総説と解説

レーザー周波数安定度，再現性向上のための分光的手法

大 津 元 一*・田 幸 敏 治**

* 東京工業大学理工学国際交流センター 東京都目黒区大岡山 2-12-1 (〒152)

** 東京工業大学精密工学研究所 神奈川県横浜市緑区長津田町 4259 (〒227)

(1983年8月8日受理)

Spectroscopic Technique to Improve the Stability and Reproducibility of Laser Frequencies

Motoichi OHTSU* and Toshiharu TAKO**

* International Cooperation Center for Science and Technology, Tokyo Institute of Technology, 2-12-1, O-okayama, Meguro-ku, Tokyo 152

** Research Laboratory of Precision Machinery and Electronics, Tokyo Institute of Technology, 4259 Nagatsuta-cho, Midori-ku, Yokohama-shi, Kanagawa 227

(Received August 8, 1983)

1. ま え が き

レーザーの出現以後すでに20年以上を数えるが，この光源をその時間的コヒーレンスの良さを利用した研究，たとえば高分解能分光，精密光学計測などに用いるとき，必ずしも周波数の安定度が十分高いとはいえない場合に出会うことが多く，周波数の安定化を施して用いる必要が生じる．さらにレーザーを光領域の周波数標準として用いるような場合には必然的に周波数安定度の向上をめざすことが要求される．このように周波数安定化はレーザーの時間的コヒーレンスの良さを引き出し，向上させ，コヒーレント光源の特長を生かした応用には不可欠な技術としてレーザーの出現当初から研究が開始され，安定度は着実に向上している¹⁾．現在までに気体レーザー，半導体レーザーといった連続発振レーザーに対し周波数安定化が試みられ，その安定度は 1×10^{-14} に達している¹⁾．今後，周波数安定化に要求される事項としては安定度の向上，すなわち周波数変動の抑圧のみならず，安定化されたレーザー周波数の値の再現性の向上，位相安定度の向上などが挙げられる．また，近年，連続発振色素レーザーの性能が著しく向上し，すでに数多くの高

分解能レーザー分光に用いられているが，その際可視域の任意の波長値において周波数を安定化する必要があることなどから波長可変レーザー，さらにまた短波長レーザーの周波数安定化が必要となる．

これらの周波数安定化に使用しうる周波数基準としてはファブリ・ペロー干渉計，原子・分子スペクトルなどがあるが，上記のように安定度，再現性の向上のためにはこれらのスペクトルの中心周波数値を精度よく見出すことが必要である．さらに波長可変レーザーの周波数安定化に必要な数多くの原子・分子スペクトルの強度は必ずしも大きくないことがあり，微弱な信号を高感度かつ高分解能で測定し，周波数基準として用いる必要がある．このように考えると周波数安定化は高分解能レーザー分光の進歩と密接な関係があり，高分解能レーザー分光における新しい手法のうちのいくつかは周波数安定化に応用しうる．また，こうしてレーザーの周波数安定度が向上すると，これを光源として用いた高分解能レーザー分光の分解能，感度の向上が期待される．周波数安定化に応用しうる高分解能レーザー分光の手法としては補助的なレーザーを必要としないこと，実時間でスペクトル測定可能なこと，さらにサブ・ドブラー分光と同等かそれ

以上の分解能を有し高感度であることなどを満たすことが必要である。そこで本稿では今後の周波数安定化のために応用可能な分光的手法について概説することを目的とする。従来の飽和吸収分光法を応用した安定化法に加え、近年、光の偏光特性を利用したり、マイクロ波技術との類推による分光技術が開発されつつあり、これらは周波数安定化や精密光学計測にも応用しうる分光法であるという意味合いから Precision Spectroscopy と呼ばれ、急速な進歩を示している²⁾。本稿は将来の周波数安定化の展望としてこれらの各手法のもつ独創性を重視して述べる。

レーザーの周波数を安定化するには Fig. 1 (a) のような周波数基準となるスペクトルの中心周波数 ν_0 をまず正確に見出さなければならない。そのためには方法 (I) として同図 (b) のように (a) の微分に相当する曲線を求めてその横軸との交点を精度よく見つけるのが一つの方法である。(a) のスペクトルとして周波数安定化

Fig. 1. 周波数基準となるスペクトルの共鳴周波数を見出す二つの方法

(I) (a) のスペクトルから (b) のように周波数弁別特性を有する分散形の信号を得る。

(II) (a) のスペクトルよりも幅のせまいスペクトル (c) を得る。その後必要に応じて (I) と同様に (c) から分散形の信号 (d) を得る。

に用いられているのは一般に原子・分子の飽和吸収スペクトルであり簡便な安定化の場合には原子分子の線形吸収スペクトル、ファブリ・ペロー干渉計の共振スペクトルが用いられる。他方、分光研究の手法の主流ともいべき方法 (II) としてまず同図 (c) のようにスペクトル測定 of 分解能を向上させて (a) よりも幅のせまいスペク

Fig. 2. ファブリ・ペロー干渉計からの反射光の電場の実部 (a) と虚部 (b) の周波数依存性。ここで横軸の x はレーザー周波数のファブリ・ペロー干渉計の共振周波数からの離調度を表わす。

トルを得る工夫をし、その後 (d) のように (c) の微分を求めて ν_0 を見出す方法がある。現在までのところ原子・分子の飽和吸収スペクトルのような線幅のせまい周波数基準を用いる場合には方法 (I) が多く行なわれ周波数安定化への応用可能性も高まりつつあるのでこれについて 2, および 3 で述べる。方法 (II), すなわち飽和吸収スペクトルよりさらに幅のせまいスペクトルを得ようとする試みについてはまだ信号の S/N 値が小さく実時間測定が困難な段階であるが周波数安定度向上のための有望な技術であるので 4 で略記する。

Fig. 1 (a) に相当する周波数基準としてのファブリ・ペロー干渉計も原子・分子内のエネルギー準位間の遷移もいずれも光と共鳴相互作用するものであるから、これらと相互作用後の光の電場は、これら周波数基準に関する情報を担っている。一例としてまずファブリ・ペロー干渉計からの反射光の電場振幅のうち入射光と同位相成分, $\pi/2$ 位相差の生じた成分, すなわち複素表示の場合の実部, 虚部の周波数依存性を Fig. 2 (a) (b) に示す。ここで虚部の値はファブリ・ペロー干渉計の共振周波数値において 0 とおり, 電子回路における FM 復調器出力の周波数特性と同様に鋭い周波数弁別特性を有することがわかり, これをレーザー周波数安定化の際の弁別器

として使うことができる。ファブリ・ペロー干渉計からの透過光の電場振幅はこのような分散形の周波数弁別特性は示さない。一方, 原子・分子と相互作用後の光の電場の特性から原子・分子についての情報を得るには相互作用後の光電場の位相おくれ, 減衰量を測定すればよく, これはこの光に対する原子・分子の屈折率, 吸収率を測定することに相当する。両者は光により原子・分子中に誘起される分極の大きさを表わす複素感受率 $\chi(\nu)$ の実部 $\chi'(\nu)$, 虚部 $\chi''(\nu)$ に比例する。ローレンツ形のスペクトルの場合を例にとると

$$\chi(\nu) \propto \frac{1}{(\nu - \nu_0) + i\gamma} \quad (1)$$

と表わせる。ここで ν はレーザー周波数, ν_0 は原子・分子の遷移周波数, γ は横緩和定数である。(1) 式より

$$\chi'(\nu) \propto \frac{(\nu - \nu_0)}{(\nu - \nu_0)^2 + \gamma^2} \quad (2)$$

となり $\chi'(\nu)$ は Fig. 2 の場合と同様, 周波数弁別特性を有することがわかる。本稿の 2, 3 ではこのような周波数弁別特性を有する信号を光学技術, マイクロ波技術を活用して精度よく測定する方法を記すものである。

Table I に本稿で記す各方法を分類して示す。

Table I 本論文の構成

手法	(I) スペクトル共鳴周波数の探索		(II) スペクトルの狭帯域化
	光学技術 (偏光, 干渉)	マイクロ波技術 (周波数変, 復調)	
周波数基準			
ファブリ・ペロー干渉計	2.1. 偏光, 干渉を利用した反射光の位相おくれ測定 ^{3,5)}	3.1. 周波数変, 復調による反射光の位相おくれ測定 ²⁾	
原子, 分子	2.2. 偏光分光法 ^{13,15-18)}	3.2. 周波数変調分光法 ^{2,29,30)}	4. 超自然幅分光 ^{33,34,40,41)}
とじこめられたイオンをレーザーで冷却 ⁴²⁻⁴⁴⁾			

2. 光学技術を利用する方法

2.1. 周波数基準がファブリ・ペロー干渉計の場合

本章ではレーザー光のもつ偏光, 干渉などの光学的特性を利用して周波数安定化のための周波数弁別特性を有する信号を得る方法について記すが, まず本節ではそのうちとくに周波数基準としてファブリ・ペロー干渉計を用いる場合について示す。この周波数基準は原子・分子のスペクトルを用いる場合より安定度は劣るが装置が簡単なこと, 波長可変レーザーにも使用可能なことから従来比較的よく用いられている。従来の方法ではファブリ

・ペロー干渉計の透過スペクトルを測定し, レーザー周波数を変調して透過スペクトルの微分曲線を求め, その周波数弁別特性を利用して共振周波数値にレーザー周波数を安定化するか, または無変調のまま透過スペクトル曲線の肩の位置に安定化することが一般的であった。前者の方法では信号検出に同期検波方式を使うため制御帯域がせまいこと, また, スペクトルの微分曲線のすそ引きが少ないため, 色素レーザーに見られるように何らかの外乱によりレーザー周波数が跳び, 一度制御がはずれると, そのはずれが生じたことを認識することが困難であることが欠点である。一方, 後者の方法では干渉計の

Fig. 3. 偏光板を光路内に含むファブリ・ペロー干渉計を周波数基準とする周波数安定化の方法³⁾
(a) 実験装置 (b) 本方法により得られたファブリ・ペロー干渉計からの反射光の共振スペクトル. 自由スペクトル域は 2 GHz. (c) 透過光の共振スペクトル.

フィネスが低いとき制御利得が小さいことや、干渉計の光軸のずれ、および光強度変動により周波数安定度がわるくなることなどが欠点である。

これらを克服するために提案されている一つの方法を Fig. 3 に示す³⁾。この方法ではファブリ・ペロー干渉計からの透過光ではなく反射光を用い、かつその偏光特性を利用している。すなわち、ファブリ・ペロー干渉計の中に偏光板を置けば、偏光板の主軸の方向と平行な偏光成分に対し、これはフィネスの高い干渉計として動作するのでこの偏光成分の光は干渉計内で多重反射して、一部は干渉計を通過し、一部は反射される。一方これと垂直方向の偏光成分に対してはこの干渉計は高い損失を示す。この成分は鏡 M_1 で単に反射されるのみであるので、この反射光と上記の平行方向偏光成分の反射光との合成光の偏光状態は、光の周波数が干渉計の共振周波数に一致しているときは直線偏光、高周波または低周波側にあ

るときは左まわりまたは右まわりの楕円偏光になる。この楕円偏光の向きを図中の $\lambda/4$ 板、偏光ビームスプリッタ、二つの光検出器と差動増幅器によって符号を含めて検出すると、レーザー周波数に対して Fig. 3 (b) のように周波数弁別特性を有する信号が得られる。これを用いればレーザー周波数を変調することなく干渉計の共振周波数の値にレーザー周波数を安定化することが可能である。この方法は簡単な装置で無変調安定化ができること、得られるスペクトル曲線のすそ引きがなだらかなのであるため、制御がはずれた場合にもそれを認識でき、回復のための操作を施すことが可能であることなどの利点を有する。一方、欠点としては使用する二つの光検出器の感度差によりスペクトル波形がひずみ、真の共振周波数に安定化できない場合があること、干渉計の中の偏光板により干渉計のフィネスが減少し、制御利得が小さくなること、偏光板の熱膨張、機械的振動により共振周波数が変動することなどが挙げられる。この方法は色素レーザーに適用され、レーザー発振スペクトル線幅が数 MHz 以下まで減少している³⁾。

このように、ファブリ・ペロー干渉計からの反射光を周波数安定化に用いることはすでにマイクロ波発振器の周波数安定化で行なわれている方法の類推になっている。すなわち Pound は周波数基準用共振器からの反射電場の振幅の虚部は周波数弁別の信号として理想的であると指摘し、マイクロ波発振器の周波数安定化に應用している⁴⁾。本章での議論はこの方法の光領域への拡張と考えることができる。

Fig. 3 の方法に対しレーザーの周波数をやはり変調することなくファブリ・ペロー干渉計の真の共振周波数に安定化する試みを Fig. 4 に示す⁵⁾。Fig. 3 の場合と同様、ファブリ・ペロー干渉計からの反射光を利用するのである。Fig. 4 においてファブリ・ペロー干渉計と図の上方の鏡 1、ビームスプリッタ 1 によりマイケルソン干渉計が構成されている。光検出器 1 によりマイケルソン干渉計による干渉じまが測定できる。その光強度 I_1 は

$$I_1 = I_0 + I_{RC} + 2\sqrt{I_0} [\cos \theta \cdot \text{Re}(E_{RC}) + \sin \theta \cdot \text{Im}(E_{RC})] \quad (3)$$

である。ここで I_0 はマイケルソン干渉計の二つの光路のうち鏡 1 で反射される方の光の強度である。 I_{RC} , E_{RC} はファブリ・ペロー干渉計からの反射光の強度と、その光電場の振幅を表わす。また、 $\theta = 2\pi z/\lambda$ であり、 z はマイケルソン干渉計の二つの光路の光路長差、 λ は光の波長である。Re, Im は複素数の実部、虚部を表わす。ここで光検出器 2 によって (3) 式中の $I_0 + I_{RC}$ に相当する光強度を差し引き、かつ、光軸にそった鏡 1 の位置、

Fig. 4. 周波数基準用ファブリ・ペロー干渉計からの反射光を用いた周波数安定化の方法⁶⁾. マイクelson干渉計を構成する方法ではこの図の装置を使う. モード不整合のファブリ・ペロー干渉計を使う場合には図中の鏡1は不要である.

すなわち光路長差 z を調整して $\theta=90^\circ$ とすれば (3) 式中の $\text{Im}(E_{RC})$ に比例した信号が得られる. この信号は Fig. 2 (b) に示したものにほかならず, この周波数弁別特性を用いれば, ただちにファブリ・ペロー干渉計の共振周波数の値にレーザー周波数を安定化できる. この方法の原理は以上のとおりであるが実際にはいくつかの困難が付随する. すなわち, 例えば θ の値が 90° からずれた場合 (3) 式からもわかるように, $\text{Im}(E_{RC})$ に $\text{Re}(E_{RC})$ が加算され周波数弁別特性を有する信号波形は歪み, 共振周波数値に安定化することが不可能になり再現性および安定度の劣化を生ずる. θ の値の調節のためには z の値を波長の値以内の精度で調整する必要がある, これは実際には容易ではない.

そこで, より実際的な方法がさらに提案されている⁶⁾. すなわち Fig. 4 の方法で得られたような干渉じまをモード不整合のファブリ・ペロー干渉計を用いて得ようというものである. Fig. 4 中のファブリ・ペロー干渉計として, 入射光に対しモード不整合のものを用意する. この場合には図中の鏡1は不要であり, マイクelson干渉計を構成する必要はない. このファブリ・ペロー干渉計にレーザー光を入射すると TEM_{00} モードと共に高次の横モードが発生する. 簡単のためにそれを TEM_{01} モードとする. 両モードの光によって光検出器1の受光面上で干渉じまが観測されるが, レーザー周波数が TEM_{00} モードに対するファブリ・ペロー干渉計の共振周波数付近にあり TEM_{01} モードのそれから遠くはなれ

ているとき TEM_{01} モードの振幅, 位相はほとんど周波数依存性をもたない. 従って (3) 式において I_0 がこの TEM_{01} モードの光強度に相当する. 一方, TEM_{00} モードは (3) 式中の I_{RC} , E_{RC} に相当するもので, 先にマイケルソン干渉計を用いた場合と同様, 光検出器1で干渉じまが観測できる. しかし, 今の場合 θ の値が先の場合と大きく異なる. すなわち, TEM_{00} モードと TEM_{01} モードの光の位相差はファブリ・ペロー干渉計の TEM_{00} モードのビームウェストと光検出器1との距離を z' として

$$\theta = \arctan(\lambda z' / \pi w_0^2) \quad (4)$$

と表わされる. ここで w_0 はビームウェストにおける TEM_{00} モードのスポットサイズである. (4) 式中 $\pi w_0^2 / \lambda$ はファブリ・ペロー干渉計の長さと同程度の値をとる. すなわちたとえば共焦点形の干渉計の場合, これは干渉計の長さ $1/2$ の値になる. これによると θ の値を 90° に設定するためには z' の値に要求される精度は先のマイケルソン干渉計を構成する場合の z の設定精度にくらべはるかにゆるやかになるので $\text{Im}(E_{RC})$ に比例する信号のみを精度よく測定することが可能になり, 真の共振周波数値に安定化することができる. 実験では色素レーザーの安定化に応用し, フリーランニング時の周波数変動値 50 MHz (積分時間 10 秒において) をこの方法により 0.5 MHz まで減少させている. この方法の利点は θ の値を 90° に設定し, 周波数弁別特性を有する信号を純粋に光学的手法のみを用いて得ているため, 装置が簡単なことである. 欠点としては (3) 式中の $I_0 + I_{RC}$ の値を I_1 の値から正確に差し引く際の光検出器2の感度調整の誤差により信号に一定のオフセットが加わって真の共振周波数値に安定化されない可能性が残ることである.

2.2. 周波数基準が原子・分子の場合

周波数基準として安定な原子・分子スペクトルを用いればファブリ・ペロー干渉計の場合よりさらに高い周波数安定度を実現しうる. 安定度を向上させるのみでなく周波数基準となる原子・分子スペクトルの真の共鳴周波数値にオフセットのないよう安定化し, 安定化されたレーザー周波数値の再現性をも向上させようとする試みはまず $3.39 \mu\text{m}$ He-Ne レーザーに対してなされた⁶⁾. 従来の一般的な方法ではレーザー共振器内に置かれた吸収セル内の CH_4 気体の飽和吸収スペクトルを周波数基準として用いて安定化を行っていた⁷⁾. この場合, 飽和吸収スペクトルはレーザー出力同調曲線の頂上付近に現われるが, 周波数弁別特性をもつ信号を得るためにこのスペクトルの一次微分信号を測定すると, その信号には

レーザー出力同調曲線の傾斜の大きさに比例したオフセット量加わり、レーザー周波数は真の共鳴周波数とは異なった値に安定化される。このオフセット量はスペクトルの三次微分を周波数弁別に用いればほぼ完全に消去しうるはずである。しかし実際には飽和吸収が生じるときに同時に現われる飽和分散、すなわち CH_4 の屈折率の周波数依存特性のためにこのオフセット量は依然として残る⁶⁾。さらにこのオフセット量はレーザー光強度のドリフト、レーザー共振器外の各光学素子からの反射光による微弱なファブリペロー共振現象などにより時間とともに変化するため、再現性のみでなく、長期の安定度も低下する。これらについての理論的研究が Titov により行なわれている⁸⁾。

従来の方ではこのように飽和分散の影響で形の歪んだ飽和吸収スペクトルを測定していたことが再現性、さらに長期安定度の低下をひきおこしていたので、これらを向上させるために Fig. 5 に示す方法が提案された⁶⁾。

Fig. 5. CH_4 の飽和分散のスペクトルを周波数基準として用いた $3.39 \mu\text{m}$ He-Ne レーザーの周波数安定化の方法⁶⁾。

(a) 実験装置。L₁; 安定化対象のレーザー L₂; ビート測定用の局部発振器としてのレーザー (b) CH_4 の飽和分散の一次微分信号。

この方法では飽和吸収ではなく飽和分散を測定しその信号線の傾きの最も急峻な位置にレーザー周波数を安定化する。飽和分散は CH_4 の飽和吸収スペクトルの位置における周波数と波長との関係に他ならないのでそれを測定するには局部発振器としてのレーザー L₂ と安定化を施そうとする対象のレーザー L₁ との間のビート周波数の値を、レーザー L₁ の共振器長の値に対して測定すればよい。実際の測定では共振器長を変調しながら同図 (b) に示すように飽和分散の一次微分を測定し、その中心周波数にレーザー周波数を安定化している。この方法では飽和分散の信号は飽和吸収の影響をうけることなく独立に分離測定可能であり、その中心周波数は真の共鳴周波数に等しい。この方法で安定化した結果、積分時間10秒以上の長期の安定度が従来の飽和吸収による結果よりもよくなっている。すなわちたとえば積分時間100秒において安定度は 2×10^{-13} であり、これはレーザー L₁ に対し飽和吸収による方法で安定化した場合の安定度よりも約10倍よい。さらに、この方法により安定化されたレーザーの再現性は 1 kHz 以内であり従来方法よりも10倍以上よい値になっている。この方法の利点は真の共鳴周波数を求められることである。そのために飽和吸収ではなく飽和分散を用いているが、これは 2.1. のファブリ・ペロー干渉計の場合において、透過光ではなく反射光を測定し、その信号のもつ周波数弁別特性を利用して真の共鳴周波数を見出すことに対応している。欠点としては飽和分散の測定のために補助的なレーザー (Fig. 5 のレーザー L₂) を必要とするので装置が複雑になることが挙げられる。

Fig. 5 の例のように原子・分子の分散特性はその屈折率の周波数依存性に他ならないから、1 でも述べたように、その情報は原子・分子と相互作用したレーザー光の位相にたくわえられるはずである。従ってそれを測定するには原子・分子と相互作用後の光の偏光状態の変化を調べるのが一つの方法である。この目的に使うことができ、かつ周波数安定化にも十分使用可能な分光法としては Wieman と Hänsch によって提案されている偏光分光法がある⁹⁾。この分光法についてはすでに和文の解説がなされているが¹⁰⁾ 原理は Fig. 6 に示すように円偏

Fig. 6. 偏光分光法の実験装置⁹⁾。

光の強いポンプ光によって試料気体中に生じた飽和分散を反対方向から入射する直線偏光のプロープ光によって検出するものである。すなわち、ポンプ光によって生じた光誘起円複屈折性によってプロープ光である直線偏光を構成する左右円偏光間に位相差が発生するので、その位相差に対応するプロープ光の偏光状態の変化量を測定する。これは従来の飽和吸収測定時に同時に生ずる飽和分散を零位法で測定するものであり、レーザーの AM 雑音による S/N 値の低下を防ぎ高感度で信号検出が可能である。同様な方法として干渉分光法¹¹⁾、さらに、一方の光の偏光状態を変調して高感度に飽和吸収を検出する偏光相互変調励起分光 (POLINEX 分光) が提案されており¹²⁾、いずれも高感度でドブラーフリースペクトルを測定できる方法として周波数安定化への応用可能性を有するものである。偏光分光法は Ar^+ レーザーの周波数安定化に応用された例があり、 I_2 の飽和分散信号の中心周波数に安定化した結果、積分時間 10 秒で約 2×10^{-13} の安定度が得られている¹³⁾。この方法は高感度にドブラーフリースペクトルが測定可能で、周波数弁別特性を有する飽和分散が得られるため、レーザー周波数を変調することなく安定化できるところに利点を有する。しかし一方 Fig. 9 の二枚の偏光板主軸方向間の角度が 90° からずれると、得られる飽和分散の信号波形に飽和吸収の信号波形が重畳されるために波形歪みが生じ、真の共鳴周波数の値に安定化できない欠点を有する。さらにまた、Fig. 6 の方法では、ポンプ光がレーザー共振器に戻りレーザー発振状態を乱して AM, FM 雑音を増大させるのを防ぐために、ポンプ光とプロープ光とは互いに平行状態から若干ずらす必要がある。すると、得られるスペクトルの幅は、このずれの角度に比例した残留ドブラーフ幅だけさらに広くなり、周波数安定化時の安定度、再現性の低下をひきおこす。

この残留ドブラーフ幅を消去するために吸収セルをレーザー共振器内に設置する、いわゆる内部共振器形偏光分光法が提案され¹⁴⁾、また、さらに簡単な装置による内部共振器形偏光分光法の提案と周波数安定化への応用に関する実験、および理論的研究が筆者らによってなされた¹⁵⁻¹⁷⁾。この方法の原理を Fig. 7 に示す。これは Fig. 5 の場合と同じく CH_4 のスペクトルを周波数基準として用いて $3.39 \mu\text{m}$ He-Ne レーザー周波数を安定化するための実験である。Fig. 7 (a) に示すようにレーザー共振器内の位相板により楕円偏光の定在波が CH_4 と相互作用する。レーザー共振器内の定在波を構成する右向きの進行波がポンプ光として働き CH_4 の円複屈折性を誘起する。これを左向きの進行波をプロープ光として測

Fig. 7. 内部共振器形偏光分光法による $3.39 \mu\text{m}$ He-Ne レーザーの周波数安定化の方法¹⁵⁻¹⁷⁾

(a) レーザー共振器の構成. (b) レーザー共振器内の各位置におけるレーザー光の偏光状態. (c) (b) 中の光強度成分 I_1 と I_2 との差を測定する第一の方法. (d) I_1 と I_2 との差を測定する第二の方法. (e) (c) の方法により得られた CH_4 の飽和分散の信号.

定する。それにはこの光誘起円複屈折性によるプローブ光の楕円偏光主軸の方向変化を同図 (c) のようにウォラストンプリズムと二つの光検出器により測定すればよく、これにより同図 (e) のような飽和分散を検出することができる。この飽和分散の信号を周波数基準としてレーザー周波数を安定化した結果、積分時間 200 秒で 1.1×10^{-12} の安定度が得られた¹⁶⁾。この方法ではポンプ光とプローブ光の非平行による残留ドブラー幅が完全に消去できること、この飽和分散の信号の周波数弁別特性を用いればレーザー周波数を変調することなく安定化できること、さらにレーザー共振器の構成は従来の飽和吸収による安定化の場合に対し、位相板を付加するのみでよく簡単であること、レーザー共振器用の右側の鏡からの出力を測定すると従来の飽和吸収の信号が得られ、従来方法でも安定化ができ、新しい方法によって得られた周波数安定度の評価ができることなどの利点を有する。

一方、欠点としてはウォラストンプリズムの光軸のずれや二つの光検出器の感度差が生じたとき、飽和分散の信号に飽和吸収の信号が重畳されて信号波形が歪み、真の共鳴周波数に安定化できない点がある。これを改良するために、同図 (d) のように信号検出系としてファラデー回転角が時間的に正弦振動するフデアライ回転子と光検出器一つを用い、さらにレーザー光強度も同時に安定化することが試みられ積分時間 200 秒で 3.3×10^{-13} の安定度が得られた¹⁷⁾。この方法では Fig. 5 の場合と同様飽和分散が測定できるので、飽和吸収の場合の場合よりも真の共鳴周波数を見出すことは容易であり、これに伴って長期の周波数安定度を飽和吸収による安定化の結果よりも向上させることが可能である。そこで飽和分散によって真の共鳴周波数をさらに精度よく見出し長期安定度を向上させるために信号検出系を改良し、かつ飽和分散の二次微分信号を測定してその中心周波数に安定化することを試みた結果、積分時間 70 秒以上では飽和吸収を用いた安定化の結果よりも安定度が約 3 倍向上していることが確認された¹⁸⁾。以上の例により 2.1. のファブリ・ペロー干渉計の反射光を利用する場合と同様、原子・分子のスペクトルからの分散信号を周波数安定化に利用することは安定度、再現性の向上の点で有利であることがわかる。しかし分散信号を原子・分子と相互作用後の光の位相の変化量を通じて検出する場合、信号検出用の光学素子の光軸のずれなどにより真の共鳴周波数を精度よく見出すことがやや困難になる可能性がある。これは 2.1. の最後に記した問題と同一である。

3. マイクロ波技術を利用する方法

3.1. 周波数基準がファブリ・ペロー干渉計の場合

2.1. の例のように光学的方法により周波数弁別特性を有する分散形の信号を得る方法に対しマイクロ波技術を用いて電気的方法により得るものが提案された²⁾。その原理を Fig. 8 に示す。これは 3.2. で述べる周波数変調分光法と同じ手法によるものであり、2.1. の例より実験装置は複雑になるが、より精度よく真の共鳴周波数の値を見出し、それに安定化しうるものである。レーザー周波数を変調器により数 MHz の変調周波数で変調し、周波数基準用ファブリ・ペロー干渉計に入射させる。その反射光を偏光プリズムと $\lambda/4$ 板によって光検出器 1 の方向へ送り、この検出器により周波数変調をうけた光の搬送波成分と高周波側第一側波帯との間のビート、および搬送波と低周波側第一側波帯との間のビートを同時測定する。もし搬送波の周波数がファブリ・ペロー干渉計の共振周波数と一致しているとき、上記の両ビート信号の位相差は π であり、互いに打ち消し合い光検出器出力は生じない。しかし、もし搬送波周波数がファブリ・ペロー干渉計の共振周波数と一致していない場合には両ビート間の位相差は π からずれるので、光検出器 1 からは符号も含めて、この差異に比例した強度のビート信号出力が得られる*。すなわちレーザー周波数とファブリ・ペロー干渉計の共振周波数の差に対して Fig. 2 (b) と同じく分散形の周波数弁別特性を有する信号が得られるのでこれを安定化に用いることができる。これは 2.1. に示した Pound によるマイクロ波発振器の安定化方法の類推から得られた方法で、Drever が重力波検出用レーザーの周波数安定化に用いていることから Pound/Drever 安定化法とも呼ばれている²⁾。この方法の利点はもちろんファブリ・ペロー干渉計の共振周波数が高精度で測定できることであるが、さらにレーザー光強度変動による信号測定の際の S/N 値の低下を抑えられるという利点も有する。すなわち一般にレーザー光強度変動量、AM 雑音のパワースペクトル密度の値はフリー周波数の増加とともに減少するため、変調周波数の値を大きく設定すれば AM 雑音の影響を抑圧することができる。この方法で 633 nm He-Ne レーザーと 633 nm 色素レーザーとを同一のファブリ・ペロー干渉計を周波数基準として同時に周波数安定化し、これら異種レーザー間のビート信号を測定して、その周波数雑音 100 Hz

* これらの議論をより定量的に行なったものが 3.2. の式 (5)~(8) である。ここでの議論もこれらの式を流用して行なえるがここでは略す。

Fig. 8. レーザーの周波数変調により生じた側波帯を利用し、周波数基準となるファブリ・ペロー干渉計からの反射光を検出する方法による周波数安定化の装置²⁾。

以下、スペクトル幅 60 Hz といった非常に高い安定度が達成されたことを確認した。この実験で用いた色素レーザーのAM雑音はフーリエ周波数 2 MHz 以上でショット雑音によって決まる最小値に達するため、変調周波数は 2 MHz 以上の値に設定されている。Fig. 8 ではさらに同時に破線で囲まれた装置によってレーザー光強度も安定化している。これを併用することにより安定化されたレーザー周波数の、ファブリ・ペロー干渉計の共振周波数からのずれはファブリ・ペロー干渉計の共振スペクトル幅の値の 1/100 以内に留まり、非常に高い精度で真の共振周波数に安定化されていることがわかる²⁾。この方法では実験装置が 2.1. の例の場合にくらべて複雑であるが安定度、再現性の点では優れたものである。この方法は受動リングファブリ・ペロー干渉計を用いたレーザージャイロスコープにも応用されており¹⁹⁾、また、測定される信号曲線の形についての理論的な研究も報告されている²⁰⁾。

3.2. 周波数基準が原子・分子の場合

3.1. でファブリ・ペロー干渉計に対して用いたマイクロ波技術を原子・分子のスペクトル測定に適用し、その真の共鳴周波数を 2.2. の場合よりもさらに高い精度で見出そうとする試みが報告されている。IBM のグループにより提案されたその周波数変調分光法の原理を Fig. 9 に示す²¹⁾。変調器によりレーザー周波数を変調して原子・分子の試料気体に照射する。図のように変調前、

変調後のレーザー光電場をそれぞれ $E_1(t)$, $E_2(t)$ とするとそれは次のように表わせる。

Fig. 9. 周波数変調分光法²¹⁾

(a) 実験装置 (b) 周波数変調を受けたレーザーの周波数分布および (8) 式中の $\Delta\delta$, $\Delta\phi$ のスペクトル波形。

$$\left. \begin{aligned} E_1(t) &= \frac{1}{2} E_0 \exp(i\omega_c t) + \text{c.c.} \\ E_2(t) &= \frac{1}{2} E_0 \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(M) \cdot \exp[i(\omega_c + n\omega_m)t] + \text{c.c.} \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

ここで E_0 は振幅, ω_c , ω_m は搬送波角周波数, 変調角周波数, J_n はベッセル関数, M は変調指数, c. c. は複素共役を表わす. ここで $M \ll 1$ として変調による第一次の側波帯のみを考えると, 原子・分子気体透過後の電場は

$$E_3(t) = \frac{1}{2} E_0 \left[T_0 e^{i\omega_c t} + T_1 \frac{M}{2} e^{i(\omega_c + \omega_m)t} - T_{-1} \frac{M}{2} e^{i(\omega_c - \omega_m)t} \right] \quad (6)$$

と書ける. ここで $T_n = \exp(-\delta_n - i\phi_n)$ であり $n = \pm 1$ をとる. $\delta_n = \alpha_n L/2$ は角周波数 $\omega_c + n\omega_m$ における原子・分子の吸収による光電場振幅の減衰率, $\phi_n = \eta_n L \cdot (\omega_c + n\omega_m)/c$ は位相おくれを表わす. また, α_n , η_n は原子・分子の吸収係数, 屈折率, L , c は吸収セル長, 光速である. 原子・分子気体を透過した後の光を二乗検波特性を有する光検出器によって受光し, 搬送波成分と $n = \pm 1$ に相当する側波帯の間のビート, すなわち ω_m の成分を検出するとその出力信号は

$$I_3(t) = A \cdot e^{-2\delta_0} [1 + (\delta_{-1} - \delta_1) M \cos \omega_m t + (\phi_1 + \phi_{-1} - 2\phi_0) \cdot M \sin \omega_m t] \quad (7)$$

となる. ここで A はレーザー光強度に比例する定数である. もし ω_m の値が原子・分子のスペクトル幅より十分小さいときは (7) 式の余弦成分が吸収の一次微分, 正弦成分が分散の二次微分の値を近似的に表わすことは (7) 式からただちにわかるが, これはすでに波長変調分光法として知られている方法の原理である²³⁾. ここでは逆に ω_m の値を原子・分子のスペクトル幅より大きくとり, 高周波側側波帯 ($n = +1$) のみを原子・分子スペクトルに同調する. そのとき低周波側側波帯 ($n = -1$) および搬送波成分はこのスペクトルとは十分分離しており δ_{-1} , δ_0 および ϕ_{-1} , ϕ_0 は周波数に依存しない一定値とみなせるので, これらを $\bar{\delta}$, $\bar{\phi}$ と表わす. そして $\Delta\delta = \delta_1 - \bar{\delta}$, $\Delta\phi = \phi_1 - \bar{\phi}$ とすると (7) 式より

$$I_3(t) = A e^{-2\bar{\delta}} [1 - \Delta\delta M \cos \omega_m t + \Delta\phi M \sin \omega_m t] \quad (8)$$

を得る. すなわちこの式の余弦成分は高周波側側波帯に対する原子・分子の吸収を, 正弦成分は分散を与える. 従って位相敏感検波により正弦成分を測定すれば分散の信号を独立にとり出せ, その信号のもつ周波数弁別特性を用いてレーザー周波数を安定化することが可能である. (5) または (6) 式からもわかるように原子・分子

がない場合には搬送波と高周波側側波帯との間のビートの位相は, 搬送波と低周波側側波帯との間のビートのそれに対し π ずれているので互いに打ち消し合い光検出器の ω_m 成分出力は生じない. しかし原子・分子があるとそれによる吸収と分散のために高周波側側波帯の振幅に減衰, 位相おくれが生じて両ビート間のつり合いがくずれ, 光検出器出力に ω_m 成分の信号が現われる. それが (8) 式で与えられるものであり, このように本方法は零位法であるため高感度に信号検出ができる. また, (8) 式の余弦, 正弦成分に位相同期をとるとき同時に用いられるマイクロ波用移相器は精度が高いので, 吸収または分散の信号のみを高精度に分離してとり出すことができる. この精度は 2.2. の偏光分光法における分散信号のとり出しのための偏光板の主軸方向調節精度よりも十分高く, 真の共鳴周波数を見つけやすい. さらに 3.1. にも述べたように変調周波数の値が大きいののでレーザー AM 雑音の影響をうけにくいこと, 高速測定が可能なことなどの利点を有する. 色素レーザーを 440 MHz の変調周波数で変調し I_2 の線形吸収スペクトルを測定する実験では 0.005% の吸収量まで検出可能であるという高い感度を示している²¹⁾. また, この方法は高感度, かつ高速であることから波長 607 nm の NaF の色中心のゼロフォノン線の光化学的ホールバーニングをパルス光により本方法を用いて測定することが試みられ²³⁾, 5 ns 程度の時間内でスペクトル測定が可能になっている²⁴⁾. このホールバーニングは光メモリーとしての応用が検討されている²⁵⁾. また, 本方法は二光子分光法²⁶⁾, 励起分光法²⁷⁾へも適用されている. さらに半導体レーザーの周波数は注入電流により高速の直接変調が容易に行なえることからこの方法を半導体レーザーを光源として適用する試みも報告されている²⁸⁾.

Fig. 9 に示す装置では線形吸収および分散のみが測定されることになるが, 同じ IBM のグループによってこの方法を飽和吸収, 分散測定に用いる試みが色素レーザーを光源とし I_2 を試料分子気体として報告されている²⁹⁾. また, このグループとは独立に, かつ同時期に JILA* において同様の方法による飽和吸収, 分散測定の試みが報告された. 光領域でのヘテロダイン飽和分光法と名付けられているが原理は周波数変調分光法と同じである. しかし IBM のグループにくらべ, より周波数安定化への応用可能性を重視しており精密な実験を行なっ

* Joint Institute for Laboratory Astrophysics, National Bureau of Standards and University of Colorado, USA

 Fig. 10. ヘテロダイン飽和分光法による I_2 の飽和吸収, 飽和分散測定装置^{2,30)}

 Fig. 11. Fig. 10 の実験装置による測定結果^{2,30)}

(a), (b); 飽和吸収, 飽和分散のスペクトル. これらの図中, 各点は測定値, 実線は計算値である.
(b), (d); (a), (c) 中の測定値に対する計算値のあてはめの際の残差. 両図のたて軸は (a), (c) のたて軸の寸法の 5 倍に拡大されている.

ている. その装置を Fig. 10 に示す^{2,30)}. これもやはり色素レーザーを光源とし I_2 の飽和吸収, 分散を測定するためのもので図中 I_2 の吸収セルを左方向に通過する光はポンプ光として働く. この光が周波数変調をうけていないが, この光がレーザー共振器に戻ってレーザー発

振状態を乱すことを避けるために音響光学効果による周波数シフターにより周波数を一定の値 (80 MHz) だけずらしている. 右向き光はプローブ光として働き電気光学効果による変調器により周波数変調されている. 変調周波数はレーザー AM 雑音がショット雑音レベルまで低下するフーリエ周波数値より大きく設定して測定の高感度化をはかっている. ここではそれを 15 MHz としている. 強いポンプ光によって生じた I_2 の飽和吸収, 分散を, このプローブ光の搬送波, 高周波側, 低周波側側波帯の間のビート信号によって測定する. すなわち (7) 式と同じくビート信号の余弦成分が飽和吸収を, 正弦成分が飽和分散を与える. Fig. 11 にその測定結果を示す. Fig. 9 の場合と異なり, ここでは搬送波周波数を広帯域掃引することによりプローブ光の搬送波, 両側波帯のすべてを順次 I_2 スペクトルに同調させている. 同図 (a) は飽和吸収の測定結果であり, 吸収線中心より変調周波数の値の $1/2$ はなれた位置, すなわち ± 7.5 MHz のところに現われているピークはプローブ光の二つの側波帯を飽和吸収線にそれぞれ同調させ, これを測定した結果である. 両ビートの位相差が π であるため, これらのスペクトルの符号も互いに逆になっている. プローブ光の搬送波が飽和吸収線に同調した場合, 高周波, 低周波側側波帯とのビート信号の余弦成分が打ち消し合うため図の中心周波数の位置には信号が現われていない. これは (7) 式で余弦成分の振幅が $\delta_{-1} - \delta_1$ になっていることに相当する. これに対し同図 (c) は飽和分散の測定結果であり, この場合にはプローブ光の搬送波, 高周波, 低周波側側波帯のそれぞれが順次 I_2 スペクトルに同調した場合, ビート信号の正弦成分が現われる. (7) 式の正弦成分の振幅が $\phi_1 + \phi_{-1} - 2\phi_0$ に比例しているのに相当し, 図中 ± 7.5 MHz における信号曲線の符号は等しく,

0 Hz におけるその符号はこれらとは逆で、かつこれらの値の 2 倍の値になっていることがわかる。また、これらの図中の各点は測定結果、実線はスペクトルをローレンツ形と仮定して実験値にあてはめたものである。(b)(d) はそれぞれ (a)(c) の曲線あてはめの際の残差を示したもので、これらの図のたて軸は (a)(c) のそれらの 5 倍に拡大されており、実験値と理論値とは高い精度で一致していることがわかる。この理由としては測定が高感度であると同時に、前述のように (7) 式の余弦、正弦成分を独立にとり出すためのマイクロ波移相器として高精度のものが容易に得られることが挙げられる。Fig. 11(c) の信号を周波数弁別に用いれば真の共鳴周波数が精度よく求められる。さらにここで Fig. 9 の場合にくらべ有利な点としては前述のように飽和吸収の信号は中心周波数付近には現われないので、移相器による位相調整の精度が低下しても飽和分散の信号の中心周波数値が飽和吸収の影響により真の共鳴周波数からずれないことである。このようにして歪みの小さい周波数弁別特性を有する信号が得られ、共鳴周波数をこの飽和分散のスペクトル幅の値の 1/500 以内の精度で見出すことができ、これに安定化したレーザー周波数値の再現性を約 1 kHz 以内に抑えられることが実験的に確かめられている^{2,30)}。このヘテロダイン飽和分光法についての理論²⁰⁾、プローブ光のかわりにポンプ光を周波数変調する実験方法³¹⁾、また、4 波混合過程によりプローブ光、ポンプ光のうち一方の周波数変調を受けた光から他方の非変調の光への変調の移乗についての理論³²⁾が報告されており、周波数安定度、再現性の向上を目的とした研究とともに、高感度、高分解能の分光研究としての関心が高まっている。

4. スペクトルの狭帯域化による方法

原子・分子の共鳴周波数を精度よく見出す方法として 2.2, 3.2 では Fig. 1 の方法 (I) についての試みが記述された。もう一つの方法 (II) として同図の (a) から (c) へと進む方向、すなわち、まず、より狭い幅のスペクトルを得ようとするやり方が考えられる。2.2., 3.2. の例ではスペクトルの幅を狭くする工夫はなされておらず、得られた最も狭い幅は飽和吸収によって実現しうる自然幅であった。従って自然幅の値以下の距離内で近接した二本以上のスペクトルを高分解能測定するための方法は何ら与えていない。すなわちスペクトル中心周波数の値が精度よく決定されたとしても分光的に興味ある情報(超微細構造の存在など)を何ら与えないという意味では分光研究上やや不満足な方法であるという感がある。これに対しさらに幅を狭くするための方法として近

年超自然幅分光の報告がなされている。その一例として空間的に分離されたレーザー光束と原子・分子との相互作用を利用する光ラムゼイ分光が試みられており^{33,34)}、すでに多くの方法が提案され³⁵⁻³⁷⁾、得られるスペクトル幅は可視域で数 10 kHz に達している³⁸⁾。このスペクトルを周波数安定化のための周波数基準として用いれば、安定度、再現性の向上が期待しうるのが明白であるが、現在のところ信号の S/N 値が小さく、平均化データ処理が必要であるため実時間測定がむずかしいこと、使用する光学素子の光軸調整ずれによりスペクトルの形が歪むことなどの欠点がある。これらの技術的問題を克服し、また現在多く用いられている原子・分子ビームの代りに吸収セル中の原子・分子を使うようにすれば^{37,39)}、長時間にわたっての高度な安定化も可能になる。

この他に原子・分子の集団のうち励起準位に留まる寿命が集団の平均値より長いもののみを取り出しそのスペクトルを測定する方法が試みられており、方法としては光の電場の位相のスイッチングを利用するもの⁴⁰⁾、偏光分光法を応用するもの⁴¹⁾が報告されている。これらについても信号の S/N 値が向上すれば実時間測定が可能になり、安定化の有力な手法となりうる。

これ以外の方法として周波数安定度を飛躍的に向上させるために、高周波電磁場中にイオンを少数個とじこめてイオン間の衝突頻度を減少させることによりスペクトルを狭帯域化し、かつ第二次ドブラー効果を抑えて共鳴周波数のシフトをなくす方法が試みられつつあり⁴²⁻⁴⁴⁾、これらの実現の際には周波数安定度、再現性は数ケタ向上することが期待される。

5. 結 言

レーザー周波数安定化の際、安定度、再現性を向上させるための方法として、まず、周波数基準として用いられるスペクトルの真の共鳴周波数を精度よく見出すために光学技術、マイクロ波技術を応用するいくつかの新しい手法を示した。周波数基準としてファブリ・ペロー干渉計、原子・分子の場合に分けて記したが、いずれの場合にも周波数弁別特性を有する波形歪みの少ない分散形の信号を精度よく検出することが目標であり、これを達成するための各々の独特な技法を示した。光学技術を用いる場合は装置が簡単であり、マイクロ波技術を用いればさらに測定精度の向上が期待される。また、周波数基準としてファブリ・ペロー干渉計を用いる場合、装置が簡単であり波長可変レーザーに対して容易に用いることができる。原子・分子を用いる場合はさらに高い安定度、再現性が得られる。

一方、安定度、再現性向上のためのもう一つの方法として周波数基準スペクトルの幅を狭くするいくつかの技術についても最後に略記した。これらの方法はまだ信号の S/N 値は小さいが今後、安定度、再現性を飛躍的に向上させるための有力な手段となりうるであろう。

本稿がレーザー周波数安定化、分光技術の開発のための一助となれば幸いである。

文 献

- 1) A. Brillet and P. Cerez: Proceeding of Third Symposium on Frequency Standard and Metrology, J. de Physique Colloque C-8, supplement au no 12, pC8-73, (1981).
- 2) J. L. Hall, L. Hollberg, Ma Long-sheng, T. Baer, and H. G. Robinson: *ibid.*, pC8-59.
- 3) T. W. Hänsch and B. Couillaud: *Opt. Commun.*, **35**, 441 (1980).
- 4) R. V. Pound: *Rev. Sci. Instrum.*, **17**, 490 (1946).
- 5) C. E. Wieman and S. L. Gilbert: *Opt. Letters*, **7**, 480 (1982).
- 6) G. Kramer, C. O. Weiss, and J. Helmcke: *Z. Naturforsch.*, **30a**, 1128 (1975).
- 7) R. L. Barger and J. L. Hall: *Phys. Rev. Lett.*, **22**, 4 (1969).
- 8) A. Titov: *Opt. Commun.*, **43**, 419 (1982).
- 9) C. Wieman and T. W. Hänsch: *Phys. Rev. Lett.*, **36**, 1170 (1976).
- 10) 中山 茂: *応用物理* **50**, 943 (1981).
- 11) F. V. Kowalski, W. R. Hill and A. L. Schawlow: *Opt. Letters*, **2**, 122 (1978).
- 12) T. W. Hänsch: D. R. Lyons, A. L. Schawlow, A. Siegel, Z. Y. Wang and G. Y. Yan: *Opt. Commun.*, **37**, 87 (1981).
- 13) Ch. J. Bordé, G. Camy, B. Decomps, and J. P. Descoubes: *J. Physique*, **42**, 1393 (1981).
- 14) W. Radloff and H. H. Ritze: *Appl. Phys.* **20**, 247 (1979).
- 15) M. Ohtsu, S. Ohta and T. Tako: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **20**, 1701 (1981).
- 16) M. Ohtsu and T. Tako: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **20**, 2133 (1981).
- 17) M. Ohtsu and T. Tako: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **21**, 722 (1982).
- 18) Y. Iwai, M. Ohtsu and T. Tako: submitted to *Jpn. J. Appl. Phys.*
- 19) G. A. Sanders, M. G. Prentiss and S. Ezekiel: *Opt. Letters*, **6**, 569 (1981).
- 20) A. Schenzle, R. G. DeVoe, and R. G. Brewer: *Phys. Review A*, **25**, 2606 (1982).
- 21) G. C. Bjorklund: *Opt. Letters*, **5**, 15 (1980).
- 22) M. Cardona: *Modulation Spectroscopy*, Supplement II of Solid State Physics, F. Seitz and D. Turnbull, eds., (Academic Press, New York, (1969).
- 23) W. Lenth, C. Ortiz, and G. C. Bjorklund: *Opt. Letters*, **6**, 351 (1981).
- 24) T. F. Gallagher, R. Kachru, F. Gonnand, G. C. Bjorklund, and W. Lenth: *Opt. Letters*, **7**, 28 (1982).
- 25) P. Pokrowsky, W. E. Moerner, F. Chu, and G. C. Bjorklund: *Optics Letters*, **8**, 280 (1983).
- 26) W. Zapka, M. D. Levenson, F. M. Schellenberg, A. C. Tam, and G. C. Bjorklund: *Opt. Letters*, **8**, 27 (1983).
- 27) W. Lenth, C. Ortiz, and G. C. Bjorklund: *Opt. Commun.*, **41**, 369 (1982).
- 28) P. Pokrowsky, W. Zapka, F. Chu, and G. C. Bjorklund: *Opt. Commun.*, **44**, 175 (1983).
- 29) G. C. Bjorklund and M. D. Levenson: *Phys. Rev. A*, **24**, 166 (1981).
- 30) J. L. Hall, L. Hollberg, T. Baer and H. G. Robinson: *Appl. Phys. Lett.*, **39**, 680 (1981).
- 31) G. Camy, C. J. Bordé, and M. Ducloy: *Opt. Commun.*, **41**, 325 (1982).
- 32) J. H. Shirley: *Opt. Letters*, **7**, 537 (1982).
- 33) Y. V. Baklanov, B. Y. Dubetsuky, and V. P. Chebotayev: *Appl. Phys.*, **9**, 171 (1976).
- 34) J. C. Bergquist, S. A. Lee, and J. L. Hall: *Phys. Rev. Lett.*, **38**, 159 (1977).
- 35) G. Kramer: *J. Opt. Soc. Am.*, **68**, 1634 (1978).
- 36) S. A. Lee, J. Helmcke, and J. L. Hall: *Laser Spectroscopy IV* ed. by H. Walther and K. W. Rothe (Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1979) p 130.
- 37) N. Hata and K. Shimoda: *Appl. Phys.*, **22**, 1 (1980).
- 38) J. Helmcke, D. Zevgolis, and B. Ü. Yen: *Appl. Phys. B*, **28**, 83 (1982).
- 39) M. Baba and K. Shimoda: *Appl. Phys.*, **24**, 11 (1981).
- 40) F. Shimizu, K. Umezu, and H. Takuma: *Phys. Rev. Lett.*, **47**, 825 (1981).
- 41) W. Gawlik, J. Kowalski, F. Träger, and M. Vollmer: *Appl. Phys. B*, **28**, 84 (1982).
- 42) W. Neuhauser, M. Hohenstatt, P. Toschek, and H. Dehmelt: *Phys. Rev. Lett.*, **41**, 233 (1978).
- 43) D. J. Wineland, R. E. Drullinger, and F. L. Walls: *Phys. Rev. Lett.*, **40**, 1639 (1978).
- 44) D. J. Wineland, W. M. Itano, J. C. Bergquist, and F. L. Walls: *Proceedings of 35th Annual Symposium on Frequency Control*, p 602 Ft. Monmouth, NJ, May 1981.