arXiv:2601.09252v1 [physics.atom-ph] 14 Jan 2026

将高次谐波产生作为隧穿延迟探针

Amol R. Holkundkar [1,*]

[1]比尔拉理工与科学学院—皮拉尼分校物理系，印度拉贾斯坦邦，*333031*。（日期：2026年1月15日）

我们研究了将高次谐波产生（HHG）用作强场电离中隧穿延迟的补充探针的可行性。通过结合对完整含时薛定谔方程（TDSE）模拟所得高次谐波谱的时频分析与经典三步模型（TSM）轨迹，我们提取了与电子穿过激光抑制的库仑势垒时的运动相关联的有效隧穿延迟。我们针对氢、氦和氩原子，在隧穿区间内的一系列激光波长和峰值强度下开展了分析。提取出的延迟随电离时的瞬时场强和势垒宽度呈现系统性变化，并遵循预期的 $\tau_d \propto 1/\sqrt{I_0}$ 标度关系，与 Keldysh–Rutherford 型模型及阿秒钟观测相符。将隧穿延迟改用 Keldysh参数表示后，不同原子种类的数据趋于一条近乎普适的变化曲线。尽管高次谐波产生不能直接测量隧穿时间，本研究结果表明，它能够作为一种稳健且内部一致的隧穿动力学诊断手段，为成熟的阿秒钟技术提供独立而互补的视角。

I. 引言

强激光脉冲驱动的强场电离已成为阿秒科学的核心范式，使人们能够直接探测亚飞秒时间尺度上的电子动力学。在这一背景下，最具影响力的概念框架之一是经典三步模型（TSM），它将高次谐波产生（HHG）成功描述为一系列过程：隧穿电离、激光驱动电子在连续态中的传播，以及电子与母离子的复合。尽管经典三步模型十分简洁，但它在预测谐波截止、发射时刻以及许多实验中观测到的定性特征方面已被证明极为成功 [1–3]。

尽管经典三步模型的复合和传播步骤相对而言已得到充分理解，但隧穿步骤的时间特性仍是一个备受争议的课题。尤其是，隧穿究竟瞬时发生，还是历经一个有限时间间隔，这一问题引发了大量实验和理论研究 [4–12]。基于椭圆偏振激光场中角向条纹化的阿秒钟实验，已成为探测隧穿延迟最直接的方法之一。早期测量发现了非零角偏移，并将其解释为有限隧穿时间的迹象 [8], ，由此推动了持续的研究，以厘清其物理起源。

后续实验进展显著提升了阿秒钟测量的精度，最终实现了对氢原子的高精度研究，从而最大限度地减少了多电子和结构复杂效应 [4, 5]。这些实验以及对更复杂靶标的测量，已确凿证实，观测到的角偏移对激光强度、波长以及与母离子的库仑相互作用十分敏感 [10, 11, 13]。与此同时，这些实验也揭示了隧穿动力学、出口通道效应与电离后库仑聚焦之间微妙的相互作用。

在理论方面，阿秒钟测量的解读已取得显著进展。量子轨迹和库仑修正模型表明，测得的角偏移不能单纯归因于某个“隧穿时间”，而是反映了势垒下动力学与连续态传播效应的综合作用 [6, 14–16]。在这一背景下，Keldysh–Rutherford（KR）模型给出了一种尤为直观的描述，预测隧穿延迟在隧穿区间内近似按 $\tau \propto 1/\sqrt{I_0}$ 的比例变化 [17]。近期研究进一步强调了非绝热修正和波长依赖效应的作用，尤其是在长波长和低Keldysh参数条件下 [18–21]。

与这些进展同步，高次谐波产生已发展成为一种强大的自参照探针，可用于研究强场电子动力学。对高次谐波谱进行时频分析，可以将发射谐波与特定的电离和复合时间联系起来，从而在完整的量子力学模拟与经典电子轨迹之间建立直接联系 [22, 23]。与阿秒钟技术不同，高次谐波实验通常采用线偏振场，并且天然对复合动力学敏感。因此，高次谐波产生无法直接测量隧穿时间。不过，含时薛定谔方程（TDSE）模拟得到的高次谐波发射时刻与经典三步模型预测高度吻合，这表明高次谐波产生可能包含有关隧穿步骤本身的间接但可靠的信息。

受这一观点启发，本研究探索将高次谐波产生作为隧穿延迟的补充诊断手段，而非阿秒钟测量的替代方法。我们结合含时薛定谔方程模拟、时频（Gabor）分析和经典轨迹计算，提取与电子穿过激光抑制的库仑势垒相关的有效隧穿延迟。分析对象为氢、氦和氩原子，考察它们在隧穿区间内一系列激光强度和波长下的表现。我们特别着重于识别隧穿延迟随峰值强度、电离时的瞬时场强，

* 电子邮件：amol@holkundkar.in

以及Keldysh参数变化的系统趋势。

在继续之前，有必要明确本研究所讨论的隧穿延迟诊断量的适用范围及其解释。此处 τ_d 提取的量不应被视为严格量子力学意义上的隧穿时间观测量，也不应被视为类似于阿秒钟实验的直接测量结果。相反， τ_d 表示在含时薛定谔方程与经典轨迹框架相结合的框架内推断出的有效的、依赖模型的延迟；在该框架中，通过瞬时势垒几何结构以及高次谐波发射中所编码的时间信息来刻画隧穿步骤。因此，本方法旨在作为一种诊断和比较工具，用于识别系统性趋势并检验内部一致性，而不是为隧穿时间提供唯一的定义。与基于阿秒钟的标度定律以及Keldysh参数依赖性的一致性，应被理解为互补框架之间的一致性检验，而非对现有隧穿时间测量的验证或替代。

本文的组织结构如下。在第II节中，我们概述用于求解含时薛定谔方程并从高次谐波产生中提取时间信息的理论框架和数值方法。第III 节介绍结果与讨论，其中分析隧穿延迟诊断量随激光强度、波长、原子种类和势垒几何结构的变化。在第IV节中，我们总结主要发现，并将其改写为关于Keldysh参数的形式，以突出不同系统之间的普适趋势。最后，第V 节包含总结性论述与展望。

II. 理论结果与数值结果考量

采用含时广义伪谱方法（TDGPS）数值求解单活性电子（SAE）近似下的含时薛定谔方程（TDSE） [24]。研究了由 $\sin^2$ 包络的 4 周期线偏振激光与氢、氦和氩原子靶的相互作用，并通过改变激光脉冲的波长和峰值强度来估算隧穿延迟。全文均使用原子单位，即 $|e| = m_e = \hbar = 1$。长度规范下的含时薛定谔方程写作：

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\psi(\mathbf{r},t)\rangle = [H_o + H_L(t)]\,|\psi(\mathbf{r},t)\rangle\,, \tag{1}$$

其中，$H_o = -\nabla^2/2 + V(r)$ 是无场哈密顿量，而 $H_L(t) = \mathbf{r}\cdot\mathbf{E}(t)$ 是长度规范下的相互作用哈密顿量，其中 $\mathbf{E}(t)$ 是偶极近似下驱动激光电场的时间轮廓，其表达式为：

$$\mathbf{E}(t) = E_0 \sin(\omega_0 t + \phi)\sin^2\left(\frac{\pi t}{T}\right)\hat{z}. \tag{2}$$

此处，E_0[a.u.] $\sim 5.342\times10^{-9}\sqrt{I_0}$ 表示场振幅，峰值强度为 I_0 W/cm^2， ω_0[a.u.] $\sim 45.5633/\lambda$ 表示激光的频率，其中 λ 表示以纳米为单位的波长。这里考虑了脉冲的 CEP $\phi = 0$， $T = 4\tau_0$表示激光脉冲的持续时间（除非另有说明）， τ_0[a.u.] $= 2\pi/\omega_0$ 表示与相应波长对应的一个周期的持续时间。

氢原子中的原子库仑势$V(r)$在单活性电子（SAE）近似下，采用 [25] 给出的经验表达式建模：

$$V(r) = -\frac{1 + a_1\,\mathrm{e}^{-a_2 r} + a_3\,r\,\mathrm{e}^{-a_4 r} + a_5\,\mathrm{e}^{-a_6 r}}{r} \tag{3}$$

参考文献 [25] 中列出了氢、氦和氩等原子种类的系数a_i。该$V(r)$的经验表达式基于单活性电子近似下的无自相互作用密度泛函理论。使用 TDGPS 方法和这一原子势的优点是，在笛卡尔坐标中求解含时薛定谔方程时，无需采用任何软核势。在 TDGPS 中，径向区间$r = [0, R_{max}]$被映射到$s = [-1, 1]$ 范围内，并进一步使用勒让德多项式的根进行离散化。因此，无论在$s \equiv [-1, 1]$ 之间考虑多少个径向网格点，对应于$s = -1$ 的径向网格点$r = 0$都不会纳入模拟区域，因此无需采用软核近似。对模型势的这种精确处理，使我们能够高精度地计算电离势及其他一系列物理量。例如，本研究采用的径向模拟区域为$R_{\max} \sim 250$ 原子单位（a.u.），并将最后 30 a.u. 用作屏蔽区域，以吸收出射波函数 [26, 27]。为此，我们沿径向采用$N = 1200$ 个非均匀网格点（勒让德多项式的根），最大角动量取$L = 150$，模拟时间步长设为 0.05 a.u.。我们对空间网格和时间步长进行了收敛性测试。

为了检验我们的含时薛定谔方程求解器的有效性，我们在表 - I中列出了氢、氦和氩的电离势，并使用无场哈密顿量的本征函数，列出了氢原子的 $\langle r^k\rangle$ 与$k = -2, -1, 1$ 的期望值（因为这些数值可以直接与理论值比较）。数值结果与理论预测高度吻合 [28], ；此外，这也表明初始（$t = 0$）电子波函数 $|\psi_{n\ell}\rangle$的数值求法是恰当的，方程（1）中的这些波函数实际上就是无场哈密顿量的本征函数。本研究使用线偏振激光脉冲，因此，对于所呈现的所有结果，波函数的时间演化在方位角方向上均呈对称性（$m = 0$ 情形）。

使用 TDGPS 方法求解含时薛定谔方程（TDSE）后，根据 Ehrenfest 定理 [30]计算含时偶极加速度 $\mathbf{a}(t)$：

$$\mathbf{a}(t) = -\left\langle \psi(\mathbf{r},t)\middle|\frac{\partial V(r)}{\partial r} + \mathbf{E}(t)\middle|\psi(\mathbf{r},t)\right\rangle. \tag{4}$$

随后，通过傅里叶变换获得谐波谱

表 I。通过我们的模拟数值计算得到的氢、氦和氩的电离势（I_P）与理论结果和实验结果进行了比较。氢原子问题可以解析求解 [28], , 因此我们给出了不同量子数下无场哈密顿量的期望值的数值计算结果 $[E_n = \langle\psi_{n\ell}|H_o|\psi_{n\ell}\rangle]$ $[n\ \ell]$。此外，还给出了 $\langle\psi_{n\ell}|r^k|\psi_{n\ell}\rangle$ 在 $k = -2,\ -1,\ 1$ 时的结果。这些数值计算结果与理论预测 [28]吻合良好。

	I_p [原子单位]	氢	氦	氩
	数值结果	0.5	0.9038	0.5797
	理论结果 [28]	0.5	0.9037	–
	美国国家标准与技术研究院	0.4997	0.9036	0.5792
	[a] [29]			
氢 $\lvert\psi_{n\ell}\rangle$	E_n [原子单位]	$\langle\psi_{n\ell}\lvert r\rvert\psi_{n\ell}\rangle$	$\langle\psi_{n\ell}\lvert \frac{1}{r}\rvert\psi_{n\ell}\rangle$	$\langle\psi_{n\ell}\lvert \frac{1}{r^2}\rvert\psi_{n\ell}\rangle$
$\lvert\psi_{1s}\rangle$	−0.5	1.5	1	1.99943
$\lvert\psi_{2s}\rangle$	−0.125	$5.\overline{999}$	0.25	0.24993
$\lvert\psi_{2p}\rangle$	−0.125	5	0.25	$0.0\overline{8333}$

a https://physics.nist.gov/

变换$\mathbf{a}(t)$:

$$S(\Omega) \sim |a(\Omega)|^2, \tag{5}$$

其中$a(\Omega)$ 表示偶极加速度的傅里叶变换。偶极加速度的时频分析 [参见式（4）]采用先进的数值库“fCWT”进行 [31]。

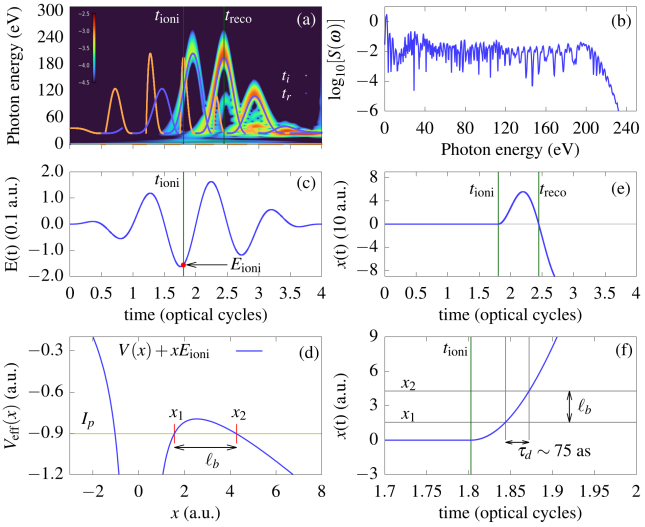

图 1. 氦原子情况下的高次谐波产生时频分析，并标示了根据经典三步模型估算的电离时刻和复合时间 (a)；(b) 为高次谐波谱。激光脉冲的时间轮廓如 (c) 所示，其中$E(t_{ioni}) \equiv E_{ioni}$，$t_{ioni} \sim 1.8\tau_0$ 为与复合时间$t_{reco} \sim 2.45\tau_0$时发射的最高能量光子对应的电离时刻。图 (d) 展示了一维有效势$V_{eff}(x) = V(x) + xE_{ioni}$，与电离势 ($I_p \sim -0.9038$ 原子单位) 的交点标记为x_1和x_2。电子在t_{ioni}电离后的经典轨迹见 (e)，(e) 的放大图见 (f)。(a)、(c)、(e) 和 (f) 中的竖线标示电离时刻t_{ioni}。电子通过 ℓ_b 所需的时间 (τ_d) 根据 (f) 估算。此处使用的激光脉冲持续时间为 4 个周期 ($\sin^2$ 轮廓)，波长为 800纳米，峰值强度为 10^{15} W/cm^2。

III. 结果与讨论

本研究考察了线偏振激光与氢、氦和氩原子种类的相互作用。在当前的经典轨迹框架中，穿越势垒宽度所需的时间 ℓ_b 被定义为有效隧穿延迟参数 τ_d。本文中后续提及的隧穿延迟，均应理解为这一诊断意义上的量。

A. 方法

为了阐明我们用于探测隧穿延迟的方法，我们首先考察激光 [$\lambda = 800$ 纳米，$I_0 = 10^{15}$ W/cm^2] 与氦（$I_p \sim 0.9038$ a.u.）原子基态的相互作用。相应的高次谐波产生时间频率分析如图1（a）所示，同时给出了经典电离能和复合能。这些经典估算的能量均因氦原子的电离能而上移。典型的高次谐波谱[参见式（5）] 如图1（b）所示。对应于最大谐波能量发射的电离（复合）时间记为$t_{ioni} \sim 1.8\tau_0$ （$t_{reco} \sim 2.45\tau_0$），并分别以垂直线表示于图1（a）中。激光场剖面如图1(c)所示。t_{ioni}处的场强，即 $E(t_{ioni}) \equiv E_{ioni}$，可由图1(c)获得。如图1(a)所示的经典轨迹计算仅在一维中进行；然而，含时薛定谔方程是在具有方位角对称性的二维体系中求解的，并采用球对称势。因此，瞬时有效势被表示为 $V_{eff}(x) = V(x) + xE_{ioni}$，其中无场势 V(x) 由式（3）给出，并显示于图1(d)中。

图 1(d) 中还显示了一条代表电离能的水平线，该线与 $V_{eff}(x)$ 相交于两点，即 x_1 和 x_2。距离 $\ell_b \equiv x_2 - x_1$ 被称为“势垒宽度”。通过求解微分方程 $\ddot{x} = -E(t)$，并采用初始条件 $x(0) = \dot{x}(0) = 0$，计算得到经典轨迹 x(t)，如图 1(e)] 所示。在图 1(e) 中可以看到，$x(t < t_{ioni}) = 0$，这意味着电子直到 t_{ioni} 才发生电离；然而，它在 t_{reco} 复合，这对应于光子能量最高、最明亮的脉冲的发射（参见图 1(a)]）。此外，图 1(f) 展示了 t_{ioni} 附近轨迹的放大图。由图 1(f) 可推断，跨越距离 ℓ_b 所需的时间可称为“隧穿延迟” τ_d，本例中该时间为 $\tau_d \sim 75$。

众所周知，由于电子（SAE）束缚于原子核，经典框架并不适用于研究电离动力学；

然而，经典三步模型成功预测谐波截止的能力却无可比拟。经典三步模型中的电离时刻和复合时间，是通过求解以原子单位表示的牛顿运动方程得到的，即 $\ddot{x} = -E(t)$。求解该方程时，初始条件取为 $x(t = 0) = \dot{x}(t = 0) = 0$。求解动力学时未考虑库仑势。然而，为了探究库仑势对连续态中电子动力学的影响 [for $x > x_2$ in Fig. 1(d)], ，我们比较了经典三步模型（TSM）在两种情况下的结果：一种忽略库仑势（NC），另一种则明确将其纳入（WC）。相应结果见图2(a)。对于 WC 情况，电子初始位置设为 $x = x_2$, ，即势垒外侧紧邻处；由于区域 $x < x_2$ 在经典上是禁阻区，因此当电子返回至同一位置时，确定其返回时间和能量。随着电离时刻变化，x_2 的值也随之改变，反映出激光抑制势垒的时间依赖性。

如图 2(a) 所示，与 NC 情形相比，WC 情形下的电离时刻略有提前，这是由于库仑势的吸引作用改变了电子运动的早期阶段。值得注意的是，达到最大返回能量的时刻——与图 1(a) 所示的含时薛定谔方程结果一致——在 NC 和 WC 两种情形下完全相同。由于电子接近母离子时受到额外的库仑加速，WC 情形下的最大返回能量略高于 NC 情形。除这些细微差异外，NC 和 WC 模型对返回能量的预测总体上高度一致。

我们还将 NC 和 WC 情形下的经典轨迹，与含时薛定谔方程计算得到的沿激光偏振方向的偶极矩随时间的演化 $d_z(t)$以及位置期望值 $\langle r(t)\rangle$进行了比较 [（见图 2(b)]）。可以看出，复合时刻 $t_{\mathrm{reco}} \sim 2.45\,\tau_0$得到了 $d_z(t)$ 和 $\langle r(t)\rangle$随时间变化行为的佐证：二者在同一时刻均出现极值。这种一致性为经典轨迹分析与其基础量子动力学之间提供了内部一致性检验。

从含时薛定谔方程推断出的电离与复合时间与经典三步模型得出的时间一致，这表明后者可作为一种有效框架，其中库仑势对连续态动力学起背景影响。如下文所示，在这一框架中提取的隧穿延迟估计与不同原子种类和激光参数下基于阿秒钟的既有实验和理论趋势一致。

综合来看，图 1 和 2所示结果表明，支配本文分析的关键量是电离时刻t_{ioni} 和复合时间t_{reco}。通过对高次谐波信号进行完整的基于TDSE的时频分析，以及利用经典三步模型（TSM）轨迹独立提取这些时刻，发现二者高度吻合。

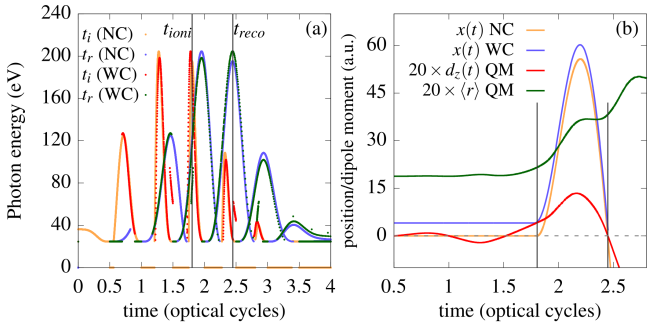

图2. (a) 比较了采用经典三步模型估算的电离与复合时间：求解经典运动方程时，分别不考虑库仑势（NC）和考虑库仑势（WC）。所有物理参数均与图1中所用参数相同。(b) 还比较了这两种情况下与最高光子能量发射相关的经典轨迹。在 (b) 中，我们还展示了沿激光偏振方向的偶极矩时间剖面放大图 d_z, 以及径向坐标的期望值，即 $\langle r\rangle$。我们通过含时薛定谔方程求解器计算了 d_z 和 $\langle r\rangle$ 。图 (a) 和 (b) 中还分别用两条竖线标出了 $t_{\mathrm{ioni}} \sim 1.8\,\tau_0$ 和 $t_{\mathrm{reco}} \sim 2.45\,\tau_0$ 。

经典三步模型（TSM）轨迹。对比含库仑势和不含库仑势的经典轨迹进一步表明，虽然库仑相互作用会略微改变返回能量，却不会影响电离或复合的时序。这种时序对库仑效应的稳健性表明，在提取有效的隧穿延迟诊断量时，经典框架的预测能力并未受到损害。因此，一旦根据高次谐波发射动力学确定t_{ioni} 和t_{reco}，便可在经典图像中一致地推断隧穿延迟；库仑势主要起背景影响，而非造成时序变化。

还应注意，在采用经典框架估算隧穿延迟时，使用了绝热近似，即假设电子穿过宽度为 ℓ_b的势垒期间，激光脉冲的瞬时电场保持不变，因此在此时间间隔内$V_{\mathrm{eff}}(x)$不会发生变化。通过改变激光脉冲的波长来检验这一近似的有效性，相关讨论见下文。

隧穿延迟诊断量的提取依赖于准静态（绝热）近似，即使用电离时刻的瞬时电场来评估有效势垒宽度。原则上，电子在势垒下运动期间，激光场确实会发生变化，但在当前参数范围内，这一近似是合理的。提取出的隧穿延迟约为几十至几百阿秒，远短于所考虑波长对应的驱动场光学周期。因此，电子穿越势垒期间电场的变化很小，有效势可近似视为静态。含时薛定谔方程计算结果与经典电离和复合时刻之间的吻合，以及在更长波长和更高强度下结果一致性的改善，进一步支持了这一假设；在这些条件下，非绝热效应预计会减弱。

经典电离和复合时刻之间的吻合，以及在更长波长和更高强度下结果一致性的改善，进一步支持了这一假设；在这些条件下，非绝热效应预计会减弱。

B. 峰值强度和波长对 τ_d 的影响

下面探讨峰值强度和波长对隧穿延迟的影响。图2中分别给出了波长为 800（1200）纳米、峰值强度为 1.5（$0.\times 10^{15}$ 5）^{2}W/cm的氦原子的时频分析结果，以及经典电离和复合时间；不同波长下隧穿延迟随峰值强度的变化如图2（a）和（b）所示。［（c）。由于本研究所有结果均采用相同的场包络（参见式（]2））， 可以理解的是，对应于最高、最亮谐波能量的电离（复合）时间出现在t（t）处，其中表示相应波长下一个周期的时长。如图1（a）和图2（*a*、*b*）所示，通过求解二维含时薛定谔方程得到的这些t和t与基于简单一维经典轨迹的计算结果高度吻合，即使激光波长和峰值强度不同，结果亦是如此。

隧穿延迟的计算方法已在第 IIIA 节讨论。采用相同的方法，计算了不同波长下隧穿延迟随激光峰值强度的变化，结果如图 3(c) 所示。可以

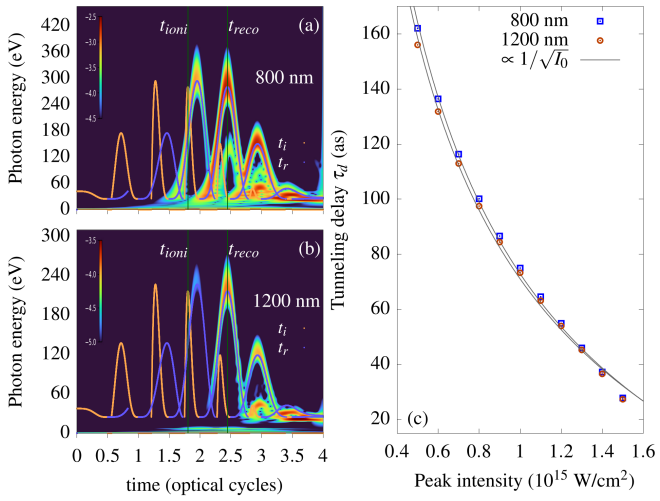

图 3. 展示了氦的高次谐波产生的时频分析和经典轨迹分析，波长（强度）分别为 (a) 中的 800纳米（1.5×10^{15} W/cm^2）和 (b) 中的 1200纳米（0.5×10^{15} W/cm^2）。时间轴以相应的光学周期表示，分别对应 (a) 中的 800纳米和 (b) 中的 1200纳米。比较了 800纳米和 1200纳米波长下，隧穿延迟随激光脉冲峰值强度的变化。激光脉冲持续时间取相应波长下的 4 个周期。(c) 中的实线表示两种波长情况下的 $\propto 1/\sqrt{I_0}$ 标度关系。

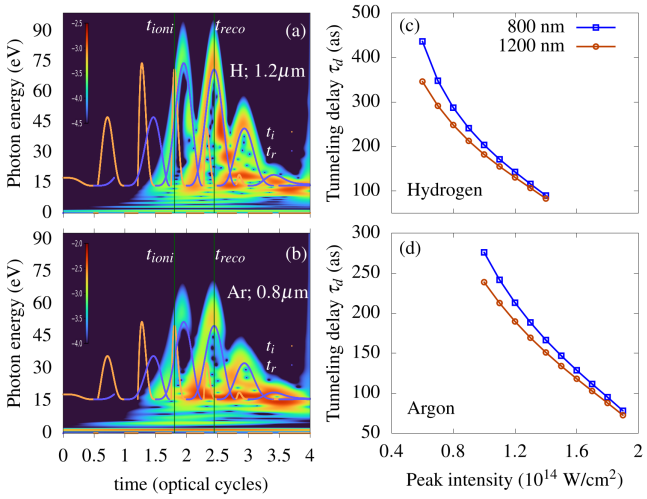

图 4. 氢原子在 1200纳米（1.5×10^{14} W/cm^2）激光下（a）以及氩在 800纳米（2×10^{14} W/cm^2）激光下（b）的高次谐波产生时频分析和经典轨迹分析。图中还比较了氢原子（c）和氩（d）在三种不同波长下，隧穿延迟随峰值强度的变化。（c）和（d）中的实线表示 $\propto 1/\sqrt{I_0}$ 标度关系。

从图 3（c）可以观察到，随着激光峰值强度增大，隧穿延迟减小。这可以这样理解：随着 I_0，增大，相应的 E_{ioni} 也会增大；根据 V_{eff}（x）可知， ℓ_b 也会相应减小。此外可以观察到，对于每一种波长，隧穿延迟均遵循 $\tau_d \propto 1/\sqrt{I_0}$ 标度关系，这与 Keldysh-Rutherford（KR）模型得到的结果一致。在该模型中，隧穿延迟，或称阿秒钟术语中的“偏移”角，被估算为与I_0 [17]成正比。尽管 KR 模型是针对氢原子提出的，但也可推广到采用球对称势的单活性电子近似情形（参见式（3）]），如氢原子。

此外还观察到，800纳米和1200纳米激光的隧穿延迟 τ_d 之差会随着峰值强度增加而逐渐减小：在最低强度下该差值为 ~ 6，而强度增加时则几乎降至零。这可以从分析中采用的绝热近似来理解。强度较低时，势垒宽度较大；波长较短时，势垒宽度会进一步增大，因为电子穿越势垒期间，同一周期内的场强会继续减弱，从而使势垒宽度进一步增加。对于较长波长，在电子穿越势垒期间，场强不会发生显著变化，因此势垒宽度几乎保持不变。然而，随着强度增加，势垒宽度会减小，出口速度会增大，因此不同波长造成的势垒宽度微小变化便不再显著。

C. 与其他原子种类的比较

图4展示了不同原子种类的高次谐波产生（HHG）的时频分析与经典轨迹对比，着重说明绝热隧穿动力学的作用及其对激光参数的依赖性。图4（a）和4（b）分别展示了氢原子在1200纳米激光驱动下、强度为 1.5×10^{14} 瓦/厘米^2 的Gabor时频图及相应的经典电子轨迹，以及氩原子在800纳米激光驱动下、强度为 2×10^{14} 瓦/厘米^2,时的对应结果。在这两种情况下，从时频分析推断的发射时刻都与经典轨迹高度吻合，表明在所选激光参数下，波包色散并不显著。这种一致性证明了采用经典三步模型（TSM）提取隧穿延迟的适用性，与其他实验和理论研究的报告结果相符。

不同原子种类之间的比较凸显了绝热近似对氢和氩的重要作用。由于它们的电离势较低，有限隧穿时间的影响比在氦中更加明显。图 4（c）和 4（d）展示了三种不同波长下隧穿延迟 τ_d 随激光峰值强度的变化，并分别给出了氢和氩的结果。系统性的 $\propto 1/\sqrt{I_0}$强度依赖性_在两种情况下均有所体现，这表明提取出的延迟对波长变化具有稳健性，同时保持了预期的标度行为。

值得强调的是，现有针对氢的阿秒钟测量大多处于越垒电离区间，而这一情况无法在当前框架内处理。一旦势垒完全消失，隧穿延迟的定义便失去意义，因此本分析有意将范围限定在隧穿仍是主要电离机制的激光强度下。在这一区间内，图 4表明，经典描述得到基于TDSE的时频分析的佐证，为讨论不同原子种类中的隧穿延迟提供了一种一致且物理图像清晰的基础。

D. 峰值电场振幅的影响

图5 考察了隧穿延迟对电离时刻瞬时电场条件的依赖关系，从而将峰值电场振幅的作用与纯粹由强度决定的趋势区分开来。图5(a) 展示了氢、氦和氩的隧穿延迟变化情况，τ_d 其随电离时的电场强度变化，$|E_{\text{ioni}}|$。对于所有原子，波长固定为1200纳米，而峰值强度在 0.5×10^{14} 至1.5×10^{14} W/cm^{2}范围内变化。随着峰值强度增加，电子在电离时刻经历的瞬时电场也随之增强，因而隧穿延迟系统性地缩短。这种单调趋势反映出，在更强电场下电离过程的绝热性增强，电子穿越势垒的速度更快。

如图5(a)所示，隧穿延迟 τ_d 随氢、氦和氩的瞬时场强$|E_{\text{ioni}}|$增加而单调减小。这一现象反映出，较强的局部场能更有效地压低库仑势垒，从而同时减小其宽度和电子穿越势垒所需的时间。值得注意的是，采用 $|E_{\text{ioni}}|$考虑到了电离的亚周期特性，并消除了仅依据峰值强度比较不同激光脉冲时产生的歧义。因此，观察到的趋势直接表明，隧穿延迟由电离瞬间的瞬时场构型决定。

图 5(a) 中的实线表示与以下量成正比的拟合曲线：$1/|E_{\text{ioni}}|$ ，适用于所有三种原子种类。这种标度关系符合预期的强场行为，因为激光强度与 $I_0\propto E_0^2$，成正比，因此有 $1/\sqrt{I_0}\propto 1/E_0$。提取出的隧穿延迟诊断量遵循 $1/|E_{\text{ioni}}|$ 依赖关系，这一观察结果证实， τ_d 的主要场依赖性由电离时刻的瞬时电场决定，而非仅由周期平均峰值强度决定。尽管隧穿半经典模型预期会出现这种标度关系，但它在此处通过时变薛定谔方程引导的高次谐波产生分析显现，为结果提供了重要的内部一致性检验，也为随后从势垒几何结构角度进行解释提供了依据。

图 5(b) 进一步强化了这一解释：它将相同数据重新表示为有效势垒宽度 ℓ_b，该宽度由瞬时场强和靶原子的电离势决定。当绘制为.....的函数时
在 ℓ_b的情况下，三种原子种类的隧穿延迟数据都收敛到一条近乎普适的曲线上。这种收敛表明，势垒宽度是控制隧穿动力学的主导参数，而原子种类特有的影响主要通过改变势垒几何形状而产生。具体而言，对于给定场强，电离势较低的靶原子（如氢和氩）对应的势垒更窄，因此其隧穿延迟比氦更短。

图 5 的重要意义在于，它确立了一种基于几何结构的统一解释，用以理解超越物种特异性细节和单纯激光强度标度关系的隧穿延迟。

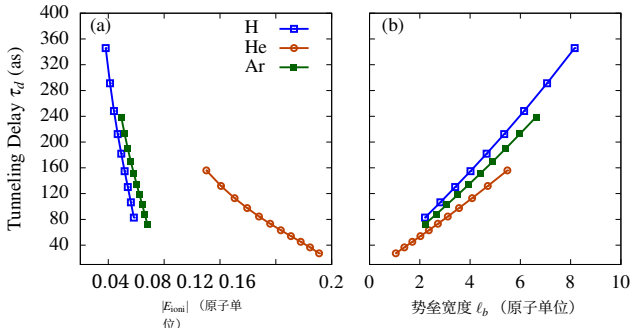

图5. 比较氢、氦和氩的电离时电场强度$|E_{\text{ioni}}|$（a）以及势垒宽度（b）与隧穿延迟的变化关系。所有情况下的波长均为1200纳米，峰值强度在 $0.5\times10^{14}-1.5\times10^{14}$ W/cm^2,范围内变化，并相应地估算 $|E_{\text{ioni}}|$，进而估算 ℓ_b。

通过明确建立 τ_d 与瞬时势垒宽度之间的联系，这项分析进一步印证了本研究采用的隧穿绝热图像，并提供了一个物理意义清晰的框架，以便在平等基础上比较不同原子系统。在所考虑的参数范围内，图5 因此指出，电离时刻的局部势垒几何结构是决定有效隧穿延迟的主要因素。

IV. 结果总结

图6汇总了本研究的主要结果，汇编了氢、氦和氩的隧穿延迟 τ_d，并将其表示为 Keldysh 参数 γ的函数。由于 γ 显式取决于激光波长和峰值强度，因此这种表示方式提供了一个统一框架，可在同等条件下比较不同原子种类和激光参数。对于这三种原子，隧穿延迟均呈现出对 γ的系统性依赖：随着系统进一步进入绝热隧穿区间，隧穿延迟逐渐减小（$\gamma \ll 1$）。数据的这种塌缩凸显了绝热性参数在控制隧穿动力学方面的核心作用，而这一作用在很大程度上不受具体原子种类的影响。

对于氦，图中以较浅的颜色显示了对应于 3200 纳米长波长的附加数据点，数值为 γ <0.2。在如此长的波长下，电子波包会经历显著的空间展宽，导致在标准多周期驱动条件下高次谐波产生光谱清晰度下降。因此，获得清晰的时频分

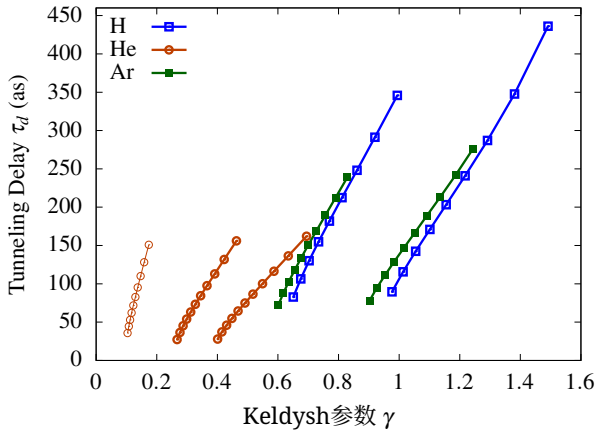

图6. 汇总了氢、氦和氩的隧穿延迟，并以 Keldysh 参数 γ 表示；该参数取决于激光的峰值强度和波长。对于氦原子，我们还以浅色展示了 τ_d ($\gamma < 0.2$) 的变化，表示波长为 3200 纳米时的结果，其他激光参数均保持不变。实际上，在如此长的波长下，波函数展宽相当显著，高次谐波谱也不够干净。不过，我们使用了 3200 纳米的亚周期脉冲，预测的隧穿延迟（方框标出的数据点）与这条曲线一致。

析变得十分困难。为克服这一限制，我们采用了亚周期 3200 纳米脉冲，并以浅色圆圈标出相应的隧穿延迟。尽管长波长驱动固有地会造成较大的波函数展宽，提取出的隧穿延迟仍与短波长数据所确立的总体 τ_d–γ 趋势一致。

总体而言，图6 汇总展示了不同原子、波长和强度下的隧穿延迟，表明Keldysh参数是隧穿动力学的有效通用描述量。最后的比较进一步印证了本文分析的内在一致性，并支持这样一种解释：在隧穿区间内，隧穿延迟是一种绝热的、由势垒控制的过程。

在表II中，我们将基于当前高次谐波产生诊断框架得到的有效隧穿延迟估计值，与文献中通过阿秒钟测量推断出的、具有代表性的氢、氦和氩延迟值进行了比较。阿秒钟数值对应于依赖模型的延迟，这些延迟是通过角偏移并结合库仑修正或量子轨迹分析提取的。该比较旨在强调不同方法在量级、标度行为和Keldysh参数依赖性方面的一致性，而非不同方法之间的一一对应的数值吻合。

V. 总结性 remarks

总之，我们证明了，通过结合含时薛定谔方程与经典轨迹框架来分析高次谐波产生，可以深入了解强场电离中的隧穿延迟。通过将高次谐波产生的时频特征与经典电离时间和复合时间相关联，我们提取出了与穿越激光抑制库仑势垒相关的有效隧穿延迟。

提取出的延迟呈现出系统且符合物理直觉的变化趋势。具体而言，隧穿延迟随峰值强度和瞬时场强的增加而减小，大致按 $1/\sqrt{I_0}$，缩放；以 Keldysh 参数表示时，则呈现近乎普适的依赖关系。这些观察结果与既有理论预期及基于阿秒钟的研究结果一致，增强了我们对该方法内在一致性的信心。此外，不同原子种类的数据趋于重合，凸显了势垒几何结构和绝热性在决定隧穿动力学中的主导作用。

需要强调的是，高次谐波产生并不构成对隧穿时间的直接测量。本文的方法基于对势垒下电子运动的经典解释，并由含时薛定谔方程模拟提供指导和验证。因此，推断出的隧穿延迟应被视为一种有效的诊断量，而非定义唯一的可观测量。尽管如此，该结果与已知标度律及阿秒钟趋势高度吻合，这表明高次谐波产生为研究隧穿动力学提供了宝贵且独立的视角。

表 II. 本文基于高次谐波生成的诊断框架所获得的有效隧穿延迟估计，与文献中阿秒钟测量推断的代表性延迟值的比较。阿秒钟测量值取决于模型，通常根据角偏移并借助库仑修正模型或量子轨迹模型提取。本比较旨在突出数值大小和标度关系上的一致性，而非追求数值上的一一吻合。

靶材	参考	λ (纳米)	$I_0(10^{14}$ 瓦/厘米$^2)$	γ	延迟（阿秒）
H	Sainadh等人 [4]	800 – 1300	1.0 – 3.0	$\sim 0.5 – 1.0$	$\lesssim 50 – 100$
H	本研究	800 – 1200	0.5 – 1.5	$\sim 0.4 – 0.9$	40 – 90
He	Pfeiffer等 [8]	800	1.5 – 3.0	$\sim 0.7 – 1.2$	60 – 120
He	Camus等 [10]	800 – 1300	1.0 – 2.0	$\sim 0.5 – 1.0$	50 – 110
He	本研究	800 – 1200	0.5 – 1.5	$\sim 0.3 – 0.8$	60 – 130
Ar	Pfeiffer等 [8]	800	1.0 – 2.5	$\sim 0.6 – 1.1$	80 – 150
Ar	Ni等 [11]	800 – 1300	0.8 – 2.0	$\sim 0.4 – 1.0$	70 – 140
Ar	本研究	800 – 1200	0.5 – 2.0	$\sim 0.3 – 0.9$	70 – 160

从更广泛的角度来看，本文结果将高次谐波产生定位为当前强场物理中理解隧穿时间这一持续探索的补充工具。高次谐波产生分析提供了一条替代途径，其实验和理论基础均已充分确立；因此，它可作为阿秒钟测量的有效交叉验证手段，并有助于厘清绝热性、库仑相互作用和激光参数各自的作用。未来将研究拓展至更复杂的靶标和非绝热区域，或可进一步阐明这一补充诊断方法的适用范围与局限性。

致谢

作者感谢科学技术部（DST）通过 FIST计划（项目编号：SR/FST/PS- 1/2017/30）提供计算资源。此外，作者感谢 BITS-Pilani 皮拉尼校区提供高性能计算设施。

[1] P. B. Corkum, 《物理评论快报》71, 1994（1993）。[2] M. Lewenstein、P. Balcou、M. Y. Ivanov、A. L'Huillier 和 P. B. Corkum, 《物理评论A》49, 2117（1994）。[3] F. Krausz 和 M. Ivanov, 《现代物理评论》81, 163（2009）。[4] U. S. Sainadh、H. Xu、X. Wang、A. Atia-Tul-Noor、W. C. Wal- lace、N. Douguet、A. Bray、I. Ivanov、K. Bartschat、A. Kheifets、R. T. Sang 和 I. V. Litvinyuk, 《自然》568, 75（2019）。[5] U. S. Sainadh、H. Xu、X. Wang、A. Atia-Tul-Noor、W. C. Wal- lace、N. Douguet、A. Bray、I. Ivanov、K. Bartschat、A. Kheifets、R. T. Sang 和 I. V. Litvinyuk, 《自然》568, 75（2019）。[6] L. Torlina、F. Morales、J. Kaushal、I. Ivanov、A. Kheifets、A. Zielinski、A. Scrinzi、H. G. Muller、S. Sukiasyan、M. Ivanov 和 O. Smirnova, 《 Nature Physics 》 11, 503 （ 2015 ）。[7] A. S. Landsman、M. Weger、J. Maurer、R. Boge、A. Ludwig、S. Heuser、C. Cirelli、L. Gallmann 和 U. Keller, 《Optica》1, 343（2014）。[8] A. N. Pfeiffer、C. Cirelli、M. Smolarski、D. Dimitrovski、M. Abu-samha、L. B. Madsen 和 U. Keller, 《 Nature Physics》8, 76（2012）。[9] A. S. L. C. Hofmann 和 U. Keller, 《Journal of Modern Optics》66, 1052（2019）。[10] N. Camus 等, 《物理评论快报》125, 123201（2020）。[11] H. Ni、U. Saalmann 和 J. M. Rost, 《物理评论快报》125, 073202 2020（）。[12] H. Ni、U. Saalmann 和 J. M. Rost, 《Nat. Commun.》12, 3506（2021）。[13] H. Ni、U. Saalmann 和 J.-M. Rost, 《物理评论快报》117, 023002 2016（）。[14] J. M. Rost 和 U. Saalmann, 《J. Phys. B》52, 163001（2019）。[15] J. Kaushal、F. Morales 和 O. Smirnova, 《物理评论A》92, 063405（2015）。[16] E. Yakaboylu、M. Klaiber 和 K. Z. Hatsagortsyan, 《物理评论A》90, 012116（2014）。[17] A. W. Bray、S. Eckart 和 A. S. Kheifets, 《物理评论快报》121, 123201（2018）。[18] E. Pisanty 和 M. Ivanov, 《物理评论A》102, 043108（2020）。[19] S. Eckart、A. W. Bray 和 A. S. Kheifets, 《物理评论A》103, 013113（2021）。[20] J. Liu 等, 《物理评论A》104, 023109（2021）。[21] Q. Zhang 等, 《物理评论A》106, 023117（2022）。[22] O. Smirnova、Y. Mairesse、S. Patchkovskii、N. Dudovich、D. M. Villeneuve、P. B. Corkum 和 M. Y. Ivanov, 《自然》460, 972（2009）。[23] C. C. Chiril˘a 和 M. Lein, 《物理评论A》82, 023410（2010）。[24] X.-M. Tong 和 S.-I. Chu, 《化学物理》217, 119（1997）。[25] X. M. Tong 和 C. D. Lin, 《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》38, 2593（2005）。[26] A. R. Holkundkar、R. Rajpoot 和 J. N. Bandyopadhyay, 《物理快报A》461, 128645（2023）。[27] R. Rajpoot 和 A. R. Holkundkar, 《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》56, 105402（2023）。[28] B. H. Bransden 和 C. J. Joachain, 《原子与分子物理学》, 第二版（普伦蒂斯·霍尔，哈洛，2003）。[29] A. Kramida、Yu. Ralchenko、J. Reader 和 NIST ASD 团队，美国国家标准与技术研究院原子光谱数据库，版本 5.11，在线版（2023）。[30] G. van de Sand 和 J. M. Rost, 《物理评论快报》83, 524（1999）。[31] L. P. A. Arts 和 E. L. van den Broek, 《自然·计算科学》2, 47（2022）。