

## コヒーレント軟 X 線の発生と制御

渡部 俊太郎

ガス媒質を使った 3 次高調波の発生は古く、1969 年である<sup>1)</sup>。その後 1978 年に YAG レーザーの 4 倍波の 7 次高調波<sup>2)</sup>、1983 年に KrF レーザーの 7 次高調波 (35 nm) が得られた<sup>3)</sup>。これらの出力は基本波の強度の  $q$  乗 ( $q$  次高調波) に比例するいわゆる摂動論の領域であった。これらは Reintjes の教科書にまとめられている<sup>4)</sup>。

高調波が新たに注目されたのは、ある次数以上で高調波強度が減少しなくなるいわゆるプラトーの出現以降である。まず 1987 年イリノイ大のグループが KrF レーザーを用いて 17 次<sup>5)</sup>、フランスサクレのグループが YAG レーザーの 33 次高調波を観測した<sup>6)</sup>。その後著者らも KrF レーザーの 25 次を観測し波長も 10 nm 以下となった<sup>7)</sup>。短波長レーザー (KrF) を用いるとプラトーというより強度の回復がみられるのに対し、長波長レーザー (YAG) を用いるとプラトーとある次数でのカットオフが明確に観測された事実を当時説明することはできなかった。その後 1 電子近似の非摂動論の数値計算<sup>8)</sup> や解析的手法による高調波の強度分布の説明がなされた<sup>9)</sup>。

特に後者は原子準位を無視し基底状態と自由電子の状態のみを考え、 $\delta$  ファンクションポテンシャルを仮定したモデルであり、これによりプラトーとカットオフをある程度説明できることから、共鳴効果は無関係であることがわかった。Kulander らは数値計算により、カットオフエネルギーが  $I_p + 3U_p$  ( $I_p$ : イオン化ポテンシャル,  $U_p$ : ポンデアモーティブポテンシャル) となることを示した<sup>10)</sup>。Lambropoulos のグループは、He の数値計算から著者らが KrF レーザーで得たデータを He イオンの寄与によって説明した<sup>11)</sup>。その間チタンサファイアレーザーの出現により次数は 100 次以上まで延びた<sup>12)</sup>。この結果は Becker

モデル<sup>9)</sup> によって説明された。

このように、得られた実験データが、数値計算や解析解からよく説明できるようになったが、物理的描像はいまだはっきりしなかった。この問題に答えたのが Corkum の 2 段階モデル (最近では再散乱モデルとも呼ばれる)<sup>13,14)</sup>。

原子の中の 1 電子は強電場下では瞬時に原子から解き放されるが、ある電場の位相で生成した電子は、電場によりもとの原子に引きもどされる。このときにもつ運動エネルギーの最大値が  $3.17U_p$  であり、高調波とは戻り電子とイオン核との再結合により発生するものと考えられる。このモデルは 2 電子イオン化や高調波の偏光依存性もよく説明する。

Lewenstein らはこのモデルに従い、量子論で高次高調波の強度分布と位相を解析的に与えた<sup>15)</sup>。その後チタンサファイアレーザーにおいて 10~20 fs のパルス幅でサブ TW の出力が得られるようになり、これを用いて最短波長が水の窓以下となった<sup>16,17)</sup>。これはイオン化する寸前に瞬間的に高い電場下で高調波が発生するためである。

最近中空ファイバー中の伝搬、自由空間における自己チャネリングにより、空間的な位相整合が得られ<sup>18-20)</sup>、特定の高調波の強度が何桁も向上することがわかった。

また高次高調波による多光子イオン化がみいだされ、これを用いて、高次高調波のパルス幅が測定された<sup>21)</sup>。高調波は強度に比例した位相シフトを受ける。その符号は光カー効果と逆で、時間領域では負のチャープをしている。この性質はまずスペクトルに現れ、基本波のチャープにより、著しい変化を示す<sup>22)</sup>。また負のチャープであれば、正分散を与えれば、パルス圧縮が可能である。著者らにより、パルス圧縮で 13 fs のパルス幅が得られている<sup>23)</sup>。

この論文では (1) 高調波の発生, (2) 高次高調波の諸性質, (3) 位相特性と制御, (4) 高次高調波の応用について述べる。

東京大学物性研究所 (〒277-8581 柏市柏の葉 5-1-5)  
E-mail: watanabe@issp.u-tokyo.ac.jp

# 1. 高次高調波の発生

## 1.1 レーザー強度（光電場）が上がると何が起きるか

クーロン力による原子内電場は  $E = e/4\pi\epsilon_0 r$ （ただし  $\epsilon_0$ ：真空中の誘電率， $r$ ：電子の軌道半径）と表せる。 $r$  を水素の基底状態のボーア半径  $a_0$  とすると，電場は  $5 \times 10^{11}$  V/m となる。レーザー強度は  $I = \epsilon_0 c E^2 / 2$  であり，この電場は  $I = 4 \times 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> に対応する。Ar や Xe の最外殻電子で  $r = 10a_0$  とすると  $4 \times 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> ですでにレーザー電場は原子内電場を超える。これに対し，現在のレーザー技術では  $10^{19}$  W/cm<sup>2</sup> 以上が可能である。

従来，原子内電場に比べ，光電場が十分に弱い場合，高調波の発生は摂動論で扱われた。媒質に誘起される分極は，

$$P = \epsilon_0 (x^{(1)}E + x^{(2)}E^2 + x^{(3)}E^3 + \dots) \quad (1)$$

と展開される。 $x^{(q)}$  は感受率である。反転対称な媒質では  $-E$  に対し  $-P$  となるため偶数次が消え奇数次のみ残る。これに対応する高次高調波の光子数は

$$N_q \propto I^q N^2 b^3 |x^{(q)}|^2 |F_q|^2 \quad (2)$$

と表せる。ここで  $N$  は原子密度， $b$  はコンフォーカルパラメーターで，集光レンズの焦点深度を表し， $b = 2\pi\omega_0^2/\lambda$  ( $\omega_0$ ：焦点のスポット径)， $F_q$  は位相整合積分である。

よく知られたように，レーザー強度の  $q$  乗に比例し，次数が増すごとに指数関数的に強度は減少する。

ところがレーザー強度を増加すると，この予想にまったく反する現象が観測された<sup>6)</sup>。図1に示すように3~7次まではほぼ摂動論に従い，強度は減少するが，それ以降プラトーと呼ばれるほぼ一定の強度を示す領域があり，最後急激なカットオフが観測された。

## 1.2 高次高調波はなぜ発生するか

このような新しい現象を説明するために，より基本的なところから高次高調波の発生機構を考える必要がある。

原子が位相のそろった電場にさらされるとする。原子内の1電子に注目すると，もしこの電子が自由電子ならその運動が電場に追従する。しかし，原子内電子はクーロン力によって束縛されており，自由に動きまわれない。その振動はもとのサイン波からひずみを生じ，ひずんだ双極子モーメントをもつ。よく知られているようにひずんだ振動はいくつかのフーリエ成分に分解できる。このひずみのフーリエ成分が高調波に対応する。

振動電場にさらされた電子の波動関数  $\phi(r, t)$  は

$$i \frac{\partial}{\partial t} \phi(r, t) = (H_0 + V) \phi(r, t) \quad (3)$$

に従う。ここで  $H_0$  は電子のハミルトニアン， $V$  は振動電場との相互作用を表す項で

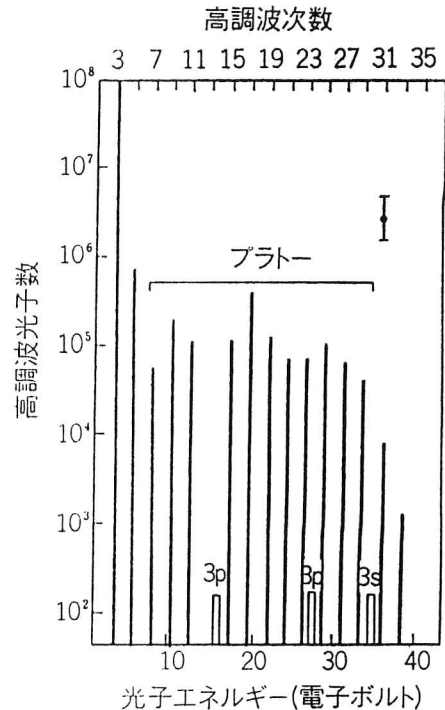


図1 アルゴン気体中に Nd:YAG レーザーを集光して得られた高調波の強度分布<sup>6)</sup>。5次から29次の間光量は1桁以内におさまリプラトーを示す。 $E_p + 3U_p$  のエネルギーでカットオフされる。

$$H_0 = \frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 - \frac{e^2}{r} \quad (4)$$

$$V = eEz \sin \omega t \quad (5)$$

と表せる。ここで  $m$  は電子質量， $e$  は電荷， $E$  はレーザー電場， $\omega$  はレーザー角周波数であり，レーザーは  $z$  方向に直線偏光し，単一周波数とする。双極子モーメントの時間変化  $d(t)$  の期待値は

$$d(t) = \langle \phi(r, t) | er | \phi(r, t) \rangle \quad (6)$$

と表せる。この  $q$  次高調波のフーリエ成分を  $D(q\omega)$  とすると観測される高調波は  $|D(q\omega)|^2$  に比例する。この量自体は偏光面内で一定の広がりをもつ。しかし，実際には入射レーザー光と方向も位相も合った高調波のみコヒーレントに成長する。この位相整合と伝搬を考慮すると， $q$  次高調波の光子数  $N_q$  は

$$N_q \propto |D(q\omega)|^2 N^2 b^3 |F_q|^2 \quad (7)$$

と表せる。

一定の近似のもとで電子の波動関数を決めれば，高次高調波の強度は予測できる。実際数値計算例はたくさんある<sup>8,10)</sup>。これらによってプラトーの出現やカットオフなど説明できるようになった。しかし，必ずしも物理的イメージは明確でない。

これらの現象に対する新しい物理解釈がなされた<sup>13)</sup>。レーザー光の1サイクルを考える。電子は電場の瞬時値に

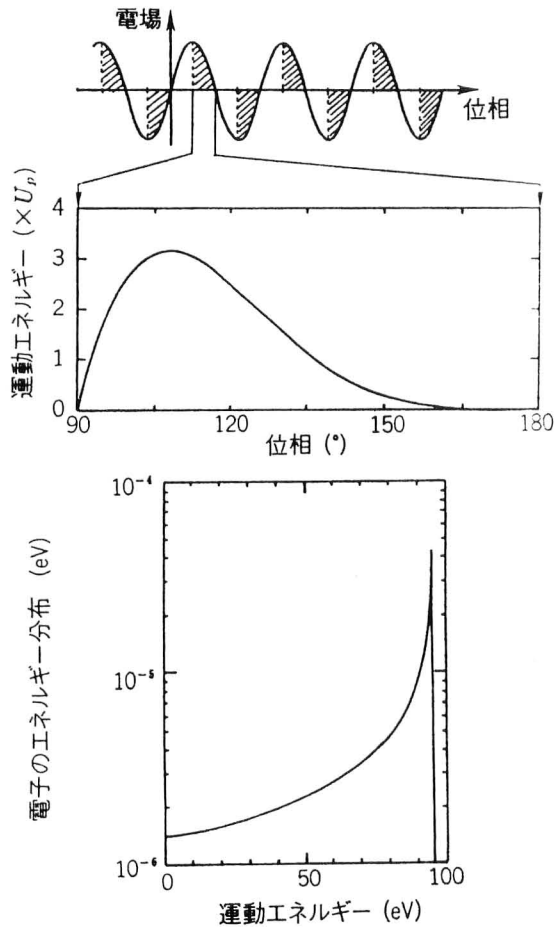


図2 イオン化され飛び出した後、再び原子核近傍に戻る電子のエネルギー分布。波長0.8 μm、レーザー強度5×10<sup>14</sup> W/cm<sup>2</sup>を仮定。レーザー電場の位相(上)、イオン化時の位相に対する戻り電子の運動エネルギー(中)、1サイクル当たりの戻り電子のエネルギー分布(下)。

じた確率でクーロンバリアーをトンネリングし、外に飛び出す。この電子が位相90度以降で生じるとき、この電子は加速され、そして再びイオン核近傍に戻ってくる。電子が飛び出す位相と戻ってきたときの運動エネルギーを図2に示す。最大エネルギーは3.17U<sub>p</sub>である。ここでU<sub>p</sub>(図2)は電子が振動場から受ける平均的エネルギーでポンドロモティブポテンシャルと呼ばれる。U<sub>p</sub>は

$$U_p = e^2 E^2 / 4m\omega^2 \quad (8)$$

図2に1サイクル当たりの戻り電子のエネルギー分布を示す。この戻り電子が基底状態に遷移するときの発光が高調波に対応する。一般に連続スペクトラムになるはずであるが、この現象が各サイクルごとに正確に再現されるため、周期の逆数(レーザーの基本周波数)ごとにスペクトルが観測される。ただ媒質の反転対称性のため奇数次のみが許される。以上のような解釈にたてば、高次高調波の最大エネルギーはI<sub>p</sub>+3U<sub>p</sub>であり、実験と一致する。この単純なモデルに従い、高強度下(U<sub>p</sub>≫I<sub>p</sub>)で量子論的に解析

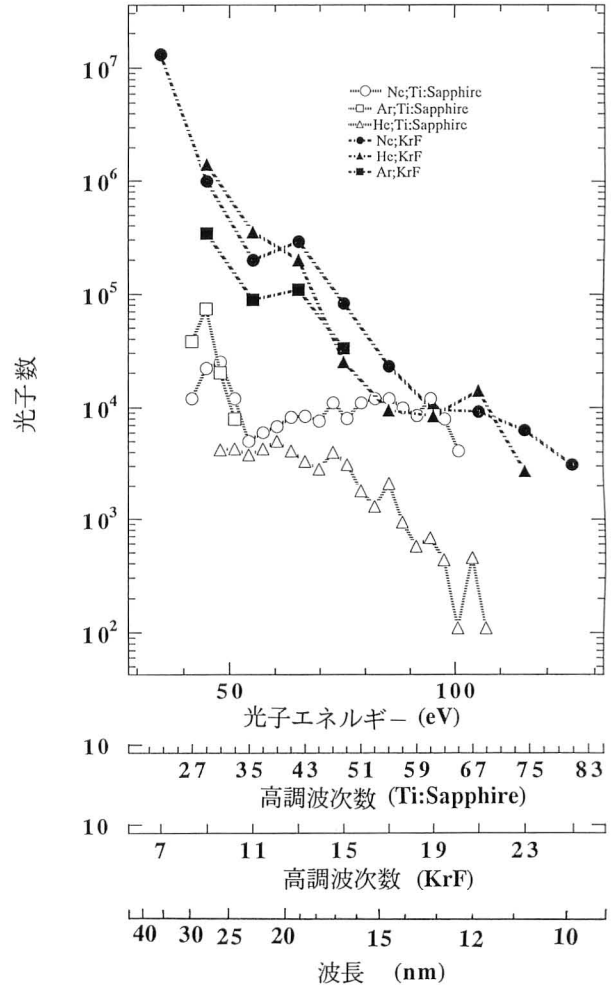


図3 KrF(248 nm)、チタンサファイアレーザー(800 nm)をHe, Ne, Arに集光して得られた高次高調波の分布。

解を求めたのがLewensteinであった<sup>15)</sup>。

## 2. 高次高調波の特性

### 2.1 波長依存性とイオンの寄与

高調波強度の次数依存性でまず問題となったのが、波長依存性であった。図3にKrFレーザー(248 nm)とチタンサファイアレーザー(800 nm)で励起して発生した高次高調波の次数依存性を示す<sup>24)</sup>。Neを媒質とした場合、KrFでは次数とともに急激に減少するが、2か所で強度の回復がみられる。これに対しチタンサファイアではほぼプラトーである。低次ではKrFのほうがはるかに強度が強い。KrFの高次の強度回数がイオンの寄与によって説明できる。これに対しチタンサファイアでは中性原子のみが関与する。低次側でKrFのほうが強いのは、戻り電子の軌跡が小さく、イオン核近傍に局在し、再結合の確率が大きいためである。イオンの寄与はHeにおいてLambropoulosのグループが数値計算によって示した<sup>11)</sup>。

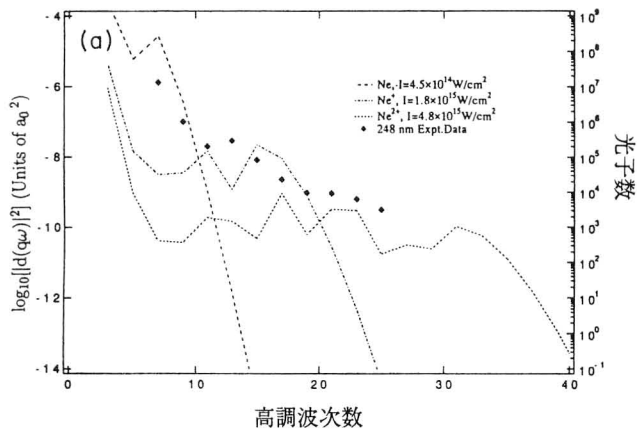


図4 Becker近似と実験の比較. 11次, 19次の回復が各々,  $\text{Ne}^+$ ,  $\text{Ne}^{2+}$ の寄与であることを示す.

図4にBeckerの解析解を用いてNeの次数分布を説明した例を示す<sup>25)</sup>.

高次高調波発生時のレーザー強度をトンネリングイオン化直前に決め, パラメーターとしている. 図5にADKトンネリング理論で計算したレーザー強度とイオン密度の時間変化を示す<sup>25)</sup>. 図4では中性原子, 1, 2価イオンの相互作用強度をこの図から見積もった. このように決めたレーザー強度からNeの2回の強度回復が,  $\text{Ne}^+$ ,  $\text{Ne}^{2+}$ によることがわかる. その後KrFを用いて37次まで観測されている<sup>26)</sup>.

## 2.2 媒質依存性

高調波では詳細は別として原子や分子の準位構造によらず強度の次数依存性が決まる. 強度やカットオフを決めるものは実効的な相互作用レーザー強度である. 実効的なレーザー強度は前述のごとくイオン化によって決まる. このように決めたレーザー強度を用いて計算した高調波強度の次数分布と実験の比較を図6に示す. XeからHeに至る希ガスで, イオン化ポテンシャルの差からカットオフは次第に延びる. しかし低次側の強度はこの順に低下する.

## 2.3 パルス幅依存性

高次高調波の強度, 次数分布, カットオフともにだいたいイオン化によって決まることを述べた. イオン化に要する時間(イオン化確率の逆数)に対し, 励起レーザーパルス幅が長い限り, その通りである. しかしイオン化時間と同程度かそれ以下のレーザーパルス幅では定常的なイオン化強度より高い強度で原子と相互作用をすることにより, カットオフ次数が大幅に延びる. この効果により高次高調波の最短波長は水の窓(2.3~4.4 nm)を超えた<sup>18-20)</sup>.

## 2.4 2波長位相制御

レーザー電場が位相のそろったサイン波であれば異なる波長の位相をずらして任意の非サイン波を作ることができ

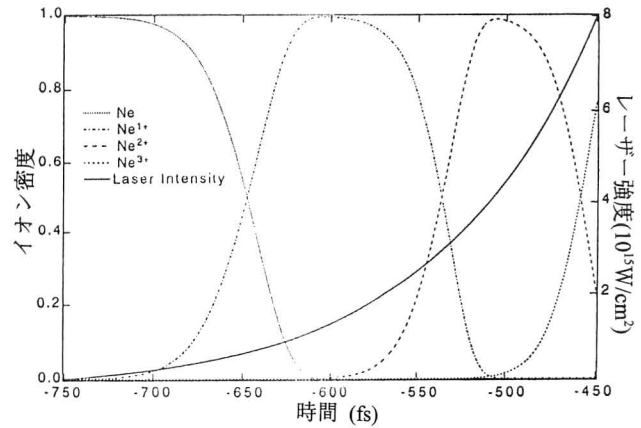


図5 Ne原子・イオン密度の時間変化. KrFレーザーのパルス幅300 fs, 集光強度 $4 \times 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup>の条件下でADK理論を用いて計算. パルスの立ち上がりの部分のみ関与している.

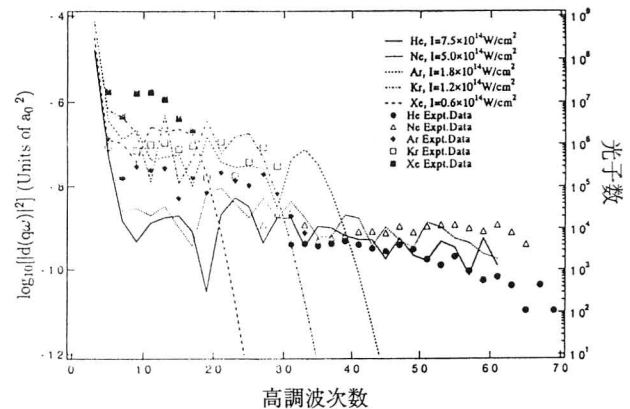


図6 高次高調波次数分布の媒質依存性の実験と計算. 各媒質の相互作用強度はADK理論から3%イオン化する強度とした.

る. 基本波の角周波数を $\omega$ , 電場を $E_\omega$ ,  $n$ 倍波のそれを $n\omega$ ,  $E_{n\omega}$ とすると,

$$E(t) = E_\omega \sin \omega t + E_{n\omega} \sin(n\omega t + \phi) \quad (9)$$

と表せる. ここで $\phi$ は位相差.  $\omega$ と $2\omega$ であれば正負非対称(偏光した光では空間的に非対称)であり,  $\omega$ と $3\omega$ であれば鋭いピークを与える. 前述のモデルに従えば, いずれの場合も電場のピーク値が上がるため, 高調波の強度も最高次数も上がる. また $\omega$ と $2\omega$ の場合空間的非対称性により, 偶数次の高調波が観測されるはずである. 図7にチタンサファイアレーザーの $\omega$ と $2\omega$ を重ねた場合の高調波のスペクトルを示す<sup>27,28)</sup>. 偶数次が観測されるとともに, 低次側では光量も増加する. 今のところ位相整合と基本波のコヒーレンスの問題で最高次数は延びていない. 今後この問題が解決できれば, さらに短波長が狙える.

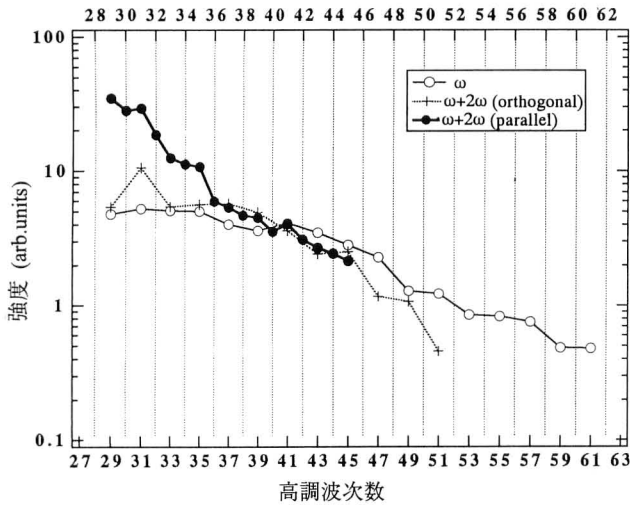


図7 チタンサファイアレーザー (745 nm) の  $\omega$  と  $2\omega$  を用いた 2 波長干渉効果. ●: 2 波長 (偏光は平行), ○:  $\omega$  のみ, 十字 2 波長 (偏光直交). 平行な偏光の 2 波長を重ね合わせると, 偶数次が観測される.

### 3. 高調波の位相特性と制御

#### 3.1 時間・周波数領域での位相とパルス圧縮

前章では高調波の強度について述べたが, その位相も同等に重要である. 強電場下 ( $U_p \gg I_p$ ) で断熱近似の成り立つ条件下では高調波の位相は<sup>22,29)</sup>

$$\phi = \phi_L + \phi_D, \quad \phi_L = q\phi_0, \quad \phi_D = kU_p \quad (10)$$

で近似できる. ただし  $\phi_L$  は基本波 ( $\phi_0$ ) から受け継ぐ位相,  $\phi_D$  は双極子の位相である.  $k$  は比例定数で符号は光電場の表し方によるが (電場を  $e^{i\omega t}$  とするとき, 正), 要は光カー効果と同等な効果で符号が逆である. パルスのピーク付近を放物線で近似すると,

$$\phi_D = k(U_{p0}/\hbar\omega) \{1 - (4 \ln 2/t_0^2) t^2\} \quad (11)$$

となり, 負の線形チャープを表す. ここで  $U_{p0}$  はピークのポンデアモティブポテンシャル,  $t_0$  は基本波のパルス幅 (FWHM). 数値計算でもプラトー領域はいくつもの位相の干渉で複雑になるが, カットオフ領域ではスペクトルが放物線に近く, 線形チャープに近い. 重要なことは高調波発生過程そのものが, チャープをとめない, スペクトルが拡大し, 正しく分散補償を行えばチャープ量に比例して超短パルス化が可能なことである.

$q$  次高調波強度が基本波強度の  $q$  乗に比例する領域 (摂動領域) では高調波のパルス幅は  $1/\sqrt{q}$  (最大の  $q$  は 9 程度) となるが, 波長変換によるパルス幅の減少はせいぜい 1/3 である. これに対しチャープ補償を正しく行えばさらに  $k/q$  倍のパルス圧縮が期待できる.

図 8 に 115 fs の基本波から発生した 5 次高調波を 1 nm 厚の LiF を通し分散補償し, Xe の 4 光子イオン化で自己

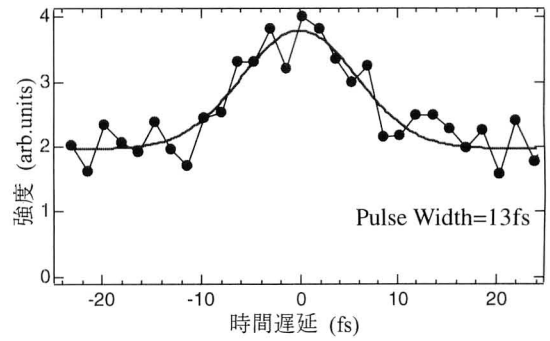


図8 800 nm の 5 次高調波の 4 光子イオン化を用いた自己相関.

相関を測定した例を示す. 13 fs が得られている. 波長変換後 50~60 fs であるからパルス圧縮により約 1/5 になっている<sup>23)</sup>.

高次高調波がレーザー強度に依存した位相変調を受ける効果はスペクトルの変化, 時間空間コヒーレンスに顕著に現れる. 高次の高調波では  $\phi_L$  の寄与が大きくなり, 基本波のチャープの符号により高調波スペクトルはまったく異なる<sup>22)</sup>.

また高調波を基本波の焦点付近で発生させる場合, 強度が空間的に変化するため, 著しい空間的な位相変化が観測される<sup>30)</sup>.

#### 3.2 位相整合

基本波を集光して高次高調波を発生するとき基本波と  $q$  次高調波の広がり角のちがいによる位相不整合が起こり, 十分なコヒーレント長を得ることはできない.

これに対し, 中空ファイバーや自己チャネリングのように平行ビームで伝搬するときは一定条件下で位相整合を行うことができる. 基本波と  $q$  次高調波の位相不整合は

$$\Delta k \approx q(u_{11}^2 \lambda_0 / 4\pi a^2) + N_e r_e (q\lambda_0 - \lambda_q) - (2\pi N_a / \lambda_q) \{ \delta(\lambda_0) - \delta(\lambda_q) \} \quad (12)$$

と近似できる. ここで第 1 項はファイバー伝搬の分散, 第 2 項は自由電子による分散, 第 3 項はガスによる分散に対応する. ここで  $u_{11}=2.4$ ,  $a$  はファイバー内径 (半径),  $N_e$  は電子密度,  $r_e$  は古典的電子半径,  $N_a$  はガス密度,  $\delta(\lambda)$  は中性原子の分散である. 適当なガス圧とイオン化レベルに応じてある高調波について  $kl=0$  ( $l$ : 媒質長) とすることができる. 中空ファイバーや自己チャネリングにより, 特定の高調波で顕著な強度の増加が観測された<sup>18-20)</sup>.

### 4. 高次高調波の応用

図 9 で代表的な XUV・軟 X 線光源である放射光, 反転分布による X 線レーザーと高次高調波を比較する. 高次

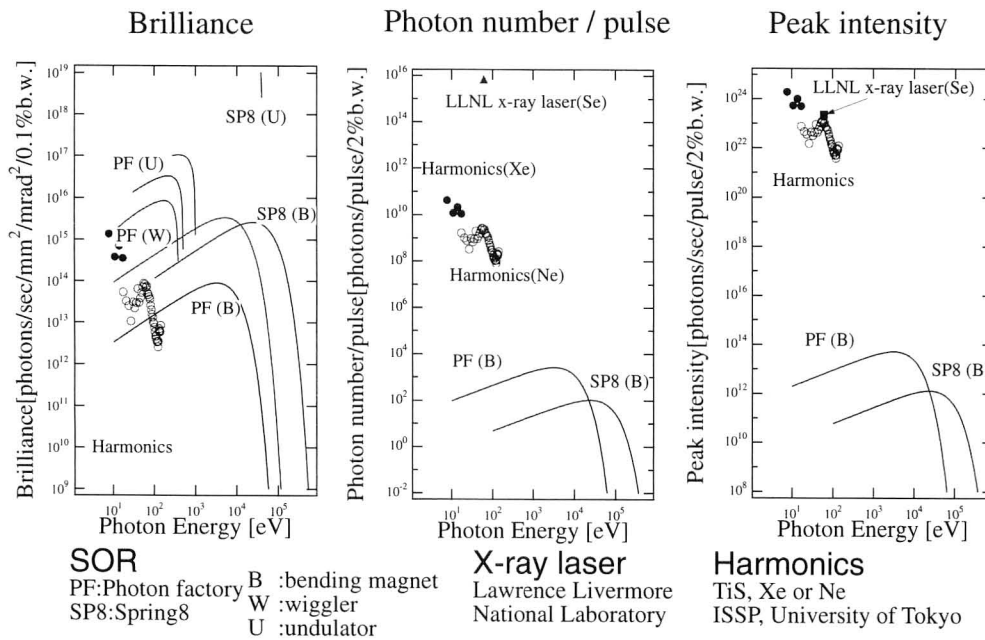


図9 代表的な XUV・軟 X 線光源である放射光，軟 X 線レーザー，高次高調波の比較。右，平均的輝度（ブリリアンス）。中，1パルスのエネルギー輝度。左，ピーク出力輝度。

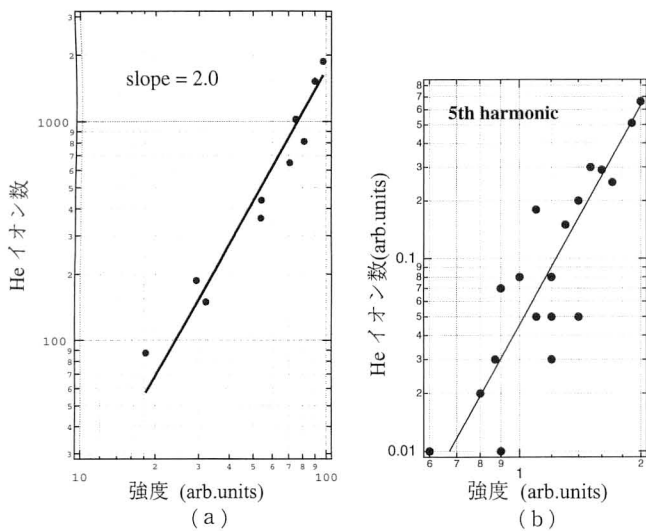


図10 800 nm の9次と5次高調波による多光子イオン化。傾きから2光子 (a), 4光子 (b) イオン化を示す。

高調波は放射光と比べ、平均的輝度（ブリリアンス）では劣るものの超短パルスであり、ピーク輝度において優れている。また X 線レーザーに比べ、パルス幅が短い（X 線レーザーは 100 ps～数 ns）上に高繰り返し化が可能のため平均的輝度で優れる。したがって高次高調波を用いた物理の特徴は非線形過程と時間分解に求められる。

高次高調波が非線形過程を誘起するに十分な強度があるかどうかは、長らく疑問であった。著者らが初めて、非共鳴多光子イオン化を実証した<sup>21,23</sup>。図10に800 nmの9次、5次光を用いた多光子イオン化を示す。イオン化媒質は He である。直線の傾斜から、各々2光子、4光子イオ

ン化が起きていることがわかる。

その他の応用も始まりつつある。超短パルス性を利用した、アルカリハライド結晶のオージェフリー発光の時間分解分光もそのひとつである<sup>31</sup>。また空間的コヒーレンスを利用したプラズマ診断も試みられている<sup>32</sup>。

高次高調波発生は高次非線効果としてそれ自体が、研究の対象であった。最近ではその物理過程が解明され、そのコヒーレント XUV・軟 X 線光源としての側面が重要になってきた。アト秒パルス発生の期待も大きい。高次高調波を光源として使う場合、それにとまなう光学系、分光測定も新たに開発する課題も残されているが、今後 XUV・軟 X 線領域の新光源として定着することを期待したい。

## 文 献

- 1) J. F. Ward and G. H. C. New: Phys. Rev. A, **185** (1969) 57.
- 2) J. Reintjes, C. Y. She and R. C. Eckardt: IEEE J. Quantum Electron., **QE-14** (1978) 581.
- 3) J. Bokor, P. H. Bucksbaum and R. R. Freeman: Opt. Lett., **8** (1983) 217.
- 4) J. Reintjes: *Nonlinear Optical Parametric Processes in Liquids and Gases* (Academic Press, New York, 1984).
- 5) A. McPherson, G. Gibson, H. Iara, H. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer and C. K. Rodes: J. Opt. Soc. Am. B, **4** (1987) 595.
- 6) M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray and C. Manus: J. Phys. B, **21** (1988) L31.
- 7) N. Sarukura, K. Hata, T. Adachi, R. Nodomi, M. Watanabe and S. Watanabe: Phys. Rev. A, **43** (1991) 1669.

- 8) K. C. Kulander and B. W. Shore: Phys. Rev. Lett., **62** (1989) 524.
- 9) W. Becker, S. Long and J. K. McIver: Phys. Rev. A, **41** (1990) 4112.
- 10) J. L. Krause, K. J. Schafer and K. C. Kulander: Phys. Rev. Lett., **68** (1992) 3535.
- 11) H. Xu, X. Tang and P. Lambropoulos: Phys. Rev. A, **46** (1992) R2225.
- 12) J. J. Macklin, J. D. Kmetec and C. L. Gordon III: Phys. Rev. Lett., **70** (1993) 766.
- 13) P. B. Corkum: Phys. Rev. Lett., **71** (1993) 1994.
- 14) K. J. Schafer, B. Yang, L. F. Dimauro and K. C. Kulander: Phys. Rev. Lett., **70** (1993) 1599.
- 15) M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L'Huillier and P. B. Corkum: Phys. Rev. A, **49** (1994) 2117.
- 16) Ch. Spielmann, N. H. Burnett, S. Sartania, R. Koppitsch, M. Schnurer, C. Kan, M. Lenzner, P. Wobrauschek and R. Krausz: Science, **278** (1997) 662.
- 17) Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, M. M. Murnane and H. C. Kapteyn: Phys. Rev. Lett., **79** (1997) 2967.
- 18) Y. Takami, Y. Nagata, M. Obara and K. Midorikawa: Phys. Rev. A, **59** (1999) 4041.
- 19) Y. Takami, J. Itatani, Y. Nagata, M. Obara and K. Midorikawa: Phys. Rev. Lett., **82** (1999) 1422.
- 20) C. G. Durfee III, A. R. Rundquist, S. Buckus, C. Herne, M. M. Murnane and H. C. Kapteyn: Phys. Rev. Lett., **83** (1999) 2187.
- 21) Y. Kobayashi, T. Sekikawa, Y. Nabekawa and S. Watanabe: Opt. Lett., **23** (1998) 64.
- 22) Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, I. Chrisov, H. C. Kapteyn and M. M. Murnane: Phys. Rev. A, **58** (1998) R30.
- 23) T. Sekikawa, T. Ohno, T. Yamazaki, Y. Nabekawa and S. Watanabe: Phys. Rev. Lett., **83** (1999) 2564.
- 24) K. Kondo, N. Sarukura, K. Sajiki and S. Watanabe: Phys. Rev. A, **47** (1993) 2480.
- 25) K. Kondo, T. Tamida, Y. Nabekawa and S. Watanabe: Phys. Rev. A, **49** (1994) 3881.
- 26) K. Midorikawa, Y. Nagata, M. Obana and K. Toyoda: Prog. Cyst. Growth Charact., **33** (1996) 225.
- 27) S. Watanabe, K. Kondo, Y. Nabekawa, A. Sagisaka and Y. Kobayashi: Phys. Rev. Lett., **73** (1994) 2692.
- 28) K. Kondo, Y. Kobayashi, A. Sagisaka, Y. Nabekawa and S. Watanabe: J. Opt. Soc. Am. B, **13** (1996) 424.
- 29) M. Lewenstein, P. Salieres and A. L'Huillier: Phys. Rev. A, **52** (1995) 4747.
- 30) P. Salieres, A. L'Huillier and M. Lewenstein: Phys. Rev. Lett., **74** (1995) 3776.
- 31) T. Sekikawa, T. Ohno, Y. Nabekawa and S. Watanabe: J. Lumin. (in press)
- 32) D. Descamps, C. Lynga, J. Norin, A. L'Huillier, C. G. Wahlström, J. F. Hergott, H. Merdji, P. Salieres, M. Bellini and T. W. Hänsch: Opt. Lett., **25** (2000) 135.

(2000年2月16日受理)