

SỰ PHỤ THUỘC CỦA TÍN HIỆU SÓNG ĐIỀU HÒA BẬC CAO VÀ XÁC SUẤT ION HÓA CỦA H_2^+ VÀO GÓC ĐỊNH PHƯƠNG KHI XÉT ĐẾN DAO ĐỘNG HẠT NHÂN

TRẦN ÁI NHÂN^{*},TRẦN TUẤN ANH^{**}, PHAN THỊ NGỌC LOAN^{***},

TÓM TẮT

Chúng tôi khảo sát sự phụ thuộc vào góc định phương của cường độ sóng điều hòa bậc cao (HHG) và xác suất ion hóa bằng phương pháp giải số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian của phân tử H_2^+ đang dao động tương tác với laser mạnh. Chúng tôi nhận thấy khi tăng dần góc định phương, cường độ HHG trải qua một cực tiểu. Bậc dao động hạt nhân càng cao, cường độ HHG đạt cực tiểu tại góc định phương càng lớn. Ngoài ra, khi hạt nhân đứng yên, hay hạt nhân dao động, xác suất ion hóa của phân tử H_2^+ giảm dần khi tăng góc định phương.

Từ khóa: laser cường độ cao, sóng điều hòa bậc cao, xác suất ion hóa, dao động hạt nhân, giao thoa, góc định phương.

ABSTRACT

The dependence of high-level harmonic wave signal and ionization probability of H_2^+ on the orientation angle considering the nuclear vibration

We examined the dependence on the molecular orientation of high-level harmonic wave intensity generation (HHG) and ionization probability by solving numerically the time-dependent Schrödinger equation of vibrating molecule H_2^+ exposed to an intense laser pulse. We show that the HHG intensity undergoes a minimum when we increase the orientation angle. The stronger the nuclei vibrate, the higher the orientation angle of the minimum is. Besides, for both the fixed and vibration nuclei of H_2^+ , the ionization probability decreases with the increase of the orientation angle.

Keywords: ultrashort intense laser, high-harmonic generation, ionization probability, nuclear vibration, interference, orientation angle.

1. Giới thiệu

Nghiên cứu cấu trúc của nguyên tử, phân tử luôn là lĩnh vực nghiên cứu sôi động, nhiều tiềm năng của ngành vật lý học. Sự ra đời của những nguồn laser mạnh đã cung cấp một công cụ hữu hiệu giúp thúc đẩy sự phát triển của khoa học nói chung, và vật lý nói riêng. Trong đó, tương tác giữa phân tử, nguyên tử với trường laser có cường độ

^{*}SV, Trường Đại học Sư phạm TPHCM; Email: tranainhan.1993@gmail.com

^{**}TS, Trường Đại học Sư phạm Kỹ thuật TPHCM

^{***}TS, Trường Đại học Sư phạm TPHCM

cao, xung cực ngắn là một trong những hướng nghiên cứu sôi động, được chú ý tới trong những năm gần đây [9, 13]. Một trong những hiệu ứng xảy ra trong quá trình tương tác này là phổ phát xạ sóng điều hòa bậc cao (high-order harmonic generation - HHG). Năm 1994, Lewenstein và các cộng sự [9] đã giải thích thành công quá trình kích thích phát xạ HHG bằng mô hình ba bước bán cổ điển, trong đó, ban đầu điện tử được ion hóa xuyên hầm ra khỏi nguyên tử, sau đó điện tử chuyển động trong miền liên tục dưới tác dụng của trường laser, cuối cùng khi laser đổi chiều, điện tử trở về tái kết hợp với ion mẹ và phát ra HHG. Bên cạnh đó, quá trình ion hóa của nguyên tử, phân tử đóng vai trò quan trọng bởi nó là cơ sở để giải thích hàng loạt những hiệu ứng phi tuyến như HHG, hiệu ứng phân ly trên ngưỡng (above-threshold dissociation - ATD) và ion hóa tăng cường do cộng hưởng điện tích (resonance-enhanced ionization - CREI).

Rất nhiều công trình lí thuyết và thực nghiệm đã chỉ ra rằng phổ HHG và xác suất ion hóa của phân tử rất nhạy với hướng định phương của phân tử [4,6-8,12]. Một trong những hiệu ứng quan trọng đó là xuất hiện bậc HHG mà tại đó cường độ HHG đạt cực tiểu trong phổ sóng điều hòa bậc cao của phân tử [6,7]. Hiện tượng giao thoa này đã được giải thích thành công bằng mô hình giao thoa hai tâm cổ điển. Khảo sát sự phụ thuộc cường độ HHG của phân tử H_2^+ và H_2 vào góc định phương [6] 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 π radian. Sau đó, nghiên cứu ảnh hưởng của góc định phương lên phổ HHG của phân tử ba tâm H_3^+ [8] đã chứng minh rằng tồn tại một cực tiểu cường độ kép do hiệu ứng giao thoa điện tử gây ra. Năm 2007, Telnov và Chu [12] đã tính toán sự phụ thuộc của HHG và xác suất ion hóa đa photon của H_2^+ vào góc định phương của laser, khi điện tử được kích thích từ trạng thái cơ bản và hai trạng thái kích thích đầu tiên. Kết quả chỉ ra rằng HHG và xác suất ion hóa phụ thuộc mạnh vào sự phân bố mật độ điện tử ở các mức năng lượng khác nhau.

Trong các công trình trên, để giảm số bậc tự do khi tính toán HHG, các tác giả đã giả thiết rằng hạt nhân phân tử đứng yên, còn dao động của hạt nhân không được tính đến. Thêm vào đó, khảo sát ảnh hưởng của định phương phân tử lên phổ HHG và xác suất ion hóa tính đến chuyển động hạt nhân mới được quan tâm trong một vài công trình gần đây [1,3,10]. Bằng phương pháp bán cổ điển, Gonoskov [3] đã chỉ ra rằng khi xét đến dao động hạt nhân, hiệu ứng giao thoa không còn quan sát được từ phổ HHG. Tuy nhiên, tính toán bằng phương pháp giải số phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian (the Time – Dependent Schrödinger Equation – viết tắt là TDSE) đã chứng minh rằng khi hạt nhân dao động, cường độ sóng HHG đạt cực tiểu tại bậc nhỏ hơn so với khi hạt nhân cố định [10], phù hợp với kết quả thực nghiệm đã được quan sát trước đó [1]. Ngoài ra, pha HHG sẽ nhảy một góc xấp xỉ bằng π radian khi đi qua một góc định phương “tới hạn” khi xét đến dao động hạt nhân. Tuy nhiên, trong các công trình trên, quy luật sự phụ thuộc của cường độ HHG và xác suất ion hóa của phân tử vào góc định phương khi tính đến dao động hạt nhân chưa được nghiên cứu, do vậy, chúng tôi lấy đây là đề tài nghiên cứu của công trình này.

Để tính toán phổ HHG và xác suất ion hóa của phân tử H_2^+ dao động khi tương tác với laser, chúng tôi sử dụng phương pháp TDSE kết hợp với gần đúng Born – Oppenheimer (BO). Sau đó, chúng tôi tiến hành khảo sát ảnh hưởng của góc định phương phân tử lên cường độ HHG và xác suất ion hóa, khi hạt nhân cố định, và hạt nhân dao động với các trạng thái khác nhau, khi phân tử tương tác với laser có thông số khác nhau.

Nội dung bài báo được trình bày trong bốn phần. Trong phần một, chúng tôi trình bày tình hình nghiên cứu và vấn đề nghiên cứu của công trình này. Tiếp theo là phương pháp giải số phương trình TDSE cho phân tử H_2^+ . Phần ba trình bày các kết quả về sự phụ thuộc vào góc định phương của cường độ HHG và xác suất ion hóa khi tính đến dao động hạt nhân. Phần kết luận trình bày những kết quả chính của công trình này.

2. Phương pháp TDSE tính HHG và xác suất ion hóa của phân tử H_2^+

Khi tương tác với laser có xung ngắn, trục của phân tử quay của không đáng kể so với định phương ban đầu. Do đó, đối với ion phân tử H_2^+ , hiệu ứng quay của phân tử được bỏ qua. Trong bài báo này, chúng tôi sử dụng mô hình hai chiều cho điện tử và một chiều cho hạt nhân phân tử. Phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian cho phân tử H_2^+ khi tương tác với trường laser được viết trong hệ đơn vị nguyên tử có dạng

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

trong đó x, y là tọa độ của điện tử đối với khối tâm của hạt nhân, R là khoảng cách liên hạt nhân, μ là khối lượng rút gọn của hai hạt nhân. $V_C(x, y, R)$ và $V_L(x, y, t)$ lần lượt là thế năng tương tác Coulomb và thế năng tương tác giữa phân tử với trường laser (xem [10]).

Để giải phương trình Schrödinger trên bằng phương pháp giải số, chúng tôi sử dụng phương pháp tách toán tử [2] và phương pháp thời gian ảo [5]. Vì khối lượng hạt nhân phân tử H_2^+ lớn hơn rất nhiều so với khối lượng điện tử, nên chuyển động của điện tử được coi như xảy ra “tức thời” so với chuyển động của hạt nhân. Do vậy, gần đúng Born – Oppenheimer được sử dụng nhằm tính toán hàm sóng ban đầu của hệ phân tử khi chưa tương tác với laser (xem [10]).

Áp dụng định lý Ehrenfest, gia tốc lưỡng cực của phân tử được tính bởi biểu thức $\mathbf{a}(t) = -\mathbf{E} - \langle \psi | \nabla V_c | \psi \rangle$, trong đó \mathbf{E} là vector cường độ điện trường của laser. Bằng phép biến đổi Fourier từ không gian thời gian vào không gian tần số của gia tốc lưỡng cực, ta thu được cường độ HHG theo vector phân cực \mathbf{n} tại một tần số ω

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

Để tính xác suất ion hóa, chúng tôi giới hạn miền ion hóa như sau

$$S_i = \left\{ (x, y) / (x^2 + y^2) \geq \left(\frac{R}{2} + a_i \right)^2 \right\}, \quad (3)$$

trong đó $a_i = 20$ a.u. là khoảng cách từ hạt nhân của phân tử đến vị trí có thể xem là bắt đầu xảy ra sự ion hóa. Chúng tôi chọn $a_i = 20$ a.u. vì khi tính toán với các giá trị a_i lớn hơn 20 a.u. thì giá trị xác suất ion hóa thay đổi không đáng kể. Xác suất ion hóa được định nghĩa bởi biểu thức

$$P(t) = \iiint_{S_i} |\psi(x, y, R, t)|^2 dx dy dR \quad (4)$$

Giá trị $P(t)$ thể hiện khả năng tìm thấy điện tử ở ngoài mặt cầu có đường kính $a_i + R/2$, nghĩa là điện tử luôn ở cách xa proton ít nhất 20 a.u. Do đó, trong mô hình này, $P(t)$ biểu diễn xác suất ion hóa, tức là xác suất để xảy ra phân tách $H^+ + H^+ + e$.

Để trích xuất thông tin động lực học hạt nhân, chúng tôi tính toán giá trị khoảng cách liên hạt nhân phụ thuộc vào thời gian tương tác với laser

$$R(t) = \iiint \psi^*(x, y, R, t) R \psi(x, y, R, t) dx dy dR. \quad (5)$$

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

3. Kết quả

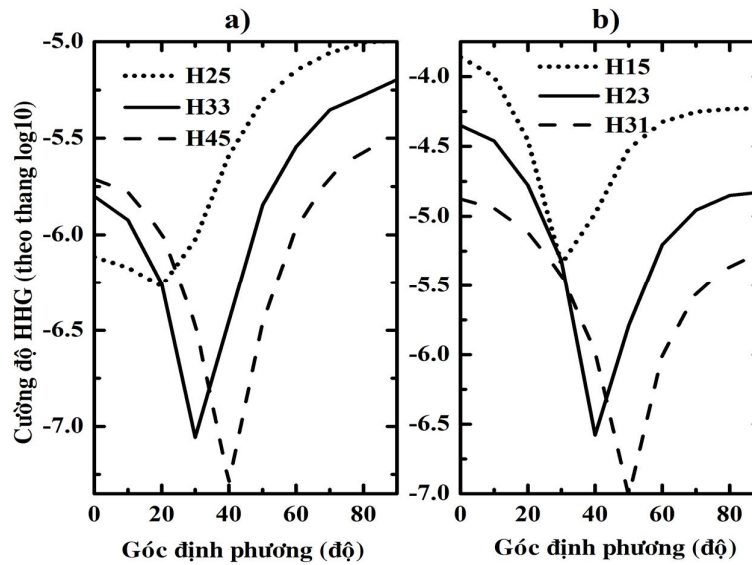
Trong phần này, chúng tôi sẽ trình bày kết quả sự phụ thuộc của cường độ HHG và xác suất ion hóa của phân tử H_2^+ vào góc định phương khi hạt nhân phân tử đứng yên và dao động với các trạng thái khác nhau. Vì trong thực nghiệm chỉ đo được HHG phát ra theo phương song song và phương vuông góc với vectơ phân cực của laser. Mặt khác, thành phần HHG phát ra theo phương vuông góc được đo bằng thực nghiệm rất nhỏ so với thành phần song song. Do đó, trong công trình này, chúng tôi chỉ trình bày HHG của phân tử H_2^+ được phát ra theo phương song song với vectơ phân cực của laser

3.1. Sự phụ thuộc của cường độ HHG của H_2^+ vào góc định phương

Sau khi thu được phổ HHG của phân tử H_2^+ khi tương tác với laser ứng với các góc định phương khác nhau, chúng tôi biểu diễn sự phụ thuộc của cường độ sóng HHG phát ra theo phương song song với vectơ phân cực của laser vào góc định phương ứng với các bậc HHG khác nhau (hình 1). Khi hạt nhân đứng yên, đồ thị ứng với bậc HHG 25, 33 và 45 được biểu diễn (hình 1a), còn khi hạt nhân dao động với $v=1$, cường độ HHG ứng với bậc HHG 15, 23 và 31 được minh họa (hình 1b). Do tính chất đối xứng

của hàm sóng điện từ của phân tử H_2^+ nên chúng tôi chỉ khảo sát phổ HHG với góc định phương từ 0° đến 90° với bước nhảy là 10° .

Từ hình 1, chúng tôi nhận thấy cường độ HHG của phân tử H_2^+ đạt cực tiểu tại một góc định phương “tới hạn”. Thêm vào đó, khi bậc HHG càng tăng, góc định phương mà tại đó cường độ HHG đạt cực tiểu cũng tăng. Nguyên nhân của hiện tượng này là do sự tồn tại của điểm giao thoa cực tiểu– trong miền phẳng của phổ HHG xuất hiện một bậc HHG mà tại đó cường độ HHG đạt cực tiểu, và bậc HHG này tăng khi tăng góc định phương [6-8]. Ngoài ra, sự tồn tại của điểm giao thoa cực tiểu trong phổ HHG ngay cả khi xét đến dao động hạt nhân cũng đã được khẳng định [9,10]. Do đó, kết luận này không chỉ đúng cho trường hợp hạt nhân đứng yên mà còn phù hợp khi hạt nhân dao động.

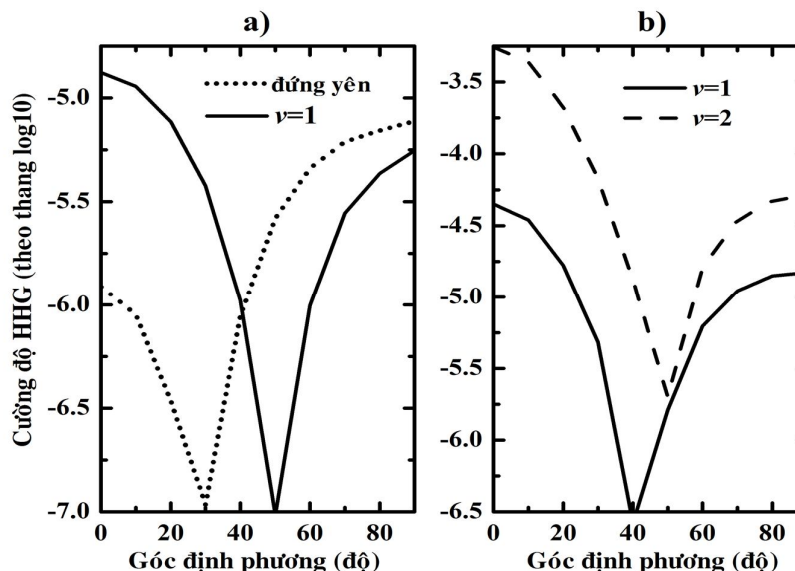


Hình 1. Sự phụ thuộc cường độ HHG của H_2^+ vào góc định phương

khí hạt nhân đứng yên (a) và hạt nhân dao động với $v=1$ (b).

Laser có cường độ $3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, bước sóng 800 nm, độ dài xung 21 fs.

Khi hạt nhân đứng yên, cường độ HHG phát ra khi vector phân cực của laser chiếu vuông góc với trục phân tử (góc 90°) lớn hơn so với trường hợp chiếu song song (góc 0°) (hình 1a). Ngược lại, khi hạt nhân dao động, cường độ HHG phát ra khi góc định phương bằng 0° được tăng cường (hình 1b). Điều này có thể giải thích là do khi hạt nhân đứng yên, dấu hiệu giao thoa cực tiểu xuất hiện trong phổ HHG ngay cả khi góc định phương nhỏ, do vậy cường độ HHG bị giảm, còn với góc định phương lớn, điểm giao thoa bị vượt ra khỏi miền phẳng nên không quan sát được trên phổ HHG. Mặt khác, khi hạt nhân dao động, điểm giao thoa cực tiểu bị dịch về phía bên trái của miền phẳng [10], do vậy với góc định phương nhỏ, điểm giao thoa không quan sát được trên phổ HHG, cường độ HHG theo được tăng cường so với góc định phương 90° .



Hình 2. Sự phụ thuộc cường độ HHG của H_2^+ vào góc định phương đối với bậc HHG

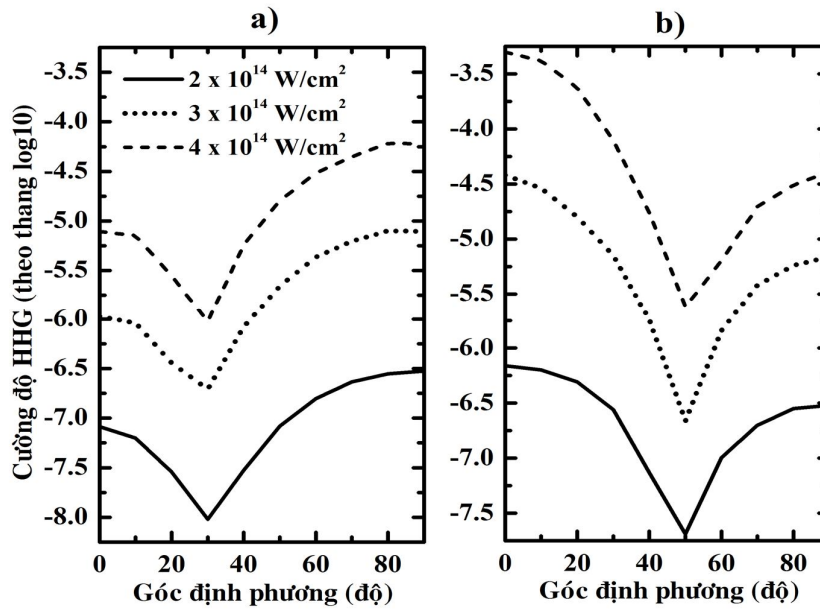
31(a) và bậc 23 (b) khi hạt nhân dao động với các trạng thái khác nhau.

Laser được sử dụng có thông số giống hình 1.

Để thuận tiện trong việc so sánh vị trí điểm cực tiểu cường độ HHG khi hạt nhân ở các trạng thái khác nhau, trên hình 2 biểu diễn sự phụ thuộc cường độ HHG vào góc định phương đối với bậc HHG 31 khi hạt nhân đứng yên và dao động với $\nu=1$ (hình 2a), đối với bậc HHG 23 khi hạt nhân dao động với trạng thái $\nu=1$ và $\nu=2$ (hình 2b). Dễ dàng nhận thấy trong trường hợp laser chiếu song song với trục phân tử, sự khác biệt về cường độ HHG khi hạt nhân đứng yên và hạt nhân dao động (hình 2a), hoặc khi hạt nhân dao động với các trạng thái khác nhau (hình 2b) lớn hơn so với trường hợp laser chiếu vuông góc. Trong công trình này, chúng tôi không trình bày cho trường hợp hạt nhân dao động với $\nu=0$ vì lúc này 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, vị trí cực tiểu trong đồ thị cường độ phụ thuộc vào góc định phương sẽ không rõ ràng.

Từ hình 2a, ta thấy với bậc HHG bằng 31, vị trí cực tiểu cường độ HHG ứng với góc định phương 30° khi hạt nhân đứng yên; và góc 50° khi hạt nhân dao động với $\nu=1$. Khi xét bậc HHG bằng 23 (hình 2b), cường độ HHG đạt cực tiểu khi góc định phương phân tử tương ứng 40° khi hạt nhân dao động với $\nu=1$; và 50° khi hạt nhân dao động với $\nu=2$. Tính toán cho các bậc HHG khác, và khi laser tương tác có thông số khác nhau, chúng tôi thu được quy luật tương tự. Như vậy, khi hạt nhân dao động, vị

trí điểm cực tiểu xảy ra tại góc định phương lớn hơn so với trường hợp hạt nhân đứng yên. Ngoài ra, hạt nhân dao động càng mạnh mẽ, cường độ HHG cực tiểu tại góc định phương càng lớn. Nguyên nhân của hiện tượng này là do với cùng một trạng thái của hạt nhân, khi góc định phương càng tăng, bậc HHG mà tại đó xảy ra điểm giao thoa cực tiểu càng tăng. Thêm vào đó, với cùng một góc định phương, khi bậc dao động hạt nhân tăng, vị trí điểm giao thoa trong phổ HHG càng dịch về phía bên trái của miền phẳng, tức là bậc HHG giảm.



Hình 3. Sự phụ thuộc cường độ HHG của H_2^+ vào góc định phương đối với bậc HHG 31 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) và dao động với $\nu=1$ (b).

Tiếp theo, chúng tôi khảo sát sự phụ thuộc của vị trí điểm cực tiểu của cường độ HHG 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 $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ đối với bậc HHG 31 khi hạt nhân đứng yên (hình 3a) và khi hạt nhân dao động với $\nu=1$ (hình 3b). Chúng tôi nhận thấy, khi hạt nhân đứng yên, cường độ HHG đạt cực tiểu tại góc định phương 30° và không phụ thuộc vào cường độ laser. Tương tự, khi hạt nhân dao động với $\nu=1$, điểm cực tiểu đạt được khi góc định phương là 50° (hình 3b). Điều này được giải thích là do vị trí điểm giao thoa cực tiểu trong phổ HHG hầu như không phụ thuộc vào thông số của laser tương tác [6-8, 10]. Như vậy, vị trí cực tiểu cường độ HHG 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.