www.nature.com/lsa

# オリジナル記事

# アト秒精度、数キロメートルのレーザーマイクロ波ネットワ ーク

Ming Xin<sup>1,\*</sup>, Kemal Şafak<sup>1,2,\*</sup>, Michael Y Peng<sup>3,\*</sup>, Aram Kalaydzhyan<sup>1</sup>, Wen-Ting Wang<sup>1</sup>, Oliver D Mücke<sup>1,2</sup> and Franz X Kärtner<sup>1,2,3</sup>

アト秒のタイミング精度を実現する同期レーザーマイクロ波ネットワークは、測地学、超長基線干渉法、高精度ナビゲーション、マルチ望遠鏡ア レイなど、多くの高度なアプリケーションで非常に望まれています。特に、X 線自由電子レーザーや強力レーザービームラインなどの急速に拡 大している光子科学施設では、最大数キロメートルの距離にある数十の光信号とマイクロ波信号をシステム全体でアト秒レベルで同期する必 要があります。このような精度を備えたこれらの施設は、分子内電荷移動、オージェ過程、およびそれらが X 線イメージングに与える影響など、 アト秒の時間スケールで発生する分子および原子のプロセスに光を当てることで、まったく新しい科学を開始するでしょう。ここでは、新しい計 測デバイスと、ファイバーの非線形性と基本ノイズ寄与の慎重なバランスによって実現された、アト秒精度の完全な同期レーザーマイクロ波ネ ットワークを初めて紹介します。当社は、40 時間以上にわたり、4.7km のファイバーネットワークのタイミング安定化と、3.5km のファイバーリンク を介した遠隔光-光同期を、それぞれ 580 アト秒と 680 アト秒の二乗平均平方根の全体的なタイミングジッターで実証しました。最終的には、18 時間にわたって 950 アト秒のタイミングジッターを備えた完全なレーザーマイクロ波ネットワークを実現します。この研究により、次世代のアト秒 光子科学施設が、構造生物学から材料科学、化学から基礎物理学まで、多くの研究分野に革命を起こすことができるようになります。 Light:Science&Applications(2017)6,e16187;doi:10.1038/lsa.2016.187;publishedonline13January2017

キーワード:アト秒フォトニクス、アト秒タイミング計測、硬 X 線自由電子レーザー、レーザーマイクロ波ネットワーク、タイミング分布

# はじめに

孤立したアト秒硬 X 線パルスの探究は、分子内電荷移動の初 めての観測2や、アト秒の時間スケールで物質の化学を変化さ せる超高速オージェ過程の発見 3,4 により、過去数年間で著し く強化されました。X 線自由電子レーザー(XFEL、例:欧州 XFEL<sup>5</sup>、多分野にわたる自由電子レーザー放射(FERMI)<sup>6</sup>、ス イス FEL、線形加速器コヒーレント光源(LCLS)<sup>7</sup>、LCLSII<sup>8</sup>)や 強力レーザービームライン施設(例:極限光インフラストラクチ ャー(ELI)<sup>9</sup>)などの次世代光子科学施設が世界中で出現してお り、前例のない明るさのサブフェムト秒 X 線パルスを生成し て、超高速の化学現象や物理現象をサブ原子レベルの時空間 分解能で捉えることを目指しています<sup>10,11</sup>。しかし、これら の施設は、高精度のタイミング配信システムがなければ、こ の長年の科学的夢を実現することはできません。図1に示す ように、タイミング配信の重要なタスクは、シード FEL およ びアト秒ポンププローブ実験に必要な数キロメートルの距離 にわたって、さまざまなマイクロ波および光サブソースを同 期することです。これまでのところ、そのような距離にわた ってアト秒の精度を可能にする同期レーザーマイクロ波ネッ トワークを実証した報告はありません。したがって、アト秒

精度の同期は、硬 X 線波長でのアト秒分解能の光子科学を妨 げる大きな障害です。

これまでに、2つの基本的なタイミング分配方式が報告され ています。最初の方式では、連続波光キャリア 12 上の振幅変 調による従来のマイクロ波信号分配を使用します。この方式 は、電子位相ロック技術のみに依存しており、マイクロ波に よるタイミング識別力の低さと光検出時のノイズフロアの高 さのため、これまでのところ施設全体で約100fsの二乗平均平 方根(RMS)ジッターよりも優れたジッターを実現していませ ん13。この論文で検討されている2番目の方式14,15では、モ ードロックレーザー<sup>16,17</sup>によって生成された超低ノイズパル スをタイミング信号として使用し、バランス型光相互相関器 (BOC)<sup>18</sup> とバランス型光マイクロ波位相検出器(BOMPD)<sup>19</sup> を 使用して、それぞれ光ソースとマイクロ波ソースを同期させ ます。周波数計測20~24で使用される技術とは対照的に、この アプローチでは、超短光パルスを正確なタイミング測定のた めの時間マーカーとして直接利用し、桁違いに高いタイミン グ安定性を特徴とするため、各エンドステーションに追加の レーザー周波数コムが不要になります。

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Center for Free-Electron Laser Science, Deutsches Elektronen-Synchrotron, 22607 Hamburg, Germany; <sup>2</sup>Department of Physics, University of Hamburg and the Hamburg Center for Ultrafast Imaging, 22761 Hamburg, Germany and <sup>3</sup>Research Laboratory of Electronics, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, MA 02139, USA \*These authors contributed equally to this work.

Correspondence: M Xin, Email: ming.xin@cfel.de; FX Kärtner, Email: franz.kaertner@cfel.de

Received 26 April 2016; revised 5 July 2016; accepted 7 July 2016; accepted article preview online 11 July 2016



図 1:次世代自由電子レーザーのタイミング分配システムのレイアウト。単一のタイミング安定化リンクの長さは最大 3.5km で、これは完成間近の世界最大の光子科 学施設である欧州 XFEL の長さに相当します。 PNS は偏光ノイズ抑制、 FSC は自由空間結合を意味します。

このパルス方式は、10fsの高精度デバイスを突破し、フ ァイバー伝送における光パルス成形の物理的理解を深め、 基礎レベルでの光/マイクロ波測定への影響を明らかにし ました。この高度なレベルの物理的/技術的理解は、次世 代のアト秒光子科学施設の可能性を最大限に引き出すた めの前提条件です。この点に関して、当社はファイバー リンクにおけるパルス伝播効果を徹底的に分析し、シス テム全体のノイズ制限を体系的に排除して、新しいパル スタイミング分配システムを開発しました。ここでは、 アト秒のタイミング精度を備えたレーザーマイクロ波ネ ットワークの最初のデモンストレーションを紹介します。 これは、以前に発表された結果<sup>27,28</sup>と比較してタイミング 安定性が 410 倍向上し、次世代光子科学施設の必須かつ困 難な同期要件を満たしています。

# 材料と方法

2

# シミュレーションモデル

当社は、ファイバーリンクにおける非線形パルス伝搬中のパ ルスタイミングジッターをシミュレートする数値モデルを開 発しまし。このモデルでは、高速可飽和吸収体モード同期レ ーザーのマスター方程式を、相互作用描像における 4 次ルン ゲ・クッタ法 (RK4IP)<sup>29</sup>を使用して解きます。レーザータ イミングジッターは、RK4IP の各反復中に増幅された自然放 出ノイズを追加することによって生成され、その量はマスタ ーレーザーの測定されたジッター<sup>26</sup>に対応します。パルス列 は、170フェムト秒のパルス幅と216MHzの繰り返しレートで 1550nm を中心とします。リンクでは、自己位相変調、自己急 峻化、およびラマン効果が考慮されます。リンク伝送の非線 形シュレーディンガー方程式と BOC の第二高調波発生のパル ス結合場方程式の両方が、適応ステップ長のスプリットステ ップフーリエ法を使用して解かれます。BOC 特性(つまり、2 つの入力パルスの初期遅延に対する BOC 出力電圧)は、新し いレーザー参照パルスに対する各往復リンクパルスに対して

計算されます。BOC 特性のゼロ交差位置のタイミングオフセットは、タイミングエラーとして識別されます。 リンク強化過剰ジッターを計算するには(図 2a および 2b)、パルスタイミングジッターが存在する状態でレーザーパルス列のシミュレーションを繰り返します。すべての BOC 特性から のタイミングエラーの RMS を計算して、全体的なリンク強化 過剰ジッターを取得します。出力変動によるドリフトを計算 するには(図 2c および 2d)、このタイミングエラーの原因は決 定論的であるため、パルスタイミングジッターがない場合に 1つのパルスのみをシミュレートします。

# BOC 特性

BOC のタイミング感度を実験的に特性評価するには、2 つの 方法が使用されます。最初の方法は、BOC の 2 つの入力パル ス列の繰り返し率がまったく同じ場合です。パルス列間の相 対的な遅延は電動遅延ステージでスイープされ、BOC の応答 電圧はデータ収集カードで記録されます。測定された BOC 特 性のゼロ交差時の傾斜がタイミング感度です。2番目のケース では、異なる繰り返し率の2つのレーザー入力パルス列が BOCで結合され、BOC出力でBOC特性の列が生成されます。 オシロスコープで BOC 特性を同時に記録し、光検出器と電気 ミキサーを使用してレーザー間の瞬間的な繰り返し周波数差 (RFD)を測定することができます。BOC 特性の実際の時間ス ケールは、オシロスコープの時間スケールに RFD とレーザー 繰り返し率の比率を乗算することで較正できます。BOC 特性 がバランス型光検出器(BPD)の帯域幅によって制限されない ように、RFD を小さくするために事前に粗い周波数チューニ ングが実行されます。

# BOMPD 特性

BOMPDの位相感度は、同様に、自励レーザーとマイクロ波発 振器を使用して測定できます。電気光学サンプリング中のエ イリアシングにより、発振器間の有効周波数差は fbeat=fRFmodfrepです。ここで、fRF は無線周波数(RF)発振器の 周波数、frep はレーザーの基本繰り返し率です。BOMPD 出力 電圧信号は、この周波数差 fbeat に等しい繰り返し周波数を持 つ一連の BOMPD 応答特性になります。この周波数差と単一 の BOMPD 特性をオシロスコープで同時に記録できます。オ シロスコープの時間スケールに角周波数差(2πfbeat)を乗じたも のは、RF 信号周波数に対する光信号と RF 信号間の位相誤差 を表します。BOMPD 位相感度は、BOMPD 特性のゼロ交差時 の傾きとして定義され、単位は Vrad<sup>-1</sup>です。タイミング感度 は、Vs<sup>-1</sup>単位で、位相感度に RF 発振器の角周波数(2πfRF) をさらに乗算することで得られます。



図 2 リンクによって誘発されるタイミングジッターとドリフトの分析。統合タイミングジッターが 0.3fs41kHz(ref.26)であるモードロックレーザーからの 216MHz、170fs のパルス 列が、エルビウム添加光ファイバー増幅器とリンク出力近くのファイバーミラーを備えた 3.5kmPM ファイバーリンクに送信されます。往復パルス列と元のパルス列間の相対 タイミングジッターは、周波数 41kHz について a と b で計算されています。リンク安定化フィードバックによって導入されるタイミングドリフトエラーは c と d に示されており、 10Hz 未満の遅い時間スケールで発生する環境変動に関連しています。(a)残留リンク分散によるリンクによって誘発される Gordon-Haus ジッター。B2:1m の標準偏波保持 ファイバーPM1550 の SOD で正規化されたリンクの残留 SOD。B3:1mPM1550 ファイバーの TOD で正規化されたリンクの残留 TOD。B3 軸に沿ったリップルは、主に TOD による位相変動によって引き起こされるパルス整形によるものです。(b)ファイバーの非線形性によるリンク強化タイミングジッターと、各入カレベルでの対応する BOC 特 性。タイミング感度は入力とともに増加します。ファイバーの非線形性によって発生するこのジッターは、BOC 特性の目に見える歪みが観察される前にフェムト秒レベルに 簡単に達するため、実際には慎重に最小限に抑える必要があります。(c)異なる B3 値でのリンク入力変動によって引き起こされるタイミングドリフト。各曲線の入力レベル は+8dBm、B2=-0.13 です。(d)異なる入力レベルでのリンク入力変動によって引き起こされるタイミングドリフト。

# 他の計測方法

実験におけるすべての BOC のノイズフロアは、第2高調波 発生からの信号出力が比較的低いため、検出器の電子ノイズ によって制限されます。BOC のフィードバックタイミング精 度は、BOC タイミング感度によって調整された、ロック帯域 幅内の BPD の統合 RMS ノイズ電圧として計算されます。

図 4e の長期ドリフトデータは、ループ外信号を 1Hz ローパ スアンチエイリアスフィルタでフィルタリングし、2Hz のサ ンプリングレートでデータ収集カードに記録して測定されて います。図 4g のジッタースペクトル密度データは、信号源ア ナライザの BOC/BOMPD 出力の直接ベースバンド出力スペク トル測定です。図 4h の 41Hz のデータは、図 4g のタイミング ジッタースペクトルの積分です。1Hz のデータは、図 4e のド リフトデータのフーリエ変換を使用して積分されています。

# 結果と考察

# リンクによるタイミングジッターとドリフト

パルスタイミング分配アプローチ(図1)では、超低ジッターの 光パルス列(タイミング信号)がモードロックレーザー(マスタ ーレーザー)から生成され、スターネットワークトポロジー内 の偏波保持(PM)分散スロープ補償ファイバーリンクを通じて 分配されます。各リンクの端では、出力カプラーがタイミン グ信号を部分的にリンク入力に反射します。戻ってきたリン クパルスとマスターレーザーからの新しいパルス間のタイミ ングオフセットは、BOC で測定されます。BOC からのエラー 電圧信号は、リンクパスの可変遅延線にフィードバックさ れ、検出されたタイミングエラーを補償します。このフィー ドバック方式を使用すると、リンクにかかる機械的ストレ ス、音響、温度などのさまざまな環境変動を大幅に補正でき ます。

<sup>1</sup> Center for Free-Electron Laser Science, Deutsches Elektronen-Synchrotron, 22607 Hamburg, Germany; <sup>2</sup>Department of Physics, University of Hamburg and the Hamburg Center for Ultrafast Imaging, 22761 Hamburg, Germany and <sup>3</sup>Research Laboratory of Electronics, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, MA 02139, USA \*These authors contributed equally to this work.

Correspondence: M Xin. Email: ming.xin@cfel.de: FX Kärtner. Email: franz.kaertner@cfel.de

Received 26 April 2016; revised 5 July 2016; accepted 7 July 2016; accepted article preview online 11 July 2016



図 3:実験のセットアップ。(a)レーザーマイクロ波ネットワークの概略図。(b)すべての BOC は、適切なダイクロイックビームスプリッターとミラー(DBS と DM)を備えたダブルパス 構成で動作する、長さ 4mm の周期分極反転 KTiOPO4(PPKTP)結晶 1 つで構成されています。理想的には、入力パルス(ELp と ER)は、最大の第二高調波発生のために、タ イプ IIPPKTP 結晶の 2 つの主軸に沿って配置されます。BOC の上流にある光学要素の偏光消光比は有限であるため、不要な偏光軸に沿って不要なパルス成分(EL と ERp) が投影されます。PNS-BOC では、大きな複屈折を持つ線形材料が BOC の前に置かれます。この材料は、誤ったパルスに大幅な遅延を追加し、それらが重なって PPKTP の 第二高調波発生プロセスに干渉しないようにします。当社のセットアップでは、ベータバリウムホウ酸塩(BBO)結晶を使用して必要な複屈折を実現し、そのカット角度は非線 形プロセスが生成されないように慎重に選択されています。(c)タイミングリンク安定化では、リンクロック PNS-BOC の出力が MDL、ファイバーストレッチャー(FS)、PM エルビ ウムドープ光ファイバーアンプ(EDFA)に送信され、それぞれ長期温度ドリフト、リンクにかかる高速ジッター、リンクパワー変動を補正します。(d)FSC-BOMPD 内では、自己 参照信号(0.5MfR、fR は光入力信号の繰り返しレート)が入力光パルス列から生成され、サニャック干渉計(SGI)を直交位相でバイアスします。メイン SGI パスのパルス列は、 RF 入力信号(NfR)の電気光学サンプリングを実行し、位相誤差を振幅変調に変換します。変調されたパルス列は、別の自己参照信号(0.5fR)を使用してベースバンドに同位相 で検出およびダウンコンバートされます。電圧位相誤差信号は比例積分コントローラによってフィルタリングされ、マイクロ波源にフィードバックされて光からマイクロ波への同 期が行われます(または、フィードバック信号を光入力のレーザーに適用してマイクロ波から光への同期を行うこともできます)。マイクロ波信号のゼロ交差は、パルス列のパル ス位置に位相ロックされます(つまり、Δ θ=0)。(e)ループ外特性評価のセットアップ。

このノイズ抑制方式の基本的な制限は、固有のレーザーノイズ、BOC 検出ノイズフロア、基準パスノイズ、リンク誘発ノイズによって設定されます。これらの制限のうち、リンク誘発ノイズは、適切に考慮されないと、支配的になり、最適なリンクパフォーマンスを妨げます。

数値モデルに基づくと、残留リンク分散と非線形性により、 環境ノイズがない場合でも、高周波範囲 41kHz でかなりの過 剰ジッターが追加されます。まず、パルス中心周波数の変動

は、残留 2 次分散(SOD)と 3 次分散(TOD、図 2a)を介してタイ ミングジッターに結合されます。このジッター寄与は、しば しば Gordon-Haus ジッター<sup>30</sup> と呼ばれ、補償されていない SOD ではそれぞれ 2m と 3m の標準 PM ファイバーに相当する 0.1fs と 0.3fs に達することがあります。次に、自然放出ノイズ がタイミングジッターに結合され、その影響はリンクの非線 形性によってさらに増大します(図 2b)。このジッターは、平 均出力レベルが o+12dBm(対応するパルスピーク出力 Ppeak=430W)の場合に 0.13fs に制限されますが、 +14dBm(Ppeak=682W)では 1.4fs に増大します。これらの過剰 なジッター寄与はフィードバックループを介してリンク出力 に伝達される可能性があるため(補足図 S2d)、

M Xin et al



図 4:3 つの特性設定の測定結果。リンクロック PNS-BOC1 および 2、レーザーロック PNS-BOC、および VCO ロック FSC-BOMPD の特性がそれぞれ(a-d)に示されてい ます。(e)長期タイミングドリフト(サンプリングレート=2Hz)。(f)タイミングドリフトの不安定性(アラン偏差)と平均化時間 τ の関係。 τ<sup>-1</sup> の傾きの近似値が表示されていま す。(g)タイミングジッタースペクトル密度と、[1Hz、1MHz]で 10.833GHz を基準とする対応する位相ノイズ。(h)統合タイミングジッター。

アト秒リンク安定性を実現するには、ファイバーリンクの分 散と非線形性を最小限に抑える必要があります。

さらに、より遅い時間スケールでのリンク出力の変動も同様 にタイミングエラーを引き起こし、リンクの安定性を低下させ る可能性があります。

リンク安定化のための長距離補正は、長い遅延アームを備え た自由空間電動遅延線(MDL)によって実行されます。たとえば、 3.5km リンクで±1.5K の温度変化を補正するには、10cm の範囲 が必要です。遅延ステージの移動により、ビームのずれが避け られず、リンク出力の変動を引き起こします。これらの変動は、 残留 SOD、TOD、および非線形性の複合効果によって、パルス の重心の一時的なシフトを引き起こします(補足式 S28)。重心の シフトは、ループ内 BOC 特性のゼロ交差位置の決定論的なシフ トとして表示されますが、リンク安定化フィードバックは、こ のシフトをいつの間にか追跡し、リンクパスに導入して、リン ク出力でタイミングエラーを引き起こします。シミュレーショ ンは、実験で観測された一般的な値を使用して実行されます。 図 2c は、残留 TOD が、+8dBm リンク出力で±5%の変動がある 場合に最大 5fs のタイミングエラーを引き起こす可能性がある ことを示しています。図 2d は、+10dBm リンク出力が、深刻な 非線形パルス歪みにより振幅からタイミングへの大きな変換が 発生する前のしきい値であり、±5%の出力変動により 4fs のタイ ミングエラーが発生する可能性があることを示しています。長 期的なアト秒精度を実現するには、リンク出力の変動と残留 TOD を最小限に抑える必要があります。

doi:10.1038/lsa.2016.187

5

6

M Xin et al

### レーザーマイクロ波ネットワーク

このジッター解析の結果を考慮して、図 3a のセットアッ プを使用してアト秒精度のレーザーマイクロ波ネットワー クが実証されています。マスターレーザーからのタイミン グ信号は、並列に動作する 1.2km と 3.5km の長さの 2 つの独 立したファイバーリンクを含むネットワークを通じて配信 されます。リンク出力は、リモートレーザー(図 1 の FEL エ ンドステーションでポンププローブレーザーとして機能す るものなど)と電圧制御発振器(VCO、図 1 の FEL 線形加速器 のマイクロ波基準として機能するものなど)を同時に同期す るために使用されます。

図 3bに示すように、各ロック BOCには大きな複屈折を持 つベータバリウムホウ酸塩結晶が使用され、偏光ノイズ抑 制 BOC(PNSBOC)を実現してノイズ性能が向上しています。 PNS-BOC 出力では、不要なパルス成分(EL および ERp)によ って時間依存のエラー電圧が発生しないため、各 PNS-BOC は BOC 特性のゼロ交差位置で正確にロックできます。これ は、BOC 自体をレーザー振幅ノイズから完全に独立させて アト秒精度を達成するために重要です。レーザーロック PNS-BOCのフィードバック精度は、低ノイズ BPD によって ~2 にまで向上します。

リンクの残留 SOD と TOD は、追加の分散補償ファイバーで 補償され、リンクによって誘発される Gordon-Haus ジッターを 抑制し、BOC で高い信号対雑音比(SNR)を得るために出力パル ス持続時間を最小限に抑えます。リンクパワーは、非線形性に よって誘発されるジッターを最小限に抑え、BOC ロックの SNR を最大化するように調整されます。MDL でのビームのずれによ って生じるパワー変動を排除するために、エルビウム添加光フ ァイバーアンプにフィードバック信号が送信され、そのポンプ 電流が制御されます(図 3c)。

図3dでは、自由空間結合 BOMPD(FSC-BOMPD)が開発され、 光からマイクロ波へのロックに使用されています。光入力の自 由空間コンポーネントは、環境によって引き起こされる長期ド リフトを効率的に低減でき、遅延ステージはバックラッシュ、 マイクロ波反射、損失のない正確な位相調整を可能にします。 他の光マイクロ波位相検出器 31,32 と比較して、この新しいデ バイスは光入力変動の影響を受けず、高い SNR と長期タイミン グ安定性の点で 410 倍の改善を同時に提供できます(補足式 (S30-S37))。これは、レーザーマイクロ波ネットワークでアト 秒精度を実現するために不可欠です。

3 つの特性評価セットアップが採用されています(図 3e)。2 つ のタイミングリンクモニタリング信号(TLM1 と 2)がループ外 BOC に送信され、リンクネットワークのパフォーマンスが評価 されます。マスターレーザーモニタリング信号とリモートレー ザー出力信号(RLO)が別の BOC に送信され、リモートレーザー 同期が特性評価されます。最後に、リモートマイクロ波出力と RLO がループ外 FSC-BOMPD と比較されます。3 番目のセット アップは、リモート同期されたモードロックレーザーとマイク ロ波ソース間の真の相対タイミングジッターを直接測定するた め、非常に重要です。これは、これまで示されたことはありま リンクロック PNS-BOC1 および 2、レーザーロック PNS-BOC、 および VCO ロック FSC-BOMPD のタイミング感度はそれぞれ 1、2、7.9、および0.25mVfs<sup>-1</sup>です(図4a-4d)。これは、レーザー マイクロ波ネットワークの厳密なロックをサポートするのに十 分な大きさです。4.7km のリンクネットワークの安定化は、52 時間連続して実行されます。TLM1 と TLM 2 の間の残留タイミ ングドリフトはわずか 200asRMS です(図 4e、赤い曲線)。相対 的なタイミングドリフトの不安定性は、平均時間  $\tau$  が 1 秒の場 合に 6×10<sup>-17</sup>で、 $\tau$ =104 秒で 7.3×10<sup>-21</sup> に減少します(図 4f、赤い 円)。10.833GHz での等価位相ノイズは 1Hz で<-110dBcHz<sup>-1</sup>で、

20kHz 以降では<-145dBcHz<sup>-1</sup> になります(図 4g、赤い曲線)。一 方、6μHz~1MHz の全積分タイミングジッターはわずか 580asRMS です(図 4h、赤い曲線)。リモートレーザー同期は 44 時間以上中断することなく正常に達成されています。残留タイ ミングドリフトは<100asRMS(図 4e、青い曲線)で、これは以前 の結果<sup>27</sup>と比べて桁違いの改善であり、50000秒間で2.5×10-22 の相対タイミング不安定性に相当します(図 4f、青い三角形)。 積分ジッターは 7µHz~1kHz の範囲でわずか 200as、7µHz~ 1MHz では 680as です(図 4h、青い曲線)。最後に、レーザーマイ クロ波ネットワーク全体では、18 時間にわたって 670asRMS の ループ外ドリフトという前例のない長期精度が示されています (図 4e、黒の曲線)。以前の周波数コムベースのマイクロ波転送 結果 28 と比較すると、このセットアップには追加のファイバー リンクとリモートレーザー同期システムが含まれていますが、 それでも1桁以上の改善が達成されています。15µHzから1MHz の全周波数範囲内での2つのリモート同期デバイス間の相対的 なタイミング安定性は、わずか 950asRMS です(図 4h、黒の曲 線)。当社の知る限り、これはリモート光からマイクロ波への同 期の初のアト秒精度のデモンストレーションであり、同期レー ザーマイクロ波ネットワークの初のデモンストレーションです。

補足情報のフィードバックモデルに基づくと、ループ外ジ ッターは、リンクにかかる環境ノイズ、システムの電子ノイ ズ、マスターレーザーの固有ジッター、およびリンクによって 誘発されるジッターによって発生します(補足式 S2)。当社の実 験では、環境ノイズのほとんどは1kHz未満であり、フィード バックループによって十分に抑制できます。リンクによって誘 発されるジッターも、リンク/レーザー/マイクロ波の緊密なロ ックに必要な最小リンク動作出力を選択することで最小限に抑 えられます。したがって、図4gの3つの曲線すべてで1~ 20kHzの隆起は、主にマスターレーザーの固有ジッターとシス テムの電子ノイズに起因しており、注意を払わないと、フィー ドバックループの共振周波数で増幅される可能性もあります(補 足図 S2b および S2c)。図 4h(黒の曲線)のレーザーマイクロ波ネ ットワークの結果では、50Hzの出力線ノイズとその高調波が約 250 のジッターに寄与していますが、これはよりクリーンな電 源を使用することで除去できます。<100mHzの残留ドリフト は、FSC-BOMPDのすべての RF パスの従来の同軸ケーブルの 長さの変動によって制限されますが、これはすべての電子機器 を統合ボードに縮小するか、熱膨張率がはるかに低い特殊な位 相安定ケーブルを使用することで改善できます。

せんでした。

#### M Xin et al

#### 結論

要約すると、新しい計測タイミング検出器 PNSBOC と FSC-BOMPD を採用し、リンクによって誘発されるタイミングジッ ターと非線形パルス伝搬効果によるドリフトを低減することで、 遠隔地の光デバイスとマイクロ波デバイス間の 4.7km の光ファ イバーリンクネットワーク全体で、長期にわたって安定したア ト秒タイミング精度が達成されました。アト秒精度のレーザー マイクロ波ネットワークにより、次世代 FEL やその他の光子科 学施設は、予測されたタイミング精度で動作して、その潜在能 力を最大限に発揮できるようになります。これにより、アト秒 の時間スケールで原子や分子の映画を作成するための新しい科 学的取り組みが促進され、生物学、医薬品開発、化学、基礎物 理学、材料科学の分野で多くの新しい研究分野が開拓されます。 さらに、この技術は、超安定クロック <sup>33,34</sup>、重力波検出 <sup>35</sup>、コ ヒーレント光アンテナアレイ <sup>36</sup>など、他の多くの分野の開発も 加速します。

# 利益相反

著者らは利益相反がないことを宣言する。

### AUTHOR CONTRIBUTIONS

FXK and ODM initiated the project. MX did the jitter limitation analysis and simulations. MX, KS and MYP contributed with the fiber network stabilization, and optical–optical synchronization system. MYP, AK and MX designed the FSC-BOMPD. MX, KS, AK and WW realized the laser-microwave network. All authors prepared the manuscript.

#### ACKNOWLEDGEMENTS

We thank Qing Zhang for supporting the laboratory construction, Guoqing Chang for valuable discussions on simulations, Stefano Valente for initial link simulations, Patrick T. Callahan for discussions on link stabilization and Wei Liu for help on laser-microwave network characterization experiments. We acknowledge financial support by the European Research Council under the European Union's Seventh Framework Program (FP/2007-2013)/ERC Grant Agreement No. 609920 and the Cluster of Excellence: The Hamburg Centre for Ultrafast Imaging-Structure, Dynamics and Control of Matter at the Atomic Scale of the Deutsche Forschungsgemeinschaft.

- 1 Prat E, Reiche S. Simple method to generate terawatt-attosecond X-ray free-electronlaser pulses. Phys Rev Lett 2015; 114: 244801.
- 2 Calegari F, Ayuso D, Trabattoni A, Belshaw L, De Camillis S et al. Ultrafast electron dynamics in phenylalanine initiated by attosecond pulses. Science 2014; 346: 336–339.
- 3 Son SK, Young L, Santra R. Impact of hollow-atom formation on coherent X-ray scattering at high intensity. Phys Rev A 2011; 83: 033402.
- 4 Hau-Riege SP. Photoelectron dynamics in X-ray free-electron-laser diffractive imaging of biological samples. Phys Rev Lett 2012; 108: 238101.
- 5 Altarelli M, Brinkmann R, Chergui M, Decking W, Dobson B et al. XFEL: The European X-ray freeelectron laser. Technical Design Report. Hamburg: DESY; 2006.
- 6 Allaria E, Appio R, Badano L, Barletta WA, Bassanese S et al. Highly coherent and stable pulses from the FERMI seeded free-electron laser in the extreme ultraviolet. Nat Photon 2012; 6: 699–704.
- 7 Emma P, Akre R, Arthur J, Bionta R, Bostedt C et al. First lasing and operation of an ångstromwavelength free-electron laser. Nat Photon 2010; 4: 641–647. 8 Stohr J. Linac Coherent Light Source II (LCLS-II) conceptual design report No SLAC-R-978. Stanford: SLAC; 2011.
- 9 Mourou G, Tajima T. The extreme light infrastructure: optics' next horizon. Opt Photon News 2011; 22: 47–51.
- 10 Kupitz C, Basu S, Grotjohann I, Fromme R, Zatsepin NA et al. Serial time-resolved crystallography of photosystem II using a femtosecond X-ray laser. Nature 2014; 513: 261–265.
- 11 Öström H, Öberg H, Xin H, LaRue J, Beye M et al. Probing the transition state region in catalytic CO oxidation on Ru. Science 2015; 347: 978–982.
- 12 Wilcox R, Byrd JM, Doolittle L, Huang G, Staples JW. Stable transmission of radio frequency signals on fiber links using interferometric delay sensing. Opt Lett 2009; 34: 3050–3052.
- 13 Glownia JM, Cryan J, Andreasson J, Belkacem A, Berrah N et al. Time-resolved pumpprobe experiments at the LCLS. Opt Express 2010; 18: 17620–17630.

- 14 Kim J, Cox JA, Chen J, Kärtner FX. Drift-free femtosecond timing synchronization of remote optical and microwave sources. Nat Photon 2008; 2: 733–736.
- 15 Schulz S, Grguraš I, Behrens C, Bromberger H, Costello JT et al. Femtosecond alloptical synchronization of an X-ray free-electron laser. Nat Commun 2015; 6: 5938.
- 16 Kim TK, Song Y, Jung K, Kim C, Kim H et al. Sub-100-as timing jitter optical pulse trains from mode-locked Er-fiber lasers. Opt Lett 2011; 36: 4443–4445.
- 17 Benedick AJ, Fujimoto JG, Kärtner FX. Optical flywheels with attosecond jitter. Nat Photon 2012; 6: 97–100.
- 18 Schibli TR, Kim J, Kuzucu O, Gopinath JT, Tandon SN et al. Attosecond active synchronization of passively mode-locked lasers by balanced cross correlation. Opt Lett 2003; 28: 947–949.
- 19 Peng MY, Kalaydzhyan A, Kärtner FX. Balanced optical-microwave phase detector for subfemtosecond optical-RF synchronization. Opt Express 2014; 22: 27102–27111.
- 20 Foreman SM, Ludlow AD, de Miranda MHG, Stalnaker JE, Diddams SA et al. Coherent optical phase transfer over a 32-km fiber with 1s instability at 10<sup>-17</sup>. Phys Rev Lett 2007; 99: 153601.
- 21 Lopez O, Amy-Klein A, Lours M, Chardonnet C, Santarelli G. High-resolution microwave frequency dissemination on an 86-km urban optical link. Appl Phys B 2010; 98: 723–727.
- 22 Predehl K, Grosche G, Raupach SMF, Droste S, Terra O et al. A 920-kilometer optical fiber link for frequency metrology at the 19th decimal place. Science 2012; 336: 441–444.
- 23 Giorgetta FR, Swann WC, Sinclair LC, Baumann E, Coddington I et al. Optical two-way time and frequency transfer over free space. Nat Photon 2013; 7: 434–438.
- 24 Coddington I, Swann WC, Lorini L, Bergquist JC, Le Coq Y et al. Coherent optical link over hundreds of metres and hundreds of terahertz with subfemtosecond timing jitter. Nat Photon 2007; 1: 283–287.
- 25 Peng MY, Callahan PT, Nejadmalayeri AH, Valente S, Xin M et al. Long-term stable, subfemtosecond timing distribution via a 1.2-km polarization-maintaining fiber link: approaching 10<sup>-21</sup> link stability. Opt Express 2013; 21: 19982–19989.
- 26 Şafak K, Xin M, Callahan PT, Peng MY, Kärtner FX. All fiber-coupled, long-term stable timing distribution for free-electron lasers with few-femtosecond jitter. Struct Dyn 2015; 2: 041715.
- 27 Xin M, Şafak K, Peng MY, Callahan PT, Kärtner FX. One-femtosecond, long-term stable remote laser synchronization over a 3.5-km fiber link. Opt Express 2014; 22: 14904–14912.
- 28 Jung K, Shin J, Kang J, Hunziker S, Min CK et al. Frequency comb-based microwave transfer over fiber with 7×10<sup>-19</sup> instability using fiber-loop optical-microwave phase detectors. Opt Lett 2014; 39: 1577–1580.
- 29 Hult J. A fourth-order Runge–Kutta in the interaction picture method for simulating supercontinuum generation in optical fibers. J Lightwave Technol 2007; 25: 3770–3775.
- 30 Gordon JP, Haus HA. Random walk of coherently amplified solitons in optical fiber transmission. Opt Lett 1986; 11: 665–667.
- 31 Jung K, Kim J. Subfemtosecond synchronization of microwave oscillators with modelocked Erfiber lasers. Opt Lett 2012; 37: 2958–2960.
- 32 Lessing M, Margolis HS, Brown CTA, Gill P, Marra G. Suppression of amplitude-tophase noise conversion in balanced optical-microwave phase detectors. Opt Express 2013; 21: 27057– 27062.
- 33 Chou CW, Hume DB, Rosenband T, Wineland DJ. Optical clocks and relativity. Science 2010; 329: 1630–1633.
- 34 Cacciapuoti L, Salomon C. Space clocks and fundamental tests: the ACES experiment. Eur Phys J Spec Top 2009; 172: 57–68.
- 35 Abbott BP, Abbott R, Abbott TD, Abernathy MR, Acernese F et al. Observation of gravitational waves from a binary black hole merger. Phys Rev Lett 2016; 116: 061102.
- 36 Dravins D, Lagadec T, Nuñez PD. Optical aperture synthesis with electronically connected telescopes. Nat Commun 2015; 6: 6852.

This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 (00) Ð International License. The images or other third party material in this article are included in the article's Creative Commons license, unless indicated otherwise in the credit line; if the material is not included under the Creative Commons license, users will need to obtain permission from the license holder to reproduce the material. То view copy of this license. visit http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/

r The Author(s) 2017

Supplementary Information for this article can be found on the Light: Science & Applications' website (http://www.nature.com/lsa).

M Xin et al

8