

激光与光电子学进展

通过奇偶谐波谱重构不对称平面分子的构型

于术娟, 刘竹琴, 刘艳峰, 李雁鹏*

延安大学物理与电子信息学院, 陕西 延安 716000

摘要 通过求解含时薛定谔方程的数值方法,研究了不同分子构型的平面分子 H_3^+ 的高次谐波产生,结果表明:奇偶谐波同时释放,且奇偶谐波的相对产量对取向角和分子构型都很灵敏。基于上述结果,提出了利用奇偶高次谐波谱探测原子核位置的简单方法,从而可以通过奇偶高次谐波谱重构取向不对称平面分子的键长和键角,同时利用高次谐波谱为阿秒尺度探测多中心分子结构提供帮助。

关键词 原子分子物理; 奇偶谐波; 平面分子; 跃迁偶极矩

中图分类号 O562 文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP212931

Probing the Structure of Asymmetric Planar Molecules Using Odd-Even High Harmonics

Yu Shujuan, Liu Zhuqin, Liu Yanfeng, Li Yanpeng*

College of Physics and Electronic Information, Yan'an University, Yan'an 716000, Shaanxi, China

Abstract The generation of high-order harmonics from planar molecules H_3^+ with different molecular configurations is studied using the numerical solution of the time-dependent Schrödinger equation. The results show that planar molecules H_3^+ emit both odd and even harmonics, and the relative yields of odd and even harmonics are sensitive to orientation angles and molecular configuration. A simple method is proposed, based on the above results, to detect the position of atomic nucleus via odd and even high-order harmonic spectra. Bond lengths and angles from oriented asymmetric planar molecules can be reconstructed using odd-even harmonics at different angles. Meanwhile, probing the polycentric molecular structure in attoseconds using a high-order harmonic spectrum is helpful.

Key words atomic and molecular physics; odd and even harmonics; planar molecule; transition dipole

1 引言

在过去的 20 年,原子和分子高次谐波产生^[1-2]在强激光与物质相互作用的实验和理论研究中一直是一个热门课题。研究高次谐波的兴趣部分源于其在阿秒科学中的重要应用^[3-4],包括电子结构和动力学的阿秒探测^[5-6]。可通过三步模型来理解原子分子的高次谐波产生过程^[7]:1) 电子通过隧穿电离;2) 电子在激光场中传播;3) 自由电子返回束缚态并伴随高能光子的释放。

近年来,两中心对称分子的高次谐波产生得到广泛研究,如 H_2^+ ^[8-9] 和 N_2^+ ^[10-11]。结果表明,一个显著的最小值出现在 H_2^+ 的高次谐波谱上^[8],这个最小值得到了

广泛的理论和实验研究^[12-14],并在分子轨道层析成像中显示了其重要意义^[10]。对于 HeH^{2+} ^[15-17]、 CO ^[18-19] 和 NO ^[20] 等两中心不对称分子,其对称性破缺导致奇偶谐波产生。研究表明,奇偶谐波谱具有不同谱的性质^[21-22],并携带不同靶的信息^[23-24]。在高次谐波谱中,奇偶谐波具有重要的应用前景:利用奇偶高次谐波谱与分子结构的关系,重构不对称分子轨道^[19];在不对称库仑势的作用下,利用奇偶高次谐波谱,探究电子的超快动力学^[25-26]。之前主要研究方向为取向双原子分子的奇偶谐波谱,最近学者们越来越关注激光与多原子分子的相互作用,如平面分子 H_3^+ ^[27]、 H_3^+ ^[28] 和 D_3^+ ^[29]。对于平面三角形分子 H_3^+ ,奇偶谐波都会释放,由于分子轨道不对称性,平面分子 H_3^+ 的情况更加复杂,并可

收稿日期: 2021-11-11; 修回日期: 2021-12-10; 录用日期: 2021-12-17; 网络首发日期: 2022-01-05

基金项目: 国家自然科学基金(11904310)、延安市专项基金(2019-03)、延安大学博士科研启动项目(YDBK2018-32, YD-BK2018-33)

通信作者: liyanpeng1107@163.com

能出现一些新效应。本课题组之前已通过奇偶谐波谱探测过多中心线性分子的结构^[30],为了将奇偶高次谐波谱应用于不同构型的多中心不对称分子,需对此问题进行详细的理论研究。

通过求解含时薛定谔方程的数值方法,详细研究了不同取向角及不同分子构型下三维取向的平面分子 H_3^{2+} 的奇偶高次谐波产生。结果表明:奇偶谐波谱对平面取向角、空间取向角及核间距比较灵敏,因此奇偶谐波的相对产量及交点随着平面取向角、空间取向角和分子构型的变化而变化。在实验中,平面分子 H_3^+ 是通过平面分子 H_3^{2+} 释放一个电子得到的,但是其不稳定。在平面分子 H_3^{2+} 不稳定的情况下,化学反应中的三角键长在近飞秒时间尺度上是变化的^[28],模拟表明不同分子构型下的瞬时键长可通过不同取向角下奇偶谐波来重构。

2 数值方法

所研究的三核平面分子 H_3^{2+} 的哈密顿函数为 $H(t) = \frac{p^2}{2} + V(\mathbf{r}) + \mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t)$, \mathbf{p} 和 \mathbf{r} 为电子的动量和位矢。采用的是原子单位 $\hbar = e = m_e = 1$ 。其中平面分子 H_3^{2+} 被假设位于 xoy 平面内,激光场在取向 $\Omega = (\theta, \varphi)$ 方向是线极化的。在三维模拟中,平面分子 H_3^{2+} 坐标系统缩略示意如图 1 所示。分子系统的质心与坐标系的原点 o 重合, θ 为激光极化与 z 轴的夹角,而 φ 为激光极化的方位角, R_1, R_2, R_3 为核间距。采用的软心库仑势为 $V(\mathbf{r}) = -\frac{Z}{\sqrt{\xi + (\mathbf{r} - \mathbf{R}_a)^2}} - \frac{Z}{\sqrt{\xi + (\mathbf{r} - \mathbf{R}_b)^2}} - \frac{Z}{\sqrt{\xi + (\mathbf{r} - \mathbf{R}_c)^2}}$, $\xi = 0.5$ 为用来避免库仑奇点的软心参数, Z 为有效电荷,通过调整 Z 获得期望的基态能量, $\mathbf{R}_a, \mathbf{R}_b, \mathbf{R}_c$ 为原点与 3 个核之间的矢。 $\mathbf{E}(t) = ef(t)E \sin \omega_0 t$ 为外电场, $f(t)$ 为包络函数, $\mathbf{e} = \mathbf{e}(\theta, \varphi) = (\sin \theta \cos \varphi, \sin \theta \sin \varphi, \cos \theta)$ 为沿着激光极化方向的单位矢, E 和 ω_0 分别为外电场的振幅及频率。

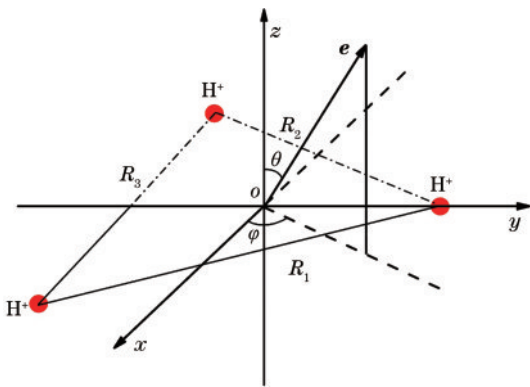


图 1 三维模拟中平面分子 H_3^{2+} 的坐标系统示意图

Fig. 1 Schematic diagram of coordinate system of planar molecules H_3^{2+} in 3D simulation

在计算中采用 10 个周期的激光脉冲,其中 3 个光学周期是线性上升的,另外 7 个光学周期保持不变。所采用的激光强度和波长分别为 $I = 8 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 和 $\lambda = 800 \text{ nm}$ 。含时薛定谔方程 $i\dot{\psi}(t) = H(t)\psi(t)$ ($\dot{\psi}(t)$ 为波函数 $\psi(t)$ 的导数)通过谱方法^[31]数值求解,每个周期的时间格点是 2048,对于精确的模拟,采用的空间格点为 $L_x \times L_y \times L_z = 410 \times 51 \times 51 \text{ a. u.}$,空间步长为 $\Delta x = \Delta y = \Delta z = 0.4 \text{ a. u.}$ 。每个时间步长后,将 $H(t)$ 的含时薛定谔方程的 $\psi(t)$ 乘以一个窗函数,用以吸收边界处的连续态波包。沿着 x 轴的窗函数有下列形式:当 $|x| \leq x_0$ 时, $F(x) = 1$; 当 $|x| \geq x_0$ 时, $F(x) = \cos^{\frac{1}{8}} \left[\pi \frac{|x| - x_0}{L_x - 2x_0} \right]$, 采用 $x_0 = \frac{L_x}{8}$ 作为沿着 x 轴方向吸收方案的边界, y 轴、 z 轴相似处理。得到含时薛定谔方程的波 $\psi(t)$, 高次谐波谱的干涉项 $F_{\parallel}(\omega)$ 可表示为

$$F_{\parallel}(\omega) = \langle \psi(t) | \mathbf{e}_{\parallel} \cdot \nabla V | \psi(t) \rangle \exp(i\omega t) dt, \quad (1)$$

式中: \mathbf{e}_{\parallel} 为激光极化方向, ω 为释放光子频率; ∇V 为对库仑势求梯度。为了便于比较,此处不同分子构型的平面分子 H_3^{2+} 具有相同的电离能 $I_p = 1.285 \text{ a. u.}$ 。

3 解析方法

基于强场近似原理^[32],由于势的对称性,原子和对称分子仅释放奇次谐波,奇次谐波的产生路径可简单表示为 $\langle p | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} | 0 \rangle \langle 0 | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} | p \rangle_r$, 此公式意味着电子从相同的初始态 $|0\rangle$ 电离出来并重新与之复合,其中初始态 $|0\rangle$ 具有确定的宇称,在高次谐波产生过程中,偶极矩阵元 $\langle p | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} | 0 \rangle_i$ 与电子沿着激光极化方向 \mathbf{e}_x 电离有关,而偶极矩阵元 $\langle 0 | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} | p \rangle_r$ 与电子沿着 \mathbf{e} 方向复合有关。

不对称分子高次谐波的产生是一个多通过程,例如本研究中的模型平面分子 H_3^{2+} , 基态 $|0\rangle$ 没有确定的宇称,结果奇偶谐波谱都会释放,这种情况下基态可以分解为偶宇称和奇宇称,即 $|0\rangle = |0_g\rangle + |0_u\rangle$ 。因此不对称分子奇次谐波的释放由两条路径产生贡献,可以表示为 $L_{gg}^o = \langle p_u | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} | 0_g \rangle_i \langle 0_g | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} | p_u \rangle_r$ 和 $L_{uu}^o = \langle p_g | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} | 0_u \rangle_i \langle 0_u | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} | p_g \rangle_r$, 第一条路径 L_{gg}^o 对应电子从初始态的偶宇称 $|0_g\rangle$ 电离并与之复合,第二条路径 L_{uu}^o 对应电子从初始态的奇宇称 $|0_u\rangle$ 电离并与之复合;类似地,当电子从基态的不同宇称电离并返回到基态的不同宇称时,偶次谐波就会释放,通过 $L_{uu}^o = \langle p_u | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} | 0_g \rangle_i \langle 0_u | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} | p_g \rangle_r$ 和 $L_{gg}^o = \langle p_g | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} | 0_u \rangle_i \langle 0_g | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} | p_u \rangle_r$ 表示这两条偶次路径。数值模拟表明,基态的偶宇称 $|0_g\rangle$ 更容易通过隧穿电离,因此,这条路径 L_{gg}^o (L_{gu}^e) 在奇(偶)次谐波的释放中起主导作用。此外,在电离过程中,激光场使库仑势发生了严重扭曲,导致电离过程对分子结构不敏感。对于高次谐波的产生,只有返回过程与分子结构紧密相关。对于奇次谐波产生路径 $L_{gg}^o, D_{\text{odd}} = \langle 0_g | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} | p_u \rangle_r$; 对于偶次谐波产生路径 $L_{gu}^e, D_{\text{even}} = \langle 0_u | \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} | p_g \rangle_r$ 。现在探讨三核平面分子

H_3^{2+} 的奇偶高次谐波谱与奇偶束缚态-连续态跃迁偶极矩之间的密切关系。假设平面分子的基态波函数为 $\phi_0(r) = \langle r|0\rangle = N_f [\exp(-\kappa r_a) + \exp(-\kappa r_b) + \exp(-\kappa r_c)]$, $r_a = |r - R_1|$, $r_b = |r - R_2|$, $r_c = |r - R_3|$ 和 $\kappa = \sqrt{2I_p}$, N_f 为归一化系数, I_p 为基态 $|0\rangle$ 的电离能, 故在沿着激光偏振方向, 与奇次谐波释放有关的偶极矩项可以写为

$$D_{\text{odd}}(\omega, \theta, \varphi) \propto G_{\text{odd}}(\omega, \theta, \varphi) \int dr [\phi_0(r) \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} \sin(\mathbf{p}_k \cdot \mathbf{r})], \quad (2)$$

式中: $G_{\text{odd}}(\omega, \theta, \varphi) = \cos(p_k R_1 \cos \theta) + \cos(p_k R_2 \cos \theta) + \cos(p_k R_3 \cos \theta)$ 为干涉项, 在沿着激光偏振方向, 与偶次谐波释放有关的偶极矩项可以写为

$$D_{\text{even}}(\omega, \theta, \varphi) \propto G_{\text{even}}(\omega, \theta, \varphi) \int dr [\phi_0(r) \mathbf{e} \cdot \mathbf{r} \sin(\mathbf{p}_k \cdot \mathbf{r})], \quad (3)$$

式中: $G_{\text{even}}(\omega, \theta, \varphi) = \sin(p_k R_1 \cos \theta) + \sin(p_k R_2$

$\cos \theta) + \sin(p_k R_3 \cos \theta)$ 为干涉项。连续态由平面波函数 $|\exp(i\mathbf{p}_k \cdot \mathbf{r})\rangle$ 近似得到, 动量大小 $|\mathbf{p}_k| = \sqrt{2\omega}$, 这里考虑了库仑效应^[10]。

基于强场近似, 沿激光偏振方向相应偶极矩 $D_{\text{odd(even)}}$ 和高次谐波谱 $S_{\text{odd(even)}}$ 之间的定性关系^[10,19] 为

$$S_{\text{odd}}(\omega, \theta, \varphi) = \sqrt{N(\theta, \varphi)} a(\omega) D_{\text{odd}}(\omega, \theta, \varphi),$$

$$S_{\text{even}}(\omega, \theta, \varphi) = \sqrt{N(\theta, \varphi)} a(\omega) D_{\text{even}}(\omega, \theta, \varphi), \quad (4)$$

式中: $a(\omega)$ 为 θ 和 φ 的不敏感连续电子的光谱振幅; $N(\theta, \varphi)$ 为电离率。

4 数值结果和讨论

平面分子 H_3^{2+} 在不同的平面和空间取向角下沿着激光偏振方向发射的奇偶高次谐波谱如图 2 所示, 图 2 中所采用的核间距为 $R_1 = 1.8$ a. u.、 $R_2 = 1.6$ a. u. 和 $R_3 = 2$ a. u., 且每列数据具有相同的空间取向角 θ , 结果显示在每列的顶部。

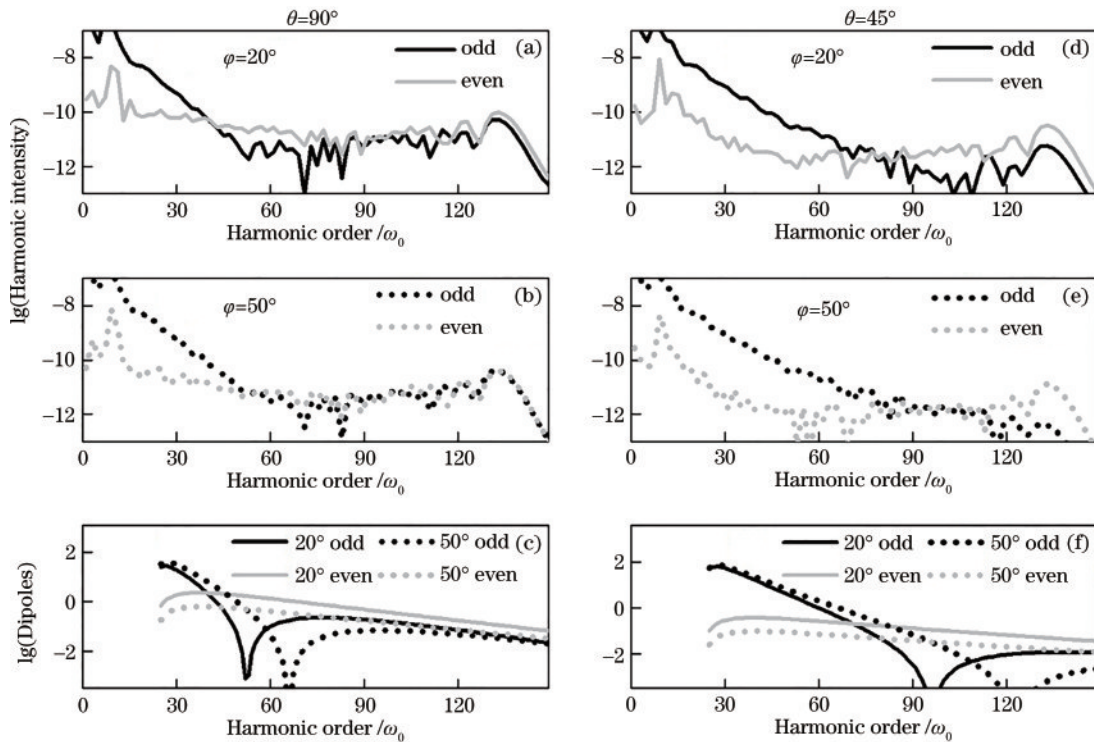


图 2 三维取向平面分子 H_3^{2+} 的奇偶谐波谱和相应偶极矩的比较。(a) $\theta = 90^\circ$, $\varphi = 20^\circ$ 的奇偶谐波谱; (b) $\theta = 90^\circ$, $\varphi = 50^\circ$ 的奇偶谐波谱; (c) $\theta = 90^\circ$, $\varphi = 20^\circ$ 及 $\varphi = 50^\circ$ 的奇偶偶极矩; (d) $\theta = 45^\circ$, $\varphi = 20^\circ$ 的奇偶谐波谱; (e) $\theta = 45^\circ$, $\varphi = 50^\circ$ 的奇偶谐波谱; (f) $\theta = 45^\circ$, $\varphi = 20^\circ$ 及 $\varphi = 50^\circ$ 的奇偶偶极矩

Fig. 2 Comparison of odd and even harmonic spectra and corresponding dipoles of 3D orientation planar molecules H_3^{2+} . (a) $\theta = 90^\circ$, $\varphi = 20^\circ$ odd and even harmonic spectra; (b) $\theta = 90^\circ$, $\varphi = 50^\circ$ odd and even harmonic spectra; (c) $\theta = 90^\circ$, $\varphi = 20^\circ$ and $\varphi = 50^\circ$ odd and even dipoles; (d) $\theta = 45^\circ$, $\varphi = 20^\circ$ odd and even harmonic spectra; (e) $\theta = 45^\circ$, $\varphi = 50^\circ$ odd and even harmonic spectra; (f) $\theta = 45^\circ$, $\varphi = 20^\circ$ and $\varphi = 50^\circ$ odd and even dipoles

图 2 中: φ 为平面取向角; odd 为奇次谐波谱; even 为偶次谐波谱; 20° odd 为 $\varphi = 20^\circ$ 的奇次固有偶极矩, 20° even 为 $\varphi = 20^\circ$ 的偶次固有偶极矩, 50° odd 为 $\varphi = 50^\circ$ 的奇次固有偶极矩, 50° even 为 $\varphi = 50^\circ$ 的偶次固有

偶极矩。对于大角度和中间角 θ 及所有角 φ , 通过比较发现不同构型的平面分子 H_3^{2+} 的偶次谐波的发射较强 (除了由于分子的几何形状 $\varphi = 60^\circ$ 的等边三角形情况)。总体上偶次谐波随空间取向角 θ 的减小而减小, 当 $\theta = 0^\circ$ 时, 偶次谐波产量消失, 且 $\varphi = 90^\circ$ 的偶次谐波产量比 $\varphi = 0^\circ$ 时偶次谐波产量高, 奇偶谐波谱的相对产量显示出明显的角依赖。例如图 2(a) 中, 对于低阶谐波谱而言, 偶次谐波的产量低于奇次谐波的产量; 对于中间和高阶次谐波谱则相反: 因此奇偶高次谐波谱有一个明显的交点。随着空间取向角减小及平面取向角增大, 交点的位置向更高阶的谐波方向偏移, 且随着核间距和激光波长的变化, 奇偶谐波的相对产量也会发生变化, 导致奇偶谐波谱的交点会向其他谐波阶方向偏移。

谐波谱和相应偶极矩之间进一步的比较表明: 在不同角度下, 图 2 中奇偶谐波的相对产量与相关偶极矩的预测一致, 见式 (4)。例如, 在 $\theta = 90^\circ$ 的情况下, 图 2(a) 中 $\varphi = 20^\circ$ 和图 2(b) 中 $\varphi = 50^\circ$ 的奇偶谐波谱交点与图 2(c) 中相应偶极矩曲线的交点一致。这些现象也适用于其他空间取向角 θ 和平面取向角 φ 及不同分子构型的平面分子。通过以上分析, 无论偶次谐波的产量比奇次谐波高, 或与奇次谐波产量差不多, 奇偶高次谐波谱在相对产量和交点方面都与相应的偶极矩很好地吻合。

可从奇偶高次谐波谱上知道奇偶谐波谱交点的能量 ω , 根据高次谐波谱 $S_{\text{odd}(\text{even})}$ 与相应偶极矩 $D_{\text{odd}(\text{even})}$ 之间的定性关系, 再通过奇偶偶极矩 $D_{\text{odd}(\text{even})}$ 的交点来重构多中心不对称平面分子 H_3^{2+} 的键长和键角, 即 $D_{\text{odd}} = D_{\text{even}}$ 。又因为积分项 $\int dr [\exp(-kr) \mathbf{e}_{\parallel} \cdot \mathbf{r} \sin(\mathbf{p}_k \cdot \mathbf{r})]$ 为原子的偶极矩, 而奇偶偶极矩的积分项是相等的, 因此可通过干涉项 $G_{\text{odd}(\text{even})}$ 来重构不对称平面分子 H_3^{2+} 的键长和键角, 即 $G_{\text{odd}} = G_{\text{even}}$ 。假定奇偶谐波谱在 θ_1 和 φ_1, θ_2 和 φ_2 及 θ_3 和 φ_3 三组角上的交点分别位于 3 个不同的谐波阶, 能量分别为 ω_1, ω_2 和 ω_3 , 因此有

$$\begin{aligned} G_{\text{odd}}(\omega_1, \theta_1, \varphi_1) &= G_{\text{even}}(\omega_1, \theta_1, \varphi_1), \\ G_{\text{odd}}(\omega_2, \theta_2, \varphi_2) &= G_{\text{even}}(\omega_2, \theta_2, \varphi_2), \\ G_{\text{odd}}(\omega_3, \theta_3, \varphi_3) &= G_{\text{even}}(\omega_3, \theta_3, \varphi_3). \end{aligned} \quad (5)$$

所有干涉项 G_{odd} 和 G_{even} 都为 R_1, R_2 和 R_3 的函数, 式 (5) 的解给出了 R_1, R_2 和 R_3 的预测。为检测上述方案的适用性, 后续讨论中关注 3 种平面三角形构型: 图 3 中的等边三角形 $R_1 = R_2 = R_3 = 2 \text{ a.u.}$, 图 4 中的等腰三角形 $R_1 = R_2 = 2 \text{ a.u.}$ 及 $R_3 = 1.6 \text{ a.u.}$ 和图 5 中的任意三角形 $R_1 = 1.8 \text{ a.u.}$ 、 $R_2 = 1.6 \text{ a.u.}$ 及 $R_3 = 2 \text{ a.u.}$ 。 ω_1, ω_2 和 ω_3 分别对应三组角 (θ_1, φ_1) 、 (θ_2, φ_2) 和 (θ_3, φ_3) 奇偶谐波交点的谐波能量。在模拟中, 把空间取向角从 $\theta = 90^\circ$ 改变到 $\theta = 45^\circ$, 平面取向

角从 $\varphi = 0^\circ$ 改变到 $\varphi = 90^\circ$, 并在不同交点及不同平面和空间角度下, 对通过式 (5) 重构的键长进行平均, 相关结果如图 3~图 5 所示。

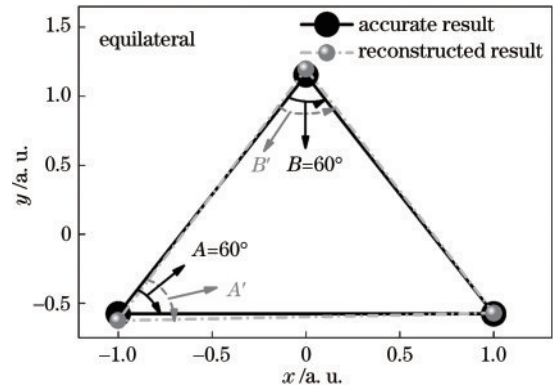


图 3 平面等边三角形构型的结果比较
Fig. 3 Comparison of results for planar equilateral triangle configuration

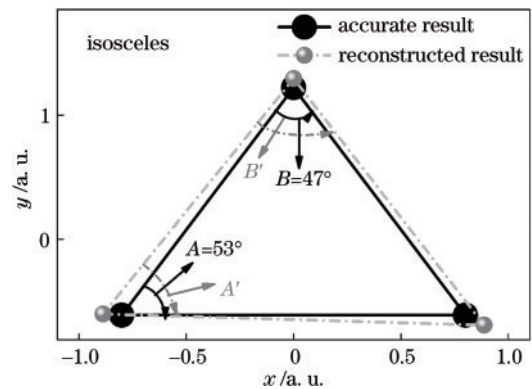


图 4 平面等腰三角形构型的结果比较
Fig. 4 Comparison of results for planar isosceles triangle configuration

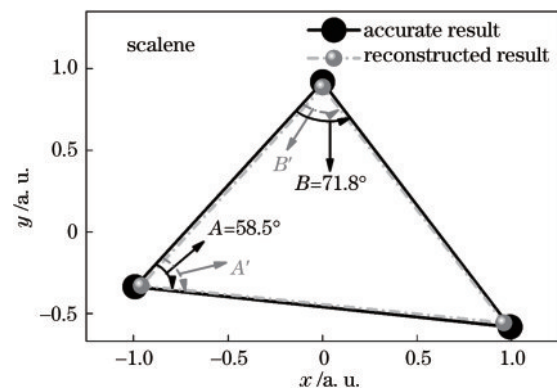


图 5 平面任意三角形构型的结果比较
Fig. 5 Comparison of results for planar scalene triangle configuration

图 3~图 5 中: accurate result 为精确结果; reconstructed result 为基于式 (5) 的重构结果。

从图 3、图 4 和图 5 中可知, 对于所有的平面三角形构型情况, 与精确的键长和键角比, 基于式 (5) 的重构方案基本上重构了键长和键角, 如: 图 3 中的等边三角形,

基于式(5)的重构方案重构了左侧底角 A' 为 59.7° 和顶角 B' 为 58.2° , 非常接近精确的键角 $A = 60^\circ$ 和 $B = 60^\circ$, 基于式(5)重构的键长为 $R'_1 = 2.033$ a. u.、 $R'_2 = 2.08$ a. u. 和 $R'_3 = 2.033$ a. u., 与精确的键长 $R_1 = R_2 = R_3 = 2$ a. u. 也非常接近, 这些结果说明该方案是适用的。在其他激光和分子参数下, 也验证了通过奇偶高次谐波谱重构原子核位置这个简单方法的正确性。

5 结 论

综上, 利用奇偶谐波谱的交点以及谐波谱与相应偶极矩的关系, 在三维空间取向下重构了平面不对称分子 H_3^{2+} 的分子构型。重构的键长和键角与精确的键长和键角符合良好, 这些现象也适用于考虑取向效应的情况。由于平面不对称分子在许多化学反应过程中都是活跃的, 该结果对探索超快过程中平面不对称分子的结构和动力学具有重要意义。

参 考 文 献

- [1] McPherson A, Gibson G, Jara H, et al. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 1987, 4(4): 595-601.
- [2] L'Huillier A, Schafer K J, Kulander K C. Theoretical aspects of intense field harmonic generation[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 1991, 24(15): 3315-3341.
- [3] Corkum P B, Krausz F. Attosecond science[J]. *Nature Physics*, 2007, 3(6): 381-387.
- [4] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2009, 81(1): 163-234.
- [5] Lépine F, Ivanov M Y, Vrakking M J J. Attosecond molecular dynamics: fact or fiction? [J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(3): 195-204.
- [6] Chen J G, Yang Y J, Chen J, et al. Probing dynamic information and spatial structure of Rydberg wave packets by harmonic spectra in a few-cycle laser pulse[J]. *Physical Review A*, 2015, 91(4): 043403.
- [7] Corkum P B. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization[J]. *Physical Review Letters*, 1993, 71(13): 1994-1997.
- [8] Lein M, Hay N, Velotta R, et al. Role of the intramolecular phase in high-harmonic generation[J]. *Physical Review Letters*, 2002, 88(18): 183903.
- [9] Li W Y, Dong F L, Yu S J, et al. Ellipticity of near-threshold harmonics from stretched molecules[J]. *Optics Express*, 2015, 23(24): 31010-31025.
- [10] Itatani J, Levesque J, Zeidler D, et al. Tomographic imaging of molecular orbitals[J]. *Nature*, 2004, 432(7019): 867-871.
- [11] Zhou X X, Tong X M, Zhao Z X, et al. Alignment dependence of high-order harmonic generation from N_2 and O_2 molecules in intense laser fields[J]. *Physical Review A*, 2005, 72(3): 033412.
- [12] Chen Y J, Liu J, Hu B. Reading molecular messages from high-order harmonic spectra at different orientation angles[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2009, 130(4): 044311.
- [13] Chen Y J, Hu B. Role of ionization in orientation dependence of molecular high-order harmonic generation[J]. *The Journal of Chemical Physics*, 2009, 131(24): 244109.
- [14] Li W Y, Wang S, Shi Y Z, et al. Probing the structure of stretched molecular ions with high-harmonic spectroscopy [J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2017, 50(8): 085003.
- [15] Chen Y J, Zhang B. Tracing the structure of asymmetric molecules from high-order harmonic generation[J]. *Physical Review A*, 2011, 84(5): 053402.
- [16] Zhang B, Chen Y J, Jiang X Q, et al. Identifying the interference effect in different harmonic-emission channels from oriented asymmetric molecules[J]. *Physical Review A*, 2013, 88(5): 053428.
- [17] Lu R F, Yu C, Wang Y H, et al. Control of electron localization to isolate and enhance molecular harmonic plateau in asymmetric HeH^{2+} system[J]. *Physics Letters A*, 2014, 378(1/2): 90-94.
- [18] Pan Y, Zhao S F, Zhou X X. Generation of isolated sub-40-as pulses from gas-phase CO molecules using an intense few-cycle chirped laser and a unipolar pulse[J]. *Physical Review A*, 2013, 87(3): 035805.
- [19] Chen Y J, Fu L B, Liu J. Asymmetric molecular imaging through decoding odd-even high-order harmonics [J]. *Physical Review Letters*, 2013, 111(7): 073902.
- [20] Wu J, Zeng H, Guo C L. Triple-ionization-induced dissociation of NO in strong laser fields[J]. *Physical Review A*, 2006, 74(3): 031404.
- [21] Bian X B, Bandrauk A D. Multichannel molecular high-order harmonic generation from asymmetric diatomic molecules[J]. *Physical Review Letters*, 2010, 105(9): 093903.
- [22] Heslar J, Telnov D, Chu S I. High-order-harmonic generation in homonuclear and heteronuclear diatomic molecules: exploration of multiple orbital contributions [J]. *Physical Review A*, 2011, 83(4): 043414.
- [23] Frumker E, Hebeisen C T, Kajumba N, et al. Oriented rotational wave-packet dynamics studies via high harmonic generation[J]. *Physical Review Letters*, 2012, 109(11): 113901.
- [24] Kraus P M, Rupenyan A, Wörner H J. High-harmonic spectroscopy of oriented OCS molecules: emission of even and odd harmonics[J]. *Physical Review Letters*, 2012, 109(23): 233903.
- [25] Frumker E, Kajumba N, Bertrand J B, et al. Probing polar molecules with high harmonic spectroscopy[J]. *Physical Review Letters*, 2012, 109(23): 233904.
- [26] Yu S J, Zhang B, Li Y P, et al. Ellipticity of odd-even harmonics from oriented asymmetric molecules in strong linearly polarized laser fields[J]. *Physical Review A*, 2014, 90(5): 053844.
- [27] Lötstedt E, Kato T, Yamanouchi K. D_3^+ and H_3^+ in intense laser fields studied with a quasiclassical model[J]. *Physical Review A*, 2012, 85(5): 053410.

- [28] Lefebvre C, Lu H Z, Chelkowski S, et al. Electron-nuclear dynamics of the one-electron nonlinear polyatomic molecule H_3^{2+} in ultrashort intense laser pulses [J]. *Physical Review A*, 2014, 89(2): 023403.
- [29] Lötstedt E, Kato T, Yamanouchi K. Classical dynamics of laser-driven D_3^+ [J]. *Physical Review Letters*, 2011, 106(20): 203001.
- [30] Su N, Yu S J, Li W Y, et al. Probing the structure of multi-center molecules with odd-even high harmonics[J]. *Chinese Physics B*, 2018, 27(5): 054213.
- [31] Feit M D, Jr Fleck J A, Steiger A. Solution of the Schrödinger equation by a spectral method[J]. *Journal of Computational Physics*, 1982, 47(3): 412-433.
- [32] Lewenstein M, PhBalcou, Corkum P. B., et al. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields [J]. *Physical Review A*, 1994, 49(3): 2117-2132.