

原子多光子激发对电离阈值附近谐波发射的影响

张颀玉 李庆仪 郭福明 杨玉军

The influences of multiphoton excitation on near-threshold Harmonic emission in atoms

Zhang Di-Yu Li Qing-Yi Guo Fu-Ming Yang Yu-Jun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 223202 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.223202

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.223202>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I22>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

非均匀激光场中氢分子离子高次谐波的增强

Enhancement of high-order harmonic generation from H_2^+ in near plasmon-enhanced laser field

物理学报.2016, 65(12): 123201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.123201>

调制激光场中 Rydberg 原子的电磁感应透明

Electromagnetically induced transparency of Rydberg atoms in modulated laser fields

物理学报.2016, 65(10): 103201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.103201>

红外激光场中共振结构原子对极紫外光脉冲的压缩效应

Compression of extreme ultraviolet pulse for atom with resonant structure exposed to an infrared laser field

物理学报.2016, 65(10): 103202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.103202>

氢负离子在少周期激光场中解离时的干涉效应

Interference effect in the photodetachment from H^- ion in a few-cycle laser pulse

物理学报.2016, 65(8): 083202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.083202>

激光驱动晶体发射高次谐波的特性研究

Study of high-order harmonic generation in crystals exposed to laser fields

物理学报.2016, 65(6): 063201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.063201>

专题: 超快强激光驱动下的原子分子过程

原子多光子激发对电离阈值附近谐波发射的影响*

张颀玉¹⁾²⁾ 李庆仪¹⁾²⁾ 郭福明¹⁾²⁾ 杨玉军^{1)2)†}

1)(吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

2)(吉林省应用原子与分子光谱重点实验室, 长春 130012)

(2016年9月1日收到; 2016年11月2日收到修改稿)

基于动量空间和坐标空间含时伪谱方法, 通过求解氢原子在强激光作用下的含时薛定谔方程, 系统地研究了原子在强激光作用下电离阈值附近的高次谐波发射随着激光电场强度的变化关系. 研究发现, 随着入射激光强度的增加, 九次谐波发射效率呈现周期性振荡结构. 结合原子的激发几率计算, 发现电离阈值附近的谐波增强与高激发态的布居存在相互竞争关系.

关键词: 高次谐波发射, 电离阈值, 多光子激发

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Hz

DOI: 10.7498/aps.65.223202

1 引言

强激光和原子、分子相互作用, 可以观测到入射频率整数倍的相干高次谐波发射^[1-3]. 高次谐波发射的强度随着谐波能量的增加首先呈现快速的下降, 之后是一个强度下降很慢的平台结构, 在能量为 $I_p + 3.17U_p$ 后快速下降^[4]. 这里的 I_p 是原子的电离势, $U_p = E_0^2/(4\omega^2)$ 是自由电子在强激光电场中运动而获得的平均动能, E_0 是激光电场的峰值强度, ω 是入射激光的频率. 谐波发射谱在较高能量具有较高的发射效率, 因此可以利用谐波产生极紫外乃至 X 射线波段的相干光源, 或是产生阿秒尺度的超短光脉冲^[5-8]. 阿秒脉冲是探测和控制原子分子体系中电子运动的重要手段^[9-11]. 高次谐波发射的高能部分可以利用三步模型解释: 处于束缚态的电子首先隧穿由激光电场和原子势共同作用形成的势垒发生电离, 电离电子有部分几率在振荡的强激光电场作用下返回到母体离子, 这部分高能的电子跃迁返回到体系的基态发射出高能的光子^[12]. 而对于低次谐波, 尤其是对于谐

波能量接近电离阈值的谐波发射, 原子势将起很大的作用, 而三步模型没有包含原子势的效应, 无法对这部分谐波产生的机制给出清晰的解释. 因此, 对于阈值附近的谐波发射研究逐渐成为人们关注的热点^[13-19]. 人们关注这部分谐波发射的重要原因之一是其可以被用来产生极紫外频域的光梳^[17]. 此外, 影响谐波发射广泛应用的一个重要因素是其转化效率较低, 而阈值附近的谐波发射转化效率随着压力的增加可以达到很高的强度 (10^{13} W/cm²)^[16].

理论上, Xiong等^[14]研究了阈值以下谐波发射机制, 发现这部分谐波的产生机制除了量子路径干涉外, 库仑势也起了很大的作用. He等^[15]分析了不同激光强度区域的阈值以下谐波发射, 发现入射激光强度 10^{13} W/cm² 附近随着波长的变化存在周期结构变化, 利用谐波发射的量子路径分析和时间频率行为研究, 发现这些结构产生的根源是两条量子路径的干涉. Li等^[13]利用同步压缩变化方案, 研究了中红外激光作用下的 Cs 原子的阈值以下谐波发射, 分析了多光子和重散射轨迹对这部分谐波发射的影响. 在研究中, 人们发现原子势函数对该

* 国家重点基础研究计划(批准号: 2013CB922200)、国家自然科学基金(批准号: 11274141, 11264001, 11304116, 11534004, 11627807)和吉林省自然科学基金(批准号: 20140101168JC)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yangyj@jlu.edu.cn

阈值附近谐波发射起了重要的作用^[19]. 原子在强激光作用下, 基态电子不但会发生电离而且也会被激发, 这些电子的激发过程会对谐波的产生产生影响.

本文利用含时伪谱方案数值求解原子的含时薛定谔方程(TDSE), 利用得到的波函数信息, 系统地研究了高次谐波发射随着入射激光强度的变化. 同时基于动量空间求解 TDSE, 准确地计算体系激发态布居^[20]. 研究发现, 阈值附近的九次谐波发射强度随着激光强度的增加呈现出振荡的结构, 谐波强度的改变和较高束缚态的布居呈现同步变化.

2 理论方法

为了理论研究原子的高次谐波发射过程, 需要数值求解原子在强激光作用下的 TDSE. 在长度规范和偶极近似条件下, 入射激光为线性偏振沿着 z 方向, 该方程可以表示为(如无特殊说明, 本文均采用原子单位):

$$i \frac{\partial \psi(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = \hat{H} \psi(\mathbf{r}, t) = [\hat{H}_0 + \hat{V}] \psi(\mathbf{r}, t), \quad (1)$$

其中 \hat{H}_0 为无激光场作用下原子体系的哈密顿, $\psi(\mathbf{r}, t)$ 为原子波函数

$$\hat{H}_0 = -\frac{1}{2} \frac{d^2}{dr^2} + \frac{\hat{L}^2}{2r^2} - \frac{1}{r}, \quad (2)$$

\hat{V} 是激光与原子相互作用

$$\hat{V} = -\mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{r}, \quad (3)$$

这里的 $\mathbf{E}(t)$ 是激光的电场, 本文选择的激光电场的矢势包络形式为 \sin^2 . 对于方程(1), 我们采用含时伪谱方案求解^[21]. 该方法不同于通常的分拆算符方案在坐标空间和动量空间传播, 而是在坐标空间和能量空间传播波函数. 得到准确的体系本征态是保障计算结果准确的关键. 该方法将坐标空间映射到一个有限的空间, 使得在原子核附近有足够多的网格点. 该方法利用很少的网格点就可以得到很准确的计算结果. 利用计算得到的含时波函数, 可以计算体系加速度形式的跃迁矩阵元 $a(t)$:

$$a(t) = \langle \psi(\mathbf{r}, t) | -\frac{z}{r^3} + Ff(t) | \psi(\mathbf{r}, t) \rangle. \quad (4)$$

根据含时加速偶极矩, 可以计算高次谐波发射谱 $P(\omega)$:

$$P(\omega) = \left| \frac{1}{\sqrt{2\pi\omega^2(t_f - t_i)}} \int_{t_i}^{t_f} a(t) \exp(i\omega t) dt \right|^2. \quad (5)$$

为了保障结果的准确性, 对 TDSE 方程同时基于坐标空间和动量空间求解^[22-24]. 对于坐标空间的波函数利用傅里叶变换, 我们可以得到动量空间的波函数. 动量空间的 TDSE 可以写为

$$i \frac{\partial \Phi(\mathbf{k}, t)}{\partial t} = \frac{\mathbf{k}^2}{2} \Phi(\mathbf{k}, t) + \frac{1}{c} \mathbf{A}(t) \cdot \mathbf{k} \Phi(\mathbf{k}, t) + \int V(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \Phi(\mathbf{k}', t) d\mathbf{k}', \quad (6)$$

其中 $V(\mathbf{k}, \mathbf{k}')$ 是动量空间的库仑势

$$V(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = \frac{1}{2(\pi)^3} \int U(\mathbf{r}) \exp[i(\mathbf{k}' - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{r}] d\mathbf{r}. \quad (7)$$

对于类氢体系, 动量空间库仑势可以写为^[25]

$$V(\mathbf{k}, \mathbf{k}') = -\frac{Z}{2\pi^2} \frac{1}{|\mathbf{k} - \mathbf{k}'|^2}. \quad (8)$$

利用 Lange 提出的方案可以消除势函数中的奇点^[26], 给出准确的结果. 利用含时伪谱方案, 可以对动量空间的 TDSE 进行求解. 在求解过程中, 同样首先计算动量空间无场条件下体系的本征函数, 之后在动量空间和能量空间演化体系的波函数. 对于本征值的计算, 采用广义伪谱方案, 在动量零点附近有足够多的格点分布, 因此利用一定数目的格点就可以包含足够多的束缚本征态, 进而可以方便地计算较高激发态的布居. 而在坐标空间下, 为了包含足够多的束缚态, 需要选择非常大的计算空间、非常多的计算资源. 在激光脉冲结束后, 将体系的本征束缚波函数向含时波函数进行投影, 就可以得到束缚态在强激光作用下的布居 p_i :

$$p_i = |\langle \varphi_i(\mathbf{k}) | \psi(\mathbf{k}, t_{\text{final}}) \rangle|^2. \quad (9)$$

3 结果与讨论

在计算得到体系的含时波函数后, 利用波函数信息可以计算体系在强激光作用下的高次谐波发射谱. 首先计算了激光脉冲持续时间为 20 个光学周期、入射激光强度分别为 38, 48 和 56 TW 的激光脉冲辐照下原子的谐波发射谱, 如图 1 所示. 从图 1 可以看出, 对于较高次谐波发射(大于十五次), 随着入射激光强度的增加, 谐波的强度持续快速增加. 而对于阈值附近的谐波发射呈现出不同的行为, 如九次谐波发射. 随着激光强度的增加, 其谐波强度呈现出先增加再下降的行为. 对于较低次谐波发射, 随着激光强度的增加, 其谐波强度振幅增加不多.

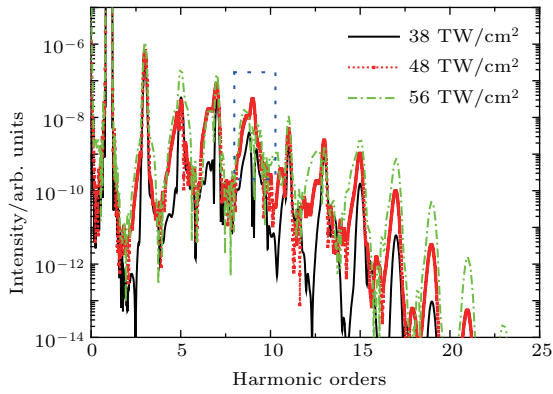


图1 强度为 38 TW (黑色实线), 48 TW (红色点线) 和 56 TW (绿色点划线) 的高次谐波发射谱

Fig. 1. The harmonic emission spectra of 38 TW (solid black line), 48 TW (red dotted line) and 56 TW (green dotted line).

为了得到阈值附近的谐波的变化规律, 我们大幅度地改变入射激光的强度从 1 到 100 TW, 其谐波发射强度随着入射激光强度的改变如图 2 所示. 从图中可以看出, 对于能量较低的三次谐波, 随着入射激光强度 I 的增加, 其强度逐渐增加. 而对于其他次谐波发射, 其强度分布均可以观察到振荡结构. 在图中除了可以看到清晰的谐波发射峰值外, 在两次谐波之间还可以观察到清晰的其他频率的光辐射. 例如在强度较弱的条件下 (10^{12} W/cm²), 光子能量在 $6.5\omega_0$ 附近可以观察到较强的光发射, 这对应于原子体系束缚态能级之间的跃迁. 对于九次谐波发射, 从图中可以看出除了在图 1 给出的在 38 TW 入射激光强度下谐波减小外, 在强度为 20 TW 和 60 TW 附近也可以观察到清晰的强度减小现象, 如图 2 中黑色圈标注区域所示.

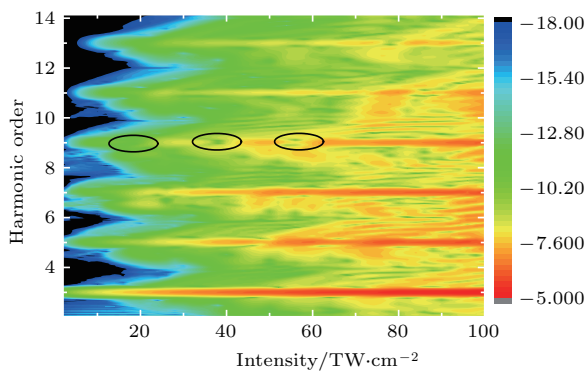


图2 高次谐波发射强度随着入射激光强度的变化

Fig. 2. The change of intensity of the high harmonic emission with the changes of the incident laser intensity.

为了详细地分析谐波发射随着入射激光的变化, 我们选择三、五、七、九、十一和十三次谐波, 观察其强度随着入射光强度改变, 如图 3 (b) 所示. 从

图中可以看到, 对于三次谐波, 随着激光强度的增加, 其发射强度呈现指数增加. 这一趋势一直从多光子区域延续到隧穿区域. 为了便于分析, 图 3 (a) 给出了激光强度对应的 Keldysh 参数 γ 值. 而随着谐波次数的增加, 这种指数增加的行为只能在场强较低条件下才保持, 例如对于十一次谐波发射, 当 $\gamma > 3$ 的条件下才会保持指数增加, 之后逐渐饱和并达到另一个指数关系. 这部分谐波强度的增加和原子的电离有关, 当光强增加到一定程度后, 体系的电离逐渐过渡到隧穿过程, 在目前计算的激光强度范围内, 基态的布居并没完全被耗尽. 谐波发射是一个受激过程, 因此在这个条件下的强度变化决定于原子电离的概率, 电离几率正比于激光电场的 e 指数次幂, 因此其谐波强度随着入射激光的增加而呈现指数增加. 与三次谐波和高次谐波不同的是, 更加接近电离阈值的七次和九次谐波, 在低场强的条件下就不是单调的增加过程, 而是随着光强增加呈现振荡行为. 对于七次谐波振幅较小. 而对于九次谐波发射, 存在明显振荡, 在强度分别为 18 TW, 38 TW 和 57 TW 时存在强度极小值. 由于七次谐波和九次谐波发生在电离阈值附近, 因此可以推断其变化行为与原子的束缚态布居有关. 本文研究的体系是氢原子, 其第一激发态的能量为 -0.125 , 基态与第一激发态之间的能差接近于七次谐波. 而九次谐波接近于电离阈值, 其对应的能量位置存在非常多的较高本征激发态. 原子在激光电场作用下除了会发生电离外, 激发也是非常重要的过程. 如果这些激发本征态存在较大的布居, 这些电子不再跃迁到体系的基态, 体系的谐波发射则会受到影响.

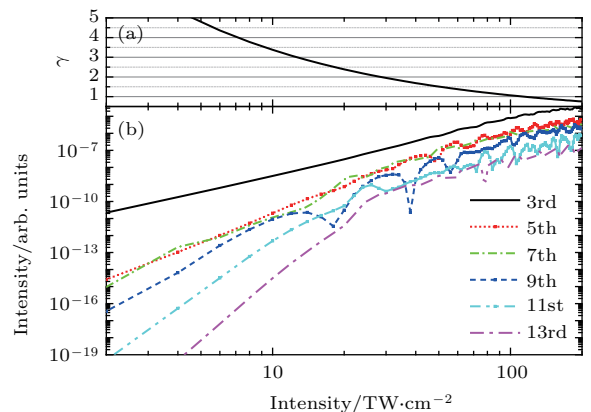


图3 (a) Keldysh 参数 γ 值和 (b) 谐波发射谱随着入射激光强度的变化

Fig. 3. The change of (a) the value of the Keldysh parameter γ and (b) the harmonic emission with the changes in the incident laser intensity.

为了分析束缚态布居是否对谐波产生影响, 我们计算了激光脉冲结束后体系的束缚态布居随着入射激光强度的改变, 如图4所示. 在图中同时给出了总的激发态的布居随着入射光强的变化行为. 从图中可以看出, 随着入射激光强度的增加, 体系总的激发态布居逐渐加大, 且呈现周期改变的规律. 如对于20 TW之前, 激发态的布居随着光强的变化呈指数增加. 当强度达到20 TW 呈现出一个局域峰值, 之后随着场强的增加, 束缚态布居呈现小的下降或是维持不变, 之后强度又迅速增加然后再出现局域峰值, 呈现出周期性的规律. 对于较低激发态的布居, 如 $n = 2$ 的本征态, 随着激光强度的增加, 也逐渐增加且存在周期性结构. 但是其结构出现的位置和全部的激发并不完全同步. 同时需要注意, 在整体的束缚态布居中, 较低的束缚态布居 ($n < 5$) 并不占有重要的比重. 随着入射激光电场强度的增加, 不同束缚态布居占总的束缚态布居的比例也在发生变化. 例如对 $n = 2$ 本征态, 在20 TW附近, 其布居几乎和整体的激发态布居接近, 随着入射光强度的增加, 其布居远小于总的激发态布居. 我们同时注意到, 在这个光强附近, 基态和 $n = 2$ 之间跃迁产生的频率在6.5倍基频频率的位置光辐射具有较高的强度, 如图2所示. 对于较高的束缚态布居, 如 $n = 7$, 其布居随着入射激光强度的变化与总的激发态布居随着入射激光强度变化行为一致. 需要注意的是, 束缚态布居增加到峰值附近对应的场强刚好对应九次谐波发射对应的强度减弱的区域. 根据我们之前的研究^[20], 较高能量束缚态布居的增加原因和通道闭合相关. 而对于近阈值附近的谐波发射而言这一效应会影响其发射效率. 低能的电离电子有机会返回母体离子发射谐波也有可能布居在较高的激发态, 二者存在竞争关系. 当较多电子束缚于较高激发态时, 对应的谐波效率会降低, 而较高的束缚态布居较小时, 谐波的效率会增加.

此外, 本文还研究了谐波发射随着入射激光强度的变化, 如图5所示. 在图中我们计算了激光脉冲持续时间分别为5, 10和20个光学周期的条件下, 三次谐波和九次谐波随着入射激光强度的改变. 从图中可以看出, 随着入射激光强度的增加, 不同激光脉冲宽度下, 三次谐波的变化较小, 都是指数增加. 对于九次谐波, 10和20个光学周期的情况结果很接近, 而对于5个周期的结果则有较大的变化. 九次谐波整体的效率随着光强的变化基本一

致, 而对于出现峰值的位置则存在差别. 对于超短脉冲, 其频率在中心频率附近有较大的带宽, 因此其他频率会影响通道闭合效应.

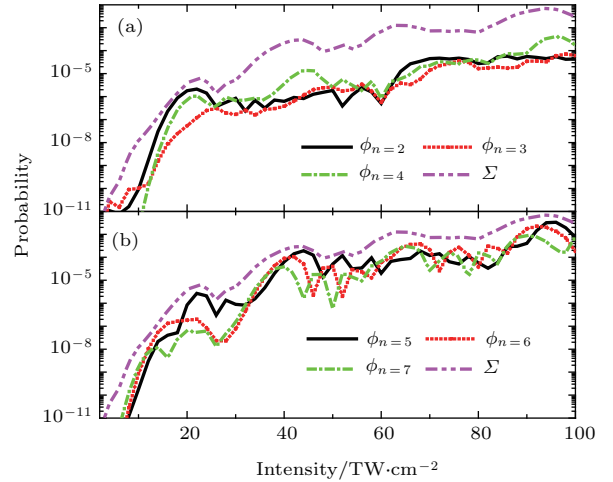


图4 激光脉冲结束后(a)较低激发态 ($n = 2-4$) 和(b)稍高激发态 ($n = 5-7$) 的布居随着入射激光强度的变化
Fig. 4. At the end of the laser pulse, (a) the population of the lower excited states ($n = 2-4$) and (b) the higher excited states ($n = 5-7$) change with the incident laser intensity.

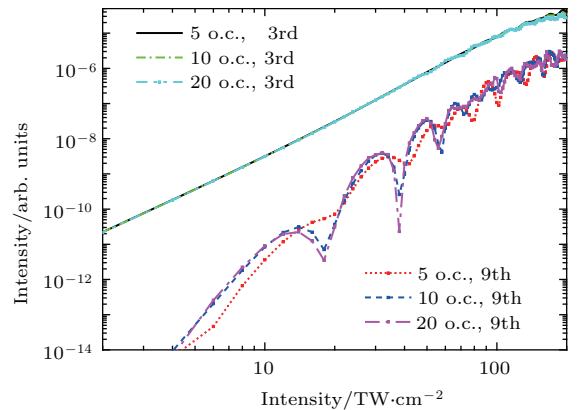


图5 脉宽分别为5, 10和20个光学周期辐照下原子的三次谐波和九次谐波强度随着入射激光强度的变化
Fig. 5. The intensity changes of the third harmonic and the ninth harmonic of the atoms irradiated by 5, 10 and 20 optical pulse with the incident laser intensity respectively.

4 结 论

本文通过数值求解含时薛定谔方程, 系统地研究了强激光作用下的阈值附近的九次谐波发射和体系的激发概率随着入射激光强度的变化. 研究发现, 该次谐波效率随着入射激光强度的增加出现振荡结构. 而对应于相应的体系的总的激发概率也呈现出振荡的规律. 在一定场强范围内, 体系的激发

态布居的增强对应着谐波发射效率的降低,二者存在清晰的竞争关系. 因此,可以在选定波长的条件下,通过优化入射激光的强度实现阈值附近谐波的高效率发射.

感谢吉林大学超算中心的计算支持.

参考文献

- [1] Li X F, L' Huillier A, Ferry M, Lompre L A, Mainfray 1989 *Phys. Rev. A* **39** 5751
- [2] L' Huillier A, Lompre L A, Mainfray G, Manus C 1992 *Adv. At. Mol. Opt. Phys. Suppl* **1** 139
- [3] Yang Y J, Chen G, Chen J G, Zhu Q R 2004 *Chin. Phys. Lett.* **21** 652
- [4] Kohler M C, Pfeifer T, Hatsagortsyan K Z, Keitel C H 2012 *Adv. At. Mol. Opt. Phys.* **61** 159
- [5] Paul P M, Toma E S, Breger P 2001 *Science* **292** 1689
- [6] Meckel M, Comtois D, Zeidler D, Staudte A, Pavicic D 2008 *Science* **320** 1478
- [7] Wang J, Chen G, Guo F M, Li S Y, Chen J G, Yang Y J 2013 *Chin. Phys. B* **22** 033203
- [8] Blaga C I, Xu J L, Dichiara A D, Sistrunk E, Zhang K, Agostini P, Miller T A, DiMauro L F, Lin C D 2012 *Nature* **483** 194
- [9] Krausz F, Ivanov M 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 163
- [10] Wei S S, Li S Y, Guo F M, Yang Y J, Wang B B 2013 *Phys. Rev. A* **87** 063418
- [11] Corkum P B, Krausz F 2007 *Nat. Phys.* **3** 381
- [12] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [13] Li P C, Sheu Y L, Laughlin C, Chu S I 2015 *Nat. Commun.* **6** 7178
- [14] Xiong W H, Geng J W, Tang J Y, Peng L Y, Gong Q H 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 233001
- [15] He L X, Lan P F, Zhai C Y, Li Y, Wang Z, Zhang Q B, Lu P X 2015 *Phys. Rev. A* **91** 023428
- [16] Chini M, Wang X W, Cheng Y, Wang H, Wu Y, Cunningham E, Li P C, Haslar J, Telnov D A, Chu S I, Chang Z H 2014 *Nat. Photon.* **8** 437
- [17] Yost D C, Schibli T R, Ye J, Tate J L, Hostetter J, Gaarde M B, Schafer K J 2009 *Nat. Phys.* **5** 815
- [18] Brizuela F, Heyl C M, Rudawski P, Kroon D, Rading L, Dahlstrom J M, Maurisson J, Johnsson P, Arnold C L, L' Huillier A 2013 *Sci. Rep.* **3** 1410
- [19] Shafir D, Fabre B, Higuete J, Soifer H, Dagan M, Descamps D, Mevel E, Petit S, Werner H J, Pons B, Dudovich N, Mairesse Y 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 203001
- [20] Tian Y Y, Wang C C, Li S Y, Guo F M, Ding D J, Roeterdink W G, Chen J G, Zeng S L, Liu X S, Yang Y J 2015 *Chin. Phys. B* **24** 043202
- [21] Tong X M, Chu S I 1997 *Chem. Phys.* **217** 119
- [22] Zhou Z Y, Chu S I 2011 *Phys. Rev. A* **83** 013405
- [23] Tian Y Y, Li S Y, Wei S S, Guo F M, Zeng S L, Chen J G, Yang Y J 2014 *Chin. Phys. B* **23** 053202
- [24] Wang C C, Tian Y Y, Luo S Z, Roeterdink W G, Yang Y J, Ding D J, Okunishi M, Prumper G, Shimada K, Ueda K, Zhu R H 2014 *Phys. Rev. A* **90** 023405
- [25] Landau R H 1983 *Phys. Rev. C* **27** 2191
- [26] Raekwon Y, Tabakin F 1978 *Phys. Rev. C* **18** 932

SPECIAL TOPIC — Atomic and molecular processes driven by ultrafast intense laser fields

The influences of multiphoton excitation on near-threshold Harmonic emission in atoms*

Zhang Di-Yu¹⁾²⁾ Li Qing-Yi¹⁾²⁾ Guo Fu-Ming¹⁾²⁾ Yang Yu-Jun^{1)2)†}

1) (Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun 130012, China)

2) (Jilin Provincial Key Laboratory of Applied Atomic and Molecular Spectroscopy (Jilin University), Changchun 130012, China)

(Received 1 September 2016; revised manuscript received 2 November 2016)

Abstract

When an atom or a molecule interacts with an intense laser field, a coherent high-order harmonic emission is observed at a frequency that is an integer multiple magnitude of the initial frequency of the incident laser field. The harmonic emission has the characteristic of high emission efficiency at relatively high orders, and it also has a wide expansion in the frequency domain. Thus, the high-order harmonic generation can be utilized to generate coherent EUV or soft X-ray light sources as well as ultrashort attosecond laser pulses. It is promising that the attosecond laser pulse will be an important tool for detecting and controlling the electron dynamics in atom and molecule systems.

The mechanisms of high-order harmonics especially the high energy part of the harmonic spectrum can be explained by the well-known three-step model. The three-step model assumes that the electron in the bound state firstly are ionized by the potential barrier formed by the laser electric field and the atomic potential, then the ionized electrons oscillate in the laser field, and finally the electron with high kinetic energy gained in the laser field has the possibility to return back to the parent ion and recombines with the ground state of the system with a high energy photon emitted. As for harmonics with low orders, especially those with single photon energy near the ionization threshold, the Coulomb potential of the atom has significant influences on them. However, the effect of the Coulomb potential of the atom are not included in the three-step model, so the mechanism of near-threshold harmonics (NTH) cannot be clearly interpreted with the three-step model alone. In this circumstance, the study of the mechanism of near-threshold harmonic emission attracted people's attention in general. One important application of NTH is that it can be utilized to generate optical comb with EUV frequencies.

Theoretically, Xiong *et al.* studied the mechanism of below-threshold harmonic (BTH) emission and found that the mechanism of this part of harmonics include the effect of the quantum-path interference and the Coulomb potential. He *et al.* analyzed the emission of BTH in various laser intensity regions and found that the harmonic spectrum exhibits a periodic structure as a function of the harmonic frequency when the incident laser intensity is about 10^{13} W/cm². Utilizing the quantum-path and time-frequency analyses of the harmonic emission, He *et al.* indicated that this periodic structure can be attributed to the interference effect between two specific quantum paths. Li *et al.* adopted the synchroqueezing scheme to study the near- and below-threshold harmonic emission of Cs atoms in an intense mid-infrared laser field and they showed that the multiphoton and the multiple rescattering trajectories have an effect on the NTH and BTH generation processes. Shafir *et al.* found that the ionic potential plays a critical role in NTH emission.

* Project supported by the National Basic Research Program of China (Grant No. 2013CB922200), the National Natural Science Foundation of China (Grants Nos. 11274141, 11264001, 11304116, 11534004, 11627807), and the Jilin Provincial Research Foundation for Basic Research, China (Grant No. 20140101168JC).

† Corresponding author. E-mail: yangyj@jlu.edu.cn

Under the interaction between the atom and the intense laser field, electron in the ground state not only can be ionized but also be pumped into excited state, and these excitation processes also affect the harmonic emission.

We studied the harmonic emission process near the ionization threshold by solving the time-dependent Schrödinger equation of an atom interacting with a strong laser field. Utilizing the obtained wavefunction, we systematically studied the high-order harmonic emission with the variation of the incident laser intensity. Meanwhile, through solving the TDSE with the momentum-space method, the excited-state population is precisely calculated and achieved. We show that the ninth harmonic exhibits a periodic oscillation structure with the intensity of the incident laser field increasing, and we reveals that there is a synchronous variation between the harmonic intensity and the relatively high bound state population. Within a certain range of laser intensity, the increase of the total population of the excited states corresponds to the low efficiency of harmonic emission, and this competition relationship is quite clear. Therefore, when the wavelength of the driving laser pulse is fixed, we can optimize the driving laser intensity to achieve the near-threshold harmonic emission with high efficiency.

Keywords: high-order harmonic generation, ionization threshold, multi-photon excitation

PACS: 32.80.Rm, 42.50.Hz

DOI: [10.7498/aps.65.223202](https://doi.org/10.7498/aps.65.223202)