

次世代時間標準のための新しい高安定発振器

西山明子*

(2022年1月28日受理)

New highly stable oscillators for the next-generation time standard

NISHIYAMA Akiko

Abstract

Coordinated Universal Time (UTC), a time system widely used as a standard for time and frequency, is supported by international cooperation of national metrology institutes and advances of science and technology. In recent years, several optical clocks have shown much lower uncertainties than the current primary frequency standards operating in the microwave range, making the redefinition of the second a reality. In this paper, I first describe microwave oscillators, which are the basis of UTC generation and is the clock source of UTC(k) in operation in each country. Then, I investigate highly stable lasers operating in the optical frequency range, which can replace microwave source oscillators of UTC(k) and reduce the uncertainty of the optical clock systems.

1. はじめに

時間の単位である秒は国際単位系 (Système International d'unités, SI) における七つの基本単位の一つであり、最も小さい不確かさで実現、あるいは計測できる。日常生活で待ち合わせや会議に遅れないためであれば、それほど正確な時計は必要ないかもしれない。しかし、測位、通信といった基盤インフラは既に高精度な時間標準に依存しており、それなしで現代社会は成り立たない状況にある。そして、時間標準は常時動き続けなければならない標準という点で特殊であり、国際度量衡局 (Bureau International des Poids et Mesures, BIPM) と世界各国の標準研究機関 (National Metrology Institutes, NMIs) が協力して時間周波数標準として統一された時系である協定世界時 (Coordinated Universal Time, UTC) を維持し、不確かさが 10^{-16} 台の時系を実現している。

UTC を維持していくためには、各研究機関が常時実現する実体的な時系である UTC(k)、および定義に基づ

く正確な周波数を断続的にでも発生する一次周波数標準器の維持が必要である。これまでに、より良い、または次世代の一次周波数標準器を目指し、小さい不確かさを追求して様々な時計が開発されてきた。最近では原子やイオンの光遷移を基準とした光時計の進展が著しい。光時計は従来のセシウム原子のマイクロ波遷移を基準とした時計よりさらに小さい不確かさを既に示しており、近い将来に秒の定義が改訂されることが予想されている。また、この正確な時計を用いて、重力測定による測地学への時計の応用¹⁾⁻³⁾、基礎物理定数の検証^{4),5)}、およびデータマターの探査⁶⁾⁻⁸⁾など、新しい研究分野が拓かれつつある。

時計は、①連続稼働する発振器、②発振器の周期を校正するための基準、③発振器の周波数を読み取るためのカウンター、の三要素から構成される。例えば身近にある電波時計では、時計に内蔵されたクォーツ振動子などの発振器が連続的に時間を刻み続け (①)、定期的に UTC を基にした外部からの信号に同期する (②)。そして、発振器の振動は歯車などによって積算され (③)、文字盤が時間を表示する。この基本的な構成は、現代で

* 物理計測標準研究部門 時間標準研究グループ

最も正確な光時計であっても変わっていない。

本稿では、近年の光時計の発展、およびその不確かさの低減を念頭に、秒の再定義後にあるべき UTC(k) を考え、時計の構成要素のうち①時計の発振器部分、に焦点を当てて研究開発状況を調査し、我々の展望を述べる。

2. 協定世界時 (UTC) の生成

メートル条約発足後、秒は地球の自転周期を基に、一日(平均太陽日)の 86 400 分の 1 の時間として運用されてきた。地球の自転周期は潮汐摩擦などによって変化して 10^{-7} 程度の不確かさがあり、かつ 50 年で 10^{-8} 程度長くなっていく。そこで、長期的変動の少ない地球の公転周期を基に、秒を 1 年(太陽年)の 31 556 925.9747 分の 1 とすることが提案され、1960 年に国際度量衡委員会(CIPM)により承認され、秒は六つ目の SI 基本単位となった。その不確かさは約 2×10^{-9} と二桁程度改善されたが、公転周期が長いため、小さい不確かさを得るためには長い積算時間が必要であった。そのため、早い段階から、原子時計による秒の定義や運用の必要性が指摘されていた。

そして 1967 年、第 13 回国際度量衡総会において「秒は 133 セシウム原子 (^{133}Cs) の基底状態の 2 つの超微細構造準位間の遷移に対応する放射の周期の 9 192 631 770 倍の持続時間である」と定義され、現在でもこの定義が用いられている。定義に利用される 133 セシウム原子の遷移周波数はおよそ 9.2 GHz であり、地球の公転運動よりもはるかに短い振動周期であるために、短い時間で小さい不確かさを実現できる。この秒の定義を実現する時計は、セシウム一次周波数標準器と呼ばれる。原子泉型のセシウム原子時計が主に用いられており、セシウム原子の遷移周波数が外乱などから受ける摂動による周波数シフトを厳密に評価したものである。図 1 には、この 60 年間のセシウム一次周波数標準器の不確かさ低減の歴史を示した⁹⁾。秒の定義改定後もセシウム一次周波数標準器の不確かさは年々小さくなっており、近年では 10^{-16} 台となっている¹⁰⁾。また、より小さい不確かさを得るために、可視光領域の原子の遷移周波数を基準とした光時計の研究が進んでいる。最近ではセシウム一次周波数標準器の不確かさを 2 桁以上下回る 10^{-19} 台の光時計も報告されている¹¹⁾。

現代の秒の定義に基づいた時系である UTC は、フランスにある国際機関である BIPM がとりまとめている¹²⁾。図 2 に UTC 生成の過程を示す。現在、世界各国にある NMI を中心とする研究機関が、安定な発振器で

ある原子時計、主に商用セシウム原子時計や水素メーザーを連続発振器として用いて、UTC(k) と呼ばれる時系を生成・維持している。UTC(k) の k には各研究機関名の略称が入り、例えば産総研の計量標準総合センター(NMIJ)が生成する UTC(k) は UTC(NMIJ) と呼ばれる。およそ 90 の研究機関の 400 以上の原子時計のデータが GPS 衛星などの全球測位衛星システムを介して BIPM に送られ、加重平均がとられて、自由原子時 (Free atomic time scale, échelle atomique libre, EAL) と呼ばれる時系を作る。これは、多数の原子時計を平均化した安定な時系であり、UTC 生成における、仮想的だが高安定な発振器としての役割を持つ。EAL は、世界に数十台ある一次・二次周波数標準器により校正され、秒の定義に基づいた時系である国際原子時 (International Atomic Time, TAI) が生成される。最近では 10 数台の

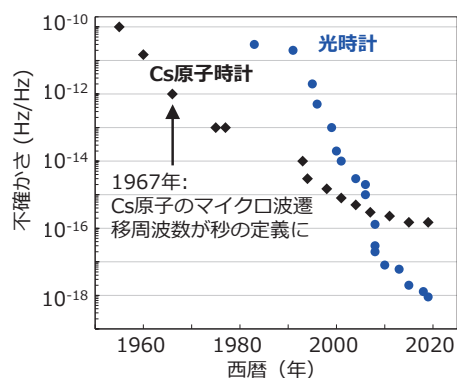


図 1 セシウム一次周波数標準器 (黒) と光時計 (青) の相対不確かさの変遷。参考文献⁹⁾に最近のデータを加えた。

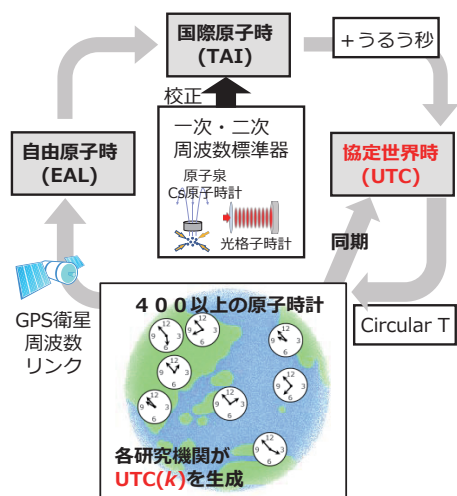


図 2 UTC 生成の過程。

セシウム一次周波数標準器が定期的に TAI の校正に参加している。また近年、光時計が二次周波数標準器として採用され¹³⁾TAI の校正に参加するようになっており、秒の定義改定後には、光時計の一部が一次周波数標準器に置き換わると予想される。これまでに世界で7つの光時計が TAI の校正に参加した実績を持つ。

ところで、TAI は地球の自転とは関係なく、原子の遷移周波数に基づく定義を基準とした時系なので、長い期間には地球の自転に基づく時刻である世界時 (Universal time 1, UT1) との差が次第に大きくなってしまふ。例えば数万年後には、正午なのに東京は真っ暗で、午前0時に太陽が南中することが予想される。そこで、実際の国際的な時間標準としては、TAI にうるう秒を挿入した UTC が広く使われている。うるう秒は、TAI と UT1 との差を 0.9 秒以下にするように TAI に加えられ、2022 年 1 月時点で TAI - UTC は 37 秒となっている。UT1 やうるう秒は、国際地球回転・基準系事業 (International Earth Rotation and Reference Systems Service, IERS) が決定している。

BIPM は 1988 年以降毎月、5 日間ごとの UTC - UTC(k) のデータを Circular T として公表している¹⁴⁾。UTC(k) を管理する各研究機関は Circular T の結果を基に、UTC(k) と UTC との差が大きくなりすぎないように UTC(k) に微調整を加えている。これを広い意味で「同期」と呼んでいる。2013 年以降には、より高い頻度で UTC(k) を UTC へ同期させることができるように、約 60 の研究機関の過去 4 週間の原子時計のデータを基に rapid UTC (UTCr) が生成され、日ごとの [UTCr-UTC(k)] が毎週公表されるようになっている¹⁵⁾。

3. UTC(k) の発振器として用いられるマイクロ波発振器

世界中の各研究機関が生成する UTC(k) が UTC の構成要素となることを先の章で述べた。最も基本的な時間周波数標準といえる UTC は、前章で述べたように仮想的なもので、かつ事後でないといけない。そのため、実際に不確かさの小さい周波数および時刻を供給するためには、各研究機関が維持・運用する UTC(k) が用いられる。各研究機関において UTC(k) は、一台もしくは複数台の原子時計を発振器として生成され、前述したように UTC の時刻や周波数と乖離しないように断続的に調整されている。そのため UTC(k) は、Circular T もしくは UTCr が公表され、UTC との差が明らかになるまでの期間は、独立に周波数を維持し、時刻を刻み続けなければならない。また、時刻の連続性を途切れさせること

はできないので、休むことなく動き続けなければならない。このような UTC(k) の大本となる連続稼働発振器はフライホイールとも呼ばれる。UTC(k) のフライホイールとしては、商用セシウム原子時計や水素メーザーなどが主に用いられている。図 3 に、市販されているマイクロ波発振器の一般的な周波数安定度 (以下、安定度) として、アラン偏差を示す^{16),17)}。UTC(k) の生成においては、フライホイールが発生した周波数を、UTC を参照しつつシフトさせることができるので、周波数の絶対値の不確かさは重要でなく、Circular T の比較期間である 5 日間 (およそ 4.3×10^5 秒) 以下の平均時間における安定度が重要である。

アラン偏差は、原子時計などの安定度を特徴づけるのによく使われる尺度である¹⁸⁾。アラン偏差の平均時間依存性から、安定度を制限する雑音源の種類を一部知ることでもできる。時間・周波数の計測においては、発振器の周波数ドリフトがしばしば制限要因になるため、標準偏差で評価しようとする、同じ平均時間であっても、数値がデータ個数に依存してしまう。主にこの問題に対応するため、標準偏差では各測定値と平均値の差を用いるところを、アラン偏差では連続する測定間の周波数差を用いる。平均時間 τ のアラン偏差 $\sigma_y(\tau)$ は、時間 τ の区間で平均化された測定値を \bar{y}_m 、測定点数を N として、次の式から計算される。

$$\sigma_y(\tau) = \left[\frac{1}{2(N-1)} \sum_{m=1}^{N-1} (\bar{y}_{m+1} - \bar{y}_m)^2 \right]^{1/2} \quad (1)$$

アラン偏差は位相および周波数雑音のパワースペクトル密度から換算することもでき、位相/周波数雑音のパワースペクトルは短時間領域 (例えば平均時間 1 秒以下)、アラン偏差は長時間領域での評価に適している。

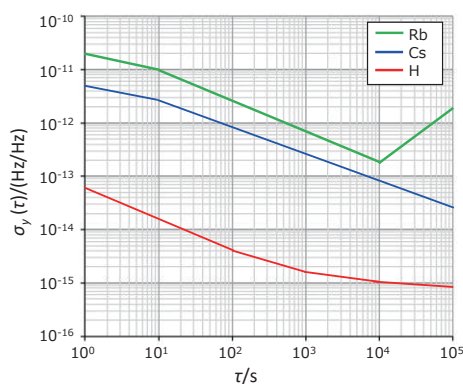


図 3 市販されているマイクロ波発振器の標準的なアラン偏差。Rb: ルビジウム原子時計, Cs: 商用セシウム原子時計, H: 水素メーザー。

UTC(k)のフライホイールとして最も多く用いられている商用セシウム原子時計は、秒の定義となっているセシウム 133 原子の基底状態の超微細準位間の遷移周波数を基準としている。ただし、一次周波数標準器と異なり、セシウム原子が受ける擾乱を抑えたり見積もったりすることは目指しておらず、秒の定義を実現する装置という位置づけではない。基本的な構成としては、加熱されたセシウム原子ビームに磁場や光による状態選択を行い、ラムゼー共振器でマイクロ波と相互作用させて、状態間遷移を起こす周波数ピークを検出するものである¹⁹⁾。短期安定度はマイクロ波と相互作用するセシウム原子の数で決まるショット雑音に制限されており平均時間 1 秒で 10^{-12} 台であるが、長期の安定度には優れていて、 10^5 秒以上の平均時間では 10^{-14} 台の安定度が得られる。現在 Microchip 社（アメリカ）や Oscilloquartz 社（スイス）、Chengdu Spaceon 社（中国）などから販売されている。

水素メーザーは、損失の小さい共振器内に反転分布を作った水素ビームを充填し、基底状態間約 1.42 GHz の遷移を利用してメーザー発振させるものである²⁰⁾。市販されるマイクロ波発振器の中で短期安定度が最も高く、平均時間 1 秒で 10^{-13} 程度の安定度を持つ。長期の安定度は、共振器の温度変化による変形や、遷移周波数の 2 次ゼーマンシフト、スピン交換シフト、2 次ドップラーシフトなど様々な要因に制限される²¹⁾。水素メーザーの技術は成熟しており、共振器の温度や磁場、水素原子ビームの流量を安定に保つことで、 10^5 秒の平均時間で 10^{-15} 程度の安定度が得られている。このような高い安定度のため、世界のトップレベルの標準研究機関の多くは一台または複数台の水素メーザーをフライホイールとして用いて UTC(k)を生成している。また、高い安定度の周波数標準を必要とする電波天文学においても水素メーザーは必須となっており、最近話題になったブラックホールの発見²²⁾にも貢献している。ただし水素メーザーは容積が約 300 L の大型の装置で、高価である。また、導入後安定に動作するまでに数年を必要とし、寿命が 15 年ほどとされている。そのため、安定な UTC(k)の運用のためには、複数台の水素メーザーを同時に運転させる必要があり、運用に必要な場所や費用の負担は大きい。水素メーザーは、Microchip 社（アメリカ）、T4Science 社（スイス）、Vremya-CH 社（ロシア）、北京航天科瑞电子有限公司（中国）などから販売されている。

ルビジウム原子時計は、ガラスセルに封入されたルビジウム原子のマイクロ波-光の二重共鳴遷移を励起し、2 重共鳴による光の吸収が最大となるマイクロ波周波数 (6.834 GHz) を基準とするものである。短期安定度は平

均時間 1 秒で 10^{-11} 台であり、UTC(k)の発振器としては用いられていない。ただし、セシウム原子時計や水素メーザーのような真空チャンバーや原子ビームを必要としないため小型かつ安価・長寿命で、企業や大学などで広く用いられている。

4. 新しいフライホイールとなる波長安定化レーザー

ここまで、マイクロ波周波数領域の原子遷移を用いた原子時計が、常時発振し続ける安定度の高いフライホイールとして用いられていることを述べてきた。一方で、最も高い安定度を持つ水素メーザーは、大型・高価で寿命が短く、長期の運用には費用の負担が大きいことをも述べた。そこでこの章では、比較的小型・安価・長寿命で、自分たちで開発可能な発振器であり、かつ水素メーザーと同等の安定度を持つような、すなわち UTC(k)の新しいフライホイールとなり得る光領域の発振器について調査する。

セシウム一次周波数標準器よりも小さい不確かさを実現している光時計は、単一イオン時計および光格子時計である。そして、光時計に用いられる紫外から可視波長域の計 8 つの放射波長が「秒の二次表現, Secondary representation of the definition of the second」として勧告されている。光時計は水素メーザーに比べて短期安定度が良い。しかし、原子の冷却・捕獲のため真空チャンバーや多数の冷却用のレーザーなどの装置が必要である。従って、水素メーザーのような連続運転は難しく、UTC(k)のフライホイールとして用いることは現実的ではない。

一方、長さの単位メートルにおいてもレーザーなどの放射波長がその実現のために用いられている。1983 年の国際度量衡総会において、「メートルは 299 792 458 分の 1 秒間に光が真空中を伝わる行程の長さ」として定義された。そして「メートルの実用的な実現方法, The practical realization of the metre」が勧告されており、これを実現するための長さの基準として、安定化レーザーの放射波長の勧告値リストが BIPM のホームページで公開されている。リストには、秒の二次表現として勧告されている放射波長も含まれている他、原子・分子の吸収線に波長安定化したレーザー、クリプトンランプ、および未安定化ヘリウムネオンレーザーの波長が勧告されている^{23),24)}。図 4 に The practical realization of the metre として勧告されている光領域の原子・分子の放射波長を、勧告値の不確かさを縦軸として示した²⁵⁾。原子の冷却・捕獲を必要とする単一イオン時計や光格子時計

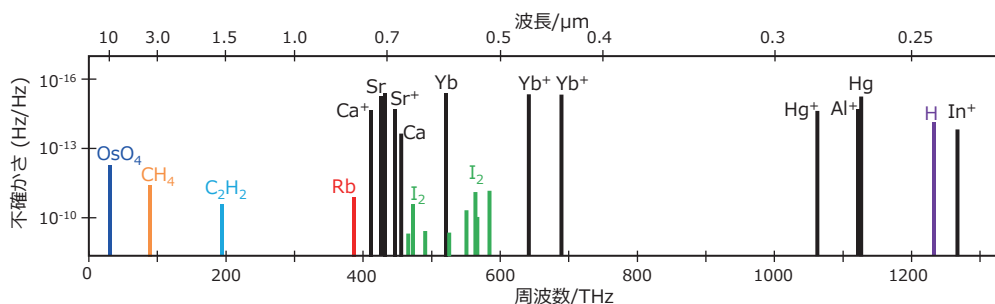


図4 The practical realization of the metre として勧告されている光領域の原子・分子の放射周波数と波長²⁵⁾。縦軸は勧告値の不確かさを表す。

に用いられている原子の放射波長を、図中黒線で示した。その他は、原子・分子ビームや、ガラスセルに原子や分子を封入した状態で、観測される遷移波長にレーザーの波長を安定化するもので、原子・分子種ごとに色を変えて示している。ここではこれらを、波長安定化レーザーと呼ぶことにする。

波長安定化レーザーは、気体原子や分子の高分解能分光を行い、観測されるスペクトル線にレーザーの波長を安定化するものである。より狭いスペクトル線にレーザーを安定化するほど高い安定度が得られるが、気体原子・分子はボルツマン分布に従う速度分布で空間を飛び回っているため、遷移周波数は原子・分子の速度に応じたドップラーシフトを受けて、可視波長域のスペクトル線幅は数 100 MHz 以上に広がってしまう。このドップラー拡がりの影響を除くための高分解能分光法として、ドップラーフリー分光法の一つである飽和吸収分光法²⁶⁾がよく用いられる。飽和吸収分光法では、十分に線幅が狭い励起用レーザーで原子・分子を速度選択的に励起し、飽和効果を生じさせる。この時プローブ光によって観測するスペクトルには、ホールバーニング効果によるくぼみができ、これをラムディップと呼ぶ。ラムディップの線幅は、原子・分子の遷移に関するエネルギー準位の寿命で決まる自然幅や、圧力幅、通過時間拡がり、飽和幅、光源レーザーの線幅などによって決まり、ドップラー拡がりの影響をほとんど受けないため、数 MHz 以下と狭い。

図5には、長波長側の5つの波長安定化レーザーのアラン偏差を、主要な論文に示されているものについて示した。また、表1には各レーザーの構成の要点をまとめた。波長 10.3 μm の OsO₄ (四酸化オスミウム)²⁷⁾と波長 3.39 μm の CH₄²⁸⁾は、低圧下で ν₃ 振動遷移の狭いスペクトル線幅を観測することができる。位相雑音が小さいガスレーザーを光源として飽和吸収分光を用いており、

100 秒平均の安定度は 10⁻¹⁴ 以下を達成している。波長 1.54 μm の ¹³C₂H₂ (13 アセチレン)²⁹⁾や波長 780 nm の ⁸⁷Rb³⁰⁾は、観測されるスペクトル線幅が比較的大きく、100 秒平均の安定度は 10⁻¹³ 台である。波長 778 nm の ⁸⁵Rb³¹⁾はドップラーフリー 2 光子吸収分光法を用いており、100 秒平均の安定度は 10⁻¹⁴ 台となっている。

図6には、6つの波長でのヨウ素安定化レーザーのアラン偏差を示した。640 nm から 515 nm の波長域には、8つのヨウ素分子 (I₂) の B-X 遷移の超微細構造遷移周波数が勧告値として与えられている。ヨウ素分子の B-X 遷移は可視から近赤外領域にわたって密に電子振動回転スペクトルが観測され、飽和吸収分光法を用いると 15 本または 21 本の超微細構造が分離して見られる。そのため、古くから高分解能分子分光の周波数アトラスとして用いられてきた歴史がある^{32),33)}。振動と回転の量子数をそれぞれ ν と J、電子励起状態と基底状態をそれぞれ添字 e と g で表すと、振動回転遷移は R または P(J_g) ν_e - ν_g と表記される。回転量子数の選択側から J_e - J_g = ± 1 であり、R は J_e - J_g = 1、P は J_e - J_g = -1 であ

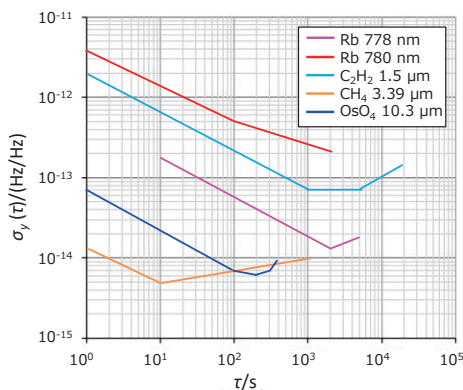


図5 波長安定化レーザーのアラン偏差。OsO₄, 10.3 μm²⁷⁾, CH₄, 3.34 μm²⁸⁾, C₂H₂, 1.54 μm²⁹⁾, Rb, 780 nm³⁰⁾, Rb, 778 nm³¹⁾。

表 1 図5および図6に安定度を示した波長安定化レーザー

原子・分子種	遷移	波長 (μm)	光源レーザー	分光法	スペクトル幅 (MHz)	安定度 (τ=100s)
OsO ₄	ν ₃ 振動遷移	10.3	CO ₂	共振器飽和吸収分光法	0.2	~7×10 ⁻¹⁵ ²⁷⁾
CH ₄	ν ₃ 振動遷移, F ⁽²⁾ ₂ component, P(7)	3.39	HeNe	レーザー共振器内飽和吸収分光法	0.2	~8×10 ⁻¹⁵ ²⁸⁾
¹³ C ₂ H ₂	ν ₁ + ν ₃ 振動遷移, P(16)	1.54	ECDL	共振器飽和吸収分光法	1	~1.6×10 ⁻¹³ ²⁹⁾
⁸⁷ Rb	D2, d and f hyperfine components	0.780	Ti:S	飽和吸収分光法	6	~5×10 ⁻¹³ ³⁰⁾
⁸⁵ Rb	5S _{1/2} (F _g = 3) - 5D _{5/2} (F _e = 5)	0.778	ECDL	ドップラーフリー2光子吸収分光法	0.66	~6×10 ⁻¹⁴ ³¹⁾
	B-X遷移, R(127) 11-5	0.633	HeNe	レーザー共振器内飽和吸収分光法	4.5	~9×10 ⁻¹³ ³⁴⁾
I ₂	B-X遷移, R(56) 32-0	0.532	Nd:YAG	飽和吸収分光法	0.2	~2×10 ⁻¹⁵ ⁴⁶⁾
	B-X遷移, R(36) 32-0	0.515	Ar ⁺	飽和吸収分光法	0.05	~6×10 ⁻¹⁴ ⁵⁰⁾

ることを示す。波長 633 nm の R(127)11-5³⁴⁾ は、HeNe レーザーのレーザー共振器内にヨウ素分子セルを設置し、飽和吸収線にレーザー発振波長を安定化したもので、2009 年まで日本の国家標準（特定標準器）としてメートルの実現に用いられた。現在でも、633 nm のヨウ素安定化 HeNe レーザーは市販されており、校正事業者が持つ標準器として用いられるほか、長さの特定標準器として採用している国もある。633 nm の R(127)11-5 遷移の超微細構造スペクトルの線幅は約 4.5 MHz であり³⁵⁾、安定度としては 100 秒平均で 10⁻¹² 程度となっている。波長 576 nm³⁶⁾ では HeNe レーザーの第二高調波や色素レーザーが、543 nm³⁷⁾ でも HeNe レーザーが用いられて、平均時間 100 秒で 10⁻¹² および 10⁻¹³ 位の安定度が

報告されている。

ヨウ素安定化レーザーとして、最も高い安定度が報告されているのは 532 nm の R(56)32-0 遷移に Nd:YAG レーザーの第二高調波を安定化したものである。Nd:YAG レーザーは位相雑音小さく、フリーランの状態での線幅は 1 kHz 程度である。ヨウ素分子の電子励起状態（B 状態）は多数の電子励起状態と複雑に相互作用していて、前期解離の影響から B-X 遷移のスペクトル線幅は広がりを生じている。しかし、遷移波長が B 状態の解離限界（499.5 nm）に近づくにつれて前期解離の影響が小さくなることでスペクトル線幅は小さくなるため、532 nm においてはスペクトルの自然幅はおおよそ 200 kHz から 300 kHz である³⁸⁾。また、523 nm 付近の遷移は長波長側の遷移に比べて信号強度も大きい。ヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーの研究は 2000 年ごろに盛んに行われ、アメリカ国立標準技術研究所（NIST）^{39),40)}、ドイツ物理工学研究所（PTB）とロシアレーザー物理研究所（ILP）⁴¹⁾、中国計量科学研究院（NIM）⁴²⁾、そして産業技術総合研究所⁴³⁾などが、10⁻¹⁴ から 10⁻¹⁵ 位の安定度を持つヨウ素安定化レーザーの開発を報告した。分光法としては変調移行分光法を用いてドップラーバックグラウンドの影響を受けない飽和吸収スペクトルを取得し、レーザーの波長を安定化している。また、ヨウ素分子セルは、真空ガラスセル中にヨウ素固体を封入し、温度を変化させてセル内の蒸気圧を変化させて使用するものであるが、セルの温度を -5 °C から -20 °C 程度に保ち、内部の蒸気圧を小さくすることで圧力幅の影響を

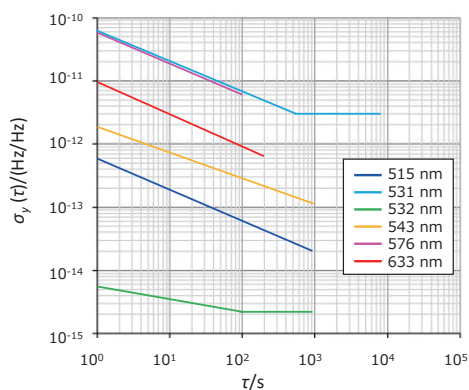


図 6 波長 633 nm³⁴⁾、576 nm³⁶⁾、543 nm³⁷⁾、532 nm⁴⁶⁾、531 nm⁴⁸⁾、515 nm⁵⁰⁾ のヨウ素安定化レーザーのアラン偏差。

小さくしている。これらの研究において、数10秒から100秒以上の中長期平均時間での安定度を悪くしていた要因は、変調移行分光法のために用いる電気光学変調器(EOM)によって生じる残留強度雑音(RAM)であった。RAMは、EOMの変調に伴って生じる2つのサイドバンドの強度の不一致や位相差の変化から生じる。EOM変調信号のDCバイアスと結晶の温度コントロールによってRAMが低減できることが知られており⁴⁴⁾、中長期安定度も改善されている⁴²⁾。532 nmのヨウ素安定化レーザーの研究は、探査ロケット搭載や宇宙重力波望遠鏡の基準レーザーとしての必要性から引き続き行われており⁴⁵⁾⁻⁴⁷⁾、近年、ドイツ航空宇宙センター(DLR)のグループが探査ロケット搭載用のヨウ素安定化レーザーを開発し、 2×10^{-15} の安定度を実現している⁴⁶⁾。この研究では、RAMキャンセルの手法が用いられたことに加えて、レーザー光の強度安定化がなされ、ヨウ素安定化レーザーとしてはこれまでで最高の安定度を達成している。

532 nmより短い波長域では、DFBレーザーの第二高調波を用いた531 nmのR(36)32-0遷移への安定化レーザーによって、100秒の平均時間で 10^{-12} 後半の安定度が得られている⁴⁸⁾。用いられたレーザーは、第二高調波発生部分を合わせても2 cmほどのコインサイズで、非常に小型なものである。また他にも、小型な半導体レーザーを用いた波長安定化レーザーの研究として、光通信波長1.542 μm のDFBレーザーと導波路型非線形結晶による第3高調波のR(73)46-0遷移(514 nm)への安定化も報告された。この研究では、100秒間の平均時間で 10^{-13} 台の安定度が得られている⁴⁹⁾。波長515 nmの勧告値であるP(13)43-0遷移は、先に述べた通りB状態の解離限界の波長により近づくことから、自然幅はおよそ50 kHzとなる^{50),51)}。Ar⁺レーザーが用いられ、100秒の平均時間で 10^{-13} を超える安定度が得られている。

波長安定化レーザーの短期安定度を制限する要因は、レーザー光源の位相ノイズ、基準とする原子・分子スペクトルの線幅と信号強度である。短期安定度については、水素メーザーを上回る波長安定化レーザーを開発することは難しくない。一方で、波長安定化レーザーの中長期の安定度については、変調器のRAMやレーザー光源の強度変化、ビームアラインメント、ガスセルの温度変化やセル内の圧力変化等の様々な要因に制限されていると考えられる。これらの要因を改善することで、水素メーザーと同等もしくはそれ以上の中長期安定度を持つ波長安定化レーザーを開発することも可能になるだろう。水素メーザー以上の安定度を持つ波長安定化レーザーを開発することができれば、UTC(k)の光フライホイールと

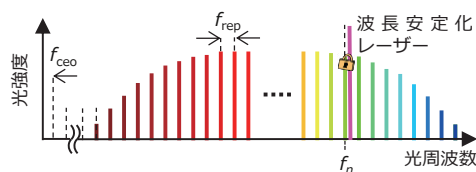


図7 光周波数コムのスペクトル。波長安定化レーザーを光周波数コムのモードの一つに安定化することで、波長安定化レーザーと同じ安定度を持つマイクロ波が得られる。

して次世代の時系を構成することができる。

ここまで、マイクロ波発振器とレーザーを同列に扱い、その安定度を比較してきた。UTC(k)は時系であり、時を刻み、かつGPS衛星で比較するためにはマイクロ波で運用する必要がある。ここでレーザーの光周波数とマイクロ波周波数とを比較する「光周波数コム」について述べる。光周波数コムは時間軸上では超短光パルス列であり、周波数軸上では図7のように楕状のスペクトルを持つ。楕の歯それぞれは連続発振レーザーであり、コムモードなどと呼ばれ、その間隔周波数は全光周波数域で等しい。従って、ゼロ周波数からn本目のコムモード周波数は

$$\nu_n = n f_{\text{rep}} + f_{\text{ceo}} \quad (2)$$

と表される⁵²⁾。ここでnはモード次数、 f_{rep} はモード間隔周波数で、繰り返し周波数とも呼ばれる。また、 f_{ceo} はキャリア・エンベロープ・オフセット周波数と呼ばれ、 $0 < f_{\text{ceo}} < f_{\text{rep}}$ である。 f_{rep} はマイクロ波周波数で、数10 MHzから数GHz程度、マイクロ波周波数である。(2)式から、 f_{rep} が整数n倍されて光周波数 ν_n に変換されていることがわかる。

光周波数コムによる光-マイクロ波周波数変換に伴う周波数の不確かさは、多くの場合 f_{rep} の周波数合成に伴い付加される位相雑音による。1秒平均で 10^{-12} 以下、1000秒平均で 10^{-15} 以下の周波数安定度を得ることは容易である。より良い安定度も多く報告されており⁵³⁾、波長安定化レーザーの安定度よりも十分小さい。従って、安定度の高い波長安定化レーザーの安定度をそのままマイクロ波に変換することが可能である。

5. 光時計の発振器、狭線幅レーザー

新しい秒の定義を実現する光時計も、他の時計と同様に、発振器・基準・カウンターの3つの要素で構成される。基準となる原子の放射波長を観測するためには、原子の

冷却と捕獲、さらには環境による放射波長のシフトを見積もる必要がある、この詳細は参考文献⁵⁴⁾⁻⁵⁶⁾に述べられている。また、時計のカウンター部である、光周波数コムによる光周波数計測については、文献^{57),58)}などに詳細が述べられている。ここでは、光時計の発振器として用いられる非常に狭いスペクトル線幅を持つレーザー（以下、狭線幅レーザー）について調査する。

光時計は、非常に短い積算時間で小さい周波数不確かさを実現する。時計の不確かさは、統計的な不確かさと系統的な不確かさから導出されるが、ここで統計的な不確かさとは原子の基準放射波長に安定化したレーザーの安定度と言い換えてよい。図8には産総研のイッテルビウム光格子時計 (NMIJ-Yb1) の安定度をアラン偏差で示した⁵⁹⁾。平均時間 τ が数10秒以下ではアラン偏差が平らになっており、これは、原子のスペクトルの検出とレーザー波長へのフィードバックに10秒弱の時間を要するためである。この時間領域の安定度は発振器として用いられる狭線幅レーザーの安定度 (NMIJ-Yb1) においては 2.0×10^{-15} がそのまま光格子時計の安定度となる。また、光格子時計においては白色 FM 雑音が支配的であるため、数10秒以降のアラン偏差は $1/\sqrt{\tau}$ に比例する。つまり、発振器である狭線幅レーザーの安定度は光格子時計の短期安定度を決定し、また、ある平均時間で到達できる安定度も狭線幅レーザーの安定度によって制限されることになる。

光時計の発振器として用いられる狭線幅レーザーとしては、光共振器に安定化したレーザーが用いられる。狭線幅レーザーのための光共振器は、2枚の鏡をスペーサーの両端に張りつける形で向かい合わせて設置したもので、高い反射率を持つミラーが用いられる。ミラーの反射率によって決まる光共振器のフィネス（共鳴の鋭さ、

F) はミラーの反射率を R として、 $F = \pi\sqrt{R}/(1-R)$ と表され、狭線幅レーザー用の光共振器としてはフィネス100 000以上のものが用いられている。レーザーの半波長の整数倍が光共振器長に一致するとき光が共振器に共鳴するので、共鳴のピークにレーザー波長を安定化する。光共振器の共鳴ピークの周波数の揺らぎ $\Delta\nu$ は、共鳴ピークの絶対周波数を ν として、 $\Delta\nu/\nu = \Delta L/L$ と表される。ここで、 L は光共振器長、 ΔL は光共振器長の揺らぎである。そのため、狭線幅レーザーに高い安定度を実現するためには、共振器長の揺らぎの小さい、構造的に安定な光共振器を開発する必要がある。光共振器長を変化させる原因としては、振動や音響雑音などの環境外乱、温度変化による光共振器スペーサーの熱膨張や結晶構造の変化によって生じるクリープ現象、光共振器材質の熱雑音、光の輻射圧等がある。

振動は地震や車・人の往来などの様々な原因で生じ、床や空気を介して光共振器に伝わる。これを低減するためには、適切な防振台を使用するとともに、共振器長が振動の影響を受けにくい光共振器形状や支持位置を設計することが必要である^{60),61)}。音響雑音の対策としては、多くの研究機関で音響遮蔽箱が用いられている。また、温度変化の影響を小さくするために、光共振器は真空中に外部からの熱伝導が小さい形で設置され、温度は一定に保たれる。スペーサー材質としては、低熱膨張 (ultra-low-expansion, ULE) ガラスがよく用いられており、熱膨張率は約 10^{-8} K^{-1} 、クリープは約 $0.2 \times 10^{-15} \text{ s}^{-1}$ と、いずれの値も他の材質に比べて小さい。さらに熱膨張率に関しては ULE ガラスの熱膨張係数が反転する温度付近に温度を設定することで、実質 10^{-10} K^{-1} 程度に低減することができる。環境外乱による雑音や熱膨張やクリープ現象の影響の低減方法については、参考文献⁶²⁾に詳細が述べられている。

図9に狭線幅レーザーの安定度を制限する雑音源をアラン偏差で示した。雑音源はそれぞれ周波数特性がありパワースペクトル密度で表されることが多いが、これをアラン偏差の形に表したものである。図9は文献⁶³⁾に報告された一例であるが、アラン偏差の特徴は多くの狭線幅レーザーに共通している。振動や音響ノイズの影響を十分に低減した場合、短い平均時間の領域ではレーザーの位相雑音が支配的となっている。また、数10秒以上の平均時間では、温度揺らぎやクリープ現象による光共振器長変化が支配となる。光時計の短期安定度として重要な数秒から数10秒の領域では、光共振器の熱雑音が狭線幅レーザーの安定度を制限していることがわかる。熱雑音は、光共振器を構成するスペーサー、ミラー基板、

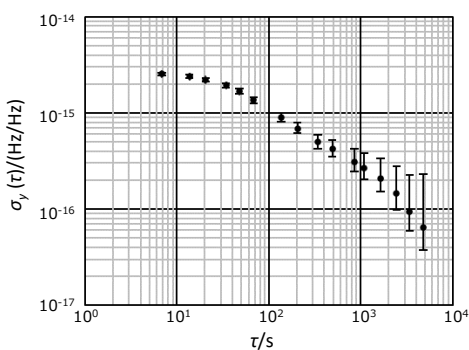


図8 産総研のイッテルビウム光格子時計 (NMIJ-Yb1) のアラン偏差⁵⁹⁾。

ミラーコーティングのブラウン運動によって生じる。そこで、熱雑音の大きさを見積もるには、材質の機械的散逸 ϕ の大きさが指標となる。 ϕ は材質の振動への共鳴の鋭さを表す Q 値の逆数であり、 ϕ が小さく Q 値が大きいほど熱雑音が小さくなる。光共振器全体の熱雑音 S_x のパワースペクトル密度はスペーサー S_x^{spacer} 、ミラー基板 S_x^{sub} 、ミラーコーティング S_x^{coat} が生じる熱雑音のパワースペクトル密度の和として、次の式で表される⁶⁴⁾。

$$S_x = S_x^{\text{spacer}} + 2S_x^{\text{sub}} + S_x^{\text{coat}} \quad (3)$$

それぞれのパワースペクトル密度は、

$$S_x^{\text{sub}}(f) = \frac{4kT}{\pi f} \frac{1-\sigma_{\text{sub}}^2}{2\sqrt{\pi}E_{\text{sub}}\omega} \phi_{\text{sub}} \quad (4)$$

$$S_x^{\text{coat}}(f) = S_x^{\text{sub}}(f) \frac{2}{\sqrt{\pi}} \frac{1-2\sigma_{\text{sub}}\phi_{\text{coat}}}{1-\sigma_{\text{sub}}\phi_{\text{sub}}} \frac{d_{\text{coat}}}{\omega} \quad (5)$$

$$S_x^{\text{spacer}} = \frac{4kT}{\pi f} \frac{L}{2\pi E_{\text{spacer}}(R^2-r^2)} \phi_{\text{spacer}} \quad (6)$$

と表される。 k , T , f はそれぞれボルツマン定数、温度、周波数、 σ_{XXX} , E_{XXX} , ϕ_{XXX} は下字が表すそれぞれの Poisson 係数、ヤング率、機械的散逸である。また、 ω と d_{coat} はそれぞれミラー上でのビームウエスト径とコーティング厚さ、 L , R , r はスペーサーの長さ、外径および中央の穴の内径を表す。図 10 は、異なる材質で構成された光共振器の、1 Hz における熱雑音のパワースペクトル密度で、式 (3) から式 (6) を使って導出した。各パラメータは文献⁶⁵⁾⁻⁶⁷⁾ から適当なものを使用した。ULE のスペーサーを用い、熔融石英のミラー基板に一般的な誘電体ミラーコーティングを施した光共振器は、スペーサーやミラー基板に比べてミラーコーティングの

熱雑音が高いことがわかる。近赤外から可視波長の高反射ミラーに広く用いられている $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ のイオンビームスパッタリングによるコーティングは、潜在的に大きい機械的散逸を持つ。そこで、熱雑音の低い高反射ミラーコーティングとして、結晶コーティングミラーが開発された^{65),68)}。ミラー基板上に単結晶 $\text{GaAs}/\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ の多層膜を生成したもので、小さい機械的散逸 ($\phi_{\text{coat}} = 2.5 \times 10^{-5}$)⁶⁵⁾ を持つ。これは、誘電体ミラーコーティング ($\phi_{\text{coat}} = 4 \times 10^{-4}$)⁶⁷⁾ よりも 1 桁以上小さい値である。また、結晶コーティングミラーを用いた光共振器は、近赤外波長では高い反射率が得られていて、フィネス 100 000 以上の光共振器を構成することができる。図 10 に、結晶コーティングミラーを用いた光共振器の熱雑音パワースペクトル密度も示している。スペーサーは ULE、ミラー基板は熔融石英の値を用いた。結晶コーティングの 1 Hz の熱雑音パワースペクトル密度は熔融石英のミラー基板より小さいことがわかる。

近年、さらなる熱雑音の低減のために、単一結晶シリコンを用いた低温光共振器が開発された。単一結晶シリコンの熱膨張係数が反転してゼロとなる 124 K⁷⁰⁾⁻⁷³⁾ またはゼロに近づく 4 K^{74),75)} に光共振器を冷却した場合の周波数 1 Hz の熱雑音パワースペクトル密度を図 10 に示した。ULE ($\phi = 1.7 \times 10^{-5}$) や熔融石英 ($\phi = 1 \times 10^{-6}$) に比べても、単一結晶シリコン機械的散逸は $\phi < 10^{-7}$ と小さく⁶⁹⁾、ヤング率も高い。また、分子の熱運動は温度 (K) に比例するので、室温の光共振器と比べ、熱雑音が圧倒的に小さい。低温単一結晶シリコン光共振器のミラーコーティングとしては $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ が用いられており、コーティングの熱雑音が支配的となっている。

熱雑音パワースペクトルを狭線幅レーザーのアラン偏

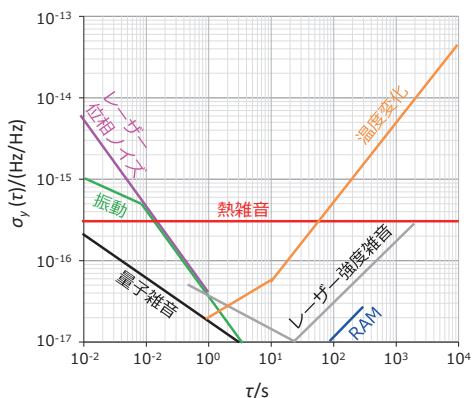


図 9 狭線幅レーザーの安定度を制限する雑音源⁶³⁾。

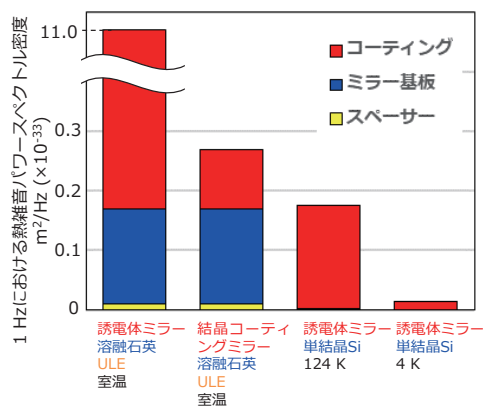


図 10 異なる材質で構成された光共振器の、1 Hz における熱雑音パワースペクトル密度。

差におけるフリッカー雑音として表すには、次の式を用いる⁶⁴⁾。

$$\alpha_y^{\text{floor}} = \sqrt{2 \ln(2) f \frac{S_x(f)}{L^2}} \quad (7)$$

フリッカー雑音はアラン偏差において水平なフロアとして現れるので、熱雑音フロアと呼ばれている。式(7)からわかるように、光共振器長 L に比例して熱雑音フロアが小さくなるため、長い光共振器長を持つ狭線幅レーザーも多数開発されている。光共振器長を長くすると、温度の精密コントロールや振動の影響を除くことが難しくなるが、誘電体コーティング ULE 光共振器 40 cm (熱雑音フロア: 1×10^{-16} Hz/Hz)⁷⁶⁾, 48 cm (熱雑音フロア: 5.4×10^{-17} Hz/Hz)⁷⁷⁾などの光共振器が開発され、高い安定度を達成している。

光時計の研究において、基準となる原子の遷移の自然幅は、例えば中性イッテルビウム原子の $6s^2 \ ^1S_0 - 6s6p \ ^3P_0$ については約 44 mHz, 中性 87 ストロンチウム $5s^2 \ ^1S_0 - 5s5p \ ^3P_0$ については 7.6 mHz であり、原子の自然幅以下のスペクトル線幅を持つ狭線幅レーザーの開発が一つの目標とされてきた。最近では、4 K シリコン光共振器 (線幅: 16 mHz, 熱雑音フロア: 6.5×10^{-17} Hz/Hz)⁷⁵⁾, 124 K シリコン光共振器 (線幅: 5 mHz, 熱雑音フロア: 4×10^{-17} Hz/Hz)⁷³⁾ など、原子の自然幅以下の線幅を持つ狭線幅レーザーが登場している。さらなる狭線幅化、高安定化の開発のためには、低温光共振器のミラーコーティングの改良が進められるだろう⁶⁶⁾。また、光時計の応用の拡大に向けて移動式の光時計^{78),79)}が開発されており、このための小型狭線幅レーザーの研究も進められている⁸⁰⁾。

6. まとめと今後の展望

多数の研究機関の光時計開発の努力によって、秒の定義改定が現実的なものとなってきた。マイクロ波から光へ、秒の定義となる原子の放射波長が変われば、より小さい不確かさの時系の実現に向けて UTC の構成も変化する。同時に、時間標準は止まることのない標準として、供給され続けなければならない。今後も不確かさの小さい時系を維持していくために、世界各国の標準研究機関には、不確かさの小さい UTC(k)を供給し続けることが求められる。さらに、光時計を保有する標準研究機関には、高稼働率の光時計による TAI の校正を行うことによって、次世代の時間標準に貢献することが求められる

だろう。

本稿では、UCT(k)のフライホイール、新しいフライホイールとなり得る波長安定化レーザー、および光時計の発振器である狭線幅レーザーについて調査した。いずれも次世代の時間標準に重要な構成要素である。これまでに産総研では UTC(NMIJ) のフライホイールとして水素メーザーを用いているが、現在これに代わるヨウ素安定化レーザーを開発している。水素メーザーと同等級以上の安定度を持つヨウ素安定化レーザーが開発できれば、安価かつ長寿命な光フライホイールとして、UCT(k)を持つ研究機関のみならず、不確かさの小さい時間標準を必要とする様々な分野に導入されるだろう。狭線幅レーザーについては、これまで産総研の光時計 (NMIJ-Yb1) には、 2.0×10^{-15} Hz/Hz の熱雑音フロアを持つ狭線幅レーザーが用いられてきた。現在、結晶コーティングミラー ULE 光共振器を用いることで 1.5×10^{-16} Hz/Hz の熱雑音フロアを持つ狭線幅レーザーを開発している。これにより、産総研の光格子時計の不確かさが低減され、より小さい不確かさで TAI の校正に寄与することができる。また、光格子時計の安定度を向上させることで、測地学や基礎物理学実験への展開が可能になるだろう。

謝辞

本調査研究を行うにあたり、ご指導・ご助言をいただきました安田正美 時間標準研究グループ長、稲場肇 光周波数計測研究グループ長、保坂一元 物理計測標準研究部門研究部門長、福田大治 首席研究員、ならびに時間標準研究グループ、光周波数計測研究グループの皆様にご感謝いたします。

参考文献

- 1) Y. Tanaka, H. Katori, "Exploring potential applications of optical lattice clocks in a plate subduction zone," *Journal of Geodesy* 95, 93 (2021)
- 2) W. F. McGrew, X. Zhang, R. J. Fasano, S. A. Schäffer, K. Beloy, D. Nicolodi, R. C. Brown, N. Hinkley, G. Milani, M. Schioppo, T. H. Yoon, and A. D. Ludlow "Atomic clock performance enabling geodesy below the centimetre level," *Nature* 564, 87 (2018)
- 3) T. E. Mehlstäubler, G. Grosche, C. Lisdat, P. O. Schmidt, and H. Denke, "Atomic clocks for geodesy," *Rep. Prog. Phys.* 81, 064401 (2018)
- 4) C. W. Chou, D. B. Hume, T. Rosenband, and D. J.

- Wineland “Optical clocks and relativity,” *Science* 329, 1630 (2010)
- 5) E. Peik, B. Lipphardt, H. Schnatz, T. Schneider, Chr. Tamm, and S. G. Karshenboim “Limit on the present temporal variation of the fine structure constant,” *Phys. Rev. Lett.* 93, 170801 (2004)
 - 6) A. Derevianko, and M. Pospelov, “Hunting for topological dark matter with atomic clocks,” *Nature Phys.* 10, 933–936 (2014)
 - 7) P. Wcisło, P. Morzyński, M. Bober, A. Cygan, D. Lisak, R. Ciuryło, and M. Zawada “Experimental constraint on dark matter detection with optical atomic clocks” *Nature Astronomy* 1, 0009 (2017)
 - 8) B M Roberts, et al, “Search for transient variations of the fine structure constant and dark matter using fiber-linked optical atomic clocks,” *New J. Phys.* 22, 093010 (2020)
 - 9) M.S. Safronova, D. Budker, D. DeMille, Derek F. Jackson Kimball, A. Derevianko, and Charles W. Clark “Search for new physics with atoms and molecules,” *Rev. Mod. Phys.* 90, 025008 (2018)
 - 10) S. Weyers, V Gerginov, M Kazda, J Rahm, B Lipphardt, G Dobrev, and K Gibble, “Advances in the accuracy, stability, and reliability of the PTB primary fountain clocks,” *Metrologia*, 55(6), 789 (2018)
 - 11) S. M. Brewer, J.-S. Chen, A. M. Hankin, E. R. Clements, C. W. Chou, D. J. Wineland, D. B. Hume, and D. R. Leibrandt, “²⁷Al + Quantum-Logic Clock with a Systematic Uncertainty below 10^{-18} ,” *Phys. Rev. Lett.* 123, 033201 (2019)
 - 12) G. Panfilo and F Arias, “The Coordinated Universal Time (UTC),” *Metrologia* 56, 042001 (2019)
 - 13) P. Gill, “When should we change the definition of the second?,” *Phil. Trans. R. Soc. A* 369, 4109 (2011)
 - 14) <https://www.bipm.org/en/time-ftp/Circular T>
 - 15) <https://www.bipm.org/en/time-ftp/utcr>
 - 16) B. L. S. Marlow, and D. R. Scherer, “A Review of Commercial and Emerging Atomic Frequency Standards,” *IEEE Trans Ultrason Ferroelectr Freq Control* 68, 2007 (2021)
 - 17) E. Batori, N. Almat, C. Affolderbach, and G. Mileti, “GNSS-grade space atomic frequency standards: Current status and ongoing developments,” *Advances in Space Research* 68, 4723 (2021)
 - 18) D. W. Allan, “Statistics of Atomic Frequency Standards,” *Proc. IEEE*, 54-2, 221-230 (1966)
 - 19) L. S. Cutler, “Fifty years of commercial cesium clocks,” *Metrologia* 42(3), S90–S99 (2005)
 - 20) H. M. Goldenberg, D. Kleppner, and N. F. Ramsey, “Atomic Hydrogen Maser,” *Phys. Rev. Lett.* 5, 361 (1960)
 - 21) 伊東宏之, 細川瑞彦, 梅津純, 森川容雄, 津田正宏, 高幣謙一郎, 原正朗, 森謙二郎 “水素メーザ原子周波数標準器,” *通信総合研究所季報*, 49 Nos.1/2 (2003)
 - 22) K. Akiyama et al., “First M87 event horizon telescope results. II. Array and instrumentation,” *Astrophys. J. Lett.*, 875(1), L2 (2019)
 - 23) T. J. Quinn “Practical realization of the definition of the metre (1997),” *Metrologia* 36, 211–244 (1999)
 - 24) T. J. Quinn, “Practical realization of the definition of the metre, including recommended radiations of other optical frequency standards (2001),” *Metrologia* 40, 103–133 (2003)
 - 25) F. Riehle, P. Gill, F. Arias, and L. Robertsson, “The CIPM list of recommended frequency standard values: guidelines and procedures,” *Metrologia* 55, 188–200 (2018)
 - 26) W. Demtröder, “*Laser Spectroscopy*,” 4th ed. (Springer, New York, 2008)
 - 27) C. Daussy, F. Ducos, G. D. Rovera, O. Acaf, “Performances of OsO₄ Stabilized CO₂ Lasers as Optical Frequency Standards Near 29 THz,” *IEEE Trans. Ultrason. Ferroel. Freq. Contr.* 47, 518-521 (2000)
 - 28) S. N. Bagayev, A. K. Dmitriyev, and P. V. Pokasov, “Transportable He-Ne/CH₄ Frequency Standard for Precision Measurements,” *Laser Physics* 7(4) 989-992 (1997)
 - 29) C. S. Edwards, G. P. Barwood, H. S. Margolis, P. Gill, W. R. C. Rowley, “High-precision frequency measurements of the $\nu_1 + \nu_3$ combination band of ¹²C₂H₂ in the 1.5 μ m region,” *J. Mol. Spectr.* 234, 143 (2005)
 - 30) J. Ye, S. Swartz, P. Jungner, and J. L. Hall, “Hyperfine structure and absolute frequency of the ⁸⁷Rb 5P_{3/2} state” , *Opt. Lett.* 21, 1280 (1996)
 - 31) R. Felder, D. Touhari, O. Acaf, L.Hilico, J.-J. Zondy, A. Clairon, B. de Beauvoir, F. Biraben, L. Julien, F. Nez, Y. Millerieux, “Performance of a GaAs laser diode stabilized on a hyperfine component of two-photon

- transitions in rubidium at 778 nm,” Proceedings of SPIE, 2378, 52-57 (1995)
- 32) H. Kato, et al., “Doppler free High Resolution Spectral Atlas of Iodine Molecule 15,000 to 19,000 cm^{-1} (JSPS, Tokyo, 2000)
- 33) S. Gerstenkorn and P. Luc, “Atlas du spectre d’absorption de la molécule d’iode 14 800 20 000 cm^{-1} ,” (Laboratoire Aimé Cotton CNRS II, 1978)
- 34) T. H. Yoon, J. Ye, J. L. Hall, and J.-M. Chartier, “Absolute frequency measurement of the iodine-stabilized He-Ne laser at 633 nm,” Appl. Phys. B 72, 221-226 (2001)
- 35) C. R. Hanes and C. E. Dahlstrom “Iodine Hyperfine Structure Observed in Saturated Absorption at 633nm,” Appl. Phys. Lett. 14(11)362 (1969)
- 36) G. P. Barwood, and W. R. C. Rowley, “Characteristics of a $^{127}\text{I}_2$ -Stabilized Dye Laser at 576 nm,” Metrologia, 20, 19-23 (1984)
- 37) T. Lin, Y.-W. Liu, W.-Y. Cheng, and J.-T. Shy, “Iodine-stabilized 543 nm He-Ne Lasers,” Opt. Commun. 107, 389-394 (1994)
- 38) W.-Y. Cheng, L. Chen, T. H. Yoon, J. L. Hall, and J. Ye, “Sub-Doppler molecular-iodine transitions near the dissociation limit (523-498 nm),” Opt. Lett. 27(8), 571 (2002)
- 39) J. Ye, L. Robertsson, S. Picard, L.-S. Ma, and J. L. Hall, “Absolute Frequency Atlas of Molecular Lines at 532 nm,” IEEE Trans Instrum Meas. 48, 544 (1999)
- 40) J. L. Hall, L.-S. Ma, M. Taubman, B. Tiemann, F.-L. Hong, O. Pfister, and J. Ye, “Stabilization and Frequency Measurement of the I-Stabilized Nd:YAG Laser,” IEEE Trans. Instrum. Meas. 48, 544 (1999)
- 41) M. V. Okhapkin, M. N. Skvortsov, A. M. Belkin, N. L. Kvashnin, S. N. Bagayev, “Tunable single-frequency diode-pumped Nd:YAG ring laser at 1064/532 nm for optical frequency standard applications,” Opt. Commun. 203, 359 (2002)
- 42) E. J. Zang, J. P. Cao, Y. Li, C. Y. Li, Y. K. Deng, and C. Q. Gao, “Realization of Four-Pass I_2 Absorption Cell in 532-nm Optical Frequency Standard” IEEE Trans. Instrum. Meas. 56, 673 (2007)
- 43) F.-L. Hong, J. Ishikawa, Y. Zhang, R. Guo, A. Onae, H. Matsumoto, “Frequency reproducibility of an iodine-stabilized Nd:YAG laser at 532 nm,” Opt. Commun. 235, 377 (2004)
- 44) W. Zhang, M. J. Martin, C. Benko, J. L. Hall, J. Ye, C. Hagemann, T. Legero, U. Sterr, F. Riehle, G. D. Cole, and M. Aspelmeyer, “Reduction of residual amplitude modulation to 1×10^{-6} for frequency modulation and laser stabilization,” Opt. Lett. 39(7), 1980 (2014)
- 45) K. Döringshoff, et al., “Iodine Frequency Reference on a Sounding Rocket,” Phys. Rev. Appl. 11, 054068 (2019)
- 46) T. Schuldt, K. Döringshoff, E. V. Kovalchuk, A. Keetman, J. Pahl, A. Peters, and C. Braxmaier, “Development of a compact optical absolute frequency reference for space with 10^{-15} instability” Appl. Opt. 56, 1101 (2017)
- 47) W. Kokuyama, K. Numata, and J. Camp, “Simple iodine reference at 1064 nm for absolute laser frequency determination in space applications,” Appl. Opt. 49(32), 6264 (2010)
- 48) T. Kobayashi, D. Akamatsu, K. Hosaka, H. Inaba, S. Okubo, T. Tanabe, M. Yasuda, A. Onae, F.-L. Hong, “Compact iodine-stabilized laser operating at 531 nm with stability at the 10^{-12} level and using a coin-sized laser module,” Opt. Express 23, 20749 (2015)
- 49) K. Ikeda, S. Okubo, M. Wada, K. Kashiwagi, K. Yoshii, H. Inaba, and F.-L. Hong, “Iodine-stabilized laser at telecom wavelength using dual-pitch periodically poled lithium niobate waveguide,” Opt. Express 28(2), 2166 (2020)
- 50) A. Goncharov, A. Amy-Klein, O. Lopez, F. Du Burck, C. Chardonnet, “Absolute frequency measurement of the iodine-stabilized Ar^+ laser at 514.6 nm using a femtosecond optical frequency comb,” Appl. Phys. B 78, 725 (2004)
- 51) R. J. Jones, W.-Y. Cheng, K. W. Holman, L. Chen, and J. L. Hall, j. ye “Absolute-frequency measurement of the iodine-based length standard at 514.67 nm.” Appl. Phys. B 74, 597-601 (2002)
- 52) D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall, S. T. Cundiff “Carrier-Envelope Phase Control of Femtosecond Mode-Locked Lasers and Direct Optical Frequency Synthesis,” Science 288, 635 (2000)
- 53) S. A. Diddams, L. Hollberg, L.-S. Ma, and L. Robertsson. “Femtosecond-laser-based optical clockwork with instability $\leq 6.3 \times 10^{-16}$ in 1 s,” Opt. Lett. 27(1), 58-60 (2002)

- 54) 安田正美, “光格子時計を用いた光周波数標準” 産総研計量標準報告 Vol. 4, No. 3, 137 (2006)
- 55) 赤松大輔, “光格子時計の応用に関する調査研究” 産総研計量標準報告 Vol. 8, No. 2, 201 (2011)
- 56) 小林拓実, “光格子時計の研究開発状況と応用に関する調査研究” 産総研計量標準報告 Vol. 9, No. 4, 471 (2018)
- 57) T. Udem, J. Reichert, T. W. Hänsch, and M. Kourogi, "Absolute optical frequency measurement of the cesium D₂ line," *Phys. Rev. A* 62, 031801 (2000)
- 58) L. A. M. Johnson, P. Gill, and H. S. Margolis, "Evaluating the performance of the NPL femtosecond frequency combs: agreement at the 10⁻²¹ level," *Metrologia* 52(1), 62-71 (2015)
- 59) T. Kobayashi, D. Akamatsu, K. Hosaka, Y. Hisai, M. Wada, H. Inaba, T. Suzuyama, F.-L. Hong and M. Yasuda, "Demonstration of the nearly continuous operation of an ¹⁷¹Yb optical lattice clock for half a year," *Metrologia* 57, 065021 (2020)
- 60) S. A. Webster, M. Oxborrow, S. Pugla, J. Millo, and P. Gill, "Thermal-noise-limited optical cavity," *Phys. Rev. A* 77, 033847 (2008)
- 61) M. Notcutt, L.-S. Ma, J. Ye, and J. L. Hall, "Simple and compact 1-Hz laser system via an improved mounting configuration of a reference cavity," *Opt. Lett.* 30(14), 1815 (2005)
- 62) 保坂一元, “光格子時計のための線幅 1 Hz 級レーザーの開発” 産総研計量標準報告 Vol. 7, No. 1, 11 (2008)
- 63) J. Keller, S. Ignatovich, S. A. Webster, T. E. Mehlstäubler, "Simple vibration-insensitive cavity for laser stabilization at the 10⁻¹⁶ level," *Appl. Phys. B* 116, 203-210 (2014)
- 64) M. Abdel-Hafiz, et al., "Guidelines for developing optical clocks with 10⁻¹⁸ fractional frequency uncertainty" OC18.
- 65) G. D. Cole, W. Zhang, M. J. Martin, J. Ye and M. Aspelmeyer, "Tenfold reduction of Brownian noise in high-reflectivity optical coatings" *Nature Photon.* 7, 644 (2013)
- 66) J. M. Robinson, E. Oelker, W. R. Milner, D. Kedar, W. Zhang, T. Legero, D. G. Matei, S. Hafner, F. Riehle, U. Sterr, and J. Ye, "Thermal noise and mechanical loss of SiO₂/Ta₂O₅ optical coatings at cryogenic temperatures," *Opt. Lett.* 46(3), 592 (2021)
- 67) K. Numata, A. Kemery, and J. Camp "Thermal-Noise Limit in the Frequency Stabilization of Lasers with Rigid Cavities," *Phys. Rev. Lett.* 93, 250602 (2004)
- 68) G. D. Cole, W. Zheng, B. J. Bjork, D. Follman, P. Heu, C. Deutsch, L. Sonderhouse, J. Robinson, C. Franz, A. Alexandrovski, M. Notcutt, O. H. Heckl, J. Ye, and M. Aspelmeyer "High-performance near- and mid-infrared crystalline coatings," *Optica* 3(6), 647 (2016)
- 69) R. Nawrodt, A. Zimmer, S. Nietzsche, M. Thürk, W. Vodel, P. Seidel, "A new apparatus for mechanical Q-factor measurements between 5 and 300 K," *Cryogenics* 46, 718-723 (2006)
- 70) T. Kessler, C. Hagemann, C. Grebing, T. Legero, U. Sterr, F. Riehle, M. J. Martin, L. Chen, and J. Ye, "A sub-40-mHz-linewidth laser based on a silicon single-crystal optical cavity," *Nature Photon.* 6, 687 (2012)
- 71) C. Hagemann, C. Grebing, C. Lisdat, S. Falke, T. Legero, U. Sterr, F. Riehle, M. J. Martin, and J. Ye, "Ultrastable laser with average fractional frequency drift rate below 5 × 10⁻¹⁹/s," *Opt. Lett.* 39(17), 5102 (2014)
- 72) D. G. Matei, T. Legero, Ch. Grebing, S. Häfner, Ch. Lisdat, R. Weyrich, W. Zhang, L. Sonderhouse, J. M. Robinson, F. Riehle, J. Ye and U. Sterr, "A second generation of low thermal noise cryogenic silicon resonators" 8th Symposium on Frequency Standards and Metrology 2015, *Journal of Physics: Conference Series* 723, 012031 (2016)
- 73) D. G. Matei, T. Legero, S. Häfner, C. Grebing, R. Weyrich, W. Zhang, L. Sonderhouse, J. M. Robinson, J. Ye, F. Riehle, and U. Sterr, "1.5 μm Lasers with Sub-10 mHz Linewidth," *Phys. Rev. Lett.* 118, 263202 (2017)
- 74) W. Zhang, J. M. Robinson, L. Sonderhouse, E. Oelker, C. Benko, J. L. Hall, T. Legero, D. G. Matei, F. Riehle, U. Sterr, and J. Ye, "Ultrastable Silicon Cavity in a Continuously Operating Closed-Cycle Cryostat at 4 K," *Phys. Rev. Lett.* 119, 243601 (2017)
- 75) J. M. Robinson, E. Oelker, W. R. Milner, W. Zhang, T. Legero, D. G. Matei, F. Riehle, U. Sterr, and J. Ye, "Crystalline optical cavity at 4 K with thermal-noiselimited instability and ultralow drift" *Optica* 6 (2), 240 (2019)
- 76) T. L. Nicholson, M. J. Martin, J. R. Williams, B. J.

- Bloom, M. Bishof, M. D. Swallows, S. L. Campbell, and J. Ye, "Comparison of Two Independent Sr Optical Clocks with 1×10^{-17} Stability at 10^3 s," Phys. Rev. Lett. 109, 230801 (2012)
- 77) S. Häfner, S. Falke, C. Grebing, S. Vogt, T. Legero, M. Merimaa, C. Lisdat, and U. Sterr, " 8×10^{-17} fractional laser frequency instability with a long room-temperature cavity," Opt. Lett. 40(9), 2112 (2015)
- 78) M. Takamoto, I. Ushijima, N. Ohmae, T. Yahagi, K. Kokado, H. Shinkai, and H. Katori, "Test of general relativity by a pair of transportable optical lattice clocks," Nature Photon. 14, 411 (2020)
- 79) S. B. Koller, J. Grotti, St. Vogt, A. Al-Masoudi, S. Dörscher, S. Häfner, U. Sterr, and Ch. Lisdat, "Transportable Optical Lattice Clock with 7×10^{-17} Uncertainty," Phys. Rev. Lett. 118, 073601 (2017)
- 80) S. Häfner, S. Herbers, S. Vogt, C. Lisdat, and U. Sterr "Transportable interrogation laser system with an instability of mod $\sigma_y = 3 \times 10^{-16}$," Opt. Express 28(22), 16407 (2020)