

Research Paper

# Effect of Femtosecond Laser Polarization on The High- Harmonic Generation from Formaldehyde Molecule<sup>1</sup>

Elnaz Irani<sup>\*2</sup>, Zahra Hoseini<sup>3</sup> and Mohammad Monfared<sup>4</sup>

Received: 2023.10.19

Revised: 2023.12.09

Accepted: 2024.01.05

## Abstract

In this work, we study the interaction of femtosecond laser with formaldehyde molecule and investigate the effect of intensity and angle of laser polarization on the high harmonic generation. The calculation is done with time-dependent density functional theory in three-dimensional real space. The effect of the ellipticity parameter and the role of different orbitals of this molecule on the high harmonic spectrum is investigated, so that the contribution of different orbitals of the formaldehyde molecule in this process can be controlled. The maximum intensity and the maximum width of the high harmonic spectrum are obtained for the ellipticity parameter of 0.15. Also, if the large diameter of the ellipse of laser polarization is along the y-axis, the intensity of the harmonic spectrum is increased, and the reason for this process is discussed by analyzing the time evolution of the population of ionized electrons. In the following, the effect of incident laser polarization on the output attosecond pulse polarization and its width is investigated, which is resulted in the generation of an elliptically polarized attosecond pulse.

**Keywords:** *High-harmonic Generation, Femtosecond Laser, Formaldehyde Molecule, Molecular Orientation, and Laser Polarization.*

<sup>1</sup> <https://doi.org/10.22051/ijap.2024.45321.1359>

<sup>2</sup> Assistant Professor, Department of Physics, Faculty of Basic Sciences, Tarbiat Modares University, Tehran, Iran. (Corresponding Author) Email: e.irani@modares.ac.ir

<sup>3</sup> M. Sc. Graduated, Department of Physics, Faculty of Basic Sciences, Tarbiat Modares University, Tehran, Iran. Email: zahrahoseini9696@gmail.com

<sup>4</sup> PhD Graduated, Institute of Condensed Matter Theory and Optics, Friedrich-Schiller-University Jena, D-07743 Jena, Germany. Email: m.monfared@yahoo.com

<https://jap.alzahra.ac.ir>



# اثر قطبش لیزر فمتوثانیه در تولید هماهنگ‌های مرتبه بالا از مولکول فرمالدهید<sup>۱</sup>

الناز ایرانی\*<sup>۲</sup>، زهرا حسینی<sup>۳</sup> و محمد منفرد<sup>۴</sup>

فصلنامه علمی فیزیک کاربردی ایران

دانشکده فیزیک، دانشگاه الزهرا

سال چهاردهم، پیاپی ۳۷، تابستان ۱۴۰۳

صص ۲۳ - ۳۹

تاریخ دریافت: ۱۴۰۲/۰۷/۲۷

تاریخ بازنگری: ۱۴۰۲/۰۹/۱۸

تاریخ پذیرش: ۱۴۰۲/۱۰/۱۵

## چکیده:

در این پژوهش اثر شدت و زاویه قطبش میدان لیزر فرودی نسبت به راستای مولکول فرمالدهید در برهم کنش با لیزر فمتوثانیه برای تولید هماهنگ‌های مرتبه بالا بررسی می‌شود. محاسبات با استفاده از نظریه تابعی چگالی وابسته به زمان و در فضای حقیقی سه بعدی انجام می‌شود. همچنین اثر کمیت قطبش‌پذیری پالس فرودی و نقش اوربیتال‌های مختلف این مولکول در فرایند تولید هماهنگ‌ها بررسی می‌شود که به این شکل می‌توان میزان مشارکت اوربیتال‌های مختلف مولکول فرمالدهید در فرایند تولید هماهنگ‌ها را هدایت کرد. بیشینه شدت طیف هماهنگ‌ها و بیشینه پهنای طیف برای کمیت قطبش‌پذیری ۰/۱۵ بدست می‌آید. همچنین اگر قطر بزرگ بیضی قطبش نور در راستای محور  $\lambda$  باشد، شدت طیف هماهنگ‌ها افزایش می‌یابد که دلیل آن با نمایش تحول زمانی جمعیت الکترون‌های یونیزه شده بررسی می‌شود. در ادامه اثر قطبش نور لیزر فرودی در نوع قطبش پالس اتوثانیه خروجی و پهنای آن بررسی می‌شود که منجر به تولید پالس قطبیده بیضوی می‌شود.

**واژگان کلیدی:** تولید هماهنگ‌های مرتبه بالا، لیزر فمتوثانیه، مولکول فرمالدهید، جهت‌گیری مولکول و قطبش لیزر.

<sup>۱</sup> <https://doi.org/10.22051/ijap.2024.45321.1359>

<sup>۲</sup> استادیار، دانشکده علوم پایه، گروه فیزیک اتمی مولکولی، دانشگاه تربیت مدرس، تهران، ایران. (نویسنده مسئول)

Email: e.irani@modares.ac.ir

<sup>۳</sup> دانش‌آموخته کارشناسی ارشد، دانشکده علوم پایه، گروه فیزیک اتمی مولکولی، دانشگاه تربیت مدرس، تهران،

ایران. Email: zahrahoseini9696@gmail.com

<sup>۴</sup> دانش‌آموخته دکتر، انستیتو نظریه ماده چگال و اپتیک، دانشگاه فردریچ شیلر ینا، آلمان. Email: m.monfared@yahoo.com



## ۱. مقدمه

یکی از پدیده‌های کاربردی در حوزه لیزر و اپتیک، که به تازگی توجه بیشتر پژوهشگران را به خود جلب کرده است، تولید هماهنگ‌های مرتبه بالا و پالس‌های فوق کوتاه آتوثانیه از راه برهم کنش لیزر پرشدت فمتوثانیه با سامانه‌های اتمی-مولکولی است. پالس‌های آتوثانیه با طول موج بسیار کوتاه در محدوده اشعه ایکس برای مطالعه کاربردهای مفیدی نظیر بررسی دینامیک الکترون‌ها و توموگرافی مولکولی که در مرتبه زمانی آتوثانیه رخ می‌دهند، به کار می‌روند [۱-۳]. فرایند تولید هماهنگ‌های مرتبه بالا از سامانه‌های اتمی و مولکولی با الگوی کرکوم<sup>۱</sup> تعریف می‌شود [۴]. این الگوی نیمه کلاسیکی دارای سه مرحله یونش، شتاب‌دهی و بازترکیب الکترون‌ها می‌باشد. در مرحله اول، زمانی که اتم یا مولکول در معرض میدان قوی لیزر قرار می‌گیرد، الکترون به روش تونل‌زنی از قید هسته خارج شده و در میدان لیزر شتاب می‌گیرد. در مرحله دوم، الکترون شتاب گرفته با تغییر علامت میدان لیزر در جهت معکوس به سمت یون مادر شتاب می‌گیرد. در مرحله سوم نیز این الکترون در دو سوم چرخه اپتیکی می‌تواند با یون مادر بازترکیب شده و انرژی جنبشی خود را به همراه پتانسیل یونش در غالب یک فوتون در ناحیه  $XUV^2$  گسیل کند.

پیشینه انرژی فوتون گسیلی بدست آمده، که انرژی قطع نام دارد، از رابطه  $\hbar\omega_{\max} = I_p + 3.17U_p$  محاسبه می‌شود که  $I_p$  انرژی پتانسیل یونش،  $U_p$  انرژی پاندروماتیو<sup>۳</sup> الکترون و  $\omega_{\max}$  فرکانس قطع است. حال قطبش لیزر منجر به تغییر مسیر الکترون‌های شتاب گرفته و در نتیجه منجر به تغییر انرژی جنبشی الکترون می‌شود که به دلیل تغییر در جمله فازی به کمک تغییر قطبش افزون بر عوض کردن مسیر الکترون، طیف خروجی بدست آمده از بازترکیب نیز تغییر خواهد کرد. از این رو، چالش‌های بسیار زیادی در این مساله وجود دارد که با توسعه الگوی کرکوم برای یک سامانه مولکولی، پیچیدگی مساله نیز بیشتر می‌شود. چرا که، در مولکول‌ها عواملی چون اثر جهت‌گیری‌های مولکولی، نقش اوربیتال‌های داخلی تر و اثرات تداخلی الکترون با اتم‌های مختلف مولکول بررسی مساله را پیچیده‌تر کرده و از این رو، نیاز به بررسی کامل سامانه مورد مطالعه با دیدگاه کوانتومی است. همچنین، هم‌فازی بهتر هماهنگ‌های مرتبه بالا برای تولید پالس آتوثانیه برای دست‌یابی به پهنای زمانی بسیار کوتاه، پیچیده‌تر شده که بایستی با تغییر کمیت‌های لیزر بتوان مدیریت کرد.

<sup>1</sup> Corkum

<sup>2</sup> Extreme ultraviolet

<sup>3</sup> Ponderomotive energy



ایتاتانی و همکارانش، وابستگی بهره هماهنگ‌های مرتبه بالا در مولکول‌ها را با بررسی جهت‌گیری مولکول نیتروژن در میدان لیزری مطالعه کردند [۵]. ژانگ و همکارانش، اثر جهت‌گیری مولکول مونوکسید کربن را بر روی هماهنگ‌های مرتبه بالا مطالعه کردند [۶]. همچنین امکان تولید پالس‌های لیزر آتوثانیه قطبیده به دلیل کاربرد وسیع آن در طیف‌سنجی دارای اهمیت زیادی است که توجه بسیاری از پژوهشگران را به خود جلب کرده است. اگرچه، هنوز هم به دلیل نوظهور بودن این حوزه پژوهش‌هایی به صورت دقیق اصول فیزیک حاکم بر فناوری تولید لیزرهای قطبیده آتوثانیه مشخص نیست و چالش‌های زیادی نیز در این زمینه مطرح است. یکی از چالش‌های مهم در این زمینه این است که بسیاری از پژوهشگران تاکنون بر این باور بوده‌اند که نور قطبیده دایروی امکان تولید هماهنگ‌های مرتبه بالا را ندارد. روی بائر و همکارانش، توانستند با پالس لیزر قطبیده دایروی بهره هماهنگ‌های مرتبه بالاتر مولکول بنزن را نسبت به حالت تابش پالس لیزر قطبیده خطی افزایش دهند. افزایش بهره هماهنگ‌ها با مولکول بنزن به دلیل ساختار هگزاگونال آن و با انتخاب بهینه کمیت‌های اولیه چون شدت لیزر و سایر کمیت‌های موثر امکان‌پذیر است [۷]. گرچه به تازگی، در سال ۲۰۱۵، پژوهشگرانی از دانشگاه کلرادوی آمریکا برای اولین بار به صورت تجربی با استفاده از دو میدان لیزری که به صورت ناهمسو چرخش می‌کردند و به صورت دایروی قطبیده شده بودند، توانستند هماهنگ‌های مرتبه بالا را برای اتم‌های گازی بدست آورند [۸]. در سال ۲۰۱۶، جمعی از پژوهشگران دانشگاه صنعتی لیاونینگ چین، تولید پالس آتوثانیه از راه تولید هماهنگ مولکولی نامتقارن از  $\text{HeH}^{2+}$  در حضور میدان ناهمگون فضایی بدست آمده از پلاسمون تقویت شده ارائه دادند [۹]. سپس همین گروه پژوهش‌هایی در سال ۲۰۱۷ با بررسی شبیه‌سازی تولید پالس آتوثانیه منفرد بدست آمده از هماهنگ‌های  $\text{H}_2^+$  به این نتیجه دست یافتند که طیف هماهنگ در توزیع‌های نامتقارن مربوط به هر یک از اتم‌های هیدروژن در زمان‌هایی که میدان مثبت است با زمانی که میدان منفی است متفاوت خواهد بود [۱۰]. گروه ورنر نیز در سال ۲۰۱۷، توانستند به صورت تجربی پالس آتوثانیه‌ای با پهنای ۴۳ آتوثانیه تولید کنند [۱۱]. در سال ۲۰۱۹ کیاچون یان و همکارانش، با استفاده از ترکیب سه پالس لیزر موفق به تولید پالس آتوثانیه با پهنای زمانی کمتر شدند [۱۲]. در ۲۰۱۹، بررسی طیف هماهنگ‌های مرتبه بالا روی سامانه‌های اسپینی کوانتومی انجام شد [۱۳]. در سال ۲۰۲۰، طیف تولید شده هماهنگ مراتب بالا با استفاده از یک لیزر دایره‌ای قطبی شده شامل نشانه‌هایی از فاز توپولوژیکی در الگوی هالدین با استفاده از تقریب تنگ بست می‌باشد. هم‌چنین نشان داده شد که توابع موج بلاخ ناوردای پیمان‌های هستند و با یک روش ریاضی می‌توان نقاط

تکینگی در گشتاور دوقطبی را که سبب ایجاد نوفه در طیف می‌شود، حذف کرد [۱۴]. در ۲۰۲۱، قیمایر با آزمایش روی ماده سه بعدی  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  افزایش بازده طیف هماهنگ‌ها با قطبش دایره‌ای را مشاهده کرد. که این افزایش می‌تواند توپولوژی ساختار نواری را رمزگذاری کند [۱۵]. در ۲۰۲۲، با استفاده از  $\text{Bi}_2\text{Se}_3$  سهم توپولوژیکی در وابستگی بیضوی HHG "غیر عادی" را می‌توان در حضور حالت‌های سطح توپولوژیکی ردیابی کرد [۱۶]. در نهایت جایزه نوبل سال ۲۰۲۳ به مطالعه دینامیک الکترون‌ها به واسطه پالس‌های فوق کوتاه آتوتانیه تعلق گرفت.

بنابراین، در این پژوهش تلاش می‌شود تا با تغییر قطبش لیزر فمتوثانیه و مهندسی پالس به صورت ترکیب پالس‌های میدان لیزر با قطبش‌های مختلف، روشی کاربردی در طیف‌سنجی سامانه‌های مولکولی را توسعه داده شود. همچنین، تلاش می‌شود تا امکان دستیابی به هماهنگ‌های مرتبه بالا با پهنای وسیع تر و تولید پالس آتوتانیه پرشدت برای بررسی فرایندهایی که در محدوده زمانی آتوتانیه رخ می‌دهند، فراهم شود. انتخاب مولکول فرمالدهید با تنوع شکل اوربیتالی و همچنین چهاراتمی بودن این مولکول با وجود پیچیدگی‌های مساله می‌تواند جذاب و مبانی فیزیکی مهمی داشته باشد. جهت مطالعه برهم‌کنش مولکول فرمالدهید با میدان لیزر معادلات کوهن-شم<sup>۱</sup> با استفاده از نظریه تابعی چگالی وابسته به زمان (TDDFT)<sup>۲</sup> حل خواهد شد [۱۷]. TDDFT با ملاحظه توابع تبدیلی-همبستگی مناسب برای سامانه مولکولی برای نمایش دینامیک برهم‌کنش و داشتن تصویر مناسب از تحولات زمانی سامانه برهم‌کنش مناسب است. از این رو، در این پژوهش محاسبات با استفاده از نرم افزار محاسباتی اختاپوس (ورژن ۷/۲) که توانمند در اجرای شبیه‌سازی مولکولی بر پایه TDDFT است، انجام خواهد شد [۱۸]. محاسبات در فضا و زمان حقیقی و به صورت سه بعدی انجام می‌شود. سپس با یافتن رفتار ممان دوقطبی الکتریکی و شتاب دوقطبی الکتریکی سامانه می‌توان طیف هماهنگ‌های مرتبه بالا را در هر لحظه و هر مکان بررسی کرد. با انتگرال تبدیل زمان-فرکانس می‌توان زمان یونش و بازترکیب الکترون‌ها و فوتون‌های گسیلی ناشی از مسیرهای کوتاه و بلند را بدست آورد. همچنین با برهم‌نهی تعدادی از هماهنگ‌های همفاز امکان دستیابی به پالس آتوتانیه با پهنای زمانی بسیار کوتاه و شدت بالا بدست می‌آید.

<sup>1</sup> Kohn-Sham equations

<sup>2</sup> Time dependent density functional theory



## ۲. روش محاسباتی

نظریه تابعی چگالی با توابع تبدلی - همبستگی مناسب برای سامانه الکترونی غیر برهم‌کنشی، نشان داد که یک روش موفق برای ویژگی‌های حالت پایه سامانه اتمی - مولکولی است. متأسفانه محاسبات ترازهای تحریکی انجام شده با روش کوهن - شم، برای بررسی اختلالات وابسته زمانی نظیر پاسخ اپتیکی و دینامیک برهم‌کنش لیزر با سامانه اتمی - مولکولی مناسب نیستند. بنابراین نیاز به آنالیز وابسته زمانی با نظریه TDDFT دارد [۱۷]. در حقیقت، مطالعه رفتار زمانی سامانه بس‌ذره‌ای با معادله شرودینگر وابسته زمانی به صورت زیر بیان می‌شود:

$$i \frac{\partial}{\partial t} \psi(\mathbf{r}, t) = \hat{H} \psi(\mathbf{r}, t), \quad (1)$$

در رابطه بالا  $\psi(\mathbf{r}, t)$  تابع موج کل سامانه می‌باشد. حالت معادله کوهن - شم وابسته به زمان به صورت زیر تعریف می‌شود:

$$\hat{H}_{KS} \varphi_i(\mathbf{r}, t) = \left[ -\frac{\nabla^2}{2} + v_{KS}(\mathbf{r}, t) \right] \varphi_i(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_i \varphi_i(\mathbf{r}, t), \quad (2)$$

چگالی سامانه برهم‌کنشی براساس اوربیتال‌های کوهن - شم برابر زیر تعریف می‌شود:

$$n(\mathbf{r}, t) = \sum_{i=1}^{occ} \varphi_i^*(\mathbf{r}, t) \varphi_i(\mathbf{r}, t), \quad (3)$$

$n(\mathbf{r}, t)$  چگالی الکترون وابسته به زمان و  $v_{KS}(\mathbf{r}, t)$  پتانسیل کوهن - شم وابسته به زمان است که به صورت زیر نوشته می‌شود:

$$v_{KS}[n](\mathbf{r}, t) = v_H[n](\mathbf{r}, t) + v_{xc}[n](\mathbf{r}, t) + v_{ext}(\mathbf{r}, t), \quad (4)$$

در رابطه بالا  $v_H$  پتانسیل هارتری<sup>۱</sup>،  $v_{xc}$  پتانسیل تبدلی - همبستگی<sup>۲</sup>،  $v_{ext}$  پتانسیل خارجی و  $v_{ne}$  پتانسیل برهم‌کنشی الکترون و هسته می‌باشند. برهم‌کنش پالس لیزر با سامانه مولکولی نیز براساس تقریب دوقطبی با جمله  $-\mathbf{d}(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{E}(t)$  بیان می‌شود که  $\mathbf{d}(\mathbf{r}, t)$  دوقطبی الکتریکی سامانه و  $\mathbf{E}(t)$  میدان لیزر برهم‌کنشی است که برای پالس قطبیده بیضوی براساس رابطه زیر بیان می‌شود:

<sup>1</sup> Hartree potential

<sup>2</sup> Exchange-Correlation potential



$$\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 \sin^2\left(\frac{\pi t}{T}\right) \left[ \frac{1}{\sqrt{1+\varepsilon^2}} \cos(\omega t + \phi) \hat{\mathbf{e}}_x + \frac{\varepsilon}{\sqrt{1+\varepsilon^2}} \sin(\omega t + \phi) \hat{\mathbf{e}}_y \right], \quad (5)$$

در این رابطه،  $\varepsilon$  کمیت قطبش پذیری،  $E_0$  دامنه میدان لیزر،  $\phi$  فاز پوش حامل و  $\omega$  فرکانس زاویه‌ای پالس لیزر برهمکنشی است. حل تابعی زمانی معادله کوهن-شم به روش انتشارگر زمانی به صورت زیر است که عبارت داخل کروشه عامل انتشارگر زمانی است.

$$\varphi_i(\mathbf{r}, t) = \left[ \exp\left(-i \int_0^t \hat{H}_{KS} dt\right) \right] \varphi_i(\mathbf{r}, 0), \quad (6)$$

در رابطه بالا  $\varphi_i(\mathbf{r}, 0)$  تابع موج حالت پایه می‌باشد. در این روش بازه زمانی صفر تا  $t$  را به بازه‌های مساوی تقسیم و تابع نمایی درون کروشه بسط داده شد.

$$\varphi_i(\mathbf{r}, \delta t) = \left[ \sum_m \frac{(-i \hat{H}_{KS} \delta t)^m}{m!} \right] \varphi_i(\mathbf{r}, 0), \quad (7)$$

طیف هماهنگ‌های مرتبه بالا از نوسان ممان دو قطبی الکتریکی سامانه تولید می‌شوند که با توجه به شتاب دو قطبی الکتریکی ( $\ddot{\mathbf{d}}(t)$ ) بر اساس رابطه زیر قابل محاسبه است [۱۹]:

$$H(\omega) = \left| \frac{1}{T_{tot}} \int_0^{T_{tot}} \ddot{\mathbf{d}}(t) \exp(-i\omega t) dt \right|^2, \quad (8)$$

زمان کل پالس فمتوثانیه تشعشعی به سامانه است. از برهم‌نهی تعدادی از هماهنگ‌ها، یک پالس آتوتانیه تولید می‌شود که شدت آن به صورت زیر بدست می‌آید [۲۰-۲۱]:

$$I(t) = \left| \sum_q a_q e^{iq\omega_0 t} \right|^2, \quad (9)$$

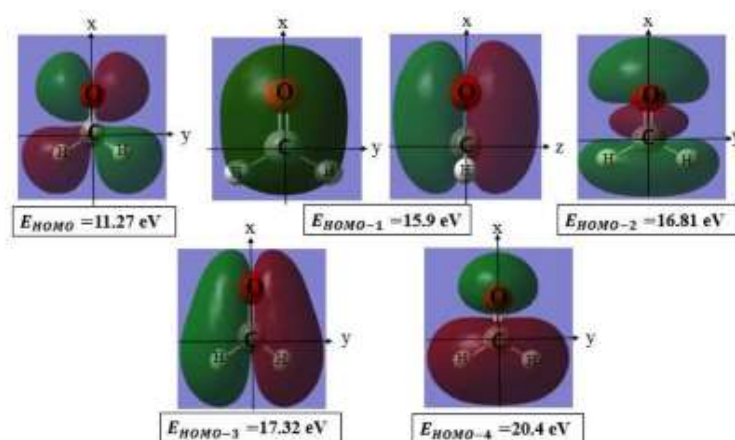
$q$  مرتبه هماهنگ و  $a_q$  دامنه هماهنگ در فضای فرکانس و ناشی از تبدیل فوریه شتاب دو قطبی است که به صورت زیر تعریف می‌شود:



$$a_q = \int_0^{T_{tot}} \ddot{d}(t) e^{-iq\omega_0 t} dt. \quad (10)$$

### ۳. بحث و نتیجه‌گیری

در ابتدا به دلیل نقش مهم شکل اوربیتال‌های مولکولی و مشارکت آن‌ها در طیف هماهنگ مرتبه بالای ناشی از برهمکنش پالس لیزر قطبیده بیضوی، ابتدا به نمایش شکل اوربیتال‌های سامانه مولکولی مورد تمرکز این پژوهش پرداخته شده است. اوربیتال‌های مولکول فرمالدهید توسط نرم افزار گوسین به روش تابعی چگالی و با مجموعه پایه ۶-۳۱۱ شبیه‌سازی شده است که در شکل (۱) مشاهده می‌شود.



شکل ۱ اوربیتال‌های مولکولی فرمالدهید. این اوربیتال‌ها توسط نرم افزار گوسین به روش تابعی چگالی و با مجموعه پایه ۶-۳۱۱ شبیه‌سازی شده است. رنگ‌های قرمز و سبز به ترتیب نشانگر مقادیر مثبت و منفی تابع موج می‌باشد.

اوربیتال  $HOMO^1$  نسبت به محور  $x$  تقارن دارد و اوربیتال  $HOMO-1$  در صفحه  $x-y$  و اوربیتال  $HOMO-3$  در صفحه  $x-z$  دارای صفحه نودال هستند. بنابراین، اگر قطبش لیزر در این صفحه‌ها باشد، این اوربیتال‌ها نقشی در تولید هارمونیک‌ها نخواهند داشت. اوربیتال  $HOMO$  و  $HOMO-1$  و  $HOMO-3$  دارای پیوند  $\pi$  و اوربیتال  $HOMO-2$  و  $HOMO-4$  دارای پیوند  $\sigma$  هستند. حال اثر کمیت قطبش‌پذیری لیزر به دلیل اهمیت آن در برهم‌کنش با مولکول فرمالدهید و امکان تولید پالس‌های قطبیده آتوثانیه خروجی بررسی می‌شود.

<sup>1</sup> Highest occupied molecular orbital



برای این کار میدان لیزر برهم کنشی به صورت قطبیده بیضوی در نظر گرفته شده و سپس با استفاده از تغییر کمیت قطبش پذیری  $\epsilon$ ، می توان انواع حالت لیزر قطبیده بیضوی را بررسی کرد. بدین منظور طیف هماهنگ‌های مرتبه بالای تولید شده از برهم کنش لیزر قطبیده بیضوی با کمیت‌های قطبش پذیری متفاوت با مولکول فرمالدهید مورد بررسی قرار گرفته‌اند. در برهم کنش لیزر قطبیده بیضوی با مولکول فرمالدهید، شدت میدان لیزر  $0.2$  پتاوات بر سانتی‌متر مربع، دارای  $8$  چرخه اپتیکی، طول موج مرکزی  $800$  نانومتر، تابع پوش دوزنقه‌ای و فاز پوش حامل صفر درجه است.

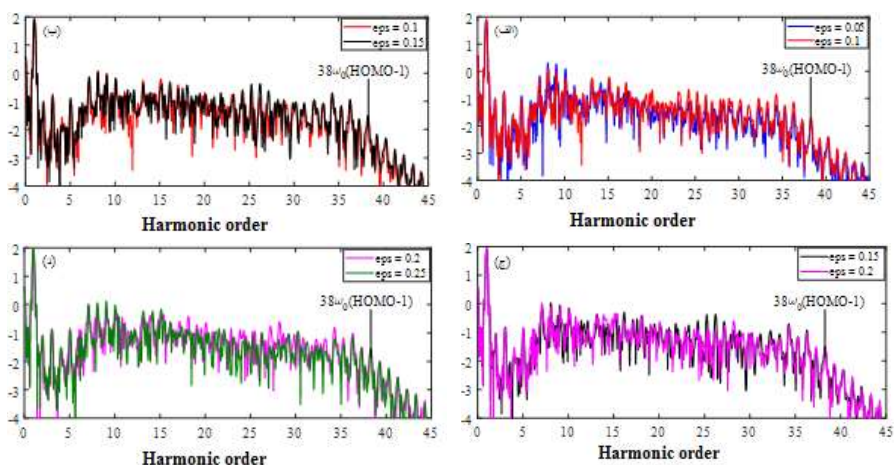
برای محاسبات، جعبه شبیه‌سازی به صورت مکعب مستطیلی با ابعاد  $2L_x \times 2L_y \times 2L_z$  در نظر گرفته شده است. جعبه شبیه‌سازی دارای یک جاذب کمایش مکعب مستطیلی است که مانع از بازتاب تابع موج الکترون هنگام برخورد به مرزها می‌شود. این جاذب دارای ابعاد  $2l_x \times 2l_y \times 2l_z$  می‌باشد. مولکول به صورتی قرار گرفته است که اتم کربن در مرکز دستگاه مختصات، اتم اکسیژن در امتداد محور  $X$  و دو اتم هیدروژن در صفحه  $Y-Z$  قرار دارند. گام‌های مکانی و زمانی در محاسبه نیز پس از بهینه‌سازی مقدار  $0.2$  و  $0.1$  در واحد اتمی انتخاب شده‌اند. در جدول (۱) مشخصات دقیق جعبه شبیه‌سازی آورده شده است.

**جدول ۱** مشخصات جعبه شبیه‌سازی، تمام مقادیر در یکای واحد اتمی نوشته شده‌اند.

$L_x$	$L_y$	$L_z$	$l_x$	$l_y$	$l_z$
۱۰۰	۱۰۰	۳۰	۷۵	۷۵	۲۲/۵

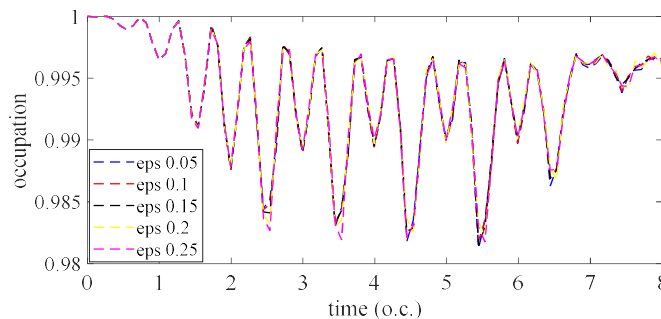
نتایج مربوط به طیف هماهنگ‌های مرتبه بالا مربوط به کمیت‌های قطبش پذیری مختلف  $0.05$ ،  $0.1$ ،  $0.15$ ،  $0.2$  و  $0.25$  در شکل (۲) مشاهده می‌شود.





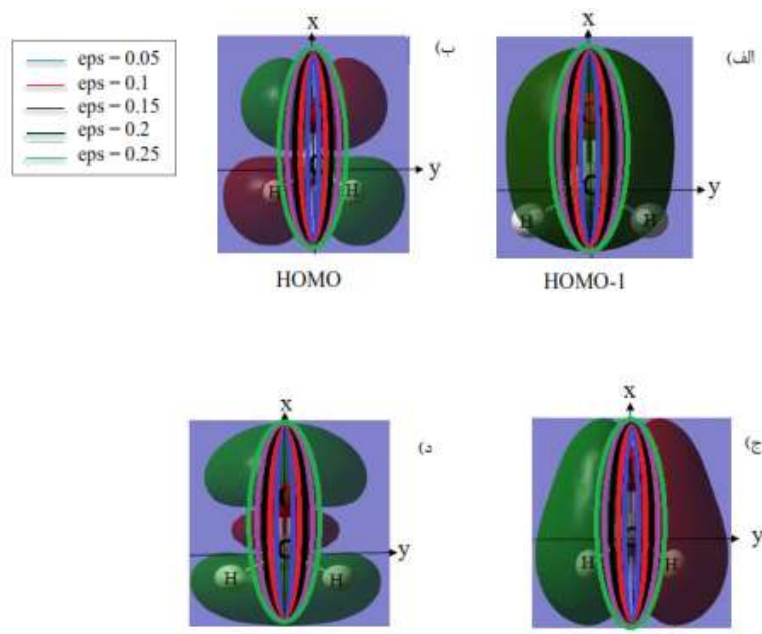
**شکل ۲** (الف) مقایسه طیف هماهنگ‌های مرتبه بالای ناشی از برهم کنش مولکول فرمالدهید با لیزر فمتوثانیه با شدت ۰/۲ پتاوات بر سانتی‌متر مربع، فرکانس مرکزی ۸۰۰ نانومتر و هشت چرخه اپتیکی با کمیت‌های قطبش‌پذیری ۰/۰۵ و ۰/۱، (ب) کمیت‌های قطبش‌پذیری ۰/۱ و ۰/۱۵، (ج) کمیت‌های قطبش‌پذیری ۰/۱۵ و ۰/۲، (د) کمیت‌های قطبش‌پذیری ۰/۲ و ۰/۲۵.

با تغییر کمیت قطبش‌پذیری، فرکانس قطع ثابت می‌ماند و برابر  $38 \omega_0$  است که مربوط به اوربیتال HOMO-1 می‌باشد. انرژی یونش مربوط به اوربیتال HOMO-1 برابر  $15/76$  الکترون‌ولت است. با جایگذاری این مقدار در رابطه کرکوم ( $\hbar\omega_{\max} = I_p + 3.17U_p$ ) همین فرکانس قطع بدست می‌آید که با نتایج بدست آمده هماهنگی دارد. ثابت ماندن فرکانس قطع به دلیل آن است که جمعیت الکترون‌های یونیزه شده ناشی از اوربیتال HOMO-1 برای قطبش‌های مختلف یکسان است که در شکل (۳) مشاهده می‌شود.



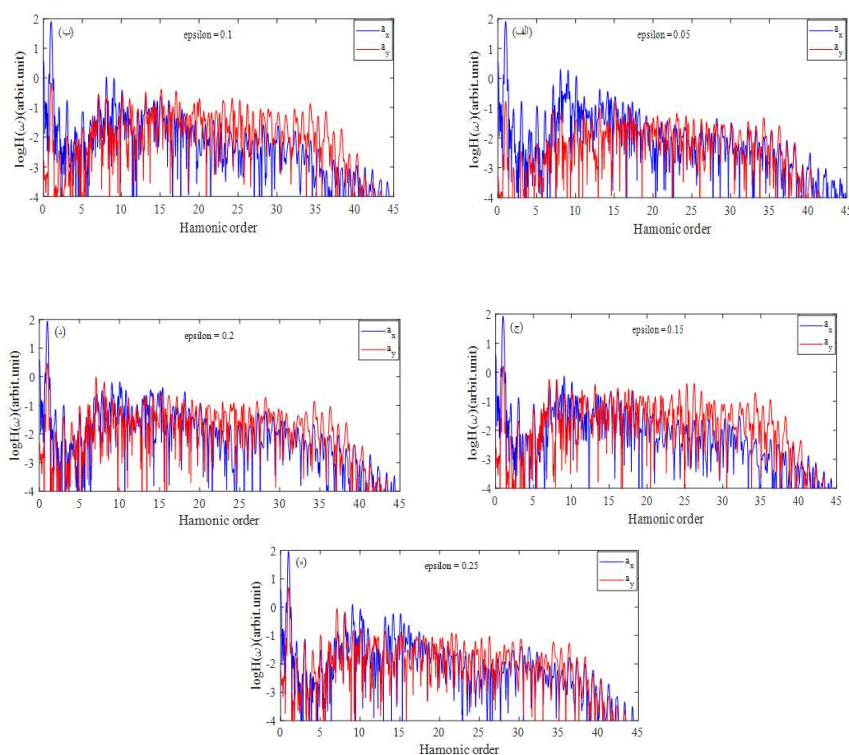
**شکل ۳** نمودار جمعیت الکترون‌های یونیزه شده ناشی از اوربیتال HOMO-1 بر حسب زمان.

همانطور که در طیف هماهنگ‌های شکل (۲) مشاهده می‌شود با افزایش  $\epsilon$  از ۰/۰۵ تا ۰/۱۵، شدت طیف هماهنگ‌ها افزایش می‌یابد. اگرچه، با افزایش  $\epsilon$  از ۰/۱۵ تا ۰/۲۵ شدت طیف کاهش یافته است. حال نقش مولفه‌های  $X$  و  $Y$  میدان فرودی در طیف هماهنگ‌های مرتبه بالا و روش اثرگذاری اوربیتال‌های مختلف مولکولی با نمایش بیضی قطبش با  $\epsilon$  های مختلف در شکل‌های (۴) و (۵) مشاهده می‌شود.



شکل ۴ اوربیتال‌های مولکولی فرمالدهید با بیضی‌های قطبش با کمیت‌های قطبش پذیری متفاوت.

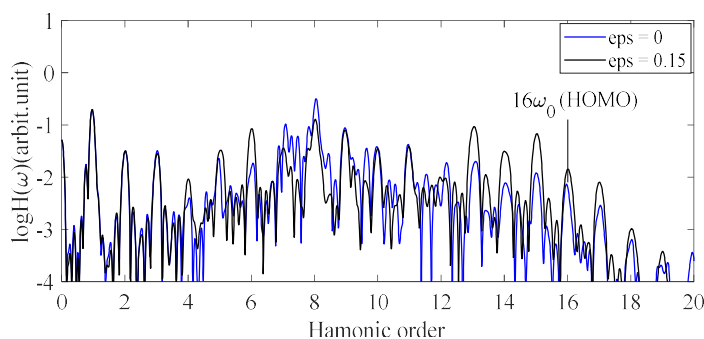




**شکل ۵** طیف هماهنگ‌های مرتبه بالای ناشی از برهم کنش لیزر قطبیده بیضوی با کمیت‌های قطبش‌پذیری متفاوت با مولکول فرمالدهید در راستای X و Y: (الف) کمیت قطبش‌پذیری ۰/۰۵، (ب) کمیت قطبش‌پذیری ۰/۱، (ج) کمیت قطبش‌پذیری ۰/۱۵، (د) کمیت قطبش‌پذیری ۰/۲ و (ه) کمیت قطبش‌پذیری ۰/۲۵.

طیف هماهنگ ناشی از برهم کنش لیزر قطبیده خطی با مولکول فرمالدهید به دلیل خطی بودن میدان لیزر تنها یک مولفه در راستای X دارد. اما در قطبش بیضوی، طیف هماهنگ‌ها دارای دو مولفه در راستای X و Y است و در حقیقت، اوربیتال‌ها افزون بر راستای X در راستای Y هم نوسان دارند. به توجه به شکل‌های بالا با افزایش کمیت قطبش‌پذیری تا ۰/۱۵ مولفه Y طیف هماهنگ‌ها افزایش یافته و در ادامه با افزایش کمیت قطبش‌پذیری مقدار آن کاهش می‌یابد. دلیل این موضوع آن است که وقتی کمیت قطبش‌پذیری از ۰/۱۵ بیشتر می‌شود، بیضی قطبش به حالت دایروی نزدیک شده و در این حالت میزان یونش افزایش یافته است، اما میزان بازترکیب الکترون‌ها با یون مادر کاهش می‌یابد. به بیانی دیگر، در این حالت مسیر الکترون‌ها پس از یونش انحنای بیشتری داشته و به همین

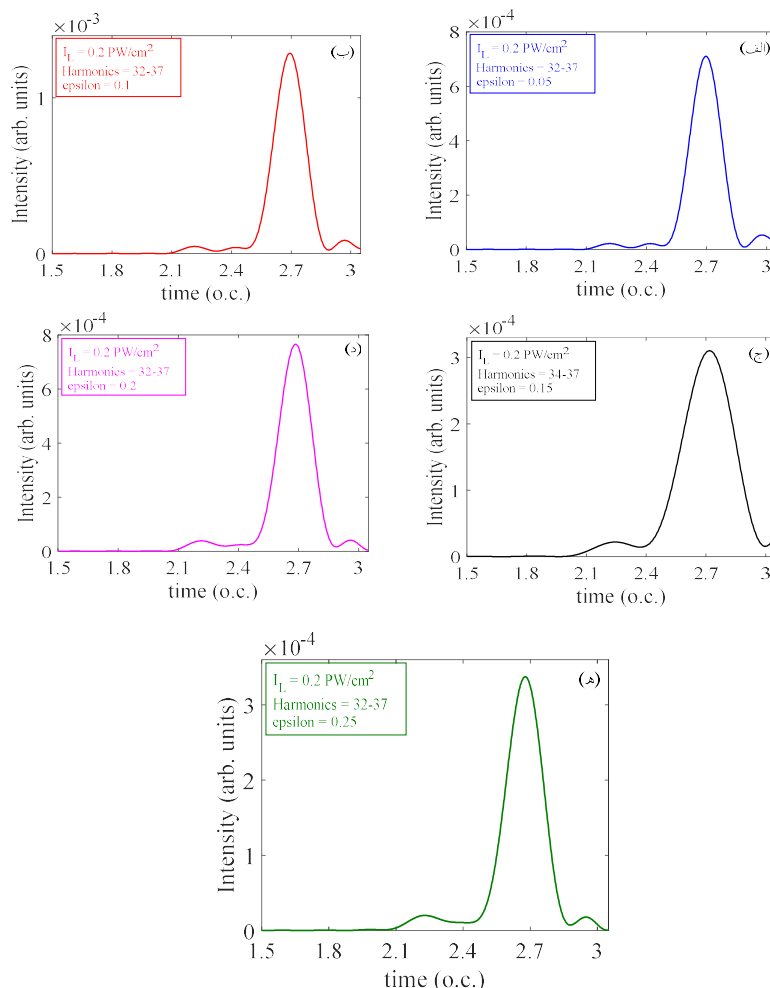
دلیل بخش یونیزه شده در هنگام بازگشت به آن بخش باقیمانده خود که در حالت پایه قرار دارد برخورد نمی کند که سبب نوسان آن و تشعشع فوتون شود. در حقیقت، باز ترکیبی صورت نمی گیرد. بنابراین، بیشینه شدت طیف هماهنگ ها مربوط به لیزر قطبیده بیضوی با  $\epsilon = 0.15$  است. در ادامه اثر شدت پالس لیزر قطبیده بیضوی در طیف هماهنگ بدست آمده بررسی شده است که نتایج آن در شکل (۶) مربوط به برهم کنش لیزر قطبیده بیضوی با  $\epsilon = 0.15$  با مولکول فرمالدهید برای شدت کمتر  $0.05$  پتاوات بر سانتی متر مربع نشان داده می شود.



**شکل ۶** مقایسه طیف هماهنگ های مرتبه بالای ناشی از برهم کنش مولکول فرمالدهید با لیزر فمتوثانیه با شدت  $0.05$  پتاوات بر سانتی متر مربع برای دو قطبش خطی و قطبش بیضوی با کمیت قطبش پذیری  $0.15$ .

در این طیف نیز همانند طیف مربوط به شدت  $0.2$  پتاوات بر سانتی متر مربع، شدت طیف هماهنگ های مربوط به قطبش بیضوی بیشتر از قطبش خطی است اما به دلیل پایین بودن شدت در این حالت پهنای هماهنگ ها تغییری نکرده است. بنابراین طیف هماهنگ ناشی از برهم کنش لیزر قطبیده بیضوی با شدت  $0.2$  پتاوات بر سانتی متر مربع به دلیل بالاتر بودن فرکانس قطع و پهنای هماهنگ ها نتایج بهتری دارد. در ادامه قطبش پذیری پالس آتوثانیه مربوط به طیف هماهنگ ناشی از برهم کنش لیزر قطبیده بیضوی با کمیت های قطبش پذیری مختلف با مولکول فرمالدهید بررسی شده است که پالس های خروجی دارای قطبش های مختلف و پهنای زمانی مختلفی هستند. شکل (۷) پالس های آتوثانیه ناشی از برهم نهمی هماهنگ های مختلف با قطبش های مختلف را نمایش می دهد.



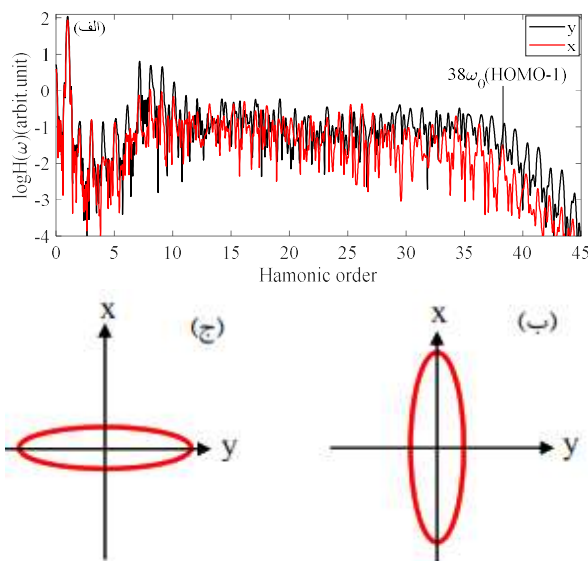


**شکل ۷** پالس‌های آتوثانیه خروجی مربوط به برهم‌کنش مولکول فرمالدهید با لیزر قطبیده بیضوی با شدت ۰/۲ پتاوات بر سانتی‌متر مربع و کمیت‌های قطبش‌پذیری متفاوت (الف) کمیت قطبش‌پذیری ۰/۰۵، (ب) کمیت قطبش‌پذیری ۰/۰۵، (ج) کمیت قطبش‌پذیری ۰/۰۵، (د) کمیت قطبش‌پذیری ۰/۰۵، (ه) کمیت قطبش‌پذیری ۰/۰۵.

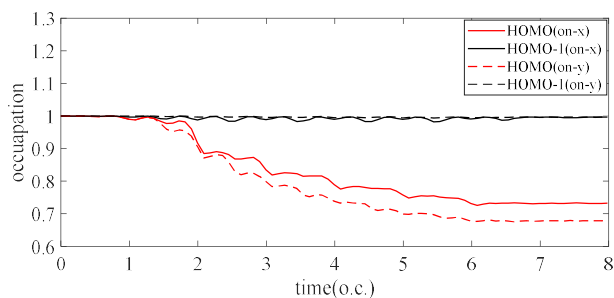
با محاسبه کمیت قطبش‌پذیری پالس آتوثانیه خروجی با استفاده از فرمول  $\epsilon = \sqrt{\frac{\max(I_x)}{\max(I_y)}}$  می‌توان

قطبیده بودن پالس خروجی را مشخص کرد. در برهم‌کنش لیزر قطبیده بیضوی با کمیت‌های قطبش‌پذیری متفاوت ۰/۰۵، ۰/۱، ۰/۱۵، ۰/۲ و ۰/۲۵ با مولکول فرمالدهید کمیت‌های قطبش‌پذیری

خروجی به ترتیب برابر ۰/۳۹، ۰/۲۱، ۰/۱۷، ۰/۲۸ و ۰/۴۴ است. در نتیجه پالس آتوئانه خروجی نیز قطبیده بیضوی است. در ادامه مقایسه طیف هماهنگ‌های مرتبه بالا برای حالتی که قطر بزرگ بیضی در راستای X و Y قرار دارد، در شکل (۸) بررسی شده است.



**شکل ۸** (الف) مقایسه طیف هماهنگ‌های مرتبه بالای ناشی از برهم کنش لیزر قطبیده فمتوئانه با مولکول فرمالدهید برای دو قطبش بیضوی در راستای X و Y، (ب) بیضی قطبش در راستای X، (ج) بیضی قطبش در راستای Y. همانطور که در شکل (۸) مشاهده می‌شود، اگر قطر بزرگ بیضی در راستای Y قرار گیرد، شدت طیف هماهنگ‌ها افزایش می‌یابد. زمانی که قطر بزرگ بیضی در راستای Y باشد، جمعیت الکترون یونیزه شده ناشی از اوربیتال HOMO بیشتر از حالت قبلی است (شکل ۹).



**شکل ۹** نمودار تحول زمانی جمعیت الکترون‌های یونیزه شده ناشی از اوربیتال HOMO و HOMO-1 برحسب زمان برای قطبش در راستاهای مختلف.



در حقیقت، بر اساس شکل بالا و با توجه به اینکه جمعیت الکترون یونیزه شده ناشی از اوربیتال HOMO-1 در هر دو حالت یکسان است، بنابراین به دلیل یونش بیشتر و احتمال باز ترکیب بیشتر الکترون با یون مادر، شدت طیف هماهنگ ناشی از برهم کنش لیزر قطبیده بیضوی در راستای  $Y$  با مولکول فرمالدهید شدت بیشتر است.

#### ۴. نتیجه گیری

در این پژوهش اثر قطبش نور لیزر ورودی بر طیف هماهنگ‌های مرتبه بالای ناشی از برهم کنش لیزر پر شدت فمتوثانیه با مولکول فرمالدهید با استفاده از نظریه تابعی چگالی وابسته زمانی بررسی شد. در حقیقت، در طیف هماهنگ ناشی از برهم کنش لیزر قطبیده بیضوی با کمیت‌های قطبش - پذیري متفاوت با مولکول فرمالدهید این نتیجه بدست آمد که فرکانس قطع ثابت می‌ماند. این موضوع به دلیل آن است که جمعیت الکترون‌های یونیزه شده ناشی از تراز HOMO-1 در قطبش - های مختلف یکسان بوده است. با تغییر قطبش لیزر از حالت خطی به بیضوی با  $\epsilon = 0.15$  مشاهده شد که شدت طیف هارمونیک مربوط به قطبش بیضوی بیشینه است. هم‌چنین به دلیل دارا بودن پهنای طیف بیشتر پالس آتوثانیه با پهنای زمانی کمتری بدست آمده است. هم‌چنین با محاسبه کمیت قطبش پذیری پالس‌های آتوثانیه خروجی مشخص شد که پالس آتوثانیه نتیجه شده نیز به صورت قطبیده بیضوی می‌توان بدست آورد.

#### ۵. تقدیر و تشکر

نویسندگان از دانشگاه تربیت مدرس بابت حمایت از این پژوهش تشکر می‌کنند. این پژوهش با حمایت مالی IZN 0026 و FGI 0043 , SFB 1375 NOA انجام شد.

#### منابع

- [1] Shiner, A. D. Schmidt, B. E. Trallero-Herrero, C. Wörner, H.J. Patchkovskii, S. Corkum, P.B. Kieffer, J.C. Légaré, F. Villeneuve, D.M. Probing collective multi-electron dynamics in xenon with high-harmonic spectroscopy. *Nature Physics*, 7: p. 464-467. 2011. <https://doi.org/10.1038/nphys1940>.
- [2] Bordo, E. Neufeld, O. Kfir, O. Fleischer, A. Cohen, O. Spectroscopy of atomic orbital sizes using bi-elliptical high-order harmonic generation. *Phys. Rev. A*, 100: p. 043419. 2019. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.100.043419>.





- [3] Park.J. Subramani.A. Kim.S. Ciappina.M.F. Recent trends in high-order harmonic generation in solids. *Advances in Physics:X*. 7: p. 2003244. 2022. <https://doi.org/10.1080/23746149.2021.2003244>.
- [4] Lewenstein.M. Balcou.Ph. Ivanov. M. Yu. Huillier. A. L, and Corkum. P. B. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields.*Phys. Rev. A* 49: p. 2117. 1994. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.49.2117>.
- [5] Zhou. X. Tong. X. Zhao. Z. Lin. C. Alignment dependence of high-order harmonic generation from N<sub>2</sub> and O<sub>2</sub> molecules in intense laser fields. *Phys. Rev. A* 72(3): p. 033412. 2005. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.72.033412>.
- [6] Zhang. B. Jianmin. Y. Zengxiu. Y.Z. Dynamic orbitals in high-order harmonic generation from CO molecules. *Phys.Rev. A* 90(3): p. 035402. 2014. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.90.035402>.
- [7] Baer. R. Neuhauser. D. Zdanska. P. R. Moiseyev.N. Ionization and high-order harmonic generation in aligned benzene by a short intense circularly polarized laser pulse. *Phys. Rev. A* 68(4): p. 043406. 2003. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.68.043406>.
- [8] Hickstein. D.D. Dollar. F. J. Grychtol. P. Ellis. J. L. Knut. R. Hernández-García. C. Zusin. D. Gentry. C. Shaw. J. M. Fan. T. Dorney. K. M. Becker. A. Jaroń-Becker. A. Kapteyn. H. C. Murnane. M. M. Durfee. C. G. Non-collinear generation of angularly isolated circularly polarized high harmonics. *Nature Photonics* 9(11): p. 743-750. 2015. <https://doi.org/10.1038/nphoton.2015.181>.
- [9] Feng. L. Theoretical exploration of asymmetric molecular harmonic emission and attosecond pulse generation in the presence of spatially inhomogeneous plasmon-enhanced field. *Molecular Physics* 114(15): p.2217-2231. 2016. <https://doi.org/10.1080/00268976.2016.1192233>.
- [10] Feng.L. Hang. L. Attosecond-resolution molecular high-order harmonic emission and isolated attosecond pulse generation from H<sub>2</sub><sup>+</sup>. *Optics Communications* 389: p. 144-149. 2017. <https://doi.org/10.1007/s00894-016-3162-2>.
- [11] Gaumnitz. T. Jain. A. Pertot. Y. Huppert. M. Jordan. I. Ardana-Lamas. F. Jakob Wörner. H. Streaking of 43-attosecond soft-X-ray pulses generated by a passively CEP-stable mid-infrared driver. *Optics express* 25(22): p. 27506-27518. 2017. <https://doi.org/10.1364/OE.25.027506>
- [12] Kai-Jun. Y. and Bandrauk. A. D. Controlling circularly polarized high-order harmonic generation in molecules by intense tricircular laser pulses. *Phys. Rev. A* 100(3): p. 033420. 2019. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.100.033420>.
- [13] Takayoshi. S. Murakami. Y. and Werner. P. High-harmonic generation in quantum spin systems. *Phys. Rev. B*. 99: p.184303. 2019. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.99.184303>.
- [14] Chacón. A. Kim. D. Zhu. W. Kelly. Sh. P. Dauphin. A. Pisanty. E. Maxwell. A. S. Picón. A. Ciappina. M. F. Kim. D. E. Ticknor. Ch. Saxena.A. and Lewenstein. M. Circular dichroism in high-order harmonic generation: Heralding topological phases and transitions in Chern insulators, *Phys. Rev. B*. 102: p. 134115. 2020. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.102.134115>.
- [15] Baykusheva. D. et al.. All-Optical Probe of Three- Dimensional Topological Insulators Based on High-Harmonic Generation by Circularly Polarized Laser Fields. *Nano. Lett.* 21: p. 8970-8978. 2021. <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.1c02145>.
- [16] Heide. C. et al.. Probing topological phase transitions using high-harmonic generation. *Nature Photonics* 16: p. 620-624. 2022. <https://doi.org/10.1038/s41566-022-01050-7>.
- [17] Parr. R.G. Density functional theory of atoms and molecules. *Horizons of Quantum Chemistry*.Springer, Dordrecht. p.5-15, 1989.



- [18] Marques. M.A. Castro.A. Bertsch. G.F. Rubio. A. Octopus: a first-principles tool for excited electron-ion dynamics", *Computer Physics Communications*. 151(1): p. 60-78. 2003. [https://doi.org/10.1016/S0010-4655\(02\)00686-0](https://doi.org/10.1016/S0010-4655(02)00686-0).
- [19] Lewenstein.M. Balcou. Ph. Ivanov. M. Y. L'huillier. A. Corkum. P. B. "Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields", *Phys. Rev. A*. 49(3): p. 2117. 1994. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.49.2117>.
- [20] Feng. L. Liu. H. Attosecond-resolution molecular high-order harmonic emission and isolated attosecond pulse generation from  $H_2^+$ . *Optics Communications*. 389: p. 144-149. 2017. <https://doi.org/10.1016/j.optcom.2016.12.048>.
- [21] Irani. E. Mnofared. M. Efficient high harmonic generation of bromine molecule by controlling the carrier-envelope phase and polarization of driving laser pulse. *Chem. Phys. Lett.* 719: p. 27-33. 2019. <https://doi.org/10.1016/j.cplett.2019.01.048>.



This article is an open-access article distributed under the terms and conditions of the Creative Commons Attribution-Noncommercial 4.0 International (CC BY-NC 4.0 license) (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>).

