搬送波包絡線位相安定化・波長可変中赤外フェムト秒レーザによる樹脂材料の Optical poling 型微細加工

自然科学研究機構　分子科学研究所
特任講師　金井　恒人
（2022 年度　一般研究開発助成 AF-2022234-B3）

キーワード：搬送波包絡線位相，波長可変中赤外フェムト秒レーザ，optical poling

１．研究の目的と背景

搬送波包絡線位相[Carrier-Envelope Phase，CEP，図1(a)]安定化技術[1-4]は主に可視・近赤外領域における単一アト秒パルス発生や，テラヘルツ領域における時間領域分光技術(Time-Domain Spectroscopy，TDS)において成功を収めたが，レーザ加工への応用は未踏領域と言って良い．可視・近赤外領域のレーザ加工に用いられるレーザ電場強度は Keldysh パラメーター $\gamma := [I_p/(2U_p)]^{1/2}$ が1 より大きい多光子領域（I_pは固体の場合，競合過程によって仕事関数かバンドギャップを採用，U_pはポンデロモーティブポテンシャル）にあるためCEPの効果が現れにくく，また，テラヘルツ領域では集光強度を上げることの困難さからレーザ加工そのものを行うことが難しい．両者の中間の波長域である中赤外光はレーザ微細加工に十分な集光性を備えるとともに，Keldysh パラメータがレーザ波長に反比例するため，非摂動論領域($\gamma \ll 1$) も実現可能であるが，(i) 中赤外の高出力レーザが世界で数か所しか存在しない，(ii) 中赤外域におけるCEP安定化技術も同様に最先端の技術である，の2点から未踏の研究領域であった．

本研究では，研究代表者がウィーン工科大などにおける 7 年半の在外研究において開発してきた中赤外領域における高出力波長可変 CEP 安定化フェムト秒レーザ技術[2-5] [T. Kanai *et al*., Opt. Lett. **42**, 683 (2017); Opt. Lett. **41**, 930 (2016); J. Opt. Soc. Am. B **36**, 2407(2019); Optica **3**, 1308 (2016)]を電子・ディスプレイデバイス分野（半導体，フラットパネルディスプレイ），光学・フォトニクス分野（導波路，マイクロ光学），バイオ・医療・マイクロ流体分野（マイクロ流路，バイオチップ）などにおいて微細加工のニーズが飛躍的に高まっている樹脂材料の微細加工に世界で初めて適用する．開発するレーザは KTA 結晶と ZGP 結晶を用いたハイブリッド型の光パラメトリック増幅器[6-10] [Optical Parametric Amplifier, OPA, 図 4(a)]を採用する．

CEP に依存したレーザ加工の素過程の一つとして optical poling現象[11]に注目する．研究代表者は気相においてoptical poling現象[12-14] [T. Kanai *et al*., Nature **435**, 470 (2005); Phys. Rev. Lett. **98**, 053002 (2007); J. Chem. Phys. **115**, 5492 (2001)]の観測と制御に成功している．気相の実験で得た知見を新奇な樹脂加工に応用するため，樹脂内（樹脂中に含ませて安定化させる）且つ近赤外・摂動論領域で類似の現象が観測されているアゾベンゼンのような有機化

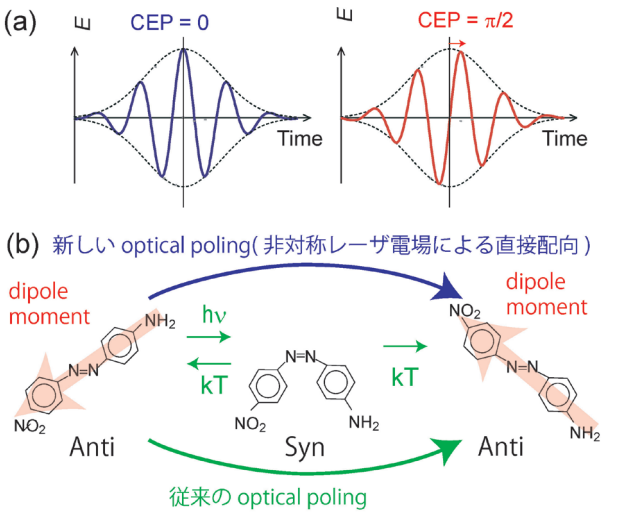


図1.　(a) CEPの異なる超短パルス電場波形の模式図．CEP= 0 の場合には電場波形が時間反転対称（従って空間反転対称性を破り得る）であるのに対し，CEP = π/2 の場合には反対称な電場波形となる．(b) 空間的に非対称なレーザ電場による分子の直接配向機構の概念図．一時的に誘起された双極子モーメントと光電場との相互作用により，分子はanti 配向からsyn配向を経て再びanti 配向へと遷移する．緑矢印は熱緩和(kT)による配向緩和過程を示す．下側の矢印は，従来の光学ポーリング(optical poling)による配向機構を表す．

合物[図1(b),[11]]に着目し，モデル系として詳細にその基礎過程を調べることを目的とした．特に，非摂動論的 optical poling現象 [図1(b)]のCEP依存性，波長依存性，強度依存性を詳細に調べることにより，比較的低強度でおきる非摂動論的 optical poling現象から，よく知られたアブレーション領域（ナノ周期構造の形成を含む）への移行の物理に注目する．

２．中赤外 KTA/ZGP OPAの開発

上記の目的のため，研究代表者は本プロジェクト開始時の所属であった京都大学において1台（KTA OPAまで），ならびに，本プロジェクト開始1年後に特任講師として異動した分子科学研究所において1台の，計2台の高出力中赤外フェムト秒レーザを開発した．本研究で開発した中赤外波

長可変レーザのコア技術である KTA/ZGP OPAは高出力，CEP安定性以外に，1.3-10 μmという超広帯域の波長域で波長のチューニングが可能である[図2]．この波長域には，多くの樹脂が分子振動・回転励起に由来する高い吸収を示す波長が含まれており，樹脂加工の系統的研究，材料選択的な加工が可能になる．本研究で目指す質的に新しい透明樹脂の加工法の発明のため，中赤外域において未踏パラメータを備えたCEP安定，超広帯域 (1.3-10 μm)帯，高出力レーザ光源を実現した．

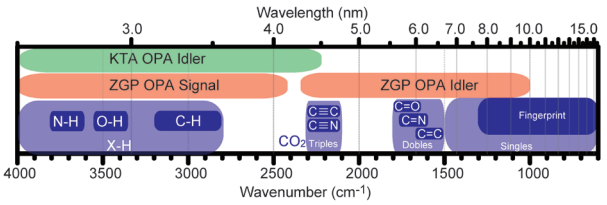


図 2.　本研究で用いた光源の波長（上軸）および波数（下軸）範囲と，分子振動モードとの対応関係．KTA OPA によるアイドラ光および ZGP OPA によるシグナル光・アイドラ光の発生波長域を示している．これらの波長域は，N-H，O-H，C-H 伸縮振動，C ≡ C，C ≡ N 三重結合振動，C=O，C=C 二重結合振動，および指紋領域に対応しており，広帯域の分子振動分光が可能であることを示している．

開発した2台のKTA OPAにおいては研究提案時の達成目標であった，CEP安定性及び，1.3-4.5μmの波長可変性，パルスエネルギー50 μJ，パルス幅80 fsを予定通り達成している．さらに分子科学研究所においては上記のレーザとZGP結晶を用い，2-10 μmフェムト秒パルスレーザ増幅器を開発した[図4(a)]．こちらも達成目標であった，CEP安定性，2-10 μmの波長可変性，パルスエネルギー10 μJ,パルス幅80 fsは達成された．

2. 1.　京都大学における中赤外 KTA OPAレーザシステムの開発とその応用

図3に京都大学における高出力中赤外レーザ開発の詳細を示す．コア技術である中赤外 KTA3段OPAレーザシステムの開発[図3(c,f,g,h,i)]のみならず，その要素技術として，Ybファイバー発振器の開発[図3(b,d,e)], KTA OPAのポンプレーザである Yb:CaF_2再生増幅器の高度化[図3(f)]，KTA結晶による3段 OPAの開発を行った．

Ybファイバー発振器の開発はスペクトロニクス株式会社と共同で行った．モード同期機構として非線形偏波回転法を採用し，自由空間光学系を持たない温度制御型の高安定ファイバーレーザの開発に成功した[7,P8]．図3(d,e)は，それぞれ典型的に測定された出力スペクトル（スロー軸成分）および強度自己相関トレースを示している．スペクトル成分は1005 nmから1052 nmにわたっており，パルス時間強度の FWHMは96 fsであった．これは，観測されたスペクトルから計算されるフーリエ限界パルス(FTL)の

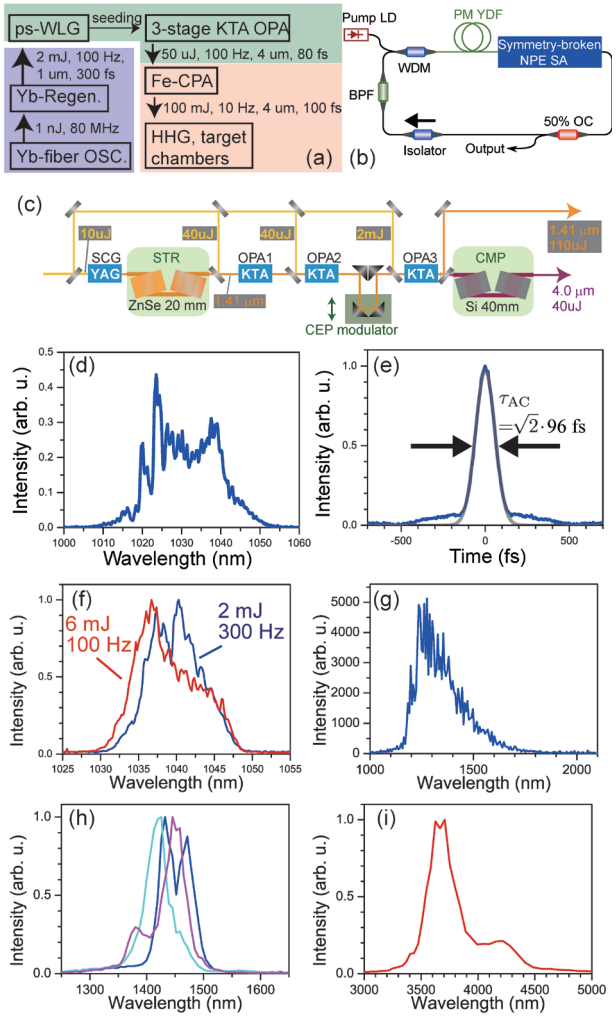


図 3.　本研究の中核となるレーザ光源の全体像を示す．(a)京都大学で開発した CEP 安定超広帯域 OPA および光学系の全体構成[8, 9, P2, P6]. (b,d,e) Yb ファイバー発振器とそのスペクトル(d)と自己相関測定(e)．(c,f,g,h,i) 3 段 KTA OPA による 1.3-4.5 μm 帯中赤外パルスの生成．ポンプ光(f)，白色光 (g)，KTA OPA のシグナル光(h)，アイドラ光(i)のスペクトルをそれぞれ示す．

FWHMである78 fsよりも1.2倍長い．この差は，通常のTreacyコンプレッサでは補償できない，未圧縮の高次スペクトル位相成分に起因する．スロー軸成分の平均出力パワーは33.7 mWであり，これはポンプパワー340 mWの10%に相当する．モードロッキングは，モード同期温度を19.0℃に設定してから数秒以内に自己始動し，室温が1.5℃以上変動する条件下においても，134 時間にわたり安定に維持されていることが確認された．

KTA OPA のポンプレーザである Yb:CaF_2 再生増幅器の高度化については，京都大学による国際共同研究のための競争的研究費 SPIRITS (Supporting Program for InteRaction-based Initiative Team Studies) 2022 を用い，CEP 安定化技術

を世界で初めて開発したウィーン工科大の Andrius Baltuska 教授のグループから Edgar Kaksis 博士を招聘し共同研究の形で遂行した. 注意深い共振器の最適化により従来の 2 倍程度の出力 (2mJ, 300Hz)を得ることができた[6,P7]. KTA OPA では，この高度化された Yb:CaF_2 再生増幅器の出力の一部を用いた白色光発生 WLG により生成した広帯域シード光を用いることで, 高い時間コヒーレンスと安定な CEP 特性を維持したまま, 1.3-4.5 μm の中赤外波長域において波長可変なフェムト秒パルスの発生を可能とした．本開発における達成目標である，CEP 安定動作，パルスエネルギー50 μJ，およびパルス幅 80 fs は達成された[6,P7].

さらに, 本KTA OPAの出力を高品質なシード光として用い，Fe:ZnSe結晶を利得媒質とする中赤外フェムト秒レーザ増幅器を構築した[6,8,P7,P6]. Fe:ZnSeは3.5μm帯域において広い利得帯域と高い損傷閾値を有する固体レーザ媒質であり，高エネルギー・短パルス動作に適している．CEP安定な KTA OPAシードを導入することで, Fe:ZnSe増幅過程においても位相安定性を保持したまま高出力中赤外フェムト秒パルスを得ることが可能になる．尚，本レーザは Fe:ZnSe後段増幅器を用いダークマター検出など基礎物理学への応用も可能である[15,16, P9, P10].

2.2. 分子科学研究所における高出力 BBO/KTA/ZGP OPAハイブリッドレーザの開発

分子科学研究所においては，分子分光用のsub-100Wクラス超高出力高繰り返しYbレーザが複数利用可能であった [Yb:KGW再生増幅器，CARBIDE-CB3 (80 W, 1036 nm, 180 fs, 2 MHz); Ybファイバー増幅器，Tangerine-SP (50 W, 1030 nm, 130 fs, 250 kHz)他]. 従って，発振器や増幅器の開発はせずこれらをポンプ光とした5WクラスのKTA/ZGP OPAの開発と応用に重点をおいて研究を行った．尚，分子科学への応用性を鑑みBBO NOPAによる可視・近赤外域の出力を同時に得られる特殊設計となっている [図4(a)]. 図4に, Tangerine-SPを駆動レーザとして用いた場合のレーザシステム光源の全体構成および基本特性を示す. 増幅器出力の一部は，SHG-WLG系により広帯域シード光を生成し，BBO NOPA，KTA OPA，およびZGP OPAを段階的に用いることで，可視から中赤外領域(0.65-10 μm)にわたる広帯域波長可変光を得ている[図4(a)]. 図4(b)および(c)には，可視および中赤外領域における代表的な出力スペクトルを示す．可視領域では，NOPAにより600-1100 nmにわたる広帯域スペクトルが得られており， CARS/CSRS計測に必要なポンプ光およびストークス光を柔軟に選択可能である. 一方，中赤外領域では，KTA OPAおよびZGP OPAによりCEP安定動作を実現し, KTA OPAでは50 μJ, ZGP OPAでは10 μJのパルスエネルギーを達成し, いずれも80 fs級のパルス幅を実現した.

時間特性の評価例として, SHG-FROGにより可視出力パルスの時間波形を測定した結果を図4(d)に示す．復元されたパルス幅は21.6 fsであり，スペクトル帯域から見積もられるフーリエ変換限界に近い時間幅が達成されていることが確認された．また，図4(e)にKTA OPA出力を用いてZnSe結晶中で発生させた高次高調波スペクトルを示す. 本光源が高ピーク強度を有し, 非線形分光および強結合光物性研究に十分な性能を備えていることが分かる.

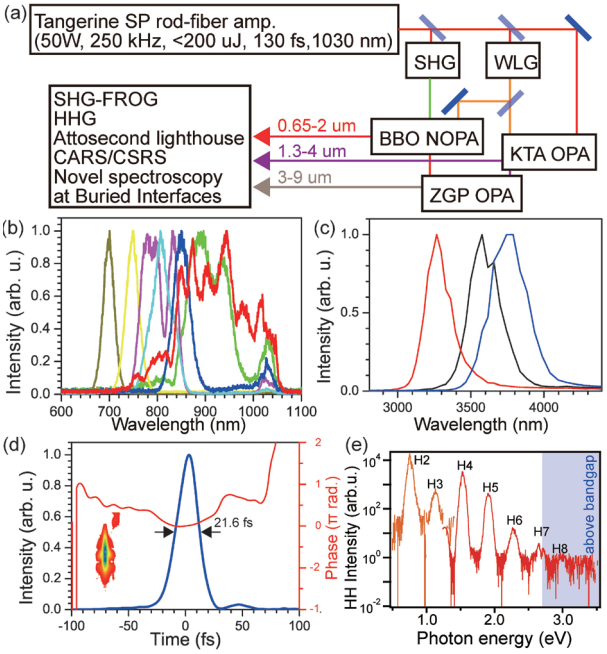


図 4. 本研究の中核となるレーザ光源の全体像を示す. 分子科学研究所で開発した可視・中赤外 OPA システムの概略と出力特性[10,17]. (a) SHG-WLG によるシード生成と，BBO NOPA, KTA OPA, ZGP OPA による波長拡張の構成. (b)，(c)可視および中赤外出力のスペクトル例．(d) 自作 SHG-FROG による時間波形(21.6 fs)．(e) KTA-OPA 出力を用いた高次高調波スペクトルの例.

3．液中 Optical poling型微細加工に向けた基礎実験

研究代表者が参画している分子科学研究所の大型プロジェクトにおいては，固体-液体および固体-固体間の埋没界面における非線形分光法の確立が主要な研究課題として位置付けられてきた．一方，固液界面におけるレーザ微細加工は, 半導体リソグラフィーをはじめとする先端製造技術において重要な役割を担っている. 液体環境下でのレーザ加工は，レーザ照射に伴う熱拡散やデブリ生成を抑制できるほか, 分子配向や非線形応答を安定に制御できるという利点を有する一方で，その詳細な物理・化学メカニズムを実時間で計測する手法はこれまで確立されておらず，未踏の研究領域であった. そこで本研究では, 液中 Optical poling型微細加工を主要な研究ターゲットとし，その観測手段として，液中における Coherent Anti-Stokes Raman Scattering(CARS) および Coherent Stokes Raman Scattering(CSRS)分光法の要素技術開発[9,17, P1, P2]と，モデル系に対するその有効性の実証[10]を世界で初めて行った.

本研究で新たに開発したCEP安定・波長可変中赤外フェムト秒レーザ光源を用い，非摂動論領域におけるOptical poling型微細加工の実現に向けた基礎実験を実施した[9,10,17-19]．図5は，液中レーザポーリング過程の時間分解計測を目的として構築した，界面選択的コヒーレント・アンチストークス／ストークス・ラマン散乱(CARS/CSRS)計測の概念図および代表的な測定結果を示す．図5(a)に示すように，重水(D_2O)中に浸漬したモデル系である銅箔上単層グラフェン(SLG)界面において，三本の入射光場（ω_1, ω_2, ω_3）の非線形相互作用により，$\omega_{CSRS} = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3$で与えられるコヒーレント・ストークス・ラマン信号が生成される．

埋没界面用 CARS/CSRS計測系の最適化を通じ，樹脂材料や液中・埋没界面を対象としたレーザ照射条件下では，強い非線形応答に起因する白色光発生が不可避であり，これがCARS/CSRS計測における主要なバックグラウンドノイズ源となることがわかった[9,17,P1,P2]．そこでまず，開発した波長可変可視-中赤外域ハイブリッドOPA光源を用いて，液中および界面近傍における白色光発生の強度およびスペクトル特性を系統的に調べ，CSRS計測に与える影響を評価した[図5(b)]．図5(b)は，CSRS測定時に観測された可視発光スペクトルの代表例である．特定のレーザ光周波数比や分子との共鳴条件下では，広帯域の白色発光が最大で3桁程度増強されることが世界で初めて観測された．詳細な解析によりこの白色光発光は，四光波混合，六光波混合，相互位相変調，ソリトン圧縮，分散波発生が複雑に絡み合った現象であることが解明され[17,P1]，CARS/CSRS計測に用いるレーザ光のパラメタ（特に周波数比）を選ぶことで界面からの分光情報を選択的に得ることができることがわかった．

開発した新奇波長可変CEP安定化レーザシステム及びCARS/CSRS計測システムを組み合わせ埋没界面における選択的分光に適用・実証した．図5(c)に示す高分解能スペクトルでは，グラフェンに由来するGバンド近傍のCSRS信号が明確に分離されており，液中・埋没界面条件下においても，グラフェン固有の振動応答を高いコントラストで検出できることが世界で初めて確認された[10,P3]．これらの結果は，液中レーザポーリング過程における界面電子・格子ダイナミクスの時間分解計測に対して，CARS/CSRS法が有効な観測手法であることを示している．

４．まとめ

本研究では，搬送波包絡線位相(CEP)安定かつ波長可変な中赤外フェムト秒レーザとして，KTA/ZGP結晶を用いたハイブリッドOPAシステムを開発した．本光源は1.3-10 μmにわたる超広帯域波長可変性と高いパルス品質を両立し，非摂動論領域におけるoptical poling現象の系統的研究を可能とした．さらに，可視-中赤外域をカバーするBBO/KTA/ZGPハイブリッド構成により，埋没固液界面における新規超高速分光や分子配向制御への展開可能性を示した．本成果は，中赤外レーザ加工および界面非線形光学の新たな研究基盤を提供するものである．本助成により，中赤外 CEP安定レーザという高コスト装置開発が可能となり，従来困難であったパラメータ領域の開拓に成功した．

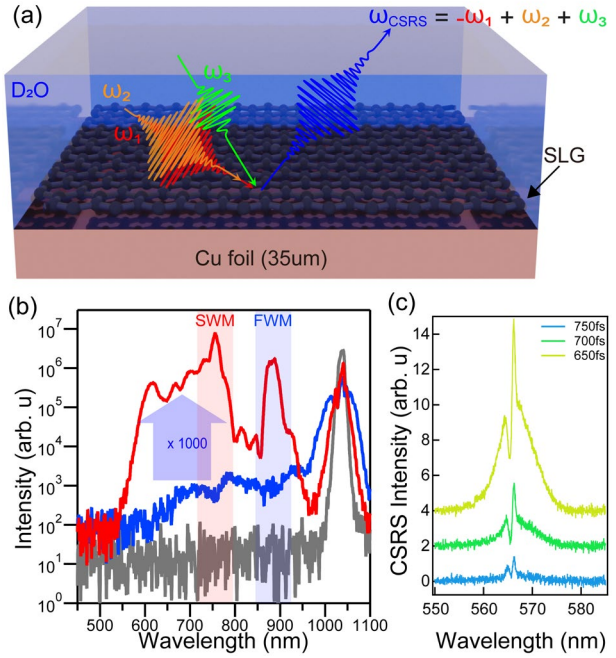


図 5. 液中レーザ加工過程の実時間計測を目的として開発した，界面選択的コヒーレント・アンチストークス／ストークス・ラマン散乱(CARS/CSRS)分光系の典型的な概念図および測定結果．(a)重水(D_2O)中に浸漬したモデル系銅箔上単層グラフェン(SLG)を対象とした CSRS 過程の模式図．3 本の入射光(ω_1, ω_2, ω_3)の非線形相互作用により，$\omega_{CSRS} = \omega_1 - \omega_2 + \omega_3$ の周波数をもつ散乱光が埋没固液界面から放射される．(b) CSRS 測定時に主要な妨害光となる白色光発生のスペクトル特性．可視-近赤外域ハイブリッド励起条件下において，多光子混合過程に起因する新たな白色光発生メカニズムが顕在化する．(c) 同分光系を用いて観測した，埋没固液界面の単層グラフェンに由来する G バンドの CSRS 信号．不透明基板および液体層に覆われた埋没界面において，グラフェンの振動応答を実時間で直接観測した世界初の結果である．尚，本分光系は，将来的に液中レーザ微細加工過程における分子配向・結晶化・反応開始点の in situ モニタリング手法として展開可能である．

謝　辞

本研究は公益財団法人天田財団の一般研究開発助成(AF-2022234-B3)のご支援を受けて実施しました．ここに謝意を表します．また共同研究者である分子科学研究所の杉本敏樹准教授，桜井敦教助教，京都大学の時田茂樹教授，岡﨑大樹助教，核融合科学研究所の安原亮教授，ウィーン工科大学の Andrius Baltuška 教授，Audrius Pugžlys 助教，Edgar Kaksis 博士，スペクトロニクス株式会社の岡田穣治，

清水政二氏らに謝意を表します.

成果論文

[P1] T. Kanai, C. Jin, H. Tsunekawa, A. Sakurai, and T. Sugimoto, Opt. Lett. **50**, 7087 (2025).

[P2] T. Kanai, C. Jin, H. Tsunekawa, A. Sakurai, and T. Sugimoto, in Proceedings of the Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quan-tum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC 2025) (Optica Publishing Group, 2025), paper CF-P.2.

[P3] T. Kanai, C. Jin, H. Tsunekawa, A. Sakurai, and T. Sugimoto, in Proceedings of the Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quan-tum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC 2025) (Optica Publishing Group, 2025), paper EI-2.4.

[P4] T. Kanai, C. Jin, H. Tsunekawa, A. Sakurai, and T. Sugimoto, in Proceedings of OPTICS & PHOTON-ICS International Congress 2025 (OPIC2025) (OP-TICS & PHOTONICS International Congress, 2025), paper TILA-LIC8-03.

[P5] R. Yoshizawa, K. Seto, T. Kanai, A. Sakurai, and T. Sugimoto, in Proceedings of OPTICS & PHOTON-ICS International Congress 2025 (OPIC2025) (OP-TICS & PHOTONICS International Congress, 2025), paper TILA-LIC1-05.

[P6] D. Okazaki, T. Kanai, L. Yu, Y. Kirita, R. Yasuhara, and S. Tokita, EPJ Web Conf. **307**, 04069 (2024).

[P7] T. Kanai, E. Kaksis, A. Pugžlys, A. Baltuška, D. Okazaki, R. Yasuhara, and S. Tokita, in Proceedings of the Laser Congress 2023 (ASSL, LAC) (Optica Publishing Group, 2023), paper LTu1B.3.

[P8] T. Kanai, G. Okada, and S. Tokita, in Proceedings of the Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2023) (Optica Publishing Group, 2023), paper SM1F.2.

[P9] K. Homma, O. Tesileanu, Y. Nakamiya, Y. Kirita, C. Chiochiu, M. Cuciuc, G. Giubega, T. Hasada, M. Hashida, F. Ishibashi, T. Kanai, A. Kodama, S. Masuno, T. Miyamaru, L. Neagu, V. R. M. Rodrigues, M. Mihai Rosu, S. Sakabe, J. Tamlyn, S. V. Tazlauanu, and S. Tokita, Eur. Phys. J. A **59**, 109 (2023).

[P10] F. Ishibashi, T. Hasada, K. Homma, Y. Kirita, T. Kanai, S. Masuno, S. Tokita, and M. Hashida, Universe **9**, 123 (2023).

国内外学会・研究会における招待講演

[inv1] （招待講演）金井恒人,「固体ベース高強度数サイクル中赤外レーザーの開発と高次高調波発生」第31回 FELと High Power Radiation研究会,京都大学宇治キャンパス, 2024年 12月 12日セッション 2-4.

[inv2] （招待講演）金井恒人 ,「数サイクル中赤外レーザー駆動アト秒パルスを用いた基礎物理学研究」日本物理学会第 79回年次大会,北海道大学札幌キャンパス, 2024年 09月 17日 17aB111-6.

[inv3] (invited) T. Kanai, E. Kaksis, A. Pugžlys, A. Baltuška, D. Okazaki, R. Yasuhara, and S. Tokita, “Supercontinuum-seeded 4-micron KTA Optical Para-metric Amplifier for Seeding a High Energy Fe:ZnSe Multipass Amplifier and Related Applications in Particle Physics”, Advanced Solid State Lasers Conference (ASSL)/Laser Applications Conference (LAC), Tacoma, Washington, USA, Oct. 9th-12th, 2023.

[inv4] （招待講演）金井恒人,「アト秒物理学と高出力中赤外レーザー開発」, 大阪大学産業科学研究所量子ビーム科学研究施設研究会「量子ビーム科学の新展開」, Suita-shi, Osaka, Japan, Jan. 20th, 2023.

国内外学会・研究会における成果発表

[C1]（口頭発表）金井恒人, Baltuška Andrius,常川響,金成翔 ,杉本敏樹,「埋没界面における超高速分光のための可視-中赤外域 BBO/KTA/ZGPハイブリッド OPAの開発」レーザー学会学術講演会第 46回年次大会,大阪南港 ATC O’s棟南館, A02-13p-V-07, 2025年 1月 13日.

[C2]（口頭発表）金成翔,金井恒人,櫻井敦教,杉本敏樹,「新規非線形ラマン分光による液中埋没電極のオペランド界面観測」レーザー学会学術講演会第 46回年次大会,大阪南港 ATC O’s棟南館, E11-15p-II-04, 2025年 1月 15日.

[C3]（口頭発表）金井恒人,金成翔,常川響,櫻井敦教,杉本敏樹,「繰り返し速度 MHz領域の高効率・高安定な水中白色光発生」日本物理学会第 79回年次大会,北海道大学札幌キャンパス, 19aE312-6, 2024年 9月 19日.

[C4]（口頭発表）金井恒人, E. Kaksis, A. Pugžlys, A. Baltuška,岡﨑大樹,安原亮,時田茂樹,「時間領域における素粒子物理学研究のための 4ミクロン KTA光パラメトリック増幅器の開発」第 84回応用物理学会秋季学術講演会, 23p-B204-12, 2023年 9月 23日.

参考文献

[1] A. Baltuška, T. Fuji, and T. Kobayashi, Phys. Rev. Lett. **88**, 133901 (2002).

[2] T. Kanai, P. Malevich, S. Kangaparambil, K. Ishida, M. Mizui, K. Yamanouchi, H. Hoogland, R. Holzwarth, A. Pugžlys, and A. Baltuška, Opt. Lett. **42**, 683 (2017).

[3] T. Kanai, Y. Lee, M. Seo, and D. E. Kim, J. Opt. Soc. Am. B **36**, 2407 (2019).

[4] G. Fan, T. Balčiūnas, T. Kanai, T. Flory, G. Andriukaitis, B. E. Schmidt, F. Legare, and A. Baltuška, Optica **3**, 1308 (2016).

[5] P. Malevich, T. Kanai, H. Hoogland, R. Holzwarth, A. Baltuška, and A. Pugžlys, Opt. Lett. **41**, 930 (2016).

[6] T. Kanai, E. Kaksis, A. Pugžlys, A. Baltuška, D. Okazaki, R. Yasuhara, and S. Tokita, in Proceedings of the Laser Congress 2023 (ASSL, LAC) (Optica Publishing Group,

2023), paper LTu1B.3.

[7] T. Kanai, G. Okada, and S. Tokita, in Proceedings of the Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO 2023) (Optica Publishing Group, 2023), paper SM1F.2.

[8] D. Okazaki, T. Kanai, L. Yu, Y. Kirita, R. Yasuhara, and S. Tokita, EPJ Web Conf. 307, 04069 (2024).

[9] T. Kanai, C. Jin, H. Tsunekawa, A. Sakurai, and T. Sugimoto, in Proceedings of the Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quan-tum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC 2025) (Optica Publishing Group, 2025), paper CF-P.2.

[10] T. Kanai, C. Jin, H. Tsunekawa, A. Sakurai, and T. Sugimoto, in Proceedings of the Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quan-tum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC 2025) (Optica Publishing Group, 2025), paper EI-2.4.

[11] S. Adachi and T. Kobayashi, Phys. Rev. Lett. **94**, 153903 (2005).

[12] T. Kanai and H. Sakai, J. Chem. Phys. **115**, 5492 (2001).

[13] T. Kanai, S. Minemoto, and H. Sakai, Nature **435**, 470 (2005).

[14] T. Kanai, S. Minemoto, and H. Sakai, Phys. Rev. Lett. **98**, 053002 (2007).

[15] K. Homma, O. Tesileanu, Y. Nakamiya, Y. Kirita, C. Chiochiu, M. Cuciuc, G. Giubega, T. Hasada, M. Hashida, F. Ishibashi, T. Kanai, A. Kodama, S. Masuno, T. Miyamaru, L. Neagu, V. R. M. Rodrigues, M. Mihai Rosu, S. Sakabe, J. Tamlyn, S. V. Tazlauanu, and S. Tokita, Eur. Phys. J. A **59**, 109 (2023).

[16] F. Ishibashi, T. Hasada, K. Homma, Y. Kirita, T. Kanai, S. Masuno, S. Tokita, and M. Hashida, Universe **9**, 123 (2023).

[17] T. Kanai, C. Jin, H. Tsunekawa, A. Sakurai, and T. Sugimoto, Opt. Lett. **50**, 7087 (2025).

[18] T. Kanai, C. Jin, H. Tsunekawa, A. Sakurai, and T. Sugimoto, in Proceedings of OPTICS & PHOTON-ICS International Congress 2025 (OPIC2025) (OP-TICS & PHOTONICS International Congress, 2025), paper TILA-LIC8-03.

[19] R. Yoshizawa, K. Seto, T. Kanai, A. Sakurai, and T. Sugimoto, in Proceedings of OPTICS & PHOTON-ICS International Congress 2025 (OPIC2025) (OP-TICS & PHOTONICS International Congress, 2025), paper TILA-LIC1-05.