

モード同期レーザーによる光周波数計測

杉山和彦

Optical Frequency Measurement with Mode-Locked Lasers

Kazuhiko SUGIYAMA

The periodic pulse train of a mode-locked laser can be described in the frequency domain as a comb of spectral lines equally separated by the pulse repetition frequency. When the optical frequency comb has an octave-spanning spectral bandwidth, one can determine the frequency of each mode of the optical frequency comb, and directly compare the optical frequency to the microwave reference. An octave-spanning optical frequency comb has been easily realized by an invention of photonic crystal fiber. The author reviews the basics of this technique as he refers to the system which he had developed.

Key words: mode-locked laser, optical frequency measurement, optical frequency comb, photonic crystal fiber, frequency stabilization, definition of meter, optical clock

メートルの定義を実現するもの、すなわち長さ標準として、原子・分子・イオンの吸収線に対して発振周波数を安定化されたレーザーが勧告されている。レーザー周波数の測定は、それら推奨放射光とよばれる安定化レーザーの周波数値を決める目的で行われている。可視領域の光の周波数は緑色で約 500 THz と電氣的に扱われるマイクロ波の周波数と比べて約 1 万倍も高く、周波数カウンターで直接測定することはできない。何らかの方法で周波数カウンターが動作するマイクロ波周波数以下まで落とす必要があるのだが、その差 1 万倍は非常に大きいため光周波数計測は難しい技術だった。

従来から行われてきた方法は、マイクロ波から遠赤外、赤外、近赤外と、大型のレーザーを複数台使って、1 段あたりたかだか 2~数十倍で周波数を順次高くしていき、目的のレーザー周波数を測定する、逡倍型周波数チェーン (harmonic frequency chain) とよばれるものである¹⁾。これは学校の教室いっばいに展開する大がかりなシステムで、複数の研究者が運転のためについている必要があり、連続運転は不可能で、しかも特定の光周波数しか測定でき

ないものであった。

ところが 1999 年に、超短パルスモード同期レーザーを用いて従来方式と遜色ない精度でレーザー周波数が測定できることを、Udem らドイツ・マックスプランク量子光学研究所の Hänsch グループが実証した²⁾。モード同期レーザーの光を周波数軸上でみると、一定の周波数間隔ずつ離れた多数の連続波レーザー光の集合体となっている。その形状からこれは光周波数コム (comb=櫛) とよばれ、これをあたかも光周波数の物差しとして利用し光周波数を測定する。この原理は 20 年以上も前に Hänsch らによって見いだされていた³⁾。モード同期レーザーの超短パルス化が近年進んだことが、この光周波数測定法の実用化をもたらしたといえる。

Udem らの発表は周波数差の測定であったが、そのすぐ後に、中心波長 800 nm で発振するチタニウムサファイア (Ti:S) レーザーのスペクトル幅を非線形光学効果によって 1 オクターブ (高周波端が低周波端の 2 倍の周波数) 以上広げることができる、フォトニック結晶構造をもった光ファイバー^{4,5)}が開発されて状況が一変した。スペクトル幅

1オクターブの光周波数コムでは、特に補助レーザーを必要とすることなくマイクロ波と光周波数を直接比較することが可能となる。これにより、わずか1台のレーザーを用いるだけで1オクターブ内、すなわち可視から近赤外にわたる広い波長範囲のレーザー周波数を連続的に測定することが可能となった^{6,7)}。

筆者らは筆者の前所属である計量研究所（計量研）/現・産業技術総合研究所（産総研）で、世界で5番目に技術開発に成功した^{8,9)}。そして、2001年9月に行われた国際度量衡委員会の長さ諮問委員会で、計量研/産総研の安定化レーザーの周波数値を報告し、周波数の勧告値改定に寄与することができた。

なお、光周波数コムは、電気光学変調器でFM側帯波を広帯域に発生させて実現する方法が興格ら東京工業大学の天津グループで開発されている¹⁰⁾。光ファイバーの非線形光学効果を組み合わせて1オクターブ以上の幅に広げる場合に、モード同期レーザーのパワーの強さと位相雑音の小ささが有利であったといえるだろう。

1. モード同期レーザーによる光周波数測定

1.1 モード同期レーザーの各モードの周波数

レーザーは通常、多数の周波数で同時に発振するが、モード同期レーザーではそれらの位相関係が一定になっている。その結果、時間軸上でみると正確に一定の時間間隔で発せられる光パルス列となり、周波数軸上でみるとパルス繰り返し周波数 f_{rep} ずつ離れた多数のモードの集合体となる。

モード同期レーザーの n 次モードの周波数 $f(n)$ は、式(1)で与えられる。

$$f(n) = nf_{rep} + f_{CEO} \quad (1)$$

ここで f_{CEO} はcarrier-envelope オフセット周波数とよばれ、

$$f_{CEO} = (\Delta\phi/2\pi)f_{rep} \quad (2)$$

で表される。ここで $\Delta\phi$ はcarrier-envelope オフセット位相とよばれ^{2,11)}、図1(a)に示すように光パルスの電場のピークが包絡線のピークに対して1パルスごとにずれていく位相差のことである。これは、光パルスの電場すなわち搬送波(carrier)は位相速度で、包絡線は群速度で進行するが、レーザー共振器内で両者が異なることから生じる。 $\Delta\phi$ が 2π の整数倍違う場合との差を区別することは事実上不可能なので、 $0 \leq f_{CEO} < f_{rep}$ ($0 \leq \Delta\phi < 2\pi$) とおく。

1.2 モード同期レーザーによる光周波数測定

モード同期レーザーの各モード周波数は式(1)に示すように f_{rep} と f_{CEO} という2つの周波数で決まっている。こ

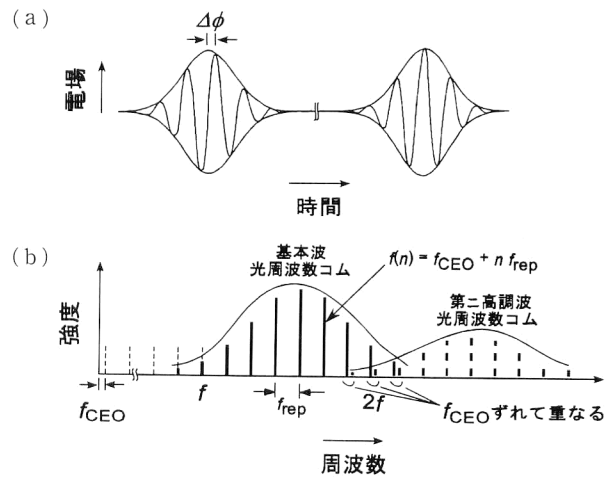


図1 モード同期レーザーの(a)時間軸上、および(b)周波数軸上の特性。(b)には自己参照法による f_{CEO} の測定法の原理も示す。

の2つの周波数を測定し安定化することができれば、光周波数コムすべてのモード周波数が安定化され周波数値が確定するので、モードのどれか1つとビートをとるだけでレーザー周波数を決定することができる。まず、 f_{rep} は光周波数コムの一パルスを高速フォトダイオードで受光するだけで簡単に検出できる。続いて f_{CEO} は光周波数コムが1オクターブ以上ある場合、以下の方法で容易に検出することができる(図1(b))。

スペクトル幅1オクターブの光周波数コムの高調波を発生させる。この場合、基本波光周波数コムの高周波数端と第二高調波光周波数コムの高周波数端は重なる。重なる部分の両者の周波数をみてみよう。基本波光周波数コム n 次モードの第二高調波の周波数は

$$2f(n) = 2nf_{rep} + 2f_{CEO} \quad (3)$$

となる一方、基本波光周波数コム $2n$ 次モードは

$$f(2n) = 2nf_{rep} + f_{CEO} \quad (4)$$

であるから、両者は f_{CEO} だけずれて重なり、それはビート周波数として検出できる。この f_{CEO} 検出法を自己参照法(self referencing technique)という⁹⁾。

レーザー周波数 f_L は、次式のように決定することができる。

$$f_L = mf_{rep} + f_{CEO} \pm f_{beat} \quad (5)$$

ここで、 m はビートをとった光周波数コム m 次モードのモード次数、および f_{beat} はそのモードと被測定レーザーとのビート周波数である。モード次数 m は、2つのレーザー周波数があらかじめ7桁までわかっているならば確定する。7桁の精度は市販の高精度波長計で得ることができる。また、 f_{rep} と f_{CEO} は基準周波数に安定化され、 f_{beat} は基準周波数にロックされた周波数カウンターで測定する。通常モード同期レーザーでは f_{rep} は1GHz以下である。したがって f_{rep} 、

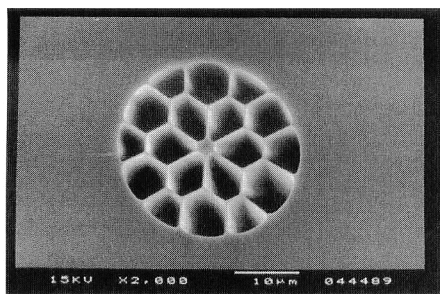


図2 使用したフォトニック結晶ファイバーの断面 (英国バース大学 J. C. Knight 氏のご厚意による)。

f_{CEO} , f_{beat} とも電氣的に測定できる範囲にある。

モード同期レーザーによる光周波数コム周波数目盛りとしての正確さは、Udem らによって 1999 年にただちに検証実験が行われた。光周波数コム内でモード間隔は 3×10^{-17} よりもよい精度で均一であること、および、 f_{rep} とモード間隔は 6×10^{-16} よりもよい精度で一致していることが確認された¹²⁾。

2. 1 オクターブ光周波数コムの実現—フォトニック結晶ファイバーの利用—

研究室レベルでは Ti:S レーザー発振器のみでスペクトル幅 1 オクターブ以上をもつものが開発されているが、一般的にはパルス幅 10~100 fs のモード同期 Ti:S レーザーの光パルスをフォトニック結晶ファイバーに導入し、ファイバーの材質による自己位相変調を利用してスペクトル幅を広げる方法が簡便である。自己位相変調は 3 次の非線形光学効果である四光波混合の一種で、光周波数コムモード 3 つからエネルギーの保存則を満たして第 4 の波が発生する。この効果により光周波数コムの外側へ同じモード間隔で新しい波が発生し、これがファイバー中でつぎつぎと生じることによってスペクトルは両側へ広がっていく。

3 次の非線形光学効果であるから効率は光強度に強く依存し、パルス幅の狭いほうが効率高い。ところが、通常の石英ファイバーに中心波長 800 nm の Ti:S レーザーの光パルスを通すと正常分散によってパルス幅はすぐに広がってしまい効率が下がる。

フォトニック結晶構造とよばれる周期構造をファイバーの径方向に作り込むことでファイバーの構造分散を大きく変化させ、ゼロ群速度分散の波長を 800 nm 以下にしたものが開発された^{4,5)}。このファイバーでは Ti:S レーザーの光パルスは時間軸上では広がることなく長距離伝播し、大きな非線形光学効果を得ることができる。また、コア径が小さく、かつクラッドとの屈折率差も大きいので、光は径方向の狭い範囲に閉じ込められることから、光強度は高

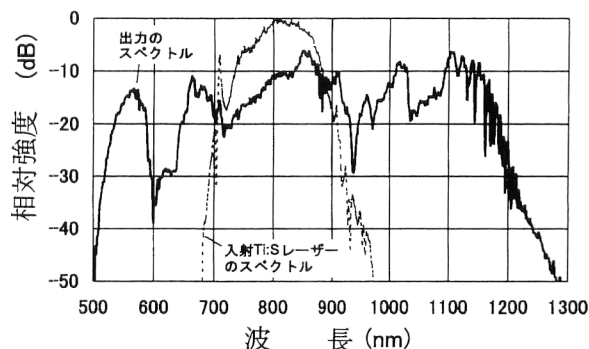


図3 フォトニック結晶ファイバー入射前後のスペクトルの比較。透過光パワーは 240 mW。

くなる。

図2 は筆者らが使用したフォトニック結晶ファイバーの断面である。光は中心の石英ガラスのコアを伝播し、その周りを空気の穴が取り囲んでいる。筆者らはバース大学と共同研究の協定を結んで研究を進めた。現在では国内を含む複数のグループからフォトニック結晶ファイバーは入手可能となっている。

図3 にフォトニック結晶ファイバーを透過させて得られた 1 オクターブ光周波数コムスペクトルを示す。ファイバーの長さは約 6 cm であった。

フォトニック結晶ファイバーによって得られる 1 オクターブ光周波数コムでは、非線形光学効果で光周波数コム正確さが低下しないかが心配である。この疑問に対する現在まででもっとも高精度なテストでは、正確さ 4×10^{-17} 以上という結果が得られている¹³⁾。

3. モード同期レーザーの周波数安定化

3.1 モード周波数の制御方法

モード同期レーザーの f_{rep} と f_{CEO} の 2 つの周波数を制御するためには、モード周波数に異なった変化を与える 2 つの制御対象が必要である。

モード同期レーザーでは超短パルス光を発生させるため、レーザー共振器内で発生する群速度分散を補償する工夫がなされている。その方法としてプリズム対やチャープミラーがよく用いられている。ここでチャープミラーとは、ミラー表面から光が反射する場所までの深さが波長によって変化するように設計された多層膜ミラーである。

どちらの型のレーザーにおいても、レーザー共振器を構成する鏡の 1 つを平行移動させて共振器長を変化させると、すべてのモード周波数を変化させることができる。もう 1 つの制御対象は、プリズム対を用いたレーザーでは、プリズム対透過後に置かれた反射鏡の回転が用いられる。この場合、回転中心から反射点までの距離に比例して周波

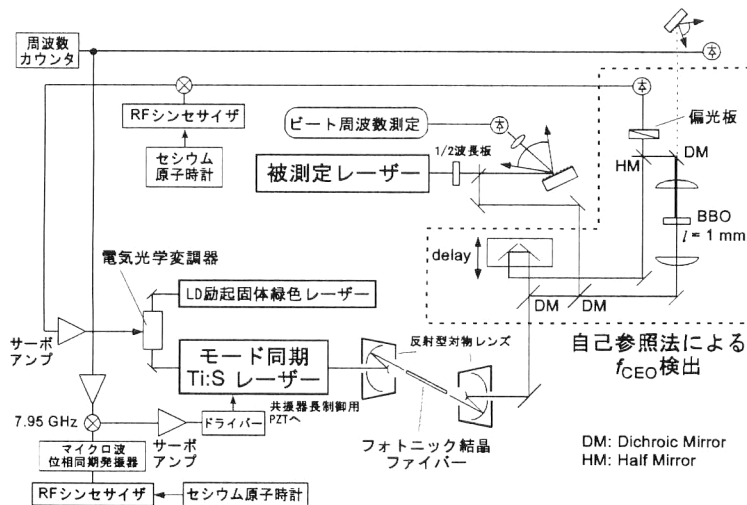


図4 筆者らが開発した光周波数計測システムの概略図。チャープミラー型モード同期レーザー (Femtolasers Scientific Pro, $f_{rep}=150$ MHz) を使用。

数が変化する。これはモード間隔 ($=f_{rep}$) のみを切り離して制御することになる¹¹⁾。

チャープミラーを用いたレーザーでは当初第2の制御要素が不明だった。しかし、ほどなく励起レーザーのパワーやサファイア結晶の共振器内の位置が f_{CEO} の制御に使えることがわかった⁷⁾。筆者らもこれら2つの方法とチャープミラーを回転させる方法を独立にみつけた⁸⁾。励起レーザーのパワーで f_{CEO} を大きく変えることは難しいので、 f_{CEO} (あるいは $\Delta\phi$) を大きく変えたい場合は、ガラス製ウェッジ板をレーザー共振器内の光路に入れ、ガラスを通るパスの長さを変えて調整する。チャープミラーの回転もこの目的に利用できる可能性がある⁸⁾。

ここで f_{rep} の設定であるが、 f_{rep} が高いほうがモード1本あたりのパワーが大きく、かつ不要なモードの分離もよくなるのでビート信号検出には有利である。一方、1パルスあたりのエネルギーは低下し、非線形光学効果は小さくなるので、スペクトル幅拡大には不利となる。しかし、パルスエネルギーが大きすぎると別の非線形光学効果を生じさせて雑音が増えるといわれていて、現在では経験的に1 GHz 弱あたりの f_{rep} がよく用いられている。数百 MHz 以上の f_{rep} をもつ Ti:S レーザーでは、単一方向発振するリング型共振器がよく用いられている¹⁴⁾。

3.2 モード周波数の安定化

上記制御対象を用いて f_{rep} と f_{CEO} を位相同期ループ (phase-locked loop; PLL) で原子時計等の基準周波数にロックされた周波数シンセサイザの周波数にロックする。自己参照法による f_{CEO} の検出では、まず1オクターブ光周波数コムを高周波数側と低周波数側に分離し、低周波数側の第二高調波を発生させる。そして、その第二高調波と基本波光周波数コムの高周波側をハーフミラーで重ねて

ビートを発生させる。フォトニック結晶ファイバー透過後もパルス光であるので、両者の光路長を調整して遅延を合わせ信号強度を大きくする。

図4に筆者らが開発したシステムの概略図を示す。厚さ1 mm の BBO 結晶を第二高調波発生に用いた。発生した第二高調波はパワー数 μ W、およびバンド幅 15 nm であった。ビート信号の S/N は検出帯域幅 300 kHz で 40 dB 以上が常時得られ、周波数安定化には十分であった。

PLL に用いる位相検出器には単にミキサーを用いるアナログのもの、信号をデジタル化して取り扱う方法がある。後者のデジタル PLL は位相比較可能範囲を拡大することが容易でサイクルスリップが発生する可能性を小さくすることができる。

光領域では光周波数コムモード次数が大きいため、 f_{rep} をロックする基準周波数の位相雑音の拡大が重大になる。これを緩和するために、しばしば f_{rep} はその高調波でロックされる¹¹⁾。筆者らも 53 次高調波を利用した。

図5に周波数光コム安定化の筆者らの結果を示す。波長 532 nm ヨウ素安定化 Nd:YAG レーザー¹⁵⁾ とのビートをとり、その周波数ゆらぎから安定度を評価したものである。少なくとも短時間領域 (<100 s) の光周波数コム周波数安定度は、 f_{rep} を安定化した基準信号の安定度で決まっていることがわかる。筆者らの場合、 f_{rep} , f_{CEO} のロックともアナログ PLL で行った。アナログ PLL で f_{CEO} をロックできたという例は、筆者らのシステムが初めてのようである。PZT (piezoelectric transducer) で共振器長を制御し f_{rep} を、電気光学変調器で励起レーザーのパワーを制御し f_{CEO} をロックした。

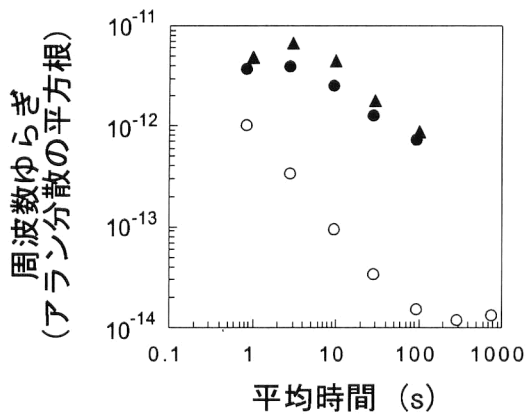


図5 波長532nmヨウ素安定化Nd:YAGレーザーとのビートで評価された安定化光周波数コムの周波数安定度 (アララン分散の平方根で表示). f_{rep} の基準周波数に○:水素メーター, ●:セシウム原子時計を用いた場合の比較, ▲はセシウム原子時計そのものの周波数安定度.

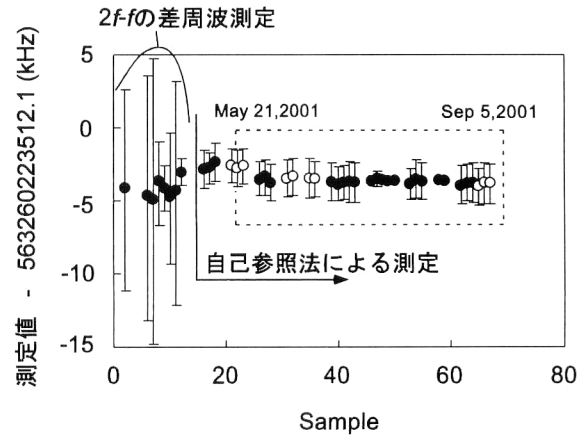


図7 波長532nmヨウ素安定化Nd:YAGレーザーの周波数測定の結果. ○:1064 nm, ●:532 nmでの測定.

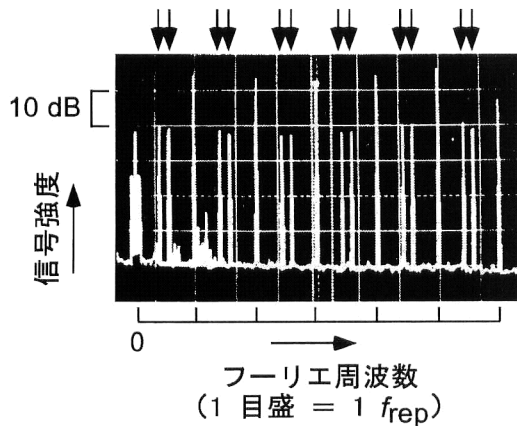


図6 レーザー光と光周波数コムとのビート信号. 光検出器の出力をRFスペクトラムアナライザーでみたもの (↓がビート).

4. 光周波数計測

4.1 ビート信号の検出

被測定レーザーと光周波数コムのモードとのビート信号は, 光検出器に両者のビームを重ねて入射させて検出する. ビート周波数測定に使われない次数の光周波数コムのモードはショット雑音を増やすだけであるので, 重ねたビームを先に回折格子に照射し余分なモードをできるだけ取り除く¹¹⁾.

代表的な1オクターブ光周波数コムとして, 550~1100 nmまで各モードが等しいパワーで広がった $f_{\text{rep}}=100$ MHz, 全パワー100 mWのものを考えると, 1モードあたりのパワーはわずか40 nWである. ビート信号の S/N を光検出器の量子効率を1として文献11)による最良の場合で見積もると, 波長1064 nmにおいて検出帯域幅300 kHzで58 dBとなり, ビート周波数測定には十分である. 図6

は筆者らが得た波長1064 nmにおける被測定レーザーと光周波数コムのビート信号で, 最良で40 dBが得られた.

4.2 周波数値の決定

測定したビート周波数の値から, 式(5)によってレーザー周波数を決定する. 測定値が正確かどうかを保証するために, f_{rep} と f_{CEO} のPPLでサイクルスリップが発生しなかったこと¹²⁾, および被測定レーザーとのビート周波数が周波数カウンターで正しく測定されたこと¹⁶⁾を確認する. 筆者らの場合, 後者の基準を満たすには, ビート信号の S/N が検出帯域幅300 kHzで32 dB以上必要であることがわかった.

f_{rep} の値は周波数カウンターで直接測定しては桁数が足りないので, 周波数のロックに使ったシンセサイザーの周波数の表示値を用いる. したがって, シンセサイザーの周波数の表示が正しいかどうかを事前に評価しておく.

そして最後に, 基準周波数を与える原子時計の絶対周波数値を測定する. 筆者らの場合, 利用した原子時計は国際協定時 (coordinated universal time; UTC) と常時比較されているので, その結果から絶対周波数を決めることができた.

4.3 周波数測定の結果⁹⁾

図7は洪らによって開発された波長532 nmのヨウ素分子の吸収線に周波数を安定化したNd:YAGレーザーの周波数を3か月以上にわたって測定した例である. 合計して2366回のゲート時間9.9 sの測定から, 不確かさ340 Hzでこの安定化レーザーの周波数値を決定した (中心周波数はさらに各種周波数シフトを考慮して決定される¹⁷⁾). そのほか, 波長633 nmのヨウ素分子の吸収線に安定化されたHe-Neレーザー, および波長778 nmのルビジウム原子二光子吸収線安定化半導体レーザーの周波数を測定した. こ

これは1台のシステムで広範囲のレーザー周波数測定が可能である実証にもなっている。

5. 将来展望

周波数標準を基準に光周波数を測定する立場では、基準発振器に水素メーザーを利用すると1 Hz レベルで可能となっている¹⁶⁾。次の展開として、性能のよい安定化レーザーを周波数標準として活用する、光周波数標準、あるいは光時計 (optical clock) の実現が考えられる。

レーザー冷却された単一イオンや原子集団の吸収線に安定化されたレーザーでは、現在のマイクロ波周波数標準を上回る正確さ、 10^{-18} が得られると見積もられている。モード同期レーザーによる光周波数計測技術を利用して、基準とする安定化レーザーに対して電氣的周波数を校正できれば、光周波数標準として実用化できる。

さらに、図5からもわかるように、レーザーによる周波数標準は短時間領域での安定度がすぐれている。この特長を真に生かすために、モード同期レーザーを安定化レーザーのほうにロックして、安定化レーザーの周波数安定度をもった電氣的周波数を f_{ref} から直接得ようという、ダウンコンバージョンの実験も開始されている¹⁸⁾。

安定な周波数標準が複数の原子で実現すると、例えば超微細構造定数 α の時間変化が検出される可能性がでてくる¹⁹⁾ など、基礎物理学への貢献も期待できる。

一方技術の普及の面では、カーナビゲーションでおなじみのGPS (global positioning system) の時計を利用すれば、標準研究所の装備を必要とすることなく、比較的安価に基準周波数を12桁程度で校正できる。基礎物理学の研究ばかりでなく、光通信をはじめ産業への応用も期待したい。ファイバーレーザー²⁰⁾ や半導体レーザーなどコンパクトな光源で1オクターブ光周波数コムが実現できれば魅力的である。

モード同期レーザーの周波数軸上の制御は、時間軸上の高精度化にもつながっている。周波数軸上で $f_{\text{CEO}}=0$ に安定化すると、これは時間軸上の $\Delta\phi=0$ 、すなわち電場のピークと包絡線のピークのずれがどのパルスでも同じという状況をつくることができる。アト (atto) 秒パルスの発生などへの有用性が指摘されている²¹⁾。

急速に発展したモード同期レーザーによる光周波数計測技術について、筆者らが開発したシステムを例にとり解説した。GPS 時計が利用できる限りこの技術が広く普及する背景は整っているのだから、応用面の開拓に期待したい。それ以上に、15桁以上の精密測定を目指す地道な試みは基礎物

理学へ及ぼす効果も大きく魅力的である。わが国にもこのような技術や研究が根付くことを祈りたい。

ここで紹介した筆者らの研究は、計量研/産総研で行われた。研究は、再現性よく評価された安定化レーザーと絶対値のついた基準周波数 (周波数標準) という標準研究所の日常的営みに支えられていた。工業技術院 (当時) 内の競争的研究資金によるタイムリーなご支援と合わせ、当時の関係者諸氏に深く感謝したい。

文 献

- 1) 例えば H. Schnatz, B. Lipphardt, J. Helmcke, F. Riehle and G. Zinner: "First phase-coherent frequency measurement of visible radiation," *Phys. Rev. Lett.*, **76** (1996) 18-21.
- 2) Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth and T. W. Hänsch: "Absolute optical frequency measurement of the cesium D_1 line with a mode-locked laser," **82** (1999) 3568-3571.
- 3) J. N. Eckstein, A. I. Ferguson and T. W. Hänsch: "High-resolution two-photon spectroscopy with picosecond light pulses," *Phys. Rev. Lett.*, **40** (1978) 847-850.
- 4) J. K. Ranka, R. S. Windeler and A. I. Stentz: "Visible continuum generation in air-silica microstructure optical fibers with anomalous dispersion at 800 nm," *Opt. Lett.*, **25** (2000) 25-27.
- 5) W. J. Wadsworth, J. C. Knight, A. Ortigosa-Blanch, J. Arriaga, E. Silvestre and P. St. J. Russell: "Soliton effects in photonic crystal fibres at 850 nm," *Electron. Lett.*, **36** (2000) 53-55.
- 6) D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall and S. T. Cundiff: "Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked laser and direct optical frequency synthesis," *Science*, **288** (2000) 635-639.
- 7) R. Holzwarth, Th. Udem, T. W. Hänsch, J. C. Knight, W. J. Wadsworth and P. St. J. Russell: "Optical frequency synthesizer for precision spectroscopy," *Phys. Rev. Lett.*, **85** (2000) 2264-2267.
- 8) K. Sugiyama, A. Onae, T. Ikegami, S. N. Slyusarev, F.-L. Hong, K. Minoshima, H. Matsumoto, J. C. Knight, W. J. Wadsworth and P. St. J. Russell: "Frequency control of a chirped-mirror-dispersion controlled mode-locked Ti:Al₂O₃ laser for comparison between microwave and optical frequencies," *Proc. SPIE*, **4269** (2000) 95-104.
- 9) K. Sugiyama, A. Onae, F.-L. Hong, H. Inaba, S. N. Slyusarev, T. Ikegami, J. Ishikawa, K. Minoshima, H. Matsumoto, J. C. Knight, W. J. Wadsworth and P. St. J. Russell: "Optical frequency measurement using an ultrafast mode-locked laser at NMIJ/AIST," *Proc. 6th Symp. Frequency Standards and Metrology*, ed. P. Gill (World Scientific, Singapore, 2002) pp. 427-434.
- 10) M. Kourogi, B. Widiyatomo, Y. Takeuchi and M. Ohtsu: "Limit of optical-frequency comb generation due to material dispersion," *IEEE J. Quantum Electron.*, **31** (1995) 2120-2126.
- 11) J. Reichert, R. Holzwarth, Th. Udem and T. W. Hänsch: "Measuring the frequency of light with mode-locked lasers," *Opt. Commun.*, **172** (1999) 59-68.
- 12) Th. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, and T. W. Hänsch:

- “Accurate measurement of large optical frequency differences with a mode-locked laser,” *Opt. Lett.*, **24** (1999) 881-883.
- 13) S. A. Diddams, L. Hollberg, L.-S. Ma and L. Robertsson: “Femtosecond-laser-based optical clockwork with instability $\leq 6.3 \times 10^{-16}$ in 1 s,” *Opt. Lett.*, **27** (2002) 58-60.
 - 14) A. Bartels, T. Dekorsy and H. Kurz: “Femtosecond Ti: sapphire ring laser with a 2-GHz repetition rate and its application in time-resolved spectroscopy,” *Opt. Lett.*, **24**, (1999) 996-998.
 - 15) F.-L. Hong, J. Ishikawa, J. Yoda, J. Ye, L.-S. Ma and J. L. Hall: “Frequency comparison of $^{127}\text{I}_2$ -stabilized Nd: YAG lasers,” *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **IM48** (1999) 532-536.
 - 16) Th. Udem, S. A. Diddams, K. R. Vogel, C. W. Oates, E. A. Curtis, W. D. Lee, W. M. Itano, R. E. Drullinger, J. C. Bergquist and L. Hollberg: “Absolute frequency measurements of the Hg^+ and Ca optical clock transitions with a femtosecond laser,” *Phys. Rev. Lett.*, **86** (2001) 4996-4999.
 - 17) F. -L. Hong, J. Ishikawa, K. Sugiyama, A. Onae, H. Matsumoto, J. Ye and J. L. Hall: “Comparison of independent optical frequency measurements using a portable I_2 -stabilized Nd: YAG laser,” *IEEE Trans. Instrum. Meas.*, **52** (2003) in press.
 - 18) S. A. Diddams, Th. Udem, J. C. Bergquist, E. A. Curtis, R. E. Drullinger, L. Hollberg, W. M. Itano, W. D. Lee, C. W. Oates, K. R. Vogel and D. J. Wineland: “An optical clock based on a single trapped $^{199}\text{Hg}^+$ ion,” *Science*, **293** (2001) 825-828.
 - 19) V. A. Dzuba and V. V. Flambaum: “Atomic optical clocks and search for variation of the fine-structure constant,” *Phys. Rev.*, **A61** (2000) article no. 034502.
 - 20) A. Onae, T. Ikegami, K. Sugiyama, F.-L. Hong, K. Minoshima, H. Matsumoto, K. Nakagawa, M. Yoshida and S. Harada: “Optical frequency link between an acetylene stabilized laser at 1542 nm and an Rb stabilized laser at 778 nm using a two-color mode-locked fiber laser,” *Opt. Commun.*, **183** (2000) 181-187.
 - 21) M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, G. Tempea, Chr. Spielmann, G. A. Reider, P. B. Corkum and F. Krausz: “X-ray pulses approaching the attosecond frontier,” *Science*, **291** (2001) 1923-1927.

(2002年9月17日受理)