

文章编号: 1002-2082 (2021) 01-0157-19

双飞秒激光频率梳光谱测量技术研究进展

高宇炜, 方守龙, 武腾飞, 张磊

(北京长城计量测试技术研究所 计量与校准技术重点实验室, 北京 100095)

摘要: 双光梳光谱分析技术近年来凭借高分辨率、高灵敏度、宽光谱覆盖和快速测量的优势, 在分子和原子光谱分析领域得到了快速发展。从双光梳光谱分析的原理出发, 以使用泵浦光源数量为分类依据, 对近年来国内外基于不同实现方案的多种双光梳光谱分析技术的原理进行了简要介绍, 叙述了在不同数量泵浦光源条件下, 不同实验小组提出的多种实验方案, 介绍了他们进行的光谱实验结果。随着研究的不断深入, 减少使用泵浦光源数量是双光梳光谱仪实现设备小型化的发展方向之一, 增多光源则是从一维走向多维的重要发展思路, 经典的双光源配置在测量精度和二维化方面起到了重要作用。

关键词: 激光光谱学; 双光梳光谱学; 多维相干光谱学; 光学频率梳; 微腔光梳

中图分类号: TN249; O433.1

文献标志码: A

DOI: 10.5768/JAO202142.0107003

Research progress of double femtosecond laser frequency comb spectroscopy measurement technology

GAO Yuwei, FANG Shoulong, WU Tengfei, ZHANG Lei

(National Key Laboratory of Science and Technology on Metrology & Calibration, Changcheng Institute of Metrology & Measurement, Aviation Industry Corporation of China, Beijing 100095, China)

Abstract: With the advantages of high resolution, high sensitivity, wide spectral coverage and rapid measurement, the dual-comb spectroscopy technology has developed rapidly in the field of molecular and atomic spectroscopy. According to the principle of dual-comb spectroscopy and taken the number of pump light sources used as the classification criteria, the principles of multiple dual-comb spectroscopy techniques are briefly introduced basen on different implementation schemes at home and abroad in recent years, the various experimental schemes were described proposed by different experimental groups with different numbers of pump light sources, and the results of their spectral experiments were introduced. With the deepening of research, reducing the number of pump light sources used is one of the important directions for the development of dual-comb spectrometers to achieve miniaturization of equipment, and the increase is an important development idea from one-dimensional to multi-dimensional. The classic dual light source configuration has made important progress in accuracy and two-dimensionalization.

Key words: laser spectroscopy; dual-comb spectroscopy; multidimensional coherent spectroscopy; optical frequency comb; microcavity optical comb

引言

光学频率梳(optical frequency comb,OFC)作为一种高精度的频率测量工具,在前沿物理领域得到了广泛的应用^[1]。光梳通过将光频率和微波频

率相联系,通过两者之间的直接关联可以有效地实现对光学频率的计量^[2-3]。在实际应用方面,飞秒激光频率梳在精密时间计量^[4]、精密宽带光谱测量^[5]、高精度距离测量^[6]、高精度速度监测^[7]、激光

收稿日期:2020-04-23; 修回日期:2020-06-10

基金项目:航空基金(KJJ82004580)

作者简介:高宇炜(1997-),男,硕士研究生,主要从事双光梳光谱测量方面的研究。E-mail: 1289725423@qq.com

雷达^[8]等方面得到了广泛的应用。

由于飞秒激光频率梳具有带宽高,短时稳定和长时稳定效果好的特点,近年来在高精度光谱测量方面实现了长足的进步,出现了许多新光谱测量方法^[9-11]。现有的测量方法主要分为两类:第一类是在原有的光谱测量方法基础上,将普通光源替换为飞秒光源,利用飞秒光源的特点,提升光谱测量精度,如在傅里叶变换光谱法中^[9]使用飞秒光源可以增加主动探测的光谱范围,在腔增强或腔衰荡法中^[10]可以将高品质因数的激光脉冲耦合进光学谐振腔提升测量灵敏度;第二类是基于光梳的相干性,利用异步光取样的方法将飞秒光学频率梳作为光源,实现光谱的测量^[11]。由于该光谱测量方法利用了2台光梳作为相干光源,这种方法一般被称为双光梳光谱法(DCS)。该方法的基本原理是2002年Schiller^[12]首次提出的,在2004年Keilmann^[13]等首次设计了实验证实了该原理具有实际可行性和有效性。自此以后,DCS方法在精密激光光谱方面实现了重大突破,以美国国家标准计量局(NIST)为代表的许多国际科研机构^[14-16],在深入研究DCS原理以及各个方向实现了许多突破性进展,为DCS的发展和应用提供了重要的研究方向,从而促使许多国家如美国、德国等

加入了对DCS的研究,我国近年来也有许多科研机构针对该方法做了很多工作。

随着在汽车尾气排放^[17],电路板热分解回收金属材料^[18],恶臭气体成分分析^[19],温室气体排放^[20]等领域,对气体成分分析的精度和速度的要求进一步提升,基于光谱测量方法的激光非接触式测量技术以其具有速度快、动态范围大、测量介质多样的特点^[21],不仅应用于航空发动机燃气成分分析,也在其他的气体成分分析领域得到广泛应用。

1 双光梳光谱测量原理

双光梳光谱法的基本原理是,光梳产生的激光脉冲序列通过半透镜后被分为两束光,其中一束光通过固定的反射镜,另外一束光则通过可动反射镜反射,两束激光分别构成了静止脉冲和移动脉冲。两束激光最终汇合通过样品,最后照射在光电探测器上进行检测和数据采样。同时可以通过移动动镜实现移动脉冲对静止脉冲的扫描,从而得到两者的相关干涉图,经过傅里叶变换可以得到待测样品的吸收谱图。

为了实现没有机械运动也能实现扫描的效果,利用两台重复频率差很小的光梳分别替代静止脉冲和移动脉冲,具体实现方式如图1所示^[22-23]。

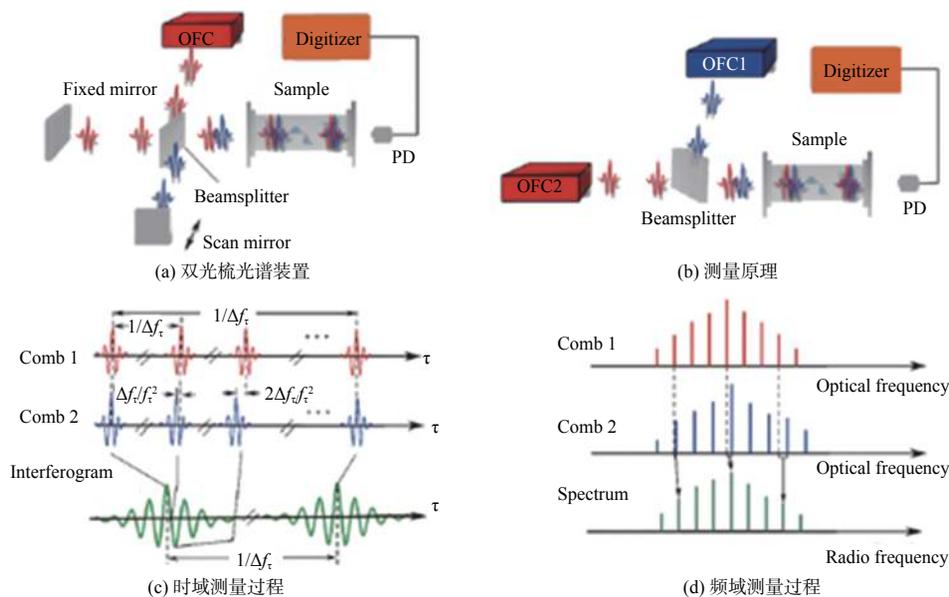


图1 双光梳光谱测量原理

Fig. 1 Measuring principle of dual-comb spectrum device

假定来自光梳1和光梳2的脉冲在某时刻入射到探测器,其电场强度分别为 $E_1(t) = \exp(i\phi_1)A_1(t)$

和 $E_2(t) = \exp(i\phi_2)A_2(t + \tau)$,其中 ϕ_1 和 ϕ_2 分别为来自光梳1和光梳2的脉冲载波相位, A_1 为光梳1的脉

冲电场包络, A_2 为光梳 2 的脉冲电场包络, τ 为时间延迟。经光电探测和采集后得到的电信号可表示为 $V(t) = h(t) * [E_1(t) + E_2(t)][E_1^*(t) + E_2^*(t)]$, 其中 $h(t)$ 为光电探测器与信号采集过程的总冲击响应函数。略去直流项, 则有 $V(t) \propto h(t) * [E_1(t)E_2^*(t)]$, 于是, 可采集到干涉图信号 $V(\tau) \propto \exp(i\Delta\phi) \int h(t') \times A_1(t-t')A_2^*(t-t'-\tau)dt'$, 其中 t' 为探测器响应尺度的时间变量, $\Delta\phi = \phi_1 - \phi_2$ 。由于 $E_1(t)$ 和 $E_2(t)$ 均为飞秒脉冲的电场, 这使得其包络乘积 $A_1(t)A_2^*(t+\tau)$ 的非零时间远远短于光电探测响应时间, 从而在 $A_1(t)A_2^*(t+\tau)$ 非零时 $h(t)$ 可视为常数。

在无样品时, 经探测和采集后的干涉图信号 $V(\tau)$ 可表示为

$$V_{\text{ref}} \propto \exp(i\Delta\phi)A_1(\tau)A_2^*(-\tau) \quad (1)$$

若 2 个脉冲序列通过响应函数为 $h_s(t)$ 的待测样品(见图 1(b)所示), 则测得的干涉图信号为

$$V_{\text{test}}(\tau) \propto V_{\text{ref}}(\tau) * h_s(\tau) \quad (2)$$

当测得 $V_{\text{test}}(\tau)$ 和 $V_{\text{ref}}(\tau)$ 后, 通过卷积运算即可得到 $h_s(\tau)$ 及其相应的频域响应 $H_s(f)$ ^[24]。值得指出的是, 图 1(b)所示的 DCS 系统中, 由于来自 2 台光梳的脉冲先在 PBS 上合束后再进入样品室, 这样获得的干涉信号是对称的, 因此傅里叶变换后获得的是样品的幅度信息; 若将其中一台光梳输出的光脉冲先通过样品室后再进行合束, 则可以再经傅里叶变换后得到样品的幅度和相位信息^[14]。

值得注意的时, 由于 DCS 系统的测量原理是通过两台光梳输出的脉冲对进行异步取样干涉, 然后再进行傅里叶变换, 其实质是 2 个光梳脉冲对之间进行互相关运算, 一组脉冲对对应的光学周期可能非常短, 因此, 如果两台光梳之间的相干性不足, 会使得干涉图严重失真, 这种失真不对光路部分做出调整, 或者记录光梳输出脉冲的时间抖动信号, 与干涉信号进行混频等操作时无法通过后续的数据处理手段进行消除^[14]。如果在众多干涉图均失真的情况下进行相干平均的操作则毫无意义, 因此测量结果中 SNR 很难得到保证。为了提高测量的 SNR 和灵敏度, 2 个脉冲对序列的相干性必须得到保证。同时, 该原理不仅可以应用于光频段, 同样可以应用于太赫兹等其他频段, 利用太赫兹梳等其他类型梳进行干涉, 同样可以得到不同频段的光谱分析结果^[25]。

2 双光梳光谱的几种实现方案

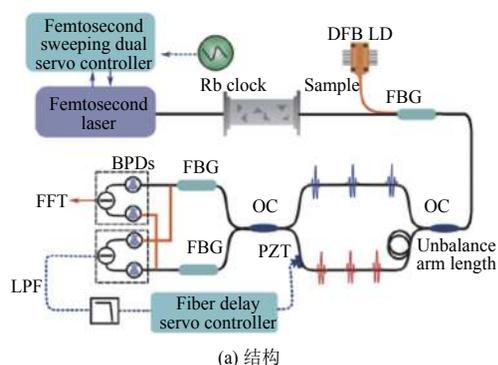
如图 1 所示, 双光梳光谱实现原理中, 对两台光梳之间的相干性有很高的要求。为了保证两台光梳的互相干性, 各个国家的许多学者探索并且发现了很多实现方法和原理。本文根据使用的光源光梳数量, 大体将现有的方法分类如下: 1) 单光梳型; 2) 双光梳型; 3) 3 光梳型。

2.1 单光梳型

若采用两台不同的光梳进行光谱测量, 首要的条件是需要保证两台光梳之间满足高度互相干性要求, 后文会介绍几种实现互相干的方法。若仅使用一台光梳产生 2 个不同的飞秒激光脉冲序列, 则两者之间必然是高度互相关的, 如果使用一台激光器, 实现成本显然低于 2 台激光器。关键是使用一台光梳实现 2 个具有不同重复频率且重复频率差距不能太大, 现有的实现方法主要有以下两种原理: 第 1 种是使用腔外延迟线, 通过对激光器的谐振腔进行调谐, 将输出的脉冲频率进行线性扫频; 第 2 种是参照通信技术中的多路光纤时分复用的方法, 通过对输出激光的偏振状态、波长、传输的路径长度或输出频率进行时分复用, 可以有效地产生既有足够相干性, 又可满足要求的重复频率差的两组脉冲激光。

2.1.1 扫频调谐型

扫频调谐型原理是, 对作为光源的一台飞秒激光器进行腔内调谐, 在腔外通过延迟线和不等臂干涉仪实现对脉冲重复频率的线性扫频并且分出 2 个不同重复频率的脉冲序列。2015 年 Lee 等人^[26]搭建了如图 2 所示的单光梳测量方案, 方案中使用了双伺服控制系统对激光器进行调谐, 腔外干涉仪通过反馈系统进行稳定。利用这一系统, Lee 小组对 HCN 气体样品进行了吸收光谱测量, 结果表明, 该系统可以在分辨率为 0.5 GHz 条件下, 实现 8 THz 带宽宽度, 在单次测量时间为 6 200 s 条件下, 其 SNR 可以达到 350。



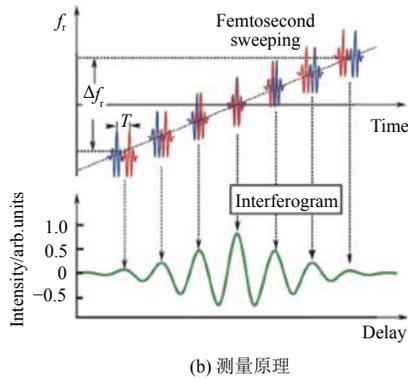


图2 单光梳扫频调谐型DCS方案

Fig. 2 Structure and measuring principle of single-comb frequency-tuning DCS scheme

该方案的缺点在于对于重复频率的控制使用了伺服控制系统控制线性扫描速率,该速率会影响到吸收光谱测量时间,使得双光梳光谱测量速度快的优点受到限制。同时为了消除环境的影响,使用引入铷钟控制扫频精度和主动控制光纤干涉仪的臂长两种方案,其控制系统的精度要求高,实现难度比较大。这2个缺点影响了此种方案的实际应用。

2.1.2 双偏振型

双偏振型是指在激光器的谐振腔内增益介质为保偏介质时,将激光器内部的2个正交偏振信号

同时进行锁模放大,则保偏介质的双折射效应使2个信号之间出现重复频率差。

2019年,北京航空航天大学的Jie Chen等人设计了一套如图3所示的自适应双偏振型DCS系统^[27],该方案采用自由运行(无锁定)的单腔双梳光纤激光器,结合了自适应补偿的结构设计。该激光器实现的2个光梳在不同的中心波长(1532.5 nm和1557.7 nm)处的3 dB带宽分别为4.2 nm和3.6 nm,这个数据和保偏光纤引入的双折射效应的理论值有较好的符合程度。由于通过优化色散补偿光纤(DCF)的长度实现了相对较低的腔内异常分散,因此2个脉冲序列具有较为合适的不同的重复频率 $f_{rep1} = 48.804486\text{ MHz}$, $f_{rep2} = f_{rep1} - 48.804296\text{ MHz} = 0.00019\text{ MHz}$,两台光梳之间的重复频率差仅有190 Hz。通过带通滤波器将两组脉冲信号分离后分别经过光纤放大器(EDFA)放大分束,光梳1通过光电导天线PCA1发射形成太赫兹梳1后,过气室与通过PCA2发射的太赫兹梳2干涉后输出。分束的另一部分送入由BBO晶体构成的互相关器中生成触发信号。结合自适应补偿方法之后,该双光梳光谱装置可实现时间采样窗口200 ns以上,频谱采样间隔达到48.8 MHz,信噪比(SNR)在50 dB以上时仍能获得5 MHz的频谱分辨率。

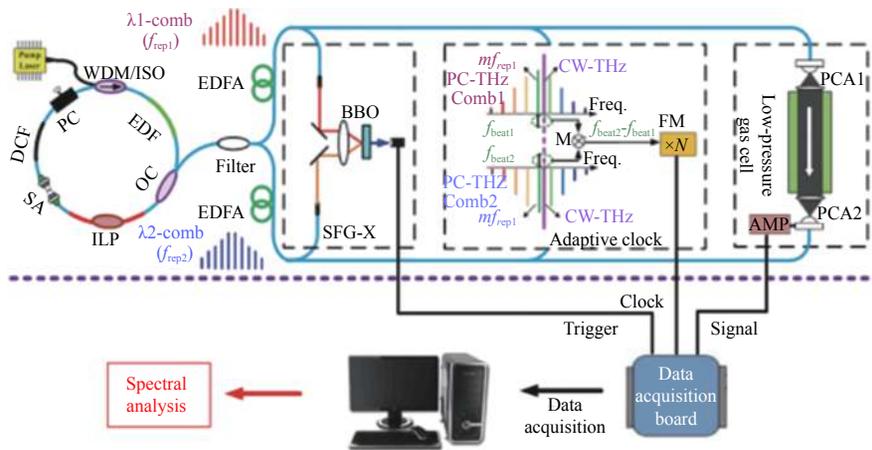


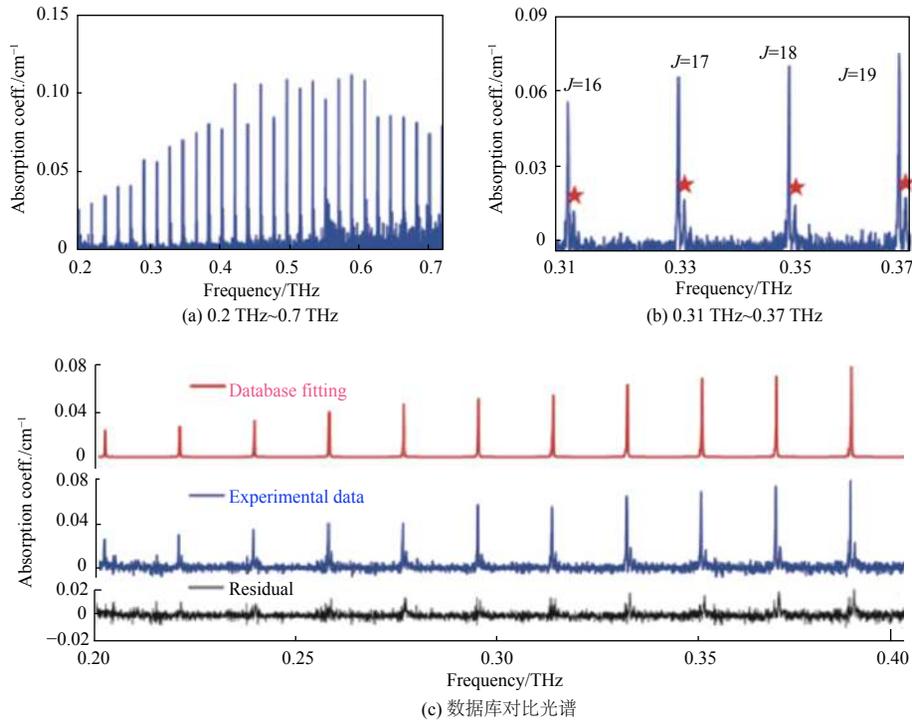
图3 自适应双偏振型双太赫兹梳光谱装置

Fig. 3 Self-adaptive dual-polarization dual terahertz comb spectrum device

为了证实该装置的有效性,该小组在气室中通入乙腈(CH₃CN)气体,实验有效地证明了可以通过该方法观测到气体的压力增宽效应。图4是CH₃CN气体的吸收谱线^[27],可以看出吸收谱线和标准吸收谱线吻合得很好。

2.1.3 双波长型

双波长型是指将飞秒激光器设置成双波长工作状态时,由于两者中心波长不同,其具有不同的群速度色散情况,输出的2个脉冲序列自然具有不同的重复频率,适当调整飞秒激光器的工作

图4 CH₃CN气体的吸收光谱图Fig. 4 Absorption spectrogram for CH₃CN

状态,可以得到两列具有适当重复频率差的脉冲序列。

2016年,北京航空航天大学 Zhao Xin 等设计了一台双波长型双光梳飞秒锁模光纤激光器,并根据这台激光器设计了如图5所示的DCS系统^[28]。

该飞秒激光器输出的2个激光脉冲序列的重复频率为 $f_{\text{rep}1} = 53 \text{ MHz}$, $f_{\text{rep}2} = f_{\text{rep}1} + 1.2 \text{ kHz}$, 2个光梳的10 dB带宽的重叠范围为1528 nm~1543 nm,在20 ms内测得光梳梳齿的相对线宽为250 Hz,表明2个脉冲序列具有很好的互相关性。

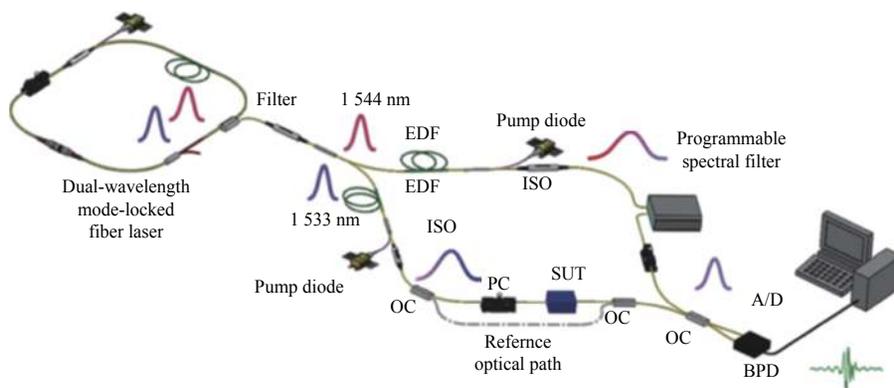


图5 双波长锁模型DCS

Fig. 5 Dual-wavelength mode-locked DCS

该小组利用这套系统对乙炔(C₂H₂)的吸收光谱进行了测量,图6是与标准吸收库 HITRAN 对比的实验结果^[28]。测得相干平均次数为199次的条件下,SNR值达到100,获得了188 MHz(1.5 pm)的光谱分辨率。

2.1.4 双向输出型

双向输出型是指在一个谐振腔不同方向的传输距离不同,在同一泵浦光源作用下产生两列脉冲序列,适当控制不同传输方向的腔长,则可以得到2个具有不同重复频率的脉冲序列。

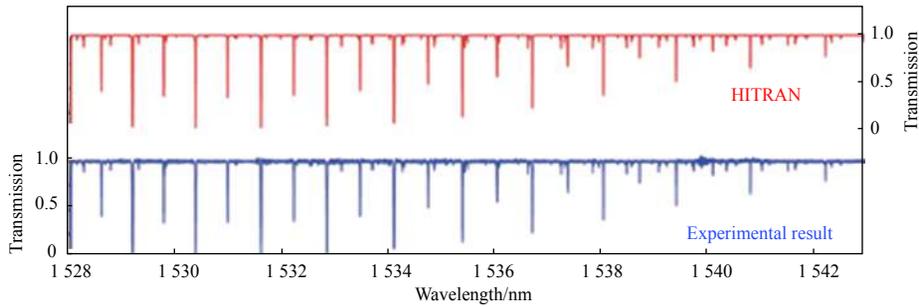


图6 与 HITRAN 数据库对比的吸收光谱图

Fig. 6 Comparison of absorption spectrogram and HITRAN database

2016年,东京大学的 Takuro Ideguchi 等根据克尔效应,设计并且搭建了一套如图7所示的双向传输型固体飞秒激光器^[29],其中心波长为 850 nm,输出的两脉冲序列的重复频率为 $f_{rep1} = 932$ MHz, $f_{rep2} = f_{rep1} + 325$ Hz。与其他设计相比,该固体飞秒激光器输出的两组脉冲激光的梳齿在 1 ms 内的相对线宽可达 13 kHz。该小组利用图7所示的 DCS 系统测量了 Nd:YVO₄晶体的透射谱线,在以 817 nm (367 THz)为中心的谱宽为 40 nm (18 THz)的范围内实现了吸收光谱分析,在采集时间为 67 μs 的条件下实现了 93 GHz 的光谱分辨率。

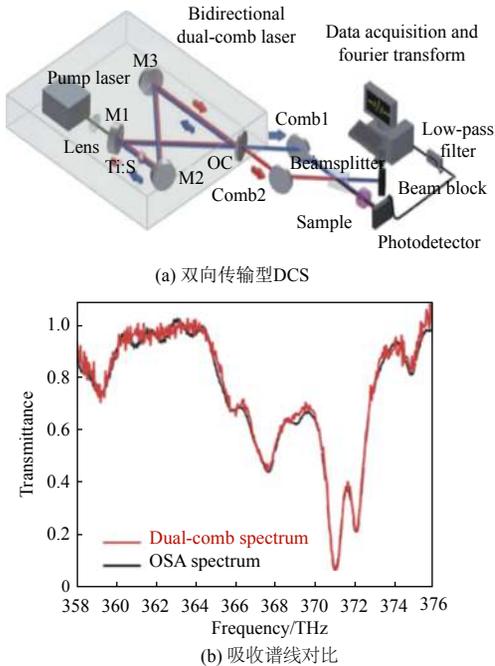


图7 腔内双向传输型 DCS 和吸收谱线对比图

Fig. 7 In-cavity bidirectional transmission DCS and comparison with database

2.1.5 微腔光梳型

微腔光梳作为近些年来得到迅猛发展的一种光梳,可以实现普通锁模激光器达不到的特性,如

可以实现中远红外光梳、太赫兹光梳等。在同一芯片上刻蚀 2 个不同的光学微腔,再使用同一泵浦光源进行激发,可以得到两列不同重复频率的脉冲激光。现有的设计思路主要包括两种:一种是分束后分别泵浦;另一种是将 2 个谐振腔进行串联,泵浦激光先后通过 2 个谐振腔。

1) 并联型

2020年,哥伦比亚大学的 Tong Lin 等人设计了如图8所示的芯片化微腔光梳系统^[30],该微腔光梳克服了一般微谐振腔光梳在较宽光谱谱宽和超高分辨率检测过程中出现的频谱采样过于稀疏的问题。该芯片级扫描双光梳光谱系统(SDCS)采用

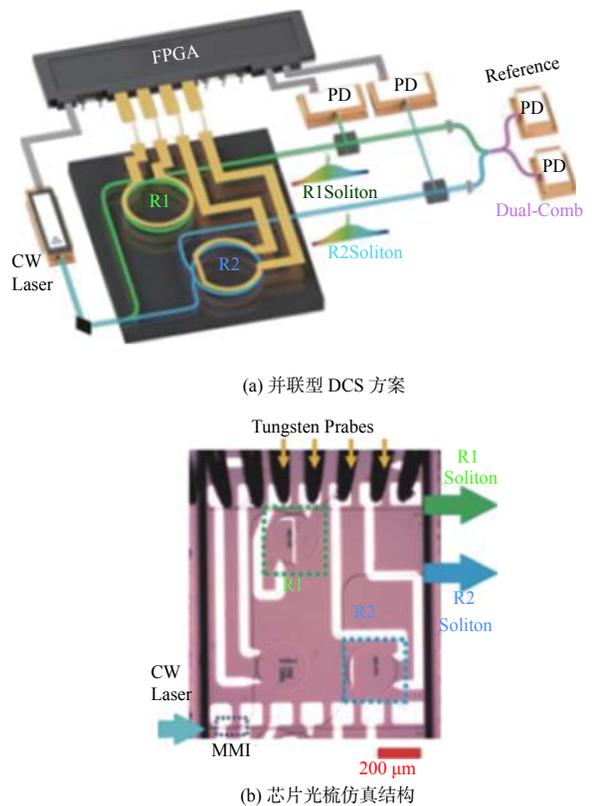


图8 芯片化微腔光梳系统

Fig. 8 Microcavity comb DCS

了高品质因数的氮化硅微环, 并且集成了铂微加热器, 从而实现了高分辨率检测。如图 8 所示, 作为泵浦源的连续激光器输出的泵浦光在被集成在芯片上的多模干涉耦合器分束后, 泵浦为 2 个半径稍有不同的微环。通过微型加热器对光子功率的稳定来实现 2 个单光子微腔光梳锁定在同一个微腔失谐参量上。最后在定向耦合器中对 2 个单光子微腔光梳进行耦合, 则可以得到满足要求的 DCS 系统。同时, 为了得到在整个光梳带宽上进行 DCS 扫描, 则可以在 2 个相邻梳齿频率之间对泵浦激光频率进行调节, 同时在波长跟踪仪的辅助下对微加热器进行调节, 则可以通过热光效应使得 2 个微环同时高精度地实现调谐。该 DCS 体系可以输出 2 个重复频率分别为 $f_{\text{rep}1} = 192 \text{ GHz}$, $f_{\text{rep}2} = f_{\text{rep}1} + \Delta f_{\text{rep}} (< 10 \text{ MHz})$ 的两组脉冲。以该系统为基础, 该小组测量了 HCN 气体的吸收光谱, 实现了带宽为 2.3 THz, 分辨率为 $319 \pm 4.6 \text{ kHz}$ 的宽带高精度光谱测量。该小组同时指出, 本实验装置同时可以实现高达 37.5 THz 的光谱谱宽和分辨率 $< 400 \text{ kHz}$ 的光谱测量。

同样在 2020 年, 美国哈佛大学的 Amirhassan

Shams-Ansari 等人设计了如图 9 所示的一套微腔光梳 DCS 系统^[31]。这套系统的微腔光梳的 2 个谐振腔分别位于 2 个不同的芯片, 每个芯片是由二氧化硅基底上镀有一层厚 600 nm 的铌酸锂(LN), 谐振腔刻蚀在这层铌酸锂上, 最上层由二氧化硅覆盖保护。为了保证谐振腔正常工作, 2 个微波驱动电极沿着 LN 晶体的 y 轴布置, 从而保证电光系数最大。作为泵浦光源的连续激光进入谐振腔, 和微波源实现三波混频从而产生脉冲光序列。这种独特设计在于可以同时输出几个不同频率的泵浦激光, 同时输出多对不同的互相干光梳。输出的光梳中心频率即为泵浦的连续激光频率, 重复频率则取决于输入 LN 晶体的微波源的频率。通过调节输入的泵浦光和微波频率, 可以实现在极宽光谱范围内的连续调谐。该小组进行的实验中对谐振腔 EOC1 输入 2 个中心频率为 $f_1 = 192.7 \text{ THz}$, $f_2 = 186.1 \text{ THz}$ 的连续激光, 同时使用声光移频器对连续激光移频(其中 $\delta_{f_1} = 40 \text{ MHz}$, $\delta_{f_2} = 25 \text{ MHz}$)后输入 EOC2, 分别用 $f_{\text{RF}1} = 10.453 \text{ GHz}$, $f_{\text{RF}2} = f_{\text{RF}1} + 0.1 \text{ MHz}$ 的微波进行驱动。输出得到两对光梳, 每对光梳的谱宽为 1.7 THz, 包含 162 条谱线, 同时两者中心频率间距为 6.6 THz。

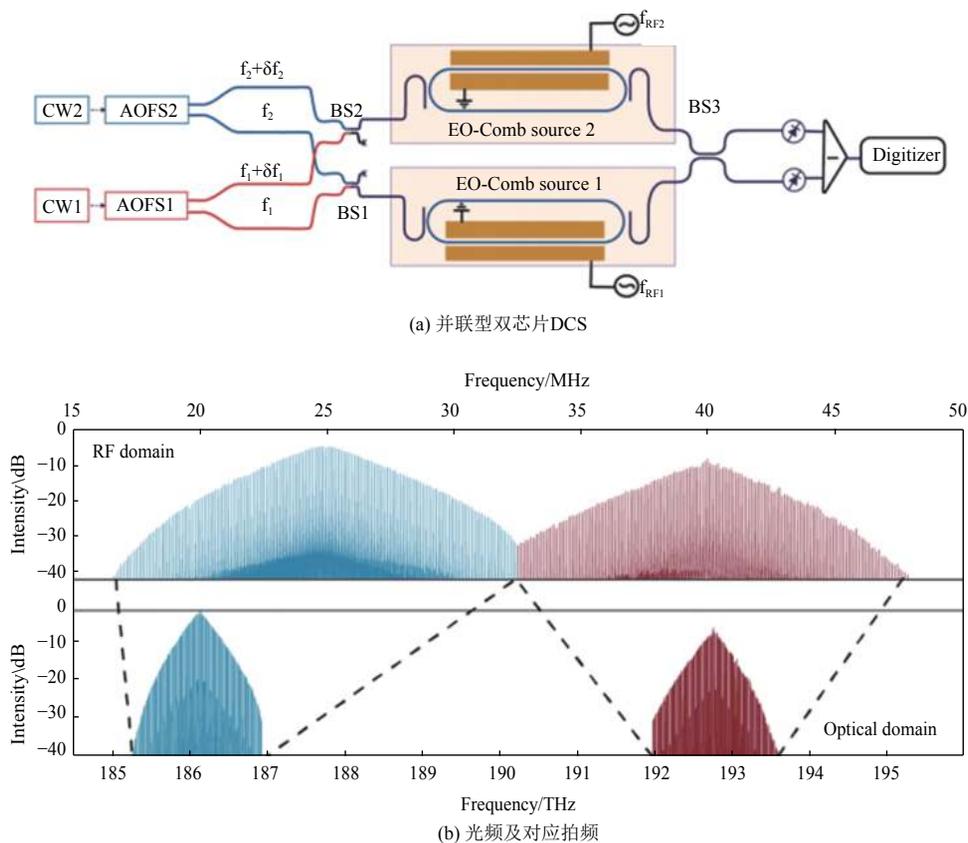


图 9 并联型双芯片 DCS 的光频及对应拍频吸收强度

Fig. 9 Optical frequency of parallel dual chip DCS and corresponding beat frequency absorption intensity

该小组利用这套 DCS 对乙炔气体进行了吸收光谱测量,测量结果与 HITRAN 数据库得到的标

准吸收谱线对比结果如图 10 所示^[32]。由图 10 可以看出光谱谱线分辨率达到 10.453 GHz。

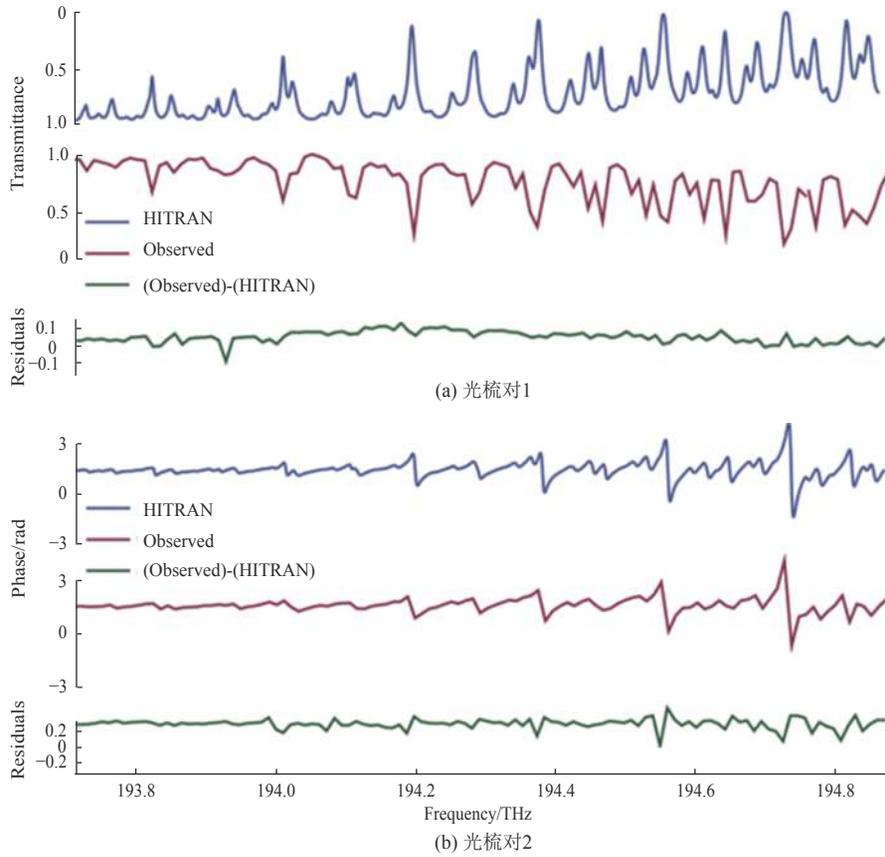


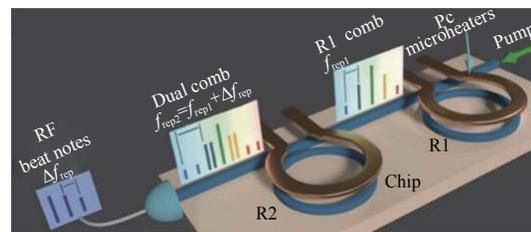
图 10 光梳对 1 和 2 测得的光谱数据与 HITRAN 对比

Fig. 10 Comparison of optical data of optical comb pair 1 and 2 with HITRAN

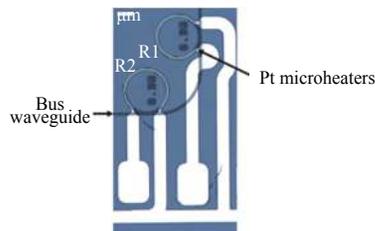
2) 串联型

2018 年康奈尔大学 Avik Dutt 等人设计了如图 11 所示的芯片化双微腔光梳系统^[33]。用同一连续激光作为光源,泵浦 2 个级联的氮化硅微环 DCS 系统。这对级联氮化硅微环具有略微不同的名义半径(50.04 μm 和 49.98 μm),耦合在同一个总线波导(高度 730 nm,宽度 1 500 nm)上,且波导和谐振腔之间的距离为 350 nm。输入的泵浦光中心波长为 1 561.4 nm,通过微加热器可以将 2 个谐振腔调谐到谐振状态,产生带宽为 51 THz(400 nm)的频率梳频谱。2 个频率梳的重复频率分别为 $f_{rep1} = (451.4 \pm 0.4)$ GHz, $f_{rep2} = (452.8 \pm 0.4)$ GHz, 则输出重复频率差为 $\delta_{rep} = (1.4 \pm 0.8)$ GHz, 该重频差正好位于常用光电二极管的工作带宽内。

为了验证该 DCS 的性能,该小组进行了二氯甲烷(CH₂Cl₂)的液相吸收光谱实验,得到的光谱图如图 12 所示^[32]。



(a) 串联型微腔光梳 DCS 方案



(b) 芯片光梳仿真结构

图 11 芯片化双微腔光梳系统

Fig. 11 Microchip double microcavity comb system

2.1.6 马赫-曾德尔调制型

2020 年,法国国家科学研究中心的 Lucas

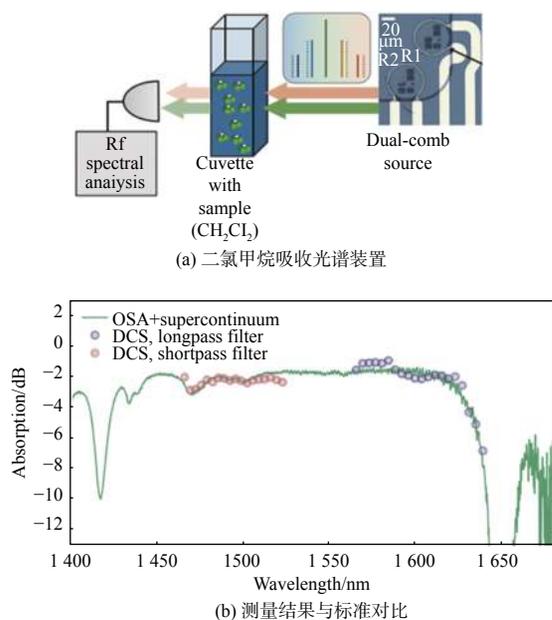
图 12 二氯甲烷(CH_2Cl_2)的液相吸收光谱实验

Fig. 12 Dichloromethane absorption spectrum device

Deniel 等人提出了一种使用马赫-曾德尔调制器实现可调谐的双光梳光谱测量方案^[33], 如图 13 所示。该方案主要由 2 个马赫-曾德尔调制器和 1 个电光调制器(AOM)构成。如设置电光调制器输入信号重复频率为 $f_{\text{AOM}} = 40 \text{ MHz}$, 2 个硅马赫-曾德尔调制器输入两列重复频率分别为 $f_{\text{rep1}} = 500 \text{ MHz}$, $f_{\text{rep2}} = 504 \text{ MHz}$ 的脉冲序列, 在输出端的光电二极管上可以得到间隔为 4 MHz 的 6 个电脉冲。如果进一步扩大 f_{rep1} 的数值, 同时保证 $f_{\text{rep2}} - f_{\text{rep1}} = 4 \text{ MHz}$

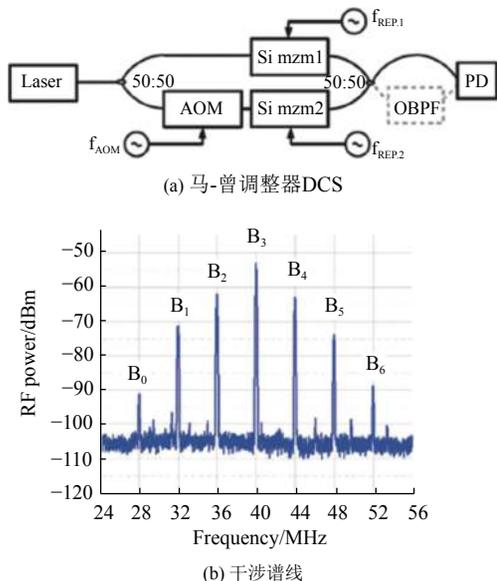


图 13 马-曾调制器 DCS 方案及其输出干涉谱线图

Fig. 13 DCS scheme of Mach-Zehnder modulator and its output interference spectrum

不变, 则可以实现输出双光梳的调谐带宽达到 25 GHz 。

单个激光光源输出两列脉冲激光的方案中, 由于其激光光源具有同一性, 因此不会因为不同光源的不同共模噪声对 2 个脉冲序列之间的相干性产生影响, 与其他的测量方法相比具有天生的相干性优势。并且光源数量减少, 对整个设备的成本控制和集成化具有更大的优势。综合上述多种形式的单光梳测量方法可以发现, 如何产生 2 个具有合适重复频率差的脉冲光是整个问题的核心。

2.2 双光梳型

相比于只有一个输入光源的单光源型, 使用两台飞秒激光器进行双光梳光谱测量需要解决的首要问题是, 需要保证两台光梳之间具有满足要求的相干性, 如果相干性达不到要求, 则无法得到完全保真的干涉图。现有的方法主要分为两种: 第 1 种是直接提高两台光梳之间的绝对相干性, 这种手段效果很明显, 但是需求成本很高; 第 2 种则是记录干涉过程中两台光梳之间的抖动, 再通过混频手段将噪声信号从干涉图中消除, 从而得到相对有效的相干平均。

2.2.1 相干双光梳型

提高相干性的方案基本可以分为两种思路: 一种是直接提升每台光梳的绝对相干性, 则最后两台光梳之间的相干性必然得到满足; 另一种是通过某种锁定方案, 将光梳的相干不稳定程度对干涉结果的影响缩小, 则可以在现有的条件下, 相对低成本地满足两台光梳之间的互相干性要求。

1) 两台光梳分别精密锁定型

2010 年, NIST 的 Coddington^[16] 等人, 采用了锁定在超稳腔的两台窄线宽激光器作为光频率参考激光器, 再将两台光梳分别采用完全自参考方案进行锁定, 将两台光梳的梳齿线宽压缩到 Hz 量级。这种方案从根本上提高了两台光梳的互相干性, 同时, 由于线宽极低, 可以进行长时间的相干平均, 因此 DCS 的灵敏度也得到了极大的提高。Coddington 等人采用的锁定方案示意图如图 14 所示。首先利用超稳腔将两台窄线宽激光器的线宽锁定在 Hz 量级, 再分别将两台光梳的最邻近梳齿分别与窄线宽激光器进行拍频, 将拍频信号分别送入 2 个激光器的伺服控制系统, 从而通过动态调控谐振腔长和电流将光梳的梳齿进行锁定。最后其积分相位噪声在 $[0.1 \text{ Hz}, 3 \text{ MHz}]$ 的区间上可以达到 $0.27 \text{ rad} \sim 0.47 \text{ rad}$, 对应每个脉冲的时间抖动为 $0.22 \text{ fs} \sim 0.38 \text{ fs}$ 。

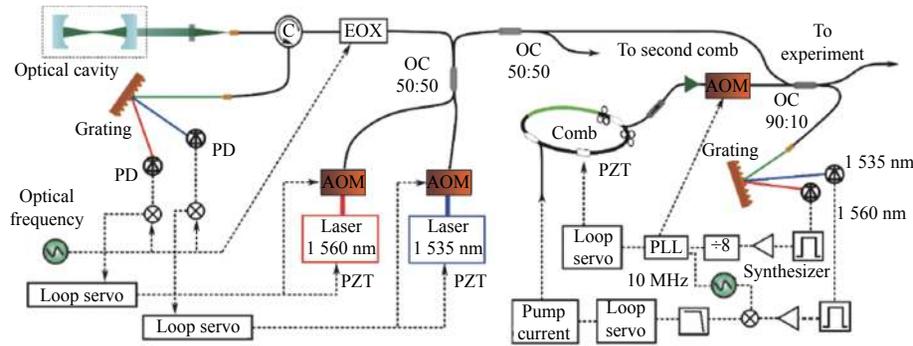
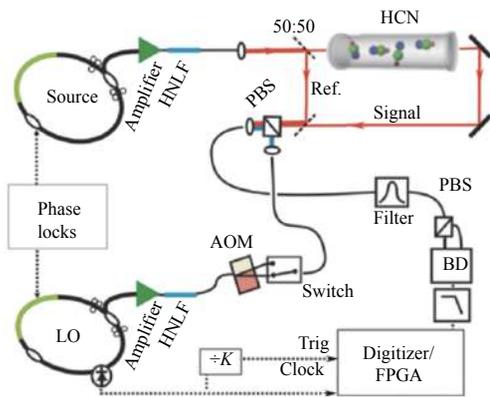


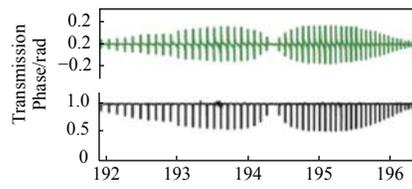
图 14 光频参考锁定光梳结构示意图

Fig. 14 Configuration scheme of OFC locked with optical frequency reference

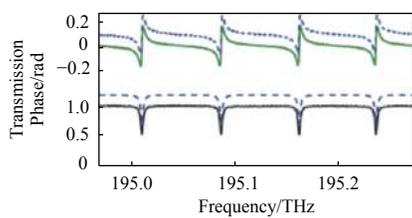
在该双光梳系统的基础上,该小组实现了如图 15 所示的典型双光梳光谱测量系统^[34]。两台光梳的重复频率分别为 $f_{\text{rep}1} = 100 \text{ MHz}$, $f_{\text{rep}2} = f_{\text{rep}1} + 1 \text{ kHz}$, 同时,两台光梳采用了 source 梳,先经过气体吸收池后再和 LO 梳合束的方案,可以实现同时测量样品的幅度和相位 2 个干涉谱图。从图 15 中可以看到,分辨率达到了理论分辨率 100 MHz,同时 SNR 高达 35 dB。



(a) 相干 DCS 结构图



(b) 相位和透过谱

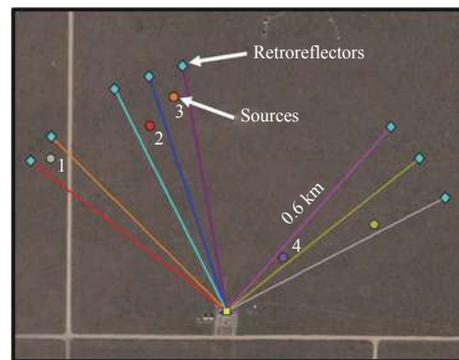


(c) 局部放大图

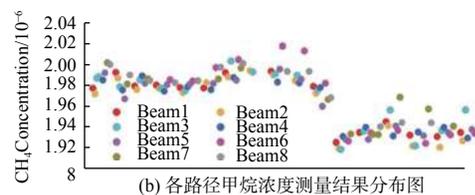
图 15 典型双光梳光谱测量系统

Fig. 15 Typical double comb spectrometric system

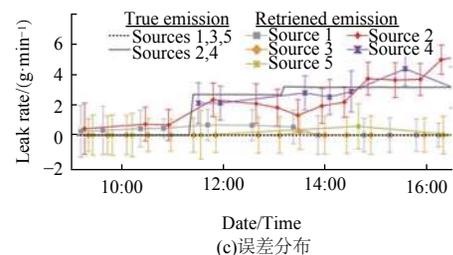
2018 年科罗拉多大学波尔得分校的 Sean Coburn 等人在该实验基础上,将锁定用的两台窄线宽激光器用光纤激光器代替,从而提升了整个系统的稳定性,如图 16 所示^[35]。他们将该装置通过车载的方式移动到室外,实现了开放光路(0.6 km 和 1.1 km)大气中甲烷浓度的测量。



(a) 开放光路测量路径图



(b) 各路径甲烷浓度测量结果分布图



(c) 误差分布

图 16 采用光纤激光器的双光梳光谱测量系统测试结果

Fig. 16 Test results of double comb spectrum measurement system with fiber laser

2) 两台光梳偏置频率锁定同一台激光器型

2018 年清华大学张伟鹏等人设计了如图 17 所

示的双光梳 DCS 方案^[36], 该方案通过同一个窄线宽参考激光器和原子钟频率基准实现两台光频梳的完全锁定并同步。两台光频梳的输出光各自通过一个半波片使其偏振方向一致, 然后经由一个分束棱镜合束入射进待测气体池在光入射至气体池前, 使用一个与待测光谱范围对应的带通滤光片进行光谱选择, 以便在充分利用探测器动态范围的情况下, 增强光谱数据的信噪比。出射的带有吸收信息的双光梳多外差拍频信号被光电探测器接收并由数据采集系统采集, 对采集得到的信号进行傅里叶变换以及光学频率映射, 即可得到待测气体的吸收光谱特性。

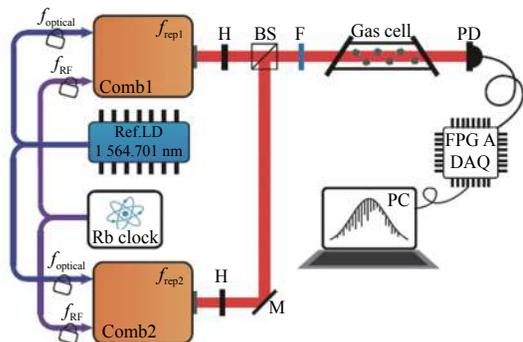


图 17 双光梳锁定偏置频率方案示意图

Fig. 17 Dual-comb offset frequency locking scheme

在测量时间为 62.5 ms 的条件下, 其测量得到的光谱谱图可以在 SNR 达到 200 的同时, 实现分辨率达到 0.086 cm^{-1} , 其光谱谱图如图 18 所示。

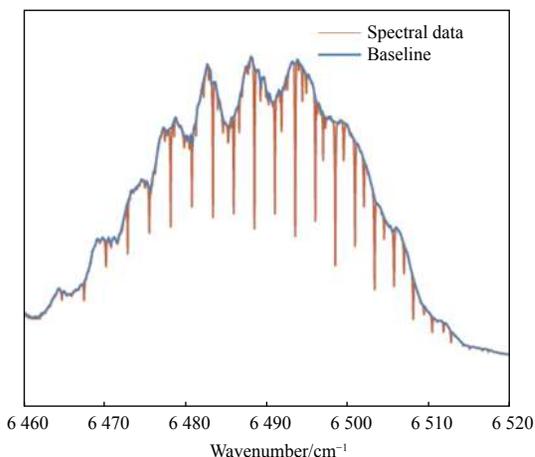


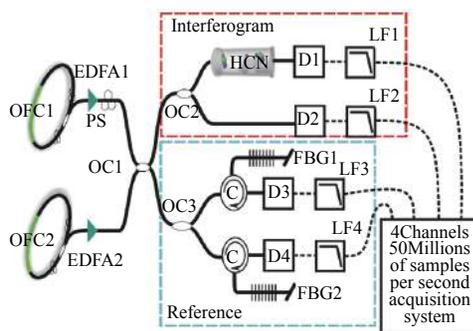
图 18 偏频锁定方案吸收谱线图

Fig. 18 Absorption spectrum of offset frequency locking scheme

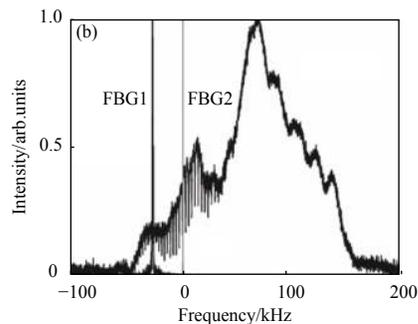
2.2.2 自适应双光梳型

直接提升两台光梳之间的相干性的方案虽然

测量精度极高, 但是由于其使用了超稳腔锁定, 其系统的复杂程度高且成本高昂, 难以实现推向市场的商业化低成本的 DCS 仪器, 因此, 2008 年加拿大拉瓦尔大学的 Giaccari 等人^[37]提出了一种通过记录两台光梳各自的时间抖动的方案, 再将噪声信号通过混频的方式消除, 从而可以通过相干平均提高 SNR。这种方案一般被称为自适应 DCS 方案。Giaccari 等人提出的利用布拉格光栅记录误差信号的方案如图 19 所示^[37]。



(a) 自适应DS装置



(b) 吸收谱线

图 19 自适应 DCS 装置示意图 (a) 及其吸收谱线图 (b)

Fig. 19 Schematic diagram of self-adaptive DCS device and its absorption spectrum

2014 年, Takuro Ideguchi 等人报道了一套 DCS 系统, 同样采用自适应方案设计, 结构图如图 20 所示^[14]。该 DCS 使用未锁定的光纤激光器作为光梳, 通过光梳梳齿与窄线宽激光器拍频获得射频信号, 通过将射频信号 AS1 与干涉信号混频后, 以 AS2 信号作为采样触发, 得到了相干平均后的光谱数据图。这种方案大大降低了对数据处理和储存的要求。

2018 年上海理工大学和上海光机所杨力等人, 采用了自适应法设计了一套如图 21 所示的双光梳光谱检测装置^[38]。该装置采用电控偏振控制器 (EPC) 进行智能锁模检测和快速自锁模调节控制, 利用高非线性光纤对双光梳振荡源进行展宽,

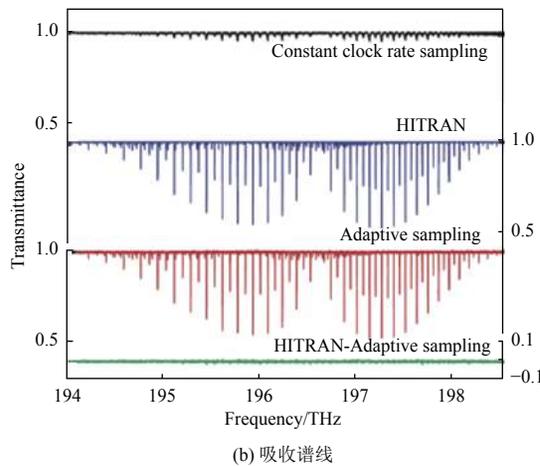
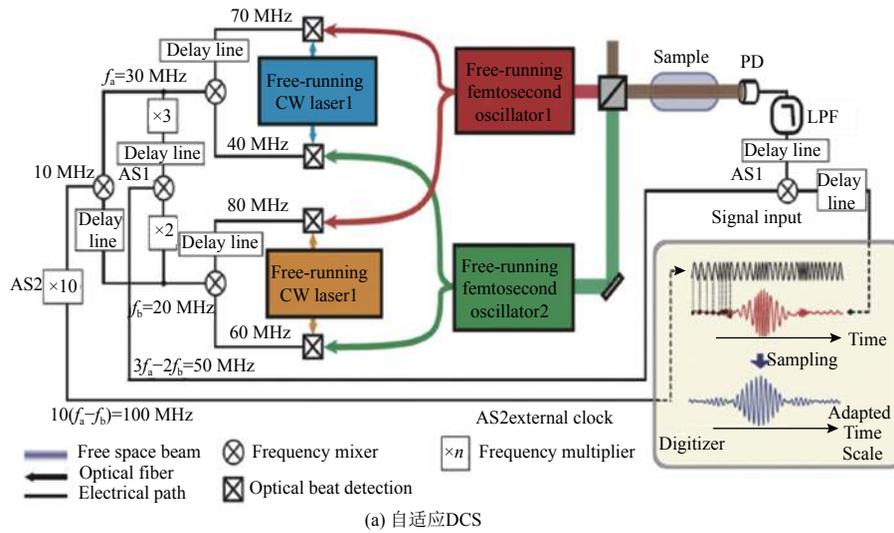


图 20 自适应 DCS 示意图(a)及其吸收谱线与 HITRAN 数据库对比图

Fig. 20 Schematic diagram of self-adaptive DCS and comparison of absorption line and HITRAN database

采用两台连续激光器作为中间媒介对双光梳振荡器进行拍频。同时为了保证拍频信号处于射频模块带宽内,对光梳振荡器的重复频率进行了锁定控制。利用图 21 所示的装置对乙炔气体进行检测,单次测量信噪比为 10,单次测量时间 600 μ s。

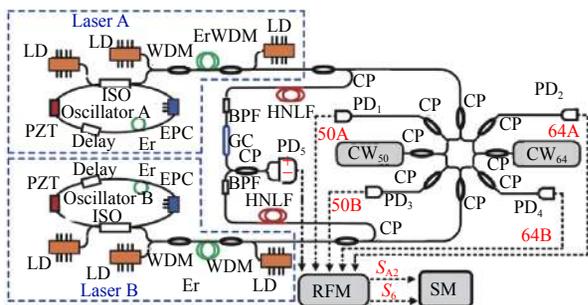


图 21 自适应双光梳光谱实验装置图

Fig. 21 Self-adaptive dual optical comb spectrum experiment device

该装置存在的问题是双光梳系统对温度变化比较敏感,在温度变化时,对双光梳振荡器的影响较大,对信噪比有较大的影响。

上文中也叙述过单光梳方案也可以采用自适应方案进行混频校正后再进行相干平均,同样可以提升最后测量结果的 SNR。

2.2.3 二维双光梳型

DCS 虽然由于其具有不需要移动光学元件就可以实现高分辨率、高灵敏度、宽光谱范围和高速采集,但是由于其仍然是一维光谱分析方法,因此受限于一维技术固有的局限性,无法识别共振是否是耦合的。多维相干光谱技术(MDCS)是一种先进的非线性技术,通过输入多个(通常是 3 个)光学脉冲信号进入样品检测产生的四波混频信号(FWM),从而构建多维光谱。这种检测方法可以针对原子和分子进行光谱分析。典型的 3 光梳光

谱本文将在下一节进行分析, 本节主要集中于利用 2 个飞秒激光光源实现多维相干光谱分析的方法。

2017 年密歇根大学的 Bachana Lomsadze 等人开发了如图 22 所示的二维双光梳光谱分析装置^[39]。LO 光梳和光梳 1 之间具有一个微小的重复频率差距($f_{\text{rep}1} = 93.544\ 290\ \text{MHz}$, $f_{\text{rep}LO} = 93.544\ 290\ \text{MHz} + 220\ \text{Hz}$)。与普通一维 DCS 相比, 光梳 1 产生的脉冲激光信号经过分束器分为两束, 其中一束激光通过 AOM 进行移频, 另外一束通过安装在机械平移台上

的反射镜来改变脉冲之间的延迟程度, 从而生成二维光谱的第二维。图 22 中(a)显示了由一对脉冲(延迟脉冲在光子回波序列中相互作用 2 次)产生的四波混频(FWM)信号的过程。由于双光梳光源 2 个脉冲序列信号的差异, 因此其与普通一维 DCS 测量有所不同。为了验证该方案的可行性, 在图 22 所示的位置安装了一个 10 层 10 nm 厚的 GaAs 量子阱, 每层由冷却到 7 K、厚度为 10 nm 的 $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{As}$ 层隔开, 通过光学滤波使得轻重空穴被同时激发。

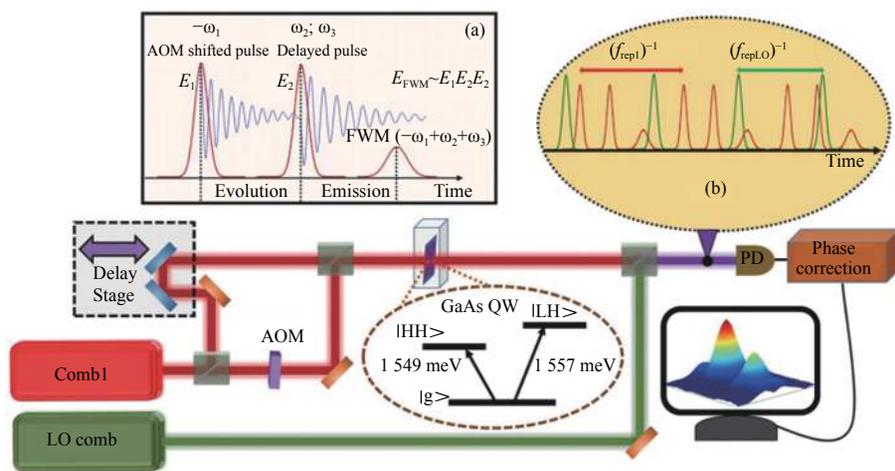


图 22 二维双光梳光谱原理图

Fig. 22 Two-dimensional dual-comb spectroscopy principle

图 23 是以零时域延迟从微波频率重新映射到光频率的 FWM 信号的频谱^[39]。该频谱相比与市售的傅里叶变换光谱仪, 如果需要达到相同的分

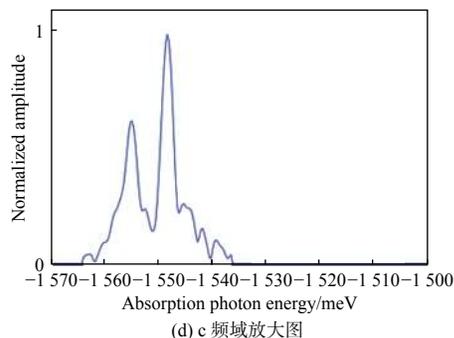
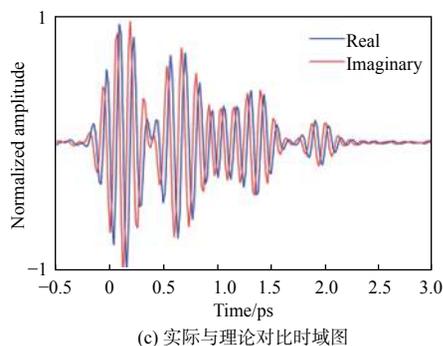
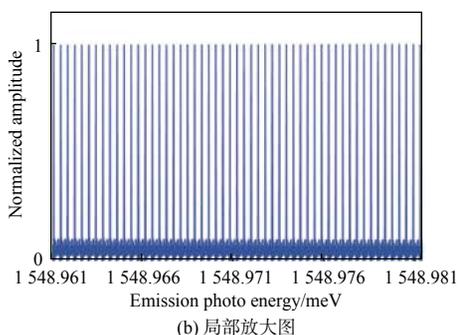
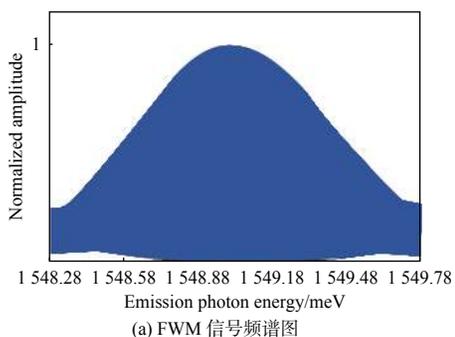


图 23 FWM 信号频谱图

Fig. 23 FWM signal spectrum

分辨率和采集时间,则需要傅里叶变换光谱仪中的光学移动元件以接近音速的速度在长达 30 m 的干涉臂上移动。

该小组在此原理基础上,设计了如图 24 所示的测量装置^[39]。作为干涉光源的 LO 梳和信号梳的重复频率被锁定在同一个数字信号发生器上,其重复频率分别为($f_{\text{repsig}} = 93.567\ 412\ \text{MHz}$, $f_{\text{repLO}} = 93.567\ 412\ \text{MHz} - 423.45\ \text{Hz}$),但是偏置频率并没有

锁定。信号光梳输出的脉冲光经过半波片后在 PBS1 上被分为两部分,一部分通过声光调制器(AOM)将偏置频率频移了 80 MHz,并在 PBS2 上与经过延迟装置的另一部分合束。合束后的脉冲光经过偏振片调节到相同的偏振状态后经过带通滤波器射入样品室。样品发射的四波混频信号、入射光信号和 LO 光梳的脉冲信号一起在 PBS3 上合束后被 det1 探测。

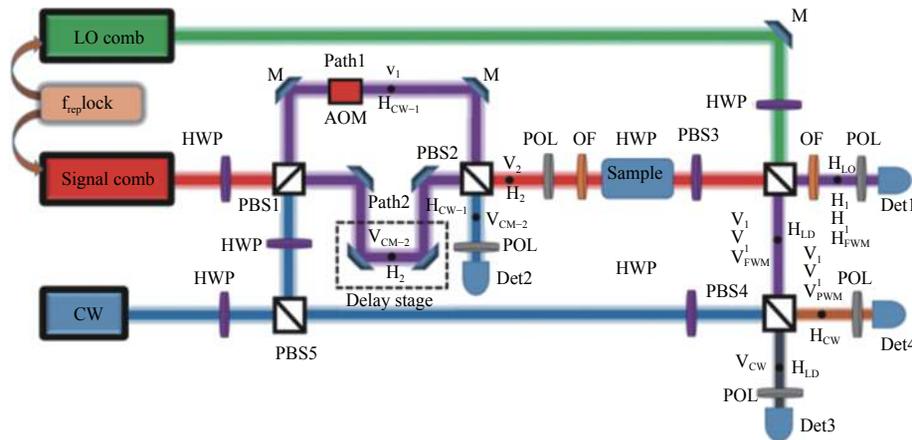


图 24 自适应二维双梳方案示意图

Fig. 24 Schematic diagram of self-adaptive two-dimensional dual-comb scheme

为了实现光谱信号相位波动的自适应补偿,使用了一台调谐在 794 nm 附近的连续激光器。通过 PBS4 和 PBS5,分别在 Det2, Det3, Det4 上探测各个阶段的相位波动。其中 Det2 主要探测信号光梳 2 个路径上的波动, Det3 主要探测 LO 梳的相位波动, Det4 主要探测信号光梳由于偏频、残余重复频率和路径长度引起的波动。

2.3 三光梳型

多维相干光谱技术(MDCS)作为一种可以测量非均匀展宽系统中均匀线宽、多体相互作用以及激发共振之间耦合效应的光谱测量技术,可以满足其他许多线性或者非线性测量方法无法实现的特种需求。传统 MDCS 装置体积大,分辨率和采集速度受到限制。基于双光梳光谱探测原理和多维相干光谱技术发展得到的三光梳二维相干光谱技术(TCS),通过不使用移动的机械元件可加快数据采集速度,利用重复频率差来实现高分辨率的需求,同时可以使用微腔光梳等新发展的光梳光源尽可能地降低装置的体积。同时,光梳光谱分析具有高采集速度的特点,可以实现在极短时

间内生成具有交叉重频差级别分辨率的二维相干谱图。

2019 年密歇根大学的 Brad C.Smith 等人提出了如图 25 所示的三光梳光谱分析(TCS)装置^[40]。该装置使用的 3 套光学频率梳均是固体锁模飞秒激光器,中心波长均为 800 nm,重复频率分别为 $f_{\text{rep1}} = f_{\text{rep2}} + 274\ \text{Hz}$, $f_{\text{repLO}} = f_{\text{rep2}} - 274\ \text{Hz}$, $f_{\text{rep2}} = 93.5\ \text{MHz}$, 3 台光梳均锁相在同一台四通道直 1 流数字合成器(DDS)上,且偏移频率均不锁定。光梳 1 和 2 的输出在偏振分束器(PBS1)上合束后经过带通滤波片滤波,然后通过样品室。样品发出的四波混频信号和入射光束以及 LO 光梳的脉冲信号在 PBS2 上合束干涉后,接收器 1(det1)接收干涉信号。同时,该装置也设计了自适应补偿部分。通过调整半波片使得每个光梳发出的部分光均在 PBS3 上和参考连续激光器进行拍频,从而获取每个光梳的光学相位波动。

图 26 为在光频域和射频域中不同信号的频率分布示意图^[40]。图 26 上半部分表明了不同来源的光(光梳 1、2、LO 和四波混频梳)的频率分布,其

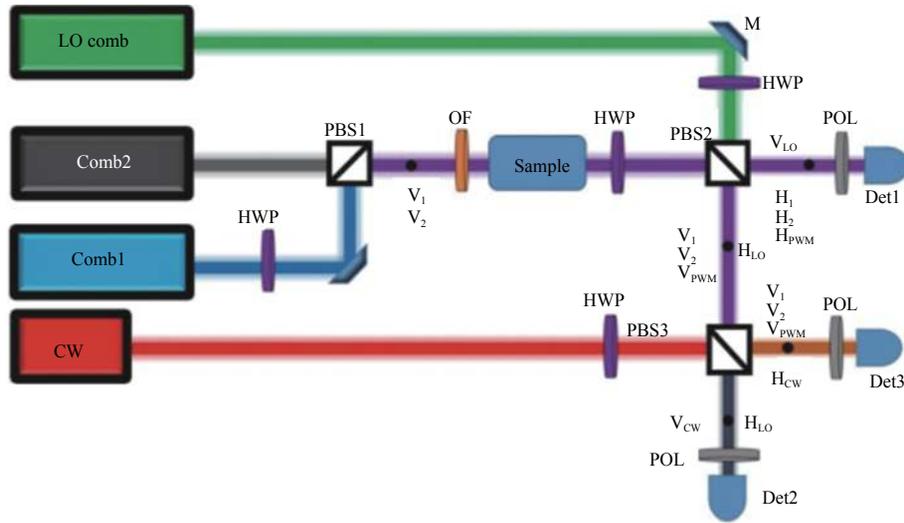


图 25 三光梳二维相干光谱方案图

Fig. 25 Tri-comb two-dimensional coherent spectrum scheme diagram

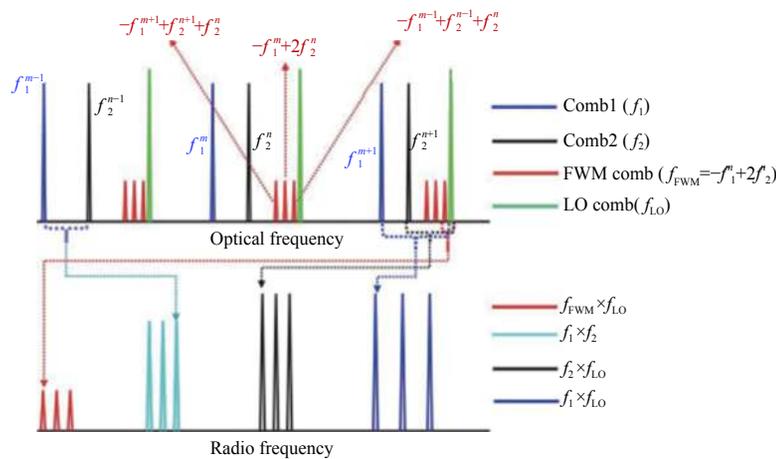


图 26 光频域和射频域频率分布图

Fig. 26 Frequency distribution diagram of optical frequency domain and RF domain

中每组 FWM 脉冲序列的重复频率都是光梳 1 和 2 之间的重复频率差, 且每个 FWM 序列之间的重复频率恰好等于 LO 梳的重复频率。图 26 下半部分表明了如何在射频域中是将不同频率光信号之间的拍频分离开的。

为了证明 TCS 可以提高采集速度和分辨率, Brad C.Smith 等人进行了实验验证。他们将 TCS 系中的样品设置为 100 °C 下的铷原子蒸汽, 其中包括铷原子天然存在的两种同位素。图 27 是对铷原子不同同位素的 D1 谱线的测量结果^[40], 其中 27(a) 表明了不同同位素的能级图。在该实验中, 光梳 1 和 2 分别被垂直和水平偏振化, 并用中心波长为 794 nm (带宽为 3 nm) 的滤波器进行滤波, 仅

激发 D1。图 27(b) 和 27(c) 分别为 365 ms 和 2 s 持续时间记录的二维光谱, 图 27(d) 是从 (0, -10) 到 (10, 0) THz 的对角线截面图。

2.4 不同方案的特点比较

双光梳光谱测量方法是在傅里叶变换光谱法的基础上发展起来的一种光谱分析方法, 采用的光谱信息获取方式主要有一维信息获取和二维信息获取。其测量方法实现的前提是保证光源的相干性, 从这个前提出发, 国内外的各个研究小组分别提出了不同的实现方案。其主要思路可以分为两类: 一类是使用一个光学谐振腔产生 2 个脉冲光源, 利用其自身的相干性来保证; 另一类是使用多个脉冲光源, 利用严格参考或记

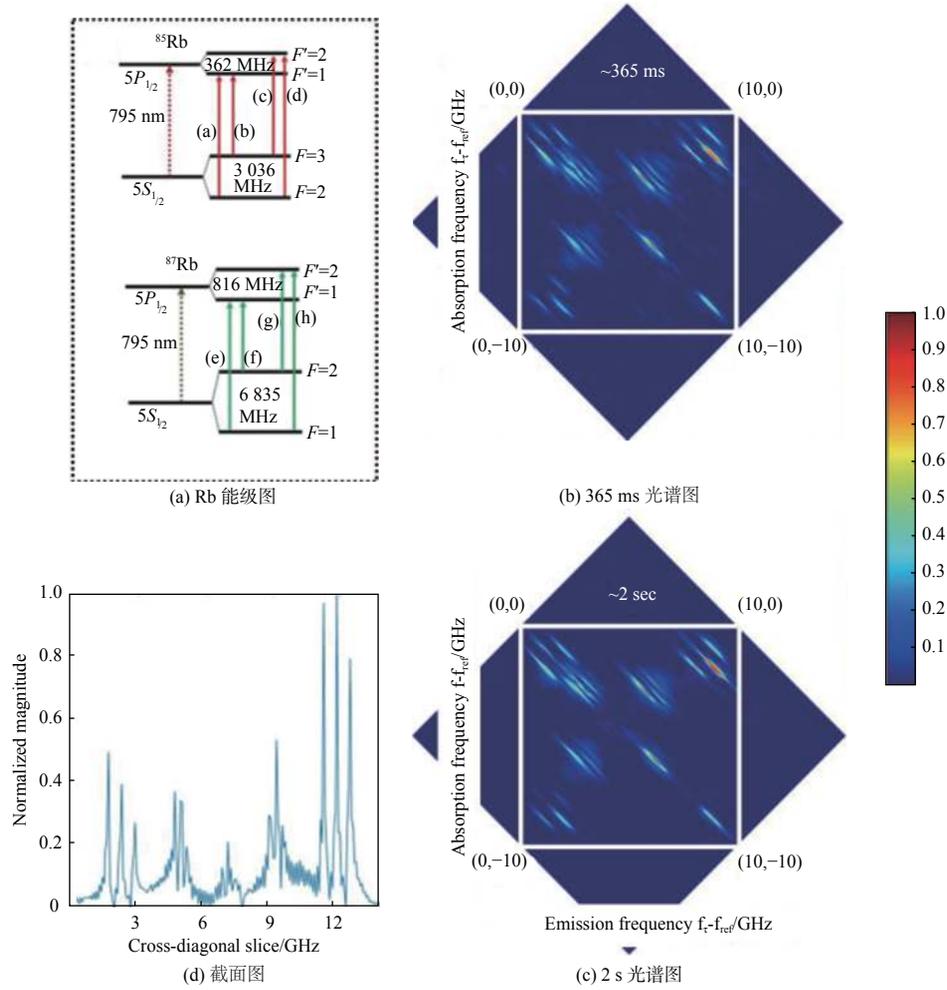


图 27 铷原子不同同位素的谱线测量结果

Fig. 27 Spectral line measurement results of different isotopes of rubidium atom

录补偿的手段进行相干性保证。这两种保证方法各有特点,单谐振腔的优点在于不需要额外的参考装置或者用于记录各路输出脉冲光的漂移量的装置就能实现相干光谱测量,同时光源数量少,容易实现集成化和小型化,有助于实现从实验室到商用仪器的转变。随着微腔光梳技术的发展和进步,这种设计方案也得到了极大的发展,同时微腔光梳的体积相比于普通光纤飞秒激光器又进一步的缩小,可以在同一个仪器中集成多台微腔光梳,从而实现宽带高重频高分辨率的设计方案。使用多脉冲光源通过精密参考方式进行双光梳光谱测量的方案可以得到精确的重频差设置和高光谱分辨率,但是其需要一套庞大的精密锁定装置,以精确地消除快漂和慢漂。自适应记录漂移补偿方案相比于上述方案在装置

复杂度上得到了降低,但由于其需要进行混频操作,在实时性方面受到了一定限制。偏置频率锁定方案和上述两种相比,增加了光频链接锁定的部分,在相干性满足基本需求的同时分辨率受到了一定限制,是一种相对较容易实现的方案。二维双光梳测量方案的优点在于可以感知到普通双光梳光谱分析方案中无法获取到的二维信息,但其引入了机械移动部件,相当于引入了傅里叶变换光谱仪中的机械移动部分,不能同时满足高测量速度和高分辨率要求。3 梳测量方案则解决了这个问题,但是大大增加了光路方面的调整难度和精度要求,在现场测量方面受到一定限制。

本文提到的各小组设计方案的指标对比如表 1 所示。

表 1 各实验小组采用方案指标对比

Table 1 Comparison table of scheme indicators adopted by each experimental group

采用方案类型	光谱分辨率	信噪比/dB	光谱宽度	参考文献
扫频调谐型	0.5 GHz	350(2 500 s)	8 THz	[26]
双偏振型	5 MHz	50(200 ns)	1.5 THz	[27]
双波长型	188 MHz	100(166 ms)	15 nm	[28]
双向输出型	93 GHz	-	40 nm	[29]
并联微腔	319±4 kHz	28(20 μs)	2.3 THz	[30]
并联微腔	10.453 GHz	50(1 s)	1.7 THz*2	[31]
串联微腔	1.4±0.8 GHz	40(500 μs)	51 THz	[32]
马曾调制器	4 MHz	-	25 GHz	[33]
双精密锁定	1.1 kHz	35	3 THz	[34]
偏频锁定光频	0.086 cm ⁻¹	200(62.5 ms)	16.5 GHz	[36]
自适应双梳	1.1 GHz	20(467 μs)	14.5 THz	[14]
自适应双梳	1.09 GHz	350(3 s)	20 nm	[38]

3 结论

飞秒激光频率梳作为一种具有高精度, 高频率稳定度的激光相干光源, 在精密时间计量、精密宽带光谱测量、高精度距离测量、高精度速度监测、激光雷达等方面得到了广泛的应用。近年来, 以异步光取样为基本原理, 在傅里叶变换光谱学上发展起来的双光梳光谱分析技术得到了迅猛的发展, 具有高速、高精度宽带测量的特点, 在气体成分分析, 原子光谱测量等领域得到了广泛的应用。为了实现分析装置从实验室原理样机到实际商业化的仪器, 采用微腔光梳和尽可能减少相干光源是发展的重要方向, 为了实现获取光谱信息的多维度化, 需要增加相干光源, 进而可以获取其他维度方面的信息。

参考文献:

- [1] WEI Zhiyi, ZHANG Wei, HAN Hainian. Research progress and application of optical frequency comb[C]//Proceedings of the 2008 National Annual Conference on Frequency Control Technology. Beijing: Chinese Aerospace Society, Chinese Electronic Components Industry Association, 2008: 108-112.
- 魏志义, 张炜, 韩海年. 光学频率梳的研究进展和应用[C]//2008年全国频率控制技术年会论文集. 北京: 中国宇航学会, 中国电子元件行业协会, 2008: 108-112.
- [2] UDEM T, HOLZWARTH R, HÄNSCH T W. Optical frequency metrology[J]. Encyclopedia of Materials Science &

Technology, 2005, 416(6877): 1-5.

- [3] SUN Qing, YANG Yi, MENG Fei, et al. Research on precise measurement method of terahertz frequency based on frequency comb[J]. Acta Optics Sinica, 2016, 36(4): 133-138.
- 孙青, 杨奕, 孟飞, 等. 基于频率梳的太赫兹频率精密测量方法研究[J]. 光学学报, 2016, 36(4): 133-138.
- [4] CHOU C W, HUME D B, ROSEN BAND T, et al. Optical clocks and relativity[J]. Science, 2010, 329(5999): 1630-1633.
- [5] HOLZWARTH R, UDEM T, HAENSCH T, et al. Optical frequency synthesizer for precision spectroscopy[J]. Phys. Rev. Lett., 2000, 85(11): 2264-2267.
- [6] CODDINGTON I, SWANN W C, NENADOVIC L, et al. Rapid and precise absolute distance measurements at long range[J]. Nature Photonics, 2009, 3(6): 351-356.
- [7] MANCE J G, La LONE B M, DOLAN D H, et al. Time-stretched photonic Doppler velocimetry[J]. Optics Express, 2019, 27(18): 25022-25030.
- [8] NEWBURY N R, CODDINGTON I, SWANN W C. Optical frequency comb-based coherent LIDAR, US: 8558993[P]. 2013-10-15.
- [9] ADLER F, MASŁOWSKI P, FOLTYNOWICZ A, et al. Mid-infrared Fourier transform spectroscopy with a broadband frequency comb[J]. Optics Express, 2010, 18(21): 21861.
- [10] GOHLE C, STEIN B, SCHLIESSER A, et al. Frequency comb vernier spectroscopy for broadband, high-resolution, high-sensitivity absorption and dispersion

- spectra[J]. *Physical Review Letters*, 2007, 99(26): 263902-1-4.
- [11] CODDINGTON I, NEWBURY N, SWANN W. Dual-comb spectroscopy[J]. *Optica*, 2016, 3(4): 414.
- [12] SCHILLER S. Spectrometry with frequency combs[J]. *Optics Letters*, 2002, 27(9): 766-768.
- [13] KEILMANN F, GOHLE C, HOLZWARTH R. Time-domain mid-infrared frequency-comb spectrometer[J]. *Optics Letters*, 2004, 29(13): 1542-1544.
- [14] IDEGUCHI T, POISSON A, GUELACHVILI G, et al. Adaptive real-time dual-comb spectroscopy[J]. *Nature Communications*, 2014(5): 3375.
- [15] ROY J, DESCHÊNES J D, POTVIN S, et al. Continuous real-time correction and averaging for frequency comb interferometry[J]. *Optics Express*, 2012, 20(20): 21932-21939.
- [16] CODDINGTON I, SWANN W C, NEWBURY N R. Coherent dual-comb spectroscopy at high signal-to-noise ratio[J]. *Physical Review A*, 2010, 82(4): 43817.
- [17] ZHAO Junjie, LIU Di, QIAO Jianxiang, et al. Analysis on the dynamic detection technology of automobile exhaust components[J]. *Internal Combustion Engine and Parts*, 2019, 280(4): 137-138.
赵俊杰, 刘迪, 乔建翔, 等. 关于汽车尾气成分动态检测技术的分析[J]. *内燃机与配件*, 2019, 280(4): 137-138.
- [18] QI Sen. Research on components analysis and treatment methods of exhaust gas during heating and dismantling waste printed circuit boards[D]. Hefei: Hefei University of Technology, 2015.
齐森. 废弃印刷电路板热拆解过程尾气成分分析及处理方法研究[D]. 合肥: 合肥工业大学, 2015.
- [19] ZHANG Wenqiang. Malodorous detection method and technology research[D]. Tianjin: Hebei University of Technology, 2014.
张文强. 恶臭气体的检测方法与技术研究[D]. 天津: 河北工业大学, 2014.
- [20] HE Qixin. Research on gas detection system based on infrared laser absorption spectroscopy technique[D]. Changchun: Jilin University, 2018.
何启欣. 基于红外激光吸收光谱技术的气体检测系统研究[D]. 长春: 吉林大学, 2018.
- [21] LIU Wenqing, CUI Zhicheng, LIU Jianguo, et al. Spectroscopy and chemical technology for atmospheric trace gas measurement[J]. *Chinese Journal of Quantum Electronics*, 2004, 21(2): 202-210.
- 刘文清, 崔志成, 刘建国, 等. 大气痕量气体测量的光谱学和化学技术[J]. *量子电子学报*, 2004, 21(2): 202-210.
- [22] TAKURO I. Dual-comb spectroscopy[J]. *Optics & Photonics News*, 2017, 28(1): 32.
- [23] LU Qiao, SHI Lei, MAO Qinghe. Research advances in dual-comb spectroscopy[J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2018, 45(4): 7-28.
路桥, 时雷, 毛庆和. 双光梳光谱技术研究进展[J]. *中国激光*, 2018, 45(4): 7-28.
- [24] CODDINGTON I, SWANN W C, NEWBURY N R. Coherent linear optical sampling at 15 bits of resolution[J]. *Optics Letters*, 2009, 34(14): 2153-2155.
- [25] ZHANG Hongfei, SU Bo, HE Jingsuo, et al. Ultra-fast terahertz time domain spectroscopy system[J]. *Journal of Applied Optics*, 2019, 40(2): 229-232.
张宏飞, 苏波, 何敬锁, 等. 超快太赫兹时域光谱系统[J]. *应用光学*, 2019, 40(2): 229-232.
- [26] LEE K, LEE J, JANG Y S, et al. Fourier-transform spectroscopy using an Er-doped fiber femtosecond laser by sweeping the pulse repetition rate[J]. *Scientific Reports*, 2015(5): 15726.
- [27] CHEN J, NITTA K, ZHAO X, et al. Comb-mode-resolved adaptive sampling terahertz dual-comb spectroscopy with a free-running single-cavity fiber laser[EB/OL]. [2019-08-03]. <https://arxiv.org/abs/1908.01764>.
- [28] ZHAO X, HU G Q, ZHAO B F, et al. Picometer-resolution dual-comb spectroscopy with a free-running fiber laser[J]. *Optics Express*, 2016, 24(19): 21833-21845.
- [29] IDEGUCHI T, NAKAMURA T, KOBAYASHI Y, et al. Kerr-lens mode-locked bidirectional dual-comb ring laser for broadband dual-comb spectroscopy[J]. *Optica*, 2016, 3(7): 748-753.
- [30] LIN T, DUTT A, JOSHI C, et al. Broadband ultrahigh-resolution chip-scale scanning soliton dual-comb spectroscopy[EB/OL]. [2020-01-13]. <https://arxiv.org/abs/2001.00869>.
- [31] SHAMS-ANSARI A, YU M J, CHEN Z J, et al. An integrated lithium-niobate electro-optic platform for spectrally tailored dual-comb spectroscopy[EB/OL]. [2020-03-11]. <https://arxiv.org/abs/2003.04533>.
- [32] DUTT A, JOSHI C, JI X C, et al. On-chip dual-comb source for spectroscopy[J]. *Science Advances*, 2018, 4(3): e1701858.
- [33] DENIEL L, WECKENMANN E, GALACHO D P, et al.

- Frequency-tuning dual-comb spectroscopy using silicon Mach-Zehnder modulators[J]. *Optics Express*, 2020, 28(8): 10888-10898.
- [34] CODDINGTON I, SWANN W C, NEWBURY N R. Coherent, multi-heterodyne spectroscopy using stabilized optical frequency combs[J]. *Physical Review Letters*, 2008, 100(1): 013902.
- [35] COBURN S, ALDEN C B, WRIGHT R, et al. Regional trace-gas source attribution using a field-deployed dual frequency comb spectrometer[J]. *Optica*, 2018, 5(4): 320.
- [36] ZHANG Weipeng, YANG Honglei, CHEN Xinyi, et al. Optical frequency linked dual-comb absorption spectrum measurement[J]. *Acta Phys. Sin.*, 2018, 67(9): 65-74.
张伟鹏, 杨宏雷, 陈馨怡, 等. 光频链接的双光梳气体吸收光谱测量[J]. *物理学报*, 2018, 67(9): 65-74.
- [37] GIACCARI P, DESCHÊNES J D, SAUCIER P, et al. Active Fourier-transform spectroscopy combining the direct RF beating of two fiber-based mode-locked lasers with a novel referencing method[J]. *Optics Express*, 2008, 16(6): 4347-4365.
- [38] YANG Li, SHEN Xuling, YANG Kangwen, et al. Analysis and realization of adaptive dual-comb spectroscopy[J]. *Acta Optics Sinica*, 2018, 38(5): 156-162.
杨力, 沈旭玲, 杨康文, 等. 自适应双光梳光谱原理分析与实现[J]. *光学学报*, 2018, 38(5): 156-162.
- [39] LOMSADZE B, CUNDIFF S T. Multi-heterodyne two dimensional coherent spectroscopy using frequency combs[J]. *Scientific Reports*, 2017, 7(1): 14018.
- [40] LOMSADZE B, SMITH B C, CUNDIFF S T. Tri-comb spectroscopy[J]. *Nature Photonics*, 2018, 12(11): 676-680.