

博士論文

**通信波長帯周波数安定化レーザーと
天文コムへの応用**

**(Frequency-stabilized laser at telecom wavelength
for astro-comb application)**

**横浜国立大学大学院
理工学府**

池田幸平
(Kohei Ikeda)

2021年3月

目次

第 1 章 序章	4
1.1 周波数安定化レーザーの現状と動向	4
1.2 周波数計測と光周波数コム	7
1.3 通信波長帯の周波数標準と応用例	9
1.3.1 波長分割多重 (WDM)	12
1.3.2 ファイバーリンク	12
1.3.3 天文応用	13
1.4 本研究の目的と論文構成	14
1.4.1 本研究の目的	14
1.4.2 本論文の構成	15
第 2 章 理論	17
2.1 分子のエネルギー構造	17
2.1.1 電子準位	17
2.1.2 振動準位	19
2.1.3 回転準位	20
2.1.4 超微細構造	22
2.2 光と分子の相互作用	23
2.2.1 フランク-コンドンの原理	23
2.2.2 光と分子のコヒーレント相互作用	24
2.2.3 観測される吸収線幅の要因	29
2.3 Modulation transfer 分光法の原理	31
第 3 章 導波路型デュアルピッチ PPLN の評価	35

3.1	デュアルピッチ PPLN	36
3.2	実験.....	39
3.2.1	デュアルピッチ PPLN 評価に使用した光源.....	39
3.2.2	位相整合曲線.....	40
3.3	パッケージ化されたデュアルピッチ PPLN.....	44
3.3.1	高出力 EDFA の作成.....	44
3.3.2	パッケージ化されたデュアルピッチ PPLN.....	47
第 4 章	通信波長帯ヨウ素安定化レーザー	50
4.1	分光を行うヨウ素分子吸収線.....	50
4.2	実験セットアップ.....	51
4.3	観測した吸収スペクトル.....	53
4.4	周波数安定度.....	54
4.5	不確かさ評価と絶対周波数計測	56
第 5 章	系外惑星探索のための周波数安定化レーザー.....	60
5.1	天文コムの要素技術	62
5.1.1	モードフィルタリング	62
5.1.2	スペクトル拡張	64
5.1.3	コムモードの識別と絶対周波数.....	64
5.2	得られるスペクトルと校正方法	65
5.3	世界の天文コムの開発状況	66
5.4	産総研・横国・国立天文台開発の天文コム.....	68
5.5	天文コムのための周波数安定化レーザー	69
5.6	強度雑音.....	72
第 6 章	長距離量子通信のための周波数安定化レーザー	75
6.1	周波数安定化を行うレーザーについて.....	76
6.1.1	波長変換用励起レーザーに求められる特性.....	76
6.1.2	小型固体レーザーの周波数変調方法.....	77

6.2	Third harmonic 検波法.....	80
6.3	実験.....	81
6.4	周波数安定度.....	82
第7章	総括.....	90
付録A	狭線幅半導体レーザーの同調範囲とヨウ素吸収線.....	92
研究業績	106
謝辞	108

第1章

序章

1.1 周波数安定化レーザーの現状と動向

原子や分子の量子準位に基づいて周波数が決まる時間・周波数標準は計測や通信の分野に欠かせない存在であり、GPS (Global Positioning System; 全地球測位システム) をはじめとする幅広い応用へとつながっている [1, 2]。レーザーの誕生により、研究の対象はマイクロ波領域から光領域へと拡張され、分光学の発展や計測技術の進歩も相まって、時間・周波数標準の精度は年々向上されている。国際単位系 (SI: International System of Units) の一つである「秒」の定義変遷の歴史を振り返ると、1956 年までは地球の自転 (不確かさ: 10^{-7})、1956 年~1967 年までは地球の公転 (不確かさ: 10^{-9}) に基づいていたが、1967 年から現在の「秒はセシウム 133 原子の基底状態の 2 つの超微細準位間の遷移に対応する放射の 9 192 631 770 周期の持続時間である」という定義が採択され、マイクロ波領域の原子放射 (不確かさ: 10^{-16}) に基づいて秒が決定されるようになっている [3, 4, 5]。時間・周波数標準の高精度化に向けた研究は現在でも活発に続いており、近年の光時計の飛躍的成果によって現在では不確かさ 10^{-18} の精度が達成されているため、将来的には原子やイオンの光遷移による再定義が検討されている。

高精度な時計を実現するという応用以外にも時間・周波数標準は様々な物理量を決定する際に役立っており、その代表的なものが「長さ」である。長さの単位であるメートルは、「光が真空中を 1/299 792 458 秒間に進む行程の長さ」と定義されている。長さ計測ではゲージブロックなどの長さ標準器が必要になる。その長さ標準器は周波数安定化レーザーとトレーサブルになっており、干渉測定に使用した周波数安定化レーザーの真空波長をもとに屈折率補正を行うことで校正されている。しかし、定義に沿って忠実に長さ計測を行おうとすると、干渉計の基準となる周波数安定化レーザーは、1 次標準であるセシウム原子周波数標準を基に絶対周波数測定を行わなければならない、非常に手間がかかる作業となる。そこで、国際度量衡委員 (CIPM) は、「勧告された放射リスト」と呼ばれる周波数安定化レーザーのリストを作成し、定期的にその周波数値を勧告している。勧告された周波数安定化レーザーはメートルの定義を実現するための具体的な方法としてそのまま使うことが承認されている。表 1-1 に 2017 年現在、CIPM が勧告している周波数安定化レーザーとその周波数および不確かさのリストの抜粋を示す。

Wavelength	Absorber	Laser / Transition	Frequency	Uncertainty
237 nm	$^{115}\text{In}^+$	$5s^2\ ^1S_0 - 5s5p\ ^3P_0$	1267402452901050 Hz	1.6×10^{-14}
243 nm	^1H	$1S - 2S$	1233030706593514 Hz	9×10^{-15}
266 nm	^{199}Hg	$6s^2\ ^1S_0 - 6s6p\ ^3P_0$	1128575290808154.4 Hz	5×10^{-16}
267 nm	$^{27}\text{Al}^+$	$3s^2\ ^1S_0 - 3s3p\ ^3P_0$	1121015393207857.3 Hz	1.9×10^{-15}
282 nm	$^{199}\text{Hg}^+$	$5d^{10}6s\ ^2S_{1/2} (F=0) - 5d^96s^2\ ^2D_{5/2} (F=2)$	1064721609899145.30 Hz	1.9×10^{-15}
436 nm	$^{171}\text{Yb}^+$	$6s\ ^2S_{1/2} (F=0) - 5d\ ^2D_{3/2} (F=2)$	688358979309308.3 Hz	6×10^{-16}
467 nm	$^{171}\text{Yb}^+$	$6s\ ^2S_{1/2} (F=0) - 4f^{13}6s^2\ ^2F_{7/2} (F=3)$	642121496772645.0 Hz	6×10^{-16}
515 nm	$^{127}\text{I}_2$	Ar ⁺ laser, P(13)43-0: a ₃	582490603442 kHz	8.6×10^{-12}
531 nm	$^{127}\text{I}_2$	Diode laser, R(36)32-0: a ₁	564074632.42 MHz	1×10^{-10}
532 nm	$^{127}\text{I}_2$	Nd:YAG laser, R(56)32-0: a ₁₀	563260223513 kHz	8.9×10^{-12}
543 nm	$^{127}\text{I}_2$	He-Ne laser, R(106)28-0: b ₁₀	551580162400 kHz	4.5×10^{-11}
576 nm	$^{127}\text{I}_2$	He-Ne laser, P(62)17-1: a ₁	520206808.4 MHz	4×10^{-10}
578 nm	^{171}Yb	$6s^2\ ^1S_0 (F=1/2) - 6s6p\ ^3P_0 (F=1/2)$	518295836590863.6 Hz	5×10^{-16}
612 nm	$^{127}\text{I}_2$	He-Ne laser, R(47)9-2: a ₇	489880354.9 MHz	3×10^{-10}
633 nm	$^{127}\text{I}_2$	He-Ne laser, R(127)11-5: a ₁₆	473612353604 kHz	2.1×10^{-11}
640 nm	$^{127}\text{I}_2$	He-Ne laser, P(10)8-5: a ₉	468218332.4 MHz	4.5×10^{-10}
657 nm	^{40}Ca	$^1S_0 - ^3P_1; \Delta m_J = 0$	455986240494140 Hz	1.8×10^{-14}
674 nm	$^{88}\text{Sr}^+$	$5s\ ^2S_{1/2} - 4d\ ^2D_{5/2}$	444779044095486.5 Hz	1.5×10^{-15}
698 nm	^{88}Sr	$5s^2\ ^1S_0 - 5s5p\ ^3P_0$	429228004229873.0 Hz	4×10^{-16}
729 nm	$^{40}\text{Ca}^+$	$4s\ ^2S_{1/2} - 3d\ ^2D_{5/2}$	411042129776399.8 Hz	2.4×10^{-15}
778 nm	^{85}Rb	$5S_{1/2} (F=3) - 5D_{5/2} (F=5)$	385285142375 kHz	1.3×10^{-11}
780 nm	^{87}Rb	$5S_{1/2} - 5P_{3/2}$	384227981.9 MHz	5×10^{-10}
1.54 μm	$^{13}\text{C}_2\text{H}_2$	P(16) ($\nu_1 + \nu_3$)	194369569384 kHz	2.6×10^{-11}
3.39 μm	CH_4	He-Ne laser, P(7) $\nu_3; F_2^{(2)}$	88376181600.18 kHz	3×10^{-12}

表 1-1 国際度量衡委員会の勧告値に採用されている光周波数標準（抜粋）。

表 1-1 に掲載されている光周波数標準は長さ標準だけではなく、「秒の二次表現」 [6] と呼ばれる、先ほど述べた秒の定義改訂に向けた候補リストも含まれている¹。表 1-1 の中で吸収体として最も多く使用されている原子・分子はヨウ素分子の 8 つである。ヨウ素分子は、可視から赤外にわたる広範囲に豊かなスペクトルをもっているため、光周

¹ 具体的には、266 nm の ^{199}Hg 、267 nm の $^{27}\text{Al}^+$ 、282 nm の $^{199}\text{Hg}^+$ 、436 nm の $^{171}\text{Yb}^+$ 、467 nm の $^{171}\text{Yb}^+$ 、578 nm の ^{171}Yb 、674 nm の $^{88}\text{Sr}^+$ 、698 nm の ^{88}Sr が該当する。

波数標準として古くから研究され、分光学の発展に貢献してきた分子である。高分解能レーザー分光技術により、ヨウ素分子吸収線の超微細構造の観測 (図 1.1 参照) および絶対周波数計測も行われてきており、分光技術の進歩とともに光周波数標準としての精度を向上させ、信頼性を担保してきた。

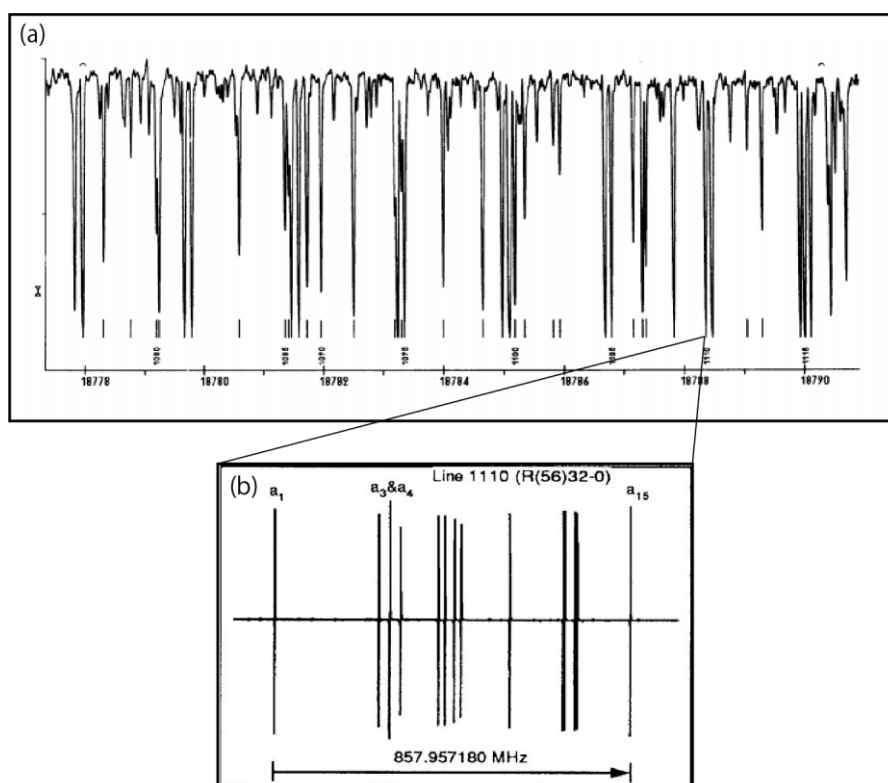


図 1.1 (a)ヨウ素分子の吸収スペクトル ([7]より引用). (b) Modulation transfer 分光法 (第 2.3 説で解説) によって観測された R(56)32-0 (line:1110)の超微細構造 ([8]より引用).

ヨウ素分子の吸収線に安定化されたレーザーの中でも、波長 633 nm ヨウ素安定化 He-Ne レーザーは、現在最も普及している波長標準である。周波数安定度を示すアラン標準偏差は平均時間 1 秒で約 8×10^{-12} 、平均時間 5000 秒では約 1×10^{-13} まで向上する。1993 年から 2000 年にかけて国際度量衡局 (BIPM) が組織して行われた国際比較 (BIPM.L-K10) は 72 台ものレーザーが関与した大規模なものであり、長い年月をかけて各国が保有するヨウ素安定化 He-Ne レーザーの周波数差が測定された。この業績により現行の 633 nm ヨウ素安定化 He-Ne レーザーの勧告値が決定されている [9]。ヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーは、Nd:YAG レーザーの二次高調波の波長域 (532 nm) にあるヨウ素吸収線に安定化されており、1990 年代初期に米国 JILA の J. L. Hall ら

のグループで開発された。ヨウ素の吸収線の中でも 532 nm は他の波長帯と比べて線幅が狭く吸収強度が強いといった特徴があり、高精度な周波数標準をつくるにあたって優れた条件がそろっている。さらに Nd:YAG レーザー自身も光共振器が結晶 1 枚で構成されているモノリシック構造をとっている場合、周波数特性は他のレーザーと比較して優れている。そのため、ヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーは高い周波数安定度と優れた周波数再現性を達成しており、長期運転に関しても絶大な信頼がある。ヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーは 1997 年に CIPM の勧告された放射リストに初めて登場し、波長標準として正式に認められることになった。周波数安定度は平均時間 1 秒で 5×10^{-14} 、平均時間 300 秒で 5×10^{-15} を達成している [8, 10]。

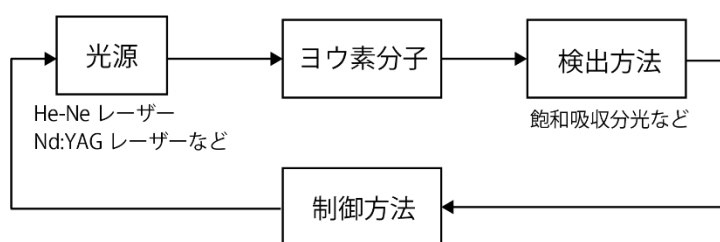


図 1.2 ヨウ素安定化レーザーの概念図。

ヨウ素安定化レーザーは実に様々な応用がなされており、測長 [11]をはじめとして量子情報や宇宙応用 [12, 13]など多岐にわたる。図 1.2 はヨウ素安定化レーザーの概念図を示しており、ヨウ素安定化レーザーの構成要素としては、光源（レーザー）、ヨウ素分子、検出方法、制御方法が挙げられる。ヨウ素安定化レーザーを応用するにあたっては、応用先の要求を過不足なく把握した上で、これら構成要素に関して最適なものを選択することが求められる。近年のレーザー開発の発展に伴って光源選択の自由度も増加しているため、新しい光源に対してどのような制御が可能であり、どこまでの安定度が実現できるかは研究の余地がある。また、その開発過程の中で得られたヨウ素分子吸収線の情報を蓄積していくことが将来のヨウ素安定化レーザー開発の有益な知見となっていく。

1.2 周波数計測と光周波数コム

周波数安定化レーザーが時間・周波数標準としての役割を果たすためには、周波数が時間的に安定であることに加えてもう一つ欠かせない要素がある。それは、絶対周波数が分かっていることである。したがって、絶対周波数測定は周波数安定化技術と並ぶ重要な技術である。ここでは、周波数計測の分野に革新的発展をもたらした光周波数コムについて述べる。1999 年に米国 JILA の J. L. Hall とマックスプランク量子光学研究

所の T. W. Hänsch がモード同期超短パルスレーザーを用いて周波数計測ができることを実証した。モード同期超短パルスレーザーの出力は、時間軸で捉えると一定の時間間隔で並んでいるパルス列であり、周波数軸で捉えると位相同期した多数の縦モードが等間隔に並んでいる概形を描く² (図 1.3)。光周波数コムはその周波数間隔 f_{rep} と仮想的にゼロ周波数まで外挿した際のオフセット周波数 f_{CEO} をマイクロ波周波数基準または光周波数基準に安定化することで、「光のものさし」として機能する。光周波数コムが開発される以前は、周波数チェーンと呼ばれる装置で周波数計測が行われていた。周波数チェーンは、安定化レーザー、マイクロ波源、非線形通倍混合素子を多数駆使して、セシウム原子マイクロ波標準から光周波数に向けて何段階もの通倍・混合を繰り返さなければならない。装置全体が大型で運転・維持が大変なうえ一台の周波数チェーンで測定できる周波数帯が限られているといった難点があった。それに対して光周波数コムを用いる場合、光周波数コムのスペクトルが及ぶ範囲内であれば一台で複数の被測定レーザーの周波数測定が可能であり汎用性が非常に広い。被測定レーザーと光周波数コムを空間的に合波させ、被測定レーザーと最近接する光周波数コムのモードとの間の光ビート周波数を受光器で検出し、周波数カウンタで測定することで高精度な周波数計測が可能になる。最近接モードのモード番号を n 、ビート周波数を f_{beat} とすると、レーザーの周波数は

$$f_{\text{laser}} = f_{\text{CEO}} + n f_{\text{rep}} + f_{\text{beat}} \quad (1-1)$$

と計算することができる。

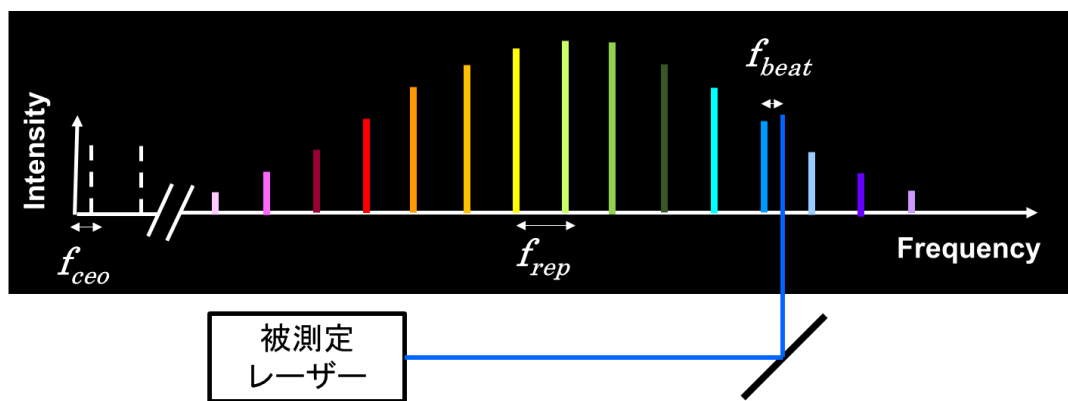


図 1.3 光周波数コムの概念図.

² その見た目が櫛 (comb) のように見えることから光周波数コムと呼ばれている。

また、光周波数コムは周波数計測だけではなく様々な応用分野が発展している。デュアルコム分光法では、繰り返し周波数がわずかに異なる 2 台の光周波数コムを用意して、1 台はガスセルに透過させた後にもう 1 台の光コムとのビート周波数を観測する。得られた信号を高速フーリエ変換することで高速・高分解能・高感度な分光を実現している [14, 15, 16]。また、天文コムとよばれる系外惑星探索用の光周波数コムの研究が進んでいる [17]。この光周波数コムは天文台の望遠鏡に設置された高分解能分光器の波長校正に使われる。系外惑星探索では、遠い星の視線速度を cm/s のレベルで観測することが求められているが、光周波数コムの規則正しく並んだムラのないスペクトルを用いることで従来のヨウ素セルやトリウムアルゴンランプよりも高精度な波長校正が実現できる。天文コムの原理については第 5 章で詳説する。

1.3 通信波長帯の周波数標準と応用例

光周波数標準はその波長帯ごとに多様な用途が設定されており、通信波長帯 ($1.5 \mu\text{m}$) の場合は光ファイバー中での低損失性 (0.2 dB/km) から、光通信やファイバーリンクなどの場面で活用されている。また、大気中の二酸化炭素濃度を測定するライダー [18] や Er ファイバーベースの光周波数コム [19, 20] の光周波数基準にも使われている。通信波長帯は波長域ごとにバンド名がついており、短波長側から O バンド (Original band)、E バンド (Extended band)、S バンド (Short wavelength band)、C バンド (Conventional band)、L バンド (Long wavelength band)、U バンド (Ultralong wavelength band) と呼ぶ。通信波長帯の周波数標準の研究は、アセチレン分子の振動回転遷移の一つである P(16) 吸収線に周波数安定化されたレーザーを中心に進められており、アセチレン安定化レーザーの絶対周波数 $194\,369\,569\,384 \text{ kHz}$ は国際度量衡委員会 (CIPM) の勧告値になっている [21, 22]。図 1.4 にこれまで通信波長帯の光周波数標準に使われている代表的な原子分子を示す。アセチレン (C_2H_2) $\nu_1 + \nu_3$ バンド内には 1510 nm から 1550 nm の範囲の中に吸収線が 50 本以上存在する。一酸化炭素 (CO) は、L バンドの 1560 nm から 1598 nm の間に R ブランチ 20 本、P ブランチ 20 本の吸収線を持つ。また、シアン化水素 (HCN) は $2\nu_3$ オーバートーン遷移が使われており、その吸収スペクトルは 1525 nm から 1565 nm の間に存在する。しかし、これらはすべてオーバートーン遷移を用いているため、吸収強度が弱く、飽和吸収分光を行うためには高い光パワーが必要になる。そのため、吸収線を観測する時は光共振器を形成し、検出感度を向上させた状態で分光を行う [23, 24]。

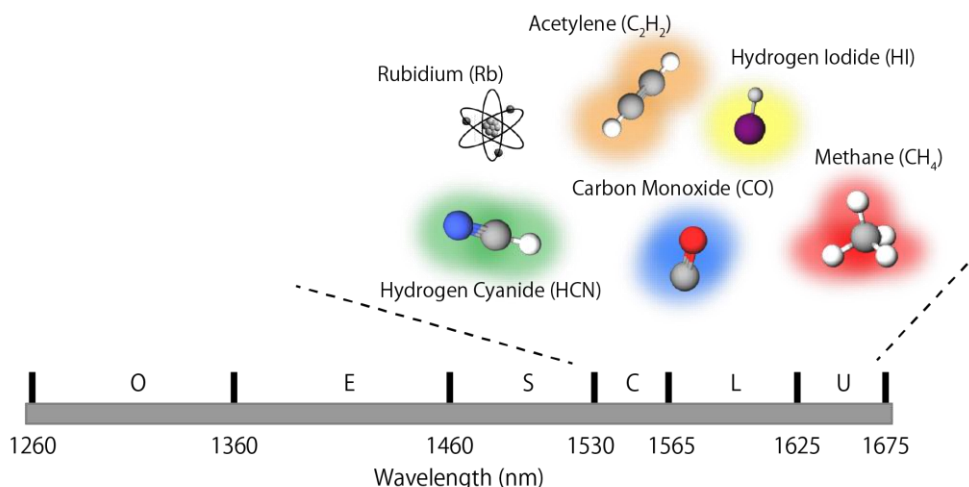


図 1.4 通信波長帯バンドと通信波長帯光周波数標準に使われる原子分子.

図 1.5 は各種光周波数標準の周波数安定度を示す。それぞれの波長を示すと、ヨウ化水素 (HI) は 1541 nm [25]、HCN は 1.55 μm [26]、ルビジウム (Rb) の二光子吸収は 778 nm (1556 nm の二次高調波) [27]、D₂線は 780 nm (1560 nm の二次高調波) [28]、一酸化炭素 (CO) は 1563 nm [29]、アセチレン (C₂H₂) は 1542 nm [30]である。この中でも、比較的優れた周波数安定度を達成しているのがアセチレンと一酸化炭素とルビジウムである。ルビジウムは通信波長帯に吸収線を持たないが、二次高調波発生を行うことで通信波長帯の周波数標準として使うことができる。ルビジウムの 5S_{1/2} – 5D_{5/2}二光子遷移 (778 nm) は、線幅が 500 kHz と狭いが外部磁場 (地磁気) による周波数シフトの問題が存在し、磁気シールドが必要になるため装置全体が大がかりになる。同じくルビジウムの 5S_{1/2} – 5P_{3/2}遷移 (D₂線, 780 nm) は強い吸収線を有するがドップラーフリーの線幅が 20 MHz と非常に広いといった欠点がある。一方で、アセチレンや一酸化炭素は通信波長帯に吸収線を持つため波長変換を行う手間がなくなるが、どちらも吸収線が非常に弱いため強い吸収信号を得ることが難しい。そこで吸収量を増加させるために、レーザーを共振器に入射し、レーザー光を共振器内で何度も往復させることで実効的な光路長を長くする手法がとられている。共振器の長さを L 、ミラーの反射率を R とすると実効的な光路長は、

$$L_{\text{eff}} = \frac{L}{1 - R} \quad (1.2)$$

と表すことができる。しかし、共振器を使用していることで長期運転には不向きであるといった課題が残っている。その中で、国際度量衡委員会が通信波長帯の周波数標準と

してアセチレンを採択している理由としては、通信波長帯に吸収線が存在することに加えて、歴史的に米国標準技術研究所（NIST）がアセチレンセルの透過光を使って波長計の校正を行った実績があるということが挙げられる。

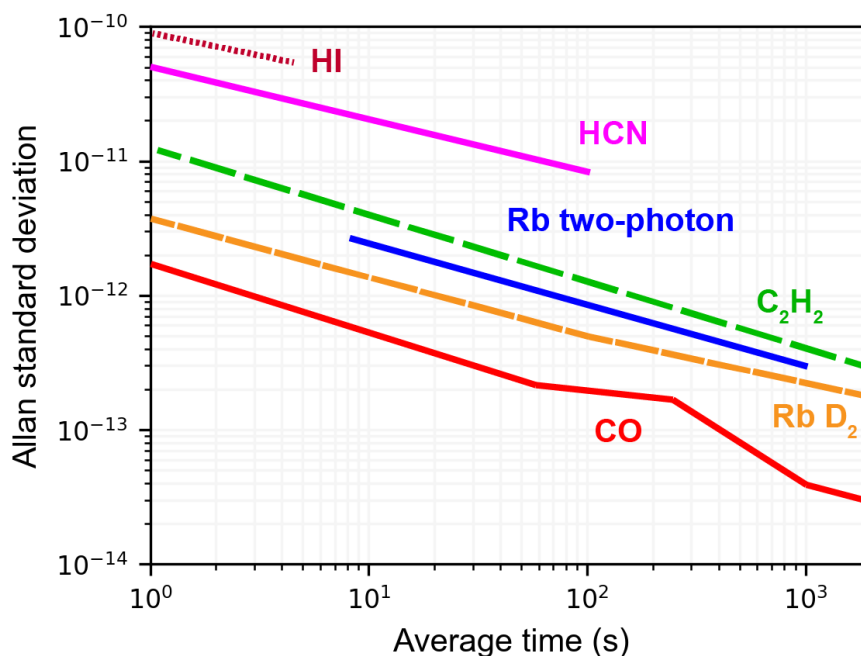


図 1.5 通信波長帯の各種光周波数標準の周波数安定度。

通信波長帯に吸収線を持つ分子を周波数標準に用いる場合、その吸収線の弱さが周波数安定度を向上させるうえでの課題として存在する。これは使用している遷移が振動回転遷移であることに由来する。振動遷移の基本バンドの場合、遷移双極子モーメントの典型的な値は 0.1 Debye (デバイ) である³。この値は典型的な電子遷移双極子モーメントの大きさ 1 Debye と比較して 1 桁小さくなっている。さらにオーバートーンの振動遷移になると遷移双極子モーメントはもう 1 桁小さくなり、0.01 Debye 程度になる。吸収強度は双極子モーメントの 2 乗に比例するため、振動遷移の吸収強度は電子遷移と比べて 2 桁以上小さくなり、飽和吸収分光を行うことが困難になる。そのため、通信波長帯レーザーの安定化基準として、ヨウ素分子のような電子遷移を伴う可視域の遷移を使うことができれば、より信頼性の高い周波数標準につながると考えられる。

次に、通信波長帯の周波数標準の応用例として波長分割多重、ファイバーリンク、天文応用の 3 つについて取り上げて解説する。

³ 1 Debye = $1/299792458 \times 10^{-21} \text{C} \cdot \text{m}$

1.3.1 波長分割多重 (WDM)

アセチレンの吸収線 ($1.54 \mu\text{m}$) に安定化された周波数標準は波長分割多重 (WDM) の分野で重要な貢献を果たしている。WDM では、ITU-T 周波数グリッドと呼ばれる、周波数軸上で等間隔に並べられた多数のチャンネルが用意されている。一度に複数の波長の光を伝送することで伝送容量が確保できる一方で、チャンネル間のクロストークを適切に除去するための工夫も必要である。伝送する光の周波数はグリッド内に正確に収まっていることが求められる。したがって、光周波数の管理が重要になり、光周波数標準によって光スペクトラムアナライザや波長計といった各種計測機器を高精度に校正を行うことが大切である。校正を行う際には、周波数安定化レーザー (標準器) に安定化された光周波数コムとの最近接モードと校正器物の周波数差を測定し、校正器物の光周波数を不確かさとともに示す。最近接モードの次数決定には、あらかじめ波長計で校正器物のおおよそ周波数を計測しておけばよい。当初、周波数グリッドの間隔は 100 GHz に設定されていたが、現在の高密度波長分割多重 (DWDM) では 12.5 GHz や 6.25 GHz 間隔となっている。今後、更にその間隔が狭くなってくると、より高精度な標準器へのニーズが高まってくることが予想される。

1.3.2 ファイバーリンク

光時計のような高精度な光周波数標準の開発が進むにつれて、その光周波数標準の利用・校正・比較のために周波数安定度を維持させたまま長距離伝送する技術も必要になっている。周波数標準の伝送に関する研究では、GPS 衛星を用いて、セシウム原子時計のマイクロ波周波数標準を、つくばの産総研から東大本郷キャンパスへと伝送し、Sr 光格子時計の周波数比較が行われている [31]。しかし、GPS 衛星を用いる場合、空気の揺らぎの影響等による伝送信号の位相劣化が大きいため、GPS 衛星から送られてきた基準信号を用いて周波数比較を行うためには長期の測定日数を必要としていた⁴。そこで、別の周波数伝送方法としてファイバーリンクの研究が行われている [32]。ファイバーリンクでは光ファイバー中を光が伝搬するため空気の揺らぎの影響を受けないという利点がある。その一方で、振動や熱などの環境外乱による付加位相雑音の影響が生じるという欠点もある。そこで、周波数安定化レーザーを長さ基準としてファイバー長の揺らぎを検出し、付加位相雑音をキャンセルすることにより、高精度な周波数リンクが実現され短時間で高精度の周波数比較が可能になる。

光ファイバー伝送中の付加周波数雑音はファイバー長を L とすると、

⁴ 10^{-14} の精度で周波数比較を行うためには 9 日間の日数を要する。

$$\frac{\delta f}{f} = \frac{1}{f} \frac{d}{dt} \left(\frac{\phi}{2\pi} \right) = \frac{1}{c} \frac{dL}{dt} \quad (1-3)$$

と書ける。ここで c は光速である。周波数安定度が $\delta f_{ref}/f_{ref}$ で表される周波数安定化レーザーを用いてファイバー長を安定化した場合、ファイバー長揺らぎの抑圧限界は周波数安定化レーザーの周波数安定度になるため、

$$\frac{\delta L}{L} = \frac{\delta f_{ref}}{f_{ref}} \quad (1-4)$$

となり、この安定化レーザーでファイバー長が安定化された光ファイバー中に伝送光を伝搬させたときに加わる周波数雑音限界は、

$$\frac{\delta f}{f} = \frac{L}{c} \frac{d}{dt} \left(\frac{\delta f_{ref}}{f_{ref}} \right) \quad (1-5)$$

となる。具体的な条件に当てはめて考えると、周波数安定度（アラン標準偏差）が $4 \times 10^{-12} \tau^{-1/2}$ であるアセチレン安定化レーザーを用いて、100 kmの光ファイバー長を安定化した場合、光源により決まる付加周波数雑音限界は、アラン標準偏差で表現すると $1.2 \times 10^{-15} \tau^{-1}$ となり、アセチレン安定化レーザーの安定度よりも高い安定度で光信号を伝送できることが分かる。

1.3.3 天文応用

周波数安定化レーザーを用いたファイバー長変動抑制は TPF-C [33]や ALMA [34]などの天文学の分野でも使われている。電波天文学では、広範囲に多数のアンテナを配置して仮想的に一つの巨大な望遠鏡に見立てて電波を観測する。そこでは、各地に配置されたアンテナ間で参照周波数（ミリ波）を共有する必要がある、そのミリ波はファイバーを経由して伝送される。例えば、ALMA プロジェクト⁵では南米チリの標高 5000 m のアタカマ山頂に、12 m 電波望遠鏡 66 台で直径 18 km の合成開口位相アレイ型望遠鏡を構成している。30 GHz から 950 GHz の周波数帯を観測し、低温天体や星間物質の情報を取得し、銀河誕生の起源を探ることを目的としている。ここでは、基準信号の周波数は 100 GHz であるが、この基準信号は 2 台のレーザーの差周波数から作られている。電波望遠鏡各地のアンテナで高い位相安定性を実現するためにはファイバー長の変動を抑えなければならないが、ここでも通信波長帯の周波数安定化レーザーを用いてファイバー干渉測定を行うことが有効になる。

⁵ Atakama Large millimeter/submillimeter Array の略。

1.4 本研究の目的と論文構成

1.4.1 本研究の目的

前節までで述べたように、通信波長帯周波数標準は学術分野のみならず産業分野においても非常に大きな役割を担った光源である。高密度波長分割多重方式では、通信容量の急速な増加への対応としてチャンネル間隔（ITU-T 周波数グリッド）の更なる高密度化が見込まれており、現行の光周波数標準の高精度化が求められている。また、近年盛んに研究が進められている量子情報通信においては、情報の担い手は通信波長帯光源に限らず、原子や固体欠陥などの量子メモリにも及ぶ。それらの吸収発光波長は主に可視光帯に存在するため、可視光と通信波長帯間での波長変換が欠かせない。そのような量子情報ネットワークに対応するためには、通信波長帯光源そのものの周波数安定化に加え、波長変換に用いる励起レーザーを周波数安定化する技術も必要になってくる。

そこで本学位論文では、通信波長帯光周波数標準の高精度化として通信波長帯レーザーのヨウ素分子への周波数安定化、また、長距離量子通信のための波長変換用励起レーザー開発として波長 1064 nm 小型固体レーザーの周波数安定化に関する研究を行う。これら二つの応用に適したヨウ素安定化レーザーを開発するためには、応用先のリクエスト条件を的確に把握し、それに見合った構成要素（光源、分光方法、制御方法）を選択できるかどうか鍵となる。

通信波長帯光周波数標準は、これまで基本波と二次高調波領域にそれぞれ吸収線をもつアセチレンとルビジウムが安定化基準とする研究が多く行われてきた。本研究では、導波路型デュアルピッチ周期分極反転ニオブ酸リチウム（PPLN）という新しいタイプの非線形光学結晶を用いて 1542 nm レーザー光の 3 倍波発生を行うことで、514 nm 帯でのヨウ素分子分光ならびに周波数安定化を行う。デュアルピッチ PPLN は過去に光周波数コム波長変換の研究で使用されているが、光周波数コムはスペクトルが広い分、位相整合条件や設計誤差の制約は厳しくなかった。一方、連続発振レーザーに適用する場合、ある決まった波長に対して位相整合条件を満たさなければならないため光周波数コムの場合と比べて難しさが増す。本研究では、デュアルピッチ PPLN を連続発振レーザーに対して初めて適用するため、連続発振レーザーに対して効率よく位相整合条件を満たす工夫として位相整合ピッチの一部分にチャープがかかった結晶を用意した。このようなデュアルピッチとチャープを組み合わせた PPLN 結晶を実際に適応するのは世界初であるため、実際に高効率な 3 倍波発生を実現できるかを評価する。さらに、アセチレン P(16)吸収線の 3 倍周波数付近のヨウ素分子の吸収線を観測し、周波数標準として使用できることを確認する。超微細構造の絶対周波数計測と不確かさ評価には光周波数コムを使用する。本研究で開発する周波数安定化レーザーは、天文コムと呼ばれる系外惑星探索に関する研究の中で基準レーザーとして応用されることを目指す。そのため、

月や年単位の長期運転が可能になるようシステムの堅牢性向上を行う。天文コム基準レーザー光源には、高出力で堅牢性があるファイバーレーザーを使用し、ヨウ素分光には出力光に変調が残らない Modulation transfer 分光法を用いる。

また、長距離量子通信に向けた波長変換用励起レーザーの周波数安定化では、周波数制御が困難な市販の小型固体レーザーに対して、固体レーザーの励起 LD を用いた独自の変調分光および周波数制御の方法を提案し、ヨウ素分子への周波数安定化が可能であることを実証する。励起 LD の電流を制御ポートとして直接変調を行うことで、電気光学変調器などの高価な光学部品を必要としないコンパクトで安価な系の構築を目指す。量子情報ネットワーク内の量子メモリとしてはダイヤモンド NV 中心を想定しているため、周波数安定度がダイヤモンド NV 中心の線幅 (10 MHz) よりも十分に抑えられる結果となることを目指す。

1.4.2 本論文の構成

最後に、本論文の構成について示す。第一章では、周波数安定化レーザーにおける過去から現在に至る動向を理解することを目的として、国際度量衡委員会 (CIPM) の勧告値に採用されている周波数標準のリストと共に、先行研究で実現している周波数安定化レーザー及び達成されている不確かさについてまとめた。また、周波数安定化レーザーと並んで重要な周波数計測技術の歴史について触れた後に、光周波数コムを用いた絶対周波数計測の原理について述べた。さらに、本研究で中心となる通信波長帯の周波数標準の役割を述べ、その応用例として高密度波長分割多重やファイバーリンクの解説を行った。最後に、通信波長帯周波数標準の課題と周波数安定度向上の必要性を示した。第二章では、周波数安定化レーザーを開発するにあたって欠かせない、原子分子とレーザーの相互作用に関する理論およびレーザー分光の手法について詳細に述べる。また、ヨウ素分子のポテンシャルエネルギーと超微細構造について解説する。第三章では、導波路型デュアルピッチ PPLN の評価を行う。導波路型デュアルピッチ PPLN は 1542 nm レーザー光の 3 倍波発生用に設計されており、1 本の導波路内に 2 つの異なる位相整合ピッチがあることで 2 つの非線形過程 (二次高調波発生 + 和集波発生) が連続的に起きるようになっている。その 2 つの過程の位相整合曲線を個別に取得することでデュアルピッチ PPLN に対する直観的な理解を深めるとともにヨウ素分光を行うのに十分なパワーが得られたことを示す。第 4 章では、高安定な通信波長帯周波数安定化レーザーの実現を目指し、デュアルピッチ PPLN で発生させた 514 nm 光を用いてヨウ素分子への周波数安定化を行う。周波数安定度評価は光周波数コムとのヘテロダインビートの変動から測定し、アラン標準偏差の値で特徴づける。また、開発の過程で生じる絶対周波数の不確かさを測定し、最終的に光周波数コムを用いて絶対周波数を決定する。第 5 章では、開発した通信波長帯ヨウ素安定化レーザーの応用として天文コムへの組み込みについて述べる。達成した周波数安定度について強度雑音の観点から説明する。また、

天文コムの原理と世界各国での天文コムの開発状況についても述べる。第 6 章では、長距離量子通信に適した小型周波数安定化レーザーの開発を行う。量子中継器に搭載されることを想定して装置全体の小型化を考慮しつつも、達成した周波数安定度がダイヤモンド NV 中心への接続に十分な精度であることを示す。第 7 章では総括として、本研究で得られた結果をまとめ、今後の展望について述べる。

第2章

理論

本章では、まず分子のエネルギー構造について解説し、振動回転準位および超微細構造について理解する。次に、そのエネルギー構造を観測するために必要な分子とレーザーの相互作用に関する理論の説明をする。最後に、具体的なレーザー分光の手法として Modulation transfer 分光法について詳細に述べる。

2.1 分子のエネルギー構造

電子の質量は原子核と比べてはるかに軽く、運動の時間スケールも同程度に異なっているため、電子にとって原子核は静止していると考えることができる。そこで、ボルン・オッペンハイマー近似により、原子核の振動・回転運動と電子の運動を切り離して考えると、全エネルギー E^{total} と全波動関数 ψ^{total} は、

$$E^{\text{total}} = E^{\text{el}} + E^{\text{vib}} + E^{\text{rot}} \quad (2-1)$$

$$\psi^{\text{total}} = \psi^{\text{el}}\psi^{\text{vib}}\psi^{\text{rot}} \quad (2-2)$$

と記述できる。ここで、 $E^{\text{el}}, E^{\text{vib}}, E^{\text{rot}}$ はそれぞれ電子・振動・回転のエネルギー、 $\psi^{\text{el}}, \psi^{\text{vib}}, \psi^{\text{rot}}$ はそれぞれ電子・振動・回転の波動関数である。

2.1.1 電子準位

ボルン・オッペンハイマー近似のもとでは、核間距離の関数として電子エネルギーを表すことができる (図 2.1 参照)。ここでは、ヨウ素分子を想定して、核間距離が R 離れた等核二原子分子について考える。まず R が無限に大きい場合 ($R \rightarrow \infty$)、二原子間では相互作用がないため全エネルギーは2つの孤立した原子のエネルギー和となる。次に、二原子を接近させて核間距離 R を小さくしていくと分子の全エネルギーは R に依存するようになり、結合性軌道と反結合性軌道に分裂する。結合性軌道では、核間距離を小さくしていくと、平衡距離 R_0 でエネルギーが最も低くなり、それ以上小さくしていくと原

子同士が反発し合ってエネルギーは再び大きくなる。

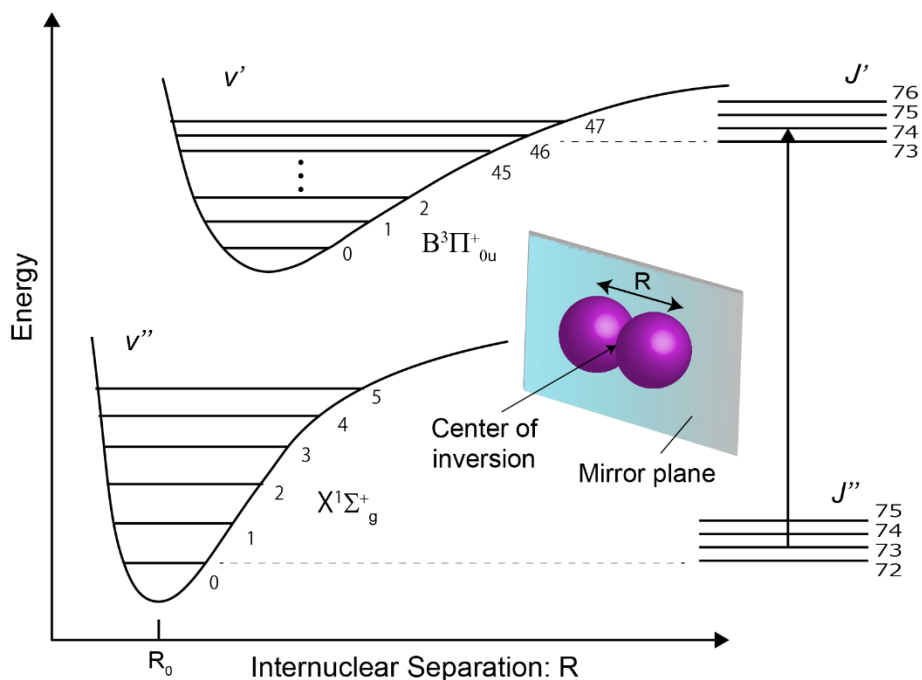


図 2.1 ヨウ素分子 (核間距離 R) のエネルギー構造. Center of inversion: 反転中心. Mirror plane: 鏡映面. 図中の矢印は $R(73)46-0$ 遷移を示している.

二原子分子のポテンシャルは 2 つの核を結ぶ分子軸回りの回転に対して対称 (円柱対称) であるため、全軌道角運動量 L の分子軸への射影 Λ ($= -L, -L + 1, \dots, L$) はよい量子数となる。量子数 Λ をもつ電子状態は、 Λ の大きさ ($= 0, 1, 2, \dots$) に応じて大文字のギリシャ文字 ($\Sigma, \Pi, \Delta, \dots$) によってラベリングされる。また、全スピン角運動量を S とすると、分子軸への射影は Σ ($= -S, -S + 1, \dots, S$) で表されるため、スピン多重度は $2S + 1$ となる。よって、全角運動量 ($L + S$) の分子軸への射影 Ω は、

$$\Omega = \Lambda + \Sigma \quad (2-3)$$

と書ける。

これらの記号を用いて分子の電子状態を項記号で記述すると $^{2S+1}\Lambda_{\Omega}$ となる。さらに、項記号には電子状態の対称性を示すために (g, u) および ($+, -$) といった記号が添えられる。まず考えるのは、電子軌道波動関数に対する反転操作⁶ (分子の対称心で反転) :

⁶ 正確には電子全体 (電子軌道波動関数と電子スピン関数) に対する反転操作であるが、電子スピン関数は位置の変数の変化には影響を受けないため、この操作は電子軌道関数のみに作用する。

$(x, y, z) \rightarrow (-x, -y, -z)$ である。ヨウ素分子のような等核二原子分子の場合、電子軌道波動関数は反転操作に対して変化しないか符号のみが変化する。反転操作に対して波動関数が変化しない場合を(g)、符号のみが変わる場合を(u)で表す。次に電子軌道関数に対する鏡映操作を考えると、二原子分子の場合は二つの核を含む鏡映面に対して鏡映対称性を持つ。鏡映操作に対して電子軌道波動関数が変化しない場合を(+)、符号のみが変わる場合を(-)で表す。さらに、電子基底状態と励起状態を識別するため、電子基底状態をX、励起状態はエネルギーの低い順にA, B, C, . . . と表し、項記号の左側に並べて記述する。

表 2-1 にヨウ素分子の主な電子遷移と吸収波長の関係を示す。このうち B-X 遷移 (電子基底状態 $X^1\Sigma_g^+$ から電子第二励起状態 $B^3\Pi_{0u}^+$ への遷移) は吸収が強く、光周波数標準として広く使われている。

Transition	Wavelength Range
A - X	800-1400 nm
B - X	500-700 nm
E - B	400-430 nm
D' - A'	310-345 nm
F - X	250-272 nm
D - X	182-240 nm

表 2-1 ヨウ素分子の主な電子遷移と対応波長.

分子軌道間遷移が従う選択則は表 2-2 のようになる。

$\Delta\Lambda$	=	$0, \pm 1$
g	\leftrightarrow	u
\pm	\leftrightarrow	\pm

表 2-2 分子軌道間遷移の選択則.

2.1.2 振動準位

調和振動子近似の範囲内で考えると、振動のハミルトニアンは、

$$H^{\text{vib}} = \sum_i \sum_{\alpha} \frac{h\nu_i}{2} (q_{i,\alpha}^2 + p_{i,\alpha}^2) \quad (2-4)$$

と書ける。ここで、 i は基準振動モード、 α は縮退振動内モードであり、 i モードの基本周波数を ν_i としている。また、 $p_{i,\alpha}$ および $q_{i,\alpha}$ はそれぞれ無次元化された基準座標とそれに共役な運動量演算子であり、デカルト座標での変位 $Q_{i,\alpha}^2$ を用いると

$$\begin{aligned} q_{i,\alpha} &= \sqrt{\frac{\nu_i}{h}} Q_{i,\alpha} \\ p_{i,\alpha} &= -i \frac{\partial}{\partial q_{i,\alpha}} \end{aligned} \quad (2-5)$$

と定義される。式(2-4)の固有エネルギーは、

$$E^{\text{vib}} = \sum_i h\nu_i \left(\nu_i + \frac{d_i}{2} \right) \quad (2-6)$$

となる。ここで ν_i は i モードの振動量子数($\nu_i = 0, 1, 2, \dots$)、 d_i は縮退度を表す。一般に、 N 個の原子からなる分子の振動の自由度は $3N - 6$ (直線分子の場合 $3N - 5$)であるため、ヨウ素分子の振動モードは1種類のみである。また、縮退度は1である。したがって、式(2-10)は、

$$E^{\text{vib}} = h\nu \left(\nu + \frac{1}{2} \right) \quad (2-7)$$

と書き直せる。等核2原子分子の場合、振動によって電気双極子モーメントが誘起されることはないため、振動エネルギー間の光吸収は起こらない(赤外不活性)。ここまでの議論では、ポテンシャルエネルギーが調和的であると仮定してきたが、エネルギーが高い領域では非調和的になり、放物線近似から外れてくる。そのため、振動エネルギーは等間隔ではなくなり、エネルギーが高くなるほど間隔が狭くなるという特徴がみられる。

2.1.3 回転準位

分子の核間距離が回転によって変化しないと仮定する剛体回転子近似を用いると、回転のハミルトニアンは、

$$H^{\text{rot}} = \frac{J_a^2}{2I_a} + \frac{J_b^2}{2I_b} + \frac{J_c^2}{2I_c} \quad (2-8)$$

と書ける。ここで、 (a, b, c) は3つの直交する回転軸(慣性主軸)であり、 I_a, I_b, I_c はそれぞれ慣性主軸周りの慣性モーメント、 J_a, J_b, J_c はそれぞれ慣性主軸方向の角運動量である。ヨウ素分子のような等核二原子分子の場合、3つの慣性モーメントのうち2つが等しく、1つが0になる。したがって、 $I_a = 0, I_b = I_c$ とすると、式(2-8)は

$$H^{\text{rot}} = \frac{J^2}{2I_b} - \frac{J_a^2}{2I_b} \quad (2-9)$$

と書き直せる。ここで、 $J^2 = J_a^2 + J_b^2 + J_c^2$ である。 J^2 と J_a をそれぞれ $\hbar^2 J(J+1)$ 、 $\hbar K$ と書き換え、さらに回転定数を

$$A = \frac{h}{8\pi^2 I_a} \quad (2-10)$$

$$B = \frac{h}{8\pi^2 I_b}$$

とすると、式(2-9)の固有エネルギーは

$$E^{\text{rot}} = h[BJ(J+1) + (A-B)K^2] \quad (2-11)$$

となる。ここで J は回転量子数($J = 0, 1, 2, \dots$)、 K は J の分子軸への射影成分($-J, -J+1, \dots, J-1, J$)であるが、直線分子の場合、 $K = 0$ となるため、式(2-11)は

$$E^{\text{rot}} = hBJ(J+1) \quad (2-12)$$

となる。ヨウ素分子のような等核二原子分子の場合、電子振動状態が変化せずに回転状態だけが変化する遷移（純回転遷移）は起こらない。ここまでの議論では、回転によって核間距離が変化しないと仮定してきたが、実際の分子では遠心力によって核間距離が変化するため、回転準位は振動準位と結びついている。そのため、振動準位と回転準位を独立に考えることには限界があり、それらをまとめた総称として振動回転準位と呼ばれている。

直線分子における、回転遷移が従う選択則は表 2-3 のようになる。

$\Delta J = J' - J''$	=	-1	(P - branch)
		+1	(R - branch)

表 2-3 直線分子における回転遷移の選択則。

回転状態の選択則 ($\Delta J = J' - J''$) に関連して、 $\Delta J = -1$ の遷移を P 枝、 $\Delta J = +1$ を R 枝と呼ぶ。振動回転遷移はこのラベルを用いて“branch”(J'') $v' - v''$ と記述される。例えば、本研究で分光を行った R(73)46-0 遷移は下準位（回転量子数 $J'' = 73$ 、振動量子数 $v'' = 0$ ）から上準位（回転量子数 $J' = 74$ 、振動量子数 $v' = 46$ ）への遷移であること示す（図 2.1 参照）。分子の場合、選択則に従う遷移であってもその遷移確率は遷移によ

って大きく異なり、観測される吸収強度はフランク-コンドンの原理(第2.2.1項参照)によって決まってくる。一般に、 Δv が大きくなるにつれて振動状態の波動関数の重なりが弱くなるため遷移強度は弱くなる。

2.1.4 超微細構造

各振動回転準位は超微細構造と呼ばれるさらに細かく分裂した準位を持っている。この超微細構造の起源は、原子核中に分布している陽子と中性子が運動することで発生する四重極電場と磁場であり、この電場と磁場が電子と磁気双極子相互作用または電気四重極子相互作用をすることで超微細構造分裂する。全角運動量 \mathbf{F} を電子の全角運動量と回転角運動量の合成 \mathbf{J} と全核スピン \mathbf{I} を用いて次のように定義する。

$$\mathbf{F} = \mathbf{J} + \mathbf{I} \quad (2-13)$$

この時 \mathbf{F} は次の値をとることができる。

$$F = |J + I|, |J + I - 1|, \dots, |J - I + 1|, |J - I| \quad (2-14)$$

すなわち、振動回転準位は全核スピン I に対して $2I + 1$ 個の超微細構造を持つ。ヨウ素分子 $^{127}\text{I}_2$ の二つの原子が持つ核スピン量子数はそれぞれ $I_A = I_B = 5/2$ であるため、全核スピンは、 $I = |I_1 - I_2|, |I_1 - I_2 + 1|, \dots, |I_1 + I_2| = 0, 1, \dots, 5$ となる。ヨウ素分子の原子核は核スピン量子数が半整数なのでフェルミ粒子である。パウリ原理によると、分子内同種原子核の交換に関して、原子核がフェルミ粒子の場合、核交換後の全波動関数は符号が逆になる。全波動関数の対称性は、電子・振動・回転の波動関数対称性と核スピン波動関数の対称性の掛け合わせで決まってくる。偶パリティ (g) の電子状態 (Σ_g, Π_g など) の場合、回転量子数 J が偶数の時は核交換操作に対して対称(s)となり、回転量子数 J が奇数の時は反対称(a)となる。(奇パリティ (u) の電子状態 (Σ_u, Π_u など) の場合はその反対となる。) 一方で、核スピンの波動関数は、核スピン I が偶数のとき核交換に対して反対称(a)となり、 I が奇数の時に対称(s)となる。結果として、電子基底状態 $X^1\Sigma_g^+$ で反対称な波動関数を得るには、偶数 J と偶数 I 、もしくは奇数 J と奇数 I を結びつける必要がある。したがって、ヨウ素分子 $^{127}\text{I}_2$ の基底状態は J'' の偶奇によって次のように超微細構造分裂する。

$$\sum_{I=0.2.4} (2I + 1) = 15 \quad \text{for even } J'' \quad (2-15)$$

$$\sum_{I=1,3,5} (2I+1) = 21 \quad \text{for odd } J''$$

反対に、電子第二励起状態 $B^3\Pi_{0u}^+$ は奇パリティであるため、偶数 J と奇数 I 、もしくは奇数 J と偶数 I が結合することで反対称な波動関数を得ることができる。超微細構造間遷移では表 2-4 の選択則に従う。 $J \gg I$ の場合、 $\Delta F = \Delta I$ となる遷移が最も遷移強度が強くなるという特徴がある [36]。

ΔI	=	0
$\Delta F = \Delta J + \Delta I$	=	0, ± 1 (but not $F' = 0 \leftrightarrow F'' = 0$)

表 2-4 超微細構造遷移の選択則.

2.2 光と分子の相互作用

2.2.1 フランク-コンドンの原理

分子と光の相互作用を考えるにあたって、原子との大きな違いは先ほど示したような振動・回転の自由度をもつことがあげられる。一般的に、分子の遷移には電子状態を変えずに振動・回転状態だけが変わる遷移も存在するが、ヨウ素分子の場合、そのような遷移は起こらない。一方で、電子状態遷移では振動・回転遷移が同時に起こる。そのような電子状態遷移に際して、どのような振動遷移が伴いやすいかを求めるのに、フランク-コンドンの原理が役に立つ。フランク-コンドンの原理を説明するにあたって、再びボルン・オッペンハイマー近似を考えると、分子の波動関数は次のように書くことができる。

$$\Psi = \Psi_e(r, R)\Psi_{\text{vib}}(R) \quad (2-16)$$

ここでは、二つの核の相対位置ベクトル R が電子波動関数のパラメータとして入っている。また、電子座標全体を r としている。電気遷移双極子モーメントは

$$\boldsymbol{\mu} = \boldsymbol{\mu}_e + \boldsymbol{\mu}_n = -\sum_i e\mathbf{r}_i + \sum_{\alpha} eZ_{\alpha}\mathbf{R}_{\alpha} \quad (2-17)$$

と書ける。ここで、 e は電荷である。式(2-17)を始状態と終状態の波動関数ではさんで積分した遷移行列要素が0でないのが許容遷移である。すなわち、

$$\begin{aligned}
 \mu &= \int \Psi^{*'} \boldsymbol{\mu} \Psi'' d\mathbf{r} dR \\
 &= \int \Psi_{e'}^{*'} \Psi_{\text{vib}'}^{*'} (\boldsymbol{\mu}_e + \boldsymbol{\mu}_n) \Psi_{e''} \Psi_{\text{vib}''} d\mathbf{r} dR \quad (2-18) \\
 &= \int \left(\int \Psi_{e'}^{*'} \boldsymbol{\mu}_e \Psi_{e''} d\mathbf{r} \right) \Psi_{\text{vib}'}^{*'} \Psi_{\text{vib}''} dR + \int \Psi_{e'}^{*'} \Psi_{e''} d\mathbf{r} \int \Psi_{\text{vib}'}^{*'} \boldsymbol{\mu}_n \Psi_{\text{vib}''} dR
 \end{aligned}$$

となる。第二項の最初の積分は二つの電子波動関数の直交性から 0 となる。ここで、電子遷移モーメントを

$$M_e(R) = \int \Psi_{e'}^{*'} \boldsymbol{\mu}_e \Psi_{e''} d\mathbf{r} \quad (2-19)$$

と定義すると、式(2-18)は

$$\mu = \int M_e(R) \Psi_{\text{vib}'}^{*'} \Psi_{\text{vib}''} dR \quad (2-20)$$

と書き直せる。ここで、 M_e の R 依存性は小さいと仮定すると、積分の外に出すことができるため、式(2-20)は

$$\mu = \overline{M_e(R)} \int \Psi_{\text{vib}'}^{*'} \Psi_{\text{vib}''} dR \quad (2-21)$$

となる。したがって、二つの振動状態間の遷移強度は

$$\left| \int \Psi_{\text{vib}'}^{*'} \Psi_{\text{vib}''} dR \right|^2 = |\langle v' | v'' \rangle|^2 \quad (2-22)$$

と表せる。これは、フランク-コンドン因子 $q_{v',v''}$ として知られている。ボルン・オッペンハイマー近似が成り立つ根拠にもあるように、原子核の運動は電子と比べて十分ゆっくりである。そのため、電子系による光の吸収・放出は原子核にとっては一瞬のうちに起こるので、電子遷移が起こる時間内に、原子核の位置や速度は変わらないと考えても良い。これをポテンシャルカーブ上で考えると、電子遷移では核間距離が変わらない“垂直”の遷移のみが許容されることになる。

2.2.2 光と分子のコヒーレント相互作用

光と分子の相互作用を理解するために固有エネルギー $E_1(= \hbar\omega_1)$ と $E_2(= \hbar\omega_2)$ の二つの状態 ($E_2 > E_1$) を持つ二準位系を考える。二準位系の波動関数の時間発展は、時間依

存のシュレディンガー方程式

$$H\psi = i\hbar \frac{\partial \psi(t)}{\partial t} \quad (2-23)$$

を満たす。光との相互作用がない場合のハミルトニアンは

$$H_0 = \begin{pmatrix} \hbar\omega_1 & 0 \\ 0 & \hbar\omega_2 \end{pmatrix} \quad (2-24)$$

と記述される。次に光電場を導入するが、光の波長が分子の大きさに対して十分に大きく、分子の感じる光電場が空間的に一様であるとする、角周波数 ω 、電場振幅 E_0 の光電場は

$$E_{opt}(t) = E_0 \cos(\omega t) = \frac{1}{2} E_0 (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) \quad (2-25)$$

と表せる。このとき、相互作用ハミルトニアンは二準位間の遷移双極子モーメント μ を用いて

$$H_{int} = \begin{pmatrix} 0 & -\mu_{12}E_{opt}(t) \\ -\mu_{21}E_{opt}(t) & 0 \end{pmatrix} \quad (2-26)$$

と記述される。したがって、光との相互作用を含む全ハミルトニアンは

$$H = H_0 + H_{int} = \begin{pmatrix} \hbar\omega_1 & -\mu_{12}E_{opt}(t) \\ -\mu_{21}E_{opt}(t) & \hbar\omega_2 \end{pmatrix} \quad (2-27)$$

となる。ここで、摂動を受けた二準位系の波動関数は固有状態の波動関数で展開できるため、

$$\Psi(t, \mathbf{r}) = c_1(t)\psi_1(t, \mathbf{r}) + c_2(t)\psi_2(t, \mathbf{r}) \quad (2-28)$$

と書ける。 $c_1(t)$ および $c_2(t)$ は固有状態1と2の確率振幅である。したがって、光との相互作用を考慮した場合のシュレディンガー方程式は式(2-23)より、

$$(H_0 + H_{int})\Psi(t, \mathbf{r}) = i\hbar \frac{\partial \Psi(t, \mathbf{r})}{\partial t} \quad (2-29)$$

を得る。式(2-29)の両辺に左から ψ_i^* ($i = 1, 2$)をかけて空間積分すると、

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{dc_1}{dt} &= c_2(t)H_{12}(t)e^{-i\omega_0 t} \\ &= -\frac{1}{2}c_2(t)\mu_{12}E_0[e^{i(\omega-\omega_0)t} + e^{-i(\omega+\omega_0)t}] \end{aligned} \quad (2-30)$$

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{dc_2}{dt} &= c_1(t)H_{21}(t)e^{i\omega_0 t} \\ &= -\frac{1}{2}c_1(t)\mu_{21}E_0[e^{-i(\omega-\omega_0)t} + e^{i(\omega+\omega_0)t}] \end{aligned} \quad (2-31)$$

となる。ここで、 $E_2 - E_1 \equiv \hbar\omega_0$ である。近共鳴 ($\omega \approx \omega_0$) の時、式(2-30)および式(2-31)の第二項は第一項に比べて十分早く振動するため、回転波近似により第二項を無視すると、

$$\frac{dc_1(t)}{dt} = ic_2(t)\frac{\Omega_R}{2}e^{i(\omega-\omega_0)t} \quad (2-32)$$

$$\frac{dc_2(t)}{dt} = ic_1(t)\frac{\Omega_R^*}{2}e^{-i(\omega-\omega_0)t} \quad (2-33)$$

となる。ここで、 $\Omega_R = \mu_{12}E_0/\hbar$ はラビ周波数である。式(2-32)および式(2-33)を解くと一般解は、

$$c_1(t) = -\frac{1}{\Omega_R^*} \left[Ae^{\frac{i\Omega t}{2}(\omega - \omega_0 - \Omega)} + Be^{-\frac{i\Omega t}{2}(\omega - \omega_0 + \Omega)} \right] e^{\frac{i(\omega-\omega_0)t}{2}} \quad (2-34)$$

$$c_2(t) = \left(Ae^{\frac{i\Omega t}{2}} + Be^{-\frac{i\Omega t}{2}} \right) e^{-\frac{i(\omega-\omega_0)t}{2}} \quad (2-35)$$

を得る。ここで $\Omega = \sqrt{(\omega - \omega_0)^2 + |\Omega_R|^2}$ は章動角周波数である。係数 A および B は初期条件： $c_1(0) = 1, c_2(0) = 0$ から

$$A = \frac{\Omega_R^*}{2\Omega} \quad (2-36)$$

$$B = -\frac{\Omega_R^*}{2\Omega} \quad (2-37)$$

と決定される。したがって、式(2-35)より、

$$|c_2(t)|^2 = \frac{|\Omega_R|^2}{\Omega^2} \sin^2 \frac{\Omega t}{2} \quad (2-38)$$

を得る。これは分子の緩和を考えない場合の下準位から上準位への遷移確率である。2準位系と光がコヒーレント相互作用を行うと、遷移確率は $\sin^2 \Omega t/2$ で振動する(図 2.2)。

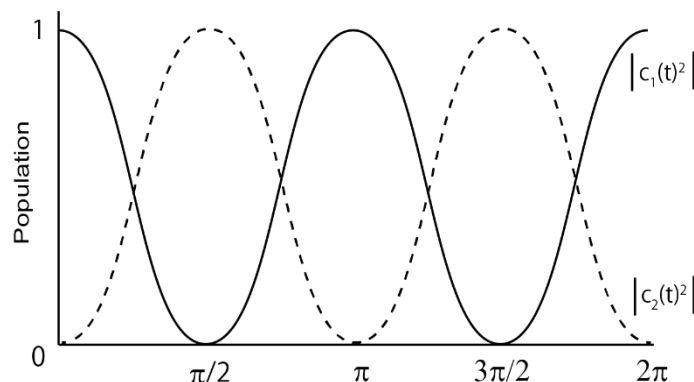


図 2.2 二準位系における共鳴時の遷移確率変化。

次に自然放出や原子間衝突などによる緩和を考慮した場合について考える。この場合、光と分子のコヒーレント相互作用の時間は有限になる。下準位と上準位の分布数密度緩和(縦緩和、非断熱緩和)のレートを Γ_1 および Γ_2 、二準位間のコヒーレンスの緩和(横緩和、位相緩和)のレートを γ とすると、 $t=0$ で下準位にいた分子がコヒーレント相互作用によって上準位に遷移している平均確率は

$$\begin{aligned} \langle |c_2(t)|^2 \rangle &= \int_0^\infty \gamma e^{-\gamma t} |c_2(t)|^2 dt \\ &= \frac{|\Omega_R|^2}{2(\Omega^2 + \gamma^2)} \end{aligned} \quad (2-39)$$

となる。ここで $\gamma = (\Gamma_1 + \Gamma_2)/2$ である。コヒーレント相互作用の平均持続時間 $1/\gamma$ で割ると、単位時間当たりの励起確率は

$$\frac{\gamma |\Omega_R|^2}{2[(\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2]} \quad (2-40)$$

を得る。ただし $|\Omega_R| \ll \gamma$ とし、 $|\Omega_R|^2$ の2次を超える項を無視した。すなわち、緩和のある2準位分子と光の相互作用は $\omega = \omega_0$ で共鳴的に大きくなり、その共鳴曲線はローレンツ関数で記述される。ここで吸収断面積の概念を導入すると、吸収断面積は入射光強度 P_{in} と単一分子に吸収される光のパワーの比で、

$$\sigma = \frac{\hbar\omega P}{P_{\text{in}}} = \frac{\omega\gamma|\mu_{12}|^2}{\hbar\varepsilon_0 c[(\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2]} \quad (2-41)$$

である。ここで、 $P_{\text{in}} = \varepsilon_0 |E_0|^2 c/2$ である。

いま、下準位と上準位の分布数密度をそれぞれ N_1 、 N_2 とすると、二準位分子のレート方程式は

$$\frac{dN_1}{dt} = \Gamma_1(N_1^{\text{eq}} - N_1) - P(N_1 - N_2) \quad (2-42)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \Gamma_2(N_2^{\text{eq}} - N_2) - P(N_1 - N_2) \quad (2-43)$$

と書ける。ここで、 $N_i^{\text{eq}} (i = 1, 2)$ は光電場がない時の各準位の分布数密度である。式(2-42)と式(2-43)より、二準位間の分布数差の定常解は

$$N_1 - N_2 = \left\{ 1 - \frac{\gamma|\Omega_R|^2(\Gamma_1^{-1} + \Gamma_2^{-1})}{2[(\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2] + \gamma|\Omega_R|^2(\Gamma_1^{-1} + \Gamma_2^{-1})} \right\} (N_1^{\text{eq}} - N_2^{\text{eq}}) \quad (2-44)$$

となる。式(2-40)より、分子に吸収される正味の光パワーは

$$\Delta P = (N_1 - N_2)\hbar\omega P \quad (2-45)$$

である。一方、試料の透過光強度は、Lambert-Beerの法則から

$$P(\omega) = P_{\text{in}} e^{-2\alpha(\omega)L} \quad (2-46)$$

と書くことができる。ここで L は試料と光の相互作用長である。 $2\alpha(\omega)$ はパワー吸収定数で、単位長さ当たりの吸収率を表す。式(2-41)および式(2-44)より、

$$\begin{aligned} 2\alpha(\omega) &= \frac{\Delta P}{P_{\text{in}}} = (N_1 - N_2)\sigma \\ &= \frac{\omega\gamma|\mu_{12}|^2}{2[(\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2] + \gamma|\Omega_R|^2(\Gamma_1^{-1} + \Gamma_2^{-1})} \frac{N_1^{\text{eq}} - N_2^{\text{eq}}}{\hbar\varepsilon_0 c} \end{aligned} \quad (2-47)$$

となる。希薄な試料では $2\alpha(\omega)L \ll 1$ で、近似的に

$$\begin{aligned}
 P(\omega) &= P_{\text{in}}(1 - 2\alpha(\omega)L) \\
 &= P_{\text{in}} - \frac{\omega\gamma|\mu_{12}|^2}{(\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2 + \gamma|\Omega_R|^2(\Gamma_1^{-1} + \Gamma_2^{-1})/2} \frac{N_1^{eq} - N_2^{eq}}{2\hbar\epsilon_0 c} P_{\text{in}}L
 \end{aligned} \tag{2-48}$$

と書ける。よって、観測されるスペクトルはローレンツ関数となり、半値半幅は

$$\Delta_H = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\gamma^2 + \gamma|\Omega_R|^2(\Gamma_1^{-1} + \Gamma_2^{-1})/2} \tag{2-49}$$

となり、均一幅とよばれる。

2.2.3 観測される吸収線幅の要因

レーザー分光の結果として観測される原子分子の吸収スペクトルの線幅を決める要因として大きく分けて不均一広がり均一広がりがあある。不均一広がりはドップラー広がりが支配的であり、これはドップラー効果によって個々の分子の共鳴周波数が異なることに起因する。また、均一広がりには自然幅、圧力広がり、通過時間広がり、パワー広がりがあある。

ドップラー広がり

ドップラー幅は分子が熱運動をしていることに起因する線幅広がりである。光軸方向に速度 v で運動している分子の共鳴周波数は

$$\omega = \omega_0 + kv \tag{2-50}$$

となり、分子本来の共鳴周波数 ω_0 からシフトされる。熱平衡状態では分子の速度分布はマックスウェルボルツマン分布に従うため、スペクトルの共鳴周波数分布はガウス型のプロファイルになり、

$$g_D(\omega)d\omega = \frac{1}{\sqrt{\pi}ku_{\text{mp}}} e^{-\left(\frac{\omega-\omega_0}{ku_{\text{mp}}}\right)^2} d\omega \tag{2-51}$$

と書ける。ここで、 u_{mp} は最確速度であり、ボルツマン定数 k_B 、温度 T 、分子質量 M を用いて、 $\sqrt{2k_B T/M}$ と表される。式(2-51)より、ドップラー幅の半値半幅は

$$\Delta_D = \sqrt{\ln 2} ku_{\text{mp}} \tag{2-52}$$

と表せる。吸収強度が $N_1^{eq} - N_2^{eq}$ に比例するような線形吸収の場合、観測されるスペクトルはドップラー広がりが支配的になるが、実際のスペクトルの概形には均一幅の広が

りも寄与するため、ローレンツ関数とガウス関数を畳み込んだフォークト関数で記述される。

自然幅

自然幅は上準位の寿命が有限であることに由来する線幅の広がりであり、アインシュタインの A 係数を用いて

$$\Delta_n = \frac{A}{4\pi} = \frac{8\pi^2\nu_0^3}{3\varepsilon_0hc^3} |\mu_{12}|^2 \quad (2-53)$$

と書ける。ここで、 ν_0 は遷移周波数、 μ_{12} は遷移双極子モーメントである。ヨウ素分子の自然幅は波長帯によって異なり、R(56)32-0 遷移の場合、半値全幅で約 500 kHz である [37]。

式(2-53)は放射幅 (radiative width) のみを考えたが、より厳密に自然幅の議論をしようとするとき前期解離を考慮する必要がある。前期解離とは、ポテンシャルが交差しているような場合に、ある電子状態から別の電子状態に移ることである。前期解離が起きると、準位の寿命が短くなるため、不確定性原理から線幅が太くなる。そのような前期解離レートは

$$\Gamma_{\text{pred}}(\nu, J) = C_\nu^2 J(J+1) \quad (2-54)$$

と書き表される。ここで、 C_ν はフランク-コンドン因子である。したがって、トータルの緩和レートは、放射レート Γ_{rad} を用いて

$$\Gamma = \Gamma_{\text{rad}}(\nu) + C_\nu^2 J(J+1) \quad (2-55)$$

となる。ヨウ素分子の B-X 遷移の場合、前期解離は、B 状態が別の電子状態 $^1\Pi_{1u}$ と結合することによって引き起こされる [38, 39]。上準位の振動量子数が大きくなるほど、フランク-コンドン因子が減少していくため、前期解離により線幅広がりの影響を受けなくなる。そのため、ヨウ素分子の遷移のなかでも解離限界⁷に近い 500 nm から 520 nm は特に自然幅が狭く、分光学的に非常に面白いスペクトル領域となっている [37, 40]。例えば、P(13)43-0: a₂ 超微細構造 (514.6 nm) の半値半幅は 48 kHz と報告されている [41]。また、R(26)62-0 吸収線 (501 nm) では半値半幅 32 kHz までに狭くなる [42]。

⁷ ヨウ素分子の B-X 遷移の解離限界波長は 499.5 nm である [115]。

圧力広がり

圧力幅は、分子どうしの衝突によって光と分子の相互作用が打ち切られることによる広がりである。この広がりには圧力 p に比例して

$$\Delta_p = \beta p \quad (2-56)$$

で書ける。ここで β は圧力幅係数である。

通過時間広がり

通過時間幅は、ビーム径が有限であることによって、分子がビームを横切って相互作用する時間も有限になることに起因する広がりであり、

$$\Delta_t = \frac{\sqrt{\ln 2} u_{mp}}{2\pi r} \quad (2-57)$$

と表せる。ここで、 r はビーム半径である。

パワー広がり

パワー広がりには、入射光強度に応じてスペクトル線幅が広がっていく効果によるもので

$$\Delta_s = \gamma_0 \sqrt{1 + S} \quad (2-58)$$

で与えられる。ここで、 γ_0 はゼロパワーの時の半値半幅、 S は飽和パラメータ $|\Omega_R|^2 (\Gamma_1^{-1} + \Gamma_2^{-1}) / 2\gamma$ である。これは、入射光強度が大きくなるにつれてラビ周波数 $\Omega_R = \mu_{12} E_0 / \hbar$ が高くなることに起因している。

レーザー線幅

分子の吸収線を観測する際に使用する光源の線幅も吸収スペクトルの線幅に影響を及ぼす。そのため、本研究では kHz 程度の狭線幅レーザーを使用してヨウ素分子の分光を行う。

2.3 Modulation transfer 分光法の原理

Modulation transfer 分光法は、1980 年代初期ごろから米国 JILA の J. L. Hall らのグループで周波数安定化の手法として使われ始め、注目を浴びるようになった。この分光法では、共鳴周波数で飽和吸収が起こったときにのみ、四光波混合により pump 光の

サイドバンドが probe 光に移る [43, 44, 45, 46]ため、ベースラインが格段に安定する。⁸ Modulation transfer 分光法では、分光を行う試料セルに対してポンプ光とプローブ光が対向するように入射する。セル内での干渉を防ぐためにポンプ光は周波数シフトをしてあり、また、吸収線を検出するために位相変調をしている。 $\pm z$ 方向に波数 k で伝搬するポンプ光とプローブ光の光電場は次のように記述される。

$$E_{\text{pump}} = \frac{1}{2} \varepsilon_{\text{pump}} \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(\beta) \exp\{i(\omega + \Delta + n\Omega)t + ikz\} + c. c. \quad (2-59)$$

$$E_{\text{probe}} = \frac{1}{2} \varepsilon_{\text{probe}} \exp\{i(\omega t - kz)\} + c. c. \quad (2-60)$$

$\varepsilon_{\text{pump}}$ と $\varepsilon_{\text{probe}}$ はそれぞれ pump 光と probe 光の振幅、 J_n は n 次のベッセル関数である。レーザー周波数 ω は AOM 等により周波数 Δ だけシフトされており、また、変調指数 β かつ変調周波数 Ω で位相変調されている。原子分子の共鳴付近におけるポンプ光とプローブ光の相互作用は非線形であり、位相変調光から対向する非変調光へと変調が転送される。この変調が転送される過程は四光波混合で説明され、四光波混合で新たに発生した電場は一光子吸収と三光子過程（吸収、放出、吸収）が同じ速度を持つ分子集団に対して同時に起きるときに強度が最大になる [47]。気体分子はセル内で熱運動をしているため、一光子吸収における分子の共鳴周波数はドップラーシフトの影響を考慮して次のように書ける。

$$\omega_0 = \omega + \Delta + n\Omega - kv \quad (2-61)$$

また、三光子過程については次のようになる。

$$\omega_0 = (\omega + \Delta + n\Omega - kv) - (\omega + \Delta + n'\Omega - kv) + (\omega + kv) \quad (2-62)$$

式(2-61)と式(2-62)の連立方程式を解くことで、レーザー光と相互作用している分子集団と、そのレーザー周波数を求めることができる。

$$kv = \frac{\Delta + n'\omega}{2} \quad (2-63)$$

$$\omega = \omega_0 - \frac{\Delta}{2} - \left(n - \frac{n'}{2}\right)\Omega$$

⁸ 前提としてセル端面の反射等で変調がのった光が受光器に入射していないことがある。また、ベースラインの変動を完全に抑制するには残留振幅変調 (RAM) の影響を小さくする必要がある。

図 2.3 では周波数 $\omega + (n - n')\Omega$ の新しい電場がプローブ光の方向に放出されている⁹が、ここに示しているのは四光波混合過程を満たす一つの組み合わせに過ぎず、可能性のある唯一の過程というわけではない。したがって、仮に他のサイドバンドが一光子吸収に共鳴していると仮定すると選択される分子集団とレーザー周波数は変わってくる。

$$kv = \frac{\Delta + n\omega}{2} \tag{2-64}$$

$$\omega = \omega_0 - \frac{\Delta}{2} - \left(n' - \frac{n}{2}\right)\Omega$$

そして、この場合、新たに放出される光の周波数は $\omega - (n - n')\Omega$ である。すなわち、レーザー周波数を掃引するとレーザーは異なる二つの速度をもつ分子集団と相互作用するので対の構造を観測することになる。さらに、新たに放出された $\omega \pm (n - n')\Omega$ の周波数を持つ光はプローブ光と干渉するため検出器ではビート周波数 $\pm(n - n')\Omega$ が検出される。したがって、検出器が検出した信号を変調周波数 Ω の信号で復調することで、共鳴周波数でゼロクロスするエラー信号を取得することができる。

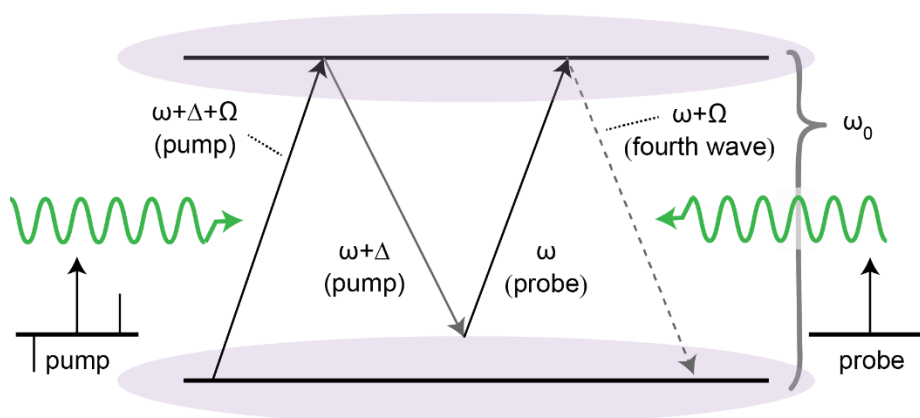


図 2.3 四光波混合過程. 二準位系.

復調信号の位相はエラー信号の peak-to-peak 値が最大かつ中心スロープが最大になるところに合わせるのが目安ではあるが、位相を変化させていったときに、この二つが同時に最大になる位相があるとは限らない [48]。そのため、最終的な位相調整は周波数安定度を見ながら行うのが良い。この信号はレーザーの周波数安定化に使用され、エラー信号がゼロになるように制御することで周波数が安定化される。信号のスロープが急であるほどタイトにロックができ、信号の S/N が良いほど安定度も良くなる。

⁹ この場合、式(2-61)と式(2-62)において $n=1, n'=0$ を想定している。

Modulation transfer 分光では、変調周波数や変調指数などが制御の性能を決める重要なパラメータとなるため、これらの最適化を行うことが高い周波数安定度を実現するうえで欠かせない [49]。先行研究では、最適な **Modulation transfer** 信号の概形を得るためには、変調周波数を半値全幅の 0.35 倍に設定するとよいといった報告がある [50]。

第3章

導波路型デュアルピッチ PPLN の評価

レーザー光のようなコヒーレント光源は、非線形光学結晶を用いることで波長変換を行うことができる。これにより、直接発振する光源がない波長帯でもコヒーレント光源をつくることができる。周波数安定化の場面でも波長変換は欠かせない技術であり、例としてヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーは二次高調波の波長帯にあるヨウ素分子の吸収線に安定化されている。波長変換素子としては、BBO (BaB_2O_4)、周期分極反転ニオブ酸リチウム (PPLN, Periodically-poled LiNbO_3)、周期分極反転チタン酸リン酸カリウム (PPKTP, Periodically-poled KTiOPO_4) など多岐にわたる。その中でも、導波路型 PPLN は高い非線形変換効率と高い損傷閾値 ($\sim\text{W}$ レベル) から様々な場面で使用されている [51, 52]。導波路型 PPLN は、結晶加工技術により導波路構造を形成しており、この閉じ込め効果が非線形効果の増強につながり、バルク結晶と比較して変換効率を格段に向上させることができる。また、デバイス作製技術の進歩により、導波路端面にファイバー端を近接させ結合を行う fiber-pigtail タイプでは光ファイバーにレーザー光を入射するだけで高効率な変換が可能であり、操作性および簡便性も向上している。また近年では、薄膜ニオブ酸リチウムを用いた高効率波長変換が報告されており [53, 54, 55]、非線形波長変換技術はますます発展していくことが期待される。

導波路型 PPLN を用いた短波長域への波長変換に注目すると、Kobayashi らは波長 798 nm の基本波 380 mW を PPLN に入射し、25 mW の SHG 光 (399 nm) を発生させている [56]。二次高調波発生の場合、短波長発生になるほど PPLN の分極反転周期 (QPM-pitch) は小さい値に設計されるため、設計限界の観点から 399 nm 発生用の PPLN は通常使われる 1 次の QPM 効果ではなく 3 次の QPM 効果を使用している¹⁰。波長変換の対象は連続発振レーザーにとどまらず、光周波数コム of 広帯域化 (波長変換) にも使用されている。Iwakuni らは非線形ファイバーで広帯域した Er ファイバーコム of 光を導波路型 PPLN に入射し、0.35 ~ 4.4 μm にわたる超広帯域光コム発生を行った [57]。また、Hitachi らは、二種類の分極反転周期が刻まれた導波路型デュアルピッチ

¹⁰ 1 次の設計の場合 QPM-pitch は約 2.5 μm 程度であるが、3 次の QPM 効果を使うと約 7.5 μm の設計で 399 nm を発生させることができる。

PPLN を用いて光周波数コム¹¹の 3 倍波¹¹発生を行い、 $2f - 3f$ 干渉による f_{CEO} 検出を行った [58]。この研究では、 $23.55 \mu\text{m}$ と $10.51 \mu\text{m}$ の二つの分極反転周期をもつデュアルピッチ PPLN に、 $1 \mu\text{m} \sim 2 \mu\text{m}$ に広がった Er ファイバーコム¹¹の光を入射させ、 $1.8 \mu\text{m}$ から $0.6 \mu\text{m}$ の 3 倍波発生を行っている。デュアルピッチ PPLN を使用すると二つの波長変換を連続的に行えるため、従来のシングルピッチの結晶では行えなかった波長変換も実現できる魅力的なデバイスである。

本章では、導波路型デュアルピッチ PPLN を 1542 nm レーザーの 3 倍波発生に使用する。デュアルピッチ PPLN を連続発振レーザーの波長変換に適用する研究例は世界初であるため、まずは適応可能性を判断するための結晶評価が必要である。先行研究 [58] のような $2f - 3f$ 干渉による f_{CEO} 検出用途の場合、広がった光周波数コムスペクトル中の任意の領域が変換に寄与すれば良いため、位相整合に関する要請は厳しくなかった。そのため、単一の位相整合ピッチでも十分に目的を達成できている。しかし、本研究のように連続発振レーザーの場合、ある決まった波長に対して高効率な変換を達成しなければならないため、位相整合をとるための工夫が必要になる。そこで、本研究で使用した導波路型デュアルピッチ PPLN は、片方の位相整合ピッチにチャープをかけており、位相整合を満たす波長帯域が広がるような設計にしてある。その結果、 1542 nm レーザー光の高効率な 3 倍波発生が実現し、ヨウ素分光を行うのに十分なパワーが得られている。

3.1 デュアルピッチ PPLN

PPLN にレーザー光などの強電場を入射すると非線形分極が誘起され、結晶内で非線形光学現象が起きる。非線形効果には 2 次や 3 次など高次の次数が存在するが、分極反転周期が単一の PPLN 導波路の場合、位相整合の観点から結晶内で効率的増強される変換は限られてしまう。非線形光学効果は次数が上がるほど発生効率が低下するため、3 次の非線形効果を使った 3 次高調波発生は困難である。しかし、レーザー光の 3 倍波発生は 3 次の非線形効果を使わずに 2 次の非線形効果の組み合わせで発生可能である。すなわち、1 つ目の結晶で基本波 (ω) の 2 倍波 (2ω) を発生させ、2 つ目の結晶で和周波発生 ($\omega + 2\omega = 3\omega$) を行えば結果として発生する光は、基本波の 3 倍波に相当する。この手法を用いて 1542 nm レーザーの 3 倍波発生を行ったのが、Philippe らである [60]。Philippe らは、入射パワー 800 mW に対して、 290 mW の出力を得ている。(変換効率: $57 \%/W^2$)。しかし、3 倍波発生を行うのに 2 つの結晶を用いているため、結晶間での結合損失や位相整合のための温度制御機器が 2 台必要といった欠点があった。そこで、

¹¹ 本学位論文では、3 次高調波発生と 3 倍波発生を区別して使用している。3 次の非線形効果に基づく変換を 3 次高調波発生、2 次の非線形効果の組み合わせに基づく変換を 3 倍波発生とする。

これらの欠点を克服するために開発されたのがデュアルピッチ PPLN である。

エラー！参照元が見つかりません。 はデュアルピッチ PPLN の概念図を示す。デュアルピッチ PPLN は分極反転周期が異なる ($\Lambda_1 \neq \Lambda_2$) 2つの PPLN を結合したような構造をしており、入射側の PPLN を第1ステージ、出射側の PPLN を第2ステージとよぶ。デュアルピッチの構造をとることの利点は、2つの結晶を使う場合よりも結晶間での結合損失を抑えることができることである。しかし、デュアルピッチ化を行ったことによる課題も同時に存在する。それは、位相整合の問題である。デュアルピッチ化された結晶では、第1ステージと第2ステージの結晶温度が同一になるため、特定の温度で第1ステージと第2ステージ同時に位相整合条件を満たさなければならないという要請が生まれる。一般的に PPLN の位相整合温度の幅は数°Cと狭く、仮に設計誤差により分極反転周期の間隔がずれてしまうと第1ステージと第2ステージで位相整合温度のずれが生まれ、結果として3倍波が発生しないことになる。

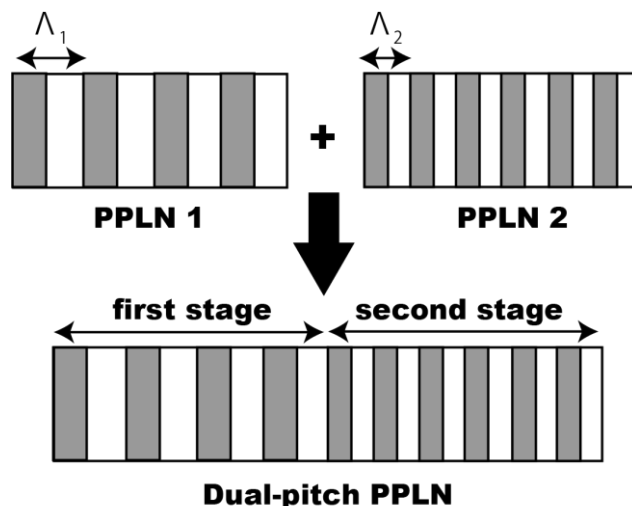


図 3.1 デュアルピッチ PPLN の概念図.

図 3.2 は本研究で使用した導波路型デュアルピッチ PPLN チップ (NTT Electronics; WS-0514-000-A-C-C-TEC) の模式図を示す。第1ステージと第2ステージの結晶長はそれぞれ 20 mm と 10 mm であり、導波路の縦幅は約 11 μm 、横幅は約 12 μm となっている。導波路の両端は 1542 nm と 514 nm に対して減反射コーティングがされている。図 3.3 は導波路型デュアルピッチ PPLN の写真を示す。PPLN 結晶はペルチェ素子で温度制御可能なメタルキャリアの上に設置されており、メタルキャリアの温度を変化させることで結晶温度を制御し、波長変換の位相整合条件を満たす結晶温度に合わせることができる¹²。

¹² 結晶温度を上げすぎると PPLN とメタルキャリアの間の接着剤が溶け出すため、80°C以内に抑えたほうがいい。

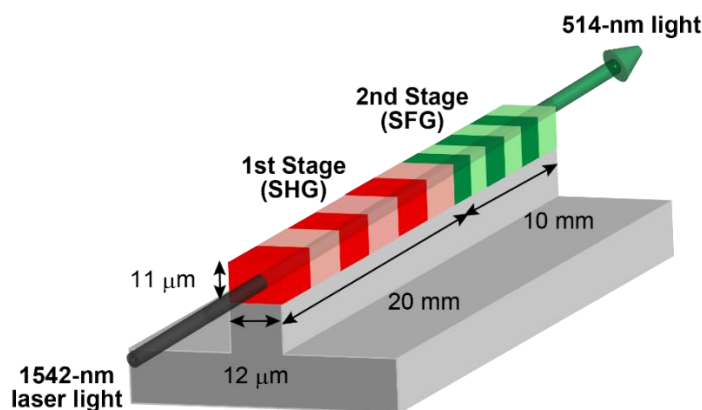


図 3.2 1542 nm レーザー光の 3 倍波発生用デュアルピッチ PPLN の模式図。
SHG: 二次高調波発生、SFG: 和周波発生。



図 3.3 1542 nm レーザー光の 3 倍波発生用デュアルピッチ PPLN の写真。

導波路型デュアルピッチ PPLN はシリアルナンバー (SN) が異なる 2 個の結晶がある。表 3-1 はデュアルピッチ PPLN の設計の詳細を示す。それぞれの結晶は第 1 ステージの QPM-pitch が 2 種類 (18.175–18.250 μm 、18.225–18.300 μm)、第 2 ステージの QPM-pitch が 3 種類 (6.6625 μm 、6.6750 μm 、6.6875 μm) ある。そのため、デュアルピッチの組み合わせとしては 6 種類あり、それぞれ G1 から G6 のようにグループ分けされている。各グループはそれぞれ導波路幅 (WG 幅) が異なる 2 つの導波路があるため、1 つの PPLN チップは合計 12 本の導波路を持つことになる。シリアルナンバーが異なる 2 つの結晶間では QPM-pitch および導波路厚さ (WG 厚) は共通であるが、WG 幅がわずかに異なっている。先ほど挙げた位相整合の問題を解決するために、本研究で使用したデュアルピッチ PPLN は第 1 ステージの QPM-pitch に線形チャープをかけており、光が結晶内を伝搬する方向に沿って分極反転周期が大きくなるように加工している。これにより、位相整合条件が緩和され単一の分極反転周期の場合と比べて位相整合温度幅が広がる。結果として、特定の温度で第 1 ステージと第 2 ステージ同時に位相整合をとることが可能になっている。

Group	1st-stage QPMpitch (μm)	2nd-stage QPMpitch (μm)	WG	WG厚 (μm)	WG幅 (μm)
G1	18.175_18.250 chirp (Chirp 1)	6.6625	WG1	10.9	11.5 (11.9)
			WG2		12.3 (12.1)
G2		6.6750	WG1		11.5 (11.9)
			WG2		12.3 (12.1)
G3		6.6875	WG1		11.5 (11.9)
			WG2		12.3 (12.1)
G4	18.225_18.300 chirp (Chirp 2)	6.6625	WG1	11.5 (11.9)	
			WG2	12.3 (12.1)	
G5		6.6750	WG1	11.5 (11.9)	
			WG2	12.3 (12.1)	
G6		6.6875	WG1	11.5 (11.9)	
			WG2	12.3 (12.1)	

表 3-1 デュアルピッチ PPLN (SN: 3805277、3805278) の設計の詳細. WG 幅はカッコ無しの数字が SN:3805277、カッコ内の数字は SN: 3805278 に対応

3.2 実験

3.2.1 デュアルピッチ PPLN 評価に使用した光源

導波路型デュアルピッチ PPLN の評価のための光源には 2 種類の波長 1542 nm レーザーを使用する。一つ目は外部共振器半導体レーザー (RIO; RIO0195-3-01-4-CA8)、二つ目は DFB ファイバーレーザー (KOHERAS) である。表 3-2 に 2 つのレーザーの性能をまとめた。いずれのレーザーも偏波保持ファイバー出力となっている。なお、本研究では結晶評価に際して異なるレーザー光源を使用しているが、どちらも線幅は同程度に細いため、評価結果に影響はないと考えられる。

光源	波長	線幅	出力パワー	同調範囲
外部共振器半導体レーザー	1542.38 nm	2 kHz	10 mW	30 GHz
DFB ファイバーレーザー	1542.3 nm	1 kHz	30 mW	60 GHz

表 3-2 デュアルピッチ PPLN 評価に使用したレーザー光源の特性.

3.2.2 位相整合曲線

図 3.4 は導波路型デュアルピッチ PPLN 評価のための実験系である。波長 1542 nm レーザーの出力をエルビウム添加ファイバー増幅器 (EDFA, Erbium-doped fiber amplifier) で増幅を行う。EDFA には波長 1.4 μm の半導体レーザーで前方励起している。EDFA 後の基本波の出力は約 100 mW である。EDFA 後のシングルモードファイバーを 3 軸ステージに設置したファイバー固定治具に取り付けたうえで、ファイバー端面を PPLN に近づけて空間結合 (butt-coupling) を行う [61]。カップリングの際には上面に配置した USB スコープでモニターしながら行う (図 3.4 の添付写真参照)¹³。PPLN の出力を対物レンズ (駿河精機; S72-20) でコリメートした後、ダイクロイックミラー (LASER COMPONENTS; 15L532100) で 3 倍波のみを抜き出し、パワーメータ (Newport; 918D-SL-OD3R) で 514 nm のパワーを測定する。パワーメータの値を見ながら PPLN へのカップリングを調整することでカップリング効率は約 70 % まで向上する¹⁴。

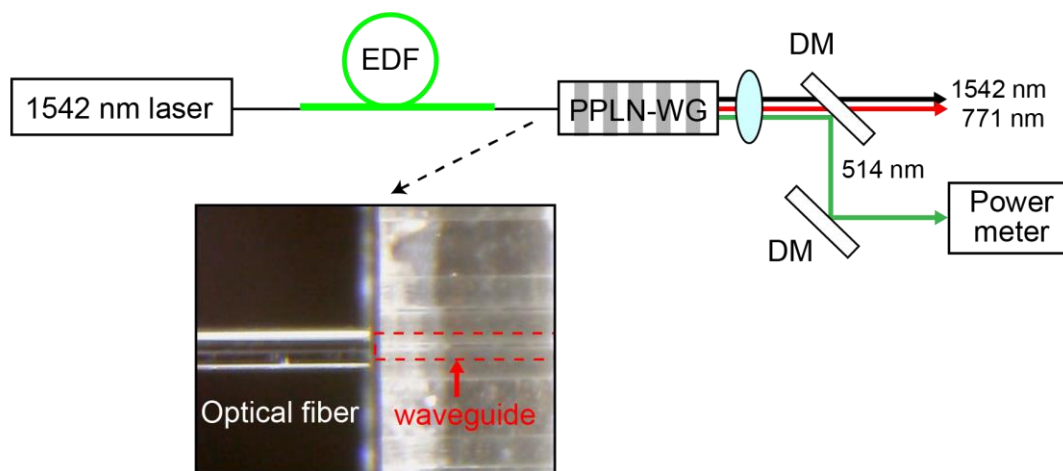


図 3.4 デュアルピッチ PPLN 評価のための実験系. EDF: エルビウム添加ファイバー増幅器, PPLN: 周期分極反転ニオブ酸リチウム, DM: ダイクロイックミラー. 添付写真は空間結合 (Butt-coupling) の様子を示している.

図 3.5 はデュアルピッチ PPLN (SN: 3805277、SN: 3805278) の各導波路における (a)514 nm 出力パワーと (b)位相整合温度を示す。測定時のレーザー周波数は、194.37 THz である。図 3.5 (a)では、どちらの結晶においても両端の導波路グループ (G1、

¹³ カップリングの際のコツとしては、まずファイバー端を結晶にできる限り近づけた状態で垂直方向に結晶を動かすと微小ながら可視光が見えるはずである。この時水平方向は導波路部分からずらしてグループとグループの間で行うと良い。その後は、その可視光を頼りに結晶を水平方向に移動させ導波路にカップリングする。

¹⁴ これ以上にカップリング効率を向上させたい場合は、butt-coupling は行わずにビーム伝搬を計算して最適なカップリングレンズを使用するのが良い。

G5、G6) で相対的に出力パワーが大きくなり、反対に中央の導波路グループ (G2、G3、G4) ではパワーが出力されていない傾向が見られるが、この理由については後述する。図 3.5 (b)の位相整合温度は、第二ステージの QPM ピッチと入力しているレーザー周波数で決定される。G1 と G4、G2 と G5、G3 と G6 は QPM ピッチが同じであるため位相整合温度が近い値になっている。同じグループ間で WG ごとに位相整合温度がずれているのは導波路幅がわずかに異なっていることに由来する。これは結晶間 (SN: 3805277-SN: 3805278 間) で位相整合温度がわずかに異なっていることの原因でもある。

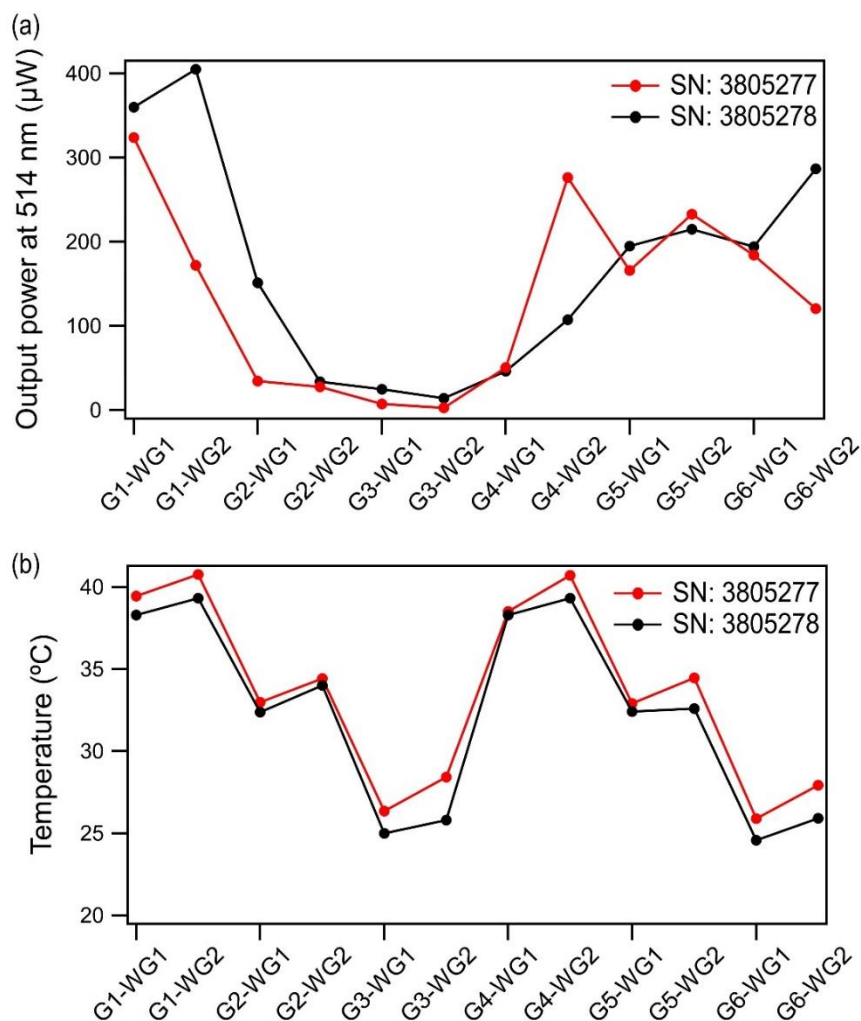


図 3.5 デュアルピッチ PPLN (SN: 3805277、SN: 3805278) の各導波路における(a)514 nm 出力パワーと(b)位相整合温度。

図 3.6 は導波路型デュアルピッチ PPLN (SN: 3805277) の全 12 本の導波路で取得した位相整合曲線を示す。514 nm の出力パワーはすべてピーク値に対して規格化され

ている。位相整合曲線の半値全幅は約 2 °C である。この値は結晶の温度変化に対する耐性を示すが、一般的な環境温度の変化に対して十分広い温度許容幅であるため安定な出力が可能であることを示している。出力の低い導波路 (G2、G3 など) では位相整合ピークの裾に異なるピークが見られているが、これはダイクロイックミラーでカットしきれなかった二次高調波であると考えられる。

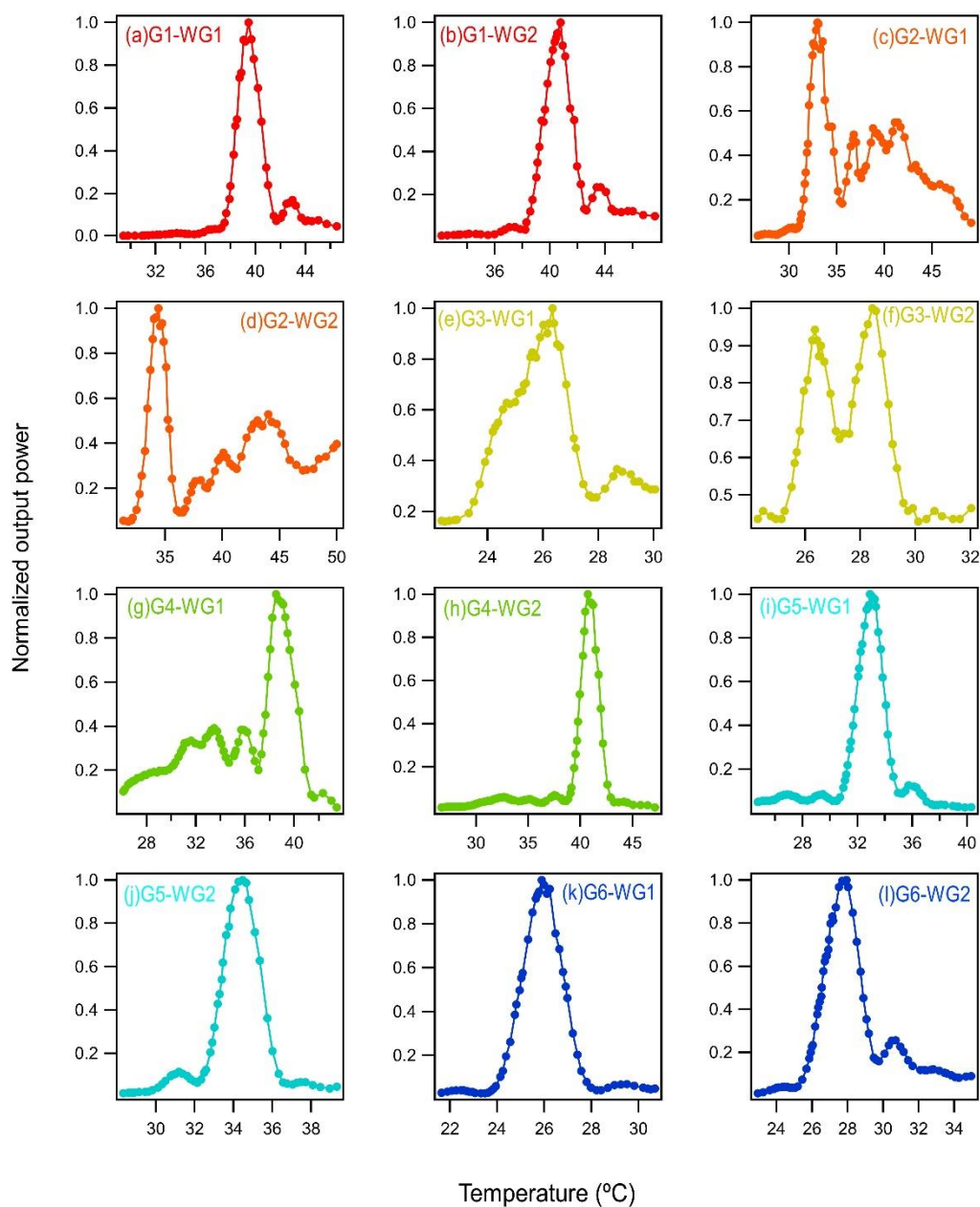


図 3.6 デュアルピッチ PPLN (S/N: 3805277) の位相整合曲線。横軸は PPLN の結晶温度。縦軸は規格化された 514 nm の出力パワー。

PPLN に基本波を順方向（第1ステージ → 第2ステージ）から入射すると第2ステージでは3倍波が発生するが、逆方向（第2ステージ → 第1ステージ）から入射することで第2ステージでは変換が起らず第1ステージでSHGのみが発生する。この方法により、二次高調波の位相整合曲線を取得することができる。図3.7はデュアルピッチPPLN(SN: 3805278)の第1ステージ(SHG)の位相整合曲線と第2ステージ(SFG)の位相整合曲線を示している。SHGの位相整合曲線は(a) G3-WG1 および(b) G4-WG1で取得した。図3.7に示されているように、Chirp 1とChirp 2を使ったSHGプロセスの半値全幅(FWHM)はそれぞれ12°Cと13°Cである。図3.7(a)に示されているSHGの位相整合カーブはチャープの特徴から推定される形とよく一致している。図3.7(b)のSHGの位相整合曲線の形状は図3.7(a)とは異なるが、この違いは製造誤差に由来するものである。一方で、SFGの位相整合曲線の半値全幅は約2°Cである。これは波長に換算するとおおよそ0.2 nmである。6本の導波路間でSFGの位相整合温度における出力パワーの違いは、SHGとSFGそれぞれの位相整合曲線の重なり度合いによるものである。WG3を例にとってみると、結晶温度25°CではSFGに対しては位相整合がとれているが、SHGに対しては位相整合温度から大きくずれており、SFGプロセスに必要な771 nm光がほとんど発生していない。そのため3倍波の出力も弱くなっている。つまり、ある決まった温度で2つの変換に対して同時に位相整合がとれていることが高効率な3倍波発生的重要なポイントであり、ここで前半のピッチにかけたチャープが大きな役割を果たしてくる。SHGのピッチにかけたチャープによりSHGの位相整合曲線が広がったことにより、SHGとSFGのプロセスに対して同じ温度で位相整合をとることを実現した。図3.7に示されている6つの導波路の中ではWG1、WG5、WG6でそれが実現しており、位相整合温度はそれぞれ38.3°C、32.4°C、24.6°Cである。ここで図3.5(a)で見られた出力の違いについてもう一度考えると、これは図3.7で述べたように、二つの変換(SHGとSFG)の位相整合曲線の重なり合いが影響していると考えられる。すなわち、WG1、WG5、WG6では位相整合曲線の重なり合いがとれているため3倍波の高出力につながっている。この特徴は2つの結晶で共通してみられているが、それだけでは説明できない違い(例えば、G1-WG2やG4-WG2での出力パワーが大きく異なる理由など)に関しては、WGの幅の違いに起因する位相整合温度の違いやSHGの位相整合曲線の形が結晶間で異なっていることが考えられる。それを解明するには図3.7のようにSN: 3805277の結晶でもSHGの位相整合曲線を取得し、オーバーラップの様子を確認することが有効である。図3.5に示されている出力パワーと位相整合温度は、測定時のレーザー周波数(194.37 THz)の時の結果であり入力周波数が大きく変われば、出力パワーおよび位相整合温度も大きく変わってくることを注意しておく。

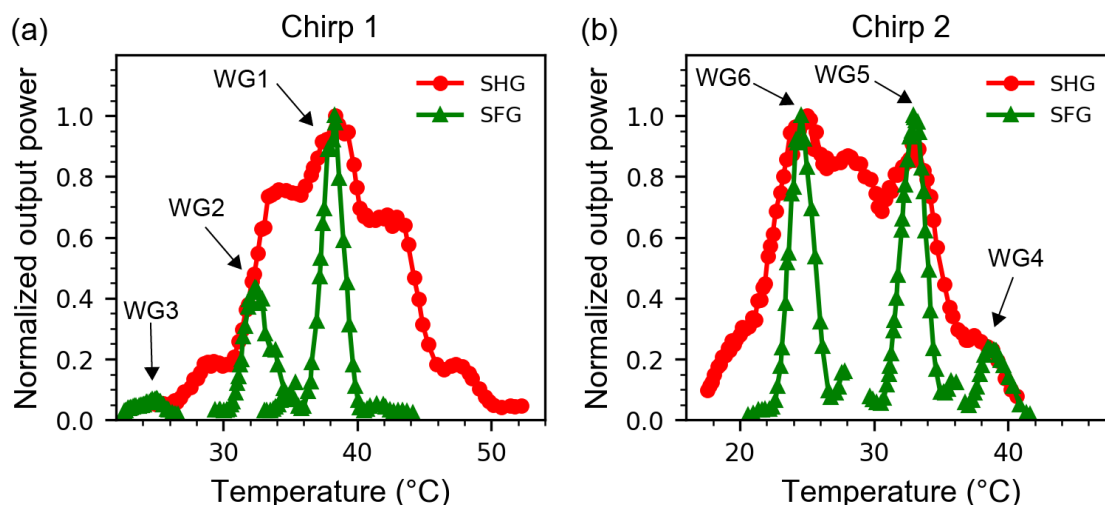


図 3.7 SHG と SFG の位相整合曲線(SN: 3805278). 図中の WG 表記と導波路名の対応は以下の通り: WG1: G1-WG1、WG2: G2-WG1、WG3: G3-WG1、WG4: G4-WG1、WG5: G5-WG1、WG6: G6-WG1.

3.3 パッケージ化されたデュアルピッチ PPLN

3.3.1 高出力 EDFA の作成

通信波長帯レーザーからデュアルピッチ PPLN を用いて 3 倍波を発生させヨウ素分光を行うためには少なくとも数 mW 程度の 3 倍波の出力パワーが必要である。そのためには十分な基本波パワーが必要になるが、第 3.2.2 項で使用した EDFA を使用した場合の基本波の最大出力は、100 mW 程度であり、市販の EDFA (Amonics; AEDFA-PM-23-B-SA) を最大電流 (1.7 A) で使用した場合でも 200 mW 程度までしか増幅されないため、ヨウ素分光に十分な 3 倍波パワーを得ることはできない¹⁵。そこで双方向励起の EDFA を自作する。図 3.8 は作成した EDFA の構成図である。

¹⁵ AEDFA-PM-23-B-SA を使用して 200 mW の基本波をデュアルピッチ PPLN に入射した場合、3 倍波の出力は 2 mW 程度しか得られなかった。

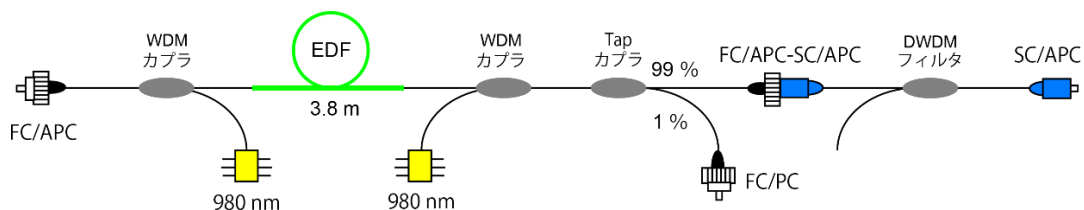


図 3.8 作製した EDFA

アイソレータ付き偏波保持 WDM カプラ（前方：PMIWDM-98-1-1-N-B-P-Q-F、後方：PMIWDM98-2-1-N-B-P-Q-F）を用いて、波長 980 nm の半導体レーザー（3S PHOTONICS; 1999CHP Series 3CN01344GL、最大電流 1.3 A）で双方向励起して増幅を行う。偏波保持エルビウム添加ファイバ（ER3527-PM）の長さは 3.8 m である。その後、偏波保持タップカプラ（PMTTC-55-1-01-N-B-P-Q-F）で 99:1 に分岐を行っている。1%のポートは周波数計測などに用いる。その後、自然放射増幅光（ASE）を除去するための偏波保持 DWDM フィルタ（PMDWDM-2-44-N-B-Q）が挿入されている。DWDM フィルタの中心波長は 1542.142 nm、バンド幅（0.5 dB）は 0.5 nm である。

図 3.9 は EDFA の励起 LD の電流値を変化させたときの増幅後のパワーを示す。使用した光源はファイバーレーザーであり、EDFA への入力パワーは 20 mW である。図 3.9(a)は前方励起のみを行った時の出力パワーであり、1070 mA のとき 170 mW の出力を得ている。図 3.9(b)は前方励起の励起 LD の電流値を 1070 mA に固定した状態で後方励起の励起 LD の電流値を変化させたときの出力パワーである。電流値 1100 mA のとき最大出力 391 mW を得ている。

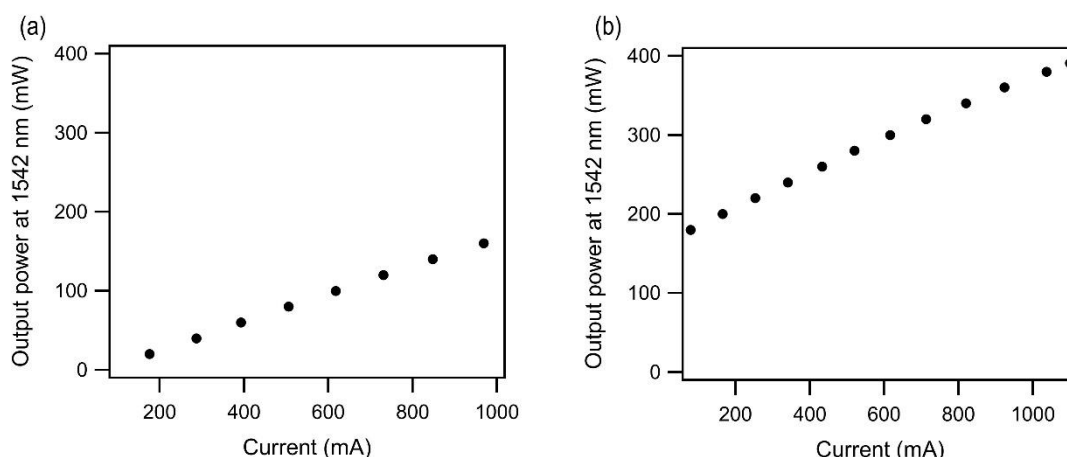


図 3.9 EDFA の励起 LD 電流を変化させたときの出力パワー。(a)前方励起のみ。(b)双方向励起（前方励起の LD 電流値 1070 mA に固定して後方励起の LD 電流値を変化）。

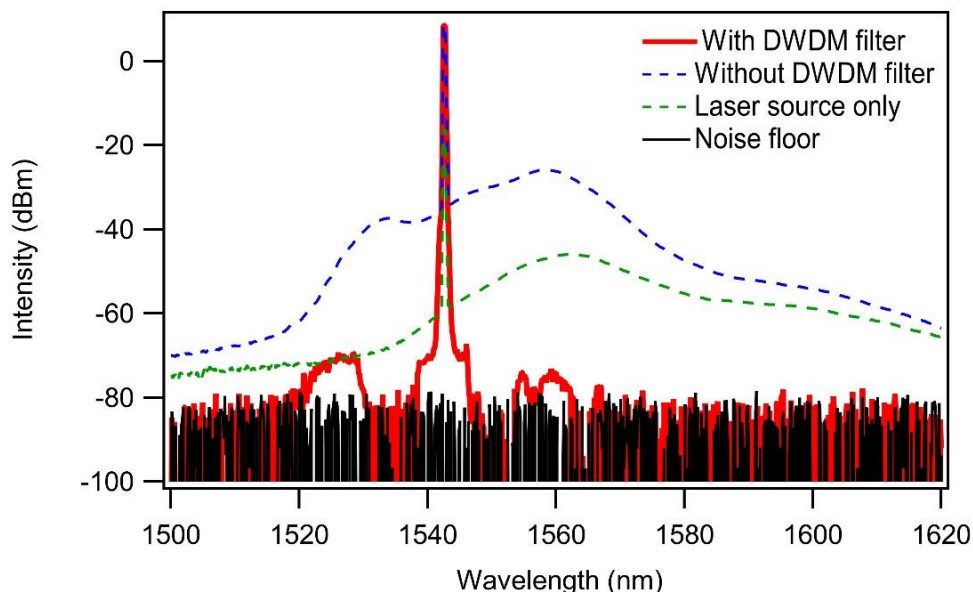


図 3.10 DWDM フィルター挿入前後の光スペクトル. 分解能: 0.5 nm.

図 3.10 は DWDM フィルターの性能を評価するために行ったスペクトル評価である。測定の際には、図 3.8 の EDFA にファイバーレーザーの出力を入力し、出力を光アテネーターで 14 dB 減衰させてから光スペクトラルアナライザーに入力している。緑点線は EDFA の LD に電流をかけず、ファイバーレーザーの出力のみを EDFA に入射したときの透過スペクトルである。波長 1542 nm にあるピークはファイバーレーザーに由来するものである。そのピークの両側の裾野に広がっているスペクトルが ASE である。図 3.10 内青点線は双方向励起（前方：1092 mA、後方：1000 mA）を行った時の光スペクトルである。この ASE は励起 LD の電流を増やしていくにつれて大きくなっているのが確認できた。図 3.10 内赤線は、双方向励起をした状態で DWDM フィルターを挿入した時の光スペクトルである。DWDM フィルターを挿入する前までに見られていた ASE がカットされていることが確認できる。出力パワーを測ると、DWDM フィルターを入れる前の出力パワーは 450 mW、DWDM フィルターを入れた後の出力パワー 393 mW である。ASE をカットするには DWDM フィルターが有効であるが、PPLN の波長変換に際しては位相整合の波長帯域幅が十分に狭いため ASE 光が波長変換に関与することはない。（これは後ほど結果で示す。）しかし、変換効率等を計算する際には、基本波のパワーを正確に見積もる必要があり DWDM フィルターが必要になってくる。

3.3.2 パッケージ化されたデュアルピッチ PPLN

図 3.3 のような PPLN チップは導波路がむき出しになっており、使用中の不慮の損傷の可能性がある。そこで、安全性および利便性の観点から PPLN チップのパッケージ化を行う。図 3.11 はパッケージ化された導波路型デュアルピッチ PPLN (NTT Electronics; WS-0514-000-A-C-C-TEC) の写真を示す。入力は偏波保持ファイバーピグテール (FC/APC) で、出力はフリースペースとなっている。パッケージ内にコリメートレンズが設置されており、出射光はコリメートされている。PPLN の導波路は一本のみで、3.2.2 章の結果から G5-WG2 が採用されている。パッケージ側面にはピンが 4 本出ており、ペルチェ用端子 2 本とサーミスタ用端子 2 本である。



図 3.11 パッケージ化されたデュアルピッチ PPLN (NTT Electronics; WS-0514-000-A-C-C-TEC) .

図 3.12 はパッケージ化デュアルピッチ PPLN の結晶温度を変化させたときに得られる 514 nm に対する位相整合曲線である。入力した 1542 nm 光の周波数は 194.37THz で、光パワーは約 400 mW である。出力は 3 倍波 (514 nm) 以外にも 2 倍波 (771 nm) と基本波 (1542 nm) が出てくるため、514 nm の位相整合曲線を取得する時はダイクロミックミラー 3 枚で他の波長の光を十分にカットする。結晶温度 37.9 °C のときに最大出力 38.3 mW が得られている。位相整合曲線の半値全幅は 2.3 °C である。図 3.13 は入力パワーを変化させたときの 3 倍波の出力パワーを示す。図 3.13 中の赤線は 3 次関数 $P_{514} = \alpha P_{1542}^3$ でフィッティングした結果を示しており、フィッティングパラメータ $\alpha = 0.06$ である。入力パワーが約 400 mW のときに最大出力の約 40 mW が得られている。400 mW は EDFA の限界であり、今回の測定範囲内では 3 倍波パワーの飽和は見られていないため入力パワーがさらに増えれば 3 倍波のさらなる出力も見込める。

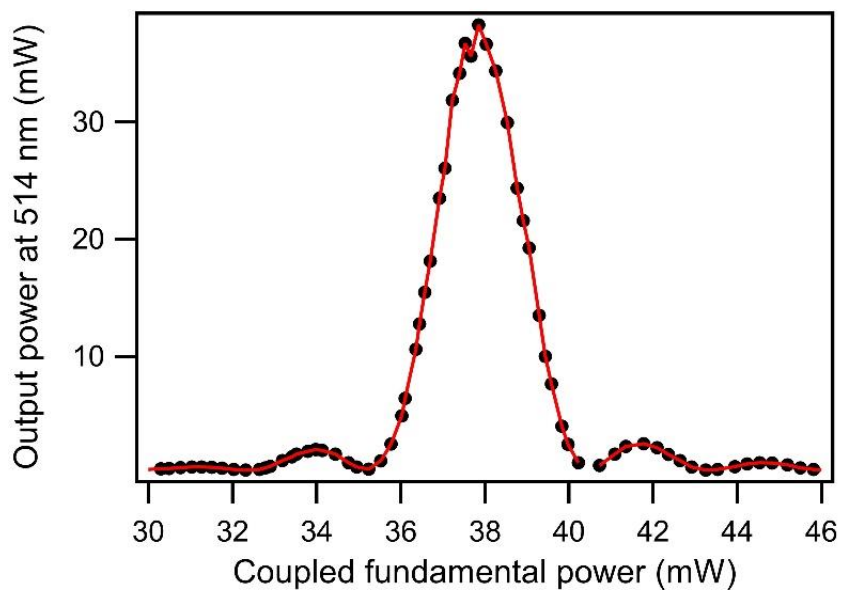


図 3.12 パッケージ化デュアルピッチ PPLN の位相整合曲線.

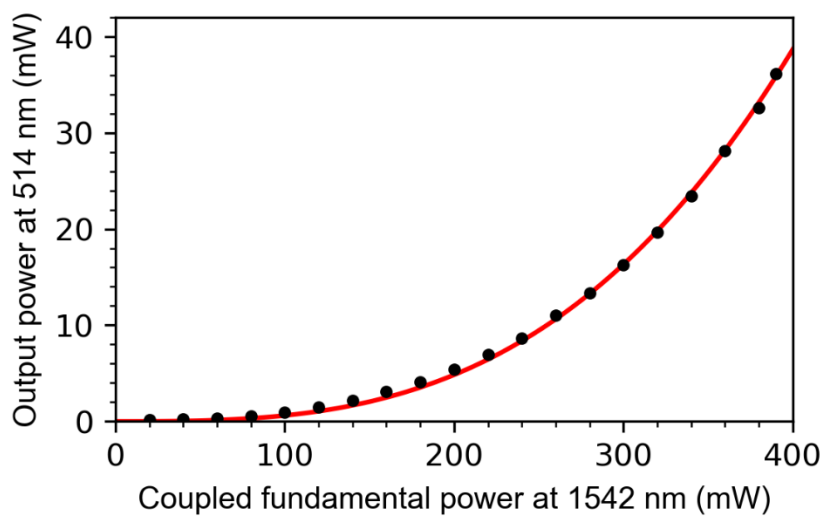


図 3.13 パッケージ化デュアルピッチ PPLN の 3 倍波出力パワー. 黒点は実測値、赤線はフィッティング結果を示している.

図 3.14 はデュアルピッチ PPLN から出力された 3 倍波をシングルモードファイバーにカップルし、光スペアナで観測したときの光スペクトルである。波長 514 nm のところに見えるピークが 3 倍波のスペクトルである。取得時には EDFA 後に WDM フィ

ルターは挿入していないが、図 3.10 内青点線で示されていた ASE の影響は見られず、スペクトルピークの幅は PPLN の位相整合バンド幅で制限されていることが分かる。

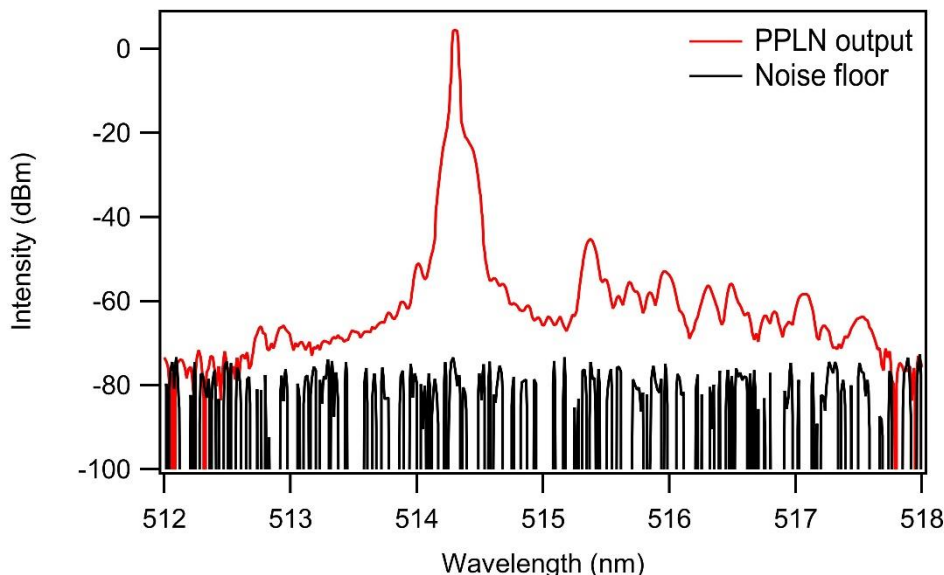


図 3.14 光スペアナで観測したデュアルピッチ PPLN の 3 倍波出力スペクトル。

導波路型デュアルピッチ PPLN で得られた $2.3\text{ }^{\circ}\text{C}$ という温度の許容幅は、基本的には第 2 ステージの擬似位相整合で制限されており、比較的容易なデバイスの温度制御を実現している。仮に第 1 ステージの QPM-pitch にかけたチャープがない場合、製造誤差等により 3 倍波発生 の位相整合をとることは難しくなるか、より温度の許容幅が狭くなってしまふ可能性がある。より狭い温度許容幅は 3 倍波発生 の強度の不安定性を招くことになる。一方で、チャープを入れることによって同一長の単一ピッチの結晶と比較して変換効率は小さくなるが、結晶間の結合損失を考慮するとデュアルピッチ PPLN のトータルの変換効率は、2 つの結晶を使って 3 倍波を発生させた先行研究 [60] よりも変換効率は向上している。したがって、第 1 ステージにチャープをかけたデュアルピッチ PPLN は 3 倍波発生 に有効な手段であることを示すことができた。このようなデュアルピッチ PPLN の設計は、本研究で使用した波長に限らず、他波長への応用も原理的には可能である。

第4章

通信波長帯ヨウ素安定化レーザー

通信波長帯 ($1.5\ \mu\text{m}$) は、光ファイバー中での低損失性 ($0.2\ \text{dB/km}$) から、重要な応用先として光通信やファイバーリンクによる光時計比較 [62]などが挙げられる。通信波長帯の周波数標準の研究は、アセチレン分子の振動回転遷移の一つである P(16)吸収線に周波数安定化されたレーザーを中心に進められており、アセチレン安定化レーザーの絶対周波数は国際度量衡委員会 (CIPM) の勧告値になっている (不確かさ $5\ \text{kHz}$) [21, 22]。CIPM が勧告しているアセチレン安定化レーザーは共振器内にアセチレンセルを設置し、検出感度を高めた上で変調周波数の3倍の周波数で検波する手法を用いている。これにより弱いアセチレン分子の吸収線を高感度で観測することに成功している。このような共振器を使用した構成で高い周波数安定度を達成しているが、共振器を利用していることから振動などの環境外乱によってロックがはずれやすく長期運転の信頼性に欠けている。通信波長帯の周波数安定化レーザーは、アセチレン以外にも、二次高調波領域にあるルビジウム吸収線に安定化する研究が進められてきた [27, 28, 63]。しかし、ルビジウムを使う場合は、線幅が広いことや外部磁場による周波数シフトの問題があり、こちらも信頼性のある高精度な光周波数標準には至っていない。また、二つの PPLN を用いて $1.5\ \mu\text{m}$ レーザーの3倍波発生を行った先行研究 [60]では、ヨウ素分子の吸収線への安定化まで行っており、高い周波数安定度が報告されている [64, 65]。しかし、絶対周波数計測や不確かさ評価までは行われていないため光周波数標準としては不十分である。本章では、高安定な通信波長帯周波数安定化レーザーの実現を目指し、デュアルピッチ PPLN で発生させた $514\ \text{nm}$ 光を用いてヨウ素分子への周波数安定化を行う。周波数安定度評価は光周波数コムとの光ビートの変動から測定し、アラン標準偏差の値で特徴づける。また、絶対周波数にかかわる系統的な不確かさを測定し、最終的に光周波数コムを用いて絶対周波数を決定する。

4.1 分光を行うヨウ素分子吸収線

現在の通信波長帯における光周波数標準はアセチレン $\nu_1 + \nu_3$ バンドの P(16)吸収線に安定化されたレーザーであり、その絶対周波数は CIPM 勧告値になっている。したがって、本研究で開発するヨウ素安定化レーザーは、応用面を考慮して、絶対周波数が現在

の CIPM 勧告値付近になるようにヨウ素分子吸収線を選択する。図 4.1 はアセチレン $\nu_1 + \nu_3$ バンドの P(16)吸収線周波数の 3 倍付近にあるヨウ素分子の吸収線である。横軸は周波数、縦軸は吸収線強度であるが、アセチレンとヨウ素の強度スケールは同一ではない。ここでは吸収強度が強いものをピックアップしており、図の周波数範囲内では R(73)46-0、P(91)48-0、P(57)45-0 の 3 本が存在する。本研究では、これら三つの吸収線のうちアセチレン P(16)吸収線の 3 倍波に最も近い R(73)46-0 吸収線を使って分光と周波数安定化を行う。この吸収線は先行研究 [64]で使われている R(34)44-0 吸収線に対して低周波側に 125 GHz、515 nm で CIPM が勧告値を出している P(13)43-0 吸収線 [66]に対して高周波側に 620 GHz 離れている [30]。

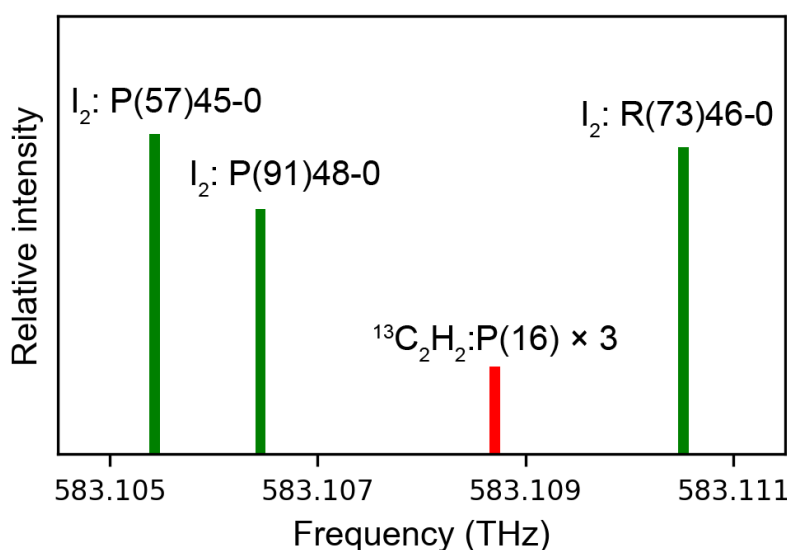


図 4.1 アセチレン $\nu_1 + \nu_3$ バンド P(16)吸収線周波数の 3 倍付近のヨウ素吸収線。吸収線強度は [7]から引用しており、アセチレンとヨウ素の吸収線強度は同一スケールではない。

4.2 実験セットアップ

図 4.2 は通信波長帯レーザーの周波数安定化の実験セットアップである。半導体レーザー (RIO) の出力を EDFA で増幅し、99:1 のカプラで分岐している。1%ポートは光周波数コムとのビート検出に使用される。99%ポートは pig-tail 型 PPLN 導波路に接続され、3 倍波が発生する。出力は空間で 3 波長出てくるため、ダイクロイックミラーで 3 倍波のみを抜き出す。3 倍波は半波長板 (HWP) と偏光ビームスプリッタ (PBS) の組み合わせとポンプ光とプローブ光に分けられる。ポンプ光はセル内での干渉を防ぐため、AOM で 80 MHz 周波数シフトされた後、共鳴型 EOM で位相変調される。EOM

にはファンクションジェネレータ (BK PRECISION; 4054) から 345 kHz の sin 波 (5 Vpp) が入力されている。ヨウ素セルの長さは 30 cm であり、セル内でポンプ光とプローブ光が対向するように重ね合わせられる。PPLN から出射されたビームは、レンズペアによりビーム径拡大を行っており、セル内では約 1.5 mm のビーム径になっている。吸収が飽和した時にのみ、四光波混合によりポンプ光のサイドバンドがプローブ光に移る。プローブ光はグラムトムソンプリズム (GTP) で反射され、受光器で受光される。プローブ光にサイドバンドが移っている場合、プローブ光のキャリアとサイドバンドのビートが検出される。その信号をミキサー (Mini-Circuits; ZAD-3+) で復調した後、RF アンプ (Mini-Circuits; ZFL-500LN+) で 0 dBm 程度まで増幅した後、ローパスフィルタ (STANFORD RESEARCH SYSTEMS; MODEL SR560) に通したものをサーボ系に送った後、制御信号を ECDL にフィードバックを行い、周波数を制御する。図 4.3 は ECDL へのフィードバック方法を示す。フィードバック信号は ECDL のピンに直接返して電流を制御している。電流コントローラ (Thorlabs; LDC201CU) を介して電流を制御することも可能だが、この場合の制御帯域は DC~0.2 kHz と狭いため、直接ピンに返す方が早い制御が可能になる。周波数安定化後は Er ファイバーコムとの光ビートを検出し、周波数カウンタでビート周波数変動を長期測定した。光周波数コムの繰り返し周波数とオフセット周波数は UTC (NMIJ) に同期された水素メーザーに対して安定化されている。また、UTC (NMIJ) はタイムベースとして周波数カウンタに入力されている。

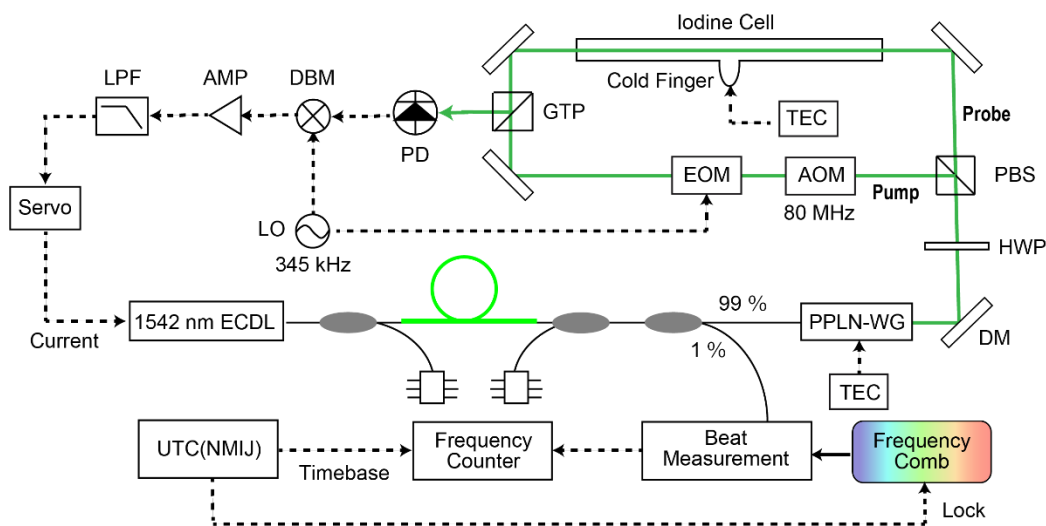


図 4.2 通信波長帯のヨウ素安定化レーザー。ECDL: 外部共振器半導体レーザー, PPLN-WG: 導波路型周期分極反転ニオブ酸リチウム, DM: ダイクロイックミラー, HWP: 半波長板, PBS: 偏光ビームスプリッタ, AOM: 音響光学変調器, EOM: 電気光学変調器, GTP: グラントムソンプリズム, DBM: ダブルバランスミキサ, LPF: ローパスフィルタ, LO: ローカルオシレータ, TEC: 温度コントローラ。



図 4.3 ECLD へのフィードバック方法. 信号線を「LD Cathode, 3 Pin」、GND 線を「LD Anode, 13 Pin」に接続している.

4.3 観測した吸収スペクトル

図 4.4 は観測したヨウ素分子の R(73)46-0 吸収線のスペクトルである。R(73)46-0 吸収線は下準位の回転量子数が奇数 (73) であるため、超微細構造は 21 個に分裂する。図 4.4 では 21 個全ての超微細構造が観測されている。なお、 a_8 と a_9 および a_{11} と a_{12} はそれぞれ遷移周波数が近いため分離ができていない。スペクトル全体を取得する時は、ファンクションジェネレーター (BK PRECISION; 4054) を用いてレーザーの電流にスイープ用の三角波を入力する。その時のエラー信号をオシロスコープ (KEYSIGHT; DSO-X 2004A) で観測し保存する。図 4.4 のスペクトル取得時のローパスフィルタは 1 kHz である。信号対雑音比 (S/N) は約 100 である。

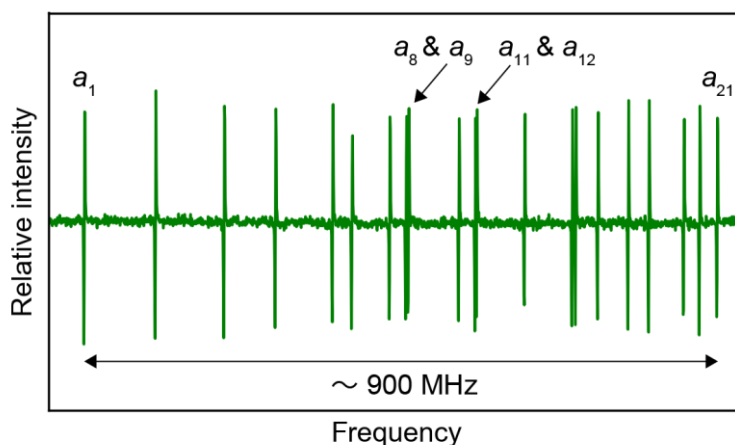


図 4.4 ヨウ素分子 R(73)46-0 吸収線. データ取得時のローパスフィルタは 1 kHz. 信号対雑音比は約 100.

得られた 21 本の超微細構造のうち左端の a_1 を使ってレーザーの周波数安定化を行う。図 4.5 は、エラー信号をモニターしているオシロスコープの写真を示しており、制御をかけているときのエラー信号の様子を緑線で、エラー信号を高速フーリエ変換 (FFT) したスペクトルをピンク線で表示している。(a)は制御ゲインが最適のときであり、低周波側で雑音レベルが下がっていることが確認できる。制御ゲインを調節するにはこのように FFT 信号を観察しながら、制御帯域内での雑音が低減するように制御ゲインを上げていくと良い。しかし、制御ゲインを上げすぎると(b)のように発振が起きるので注意が必要である。周波数安定化を行った後は、光周波数コムとのビート周波数を検出し、その変動を長期測定することで周波数安定度評価を行う。

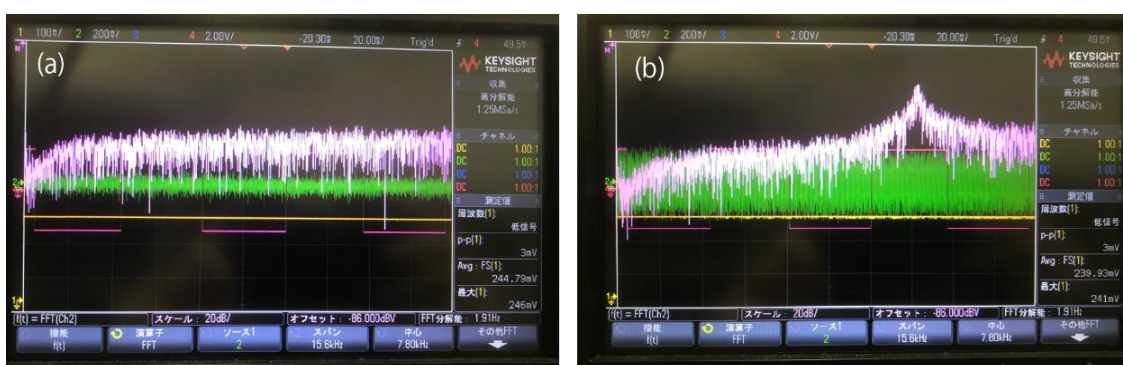


図 4.5 周波数安定時のエラー信号 (緑線) とその FFT 信号 (ピンク線) . FFT の表示範囲は中心 7.8 kHz、分解能 1.91 Hz. (a)は制御ゲインが最適の時. (b)は制御ゲインが大きい時.

4.4 周波数安定度

図 4.6 は通信波長帯ヨウ素安定化レーザーと光周波数コムとのビート周波数測定の結果である。ゲート時間は 1 秒で測定時間は 1 時間である。光周波数コムとの繰り返し周波数とオフセット周波数はともに UTC(NMIJ) に対して安定されており、その安定度はヨウ素安定化レーザーを上回っているため、図 4.6 で観測されている周波数変動はヨウ素安定化レーザーに由来するものであるといえる。図 4.7 はヨウ素安定化レーザーと光周波数コムとのビート周波数変動から計算されたアラン標準偏差である。アラン標準偏差は平均時間 1 秒で 1.1×10^{-12} であり、平均時間 600 秒で 9×10^{-14} まで改善する。平均時間 10 秒以降からアラン標準偏差はシステムのフリッカに到達しているように見える。比較として、黒いドット線で UTC(NMIJ) の周波数安定度を示している。すべての平均時間において UTC(NMIJ) はヨウ素安定化レーザーの安定度を上回っているのが分かる。黒いダッシュ線は典型的なアセチレン安定化レーザーの周波数安定度 [30]

を示している。開発した通信波長帯ヨウ素安定化レーザーはアセチレン安定化レーザーと比較して平均時間1秒では約1桁、長期では5倍程度周波数安定度が上回っている。

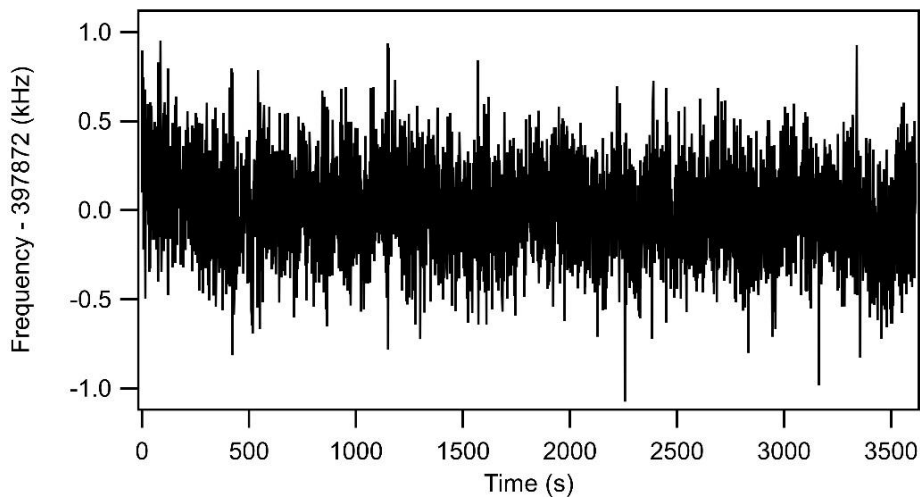


図 4.6 通信波長帯ヨウ素安定化レーザーと光周波数コムとのビート周波数変動。

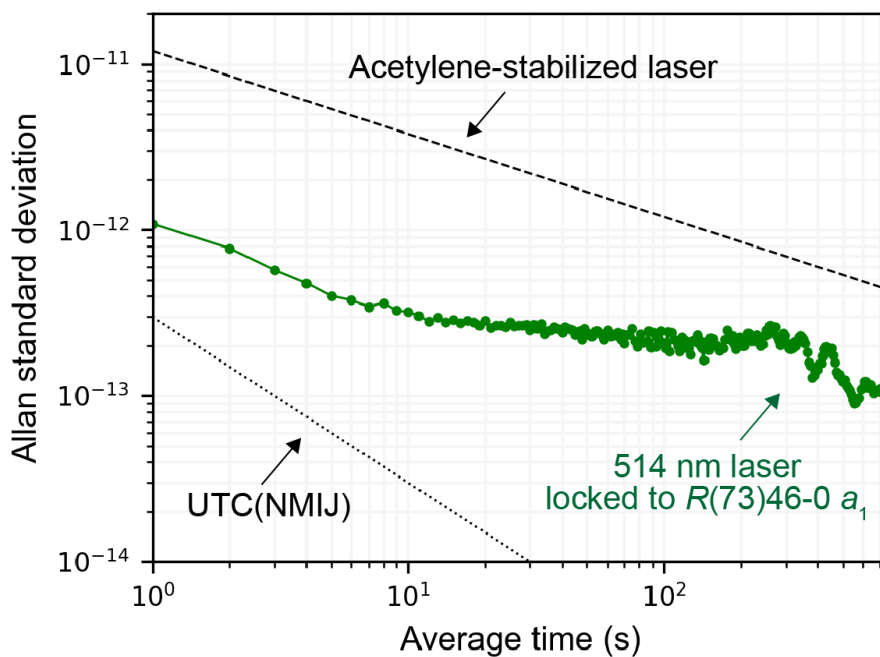


図 4.7 ヨウ素安定化レーザーと光周波数コムとのビート周波数変動から計算したアラン標準偏差。ドット線とダッシュ線はそれぞれ UTC(NMIJ)とアセチレン安定化レーザーの周波数安定度を示している。

本研究で得られた平均時間1秒で 1.1×10^{-12} という周波数安定度は、同じ 514 nm 帯のヨウ素分子の吸収線に対して狭線幅半導体レーザーを安定化して 4.8×10^{-14} という周波数安定度を得ている先行研究 [64]と比較する必要がある。本研究と先行研究の主な違いはレーザーとヨウ素分子の相互作用長である。本研究では 30 cm のヨウ素セルを使用しているのに対して、先行研究では 30 cm のヨウ素セル内で4パスを形成しており実効長 1.2 m で安定化を行っている。この相互作用長の違いにより、仮に他の条件が同じであるという仮定をすると周波数安定度で4倍の違いが生じることになる。ヨウ素セル内の圧力は本研究が 2.5 Pa であるのに対し、先行研究では 0.79 Pa という低い圧力で分光を行っている。また、EOMの変調周波数は本研究が 345 kHz であるのに対し、先行研究では 220 kHz である。本研究のように高い圧力で分光を行うと、ヨウ素分子数の増加に伴い信号の大きさは増大するが、スペクトル線幅の広がり(圧力広がり)を招いてしまう。ヨウ素分子の吸収線の中でも 514 nm という波長帯は自然幅が 50 kHz 程度¹⁶と狭い(532 nm 帯の自然幅の 1/5)ため [41]、究極の安定度を目指すうえでは長いセルを使用もしくはマルチパスを導入して実効長を稼ぎ、低い変調周波数に設定することは理にかなった戦略であるといえる。一方、可搬型の実用機では安定度の要求が厳しくないで短いセルでのセットアップが理想である。また、異なる実験の周波数安定度を比較する際には、周波数カウンター(Δ型かΠ型か)やアラン分散の計算アルゴリズム(modified Allan など)の違いが周波数安定度の違いを生じるということを留意する必要がある。

4.5 不確かさ評価と絶対周波数計測

図 4.8 は R(73)46-0 吸収線の a_1 に対して安定化されたヨウ素安定化レーザーの絶対周波数測定の結果である。1週間以上にわたって計 13 回の測定を行った。それぞれの測定はゲート時間1秒で1000秒以上行われ、各測定データにおける不確かさはアラン標準偏差の最長平均時間の値を採用している。13回の測定の平均周波数は 583 109 956 557 kHz である。13回の測定の標準偏差は 1.2 kHz であり、これがこの周波数安定化レーザーの再現性を示している。

¹⁶ 半値半幅 (HWHM)

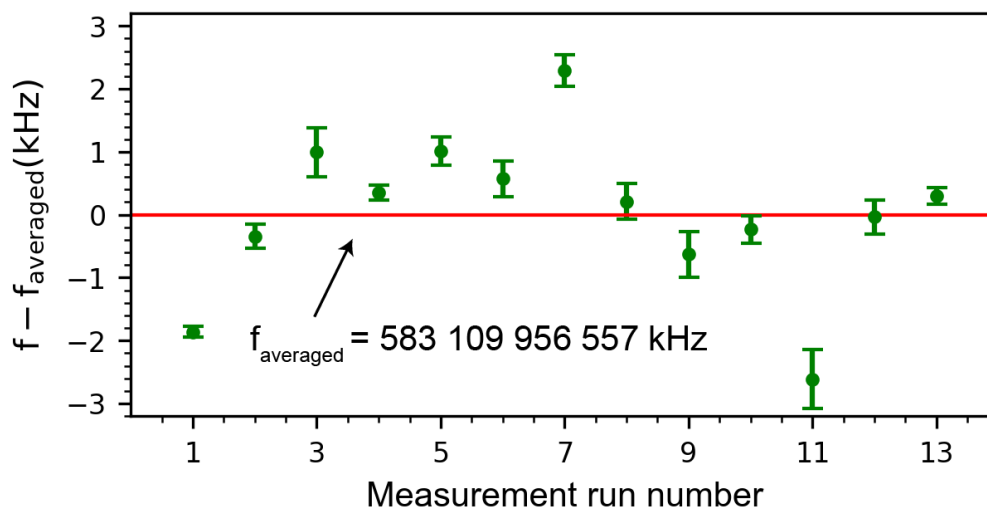


図 4.8 ヨウ素安定化レーザーの絶対周波数と周波数再現性. 赤線は 13 回の測定値の平均を表している.

絶対周波数の不確かさを評価するために、ヨウ素安定化レーザーの周波数シフトを起こす要因について調べた。図 4.9(a)は R(73)46-0 吸収線の a_1 に安定化された周波数安定化レーザーの圧力シフトを示す。測定された圧力シフトのスロープは -5.1 kHz/Pa である。この値は先行研究 [48] で測定された Nd:YAG レーザーの圧力シフト (-2.98 kHz/Pa) よりも大きい。ヨウ素セル内の圧力の不確かさはコールドフィンガー内のヨウ素分子の固体結晶の温度の不確かさで決定され、その不確かさは 0.5 K 以下であると推定される。これは圧力に換算すると 0.2 Pa 以下に相当するため、測定した圧力スロープから圧力シフトによる周波数不確かさは 1.1 kHz 以下である。図 4.9(b)はポンプパワーによる周波数安定化レーザーの周波数シフトを示す。測定されたパワーシフトのスロープは -3.6 kHz/mW である。この値は先行研究 [48] (-149 Hz/mW) よりも大きな値になっている。レーザーパワーの決定の不確かさは 10% 以下であるため、周波数不確かさは 1.8 kHz 以下である。図 4.9(c)はポンプ光にかけた変調と復調の間の位相による周波数シフトである。図 4.9(c)における位相 0° はモジュレーショントランスファー信号が最大になる位相と定義している。測定された位相調整による周波数シフトのスロープは 260 Hz/degree である。位相調整の不確かさは 10° 以下であるため、周波数不確かさに換算すると 2.6 kHz 以下である。さらに、ヨウ素セルに混入している不純物による周波数シフトを考慮しなければならない。先行研究 [67]によると、この効果による測定結果に対する不確かさは 5 kHz である。統計不確かさには再現性測定で得られた標準偏差 (1.2 kHz) を用いる。表 4-1 は R(73)46-0 の a_1 に周波数安定化されたレーザーの絶対周波数の不確かさリストを示す。これらを考慮すると、合計の不確かさは 6

kHz (1.0×10^{-11})である。本研究の実験パラメータ（ポンプ光：5 mW、ビーム径：~1.5 mm、コールドフィンガー温度：-5 °C（ヨウ素圧力：2.5 Pa））における R(73)46-0 吸収線 a_1 の絶対周波数は 583 110 036 557 kHz \pm 6 kHz と決定された。

開発したヨウ素安定化レーザーは 1542 nm、771 nm、514 nm の3波長が出力される。1542 nm の出力は InGaAs の受光器で検出でき、771 nm と 514 nm は Si の受光器で検出できる。1542 nm の出力は CIPM が勧告するアセチレン安定化レーザーの周波数からわずか 600 MHz しか離れていないため、現在アセチレン安定化レーザーが使われているほぼ全ての応用に対して代替可能である。それに加えて、開発した通信波長帯ヨウ素安定化レーザーは 1)長期運転に対する信頼性、2)アセチレン安定化レーザーで通常使用される光共振器を除いたことによる無変調の出力、という優れた特徴を有する。通信波長帯の周波数安定化レーザーの応用としてモード同期エルビウムファイバーを使った天文コムが挙げられる。過去にはすでに第一世代の天文コムを開発しており、岡山県の観測所に搬入している [68]。本研究で開発したヨウ素安定化レーザーも第二世代の天文コムの一部として組み込まれており、岡山県の観測所を始めとして世界中の観測所で活躍することが見込まれている。また、771 nm や 514 nm の出力光は干渉測定などでの応用が期待される。例えば、531 nm の小型安定化レーザー [69, 70] と組み合わせることで、771 nm と 514 nm の出力はゲージブロック測定に応用することができる [71]。

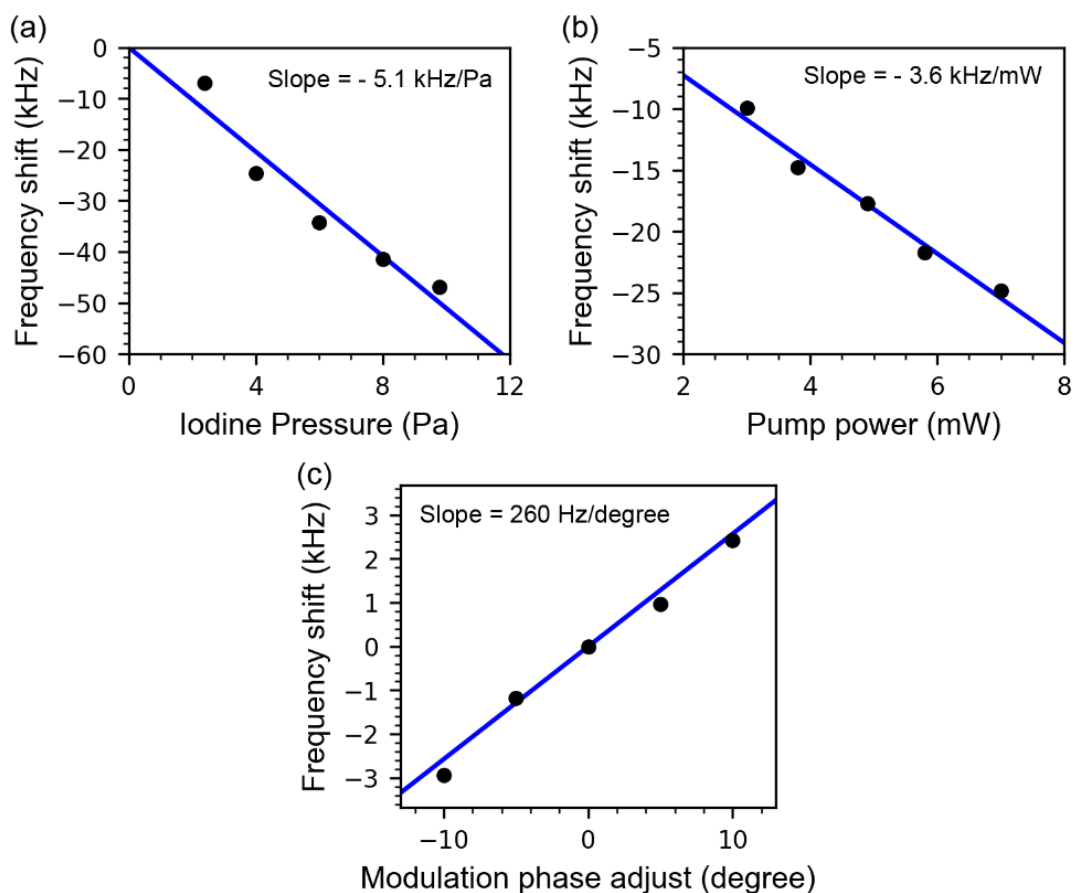


図 4.9 R(73)46-0 吸収線の a_1 に安定化されたヨウ素安定化レーザーの周波数シフト. (a) 圧力シフト、(b) パワーシフト、(c) 復調位相によるシフト.

Effect	Sensitivity	Uncertainty
Pressure shift	-5.1 kHz/Pa	$< 1.1 \text{ kHz}$
Power shift	-3.6 kHz/mW	$< 1.8 \text{ kHz}$
Modulation phase adjust	260 Hz/degree	$< 2.6 \text{ kHz}$
Cell impurity		5 kHz
Statistics		1.2 kHz
Total uncertainty		6 kHz
Relative uncertainty		1.0×10^{-11}

表 4-1 R(73)46-0 吸収線の a_1 の絶対周波数の不確かさに寄与する要因

第5章

系外惑星探索のための周波数安定化レーザー

1995年に初めて系外惑星（太陽系の外にある恒星を周回する惑星）が発見されて以降、その数は年々増え続けており現在ではおよそ4000個もの数が報告されている [72]。系外惑星は自ら光を発しないため、その姿を直接観測するのは至難の業である。そこで、系外惑星の存在を“間接的に”観測する方法として、トランジット法と視線速度法（ドップラー法）がある。トランジット法は周回する惑星が恒星の前を通過する際の減光を検出する。一方で、惑星をもつ恒星は周回している惑星の重力によって僅かに揺さぶられるため、惑星との共通重心を同じ周期で周回している。そのため、観測者から見て恒星が遠ざかる（近づく）と恒星からの光の波長は長く（短く）なる（図 5.1 参照）。その振動周期を観測するのが視線速度法である。どちらも系外惑星探索手法としては有効であるが、トランジット法は惑星軌道面が視線方向と一致していなければならぬため検出確率が低くなる。そのため、これまで報告された系外惑星のほとんどは視線速度法によるものである。恒星からの光のドップラーシフトを実際に観測するには、分光器でスペクトル分解したときに現れる恒星ガスの吸収スペクトル（暗線）のシフトを観測する。通常、分光器は熱雑音などのノイズの影響を受けるため高精度な測定には波長校正が欠かせない。1980年代にトリウムアルゴンランプを分光器の波長校正光源として望遠鏡からの光と同時に分光器に入射させる手法が開発され、熱雑音の影響を相対的にキャンセルできるようになった。そして、1995年のマイヨールとケロズによる系外惑星の初発見に至る。マイヨールとケロズはこの功績が称えられ、2019年にノーベル物理学賞を受賞している。しかし、波長校正にトリウムアルゴンランプやヨウ素セルを用いる場合、校正線の間隔ならびに強度が不均一であることや混入物や経年劣化の影響等により校正線の絶対周波数は 10^7 程度の精度でしか決定できない。視線速度の測定精度が校正光源の周波数安定度で制限される事態を打開すべく、新たな分光器校正用光源の開発が求められるようになった。

2007年、Murphyらによって天体観測用分光器の周波数校正用光源として光周波数コム（天文コム）が初めて提案された。光周波数コムの等間隔なモードと均一な光強度は分光器校正用光源として都合がよく、原子時計を周波数基準にすることで 10^{10} を上回る周波数安定度を実現できる。光周波数コムの光を分光器スペクトル上で観測するこ

とで分光器の周波数ドリフトを高精度で校正することができるため、長期の周波数安定性の改善につながる。非線形光学効果によって光コムの特長を可視から赤外にわたって広帯域に拡張できることも校正光源に光コムを用いる利点である。光周波数コムが天文コムとして初めて分光器に配備されたのは2008年のことである。マックスプランク研究所 (MPQ) の Steinmetz らが分光器の分解能に合わせてモードフィルタリングした Er ファイバーコムを Vacuum Tower Telescope (VTT) に実装した [17]。その後、Harvard や NIST など世界各国の研究グループが天文コム開発にしのぎを削り、現在では視線速度 cm/s レベル (周波数安定度 10^{-11} 相当) の高精度測定が行われている。このような研究は系外惑星探索にとどまらず、宇宙膨張やダークエネルギーの研究にもつながっている。そして、「宇宙はどのようにして誕生したのか」、「我々は宇宙の中で特別な存在なのか」といった人類が持つ大きな問いに対する答えを導いてくれることが期待されている。本研究では、第4章で開発した通信波長帯ヨウ素安定化レーザーをベースにして天文コムの周波数標準を開発した。周波数標準は 60 cm × 45 cm のプリント基板上に構築され、周波数安定度は平均時間 1 秒で 3×10^{-12} を達成している。本研究で開発したヨウ素安定化レーザーは国立天文台岡山天体物理観測所にある高分散分光器 HIDES-F 用の波長校正光源の天文コムの周波数標準として岡山県に輸送・搬入された。なお、本研究は産業技術総合研究所、横浜国立大学、国立天文台の共同研究であり、天文コム装置のうち光周波数コムは産総研、ヨウ素安定化レーザーを横浜国立大学が開発を担当している。

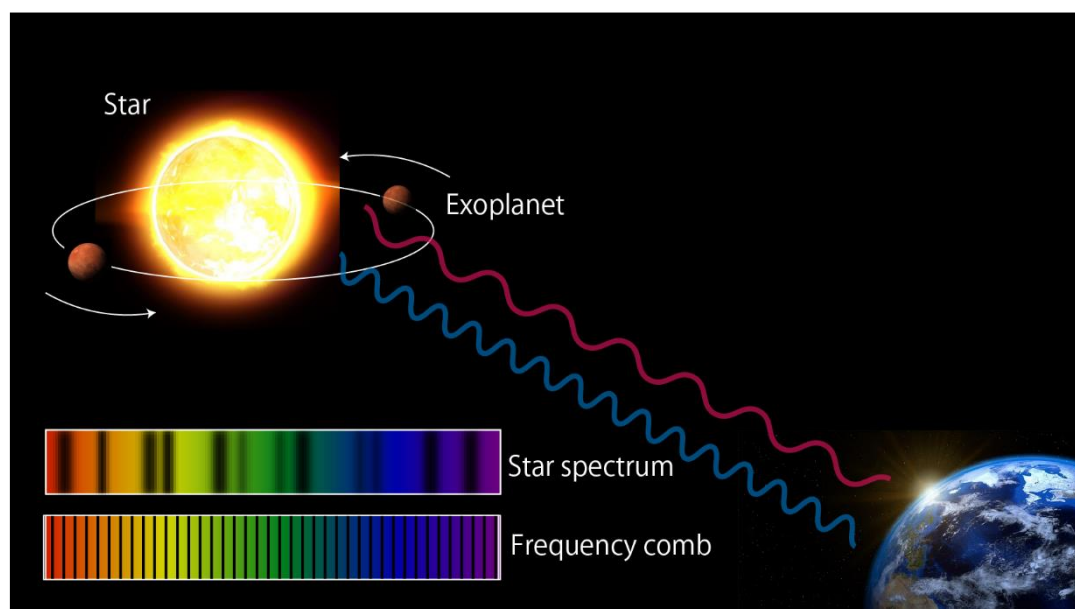


図 5.1 恒星からの光のドップラーシフトの様子。恒星の周りを周回する惑星によって恒星も同じ周期で僅かに周回している。視線速度法ではそのシフトを観測して系外惑星を検出する。挿入図は恒星からの光を分光器でスペクトル分解したときの分光イメージ (上) と光周波数コムのスペクトル (下)。

5.1 天文コムの要素技術

天文コムを分光器の波長校正光源として使うためにはいくつかの要件がある。それは (i) 光コムのスペクトルが分光器の波長範囲を網羅していること、(ii) 光コムのモード間隔が分光器の分解能 $R = \lambda/\Delta\lambda$ に対して最適な間隔であることである。波長範囲の問題については、最適なレーザーゲイン媒質を選択することや非線形技術によるスペクトル拡大を行うことで解決する。典型的な高分解能分光器の分解能は $>10,000$ であるため、測定対象とする波長領域にもよるがこの分光器に対する最適な光コムモード間隔は >10 GHz である。このような高繰り返し周波数は典型的なフェムト秒レーザーシステムから得ることは容易ではないため、ファブリーペロー共振器で光コムの不要なモードを間引く方法がとられることが多い。本節では、このような実用的な天文コム開発にあたって重要となる主要技術について解説する。

5.1.1 モードフィルタリング

一般的に、モード同期レーザーから作られる光コムの場合、繰り返し周波数は 1 GHz 以下であるため、分光器の分解能に合った校正グリッドをつくるためにはスペクトルフィルタリングを行わなければならない。低繰り返し周波数の光コムのモード間隔を広げる解決策として広く適用されているのが図 5.2 のようにファブリーペロー共振器で不要な周波数モードを間引く方法である。ファブリーペローエタロンはフリースペクトルレンジ (FSR) が光コムの繰り返し周波数 f_{rep} の m 倍になるように共振器長を設計しているため、透過する光コムの繰り返し周波数は $m f_{\text{rep}}$ となる。理論的には非常に単純であるが、広帯域なスペクトルを持つ光コムに対してこの手法を用いるのは容易ではなく、空気の分散やミラーコーティングによる群速度分散等を考慮に入れなければならない。反射率 R の 2 枚のミラーで構成される共振器長 L のファブリーペローエタロンを考えると、その透過関数は以下の式で与えられる。

$$T(f, R, L(\lambda)) = \frac{(1 - R)^2}{(1 - R)^2 + 4R \sin^2(2\pi f L(\lambda)/c)} \quad (1)$$

エタロンの分散は $L(\lambda)$ の中に含まれており、この分散の影響により波長域によって共振器モード間隔がわずかにずれてしまい、結果として広帯域で光コムモードと共振器モードを一致させることができなくなってしまう。ミラーコーティングによる群速度分散は高反射率のミラーほど顕著であるため、高フィネスの共振器ほど分散の影響で広帯域な波長域で使うことができなくなる。一方で、共振器で抜き出した光コムモードのサイドに抑制しきれなかった残留モードが存在すると校正に用いる光コムモードの中心を正しく読むことができなくなり校正線がシフトしてしまう可能性がある。そのため、残

留モードを十分に抑制することを考えると高フィネスの共振器が適している。このように天文コムのモードフィルタリングには、サイドモードの抑制のためには高フィネスの共振器が適しているが、群速度分散の影響を抑制するには低フィネスの共振器が適しているというジレンマが存在する。これを解消する方法として、複数の低フィネスの共振器を直列させて使うことが行われている。これにより、高反射率のミラーを使う必要がなくなり広帯域でモードフィルタリングを行うことができ、複数の共振器を使っていることでサイドモードも十分に抑制することができる。

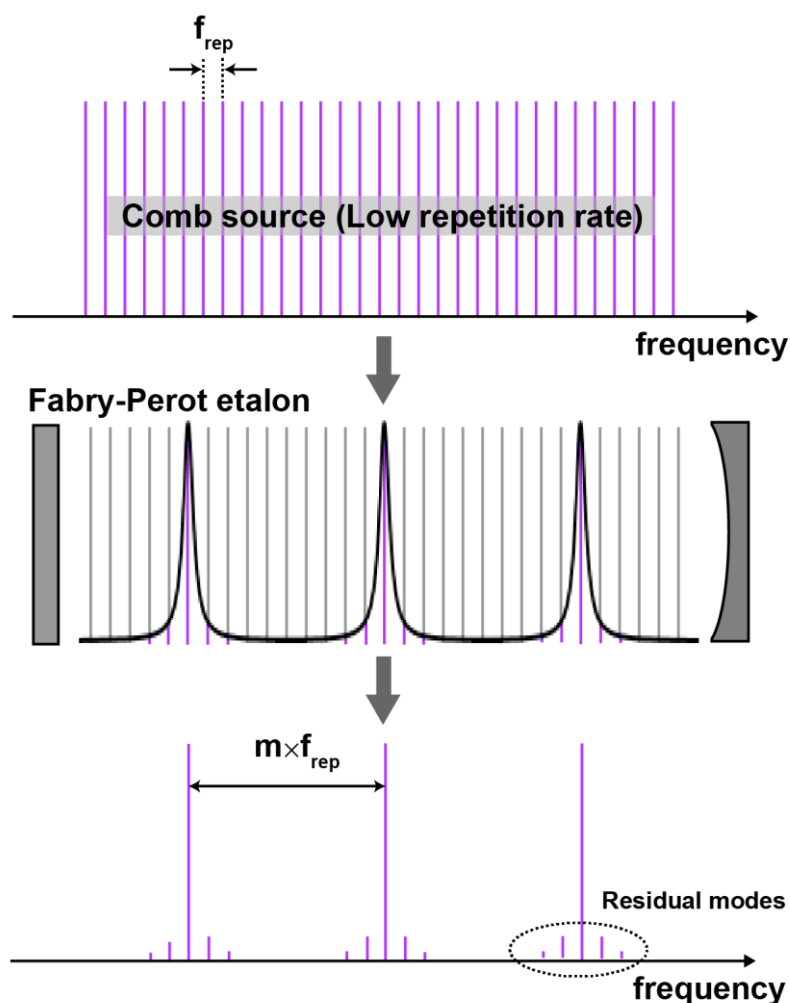


図 5.2 ファブリーペロー共振器による低繰り返しコムのモードフィルタリングの概念図. 共振器の FSR を光コムの繰り返し周波数の定数倍 ($m \times f_{rep}$) に設計することで高繰り返しコムをつくることができる (図の場合、 $m = 10$) . 共振器で抜き出した光コムモードの両サイドには抑制しきれなかった残留モードが存在する。残留モードが大きいと校正線のシフトが起きてしまい、正しく波長校正することができなくなる。

5.1.2 スペクトル拡張

高分解能分光器のスペクトルカバー範囲はとて広いと、天文コムとして使用するためには光コムのスペクトルを拡張させる必要がある。光コムのスペクトル広帯域化は基コムの中心波長によって適した手法が異なっており、 $1.5\ \mu\text{m}$ 中心の光コムに対しては高非線形ファイバー (HNLF)、中心波長が $1\ \mu\text{m}$ もしくはそれ以下の光コムに対してはフォトニック結晶ファイバ (PCF) が使用される。ファイバー技術を使ったスペクトル拡張に加えて、近年ではフォトニック結晶導波路の進歩が著しく、天文コムの応用にも使われ始めている。フォトニック結晶導波路の高い非線形性と閉じ込め効果の相乗効果により、効率的に非線形波長変換を行うことができるようになった。

非線形波長変換において注意を向けなければならないのが 5.1.1 でも述べたサイドモードの抑制である。Chang は非線形波長変換による光コムのスペクトル拡張に関する研究を行っており、共振器でモードフィルタリングされた光コムを非線形波長変換する際の影響について、天文コムのモードとサイドモード間の四光波混合過程によって抑制されていたサイドモードが復活してしまうことを警告している [73, 74]。これを回避する手段として、スペクトル拡張の前に複数のフィルター共振器を使うことが提案されている。また、Probst らは SHG 過程における PCF 中でのサイドモードの増幅効果について研究しており、Chang らと同様に共振器を複数使うことを推奨している [75]。モードフィルタリングの前にスペクトル拡張をすることがこれら諸問題を解決すると考えることもできるかもしれないが、広帯域化前のスペクトルが狭い段階でモードフィルタリングを行った方が共振器のミラーコーティングの要請が緩和されるので天文コム開発が比較的シンプルになるということを言及しておく。

5.1.3 コムモードの識別と絶対周波数

高精度な波長校正のためには、各モードの絶対周波数を識別する必要があり、オフセット周波数 f_{CEO} と繰り返し周波数 f_{rep} の値に加えてモード番号の情報も必要になってくる。ここで問題になるのは、ファブリーペロー共振器を透過した光コムモードの組み合わせの決定である。共振器の FSR の情報だけでは透過する光コムモードの組み合わせは絞り切ることができない。

この問題に対する一般的なアプローチとして参照周波数に狭線幅 CW レーザーを使う方法がある。波長計等で周波数が既知の CW レーザーが光コムに対してロックされていれば一つのコムモードの周波数を決定することができ、自動的に残りのコムモードの周波数もすべて計算することができる。波長計の周波数安定度では単一のコムモードの絶対周波数を精密に測定することには適していないが、光コムのモード番号を決定するにあたっては問題ない。別の方法として、CW レーザーを原子分子の吸収線に対して安定化する方法がある。この場合、絶対周波数を高精度で決定することができるため、

光コムモードの絶対周波数を高精度で求めることができる。CW レーザーは Pound-Drever-Hall 法を使ってファブリーペロー共振器の安定化にも使うことができるため、ファブリーペロー共振器を透過するコムモードの組み合わせを識別することもできるようになる。

5.2 得られるスペクトルと校正方法

図 5.3 は天文コム (モードフィルタリングやスペクトル拡張後の光コム) と恒星からの光を合波させ、スペクトルを得るまでの装置図と得られるデータの一例を示す。天文コムの出力と望遠鏡で集められた恒星からの光はそれぞれファイバーに結合される。その後、空間に出力され回折格子とエシエル回折格子で 2 次元平面のスペクトルをつくり分光器の受光器で検出する。図 5.3(b) は分光器で得られる 2 次元平面スペクトルのイメージ図を示す。エシエル回折格子の次数によって上下方向にスペクトルが広がっており、一つのエシエル回折次数内ではスペクトルが右側に行くにつれて波長が長くなる。したがって平面スペクトル全体では、左下から右上にかけて波長が長くなる。挿入図は、緑枠で囲った部分のピクセル位置に対するフォトンカウント数のイメージ図を示す。下側は天文コムのスペクトルを示しており、得られたフォトン数の情報からローレンチアンやガウシアンなどの関数でフィッティングして光コムのモードの中心位置を決定する。上側は恒星からの光のスペクトルを示す。連続的に広がるスペクトルの中に点在する一部欠けている領域が恒星ガスの吸収によって生じる暗線である。暗線の箇所ではフォトン数が減少しており、この暗線スペクトルのシフト量を精密に測定することで系外惑星の発見につながる。しかし、先述の通りスペクトルがシフトする要因は系外惑星の存在だけではなく、分光器や受光器の熱雑音や気温・気圧の変動によってもシフトが生じるため校正によってそのようなシステム的なシフトを打ち消す必要がある。図 5.3(c) は図 5.3(b) の二次元平面スペクトルのフィッティングから得た光コムモード中心のピクセル位置を光コムモード番号に対してプロットした結果のイメージ図を示す。理想的にはこのプロットは光コムの等間隔なモードに由来して線形でフィットできるはずであるが、実際には先述のシステム的なシフトが存在するため線形からずれている。したがって、このプロットに対して 2 次の多項式近似でフィッティングを行ってずれを補正することで高精度な波長校正を行うことができる。統計不確かさを小さくするためには、分光器の露光時間を長くして取得する光子数を増やすこととスペクトルが広い光源を使うことが有効である。しかし、これまで使われてきたトリウムアルゴンランプはスペクトル帯域が狭く、スペクトルの強度が不均一である。スペクトル強弱が大きい場合、一定の露光時間に対して全スペクトル帯域で均一な信号雑音比を得ることはできず効率的ではない (露光時間を長くしすぎると検出器が飽和する)。これらの観点から、トリウムアルゴンランプよりも光コムの方が波長校正光源として優れているといえる。

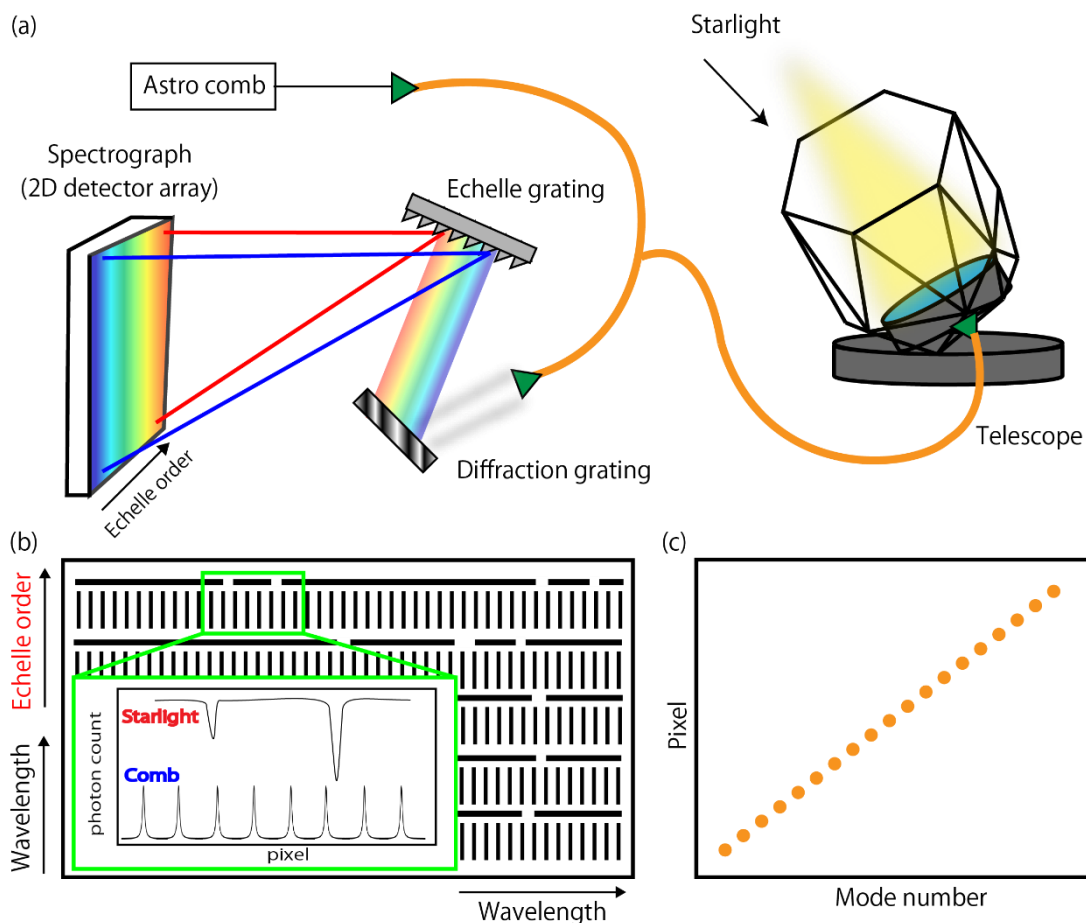


図 5.3 (a)天文コムと恒星からの光の 2 次元スペクトルを得るための光学系. (b) 分光器によって得られる 2 次元平面スペクトルのイメージ図. 挿入図はスペクトルの一部分におけるピクセル番号に対する光子数データ. 上側と下側にそれぞれ恒星からの光と光コムのスペクトル概形が現れる. 光コムスペクトルを適切な関数でフィッティングすることでモード中心のピクセル番号が求まる. (c)光コムの各モードに対するピクセル番号のイメージ図.

5.3 世界の天文コムの開発状況

表 5-1 は世界の天文コムの開発状況一覧を年数順に示しており、各々の天文コムにおいて使用している分光器の種類 (Spectrometer)、モード間隔 (Spacing)、光コムの波長範囲 (Coverage) をまとめている。モード間隔は光コム本来の繰り返し周波数ではなく、ファブリーペロー共振器などでモードフィルタリングを行っている場合はフィルタリング後の値を記載している。開発初期段階の天文コムの光源には主に Er ファイバ

ーコム、Yb ファイバーコム、Ti:Sa コムが使われてきたのが見てとれる。一方で近年開発されている天文コムの光源には EOM コムやマイクロコムなどの新たな種類の光コムが使われている。

Year	Ref.	Spectrometer	Comb Source	Spacing	Coverage
2008	[17]	VTT	Er:fiber	15 GHz	1.5 μm^*
2010	[76]	HARPS	Yb:fiber	18 GHz	450-600 nm
2012	[77]	TRES	Ti:Sa	50 GHz	400-420 /780-880 nm
2012	[78]	VTT	Yb:fiber	5.5 GHz	480-640 nm
2012	[79]	Pathfinder	Er:fiber	25 GHz	1450-1700 nm
2015	[80]	HARPS-N	Ti:Sa	16 GHz	500-620 nm
2016	[81]	HRS	Yb:fiber	30 GHz	560-680 nm
2016	[82]	C-SHELL&NIRSPEC	EOM	12 GHz	1430-1640 nm
2016	[83]	HARPS	Yb:fiber	18 GHz	450-600 nm
2017	[84]	FOCES	Yb:fiber	25 GHz	460-690 nm
2017	[85]	HARPS-N	Ti:Sa	16 GHz	521-611 nm
2017	[86]	SALT	Ti:Sa	15 GHz	550-890 nm
2017	[87]	VTT	Yb:fiber	8 GHz	460-700 nm
2018	[88]	HRS	Yb:fiber	25 GHz	470-720 nm
2018	[89]	GIANO-B	EOM	14.5 GHz	1400-1800 nm
2019	[90]	HPF	EOM	30 GHz	680-1650 nm
2019	[91]	GIANO-B	Microresonator	23.7 GHz	1480-1650 nm
2019	[92]	NIRSPEC	Microresonator	22.1 GHz	1471-1731 nm

表 5-1 世界の天文コムの開発状況一覧. Spacing はモードフィルタリングを行った後のモード間隔を示している. *印は参照論文 [17]にスペクトルカバー範囲に関する明確な記載がなかったため中心波長のみを示している.

図 5.4 では表 5-1 に記載した波長カバー範囲でをグラフで示している。横軸に天文コムの波長カバー範囲、縦軸にコムのモード間隔をとっており、光コムの光源ごとに帯の色分けを行っている。可視領域だと 400-900 nm、赤外領域だと 1400-1800 nm の波長領域で主に天文コムが開発されており、その中間領域 (900-1400 nm) では開発が進んでいないのが分かる。900-1400 nm の領域で開発が進んでいない理由は適したコム光源がないということではなく、その他のいくつかの要因が絡んでいる。水蒸気の吸収が強くなること、受光器の性能が落ちること、この領域での高分解能分光の研究が進んでいないこと等が挙げられる。

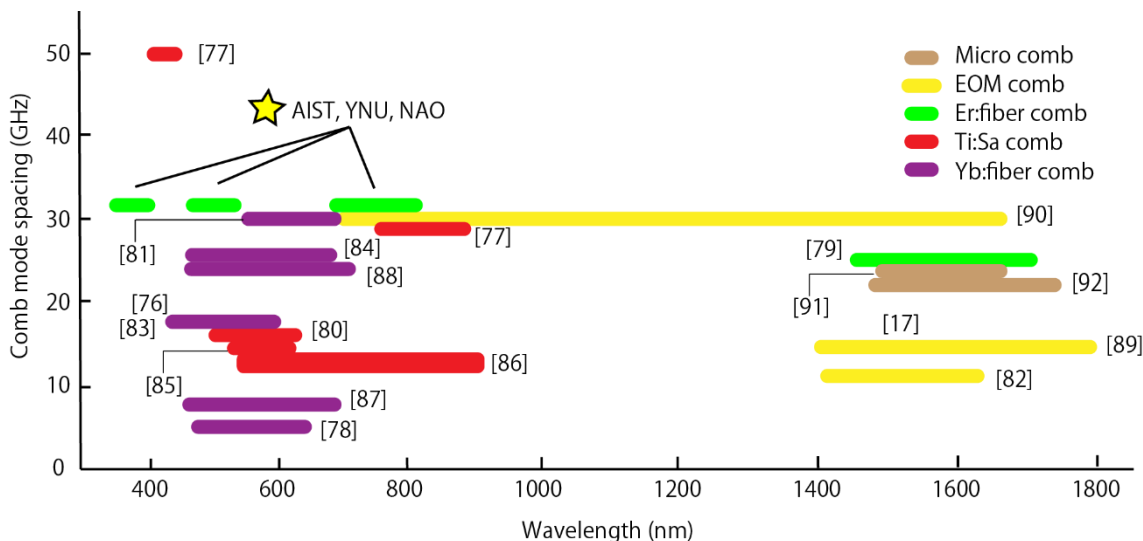


図 5.4 世界各国の天文コムの波長範囲とモード間隔 (Ref. [93]の図を一部改変). 異なる色は異なる光コム光源であることを示している. 「AIST, YNU, NAO」は本研究で開発した天文コムを示す. 波長範囲は 350-405 nm、455-535 nm、670-830 nm であり、モード間隔は 30 GHz.

5.4 産総研・横国・国立天文台開発の天文コム

図 5.5 は産総研・横国・国立天文台が開発した天文コム装置の全体図を示す。基コムは繰り返し周波数 230 MHz の Er 添加ファイバーレーザーベースの光周波数コムである。光コムの繰り返し周波数 f_{rep} とオフセット周波数 f_{CEO} はルビジウム原子時計に対して安定化されている。繰り返し周波数は 3 台の光共振器でモードフィルタリングを行って 30 GHz にしている。共振器間にある EDFA で平均パワーを 3 台目の光共振器前で 1.6 W まで増幅している。その後、高非線形ファイバ (HNLF) とファイバーピグテール導波路型 PPLN で可視域までスペクトル広帯域化を行っている。PPLN の出力は 2 次高調波 (670-830 nm)、3 次高調波 (455-535 nm)、4 次高調波 (350-405 nm) があり、188 cm 望遠鏡からの光と混合された後、高分散分光器 HIDES-F へと送られる。波長 1542 nm のヨウ素安定化レーザーが 3 台の光共振器の共振器長の制御に使われている。ヨウ素安定化レーザーの周波数は光コムとの間のビート周波数が AOM にフィードフォワードされているため、ビートをとっている光コムモードの周波数と完全に一致している。そのため、天文コム応用におけるヨウ素安定化レーザーは、周波数変動の大きさが AOM の中心周波数のバンド幅 (約 10 MHz) 内に収まっていることが求められる。天文コム装置一式は産総研で開発されたのち岡山県へと搬送された。図 5.6 は岡山

天体物理観測所での搬入の際の写真であり、それぞれ天文コム装置の光学ラックを搬入した際の様子、組み上げた天文コム装置全体、観測ドームの外観を示す。

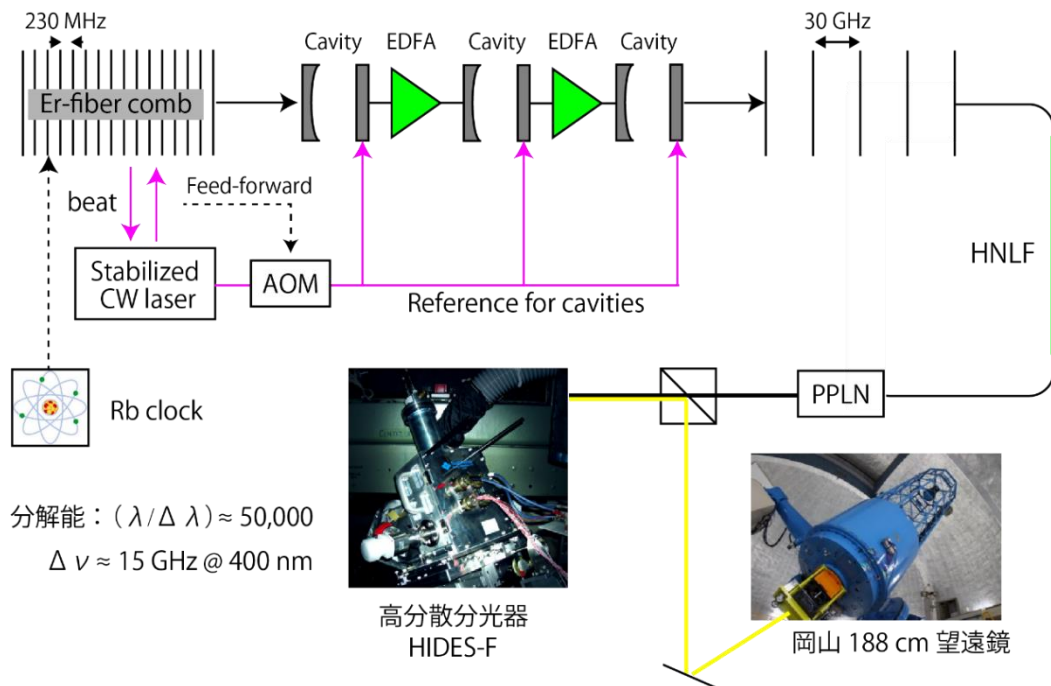


図 5.5 産総研・横国・国立天文台開発の天文コム装置全体図



図 5.6 (左) 天文コムの光学ラックを観測スペースがある2階へと吊り上げている場面。(中央) 観測スペースで組み上げた天文コム一式。本研究で開発したヨウ素安定化レーザーは光学ラック最下段に設置されている。(右) 岡山天体物理観測所 188 cm 望遠鏡ドーム外観。

5.5 天文コムのための周波数安定化レーザー

図 5.7 は天文コムに搭載した周波数安定化レーザーの実験セットアップを示す。ヨウ素分光ならびに周波数安定化手法に関しては図 4.2 と同じであるが、主な違いは以下の 3 つである。

- (1) 1542 nm 光源を ECDL からファイバーレーザーに変更.
- (2) ヨウ素分光系内でのビーム拡大のためのレンズペアを除去
- (3) 周波数の自動リロックシステムを導入.

(1)の理由については後述する。(2)は天文台に搬送・設置するにあたり限られたスペースで光学系を構築しなければならないという要請があったためである。天文コムに関連する光学系はすべて図 5.6 にある光学ラックに設置されて産総研から岡山県まで搬送された。本研究で開発したヨウ素安定化レーザーは光学ラック最下段に置かれ、30 cm × 45 cm のコンパクトなブレッドボードに収まるように構築された (図 5.8 参照)。

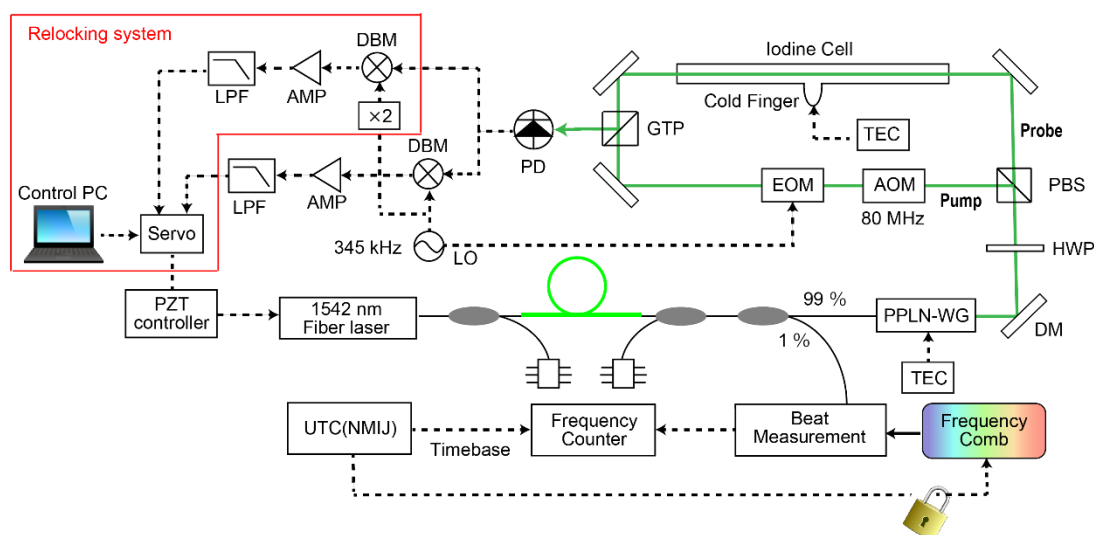


図 5.7 天文コムに搭載した周波数安定化レーザー. ECDL: 外部共振器半導体レーザー, PPLN-WG: 導波路型周期分極反転ニオブ酸リチウム, DM: ダイクロイックミラー, HWP: 半波長板, PBS: 偏光ビームスプリッタ, AOM: 音響光学変調器, EOM: 電気光学変調器, GTP: グラントムソンプリズム, DBM: ダブルバランスミキサ, LPF: ローパスフィルタ, LO: ローカルオシレータ, TEC: 温度コントローラ.

(3)は実用的な場面を想定しての変更である。観測所では観測を行う方向に合わせてドームを回転させるが、そのたびに観測所全体に大きな振動が起こる。その衝撃によっ

て周波数安定化レーザーのロックが外れてしまう可能性があるため、仮にそのような状況になっても自動でロックが復旧するように自動リロックシステムが導入してある。ロックが正常に動作しているかを判定する信号をつくり、ロックが外れたと判断されると自動で周波数スキャンが始まり再びロックポイントのところでロックが復旧する仕組みになっている。ロックがかかっているかを判断する信号には、受光器が受けた 345 kHz の変調がかかった信号を 2 倍の周波数 (690 kHz) で復調した信号を使用した。この信号は、ロックが正常に動作していると一定の電圧値を出し、ロックが外れると 0 V になるためロックの判定に使用することができる。

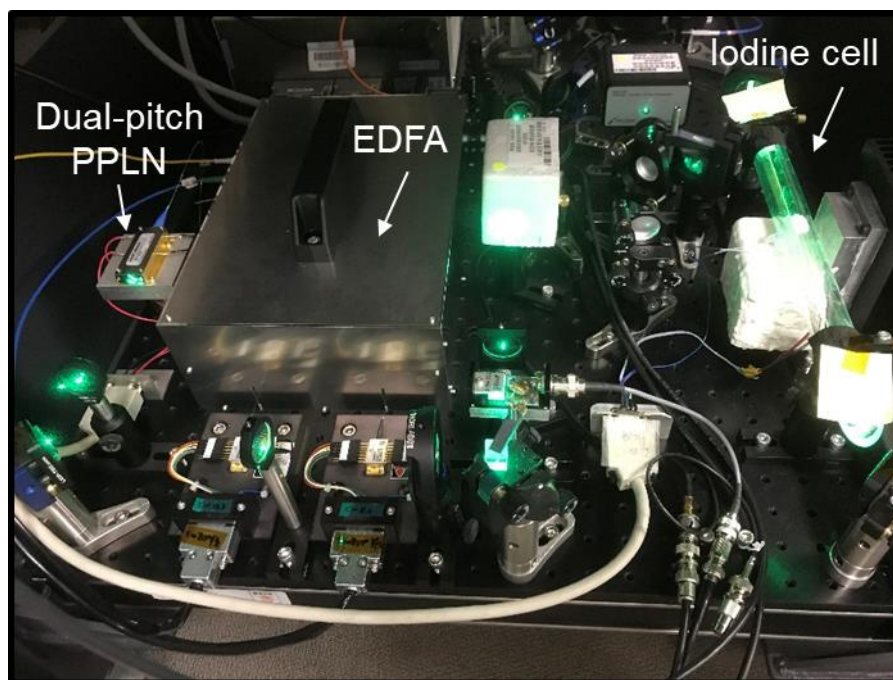


図 5.8 天文コム搭載の周波数安定化レーザー. 30 cm × 45 cm のブレッドボード上に EDFA を含む全ての光学系が構築されている.

図 5.9 内赤線は天文コム搭載のヨウ素安定化レーザーと光周波数コムとのビート周波数変動から計算されたアラン標準偏差である。アラン標準偏差は平均時間 1 秒で 3.0×10^{-12} であり、平均時間 100 秒で 3×10^{-13} まで改善する。黒ダッシュ線と黒ドット線はそれぞれ UTC(NMIJ) とアセチレン安定化レーザーの周波数安定度を示している。比較として、ECDL を用いた場合のアラン標準偏差を緑線で示している。天文コム搭載のヨウ素安定化レーザーは ECDL を用いたヨウ素安定化レーザーと比較して平均時間 1 秒では 1/3 程度周波数安定度が劣っている。この理由については光源の強度雑音の違いによるものであり、次節で詳しく説明する。

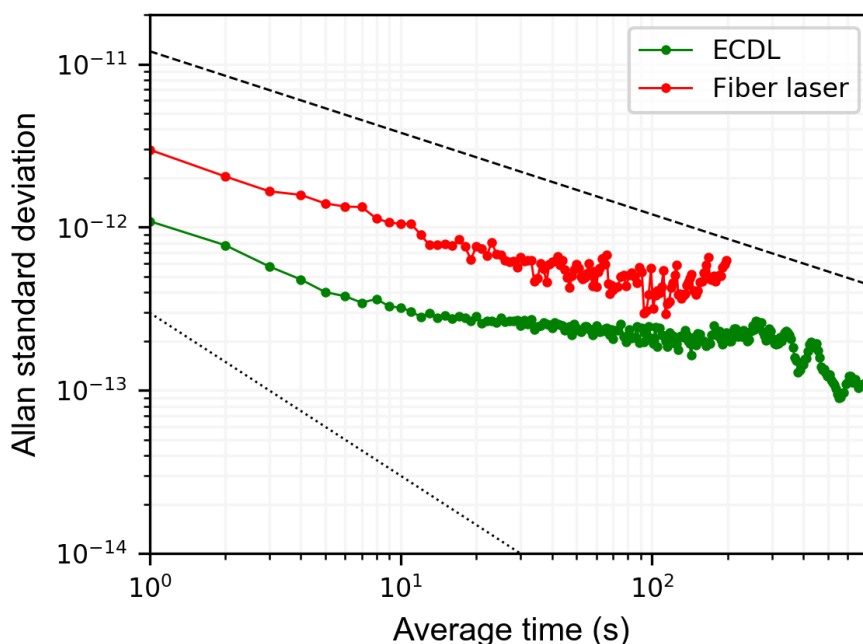


図 5.9 天文コム搭載のヨウ素安定化レーザーと光周波数コムとのビート周波数変動から計算されたアラン標準偏差。黒ダッシュ線と黒ドット線はそれぞれ UTC(NMIJ) とアセチレン安定化レーザーの周波数安定度を示す。

5.6 強度雑音

ファイバーレーザーの出力からは比較的大きな強度雑音が観測された。図 5.10 は本研究で使用したファイバーレーザーと第 4 章で使用した ECDL の相対強度雑音 (RIN) を示す。ECDL の RIN と比較すると、ファイバーレーザーの RIN は 800 Hz と 260 kHz の領域に特徴的なピークがあることが分かる。そのうち 260 kHz のピークはファイバーレーザーの緩和発振によるものである。この緩和発振による強度雑音の周波数帯 (260 kHz) は本研究で Modulation transfer 分光の際に用いた変調周波数 (345 kHz)

と非常に近いため、制御信号の S/N にそのまま影響してしまい図 5.9 で見られるような周波数安定度の悪化につながった。また、EDFA 後のファイバーレーザーの出力光と光コムとのビートを観測すると、ビートと線幅が 1 MHz 程度まで広がっていることが分かった。これは、EDFA の中で起きた強度-周波数変換プロセスに起因していると考えられる。緩和発振はファイバーレーザーに限らず ECDL でも起こる現象ではあるが、その周波数帯が GHz の領域にあるため本研究では影響が少ない。Modulation transfer 分光法では分光を行う原子分子によって使用できる変調周波数の帯域がある程度決まってしまうためレーザー光源の選定は要求される周波数安定度に応じて慎重に吟味する必要がある。本研究で求められる周波数安定度は、観測中の周波数変動が AOM 駆動周波数のバンド幅内に収まっていればよく、本研究で求められている周波数安定度はおよそ 1 MHz (相対周波数変動: 5×10^{-9}) である。したがって、ファイバーレーザーを使用した場合でも十分に応用の要求を満たしている。また、ヨウ素安定化レーザーを天文コムの周波数基準として用いる場合、そこで求められる周波数安定度は観測対象とする天体の大きさによって異なり、木星サイズの系外惑星の場合は 10^{-8} 程度、地球サイズの系外惑星の場合は 10^{-10} 程度の周波数安定度が要求される。本研究では天文コムの周波数基準には Rb 原子時計をしたが、開発したヨウ素安定化レーザーを使用することもできる。

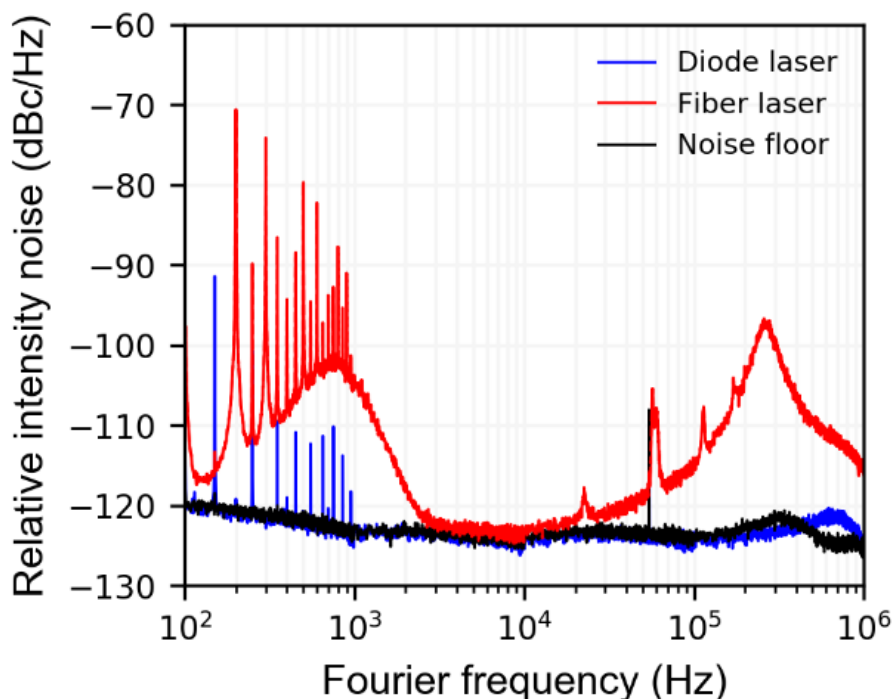


図 5.10 本研究で使用した ECDL とファイバーレーザーの強度雑音.

強度雑音や周波数雑音に対しての要求が厳しくない応用を考えると、ファイバーレーザーは半導体レーザーと比べて出力が 30 mW と高いため応用範囲が広がる。また、波長可変範囲が広い (1542.1 nm – 1542.6 nm) といった優れた特徴を有する非常に優れた光源である。この波長可変範囲は周波数に換算すると 1542 nm で 62.8 GHz、3 倍波をとった 514 nm で 188.5 GHz である。図 5.11 は本研究で使用したデュアルピッチ PPLN における、結晶温度に対する擬似位相整合条件を満たすポンプ光の波長を示す。第 2 ステージの QPM-pitch である 6.6625 μm 、6.6750 μm 、6.6875 μm の場合について計算した¹⁷。デュアルピッチ PPLN を用いた 3 倍波プロセスをファイバーレーザーの波長可変範囲全体で行うには結晶温度を約 5 $^{\circ}\text{C}$ 変えれば良いことが分かった。514 nm 帯における 188.5 GHz という広い周波数範囲の中には、数十本ものヨウ素の吸収線が存在する [7]。これらのヨウ素分子吸収線の超微細構造を観測することは、超微細構造定数の回転・振動量子数依存性の理解へとつながり、原子分光学への大きな貢献をもたらす [94, 95, 96, 97]。

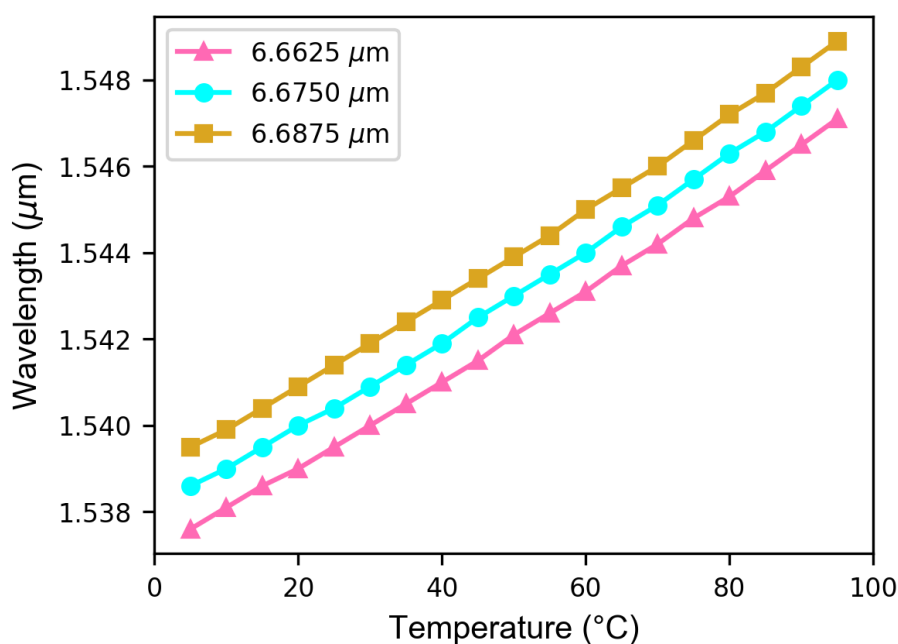


図 5.11 デュアルピッチ PPLN の位相整合温度計算. QPM-pitch が 6.6625 μm 、6.6750 μm 、6.6875 μm の場合で計算している。

¹⁷ この計算は Non-dope PPLN の屈折率を用いて計算しており、本研究で使用した Zn-dope PPLN と厳密には異なっている。また、本研究で使用したデュアルピッチ PPLN の導波路サイズは比較的大きいため、導波路分散の影響はそれほど大きくない。

第6章

長距離量子通信のための周波数安定化レーザー

量子情報通信は、遠く離れた利用者間で無条件安全に暗号鍵を共有する手法として実現が期待されている。光ファイバーを用いた光子伝送はファイバー中での損失が課題である。光ファイバーの伝送損失は通信波長帯を使った場合でも 0.2 dB/km であるため、 1000 km 伝送すると 200 dB すなわち $1/10^{20}$ となり、通信速度が極端に低下してしまう。そのため、長距離量子通信のためには量子中継器が欠かせない [98, 99, 100]。量子中継器ノードの中では、量子メモリが使われており伝搬する光子の量子状態をメモリ物質の電子スピンや核スピンに転写を行っている。この過程により遠方にある離れた量子メモリ間でのもつれ形成を可能にしている。量子メモリが吸収・放出する光子の波長は一般的に可視光領域に存在しており、その例として $\text{Pr}^{3+}:\text{Y}_2\text{SiO}_5$ (606 nm) [101]、ダイヤモンド窒素空孔 (NV) 中心 (637.2 nm) [102]、ダイヤモンドシリコン空孔中心 (738 nm) [103]などが挙げられる。したがって、量子中継器をベースにした長距離量子通信の実現のためには、可視（または近赤）から通信波長間の波長変換が必要不可欠であり、これまで様々な量子メモリに対して波長変換の研究が進められてきている [104, 105, 106, 107]。量子メモリの候補として研究が進められている物質の線幅は狭いため、通信波長帯と量子メモリを高効率で結合させるためには、波長変換に使用する励起レーザーの周波数安定度を量子メモリの線幅に対して十分抑える必要がある。そのため、周波数安定化の研究は、量子情報の分野の中でも量子中継器や量子メモリと同様に重要な研究テーマである。ここで量子メモリの有力な候補であるダイヤモンド NV 中心を例にとって話を展開すると、ダイヤモンド NV 中心の吸収発光波長は 637.2 nm であり、線幅は約 10 MHz である [108] (図 6.1)。本研究では、ダイヤモンド NV 中心の吸収発光波長である 637.2 nm と通信波長間の波長変換を念頭に、波長 1064 nm の市販の小型固体レーザーの周波数安定化を行う。周波数安定化を行う小型レーザーは、周波数アクチュエータがなく周波数制御が困難であったため、固体レーザーを励起する LD を制御ポートとする独自の周波数制御方法を提案した。ヨウ素分光には高価な光学部品を必要としない Third harmonic 検波法を用いており、装置全体を小型かつ簡便な設計にして周波数安定化を実施している。

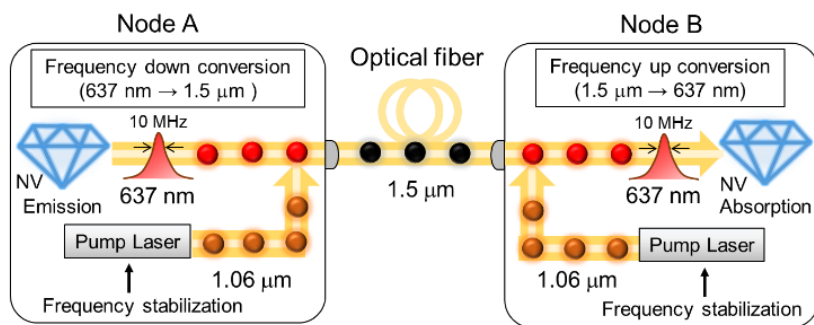


図 6.1 ファイバーベースの量子通信の概念図。

6.1 周波数安定化を行うレーザーについて

6.1.1 波長変換用励起レーザーに求められる特性

本研究で周波数安定化を行うレーザーは市販の波長 1064 nm の小型固体レーザー (Showa Optronics; J500FS) である。図 6.2 は小型固体レーザーのレーザーヘッドの写真を示す。レーザーヘッドの大きさは 95 mm × 28 mm × 37 mm (長さ×幅×高さ) である。長距離量子ネットワークを考えると量子中継器は km オーダーの間隔で各地に配置されることが想定される [109]ため、波長変換用励起レーザーは小型にして可搬性を高めた方が良い。また波長変換に使用するためには、十分な出力パワーがあり、狭線幅であることが望ましい。そのため本研究で使用したレーザーは、線幅が 1 MHz 以下 (スペックシート値) かつ出力が 500 mW のものを選択しており、ダイヤモンド NV 中心を想定した波長変換用励起レーザーに求められる要請を満たしていると言える。



図 6.2 本研究で使用した小型固体レーザー。レーザー装置全体はレーザーヘッドとレーザーコントローラで構成されている。レーザーヘッドの大きさは 95 mm × 28 mm × 37 mm (長さ × 幅 × 高さ) である。

6.1.2 小型固体レーザーの周波数変調方法

図 6.3 は小型固体レーザーのレーザーヘッド内部の模式図を示す。内部の LD がレンズなどの光学系を通った後にレーザー結晶を励起する。レーザー結晶は Nd:YVO₄ である。励起された Nd:YVO₄ レーザーは 1064 nm で発振する。レーザー結晶端面とアウトプットミラー間で共振器が構成されており、それにより線幅が狭くなっている。共振器長は 20 mm である (1 mm の結晶の厚みを含む)。共振器底面にはペルチェ素子が設置されており、温度制御を行っている。

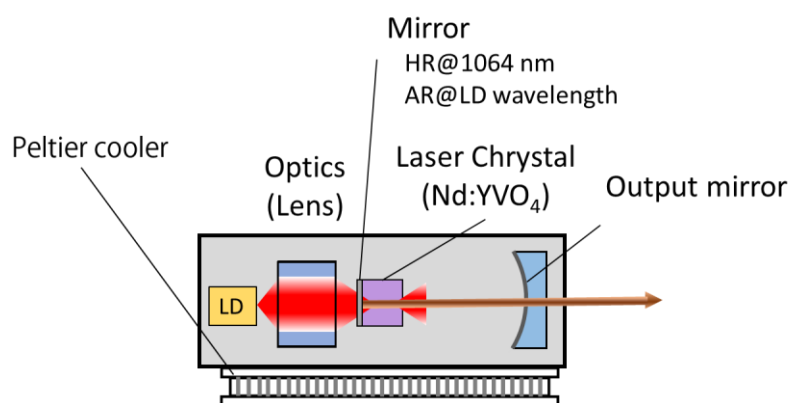


図 6.3 LD 励起固体レーザーのレーザーヘッド内部

この Nd:YVO₄ レーザーは、小型・狭線幅・高出力という優れた特徴を有している一方で周波数制御のためのピエゾ素子などのアクチュエータがないという欠点がある。そこで、小型固体レーザー内の励起 LD の駆動電流を使って周波数制御を行う [110, 111]。図 6.4(a) は励起 LD の電流値を変えたときの 1064 nm 光の出力パワーの変化を示す。直流安定化電源の出力 (4 V から 6V まで 0.2 V 間隔) をレーザーコントローラ背面にある LD 電流の外部制御ポートに入れることで電流を変化させている。図 6.4(a) から分かるように電流値を増大するにともなって 1064 nm 光の出力パワーも線形で増加している。このスロープの傾きは 0.5 W/A である。図 6.4(b) は励起 LD の電流値を変化させたときの 1064 nm 光の周波数の変化を示す。電流値の掃引幅は図 6.4(a) と同じである。周波数は 1064 nm 光の出力をシングルモードファイバーにカップリングし、波長計に接続することで測定している。図 6.4(b) より励起 LD に印加する電流値を増加させることで出力周波数が低周波側へ線形で変化している。このスロープの傾きは -1.8 GHz/A である。この周波数変化の理由は、励起 LD の電流値を変化させたことで Nd:YVO₄ レーザーの温度の変化を誘導し、レーザー結晶の屈折率 (すなわち光路長) の変化につながったためである。ヨウ素分子の吸収線 1 本のドップラー幅に相当する約

1 GHz の周波数を掃引できることが確認でき、励起 LD 電流の外部制御ポートを小型固体レーザーの周波数安定化のための制御ポートとして使用できることが分かった。

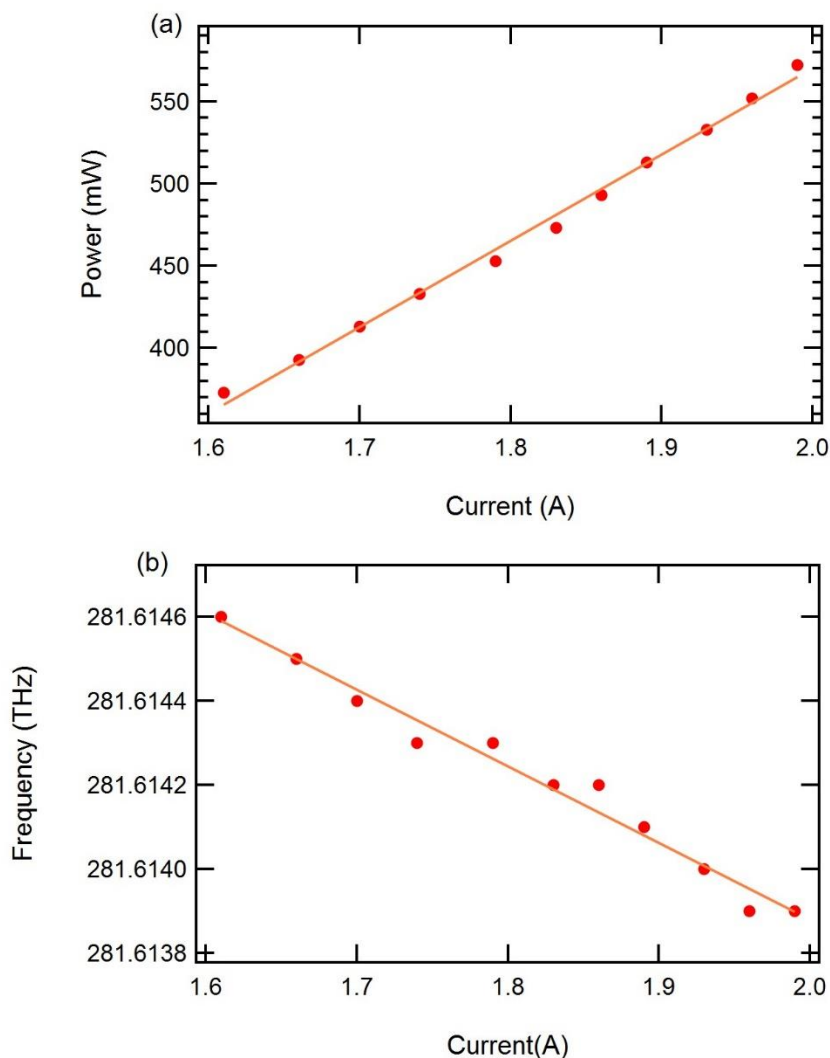


図 6.4 小型固体レーザーの励起 LD 電流値を変化させたときの(a)レーザーパワーと(b)レーザー周波数の変化.

小型固体レーザーの出力光を周波数変調する際は、LD 電流の外部制御ポートに \sin 波を入力する。周波数変調が行えているかどうかは、別の狭線幅レーザーとの光ビートをスペクトラムアナライザーで観測することで確認できる。図 6.5 変調周波数を変化させたときは小型固体レーザーとヨウ素安定化 Nd:YAG レーザー (波長: 1064 nm、線幅: 1-2 kHz) のビートスペクトルを示す。変調周波数はそれぞれ 0.6 kHz、1 kHz、1.3 kHz、1.6 kHz、2.6 kHz であり、変調のために LD に入力した \sin 波の振幅は 500

mV_{pp} である。ヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーの線幅は小型固体レーザーに対して十分に狭いため、観測される線幅は小型固体レーザーによるものである。ビートスペクトルの頂点が下に凸の形になっている特徴的な形は小型固体レーザーに付与している周波数変調によるものである。図 6.5 変調周波数を変化させたときのから変調周波数に応じて変調幅が異なっていることが分かる。図 6.6 は外部制御ポートに入力する \sin 波の周波数を変化させたときのレーザー周波数の変調幅を示す。入力した \sin 波の振幅は $500 mV_{pp}$ であり、周波数は 600 Hz から 3 kHz まで 100 Hz ごとに変化させていった。変調の感度が最も高くなったのは変調周波数を 1.3 kHz に設定した時であり、このときの変調幅は 8.5 MHz であった。 1.3 kHz よりも変調周波数を大きくすると、変調幅が急激に小さくなっていくのが確認された。これはレーザーヘッドにつながっているレーザーコントローラによる制限であると考えられる。しかし、変調感度が低くなる周波数帯であってもゲインを大きくすることで周波数変調を行うことは可能である。そのため、本研究では 2.6 kHz に変調周波数を設定した。これは、変調周波数を高く設定することで $1/f$ ノイズの影響を可能な限り抑えるという目的がある。また、この測定から励起 LD の電流を制御ポートとしたときの制御帯域は kHz 程度確保できていることが確認できた。

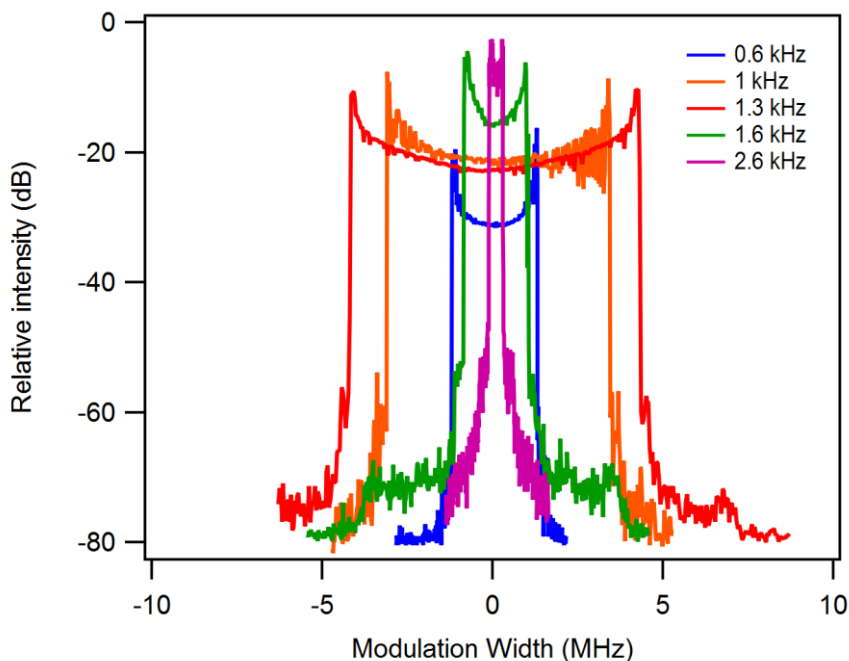


図 6.5 変調周波数を変化させたときの小型固体レーザーとヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーのビートスペクトル。分解能 3 kHz 。

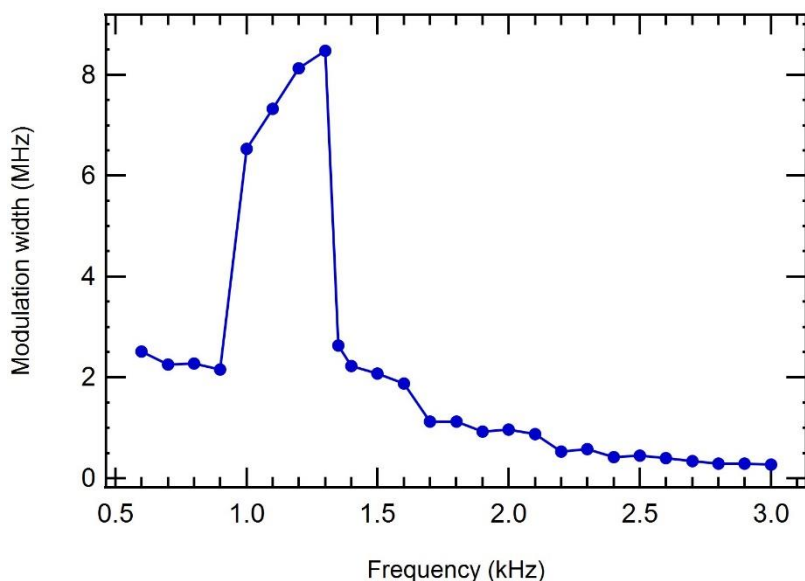


図 6.6 変調周波数を変化させたときの変調幅の変化.

6.2 Third harmonic 検波法

第4章の周波数安定化レーザー開発では、ヨウ素分子分光手法として Modulation transfer 分光法を用いている。この分光法は、ドップラー背景の影響を受けない真つすぐなベースラインの信号を取得することができるという利点がある一方で、EOM などの高価な光学部品を必要とするという欠点もある。本研究の周波数安定化レーザー開発では量子中継器搭載を見込んでいるため、低コストでの開発を目指している。そこで、本章ではより簡便な分光手法である光源変調分光法（Third-harmonic 検波法）を使用する [112, 69]。レーザー周波数を数 kHz～数 MHz 程度の周波数で変調したうえで吸収信号を観測すると、吸収信号の成分もこれと同期して変調されるため、同期した高調波成分だけを検出すれば、 $1/f$ ノイズの影響を抑えることができ、微弱な信号の検出感度向上につながる。ここで、周波数 ω_0 のレーザーに対して変調周波数 ω_m 、変調幅 $\Delta\omega$ で周波数変調を行い、飽和吸収によるラムディップを観測する場合について考える。レーザー光が周波数変調されている場合、受光器が受けるパワーの変動は、

$$P(\omega) = P(\omega_0 + \Delta\omega \sin \omega_m t) \quad (6-1)$$

と書ける。式(6-1)をテイラー展開すると次のように記述される。

$$P(\omega) = P(\omega_0) + \Delta\omega \sin \omega_m t \left. \frac{dP(\omega)}{d\omega} \right|_{\omega_0} + \frac{\Delta\omega^2}{2!} \sin^2 \omega_m t \left. \frac{d^2P(\omega)}{d\omega^2} \right|_{\omega_0} + \frac{\Delta\omega^3}{3!} \sin^3 \omega_m t \left. \frac{d^3P(\omega)}{d\omega^3} \right|_{\omega_0} + \dots \quad (6-2)$$

三角関数によると $\sin^n \omega_m t$ は $\sin n\omega_m t$ の成分を含んでおり、式(6-2)から $\sin^n \omega_m t$ の項の振幅は n 次の微分信号に比例する。したがって、受光器でラムディップを含む飽和吸収信号を検出した後に、 $3\omega_m$ の成分をフィルターで抜き出してミキサで位相敏感検波を行うと、得られる信号は飽和吸収信号の3次微分信号であり、その信号はドップラー背景の2次以下の成分を含まない。この分光手法では変調周波数の高次微分信号を得られるが、その次数が偶数次だと吸収線の中心でゼロクロスする信号にはならないため、周波数安定化を行うためには奇数次の信号を使うのが適している。そのため、必ずしも3次微分を使う必要はなく、3次微分では消しきれなかった高次成分を排除するために5次の微分信号を用いて安定化を行っている研究もある [113]。

6.3 実験

図 6.7 は開発した小型ヨウ素安定化励起レーザーシステムの概念図を示す。光源には波長 1064 nm の小型固体レーザーが使用されている。レーザーの出力はアイソレータを透過した後、二次高調波発生のため PPKTP 結晶 (Bulk, 結晶長 2 cm) に入射される。ここでの SHG 光の出力は 5 mW である。PPKTP 結晶の透過光はダイクロイックミラーにより基本波と SHG 光に分離される。ダイクロイックミラーを透過した基本波は長距離量子通信のための波長変換または周波数計測に使用される。一方で、SHG 光は長さ 40 cm のヨウ素セルを用いた飽和吸収分光系へ送られる。ヨウ素分子の分光は Third harmonic 検波法 [112, 69]で行われており、小型固体レーザーを励起している LD の電流値を通じて周波数変調を行っている。偏光ビームスプリッタ (PBS) とヨウ素セルを透過したビーム (ポンプ光) は、平面ミラーで折り返し反射され、反射光 (プローブ光) はポンプ光と空間的にオーバーラップをとっている。ヨウ素セルと平面ミラー間には 1/4 波長板が設置されており、これによりポンプ光とプローブ光の偏光は 90° ずれている。結果として、プローブ光は PBS で反射され受光器 (New Focus; MODEL 2001) へと送られる。小型固体レーザーは励起 LD の駆動電流にローカルオシレータ (LO, YOKOGAWA; FC300) の 2.6 kHz の \sin 波を加えることで周波数変調をしている。一方で、得られた飽和吸収信号はミキサ (Mini-circuit; ZAD-6+) を使って3倍の周波数である 7.8 kHz で復調される。通常、Third-harmonic 検波法は低ノイズの信号を獲得するため、数百 kHz 程度の比較的高い周波数で実施される。しかしながら、本研究では周波数応答が遅いレーザーコントローラを通して周波数変調を行っている

ため、変調周波数を 2.6 kHz に設定している。ミキサーで復調して得られた 3 次微分信号はサーボコントローラ (New Focus; LB1005) とレーザーコントローラを通じて励起 LD の駆動電流へとフィードバックされる。3 次微分信号の波形はデータ取得デバイス (DAQ) を使用して記録される。周波数安定度の評価には、基本波 (1064 nm) を使用してヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーとのヘテロダインビートを測定する。ビート信号はスペクトラムアナライザーで観測され、周波数カウンター (Pendulum; CNT-90) で測定される。ヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーの絶対周波数は GPS からの基準信号に安定化された光周波数コムを使って測定される。

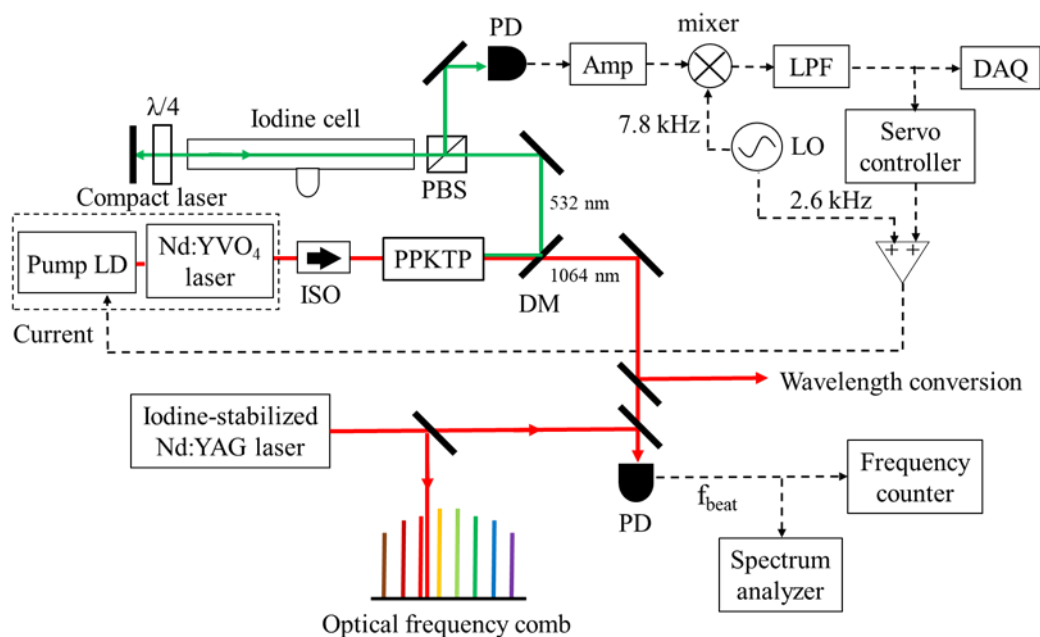


図 6.7 小型周波数安定化レーザーの概念図. ISO: アイソレータ, PPKTP: Periodically poled KTiOPO₄, DM: ダイクロイックミラー, PBS: 偏光ビームスプリッター, PD: 光検出器, LO: ローカルオシレータ, LPF: ローパスフィルタ, DAQ: データ取得デバイス, Amp: 電気増幅器, $\lambda/4$: 1/4 波長板, f_{beat} : ビート周波数, LD: レーザーダイオード.

6.4 周波数安定度

図 6.8 は観測したヨウ素分子 R(86)33-0 遷移 a_{10} 吸収線の 3 次微分飽和吸収信号である。周波数スキャンは小型固体レーザーの励起 LD の電流を掃引することで行った。ポンプ光のパワーは 3 mW であり、コリメートされたビーム径は 1 mm である。ヨウ素セルのコールドフィンガー温度は 7 °C (ヨウ素分子圧力: 8 Pa) に保たれている。ヨウ素セル本体の温度は室温 (24 °C) と同程度である。本研究で観測した R(86)33-0 遷移

は下準位の回転量子数が偶数 ($J = 86$) であるため、振動回転エネルギー準位は 15 個に分裂する。結果として 15 本の超微細構造が観測されている。その中で超微細構造 a_{10} が周波数安定化の対象として選ばれた理由は、隣接する他の超微細構造線から隔離されていることが挙げられる。観測した a_{10} の信号対雑音比は 100 Hz の時定数で 78 であり、線幅は ~ 1 MHz であった。

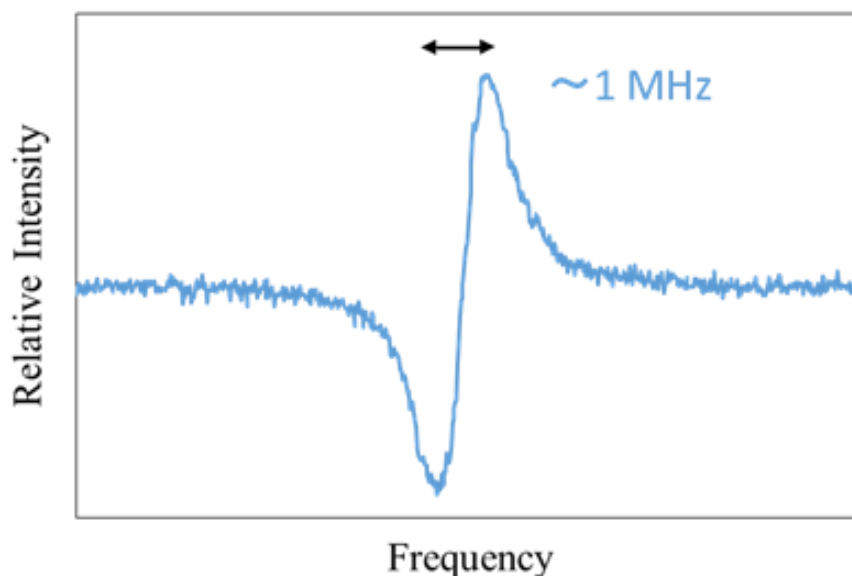


図 6.8 R(86)33-0 遷移の a_{10} 吸収線の 3 次微分飽和吸収信号. 時定数は 10 ms. スペクトルの線幅は 1 MHz. 信号対雑音比は 78. データ取得のための掃引時間は約 1 秒.

図 6.9(a)は小型固体レーザーとヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーのビート周波数の 1 時間分の変動を示す。このときヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーは小型固体レーザーと同じく R(86)33-0 遷移の a_{10} 吸収線に安定化されている。二つのレーザーは同じ吸収線に安定化されているが、ヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーはヨウ素分光手法の中で AOM による周波数シフト (80 MHz) があるため、基本波の周波数は小型固体レーザーに対して 20 MHz ずれている¹⁸。図 6.9(a)赤線は小型固体レーザーがフリーランの時、青線は周波数ロックされているときのデータである。図 6.9(b)は小型固体レーザーが周波数ロックされているときのビート周波数の 12 時間分の変動を示す。周波数カウンタのゲート時間は 1 秒である。観測されたビート周波数変動はフリーラン時で 38 MHz、周波数ロック時だと 1 時間測定の際に 3 kHz、12 時間測定の際に 12 kHz であった。ヨウ

¹⁸ AOM でポンプ光 (532 nm) の周波数を 80 MHz シフトすると、ドップラーシフトによりヨウ素分子の吸収周波数から 40 MHz ずれたポイントにロックされる。そのため、基本波での光ビート周波数はその半分の 20 MHz になる。

素安定化 Nd:YAG レーザーの周波数安定度は平均時間 1 秒で $<10^{-13}$ (周波数換算で <100 Hz) であるため¹⁹、測定された周波数変動は小型固体レーザーによるものである。図 6.9(c)は測定されたビート周波数変動から計算されたアラン標準偏差である。フリーラン時の小型固体レーザーの周波数安定度は平均時間 1 秒で 5.5×10^{-10} であり、平均時間 700 秒になると 2.6×10^{-8} まで悪化する。ダッシュ線は本研究で要求される周波数安定度 (3.5×10^{-9}) を示しており、ダイヤモンド NV 中心の線幅の 1/10 (1 MHz) に設定している。フリーラン時の小型固体レーザーの周波数安定度は平均時間 30 秒を過ぎると要求を満たさなくなる。一方で、周波数ロック時の周波数安定度は平均時間 1 秒で 6.5×10^{-13} (周波数換算すると 180 Hz) であり、フリーラン時と比較して 3 桁向上している。周波数ロック時のアラン標準偏差の最小値と最大値はそれぞれ 4.0×10^{-13} (平均時間 13 秒) と 5.7×10^{-12} (平均時間 3600 秒) であり、アラン標準偏差が最大値の場合でもダイヤモンド NV 中心の要求ラインから 2 桁以上小さい値となっている。アラン標準偏差は平均時間が 3600 秒よりも大きくなると再び向上していることから、本研究で開発した周波数安定化レーザーは長期運転においてダイヤモンド NV 中心の要求を満たしていることが実証された。図 6.10 は周波数安定化したときの小型固体レーザーでヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーのビートスペクトルを示す。周波数変調により線幅は 400 kHz 程度に広がっている。図 6.9 で示したアラン標準偏差は平均時間を 1 秒から表示しているため、この線幅の広がりには表現されていないが、周波数変調による線幅広がりをアラン標準偏差で表現すると、変調周波数 (2.6 kHz) の逆数であるミリ秒程度の平均時間で 400 kHz (相対周波数変動: 1.4×10^{-9}) 程度の変動があることに相当する。400 kHz という変調幅が応用に支障をきたす場合は、現状よりも小さくすることも可能である。ヨウ素分光を行う際の変調幅は、観測する吸収線の線幅との比によって最適な値が決定される。本研究では、変調幅を 400 kHz にしたときに最もエラー信号の S/N 比が大きくなったため、この値に設定している。この変調幅からずれてくるとエラー信号の S/N 比が悪化して短期の周波数安定度が劣化することが予想されるが、本研究で達成された周波数安定度は NV センターの要求に対して十分であるため、周波数安定度をある程度犠牲にすることで変調幅を小さくすることは有効な手段であると言える。

¹⁹ これは R(56)32-0 遷移の a_{10} 吸収線に対して安定化されたときの周波数安定度であるが、R(86)33-0 遷移は R(56)32-0 遷移と同じ波長帯にあり、同程度の吸収強度であるため、この評価は妥当であると考えられる。

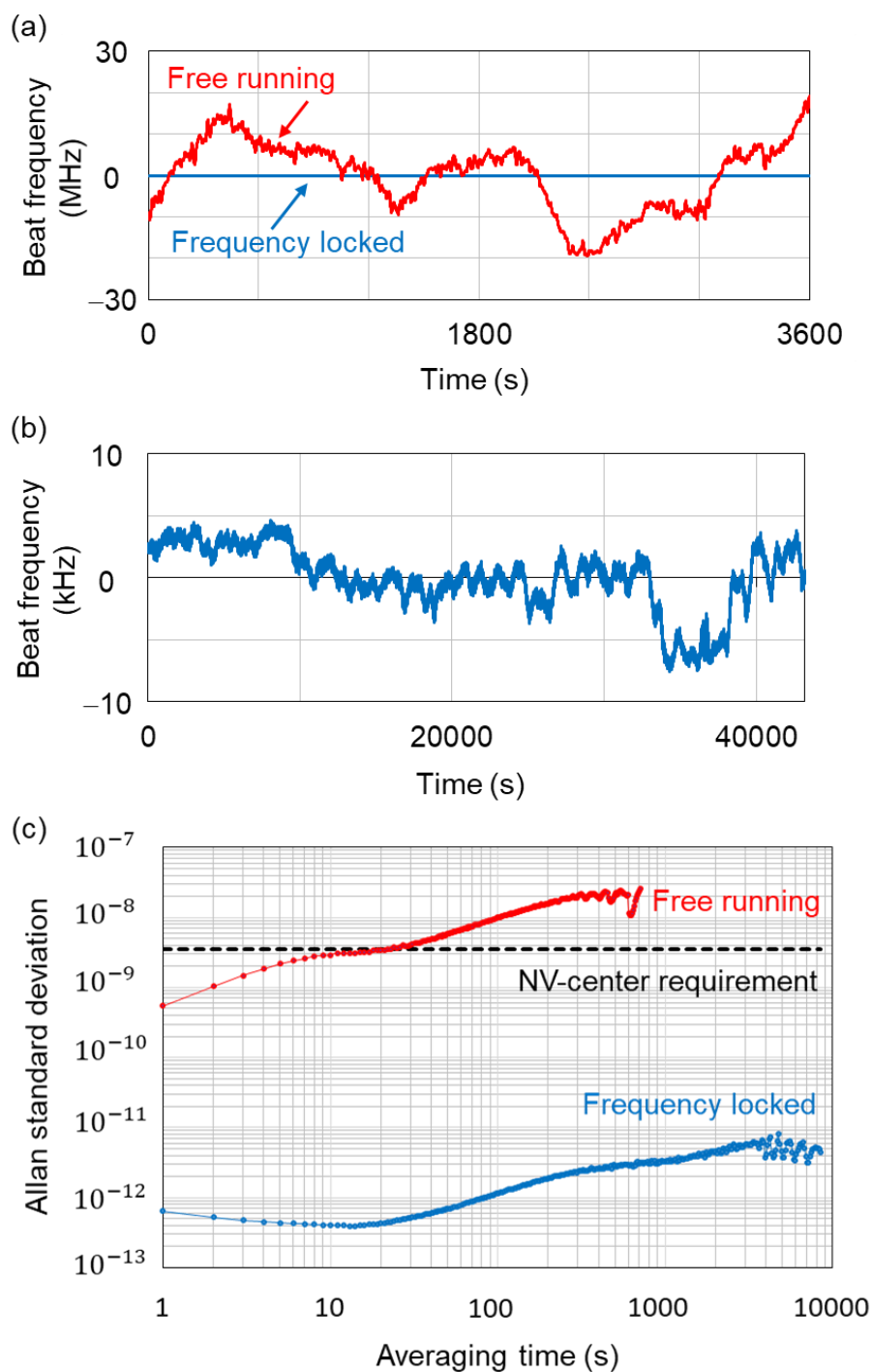


図 6.9 小型固体レーザーとヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーのビート周波数の変動. (a) 小型レーザーがフリーランの時と周波数ロックされている時 (測定時間 1 時間). (b) 小型レーザーが周波数ロックされている時 (測定時間 12 時間). (c) ビート周波数から計算されたアラン標準偏差. フリーラン時と周波数ロック時はそれぞれ(a)と(b)のデータから計算. ダッシュ線は本研究で求められる周波数安定度要求.

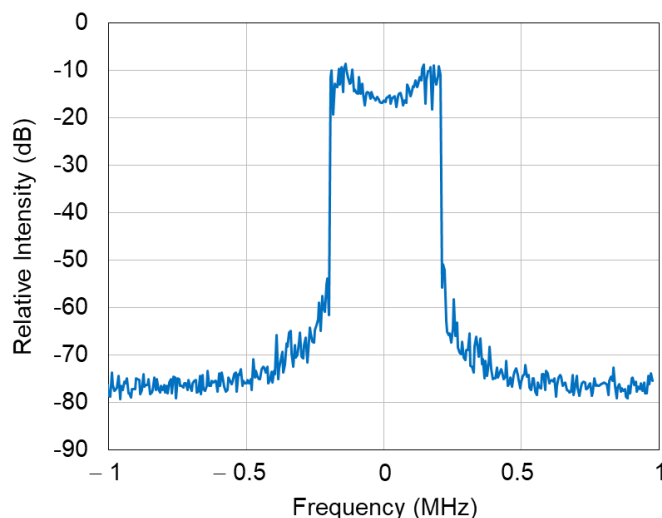


図 6.10 小型固体レーザーとヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーのビートスペクトル。分解能 3 kHz.

周波数安定化を行った小型固体レーザーの絶対周波数は、小型固体レーザーとヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーのビート周波数から計算できる。ヨウ素分子 R(86)33-0 遷移 a_{10} に安定化されたヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーの基本波の絶対周波数はあらかじめ光周波数コムを用いて計測されており、 $281, 614, 322, 178.5 \text{ kHz} \pm 0.5 \text{ kHz}$ と決定されている。そこから R(86)33-0 遷移の同じ超微細構造に安定化された小型固体レーザーの絶対周波数は $281, 614, 302, 191.1 \text{ kHz} \pm 1.6 \text{ kHz}$ と計算された。周波数の不確かさ（相対不確かさ： 5.7×10^{-12} ）は主に小型固体レーザーのアラン標準偏差の最大値から算出されている。Nd:YAG レーザーと小型固体レーザーはどちらも同じ遷移に対して安定化されているにもかかわらず 12.6 kHz という周波数差が生じている理由は、異なるヨウ素セルを使用していることや違う分光手法を用いていることなどが挙げられる。いずれにしても、この周波数差はダイヤモンド NV 中心の要求よりも十分に小さい値であり、離れた量子中継器の励起レーザーの周波数再現性を保証している。また、周波数安定化された小型固体レーザーの線幅は図 6.10 のように 400 kHz 程度である。この線幅もダイヤモンド NV 中心の要求よりも十分に小さい。同じ分光手法を用いている先行研究 [69] の場合、線幅は $1\text{--}2 \text{ MHz}$ に広がっており、ダイヤモンド NV 中心の要求を超えている。

図 6.9(c)に示されているように、ヨウ素安定化小型固体レーザーの周波数安定度は平均時間 13 秒から 3600 秒にかけて 4.0×10^{-13} から 5.7×10^{-12} に悪化している。これは残留振幅変調 (RAM) [114]によるものであると考えられる。復調の過程で周波数変調信号と一緒に RAM 信号が周波数ミキサースに入力されると、結果として 3 次微分信号の

ベースラインにオフセットを生じることになる。仮に RAM 信号が時間依存しているとすると、このベースラインオフセットも時間変化することになる。これはサーボシステムのターゲット電圧の変化を意味しており、周波数ドリフトの原因となる。RAM による周波数の不安定さを低減させるには、RAM の時間変動だけではなく RAM 自体を減らすことが大切である。本研究で RAM が生じている原因としては、(i)分光系内のエタロン効果、(ii)Nd:YVO₄ レーザーの励起 LD の電流変調によるレーザー強度変調の 2 つが挙げられる。本研究では、分光系内のエタロン効果を減らすために光学素子をビームの入射方向に対して傾けるなどの対策をしている。しかしながら、励起 LD の電流変調は周波数変調のためにはなくすることができないため強度変調を減らすことはできない。図 6.11 は周波数安定化した小型固体レーザーとヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーのビート周波数変動（黒線）とその時の励起 LD の電流値（赤線）を示す。両者の変動には明らかな相関がみられおり、これはフィードバックによって LD の電流値が変化することによって強度変調（RAM）の大きさも変動することに由来する。関連した問題は他にもあり、サーボに由来するレーザーパワーシフト（AC シュタルクシフト）による周波数ドリフトである。周波数安定化の間、フィードバック信号はレーザー周波数を変えるだけでなくレーザーパワーも変えることになるが、レーザーパワーが変化するとヨウ素の遷移周波数もシフトするため、これらが現在の分光手法の限界になっていると考えられる。しかしながら、これまでも述べたように、アラン標準偏差は平均時間 3600 秒を過ぎると、これらの効果は平均化され始め、不安定さは減少する。したがって、現在の周波数安定化手法は遠方のダイヤモンド NV 中心をつなぐのに効果的であるといえる。

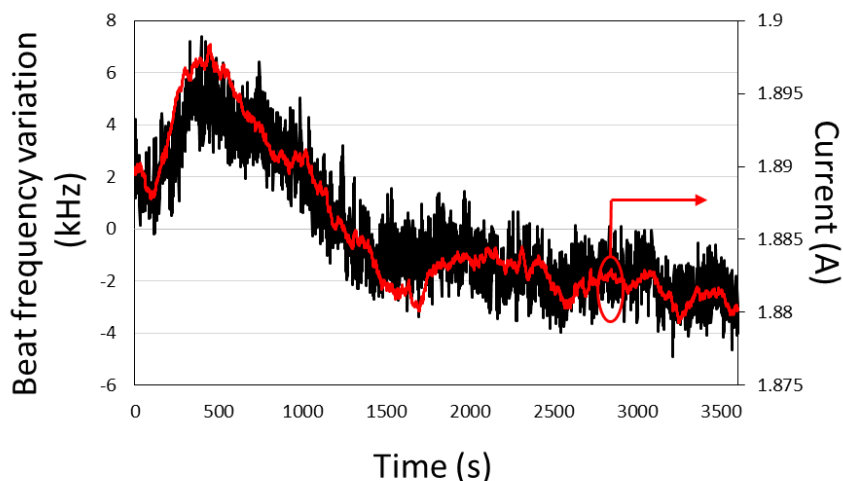


図 6.11 ビート周波数変動と励起 LD 電流の関係。

小型固体レーザーの基本波は長距離量子通信のための波長変換に使われるため、PPKTP 透過後のレーザービームのパワーと横モードの評価を行った。図 6.12(a)はダイクロイックミラー透過後の基本波パワーの時間変化を示す。基本波のパワーは 300 mW 以上確保できており、1 時間の測定時間の間に減衰は見られなかった。これは高効率かつ安定な波長変換を保証していることになる。図 6.12(b)は CCD カメラで測定した基本波の横モードである。測定されたプロファイルはガウシアン関数にのっとっており、楕円率は約 0.9 である。観測されたビームプロファイルは導波路型 PPLN などの波長変換素子への高効率な結合に有効である。Tamura らは波長 1071 nm の励起レーザーを使用して 637.2 nm と通信波長間をつなぐ波長変換を達成しており、励起光パワー 500 mW のときに最大の変換効率を得ている [115]。しかしながら、同様の波長変換は本研究で使用したレーザーでもすでに達成しており、励起光パワー 350 mW のときに最大変換効率 35 %を得ている。最大変換効率が得られる励起レーザーパワーが異なっている原因は、ビームクオリティの違いで PPLN への結合効率に差が生じたことが挙げられる。このビームクオリティと高出力を維持しながら、高い周波数安定度を実現していることが本研究で開発した安定化レーザーの大きな価値であるといえる。例えば、先行研究 [69]の場合、長期周波数安定度は本研究のものと大差はないが、出力される基本波 (1062 nm) のパワーが 100 mW と比較的低く、光アンプを使わない限り十分なパワーであるとは言えない。しかしながら、量子中継器ノードに光アンプを搭載することは設備コストがかさんでしまうという欠点がある。

本研究で開発した小型周波数安定化レーザーシステムは、通信波長とダイヤモンド NV 中心の発光吸収波長である可視光との間の波長変換が行われる量子中継器に搭載するのに必要な条件を満たしている。しかしながら、実際に二つの遠方のメモリを光子によって結合させる場合を考えると、二つのメモリ間の周波数ディチューニングが問題になり、そのディチューニングは数 GHz に及ぶこともある。したがって、通常ダイヤモンド NV 中心から発光した光子がそのまま別のダイヤモンド NV 中心に吸収されることはないが、この問題は励起レーザーを使うことによって解決できると考えられる。波長変換の過程は、ダイヤモンド NV 中心からの光子と励起レーザー間でのエネルギーの和または差である。したがって、ダイヤモンド NV 中心間のディチューニングは励起レーザーのディチューニングで補填できる。つまり、二つの量子メモリの発光吸収波長は波長計を使うことで 100 MHz の精度で決定できるため、AOM 等を使用してダイヤモンド NV 中心の吸収が最大になるように遠方ノードの励起レーザー周波数をシフトすればよい。もし励起レーザーの絶対周波数が決定していれば遠方ノードのダイヤモンド NV 中心のディチューニングはあらかじめ決定することができる。本研究では R(86)33-0 の a_{10} に周波数安定化を行っているが、ヨウ素分子の吸収線は他にも豊富に存在するため、励起レーザーで補填するにはディチューニングが大きすぎる際には、別の超微細構造線もしくは全く別の吸収線に安定化を行うこともできる。

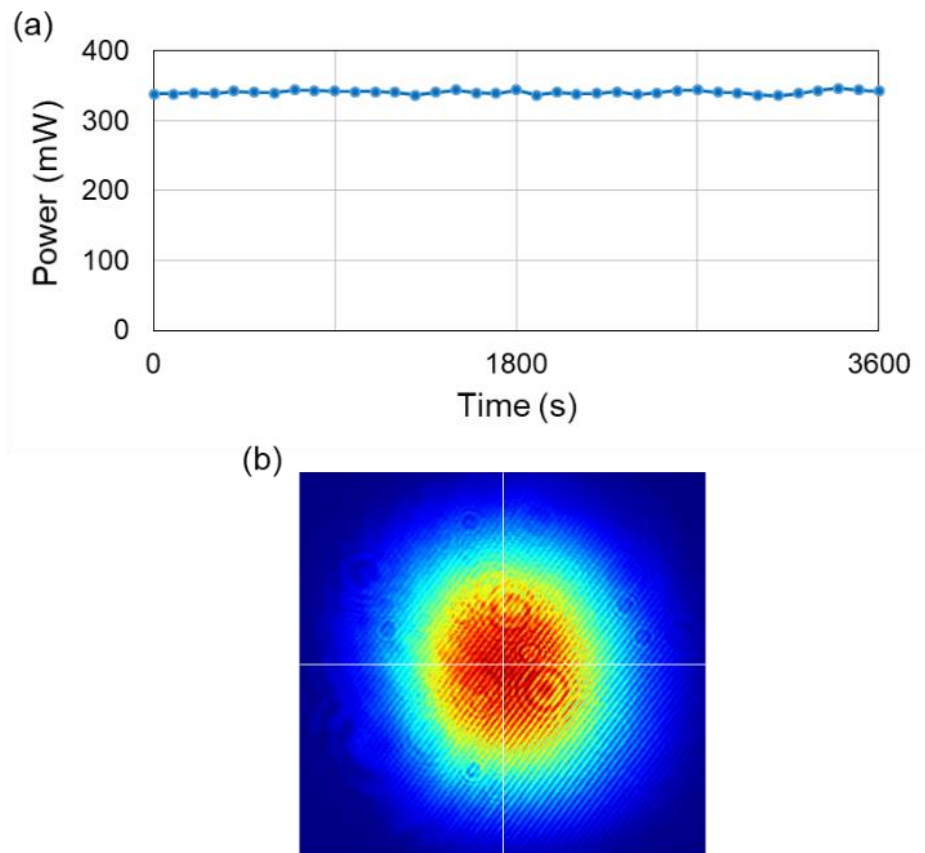


図 6.12 (a)小型固体レーザー出力パワーの長期安定性. (b)基本波の横モード.

第7章

総括

本研究では、通信波長帯光周波数標準の高精度化を目的として、通信波長帯レーザーのヨウ素分子への周波数安定化、また、長距離量子通信のための波長変換用励起レーザー開発として波長 1064 nm 小型固体レーザーの周波数安定化に関する研究を行った。通信波長帯レーザーのヨウ素分子への周波数安定化に関する研究では、1542 nm の通信波長帯からヨウ素分子の吸収線が存在する 3 倍波領域への波長変換に用いる導波路型デュアルピッチ PPLN の評価を行った。これは一つの導波路内で二次高調波発生と和周波発生を連続的に起こして 3 倍波を発生させる非線形光学結晶であり、CW レーザーで用いるのは本研究が初めてである。デュアルピッチ PPLN は、位相整合条件をうまく調整するために第 1 ステージの QPM ピッチにチャープが施してある。そのため、位相整合曲線取得時には、デュアルピッチ PPLN 導波路の第 1 ステージと第 2 ステージの両側からレーザー光を入射させることで、3 倍波発生に位相整合に加え、第 1 ステージのチャープによって二次高調波発生に位相整合曲線が広がっている様子を確認することができた。また、二つの曲線を重ねることで効率的に 3 倍波が発生する導波路の根拠を視覚的に理解することができ、実験結果の裏付けをすることができた。また、入射する基本波パワーに対する 3 倍波出力の曲線から規格化変換効率を算出し、ヨウ素分光に際して本研究で必要な基本波のパワーを見積もった。その見積もりから本研究に適した EDFA の作製を行ったことで、ヨウ素分光を行うのに十分な光パワーを得ることにつながった。発生した 3 倍波を用いてヨウ素分子 R(73)46-0 吸収線の超微細構造を初めて観測し、そのうちの一つの遷移に対して周波数安定化を行った。この遷移に安定化されたレーザー周波数は、現行の通信波長帯の光周波数標準であるアセチレン振動回転バンド P(16)に安定化されたレーザー周波数からわずか 0.6 GHz しか離れていないため、将来的に現行のシステムを大幅に変更する必要がないということで大きな価値がある。達成した周波数安定度は平均時間 1 秒で 1.1×10^{-12} であり、アセチレン安定化レーザーをはじめ、これまで開発されてきた多くの通信波長帯光周波数標準の周波数安定度を上回っているため、ヨウ素分子を使うことで周波数安定度が向上することを明らかにすることができた。また、光周波数コムを用いて絶対周波数計測と不確かさ評価を行ったことで、通信波長帯の光周波数標準として十分に信頼性がある光源開発ができたと言える。本研究で開発した周波数安定化レーザーは、アセチレン安定化レーザー開発に見られるような光

共振器を使用していないため長期運転の面でも十分に信頼性がある。そのため、現在は岡山天体物理観測所に搬入され、系外惑星探索や宇宙膨張などの研究に向けて天文コムの基準レーザーとして応用されている。また、長距離量子通信のための波長変換用励起レーザーの周波数安定化では、波長 1064 nm の LD 励起固体レーザーの二次高調波発生とヨウ素分子への周波数安定化を行った。励起 LD の電流を制御ポートとする強度-周波数変換による制御を実現し、今後の周波数安定化レーザー開発の可能性を広げることにつながった。達成した周波数安定度は平均時間 1 秒で 6.5×10^{-13} であり、量子メモリとして想定しているダイヤモンド NV 中心の線幅よりも十分に狭い結果となっている。電気光学変調器などの高価な光学部品を使用せずにダイヤモンド NV 中心に対して適用するのに十分な安定度を達成できることを示し、今後の量子中継器搭載に向けた周波数安定化レーザー開発の道筋をつけることができた。

本研究では、ヨウ素分子 R(73)46-0 吸収線の全 21 本の超微細構造観測に成功したが、絶対周波数を決定できたのはそのうちの 1 本のみであるため、今後はその他 20 本の絶対周波数計測を行う必要がある。光周波数標準開発にあたっては、レーザーの同調範囲や発振条件の観点から、周波数が既知の吸収線が増えるほど、周波数標準分野への貢献が大きい。そのため、本研究では観測していない P(91)48-0 及び P(57)45-0 の超微細構造の絶対周波数計測も大いに期待される。これらの研究は、周波数標準の発展以外にも超微細構造定数などを計算することでヨウ素分子のエネルギー構造理解にもつながる。ヨウ素分子の豊富な吸収線の中でも、500 nm から 520 nm は解離限界に近く、他の帯域と比べて特に自然幅が狭いといった特徴がある。従来、この領域の吸収線を観測するのに適したレーザーは数少なかったため、デュアピッチ PPLN を用いることで通信波長帯の狭線幅レーザーが使えるようになったのは非常に価値がある。解離限界付近での振動回転ダイナミクスや超微細相互作用についての研究が発展することが期待される。また、周波数安定度のさらなる向上も期待される。周波数安定度を決める要素としてエラー信号の信号対雑音比があるが、これは主にレーザーとヨウ素分子の相互作用長で決まる。そのため、本研究で使用した 30 cm のヨウ素セルよりも長いセルの使用やマルチパスの導入が有効である。そのうえで正確に吸収線幅測定を行い、最適な変調周波数の導出や圧力及び光パワーの最適化を行うことで、1 秒で 10^{-14} 台に及ぶ高安定な安定化レーザーが実現できると期待している。

付録 A

狭線幅半導体レーザーの同調範囲とヨウ素吸収線

第 4 章で使用した狭線幅半導体レーザーの周波数可変範囲を調べることは、観測可能なヨウ素吸収線を把握するうえで有益な情報となる。図 A-1 は、狭線幅半導体レーザーの温度を変えた時の 3 倍波の周波数変化の様子と対応するヨウ素吸収線の強度を示す。この時の狭線幅半導体レーザーの電流値は 79 mA である。

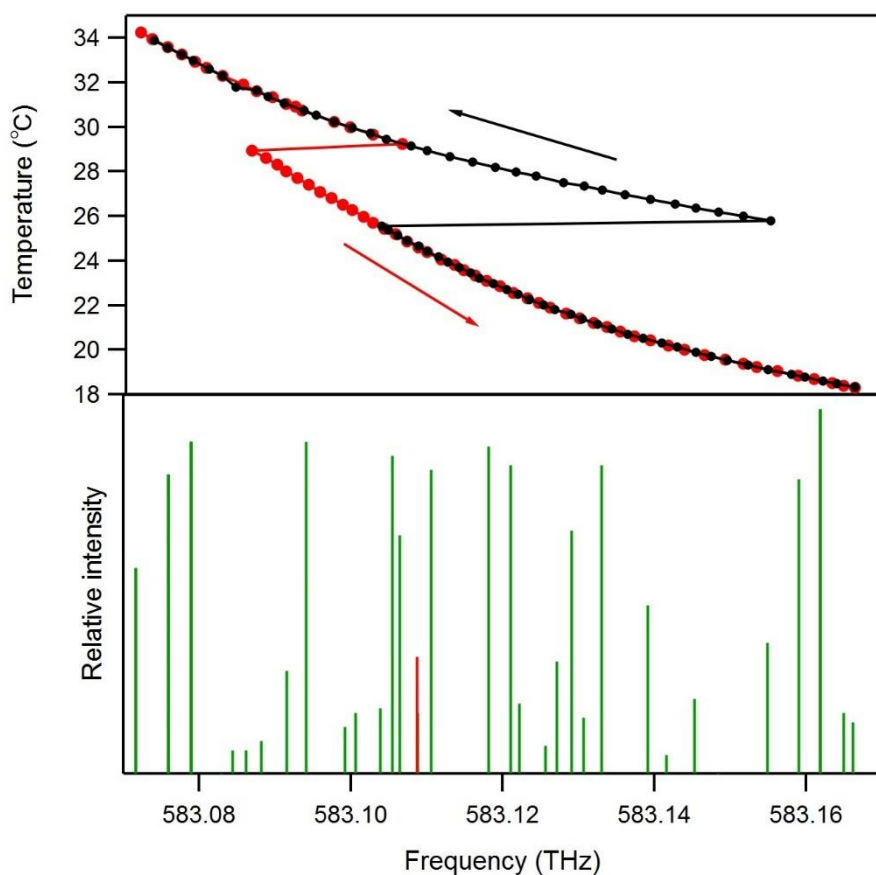


図 A-1 狭線幅半導体レーザーの周波数変化（上）とヨウ素吸収線の強度（下）。吸収線強度は [7] を参照した。

図 A-1 の結果では、レーザー温度を上げた時（黒線）と下げた時（赤線）で変化の様子が異なるヒステリシスな結果が得られている。約 100 GHz の周波数掃引範囲内には比較的強度が強い遷移が 10 本以上存在することが分かった。表 A-1 に比較的高強度 ($I > 50$) のヨウ素吸収線の強度、周波数を示す。この情報は今後、新たな周波数標準の構築や超微細構造の研究に生かされることが期待される。

MESUR. (cm ⁻¹)	I	ASSIGN	Frequency (MHz)
19449.3184	69	R(94)58-1	583075897.0
19449.3184	69	R(38)44-0	583075897.0
19449.3184	69	P(86)56-1	583075897.0
19449.4197	76	P(36)44-0	583078933.9
19449.4197	76	P(61)52-1	583078933.9
19449.4197	76	R(111)51-0	583078933.9
19449.9255	76	R(59)45-0	583094097.4
19450.3037	73	P(57)45-0	583105435.5
19450.3376	56	P(91)48-0	583106451.8
19450.4734	70	R(73)46-0	583110523.0
19450.7271	75	R(37)44-0	583118128.7
19450.824	71	P(35)44-0	583121033.7
19451.0918	57	P(82)47-0	583129062.2
19451.2263	71	P(71)46-0	583133094.4
19452.0928	68	R(36)44-0	583159071.4
19452.1858	83	R(58)45-0	583161859.4
19452.1858	83	P(34)44-0	583161859.4

表 A-1 狭線幅半導体レーザーで観測可能なヨウ素吸収線 ($I > 50$) .

参考文献

- [1] T. Udem, R. Holzwarth and T. W. Hänsch, "Optical frequency metrology," *Nature* **416**(6877), 233–237 (2002).
- [2] F.-L. Hong, "Optical frequency standards for time and length applications," *Meas. Sci. Technol.* **28**(1), 012002 (2017).
- [3] V. Gerginov, N. Nemitz, S. Weyers, R. Schröder, D. Griebisch, R. Wynands, "Uncertainty evaluation of the caesium fountain clock PTB-CSF2," *Metrologia*, **47**(1), 65-79 (2009).
- [4] K. Szymaniec, S. E. Park, G. Marra, W. Chałupczak, "First accuracy evaluation of the NPL-CsF2 primary frequency standard," *Metrologia*, **47**(4), 363-376 (2010).
- [5] J. Guena, M. Abgrall, D. Rovera, P. Laurent, B. Chupin, M. Lours, G. Santarelli, P. Rosenbusch, M. E. Tobar, R. Li, K. Gibble, A. Clairon, S. Bize, "Progress in atomic fountains at LNE-SYRTE," *Ultrasonics, Ferroelectrics and Frequency Control, IEEE Transactions on* **59**(3), 391-409 (2012).
- [6] 洪 鋒雷, "秒の再定義に向けての原子時計の新しい進展—「秒の二次表現」—," *日本物理学会誌*, 第 65 巻, pp. 80-88 (2010).
- [7] S. Gerstenkorn, P. Luc, "Atlas Du Spectre D' Absorption de la Molecule D' Iode," Editions de CNRS, Paris (1978).
- [8] J. Ye, L. Robertsson, S. Picard, L.-S. Ma, J. L. Hall, "Absolute frequency atlas of molecular I/sub 2/ lines at 532 nm," *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **48**(2), 544-549 (1999).
- [9] T. J. Quinn, "Practical realization of the definition of the metre, including recommended radiations of other optical frequency standards (2002)," *Metrologia* **40**,103-133 (2003).
- [10] J. L. Hall, L.-S. Ma, M. Taubman, B. Tiemann, F.-L. Hong, O. Pfister, J. Ye, "Stabilization and frequency measurement of the I/sub 2/-stabilized Nd:YAG laser," *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **48**(2), 583-588 (1998).
- [11] 尾藤洋一, 平井亜紀子, 吉森秀明, 洪鋒雷, 大苗敦, 岩崎茂雄, 瀬田勝男, "3本の安定化レーザを用いた長尺ブロックゲージ干渉計の開発," *精密工学会誌* Vol. 68, No. 4 (2002).
- [12] T. Schuldt, S. Saraf, A. Stochino, K. Doringshoff, S. Buchman, G. D. Cutler, J.

-
- Lipa, S. Tan, J. Hanson, B. Jaroux, C. Braxmaier, N. Gurlebeck, S. Herrmann, C. Lammerzahl, A. Peters, A. Alfauwaz, A. Alhussien, B. Alsuwaidan, T. A. Saud, H. Dittus, U. Johann, S. P. Worden, R. L. Byer, "Testing Special Relativity in Space Using High Performance Optical Frequency References," IFCS-EFTF (2015).
- [13] K. Döringshoff, F. B. Gutsch, V. Schkolnik, C. Kürbis, M. Oswald, B. Pröbster, E. V. Kovalchuk, A. Bawamia, R. Smol, T. Schuldt, M. Lezius, R. Holzwarth, A. Wicht, C. Braxmaier, M. Krutzik, A. Peters, "Iodine Frequency Reference on a Sounding Rocket," *Phy. Rev. Appl.* **11**, 054068 (2019).
- [14] S. Schiller, "Spectrometry with frequency combs," *Opt. Lett.* **27**, 766-768 (2002).
- [15] F. Keilmann, C. Gohle, R. Holzwarth, "Time-domain mid-infrared frequency-comb spectroscopy," *Opt. Lett.* **29**, 1542-1544 (2004).
- [16] I. Coddington, I. Coddington, W. C. Swann, N. R. Newbury, "Coherent Multiheterodyne Spectroscopy Using Stabilized Optical Frequency Combs," *Phys. Rev. Lett.* **100**, 013902 (2008).
- [17] T. Steinmetz, T. Wilken, C. Araujo-Hauck, R. Holzwarth, T. W. Hänsch, L. Pasquini, A. Manescau, S. D'Odorico, M. T. Murphy, T. Kentischer, W. Schmidt, T. Udem, "Laser frequency combs for astronomical observations," *Science* **321**(5894), 1335-1337 (2008).
- [18] K. Numata, J. R. Chen, S. T. Wu, J. B. Abshire and M. A. Krainak, "Frequency stabilization of distributed-feedback laser diodes at 1572 nm for lidar measurements of atmospheric carbon dioxide," *Appl. Opt.* **50**(7), 1047-1056 (2011).
- [19] S. Droste, G. Ycas, B. R. Washburn, I. Coddington, N. R. Newbury, "Optical Frequency Comb Generation based on Erbium Fiber Lasers," *Nanophotonics* **5**(2), 196-213 (2016).
- [20] H. Inaba, Y. Daimon, F.-L. Hong, A. Onae, K. Minoshima, T. R. Schibli, H. Matsumoto, M. Hirano, T. Okuno, M. Onishi, M. Nakazawa, "Long-term measurement of optical frequencies using a simple, robust and low-noise fiber based frequency comb," *Opt. Express* **14**(12), 5223-5231 (2006).
- [21] R. Felder, "Practical realization of the definition of the metre, including recommended radiations of other optical frequency standards (2003)," *Metrologia* **42**(4), 323-325 (2005).

-
- [22] <https://www.bipm.org/en/publications/mises-en-pratique/standard-frequencies.html>.
- [23] K. Nakagawa, M. d. Labachellerie, Y. Awaji , M. Kourogi, “Accurate optical frequency atlas of the 1.5- μm bands of acetylene,” *J. Opt. Soc. Am. B* **13**(12), 2708-2714 (1996).
- [24] A. Onae, K. Okumura, J. Yoda, K. Nakagawa, A. Yamaguchi, M. Kourogi, K. Imai , B. Widiyatomoko, “Toward an accurate frequency standard at 1.5 μm based on the acetylene overtone band transition,” *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **48**(2), 563-566 (1999).
- [25] A. Pesatori, M. Norgia, V. Calabrese, G. Galzerano, E. Bava , C. Svelto, “Optical Frequency Standard by HI Doppler-Broadened Absorption and External-Cavity Laser Diode at 1.541 μm ,” *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **57**(8) (2008).
- [26] M. Yoshida, K. Yoshida, K. Kasai , M. Nakazawa, “1.55 μm hydrogen cyanide optical frequency-stabilized and 10 GHz repetition-rate-stabilized mode-locked fiber laser,” *Opt. Express* **24**(21), 24287-24296 (2016).
- [27] J. E. Bernard, A. A. Madej, K. J. Siemsen, L. Marmet, C. Latrasse, D. Touahri, M. Poulin, M. Allard , M. Têtu, “Absolute frequency measurement of a laser at 1556 nm locked to the $5S_{1/2}$ - $5D_{5/2}$ two-photon transition in ^{87}Rb ,” *Opt. Commun.* **173**(1-6), 357-364 (2000).
- [28] J. Ye, S. Swartz, P. Jungner , J. L. Hall, “Hyperfine structure and absolute frequency of the ^{87}Rb $5P_{3/2}$ state,” *Opt. Lett.* **21**(16), 1280-1282 (1996).
- [29] S. Saraf, P. Berceau, A. Stochino, R. Byer , J. Lipa, “Molecular frequency reference at 1.56 μm using a $^{12}\text{C}^{16}\text{O}$ overtone transition with the noise-immune cavity-enhanced optical heterodyne molecular spectroscopy method,” *Opt. Lett.* **41**(10), 2189-2192 (2016).
- [30] F.-L. Hong, A. Onae, J. Jiang, R. Guo, H. Inaba, K. Minoshima, T. R. Schibli , H. Matsumoto, “Absolute frequency measurement of an acetylene-stabilized laser at 1542 nm,” *Opt. Lett.* **28**(23), 2324-2326 (2003).
- [31] M. Takamoto, F.-L. Hong, R. Higashi , H. Katori, “An optical lattice clock,” *Nature* **435**, 321 (2005).
- [32] 武者満, “高精度光ファイバリンクを用いた Sr 光格子時計の計測,” レーザー研究, 第 38 巻, 第 7, pp. 505-511 (2010).
- [33] V. Leonhardt, J. H. Chow , J. B. Camp, “Laser frequency stabilization to

-
- molecular resonances for TPF-C, LISA and MAXIM,” Proc. SPIE 6265, 62652M (2006).
- [34] J. F. Cliche, C. Latrasse, M. Têtu, A. Babin, S. Tremblay, S. Tranchart, D. Poulin, “Turnkey compact frequency standard at 1556 nm based on Rb two-photon transitions,” Conference on Precision Electromagnetic Measurements (CPEM), Digest, 674-675 (2004).
- [35] K. P. Huber, G. Herzberg, Spectra and Molecular Structure IV. Constants of Diatomic Molecules, D. van Nostrand, 1979.
- [36] B. Bodermann, M. Klug, H. Knöckel, E. Tiemann, T. Trebst, H. R. Telle, “Frequency measurement of I₂ lines in the NIR using Ca and CH₄ optical frequency standards,” Appl. Phys. B 67, (1998).
- [37] W.-Y. Cheng, L. Chen, T. H. Yoon, J. L. Hall, J. Ye, “Sub-Doppler molecular-iodine transitions near the dissociation limit (523-498 nm),” Opt. Lett. 27(8), 571-573 (2002).
- [38] J. Vigué, M. Broyer, J. C. Lehmann, “Natural hyperfine and magnetic predissociation of the I₂ B state I. - Theory,” J. Physique 42, 937-947 (1981).
- [39] J. Vigué, M. Broyer, J. C. Lehmann, “Natural hyperfine and magnetic predissociation of the I₂ B state II. - Experiments on natural and hyperfine predissociation,” J. Physique 42, 949-959 (1981).
- [40] J. Wallerand, L. Robertsson, L.-S. Ma, M. Zucco, “Absolute frequency measurement of molecular iodine lines at 514.7 nm, interrogated by a frequency-doubled Yb-doped fibre laser,” Metrologia 43, 294-298 (2006).
- [41] C. J. Bordé, G. Camy, B. Decomps, “Measurement of the recoil shift of saturation resonances of ¹²⁷I₂ at 5145 Å: A test of accuracy for high-resolution saturation spectroscopy,” Phys. Rev. A 20(1), 254-268 (1979).
- [42] F. du Burck, C. Daussy, A. Amy-Klein, A. N. Goncharov, O. Lopez, C. Chardonnet, J.-P. Wallerand, “Frequency measurement of an Ar/sup +/- laser stabilized on narrow lines of molecular iodine at 501.7 nm,” IEEE Trans. Instrum. Meas. 54, 754-8 (2005).
- [43] J. J. Snyder, R. K. Raj, D. Bloch, M. Ducloy, “High-sensitivity nonlinear spectroscopy using a frequency-offset pump,” Opt. Lett. 5, 163-165 (1980).
- [44] J. H. Shirley, “Modulation transfer processes in optical heterodyne saturation spectroscopy,” Opt. Lett. 7(11), 537-539 (1982).
- [45] L. Hollberg, L.-S. Ma, M. Hohenstatt, J. L. Hall, “Precision measurements

-
- by optical heterodyne techniques,” SPIE **426**, 91-98 (1983).
- [46] G. Camy, C. J. Bordé , M. Ducloy, “Heterodyne saturation spectroscopy through frequency modulation of the saturating beam,” Opt. Commun. **41**(5), 325-330 (1982).
- [47] R. K. Raj, D. Bloch, J. J. Snyder, G. Camy , M. Ducloy, “High frequency optically heterodyned saturation spectroscopy via resonant degenerate four-wave mixing,” Phys. Rev. Lett. **44**, 1251-1254 (1980).
- [48] 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**, 377-385 (2004).
- [49] T. Preuschoff, M. Schlosser , G. Birkl, “ Optimization strategies for modulation transfer spectroscopy applied to laser stabilization,” Opt. Express **26**(18), 24010-24019 (2018).
- [50] L.-S. Ma , J.-L. Hall, “Optical heterodyne spectroscopy enhanced by an external optical cavity: Toward improved working standards,” IEEE J. Quantum. Electron. **26**, 2006-2012 (1990).
- [51] M. Asobe, H. Miyazawa, O. Tadanaga, Y. Nishida , H. Suzuki, “A highly damage-resistant Zn:LiNbO₃ ridge waveguide and its application to a polarization-independent wavelength converter,” IEEE J. Quantum Electron. **39**(10), 1327-1333 (2003).
- [52] T. Nishikawa, A. Ozawa, Y. Nishida, M. Asobe, F.-L. Hong , T. W. Hänsch, “Efficient 494mW sum-frequency generation of sodium resonance radiation at 589 nm by using a periodically poled Zn:LiNbO₃ ridge waveguide,” Opt. Express **17**(20), 17792-17800 (2009).
- [53] C. Wang, C. Langrock, A. Marandi, M. Jankowski, M. Zhang, B. Desiatov, M. M. Fejer , M. Loncar, “ Ultrahigh-efficiency wavelength conversion in nanophotonic periodically poled lithium niobate waveguides,” Optica **5**(11),1438-1441 (2018).
- [54] L. Chang, Y. Li, N. Volet, L. Wang, J. Peters , J. E. Bowers, “Thin film wavelength converters for photonic integrated circuits,” Optica **3**(5), 531-535 (2016).
- [55] A. Rao, K. Abdelsalam, T. Sjaardema, A. Honardoost, G. F. Camacho-Gonzalez , S. Fathpour, “Actively-monitored periodic-poling in thin film lithium niobate photonic waveguides with ultrahigh nonlinear conversion

-
- efficiency of $4600\%W^{-1}cm^{-2}$,” *Opt. Express* **27**(18), 25920-25930 (2019).
- [56] T. Kobayashi, D. Akamatsu, Y. Nishida, T. Tanabe, M. Yasuda, F.-L. Hong , K. Hosaka, “Second harmonic generation at 399 nm resonant on the 1S_0 - 1P_1 transition of ytterbium using a periodically poled $LiNbO_3$ waveguide,” *Opt. Express* **24**(11), 12142-12150 (2016).
- [57] K. Iwakuni, S. Okubo, S. Tadanaga, H. Inaba, A. Onae, F.-L. Hong , H. Sasada, “Broadband frequency comb,” *Opt. Lett.* **41**, 3980-3983 (2016).
- [58] K. Hitachi, A. Ishizawa, T. Nishikawa, M. Asobe , T. Sogawa, “Carrier-envelope offset locking with a $2f$ -to- $3f$ self-referencing interferometer using a dual-pitch PPLN ridge waveguide,” *Opt. Express* **22**(2), 1629-1635 (2014).
- [59] D. H. Jundt, “Temperature-dependent Sellmeier equation for the index of refraction, n_e , in congruent lithium niobate,” *Opt. Lett.* **22**(20), 1553-1555 (1997).
- [60] C. Philippe, E. Chea, Y. Nishida, F. d. Burck , O. Acef, “Efficient third harmonic generation of a CW-fibered $1.5\ \mu m$ laser diode,” *Appl. Phys. B* **122**(10), 265 (2016).
- [61] K. Yoshii, J. Nomura, K. Taguchi, Y. Hisai , F.-L. Hong, “Optical frequency metrology study on nonlinear processes in a waveguide device for ultrabroadband comb generation,” *Phys. Rev. Appl.* **11**(5), 054031 (2019).
- [62] C. Lisdat, G. Grosche, N. Quintin, C. Shi, S. M. F. Raupach, C. Grebing, D. Nicolodi, F. Stefani, A. Al-Masoudi, S. Dörscher, S. Häfner, J.-L. Robyr, N. Chiodo, S. Bilicki, E. Bookjans, A. Koczwarra, S. Koke, A. Kuhl, F. Wiotte, F. Meynadier, E. Camisard, M. Abgrall, M. Lours, T. Legero, H. Schnatz, U. Sterr, H. Denker, C. Chardonnet, Y. L. Coq, G. Santarelli, A. Amy-Klein, R. L. Targat, J. Lodewyck, O. Lopez , P.-E. Pottie, “A clock network for geodesy and fundamental science,” *Nat. Commun.* **7**(1), 12443 (2016).
- [63] Y. Bitou, K. Sasaki, H. Inaba, F.-L. Hong , A. Onae, “Rubidium-stabilized diode laser for high-precision interferometer,” *Opt. Eng.* **43**(4), 900-903 (2004).
- [64] C. Philippe, D. Holleville, R. L. Targat, P. Wolf, T. Leveque, R. L. Goff, E. Martaud , O. Acef, “A compact frequency stabilized telecom laser diode for space applications,” *Proc. SPIE* **10562**, 1056253 (2016).
- [65] J. Barbarat, J. Gillot, H. Alvarez-Martinez, M. Lours, D. Holleville, R. L. Targat, P.-E. Pottie, P. Wolf, P. Tuckey, O. Acef, F.-X. Esnault , T. Leveque,

-
- “Compact and Transportable Iodine Frequency-Stabilized Laser,” Proc. SPIE 11180, 111800T (2018).
- [66] R. J. Jones, W.-Y. Cheng, K. W. Holman, L. Chen, 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).
- [67] M. L. Eickhoff, J. L. Hall, “Optical frequency standard at 532 nm,” *IEEE Trans. Instrum. Meas.* **44**(2), 155-158 (1995).
- [68] S. Okubo, K. Nakamura, M. Schramm, H. Yamamoto, J. Ishikawa, F.-L. Hong, K. Kashiwagi, K. Minoshima, H. Tsutsui, E. Kambe, H. Izumiura, H. Inaba, “Erbium-Fiber-Based Visible Astro-Comb with 42-GHz Mode Spacing,” in *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) (OSA, San Jose, CA, USA)*, paper STu3P.1 (2018).
- [69] 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**(16), 20749-20759 (2015).
- [70] J. Nomura, K. Yoshii, Y. Hisai, F.-L. Hong, “Precision spectroscopy and frequency stabilization using coin-sized laser modules,” *J. Opt. Soc. Am. B* **36**(3), 631-637 (2019).
- [71] J. E. Decker, J. R. Petelsky, “Uncertainty evaluation for the measurement of the gauge blocks by optical interferometry,” *Metrologia* **34**(6), 479-493 (1997).
- [72] “<https://www.nao.ac.jp/research/project/epd.html>” .
- [73] G. Chang, C.-H. Li, D. F. Phillips, A. Szentgyorgyi, R. L. Walsworth, F. X. Kärtner, “Optimization of filtering schemes for broadband astro-combs,” *Opt. Express* **20**(22), 24987-25013 (2012).
- [74] G. Chang, C.-H. Li, D. F. Phillips, R. L. Walsworth, F. X. Kärtner, “Toward a broadband astro-comb: effects of nonlinear spectral broadening in optical fibers,” *Opt. Express* **18**(12), 12736-12747 (2010).
- [75] R. A. Probst, T. Steinmetz, T. Wilken, H. Hundertmark, S. P. Stark, G. K. L. Wong, P. S. J. Russell, T. W. Hänsch, R. Holzwarth, T. Udem, “Nonlinear amplification of side-modes in frequency combs,” *Opt. Express* **21**(10), 11670-11687 (2013).
- [76] T. Wilken, C. Lovis, A. Manescau, T. Steinmetz, L. Pasquini, G. L. Curto, T. W.

-
- Hänsch, R. Holzwarth, T. Udem, “High-precision calibration of spectrographs,” *MNRAS*, vol. 405, no. 1, pp. L16-L20 (2010).
- [77] D. F. Phillips, A. G. Glenday, C.-H. Li, C. Cramer, G. Furesz, G. Chang, A. J. Benedick, L.-J. Chen, F. X. Kärtner, S. Korzennik, D. Sasselov, A. Szentgyorgyi, R. L. Walsworth, “Calibration of an astrophysical spectrograph below 1 m/s using a laser frequency comb,” *Opt. Express* **20**(13), 13711-13726 (2012).
- [78] H.-P. Doerr, T. Steinmetz, R. Holzwarth, T. Kentischer, W. Schmidt, “A Laser Frequency Comb System for Absolute Calibration of the VTT Echelle Spectrograph,” *Sol. Physik* **280**(2), 663-670 (2012).
- [79] G. G. Ycas, F. Quinlan, S. A. Diddams, S. Osterman, S. Mahadevan, S. Redman, R. Terrien, L. Ramsey, C. F. Bender, B. Botzler, S. Sigurdsson, “Demonstration of on-sky calibration of astronomical spectra using a 25 GHz near-IR laser frequency comb,” *Opt. Express* **20**(6), 6631-6643 (2012).
- [80] A. G. Glenday, C.-H. Li, N. Langellier, G. Chang, L.-J. Chen, G. Furesz, A. A. Zibrov, F. Kärtner, D. F. Phillips, D. Sasselov, A. Szentgyorgyi, R. L. Walsworth, “Operation of a broadband visible-wavelength astro-comb with a high-resolution astrophysical spectrograph,” *Optica* **2**(3), 250-254 (2015).
- [81] Y. Ma, L. Zuo, F. Meng, C. Li, T. Jiang, A. Wang, F. Zhao, G. Zhao, Z. Zhang, “A compact 30 GHz spaced astro-comb based on 1 GHz Yb:Fiber laser,” in *Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO) (OSA, San Jose, CA, USA, 2016)*, paper JTh2A.137.
- [82] X. Yi, K. Vahala, J. Li, S. Diddams, G. Ycas, P. Plavchan, S. Leifer, J. Sandhu, G. Vasisht, P. Chen, P. Gao, J. Gagne, E. Furlan, M. Bottom, E. C. Martin, M. P. Fitzgerald, G. Doppmann, C. Beichman, “Demonstration of a near-IR line-referenced electro-optical laser frequency comb for precision radial velocity measurements in astronomy,” *Nat. Comm.* **7**(1), 10436 (2016).
- [83] R. A. Probst, G. L. Curto, G. Ávila, A. Brucalassi, B. L. C. Martins, I. d. C. Leão, M. Esposito, J. I. G. Hernández, F. Grupp, T. W. Hänsch, R. Holzwarth, H. Kellermann, F. Kerber, O. Mandel, A. Manescau, L. Pasquini, E. Pozna, R. Rebolo, J. R. d. Medeiros, S. P. Stark, T. Steinmetz, A. S. Mascareño, T. Udem, J. Urrutia, Y. Wu, “Relative stability of two laser frequency combs for routine operation on HARPS and FOCES,” vol. 9908. *SPIE*, 2016, p. 990864 (2016).
- [84] L. Wang, F. Grupp, H. Kellermann, U. Hopp, R. Bender, “Line profile analysis of the laser frequency comb in FOCES,” vol. 10400. *SPIE*, 2017, p. 66, (2017).

-
- [85] A. Ravi, D. F. Phillips, M. Beck, L. L. Martin, M. Cecconi, A. Ghedina, E. Molinari, A. Bartels, D. Sasselov, A. Szentgyorgyi, R. L. Walsworth, “Astrocomb calibrator and spectrograph characterization using a turn-key laser frequency comb,” *JATIS*, vol. 3, no. 04, p. 1 (2017).
- [86] R. A. McCracken, É. Depagne, R. B. Kuhn, N. Erasmus, L. A. Crause, D. T. Reid, “Wavelength calibration of a high resolution spectrograph with a partially stabilized 15-GHz astrocomb from 550 to 890 nm,” *Opt. Express* **25**(6), 6450-6460 (2017).
- [87] J. Löhner-Böttcher, W. Schmidt, H.-P. Doerr, T. Kentischer, T. Steinmetz, R. A. Probst, R. Holzwarth, “LARS: An Absolute Reference Spectrograph for solar observations: Upgrade from a prototype to a turn-key system,” *A&A*, vol. 607, p. A12 (2017).
- [88] Z. Hao, H. Ye, J. Han, Y. Wu, Y. Zhai, D. Xiao, “Calibration Tests of a 25-GHz Mode-spacing Broadband Astro-comb on the Fiber-fed High Resolution Spectrograph (HRS) of the Chinese 2.16-m Telescope,” *Publ. Astron. Soc. Pac.* **130**(994), 125001 (2018).
- [89] E. Obrzud, M. Rainer, A. Harutyunyan, B. Chazelas, M. Cecconi, A. Ghedina, E. Molinari, S. Kundermann, S. Lecomte, F. Pepe, F. Wildi, F. Bouchy, T. Herr, “Broadband near-infrared astronomical spectrometer calibration and on-sky validation with an electro-optic laser frequency comb,” *Opt. Express* **26**(26), 34830-34841 (2018).
- [90] A. J. Metcalf, T. Anderson, C. F. Bender, S. Blakeslee, W. Brand, D. R. Carlson, W. D. Cochran, S. A. Diddams, M. Endl, C. Fredrick, S. Halverson, D. D. Hickstein, F. Hearty, J. Jennings, S. Kanodia, K. F. Kaplan, E. Levi, E. Lubar, S. Mahadevan, A. Monson, J. P. Ninan, C. Nitroy, S. Osterman, S. B. Papp, F. Quinlan, L. Ramsey, P. Robertson, A. Roy, C. Schwab, S. Sigurdsson, K. Srinivasan, G. Stefansson, D. A. Sterner, R. Terrien, A. Wolszczan, J. T. Wright, G. Ycas, “Stellar spectroscopy in the near-infrared with a laser frequency comb,” *Optica* **6**(2), 233-239 (2019).
- [91] E. Obrzud, M. Rainer, A. Harutyunyan, M. H. Anderson, J. Liu, M. Geiselmann, B. Chazelas, S. Kundermann, S. Lecomte, M. Cecconi, A. Ghedina, E. Molinari, F. Pepe, F. Wildi, F. Bouchy, T. J. Kippenberg, T. Herr, “A microphotonic astrocomb,” *Nat. Photonics* **13**(1), 31-35 (2019).
- [92] M.-G. Suh, X. Yi, Y.-H. Lai, S. Leifer, I. S. Grudin, G. Vasisht, E. C. Martin, M. P. Fitzgerald, G. Doppmann, J. Wang, D. Mawet, S. B. Papp, S. A. Diddams,

-
- C. Beichman , K. Vahala, “Searching for exoplanets using a microresonator astrocomb,” *Nat. Photonics* **13**(1), 25-30 (2019).
- [93] T. Herr , R. A. McCracken, “Astrocomb: Recent Advances,” *IEEE Photon. Technol. Lett.* **31**(23), 1890-1893 (2019).
- [94] F.-L. Hong, J. Ye, L.-S. Ma, S. Picard, C. J. Bordé , J. L. Hall, “Rotation dependence of electric quadrupole hyperfine interaction in the ground state of molecular iodine by high-resolution laser spectroscopy,” *J. Opt. Soc. Am. B* **18**(3), 379-387 (2001).
- [95] F.-L. Hong, J. Ishikawa, A. Onae , H. Matsumoto, “Rotation dependence of the excited-state electric quadrupole hyperfine interaction by high-resolution laser spectroscopy of $^{127}\text{I}_2$,” *J. Opt. Soc. Am. B* **18**(10), 1416-1422 (2001).
- [96] L. Chen , J. Ye, “Extensive, high-resolution measurement of hyperfine interactions: precise investigations of molecular potentials and wave function,” *Chem. Phys. Lett.* **381**(5-6), 777-783 (2003).
- [97] F.-L. Hong, Y. Zhang, J. Ishikawa, A. Onae , H. Matsumoto, “Vibration dependence of the tensor spin-spin and scalar spin-spin hyperfine interactions by precision measurement of hyperfine structures of $^{127}\text{I}_2$ near 532 nm,” *J. Opt. Soc. Am. B* **19**(5), 946-953 (2002).
- [98] H.-J. Briegel, W. Dür, J. I. Cirac , P. Zoller, “Quantum repeaters: the role of imperfect local operations in quantum communication,” *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5932-5935 (1998).
- [99] L.-M. Duan, M. D. Lukin, J. I. Cirac , P. Zoller, “Long-distance quantum communication with atomic ensembles and linear optics,” *Nature* **414**, 413-418 (2001).
- [100] N. Sangouard, C. Simon, H. d. Riedmatten , N. Gisin, “Quantum repeaters based on atomic ensembles and linear optics,” *Rev. Mod. Phys.* **83**, 33-80 (2011).
- [101] K. Kutluer, M. Mazzera , d. H. Riedmatten, “Solid-state source of nonclassical photon pairs with embedded multimode quantum memory,” *Phys. Rev. Lett.* **118**, 210502 (2017).
- [102] B. Hensen, H. Bernien, A. E. Dréau, A. Reiserer, N. Kalb, M. S. Blok, J. Ruitenber, R. F. L. Ruitenber, R. N. Schouten, C. Abellán, W. Amaya, V. Pruneri, M. W. Pruneri, M. Markham, D. J. Twitchen, D. Elkouss, S. Wehner, T. H. Taminiau , R. Hanson, “Loophole-free Bell inequality violation using

-
- electron spins separated by 1.3 kilometres,” *Nature* **526**, 682-686 (2015).
- [103] E. Neu, D. Steinmetz, J. Riedrich-Möller, S. Gsell, M. Fischer, M. Schreck, C. Becher, “Single photon emission from siliconvacancy colour centres in chemical vapour deposition nanodiamonds on iridium,” *New J. Phys.* **13**, 025012 (2011).
- [104] R. Ikuta, T. Kobayashi, S. Yasui, S. Miki, T. Yamashita, H. Terai, M. Fujiwara, T. Yamamoto, M. Koashi, M. Sasaki, Z. Wang, N. Imoto, “Frequency down-conversion of 637 nm light to the telecommunication band for non-classical light emitted from NV centers,” *Opt. Express* **22**, 11205-11214 (2014).
- [105] J. S. Pelc, L. Yu, K. D. Greve, P. L. McMahon, C. M. Natarajan, V. Esfandyarpour, S. Maier, C. Schneider, M. Kamp, S. Höfling, R. H. Hadfield, A. Forchel, Y. Yamamoto, M. M. Fejer, “Downconversion quantum interface for a single quantum dot spin and 1550-nm single-photon channel,” *Opt. Express* **20**, 27510-27519 (2012).
- [106] S. Zaske, A. Lenhard, C. Becher, “Efficient frequency downconversion at the single photon level from the red spectral range to the telecommunications C-band,” *Opt. Express* **19**, 12825-12836 (2011).
- [107] N. Maring, K. Kutluer, J. Cohen, M. Cristiani, M. Mazzera, P. M. Ledingham, H. d. Riedmatten, “Storage of up-converted telecom photons in a doped crystal,” *New J. Phys.* **16**, 113021 (2014).
- [108] E. Togan, Y. Chu, A. S. Trifonov, L. Jiang, J. Maze, L. Childress, M. V. G. Dutt, A. S. Sørensen, P. R. Hemmer, A. S. Zibrov, M. D. Lukin, “Quantum entanglement between an optical photon and a solid-state spin qubit,” *Nature* **466**, 730-734 (2010).
- [109] S. Muralidharan, J. Kim, N. Lütkenhaus, M. D. Lukin, L. Jiang, “Ultrafast and fault-tolerant quantum communication across long distances,” *Phys. Rev. Lett.* **112**, 250501 (2014).
- [110] J. A. Keszenheimer, E. J. Balboni, J. J. Zayhowski, “Phase locking of 1.32- μ m microchip lasers through the use of pump-diode,” *Opt. Lett.* **17**, 649-651 (1992).
- [111] B. Willke, S. Brozek, K. Danzmann, V. Quetschke, S. Gossler, “Frequency stabilization of a monolithic Nd:YAG ring laser by controlling the power of the laser-diode pump source,” *Opt. Lett.* **25**, 1019-1021 (2000).
- [112] Y. Bitou, K. Sasaki, S. Iwasaki, F.-L. Hong, “Compact I_2 -stabilized frequency-

-
- doubled Nd:YAG laser for long gauge block interferometer,” *Jpn. J. Appl. Phys.* **42**, 2867-2871 (2003).
- [113] A. Lassila, K. Riski, J. Hu, T. Ahola, S. Naicheng, L. Chengyang, P. Balling, J. Blabla, L. Abramova, Y. G. Zakharenko, V. L. Fedorin, A. Chartier , J.-M. Chartier, “International comparison of He-Ne lasers stabilized with $^{127}\text{I}_2$ at $\lambda \approx 633$ nm,” *Metrologia* **37**, 701-707 (2000).
- [114] E. A. Whittaker, M. Gehrtz , G. C. Bjorklund, “ Residual amplitude modulation in laser electro-optic phase modulation,” *J. Opt. Soc. Am. B* **2**, 1320-1326 (1985).
- [115] S. Tamura, K. Ikeda, K. Okamura, K. Yoshii, F.-L. Hong, T. Horikiri , H. Kosaka, “Two-step frequency conversion for connecting distant quantum memories by transmission through an optical fiber,” *Jpn. J. Appl. Phys.* **57**, 062801 (2018).
- [116] J. I. Steinfeld, *Molecules and Radiation*, (MIT Press, New York, 1986).

研究業績

投稿論文

1. 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,” *Optics Express* **28**, 2166–2178 (2020).
2. K. Ikeda, Y. Hisai, K. Yoshii, H. Kosaka, F.-L. Hong and T. Horikiri, “Compact frequency-stabilized pump laser for wavelength conversion in long-distance quantum communication,” *J. Opt. Soc. Am. B* **35**, 2023-2028 (2018).

国際学会発表

1. K. Ikeda, H. Sakagami, R. Kato, Y. Goji, K. Yoshii, F.-L. Hong, “Laser frequency stabilization using a 2-m-long iodine cell,” CLEO Pacific Rim 2020 Conference, 12F, Online, August 2020. (Oral)
2. K. Ikeda, S. Okubo, M. Wada, K. Kashiwagi, K. Yoshii, H. Inaba, F.-L. Hong, “Iodine-stabilized laser for telecom applications,” OPTM2020, OPTM4-02, Yokohama Japan, April 2020. (Oral)
3. K. Ikeda, C. Chen, K. Yoshii, S. Okubo, K. Kashiwagi, M. Wada, H. Inaba, F.-L. Hong, “An iodine-stabilized laser using a 1542-nm light source,” CLEO Europe 2019 Conference, ED-P24, Munich Germany, June 2019. (Poster)
4. K. Ikeda, C. Chen, K. Yoshii, S. Okubo, K. Kashiwagi, H. Inaba, F.-L. Hong, “An iodine-stabilized laser at the telecom wavelength using a dual-pitch PPLN waveguide,” CLEO 2019 Conference, SW3G.8, San Jose America, May 2019. (Oral)
5. K. Ikeda, Y. Hisai, T. Horikiri, K. Yoshii, H. Kosaka, F.-L. Hong, “Frequency-Stabilized Pump Laser for Wavelength Conversion in Long-Distance Quantum Communication,” CLEO Pacific Rim 2018 Conference, Th1C.4, Hong Kong China, August 2018. (Oral)
6. K. Ikeda, Y. Hisai, T. Horikiri, K. Yoshii, H. Kosaka, F.-L. Hong, “A frequency-stabilized pump laser for wavelength conversion in long distance quantum communication,” The 24th Congress of the International Commission for Optics, P16-09, Tokyo Japan, August 2017. (Poster)

国内学会発表

1. 池田幸平, 坂上春稀, 加藤令偉, 郷治侑真, 吉井一倫, 洪鋒雷, “2m ヨウ素セルを用いたヨウ素安定化 Nd:YAG レーザー” 日本物理学会第 75 回年次大会, 19aK23-3, 名古屋, 2020 年 3 月
2. 池田幸平, Chen Chaoyun, 吉井一倫, 大久保章, 柏木謙, 和田雅人, 稲場肇, 洪鋒雷, “導波路型 PPLN を用いた通信波長帯のヨウ素安定化レーザー,” 日本物理学会 2019 年秋季大会, 11aK14-2, 岐阜, 2019 年 9 月
3. 池田幸平, Chen Chaoyun, 吉井一倫, 大久保章, 柏木謙, 洪鋒雷, 稲場肇, “導波路型 PPLN による 1.5 μm レーザー光の 3 倍波発生,” 日本物理学会第 74 回年次大会, 17aK404-12, 福岡, 2019 年 3 月
4. 池田幸平, Chen Chaoyun, 野邑寿仁亜, 田口佳穂, 久井裕介, 吉井一倫, 洪鋒雷, “導波路型 PPLN による広帯域光コム発生 of 分極反転周期依存性,” 日本物理学会 2018 年秋季大会, 12aB102-8, 大阪, 2018 年 9 月
5. 池田幸平, 新関和哉, Mingyang Zheng, Xiuping Xie, 岡村幸太郎, 武井宣幸, 吉井一倫, 行方直人, 井上修一郎, 洪鋒雷, 小坂英男, 堀切智之, “通信波長狭線幅 2 光子源の周波数安定化システム開発,” 日本物理学会第 73 回年次大会, 22aK203-12, 野田, 2018 年 3 月
6. 池田幸平, 久井裕介, 吉井一倫, 堀切智之, 小坂英男, 洪鋒雷, “長距離量子通信のための波長変換用周波数安定化レーザーの開発,” 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, 17p-414-4, 横浜, 2017 年 3 月
7. 池田幸平, 久井裕介, 堀切智之, 吉井一倫, 洪鋒雷, 小坂英男, “ダイヤモンド量子と通信帯光子をつなぐ周波数安定化レーザーによる量子波長変換 II,” 日本物理学会第 71 回年次大会, 21pBJ-13, 仙台, 2016 年 3 月
8. 池田幸平, 久井裕介, 堀切智之, 洪鋒雷, 小坂英男, “ダイヤモンド量子と通信帯光子をつなぐ周波数安定化レーザーによる量子波長変換,” 日本物理学会 2015 年秋季大会, 17pAC-4, 大阪, 2015 年 9 月

受賞

1. 日本物理学会学生優秀発表賞, 交付者: 一般社団法人 日本物理学会 領域 1, 2019 年 3 月

謝辞

本研究を行うにあたり、横浜国立大学の洪鋒雷教授には多大なるご指導・ご鞭撻を賜りました。また、本学位論文を執筆するにあたり、横浜国立大学の堀切智之准教授、小坂英男教授、武田淳教授、片山郁文教授には、本学位論文の副査を引き受けていただき貴重なご助言をいただきました。横浜国立大学の吉井一倫助教（現職：徳島大学特任准教授）には研究に関する多くのご指導を賜りました。横浜国立大学洪研究室に社会人博士として在籍していた産業技術総合研究所の和田雅人氏には周波数計測の実験の場面で多くの助言をいただきました。皆さまに心より感謝申し上げます。

横浜国立大学洪研究室の同期である久井裕介氏は非常に尊敬できる存在で、共に切磋琢磨できたことを誇りに思います。また、福士多佳子事務補佐員、角屋瑞佳事務補佐員には研究以外の事務作業の場面で大変お世話になりました。皆さまに心から感謝申し上げます。

産業技術総合研究所物理計測標準研究部門光周波数計測研究グループの稲場肇研究グループ長には私が産総研で研究することを容認していただき大変感謝しております。また、同グループの大久保章主任研究員、柏木謙主任研究員、中村圭佑研究員、慶應義塾大学大学院の博士課程の住原花奈氏、ならびに時間標準研究グループの赤松大輔主任研究員（現職：横浜国立大学准教授）、小林拓実主任研究員には研究を遂行するにあたって多くの助言をいただきました。皆様と過ごした大切な時間は忘れません。NTT エレクトロニクスの西田好毅様には、PPLNの実験結果についての助言をしていただき非線形光学結晶の理論について教えていただきました。心から感謝いたします。

博士課程在籍中は多くの学会に参加させていただきました。その中でお会いした研究者や学生の皆さまにはいつも刺激をいただいております。特に、アメリカの CLEO やドイツの CLEO Europe で IMRA の Martin E. Fermann 博士や NIST の Scott A. Diddams 博士とお話ができることが幸せでした。最後になりましたが、修士まで在籍していた小坂・堀切研究室ならびに洪研究室の先輩方、同期、後輩の皆様、また、支えてくれた両親と兄弟の協力のおかげで最後まで研究を行うことができました。皆さまに心から感謝申し上げます。