arXiv:2602.05763v1 [physics.atom-ph] 5 Feb 2026

# 利用非玻恩-奥本海默量子动力学和深度学习从光电子动量分布中重构分子的核运动

N I Shvetsov-Shilovski[1,2] 和 M Lein[2]

[1]Rudolf Bembenneck Gesamtschule Burgdorf，Vor dem Celler Tor 50，31303 Burgdorf，德国[2]莱布尼茨汉诺威大学理论物理研究所，¨ur，30167 汉诺威，德国

电子邮箱：n79@narod.ru

摘要。我们使用一种以强场电离产生的光电子动量分布为输入的神经网络，重构解离中的一维 $H_2^+$ 分子的含时键长。光电子动量分布由非玻恩-奥本海默含时薛定谔方程的直接数值求解计算得到。我们模拟了两种方案：第一种是将分子制备在第一激发电子态，第二种是从基态出发的泵浦-探测方案。结果表明，在这两种方案中，基于冻结原子核条件下计算的动量分布训练的神经网络，都能以 $0.2-0.4$ 原子单位的绝对误差重构含时键长。我们发现，将神经网络应用于泵浦-探测方案中获得的光电子动量分布，可用于重构平衡核间距和基态布居。这为利用深度学习从电子动量分布中提取分子的电子性质开辟了新视角。

关键词：随时间变化的键长、深度学习、强场电离、光电子动量分布

投稿至：J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.

## 1. 引言

过去几年，人工智能及其子领域机器学习（机器学习）取得了显著进展。目前，机器学习已广泛应用于物理学的各个分支：从天体物理学到软物质、医学和生物物理学，综述可参见文献 [1,2] 。这是因为机器学习能够处理海量数据，并据此得出结论。此外，机器学习方法还可用于寻找依赖多个变量、隐藏在输入数据中的复杂映射关系。

机器学习也已开始应用于强场物理，该领域研究强激光辐射与原子和分子的相互作用。量子系统与强激光脉冲的相互作用会产生多种高度非线性现象，包括阈上电离（ATI）、高次谐波产生（HHG）以及顺序双电离和非顺序双电离，综述见例如文献 [3–8] 。机器学习在强场物理中的应用包括：预测高次谐波的通量 [9], ，从二维图像（频率分辨光学门迹线 [11]和色散扫描迹线 [12]）重构短激光脉冲的强度与载波包络相位（CEP），高效实现基于轨迹的库仑修正强场近似（TCSFA） [15] （TCSFA方法发展于文献 [13,14]），基于阈上电离过程中产生的光电子动量分布（PMDs）重构飞秒脉冲参数 [16], ，以及模拟由结构化激光束驱动的宏观高次谐波产生 [17]。另一个引人注目的例子是，利用机器学习预测在随机选取的激光强度、核间距和分子取向条件下模型双原子分子和三原子分子的高次谐波谱，并求解逆问题：基于高次谐波谱或含时偶极加速度重构分子与激光参数并判定分子类型 [18]。最近，机器学习方法已被应用于激光诱导电子衍射（LIED）中分子几何结构的识别 [19], 、利用高次谐波光谱制作阿秒电荷迁移影像 [20], ，以及根据给定的光电子动量分布确定分子中的核间距 [21–23]。这些后续应用可用作时间分辨分子成像的工具。

时间分辨分子成像旨在实时可视化电子和分子动力学。这类技术的发展对科学技术的许多领域都极为重要，包括化学、生物学和材料科学，因为它们有助于更好地理解分子中的各种过程。时间分辨分子成像的知名方法包括光学泵浦-探测光谱、时间分辨X射线吸收光谱、时间分辨电子衍射和时间分辨X射线衍射、时间分辨扫描隧道谱等（综述见参考文献 [24]）。强场物理中研究的一些过程可用于分子成像。例如，激光诱导电子衍射（LIED）（例如，见参考文献 [25–27]）和强场光电子全息（SFPH）方法 [28]

分析阈上电离过程中产生的电子动量分布。

这些方法基于这样一个事实：光电子动量分布包含大量关于离子和光电子的时间分辨信息。强场电离产生的两种不同电子波包都会对光电子动量分布有所贡献。分布的低能部分很大程度上由不会返回母离子的直接电子构成。与此相反，光电子动量分布的高能部分由再散射电子产生；这些电子在振荡激光场的驱动下返回母离子，并以接近 $180^\circ$ 的角度与其发生散射。激光诱导电子衍射方法从光电子动量分布的高能部分，也就是从再散射电子中重构静态和时间分辨信息。与之相反，强场光电子全息通过分析光电子动量分布低能部分中由直接电子与再散射电子干涉而形成的全息图样来获取信息。

过去十年间，激光诱导电子衍射和强场光电子全息技术都得到了深入发展。激光诱导电子衍射方法的最新综述见文献 [29] ，强场光电子全息研究的最新进展见文献 [30–36] 。文献 [21–23] 使用卷积神经网络（CNN），基于完整的光电子动量分布（低能和高能部分），重构二维（2D）$H_2^+$ 分子的静态及随时间变化的核间距。研究表明，该卷积神经网络能够重构固定核间距，绝对误差小于 0.1 原子单位 [21]。与文献 [19], 中基于二维（2D）微分截面训练卷积神经网络的方法不同，文献 [21]直接利用了电子动量分布中编码的信息。相应的光电子动量分布由含时薛定谔方程（TDSE）的数值解获得，因此避免了激光诱导电子衍射和强场光电子全息技术中通常采用的一些近似。通过采用迁移学习技术 [37], ，卷积神经网络 [21]得以应用于针对其未明确训练过的参数计算出的分布，包括焦体积平均光电子动量分布以及来自其他分子种类的光电子动量分布 [22]。

在文献 [23] 中，研究人员利用泵浦-探测方案获得的电子动量分布，采用卷积神经网络重建解离中的二维 $H_2^+$ 分子的含时键长。与文献 [21, 22], 中的做法一样，光电子动量分布由含时薛定谔方程的解得到，原子核运动则分别采用经典处理、半经典处理和量子力学处理。在所有这些情况下，使用冻结原子核条件下计算的光电子动量分布训练的神经网络，都能预测含时核间距，绝对误差为 0.2–0.3 原子单位。然而，文献 [23] 中的量子方法是近似的：它没有考虑探测激光脉冲期间的原子核运动。因此，值得研究机器学习能否通过对分子动力学进行完全量子力学处理、且不作任何近似所获得的光电子动量分布，重建含时键长。本文采用非玻恩-奥本海默模拟来解决这一问题。为简单起见，我们考虑一个解离中的一维 $H_2^+$ 分子。我们采用两种不同方案。首先，假设分子受到瞬时激发，即初态为制备于第一激发电子态的核波包。其次，我们考虑从分子基态出发的泵浦-探测方案，即，

分子由泵浦脉冲激发，并由具有延迟的探测脉冲电离。我们证明，在这两种方案中，使用运动中的原子核条件下计算的光电子动量分布训练的神经网络，都能以较高精度恢复核间距。随后，我们研究将使用冻结原子核条件下计算的动量分布训练的神经网络用于恢复含时核间距的效果。我们发现，在瞬时激发和泵浦-探测方案中，使用固定原子核条件下的光电子动量分布训练的神经网络，都能恢复含时核间距，绝对误差约为 0.2–0.4 原子单位。最后，我们证明，深度学习不仅可用于重建核运动，还可用于重建分子的电子性质。在泵浦-探测方案中，我们使用基于固定原子核条件下的光电子动量分布训练的神经网络，重建泵浦脉冲结束时的电子基态布居。

本文结构安排如下。第 2 节讨论求解含时薛定谔方程和计算光电子动量分布所采用的方法，以及本研究所用神经网络的架构。第 3 节中，我们针对两种方案训练并应用神经网络，并分析所得结果。第 4 节给出结论。除非另有说明，本文中均使用原子单位。

## 2. 方法

对于一个模型 $H_2^+$ 分子，其中电子运动和核运动均限制在一维空间内，其含时薛定谔方程为

$$i\frac{\partial}{\partial t}\Psi\left(x,R,t\right)=\left\{-\frac{1}{2\mu}\frac{\partial}{\partial x^{2}}-\frac{1}{m_{p}}\frac{\partial^{2}}{\partial R^{2}}-i\frac{m_{p}+1}{m_{p}}A\left(t\right)\frac{\partial}{\partial x}+V_{pe}\left(x,R\right)+\frac{1}{\sqrt{R^{2}+\alpha_{1}}}\right\}\Psi\left(x,R,t\right), \tag{1}$$

其中， $x$ 为电子坐标， $R$ 为核间距， $\Psi(x,R,t)$为波函数， $m_p$ 为质子质量， $A(t)$为激光脉冲的矢势， $\mu$ 为电子运动的约化质量， $\alpha_1$ 为质子间相互作用的软核参数，势能 $V_{pe}$ 描述电子与两个质子之间的相互作用。值得注意的是，对于同核双原子分子，激光场不会与坐标 $R$ 耦合，参见文献 [38]。方程（1）采用速度规范。势能 $V_{pe}$ 选取为

$$V_{pe}\left(x,R\right)=-\frac{1}{\sqrt{\left(x-\frac{1}{2}R\right)^{2}+\alpha_{2}}}-\frac{1}{\sqrt{\left(x+\frac{1}{2}R\right)^{2}+\alpha_{2}}}, \tag{2}$$

其中， $\alpha_2$ 是软核参数。按照参考文献 [39], ，我们选取了 $\alpha_1=0.03$ 和$\alpha_2=1.0$。

电离激光脉冲的矢势 $A(t)$ 由下式给出

$$A_{\mathrm{probe}}\left(t\right)=\left(-1\right)\frac{F_{0}}{\omega}f\left(t\right)\cos\left[\omega\left(t-t_{c}\right)\right], \tag{3}$$

其中 $\omega$ 为激光频率， $F_0$ 为场强振幅， $t = t_c$ 为激光脉冲的中心， $\tau_L$ 为脉冲持续时间，包络 $f(t)$ 由下式给出

$$f(t) = \begin{cases} \sin^2\left[\dfrac{\omega\left(t - t_c + \frac{\tau_L}{2}\right)}{2n_p}\right] & \text{for } t_c - \frac{\tau_L}{2} \le t \le t_c + \frac{\tau_L}{2} \\ 0 & \text{otherwise.} \end{cases} \tag{4}$$

这里， $n_p$ 是脉冲中的光学周期数，因此， $\tau_L = (2\pi/\omega) \cdot n_p$。我们在 $\varphi = 0$条件下进行模拟。

方程（1）或类似方程已用于许多研究 $H_2^+$ 与强激光脉冲相互作用的工作中，参见例如文献 [39–41]。为求解含时薛定谔方程（1），我们采用 Feit-Fleck-Steiger 分裂算符方法 [42]。计算盒在 $x \in [-400, 400]$ 方向延伸至 $x \in [-400, 400]$ a.u.，在 $R \in [0, 80]$ 方向延伸至 $R \in [0, 80]$ a.u.。 $x$ 和 $R$ 方向的网格分别由 4096 和 2048 个点组成，对应的网格间距为$\Delta x = 0.1954$ a.u. 和 $\Delta R = 0.0391$ a.u.。含时薛定谔方程以 $\Delta t = 0.0184$ a.u. 的时间步长进行时间传播。我们在 $x$ 方向使用吸收边界，以防止波函数在计算网格边界处发生非物理反射；也就是说，在每个时间步，我们都将波函数乘以掩膜函数：

$$M(x) = \begin{cases} 1 & \text{for } |x| \le x_b \\ \exp\left[-\beta\left(x - x_b\right)^2\right] & \text{for } |x| > x_b \end{cases}, \tag{5}$$

其中 $\beta = 10^{-4}$ 和 $x_b = 300$ 原子单位。对于 $|x| > x_b$，忽略势能 $V_{pe}$；但在此区域内，方程 (1) 中由 $1/\sqrt{R^2 + \alpha_1}$ 项描述的质子间相互作用仍予以考虑。事实上， $x$取值较大并不一定意味着 $R$也较大。由于计算盒沿 $R$ 方向的范围很大，因此该方向不使用吸收掩膜函数。电子与原子核的联合动量分布通过掩膜函数方法获得，参见文献 [43, 44]。对联合动量分布关于质子动量积分，可得到电子动量分布。模型 $H_2^+$ 分子离子的基态波函数通过虚时间传播获得，其基态能量为 $E_0 = -0.78$ 原子单位，与文献 [40, 41]的结果一致。

与文献 [23], 类似，我们的第一种方法涉及对 $H_2^+$分子的瞬时激发。具体而言，含时薛定谔方程 (1) 的时间传播从波函数 $\Psi_0(x, R) = \chi_0(R)\ \phi_1(x, R)$开始。这里，$\phi_1(x, R)$是固定 $R$时的第一激发电子态，而 $\chi_0(R)$是电子基态对应的核基态波函数。因此，波函数 $\phi_1(x, R)$是以下含时无关薛定谔方程的解

$$\left[-\frac{1}{2\mu}\frac{\partial^2}{\partial x^2} + V_{pe} + \frac{1}{\sqrt{R^2 + \alpha_1}}\right]\phi_n(x, R) = \varepsilon_n(R)\,\phi_n(x, R), \tag{6}$$

其中核间距 $R$ 是一个参数。实际上，我们对方程（6）的含时对应形式采用虚时间传播，以求得 $\phi_1(x, R)$。为施加正确的对称性，我们将 $\phi_0(x;\ R)$ [$1s\sigma_g$ 态] 对称化，并将 $\phi_1(x, R)$反对称化

$[2p\sigma_\mu$ 态] 在虚时间传播的每一步中。构建核运动的薛定谔方程需要基态能量$\varepsilon_0(R)$:

$$\left[-\frac{1}{m_p}\frac{\partial^2}{\partial R^2}+\varepsilon_0\left(R\right)\right]\chi_0\left(R\right)=\varepsilon_0\chi_0\left(R\right). \tag{7}$$

通过在一定时间延迟 $t_c$ 后施加一个强而短的探测脉冲，使 $H_2^+$ 分子发生电离，见方程 (3)。该延迟决定了电离时刻的核间距。我们首先在不施加探测脉冲的情况下求解含时薛定谔方程 (1) $[A(t)=0]$，并计算平均核间距 $\langle R\rangle$ 随时间的变化:

$$\langle R\rangle=\int dx\int dRR|\Psi\left(x,R,t_C\right)|^2. \tag{8}$$

知道这一函数后，我们便可将核间距作为标签，赋予在给定探测脉冲延迟下计算得到的光电子动量分布。随后，在存在探测脉冲的情况下求解含时薛定谔方程 (1)，即 $A(t)=A_{\mathrm{probe}}(t)$，以获得光电子动量分布。为了通过固定核计算获得训练数据，我们求解一维含时薛定谔方程

$$i\frac{\partial}{\partial t}\Psi\left(x,t\right)=\left\{-\frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial x^2}-iA\left(t\right)\frac{\partial}{\partial x}-\frac{1}{\sqrt{\left(x-\frac{1}{2}R\right)^2+\alpha_2}}\right.$$
$$\left.-\frac{1}{\sqrt{\left(x+\frac{1}{2}R\right)^2+\alpha_2}}\right\}\Psi\left(x,t\right) \tag{9}$$

针对不同核间距$R$下从第一激发态发生的电离。

作为第二种方法，我们考虑众所周知的泵浦-探测方案。具体而言，我们求解矢势为 $A(t)=A_{\mathrm{pump}}(t)+A_{\mathrm{probe}}(t)$ 时的含时薛定谔方程 (1)，

$$A_{\mathrm{pump}}\left(t\right)=\frac{F_{01}}{\omega_1}f_1\left(t\right)\sin\left(\omega_1 t\right) \tag{10}$$

其中，$F_{01}$ 和 $\omega_1$ 分别为泵浦脉冲的场强和频率，且

$$f_1\left(t\right)=\begin{cases}\sin^2\left(\dfrac{\omega_1 t}{2n_{p1}}\right) & \text{for } 0\le t\le\tau_{pump}\\ 0 & \text{otherwise.}\end{cases}. \tag{11}$$

这里，$n_{p1}$ 和 $\tau_{\mathrm{pump}}=(2\pi/\omega_1)\cdot n_{p1}$ 分别表示泵浦脉冲的周期数和持续时间。由于包络（11）在 $t=\pi n_{p1}/\omega_1$处达到最大值，泵浦脉冲与探测脉冲之间的延迟为 $t_c-\pi n_{p1}/\omega_1$。

通过求解含时薛定谔方程获得的光电子动量分布（原子核运动或固定原子核，见下文）用于训练神经网络。具体而言，我们按照 0.75 : 0.25 的比例，将计算得到的光电子动量分布划分为训练集和测试集。需要指出的是，所得光电子动量分布仅是一个变量的函数——沿偏振方向的电子动量分量。因此，应用

卷积神经网络并非唯一选择，也可以使用全连接神经网络（FCCN）从光电子动量分布中提取键长。下文中，我们将同时使用 FCCN 和卷积神经网络，并比较两者的结果。我们考虑范围为 $-3.0 < k_x < 3.0$ a.u. 的光电子动量分布，并将各分布归一化至其最大值。因此，每个光电子动量分布均表示为由 765 个介于 0 和 1 之间的数值组成的集合。这些集合将作为神经网络的输入。在本研究中，我们采用两种不同的全连接神经网络，见图 1 (a) 和 (b)。除输入层外，第一个 FCCN 仅由两个全连接层组成，分别包含 765 个和 1512 个神经元；此外，还包含一个用于防止过拟合的丢弃层（例如，参见文献 [45]），以及一个用于预测网络输出的最后一个全连接层，见图 1 (a)。该层的神经元数量与网络预测的输出量数量相对应。前两个全连接层采用修正线性单元（ReLU）激活函数：$\mathrm{RELU}(x) = \max(0, x)$。第二个 FCCN 的架构如图 1 (b) 所示。该网络的前两个全连接层与第一个 FCCN 的相应层类似，但还额外包含第三层（1512 个神经元）、第四层（1512 个神经元）和第五层（512 个神经元）。因此，该网络包含更多可训练参数。我们使用 MATLAB 软件包 [46] 实现神经网络。我们将训练数据划分为由一定数量的分布组成的小批次，以便在训练过程的每次迭代中使用一个小批次。训练的目标是最小化损失函数（本例中为均方误差），该函数表征神经网络的预测值与训练光电子动量分布的已知标签（即核间距）之间的偏差。网络训练从学习率 $l_r = 5 \cdot 10^{-3}$开始，并在训练 20 轮后将学习率降低 10 倍。损失函数约需 60 轮才能收敛。每轮训练前都会打乱训练数据，因此每个光电子动量分布都会对神经网络产生无偏的更新。训练时，我们使用随机梯度下降（SGD）优化器。

与研究 [21–23], 中使用的网络类似，我们目前的卷积神经网络由五组卷积层和平均池化层、一个丢弃层以及一个用于计算网络输出的全连接层组成，见图 1 (b)。与卷积神经网络 [21–23], 不同，卷积层和平均池化层组成的各组之前还设有一个包含 $(2 \cdot 765) = 1530$ 个神经元的全连接层。卷积层和平均池化层都只在一个维度上运作。每个卷积层包含 32 个滤波器，每个滤波器的大小为 2 个点。除对输入进行卷积外，卷积层还应用 ReLU 激活函数。平均池化层的池化区域大小也为 2 个点。我们发现，对于当前问题，当小批量包含 30 幅图像且初始学习率为 $10^{-2}$ 时，该架构的卷积神经网络表现良好。训练 20 轮后，学习率再次降低至原来的十分之一。

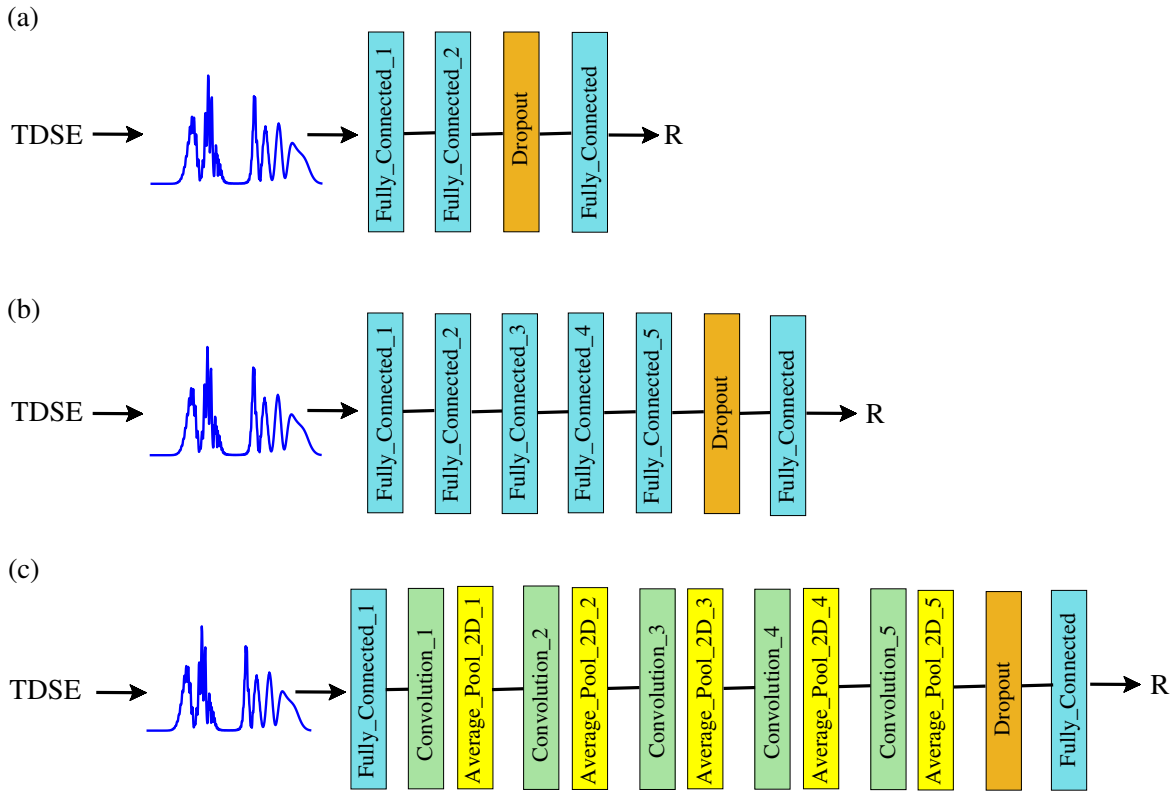


图1. 用于反演键长 $R$ 的 (a)、(b) 全连接卷积神经网络和 (c) 卷积神经网络的架构。两种神经网络均以归一化至其最大值的一维电子动量分布作为输入；见正文。

## 3. 结果与讨论

### *3.1*. 瞬时激发下含时键长的反演

为简化起见，我们从激光强度固定的情形开始应用深度学习。我们从瞬时电离开始求解含时薛定谔方程 (1)，并使用$N = 310$ 个随机探测脉冲延迟时间以及 $2.52 \times 10^{14}$ W/cm$^2$ 的激光强度。延迟时间范围对应于 $3.61 < R < 12.00$ 原子单位。所得光电子动量分布 [（例如见图 2 (a)）]用于训练一个 FCCN，以获取电离时刻的核间距。损失函数约经过 40 个训练轮次后收敛，神经网络识别核间距的平均绝对误差（MAE）为 0.07 原子单位。

随后，我们让激光强度在 $[1.0, 4.0] \times 10^{14}$ W/cm$^2$, 范围内变化，并针对随机选取的核间距和激光强度计算 $N = 2000$ 个光电子动量分布。我们训练图 1 (a) 所示的 FCNN。每个小批次由 100 个分布组成。神经网络对核间距和激光强度的预测平均绝对误差分别为 0.08 原子单位和 0.05 W/cm$^2$, [（见图 3 (a) 和 3 (b)）]。作为比较，除 FCNN 外，我们还针对这一任务训练了一个卷积神经网络。卷积神经网络对 $R$ 和 $I$ 的预测平均绝对误差分别为 0.094 原子单位和 0.068 W/cm$^2$, 。

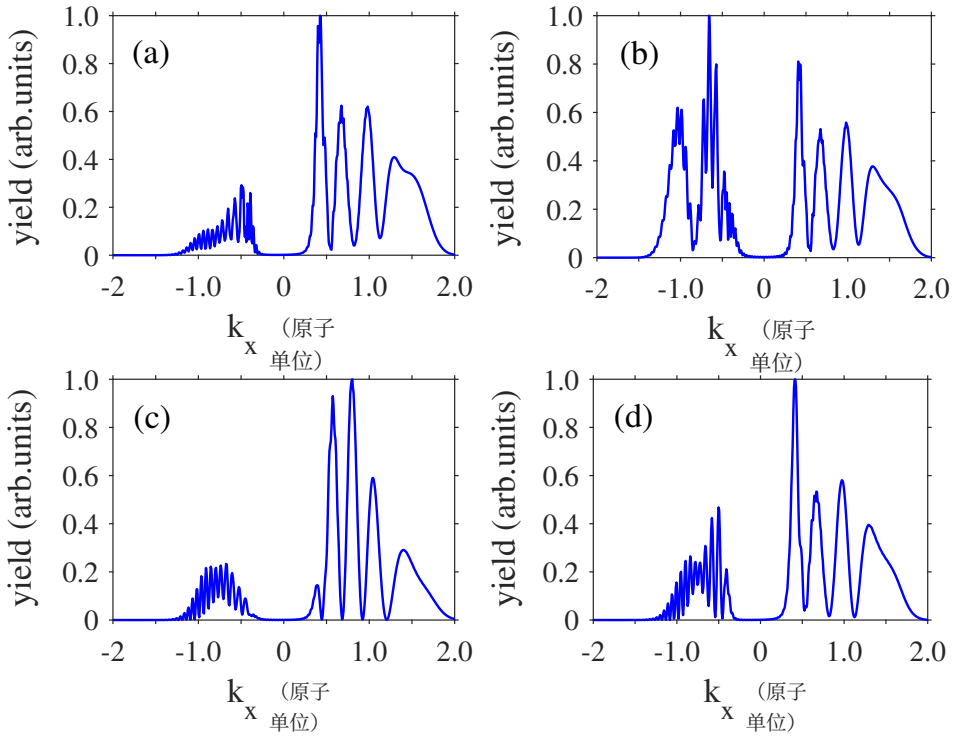


图 2. 根据核间距为$R = 9.26$ 原子单位时含时薛定谔方程的直接数值求解，计算得到的 1D $H_2^+$ 分子电离的电子动量分布。分子由持续时间为 $n_p = 2$ 个周期、峰值强度为 $2.5 \times 10^{14}$ W/cm$^2$,、波长为 800 nm 的激光脉冲电离。(a) 根据运动原子核含时薛定谔方程，在瞬时激发分子并于 $\langle R \rangle = 9.26$ 原子单位时电离所得到的动量分布。(b) 在泵浦-探测方案下计算得到的分布。泵浦脉冲的波长为 148 nm（$\omega = 0.368$ 原子单位），峰值激光强度为 $8.4 \times 10^{12}$ W/cm$^2$,，该脉冲的持续时间为 $n_p = 3$ 个光学周期。(c) 通过求解固定原子核含时薛定谔方程（9）得到的基态电离分布。(d) 根据方程（9）计算得到的第一激发态电离分布。各分布均归一化为其最大值。

因此，对于当前问题，使用卷积神经网络并不比使用 FCCN 更有优势。

作为下一步，将在固定核间距下计算的分布上训练的神经网络应用于运动中的原子核所对应的光电子动量分布。使用一组用于第一激发态电离的$N = 2000$ 固定原子核光电子动量分布训练 FCCN［（见图 1 (b)）］，以检索 $R$ 和 $I$。此类分布的一个示例见图 2 (d)。应将该分布与图 2 (c) 所示的基态电离光电子动量分布进行比较。该神经网络在固定原子核光电子动量分布测试集上的表现良好： $R$ 和 $I$ 对应的平均绝对误差分别为 0.10 原子单位和 0.04 W/cm$^2$, 。然而，它在运动中的原子核所对应的分布上的表现明显较差，但仍可接受：平均绝对误差（$R$） $= 0.48$ 原子单位，平均绝对误差（$I$） $= 0.12$ W/cm$^2$,（见图 3 (c) 和图 3 (d)）。在固定原子核分布上训练的卷积神经网络表现相似。考虑到固定原子核的光电子动量分布与运动中的原子核所对应的动量分布不同，这些结果很容易理解

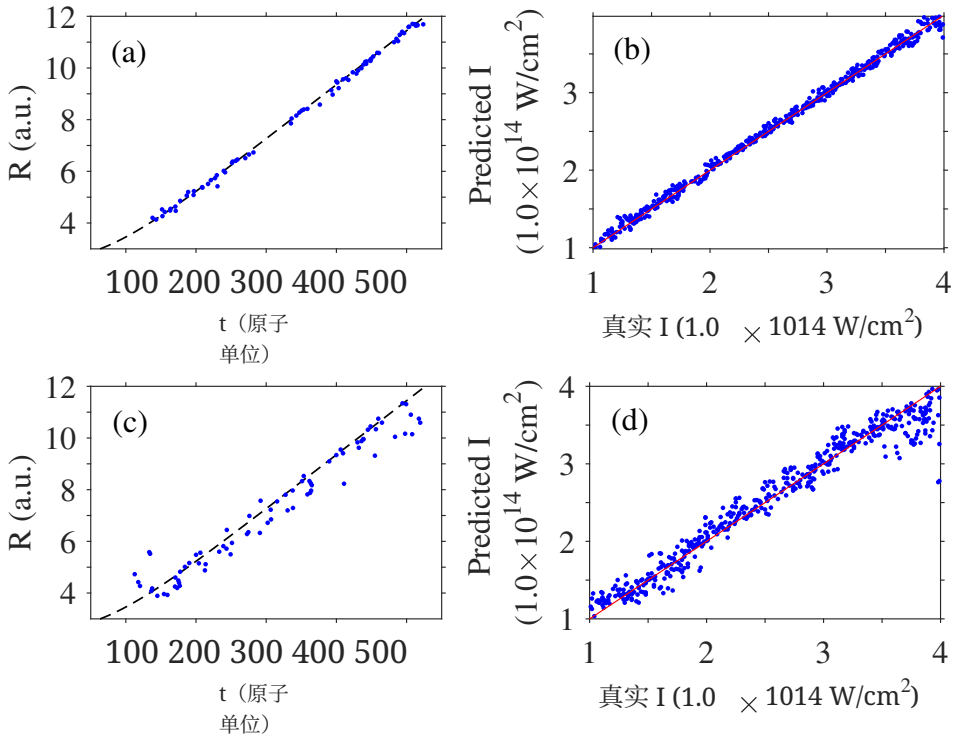


图3. 瞬时激发情况下，预测值与真实核间距 [(a)、(c)] 以及激光强度[(b)、(d)] 的对比图，展示了神经网络的性能。(a)和(b)对应于一个 FCCN，其训练数据为根据含运动中的原子核的含时薛定谔方程（1）计算得到的一组分布。(c)和(d)展示了一个 FCCN 的性能，该网络使用一组固定原子核的光电子动量分布进行训练，即通过求解方程（9）得到的数据，用于从第一激发态电离。(a)和(c)中的虚线曲线表示键长的含时期望值。

.

在运动中的原子核条件下计算得到，见图 2 (a) 和图 2 (c)。

### 3.2. 泵浦-探测方案中含时键长的提取

我们对泵浦脉冲频率 $\omega = 0.3068$ 原子单位进行计算，该频率对应于我们的模型分子中 $\sigma_g$ 与$\sigma_\mu$ 态之间的共振，场强为 $F_{01} = 0.0155$ 原子单位（强度为 $8.4 \times 10^{12}$ W/cm$^2$），以及$n_{p_1} = 3$。与第3.1节相同，我们首先在没有探测脉冲的情况下，计算含时平均核间距 $\langle R \rangle$随时间的变化。该期望值是在泵浦脉冲结束时将电子-振动基态投影去除之后计算得到的 [40]。接下来，我们用矢势(10)求解含时薛定谔方程(1)，并计算一组 $N = 2000$ 动量分布，它们对应于不同的时间延迟 $\tau$，因而对应于不同的核间距 $\langle R \rangle$，其范围位于 $[3.98, 11.96]$ 原子单位。图2(b)给出了一个光电子动量分布的示例。每个光电子动量分布都按照函数 $\langle R \rangle(t)$用核间距 $R$ 进行标记。这组光电子动量分布用于训练图1(b)所示的FCCN，以及一个旨在识别核间距和激光强度的卷积神经网络。我们发现

FCCN以0.13原子单位的平均绝对误差反演出核间距，并以 $0.05 \times 10^{14}$ W/cm$^2$的平均绝对误差反演出激光强度。卷积神经网络表现出相近的性能：平均绝对误差（$R$） $= 0.15$ 原子单位，以及平均绝对误差（$I$） $= 0.044 \times 10^{14}$ W/cm$^2$。

在研究的下一阶段，我们将基于固定原子核时计算得到的分布训练的神经网络应用于泵浦-探测方案中获得的光电子动量分布。将 FCCN 应用于泵浦-探测方案中获得的光电子动量分布时，其识别核间距的表现较差。核间距对应的平均绝对误差为 1.13 原子单位，而激光强度的重构平均绝对误差为 $0.25 \times 10^{14}$ W/cm$^2$。基于固定原子核的光电子动量分布训练的卷积神经网络表现相近。与瞬时激发的情况相比，这些结果明显较差（见第 3.1 节）。为简化神经网络的任务，我们将激光强度固定为 $2.52 \times 10^{14}$ W/cm$^2$。我们计算了一组相应的固定原子核光电子动量分布，并以此训练 FCCN。然而，这种固定强度的神经网络仅比之前的网络略有改善。对于运动中的原子核情况下计算得到的光电子动量分布，该网络预测的核间距平均绝对误差为 1.03 原子单位。

这些结果本可以预料到。事实上，在泵浦-探测方案中，对于电离时刻的给定 $\langle R \rangle$，由含时薛定谔方程 (1) 计算得到的光电子动量分布，与由方程 (9) 针对相同核间距得到的光电子动量分布不同。对于固定原子核 [ 时含时薛定谔方程 (9) 中基态和激发态的电离，情况均如此]，参见图 2 (b) 与图 2 (c) 和图 2 (d)。对含时薛定谔方程 (1) 中布居数的分析表明，泵浦脉冲结束时基电子振动态的布居数为 0.92。这意味着泵浦脉冲产生了基态（权重较大）与第一激发态（权重小得多）的叠加态。这表明，可以将一组定义如下的光电子动量分布

$$\mathrm{PMD}_i = w_i \mathrm{PMD}_{\phi_{0,i}}(R_{0,i}) + (1 - w_i)\,\mathrm{PMD}_{\phi_{1,i}}(R_{1,i}) \tag{12}$$

用于训练固定原子核神经网络，以检索随时间变化的键长。这里，$i$ 是该集合中分布的编号；PMD$_{\phi_{0,\,i}}$ ($R_{0,\,i}$) 和 PMD$_{\phi_{1,\,i}}$($R_{1,\,i}$) 分别是由方程 (9) 计算得到的基态和第一激发态电离产生的电子动量分布，而 $w_i$ 是 PMD$_{\phi_{0,\,i}}$的权重。注意，计算分布 PMD$_{0,\,i}$ 和 PMD$_{1,\,i}$ 时所用的原子间距 $R_{0,\,i}$ 和 $R_{1,\,i}$不一定相同。因此，光电子动量分布集合 (12) 由 $R_{0,\,i}$、 $R_{1,\,i}$ 和 $w_i$ 的取值决定。

我们首先将 $R_0$ 固定为 2.59 原子单位的平衡距离（对于 $\alpha_2 = 1.0$），并计算一组光电子动量分布$\phi_1$（$R_{1,\,i}$），对应于在$4.1 \le R_{1,\,i} \le 11.5$原子单位范围内随机分布的$R_{1,\,i}$。这一选择的依据是，只有处于激发电子态的波包会发生解离。为简单起见，我们再次将激光强度固定为 $2.52 \cdot 10^{14}$ W/cm$^2$。权重 $w_i$ 的选择对训练过程至关重要，而事实证明这是一项具有挑战性的任务。比较最大光电子动量分布$\phi_0$（2.59 原子单位）值 $5.93 \cdot 10^{-10}$ 与不同 $R_1$下光电子动量分布$\phi_1$（$R_1$）的最大值，就不难理解这一点。后者的最大值仅略微

依赖于 $R_1$。例如，当 $R_1 = 4.0$ 分别为 $R_1 = 6.0$ 原子单位、$R_1 = 8.0$原子单位时，max [光电子动量分布$_{\phi_1}$ （$R_1$）] 分别等于 $2.96 \cdot 10^{-6}$、$2.89 \cdot 10^{-6}$和 $2.29 \cdot 10^{-6}$。权重 $w_i$ 范围的选择取决于一个要求，即总和（12）中的两项应具有相近的数值。通过简单估算，并辅以使用不同光电子动量分布试验集训练若干神经网络，结果表明，当 $w_i \in [0.99, 0.99999]$ 时（即 $(1 - w_i) \in [10^{-5}, 0.01]$），效果最佳。这表明，可以将神经网络应用于一组在低于上述 $8.4 \times 10^{12}$ W/cm$^2$ 强度的泵浦脉冲下计算的光电子动量分布。泵浦脉冲强度应使泵浦脉冲结束后的基态布居落在用于训练神经网络的权重范围内。因此，我们针对 $3.29 \times 10^{10}$ W/cm$^2$ 的泵浦脉冲强度计算了另一组光电子动量分布，该强度对应的场强为 $F_{01} = 0.00097$ 原子单位。在此强度下，泵浦脉冲结束时的基态布居为 0.99948。

众所周知，神经网络训练本质上具有随机性，参见例如文献 [37]。使用同一训练数据集训练的不同神经网络，在预测核间距时会表现出差异。在本研究中，这种效应尤为显著。因此，我们使用同一数据集 (12) 训练了 10 个不同的全连接卷积神经网络，该数据集由 5000 个分布组成，并将这些网络应用于上述光电子动量分布测试集。这些神经网络的架构如图 1 (b) 所示，小批量大小设为 60 张图像。我们发现，这些神经网络重构随时间变化的核间距时，平均绝对误差为 0.48 原子单位（对各神经网络取平均）。图 4 (a) 展示了一个选定的全连接卷积神经网络的性能。同时，全连接卷积神经网络在针对更高泵浦-探测强度计算的光电子动量分布上表现略好。例如，当强度为 $8.4 \times 10^{12}$ W/cm$^2$, 时，平均平均绝对误差为 0.40 原子单位。这一反直觉的结果，加上重构的 $R$ 相对较低的准确度，表明需要改进该方法。

在接下来的方法中，我们不仅改变方程（12）中的 $R_1$ ，还改变 $R_0$ 。更具体地说，$R_{1,i}$ 的取值再次在 $[4.1, 11.5]$ 原子单位的范围内变化，而 $R_{0,i}$ 则从 $[1.0, 3.0]$ 原子单位的范围内随机选取。需要注意的是，随着 $R_0$ 增大，max [光电子动量分布$_{\phi_0}$ ($R_0$)]会显著变化。事实上，max 光电子动量分布$_{\phi_0}$ (1.02) $= 1.14 \cdot 10^{-10}$、max 光电子动量分布$_{\phi_0}$ (2.02) $= 2.10 \cdot 10^{-10}$，以及 max 光电子动量分布$_{\phi_0}$ (3.02) $= 1.74 \cdot 10^{-9}$。因此，与前一种情况相比，确定适用于 $w_i$ 的区间更加困难。尽管如此，我们发现权重 $w_i \in [0.999, 0.999999]$ 能获得最佳结果。对于 $3.29 \times 10^{10}$ W/cm$^2$, 的泵浦-探测强度，一组架构如图1(b)所示的全连接神经网络，使用该区间内的随机权重，在 10000 个光电子动量分布（12）上进行训练后，预测随时间变化的核间距 $R_{1,i}$，平均平均绝对误差为 0.19 原子单位。图4(b)展示了从这组网络中选取的一个全连接神经网络的性能。

我们还将相同的方法用于从泵浦-探测光电子动量分布中反演核间距 $R_{0,\ i}$和权重 $w_i$ 。在这种情况下，基于同一数据集训练的不同神经网络所给出的预测结果差异相对较小。对于一组由 FCCN 得到的光电子动量分布，基态的平均核间距 $\langle R_{0,\ i} \rangle$ 为

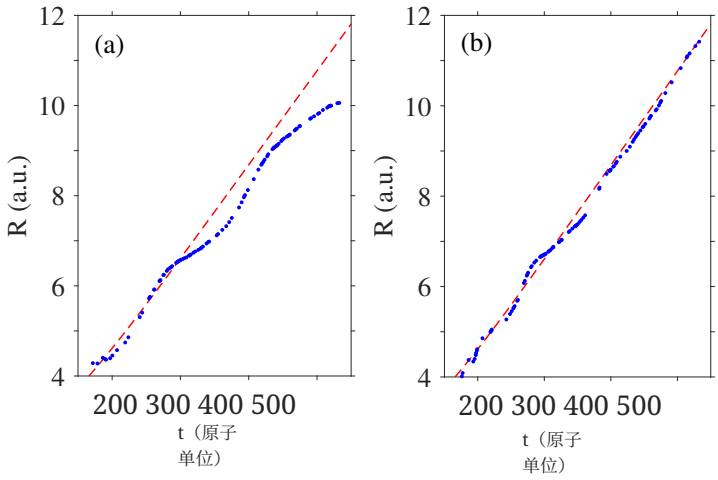


图4. 在泵浦-探测方案下，解离过程中不同时间延迟对应的核间距预测值（蓝点），与通过求解含时薛定谔方程 (1) 得到的核间距含时期望值（红色虚线）进行比较。(a) FCCN 在固定 $R_0 = 2.59$ 原子单位下，使用根据方程 (12) 计算的动量分布进行训练所得的结果。泵浦脉冲强度为 $3.29\times10^{10}$ W/cm$^2$ 。(b) FCCN 使用 $R_{0,\ i}$ 在 $[1.0, 3.0]$ 原子单位范围内随机分布的一组分布 (12) 进行训练所得的结果。测试集的光电子动量分布仍按泵浦脉冲强度为 $3.29 \times 10^{10}$ W/cm$^2$ 计算。

在泵浦脉冲强度为 $3.29 \times 10^{10}$ W/cm$^2$ 时计算得到的光电子动量分布为 2.68 原子单位。该数值接近玻恩-奥本海默近似下的平衡距离 2.59 原子单位。同时，神经网络预测的平均权重 $\langle w_i \rangle$ 为 0.99955。该数值接近泵浦脉冲结束时 0.99948 的基态布居。所得结果表明，基于冻结原子核条件下的光电子动量分布训练的神经网络，可用于反演解离态和非解离态的束缚态布居数及核间距。鉴于即使在基态核分布的狭窄范围内，电离概率也强烈依赖于 $R$，仍需进一步研究以分析该方案的潜力。

## 4. 结论

总之，我们研究了如何利用深度神经网络，从强场电离产生的光电子动量分布中反演解离中的一维分子随时间变化的核间距，并将光电子动量分布作为输入。为此，我们要么假设分子瞬时激发至第一激发电子态，随后发生解离；要么采用泵浦-探测方案。在后一种方法中，泵浦脉冲激发分子，从而引发核运动。经过一定时间延迟后，探测脉冲将解离中的分子电离，该延迟决定了电离时的核间距。在这两种情况下，相应的光电子动量分布均通过对含时薛定谔方程进行直接数值求解得到，并采用了

电子-核耦合运动的非玻恩-奥本海默处理。我们证明，利用数千个光电子动量分布训练的深度神经网络（FCCN 或卷积神经网络）能够反演核间距，绝对误差约为 0.1 原子单位。这一结果对全连接卷积神经网络和卷积神经网络均适用。

我们还应用了一个在固定核间距下获得的动量分布上训练的神经网络。对于分子的瞬时激发，该神经网络以 0.4 原子单位的平均绝对误差重构随时间变化的核间距。在泵浦-探测方案中，我们使用随机分布的权重，对在冻结原子核条件下分别从电子基态和第一激发态电离计算得到的电子动量分布进行非相干求和，并以此训练了一个网络。我们发现，该神经网络能够以 0.2 原子单位的绝对误差重构随时间变化的核间距。这一结果适用于本研究采用的两种模拟方案和两种类型的神经网络（FCCN 和卷积神经网络）。因此，我们的结果支持利用深度学习从电子动量分布中重构分子的解离动力学。

此外，我们的研究表明，在冻结原子核条件下的光电子动量分布上训练的神经网络可用于重构电子态的布居数。因此，本研究展示了深度学习除用于核运动重构外，还可用于重构电子性质。朝这一方向的进展将有助于开发用于静态和时间依赖分子成像的创新工具。

参考文献

[1] Carleo G、Cirac I、Cranmer K、Daudet L、Schuld M、Tishby N、Vogt-Maranto L 和 Zdeborov´a L 2019 机器学习与物理科学 《现代物理评论》91 045002[2] Suresh R、Bishnoi H、Kuklin A V、Parikh A、Molokeev M、Harinarayanan R、Gharat S 和 Hiba P 2024 变革物理学：机器学习应用综合综述 https://doi.org/10.3389/fphy.2024.1322162[3] Becker W、Grasbon F、Kopold R、Milo˘sevi´c D B、Paulus G G 和 Walther H 2002 阈上电离：从经典特征到量子效应 《原子、分子与光学物理进展》48 35[4] Milo˘sevi´c D B 和 Ehlotzky F 2003 强激光场中的散射与反应过程 《原子、分子与光学物理进展》49 373[5] Becker 和 Faisal F H M 2005 强场多体S矩阵理论 J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 38 R1[6] Figueira de Morisson Faria C 和 Liu X 2011 强激光场中的电子-电子关联 《现代光学杂志》58 1076[7] Kitzler M 和 Gr¨afe S（编辑）2016 强光脉冲驱动的超快动力学。从原子到固体，从激光到强X射线（Springe，Cham，海德堡，纽约，多德雷赫特，伦敦）[8] Lin C D、Le A-T、Jin C 和 Wei H 2018 阿秒与强场物理：原理与应用（剑桥大学出版社，剑桥，英国）[9] Gherman A M M、Kov´ach K、Cristea M V 和 To.sa V 2018 用于预测高次谐波通量的人工神经网络，《应用科学》8 2106[10] Mills K、Spanner M 和 Tamblyn I 2017 深度学习与薛定谔方程，《物理评论A》96 042113

[11] Zahavy T、Dikopoltsev A、Moss D、Haham G I、Cohen O、Mannor S 和 Segev M 2018 超短脉冲的深度学习重建 Optica 5 666[12] Kleinert S、Tajalli A、Nagy T 和 Morgner U 2019 使用深度神经网络从色散扫描轨迹中快速检索超短脉冲的相位 《光学快报》44 979[13] Yan T M、Popruzhenko S V、Vrakking M J J 和 Bauer D 2010 量子轨道揭示强场电离中的低能结构 《物理评论快报》105 253002[14] Yan T M 和 Bauer D 2012 隧穿电离光电子能谱干涉图样中的势垒下库仑效应 《物理评论A》86 053403[15] Liu X、Zhang G、Li J、Shi G、Zhou M、Huang B、Tang Y、Song X 和 Yang W 2020 强场含时动力学中费曼路径积分的深度学习 《物理评论快报》124 113002[16] Szo ldra T、Ciappina M F、Werby N、Bucksbaum P H、Lewenstein M、Zakrzewski J 和 Maxwell A S 2023 使用机器学习从光电子动量估计飞秒脉冲参数 New J. Phys 25 083039[17] Pablos-Mar´ın J M、Serrano J 和 Hern´andez-Garc´ıa C 2023 使用人工智能模拟结构化激光束驱动的宏观高次谐波产生 Comput. Phys. Cpmmun. 291 108823[18] Lytova M、Spanner M 和 Tamblyn I 2023 深度学习与高次谐波产生 Can J. Phys. 101 132[19] Liu X、Amini K、Sanchez A、Belsa B、Steinle T 和 Biegert J 2021 用于分子结构激光诱导电子衍射成像的机器学习 Commun. Chem. 4 154[20] He L、Sun S、Lan P、He Y、Wang B、Wang P、Zhu Z、Li L、Cao W、Lu P 和 Lin C D 2022 通过高次谐波光谱拍摄单分子中阿秒电荷迁移的电影 《自然·通讯》13 4595[21] Shvetsov-Shilovski N I 和 Lein M 2022 从光电子动量分布中的干涉图样深度学习检索分子核间距 《物理评论A》105 L021102[22] Shvetsov-ShilovskiN I 和 Lein M 2023 用于从光电子动量分布中检索分子核间距的卷积神经网络的迁移学习、替代方法与可视化 《物理评论A》107 033106[23] Shvetsov-Shilovski N I 和 Lein M 2024 用于从光电子动量分布中检索分子时间依赖键长的卷积神经网络 2024 J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 57 06LT01[24] Xu J、Blaga C I、Agostini P 和 Di Mauro L F 2016 时间分辨分子成像 J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 49 112001[25] Meckel M、Comtois D、Zeidler D、Staudte A、Pavi˘ci´c D、Bandulet H C、P´epin H、Kieffer J C、D¨orner R、Villeneuve D M 和 Corkum P B 2008 激光诱导电子隧穿与衍射 《科学》320 1748[26] Blaga C I、Xu J、DiChiara A D、Sistrunk E、Zhang K、Agostini P、Miller T A、DiMauro L F 和 Lin C D 2012 用激光诱导电子衍射成像超快分子动力学 《自然》483 194[27] Pullen M G、Wolter B、Le A-T、Baudisch M、Hemmer M、Senftleben A、Schr¨oter C D、Ullrich J、Moshammer R、Lin C D 和 Biegert J 2015 使用激光诱导电子衍射成像定向排列的多原子分子 《自然·通讯》6 7262[28] Huismans Y、Rouz´ee A、Gijsbertsen A、Jungmann J H、Smolkowska A S、Logman P S W M、L´epine F、Cauchy C、Zamith S、Marchenko T、Bakker J M、Berden G、Redlich B、van der Meer A F G、Muller H G、Vermin W、Schafer K J、Spanner M、Ivanov M Yu、Smirnova O、Bauer D、Popruzhenko S V 和 Vrakking M J J 2011 使用光电子的时间分辨全息术 《科学》331 61[29] Giovannini U De、K¨upper J 和 Trabattoni A 2023 时间分辨激光诱导电子衍射的新视角 J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 56 054002

[30] Walt S G, Ram N B, Atala M, Shvetsov-Shilovski N, von Conta A, Baykusheva D, Lein M, and W¨orner H J 2017年 通过强场全息与再散射探测价壳层电子和原子核的动力学 Nat. Commun. 8 15651[31] Keil Th and Bauer D 2017 超越偶极近似的库仑修正强场量子轨迹 J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 50 194002[32] Maurer J, Willenberg B, Danˇek J, Mayer B W, Phillips C R, Gallmann L, Klaiber M, Hatsagortsyan K Z, Keitel C H, and Keller U 2018 利用椭圆偏振强激光场探测非偶极区中的电离波包和再碰撞动力学 《物理评论A》97 013404[33] He M, Li Y, Zhou Y, Li M, Cao W, and Lu P 2018 利用强场光电子全息直接观测价电子运动 《物理评论A》120 133204[34] He M, Zhou Y, Tan J, Li Y, Li M, and Lu P 2018 利用强场隧穿电离中的全息干涉成像非对称分子中的电荷迁移 J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 51 245602[35] Tan J, Zhou Y, He M, Ke Q, Liang J, Li Y, Li M, and Lu P 2019 通过强场光电子全息实现时间分辨隧穿电离 《物理评论A》99 033402[36] Brennecke S and Lein M 2019 超越电偶极近似的强场光电子全息：半经典分析 《物理评论A》100 023413[37] Goodfellow I, Bengio Y, and Courville A 2016 深度学习（剑桥：MIT）[38] Hiskes J R 1961 电场与磁场引起的分子离子解离 《物理评论A》122 1207[39] Kulander K C, Mies F H, and Schafer K J 1996 分子中激光诱导非线性过程的研究模型 《物理评论A》53 2562[40] Pic´on A, Bahabad A, Kapteyn H C, Murnane M M, and Becker A 2011 解离中的 $H_2^+$ 分子光电离中的双中心干涉 《物理评论A》83 013414[41] Mosert V and Bauer D 2015 $H_2^+$ 的解离电离：电子-离子联合能谱中的少周期效应 《物理评论A》92 043414[42] Feit M D, Fleck J A Jr, and Steiger A 1982 通过谱方法求解薛定谔方程 J. Comput. Phys. 47 412¨Lein M, Marangos J P, and Knight P L 2002 分子阈上电离中的电子衍射 《物理评论A》66 051404(R)[43] Tong X M, Hino K, and Toshima N 2006 少周期强激光脉冲中的相位依赖原子电离 Phys Rev A 74 031405(R)[44] Trask A W 2019 深度学习入门（Manning, Shelter Island）[45] The MathWorks Inc. MATLAB 版本 9.14 (R2023a) Natick, Massachusetts mathworks.com