

تولید تپ آتوتانیه توسط برهم کنش لیزر فمتوتانیه چیرپ شده با مولکول نیتروس اکساید

محمد، منفرد^{۱*}؛ الناز، ایرانی^۱؛ رسول، صدیقی بنابی^۱

چکیده

اثر چیرپ تپ لیزر در تولید هماهنگ های مراتب بالا و تپ آتوتانیه خروجی، توسط برهم کنش تپ لیزر پر شدت فمتوتانیه با مولکول نیتروس اکساید بررسی شده است. در این گزارش تاثیر چیرپ مثبت و منفی و نوع تاثیر آن ها مطالعه شده است. انجام محاسبات دقیق سه بعدی با استفاده از نظریه تابعی چگالی وابسته زمانی و تابع تبادل-همبستگی مناسب از جمله مزایای این کار است. افزایش بسامد قطع به ازای چیرپ مثبت، افزایش شدت تپ آتوتانیه خروجی به ازای چیرپ منفی و کاهش پهنای تپ آتوتانیه خروجی (تا 19 as) به ازای چیرپ مثبت، از نتایج برجسته این مقاله است.

واژه های کلیدی: هارمونیک های مراتب بالا، لیزر فمتو ثانیه، تپ آتوتانیه، چیرپ، نیتروس اکساید

۱. مقدمه

لیزر یونیزه می شود. سپس در میدان لیزر شتاب گرفته و با معکوس شدن جهت میدان لیزر، الکترون به سمت یون مادر برمی گردد. این الکترون با یون مادر برخورد کرده و باز ترکیب می شود. الکترون باز ترکیب شده انرژی جنبشی و یونش را به صورت فوتون گسیل می کند. مدل نیمه کلاسیکی «سه گام»، بیشینه انرژی فوتون ها را به صورت رابطه زیر پیش بینی می کند:

$$E_{cut-off} = \hbar\omega_{max} = I_P + 3.17U_P \quad (1)$$

که I_P انرژی یونش مولکول و $U_P = E_0^2 / 4\omega_0^2$ پتانسیل پاندرماتیو تپ لیزر با دامنه میدان E_0 و بسامد مرکزی ω_0 است. چیرپ کردن تپ یک روش پرکاربرد در کنترل پدیده های مربوط به برهم کنش تپ با

تپ همدوس آتوتانیه به دلیل کاربرد های گسترده آن در تصویربرداری و مطالعه دینامیک پدیده های اتمی و زیر اتمی که در ابعاد آنگستروم و بازه زمانی آتوتانیه رخ می دهند، در چند سال اخیر بسیار مورد توجه بوده است [۱-۴]. این تپ ها توسط برهم کنش لیزر فمتوتانیه پر شدت و ماده، با ایجاد هماهنگ های مراتب بالا (HHG)^۲ قابل دستیابی است [۵]. فرآیند HHG توسط مدل «سه گام» توصیف می شود [۶]. طبق این مدل، ابتدا الکترون به روش تونل زنی تحت تاثیر میدان

۱ دانشکده فیزیک، دانشگاه صنعتی شریف، خیابان آزادی، تهران

2 High harmonic generation

در رابطه فوق T_{tot} زمان کل تپ است. همچنین می توان شدت تپ خروجی بر حسب زمان (یعنی تبدیل فوریه $H(\omega)$) را نیز طبق رابطه زیر محاسبه کرد:

$$I(t) = \left| \sum_q a_q e^{iq\omega t} \right|^2, \quad a_q = \int \ddot{\mathbf{d}}(t) e^{-iq\omega t} dt \quad (4)$$

که a_q تبدیل فوریه مشتق دوم ممان دوقطبی است. طبق رابطه فوق پارامترهای موثر در پهنا شدت بیشینه تپ خروجی عبارتند از:

(الف) تعداد هماهنگ هایی که جمع زده می شوند، (هر چه تعداد بیشتر باشد نتیجه مطلوب تر خواهد بود).

(ب) دامنه موج گسیلی هماهنگ های مختلف یعنی $|a_q|$ ، (هر چه اختلاف مقدار دامنه ها کمتر باشد تپ خروجی مطلوب تر خواهد بود).

(پ) اختلاف فاز هماهنگ های گسیل شده، (هر چه اختلاف فاز هماهنگ های گسیلی کمتر باشد، برهم نهی سازنده تری خواهند داشت و تپ خروجی مطلوب تر خواهد بود).

تابع پوش تپ لیزر sech و بسامد لیزر به صورت زیر در نظر گرفته شده است:

$$\omega = \omega_0 + bt, \quad b = \frac{\beta}{\tau^2} \quad (5)$$

که ω_0 بسامد مرکزی تپ، b پارامتر چیرپ، $\tau = 6fs$ پهنای زمانی تپ و β پارامتر کنترل است.

در این کار طیف هماهنگ های تولید شده و تپ آتوانیه خروجی به ازای پارامترهای کنترل $\beta = \pm 15, \pm 30 rad$ مطالعه شده است. طول موج مرکزی تپ $800 nm$ و شدت آن $2 \times 10^{14} W/cm^2$ در نظر گرفته شده است. دلیل انتخاب این شدت این است که اگر شدت های پایین تری انتخاب شوند یونش به

سیستم های فیزیکی است و با کنترل چیرپ تپ، می توان پدیده های فیزیکی و شیمایی را به طور کوانتومی کنترل کرد [۷-۹]. بعنوان مثال می توان با کنترل چیرپ تپ انتقال جمعیت در اتم ریدبرگ را کنترل کرد [۱۰]. در این کار اثر چیرپ^۱ تپ لیزر در طیف هماهنگ های تولید شده و تپ آتوانیه خروجی، در اثر برخورد لیزر فمتوثانیه با مولکول N_2O بررسی شده است. مولکول N_2O نیز با توجه به تنوع پیوندهای آن و ساختار غیرمتمقارن اوربیتال های آخرین ترازهای پر شده آن، گزینه مناسبی برای بررسی می باشد.

۲. روش های محاسباتی

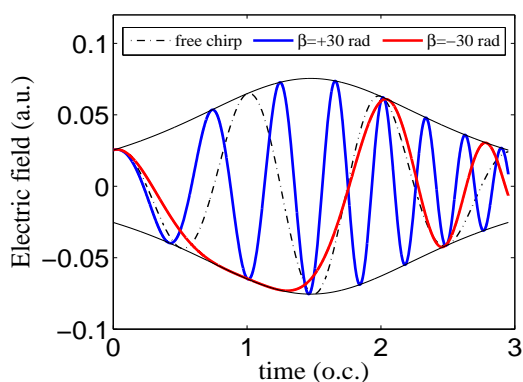
محاسبات به صورت سه بعدی، با بهره گیری از نظریه تابعی چگالی وابسته به زمان (TDDFT)^۲ و با انتخاب تابع پتانسیل تبدالی-همبستگی B3LYP^۳ انجام شده است. بخشی از محاسبات توسط نرم افزار اختاپوس^۴ صورت گرفته است. ابتدا ممان دوقطبی سیستم توسط تابع موج وابسته به زمان مطابق رابطه زیر محاسبه شده است.

$$\mathbf{d}(t) = \langle \Psi(t) | \mathbf{r}(t) | \Psi(t) \rangle \quad (2)$$

سپس با مشخص بودن ممان دوقطبی سیستم طیف هماهنگ های گسیل شده طبق رابطه زیر قابل محاسبه است:

$$H(\omega) = \left| \frac{1}{T_{tot}} \int_0^{T_{tot}} \ddot{\mathbf{d}} \exp(-i\omega t) dt \right|^2 \quad (3)$$

- 1 Chirp
- 2 Time dependent density functional theory
- 3 Becke, three-parameter, Lee-Yang-Parr
- 4 OCTOPUS



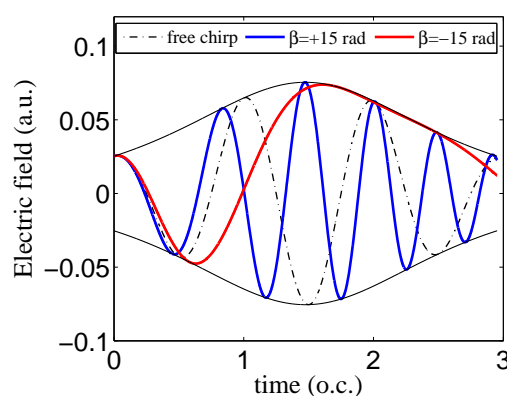
(ب)

شکل ۱. میدان لیزر چیرپ شده با طول موج مرکزی 800 nm، بیشینه شدت $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ و به ازای پارامترهای کنترل چیرپ: الف) $\beta = \pm 15 \text{ rad}$ و ب) $\beta = \pm 30 \text{ rad}$.

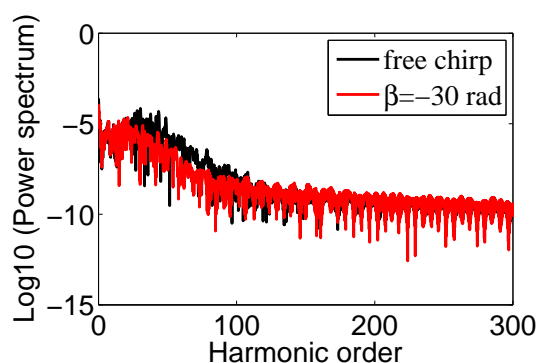
۳. نتایج

طیف هم‌هنگ‌های مراتب بالای تولید شده به ازای پارامترهای مختلف چیرپ در زیر نشان داده شده است. مشاهده می‌شود چیرپ مثبت باعث افزایش شدت هم‌هنگ‌های تولید شده است اما چیرپ منفی شدت را کاهش داده است. در واقع به ازای چیرپ مثبت بسامد تپ افزایش می‌یابد و تعداد چرخه‌ها نیز زیاد می‌شود. افزایش تعداد چرخه‌ها، تعداد فرآیند یونش و بازترکیب الکترون‌ها را افزایش داده و باعث افزایش فوتون‌های گسیل شده و افزایش شدت طیف می‌شود. علاوه بر این در چیرپ مثبت با افزایش بسامد، مدت زمان هر دوره کاهش یافته و در نتیجه فرآیند یونش و بازترکیب در مدت زمان کوتاه‌تری رخ می‌دهد. این امر باعث کاهش میزان پهن‌شدگی بسته موج الکترونی می‌شود و در نتیجه احتمال بازترکیب و شدت فوتون تابشی ناشی از بازترکیب افزایش می‌یابد. همچنین افزایش بسامد تپ به ازای چیرپ مثبت، بسامد قطع را نیز افزایش می‌دهد که این امر در نمودار

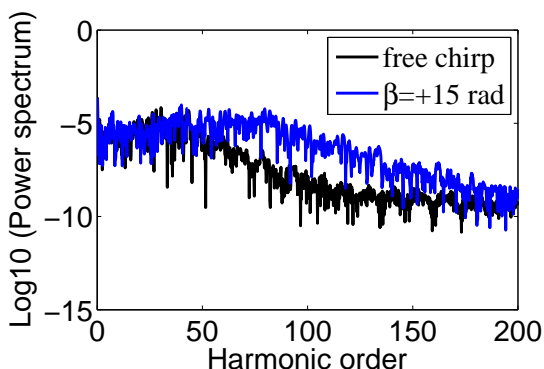
روش جذب چند فوتونی رخ می‌دهد و اگر شدت‌های بالاتری استفاده شوند نیز یونش فرونشانی سد خواهیم داشت و در نتیجه الکترون یونیزه شده در میدان بسیار قوی لیزر شتاب گرفته و از اتم دور می‌شود و بازترکیب رخ نخواهد داد. در نتیجه شدت میانه‌ای باید وجود داشته باشد که یونش به روش تونل زنی رخ دهد. با توجه به پارامترهای سیستم مورد مطالعه (مولکول N_2O) و طول موج مرکزی لیزر فرودی، این شدت میانه و بهینه در حدود 10^{14} W/cm^2 است که در این گزارش از شدت $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ استفاده شده است. شکل میدان لیزر چیرپ شده به ازای پارامترهای مختلف چیرپ در شکل ۱ نشان داده شده است. همانطور که در شکل مشاهده می‌شود چیرپ مثبت باعث افزایش تعداد چرخه‌ها و چیرپ منفی باعث کاهش تعداد چرخه‌ها شده است. در ادامه، اثر افزایش و کاهش تعداد چرخه‌ها به دلیل چیرپ شدن تپ لیزر، روی طیف هم‌هنگ‌های گسیل شده را خواهیم دید.



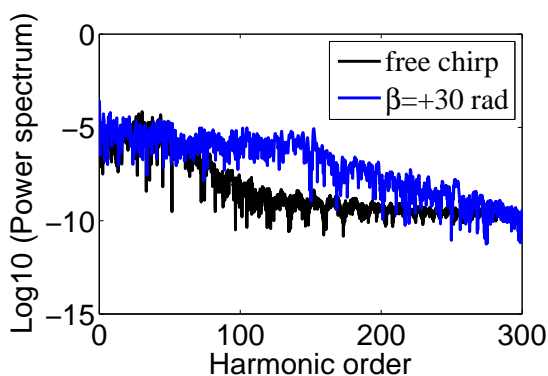
(الف)



(ب)



(ب)

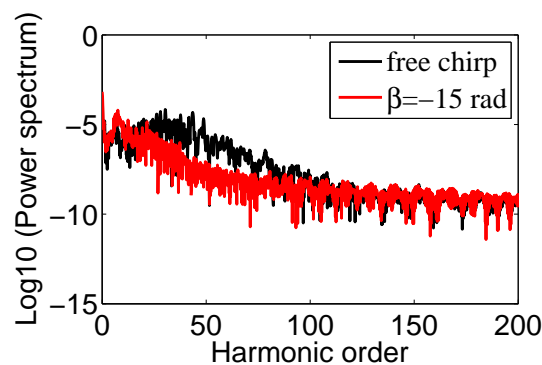


(ت)

شکل ۲. طیف هماهنگ های تولید شده به ازای طول موج مرکزی 800 nm و شدت تپ $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ و پارمترهای کنترل چیرپ: الف) $\beta = -15 \text{ rad}$ ب) $\beta = -30 \text{ rad}$ پ) $\beta = +15 \text{ rad}$ ت) $\beta = +30 \text{ rad}$.

در همه حالت های بررسی شده در این گزارش، جهت قطبش تپ لیزر فرودی، موازی با راستای مولکول بوده

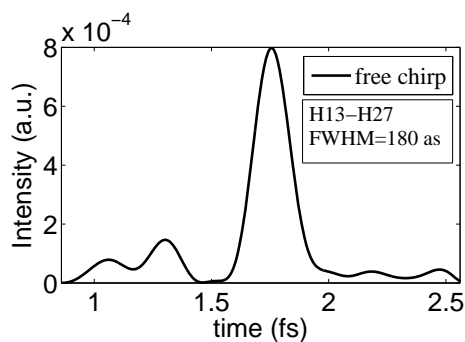
شکل ۲ قابل مشاهده است. دلیل این امر افزایش انرژی جنبشی الکترون یونیزه شده تحت تاثیر میدان لیزر (در اثر کاهش دوره تناوب آن) است. به ازای چیرپ منفی و تعداد چرخه ها و انرژی فوتون های فرودی کاهش و مدت زمان سفر الکترون ها پس از تونل زنی افزایش یافته است. این سه عامل به ترتیب باعث: کاهش تعداد فرآیند های یونش-بازترکیب، کاهش بسامد قطع و افزایش پهن شدگی بسته موج الکترونی حین بازترکیب شده اند. نتیجه این سه عامل در نمودارهای شکل ۲ به وضوح قابل مشاهده است. در نمودارهای شکل ۲ محور قائم بر حسب یکای اتمی^۱ است. در شکل ۲ نمودار های مشکی رنگ مربوط طیف هماهنگ های گسیل شده ناشی از تپ لیزر فرودی بدون چیرپ، نمودارهای قرمز رنگ مربوط به تپ لیزر چیرپ شده با پارامتر چیرپ منفی و نمودارهای آبی رنگ مربوط به طیف گسیل شده از برخورد تپ لیزر چیرپ شده با پارامتر چیرپ مثبت با مولکول N_2O است.



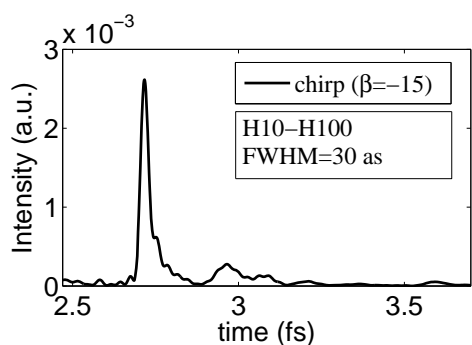
(الف)

1 Atomic units (a.u.)

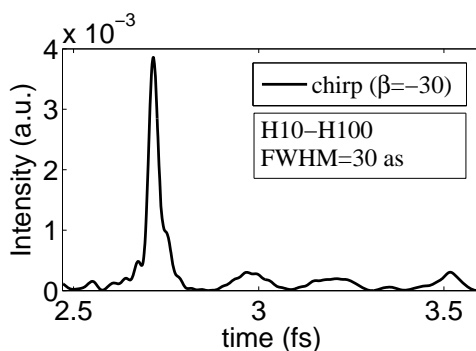
منفی عامل غالب کاهش اختلاف فاز فوتون های گسیلی بوده است. در چیرپ مثبت پهنای تپ خروجی کاهش بیشتری داشته است زیرا همانطور که در شکل ۲ مشاهده شد، در این چیرپ هماهنگ های بیشتر و بالاتری (بالای ۱۰۰) تولید شده اند و در تولید تپ آتوتانیه نیز ما از این مهم بهره گرفته ایم.



(الف)



(ب)



(پ)

است (در واقع جهت بردار قطبش تپ لیزر به سمت مولکول اکسیژن بوده است). نمودار تپ آتوتانیه خروجی نیز به ازای پارامترهای کنترل چیرپ ذکر شده، در شکل ۳ نمایش داده شده است. در هر مورد ابتدا تپ آتوتانیه منتج از بازه های مختلفی از طیف هماهنگ های تولید شده ساخته شد. سپس بازه ای که بهترین تپ خروجی را از نظر پهنای شدت دارا بود انتخاب شده است. در مورد تپ بدون چیرپ، بهترین تپ آتوتانیه خروجی مربوط به بازه هماهنگ ۱۳ الی ۲۷ بوده است که یک تپ با پهنای 180 as تولید کرده است. همانطور که در شکل ۳ مشاهده می شود حاشیه های تپ دارای قله هایی می باشد و یک تک تپ باریک حاصل نشده است. در چیرپ منفی بازه مربوط به هماهنگ ۱۰ الی ۱۰۰ بهترین تپ خروجی را تولید کرده اند. تپ حاصل از چیرپ منفی به طور قابل توجهی باریک شده است (تا پهنای 30 as) و حاشیه های نامرتب تپ خروجی اولیه (بدون چیرپ) را نیز از بین برده است. در چیرپ مثبت نیز هماهنگ های بالای ۱۰۰ تپ مطلوب تری نسبت به هماهنگ های زیر ۱۰۰ تولید کرده اند و پهنای تپ خروجی تا مقدار قابل توجه 19 as (0.1 پهنای تپ خروجی اولیه) کاهش یافته است. کاهش پهنای زمانی تپ آتوتانیه خروجی به ازای هر دو نوع چیرپ مثبت و منفی به دو دلیل است: الف) کاهش اختلاف فاز، ب) افزایش پهنای بسامدی (یا در واقع افزایش تعداد هماهنگ های سازنده تپ آتوتانیه). در چیرپ مثبت عامل غالب و تاثیرگذارتر در باریک شدن تپ خروجی افزایش بسامد قطع و پهنای بازه بسامدی و در چیرپ

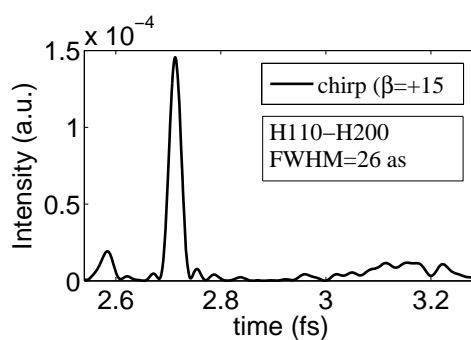
بین فوتون های گسیل شده افزایش یافته و نهایتاً شدت تپ خروجی نیز افت کرده است.

۴. نتیجه گیری

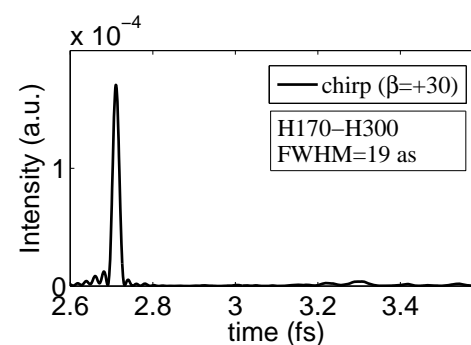
طبق نتایج به دست آمده استنباط می شود که چیرپ مثبت شدت هماهنگ های تولیدی و بسامد قطع را افزایش می دهد اما اختلاف فاز فوتون های گسیلی را نیز بیشتر می کند. به دلیل اثر غالب تر پهنای بسامدی نسبت به اختلاف فاز فوتون ها در پهنای تپ آتوانیه خروجی، چیرپ مثبت جهت تولید تپ باریک تر موفق تر است. در مقابل چیرپ منفی به دلیل کاهش دادن اختلاف فاز فوتون های تابشی مربوط به هماهنگ های مختلف، باعث افزایش شدت تپ آتوانیه خروجی می شود. بنابراین چیرپ منفی برای ساخت تپ آتوانیه با شدت بالاتر مناسب تر است.

۵. مراجع

- [1] Haessler S., Caillat J., Salieres P., "Self-probing of molecules with high harmonic generation", *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*. 2011 Sep 26;44(20):203001.
- [2] Vozzi C., Negro M., Calegari F., Sansone G., Nisoli M., De Silvestri S., Stagira S., "Generalized molecular orbital tomography", *Nature Physics*. 2011 Oct 1;7(10):822-6.
- [3] Chen Y. J., Fu L. B., Liu J., "Asymmetric molecular imaging through decoding odd-even high-order harmonics", *Physical review letters*. 2013 Aug 12;111(7):073902.
- [4] Li Y., Zhu X., Lan P., Zhang Q., Qin M., Lu P., "Molecular-orbital tomography beyond the plane-wave approximation", *Physical Review A*. 2014 Apr 25;89(4):045401.



(ت)



(ث)

شکل ۳. شدت تپ خروجی به ازای طول موج مرکزی 800 nm، شدت تپ $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ و پارمترهای کنترل چیرپ: الف) بدون چیرپ ب) $\beta = -15 \text{ rad}$ پ) $\beta = -30 \text{ rad}$ ت) $\beta = +15$ ج) $\beta = +30 \text{ rad}$

شدت تپ خروجی به ازای چیرپ منفی افزایش و به ازای چیرپ مثبت کاهش یافته است، در صورتیکه در نمودار شکل ۲ افزایش شدت هماهنگ ها به ازای چیرپ مثبت بیشتر بوده است. این پدیده به این دلیل است که علی رغم کاهش نسبی شدت طیف گسیلی در چیرپ منفی، اختلاف فاز بین فوتون های گسیل شده کاهش قابل توجهی داشته است، در نتیجه فوتون ها تداخل سازنده تری داشته اند و شدت تپ آتوانیه خروجی افزایش یافته است. در چیرپ مثبت نیز با اینکه شدت هماهنگ ها زیاد شده است اما اختلاف فاز

- [5] Winterfeldt C., Spielmann C., Gerber G., “Colloquium: Optimal control of high-harmonic generation”, *Reviews of Modern Physics*. 2008 Jan 2;80(1):117.
- [6] Lewenstein M., Balcou P., Ivanov M. Y., L’huillier A., Corkum P. B., “Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields”, *Physical Review A*. 1994 Mar 1;49(3):2117.
- [7] Yudin G. L., Bandrauk A. D., Corkum P. B., “Chirped attosecond photoelectron spectroscopy”, *Physical review letters*. 2006 Feb 14;96(6):063002.
- [8] Ge X. L., Du H., Guo J., Liu X. S., “Quantum control of electron wave packet during high harmonic process of H₂⁺ in a combination of a circularly polarized laser field and a Terahertz field”, *Optics express*. 2015 Apr 6;23(7):8837-44.
- [9] Guo J., Ge X. L., Zhong H., Zhao X., Zhang M., Jiang Y., Liu X. S., “Influence of vibrational states on high-order-harmonic generation and an isolated attosecond pulse from a N₂ molecule”, *Physical Review A*. 2014 Nov 7;90(5):053410.
- [10] Lambert J., Noel M. W., Gallagher T. F., “Rydberg-atom population transfer by population trapping in a chirped microwave pulse”, *Physical Review A*. 2002 Nov 22;66(5):053413.