộc thời gian của phân tử  $H_2^+$  khi tương tác với laser, từ đó tính được phổ HHG tương ứng với từng bậc dao động  $\nu$  của hạt nhân. Từ dữ liệu cường độ và pha HHG, chúng tôi khảo sát vị trí điểm giao thoa cực tiểu khi hạt nhân cố định, và hạt nhân dao động với các trạng thái khác nhau.

Bố cục bài báo được chia làm bốn phần chính. Sau phần mở đầu, chúng tôi giới thiệu phương pháp TDSE cho phân tử  $H_2^+$  và phương pháp trích xuất thông tin khoảng cách liên hạt nhân từ dữ liệu vị trí điểm giao thoa cực tiểu. Phần ba trình bày các kết quả thu được về ảnh hưởng của dao động hạt nhân lên vị trí điểm giao thoa cực tiểu. Cuối cùng là phần kết luận.

## 2. Phương pháp

Trong phần này, chúng tôi sẽ giới thiệu phương pháp TDSE để tính HHG của phân tử  $H_2^+$  khi hạt nhân đứng yên và khi hạt nhân dao động. Đồng thời phương pháp trích xuất thông tin khoảng cách giữa hai hạt nhân cũng sẽ được đề cập đến.

### 2.1. Phương pháp TDSE cho phân tử $H_2^+$

Trong thực nghiệm, một chùm laser yếu thường dùng để định phương phân tử, sau đó, chiếu chùm laser mạnh lệch góc  $\theta$  so với phương của phân tử để khảo sát HHG. Do vậy, trong công trình này để giảm khối lượng tính toán, chúng tôi chọn mô hình hai chiều cho hệ điện tử và một chiều cho hạt nhân phân tử  $H_2^+$ . Phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian cho nguyên tử  $H_2^+$  khi tương tác với trường laser có dạng (trong hệ đơn vị nguyên tử  $\hbar = e = m_e = 1$ )

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(x, y, R, t) = \left( -\frac{\partial^2}{2\partial x^2} - \frac{\partial^2}{2\partial y^2} - \frac{\partial^2}{2\mu\partial R^2} + V_C(x, y, R) + V_L(x, y, t) \right) \Psi(x, y, R, t), \quad (1)$$

trong đó:  $x, y$  là tọa độ của điện tử đối với khối tâm của hạt nhân,  $R$  là khoảng cách liên hạt nhân,  $\mu$  là khối lượng rút gọn của hai hạt nhân. Thế năng Coulomb của hệ  $V_C(x, y, R)$  có dạng

$$V_C(x, y, R) = \frac{1}{R} - \frac{1}{\sqrt{\left(x - \frac{R}{2}\right)^2 + y^2 + \varepsilon(R)}} - \frac{1}{\sqrt{\left(x + \frac{R}{2}\right)^2 + y^2 + \varepsilon(R)}}. \quad (2)$$

Trị số “ $\varepsilon(R)$ ” gọi là thế soft-Coulomb, được thêm vào biểu thức thế năng Coulomb nhằm tránh điểm kỳ dị. Thế soft-Coulomb này được lựa chọn sao cho năng lượng cơ bản của ion  $H_2^+$  trong mô hình đang xét tương ứng với thế năng phân tử thực. Ở trạng thái cân bằng, khoảng cách liên hạt nhân của ion phân tử  $H_2^+$  là  $R = 2.0$  a.u.

Thế năng tương tác giữa phân tử với trường laser  $V_L(x, y, t)$  được viết trong gần đúng định chuẩn dài có dạng

$$V_L(x, y, t) = (x \cos \theta + y \sin \theta) E(t) = (x \cos \theta + y \sin \theta) E_0 f(t) \sin(\omega_0 t), \quad (3)$$

trong đó:  $\theta$  được gọi là góc định phương – góc tạo bởi vectơ phân cực của laser và trục phân tử;  $E_0$ ,  $\omega_0$  lần lượt là cường độ điện trường cực đại và tần số của xung laser,  $f(t)$  là hàm bao của laser có dạng hàm sin bình phương.

Phương trình TDSE được giải bằng phương pháp tách toán tử [9]. Theo đó, hàm sóng  $\Psi(x, y, R, t)$  của hệ tại thời điểm  $t$  khi tương tác với laser được giải số bằng cách tác dụng toán tử tiến hóa theo thời gian lên hàm sóng ban đầu  $\Psi(x, y, R, t = 0)$  khi chưa tương tác với laser

$$\Psi(x, y, R, t) = \exp\left[-i \int_0^t \hat{H} dt\right] \Psi(x, y, R, t = 0). \quad (4)$$

Trong công trình này, chúng tôi áp dụng gần đúng BO để tìm hàm sóng ban đầu khi chưa tương tác với laser của ion phân tử  $H_2^+$ . Với mỗi mức dao động hạt nhân đặc trưng bởi chỉ số lượng tử  $\nu$ , hàm sóng được viết dưới dạng

$$\Psi(x, y, R, t = 0) = \varphi(x, y, R) \chi_\nu(R), \quad (5)$$

trong đó:  $\varphi(x, y, R)$ ,  $\chi_\nu(R)$  lần lượt là hàm sóng của điện tử và của hạt nhân dao động. Hàm sóng điện tử  $\varphi(x, y, R)$  được xác định bằng phương pháp thời gian ảo [10] – giải phương trình Schrödinger của điện tử chuyển động ứng với mỗi khoảng cách liên hạt nhân  $R$  xác định

$$\left(-\frac{\partial^2}{2\partial x^2} - \frac{\partial^2}{2\partial y^2} + V_c(x, y, R)\right) \varphi(x, y, R) = E_e(R) \varphi(x, y, R). \quad (6)$$

Hàm sóng của hạt nhân  $\chi_\nu(R)$  được xác định bằng phương pháp thời gian ảo để giải phương trình Schrödinger khi xem hạt nhân chuyển động trong hố thế của điện tử

$$\left(-\frac{\partial^2}{2\mu \partial R^2} + E_e(R)\right) \chi_\nu(R) = E \chi_\nu(R). \quad (7)$$

Trong công trình này, chúng tôi sử dụng lưới số tính toán  $400$  a.u.  $\times 400$  a.u. cho chuyển động của điện tử, và đối với hạt nhân từ  $0.2$  a.u đến  $10.2$  a.u.

Gia tốc lưỡng cực được cho bởi  $\mathbf{a}(t) = -\mathbf{E} - \langle \psi | \nabla V_c | \psi \rangle$ . Cường độ sóng điều hòa bậc cao HHG theo vectơ phân cực  $\mathbf{n}$  tại một tần số  $\omega$  được tính bằng phép biến đổi Fourier từ không gian thời gian vào không gian tần số của gia tốc lưỡng cực

$$I(\omega) = \left| \int \mathbf{a}(t) \cdot \mathbf{n} e^{i\omega t} dt \right|^2. \quad (8)$$

Để thuận tiện trong việc quan sát điểm giao thoa cực tiểu trong phổ sóng điều hòa bậc cao, chúng tôi tiến hành làm trơn phổ theo công thức

$$I_{smooth}(\omega) = \int I(\varpi) e^{-\frac{(\omega-\varpi)^2}{\sigma^2}} d\varpi, \quad (9)$$

trong đó, giá trị của phương sai  $\sigma = 3\omega_0$ . Phổ sau khi được làm trơn thể hiện HHG trung bình, đại lượng được đo từ thực nghiệm.

## 2.2. Hiệu ứng giao thoa điện tử trong phổ sóng điều hòa bậc cao

Khi hạt nhân phân tử được coi như cố định, với một góc định phương cụ thể, trong miền phẳng của phổ HHG tồn tại một bậc HHG mà tại đó cường độ HHG đạt cực tiểu. Đây là dấu hiệu của hiệu ứng giao thoa điện tử và được Lein giải thích thành công bằng mô hình giao thoa hai tâm [3,4]. Vị trí điểm giao thoa cực tiểu từ phổ HHG cho phép trích xuất thông tin cấu trúc phân tử, cụ thể là khoảng cách giữa hai hạt nhân từ hệ thức Bragg

$$R \cos \theta = (2n+1) \frac{\lambda}{2}, \quad (10)$$

trong đó:  $n = 0, 1, 2, \dots$  là bậc giao thoa;  $\lambda$  là bước sóng điện tử quay trở về tái kết hợp với ion mẹ.

Khoảng cách liên hạt nhân ứng với bậc HHG xảy ra giao thoa  $N$  được biểu diễn bằng biểu thức

$$R = \frac{(2n+1)\pi}{\cos \theta \sqrt{2N\omega_0}}. \quad (11)$$

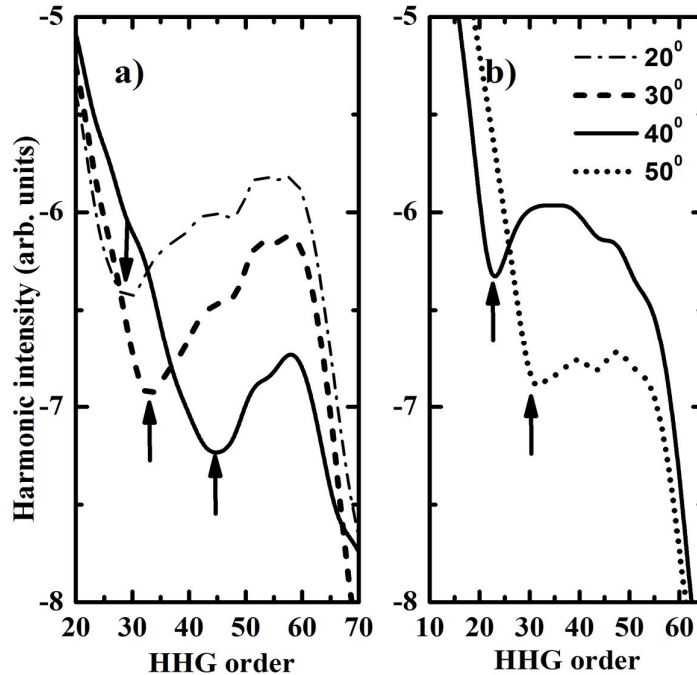
## 3. Kết quả

Trong phần này, chúng tôi sẽ trình bày kết quả về vị trí điểm giao thoa cực tiểu khi hạt nhân cố định và hạt nhân dao động khi thay đổi thông số laser: cường độ, độ dài xung.

Kết quả tính toán sự phụ thuộc của cường độ HHG vào bậc HHG của phân tử  $H_2^+$  ứng với các góc định phương khác nhau khi hạt nhân cố định và khi xét đến dao động hạt nhân được trình bày trên hình 1. Do tính đối xứng của hàm sóng điện tử của phân tử  $H_2^+$  nên chúng tôi chỉ khảo sát phổ HHG với góc định phương từ  $0^\circ$  đến  $90^\circ$  với bước nhảy là  $10^\circ$ . Để thuận tiện hơn trong việc theo dõi vị trí điểm giao thoa cực tiểu, chúng

tôi chỉ minh họa phổ HHG sau khi được lấy trung bình theo công thức (9). Laser sử dụng có cường độ  $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , bước sóng 800 nm, độ dài xung 21 fs (tương đương 8 chu kỳ).

Từ hình 1, chúng tôi nhận thấy đặc trưng của phổ không thay đổi khi hạt nhân dao động: sau khi giảm dần ở những tần số đầu, cường độ HHG gần như không đổi ở một miền của tần số được gọi là miền phẳng và kết thúc ở một điểm dừng, sau đó cường độ HHG giảm đi đột ngột. Tuy nhiên, khi hạt nhân đứng yên là vị trí điểm dừng là bậc 59 (hình 1a), còn khi hạt nhân dao động với  $\nu=1$  vị trí điểm dừng là bậc 53 (hình 1b). Khảo sát với laser có thông số khác nhau, chúng tôi thu được kết quả tương tự. Điều này được giải thích là khi hạt nhân dao động làm cho khoảng cách liên hạt nhân tăng, do đó, điện tử dễ dàng ion xuyên hầm ra miền liên tục [11] nên vị trí điểm dừng giảm. Như vậy, khi hạt nhân dao động, vị trí điểm dừng trong phổ HHG giảm so với trường hợp hạt nhân đứng yên.



**Hình 1.** Phổ HHG của phân tử  $H_2^+$  ứng với góc định phương từ  $20^\circ$  đến  $50^\circ$  khi hạt nhân cố định (a) và hạt nhân dao động với  $\nu=1$  (b). Mũi tên chỉ vị trí điểm giao thoa cực tiểu. Laser có cường độ  $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , bước sóng 800 nm, độ dài xung 21 fs

Trong miền phẳng của phổ HHG, có một bậc HHG mà tại đó cường độ sóng điều hòa đạt cực tiểu – điểm giao thoa cực tiểu. Chúng tôi nhận thấy với góc định phương càng lớn, vị trí điểm giao thoa cực tiểu càng dịch về phía bên phải của miền phẳng, hay bậc HHG càng tăng. Kết luận này không chỉ đúng đối với trường hợp hạt nhân đứng

yên, mà còn phù hợp trong trường hợp hạt nhân dao động. Cụ thể trong hình 1a khi hạt nhân cố định, vị trí điểm giao thoa ứng với góc định phương  $20^0$ ,  $30^0$  và  $40^0$  lần lượt là 29, 33 và 45. Khi hạt nhân dao động với  $\nu = 1$ , bậc HHG xảy ra giao thoa cực tiểu là 23 đối với góc định phương  $40^0$  và 31 đối với góc  $50^0$  (hình 1b). Với góc định phương lớn hơn  $50^0$ , vị trí điểm giao thoa cực tiểu vượt ra khỏi miền phẳng, do vậy không quan sát được trên phổ HHG.

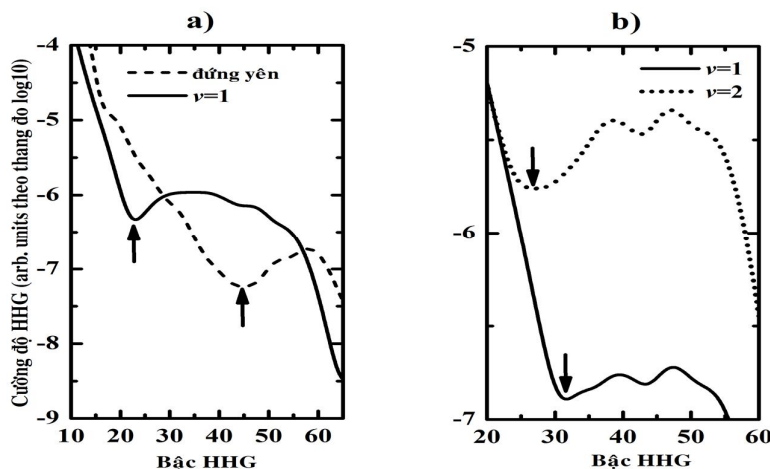
Thông tin vị trí điểm giao thoa điện tử trong phổ HHG cho phép trích xuất thông tin khoảng cách liên hạt nhân. Theo công thức Bragg (10,11) chúng tôi thu được giá trị khoảng cách giữa hai hạt nhân R cho trường hợp hạt nhân đứng yên từ dữ liệu HHG của phân tử  $H_2^+$  khi tương tác với laser có cường độ  $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , bước sóng 800nm, độ dài xung 21 fs. Kết quả được thể hiện trên bảng 1. Giá trị R thu được có giá trị  $1,83 \pm 0,01$  a.u. Mặt khác theo lý thuyết  $R = 2.0$  a.u. Như vậy sự khác biệt giữa giá trị lý thuyết và giá trị khoảng cách liên hạt nhân trích xuất từ dữ liệu phổ HHG là 8,5%. Sự khác biệt này nhỏ, do vậy, dữ liệu giao thoa điện tử cực tiểu từ phổ HHG và mô hình giao thoa hai tâm là đáng tin cậy.

**Bảng 1.** Khoảng cách liên hạt nhân của phân tử  $H_2^+$  khi tương tác với laser có cường độ  $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , bước sóng 800 nm, độ dài xung 21 fs

$\theta$	$0^0$	$10^0$	$20^0$	$30^0$	$40^0$
$N_{\text{HHG}}$	26	27	29	33	45
R (a.u.)	1,82	1,82	1,84	1,87	1,81

Để so sánh vị trí điểm giao thoa cực tiểu khi hạt nhân dao động với các trạng thái dao động khác nhau, phổ HHG của phân tử  $H_2^+$  khi hạt nhân đứng yên và dao động với  $\nu = 1$  ứng với góc định phương  $40^0$  được minh họa trên hình 2a, còn khi hạt nhân dao động với  $\nu = 1$  và  $\nu = 2$  với góc định phương  $50^0$  được biểu diễn trên hình 2b. Chúng tôi nhận thấy với cùng một góc định phương, khi hạt nhân dao động vị trí điểm giao thoa cực tiểu dịch về phía bên trái so với trường hợp hạt nhân đứng yên. Bậc HHG, tại đó xảy ra cực tiểu trong phổ HHG khi hạt nhân đứng yên là 45, còn khi hạt nhân dao động với  $\nu = 1$  là 23 (hình 2a). Ngoài ra, bậc dao động của hạt nhân càng cao, bậc HHG xảy ra giao thoa càng nhỏ. Với góc định phương  $50^0$ , khi hạt nhân dao động với  $\nu = 1$ , bậc giao thoa là 31, còn với  $\nu = 2$  vị trí điểm cực tiểu là 27. Kết quả trên có thể được giải thích dựa vào mô hình giao thoa hai tâm. Khi hạt nhân dao động, khoảng cách liên hạt nhân lớn hơn so với trường hợp hạt nhân đứng yên, do đó theo công thức Bragg (10) bậc HHG xảy ra giao thoa khi hạt nhân dao động nhỏ hơn so với khi hạt nhân đứng yên. Ngoài ra, hạt nhân dao động càng mạnh mẽ, khoảng cách liên hạt nhân càng tăng mạnh nên để thỏa mãn điều kiện giao thoa hai tâm, bước sóng của điện tử quay về tái kết hợp với ion mẹ phải tăng, do đó năng lượng điện tử thu được khi di chuyển trong miền liên tục tỉ lệ với bậc HHG giảm. Khi hạt nhân dao động, chúng tôi chỉ trình

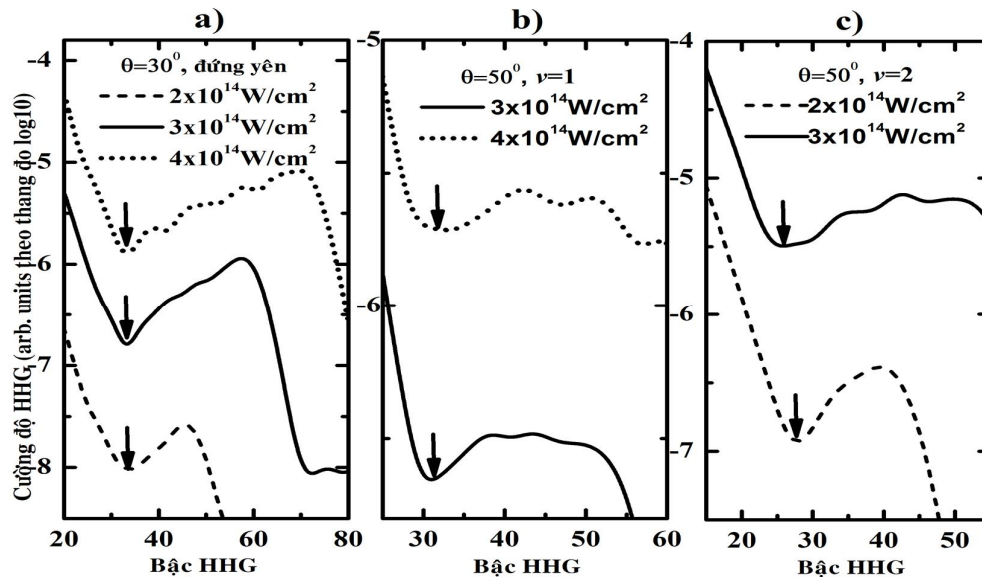
bày trường hợp  $\nu=1,2$  vì với trạng thái  $\nu=0$  xác suất ion hóa rất nhỏ ( $<1\%$ ) nên đồ thị HHG thu được không có đặc trưng cơ bản của phổ. Ngoài ra, mô hình giao thoa hai tâm chỉ thỏa mãn khi khoảng cách giữa hai tâm nhỏ, mặt khác, khi hạt nhân dao động với bậc cao  $\nu > 2$ , khoảng cách liên hạt nhân phân li nhanh [11] dẫn đến vi phạm điều kiện giao thoa. Do đó, khi  $\nu > 2$ , dấu hiệu giao thoa điện tử không còn nhận biết được từ phổ HHG.



**Hình 2.** Phổ HHG của phân tử  $H_2^+$  ứng với góc định phương  $40^\circ$  (a) và  $50^\circ$  (b) khi hạt nhân dao động với các trạng thái khác nhau. Laser được sử dụng có thông số giống hình 1.

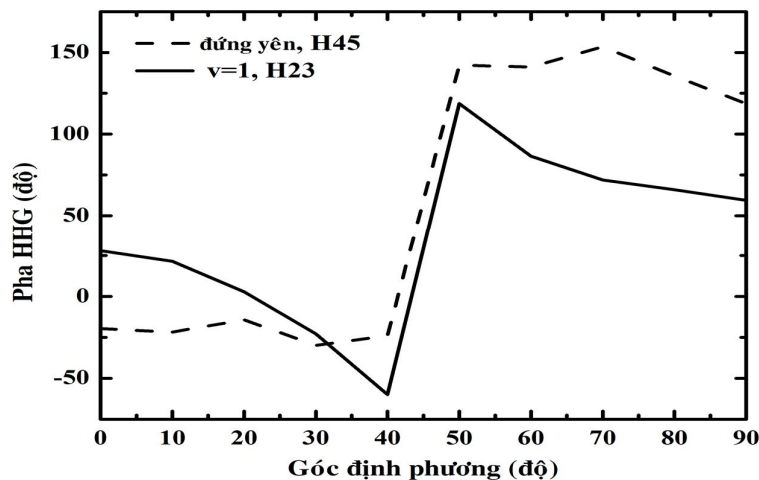
Tiếp theo, chúng tôi khảo sát sự phụ thuộc của vị trí điểm giao thoa cực tiểu vào thông số cường độ laser. Hình 3 thể hiện kết quả cho các cường độ  $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ,  $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  và  $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ . Với cường độ laser cao hơn, điểm giao thoa cực tiểu hầu như không xuất hiện trong phổ HHG. Nguyên nhân là do khi cường độ laser tương tác càng lớn, hai hạt nhân phân li càng nhanh, nên vi phạm điều kiện cần của mô hình giao thoa hai tâm. Chúng tôi nhận thấy, khi hạt nhân đứng yên, với góc định phương bằng  $30^\circ$  vị trí điểm giao thoa cực tiểu là 33 (hình 3a) và không phụ thuộc vào cường độ laser. Điều này đã được chứng minh trước đó trong công trình [3,4]. Tương tự, khi hạt nhân dao động với  $\nu=1$ , bậc HHG tại điểm cực tiểu là 31 khi góc định phương là  $50^\circ$  (hình 3b). Còn khi hạt nhân dao động với  $\nu=2$ , vị trí giao thoa khi cường độ laser bằng  $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  là bậc 28, còn khi cường độ laser bằng  $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$  bậc HHG tại điểm cực tiểu là 26. Như vậy, vị trí điểm giao thoa cực tiểu hầu như không thay đổi khi thay đổi thông số cường độ laser. Kết quả khảo sát với laser có độ dài xung khác nhau cũng cho kết quả tương tự.





**Hình 3.** Phổ HHG của phân tử  $H_2^+$  khi tương tác với laser có bước sóng 800 nm, độ dài xung 27 fs và cường độ khác nhau. Xét các trường hợp: hạt nhân phân tử đứng yên (a); dao động với  $\nu=1$  (b) và với  $\nu=2$  (c)

Một trong những phương pháp nhận biết vị trí điểm giao thoa cực tiểu là đo pha của HHG. Chúng tôi khảo sát pha HHG khi thay đổi góc định phương ứng với một bậc HHG cụ thể cho trường hợp hạt nhân đứng yên và khi hạt nhân dao động.



**Hình 4.** Sự phụ thuộc của pha HHG vào góc định phương cho bậc 45 khi hạt nhân phân tử đứng yên, và bậc 23 khi hạt nhân phân tử dao động với  $\nu=1$ . Laser được sử dụng có thông số giống hình 1.

Kết quả xét riêng cho bậc 45 khi hạt nhân phân tử đứng yên, và bậc 23 khi hạt nhân phân tử dao động với  $v=1$  được minh họa trên hình 4. Chúng tôi nhận thấy khi thay đổi góc định phương, pha của HHG thay đổi không nhiều, tuy nhiên, tại “góc tới hạn”  $\theta = 40^\circ$  pha của HHG đột ngột thay đổi một góc bằng  $\pi$ . Mặt khác, khi góc định phương bằng  $40^\circ$ , bậc HHG xảy ra hiện tượng giao thoa khi hạt nhân đứng yên là 45, còn khi hạt nhân dao động với  $v=1$  là 23 (hình 2a). Kết quả khảo sát pha của HHG cho các bậc HHG xảy ra hiện tượng giao thoa cực tiểu khác cho kết quả tương tự. Như vậy, với một bậc HHG cụ thể, pha của HHG sẽ nhảy pha một góc xấp xỉ bằng  $\pi$  radian khi đi qua một “góc tới hạn”. Tính chất này không chỉ đúng cho trường hợp hạt nhân đứng yên, mà còn phổ quát cho trường hợp hạt nhân dao động.

#### 4. Kết luận

Bằng phương pháp giải số TDSE, chúng tôi đã tính toán cường độ phổ HHG phụ thuộc vào bậc HHG của ion phân tử  $H_2^+$  khi hạt nhân đứng yên và khi hạt nhân dao động với các trạng thái khác nhau nhằm khảo sát vị trí điểm giao thoa cực tiểu. Khi tăng dần góc định phương của phân tử, vị trí điểm giao thoa cực tiểu càng dịch về phía bên phải của miền phẳng. Khi hạt nhân dao động càng mạnh mẽ, vị trí điểm giao thoa cực tiểu càng giảm. Mặt khác, với một bậc HHG cụ thể, pha của HHG sẽ nhảy pha một góc xấp xỉ bằng  $\pi$  radian khi đi qua một “góc tới hạn”. Kết quả này không chỉ đúng trong trường hợp hạt nhân cố định, mà còn được khẳng định khi hạt nhân dao động.

---

*Ghi chú:* Công trình này được thực hiện trong khuôn khổ đề tài nghiên cứu khoa học cấp cơ sở năm 2014 của Trường Đại học Sư phạm TP HCM, mã số CS2014.19.67.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. Lewenstein M., Balcou Ph., Ivanov M. Y., L’Huillier A., Corkum P. B. (1994), “Theory of High-Harmonic Generation by Low-Frequency Laser Fields”, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 2117.
2. Zuo T. and Bandrauk (1995), “Charge – resonance – enhanced ionization of diatomic molecular ions by intense lasers”, *Phys. Rev. A* **52**, R2511.
3. Lein M., Hay N., Velotta R., Marangos J.P., Knight P.L. (2002), “Role of the Intramolecular Phase in High-Harmonic Generation”, *Phys. Rev. Lett* **88**, 183903.
4. Lein M., Hay N., Velotta R., Marangos J.P., Knight P.L. (2002), “Interference effects in high-order harmonic generation with molecules”, *Phys. Rev. A* **66**, 023805.
5. Kanai T., Minemoto S., Sakai H. (2005), “Quantum interference during high-order harmonic generation from aligned molecules”, *Nature* **435**, 470.
6. Chen Y.J., Liu J. (2008), “High-order-harmonic generation from diatomic molecules with large internuclear distance: The effect of two-center interference”, *Phys. Rev. A* **77**, 013410.

7. Gonoskov I.A., Ryabikin M. Yu., Sergeev A.M. (2006), “High-order harmonic generation in light molecules: moving-nuclei semiclassical simulations”, *J.Phys.B:At.Mol.Opt.Phys.* **39**, S445-S455.
8. Baker S., Robinson J.S., Lein M., Chirilă C.C., Torres R., Bandulet H.C., Comtois D., Kieffer J.C., Villeneuve D.M., Tisch J.W.G., Marangos J.P. (2008), “Dynamic two-center interference in high-order harmonic generation from molecules with attosecond nuclear motion”, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 053901.
9. Feit M. D., Fleck J. A., and A Steiger (1982), “Solution of the Schrödinger equation by a spectral method”, *J. Comput. Phys.* **47**, 412-433.
10. Kosloff R., Tal-Ezer H. (1986), “A direct relaxation method for calculating eigenfunctions and eigenvalues of the Schrödinger equation on a grid”, *Chem. Phys. Lett.* **127**, 223-230.
11. Phan N. L., Truong T. C., Nguyen N. T. (2015), “Ionization and high-order harmonic generation from highly vibrational  $H_2^+$ ”, *Computational and Theoretical Chemistry* 1057 39–42.

(Ngày Tòa soạn nhận được bài: 22-4-2015; ngày phản biện đánh giá: 06-5-2015;  
ngày chấp nhận đăng: 18-5-2015)