

激光强度依赖的阈下谐波产生机制*

郭春祥 焦志宏 周效信 李鹏程†

(西北师范大学物理与电子工程学院, 兰州 730030)

(2019年12月12日收到; 2020年1月8日收到修改稿)

利用广义伪谱方法精确数值求解了氢原子在强激光场中的三维含时薛定谔方程, 获得了强激光中氢原子的含时波函数, 利用时间依赖的偶极矩的傅里叶变换得到了高次谐波谱, 研究了氢原子在强激光场中发射低于电离阈值的谐波谱对激光强度的依赖性. 研究发现, 激光强度在低于电离阈值的谐波产生的通道选择的过程中扮演着重要角色, 主要有两种量子通道对阈下谐波的产生有贡献, 即广义的短轨道和长轨道, 其中长轨道对激光场强度比较敏感. 结合小波时频变换、经典轨道分析、以及强度依赖的量子通道选择分析, 本文阐明了其背后的物理机制.

关键词: 强激光场, 高次谐波, 电离阈值, 量子通道

PACS: 42.65.Ky, 42.79.Nv, 42.50.Hz, 32.80.Rm

DOI: 10.7498/aps.69.20191883

1 引言

高次谐波 (high-order harmonic generation, HHG)^[1,2] 是强激光场与物质相互作用产生的一种非线性光学现象^[3], 在超快科学技术的发展中起着至关重要的作用^[4-13]. 已有研究表明, 利用低于电离阈值的谐波可以获得高强度的真空紫外光源, 所以人们对低于电离阈值的谐波研究产生了很大的兴趣^[14-20]. Corkum 等^[21] 提出了半经典三步模型理论解释了 HHG 的发射过程. 第一步, 随着激光场强度不断增加, 原子核的库仑势垒被压低, 处于基态的电子有机会被电离到连续态; 第二步, 被电离到连续态的电子在激光场中加速获得动能; 最后, 当激光场反向时, 电子开始减速、反向、再加速, 部分电子就有机会在反向电场力的作用下被拉回到原子核区域附近并与母离子发生复合从而辐射出高能光子, 即高次谐波发射. 高次谐波谱的特

点是最先开始的几阶谐波效率随着谐波阶数的增加迅速减小, 然后会出现一个随着阶数增加谐波效率不发生变化的平台区, 最后谐波在平台末端的某一阶处截止并且效率又开始急剧下降, 原子谐波截止位置处的光子能量主要由电离能和自由电子在激光场中获得的最大动能组成, 即 $E_{\text{cutoff}} = 3.17U_p + I_p$, 其中 I_p 为电离能, U_p 为有质动力能 ($U_p = I^2/(4\omega^2)$, I 为激光强度). 强场近似^[22] (strong field approximation, SFA) 方法可以模拟高于电离阈值的高次谐波产生, 但是由于 SFA 忽略了库仑势作用以及束缚态与束缚态之间的跃迁, 所以不适用于计算低于电离阈值的谐波产生. 因此本研究小组选择数值求解三维含时薛定谔方程 (time-dependent Schrödinger Equation, TDSE) 的方法研究低于电离阈值的谐波产生机制.

最近, Yost 等^[23] 从实验上研究了 Xe 原子产生低于电离阈值的谐波的发射特性, 提出利用阈值下谐波辐射可以获得真空紫外频率梳 (frequency

* 国家自然科学基金 (批准号: 11674268, 11764038, 91850209) 和西北师范大学青年教师科研能力提升计划 (批准号: NWNU-LKQN-17-1) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: lipc@nwnu.edu.cn

comb). Power 等^[24]使用非微扰的方法,发现电离阈值下谐波产生的主要贡献来自于长轨道. Soifer 等^[25]研究了分子近电离阈值的高次谐波谱性质,提出了近电离阈值谐波发射时,长轨道属于经典的三步模型,而短轨道则来自于多光子电离驱动的路径. Hostetter 等^[26]以 H 原子为例,提出了考虑原子势的半经典三步模型,研究了低于电离阈值的谐波发射动力学. Xiong 等^[14]和 He 等^[27]通过量子路径和时频分析,证明了波长依赖的低阶谐波效率的差异是由于主导谐波的两个量子路径之间的相干造成的,并且长轨道可以在更高的激光强度下影响低阶谐波的发射. Beaulieu 等^[28]研究了超短激光脉冲中氦原子的共振态和激发态在低于电离阈值谐波产生中的作用. 本研究小组^[29]最近研究发现 He 原子的多次散射有助于共振增强的低于电离阈值的谐波的产生. 但是,低于电离阈值的谐波的产生机制还不是完全清楚,有待进一步探索.

本文研究了激光强度在强场驱动 H 原子产生低于电离阈值的谐波中的角色. 通过伪谱方法 (time-dependent generalized pseudospectral method, TDGPS)^[30]精确数值求解了三维 TDSE, 获得了高次谐波谱, 研究了激光强度与低阶谐波效率之间的依赖关系, 发现在不同电离方式下, 激光强度和谐波效率的依赖关系不同, 结合小波时频变换、扩展的经典轨道分析以及量子通道选择分析, 揭示了在低于阈值和近于阈值谐波产生过程中的量子通道选择规律, 并阐明了背后的物理机制.

2 理论方法

在外场的作用下, 氢原子的 TDSE 可以写为 (原子单位下)

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

式中, \hat{H}_0 为无外场下氢原子球坐标下的哈密顿量, \hat{V} 为氢原子与激光场的相互作用势, 表示为

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

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

(1) 式中的解可以写为 (4) 式:

$$\psi(\mathbf{r}, t_0 + \Delta t) = e^{-i(\hat{H}_0 + \hat{V})\Delta t} \psi(\mathbf{r}, t_0). \quad (4)$$

在含时广义伪谱方法框架下, 通过求解球坐标下

的 TDSE, 含时波函数从时间 t_0 演化到 $t_0 + \Delta t$ 可以通过三步完成:

i) 波函数 $\psi(\mathbf{r}, t)$ 在能量空间 \hat{H}_0 演化时间为 $\frac{\Delta t}{2}$ 的半个步长, 得到 $\psi_1(\mathbf{r}, t)$:

$$\psi_1(\mathbf{r}, t) = e^{-\hat{H}_0 \frac{\Delta t}{2}} \psi(\mathbf{r}, t). \quad (5)$$

ii) 将 (5) 式中波函数 $\psi_1(\mathbf{r}, t)$ 转换到坐标空间, 然后在激光场的作用下演化时间为 Δt 的步长, 得到 $\psi_2(\mathbf{r}, t)$:

$$\psi_2(\mathbf{r}, t) = e^{-i\hat{V}(\mathbf{r}, \theta, t + \frac{\Delta t}{2})\Delta t} \Delta t \psi_1(\mathbf{r}, t). \quad (6)$$

iii) 将 (6) 式中波函数 $\psi_2(\mathbf{r}, t)$ 转换到能量空间, 与 \hat{H}_0 作用演化时间为 $\Delta t/2$ 的半个步长, 得到 $\psi(\mathbf{r}, t + \Delta t)$:

$$\psi(\mathbf{r}, t + \Delta t) = e^{-\hat{H}_0 \frac{\Delta t}{2}} \psi_2(\mathbf{r}, t). \quad (7)$$

不断进行以上三步的演化过程, 可以得到任意时刻的波函数, 最终可以获得长度形式和加速度形式下时间依赖的诱导偶极矩阵元:

$$d_L(t) = \langle \psi(\mathbf{r}, t) | z | \psi(\mathbf{r}, t) \rangle, \quad (8)$$

$$\begin{aligned} d_A(t) &= \langle \psi(\mathbf{r}, t) | \frac{d^2 z}{dt^2} | \psi(\mathbf{r}, t) \rangle \\ &= \langle \psi(\mathbf{r}, t) | -\frac{z}{r^3} + E(t) | \psi(\mathbf{r}, t) \rangle. \end{aligned} \quad (9)$$

最后, 再通过傅里叶变换到频率域, 能够得到相应长度形式和加速度形式下的高次谐波频谱:

$$P_L(\omega) = \left| \frac{1}{t_f - t_i} \int_{t_i}^{t_f} d(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2, \quad (10)$$

$$P_A(\omega) = \left| \frac{1}{t_f - t_i} \frac{1}{\omega^2} \int_{t_i}^{t_f} d_A(t) e^{-i\omega t} dt \right|^2. \quad (11)$$

为了分析特定频率下高次谐波在时域和频域空间的发射特性, 利用小波变换, 得到频率为 ω 的谐波随着时间 t_0 变化的振幅为

$$A_\omega(t_0, \omega) = \int d_a(t) \sqrt{\omega W} [\omega(t - t_0)] dt, \quad (12)$$

其中

$$W(x) = \frac{1}{\sqrt{\tau}} e^{ix} e^{-x^2/(2\tau^2)}, \quad (13)$$

为 Morlet 形式下的窗函数.

为了提取在某一激光强度下量子通道的贡献, 本研究小组发展了 Yost 等^[23,31]提出的强度依赖的量子通道分析方法, 计算了不同激光强度下每一阶谐波量子通道的分布, 表示如下:

$$d_q(\alpha, I_0) = \int dq(I) e^{i\alpha U_p(I)/\hbar\omega} \delta(I - I_0) dI, \quad (14)$$

其中, α 代表依赖激光场强度的电子轨迹动力学相位, α 越小表示轨迹越短, α 越大表示轨迹越长; U_p 表示有质动力能; ω 表示角频率; $\delta(I - I_0) = e^{-(\frac{I-I_0}{\zeta})^2}$, $\zeta = 0.04$.

3 结果与讨论

通过数值求解 TDSE 分别计算了波长为 800 和 1600 nm 下 H 原子产生的低于电离阈值的高次谐波谱, 激光场采用的形式为

$$E(t) = E_0 f(t) = \begin{cases} E_0 \cos \omega t, & 4T \leq t \leq 16T, \\ E_0 \cos^2\left(\frac{\pi t}{8T}\right) \cos \omega t, & 0 \leq t \leq 4T, \\ & 16T \leq t \leq 20T, \end{cases} \quad (15)$$

其中, E_0 为激光场的振幅; T 为激光脉冲的周期, $T = 2\pi/\omega$.

图 1(a) 表示强度在 I 为 6.0×10^{13} , 1.0×10^{14} 和 1.4×10^{14} W/cm² 时, 波长为 800 nm 的 H 原子产生低于电离阈值的高次谐波谱. 随着强度增大, 谐波效率不断增加, 并且峰值逐渐变得尖锐. 图 1(b) 表示波长为 1600 nm 情况下 H 原子产生的低于电离阈值的高次谐波谱, 结果与图 1(a) 类似, 但是每阶谐波的峰值变得更尖锐.

为了探索不同电离机制下激光强度对 H 原子在低于电离阈值下谐波产生过程中的影响, 计算波长为 800 nm 的情况下, 第 5 阶谐波 (H5)、第 7 阶谐波 (H7) 和第 9 阶谐波 (H9) 的发射随强度的依赖关系 (图 2). 1965 年, Keldysh^[32] 提出在适当的激光强度下原子电离的机制具有选择性, 理论上可以采用一个 Keldysh 参数 γ 来区分电离类型:

$$\gamma = \sqrt{I_p/(2U_p)}. \quad (16)$$

当 $\gamma > 1$ 时, 以多光子电离方式为主; 当 $\gamma < 1$ 时, 以隧穿电离方式为主. 由于吸收 N 个光子的概率大致与强度 I^n 成正比, 而强度 I 的大小取决于激光场 $E(t)$ ^[33], 本研究小组^[34] 发现 H5, H7 和 H9 在多光子电离区域的发射与激光场强度 I^n 成正比, 即 H5, H7 和 H9 谐波的峰值强度在多光子电离机制下 (蓝色区域) 与激光场强度 I^5 , I^7 , 和 I^9 (黑色虚线) 成正比, 而在隧穿电离机制下 (橘黄色区域) 与激光场强度 $I^{1.5}$ (白色虚线) 成正比.

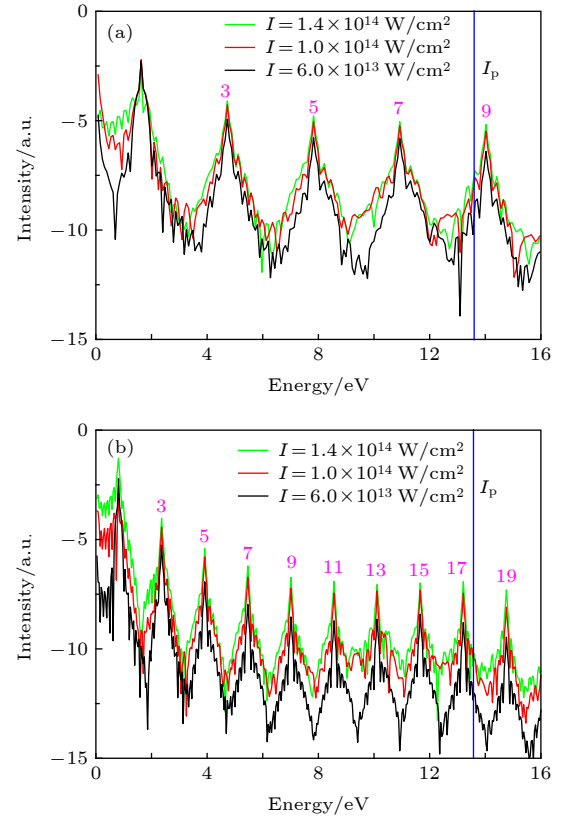


图 1 H 原子产生的低于电离阈值的高次谐波谱 (a) 波长为 800 nm, 强度为 $I = 6.0 \times 10^{13}$ W/cm² (黑色实线), $I = 1.0 \times 10^{14}$ W/cm² (红色实线), 以及 $I = 1.4 \times 10^{14}$ W/cm² (绿色实线), 蓝色线表示 H 原子的电离能 I_p ; (b) 同 (a) 图, 波长为 1600 nm 的情况

Fig. 1. The HHG spectra produced by the hydrogen atom below the ionization threshold: (a) The wavelength is 800 nm, and the intensity is $I = 6.0 \times 10^{13}$ W/cm² (black solid line), $I = 1.0 \times 10^{14}$ W/cm² (red solid line), and $I = 1.4 \times 10^{14}$ W/cm² (green solid line), the blue lines indicate the ionization energy I_p of hydrogen atom; (b) same as (a), the wavelength is 1600 nm case.

为了理解低于电离阈值的谐波对激光强度敏感的物理机制, 选取了图 2 中 H9 曲线上 a, b, c, d 四个特殊点处对应的电子的动力学轨迹进行分析. 在计算中, 通过求解包含原子势的牛顿方程:

$$\ddot{\mathbf{r}} = \mathbf{F}_{\text{Coulomb}} + \mathbf{F}_{\text{Laser}} = -\nabla U + E(t)\mathbf{e}_z, \quad (17)$$

获得了电子在激光场中对时间依赖的轨迹, 进而可以展示电子返回母核发射谐波的物理图像. 分别计算了四个特殊点处 a 点 ($I = 3.1 \times 10^{13}$ W/cm²) b 点 ($I = 3.6 \times 10^{13}$ W/cm²), c 点 ($I = 4.3 \times 10^{13}$ W/cm²) 和 d 点 ($I = 6.6 \times 10^{13}$ W/cm²) 在激光场峰值前一个周期释放电子的动力学轨迹 (图 3). 为了便于讨论, 在图 3 中同时画出了激光场的曲线 (红色实线). 图 3(a) 对应 a 点的情况, 电子在

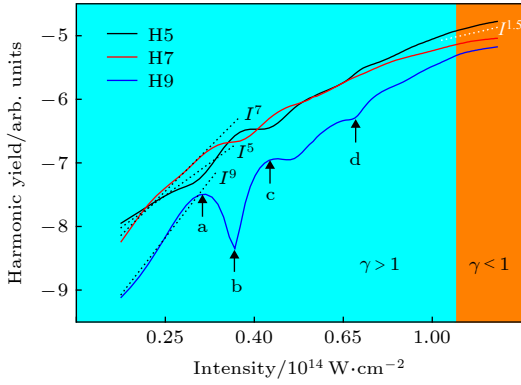


图2 低于电离阈值的H5(黑色实线), H7(红线), 和H9(蓝色实线)的峰值强度随激光场强度的变化. 这里, 波长取为800 nm, 其它激光场参数同图1(a). 箭头a, b, c, d分别表示在激光强度 I 为 3.1×10^{13} , 3.6×10^{13} , 4.3×10^{13} , 和 6.6×10^{13} W/cm²时H9的峰值强度

Fig. 2. The peak intensity of H5(black solid line), H7(red line), and H9 (blue solid line) below the ionization threshold as a function of the laser field intensity. Here, the wavelength is 800 nm, and the other laser field parameters used are the same as those in Fig. 1(a). The arrows a, b, c, and d indicate the peak intensity of H9 at the intensity I of 3.1×10^{13} , 3.6×10^{13} , 4.3×10^{13} W/cm², and 6.6×10^{13} W/cm², respectively.

9.0周期释放, 电子在9.5周期(激光场峰值处红色实线)和10.0周期之间多次返回母核产生谐波, 同时电子返回轨迹较短(广义短轨道). 图3(b)中对应的是b点的情况, 由于这时电子在9.5周期激光场峰值处强度较强, 电子直接被电离出去的概率较大, 所以在9.5周期和10.0周期之间主要是单次返回母核产生谐波, 谐波发射效率会大幅下降. 图3(c)和(d)对应的是c点和d点的情况, 激光强度更强, 这时尽管电子在9.5周期和10.0周期之间没有返回, 但是在10.25周期之后由于电子隧穿电离概率增大, 所以大量电子返回了母核, 整体增强了谐波的强度. 同时可以看出, 电子的返回轨迹较长(广义长轨道). 通过以上分析, 可以很好地理解低于电离阈值谐波对激光强度敏感物理机制.

为了进一步了解低于电离阈值谐波的发射特性, 对图2中H9曲线上a, b, c, d四个特殊点处对应的谐波进行了小波时频变换. 为了便于比较, 以 $I = 6.6 \times 10^{13}$ W/cm²(d点)的H7强度作为标准, 其它阶次的强度与此谐波比较得出. 图4(a)为

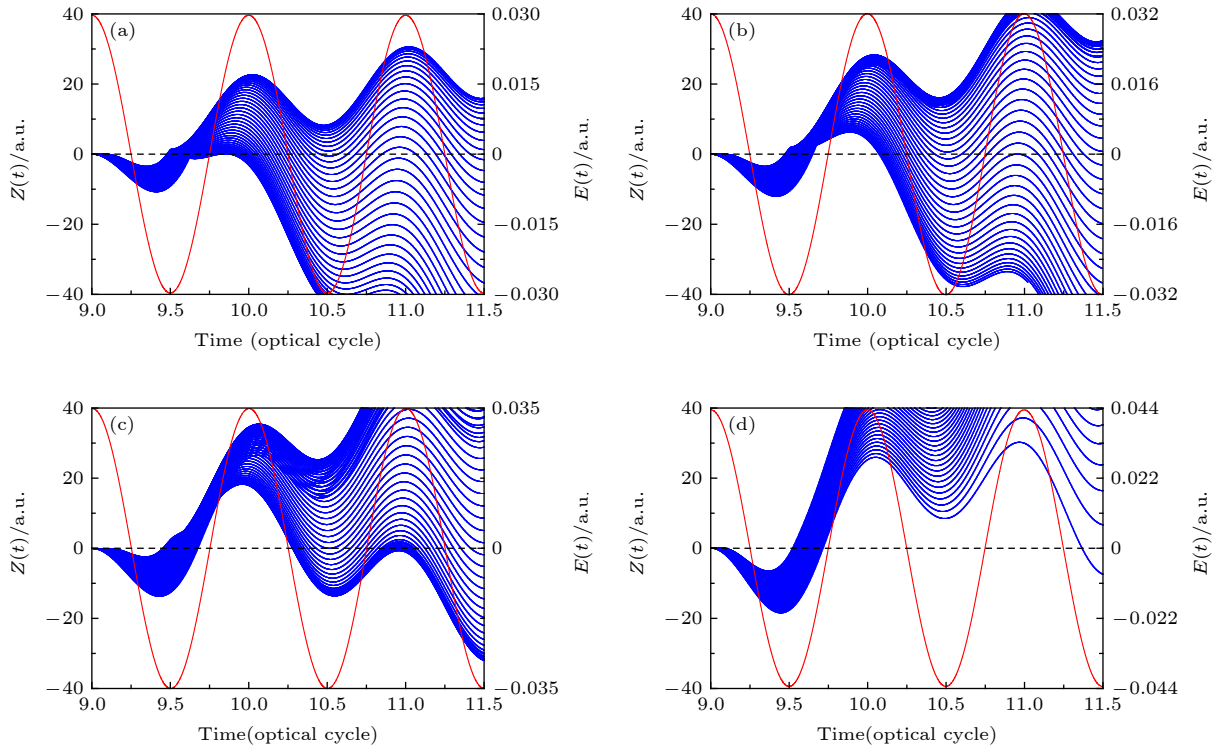


图3 H9曲线上a, b, c, d四个特殊点处对应的电子动力学轨迹, 红色实线代表激光场, 蓝色实线表示电子的轨迹, 黑色虚线表示母核位置. 激光场参数同图2

Fig. 3. The time-dependent position of electrons at the given laser intensity shown in a, b, c, and d points in H9 curve. The red solid lines represent the laser field, the blue solid lines represent the trajectories of the electron, and the black dotted lines represent the position of the parent nucleus. The other laser field parameters used are the same as those in Fig. 2.

激光强度 $I = 3.1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 的情况, 由图 4(a) 可以看出, 不同激光强度下同一阶次的谐波效率不同, H7 的发射效率总是较强, 因为 H 原子基态 1s 到第一激发态 2p 之间的跃迁能量为 0.375 a.u., 在 800 nm 激光场下恰好对应的是 6.58ω , 非常接近于 H7, 所以 H7 的发射效率较强是因为共振效应. 图 4(b) 为激光强度 $I = 3.6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 的情况, H5 和 H7 谐波发射较强, 而 H9 谐波发射比较弱, 这与图 3(b) 分析结果一致. 图 4(c) 为激光强度 $I = 4.3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 的情况, H7 谐波发射较强, H5 和 H9 谐波发射较弱. 图 4(d) 为激光强度 $I = 6.6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 的情况, H5 和 H7 谐波发射较强.

另外, 从图 4 可以看出, 在激光场的开始和末端区域, H5, H7 和 H9 不仅有纵向分布, 而且存在横向分布. 为了便于观察, 选取图 4(d) 的结果进行进一步分析 (图 5). 可以清楚地看到电离阈值以下 (H5, H7) 和阈值附近 (H9) 谐波的纵向、横向分布^[27]. 对于纵向分布 A, 对应每一阶次的谐波发射是连续的, 并且强度和激光强度成正比, 同时可以看到, H7 和 H9 的发射效率较高, H5 发射效率较低. 对于横向分布 B1 和 B2, 与激光场的形式有关, 在 $T_1 = 4$ 和 16 o.c. 位置附近引起了横向分布, 并且能

够看到 H9 横向分布最强, H5 和 H7 比较弱. 这种分布与阈值以上谐波分布的产生非常相似, 是由于在激光场开始和末端强度较低, 多光子电离和隧穿电离通道的相互干扰引起的.

最后, 分析电离阈值下谐波产生过程中量子通道对激光强度的依赖性以及不同量子通道的贡献. 图 6(a)—(c) 展示了低阶谐波 H5, H7 和 H9 量子通道的分析结果, 阈下谐波的产生主要集中在相位为 $\alpha = 0$ 和 6π 附近的两个量子通道, 并且 $\alpha = 0$ 和 6π 的贡献可以解释为广义的短轨道和长轨道的贡献^[26]. 从图 6 不难看出, 短轨道的作用随着激光强度的增加贡献变大, 长轨道对 H5 和 H7 的贡献很微弱, 而长轨道对 H9 的贡献很大, 并且随着激光场的增强, 影响的范围越来越大, 这一结果与图 3 经典轨迹分析的结果一致, 是因为随着激光强度的增大隧穿电离机制越来越明显造成的. 通过比较图 5(a)—(c) 不难发现, 随着激光强度的增大, 低阶谐波的发射是连续的. 根据前面的讨论, $\alpha = 0$ 量子通道的贡献主要是多光子电离主导的, 而 $\alpha = 6\pi$ 量子通道分布主要是隧穿电离主导的. 另外, 从图 6(a) 和图 6(b) 能够看到, 随着激光强度的变化, H5 和 H7 在 $\alpha = 6\pi$ 附近发射比较弱; 而在图 6(c) 中, $\alpha = 6\pi$ 附近 H9 发射比较强是由于广义

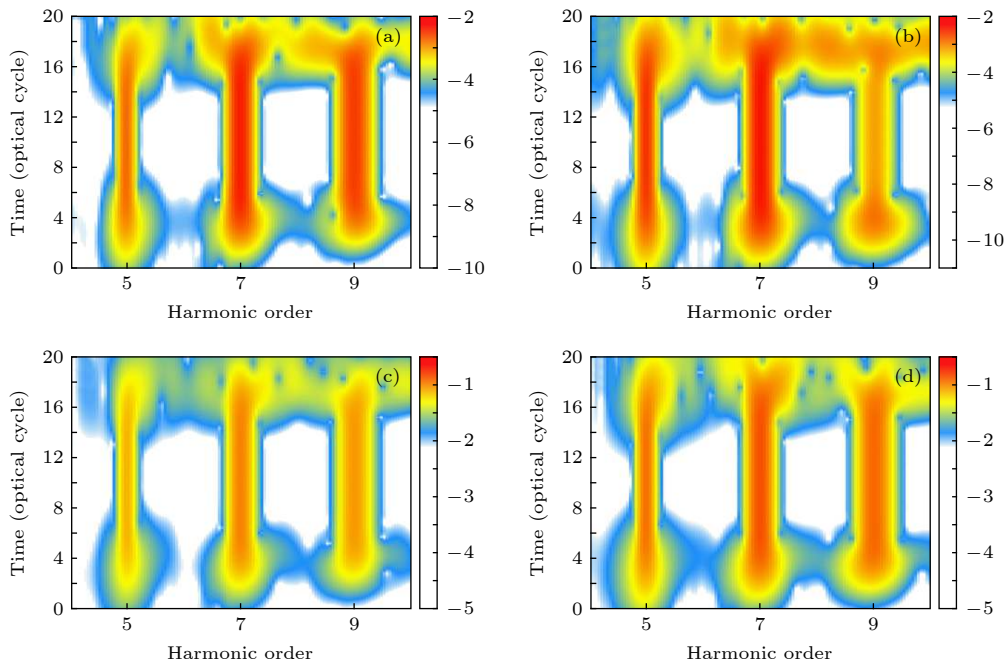


图 4 波长为 800 nm 激光脉冲下, 低于电离阈值谐波的时频分析 (a) $I = 3.1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$; (b) $I = 3.6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$; (c) $I = 4.3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$; (d) $I = 6.6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$

Fig. 4. Time-frequency analysis of below-threshold harmonic generation with a 800 nm wavelength: (a) $I = 3.1 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$; (b) $I = 3.6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$; (c) $I = 4.3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$; (d) $I = 6.6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$.

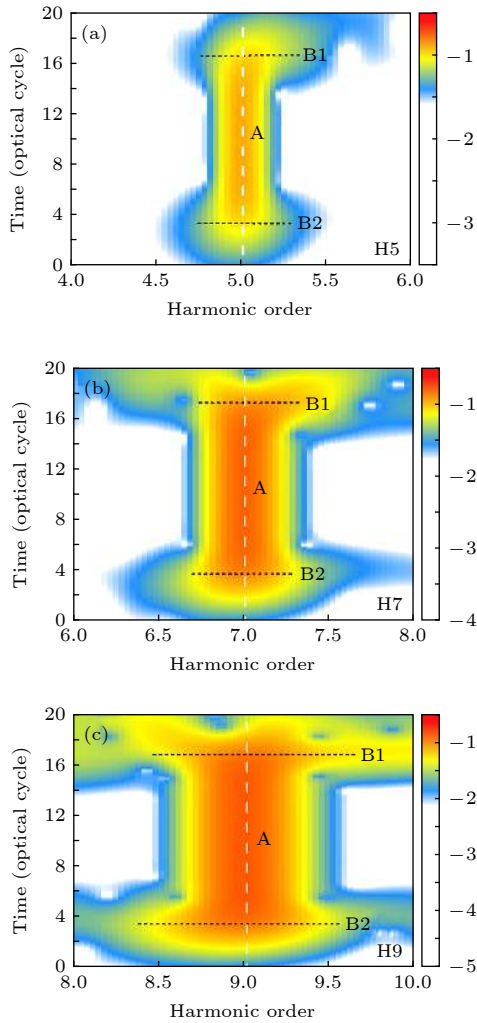


图5 波长为 800 nm, 强度为 $I = 6.6 \times 10^{13}$ W/cm² 激光脉冲下, 低于电离阈值的时频分析 (a) H5; (b) H7; (c) H9
Fig. 5. Time-frequency analysis of below-threshold harmonic, in a 800 nm laser wavelength with the intensity $I = 6.6 \times 10^{13}$ W/cm²: (a) H5; (b) H7; (c) H9.

长轨道的贡献增大所致. 由此, 可以发现阈下谐波的产生过程中, 确实有两种量子通道的贡献, 不同激光强度下, 每一阶谐波产生的通道选择不同, 而且通道的选择对激光强度非常敏感.

4 结 论

本文利用广义含时伪谱方法, 精确数值求解了三维 H 原子在强激光场中的 TDSE, 研究了低于电离阈值的谐波的发射和激光强度的依赖关系. 研究发现, 在 $\gamma > 1$ 的多光子电离机制下, H5, H7, H9 谐波和激光强度的依赖关系分别为 I^5 , I^7 和 I^9 (I 为激光场强度), 而在 $\gamma < 1$ 的隧穿电离机制下, 依赖关系变为 $I^{1.5}$. 通过结合经典轨迹分析、时频

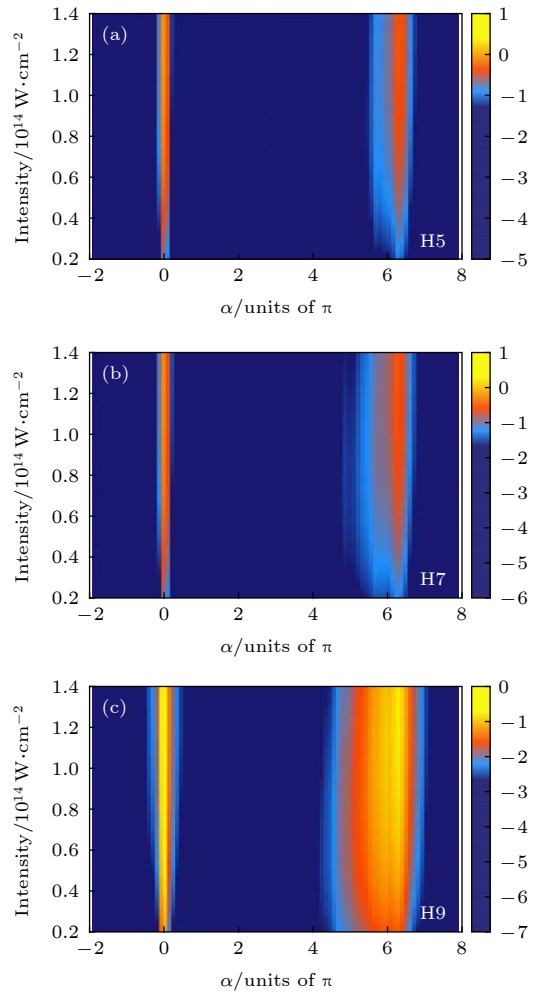


图6 低于电离阈值的谐波的量子通道分布对激光强度的依赖性 (激光场参数同图2) (a) H5; (b) H7; (c) H9
Fig. 6. The distributions of the quantity channels as a function of the laser intensity for the below-threshold harmonics (The laser field parameters used are the same as those in Fig. 2.): (a) H5; (b) H7; (c) H9.

分析和激光强度依赖的量子通道分析, 发现低于电离阈值的谐波发射确实存在两种量子路径, 即广义的长路径和短路径, 路径的选择与激光强度相关, 且不同激光强度下两种路径对低阶谐波发射产生的贡献不同, 背后的物理机制是电离机制对激光强度的依赖性.

参考文献

- [1] McPherson A, Gibson G, Jara H, Johann U, Luk T S, McIntyre I A, Boyer K, Rhodes C K 1987 *J. Opt. Soc. Am. B.* **4** 595
- [2] Ferray M, L'Huillier A, Li X F, Lompre L A, Mainfray G, Manus C 1988 *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **21** 31
- [3] Brabec T, Krausz F 2000 *Rev. Mod. Phys.* **72** 545
- [4] Takahashi E J, Kanai T, Ishikawa K L, Nabekawa Y, Midorikawa K 2008 *Phys. Rev. Lett.* **101** 253901

- [5] Budil K S, Salières P, L'Huillier A, Ditmire T, Perry M D 1993 *Phys. Rev. A* **48** 3437
- [6] Chini M, Zhao K, Chang Z H 2014 *Nat. Photonics* **8** 178
- [7] Wang L, Wang G L, Jiao Z H, Zhao S F, Zhou X X 2018 *Chin. Phys. B* **27** 073205
- [8] Li P C, Jiao Y X, Zhou X X, Chu S I 2016 *Optics. Express* **24** 14352
- [9] Frolov M V, Manakov N L, Sarantseva T S, Emelin M Y, Ryabikin M Y, Starace A F 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 243901
- [10] Dao L V, Dinh K B, Hannaford P 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 141115
- [11] Grazioli C, Callegari C, Ciavardini A, Coreno M, Frassetto F, Gauthier D, Golob D, Ivanov R, Kivimäki A, Mahieu B, Bučar B, Merhar M, Miotti P, Poletto L, Polo E, Ressel B, Spezzani C, De N G 2014 *Rev. Sci. Instrum.* **85** 023104
- [12] Wang G L, Jin C, Le A T, Lin C D 2012 *Phys. Rev. A* **86** 015401
- [13] Dinh K B, Le H V, Hannaford P, Dao L V 2015 *Appl. Opt.* **54** 5303
- [14] Xiong W H, Geng J W, Tang J Y, Peng L Y, Gong Q H 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 233001
- [15] Spott A, Becker A, Jaroń-Becker A 2015 *Phys. Rev. A* **91** 023402
- [16] Chini M, Wang X W, Cheng Y, Wang H, Wu Y, Cunningham E, Li P C, Hesla J A, Telnov D, Chu S I, Chang Z H 2014 *Nat. Photonics* **10** 1038
- [17] Xiong W H, Gong Q H, Peng L Y 2017 *Phys. Rev. A* **96** 023421
- [18] Heslar J, Chu S I 2017 *Phys. Rev. A* **95** 043414
- [19] Du L L, Wang G L, Li P C, Zhou X X 2018 *Chin. Phys. B* **27** 113201
- [20] Xiong W H, Peng L Y, Gong Q H 2017 *J. Phys. B* **50** 032001
- [21] Corkum P B 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 1994
- [22] Lewenstein M, Balcou P, Ivanov M Y, L'Huillier A, Corkum P B 1994 *Phys. Rev. A* **49** 2117
- [23] Yost D C, Schibli T R, Ye J, Tate J L, Hostetter J, Gaarde M B, Schafer K J 2009 *Nat. Phys.* **10** 1038
- [24] Power E P, March A M, Catoire F, Sistrunk E, Krushelnick K, Agostini P, DiMauro L F 2010 *Nat. Photonics* **4** 352
- [25] Soifer H, Botheron P, Shafir D, Diner A, Raz O, Bruner B D, Mairesse Y, Pons B, Dudovich N 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 143904
- [26] Hostetter J A, Tate J L, Schafer K J, Gaarde M B 2010 *Phys. Rev. A* **82** 023401
- [27] 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
- [28] Beaulieu S, Camp S, Descamps D, Comby A, Wanie V, Petit S, Légaré F, Schafer K J, Gaarde M B, Catoire F, Mairesse Y 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 203001
- [29] Li P C, Sheu Y L, Laughlin C, Chu S I 2014 *Phys. Rev. A* **90** 041401
- [30] Tong X M, Chu S I 1997 *Chem. Phys.* **217** 119
- [31] Balcou P, Dederichs A S, Gaarde M B, L'Huillier A 1999 *J. Phys. B* **32** 2973
- [32] Keldysh L V 1965 *Sov. Phys. JETP* **20** 1307
- [33] Chu X, Chu S I 2010 *Phys. Rev. A* **64** 013406
- [34] Li P C, Sheu Y L, Jooya H Z, Zhou X X, Chu S I 2016 *Sci. Reports* **6** 32763

Mechanism of laser intensity-dependent below-threshold harmonic generation*

Guo Chun-Xiang Jiao Zhi-Hong Zhou Xiao-Xin Li Peng-Cheng[†]*(College of Physics and Electronic Engineering, Northwest Normal University, Lanzhou 730030, China)*

(Received 12 December 2019; revised manuscript received 8 January 2020)

Abstract

High-order-harmonic generation (HHG) is a fundamental atomic and molecular process in strong laser fields and plays a crucial role in the development of ultrafast science and technology. The essential features in HHG, such as the above-threshold harmonic plateau and cutoffs, can be well understood by the semiclassical three-step model. The HHG cutoff occurs approximately at the energy $3.17U_p + I_p$, where I_p is the atomic ionization potential, and U_p is the ponderomotive potential.

In the past, most studies focused on the HHG above the ionization threshold, and the general pattern of the HHG spectrum can be qualitatively explained by means of the strong field approximation (SFA) and the quantum treatment of three-dimensional time-dependent Schrödinger equation (TDSE). However, the SFA results in inadequate description for the process in the harmonic generation below the ionization threshold since it neglects the Coulomb potential and the detailed electronic structure of atoms. Recently, as a promising method to produce vacuum-ultraviolet frequency comb, the HHG in the near- and below-ionization threshold has been increased considerably. However, the dynamical origin of in these lower harmonics is less understood and largely unexplored.

Here we perform an ab initio quantum study of the near- and below-threshold harmonic generation of hydrogen atom by means of the time-dependent generalized pseudospectral method. We study the intensity dependence of the harmonic spectra below the ionization threshold of hydrogen atom in the intense laser field. The high-order harmonic spectra are calculated by the Fourier transform of the atom induced dipole moment in the laser field. The below-threshold harmonic spectra yield is scaled as a function of the laser peak intensity. We find that the spectra yield in below-threshold harmonic generation (BTHG) depends on the light intensity in the multiphoton ionization regime. And the laser intensity plays an important role in the channel selection process for BTHG. There are mainly two kinds of quantum channels to be responsible for the BTHG. Namely, the generalized short trajectories and the long trajectories, in which the long trajectories are more sensitive to the laser field intensity. Combining with wavelet time-frequency transform, semiclassical trajectories simulation, and quantum channel analysis associated with the laser intensity, the dynamical origin of the BTHG is uncovered.

Keywords: intense laser field, below-threshold harmonic generation, ionization threshold, quantum channel

PACS: 42.65.Ky, 42.79.Nv, 42.50.Hz, 32.80.Rm

DOI: 10.7498/aps.69.20191883

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11674268, 11764038, 91850209) and the Scientific Research Foundation of Physics of CPEE-NWNU, China (Grant No. NWNU-LKQN-17-1).

[†] Corresponding author. E-mail: lipc@nwnu.edu.cn