

混合ガス中の高次高調波発生とそのアト秒物理学への応用

金井 恒人・高橋 栄治・鍋川 康夫・緑川 克美

High Harmonic Generation in Mixed Gases and Its Application to Attosecond Physics

Tsuneto KANAI, Eiji J. TAKAHASHI, Yasuo NABEKAWA and Katsumi MIDORIKAWA

We expound a recently-proposed, novel, and simple method to measure harmonic phases by using the interference of harmonics in mixed gases both experimentally and theoretically. First, we describe a fundamental theory of high harmonic generation in mixed gases and by the theory the harmonic phase can be obtained by comparing the harmonic spectra from the two gases and their mixture. Then, we present the first experimental evidence of the destructive and constructive interference of harmonics in a mixed gas of He and Ne, which prove the validity of the method. Finally, as an application to the attosecond physics, we probe attosecond dynamics of nuclear wavepackets in H₂ and D₂ molecules by measuring the relative phase of high harmonics generated in each molecule and the results were successfully reproduced by applying the Feynman's path integral method fully to the dynamics of the nuclei and electrons in the molecules.

Key words: attosecond physics, high harmonic generation, nonlinear optics, multiphoton process, atomic physics

自然に対する最も基本的な理解の方法のひとつに、対象の時々刻々の姿を映画のように記録・分析する方法（時間分解分光）がある。この方法の時間分解能は、通常記録するのに用いるパルスの時間幅によって決まるが、現在では、高次高調波を用いることで80アト秒（as=10⁻¹⁸秒）程度の時間分解能が達成され¹⁾、物質科学における最重要粒子のひとつである電子の運動を追跡できるようになってきた。

このような応用に際して、高次高調波のパルス幅と含まれる光子エネルギー分布を測定することが必要である。後者は分光器により比較的容易に計測することができ、実際、高調波の驚異的な帯域の広さの観測が、アト秒パルスの発生の可能性の根拠であった。一方、実際にパルス幅がアト秒領域にあることを実験的に示すのは難しく、各スペクトル成分が、対象に「十分同時に」到達する、つまり高次高調波のスペクトル位相が十分平坦であることを示さなければならない。実験的には、遅延をつけた2つの高

調波パルス（PANTHER: photoelectron analysis with non-resonant two-photon ionization for harmonic electric-field reconstruction²⁾, FROG: frequency-resolved optical gating³⁾）や、遅延をつけた高調波パルスと基本波（FROG-CRAB: complete reconstruction of attosecond bursts¹⁾, RABITT: reconstruction of attosecond beating by interference of two-photon transition⁴⁾）を気相原子に集光し、二光子過程を経て発生した光電子スペクトルの遅延依存性を観測することにより証明され、超高速科学に大きなインパクトを与えた。しかしながら、一般に電磁波の波長が短くなればなるほど、このような非線形過程を起こすことが難しいことが知られており、実際、高調波パルスのパルス幅の測定に成功したのは、高出力・高品質な高調波パルスを発生させる技術をもつ、世界でも数か所の研究所・大学に限られている。そこで、本解説では微弱な高調波パルスに対しても適用可能な、混合ガスを用いる高調波の位相測定の簡単な手法を世界で初めて提案し、実証実験を行う（第1～2章）⁵⁾。

(独)理化学研究所高強度軟X線アト秒パルス研究チーム (〒351-0198 和光市広沢 2-1) E-mail: tkanai@riken.jp

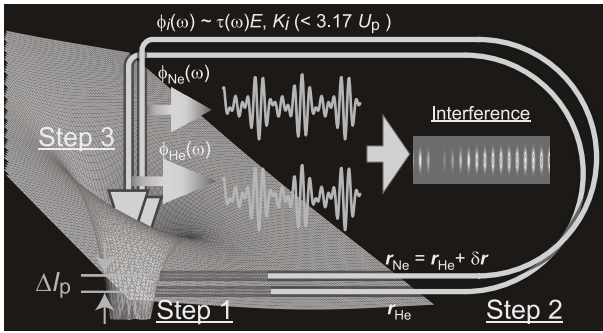


図1 混合ガス中の高次高調波発生に寄与する電子の2つの量子経路. 量子経路 δr の変分が高次高調波の位相差を生む. ここで, ΔI_p は2つのポテンシャルの差を表す.

また, 高次高調波のパルス幅がアト秒領域にあることは, その発生機構 (three-step model とよばれ, トンネルイオン化, レーザー電場中の電子の運動, 親イオンとの再結合の3つのステップを経て高調波は発生する (図1)^{6,7)} の中に同程度の時間スケールをもつ超高速現象が存在することを示している. 近年, この高次高調波の発生機構そのものを利用した分子構造の新しい超高速構造解析法が脚光を浴びており⁸⁻¹⁴⁾, 原子や分子中の超高速運動に関して新たな知見が得られるようになってきた. しかしながら, これらの研究においては実験的に得られた高調波の強度スペクトルの情報のみから議論しており, 高調波のスペクトル位相について理論的な仮定が必要であった. 第3章では, 本手法により高調波の位相を実験的に求め, 原子や分子のアト秒ダイナミクスが高調波の位相に与える影響を検討する^{15,16)}.

1. 混合ガス中における高次高調波発生の基礎理論

最初に混合ガスから発生する高調波の発生モデルを概観する. 気体1, 2とその混合気体からの高調波スペクトル, $P_1(\omega)$, $P_2(\omega)$, $P_{1+2}(\omega)$ を考える. これらの間には線形な関係式, $P_{1+2}(\omega) = P_1(\omega) + P_2(\omega)$ は成り立たない. その第一の理由は高次高調波のコヒーレンスにある. $P_{1+2}(\omega)$ には各成分からの高調波が重ね合わせの原理にしたがってコヒーレントに足し合わされる. 一般には, この干渉効果のほかに, 高次高調波の再吸収, 高調波と基本波の位相整合等の過程が影響を及ぼす. 混合気体中の高次高調波の伝搬方程式のソース項に, その原子・分子中の電子の運動を記述するSFA (strong field approximation) 理論を組み込んで解析的に積分すると, 混合気体におけるスペクトル $P_{1+2}(\omega)$ は

$$P_{1+2}(\omega_q) \propto I_{\text{gen}}(\omega_q) \times I_{\text{prop}}(\omega_q)$$

$$I_{\text{gen}}(\omega_q) := (\rho_{\text{tot}} L)^2 |\langle d(\omega_q) \rangle|^2$$

$$I_{\text{prop}}(\omega_q) := \frac{(2L_a)^{-2} + \pi^2 L_c^{-2}}{1 + e^{-L_a^{-1}} - 2 \cos(\pi L_c^{-1}) e^{-2L_a^{-1}}} \quad (1)$$

と表される. ここで, $\omega_q = q\omega_0$, $\rho_{\text{tot}} := \sum_i \rho_i$ (ρ_i は気体 i の密度), L は媒質長, $\langle \dots \rangle$ は密度による重み付き平均を表す. 例えば, $r_i := \rho_i / \rho_{\text{tot}}$ として, $\langle d(\omega_q) \rangle = \sum_i r_i d_i(\omega_q)$ である. $L_a := [2\rho_{\text{tot}} L \lambda_0 r_e \langle f_2 \rangle / q]^{-1}$ は規格化された吸収長, $\lambda_0 := 2\pi c / \omega_0$, r_e は古典電子半径, f_2 は散乱因子の虚数成分, $L_c := \pi / (\Delta k_{\text{tot}} L)$ は規格化されたコヒーレンス長, $\Delta k_{\text{tot}} := k_q - qk_0$. ここで, k_q と k_0 はそれぞれ q 次高調波と基本波の波数ベクトルである.

式(1)における第1項, $I_{\text{gen}}(\omega_q)$, は高次高調波の発生を表す.

$$I_{\text{gen}}(\omega_q) = \rho_1^2 |d_1(\omega_q)|^2 + \rho_2^2 |d_2(\omega_q)|^2 + 2\rho_1 \rho_2 |d_1(\omega_q)| |d_2(\omega_q)| \cos \Delta\Theta(\omega_q) \quad (2)$$

ここで, $\Delta\Theta(\omega_q) := \Theta_2(\omega_q) - \Theta_1(\omega_q)$ は, 気体1, 2から発生した高調波の相対位相であり, 相対位相の大きさに従って干渉することがわかる. さらに, 高調波の three-step model によると, この相対位相は電子のレーザー電場による超高速運動と密接にかかわっている. 一方, 式(1)における第2項, $I_{\text{prop}}(\omega_q)$, は高次高調波の伝搬効果を表し, 混合気体における高次高調波発生の高出力化の指針を与える. さて, 発生した高次高調波の光子密度が基本波の光子密度と比べて十分に小さい場合, 単原子応答, $d_i(\omega_q)$ は基本波に対する応答で十分よく記述できる. したがって, 干渉を観測することで, 基本波に対する応答を観測することができる. 一方, 高次高調波の光子密度が基本波の光子密度に対して無視できない場合, 一方の媒質で発生した高調波が他方の媒質における高調波発生のメカニズムそのものに影響を与える¹⁷⁾.

2. 混合気体を用いた高調波位相の新しい測定法と電子のアト秒領域の運動時間の測定

冒頭で紹介したように, 高次高調波の位相を測定することは, 高調波のパルス幅の測定や, 高次高調波の発生過程そのものを用いた構造解析法にとって決定的な意味をもつ. また, 本手法の時間分解能 ($\approx 100 \text{ as}^{11)$) に対応する電子波束の運動時間を実験的に実証した例はなく, 理論的に見積もられた値を仮定しなければならないという問題があった. 本章では, まず混合ガス中の高次高調波発生において自然に現れる干渉現象を利用して高調波の位相を測定できることを実証し, 高調波の位相の物理的起源を考えることにより, 電子波束がアト秒領域の運動をしていること

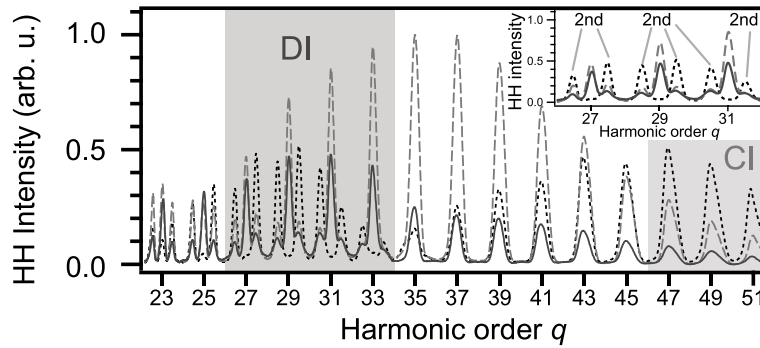


図2 13.5 TorrのHeガス(破線), 1.5 TorrのNeガス(実線), およびその混合ガス(点線)からの高次高調波スペクトル. 差し込み図は, DIが起きている波長領域におけるスペクトルの拡大図. 媒質の長さは130 mm.

を示す.

実験ではフェムト秒チタンサファイアレーザーシステムから出力された光パルス(最大パルスエネルギー ≈ 200 mJ, パルス幅 ≈ 30 fs, 中心波長 ≈ 800 nm)を集光鏡($f=5000$ mm)によりガスセル中に満たしたHeガス, NeガスおよびHeとNeの混合ガスに集光し高次高調波を発生させた. 媒質の長さは130 mmとした. 発生した高次高調波を斜入射分光器で分光し, マイクロチャンネルプレートと組み合わせた蛍光スクリーンの画像をCCDカメラで撮影することにより解析した. ガスセルを用いて, 媒質の状態(媒質の長さ, 各ガスの密度(\sim 分圧)等)を精密に制御することで, 厳密な議論が初めて展開できる. 混合ガス全体に対するNeガスの組成比 r_{Ne} と全圧 $p_{\text{tot}}=p_{\text{He}}+p_{\text{Ne}}$ を変えながら, 高調波スペクトルの変化を観測した.

図2に13.5 TorrのHeガス, および1.5 TorrのNeガス, 15.0 Torrの混合ガス(Neガス濃度 $r_{\text{Ne}}=10\%$)において発生した高次高調波スペクトルを示す. ここで, 23次から35次高調波スペクトルの隣に現れているスペクトルは45次から71次高調波の二次回折光によるものである. 混合ガスを用いることで13.5 TorrのHeガスおよび1.5 TorrのNeガスからの高次高調波を「重ね合わせ」ることができ, その結果29次近傍におけるdestructive interference (DI), 51次近傍におけるconstructive interference (CI)が起きていることがわかる. 特に図2の差し込み図に示されているように, 混合気体中の29次高調波発生はDIによりほぼ完全に抑制されている.

観測されたCIおよびDIの物理的起源を明らかにするため, 高次高調波の伝搬方程式と原子・分子中の電子の運動を記述するSFA理論を組み合わせ, 混合気体中の高次高調波発生の解析的理論モデルを初めて構築した. 混合気体から得られる高次高調波強度は, 各気体の単原子(分子)応答の重みつき重ね合わせと, 高調波が媒質中を伝搬する

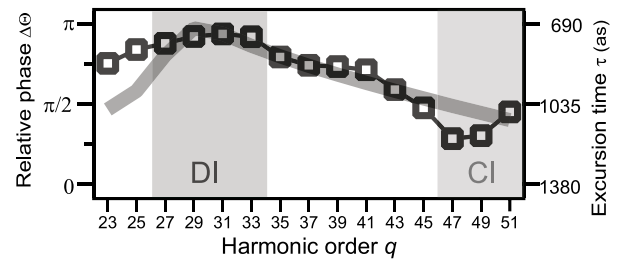


図3 実験的に決定された, 高次高調波の相対位相と対応する電子の伝搬時間(四角)を高次高調波次数 q の関数として示す. 理論計算の結果を実線で示す.

際の散乱効果の積でよく表される. 図2の実験結果から, 単原子応答における高調波の位相差を求めることが可能となる. 単原子(分子)応答における各気体からの高調波の位相 $\Phi_i(\omega_q)$ は, 電子の連続状態における作用の停留値 S_s が重要な役割を果たす.

$$S_s = \tau_s I_p + [\tau_s - 2(1 - \cos \tau_s)] / \tau_s - C(\tau_s) \cos(2t_s - \tau_s) U_p \quad (3)$$

ここで, τ_s は電子の連続状態における伝搬時間, t_s は電子の再結合時刻, U_p はポンドロモータイプポテンシャル, $C(\tau) := \sin(\tau) - 4\sin^2(\tau/2)/\tau$. また量子力学的効果により τ_s は複素数になるため, 伝搬時間を $\tau := \text{Re}(\tau_s)$ と定義する. 多くの文献で混乱がみられるが, three-step modelにおいて, 古典的に求めた伝搬時間は物理的に正しい値を与えないことに注意する必要がある. 実際, 古典力学を用いた値では図3を再現しない. 式(3)において, U_p に比例する項はいわゆるintensity-dependent phaseとよばれ, 位相整合を利用した高次高調波発生の制御の可能性などから, さかんに研究されてきた. 一方, I_p に比例する項についての研究は皆無であった. 本研究において, この項を利用して高調波発生を制御できることが初めて実証された. 2つの代表的な電子軌道の中から短軌道を選択し, He原

子と Ne 原子のようにイオン化ポテンシャルの差が小さい場合には、高調波の位相差 $\Delta\theta$ は

$$\Delta\theta \approx \tau \Delta I_p \quad (4)$$

でよく表される。つまり、観測された CI および DI は高次高調波発生を引き起こす電子の伝搬時間 τ と混合ガスを構成する原子や分子のイオン化ポテンシャルの差 ΔI_p の積により表される。したがって、 ΔI_p が異なる原子や分子を用いることによって、フィルター等を用いずに干渉効果により高次高調波のスペクトル形状を直接制御することができる。また、式 (3) において、 $\Delta\theta$ と I_p は観測可能な物理量であることに注目する。つまり、逆問題として高調波スペクトルにおける干渉パターンを観測することにより、唯一の未知の物理量であった伝搬時間 τ の測定が可能となる。例えば DI が起きている 29 次高調波発生に寄与する電子の伝搬時間 τ は 690 as と決定される (図 3)。

さらに本モデル (式 (1)) により、混合ガスにおける高次高調波発生の最適化条件が解析的に導出される。

$$\Delta\theta \approx 0, \quad 3L_a < 1, \quad 5L_a < L_c$$

ここで、 L_a 、 L_c はそれぞれ混合気体における規格化された吸収長、コヒーレンス長である。後半の 2 つの式は単一ガスにおける最適化条件 (吸収限界条件、位相整合条件¹⁸⁾) の自然な拡張となっている。得られた最適化条件に従い 55 次から 65 次高調波の波長域において高次高調波のパルスエネルギーを最適化した結果、Ne ガスから発生するパルスエネルギーと同等程度の出力を得ることに成功した⁵⁾。

3. ヘテロダイン干渉法のアト秒物理学への応用

第 2 章の実験により、混合気体中の高次高調波発生はイオン化ポテンシャルの差に依存することが明らかになった。高次高調波の three-step model によると、高調波の位相は電子の運動で決まるため、分子を媒質として用いた場合、高調波の位相には分子の振動や回転などの内部運動も影響を与えるはずである。したがって、 H_2 ガスと D_2 ガス¹⁵⁾、 CO_2 ガスと Kr ガス^{16,19)} のようなイオン化ポテンシャルのほぼ等しいガスを混合させ、各媒質において発生する高調波の干渉を観測すれば、分子の内部運動の正味の効果を引き出すことができる。本手法の利点は、性質の似た媒質を注意深く混合することにより、高次高調波の性質に表れる各媒質の構造に由来した微弱な信号を検出できる点にあり、一種のヘテロダイン干渉法といってよい (図 4)。

ここでは、分子の内部運動のひとつである振動が高調波発生に影響を与える例として、 H_2 分子と D_2 分子を扱う。これらの分子では、高調波発生の第 1 ステップであるイオ

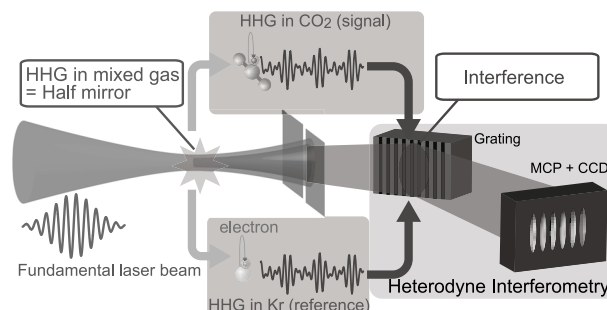


図 4 混合ガス中における高次高調波発生を用いたヘテロダイン干渉計の装置図。

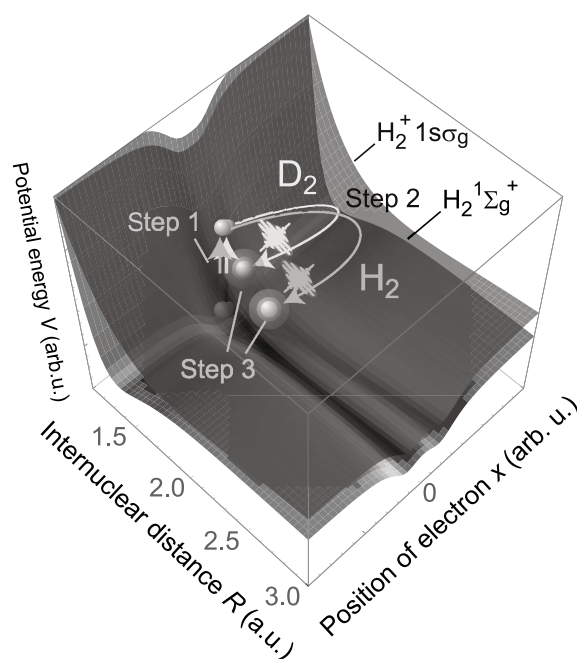


図 5 H_2 と D_2 中の高次高調波発生に寄与する、強く相関した原子核と電子波束のアト秒ダイナミクス。核間距離が大きいとき、高次高調波発生は抑制される。

ン化過程が起こると、ポテンシャル V 上を一価イオンの平衡核間距離に向かって原子核の振動運動が始まり、高次高調波のスペクトルに振動の効果が現れる (図 5)。

実験は、第 2 章と同様のセットアップ・手順で行った。ただし、集光距離 5 m の集光鏡の代わりに、集光レンズ ($f=2400$ mm) を使い、伝搬効果を抑えるため、定常ガセルの長さを短く設定した (セル長 15 mm)。図 6 に H_2 ガス (ガス圧 10.0 Torr)、 D_2 ガス (ガス圧 10.0 Torr)、 H_2 - D_2 ガス (ガス圧 10.0 Torr, 混合比 1:1) において発生した高次高調波スペクトルを示す。まず、 D_2 ガスからの高調波強度が H_2 ガスからの高調波強度より大きいことがわかるが、これは古典的には D 原子のほうが H 原子より慣性質量 M_i が大きいため、イオン化から再結合過程までに広がることのできる核間距離 $R(\tau_e)$ が小さいことにより説明さ

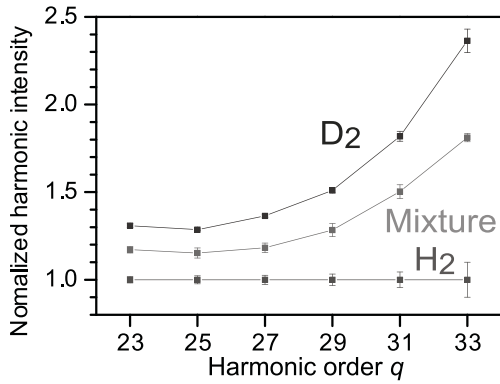


図6 H₂ガス (10.0 Torr), D₂ガス (10.0 Torr), およびそれらの混合ガス (10.0 Torr) からの高次高調波信号の高調波次数を高調波次数 q の関数として示す。信号は H₂ からの信号で規格化しており、縦方向のエラーバーは 800 レーザーショットの標準誤差を示す。

れる (図 7 (a))。一般には、これに原子核の波動関数の広がり起因する量子効果に加わり、原子核と電子が強く相関したこのアト秒領域のダイナミクスは、Feynman のプロパゲーター

$$Z^i(\mathcal{R}, t_s; R, t'_s) = \left(\frac{M^i}{2\pi i \tau_s} \right)^{\frac{1}{2}} \exp \left[i \left[\frac{M^i (\mathcal{R} - R)^2}{2\tau_s} + \frac{f_0 \tau (\mathcal{R} + R)}{2} - \frac{f_0^2 \tau^3}{24M^i} \right] \right] \quad (5)$$

により記述される。ここで、 $R_0 := R(0)$ は中性分子の平衡核間距離 (\mathcal{R} も核間距離を示す), $f_0 := -V'(R_0)$ は原子核が受ける力である。また、レーザー光の集光条件により電子の量子経路として、いわゆる short trajectory (時刻 t'_s に始まり, $t_s = t'_s + \tau_s$ に終わるとする) を選ぶと、高調波の

次数 q の発生に寄与する電子の伝搬時間 τ が一対一に対応する (図 7 (b) の上軸と下軸の対応)。前章と同様に伝搬効果を差し引いて単分子応答を求めると、これらの分子からの高調波の強度比 r , 位相差 $\delta\phi$ が実験的に求められるが、これらは理論的な予言とよい一致を示す (図 7)。さらに、水素分子の核間距離の変化 $\Delta R^{\text{H}_2}(\tau_s(q))$ と高調波の位相差は解析的な関係があることが明らかになった。

$$\Delta R^{\text{H}_2}(\tau_s(q)) \approx \frac{6\Delta\phi(q)}{I'_p(R_0)\tau_s(q)} \quad (6)$$

ここで、 $I'_p(R_0) \approx 0.21$ a.u., $\tau_s = \tau_s(q)$ である。先の伝搬時間と高調波の次数の対応関係と合わせると、高調波の相対位相の次数依存性が、核間距離の時間発展の追跡と対応することになる。

混合ガス中における高次高調波発生とそのアト秒物理学への応用を解説した。混合ガス中の高次高調波発生中に必然的におこる干渉を観測することにより、高調波の位相を測定できること、光電場中での電子の運動をアト秒の時間精度でとらえることに成功した。また、混合ガスの一方に分子を用いることにより、高調波スペクトルに分子の構造変化が実際にアト秒の時間分解能で転写されることが示された。これらの研究により、高次高調波発生を用いた構造解析法の基礎が確立されただけでなく、高調波の位相に着目した、複眼的な新しい解析が可能となった。分子を含む混合ガスを用いて高調波を発生させることで、超高速現象に対する私たちの理解が飛躍的に深まることが期待される。

本研究の一部は日本学術振興会科学研究費補助金若手研究 (B) (No. 20740235), 理化学研究所基礎科学特別研究員プログラムの助成を受けて行われた。また、本稿で紹介

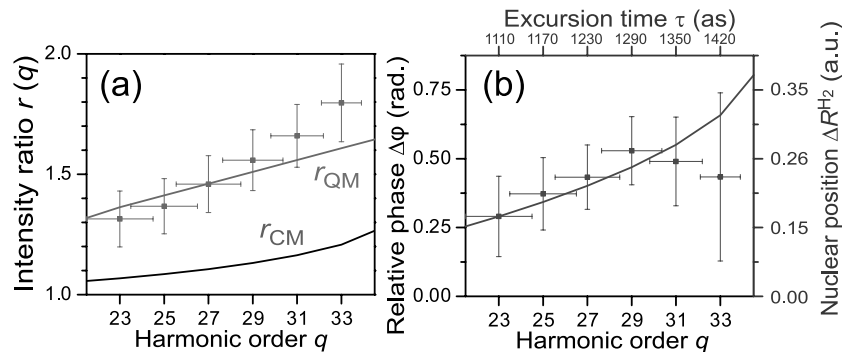


図 7 (a) H₂ と D₂ からの高次高調波強度比を高調波次数 q の関数として示す。測定値を四角で、量子力学的計算値を実線 (r_{QM}) で、古典力学的な計算値を実線 (r_{CM}) で示す。(b) H₂ と D₂ からの高次高調波の位相差を高調波次数 q の関数として示す。測定値を四角で、計算された値を実線 (r_{QM}) で示す。相対位相を測定することは、原子核のダイナミクスを観測することに直接対応し、核間距離 ΔR^{H_2} (右軸) を電子の伝搬時間 τ (上軸) の関数として表すことができる。ここで、垂直、水平方向のエラーバーは、それぞれ 800 レーザーショットの標準誤差と量子力学的不確定性に対応する。

した研究は、多くの方々の協力のもとに行われた。関係各位に深く感謝いたします。

文 献

- 1) E. Goulielmakis, M. Schultze, M. Hofstetter, V. S. Yakovlev, J. Gagnon, M. Uiberacker, A. L. Aquila, E. M. Gullikson, D. T. Attwood, R. Kienberger, F. Krausz and U. Kleineberg: "Single-cycle nonlinear optics," *Science*, **320** (2008) 1614–1617.
- 2) Y. Nabekawa, T. Shimizu, T. Okino, K. Furusawa, H. Hasegawa, K. Yamanouchi and K. Midorikawa: "Conclusive evidence of an attosecond pulse train observed with the mode-resolved autocorrelation technique," *Phys. Rev. Lett.*, **97** (2006) 083901.
- 3) T. Sekikawa, A. Kosuge, T. Kanai and S. Watanabe: "Nonlinear optics in the extreme ultraviolet," *Nature*, **432** (2004) 605–608.
- 4) P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Auge, Ph. Balcou, H. G. Muller and P. Agostini: "Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation," *Science*, **292** (2001) 1689–1692.
- 5) T. Kanai, E. J. Takahashi, Y. Nabekawa and K. Midorikawa: "Destructive interference during high harmonic generation in mixed gases," *Phys. Rev. Lett.*, **98** (2007) 153904.
- 6) P. B. Corkum: "Plasma perspective on strong field multiphoton ionization," *Phys. Rev. Lett.*, **71** (1993) 1994–1997.
- 7) M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L'Huillier and P. B. Corkum: "Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields," *Phys. Rev. A*, **49** (1994) 2117–2132.
- 8) J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, H. Niikura, H. Pepin, J. C. Kieffer, P. B. Corkum and D. M. Villeneuve: "Tomographic imaging of molecular orbitals," *Nature*, **432** (2004) 867–871.
- 9) T. Kanai, S. Minemoto and H. Sakai: "Quantum interference during high-order harmonic generation from aligned molecules," *Nature*, **435** (2005) 470–474.
- 10) K. Miyazaki, M. Kaku, G. Miyaji, A. Abdurrouf and F. H. M. Faisal: "Field-free alignment of molecules observed with high-order harmonic generation," *Phys. Rev. Lett.*, **95** (2005) 243903.
- 11) S. Baker, J. S. Robinson, C. A. Haworth, H. Teng, R. A. Smith, C. C. Chirila, M. Lein, J. W. G. Tisch and J. P. Marangos: "Probing proton dynamics in molecules on an attosecond time scale," *Science*, **312** (2006) 424–427.
- 12) N. L. Wagner, A. Wuest, I. P. Christov, T. Popmintchev, X. Zhou, M. M. Murnane and H. C. Kapteyn: "Monitoring molecular dynamics using coherent electrons from high harmonic generation," *Proc. Nat. Acad. Sci. USA*, **103** (2006) 13279–13285.
- 13) P. Baum and A. H. Zewail: "Attosecond electron pulses for 4D diffraction and microscopy," *Proc. Nat. Acad. Sci. USA*, **104** (2007) 18409–18414.
- 14) M. Lein: "Molecular imaging using recolliding electrons," *J. Phys. B*, **40** (2007) R135.
- 15) T. Kanai, E. J. Takahashi, Y. Nabekawa and K. Midorikawa: "Observing attosecond dynamics of nuclear wavepackets in molecules by using high harmonic generation in mixed gases," *New J. Phys.*, **10** (2008) 025036.
- 16) T. Kanai, E. J. Takahashi, Y. Nabekawa and K. Midorikawa: "Observing molecular structures by using high harmonic generation in mixed gases," *Phys. Rev. A*, **77** (2008) 041402(R).
- 17) E. J. Takahashi, T. Kanai, K. L. Ishikawa, Y. Nabekawa and K. Midorikawa: "Dramatic enhancement of high-order harmonic generation," *Phys. Rev. Lett.*, **99** (2007) 053904.
- 18) E. Constant, D. Garzella, P. Breger, E. Mével, Ch. Dorrer, C. LeBlanc, F. Salin and P. Agostini: "Optimizing high harmonic generation in absorbing gases: Model and experiment," *Phys. Rev. Lett.*, **82** (1999) 1668–1671.
- 19) N. Wagner, X. Zhou, R. Lock, W. Li, A. Wuest, M. Murnane and H. Kapteyn: "Extracting the phase of high-order harmonic emission from a molecule using transient alignment in mixed samples," *Phys. Rev. A*, **76** (2007) 061403(R).

(2010年11月19日受理)