

高安定光周波数シンセサイザーとその応用

大久保章*

(平成 25 年 3 月 19 日受理)

A High Stable Optical Frequency Synthesizer and Its Application

Sho OKUBO

Abstract

The optical frequency synthesizer is the ultimate form of laser which is able to manipulate its frequency, phase and amplitude. The development of it has spillover effects on many fields of fundamental science and industrial engineering, involving optical frequency standards. In this report, we describe key elements of the optical frequency synthesizer, optical frequency combs and ultranarrow-linewidth lasers. We also introduce the application for precise measurement.

1. はじめに

周波数、位相、パワーを自由に制御して出力できるシンセサイザーは、周期現象を利用するあらゆる分野で最も基本的かつ重要なツールである。その根幹をなす周波数制御技術の進歩によって、周波数は最も精度高く測定、制御できる物理量となった。そのため周波数標準は、光の速さを介して長さ標準、ジョセフソン効果を通じて電圧標準といった例のように、他の物理標準の精度を裏打ちするものとなっている。このような高精度な測定、制御技術は、基礎科学における発見や産業技術の発展に多大な貢献をしている。

周波数制御技術発展の歴史は、高周波数化の歴史でもある。周波数標準においては周波数が高いほど短い積算時間で高い安定度が得られ、情報通信においては高周波であるほど単位時間あたりに送れる情報量が増加する。現在の 1 秒は、セシウム原子超微細準位間の共鳴周波数、約 9.2 GHz のマイクロ波周波数で定義されており、セシウム原子時計を用いて実現されている¹⁾。一方で、光格子時計²⁾や単一イオン光時計³⁾といった光周波数領域の共鳴周波数を用いた原子時計の開発が進んでおり、

既にマイクロ波のセシウム原子時計の安定度を超える結果が得られている^{4),5)}。そのため、1 秒の定義をマイクロ波周波数から光周波数に移行するための議論がなされており、今後マイクロ波に代わって光が周波数利用の中心となっていくのは必然の流れである。

このような状況の中、マイクロ波シンセサイザーに代わる光シンセサイザーの実現が望まれている。しかし、周波数、位相、パワーの全てを自由に制御して出力できるシンセサイザーとしては、今のところ 100 GHz 程度のマイクロ波周波数までしか実現されていない。その理由は、1 秒を定義する約 9.2 GHz のマイクロ波周波数から数 100 THz の光周波数までには数桁の周波数ギャップがあり、直接比較して光周波数を制御することが難しいためである。このギャップをどう埋めていくかが、光シンセサイザー実現へ向けたひとつの大きな課題であった。こうした光周波数制御の課題は、光周波数コム誕生により克服されることになる。

人類が光周波数を利用できるようになった第一の革新は、1960 年のレーザーの登場である⁶⁾。これによって、光周波数領域に高安定かつ低雑音の発振器を得た。さらに、その後の進歩によってレーザーの周波数安定度は 1 秒のアラン偏差で 10^{-15} を下回り、マイクロ波発振器の安定度を超えるようになった。しかし、発振できる周波

*計測標準研究部門 時間周波数科 波長標準研究室

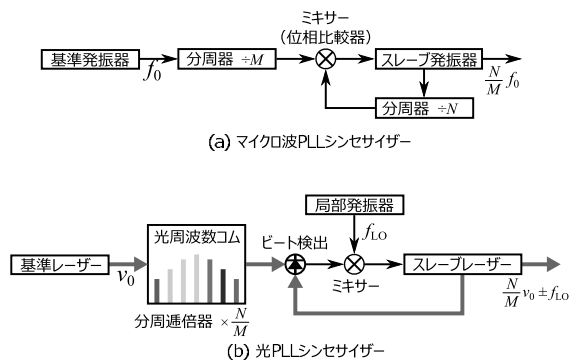


図1 マイクロ波と光のPLLシンセサイザの概念図。

数領域は限られたもので、また、絶対周波数や位相の制御を自由に行うことはできなかった。そして、第二の革新が1999年の光周波数コムが登場である⁷⁾。これによって光周波数とマイクロ波周波数をリンクできるようになり、光周波数を直接測定、制御できるようになった。さらに、コム的高速制御によって光の位相も制御できるようになり、光シンセサイザの実現に向けて大きく前進した。今後、より広い波長帯域でレーザー光が得られ、そのパワーを自由にコントロールできるようになれば、マイクロ波シンセサイザと同じように使える光シンセサイザが実現するであろう。

本調査研究では、光シンセサイザ実現に向けた光の周波数および位相制御技術について解説する。パワー制御については触れず、周波数と位相を自由に制御できるレーザーを狭義の光シンセサイザと定義し、これを調査対象とする。前半部分で光シンセサイザの周波数合成部の基本構成とその実現方法について説明する。また、重要な構成要素である狭線幅レーザーと高速制御可能な光周波数コムについても、併せて説明する。後半部分では、部分的に実現している光シンセサイザの精密測定への応用例として、光格子時計の周波数測定、デュアルコム測定、CWレーザーの雑音評価などを紹介する。

2. 光シンセサイザ

2.1 シンセサイザの基本構成

光シンセサイザの周波数合成は、マイクロ波シンセサイザでの周波数合成と同様にフェイズロックループ(PLL)方式で実現できる。これは、周波数分周と位相同期技術を用いて、高安定な基準周波数を基に任意の周波数を合成するものである。図1(a)はマイクロ波PLLの基本概念を示す。発振器には通常水晶発振器

を用い、分周器はフリップフロップを使ったデジタルカウンタ回路やアナログミキサーを用いた regenerative frequencydivider 回路によって実現する。基準発振器には低雑音、高安定な恒温槽付き水晶発振器などを用いることで、低雑音、高安定な出力周波数を得る。一方、図1(b)は光PLLの基本概念を示す。マイクロ波での発振器はレーザーに置き換わり、光周波数コムが分周器および通倍器の役割を果たす。基準レーザーには狭線幅レーザーを用い、光周波数コムによって分周または通倍された光とスレーブレーザーのビート信号を検出する。得られたビート信号と局部発振器からの信号を位相同期することで、狭線幅レーザーの安定度を持った任意の光周波数を出力できる。ここで重要になる技術は、狭線幅レーザー、光周波数コムである。本節では、これらの技術について紹介し、高安定、低雑音光シンセサイザをどのように実現するか説明する。

2.2 狭線幅レーザー

光時計の開発において、極めて狭い自然幅を持つ時計遷移を効率よく励起するための狭線幅レーザーは不可欠な要素であり、各国の研究機関で開発が進められている。光シンセサイザを考えると、狭線幅レーザーは出力光の線幅および長期安定度の基準となる。

レーザーの安定度を評価するための指標としては、位相雑音(または周波数雑音)のパワースペクトル密度 $S_\phi(f)$ (S_y)、アラン偏差 σ_y 、線幅(平均周波数偏差) $\Delta\nu_{rms}$ がある⁸⁾。 y はキャリア周波数 ν_0 で規格化した周波数を表し、位相雑音と周波数雑音のパワースペクトル密度には

$$S_\phi(f) = \left(\frac{f}{\nu_0}\right)^2 S_y(f) \tag{1}$$

の関係が成り立つ。 f は周波数である。アラン偏差は発振器の周波数安定度を表すのによく使われる指標で、

$$\sigma_y(\tau) = \sqrt{\frac{1}{2M} \sum_{i=1}^M (\bar{y}_{i+1} - \bar{y}_i)^2} \tag{2}$$

で定義される。 τ は1回の周波数測定における測定時間で、 \bar{y}_i は i 番目の測定周波数を表す。アラン偏差と線幅は

$$\sigma_y^2(\tau) = 2 \int_0^\infty S_y(f) \frac{\sin^4(\pi f \tau)}{(\pi f \tau)^2} df, \tag{3}$$

$$\Delta\nu_{rms} = \nu_0 \sqrt{\int_{1/T}^{f_c} S_y(f) df} \tag{4}$$

で表され⁸⁾、それぞれパワースペクトル密度の積分値として得られる。式(4)において、 T はパワースペクトル密度の測定時間、 f_c は測定時の遮断周波数である。ア

ラン偏差は長期的な安定度を表し周波数揺らぎの要因を調べるのに、線幅は短期的な安定度を表すのに適した指標である。

レーザーの線幅を狭窄化するためには、高安定な線幅の基準が必要になる。一般的には、フィネスが 10^5 - 10^6 の高フィネス光共振器が用いられている。共振器の共振周波数は熱膨張、熱雑音、振動、音響雑音などによって変化する。

熱膨張 共振周波数を変化させる最大の要因は熱膨張である。このため、光共振器のスペーサーには低熱膨張材が用いられる。また、熱膨張係数の符号が変わるゼロクロス温度があることも重要である。光共振器をゼロクロス温度に安定化すれば、熱膨張の影響はさらに小さくなる。

熱雑音 鏡の熱雑音も光共振器の安定度に影響する。これは、鏡が熱浴に接していることで、ブラウン運動によって生じる振動である。ブラウン運動のパワースペクトル x は、熱浴の温度 $Temp$ と光共振器の機械的 Q 値と

$$x(f) \propto \sqrt{\frac{Temp}{Q}} \quad (5)$$

の関係がある⁹⁾。このため、熱雑音を小さくするには、温度を下げて Q 値の高い材料・形状を選択する必要がある。Numata らは、光共振器のスペーサーおよび鏡の基板とコーティングによる熱雑音を計算し、鏡のコーティングの熱雑音が光共振器の安定度を制限することを示した¹⁰⁾。

振動 地面や構造物を伝わる低周波領域の振動は特に光共振器の共振周波数に影響する。これを取り除くために、受動的な免振機構を持った除振台や加速度を測定してフィードバック制御する除振台が使われる。空気を伝わる音響雑音も低周波領域が問題となる。光共振器を音響遮蔽箱の中に入れることでこれを低減する。また、振動に影響されにくい光共振器の形状として、カットアウト型横置き共振器¹¹⁾、フットボール型縦置き光共振器¹²⁾などが用いられている。

光共振器の材料として最もよく用いられているのは、Corning社のULE (ultra-low expansion) ガラスである。熱膨張係数は約 10^{-8} K^{-1} と小さく、 Q 値も 6.1×10^4 と大きい。Fused silica は熱膨張係数は $6 \times 10^{-7} \text{ K}^{-1}$ であるが、 Q 値が高く約 10^6 である。最近では、鏡の多層膜による熱雑音の影響を減らすため、層の数を減らしてフィネスを 1×10^5 程度に抑え、共振器長を長くしたり、共振器を冷却したりする方向に進んでいる。例え

ば、300 mm の ULE 光共振器を用いて線幅 250 mHz が報告されている¹³⁾。また、 Q 値が 10^7 以上の Si 結晶で 210 mm の光共振器を作り、ゼロクロス温度 124.2 K に冷やすことで線幅 40 mHz が報告されている¹⁴⁾。

光共振器を使う他に、 $\text{Eu}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ などイオン添加結晶のスペクトルホールバーニングを使った狭線幅化も提案されており、1 Hz 級の線幅が報告されている¹⁵⁾。スペクトルホール周波数は結晶熱雑音の影響が少なく、光共振器よりも熱雑音による制限が小さいと考えられている。

NMIJ では共振器長 75 mm、フィネス約 750,000 の縦置き型 ULE 光共振器を狭線幅レーザーのレファレンスとして用いており、これに 1064 nm の Nd:YAG レーザーを安定化して 1 Hz 級の狭線幅を得ている。光共振器はアルミ製真空チャンバー内に収められ、真空チャンバーとその外側の銅箱にそれぞれサーミスタとヒーターを配し、1 mK 程度の精度で温度調整を行っている¹⁶⁾。ラン偏差は平均時間 1 秒で 2×10^{-15} 程度が得られており、これは鏡のコーティングの熱雑音限界に近いと考えられる。

2.3 高速制御可能な光周波数コム

光シンセサイザーのもっとも核となる要素は、光周波数コムである。J. L. Hall と T. W. Hänsch によって開発された光周波数コムによって、これまで直接測定することが難しかった光周波数測定が容易に行えるようになった。そして、コムによる最初の周波数計測⁷⁾が行われてからわずか6年後の2005年、その功績によってノーベル物理学賞が授与されている^{17), 18)}。現在広く使われている代表的なコムには、Ti:Sapphire コム (中心波長 800 nm)、Yb ファイバーコム (中心波長 1040 nm)、Er ファイバーコム (中心波長 1560 nm) などがある。

光周波数コムは、繰り返し時間の正確なモード同期パルスレーザーである。図2は、時間軸上で見たパルスレーザーの光電場とそのフーリエ変換を示す。ここで、パルスの繰り返し周期を T_{rep} 、包絡線の幅を δt で表す。1パルスごとの包絡線に対するキャリアの位相変化は carrier envelope offset phase (CEO phase) といい、 ϕ_{CEO} で表す。この光パルス列は、周波数軸上では発振モードが繰り返し周波数 f_{rep} ごとに等間隔に並び、バンド幅 $\delta\nu$ にわたって広がったスペクトルとなる。発振モード列を仮想的に 0 Hz まで拡張したときの余りの周波数を carrier envelope offset frequency (CEO frequency) といい、 f_{CEO} で表す。周波数領域と時間領域のパラメーター間には

$$f_{\text{rep}} = \frac{1}{T_{\text{rep}}}, \quad (6)$$

$$f_{\text{CEO}} = \frac{\phi_{\text{CEO}}}{2\pi T_{\text{rep}}}, \quad (7)$$

$$\delta\nu \sim \frac{1}{\delta t} \quad (8)$$

の関係がある.

周波数が f_{CEO} の発振モードを 0 番目と数えると, コムの n 番目の発振モード周波数は

$$\nu_n = f_{\text{CEO}} + n f_{\text{rep}} \quad (9)$$

で与えられる. f_{rep} と f_{CEO} はマイクロ波の周波数であるから, 式 (9) は光周波数とマイクロ波周波数がコムによって直接結びつけられることを示している. また, $f_{\text{CEO}} = 0 \text{ Hz}$ とすると, コムは ν_n を n 分周して f_{rep} を得る分周器として (もしくは f_{rep} を n 倍して ν_n を得る通倍器として) 働く. したがって, n 番目発振モードの周波数を基準となるレーザーに安定化し, m 番目発振モード

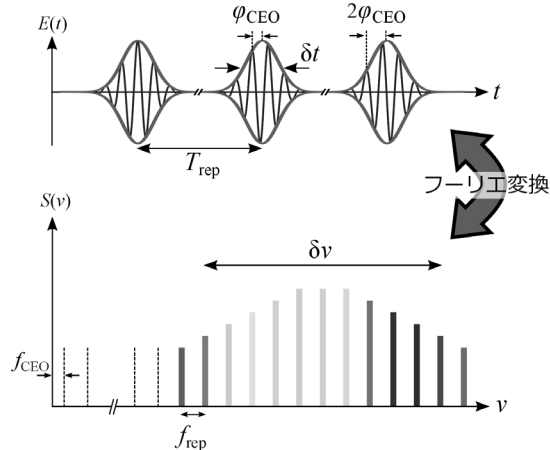


図2 光周波数コム

の周波数にスレーブレザー安定化することで, 基準レーザーの周波数を m/n 倍した出力が得られる.

光周波数コムを位相まで制御できる分周通倍器として利用するためには, 基準レーザーに位相同期できるだけの高速制御性が要求される. これまで, f_{rep} の高速制御が可能なコムとして, レーザー共振器内にバルクの電気光学変調器 (EOM; electro-optic modulator) を入れたタイプ^{19),20)} や導波路型の EOM を入れたタイプ^{21),22)}, f_{CEO} の高速制御が可能なコムとして, 励起レーザーへの注入電流を制御するタイプ^{20),22),23)}, 音響光学変調器 (AOM; acousto-optic modulator) を使用するタイプ²⁴⁾ などが実現されている. 図3は, NMIJ で開発された高速制御可能なコムの構成を示す^{20),22)}. 増幅媒質には Er 添加ファイバー (EDF; erbium doped fiber) を用い, 発振中心波長は 1560 nm である. 出力は 4 ポートに分かれており, 1 つは f_{CEO} を検出するための f - $2f$ 干渉計, 1 つは f_{beat} を検出するためのビート干渉計, 残り 2 つはアプリケーションポートである. 各ポートは EDF によって増幅し, 必要に応じて高非線形ファイバー (HNLF; highly nonlinear fiber) でスペクトル帯域を拡げている. f_{CEO} は励起レーザーの注入電流を, f_{beat} は EOM と温調を制御することで, それぞれマイクロ波の局部発振器に位相同期して安定化する. 図4は, 位相同期した f_{CEO} と f_{beat} をスペクトラムアナライザで測定した結果を示す. サーボパンプの位置から, f_{CEO} については 900 kHz 以上, f_{beat} については 1.3 MHz の制御帯域が得られている²²⁾.

2.4 光シンセサイザーの実現

光周波数コムを狭線幅レーザーに位相同期して狭線幅化することで, 高安定光シンセサイザーが実現できる. 図5に示したように, まずコムの f_{CEO} をマイクロ波シ

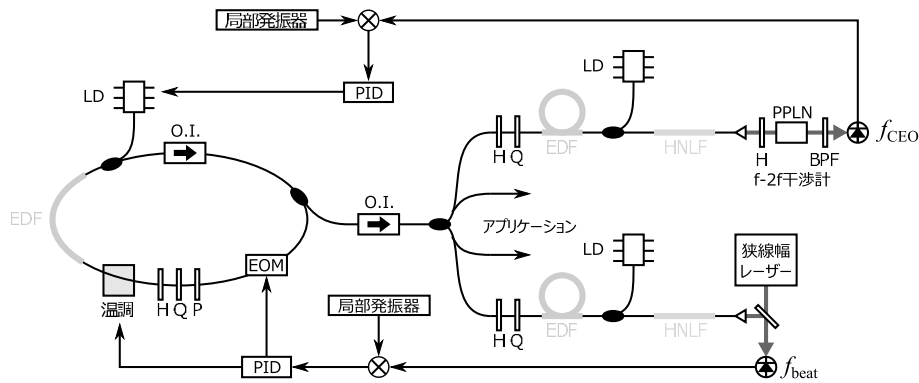


図3 高速制御可能な光周波数コムの構成. O.I.; optical isolator, H; half wave plate, Q; quarter wave plate, P; polarizer, PPLN; periodical poled lithium niobate, BPF; optical bandpass filter, PID; proportional-integral-derivative controller.

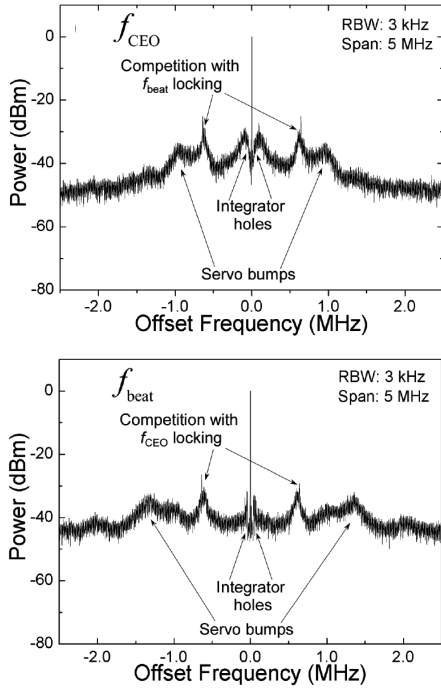


図4 局部発振器に位相同期した f_{CEO} と f_{beat} をスペクトラムアナライザで測定した結果²²⁾。

ンセサイザから出力される基準信号に位相同期する。次に、コムのひとつのモードと狭線幅レーザーとのビート周波数 f_{beat} を検出し、これもマイクロ波の基準信号に位相同期する。これによってコム全てのモードが狭線幅化する。狭線幅レーザーの周波数 ν_{laser} は、コムのパラメータを使って

$$\nu_{laser} = f_{CEO} + n f_{rep} \pm f_{beat} \quad (10)$$

と表すことができ、このときのコム f_{rep} は

$$f_{rep} = \frac{\nu_{laser} - f_{CEO} \mp f_{beat}}{n} \quad (11)$$

となる。 n は狭線幅レーザーとのビートを観測しているコムモードの指数である。したがって、任意のコムモードの周波数は

$$\nu_m = \frac{n-m}{n} f_{CEO} + \frac{m}{n} (\nu_{laser} \mp f_{beat}) \quad (12)$$

となる。 f_{beat} と f_{CEO} は光周波数に対しては十分小さいため、これらの位相雑音はコム安定度にはほとんど影響しない。このため、これらを基準信号に位相同期することで、全てのコムモードを狭線幅レーザーの線幅に m/n の因子が掛かった程度にまで狭線幅化できる。

光周波数コムを狭線幅化することで、狭線幅レーザーの線幅を多くの周波数領域に供給できるようになり、周波数および位相の制御された高安定光シンセサイ

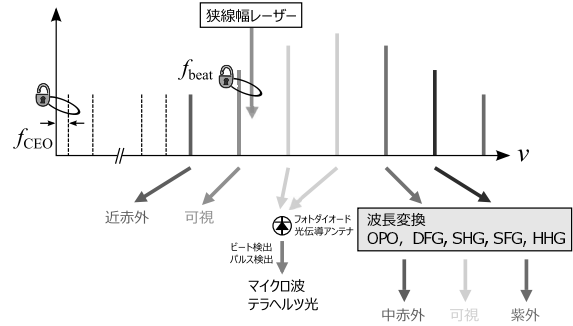


図5 光シンセサイザによる高安定、低雑音信号の供給。錠前の絵は位相同期を表す。

ザーが実現する。図5下部は、狭線幅化されたコム任意のモードにスレーブレーザーを位相同期することで、コム発振スペクトル帯域中どこでも任意周波数の狭線幅レーザーを得ることができる様子を示している。また、非線形光学素子を用いた2次調波発生 (SHG; second harmonic generation), 和周波発生 (SFG; sum frequency generation), 差周波発生 (DFG; differential frequency generation), 光パラメトリック発振 (OPO; optical parametric oscillation) や、高次高調波発生 (HHG; high harmonic generation) といった波長変換技術によって、コム発振スペクトル帯域を超えた紫外、可視、近赤外、中赤外領域に渡る狭線幅光源を、必要に応じて得ることができる。さらに、コムモード間のビートを低雑音フォトダイオードや光伝導アンテナで検出することで、低雑音、高安定なマイクロ波やテラヘルツ光も得ることができる。

2.5 今後の展望

我々は現在、コム発振波長と同じ波長 $1.5 \mu\text{m}$ 帯の ULE 光共振器およびそれに安定化した狭線幅レーザーを導入し、安定度向上に向けて作業を進めている。現在光周波数コム狭線幅化に使用している波長 1064 nm の狭線幅レーザーでは、 f_{beat} を検出するためにはコム広帯域化が必要になる。今後、波長 $1.5 \mu\text{m}$ の狭線幅レーザーによって、コムと狭線幅レーザーのビート信号の S/N が向上し、より堅牢な光シンセサイザが実現できると期待できる。さらに、各光共振器同士の比較をすることで、それぞれの安定度を評価することができる。図6は、現在使用している波長 1064 nm 用 ULE 光共振器 (円筒形) と波長 $1.5 \mu\text{m}$ 帯 ULE 光共振器 (機械的 Q 値の高いフットボール型) を示す。両者とも、アラン偏差 1×10^{-15} 程度の安定度を目標にしている。

また、コム高安定光共振器への直接安定化を試みて

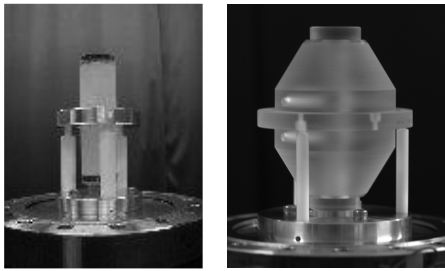


図6 NMIJで現在使用している波長1064 nm用 ULE 光共振器（左、長さ75 mm）と、新たに導入した波長1.5 μm帯 ULE 光共振器（右、長さ78 mm）。

いる。これによって狭線幅レーザーを省くことができ、制御箇所が減ってより簡便で安定な光シンセサイザーの実現が期待できる。光共振器への光周波数コムのモード周波数安定化は、コムを使ったキャビティリングダウン分光においてフィネス125,000の光共振器で報告されており²⁵⁾、高速制御可能なコムを使えば狭線幅化も可能と考えられる。

その他、導波路型のPPLNを用いた波長変換による可視領域（波長500–800 nm）および中赤外領域（波長2500–4000 nm）のコムが発生、鏡のコーティング材を変え熱雑音を抑えた光共振器の検討などに取り組んでいる。

3. 光シンセサイザーの応用

3.1 光格子時計

光格子時計^{2), 26)}は、光の定在波で作った格子状のポテンシャル（光格子）中に多数の原子を捕獲し、線幅の狭い禁制遷移（時計遷移）を使って正確に周波数を決める原子時計である。光格子用のレーザー波長を、光の電場による時計遷移周波数のシフトがほとんど起こらない「魔法波長」を選ぶことで、非常に正確な周波数標準が実現できる。次世代原子時計の有力候補として期待され、現在、秒の再定義に向けて世界の計量標準研究機関で研究開発が行われている。これまでに、Sr²⁷⁾、Yb^{28), 29)}、Hg³⁰⁾の光格子時計が完成し、SrとYbはそれぞれ2006年と2012年に秒の二次表現リスト（新しい秒の定義の候補³¹⁾）に登録された。NMIJでは、2009年にYb光格子時計の開発に成功し²⁸⁾、2013年にSr光格子時計も完成した³²⁾。ここでは、光格子時計の開発と性能向上を進める上での光シンセサイザーの役割を説明する。

3.1.1 光格子時計用光源の提供

光格子時計には多くの波長の光源が必要となるが、それらを光シンセサイザーから供給することができる。ここでは、光格子時計の操作手順と必要となる光源について説明し、光シンセサイザーを光源とした場合の利点を述べる。

光格子時計の操作手順は以下の通りである。オープンから気化して飛び出した原子をゼーマン減速器で減速し、1次冷却遷移を使って磁気光学トラップ（MOT; magnet-optical trap）に捕獲、冷却する。さらに温度を冷やすため、2次冷却遷移を使ったMOTに切り替え、その後魔法波長のレーザーで光格子を作り、その中に原子を充填する。最後に、光格子中の原子に時計遷移観測用のレーザーを照射し、観測された信号を使って時計遷移用レーザーの周波数を微調整して正確な周波数標準を実現する。

図7は、¹⁷¹Ybと⁸⁷Srのエネルギー単位を示す。1次冷却遷移は線幅が10 MHz以上と広いので、原子セルを用いて半導体レーザーなどを冷却遷移周波数に安定化すれば十分である。2次冷却遷移は線幅が狭いため、使用する光源にはこれ以下の狭線幅が要求される。Ybの場合、2次冷却遷移の線幅が182 kHzなので、線幅10 kHz級のファイバーレーザーを吸収線に周波数安定化する方法や、線幅10 kHz級の狭線幅化していない光周波数コムに半導体レーザーなどを位相同期する方法³³⁾がとられている。Srの場合、2次冷却遷移の線幅が7.6 kHzなので、光共振器を使ってレーザー周波数を狭線幅化する方法がとられている³⁴⁾。光格子用レーザーは、魔法波長の変化に対する時計遷移の周波数シフト量に応じて要求される周波数安定度が異なる。時計遷移周波数のシフト1 Hzに対応する魔法波長の変化は、Ybが100 MHz程度、Srが1 GHz程度である。したがって、Ybの場合には光格子用レーザーを光周波数コムに周波数安定化する必要がある。一方で、Srの場合には波長計を使って安定化する程度でも十分である。時計遷移の線幅はmHzオーダーと非常に狭いので、時計遷移用レーザーには1 Hz級かそれ以下の狭線幅が要求される。このため、2.2項で述べたような高フィネス光共振器を使った狭線幅レーザーが用いられる。

光格子時計用いる光源のうち、特に、狭線幅が必要な部分は光シンセサイザーから供給することが有用である。その理由として、狭線幅が必要な全ての波長に光共振器を用意するのは実験装置が煩雑になり調整にも手間がかかること、光共振器への周波数安定化に比べて光周波数コムへの位相同期の方が堅牢であることが

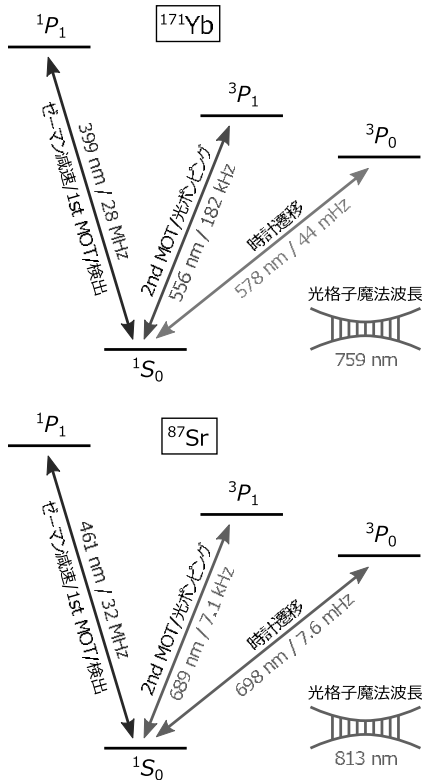


図7 YbとSrのエネルギー準位および光格子の魔法波長。MOT; magneto-optical trap.

挙げられる。実際にNMIJでは、Srの2次冷却用レーザー³⁵⁾、Srの時計遷移用レーザー³²⁾、Ybの時計遷移用レーザー^{36), 37)}を光シンセサイザーで供給し、光格子時計の周波数測定を行っている。

3.1.2 2台の光格子時計による周波数比測定

異なる原子を使った2台の光格子時計の時計遷移周波数の比を測定することは、Cs原子時計を介さず光格子時計そのものの性能(不確かさ)を評価するために重要である。また、秒の定義が改訂された場合、異なる原子時計間の時計遷移周波数比を明らかにしておくことで、どの原子時計を使っても定義にリンクした1秒が実現できる。これらの理由のため、NMIJではSrとYbの光格子時計を同時に開発しており、両者の周波数比測定を進めている。

時計遷移周波数比の測定における光シンセサイザーの利点は、2台の光格子時計の時計レーザーを1台の光シンセサイザーから供給することで狭線幅レーザー由来の残留雑音をコモンモードで除去できる点である。Takamotoらは、1台の狭線幅レーザーで⁸⁷Srと⁸⁸Srの2台の光格子時計の時計遷移周波数差を同期測定し、安

定度が向上することを示した⁵⁾。同様のことが周波数比測定でも可能である。また、1つの真空チャンバーの中に2種類の光格子時計を入れることで、光格子時計の安定度を最終的に制限されている黒体輻射シフトの評価において共通の環境温度が使えるようになる。さらに、2つの時計遷移周波数を使って光周波数コムを2点を安定化すると、黒体輻射シフトの温度に対する感度が2つの時計遷移で異なるため、コム上に黒体輻射シフトに鈍感な周波数帯が現れる³⁸⁾。これは、特定の周波数を出力するわけではないので秒の定義や標準としては使えないが、黒体輻射の影響を受けない安定な周波数を出力する方法として利用価値がある。

3.1.3 今後の展望

NMIJでは、Cs原子時計を介さない光格子時計の性能評価、および異なる原子の光格子時計の性能比較を目的として、YbとSr、2台の光格子時計を同時に開発している。両者とも、既にCs原子時計を基準にして測定した時計遷移周波数の絶対値を報告しており^{32), 36)}、更なる精度の向上を目指して開発を進めている。今後は両光格子時計間の時計遷移周波数の比を測定して、光格子時計の安定度や再現性がCs原子時計を超えることを示していく。

光格子時計の性能を制限している最大の要因は黒体輻射による時計遷移周波数のシフトである。Hg光格子時計は黒体輻射の影響が少ないため、より小さい不確かさが実現できると期待されている。しかし一方で、紫外領域の光源が多数必要のため、光学素子の劣化など難しい点が多い。現在、フランスのSYRTE^{30), 39)}と日本の東大・理化学研究所⁴⁰⁾が開発を進めている。また、黒体輻射シフトを低減するために冷却した容器の中で原子の時計遷移を観測するアプローチも取られており、東大・理化学研究所が冷却型Sr光格子時計の開発を進めている。NMIJでも、冷却型光格子時計の開発を計画している。

3.2 デュアルコム測定

光周波数コムの大きな特長のひとつは、光領域の周波数をマイクロ波領域の周波数に変換して測定できるという点である。これを最大限に生かした測定法が、2台のコムを用いたデュアルコム測定である。

3.2.1 原理

図8は周波数領域で見たデュアルコム測定の原理を示す。2台のコムの繰り返し周波数をそれぞれ f_{rep1} 、 f_{rep2} とし、コム1の n_1 番目のモードの周波数 f_{n_1} とコム2の n_2 番目のモードの周波数 f_{n_2} が等しくなるように制御する。このとき、2台のコムの繰り返し周波数の差を

$\Delta f_{\text{rep}} = f_{\text{rep}2} - f_{\text{rep}1}$ とすると、コム 1 の $n_1 + m$ 番目のモードの周波数 f_{n_1+m} とコム 2 の $n_2 + m$ 番目のモードの周波数 f_{n_2+m} のビート周波数は

$$f_{n_2+m} - f_{n_1+m} = m\Delta f_{\text{rep}} \quad (13)$$

となる。このようなビート信号の検出方法はマルチヘテロダイン検出と呼ばれ、コム 1 のスペクトルをコム 2 を使ってマイクロ波周波数に変換して検出したことになる。変換されたコム 1 のスペクトルはスペクトラムアナライザ等を使って容易に観測することができる。光周波数からマイクロ波周波数への変換レートは $\Delta f_{\text{rep}}/f_{\text{rep}1}$ となる。また、 m が増えて $f_{\text{rep}1}/2 = m\Delta f_{\text{rep}}$ となると、 $f_{n_2+m} - f_{n_1+m} = f_{n_1+m} - f_{n_2+m-1}$ となり、ビート周波数に対するコムの発振モードを 1 つに特定できなくなる。これを避けるため、測定するビート周波数は $f_{\text{rep}1}/2$ までとする必要があり、 m には

$$m < \frac{f_{\text{rep}1}}{2\Delta f_{\text{rep}}} \quad (14)$$

の制約がつく。これに対応して、測定可能なコムのスペクトル幅 $\delta\nu_{\text{meas}}$ は

$$\delta\nu_{\text{meas}} = \frac{f_{\text{rep}1}^2}{2\Delta f_{\text{rep}}} \quad (15)$$

に制限される。

このようにコムのスペクトル情報が正確に得られるデュアルコム測定は、コムを広帯域コヒーレント光源として分光に利用する DFCS (Direct Frequency Comb Spectroscopy) において力を発揮する。デュアルコム分光については、次節以降で詳しく述べる。

デュアルコム測定は、時間領域に置き換えても説明することができる。図 9 にその原理を示す。2 台のコムの繰り返し時間をそれぞれ $T_{\text{rep}1}$ 、 $T_{\text{rep}2}$ とすると、コム 1 とコム 2 のパルスには繰り返しごとに $\Delta T_{\text{rep}} = T_{\text{rep}1} - T_{\text{rep}2}$ の時間差が生じる。したがって、2 台のコムの干渉信号をコム 2 の繰り返し周期 $T_{\text{rep}2}$ ごとに記録することで、コム 1 のパルス波形を観測することができる。これは、マイケルソン干渉計の原理と等価である。マイケルソン干渉計では 1 つの鏡を動かして光路長を変えることで空間的に遅延を加えるのに対し、デュアルコム測定では、2 台のコムのパルスの繰り返し周期にわずかな差をつけることで時間的に遅延を加えている。観測されるインターフェログラムは、実際の光パルスの時間軸を実効的にマイクロ波パルスの時間軸に変換したものに等しい。このとき、時間軸の変換レートは $T_{\text{rep}2}/\Delta T_{\text{rep}}$ である。

このようにパルスの包絡線とキャリア電場の情報を得られるデュアルコム測定は、パルス光を使った距離測定

においても力を発揮する。パルスの遅延時間から距離を測る TOF (time of flight) 測定は距離を一意的に決められる範囲が干渉計を使った距離測定よりもずっと長い。精度は及ばない。これに対して、デュアルコム測定ではキャリアに干渉計測の情報が含まれているため、TOF 測定の一意性と干渉計測の精度を両立できる⁴¹⁾。

3.2.2 デュアルコム分光

光周波数コムを光源とした DFCS は、光共振器と組み合わせることで両立することが難しい高分解能、広帯域、高感度を同時に得られる分光法として期待されている^{42,43)}。ここで重要なのは、コムの各モードをどのように分離して周波数情報を得るかという点である。これまでに、Pabry-Perot 共振器と回折格子を組み合わせ空

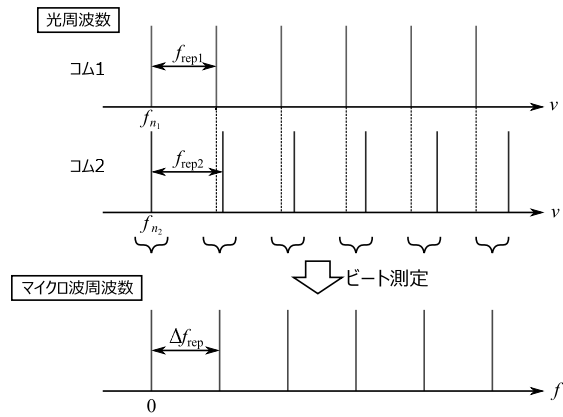


図 8 デュアルコム測定の原理 (周波数領域)

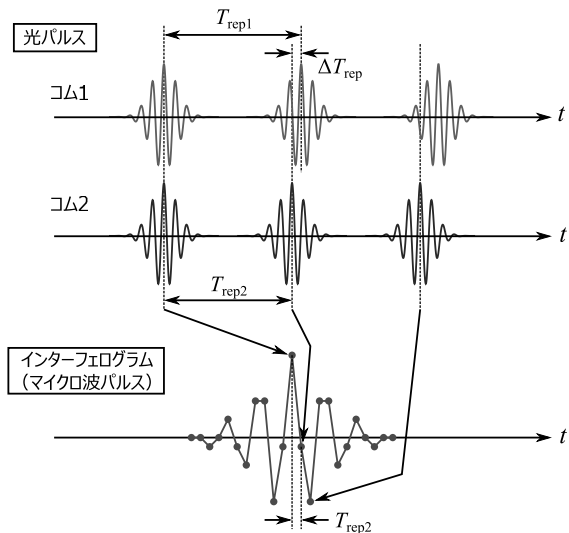


図 9 デュアルコム測定の原理 (時間領域)。見易さのため、各横軸のスケールは合わせていない。

間的に分離する方法⁴⁴⁾, 可変波長分散補償用素子 VIPA (virtually imaged phased array) と回折格子を組み合わせる空間的に分離する方法⁴⁵⁾, マイケルソン干渉計によるフーリエ分光測定を行う方法⁴⁶⁾⁻⁴⁸⁾などが提案されている。

これらコムの各モードを分離する方法の中で, デュアルコム分光はマイケルソン干渉計を使ったフーリエ変換赤外分光 (FT-IR) と同じ原理で周波数情報を得る。さらに, 干渉計のように鏡を移動させる必要がないため, インターフェログラムを高速に取得でき, 機械的な振動による雑音もない。また, 鏡の移動距離が制限されることもないため, 高分解能と広帯域を両立できる。NIST の Newbury らはデュアルコム分光にいち早く取り組んでおり, 波長 1.36-1.69 μm で, CO_2 , CH_4 , C_2H_2 , H_2O , HCN などのスペクトルを観測している⁴⁹⁾。また, 差周波発生によって得た 3.3 μm コムを使って CH_4 のスペクトルを観測し, 遷移周波数を決定している⁵⁰⁾。図 10 にデュアルコム分光の実験系とアセチレン分子を使って得られた吸収スペクトルの一部を示す。

2 台のコムのビート周波数から光周波数を特定するために, ビート周波数は $f_{\text{rep1}}/2$ まで測定できればよいので, サンプリング定理によりサンプリング周波数は f_{rep1} 以上であれば良い。デュアルコム分光では, コム 2 のパルスの繰り返しに同期してサンプリング周波数は f_{rep2} とするため問題ない。一方, ビート周波数のスペクトル分解能 Δf はインターフェログラムの測定時間 T で決まり, $\Delta f = 1/T$ である。これを光周波数のスペクトル分解能 $\Delta\nu$ に換算すると,

$$\Delta\nu = \frac{f_{\text{rep1}}}{T\Delta f_{\text{rep}}} \quad (16)$$

となる。デュアルコム分光の性能は, 一度に測定できるスペクトル幅 $\delta\nu_{\text{meas}}$ とスペクトル分解能の相対値 $\nu/\Delta\nu$ で表すことができる。ここで ν は光周波数である。式 (15), (16) から, 測定時間 T に対する $\delta\nu_{\text{meas}}$ と $\nu/\Delta\nu$ の関係式

$$\delta\nu_{\text{meas}} \times \frac{\nu}{\Delta\nu} = \frac{T\nu f_{\text{rep1}}}{2} \quad (17)$$

が得られる。

さらに, $\delta\nu_{\text{meas}}$ はコムの線幅 $\Delta\nu_{\text{comb}}$ で制限される。2 台のコムのビート信号が周波数雑音に埋もれてスペクトルが劣化するのを防ぐには, $\Delta f_{\text{rep}} > \Delta\nu_{\text{comb}}$ としなければならない。これによって周波数スケールの変換レートが制限され, その結果

$$\delta\nu_{\text{meas}} < \frac{f_{\text{rep1}}^2}{2\Delta\nu_{\text{comb}}} \quad (18)$$

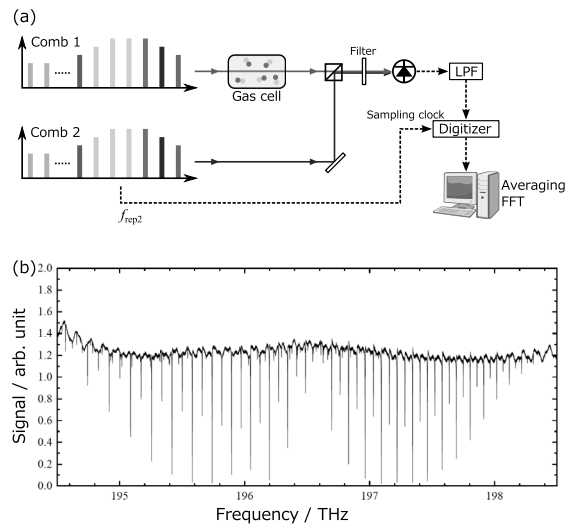


図 10 (a) デュアルコム分光の実験系図。LPF; low-pass filter. (b) デュアルコム分光によって得られたアセチレン分子の吸収スペクトル。

となる。

図 11 に式 (17) を, $\delta\nu_{\text{meas}}$ と $\nu/\Delta\nu$ を制限する要因とともに示す。また, FT-IR の性能についても併せて示す。デュアルコム分光は FT-IR と比較してスペクトル分解能, 検出感度とも優れている。さらに特筆すべきは測定時間の非常に短い点である。測定時間 1 s の FT-IR で得られる性能が, デュアルコム分光では測定時間 10-100 μs で得られる。この時間をインターフェログラムの積算に充てることで, S/N が大きく向上する。

3.2.3 デュアルコム分光の応用

微量ガス検出は, デュアルコム分光の広帯域, 高分解能, 高感度といった特長を生かした代表的な応用例である。吸収スペクトルによるガス成分分析や同位体比測定は, 医療診断, 地質や気候などの環境調査, 工業用ガスのモニタリングなどにおいて強力なツールとなる。

■医療診断 特定の分子は, 呼気中に含まれているかどうかで病気の有無を診断するためのバイオマーカーとして機能する。例えば, CH_4 , C_2H_6 , 過酸化水素は肺病や肺がん, ホルムアルデヒドは乳がん, アセトンは糖尿病, 過酸化水素や一酸化窒素はぜんそくのバイオマーカーとなる^{42), 51)}。複数の重要な分子種を 1 つのシステムで測定, 定量できれば, デュアルコム分光システムによって信頼性のある呼気診断を実現できる可能性がある。また, 同位体 (^{13}C や D) を含んだ物質を摂取し, 拡散した後の同位体比 ($^{13}\text{CO}_2/^{12}\text{CO}_2$ や $\text{HDO}/\text{H}_2\text{O}$) を測定することで, 身体機能を調べることができる⁴²⁾。

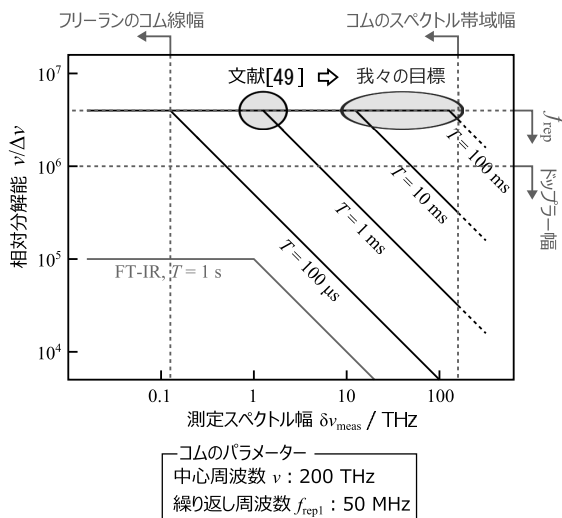


図 11 デュアルコム分光および FT-IR の測定時間 T とスペクトル帯域 $\delta\nu_{\text{meas}}$ 、相対分解能 $\nu/\Delta\nu$ の関係。分光計の性能を制限する要因も併せて示す。

■環境調査 氷床コアに含まれる H_2O 、 CO_2 、 O_2 などの安定同位体を解析することで、過去の地球の気候、大気や水の循環について調べられる⁵²⁾。また、温室効果ガスである CO_2 や CH_4 の同位体比を解析することで、それらの発生源を特定し地球温暖化のメカニズムを知ることができる^{53), 54)}。

■工業用ガスモニタリング 集積回路や半導体レーザーなどの半導体デバイスの製造に用いられる分子エキピタシー法や科学蒸着法は、使用する SiH_4 、 GeH_4 、 PH_3 、 AsH_3 などの分子ガスに極めて高い純度を要求する。これらのガスの純度が低いと、デバイスの性能や寿命に悪影響を及ぼすため、微量ガスのリアルタイムモニタリング技術が重要になる^{55), 56)}。また、自動車エンジン開発分野では、排気ガスの成分分析によってエンジン内における燃焼状態や、エンジン制御デバイスの性能を評価できる⁵⁷⁾⁻⁵⁹⁾。エンジンシリンダー内の燃焼過程の高速モニタリング技術は、燃焼効率の向上、排気ガス中の有害物質の低減に向けた研究において必要とされている。

■化学反応のモニタリング 高速にスペクトルを取得可能なデュアルコム分光によって、物質の状態変化やプラズマ、ラジカル分子の生成消滅過程を、リアルタイムでモニタリングできるようになる⁶⁰⁾。

3.2.4 今後の展望

我々は現在、NMIJ におけるデュアルコム分光の準備を進めている。デュアルコム分光の性能を最も制限しているのは、 $\Delta\nu_{\text{comb}}$ に起因するコムのビート信号の揺らぎである。これを解決する方法として、次の3種類の手法

が報告されている。

1. 2 台のコムを狭線幅レーザーを使って狭線幅化する^{49), 50), 61)-63)}。
2. ビート信号をサンプリングするときに、 Δf_{rep} (ΔT_{rep}) の揺らぎをサンプリングクロックにしてノイズをキャンセルする⁶⁴⁾。
3. ビート信号をサンプリングした後で、 Δf_{rep} (ΔT_{rep}) の揺らぎの情報をもとに信号処理によってノイズを除去する^{65), 66)}。

我々の持つ狭線幅光周波数コムの特性を最大限に生かせるのは、1. の手法である。先行研究では、ULE 光共振器に安定化した狭線幅レーザーを 2 台用いてコムを狭線幅化しているが、コムの制御帯域がそれほど広くないために完全な狭線幅化には至っていない。そのため、 $\Delta f_{\text{rep}} = 3 \text{ kHz}$ 程度にまでしかできず、 $f_{\text{rep}1} = 100 \text{ MHz}$ で一度に取得できるスペクトル幅 $\delta\nu_{\text{meas}}$ は 1-2 THz 程度だった。線幅 1 Hz 級の光周波数コムを用いて $\Delta f_{\text{rep}} = 10 \text{ Hz}$ とできれば、 $f_{\text{rep}1} = 50 \text{ MHz}$ で $\delta\nu_{\text{meas}} \sim 125 \text{ THz}$ となり、広帯域化したコムのほぼ全帯域で分子ガスの吸収スペクトルが観測できると期待できる。図 11 に先行研究の性能と NMIJ におけるデュアルコム分光の目標性能を示す。

3.3 レーザーの雑音評価

3.3.1 高性能レーザーの登場とその性能評価

近年、光ファイバーを用いた光通信の伝送方式は、高速大容量化に向けた周波数利用効率拡大のために、従来の光振幅にのみ情報を載せる方式から、振幅および位相に情報を載せる多値変調方式が主流になってきている。このようなコヒーレント光通信の分野では、位相雑音の大きな光源からも位相情報を取得することが可能なデジタルキャリア位相推定技術が進んでおり、光源の位相雑音に対する要求はさほど厳しいものではなかった。しかし、さらなる多値化が進むとこの推定技術も十分ではなくなり、光源の位相雑音の小ささ、スペクトル純度が通信性能に影響する重要な要素になってくる。例えば、通信ビットレート 40 Gbps では、square 16-QAM (quadrature amplitude modulation; 直交振幅変調) 方式では 120 kHz、square 64-QAM 方式では 1.2 kHz の線幅が要求される⁶⁷⁾。この要求に応えるため、最近では通信帯で線幅 1 kHz 級の外部共振器レーザー⁶⁸⁾やファイバーレーザー⁶⁹⁾が開発されており、それらはセンシングや分光などにおいても重要な光源となっている。これに伴い、スペクトル純度や線幅の評価技術の重要性も増している。

レーザーの位相（周波数）雑音や、アラン偏差、線幅を測定するためによく用いられるのは、被評価レーザーとそれより十分線幅の狭い基準レーザーを用意し、これらのビート周波数を測定する方法である。この方法では、被評価レーザーの周波数に合わせて基準レーザーを用意する必要がある。基準レーザーがない場合には、同一の被評価レーザーを2台用意してビートを測定する。これに対し、遅延自己ヘテロダイン法（DSH; delayed-self heterodyne）は、1台のレーザーを2つに分け、一方をコヒーレント長以上のファイバースプールを用いて遅延を付加してビートを測定することで、基準レーザーなしで測定できる⁷⁰⁾。この場合、被評価レーザーの線幅が狭いほど大きな遅延が必要になるため、S/Nやファイバーノイズの問題が生じる。

3.3.2 今後の展望

ビート測定の基準レーザーとして高安定、低雑音の光シンセサイザーを導入すれば、測定できる被評価レーザーの周波数範囲が大きく広がる。また、光シンセサイザーの線幅は1 Hz級まで狭窄化されてため、これによるビート測定への影響は無視でき、被評価レーザーの線幅が1 kHz級であっても正確に位相（周波数）雑音を測定できる。図12は、現在計画している光シンセサイザーを使ったレーザー位相（周波数）雑音の測定系を示す。ビート信号とマイクロ波基準信号の位相（周波数）差をミキサ（周波数比較 IC）を使って検出し、その信号をデジタイズでスペクトラムアナライザーで解析する。周波数ドリフトが大きいレーザーの場合には、ビート信号を分周するか、大きな時定数の積分制御で局部発振器をビート周波数に位相（周波数）同期する。

3.4 その他の応用

3.4.1 UV コム/テラヘルツコム

紫外領域への光周波数コムの拡張は、UV ホログラフィー、顕微鏡検査法、ナノリソグラフィー、X線原子時計などの研究にとって重要なテーマである。コムはパルスレーザーであるため、CW レーザーに比べてピークパワーが高い。このため、高い変換効率で高次高調波発生（HHG）を行い紫外領域のコヒーレント光を得ることができる。紫外領域への波長変換には、Xe や Kr といった希ガスの非線形性（四光波混合）や非線形結晶が用いられる。これまでに、He, Ne, Ar の紫外領域スペクトルが観測されている^{71), 72)}。

一方、テラヘルツ領域においては、コムは発生技術とともに精密分光への応用も期待されている。従来のテラヘルツ分光計では装置間で周波数スケールの整合性が取

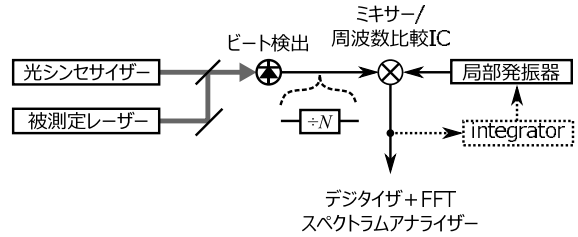


図12 レーザー位相（周波数）雑音の測定系。

れていないことが多かったが、コムパルス光を伝導アンテナや非線形光学結晶に照射してテラヘルツコムを発生させることで、周波数目盛として利用できる。最近では、デュアルコム測定の原理でテラヘルツ領域の分光を行い、CH₃CNの回転遷移周波数が決定されている⁷³⁾。

3.4.2 系外惑星探査

系外惑星探査では、遠い星のスペクトルの赤方偏移を、1 cm/s レベルで観測できることが要求される。例えば、地球と同条件下にある遠方の惑星を見つけるには5 cm/sの赤方偏移を観測しなければならないため、光周波数コムのモードを Fabry-Perot 共振器で切り出し、繰り返し周波数の高いコムとして惑星探査用の分光写真器の波長校正を行うことが提案されている⁷⁴⁾。最近では、波長校正の不確かさが1 cm/s 以下になったと報告されている⁷⁵⁾。

3.4.3 量子計算

光周波数コムと OPO を用いて、多数のエンタングルメントを作り量子計算を行うという提案があり⁷⁶⁾、実験的に60個のモード間にエンタングルメントが作られたと報告された⁷⁷⁾。これによって、量子情報処理や量子計算のための巨大エンタングルメント実現に向けて、道が開かれたと言える。

4. 終わりに

本調査研究報告では、光シンセサイザーの基本構成について説明し、精密測定への応用例を紹介した。図13は、光シンセサイザーの応用と多くの分野への波及効果を示す。光周波数標準においては光時計の研究を促進し、秒の再定義や物理定数の恒常性検証に貢献する。また、周波数制御ツールとして、光通信、冷却原子、加速器の同期、量子情報などへの応用も期待され、そのポテンシャルは計り知れない。レーザーの究極の進化形とも言える光シンセサイザを使った研究成果が、産業応用的にも基礎科学的にも大きなインパクトを与えることを期待したい。

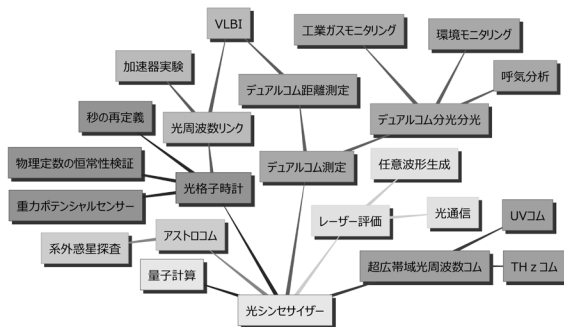


図 13 光シンセサイザーの多岐にわたる波及効果.

謝辞

本調査研究を行うにあたり、丁寧なご指導と大変有益なご助言を賜りました計測標準研究部門時間周波数科の洪鋒雷科長、多くのご助言を下さいました波長標準研究室の稲場肇主任研究員、保坂一元研究員、大苗敦上級主任研究員、および時間周波数科の皆様に感謝いたします。

参考文献

- 1) L. Essen, J. V. L. Parry, *Phil. Trans. R. Soc. A* **250**, 45 (1957).
- 2) H. Katori, M. Takamoto, V. G. Pal'chikov, V. D. Ovsinnikov, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 173005 (2003).
- 3) H. Dehmelt, *Thirty Fifth Annual Frequency Control Symposium. 1981* (1981), pp. 596-601.
- 4) T. Rosenband, *et al.*, *Science* **319**, 1808 (2008).
- 5) M. Takamoto, T. Takano, H. Katori, *Nature Photon.* **5**, 288 (2011).
- 6) A. L. Schawlow, C. H. Townes, *Phys. Rev.* **112**, 1940 (1958).
- 7) T. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, T. W. Hänsch, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3568 (1999).
- 8) F. Riehle, *Frequency Standards* (Wiley, 2006).
- 9) P. R. Saulson, *Phys. Rev. D* **42**, 2437 (1990).
- 10) K. Numata, A. Kemery, J. Camp, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 250602 (2004).
- 11) S. A. Webster, M. Oxborrow, P. Gill, *Phys. Rev. A* **75**, 011801 (2007).
- 12) A. D. Ludlow, *et al.*, *Opt. Lett.* **32**, 641 (2007).
- 13) Y. Y. Jiang, *et al.*, *Nature Photon.* **5**, 158 (2011).
- 14) T. Kessler, *et al.*, *Nature Photon.* **6**, 687 (2012).
- 15) M. J. Thorpe, L. Rippe, T. M. Fortier, M. S. Kirchner, T.

- Rosenband, *Nature Photon.* **5**, 688 (2011).
- 16) K. Hosaka, *et al.*, *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* **57**, 606 (2010).
- 17) J. L. Hall, *Rev. Mod. Phys.* **78**, 1279 (2006).
- 18) T. W. Hänsch, *Rev. Mod. Phys.* **78**, 1297 (2006).
- 19) D. D. Hudson, *et al.*, *Opt. Lett.* **30**, 2948 (2005).
- 20) Y. Nakajima, *et al.*, *Opt. Express* **18**, 1667 (2010).
- 21) E. Baumann, *et al.*, *Opt. Lett.* **34**, 638 (2009).
- 22) K. Iwakuni, *et al.*, *Opt. Express* **20**, 13769 (2012).
- 23) J. McFerran, W. Swann, B. Washburn, N. Newbury, *Appl. Phys. B* **86**, 219 (2007).
- 24) C. Benko, *et al.*, *Opt. Lett.* **37**, 2196 (2012).
- 25) M. J. Thorpe, K. D. Moll, R. J. Jones, B. Safdi, J. Ye, *Science* **311**, 1595 (2006).
- 26) H. Katori, *Nature Photon.* **5**, 203 (2011).
- 27) M. Takamoto, F.-L. Hong, R. Higashi, H. Katori, *Nature* **435**, 321 (2005).
- 28) T. Kohno, *et al.*, *Appl. Phys. Express* **2**, 072501 (2009).
- 29) N. D. Lemke, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 063001 (2009).
- 30) J. J. McFerran, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 183004 (2012).
- 31) 洪鋒雷, 日本物理学会誌 **65**, 80 (2010).
- 32) D. Akamatsu, *et al.*, *Appl. Phys. Express* **7**, 012401 (2014).
- 33) M. Yasuda, *et al.*, *J. Opt. Soc. Am. B* **27**, 1388 (2010).
- 34) T. Mukaiyama, H. Katori, T. Ido, Y. Li, M. Kuwata-Gonokami, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 113002 (2003).
- 35) D. Akamatsu, *et al.*, *Opt. Express* **20**, 16010 (2012).
- 36) M. Yasuda, *et al.*, *Appl. Phys. Express* **5**, 102401 (2012).
- 37) H. Inaba, *et al.*, *Opt. Express* **21**, 7891 (2013).
- 38) V. I. Yudin, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 030801 (2011).
- 39) J. J. McFerran, *et al.*, *Opt. Lett.* **37**, 3477 (2012).
- 40) H. Hachisu, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 053001 (2008).
- 41) I. Coddington, W. C. Swann, L. Nenadovic, N. R. Newbury, *Nature Photon.* **3**, 351 (2009).
- 42) F. Adler, M. J. Thorpe, K. C. Cossel, J. Ye, *Annu. Rev. Anal. Chem.* **3**, 175 (2010).
- 43) A. Foltynowicz, *et al.*, *Faraday Discuss.* **150**, 23 (2011).
- 44) C. Gohle, B. Stein, A. Schliesser, T. Udem, T. W. Hänsch, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 263902 (2007).
- 45) S. A. Diddams, L. Hollberg, V. Mbele, *Nature* **445**, 627 (2007).
- 46) K. A. Tillman, R. R. J. Maier, D. T. Reid, E. D. McNaghten, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 3366 (2004).
- 47) E. Sorokin, I. T. Sorokina, J. Mandon, G. Guelachvili,

- N. Picqué, *Opt. Express* **15**, 16540 (2007).
- 48) J. Mandon, Guelachvili, N. Picqué, *Nature Photon.* **3**, 99 (2009).
- 49) A. M. Zolot, *et al.*, *Opt. Lett.* **37**, 638 (2012).
- 50) E. Baumann, *et al.*, *Phys. Rev. A* **84**, 062513 (2011).
- 51) C. Wang, P. Sahay, *Sensors* **9**, 8230 (2009).
- 52) E. Kerstel, *et al.*, *Appl. Phys. B* **85**, 397 (2006).
- 53) J. F. Becker, T. B. Sauke, M. Loewenstein, *Appl. Opt.* **31**, 1921 (1992).
- 54) K. Tsuji, H. Teshima, H. Sasada, N. Yoshida, *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy* **98**, 43 (2012).
- 55) H. H. Funke, B. L. Grissom, C. E. McGrew, M. W. Raynor, *Rev. Sci. Instrum.* **74**, 3909 (2003).
- 56) J. Feng, R. Clement, M. Raynor, *J. Cryst. Growth* **310**, 4780 (2008).
- 57) M. Arai, *Anal. Sci.* **9**, 77 (1993).
- 58) 山本敏朗, 佐藤進, 常山順子, 自動車技術会論文集 **41**, 1391 (2010).
- 59) A. R. White, B. Yalmanchili, *67th International Symposium on Molecular Spectroscopy* (2012).
- 60) M. Golkowski, *et al.*, *IEEE Trans. Plasma Sci.* **40**, 1984 (2012).
- 61) I. Coddington, W. C. Swann, N. R. Newbury, *Phys. Rev. Lett.* **100**, 013902 (2008).
- 62) I. Coddington, W. C. Swann, N. R. Newbury, *Phys. Rev. A* **82**, 043817 (2010).
- 63) I. Coddington, W. C. Swann, N. R. Newbury, *Opt. Lett.* **35**, 1395 (2010).
- 64) T. Ideguchi, A. Poisson, G. Guelachvili, N. Picqué, T. W. Hänsch, arXiv : 1201.4177v2 (2012).
- 65) P. Giaccari, J.-D. Deschênes, P. Saucier, J. Genest, P. Tremblay, *Opt. Express* **16**, 4347 (2008).
- 66) J.-D. Deschênes, P. Giaccari, J. Genest, *Opt. Express* **18**, 23358 (2010).
- 67) M. Seimetz, *High-Order Modulation for Optical Fiber Transmission*, Springer Series in Optical Sciences (Springer, 2009).
- 68) K. Numata, J. Camp, M. A. Krainak, L. Stolpner, *Opt. Express* **18**, 22781 (2010).
- 69) C. Spiegelberg, *et al.*, *J. Lightwave Technol.* **22**, 57 (2004).
- 70) T. Okoshi, K. Kikuchi, A. Nakayama, *Electron. Lett.* **16**, 630 (1980).
- 71) T. J. Pinkert, *et al.*, *Opt. Lett.* **36**, 2026 (2011).
- 72) A. Cingöz, *et al.*, *Nature* **482**, 68 (2012).
- 73) T. Yasui, *et al.*, *Opt. Express* **20**, 15071 (2012).
- 74) T. Steinmetz, *et al.*, *Science* **321**, 1335 (2008).
- 75) D. F. Phillips, *et al.*, *Opt. Express* **20**, 13711 (2012).
- 76) N. C. Menicucci, S. T. Flammia, O. Pfister, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 130501 (2008).
- 77) M. Pysher, Y. Miwa, R. Shahrokhshahi, R. Bloomer, O. Pfister, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 030505 (2011).