



Bài báo nghiên cứu

ẢNH HƯỞNG CỦA PHA SÓNG MANG LASER LÊN SỰ DỊCH CHUYỂN TẦN SỐ CỦA SÓNG ĐIỀU HÒA BẬC CAO GÂY RA BỞI ĐIỆN TRƯỜNG TĨNH

Nguyễn Đặng Trọng Thanh, Nguyễn Đình Thanh Duy, Triệu Doan An*, Phan Thị Ngọc Loan

Trường Đại học Sư phạm Thành phố Hồ Chí Minh, Việt Nam

*Tác giả liên hệ: Triệu Doan An – Email: antd.vlnt033@pg.hcmue.edu.vn

Ngày nhận bài: 23-5-2024; ngày nhận bài sửa: 12-7-2024; ngày duyệt đăng: 01-8-2024

TÓM TẮT

Thông tin cấu trúc và động lực học của hệ vật lý gồm laser và vật chất được mã hóa trong sóng điều hòa bậc cao (HHG) và được biểu hiện trên phổ HHG. Công bố gần đây của chúng tôi (Trieu et al., 2024) đã chỉ ra khi hệ laser-nguyên tử được đặt trong điện trường tĩnh, tần số HHG dịch chuyển tuyến tính theo cường độ điện trường, và đưa ra công thức giải tích mô tả hiện tượng này. Chúng tôi cũng đã đề xuất sử dụng sự dịch chuyển này làm thước đo cho tác dụng thay đổi pha lượng tử của bó sóng electron chuyển động trong trường laser. Việc khảo sát hiện tượng và kiểm tra độ tin cậy của công thức đã được thực hiện đối với các laser có cường độ và bước sóng khác nhau. Trong bài báo này, chúng tôi mở rộng khảo sát đối với các pha sóng mang laser (CEP) khác nhau. Kết quả cho thấy sự dịch chuyển tần số là tuyến tính tại hai vùng giá trị của CEP, và được dự đoán đúng bởi công thức giải tích. Với các giá trị CEP còn lại, sự dịch chuyển tần số không thể được quan sát trực tiếp.

Từ khóa: phát xạ điều hòa bậc cao; điện trường tĩnh; pha sóng mang; dịch chuyển tần số

1. Giới thiệu

Sự phát triển vượt bậc của kỹ thuật chế tạo xung laser trong vài thập kỉ gần đây đã cho phép tạo ra xung laser cường độ cao, xung cực ngắn (Maiman et al., 1960; Yanovsky et al., 2008), làm tiền đề cho sự bùng nổ của hàng loạt nghiên cứu về tương tác của laser với vật chất (Wörner et al., 2010; Wong et al., 2011; Krausz et al., 2015; Naumov et al., 2015; Luu et al., 2016). Những thành tựu khoa học trong lĩnh vực này đã biến laser trở thành công cụ đắc lực giúp con người quan sát vật chất ở cấp độ nguyên tử/ phân tử (Wörner et al., 2010; Krausz et al., 2015; Luu et al., 2016), chế tạo và đo đạc bức xạ điện từ mới (Paul et al., 2001; Xie et al., 2007), điều khiển các hệ lượng tử (Judson et al., 1992; Morimoto et al., 2021). Cơ sở của các ứng dụng này nhìn chung đều dựa trên các hiện tượng quang phi tuyến xảy ra khi

Cite this article as: Nguyen Dang Trong Thanh, Nguyen Dinh Thanh Duy, Trieu Doan An, & Phan Thi Ngoc Loan (2024). Effects of laser's carrier-envelope phase on electrostatic-field-induced frequency shift of high-order harmonic generation. *Ho Chi Minh City University of Education Journal of Science*, 21(12), 2148-2158.

vật chất tương tác với trường ngoài chứa laser, như hiện tượng ion hóa vượt ngưỡng (Corkum et al., 1993), nhiễu xạ electron cảm ứng laser (Zuo et al., 1996), và phát xạ điều hòa bậc cao (Ferry et al., 1988). Chính vì vậy, hiểu biết về các quá trình quang phi tuyến cũng như phổ quang phi tuyến là điều kiện cốt yếu trong việc quan sát thế giới vi mô ở cấp độ nguyên tử, phân tử ở thời điểm hiện tại.

Trong nghiên cứu này, chúng tôi quan tâm đến hiện tượng phát xạ điều hòa bậc cao, viết tắt là HHG (**H**igh-order **H**armonic **G**eneration), khi laser tương tác với chất khí. Ở cấp độ vi mô và bán cổ điển, tương tác này có thể được mô tả theo ba bước (Corkum et al., 1993; Lewenstein et al., 1994), gồm (i) laser gây ra sự ion hóa electron thành từng bó sóng, (ii) bó sóng electron lan truyền trong trường laser và (iii) tái kết hợp vào ion mẹ dẫn đến sự phát xạ các sóng thứ cấp. Vì các sóng này là có tần số lớn hơn rất nhiều so với tần số laser tới nên chúng được gọi là sóng điều hòa bậc cao; trong đó, “bậc” HHG chính là tỉ số của tần số sóng thứ cấp so với tần số laser tới. Khi đo đạc phổ HHG, các sóng HHG đi đến thiết bị đo và giao thoa với nhau tạo thành các vân cực đại và cực tiểu (Ferry et al., 1988). Do đó, phổ HHG chính là bức tranh giao thoa của các sóng phát ra từ sự tái hợp của các bó sóng electron vào ion mẹ sau khi bị ion hóa và lái bởi trường laser.

Vì HHG là hệ quả từ tương tác laser-vật chất nên mọi sự thay đổi trong hệ lượng tử chứa laser và nguyên tử, phân tử đều có thể được biểu hiện trên phổ HHG (Shcherbakov et al., 2021). Dựa vào điểm mấu chốt này, hàng loạt đề xuất và ứng dụng liên quan đến tương tác laser-vật chất đã được thực hiện như: sử dụng cấu trúc phổ HHG để phân biệt các phân tử có cấu trúc tương tự nhau (Wong et al., 2011; Alharbi et al., 2015); sử dụng cường độ đỉnh phổ để thăm dò cấu trúc không gian của vật chất (Luu et al., 2016), đo đạc một trường điện được thêm vào hệ (Silaev et al., 2022; Trieu et al., 2023), theo dõi quá trình động học phân tử (Wörner et al., 2010; Kraus et al., 2015); sử dụng sự dịch chuyển của các đỉnh phổ để điều chỉnh pha sóng mang của laser (Naumov et al., 2015).

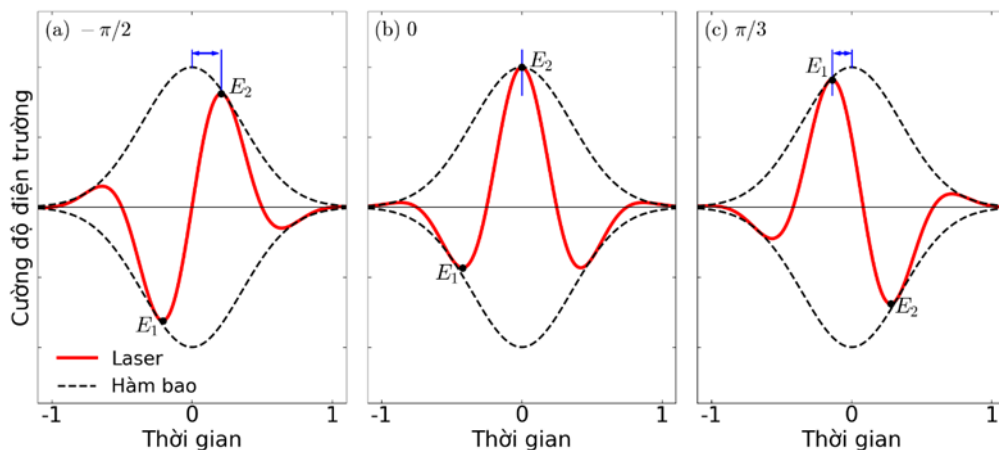
Với cùng tinh thần này, gần đây, nhóm nghiên cứu của chúng tôi (Trieu et al., 2024) đã đề xuất sử dụng sự dịch chuyển của các đỉnh phổ HHG, hay *sự dịch chuyển tần số HHG*, ở vùng sau điểm dừng để biểu thị tác dụng thay đổi pha lượng tử của electron trong quá trình lan truyền [bước (ii) theo mô hình ba bước] gây ra bởi điện trường tĩnh. Cơ sở của đề xuất trên là sự ảnh hưởng của điện trường tĩnh lên hệ gồm nguyên tử và laser ít chu kì, gây ra sự dịch chuyển tuyến tính của các đỉnh phổ trong vùng điểm dừng của phổ HHG theo độ lớn của điện trường tĩnh. Bằng mô hình ba bước, chúng tôi đã dự đoán và biểu diễn giải tích sự dịch chuyển này bằng công thức (Trieu et al., 2024)

$$\Delta N \equiv N - N_0 = \frac{2CE_m}{\pi\omega^3} E_s, \quad (1)$$

trong đó, N và N_0 lần lượt là vị trí của đỉnh phổ HHG khi hệ có và không có mặt điện trường tĩnh, $C = 2.558$ là hằng số số ứng với vùng điểm dừng, E_s là cường độ điện trường tĩnh, ω là tần số chính của laser, và $E_m = (E_1 - E_2)/2$, với E_1, E_2 lần lượt là cường độ điện trường

laser (có xét đến dấu) tại vị trí cực tiểu và cực đại. Phạm vi áp dụng của công thức này đã được chúng tôi khảo sát bằng cách so sánh với kết quả tính toán theo phương pháp giải trực tiếp phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian. Cụ thể, công thức này có thể được áp dụng đối với laser có cường độ $[1.5 \div 3.0] \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, bước sóng $[800 \div 2000] \text{ nm}$.

nhiên, việc khảo sát phạm vi áp dụng của công thức giải tích chưa được tiến hành đối với sự thay đổi của pha sóng mang laser, gọi tắt là CEP (Carrier-Envelope Phase) – một đại lượng đặc trưng đối với xung laser ít chu kỳ (Krausz et al., 2009), đặc biệt là đối với xung laser gồm ít hơn khoảng mười chu kỳ quang học. Về định nghĩa, CEP là độ lệch pha của đỉnh hàm bao xung laser so với cường độ điện trường cực đại của laser. Ở Hình 1, chúng tôi vẽ hình dạng xung laser (đường nét liền, màu đỏ) gồm khoảng 2 chu kỳ quang học trong trường hợp CEP bằng $-\pi/2$, 0 và $\pi/3$, theo thứ tự từ trái sang. Ở Hình 1(a), với CEP bằng $-\pi/2$, ta thấy đỉnh hàm bao sớm pha so với vị trí điện trường cực đại của laser. Tiếp theo, ở Hình 1(b), với CEP bằng 0 , đỉnh hàm bao trùng với vị trí điện trường cực đại; và tương tự, ở Hình 1(c), với CEP bằng $+\pi/3$, đỉnh hàm bao trễ pha hơn vị trí điện trường cực đại của laser. So sánh hình dạng các xung laser, ta thấy rằng sự thay đổi của CEP làm thay đổi đáng kể hình dạng của xung laser. Do đó, đối với các hiện tượng quang phi tuyến, bao gồm HHG, xảy ra từ tương tác của vật chất với laser ít chu kỳ, CEP là yếu tố không thể bỏ qua vì nó quy định dạng điện trường laser, từ đó gián tiếp ảnh hưởng đến quá trình động lực học của hệ lượng tử (Naumov et al., 2015; Phan et al., 2020; Morimoto et al., 2021). Đặc biệt, nhóm tác giả (Naumov et al., 2015) bằng cả lý thuyết và thực nghiệm đã chỉ ra sự tồn tại của những giá CEP mà tại đó, độ tương phản của cực đại và cực tiểu trong vùng điểm dừng là rất thấp, khiến việc quan sát các đỉnh phổ gặp khó khăn.



Hình 1. Hình dạng xung laser với các giá trị pha sóng mang (a) $-\pi/2$, (b) 0 và (c) $+\pi/3$. Độ lệch pha giữa đỉnh của hàm bao laser (đường nét đứt, màu đen) và vị trí của điểm cực đại của điện trường laser (đường nét liền, màu đỏ) được thể hiện bằng mũi tên. Vị trí điện trường có độ lớn cực đại trước và từ sau đỉnh hàm bao laser được đánh dấu bằng chấm tròn, và được ký hiệu lần lượt là E_1 và E_2 .

Do đó, hai câu hỏi được đặt ra là: (i) liệu hiện tượng dịch chuyển tần số HHG gây ra bởi điện trường tĩnh có quan sát được với các giá trị khác nhau của CEP, và (ii) liệu biểu thức giải tích của chúng tôi có mô tả được biểu hiện dịch chuyển tần số khi sử dụng laser có CEP bất kì? Trong nghiên cứu này, chúng tôi khảo sát lý thuyết ảnh hưởng của pha sóng mang laser, CEP, đối với khả năng quan sát được hiện tượng dịch chuyển tần số HHG gây ra bởi điện trường tĩnh và khả năng áp dụng công thức giải tích gần đúng để mô tả hiện tượng trong trường hợp hiện tượng có thể quan sát được. Hệ vật lý được khảo sát là nguyên tử hydrogen đặt trong tổ hợp xung laser ít chu kỳ, phân cực thẳng và điện trường tĩnh cùng phương phân cực. Phổ HHG được tính bằng phương pháp số với sự hỗ trợ của phần mềm Octopus (Marques et al., 2003). Các công thức được viết trong hệ đơn vị nguyên tử (atomic units – a.u.), tức $\hbar = m_e = e = 1$.

2. Đối tượng và phương pháp nghiên cứu

Trong nghiên cứu này, chúng tôi khảo sát mô hình lý thuyết gồm một nguyên tử hydrogen, một xung laser phân cực thẳng và một điện trường tĩnh cùng phương phân cực với laser. Phần dưới đây sẽ mô tả phương pháp tính phổ HHG thu được từ hệ này.

2.1. Phương pháp tính phổ phát xạ điều hòa bậc cao

Để tính phổ HHG, trước tiên, chúng tôi áp dụng phương pháp phiếm hàm mật độ phụ thuộc thời gian, cụ thể là giải số phương trình Kohn-Sham phụ thuộc thời gian để mô tả chuyển động của electron với sự hỗ trợ của phần mềm Octopus (Marques et al., 2003). Vì nguyên tử hydrogen chỉ có một electron, nên để tránh hiệu ứng tự tương tác nằm trong thế năng tương quan trao đổi của phương trình Kohn-Sham, chúng tôi sử dụng tùy chỉnh hạt độc lập (TheoryLevel = independent_particles). Khi đó, phương trình Kohn-Sham có dạng tương tự như phương trình Schrödinger phụ thuộc thời gian như sau

$$i \frac{\partial}{\partial t} \Psi(\mathbf{r}, t) = \left[-\frac{\nabla^2}{2} + V_c(\mathbf{r}) + V_I(\mathbf{r}, t) + iV_{im}(\mathbf{r}) \right] \Psi(\mathbf{r}, t), \quad (2)$$

trong đó, Ψ là hàm sóng của electron, V_c là thế năng Coulomb mô tả tương tác ion-electron của nguyên tử hydrogen, V_I là thế năng tương tác của electron với điện trường ngoài và V_{im} là hàm thế năng ảo.

Đối với hệ mà chúng tôi khảo sát, vì hai thành phần của điện trường ngoài đều phân cực theo một phương xác định, nên bó sóng electron hầu như chỉ lan truyền dọc theo phương phân cực của điện trường ngoài (Chirilă et al., 2010; Majorosi et al., 2018). Để tiết kiệm chi phí tính toán, chúng tôi khảo sát hệ trong không gian một chiều đặt theo trục Oz, tức $\Psi(\mathbf{r}, t) \rightarrow \Psi(z, t)$. Thành phần thế năng tương tác ion-electron được mô tả bằng thế năng Coulomb mềm được đề xuất bởi nhóm tác giả (Majorosi et al., 2018) như sau

$$V_c(z) = -\frac{1}{\sqrt{4z^2 + 1}}, \quad (3)$$

và thế năng tương tác với trường ngoài trở thành $V_I(z, t) = zE(t)$ trong gần đúng moment lưỡng cực, với $E(t)$ là điện trường ngoài phân cực thẳng theo trục Oz, có dạng

$$E(t) = E_0 \cos^2\left(\frac{\omega t}{2N_p}\right) \cos(\omega t + \varphi) + E_s, t = \left[-\frac{T_0}{2}, \frac{T_0}{2}\right], \quad (4)$$

trong đó, E_0 là điện trường cực đại của hàm bao laser, N_p là số chu kì quang học, φ là CEP, E_s là điện trường tĩnh, và $T_0 = N_p 2\pi/\omega$ là độ dài xung laser. Từ hàm sóng thu được, gia tốc của electron được tính theo định lí Ehrenfest

$$a(t) = -\langle \Psi(t) | \nabla V_c | \Psi(t) \rangle - E(t), \quad (5)$$

và phổ HHG được tính bằng

$$H(\Omega) = \left| \int a(t) e^{-i\Omega t} dt \right|^2. \quad (6)$$

2.2. Tham số kĩ thuật tính phổ phát xạ điều hòa bậc cao bằng phương pháp số

Theo tinh thần của phương pháp số, phương trình (2) sẽ được giải trong không thời gian hữu hạn và rời rạc. Về phần không gian, hàm sóng electron được mô phỏng trong “hộp mô phỏng” một chiều dọc theo trục Oz, nhận gốc tọa độ O làm tâm đối xứng. Hộp này có độ dài mỗi nửa không gian là $L = 0.9A_p + 50$ a.u., với $A_p = E_0/\omega^2$, và được chia lưới với độ dài mỗi bước nhảy không gian là 0.1 a.u.. Về phần thời gian, hàm sóng theo thời gian được xác định bằng cách tiến sự tiến hóa hàm sóng ban đầu theo phương pháp gần đúng cứng cố đối xứng thời gian ngược (Approximated Enforced Time-Reversal Symmetry) được tích hợp sẵn trong phần mềm Octopus, với bước chia thời gian 0.01 a.u.. Trong đó, hàm sóng ban đầu được giải bằng lí thuyết phiếm hàm mật độ khi hệ chưa có mặt trường ngoài. Quá trình tiến hóa của hàm sóng được xem xét từ thời điểm bật laser đến lúc tắt laser.

Trong quá trình laser tương tác với nguyên tử, không phải toàn bộ các bó sóng electron bị ion hóa đều bị laser kéo về tái hợp với ion mẹ. Do đó, tồn tại khả năng các bó sóng electron di chuyển đến biên của hộp mô phỏng, phản xạ và quay về tái hợp với ion mẹ dẫn đến sự phát xạ sóng HHG. Tuy nhiên, HHG phát ra theo cơ chế này là phi vật lí do sự giới hạn không gian trong mô phỏng. Để khắc phục yếu tố này, phần mềm Octopus hỗ trợ người dùng đưa vào phương trình (2) một hàm thế năng ảo, với biểu thức tương tự thế năng dạng rào thế (De Giovannini et al., 2017), như sau

$$V_{\text{im}}(z) = \begin{cases} 0 & , |z| < L - W \\ -H \cos^2\left[\frac{\pi L - |z|}{2W}\right] & , |z| \geq L - W \end{cases}, \quad (7)$$

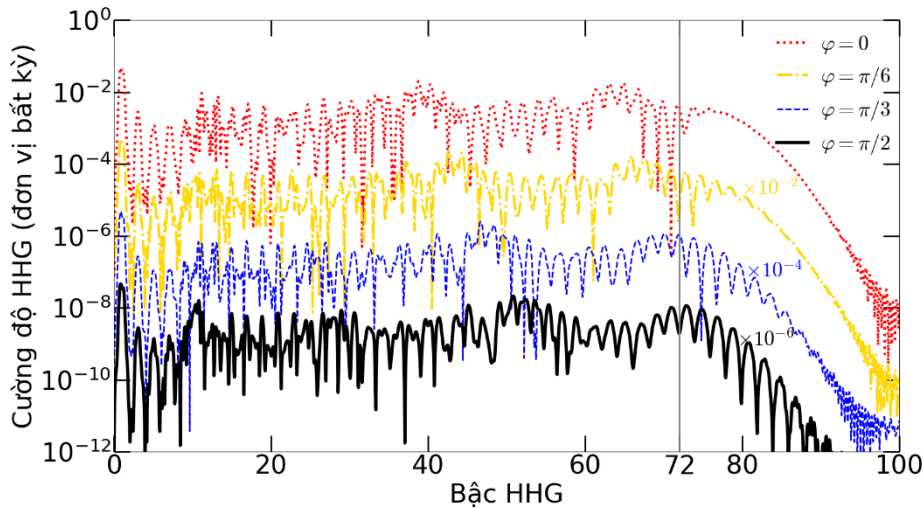
với H và W lần lượt là độ cao và bề rộng của rào thế. Hàm thế năng này có vai trò làm giảm dần biên độ hàm sóng electron khi lan truyền vào vùng không gian chứa nó. Hiệu ứng này tương tự như electron bị hấp thụ khi đi vào vùng không gian mà thế năng này khác 0, nên thế năng này còn được gọi là hàm thế năng hấp thụ. Ở đây, chúng tôi chọn $H = 0.2$ a.u. và $W = 50$ a.u. để đảm bảo các sóng HHG phi vật lí không làm ảnh hưởng các đặc điểm quan trọng của phổ HHG.

3. Kết quả và thảo luận

Trong mục này, trước tiên, chúng tôi trình bày kết quả tính toán phổ HHG với các giá trị CEP khác nhau khi hệ chưa có mặt điện trường tĩnh. Sau đó, chúng tôi trình bày kết quả khảo sát biểu hiện dịch chuyển tần số của vùng phổ HHG sau điểm dừng khi sử dụng laser có CEP khác nhau. Kết quả được chia thành ba phần, gồm các kết quả đối với một số giá trị CEP cho trường hợp dịch chuyển đỏ, một số giá trị CEP cho trường hợp dịch chuyển xanh, và cuối cùng là kết quả khảo sát tổng quát. Trong toàn bộ kết quả, chúng tôi sử dụng laser có cường độ 1.5×10^{14} W/cm², bước sóng 1200 nm, gồm năm chu kỳ quang học.

3.1. Phổ phát xạ điều hòa bậc cao không hệ không có mặt điện trường tĩnh

Đầu tiên, chúng tôi trình bày kết quả tính phổ HHG khi sử dụng laser có CEP khác nhau. Hình 2 biểu diễn các phổ HHG phát ra từ nguyên tử hydrogen khi tương tác với laser có CEP lần lượt là $0, \pi/6, \pi/3$ và $\pi/2$. Để dễ quan sát, chúng tôi đã dịch chuyển các phổ theo chiều dọc bằng cách nhân cường độ của ba phổ HHG sau cùng với các hệ số lần lượt là $10^{-2}, 10^{-4}$ và 10^{-6} .

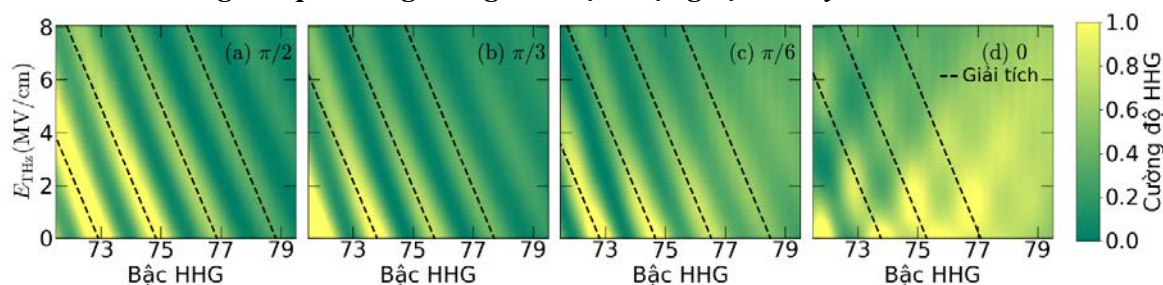


Hình 2. Phổ HHG khi sử dụng laser có CEP khác nhau: 0 (đường chấm, màu đỏ), $\pi/6$ (đường gạch chấm, màu vàng), $\pi/3$ (đường nét đứt, màu xanh) và $\pi/2$ (đường nét liền, màu đen). Phổ ứng với CEP bằng $\pi/6, \pi/3$ và $\pi/2$ đã được nhân với các hệ số như trong hình vẽ. Đường giống thẳng đứng biểu thị vị trí gần điểm dừng của các phổ. Biểu hiện của vùng sau điểm dừng thay đổi rõ rệt từ CEP bằng 0 với dạng phổ liên tục đến CEP bằng $\pi/2$ với dạng có đỉnh tách biệt khỏi phông nền

Nhìn chung, trong Hình 2, các phổ HHG ứng với các giá trị CEP khác nhau đều có hình dạng tương tự nhau. Cụ thể, vùng phổ từ bậc 1 đến 7 có cường độ đỉnh giảm nhanh, sau đó các HHG có cường độ gần như không đổi và điều này kéo dài đến khoảng bậc 72 (vị trí được đánh dấu bằng đường kẻ thẳng đứng). Bậc 72 chính là điểm dừng của các phổ, vì sau vị trí này, cường độ HHG có xu hướng giảm liên tục. Quan sát vùng sau điểm dừng, tức vùng bậc HHG lớn hơn 72, ta thấy CEP có ảnh hưởng rõ rệt đến cấu trúc của vùng phổ này.

Cụ thể, với CEP bằng 0, vùng sau điểm dừng gần như là phổ liên tục. Khi CEP tăng dần đến $\pi/2$, các đỉnh phổ bắt đầu xuất hiện rõ dần. Điều này trùng khớp với kết quả của nhóm tác giả (Naumov et al., 2015). Với nhận xét này, ta có thể dự đoán rằng, khả năng quan sát được sự dịch chuyển tần số HHG, hay sự dịch chuyển của các đỉnh phổ HHG, tăng dần theo CEP từ 0 đến $\pi/2$.

3.2. Ảnh hưởng của pha sóng mang lên hiện tượng dịch chuyển tần số

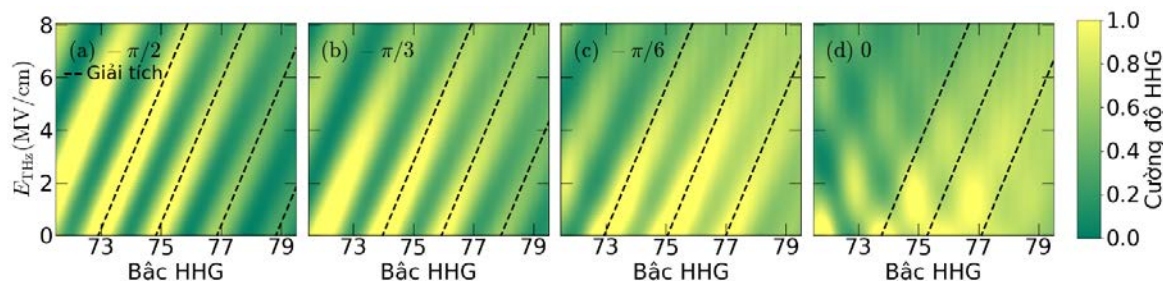


Hình 3. Biểu hiện của phổ HHG khi hệ có mặt điện trường tĩnh, với các giá trị CEP bằng (a) $\pi/2$, (b) $\pi/3$, (c) $\pi/6$ và (d) 0. Các phổ HHG đối với mỗi CEP đã được chuẩn hóa bằng cách chia cho 70% giá trị cường độ cực đại của toàn bộ các trong vùng quan sát (từ khoảng bậc 72 đến 80, điện trường tĩnh từ 0 MV/cm đến 8 MV/cm), và được biểu diễn bằng thang màu. Đường nét đứt màu đen biểu diễn công thức giải tích (1).

Tiếp theo, chúng tôi khảo sát biểu hiện của vùng sau điểm dừng của phổ HHG khi thêm vào hệ một điện trường tĩnh có cường độ từ 0 đến 8 MV/cm. Hình 3(a-d) lần lượt thể hiện các kết quả khảo sát một phần của vùng sau điểm dừng, từ khoảng bậc 72 đến 80, ứng với CEP bằng 0, $\pi/6$, $\pi/3$ và $\pi/2$. Trong đó, mỗi phổ HHG khảo sát được mã hóa thành một lát cắt ngang với thang màu biểu diễn cường độ HHG. Để thuận tiện cho việc hiển thị và so sánh số liệu, với mỗi giá trị của CEP, chúng tôi chia cường độ của các phổ cho 70% giá trị cường độ cực đại của toàn bộ các trong vùng khảo sát (gồm cả bậc HHG và điện trường tĩnh). Với cách biểu diễn như ở Hình 3, ta có thể nhận ra vị trí các đỉnh phổ tại các vùng sáng, màu vàng giữa vùng phông nền tối, màu xanh. Đường nét đứt màu đen biểu diễn công thức giải tích (1).

Trong Hình 3(a), tức CEP bằng $\pi/2$, ta thấy khi điện trường tĩnh bằng không, các đỉnh phổ xuất hiện tại vị trí bậc HHG lần lượt là khoảng 73, 75, 77 và 79. Khi điện trường tĩnh tăng dần, ta hoàn toàn có thể quan sát được các đỉnh phổ dịch chuyển tuyến tính sang trái, tức sang vùng tần số thấp. Đáng chú ý, sự dịch chuyển này trùng khớp với đường biểu diễn công thức giải tích. Tương tự, ở Hình 3(b), ứng với CEP bằng $\pi/3$, ta vẫn quan sát được sự dịch chuyển đỉnh phổ HHG và sự dịch chuyển này vẫn trùng khớp với công thức giải tích. Tuy nhiên, ở trường hợp này, độ tương phản giữa cường độ đỉnh phổ và phông nền thấp hơn so với trường hợp trước. Cụ thể, ở vùng điện trường tĩnh ≥ 3 MV/cm, độ sáng của các đỉnh phổ giảm rõ rệt so với cường độ phổ với các giá trị điện trường trước đó. Theo xu hướng này, với CEP bằng $\pi/6$, ta dễ dàng nhận xét được độ tương phản của các đỉnh phổ lại càng giảm, nhưng nhìn chung, dấu hiệu dịch chuyển tần số vẫn có thể quan sát được và mô tả

được bằng công thức giải tích. Khi CEP bằng 0, ở Hình 3(d), ta không còn quan sát được sự dịch chuyển tuyến tính của các đỉnh phổ mà chỉ nhận thấy các đỉnh phổ bám xung quanh đường giải tích. Tuy nhiên, trong nghiên cứu này, chúng tôi sẽ không tập trung phân tích hiện tượng này.



Hình 4. Tương tự Hình 3 nhưng đối với CEP bằng (a) $-\pi/2$, (b) $-\pi/3$, (c) $-\pi/6$ và (d) 0

Bên cạnh các giá trị CEP cho thấy sự dịch chuyển đỏ (về miền tần số thấp), chúng tôi cũng tiến hành khảo sát khảo sát các giá trị CEP bằng $-\pi/2$, $-\pi/3$, $-\pi/6$ với cho thấy sự dịch chuyển xanh (về miền tần số cao). Hình 4(a-c) lần lượt biểu diễn kết quả đối với các giá trị pha này và Hình 4(d) chính là kết quả ứng với CEP bằng 0 được vẽ lại để thực hiện so sánh. Ở Hình 4, ta có thể quan sát được sự dịch chuyển các đỉnh phổ và nhận thấy sự trùng khớp của đường giải tích đối với sự dịch chuyển này ở cả ba giá trị CEP khác 0. Bên cạnh đó, tương tự đã phân tích đối với Hình 3, độ tương phản của đỉnh phổ so với phông nền giảm dần khi CEP tiến đến 0. Tại CEP bằng 0, cụ thể là Hình 4(d), ta không còn quan sát trực tiếp được sự dịch chuyển tuyến tính của đỉnh phổ, mà chỉ nhận thấy đường giải tích ứng với sự dịch chuyển xanh đi qua một số vị trí đỉnh phổ.

Cuối cùng, chúng tôi thực hiện khảo sát các giá trị CEP từ 0 đến 2π , với bước nhảy $\pi/36$. Từ đây, chúng tôi thấy rằng với các giá trị CEP nằm trong vùng $[-34\pi/36, -4\pi/36]$ và $[+2\pi/36, +32\pi/36]$, ta có thể quan sát được sự dịch chuyển tần số và sự dịch chuyển này được mô tả tốt bởi công thức (1). Với các giá trị CEP còn lại, ta không thể quan sát được sự dịch chuyển tuyến tính của các đỉnh phổ mà chỉ nhận thấy sự tồn tại đồng thời của sự dịch chuyển đỏ và dịch chuyển xanh. Chúng tôi sẽ khảo sát và phân tích chi tiết hơn hiện tượng này trong công bố tiếp theo.

4. Kết luận và kiến nghị

Chúng tôi đã khảo sát hiện tượng dịch chuyển dịch chuyển tần số HHG gây ra bởi điện trường tĩnh khi sử dụng laser có CEP khác nhau. Kết quả cho thấy ở tồn tại hai vùng giá trị của CEP cho phép quan sát trực tiếp sự dịch chuyển tần số và sự dịch chuyển này được dự đoán đúng bởi công thức giải tích. Sử dụng laser càng gần $\pm\pi/2$, biểu hiện dịch chuyển tần số càng dễ quan sát do độ tương phản của đỉnh phổ cao. Với các giá trị CEP gần 0 và π , độ tương phản của phổ giảm, sự thay đổi các đỉnh phổ không còn tuyến tính, và có dấu hiệu tồn tại cùng lúc của sự dịch chuyển đỏ và dịch chuyển xanh.

- ❖ **Tuyên bố về quyền lợi:** Các tác giả xác nhận hoàn toàn không có xung đột về quyền lợi.
- ❖ **Lời cảm ơn:** Công trình này được tài trợ bởi Đề tài nghiên cứu cấp Bộ Giáo dục và Đào tạo (Việt Nam), mã số B2022-SPS-08-VL..

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- Alharbi, A. F., Boguslavskiy, A. E., Thiré, N., Schmidt, B. E., Légaré, F., Brabec, T., Spanner, M., & Bhardwaj, V. R. (2015). Sensitivity of high-order-harmonic generation to aromaticity. *Physical Review A*, 92(4), Article 041801. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.92.041801>
- Corkum, P. B. (1993). Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Physical Review Letters*, 71(13), Article 1994. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.71.1994>
- Chirilă, C. C., Dreissigacker, I., van der Zwan, E. V., & Lein, M. (2010). Emission times in high-order Harmonic Generation. *Physical Review A*, 81(3), Article 033412. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.81.033412>
- De Giovannini, U., Larsen, A. H., & Rubio, Á. (2015). Modeling electron dynamics coupled to continuum states in finite volumes with absorbing boundaries. *The European Physical Journal B*, 88(3), Article 56. <https://doi.org/10.1140/epjb/e2015-50808-0>
- Ferray, M., L'Huillier, A., Li, X. F., Lompre, L. A., Mainfray, G., & Manus, C. (1988). Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 21(3), 0. <https://doi.org/10.1088/0953-4075/21/3/001>
- Judson, R. S., & Rabitz, H. (1992). Teaching lasers to control molecules. *Physical Review Letters*, 68(10), Article 1500. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.68.1500>
- Krausz, P. M., Mignolet, B., Baykusheva, D., Rupenyany, A., Horný, L., Penka, E. F., Grassi, G., Tolstikhin, O. I., Schneider, J., Jensen, F., Madsen, L. B., Bandrauk, A. D., Remacle, F., & Wörner, H. J. (2015). Measurement and laser control of attosecond charge migration in ionized iodoacetylene. *Science*, 350(6262), Article 790. <https://doi.org/10.1126/science.aab2160>
- Krausz, F., & Ivanov, M. (2009). Attosecond physics. *Reviews of Modern Physics*, 81(1), Article 163. <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.81.163>
- Lewenstein, M., Balcou, Ph., Ivanov, M. Yu., L'Huillier, A., & Corkum, P. B. (1994). Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Physical Review A*, 49(3), Article 2117. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.49.2117>
- Luu, T. T., & Wörner, H. J. (2016). High-order harmonic generation in solids: A unifying approach. *Physical Review B*, 94(11), Article 115164. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.94.115164>
- Maiman, T. H. (1960). Stimulated optical radiation in ruby. *Nature*, 187(4736), Article 493. <https://doi.org/10.1038/187493a0>
- Majorosi, S., Benedict, M. G., & Czirják, A. (2018). Improved one-dimensional model potentials for strong-field simulations. *Physical Review A*, 98(2), Article 023401. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.98.023401>
- Marques, M. a. L., Castro, A., Bertsch, G. F., & Rubio, Á. (2003). octopus: a first-principles tool for excited electron-ion dynamics. *Computer Physics Communications*, 151(1), Article 60. [https://doi.org/10.1016/S0010-4655\(02\)00686-0](https://doi.org/10.1016/S0010-4655(02)00686-0)

- Morimoto, Y., Shinohara, Y., Tani, M., Chen, B.-H., Ishikawa, K. L., & Baum, P. (2021). Asymmetric single-cycle control of valence electron motion in polar chemical bonds. *Optica*, 8(3), Article 382. <https://doi.org/10.1364/OPTICA.414213>
- Naumov, A. Yu., Villeneuve, D. M., & Niikura, H. (2015). Contribution of multiple electron trajectories to high-harmonic generation in the few-cycle regime. *Physical Review A*, 91(6), Article 063421. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.91.063421>
- Paul, P. M., Toma, E. S., Breger, P., Mullot, G., Augé, F., Balcou, Ph., Muller, H. G., & Agostini, P. (2001). Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, 292(5522), Article 1689. <https://doi.org/10.1126/science.1059413>
- Phan, N.-L., Nguyen, K.-N. H., Le, C.-T., Vu, D., Tran, K., & Le, V.-H. (2020). General characterization of partially oriented polar molecules by the time-frequency profile of high-order Harmonic Generation. *Physical Review A*, 102(6), Article 063104. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.102.063104>
- Shcherbakov, M. R., Zhang, H., Tripepi, M., Sartorello, G., Talisa, N., AlShafey, A., Fan, Z., Twardowski, J., Krivitsky, L. A., Kuznetsov, A. I., Chowdhury, E., & Shvets, G. (2021). Generation of even and odd high harmonics in resonant metasurfaces using single and multiple ultra-intense laser pulses. *Nature Communications*, 12(1), Article 4185. <https://doi.org/10.1038/s41467-021-24450-9>
- Silaev, A. A., Romanov, A. A., & Vvedenskii, N. V. (2022). Using the generation of Brunel harmonics by elliptically polarized laser pulses for high-resolution detecting lower-frequency radiation. *Optics Letters*, 47(18), Article 4664. <https://doi.org/10.1364/OL.462916>
- Trieu, D.-A., Phan, N.-L., Truong, Q.-H., Nguyen, H. T., Le, C.-T., Vu, D., & Le, V.-H. (2023). Universality in odd-even harmonic generation and application in terahertz waveform sampling. *Physical Review A*, 108(2), Article 023109. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.108.023109>
- Trieu, D.-A., Nguyen, T.-T. D., Nguyen, T.-D. D., Vu, D.D., Le, V.-H., & Phan, N.-L. (2024). Analytically controlling the laser-induced electron phase in sub-cycle motion. *Physical Review A*, 110(2), Article L021101. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.110.L021101>
- Wong, M. C., Brichta, J.-P., Spanner, M., Patchkovskii, S., & Bhardwaj, V. R. (2011). High-harmonic spectroscopy of molecular isomers. *Physical Review A*, 84(5), Article 051403. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.84.051403>
- Wörner, H. J., Bertrand, J. B., Corkum, P. B., & Villeneuve, D. M. (2010). High-harmonic homodyne detection of the ultrafast dissociation of Br₂ molecules. *Physical Review Letters*, 105(10), Article 103002. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.105.103002>
- Xie, X., Xu, J., Dai, J., & Zhang, X.-C. (2007). Enhancement of terahertz wave generation from laser induced plasma. *Applied Physics Letters*, 90(14), Article 141104. <https://doi.org/10.1063/1.2719165>
- Yanovsky, V., Chvykov, V., Kalinchenko, G., Rousseau, P., Planchon, T., Matsuoka, T., Maksimchuk, A., Nees, J., Cheriaux, G., Mourou, G., & Krushelnick, K. (2008). Ultra-high intensity- 300-TW laser at 0.1 Hz repetition rate. *Optics Express*, 16(3), Article 2109. <https://doi.org/10.1364/OE.16.002109>
- Zuo, T., Bandrauk, A. D., & Corkum, P. B. (1996). Laser-induced electron diffraction: A new tool for probing ultrafast molecular dynamics. *Chemical Physics Letters*, 259(3), Article 313. [https://doi.org/10.1016/0009-2614\(96\)00786-5](https://doi.org/10.1016/0009-2614(96)00786-5)

**EFFECTS OF LASER'S CARRIER-ENVELOPE PHASE
ON ELECTROSTATIC-FIELD-INDUCED FREQUENCY SHIFT
OF HIGH-ORDER HARMONIC GENERATION**

Nguyen Dang Trong Thanh, Nguyen Dinh Thanh Duy, Trieu Doan An, Phan Thi Ngoc Loan*

Ho Chi Minh City University of Education, Ho Chi Minh City, Vietnam

**Corresponding author: Trieu Doan An – Email: antd.vlnt033@pg.hcmue.edu.vn.*

Received: May 23, 2024; Revised: July 12, 2024; Accepted: August 01, 2024

ABSTRACT

Structural and dynamical information of a laser-matter system are encoded in high-order harmonic generation (HHG) and reflected in HHG spectra. In our recent study (Trieu et al., 2024), we have indicated that the HHG frequency from an electrostatic-field-dressed laser-atom system exhibits a linear shift with variations in the electrostatic field strength, and we derived an analytical formula to describe this shift. Leveraging this formula, we proposed a method to measure the laser-controlled phase of propagating electron wavepacket. The formula was validated across diverse laser intensities and wavelengths. In this paper, we extend the validation by examining the impact of the laser's carrier-envelope phase (CEP). The results show that the HHG frequency shift is observable within two distinct CEP ranges and aligns well with the predictions of the analytical formula. Outside these ranges, however, the shift is not directly detectable.

Keywords: carrier-envelope phase; electrostatic field; frequency shift; high-order harmonic generation