

# 含时量子蒙特卡罗方法研究两电子原子在强激光作用下电子的动力学行为\*

郭福明<sup>1)</sup> 宋阳<sup>1)</sup> 陈基根<sup>2)</sup> 曾思良<sup>3)</sup> 杨玉军<sup>1)†</sup>

1) (吉林大学原子与分子物理研究所, 长春 130012)

2) (台州学院物理与电子工程学院物理与材料工程系, 台州 318000)

3) (北京应用物理与计算数学研究所计算物理重点实验室, 北京 100088)

(2011年11月30日收到; 2012年2月16日收到修改稿)

通过改进含时量子蒙特卡罗方法研究了一维模型双电子原子在强激光作用下的电子动力学过程. 与准确的数值积分求解含时薛定谔方程相比, 计算得到的波包对应的量子系综中粒子的动力学变化和含时波包演化结果定性一致, 且大幅度地提高了计算效率. 根据计算得到的经典粒子系综的动力学演化行为, 分析了原子在强激光作用下的激发、电离、重散射等非线性过程.

**关键词:** 含时量子蒙特卡罗, 强激光, 动力学过程

**PACS:** 32.80.Rm, 42.50.Hz

## 1 引言

随着飞秒激光技术的进步, 超短强激光与原子、分子的相互作用出现了许多有趣的非线性现象, 如阈上电离 (above threshold ionization, 简称 ATI)<sup>[1]</sup>、高次谐波产生 (high-order harmonic generation, 简称 HHG)<sup>[2,3]</sup> 和非序列电离等, 对这些现象的产生机理以及应用已成为人们关注的热门课题. 为了深刻揭示这些物理现象的本质和规律, 需要对原子、分子中电子的动力学行为进行清晰准确的模拟. 对于多电子体系, 为了准确研究其动力学过程, 需要准确求解相应的含时薛定谔方程 (time-dependent Schrödinger equation, 简称 TDSE), 由于计算条件的限制, 目前对两电子原子在 800 nm 激光辐照下的精确模拟仍存在很大困难. 为此, 人们发展了许多近似模拟方案, 如单电子近似方法 (single active electron, 简称 SAE)<sup>[4-7]</sup>, 含时哈特里-福克方案 (time-dependent Hartree-Fock,

简称 TDHF)<sup>[8]</sup>、含时密度泛函方法 (time-dependent density functional theory, 简称 TDDFT)<sup>[9,10]</sup> 等, 这些理论对电子的关联效应考虑得很少或是不够准确, 因此得到的结果和准确的 TDSE 计算有较大的差别. 除此之外, 人们发展了经典和半经典的理论<sup>[11,12]</sup>, 对于研究电子非序列电离问题取得了很大成功, 但是由于其框架自身无法涵盖准确的量子效应, 在应用中受到了一定的限制.

最近, Christov<sup>[13-17]</sup> 提出含时量子蒙特卡罗方法 (time-dependent quantum Monte Carlo, 简称 TDQMC) 研究强激光和多电子原子相互作用过程. 该方案将电子作为粒子 (walker) 的统计系综, 每个粒子的运动由与之对应的引导波函数引导, 并在计算中能够部分地包含电子间的交换关联效应. 在此基础上, 我们改进了其对原子体系初态的计算, 直接从准确的 TDSE 初态出发, 通过采样选择准确的 walker 信息, 结合相应的引导波方法, 得到了更为准确的粒子系综分布和体系能量. 在含时计算中, 本文使用较少的 walker, 得到了和 TDSE 定性甚至

\* 国家自然科学基金 (批准号: 10904006, 11034003)、中央高校基本科研业务费 (批准号: 200903368, 200903372)、浙江省自然科学基金 (批准号: Y6110578) 和中国工程物理研究院科学技术发展基金 (批准号: 2011B0102026) 资助的课题.

† E-mail: yangyj@jlu.edu.cn

半定量一致的结果,并在此基础上,从经典粒子动力学的角度分析了电子在强激光辐照下的激发、电离以及重散射过程.

## 2 理论方法

由于原子在线偏振激光脉冲作用下的动力学行为主要集中在激光偏振方向上,因此一维模拟结果与真实原子动力学行为定性上基本一致,且可以极大地降低对计算的要求.因此本文采用一维双电子原子模型.如无特殊说明本文一律采用原子单位.

线偏振激光脉冲作用的一维模型双电子原子的含时薛定谔方程为

$$\begin{aligned} & i \frac{\partial}{\partial t} \psi(x_1, x_2, t) \\ &= \left[ - \sum_{i=1}^2 \frac{\partial^2}{2\partial x_i^2} + \sum_{i=1}^2 V_a(x_i) + V_e(x_{12}) \right. \\ & \quad \left. + \sum_{i=1}^2 V_L(x_i, t) \right] \psi(x_1, x_2, t), \end{aligned} \quad (1)$$

其中(1)式右侧第一项为两电子动能;第二项为两电子与原子核的相互作用势,采用软核库仑势  $V_a(x_i) = -2/\sqrt{x_i^2 + a}$  以消除坐标原点的奇点问题;第三项为电子间的相互作用势,  $V_e(x_{12}) = 1/\sqrt{x_{12}^2 + b}$ ;最后一项为电子与脉冲电场的相互作用势,在电偶极近似下  $V_L(x_i, t) = x_i \cdot E(t)$ ,  $E(t)$  为激光电场.

假设每个电子均由  $N$  个粒子组成的粒子系综描绘,系综中所有粒子的统计行为即为电子的动力学行为,则有两电子的系综粒子满足如下方程:

$$\begin{aligned} & i \frac{\partial}{\partial t} \phi_i^k(x_i, t) \\ &= \left[ - \frac{\partial^2}{2\partial x_i^2} - \frac{2}{\sqrt{x_i^2 + a}} \right. \\ & \quad \left. + \frac{1}{\sqrt{(x_i - x_j)^2 + b}} + x_i \cdot E(t) \right] \phi_i^k(x_i, t), \end{aligned} \quad (2)$$

其中  $i, j = 1, 2$  且  $i \neq j$ ,  $k = 1, 2, 3, \dots, N$ ;  $\phi_i^k(x_i)$  为第  $i$  个电子的第  $k$  个粒子所满足的引导波函数,该粒子的运动行为由与其对应的引导波函数决定,速度、位置满足如下关系:

$$\begin{aligned} v_i^k(t) &= \text{Im} \left[ \frac{1}{\psi(x_i, x_j, t)} \right. \\ & \quad \left. \times \frac{\partial}{\partial x_i} \psi(x_i, x_j, t) \Big|_{x_i=x_i^k(t), x_j=x_j^k(t)} \right], \end{aligned} \quad (3)$$

$$x_i^k(t) = x_i^k(t=0) + \int_0^t v_i^k(t') dt', \quad (4)$$

其中,  $\psi(x_i, x_j, t) = \mathbf{A} \prod_{i=1}^2 \phi_i^k(x_i, t)$ ,  $\mathbf{A}$  为交换对称性算符.

不同于文献 [13—17] 的方法,我们首先通过数值求解定态薛定谔方程,获得一维模型双电子原子的基态波函数,再由舍选法通过基态电子几率密度分布函数得到描述双电子密度分布的系综粒子的位置分布,这样使得系综粒子的分布更接近于原子中双电子的真实密度分布.之后,随机给出每一个系综粒子对应的引导波函数  $\phi_i^k(x_i)$  ( $i = 1, 2$ ;  $k = 1, 2, \dots, N$ ).以  $x_i^k$  和  $\phi_i^k(x_i)$  作为初始条件,采用劈裂算符结合快速傅里叶变换方法进行复时间(令  $t = -it'$ ,  $t'$  为实数)演化,最终得到对应本征能量最低的新的  $N$  组  $x_i^k$  和  $\phi_i^k(x_i)$ ,即激光脉冲作用下含时演化的初态.

## 3 结果与分析

在得到准确的体系初始分布后,应用 TDQMC 方法计算了一维模型两电子原子在强激光作用下的高次谐波发射.选用的原子势参数为  $a = 1$ ,  $b = 1.2$ , 激光脉冲电场如图 1 中的插图所示,计算得到的谐波发射谱如图 1 中的点线所示.为了检验计算结果以及计算效率,对于相同的激光电场和原子参数做了 TDSE 和 TDHF 计算,如图 1 中实线和划线所示.从图 1 可以看到,TDQMC 的计算结果与 TDSE 的结果定性上基本一致,并且在定量上优于 TDHF 结果.在 TDQMC 方法中,我们取 50 对粒子构成的系综来描绘原子中的双电子,时间和空间计算范围和格点数与 TDSE 和 TDHF 相同,完成一次模拟计算所需时间约为 TDHF 的 1/4,约为 TDSE 的 1/20.在更多电子的情况下,TDQMC 的计算效率优势将更加显著.

TDQMC 方案不但在保证一定准确度的基础上计算得更有效率,而且可以从 walker 运动的角度研究强激光原子相互作用过程中的动力学过程.为了便于分析强场原子分子动力学过程,更加有效地判断用 TDQMC 方法在研究强场原子、分子动力学行为的可行性和方便性,我们采用了如图 2 所示的线偏振单周期激光脉冲,这种驱动场的优点在于原子在此脉冲作用下的运动行为简单明确,我们可以对物理过程做出较为明确的定性或半定量判

断. 其中, 脉冲中心波长为 400 nm, 峰值电场强度为 0.2 a.u.

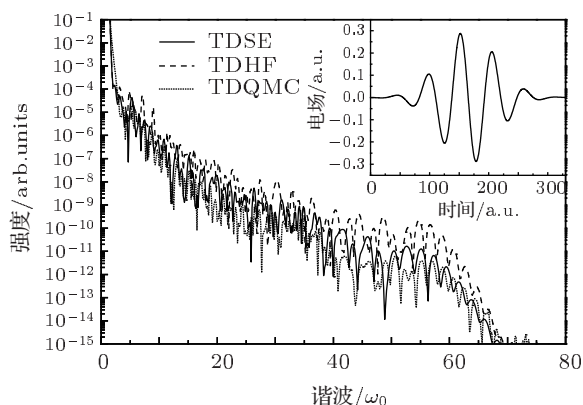


图1 模型原子在强短激光脉冲作用下的高次谐波谱, 内插图为激光脉冲电场

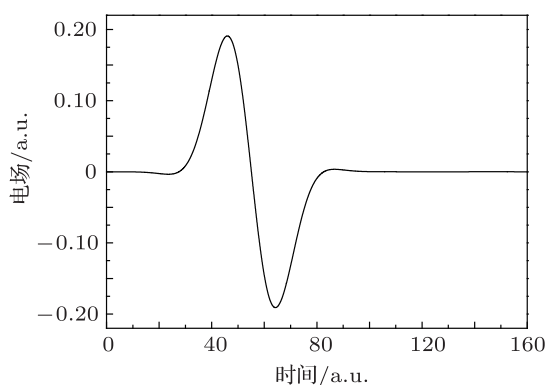


图2 线偏振激光脉冲电场

图3给出了在该脉冲驱动下的描述电子的粒子系综中一部分粒子的空间位置随时间的演化. 为了澄清 TDQMC 方案和经典计算方案的区别, 图4给出了通过求解经典牛顿方程获得的不同时刻电离的电子只在激光电场驱动下的运动图像, 这里电子在电离后的初始速度设置为零, 运动过程中不考虑原子核对电子的库仑作用只是受激光电场的作用. 作为比较的标准, 图5给出了采用数值积分求解 TDSE 方案得到的在相同激光辐照下的电子波包的含时演化图像. 比较图3和图4可以清晰地看到, 含时量子蒙特卡罗方法中的系综粒子在激光脉冲作用下的运动行为具有经典粒子运动特征, 可以反映出电子的经典运动行为, 在远离原子核的区域, 核对电子的吸引远小于激光电场的作用, 因此 TDQMC 和经典计算的结果符合. 同时, 由图3也看到, 同样束缚在原子核附近的系综粒子在激光电场作用下, 一部分粒子远离原子核, 另一部

分始终束缚在核区附近, 整体与图5所示的电子量子波包行为定性一致. 通过比较证明 TDQMC 是一种量子方法和经典方法的结合, 既能够弥补数值积分 TDSE 方法需要计算资源多且难以提取简明信息阐明物理机理的困难, 又能给出经典方法无法给出的量子相干信息. 因此可以利用含时量子蒙特卡罗方法完备地模拟多电子原子、分子在强激光场作用下的动力学行为, 同时给出便于澄清物理本质的图像.

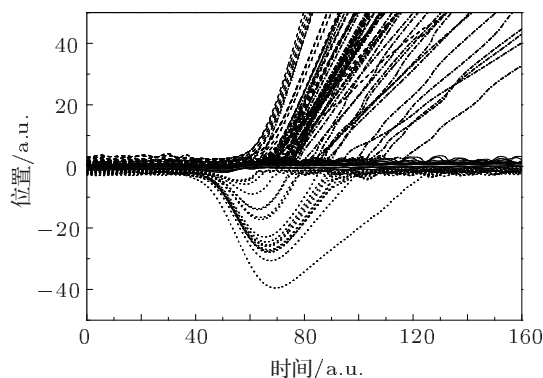


图3 TDQMC 模拟粒子系综中部分粒子空间坐标随时间演化

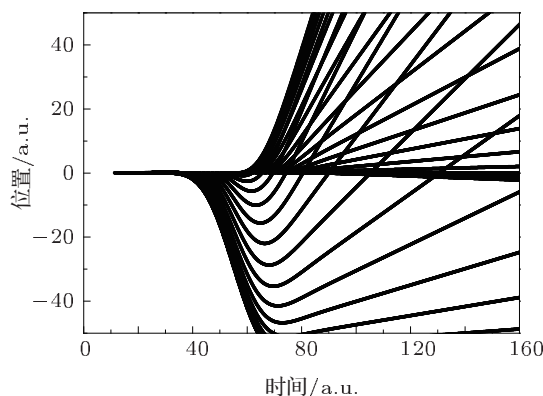


图4 由经典牛顿方程获得的电子在激光电场驱动下的运动图线

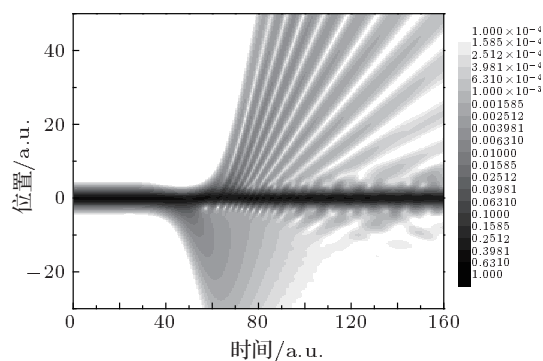


图5 数值求解 TDSE 获得的电子波包演化图像

利用 TDQMC 可以得到每一个粒子的运动行为, 通过对这些粒子的运动行为分析, 可以更深入地认识各种物理过程产生的机理.

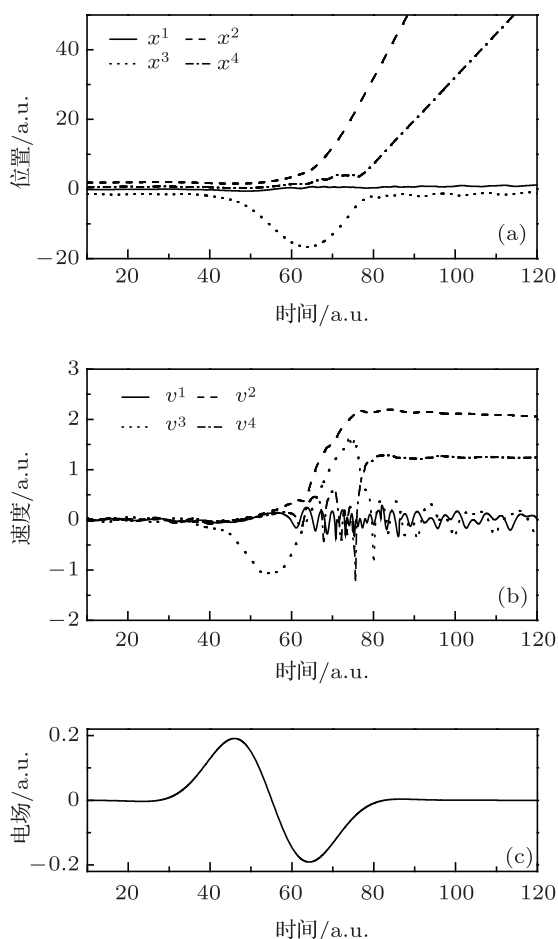


图6 TDQMC 模拟中四类典型粒子的空间位置和速度随时间的演化 (a) 粒子位置的演化图; (b) 对应的粒子速度演化图; (c) 对应的激光电场

可以根据粒子的运动行为, 把图 3 中粒子的运动轨迹大体分为四类, 在每类中选取一条在图 6(a) 给出. 这四类粒子的行为分别是: 1) 在激光脉冲持续的时间内始终处在原子核区, 基本不随着驱动电场运动 (即使振动, 幅度也较小) 的粒子行为, 如图 6(a) 中实线  $x^1$  所示, 此类粒子反映的是未被电离的电子的行为 (包括激发); 2) 随着激光电场从原子核区开始逐渐加速运动并沿  $x$  轴正向远离核区, 如图 6(a) 中划线  $x^2$  所示, 这对应于在激光脉冲后半周期 (电场为负向) 电场作用下电离并逐渐获得

正向动量远离原子核的电子运动行为; 3) 是逐渐向  $x$  轴负向加速远离核区, 之后再反向返回核区并再次被束缚在其中的粒子, 如图 6(a) 中点线  $x^3$  所示; 4) 在核区的束缚的粒子突然获得较大速度沿  $x$  轴正向远离核区, 如图 6(a) 中点划线  $x^4$  所示.  $x^3, x^4$  共同对应于原子在激光脉冲前半周期电场驱动下电离并远离核区的电子在后半周期电场反向后与母离子的重碰, 之后一部分穿过原子核区的电子运动行为.

为了更清楚地了解这些过程, 对应于上述四类粒子, 我们给出了它们的速度随时间演化的图像, 如图 6(b) 所示.  $x^1, x^2, x^3$  和  $x^4$  粒子对应的速度图线分别为  $v^1, v^2, v^3$  和  $v^4$ . 从图 6 可以看到, 第一类始终束缚在核区的粒子的速度并不都是一成不变的, 在激光不是很强时, 粒子的速度在零平均值处小幅度振荡, 脉冲峰值过后, 粒子速度振荡幅度加大, 粒子的这种行为表明基态电子在脉冲作用下的激发. 第二类粒子在激光脉冲作用下, 粒子的速度逐渐增加, 当脉冲结束后保持一定速度. 第三类粒子首先逐渐获得负向速度, 之后减速, 再反向加速, 当其回到核区时突然失去速度被核俘获. 与此同时存在一部分粒子 (第四类) 在核区突然获得对应的速度脱离核的束缚.

## 4 结论

综上所述, 本文利用改进的含时量子蒙特卡罗方法, 通过分析粒子的运动行为研究了原子在强激光作用下的电子的各种动力学过程. 该方案用一个具有量子行为的经典粒子运动图像描述了原子在强激光作用下的动力学行为, 进而能够更加清晰透彻地认识强场动力学过程. 对于两电子强场动力学研究, 该方案可以得到与 TDSE 定性甚至半定量一致的结果, 而计算效率又远高于 TDSE, 因此可以将该方案推广到多电子强场动力学和相对论强场过程的研究.

感谢吉林大学超级计算中心给予的支持.

- [1] Agostini P, Fabre F, Mainfray G, Petite G, Rahman N K 1979 *Phys. Rev. Lett.* **42** 1127
- [2] Shore B W, Knight P L 1987 *J. Phys.* B **20** 413
- [3] Connerade I P, Keitel C H 1996 *Phys. Rev. A* **53** 2748
- [4] Kulander K 1987 *Phys. Rev. A* **35** 445
- [5] Chen J G, Yang Y J, Yu X P, He L J, Xu Y Y 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 053206 (in Chinese) [陈基根, 杨玉军, 俞旭萍, 何龙君, 徐圆圆 2011 物理学报 **60** 053206]
- [6] Chen J G, Yang Y J, Chen Y 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 033202 (in Chinese) [陈基根, 杨玉军, 陈漾 2011 物理学报 **60** 033202]
- [7] Zeng S L, Zou S Y, Yan J 2009 *Chin. Phys. Lett.* **26** 053202
- [8] Zanghellini J, Kitzler M, Fabian C, Brabec T, Scrinzi A 2003 *Laser Phys.* **13** 1064
- [9] Runge E, Gross E K U 1984 *Phys. Rev. Lett.* **52** 997
- [10] Marques M A L, Gross E K U 2004 *Rev. Phys. Chem.* **55** 427
- [11] Ho P J, Panfili R, Haan S L, Eberly J H 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 093002
- [12] Hao W L, Li W D, Liu J, Chen J 2011 *Phys. Rev. A* **83** 053422
- [13] Christov I P 2006 *Opt. Express* **14** 6906
- [14] Christov I P 2007 *New J. Phys.* **9** 70
- [15] Christov I P 2007 *J. Chem. Phys.* **127** 134110
- [16] Christov I P 2008 *J. Chem. Phys.* **129** 214107
- [17] Christov I P 2006 *Appl. Phys. B* **85** 503

# The dynamic process of two-electron atom irradiated by intense laser pulse using time dependent quantum Monte Carlo method\*

Guo Fu-Ming<sup>1)</sup> Song Yang<sup>1)</sup> Chen Ji-Gen<sup>2)</sup> Zeng Si-Liang<sup>3)</sup> Yang Yu-Jun<sup>1)†</sup>

<sup>1)</sup> (Institute of Atomic and Molecular Physics, Jilin University, Changchun 130012, China)

<sup>2)</sup> (Department of Physics and Materials Engineering, College of Physics and Electronic Engineering, Taizhou University, Taizhou 318000, China)

<sup>3)</sup> (Science and Technology Computation Physics Laboratory, Institute of Applied Physics and Computational Mathematics, Beijing 100088, China)

(Received 30 November 2011; revised manuscript received 16 February 2012)

## Abstract

We investigate the electron dynamic process of a one-dimensional two-electron atom irradiated by strong laser pulse using the improved time-dependent quantum Monte Carlo (TDQMC) scheme. By comparison with the scheme for solving the time-dependent Schrödinger equation by using the accurate numerical integration, the dynamic variation of particle in a quantum ensemble, corresponding to the calculated wave-packet, is consistent with the evolution of time-dependent wavepacket. The computation efficiency of the TDQMC is more largely enhanced than that of the time-dependent integration method. According to the dynamic evolution behaviors of the calculated classical particle ensemble, we analyze the excitation, ionization, recombination of electron and other non-linear processes in a strong laser field.

**Keywords:** time-dependent quantum Monte Carlo, strong laser pulse, dynamic process

**PACS:** 32.80.Rm, 42.50.Hz

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10904006, 11034003), the Fundamental Research Fund for the Central Universities, China (Grant Nos. 200903368, 200903372), the Natural Science Foundation of Zhejiang Province, China (Grant No. Y6110578), and the Science and Technology Fund of China Academy of Engineering Physics (Grant No. 2011B0102026).

† E-mail: yangyj@jlu.edu.cn