

光周波数コム技術の現状と展開

佐々田 博之

Current Status and Prospect of Optical Frequency Comb Technology

Hiroyuki SASADA

Optical frequency combs, which were originally developed as a frequency *ruler* for precise optical frequency measurements in the visible and near-infrared regions, have already covered a wide spectral range from extreme ultraviolet to terahertz regions. They have also attracted considerable attentions as a broadband optical source and been applied to precise and rapid spectroscopy using a couple of methods.

Key words: optical frequency comb, broadband spectroscopy, precise measurements

2005年、光周波数コム（以下、光コム）の開発者である Hänsch と Hall にノーベル物理学賞が授けられた。これは光コムを使った光周波数測定¹⁾がはじめて行われてからわずか6年後のことである。これは、光コムがそれまでの常識を打ち破る大きな発明であり、しかも瞬く間に広い分野に影響を与えたためである。

光コムは光周波数を精密に測定するために開発された。これにより、従来の大がかりな光周波数チェーンは駆逐され、周波数標準研究に革命的な影響を与えた。このあたりの事情は産業技術総合研究所標準部門の光コムの研究者による和文の解説記事に詳しい²⁻⁵⁾。現在、長さの国家標準器は光コムとなり⁶⁾、次世代の周波数標準として有望な光格子時計の研究にも光コムが使われている⁷⁾。光コムは「光のものさし」としての使い道だけでなく、精密な測長光源^{8,9)}や分光測定用超広帯域光源としても利用されるようになっている。また、光コムの波長域の伸展も著しい。Diddams が光コム全般について優れた英文レビューを著している¹⁰⁾。ここでは、102編の参考文献とともに、太陽系外惑星探索¹¹⁾から医療までの応用と将来の展望が示されている。

本稿の著者は精密分光に携わってきたため、連続発振レーザーしか使ってこなかった。しかし、最近パルスレーザーである光コムを導入して約11桁の精度で周波数測定を行っている¹²⁾。このような精度はついこの間まで、

先進国の標準研究所でしか達成しえないレベルだった。しかし、光コムのお陰で大学の一研究室で精密分光が行える時代が来た。私は光コムの研究者ではないが、一ユーザーとしてその応用分野、特に分光研究への展開に期待している。このような立場から、この総合報告では光コムの基本的な原理を述べた後、2010年の洪⁵⁾とDiddams¹⁰⁾のレビュー以降の発展を中心に述べる。また、ごく最近、分子分光で重要な中赤外領域の光コムに関して、その発生と応用について英文レビューが公刊された¹³⁾。この波長域に関しては、本稿と併せて読んでいただければ、直近の進展を詳しく知ることができる。

1. 「光のものさし」としての光周波数コム

図1上は光コムの出力光電場の時間変化を示す。光コムはパルス時間幅 $\Delta t \sim 100$ fs、繰り返し時間 (repetition time) $T_{\text{rep}} \sim 10$ ns のモード同期パルスレーザーである。モード同期動作時には、図2のように、光パルスが1つだけレーザー共振器内を伝搬し、外部との結合部分を通るたびにその一部が出力パルスとして取り出される。開発当初は波長 $0.8 \mu\text{m}$ 付近のチタンサファイアレーザーをベースとした光コム (チタンサファイアコム) が使われたが、最近波長 $1.55 \mu\text{m}$ 付近のEr添加ファイバーレーザーによる光コム (Erファイバーコム) が主流となっている。それは、後者が前者に比べ小型、堅牢で、光路調整がほとんど

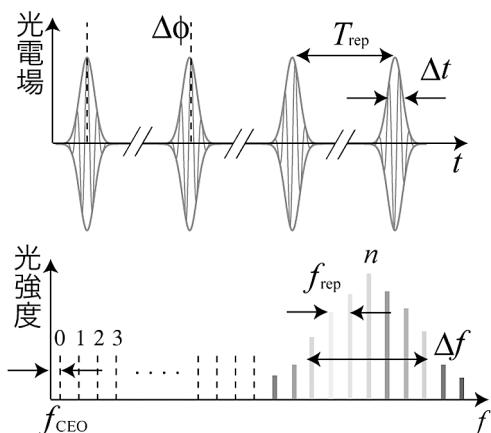


図1 光コムの出力。上は時間軸上での電場変化，下はこれを周波数軸上でみたスペクトル。

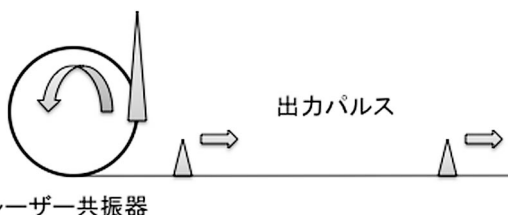


図2 モード同期動作している光コム。共振器中には1つだけ光パルスが周回し，周期毎に一部が出力パルスとして共振器外に出る。

必要なく長期連続運転可能で，しかも安価であるためである。いずれの光コムも，光の1サイクルは数フェムト秒で，パルスの包絡線1つに約100個の搬送波が入る。図1上では見やすいように搬送波を減らして描いている。図1下は図1上を周波数軸で示している。発振モードが正確に繰り返し周波数 $f_{\text{rep}} = 1/T_{\text{rep}} \sim 100$ MHz 間隔で分布している。その広がりにはスペクトル幅 $\Delta f = 1/\Delta t \sim 10$ THz の程度で，その中に約 10^5 本の縦モードが含まれる。そのスペクトル形状から光コム（櫛）とよばれる。レーザー共振器内には分散をもつ媒質があるため，受動特性としての縦モード周波数は等間隔にはならない。しかし，モード同期発振時には光強度の大きい部分がよく増幅される正帰還が働き，共振器内を一定時間で伝搬する光パルスが成長して，レーザーの縦モード周波数間隔を等しくする。

図1下で示した発振モードを f_{rep} 間隔でゼロ周波数に外挿したときの余りを，キャリア・エンベロープ・オフセット (carrier envelope offset) 周波数 f_{CEO} とよぶ。図1上では共振器内の分散により包絡線と搬送波の進む速度が異なり，光パルス1つごとに位相 $\Delta\phi$ だけずれる。これはキャリア・エンベロープ・オフセット周波数と $f_{\text{CEO}} = \Delta\phi f_{\text{rep}}/(2\pi)$ の関係がある。このとき， n 番目の発振モー

ドの周波数は

$$f_n = n f_{\text{rep}} + f_{\text{CEO}} \quad (1)$$

で与えられる。 f_{rep} は約 100 MHz で，光コムの出力を検出して周波数カウンターで測定すれば簡単に決定できる。一方，光コムが開発された 2000 年頃までに，非線形光ファイバーを用いてパルス幅を狭窄できるようになった。これにより，光コムのスペクトルが1オクターブ以上に広がり，自己参照法で f_{CEO} を決定できた¹⁴⁾。 f_{CEO} は f_{rep} 以下なのでラジオ波領域にあり，式(1)は光周波数 f_n とラジオ波周波数とを直接結びつけている。

2. 波長域の拡大

光コムは「光のものさし」として開発されたが，広帯域コヒーレント光源，短パルス励起光源としての応用も期待され，さまざまな波長へ伸展している。

チタンサファイアコムや Er ファイバーコムはピーク強度が大きいため，高非線形光ファイバーやフォトニック結晶ファイバー中の和周波発生や差周波発生を利用してスペクトルを広げることができる。また，波長 1.04 μm 付近の Yb 添加ファイバーレーザーをベースとする光コム (Yb ファイバーコム) も開発された。これは Er ファイバーコムに比べゲインが大きく，ゲイン媒質長を減らして f_{rep} を 1 GHz 以上にできるので，1モードあたりの出力が大きい¹⁵⁾。このため，「光のものさし」としての用途のほかにも，非線形光学過程を通して光コムの波長拡大に用いられる。

短波長光コムの発生には，コムからの光を光共振器内に置かれた光学結晶や希ガスに照射して，その非線形光学効果により高調波発生を起こす¹⁶⁻²⁰⁾。希ガスによる高調波発生について，本特集で小澤が解説している。ヘリウム，アルゴン，ネオンを非線形媒質として使って波長 100 nm 以下の第 20 次以上の高調波まで観測されており，同時に分光測定も行われた^{20,21)}。

長波長側にも光コムは進展している。中赤外領域には吸収強度の大きな分子の振動バンドがあり，分子種の同定や定量測定に使われる。このためこの波長域の光コムへの期待は大きい¹³⁾。Er ファイバーコムと波長 1.06 μm の CW 半導体レーザーの光を非線形光学結晶 PPLN (periodically polled lithium niobate) に入射すると，差周波発生により中心波長 2.9~3.5 μm の光コムが得られる²²⁾。また，光共振器内に置かれた PPLN の OPO (optical parametric oscillator) により，Yb ファイバーコム励起で中心波長 2.8~4.8 μm ²³⁾，Er ファイバーコム励起で中心波長 2.5~3.8 μm の中赤外光コムが報告された²⁴⁾。これらは位相整合条件

を変えると広い同調範囲は得られるが、スペクトル広がり
は励起光源ほど広くない。一方、GaAs 結晶による OPO に
より、Er ファイバーコム励起で波長 4.4~5.4 μm ²⁵⁾、Tm
(ツリウム) ファイバーコム励起で波長 2.6~6.1 μm にスペ
クトルが広がる赤外光コムが報告された²⁶⁾。このほかに
も、Er 添加ファイバーレーザーで分散ファイバーをパル
ス励起し、ラマンシフトしたソリトンパルスとの差周波発
生により中心波長 9.7~14.9 μm の光コムが発生した²⁷⁾。

さらに長波長のテラヘルツ帯にはもともとコヒーレント
光源が少なく、基礎的な分光測定的光源として光コムは期
待されている。チタンサファイアコムを光伝導アンテナに
照射して光整流すると、テラヘルツ域の周波数コムが発生
する²⁸⁾。この原理とその後の進展については、本特集で安
井が解説している。光コムでシリコンのフォノン励起を用
いたテラヘルツ域の光コム発生も報告されている²⁹⁾。

マイクロ波のコムは高速検出器で光コムを受光すれば
ビートとして生じる。現在、高フィネスの超高安定光共振
器に周波数安定化したレーザーは、どの周波数域の電磁波
源より相対安定度が高い。波長の異なるこのようなレー
ザー 2 台にその周波数と近い光コムの 2 つのモードをそれ
ぞれ安定化すれば、 f_{rep} と f_{CEO} が安定化され、したがって
すべてのモード周波数が安定化する。この光コムから光
ビートとして得られるマイクロ波も高い安定度が得られ
る³⁰⁾。

レーザー共振器を小さくして繰り返し周波数 f_{rep} を高く
すると、1 モードあたりの出力が大きくなり、光コムの応
用も広がる。 f_{rep} が 10 GHz のチタンサファイアコムの周波
数安定化³¹⁾、微細加工で製作した微小共振器を用いて、
850 GHz 間隔で波長 1.0~2.2 μm とオクターブを越すスペ
クトル広がりをもつ光コムも報告されている^{32,33)}。

3. 「光のものさし」としての展開

チタンサファイアコムと Er ファイバーコムは非線形
ファイバーを使うと、それぞれ波長 0.5~1.2 μm 、1.0~
2.0 μm の範囲にスペクトルが広がる。この範囲内の原子
や分子の遷移周波数は、そのスペクトル線に周波数安定化
した光源の周波数 f_{opt} を測定すれば決定できる。 f_{rep} 程度
の帯域をもつ光検出器で光コムの n 番目のモードとのビート
周波数 f_{beat} をその符号を含めて測定すると、 f_{opt} は

$$f_{\text{opt}} = n f_{\text{rep}} + f_{\text{CEO}} + f_{\text{beat}} \quad (2)$$

で与えられる。スペクトル線の周波数が f_{rep} 程度の精度で
わかっているならば、 n の値を決めることができる。あるい
は、光源の周波数を光コムに位相同期 / 安定化しながら掃
引すると、絶対周波数で目盛付けされた原子や分子のスペ

クトルを記録できる。

この波長域より長波長側では、周波数測定可能な 2 つの
光源から差周波発生で光を得ると光周波数を計測しやす
い。それぞれの光源の周波数が

$$f_{\text{opt1}} = n_1 f_{\text{rep}} + f_{\text{CEO}} + f_{\text{beat1}} \quad (3)$$

$$f_{\text{opt2}} = n_2 f_{\text{rep}} + f_{\text{CEO}} + f_{\text{beat2}} \quad (4)$$

のとき、その差周波数は

$$f_{\text{DFG}} = (n_1 - n_2) f_{\text{rep}} + f_{\text{beat1}} - f_{\text{beat2}} \quad (5)$$

となり、 f_{CEO} に依存しない。このため、 f_{CEO} の測定や制御
が必要なく測定系が簡単になる。もともと可視から近赤外
領域は光通信や画像産業への応用が盛んで、高性能のレー
ザー光源、光増幅器、検出器、周辺機器が容易に入手でき
るので、この点でも差周波発生は有利である。

光コムで光源の周波数が値付けされた分光計が真空紫外
域^{20,21)}、中赤外域^{34,35)}、テラヘルツ帯³⁶⁻³⁸⁾ で作られ、分
光計測に使われている。光コムを基準に周波数掃引してス
ペクトルを記録すると、周波数ドリフトがないため長期間
の信号積分が可能で検出感度が上がる。この方法で、ポー
ス・アインシュタイン凝縮した He の波長 1.56 μm にある
二重禁制遷移³⁹⁾、および、 $^{14}\text{C}^{16}\text{O}_2$ の波長 4.5 μm の振動回
転遷移⁴⁰⁾ を超高感度検出している。 ^{14}C は年代測定に使わ
れる放射性元素で、主成分の ^{12}C に対してわずか 10^{-14} の
自然存在比しかない。

可視や赤外領域の低圧気体のスペクトル線幅は原子・分
子の熱運動に起因するドップラー幅で制限され、相対スペ
クトル分解能は約 10^6 程度である。スペクトルの信号雑音
比が 100 程度のとき、その中心周波数は相対精度 10^{-8} で決
定できる。これは光コムを使わずに波長測定でも達成でき
るレベルである。これに対し、飽和吸収分光法を用いてサブ
ドップラー分解能分光を行うと、相対分解能が約 3 桁向
上する。信号雑音比が同じく 100 程度とすると、中心周波
数の決定精度はおおよそ 10^{-11} 程度となり、光コムによる周
波数測定が必須となる。波長 3.3 μm 帯の CH_4 ⁴²⁾、波長 4.3
 μm 帯の CO_2 ⁴¹⁾、波長 1.08 μm のヘリウム⁴²⁾ でも、光コム
を使ってサブドップラー分解能スペクトルの周波数計測が
行われた。

4. 光周波数コムを光源とした分光法

上で述べたように、光コムは光周波数を測るために開発
された。しかし、ここにきて光コムを広帯域の光源として
用いる分光法が急速に進展している。この分光方法につい
ては、英文の解説が公刊されている⁴³⁾。図 1 下図に示した
光コムのスペクトルは、広い波長域に等周波数間隔で分布
した 10^5 個あまりの狭線幅 CW レーザー群としてとらえる

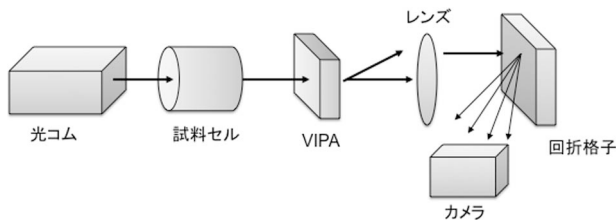


図3 光コムと分散素子による二次元イメージ分光計の構成。高角度分散素子に VIPA (virtually-imaged phase array) を用いている。

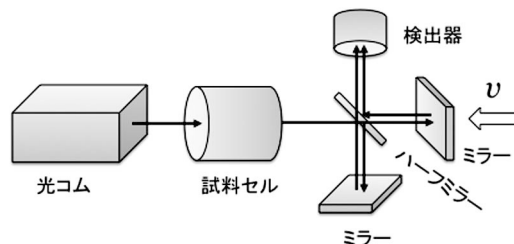


図4 光コムとマイケルソン干渉計によるフーリエ変換分光計の構成。

ことができる。しかも、互いにコヒーレントな位相関係をもち、周波数も正確に決まっている。また、光共振器を吸収セルに用いて実効吸収長を伸ばし、検出感度を容易に上げることができる。これは光コムも光共振器も等間隔の周波数モードをもつためである。光コムの縦モードはスペクトル幅が狭く、これを光源とすればスペクトル分解能も高い。しかし、スペクトルの測定点が f_{rep} 間隔になるので、試料固有のスペクトル幅 (例えばドップラー幅) が狭いと忠実度が低下する。

原子スペクトルは遷移がまばらで、光コムのどのモードが共鳴したかを容易に同定できる。実際、光コムを光源にしてポルトラップに捕捉された低温 Ca^+ の波長 729 nm の禁制遷移の遷移周波数を、 10^9 の相対精度で決定している⁴⁴⁾。しかし、分子のように光コムの広がりの中に多数の振動回転遷移をもつ場合は、1本1本の発振モードを区別して検出しなければ、従来の熱的光源を用いる回折格子分光法やフーリエ変換分光法と分解能や精度は変わらない。そのために、おもに3つの方法が採られる。

4.1 高分散素子

図3では試料からの透過光は高角度分散をもつ *virtually-imaged phased array* (VIPA) で垂直方向に分散し、さらに低角度分散の回折格子で水平方向に分散して、二次元的に現れるスペクトルをカメラで記録する。Erファイバークムを光源にして高感度のガス検出を行っている⁴⁵⁾。また、Ybファイバークムの差周波発生で波長 2.7~4.8 μm の中赤外光コムを作り、分子試料を通過した後、波長 1.06 μm と和周波数を発生して波長約 0.8 μm に上方変換してからこの分光計に入れてスペクトルを記録している。中赤外域では二次元のイメージカメラが入手しにくいのでこのような方法が採られた⁴⁶⁾。

4.2 マイケルソン干渉計

図4では試料からの透過光をマイケルソン干渉計に入射して、ミラーを移動しながらインターフェログラムを記録した後、計算機でフーリエ逆変換してスペクトルを得る。これは、従来のフーリエ変換分光法の熱的光源を光コムに

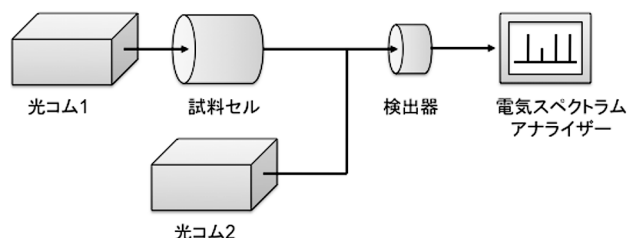


図5 デュアル・コム分光計の構成。

置き換えたものである。しかし、光コムのコヒーレンスの高さと同様に高速繰り返しにより、感度と分解能が飛躍的に向上する。試料気体の応答により変形した光パルスは、干渉計のビームスプリッターで2つの腕に光路が分かれる。固定腕では繰り返し周波数 f_{rep} のままで、移動速度 v のミラーを含む腕ではドップラーシフトした $f_{\text{rep}} (1+2v/c)$ の繰り返し周波数で、ビームスプリッターに再入射する。これを重ね合わせるとビート周波数 $2f_{\text{rep}}v/c$ でインターフェログラムが繰り返し観測される。ここで c は光速である。 v を速くすれば高速にスペクトルを記録、積算することができる。OPOで発生した光コムを用いて、波長 2.7~4.8 μm の範囲の H_2CO , CH_4 , C_2H_6 , N_2O によるスペクトル線を積算時間 30 s で高感度検出している⁴⁷⁾。また、Erファイバークムを光源に C_2H_2 の吸収スペクトルを量子限界の感度で検出している⁴⁸⁾。

4.3 デュアル・コム

図5に光コムを2台使うデュアル・コム法の装置図を示す。光コム1の光は吸収セルを透過した後、光コム2の光と重なって高速検出器で電気信号に変換される。これを電気スペクトラムアナライザーで周波数分解する。

図6はデュアル・コムの原理を示す周波数スペクトルである。光コム1と光コム2の繰り返し周波数を、例えば $f_{\text{rep}1} = 100.000 \text{ MHz}$, $f_{\text{rep}2} = 100.001 \text{ MHz}$ とする。また、光コム1の n_1 番目の発振モードの周波数 f_{n1} と光コム2の n_2 番目の発振モードの周波数 f_{n2} を、 $f_{n1} = f_{n2}$ となるように制御する。光コム1の (n_1+4) 番目の発振モードと、光コム2の (n_2+4) 番目の発振モードとの光ビートは、電気スペ

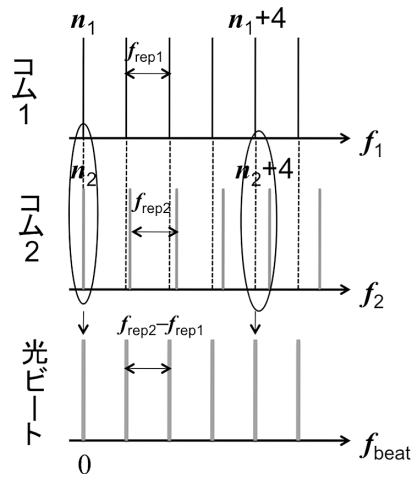


図6 デュアル・コム分光の原理図.

クトラムアナライザの周波数 4 kHz に現れる。同様に、光コム 1 の (n_1+m) 番目の発振モードが m kHz に現れる。これにより、光周波数では 100 MHz の発振モード間隔を 10^{-5} 倍に縮小したラジオ波周波数に変換して 1 本 1 本の発振モードを分離して観測することができる。 m が増えて $m = 50000$ となると、光コム 1 の $(n_1+50000)$ 番目の発振モードと光コム 2 の $(n_2+50000)$ 番目の発振モードとの光ビートは 50 MHz に現れるが、同時に、光コム 1 の $(n_1+50001)$ 番目の発振モードと光コム 2 の $(n_2+50000)$ 番目の発振モードも 50 MHz に現れる。このため、光コム 1 の発振モードを特定できなくなる。一般に、 m が増えて $f_{\text{rep}2}/2 \leq m (f_{\text{rep}2} - f_{\text{rep}1})$ となると、ビート周波数に対応する発振モードを 1 つに特定できなくなる (エイリアシング)。このため、光コムのスペクトル幅を制限しなければならない。

波長 $1.5 \mu\text{m}$ 帯にある HCN の振動回転遷移を対象にデュアル・コム法の原理実験が行われた⁴⁹⁾。図 7 にはこのとき観測されたドップラー分解能スペクトルを示す。光周波数では 800 GHz にわたり広がっているスペクトルが、ビート周波数では 14~22 MHz の範囲にたたみ込まれている。周波数軸を 100 倍、1000 倍に拡大すると光コム 1 の発振モードが 1 本 1 本分離され、それぞれの強度を測定すれば試料の吸収スペクトルが得られる。800 GHz は光コムのスペクトル幅としては狭いが、エイリアシングを防ぐためにわざとフィルターを入れて帯域を狭めている。

図 8 に、この方法で得られた近赤外スペクトルを周波数軸のスケールを変えて示す。 a) では、図 7 の測定をつなぎあわせて、振動回転バンド全体にわたる広範囲のスペクトルが示されている。実際の測定では、ビート信号を電気スペクトラムアナライザに入力する代わりに、ディジタ

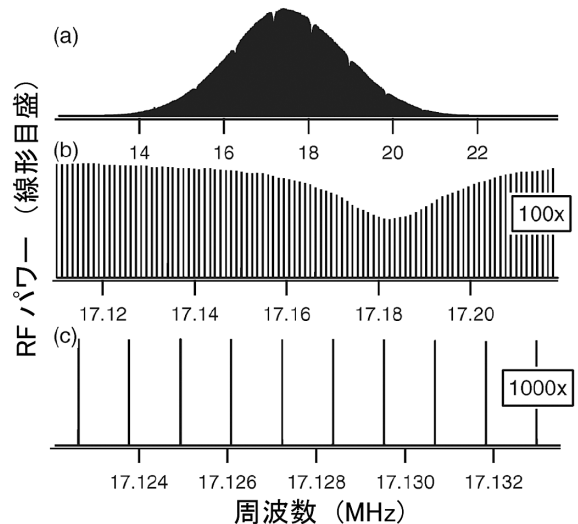


図7 デュアル・コム分光で観測された光ビートスペクトル⁴⁹⁾.

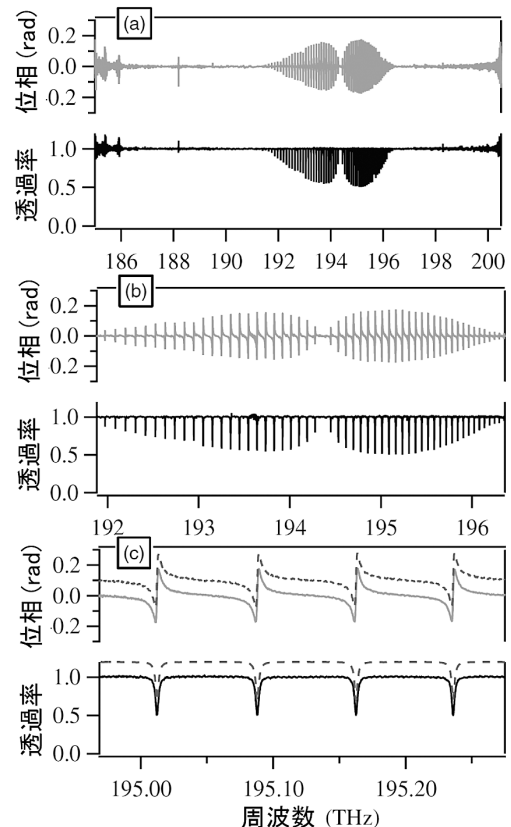


図8 デュアル・コム分光で観測された近赤外スペクトル⁴⁹⁾。上：分散スペクトル，下：吸収スペクトル。

イザと高速フーリエ変換により強度と位相情報を高速に得ている。したがって、分散スペクトル (上)、吸収スペクトル (下) が同時に観測されている。両者はクラマース・クロニヒの関係で結びつけられている。波長 $3.3 \mu\text{m}$ の CH_4 のドップラー分解能スペクトルを 87~91 THz の範

囲で記録して、遷移周波数を約 10^{-9} の精度で決定している⁵⁰⁾。また、波長 $1.36\sim 1.69\ \mu\text{m}$ で CO_2 , CH_4 , C_2H_2 , H_2O のドップラー分解能スペクトルを観測している⁵¹⁾。

4.2 節のマイケルソン干渉計とデュアル・コム法では光パルス間の遅延時間を変えて信号を記録し、それをフーリエ変換してスペクトルを得ている。このように、原理は共通だが、前者ではミラーを動かして空間的に遅延時間を変え、一方、後者では時間的に遅延時間を変えている。後者はマイケルソン干渉計のミラーのように動く部分がなく、非常に高速で広帯域のスペクトルを記録できる。 Cr^{2+} : ZnSe のフェムト秒レーザーは波長 $2.4\ \mu\text{m}$ 帯の光コムを直接発生し、これを光源に用いたデュアル・コム法により波長 $2.370\sim 2.525\ \mu\text{m}$ の C_2H_2 のスペクトルを $10\ \mu\text{s}$ で記録している⁵²⁾。

本稿は光コムによる分光研究の進展を中心に述べた。光コムは多数の周波数安定 CW レーザーとしての側面と、時間幅が狭くピーク強度の大きなパルスレーザーの側面を併せもつ。前者は「光のものさし」として役立ち、後者は非線形効果により光コムの波長域を拡大するために貢献している。軟 X 線からテラヘルツ領域にわたって分光光源が得られ、コヒーレントな周波数計測が可能になる日は遠くないであろう。分光研究以外にも光コムの精密な測長を行う研究^{8,9)} は実用化が近い。また、光コムのモードを計算資源として量子計算を行う提案⁵³⁾ があり、実験的に 60 個のモードの間にエンタングルメントが作られた⁵⁴⁾。光コムの性能向上に伴い、応用分野もますます広がるだろう。

光コムの開発者である Hänsch と Hall はレーザー分光学の先駆者として著名であり、もっと早くノーベル賞を受賞しても不思議ではなかった。もし彼らがすでに受賞していたとしても、光コムが各分野に起こした革命的影響から考えて、2 回目の受賞も確実だったろう。

文 献

- 1) S. A. Diddams, D. J. Jones, J. Ye, S. T. Cundiff, J. L. Hall, J. K. Ranka, R. S. Windeler, R. Holzwarth, T. Udem and T. W. Hänsch: "Direct link between microwave and optical frequencies with a 300 THz femtosecond laser comb," *Phys. Rev. Lett.*, **84** (2000) 5102-5105.
- 2) 稲場 肇, 洪 鋒雷, 増田 伸, 仁木尚治: "光の周波数を測る", *オプトロニクス*, **24** (2005) 119-125.
- 3) 美濃島薫, 洪 鋒雷, 稲場 肇, 大苗 敦: "光コム・シンセサイザー", *応用物理*, **76** (2007) 169-173.
- 4) 洪 鋒雷: "キャリアエンベロープ位相同期とその応用", *光学*, **36** (2007) 60-67.
- 5) 洪 鋒雷: "光コム", *応用物理*, **79** (2010) 546-549.
- 6) 大苗 敦, 稲場 肇, 洪 鋒雷: "光周波数コムによる長さの

- 国家標準", *光アライアンス*, **21** (2010) 52-56.
- 7) 洪 鋒雷: "光格子時計と光コム", *O plus E*, **33** (2011) 151-154.
- 8) 松本弘一: "光周波数コムと干渉計測", *オプトロニクス*, **29** (2010) 98-101.
- 9) 鍛島麻理子, 美濃島薫: "光コムを利用したサブナノメートル測長技術の開発", *レーザー研究*, **39** (2011) 842-846.
- 10) S. A. Diddams: "The evolving optical frequency comb," *J. Opt. Soc. Am. B*, **27** (2010) 51-62.
- 11) A. J. Benedick, G. Chang, J. R. Birge, L. -J. Chen, A. G. Glenday, C.-H. Li, D. F. Phillips, A. Szentgyorgyi, S. Korzennik, G. Furesz, R. L. Walsworth and F. X. Kärtner: "Visible wavelength astro-comb," *Opt. Express*, **18** (2010) 19175-19184.
- 12) S. Okubo, H. Nakayama, K. Iwakuni, H. Inaba and H. Sasada: "Absolute frequency list of the ν_3 -band transitions of methane at a relative uncertainty level of 10^{-11} ," *Opt. Express*, **19** (2011) 23878-23888.
- 13) A. Schliesser, N. Picqué and T. W. Hänsch: "Mid-infrared frequency combs," *Nat. Photonics*, **6** (2012) 440-449.
- 14) 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 lasers and direct optical frequency synthesis," *Science*, **288** (2000) 635-639.
- 15) A. Ruehl, A. Marcinkevicius, M. E. Fermann and I. Hartl: "80 W, 120 fs Yb-fiber frequency comb," *Opt. Lett.*, **35** (2010) 3015-3017.
- 16) C. Gohle, T. Udem, M. Herrmann, J. Rauschenberger, R. Holzwarth, H. A. Schuessler, F. Krausz and T. W. Hänsch: "A frequency comb in the extreme ultraviolet," *Nature*, **436** (2005) 234-237.
- 17) S. Witte, R. T. Zinkstok, W. Ubachs, W. Hogervorst and K. S. E. Eikema: "Deep-ultraviolet quantum interference metrology with ultrashort laser pulses," *Science*, **307** (2005) 400-403.
- 18) R. J. Jones, K. D. Moll, M. J. Thorpe and J. Ye: "Phase-coherent frequency combs in the vacuum ultraviolet via high-harmonic generation inside a femtosecond enhancement cavity," *Phys. Rev. Lett.*, **94** (2005) 193201.
- 19) E. Peters, S. A. Diddams, P. Fendel, S. Reinhardt, T. W. Hänsch and Th. Udem: "A deep-UV optical frequency comb at 205 nm," *Opt. Express*, **17** (2009) 9183-9190.
- 20) D. Z. Kandula, C. Gohle, T. J. Pinkert, W. Ubachs and K. S. E. Eikema: "XUV frequency-comb metrology on the ground state of helium," *Phys. Rev. A*, **84** (2011) 062512.
- 21) A. Cingöz, D. C. Yost, T. K. Allison, A. Ruehl, M. E. Fermann, I. Hartl and J. Ye: "Direct frequency comb spectroscopy in the extreme ultraviolet," *Nature*, **482** (2012) 68-71.
- 22) P. Maddalonì, P. Malara, G. Gagliardi and P. De Natale: "Mid-infrared fibre-based optical frequency comb," *New J. Phys.*, **8** (2006) 262.
- 23) F. Adler, K. C. Cossel, M. J. Thorpe, I. Hartl, M. E. Fermann and J. Ye: "Phase-stabilized, 1.5 W frequency comb at 2.8-4.8 μm ," *Opt. Lett.*, **34** (2009) 1330-1332.
- 24) N. Leindecker, A. Marandi, R. L. Byer and K. L. Vodopyanov: "Broadband degenerate OPO for mid-infrared frequency comb generation," *Opt. Express*, **19** (2011) 6296-6302.
- 25) K. L. Vodopyanov, E. Sorokin, I. T. Sorokina and P. G. Schunemann: "Mid-IR frequency comb source spanning 4.4-5.4 μm based on subharmonic GaAs optical parametric oscillator," *Opt. Lett.*, **36** (2011) 2275-2277.
- 26) N. Leindecker, A. Marandi, R. L. Byer, K. L. Vodopyanov, J. Jiang, I. Hartl, M. Fermann and P. G. Schunemann: "Octave-spanning ultrafast OPO with 2.6-6.1 μm instantaneous bandwidth pumped by a femtosecond Tm-fiber laser," *Opt. Express*, **20** (2012) 7046-7053.

- 27) D. G. Winters, P. Schlup and R. A. Bartels: "Subpicosecond fiber-based soliton-tuned mid-infrared source in the 9.7–14.9 μm wavelength region," *Opt. Lett.*, **35** (2010) 2179–2181.
- 28) T. Yasui, Y. Kabetani, E. Saneyoshi, S. Yokoyama and T. Araki: "Terahertz frequency comb by multifrequency-heterodyning photoconductive detection for high-accuracy, high-resolution terahertz spectroscopy," *Appl. Phys. Lett.*, **88** (2006) 241104.
- 29) M. Hase, M. Katsuragawa, A. M. Constantinescu and H. Petek: "Frequency comb generation at terahertz frequencies by coherent phonon excitation in silicon," *Nat. Photonics*, **6** (2012) 243–247.
- 30) W. C. Swann, E. Baumann, F. R. Giorgetta and N. R. Newbury: "Microwave generation with low residual phase noise from a femtosecond fiber laser with an intracavity electro-optic modulator," *Opt. Express*, **19** (2011) 24387–24395.
- 31) D. C. Heinecke, A. Bartels and S. A. Diddams: "Offset frequency dynamics and phase noise properties of a self-referenced 10 GHz Ti:sapphire frequency comb," *Opt. Express*, **19** (2011) 18440–18451.
- 32) T. J. Kippenberg, R. Holzwarth and S. A. Diddams: "Microresonator-based optical frequency combs," *Science*, **332** (2011) 555–559.
- 33) P. Del'Haye, T. Herr, E. Gavartin, M. L. Gorodetsky, R. Holzwarth and T. J. Kippenberg: "Octave spanning tunable frequency comb from a microresonator," *Phys. Rev. Lett.*, **107** (2011) 063901.
- 34) I. Galli, S. Bartalini, P. Cancio, G. Giusfredi, D. Mazzotti and P. De Natale: "Ultra-stable, widely tunable and absolutely linked mid-IR coherent source," *Opt. Express*, **17** (2009) 9582–9587.
- 35) A. Gambetta, D. Gatti, A. Castrillo, G. Galzerano, P. Laporta, L. Gianfrani and M. Marangoni: "Mid-infrared quantitative spectroscopy by comb-referencing of a quantum cascade-laser: Application to the CO_2 spectrum at 4.3 μm ," *Appl. Phys. Lett.*, **99** (2011) 251107.
- 36) T. Yasui, H. Takahashi, K. Kawamoto, Y. Iwamoto, K. Arai, T. Araki, H. Inaba and K. Minoshima: "Widely and continuously tunable terahertz synthesizer traceable to a microwave frequency standard," *Opt. Express*, **19** (2011) 4428–4437.
- 37) F. Hindle, G. Mouret, S. Eliet, M. Guinet, A. Cuisset, R. Bocquet, T. Yasui and D. Rovera: "Widely tunable THz synthesizer," *Appl. Phys. B*, **104** (2011) 763–768.
- 38) M. Ravaro, C. Manquest, C. Sirtori, S. Barbieri, G. Santarelli, K. Blary, J.-F. Lampin, S. P. Khanna and E. H. Linfield: "Phase-locking of a 2.5 THz quantum cascade laser to a frequency comb using a GaAs photomixer," *Opt. Lett.*, **36** (2011) 3969–3971.
- 39) R. van Rooij, J. S. Berbel, J. Simonet, M. D. Hoogerland, K. S. E. Eikema, R. A. Rozendaal and W. Vassen: "Frequency metrology in quantum degenerate helium: Direct measurement of the $2^3\text{S}_1 \rightarrow 2^1\text{S}_0$ transition," *Science*, **333** (2011) 196–198.
- 40) I. Galli, S. Bartalini, S. Borri, P. Cancio, D. Mazzotti, P. De Natale and G. Giusfredi: "Molecular gas sensing below parts per trillion: Radiocarbon-dioxide optical detection," *Phys. Rev. Lett.*, **107** (2011) 270802.
- 41) G. Giusfredi, S. Bartalini, S. Borri, P. Cancio, I. Galli, D. Mazzotti and P. De Natale: "Saturated-absorption cavity ring-down spectroscopy," *Phys. Rev. Lett.*, **104** (2010) 110801.
- 42) L. Consolino, G. Giusfredi, P. De Natale, M. Inguscio and P. Cancio: "Optical frequency comb assisted laser system for multiplex precision spectroscopy," *Opt. Express*, **19** (2011) 3155–3162.
- 43) A. Foltynowicz, P. Maslowski, T. Ban, F. Adler, K. C. Cossel, T. C. Briles and J. Ye: "Optical frequency comb spectroscopy," *Faraday Discuss.*, **150** (2011) 23–31.
- 44) A. L. Wolf, J. Morgenweg, J. C. J. Koelemeij, S. A. van den Berg, W. Ubachs and K. S. E. Eikema: "Direct frequency-comb spectroscopy of a dipole-forbidden clock transition in trapped $^{40}\text{Ca}^+$ ions," *Opt. Lett.*, **36** (2011) 49–51.
- 45) K. C. Cossel, F. Adler, K. A. Bertness, M. J. Thorpe, J. Feng, M. W. Raynor and J. Ye: "Analysis of trace impurities in semiconductor gas via cavity-enhanced direct frequency comb spectroscopy," *Appl. Phys. B*, **100** (2010) 917–924.
- 46) T. A. Johnson and S. A. Diddams: "Mid-infrared upconversion spectroscopy based on a Yb: fiber femtosecond laser," *Appl. Phys. B*, **107** (2012) 31–39.
- 47) F. Adler, P. Maslowski, A. Foltynowicz, K. C. Cossel, T. C. Briles, I. Hartl and J. Ye: "Mid-infrared Fourier transform spectroscopy with a broadband frequency comb," *Opt. Express*, **18** (2010) 21861–21872.
- 48) A. Foltynowicz, T. Ban, P. Maslowski, F. Adler and J. Ye: "Quantum-noise-limited optical frequency comb spectroscopy," *Phys. Rev. Lett.*, **107** (2011) 233002.
- 49) I. Coddington, W. C. Swann and N. R. Newbury: "Coherent multiheterodyne spectroscopy using stabilized optical frequency combs," *Phys. Rev. Lett.*, **100** (2008) 013902. *Errata*, **101** (2008) 049901.
- 50) E. Baumann, F. R. Giorgetta, W. C. Swann, A. M. Zolot, I. Coddington and N. R. Newbury: "Spectroscopy of the methane ν_3 band with an accurate midinfrared coherent dual-comb spectrometer," *Phys. Rev. A*, **84** (2011) 062513.
- 51) A. M. Zolot, F. R. Giorgetta, E. Baumann, J. W. Nicholson, W. C. Swann, I. Coddington and N. R. Newbury: "Direct-comb molecular spectroscopy with accurate resolved comb teeth over 43 THz," *Opt. Lett.*, **37** (2012) 638–640.
- 52) B. Bernhardt, E. Sorokin, P. Jacquet, R. Thon, T. Becker, I. T. Sorokina, N. Picqué and T. W. Hänsch: "Mid-infrared dual-comb spectroscopy with 2.4 μm $\text{Cr}^{2+}:\text{ZnSe}$ femtosecond lasers," *Appl. Phys. B*, **100** (2010) 3–8.
- 53) N. C. Menicucci, S. T. Flammia and O. Pfister: "One-way quantum computing in the optical frequency comb," *Phys. Rev. Lett.*, **101** (2008) 130501.
- 54) M. Pysher, Y. Miwa, R. Shahrokhshahi, R. Bloomer and O. Pfister: "Parallel generation of quadripartite cluster entanglement in the optical frequency comb," *Phys. Rev. Lett.*, **107** (2011) 030505.

(2012年4月12日受理)