

BIỂU HIỆN BẢO HÒA TRONG PHỔ SÓNG ĐIỀU HÒA BẬC CAO CỦA PHÂN TỬ H_2^+ DAO ĐỘNG

ĐỖ THỊ THU HÀ*, NGUYỄN NGỌC TY**

TÓM TẮT

Bằng việc giải số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian (TDSE - time-dependent Schrödinger equation), 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. Kết quả cho thấy, ứng với các bậc dao động hạt nhân thấp, khi phân tử H_2^+ dao động càng mạnh sóng điều hòa bậc cao phát ra có cường độ càng cao. Tuy nhiên với các bậc dao động cao, phổ sóng điều hòa cho thấy có sự bão hòa; cường độ sóng không thay đổi khi các mức dao động tiếp tục tăng.

Từ khóa: phương pháp TDSE, laser cường độ cao, sóng điều hòa bậc cao, dao động phân tử, giải số.

ABSTRACT

Saturation performance in high-order harmonic generation of vibrational molecule 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. The results show that with some first vibrational levels, harmonics generating from the molecule with a higher state are more intense. However, with highly vibrational levels, the harmonic spectra perform a saturation which implies that the intensity of harmonics does not change when molecular vibration level increases from a certain value.

Keywords: TDSE method, intense laser pulse, HHG, molecular vibration, numerical solution.

1. Giới thiệu

Trong hơn hai thập kỉ qua cùng với sự phát triển của kĩ thuật laser, các tương tác giữa chùm laser mạnh, xung ngắn với nguyên tử, phân tử đã được nghiên cứu rộng rãi [8, 10]. Một trong các nghiên cứu đó là sự phát xạ sóng điều hòa bậc cao (High-order Harmonic generation, viết tắt là HHG) [4]. HHG là hiệu ứng quang phi tuyến xảy ra trong quá trình tương tác giữa laser và nguyên tử, phân tử. Năm 1987, MCPerson và cộng sự đã lần đầu tiên thu được HHG có bậc 17, bước sóng 248nm trong khí neon

* HVCH, Trường Đại học Sư phạm TPHCM

** TS, Trường Đại học Sư phạm TPHCM

[12]. Năm 1994, Lewenstein đã đề xuất mô hình ba bước mang tên ông để giải thích sự phát xạ sóng điều hòa bậc cao với nguyên tử [11]. Theo đó, điện tử bị ion hóa theo phương thức xuyên hầm trong bước thứ nhất; trong bước tiếp theo điện tử sẽ bị gia tốc bởi trường điện của laser; cuối cùng, khi điện trường đổi chiều, điện tử bị kéo trở lại kết hợp với ion mẹ và phát ra photon, chính là HHG. Dựa trên mô hình này, các nhà khoa học đã mở rộng mô hình sự phát xạ sóng điều hòa bậc cao của phân tử trong tương tác với trường laser cực ngắn, cường độ cao [7]. Kết quả cho thấy cường độ HHG nhạy với sự thay đổi khoảng cách liên hạt nhân trong phân tử [15]. Trong công trình [7], các tác giả đã giả định rằng các hạt nhân trong phân tử đứng yên nên việc khảo sát ảnh hưởng của chuyển động hạt nhân lên cường độ HHG chưa được xét đến. Trong công trình [3], bằng cách thêm vào mô hình ba bước các hàm sóng mô tả chuyển động hạt nhân để khảo sát sự ảnh hưởng của chuyển động hạt nhân lên HHG. Kết quả cho thấy cường độ HHG phát ra nhạy với chuyển động của hạt nhân.

Ngoài mô hình gần đúng, một hướng tiếp cận khác khi nghiên cứu quá trình phát xạ này là giải chính xác bằng số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian (gọi là phương pháp TDSE). Năm 2005, Lein đề xuất về mặt lí thuyết rằng các tín hiệu sóng điều hòa trong các phân tử liên quan đến dao động hạt nhân và đã cung cấp thông tin về chuyển động hạt nhân từ nguồn sóng này [9]. Trong công trình [1], Baker và cộng sự đã thực hiện các thí nghiệm có độ chính xác cao thăm dò các chuyển động cực nhanh của các hạt nhân trong phân tử hai nguyên tử H_2 và D_2 , đồng thời với CH_4 và CD_4 từ phổ HHG. Trước đó, năm 2001, khi tính đến sự chuyển động của các hạt nhân, Qu và cộng sự đã thấy rằng sự ion hóa H_2^+ trong trường laser cường độ cao tăng lên đáng kể và các đỉnh sóng điều hòa riêng lẻ mở rộng so với các hạt nhân cố định [13]. Gần đây năm 2007, Shahbaz và cộng sự đã khám phá ra các tín hiệu đặc trưng hạt nhân trong sóng điều hòa của các nguyên tử hydro muonic và đơteri. Vị trí điểm dừng và cường độ HHG trong miền phẳng đều được tăng cường đáng kể với nguyên tử hydro muonic do khối lượng và kích thước hạt nhân của nó nhỏ so với nguyên tử đơteri muonic [14]. Các nghiên cứu này đã đề xuất rằng HHG sẽ có những thay đổi đáng kể khi xem xét chuyển động hạt nhân.

Các kết quả trên đã mở ra một mảng nghiên cứu mới về HHG khi có xem xét đến chuyển động hạt nhân. Năm 2008, Jing Zhao and Zengxiu Zhao đã nghiên cứu sự phụ thuộc của HHG vào các trạng thái dao động ban đầu $\nu = 0, 1, 2$ (ν là chỉ số lượng tử đặc trưng cho mức dao động hạt nhân) và mối tương quan giữa HHG với khoảng cách liên hạt nhân [16]. Cũng trong năm 2008, Baker và cộng sự đã nghiên cứu thực nghiệm về sự giao thoa hai tâm trong HHG của phân tử có xét đến chuyển động hạt nhân. Và các tác giả đã đưa ra kết luận rằng các dao động hạt nhân gây ra sự giao thoa xảy ra ở các bậc sóng điều hòa thấp hơn so với trường hợp hạt nhân đứng yên [2]. Năm 2010, Ya-Hui Guo và cộng sự cũng nghiên cứu về mối tương quan của HHG và các dao động

hạt nhân với các trạng thái $\nu = 0, 1, 2, 3$ của chuyển động hạt nhân. Các tác giả đã đưa ra nhận xét rằng khi các phân tử ban đầu trong trạng thái dao động cao hơn, hạt nhân dao động mãnh liệt, hiệu suất phát xạ của HHG được tăng cường [6]. Chính vì vậy, việc nghiên cứu sự ảnh hưởng của dao động hạt nhân lên HHG đang được phát triển rộng rãi và có ý nghĩa khoa học. Tuy nhiên, trong các bài báo [2, 6, 16], các tác giả mới chỉ khảo sát cho các trường hợp bậc dao động hạt nhân từ 0 đến 3 mà chưa khảo sát cho các bậc dao động cao hơn và đồng thời các tác giả mới chỉ đưa ra kết luận rằng chuyển động hạt nhân nhanh dẫn đến sự phát xạ sóng điều hòa được tăng cường nhưng chưa chỉ ra cụ thể sự phát xạ sóng điều hòa tăng như thế nào khi ν tăng.

Trong bài báo này, chúng tôi nghiên cứu ảnh hưởng của dao động hạt nhân lên HHG khi ion phân tử H_2^+ tương tác với chùm laser cường độ cao xung cực ngắn. Chúng tôi áp dụng phương pháp TDSE để tính HHG của H_2^+ với dao động hạt nhân bậc 0 đến 30 khi tương tác với nhiều trường laser có các thông số khác nhau để khảo sát sự phụ thuộc của HHG vào chỉ số ν đặc trưng cho dao động hạt nhân.

Bố cục bài báo gồm 3 phần: Trong phần 2 tiếp theo, chúng tôi giới thiệu về phương pháp TDSE cho H_2^+ với hạt nhân dao động từ đó tính HHG. Tiếp theo, trong phần 3, chúng tôi trình bày các kết quả thu được về sự phụ thuộc của HHG từ H_2^+ vào chỉ số dao động ν với các trường laser khác nhau. Cuối cùng, chúng tôi tóm lại các kết quả và thảo luận.

2. Phương pháp TDSE cho H_2^+ có xét đến dao động hạt nhân

Trong phần này, chúng tôi áp dụng phương pháp TDSE cho ion phân tử H_2^+ một chiều để tính HHG khi xét đến dao động hạt nhân. Phương trình Schrödinger cho ion phân tử H_2^+ tương tác với trường laser trong hệ đơn vị nguyên tử ($\hbar = e = m_e = 1$) được viết như sau:

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

Trong đó, z là tọa độ của điện tử, R là khoảng cách giữa hai hạt nhân, μ là khối lượng rút gọn của hai hạt nhân, $V_C(z, R)$ là thế Coulomb của hệ, $V(z, t)$ là thế năng tương tác giữa điện tử với trường laser. Để tránh điểm kỳ dị trong thế Coulomb, một hằng số sẽ được thêm vào, lúc này gọi là thế soft-Coulomb. Hằng số này sẽ được chọn sao cho năng lượng của hệ ứng với thế soft-Coulomb bằng với năng lượng của hệ thực. Đối với phân tử H_2^+ , chúng tôi chọn hằng số “soft-Coulomb” bằng 1. Do đó, thế Coulomb tương tác giữa điện tử và hạt nhân có dạng

$$V_c(z, R) = \frac{1}{R} - \frac{1}{\sqrt{\left(z - \frac{R}{2}\right)^2 + 1}} - \frac{1}{\sqrt{\left(z + \frac{R}{2}\right)^2 + 1}}. \tag{2}$$

Thế năng tương tác giữa điện tử với trường laser được viết bởi

$$V(z, t) = zE_0 f(t) \cos(\omega_0 t), \tag{3}$$

trong đó, E_0 , $f(t)$ và ω_0 lần lượt là cường độ điện trường cực đại, hàm bao và tần số của xung laser.

Nghiệm $\Psi(z, R, t)$ của phương trình (1) được viết dưới dạng

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

Trong bài báo này chúng tôi sẽ áp dụng phương pháp tách toán tử [5] để thu được hàm sóng phụ thuộc thời gian theo biểu thức (4), trong đó hàm sóng ở thời điểm ban đầu $\Psi(z, R, t = 0)$ khi chưa tương tác với laser.

Với gần đúng Born – Oppenheimer, hàm sóng ban đầu khi chưa tương tác với laser của ion phân tử H_2^+ với mức dao động hạt nhân đặc trưng bởi chỉ số lượng tử ν được viết dưới dạng

$$\Psi(z, R, t = 0) = \varphi(z, R) \chi_\nu(R). \tag{5}$$

Trong đó $\varphi(z, R)$, $\chi_\nu(R)$ lần lượt là hàm sóng của điện tử và hạt nhân dao động. Hàm sóng điện tử $\varphi(z, R)$ được xác định bằng phương pháp thời gian ảo giải phương trình Schrödinger của điện tử chuyển động ứng với mỗi khoảng cách hạt nhân R cố định

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

Sau khi giải phương trình Schrödinger này chúng tôi cũng thu được các trị riêng năng lượng của điện tử $E_e(R)$ và sử dụng năng lượng này ta giải phương trình Schrödinger cho hạt nhân

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

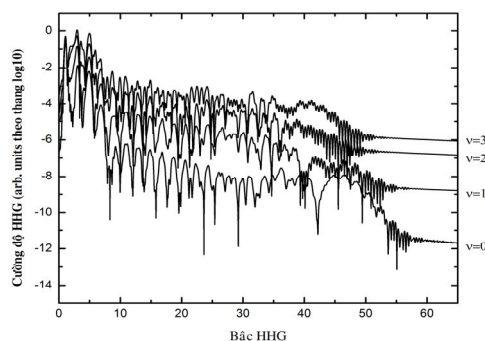
cũng bằng phương pháp thời gian ảo để thu được hàm sóng của hạt nhân dao động $\chi_\nu(R)$.

Sau khi thu được hàm sóng phụ thuộc thời gian, ta tính gia tốc của moment bởi biểu thức $a(t) = -E(t) - \langle \Psi(z, R, t) | \nabla V_C(z, R) | \Psi(z, R, t) \rangle$ và tín hiệu sóng điều hòa thu được bằng cách biến đổi Fourier $|a(\omega)|^2 = \left| \int a(t) e^{i\omega t} dt \right|^2$.

3. Kết quả

Trong phần này chúng tôi sẽ trình bày kết quả về sự phụ thuộc của HHG từ H_2^+ theo số lượng tử dao động ν của hạt nhân mà chúng tôi đã khảo sát với các laser cường độ, bước sóng và chu kỳ khác nhau.

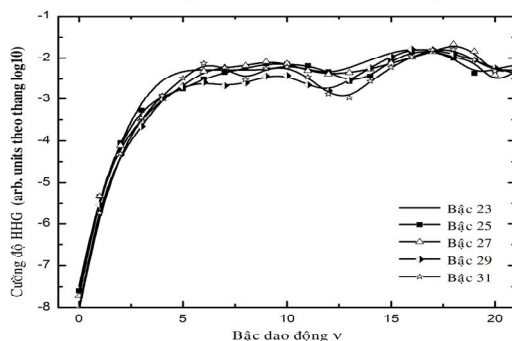
Sử dụng quy trình tính HHG như đã trình bày trong phần trên, chúng tôi tính cường độ HHG với các trạng thái ban đầu có mức dao động hạt nhân khác nhau. Kết quả cho thấy, các trạng thái ban đầu có mức dao động hạt nhân cao hơn sẽ phát ra HHG có cường độ cao hơn. Trong hình 1, chúng tôi trình bày kết quả HHG phát ra từ H_2^+ ứng với các mức dao động $\nu = 0, 1, 2, 3$ tương tác với xung laser cường độ $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, độ dài xung 13 fs (5 chu kỳ quang học), bước sóng 800 nm. Trong hình 1 ta thấy, cường độ HHG với $\nu = 1$ cao hơn khoảng hai bậc so với $\nu = 0$, nhưng với $\nu = 2$ cường độ HHG chỉ cao hơn $\nu = 1$ khoảng 1,5 bậc và khi $\nu = 3$ thì cường độ HHG chỉ tăng khoảng một bậc so với mức $\nu = 2$. Như vậy, với các bậc dao động ν càng tăng thì mức độ tăng của cường độ HHG càng giảm.



Hình 1. HHG của H_2^+ khi tương tác với xung laser cường độ $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, độ dài xung 13 fs, bước sóng 800 nm ứng với các mức dao động $\nu = 0, 1, 2, 3$

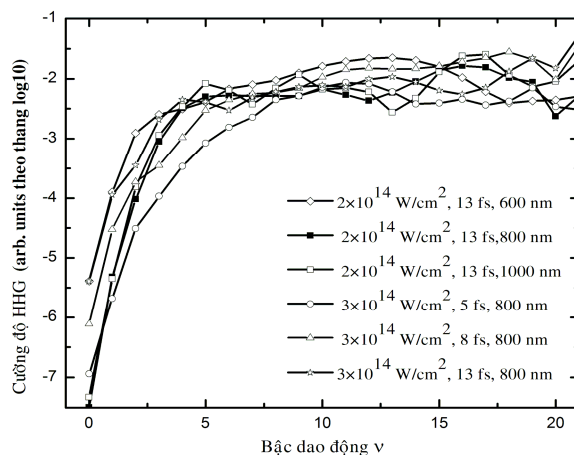
Chúng tôi tiếp tục tăng các chỉ số ν để khảo sát sự phụ thuộc cường độ HHG vào mức độ dao động hạt nhân. Theo kết quả được trình bày trong hình 2 ta thấy rằng khi ν tăng từ 0 đến 5, cường độ HHG tăng một cách tuyến tính. Tuy nhiên, với các chỉ số ν lớn hơn 5 ($5 < \nu \leq 21$) cường độ HHG gần như không thay đổi, có biểu hiện giống như

một quá trình bão hòa. Sự tăng tuyến tính với các bậc dao động nhỏ và biểu hiện bão hòa ở các bậc dao động ν lớn được kiểm chứng với tất cả các bậc trong miền phẳng của phổ HHG. Trong hình 2, chúng tôi chỉ vẽ sự phụ thuộc vào chỉ số dao động ν cho các bậc lẻ từ 23 đến 31.

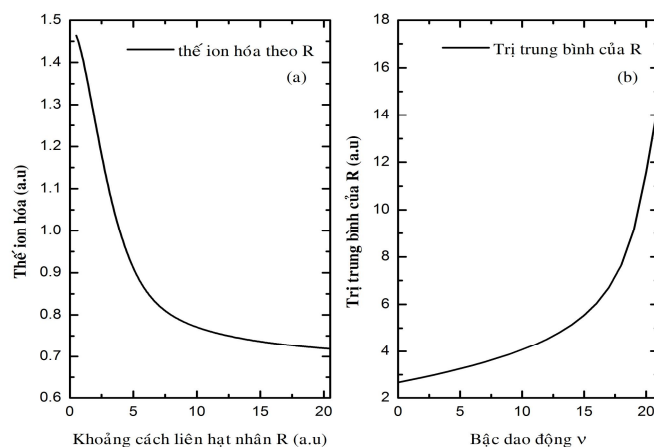


Hình 2. Sự phụ thuộc của HHG vào số lượng tử dao động ν của hạt nhân khi H_2^+ tương tác với xung laser cường độ $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, 13 fs, bước sóng 800 nm xét với các bậc HHG 23, 25, 27, 29, 31

Chúng tôi tiếp tục khảo sát hiện tượng này khi cho phân tử tương tác với các chùm laser có các thông số cường độ, độ dài xung và bước sóng khác nhau. Sự phụ thuộc của cường độ HHG vào số lượng tử dao động ν ở bậc 23 với các thông số laser khác nhau được thể hiện trong hình 3. Kết quả trên hình cho thấy hiện tượng đã đề cập vẫn xảy ra với trường hợp các thông số laser khác nhau. Điều này cho thấy sự tăng tuyến tính và bão hòa trong phổ HHG khi xét đến dao động hạt nhân là bản chất cấu trúc của phân tử.



Hình 3. Sự phụ thuộc của HHG vào số lượng tử dao động ν của hạt nhân khi H_2^+ tương tác với các xung laser với thông số khác nhau xét với các bậc HHG 23



Hình 4. a) Thế ion hóa của H_2^+ theo khoảng cách liên hạt nhân R
 b) Trị trung bình của khoảng cách liên hạt nhân R theo số lượng tử dao động v

Để giải thích hiện tượng trên, chúng tôi dựa vào ảnh hưởng của khoảng cách liên hạt nhân lên tốc độ ion hóa. Hình 4 biểu diễn sự phụ thuộc của thế ion hóa I_p của H_2^+ vào khoảng cách liên hạt nhân R và sự thay đổi của khoảng cách này khi hạt nhân ở trong các mức dao động cao hơn. Trong hình 4b, khi hạt nhân H_2^+ ở trong các trạng thái dao động cao hơn thì khoảng cách liên hạt nhân cũng sẽ tăng lên, tức là phân tử bị kéo giãn. Đồng thời trong hình 4a, ở giai đoạn đầu, chúng ta có thể thấy khi khoảng cách liên hạt nhân tăng thì tốc độ ion hóa giảm, khi đó hiệu suất phát xạ sóng điều hòa tăng. Điều này giải thích cho sự tăng tuyến tính của cường độ HHG với v từ 0 đến 5. Khi khoảng cách liên hạt nhân tăng tới một giới hạn nhất định thì thế ion hóa thay đổi không nhiều. Điều này có thể là nguyên nhân gây ra biểu hiện bão hòa của HHG ở các bậc dao động v lớn.

4. Kết luận

Chúng tôi đã sử dụng phương pháp giải số TDSE trong đó có áp dụng phương pháp thời gian ảo và phương pháp tách toán tử để khảo sát sự phụ thuộc của HHG vào bậc dao động v của hạt nhân với phân tử H_2^+ khi tương tác với các xung laser có cường độ, độ dài xung và chu kỳ khác nhau. Đối với các bậc dao động v nhỏ, khi bậc dao động v trong khoảng từ 0 đến 5 thì HHG tăng một cách tuyến tính. Đối với các bậc dao động v cao hơn, cường độ HHG gần như không thay đổi, có biểu hiện giống như một quá trình bão hòa. Hiện tượng này được chúng tôi giải thích dựa trên sự giảm của thế ion hóa khi hạt nhân phân tử ở các trạng thái dao động cao hơn. Như vậy, các kết quả thu được cho thấy sự tăng tuyến tính và đạt giá trị bão hòa trong phổ HHG nguyên nhân do bản chất cấu trúc năng lượng của phân tử khi xét đến dao động hạt nhân.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

1. 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.
2. 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., và Marangos J. P. (2008), “Dynamic Two-Center Interference in High-Order Harmonic Generation from Molecules with Attosecond Nuclear Motion”, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 053901.
3. Chirilă C. C. and Lein M. (2005), “High-order harmonic generation in vibrating molecules”, *Journal of Modern Optics* **53**, 113–124.
4. Corkum P.B. (1993), “Plasma Perspective on Strong Field Multiphoton Ionization”, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 1994.
5. 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.
6. Guo Y. H., He H. X., Liu J. Y., He G. Z. (2010), “Sensitivity of High-order Harmonic Generation to Nuclear Motion”, *Journal of Molecular Structure: THEOCHEM* **947**, 119.
7. Hay N., Velotta R., Lein M., de Nalda R., Heesel E., Castillejo M., and Marangos J. P. (2002), “High-order harmonic generation in laser-aligned molecules”, *Phys. Rev. A* **65**, 053805-8.
8. Kanai T., Takahashi E. J., Nabekawa Y., and Midorikawa K. (2008), “Observing molecular structures by using high-order harmonic generation in mixed gases”, *Phys. Rev. A* **77**, 041402(R)-4.
9. Lein M. (2005), “Attosecond Probing of Vibrational Dynamics with High-Harmonic Generation”, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 053004.
10. Lein M. (2007), “Molecular imaging using recolliding electrons”, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **40**, R135-R173.
11. 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.
12. McPherson A., Gibson G., Jara U., Johann H., Luk T. S., McIntyre I. A., Boyer K., and Rhodes C. K. (1987), “Studies of Multiphoton Production of Vacuum-ultraviolet Radiation in the Rare Gase”, *Journal of the Optical Society of America B* **4**(4), 595.
13. Qu W. X., Chen Z. Y., Xu Z. Z., Keitel C. H. (2001), “Nuclear Correlation in Ionization and Harmonic Generation of H_2^+ in Short Intense Laser Pulses”, *Phys. Rev. A* **65**, 013402.

14. Shahbaz A., Muller C., Staudt A., Burvenich T. J., and Keite C. H. (2007), “Nuclear Signatures in High-Order Harmonic Generation from Laser-Driven Muonic Atoms”, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 263901.
15. Zao T., Chelkowski S., Bandrauk A. D. (1993), “Harmonic generation by the H_2^+ molecular ion in intense laser fields”, *Phys. Rev. A* **48**, 3837.
16. Zhao J. and Zhao Z. (2008), “Probing H_2^+ Vibrational Motions with High-order Harmonic Generation”, *Phys. Rev. A* **78**, 053414.

(Ngày Tòa soạn nhận được bài: 05-6-2013; ngày phản biện đánh giá: 19-6-2013;
ngày chấp nhận đăng: 21-6-2013)