

# 中国科学技术大学

# 博士学位论文



## 基于飞秒激光时域拉伸的 超快光谱学技术

作者姓名： 章振  
学科专业： 空间物理  
导师姓名： 夏海云 教授 窦贤康 教授  
完成时间： 二〇二一年五月



University of Science and Technology of China  
A dissertation for doctor's degree



# Ultrafast spectroscopy based on femtosecond time-stretch technique

Author: Zhen Zhang

Speciality: Space Physics

Supervisors: Prof. Haiyun Xia, Prof. Xiankang Dou

Finished time: May, 2021



## 中国科学技术大学学位论文原创性声明

本人声明所呈交的学位论文,是本人在导师指导下进行研究工作所取得的成果。除已特别加以标注和致谢的地方外,论文中不包含任何他人已经发表或撰写过的研究成果。与我一同工作的同志对本研究所做的贡献均已在论文中作了明确的说明。

作者签名: 章振

签字日期: 2021.5.25

## 中国科学技术大学学位论文授权使用声明

作为申请学位的条件之一,学位论文著作权拥有者授权中国科学技术大学拥有学位论文的部分使用权,即:学校有权按有关规定向国家有关部门或机构送交论文的复印件和电子版,允许论文被查阅和借阅,可以将学位论文编入《中国学位论文全文数据库》等有关数据库进行检索,可以采用影印、缩印或扫描等复制手段保存、汇编学位论文。本人提交的电子文档的内容和纸质论文的内容相一致。

保密的学位论文在解密后也遵守此规定。

公开 保密(\_\_\_\_年)

作者签名: 章振

导师签名: 章振

签字日期: 2021.5.25

签字日期: 2021.5.25



## 摘 要

超快光谱分析技术是理解物质组成、分子演化和动力学的重要工具，涉及领域包括物理、化学和生物医学等基础科学，以及气体示踪和泄漏预警等应用科学。随着飞秒激光的出现，光谱学的探测速度不断被刷新。飞秒时域拉伸技术将记录的瞬时现象展开到时域，降低了超快探测中的采样速度要求，在超快成像、测距、单发脉冲光谱探测、非重复和罕见信号探测等领域发挥了重要作用。不仅如此，飞秒光频梳光谱学技术展现了宽光谱和单个梳齿分辨的特点，为高分辨光谱分析带来了新的机遇。

本文结合了双频梳光谱技术和时域拉伸技术，提出超快和高精度光谱分析的方法。论文的主要工作如下：

1. 回顾了双频梳光谱学，重点介绍了单腔双频梳光谱学的发展和应用；回顾了飞秒时域拉伸技术在超快光谱学领域的应用。分析了双频梳光谱学的优点为拥有光频梳至电频梳转换的能力，缺点为无法单发脉冲探测；飞秒时域拉伸光谱学的优点为拥有实时探测的能力，缺点为无法实现单个梳齿分辨。
2. 基于单腔双频梳光谱学思想和时域拉伸技术，提出飞秒非平衡时域拉伸光谱学。该方法利用单个自由运行的锁模飞秒激光器，简化了双频梳系统，不需要复杂的相位锁定回路。在光纤 Mach-Zehnder 干涉仪的两臂中引入不同的色散量，使不同时域拉伸的两个脉冲发生干涉。不仅实现了光谱信息从光频梳至电频梳的转换，而且拥有单发脉冲实时探测的能力。通过 Optiwave 软件建模分析和实时光谱分析实验，验证了理论的正确性。实验中单次光谱的探测速度和分辨率分别为 250  $\mu\text{s}$  和 540 MHz。
3. 利用微波光子学中的光学调制技术，将非平衡时域拉伸光谱学中宽带电谱调制至光谱进行分析，降低了数据采集和处理的困难。并形成了光谱至电谱、电谱再至光谱的映射关系。我们根据这种映射关系提出一种基于宽光谱映射的光谱分析技术，可将难以分辨的光谱映射至高分辨区域进行分析。
4. 光频梳不仅可以作为宽谱探测光源，也可以作为频率标准。提出光频梳参考的单频光频率锁定和扫描技术，为单频光与光频梳的多外差探测提供程序化和稳定的扫描光源，实现了低带宽的多外差光谱学，并用于超快气体光谱分析。
5. 展望了一种基于时域拉伸和频率选通的光谱扫描方法，可以运用于大气光谱遥感，解决传统气体探测激光雷达在频域中进行光谱扫描时速度慢和不稳定的问题。

**关键词：**飞秒激光，时域拉伸，光频梳，超快探测，光学调制，光谱映射，频率锁定和扫描，多外差探测

## ABSTRACT

Ultrafast spectroscopy is a crucial tool for understanding the substance composition, molecular evolution, and kinetics in not only fundamental sciences of physics, chemistry, and biomedicine, but also applied domains of gas tracing and leakage warning. The emergence of femtosecond lasers has continuously refreshed the detection speed of spectroscopy because of its ultra-fast repetition frequency and ultra-short pulse duration in the time domain. The femtosecond time-stretch technique mapping the recorded transient phenomena into the time domain, reducing the sampling speed requirement in ultra-fast detection. It plays an important role in the fields of ultra-fast imaging, ranging, single-shot pulse spectrum detection, non-repetitive and rare signal detection, etc. Not only that, the femtosecond laser in the frequency domain exhibits the characteristics of a broad spectrum and equally spaced frequency combs, which brings new opportunities for high-resolution spectral analysis.

This thesis combines dual-comb spectroscopy and time-stretch techniques to propose ultra-fast and high-precision spectral analysis methods. The main work of the thesis is as follows:

1. The optical frequency comb spectroscopy and time-stretch technique are reviewed, especially the development and application of dual-comb spectroscopy, and the application of time-stretch technique in the field of ultrafast spectroscopy. Dual-comb spectroscopy, realized by two optical frequency combs with slightly different comb spacing, has the ability of spectrum down-conversion from optical frequency comb to radio-frequency comb, while it cannot analysis the spectrum with a single pulse. Spectroscopy based on femtosecond time-stretch technique has the capability of real-time detection with a single pulse, but cannot realize comb-resolved analysis.
2. By combining the idea of single-cavity dual-frequency comb spectroscopy and time-stretch technique, a femtosecond imbalanced time-stretch spectroscopy is proposed. A single free-running mode-locked femtosecond laser is utilized, which simplifies the dual-comb system without the requirement of complex phase-locked loops. The dispersive elements with different dispersion coefficients are introduced into the two arms of a fiber Mach-Zehnder interferometer, so that the two pulses with different stretched length are

interfered in the interferometer. This spectroscopy not only realizes the mapping of spectral information from optical frequency comb to radio-frequency comb, but also has the ability of single-shot detection. The concept is verified by both modeling analysis in Optiwave software and experiment. A detection speed of 250  $\mu$ s and a spectral resolution of 540 MHz are obtained in experiment.

3. The wideband radio-frequency spectrum in the femtosecond imbalanced time-stretch spectroscopy is modulated to the sideband of a carrier wave, reducing difficulty of data acquisition and processing. And forming a mapping relationship from optical spectrum to electrical spectrum, and then to optical spectrum. A spectral analysis technique based on wide-spectrum mapping is proposed, which can map the spectrum in low-resolution region to high-resolution region.
4. Considering the requirement of wide acquisition bandwidth in common multi-heterodyne detection of single-frequency laser and comb. A comb-referenced optical frequency locking and scanning method is provided, demonstrating a programmed and stable tunable light source. A low-bandwidth multi-heterodyne spectroscopy is demonstrated based on the tunable light source, realizing easy data acquisition, real-time storage, and processing.
5. A frequency scanning method based on time-stretch and frequency gating is proposed, and its application in the field of remote sensing of atmospheric spectrum is prospected.

**Key Words:** Femtosecond laser, time-stretch, optical frequency comb, ultrafast detection, optical modulation, spectral mapping, frequency locking and scanning, multi-heterodyne detection

## 目录

摘 要 .....	I
ABSTRACT .....	III
第一章 绪论.....	1
1.1 飞秒激光的时域和频域性质.....	1
1.2 光频梳的发展和应用.....	4
1.3 光频率梳光谱学的发展.....	6
1.3.1 光频梳光谱技术简介.....	6
1.3.2 单腔双频梳光谱学.....	15
1.3.3 光频梳参考的光谱学.....	17
1.4 飞秒时域拉伸技术的发展.....	20
1.4.1 飞秒时域拉伸技术简介.....	20
1.4.2 时域拉伸超快测距和成像的应用.....	22
1.4.3 时域拉伸超快光谱分析.....	26
1.5 研究意义和论文主要内容.....	28
1.5.1 研究意义.....	28
1.5.2 论文主要内容 .....	29
第二章 基于飞秒非平衡时域拉伸光谱学的超快气体探测.....	30
2.1 时域拉伸后光频梳的时频映射关系.....	30
2.2 非平衡时域拉伸干涉仪.....	31
2.2.1 平衡与非平衡时域拉伸的干涉对比.....	31
2.2.2 基于 Optiwave 光学建模软件的色散参数优化 .....	32
2.2.3 高阶色散对时域拉伸干涉测量的影响 .....	33
2.3 超快气体探测实验.....	34
2.3.1 实验设计.....	34
2.3.2 超快探测结果 .....	37
2.3.3 光谱压缩系数和分辨率.....	40
2.4 小结.....	41
第三章 基于光谱映射的宽光谱分析技术.....	42
3.1 传统光栅光谱仪发展的瓶颈.....	42
3.2 超快气体探测中的数据处理问题.....	43
3.3 微波光子学信号处理技术.....	43
3.3.1 微波光子学简介 .....	43

3.3.2 微波测量领域的应用.....	44
3.4 宽带啁啾微波信号的光学调制.....	46
3.4.1 宽带啁啾微波信号的产生.....	46
3.4.2 基于 Optiwave 软件的光学调制仿真.....	49
3.5 基于光谱映射的宽光谱分析实验.....	51
3.5.1 实验设计.....	51
3.5.2 边带光谱分析.....	52
3.6 基于光谱映射的光谱仪设计.....	54
3.7 小结.....	55
第四章 基于频率扫描和锁定的低带宽多外差光谱学.....	56
4.1 多外差光频梳光谱学简介.....	56
4.2 单频光与光频梳的多外差探测.....	56
4.2.1 单频光与光频梳多外差干涉原理.....	56
4.2.2 多外差探测的光谱学应用.....	58
4.2.3 低带宽多外差探测的实现方式.....	60
4.3 光频梳参考的频率锁定和扫描技术.....	61
4.3.1 单频光的频率锁定和扫描.....	61
4.3.2 频率锁定效果和扫描间隔计算.....	62
4.4 气体光谱的低带宽多外差探测.....	64
4.4.1 实验设计.....	64
4.4.2 梳齿间拍频的抑制.....	66
4.4.3 宽谱扫描模式.....	67
4.4.3 精密分析模式.....	68
4.5 小结.....	69
第五章 时域拉伸在大气光谱分析中的应用展望.....	70
5.1 气体探测激光雷达中的频率扫描和锁定.....	70
5.2 时域拉伸和频率选通.....	71
5.3 基于时域拉伸和频率选通的气体探测激光雷达.....	73
5.4 小结.....	73
第六章 总结.....	75
参 考 文 献.....	77
在读期间发表的学术论文与取得的其他研究成果.....	98
致 谢.....	101

# 第一章 绪论

## 1.1 飞秒激光的时域和频域性质

飞秒激光因具有超短脉冲宽度、高重复频率、宽光谱、超高峰值功率等特点,使得其在多领域得到了广泛的应用,如等离子体物理学、飞秒化学、非线性光学、光通信、超精细加工和超快探测等。飞秒激光的产生可以追溯到 1981 年 J. A. Valdmanis 等人采用基于染料 Rhodamine 6-G 的碰撞脉冲锁模技术,实现了脉冲宽度为 90 fs 的飞秒脉冲<sup>[1]</sup>, 1985 年 J. A. Valdmanis 等人通过腔内色散补偿将出射脉冲宽度缩短至 27 fs<sup>[2]</sup>。

飞秒激光在其诞生之后一直受到科学界的关注,众多有关飞秒激光的科学研究获得了诺贝尔奖。1999 年诺贝尔化学奖授予了来自加州理工学院的 Ahmed H. Zewail,以表彰他使用超短脉冲激光观测化学反应的方法,可观测化学反应的时间尺度缩减至飞秒量级<sup>[3]</sup>,他也被誉为“飞秒化学之父”。2005 年诺贝尔物理学奖授予了美国天体物理联合研究所(JILA)的 John L. Hall 和德国马克斯普朗克研究所(MPI)的 Theodor W. Hänsch<sup>[4,5]</sup>,以表彰他们在激光精密光谱学领域的成就,包括光学频率梳技术。光频梳在之后的十多年中获得了极大的发展,为物理学、化学和生物学等领域提供了更准确的时间参考。2018 年诺贝尔物理学奖授予了罗彻斯特大学的 Gérard Mourou 和 Donna Strickland<sup>[6]</sup>,以表彰他们提出的啁啾脉冲放大技术,该技术使得超短脉冲激光能够获得更高的能量,为后续超短超强激光领域的发展铺平了道路<sup>[7,8]</sup>。

### 1.1.1 时域和频域表达式

锁模激光器的输出是一串非常规则的超短脉冲,脉冲之间的间隔通常比脉冲持续时间高 6-7 个数量级。当在激光腔的所有激光纵模之间建立固定的相位关系时(即锁模)<sup>[9]</sup>,它们的相干相加导致了超短脉冲的产生。从傅立叶理论可以清楚地看出,超短脉冲由一个很宽的频率范围来表示,其范围与脉冲宽度的倒数成正比。皮秒锁模激光器出射的光谱范围较窄,限制了其在激光光谱学领域的发展,而更宽的光谱范围,也就是更多的激光纵模进行叠加能够产生更短的飞秒激光脉冲。

激光脉冲在激光腔内传播并通过增益介质时,载波以相速度传播,而包络以群速度前进。一般来说,相速度和群速度是不同的。相速度为  $v_p = c/n$ ,群速度为  $v_g = c/(n + \omega \partial n / \partial \omega)$ ,其中  $c$  为光速,  $n$  为介质折射率,  $\omega$  为激光角频率。对于单个脉冲,其角频率为正弦光载波  $\omega_c$ ,幅度表示为包络函数  $e(t)$ ,则其电场

可以表示  $E(t) = e(t)\exp(i(\omega_c t + \phi_0))$ ，其中  $t$  为脉冲传播时间， $\phi_0$  为初相位， $i$  指示虚部。激光腔内的相速度和群速度的差异，会导致光载波和包络峰值之间的相位发生变化<sup>[10,11]</sup>。设  $\Delta\phi$  表示载波包络相位从一个脉冲到另一个脉冲的变化量。在包括这种脉冲到脉冲的相移之后，一系列脉冲的电场为：

$$E(t) = \sum_m e_m(t - mT) \exp(i(\omega_c t + \phi_0 - m\omega_c T + m\Delta\phi)) \quad (1.1)$$

其中  $m$  为脉冲序号， $T$  为脉冲重复时间。对电场表达式进行傅里叶变换，可以得到角频率为：

$$\omega_n = n \frac{2\pi}{T} + \frac{\Delta\phi}{T} \quad (1.2)$$

其中  $n$  为频率分量的序号，通常是一个  $10^6$  数量级的数。因此，锁模飞秒激光的时域脉冲可以表示为如图 1(a)所示的存在载波包络相移的脉冲序列，光谱可以表示为图 1(b)中的频率梳齿，其频率分量为  $f_n = nf_{rep} + f_{ceo}$ ，其中  $f_{rep}$  为脉冲重复频率，也是频率梳齿间隔，为脉冲时间的倒数， $f_{ceo} = \Delta\phi f_{rep} / 2\pi$  为载波包络偏移频率。

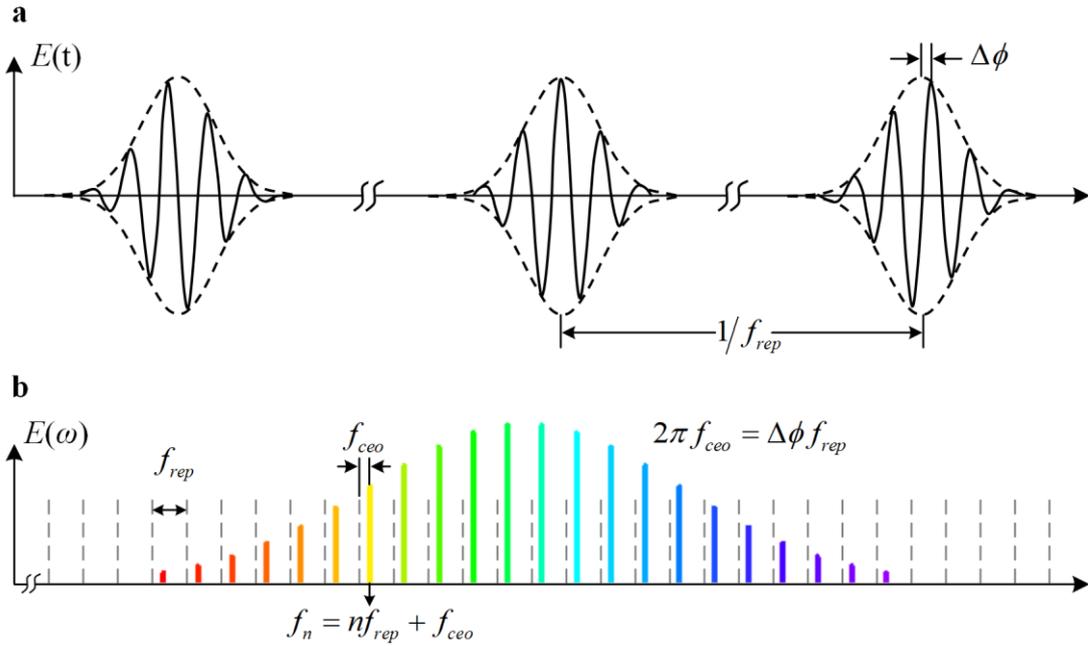


图 1.1 (a) 时域中锁模激光器的输出。激光产生周期为  $T$  且重复频率为  $f_{rep}$  的超短脉冲。载波包络相移  $\Delta\phi$  是载波电场的峰值相对于包络的峰值从一个脉冲到下一个脉冲的相位偏移，这由激光腔中的群速度和相速度之间的差异导致的。(b) 频域中锁模激光器的输出。周期性的脉冲序列产生离散频率分量的梳齿，其光谱范围与脉冲的持续时间成反比。载波包络相移使得光学频率梳齿与重复频率的整数倍产生均匀偏移，这种均匀的偏移频率  $f_{ceo}$  与  $\Delta\phi$  成正比。

## 1.1.2 飞秒激光的频率锁定

锁模飞秒激光器的脉冲重复频率和载波包络偏移频率并不固定，而是受环境影响随着激光腔变化的。对于自由运行的飞秒激光器，脉冲包络和光载波之间没有锁定机制，因此它们的相对相位在连续脉冲之间会发生波动。并且重复频率也会随着激光腔长度的波动而波动，因此无法知道每个梳齿的准确频率。

在不同的研究领域，对于锁模飞秒激光的时域和频域性质的关注侧重点不同。在研究等离子体物理和超精细加工时<sup>[11-13]</sup>，研究者们更加关注超短脉冲的时域特性，如脉冲持续时间和峰值功率。这些特性使得飞秒激光在与物质相互作用时出现新的现象，如等离子体的超快产生和材料的冷加工<sup>[15-18]</sup>。基于掺钛蓝宝石的锁模激光器为这些领域提供了具有优异性能的飞秒激光，包括高重频的飞秒激光振荡器<sup>[19]</sup>和低重频高峰值功率的飞秒激光放大器<sup>[20]</sup>。对于钛宝石激光器，锁模机制是钛宝石晶体的克尔非线性，它也是激光器的增益介质。克尔非线性对晶体折射率的贡献取决于晶体中光场的强度，对于在腔中传播的高斯光束，光束的高强度中心在穿过晶体时，中心的折射率将比光束的周围区更大，这与光束通过凸透镜聚焦是一样的<sup>[21]</sup>。由于激光器可以通过自聚焦并与泵浦光束最大程度重叠，因此它会自锁模并产生持续时间约为 10 fs 的超短脉冲<sup>[22]</sup>。脉冲持续时间短是由于克尔非线性在飞秒的极快时间尺度上工作，允许在大的光学带宽上完成锁模。对于产生超高能量的超短脉冲，其中重要手段是脉冲啁啾放大技术。该技术最初是由 Gérard Mourou 和 Donna Strickland 提出，借鉴了雷达中信号放大的理论并用于激光领域，避免了高峰值功率限制了放大器的损坏<sup>[6]</sup>。超短脉冲高能量激光也因此可以在各种基于啁啾脉冲放大技术的装置中产生，例如光学参量啁啾脉冲放大器<sup>[23]</sup>和再生放大器<sup>[24]</sup>。

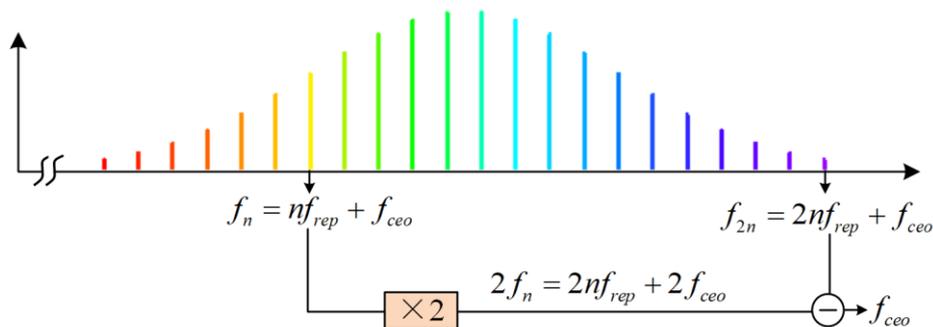


图 1.2 载波包络偏移频率的探测。频梳齿  $f_n$  经过倍频后产生  $2f_n$  的光频梳， $2f_n$  与  $f_{2n}$  拍频产生  $f_{ceo}$  信号，这种方法被称为自相关方法或者  $f-2f$  干涉方法。

在激光光谱学和时间频率测量领域，科学家们更关注锁模飞秒激光器的频域信息，包括光谱范围、脉冲重复频率和载波包络偏移频率。使用飞秒激光进行精

密光谱分析的前提是脉冲重复频率和载波包络偏移频率的稳定, 稳定这两个频率的关键在于如何测量到频率。锁模飞秒激光器的频率梳齿间隔与激光腔的模式频率相等, 并且可以直接由相邻梳齿的拍频得到。将重频信号与原子钟产生的频率标准进行外差拍频, 差频信号用于反馈控制激光腔中的压电陶瓷, 以调整激光腔长即调整重复频率, 便实现了重复频率到光学标准的稳定<sup>[11,25]</sup>。

载波包络偏移频率的探测需要使用光谱范围超过一个光学倍频程的频率梳。2000 年左右, 德国马普量子光学所的 Theodor W. Hänsch 研究组<sup>[26]</sup>和美国天体物理联合研究所 John L. Hall 研究组<sup>[10]</sup>提出锁模激光器自参考方案测量  $f_{ceo}$  的方案。锁模激光器自参考相位稳定的示意图见图 1.2, 频率为  $f_{2n} = 2nf_{rep} + f_{ceo}$  的梳齿与梳齿  $f_n$  的二次谐波  $2f_n = 2nf_{rep} + 2f_{ceo}$  耦合至光电探测器中。探测器产生的信号是两个频率的差频, 正好是载波包络偏移频率。  $f_{ceo}$  被测量后, 它就可以通过锁相到微波参考来稳定。重复频率  $f_{rep}$  和偏移频率  $f_{ceo}$  都锁定后的光频梳的频率稳定度可以达到与参考源相当的水平。

## 1.2 光频梳的发展和應用

飞秒激光的时域和频域性质决定了其在超快和高精度探测领域能够发挥重要作用, 最初频率梳是为了解决测量和计算光频的问题而发展起来的。但在这之前, 人们似乎没有意识到光频梳能够将电磁波中光频和电频形成直接的相干连接。这种连接能够带来整个电磁波领域的革新。如图 1.3 所示<sup>[27]</sup>, 大约在 1887 年 Heinrich Hertz 首次产生并探测到人工无线电波<sup>[28,29]</sup>, 1960 年 Theodore Maiman 制造了第一台激光器<sup>[30]</sup>, 电频域和光频梳的相干源都已经通过各自的振荡器产生。但在之后的几十年, 无线电波与光学的发展在很大成都程度上依然是相互隔离的。虽然光波可以被无线电调制, 同样电信号也可以在光波中解调产生, 但这两种频率相差约  $10^5$  级别的电磁波并不存在简单的相干连接。1970 年至 1990 年间, 研究者们一直想将无线电振荡器的频率依次升高, 建立无线电和光学之间的桥梁, 但这种方法必然不会得到广泛应用<sup>[31-33]</sup>。

直到 2000 年, 随着飞秒激光技术、非线性光学、电学合成和精密频率计量的发展, 不仅是锁模激光器的重复频率得到锁定, 而且载波包络偏移频率也在飞秒激光的光谱被扩展至一个倍频程后得到并锁定。这种产生倍频程后的频率锁定方式被称为自参考技术<sup>[10]</sup>, 完成了光频梳梳齿的绝对频率被锁定至射频参考, 形成了光频与电频的相干连接。之后, 这种光频与电频的连接被扩展至电磁波各个波段, 并被用于光钟、光谱学、集成光子学和微波信号产生等广泛的领域。

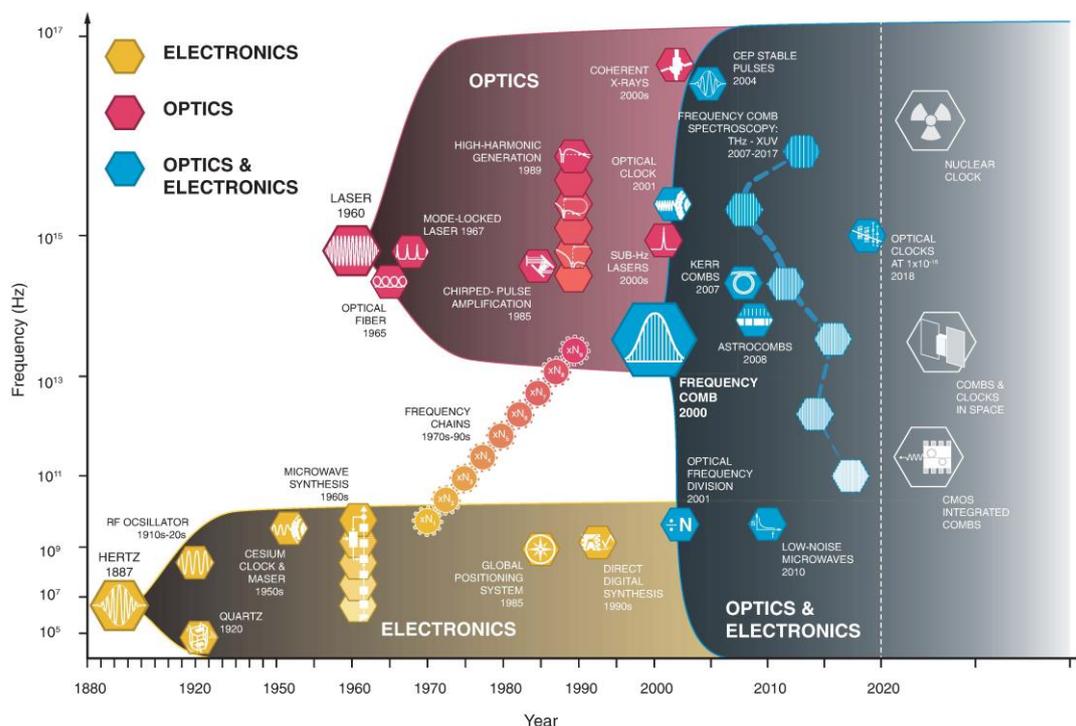


图 1.3 相干电磁波谱及其发展。大约在 1887 年，Heinrich Hertz 产生并探测到了人工无线电波<sup>[28,29]</sup>。20 世纪 50 年代引入的射频激光器和原子钟带来了电磁波技术的革新。铯原子钟不仅定义了秒，而且巩固了国际单位制<sup>[34]</sup>。随着 1960 年激光的引入，第一个相干光学电磁波源出现了，这与电学频率差距约为  $10^5$  倍。2000 年，锁定的光学频率梳以简单实用的方式将无线电和光学领域相连接。它开辟了许多新的可能性，如光学原子钟、超低噪声微波源、超短脉冲的载波包络相位控制以及从太赫兹到极紫外范围的光谱学技术<sup>[27]</sup>。

光频梳最令人惊讶的发展之一是它们所开发的应用的丰富性，以及它们与其他技术的多样化结合（如图 1.4 所示的光频梳进化树）。近二十年间，稳定的光频梳首先在频率空间中提供了直接连接微波频率和光频率的标尺<sup>[26,35,36]</sup>，诞生了比微波光子钟更加稳定的光钟。基于光钟的  $10^{-18}$  量级频率稳定度的测量<sup>[37-39]</sup>可用于分辨地球重力场中相当于 1 厘米高度的空间波动，为大地测量学、水文学、地质学和气候变化研究提供了新的工具。目前来自美国天体物理研究所的 Jun Ye 课题组已经在费米简并三维光学晶格时钟中实现  $10^{-19}$  量级频率精度的测量<sup>[40]</sup>。

在与天文学领域的结合中，光频梳提供了可靠的天文学摄谱仪校准工具，帮助搜索类似地球的系外行星<sup>[41-43]</sup>。

在与光谱学领域的结合中，光频梳提供了宽光谱和频率稳定的光源，提升了传统光谱学分析方法的应用范围和分辨能力。研究者们也开发了更有应用前景的双频梳光谱学，实现了宽谱光频梳直接至电频梳的转换<sup>[44]</sup>。结合大气探测技术，频梳光谱学可以被用于大气痕量气体分析和温室气体监测<sup>[45,46]</sup>。结合光通信、集

成光子和微纳腔等技术，光频梳光谱学不断向更高集成度和稳定度的方向发展，覆盖从极紫外到远红外和太赫兹的光谱范围<sup>[47]</sup>。

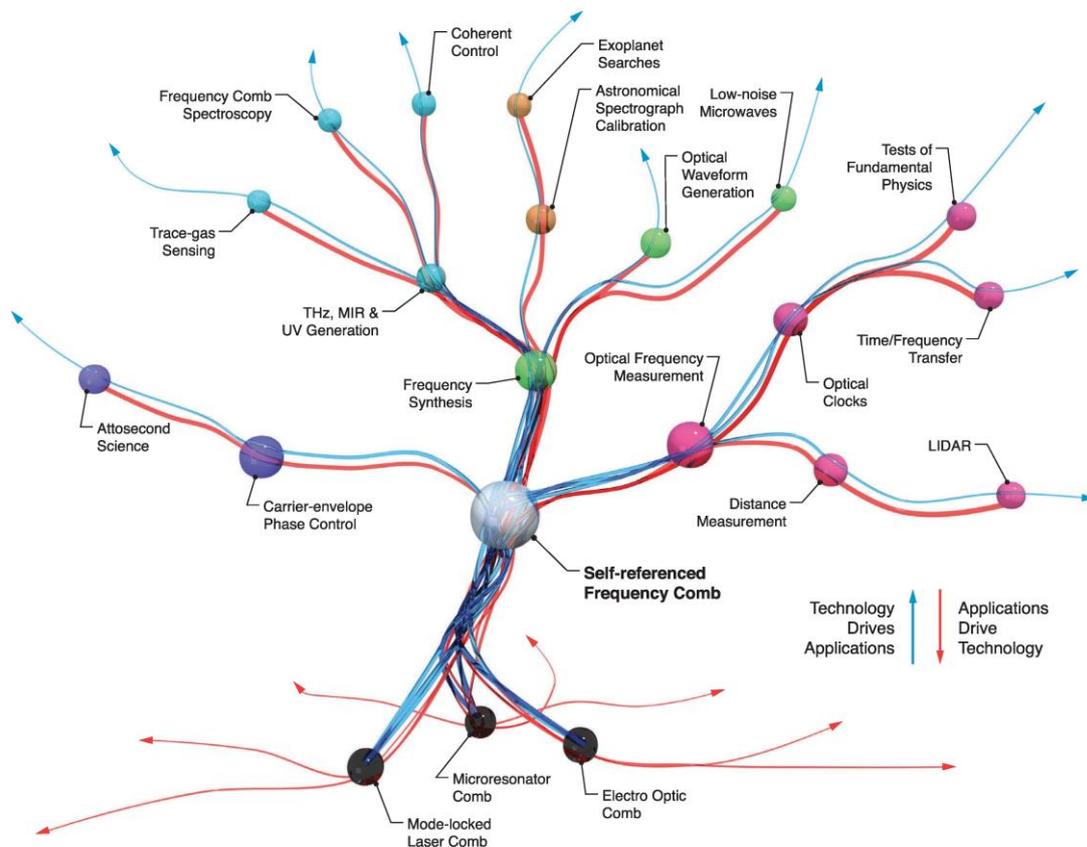


图 1.4 光频梳进化树。技术推动新应用，应用也助长新技术的发展<sup>[27]</sup>。

## 1.3 光频率梳光谱学的发展

### 1.3.1 光频梳光谱技术简介

光频梳光谱学是在 20 世纪 70 年代首次被应用的，当时是用锁模皮秒激光脉冲序列探测单原子的无多普勒双光子激发光谱<sup>[48]</sup>，但是皮秒脉冲激光的输出光谱范围较窄。简单的光频梳光谱学实验示意图见图 1.5，光频梳探测或激发待测样品，由于线性吸收或非线性现象等原因，样品产生相应的光谱响应。具有宽范围的光频梳对于光谱学应用是非常重要的，因为待测原子或分子的吸收谱或激发谱可能超过频梳的光谱范围。光频梳的重复频率，也就是频梳齿间隔，也是光谱学应用中重要的参数，最合适的重复频率主要取决于光谱学的类型和样品的类型。理想情况下，重复频率应该与所需的光谱分辨率相似，因为光频梳提供了频梳齿分辨的测量精度。对于凝聚相的样品，合适的频梳齿间隔为 50-500GHz。相反，在利用红外频段探测气体分子的多普勒展宽时，需要 50-200MHz 的梳齿间隔<sup>[47]</sup>。

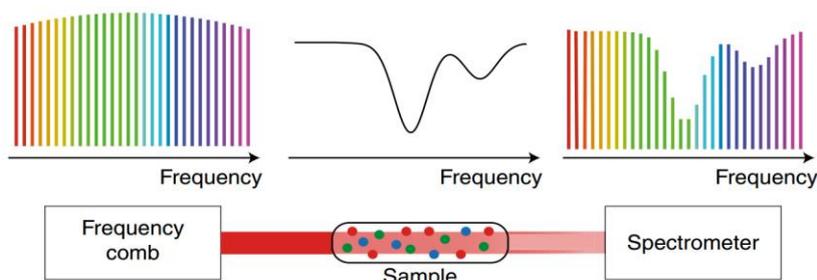


图 1.5 光频梳光谱学的简单实验示意图<sup>[47]</sup>。

### 1.3.1.1 光频梳的光谱范围

近些年发展的光学频率梳的光谱通常是宽范围的，从紫外到太赫兹波段都可以覆盖。应用的最广泛的是近红外范围（800 nm – 2 μm）的光频梳，这得益于商业化的激光增益介质，如掺钛蓝宝石和掺镱、铒、铥或钕的光纤。中红外区（2–20 μm）的光频梳实现在技术上具有挑战性<sup>[49]</sup>。虽然铒、铥和钕在中红外区有几个增益带，但相关的光频梳还有待进一步突破。而使用其他材料<sup>[50]</sup>或非线性转换晶体<sup>[51]</sup>以及量子级联方式<sup>[52]</sup>的光频梳在中红外区取正在不断进步。太赫兹（1 mm–100 μm, 0.3–3 THz）和远红外（100–20 μm, 3–15 THz）范围的光频梳源长期以来一直是不存在的，产生太赫兹频率梳的主要方法是通过非线性频率转换，比如在光导天线或晶体中对近红外频率梳进行频率下转换<sup>[53]</sup>。

图 1.6 展示了部分光频梳在亚毫米和红外区域的光谱范围和重复频率。在近红外区域，主要是基于飞秒激光器的光频梳，特别是光纤飞秒激光器，其系统集成度高，稳定性好，商业应用广泛。许多有可能在中红外区工作的方法首先在 1.5 μm 附近的通信波段进行测试。由于腔长的限制，其重复频率通常为 50–100 MHz。高品质因数微谐振器中产生的孤子克尔梳<sup>[54–58]</sup>，提供了一个方便的重复频率范围，从 10 GHz 到 1 THz。最近实现的电池供电的克尔光频梳发生器为完全集成的基于芯片的光频梳带来了很大希望<sup>[59]</sup>。在中红外区域，虽然存在一些增益介质的工作范围，但是能够产生的光频梳能量通常比较低。通过光学差频和光学参量振荡<sup>[60]</sup>的技术可以实现高平均功率<sup>[61]</sup>、高单个梳齿功率<sup>[62]</sup>和窄梳齿线宽<sup>[48]</sup>的光频梳。利用非线性晶体，如磷化镓<sup>[63]</sup>和 LGS（LigaS2）晶体<sup>[64]</sup>，可以将光频梳的光谱范围扩展至 12 μm。基于微谐振器<sup>[65]</sup>和波导的片上硅或氮化硅平台<sup>[56,58,66]</sup>也可以产生或加宽中红外光谱。量子级联<sup>[67]</sup>和带间级联<sup>[68]</sup>的光频梳可以产生频梳齿间隔为千兆赫兹级别，光谱范围覆盖 3–9 μm 的光频梳，并且输出的平均功率高达瓦特级。在远红外区域，通过频率转换产生的光频梳的平均功率通常限制在几微瓦级别。使用光纤激光器作为近红外泵浦源和设计具有等离子体增强的新型光电发射器可以作为更小尺寸和更高平均功率的太赫兹源<sup>[69]</sup>。此外，太赫兹量子级联光频梳有望成为多功能、紧凑的高功率电泵浦半导体源<sup>[70]</sup>，这

种源不产生脉冲，但仍然通过四波混频产生数百条相位相干频率线。并且经过精密的色散补偿，这种激光器可以实现光谱范围接近一个倍频程，中心频率约 3 THz (100  $\mu\text{m}$ )，梳齿间隔约 13 GHz，功率约 10 mW 的光频梳<sup>[71]</sup>。

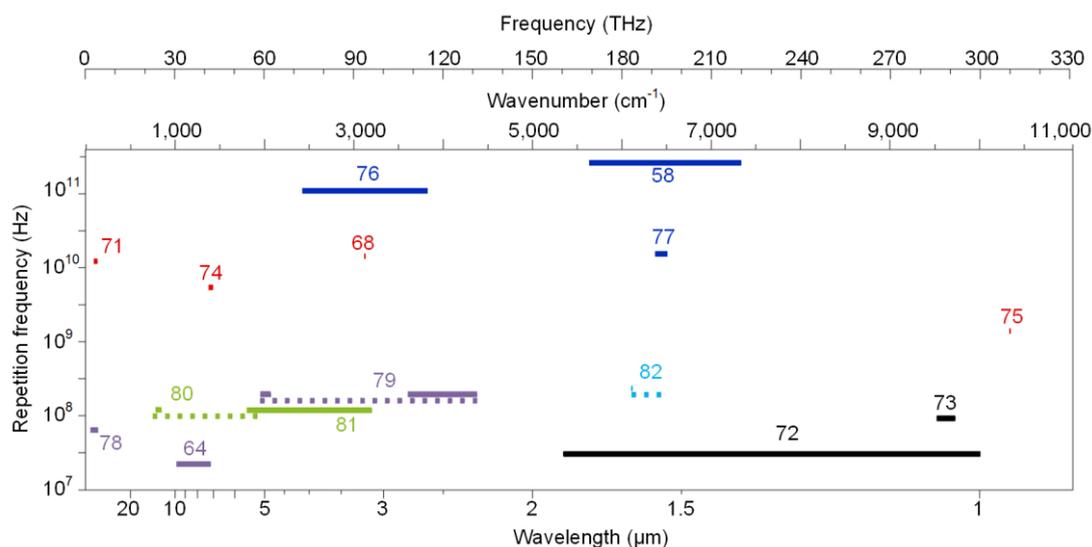


图 1.6 光频梳的光谱范围和重复频率的概述<sup>[47]</sup>。飞秒激光(黑色条纹)、半导体激光(红色)、基于微谐振器的克尔频梳(深蓝色)、光学差频(紫色)、光学参量振荡器(绿色)和电光调制器(青色)。每个条的宽度代表了各个梳发射的光谱跨度(虚线, 调谐范围; 实线, 整个跨度), 纵坐标为给出的重复频率。

对于可见光和紫外的光频梳 (200–800 nm), 可以方便的使用倍频晶体将近红外光频梳转换得到。使用新的  $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$  或  $\text{Li}_4\text{Sr}(\text{BO}_3)_2$  甚至可以将光谱范围扩展至 160 nm<sup>[83]</sup>。如果想要达到更短的波长, 需要在稀有气体中产生高次谐波, 这是一个非常低效的过程。将红外或可见光频率梳聚焦在包含稀有气体的谐振腔中, 可以产生适用于极紫外的高重复频率(>20 MHz)的光频梳<sup>[84,85]</sup>。每次通过焦点后, 光脉冲的未转换部分与来自激光器的连续脉冲相干重叠, 这样可以达到产生高次谐波所需的强度增强。该方法是复杂的, 因为它还需要紫外光的适当外耦合和相位匹配效应的优化, 以控制谐波信号在相互作用长度上的积累。最近, 研究者使用扫频腔, 实现了 63 nm 的高次谐波, 重复频率为 77 MHz, 平均功率为 0.7 mW<sup>[86]</sup>。

## 1.3.1.2 光频梳光谱技术分类

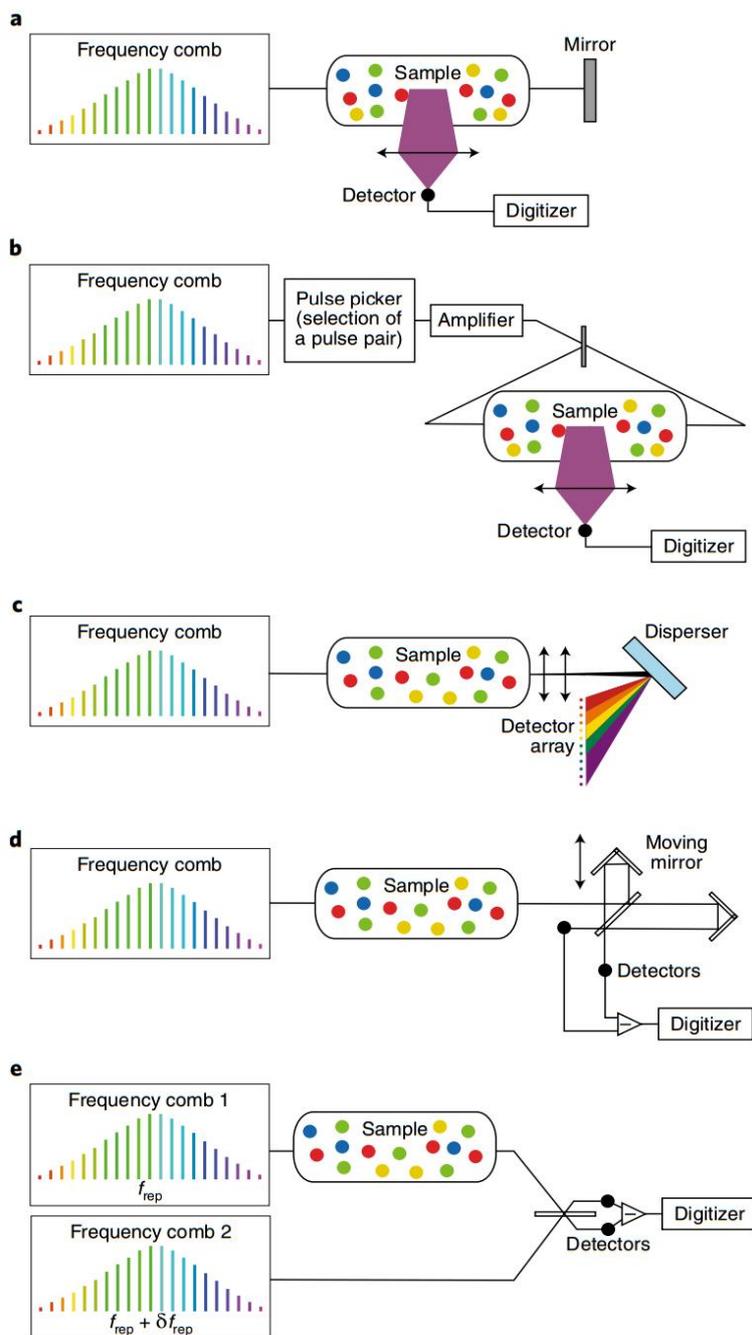


图 1.7 直接光频梳光谱技术分类<sup>[47]</sup>。a 简化的双光子激发光频梳光谱学；b 拉姆齐光频梳光谱学；c 使用光栅色散和探测器阵列方式；d 基于扫描迈克尔逊干涉仪的光频梳光谱法；e 双频梳光谱学。

宽光谱范围的光频梳源可以实现多种分子原子的光谱分析，直接基于光频梳的光谱分析方法可以总结为图 1.7 中的五种。a 中的直接光频梳光谱学可以分为线性和非线性两种，在线性工作方式中，单个梳状线与一个跃迁共振，所有其他线应该理想地与共振失谐<sup>[87,88]</sup>。对于非线性光频梳光谱学，以双光子激发为例，许多对具有相同和频率的梳状线有助于激发，这可以与具有相同平均功率的连续

波激光器一样有效<sup>[48,89]</sup>。如果原子被两个形成驻波的反向传播脉冲激发，激发甚至可以是无多普勒的。b 为拉姆齐光频梳（Ramsey-comb）光谱学<sup>[90]</sup>，其通过从频率梳输出的两个延时强脉冲来测量原子或分子样品的激发之间的干扰。c 中为使用色散器件的分光光谱仪，色散光谱仪为使用频率梳的宽带光谱多通道并行方法提供了简单而强大的工具<sup>[91,92]</sup>。使用的色散器件包括：光栅、交叉色散器和 VIPA（虚拟成像相位阵列标准具）等<sup>[92,93]</sup>。d 为基于扫描迈克尔逊干涉仪的傅里叶变换光谱学<sup>[94]</sup>。e 双梳光谱学（Dual-comb spectroscopy, DCS）是一种无需移动部件的傅里叶变换干涉测量法<sup>[44]</sup>。

### 基于光栅色散的光频梳光谱学

大多数情况下，使用色散器件无法分清单个频率梳齿，因为受到了光栅的分辨率限制。2007 年美国标准计量研究院（NIST）Scott A. Diddams 等人采用 VIPA 和光栅组合的方式，实现光频梳梳齿在二维空间的分布<sup>[92]</sup>，如图 1.8 所示。与所有标准具一样，VIPA 具有自由光谱范围(FSR，这里为 50 GHz)，这是由其厚度和材料折射率决定。对于光谱带宽大于 50 GHz 的输入，输出阶数在空间上相互叠加。这个问题在经典光谱学中是众所周知的，并且已经通过沿着正交空间维度使用第二色散元件而被克服。在这种情况下，光栅应具有比 VIPA 的 FSR 更好的光谱分辨率。c 图中相邻点之间的间隔为 3 GHz，每个梳齿的能量都被探测器所分辨。

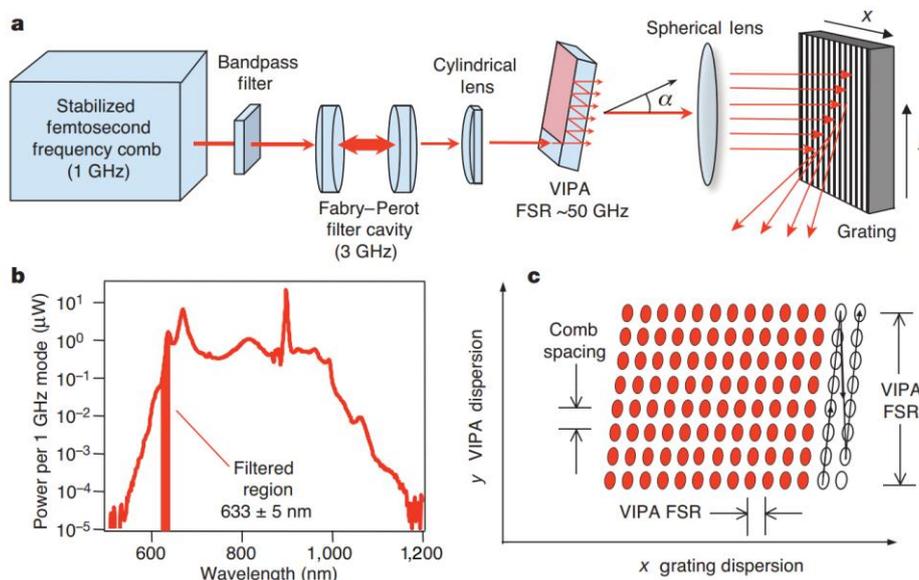


图 1.8 基于 VIPA 的光频梳光谱学<sup>[92]</sup>。a 高分辨率 VIPA 色散器与衍射光栅结合使用，在空间上分辨钛宝石飞秒激光的稳定频率梳。b 激光器的完整输出光谱和滤波出的工作范围。c 色散后由光频梳梳齿组成的二维阵列，其中每个“点”代表一个单独的模式。

### 基于扫描迈克尔逊干涉仪的光频梳光谱学

在过去的 50 年里，使用扫描迈克尔逊干涉仪的傅里叶变换光谱学是最成功的光谱技术之一。通常使用非相干宽带光源，在单个光电探测器上测量来自两臂的两个光学延迟信号之间的干涉，作为光程差的函数。频谱是时域干涉图的傅立叶变换。傅里叶变换光谱最大限度地利用了可用的时间和光子，它在任何光谱区域都可以记录光谱。它的局限性在于需要移动部件，分辨率与移动臂的长度成反比，市场上分辨率高达 30 MHz 傅里叶变换光谱仪，其体积大并且扫描速度慢。2009 年法国科学研究中心 (CNRS) Julien Mandon 等人结合了光频梳的傅里叶变换光谱仪<sup>[94]</sup>，如图 1.9 所示，实现了单次 80nm 的测量范围，分辨率为 1.5 GHz。

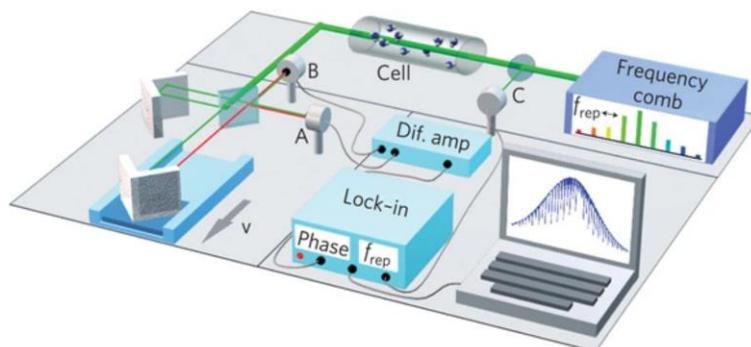


图 1.9 使用扫描迈克尔逊干涉仪的傅里叶变换光谱学<sup>[94]</sup>。

### 双频梳光谱学

DCS 是一种非常巧妙的方法，它的出现解决了傅里叶变换光谱仪中需要机械扫描的问题。在 2004 年由 MPI 的 Fritz Keilmann 提出双频梳多外差干涉方案后<sup>[95]</sup>，双频梳的科学研究以及实际应用都引起了研究者们最热烈的关注。双频梳光谱学采用两个具有微小重频差 ( $\Delta f_{rep}$ ) 的光频梳激光器<sup>[73,96]</sup>，这两个光频梳在频域上的拍频结果为与光频梳一一对应的射频域的频梳，完成了光频梳 (Optical frequency comb, OFC) 信息至射频梳 (Radio-frequency comb, RFC) 的转换。通常这个重频差在 Hz 到 kHz 量级，所以得到的电频梳带宽低，容易采集，商用探测器和采集卡可以直接采集超过几万甚至几十万条频梳齿<sup>[44]</sup>。范围为 THz 量级的光频梳光谱可以在 MHz 级的电谱范围被分辨，极大的提高了光谱仪的分辨率和工作范围。双频梳光谱学的缺点在于需要对两个光频梳进行相位锁定，每台绝对稳定的光频梳都需要 2 个相位锁定回路和 1 个倍频程的非线性光谱展宽，这无疑需要非常高的成本和非常稳定的运行条件。

在频域，双频梳光谱的输出是一个简单的射频梳，射频梳齿的强度和相位与两个光频梳电场的乘积成正比。假设光频梳系统的光谱范围为  $f_{comb}$ ，则输出的射频谱范围为  $f_{comb}/M$ ，其中

$$M = f_{rep} / \Delta f_{rep} \quad (1.3)$$

被称为压缩系数，通常是一个 30,000-1,000,000 的整数。如图 1.10a 和 b 所示，要保持光频梳齿到射频梳齿的一一对应，DCS 的光谱范围需要满足条件：

$$f_{comb} \leq \frac{M f_{rep}}{2} = \frac{f_{rep}^2}{2 \Delta f_{rep}} \quad (1.4)$$

在时域中，如图 1.10c 和 d 所示，两个光频梳的脉冲互相采样，当其中一个频梳的脉冲将另一个频梳的整个周期采样后，就完成了对光频梳的探测，显然这是需要  $M$  个脉冲进行采样。每个脉冲之间的有效时间偏移为：

$$\Delta T = \frac{\Delta f_{rep}}{f_{rep}(f_{rep} + \Delta f_{rep})} \approx \frac{1}{M f_{rep}} \quad (1.5)$$

这种时域上的采样可以与线性光学采样或采样示波器类比，来自一个频梳的飞秒脉冲异步采样来自另外一个频梳的重复脉冲序列，产生的时域干涉图也是与傅里叶变换红外光谱高度相似的（图 1.10d）。需要注意的是，单个时域干涉图进行傅里叶变换并不能得到电频谱中的梳齿，需要一系列重复频率为  $f_{rep}$  的时域干涉图进行变换才能得到梳齿分辨的射频梳。这也就说明 DCS 无法实现单发脉冲的超快测量，更适用于精密的光谱分析。长时间的时域干涉图的累积对两个光频梳的频率稳定性以及两个频梳的绝对相位稳定有很高的要求，因此科学家们不仅使用两个光频梳干涉，还发展了对两个光频梳进行绝对参考的方法<sup>[96]</sup>。

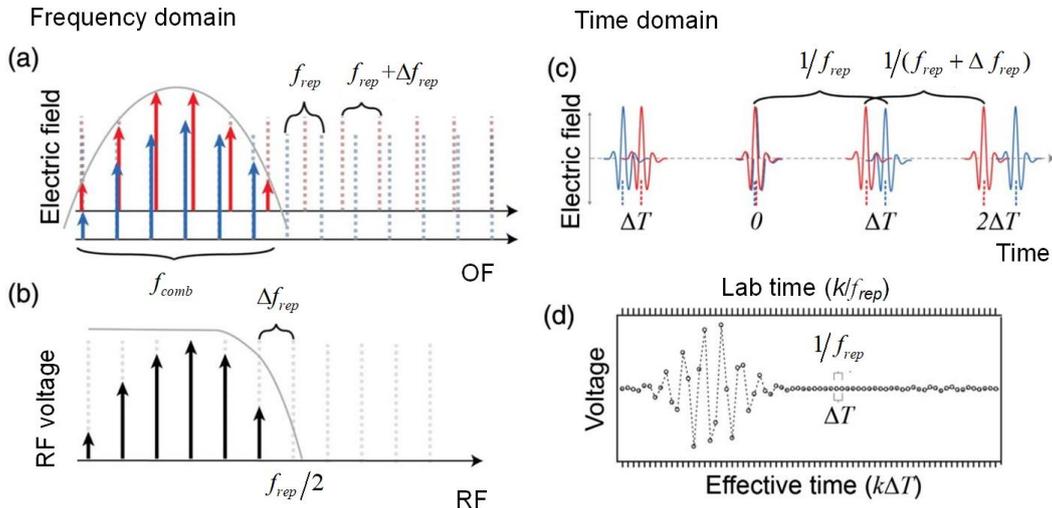


图 1.10 两个频率梳(a)拍频产生(b)射频梳 (RFC) <sup>[44]</sup>。实心灰线表示射频和光学中应用的滤波器功能，以避免混叠效应。c 显示两个频梳的脉冲序列之间的脉冲间离散的等效时域图像。d 探测器电压输出对应于在接收器上两个频梳脉冲的乘积。干涉图中电压高的位置是时域上两个脉冲的相遇是产生的，干涉图的尾部依然包含光谱信息，例如后面的微小振荡就是气体的吸收特征信息。

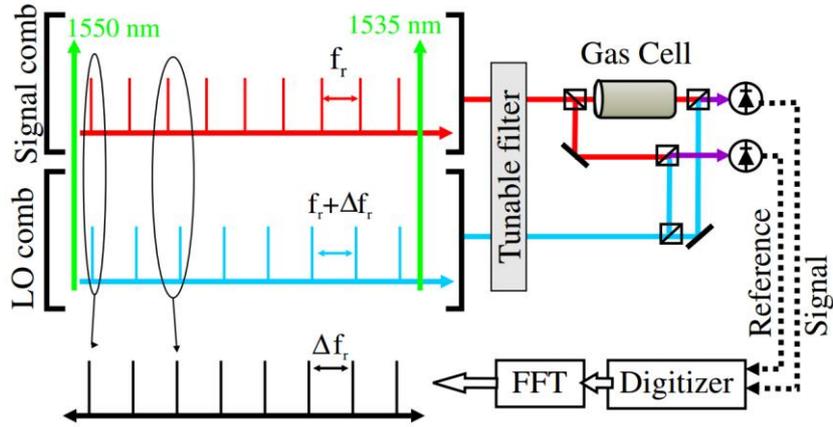


图 1.11 绝对参考的双频梳光谱学。

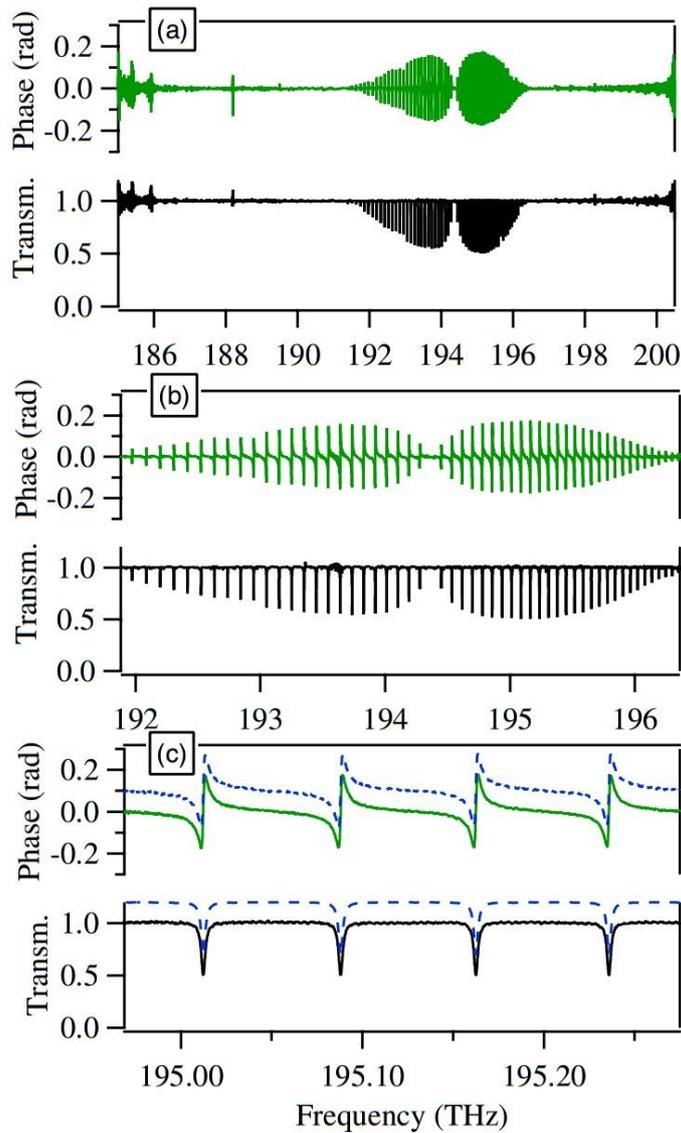


图 1.12 双频梳光谱学分辨 15.5THz 范围 155000 个梳齿<sup>[96]</sup>。

2008 年 NIST 的 Nathan R. Newbury 课题组，构建了两个相位锁定的光频梳<sup>[96]</sup>，他们的重复频率分别为 100.016 MHz 和 100.017 MHz，重频差  $\Delta f_{rep}$  为 1 kHz。

通过双频梳干涉，在光谱范围 1495–1620 nm，将 15.5 THz 的 155000 个光频梳齿拍频至 155 MHz 的射频域，形成了 155000 个与光频梳齿一一对应的电频梳齿。在电频谱中，每个梳齿的间隔为  $\Delta f_{rep}$ ，即 1 kHz。如图 1.12 所示，不仅可以得到宽范围的光谱信息，双频梳干涉的相位谱也可以获得。获得相干性如此好的双频梳系统并不容易，额外还需要使用如图 1.11 所示的两个线宽为 Hz 级别的单频激光器，分别位于 1550 nm 和 1535 nm，这两个单频激光器首先是相位锁定的。使用这两个线宽为 Hz 级别的单频激光器分别对两个光频梳的重频和梳齿进行相位锁定。

理想的光频梳是由窄线宽的梳齿组成，频率定义明确，实际中虽然可以达到这种理想的性能，但是在实验上是有挑战性的。双频梳要想实现两个光频梳都是理想的，是更加困难的。如图 1.13 所示，根据配置不同的反馈锁定系统，可以将双频梳光谱学总结为三类：自由运行 DCS，高互相干 DCS 和绝对参考 DCS。

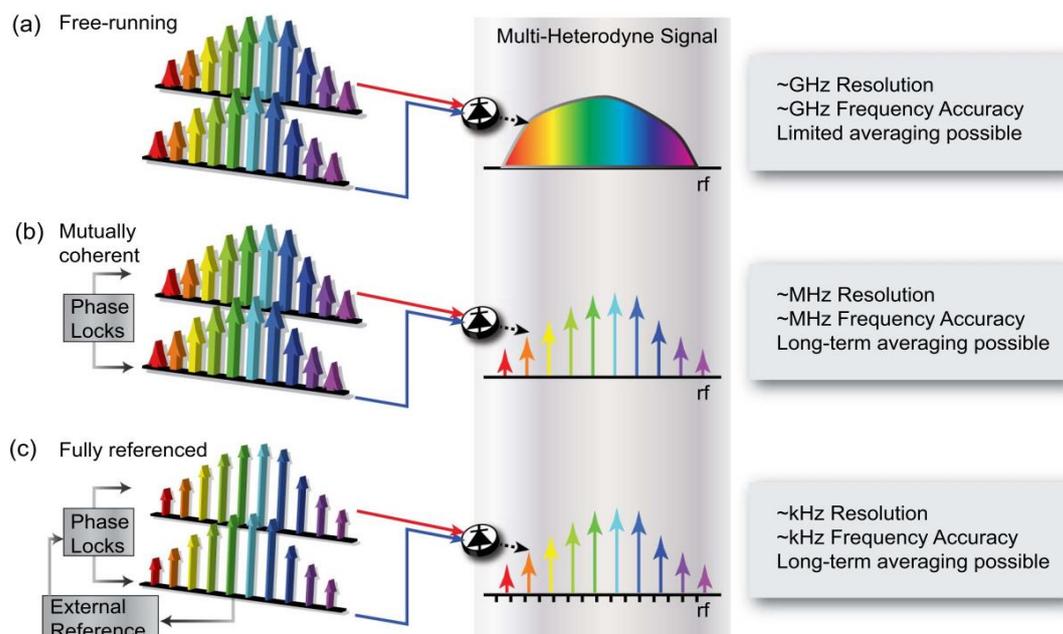


图 1.13 三种不同类别的 DCS 演示<sup>[44]</sup>。a 自由运行 DCS，分辨率低、频率精度低、信噪比低，频率稳定性差，只能进行有限时间的信号平均。b 高互相干 DCS，可以产生梳齿分辨的光谱，可以在高信噪比下进行平均。c 绝对参考 DCS，同时具有高分辨率、绝对频率精度和高信噪比的光谱。

图 1.13a 中为自由运行的 DCS，其中梳齿的相对光学线宽大于  $\Delta f_{rep}$ 。在这种情况下，相应的射频梳可能会有不同程度的重叠或混合，从而导致低得多的频率分辨率。并且在自由运行情况下无法对干涉结果进行长时间平均，通常只能够达到 GHz 级别的光谱分辨率和 GHz 级别的频率稳定度。图 1.13b 为高互相干 DCS，其中梳之间的相对线宽远低于  $\Delta f_{rep}$ 。在这种情况下，单个梳齿是光谱分辨的，因此每个梳齿都提供一个独立的光谱样本。在不扫描重复频率的情况下，光谱分辨率由频梳齿间隔决定，则这种 DCS 的光谱分辨率在 MHz 级别，频率稳定度也在

MHz 级别。图 1.13c 为理想情况的 DCS，两个高相互相干的频梳被参考到绝对频率标准，图 1.10 中的系统即为一种绝对参考的 DCS。绝对参考还可以消除两个频梳的共模频率漂移，否则会在较长的平均时间内加宽仪器的线形，从而潜在地消除感兴趣的频谱特征。用完全稳定的反馈控制系统获得的分子谱线中心的频率精度优于高分辨率傅里叶变换红外光谱，并可追溯到频率参考源的频率精度。在这种理想的配置情况下，光谱分辨率和频率稳定度都可以达到 Hz 级别。

### DCS 的宽光谱范围

迄今为止，尽管双频梳光谱不太可能与传统傅里叶变换光谱红外光谱的全光谱范围相匹配，但 DCS 技术适用的光谱范围已经超过了其他基于频梳的光谱技术<sup>[46,97-100]</sup>。图 1.14 展示了 DCS 技术覆盖的光谱范围，这些双频梳实验在分辨率、精度、信噪比、系统控制等方面都有很大的进步。近红外波段 DCS 发展最为成熟，利用光纤飞秒激光器可以实现紧凑且稳定的双频梳系统，并且已经能够用于实验室外进行甲烷 (CH<sub>4</sub>)、二氧化碳 (CO<sub>2</sub>) 和水汽等气体的监测<sup>[46,101,102]</sup>。随着中远红外光频梳以及相应锁定技术的发展，DCS 系统也已经能够在中远红外区域探测大量的大气气体光谱特征，包括众多的挥发性有机物 (VOCs)<sup>[100]</sup>。THz 波段的双频梳系统主要使用红外波段的光纤超短脉冲激光器和光导天线实现，目前也有基于量子级联 THz 源的 DCS 系统<sup>[74,103,104]</sup>，虽然报道的这种 THz 源光谱范围窄 (250 GHz)，但是随着宽带增益介质的发展，可以实现更宽范围的 THz 双频梳。

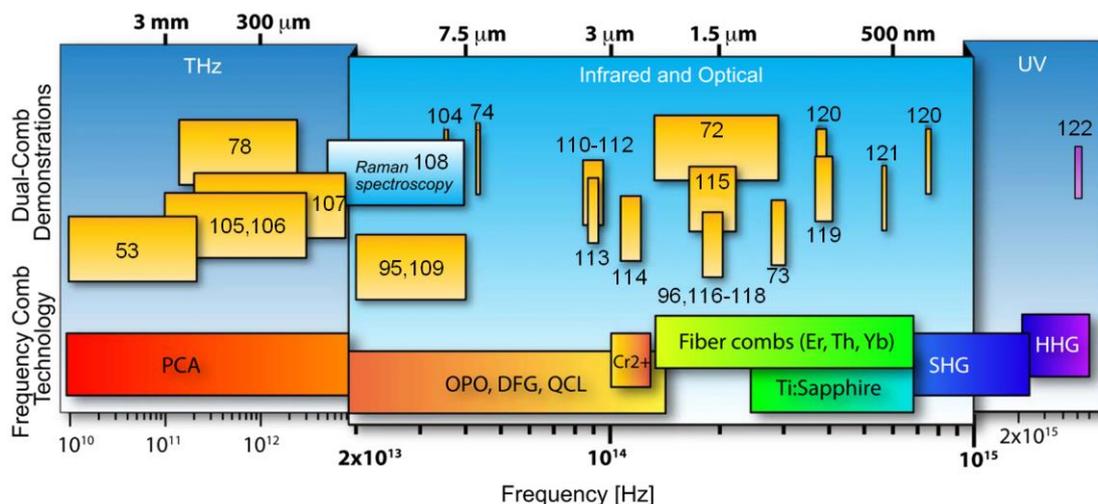


图 1.14 双频梳光谱(顶部)和光频梳(底部)的覆盖范围<sup>[44]</sup>。整个范围超过 14 个倍频程，跨越紫外到红外至太赫兹。PCA，光导天线；OPO，光学参量振荡器；DFG，差频产生；QCL，量子级联激光器；SHG，二次谐波发生；HHG，高次谐波发生。

### 1.3.2 单腔双频梳光谱学

DCS 在宽光谱的快速处理和高精度分辨有非常大的潜力。然而，在其常规方案中，对两个激光器之间相干性的严格要求，需要复杂的控制系统，导致其应用经常因此受到限制。为了适应更广泛的研究和应用，研究者们不断发展新的技术来简化双频梳系统。其一是跟踪两个光频梳的相对波动，并通过模拟或数字处理后实时校正双频梳干涉中的相对波动<sup>[123]</sup>。这种方案甚至可以使用自由运行或者不完全锁定的光频梳。另一种方案是设计单腔内置被动的相互相干的双频梳系统<sup>[75,82,124-127]</sup>，这种方案大大简化了实验中的硬件需求，因为相互相干的两个频梳不需要其他的相位锁定回路。例如，2016 年北京航空航天大学郑铮课题组提出双波长单向锁模激光器，自由运行的腔内双频梳的微小重复频率差由色散确定，显示出良好的互相干性和稳定性<sup>[124]</sup>。同年，亚利桑那大学 Khanh Kieu 课题组提出单腔双向锁模激光器实现双频梳干涉，两个频梳同样是在自由运行的状态下相互相干的<sup>[125]</sup>。2017 年瑞士联邦理工学院 Ursula Keller 课题组提出在集成的锁模外腔表面发射激光器（MIXSEL）的腔内设置双折射晶体<sup>[75]</sup>，使得两个共线垂直偏振的光频梳在同一个腔内有微小的重频差。

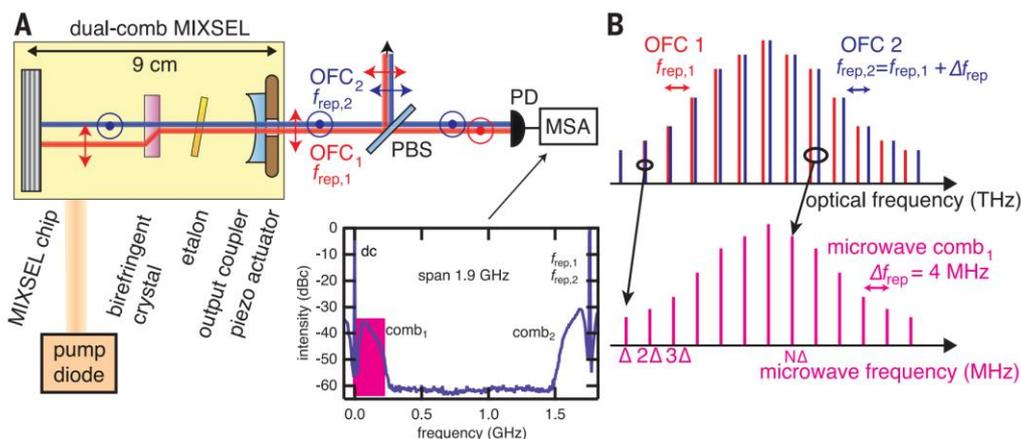


图 1.15 MIXSEL 单腔双频梳光谱学<sup>[75]</sup>。增益介质和可饱和吸收体都集成在同一个半导体晶片上。半导体 MIXSEL 芯片形成一个腔端镜，输出耦合器形成另一个腔端镜。此外，使用了两个腔内元件：第一，调节中心波长的标准具；第二，用于偏振分离和双梳产生的双折射晶体。

如图 1.15 所示，MIXSEL 简单的直线腔可以实现基本锁模，腔内的标准具可以将工作波长调整至待测吸收光谱附近。频梳齿间隔可以通过腔长调节，这项工作中为 1.7 GHz。对于两个锁模光频梳的产生，在这个线性腔中插入了一个双折射晶体，它将面向 MIXSEL 芯片一侧的腔光束分成两个空间分离的交叉偏振光束，这两个光束的光腔往返路径长度略有不同，从而实现了 4 MHz 的微小重复频率间隔差，这个频率差可以通过腔内双折射晶体的厚度来调节(图 1.15A)。在双折射晶体的另一侧，两束光束共线传播，但偏振方向垂直，使它们易于分离，例如使用偏振分束器。因此，这两个光纤通道共享相同的光学组件、泵浦激光器

和电子器件，从而导致内在的强相互相干性。这种强的相互相干性使得单腔双频梳光谱学可以自由运行，进行高分辨率的气体吸收光谱测量。单腔双频梳不仅简化了 DCS 的硬件，而且使整套系统的稳定性得到提升。这种基于单腔的 DCS 方案也得到了广泛研究，包括最近提出的基于电光调制器和微谐振腔的双频梳光谱学。

2020 年中国科大利用时域拉伸技术实现单飞秒激光器双光频梳干涉系统（Femtosecond imbalanced time-stretch spectroscopy, FITSS）<sup>[128]</sup>，与传统双频梳光谱技术不同的是，该技术的两个光频梳不存在微小重频差，而是在时域有不同的色散。该干涉系统能够实现单发脉冲的超快探测，这是传统双频梳光谱技术所无法实现的。

### 1.3.3 光频梳参考的光谱学

光频梳的发明彻底改变了光谱学领域，并允许以以前无法达到的精度进行测量<sup>[129]</sup>。尽管有显著的优势，使用光频梳进行精确的宽带光谱分析仍然具有挑战性，因为每个梳齿的光功率低，并且难以分辨小于梳的模式间隔的特征。在上一小节提到的直接使用光频梳进行光谱分析的方法中，我们可以发现，如果想要达到光频梳的最大分辨率，也就是完成单个频梳齿的分辨，通常需要非常复杂的系统配置。不管是用色散器件将光频梳齿在空间分离，还是使用长干涉臂的傅里叶变换光谱仪，亦或是无需机械移动的双频梳光谱法。

事实上，光频梳是一个非常理想的光频率参考源，不仅可以用于锁定单频光的频率至梳齿上，以获得和光频梳同量级的频率稳定度，而且可以用于实时校准扫描激光器的频率<sup>[130-134]</sup>。如图 1.16 所示，直流单频光  $f_{cw}$  与最靠近的频梳齿  $f_n$  拍频产生  $f_{beat}$  的拍频电信号，同时也会与其他的频梳齿拍频产生  $f_{rep}f_{beat}$  或者  $f_{rep}+f_{beat}$  的电信号。使用带宽小于  $f_{rep}/2$  的带通滤波器可以直接分辨与最靠近的频梳齿的拍频信号  $f_{beat}$ ，则有  $f_{cw} = f_n \pm f_{beat}$ ，其中正负号可以通过  $f_{cw}$  的前后变化趋势确定。如果  $f_{cw}$  是宽调谐范围的单频激光器，如外腔二极管激光器（ECDL），那么  $f_{cw}$  在调频过程中可以由其与光频梳的拍频实时校准。并且  $f_{cw}$  可以停留在扫描范围内任意光频梳梳齿附近，并锁定于邻近的梳齿。

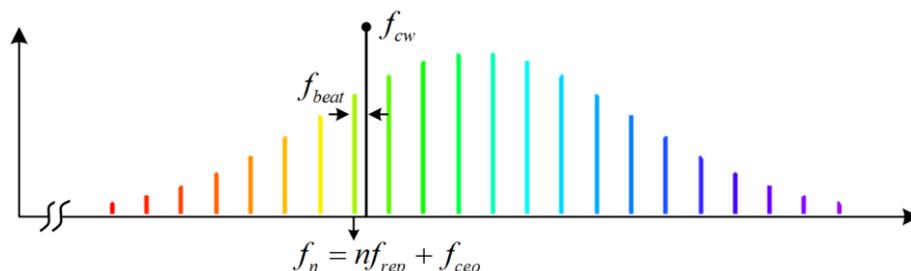


图 1.16 光频梳参考的扫描激光器。

2009年MPI的T. J. Kippenberg课题组基于光频梳参考的扫描激光器，提出了一种易于使用的快速、宽带和精确光谱方案<sup>[134]</sup>，该方案将光学频率梳的精度与无模式跳变ECDL的宽带宽、高功率和可调谐性相结合。在1550nm波段内实现了高达1 THz/s的扫描速度，超过4 THz扫描范围，小于MHz的光谱分辨率。作为该方案的一个应用，该课题组给出了超高品质微腔的透射光谱的测量结果，该微腔的透射光谱表现出窄吸收线特征(半高全宽小于10MHz)。该技术第一次实现在宽波长范围内确定微腔色散。高分辨率、极高的扫描速度和易用性相结合，使这种技术在光子学、传感、光子器件或激光表征方面有广泛的应用前景。在此之前使用光频梳实现宽带光谱分析的最佳方法是双频梳光谱学，这种多外差技术允许将大光学带宽映射到射频信号。虽然已经实现了同时使用频梳齿分辨的高精度光谱学，但是这种方法的主要缺点是它不能分辨低于梳状重复率的特征。这需要扫描偏移频率(或重复频率)，失去了并行性的优势。此外，每梳模式的弱功率使得这种方法在许多情况下不适合，此外，它需要两个光学频率梳，使得它对于大多数实验室是难以获取的。

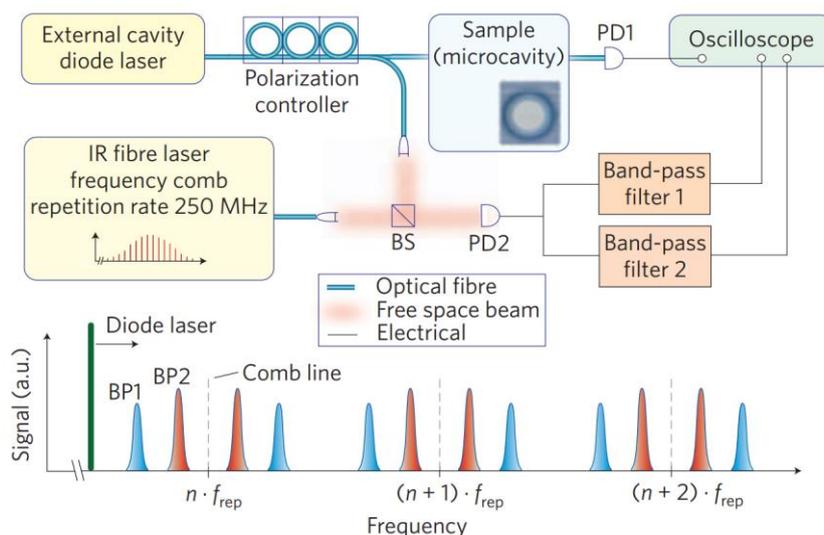


图 1.17 光频梳参考的扫描激光光谱学用于微腔色散的测量<sup>[134]</sup>。

图 1.17 展示了该光频梳参考的扫描激光光谱学的实现原理，与图 1.13 中的不同，这里没有直接读取 ECDL 与邻近光频梳的拍频信号，而是在电频域设置两个窄带滤波器 BP1 和 BP2，滤波位置设置在  $f_{rep}/2$  内，扫描激光与光梳的拍频信号会往复经过两个滤波位置，这两个位置作为频率的标记，用于计算扫描激光器此时的频率。在该实验中， $f_{rep} = 250$  MHz，BP1 和 BP2 的滤波位置分别为 30 MHz 和 75 MHz，这使得在一个重复频率(250 MHz)的每个间隔内产生四个校准峰值，相对于每个梳状线位于  $\pm 30$  MHz 和  $\pm 75$  MHz。使用示波器的“峰值检测”采样模式能够记录拍频出现在 BP1 和 BP2 的过程，而无需实际解析拍频频率。

同时，使用示波器记录 ECDL 在扫描过程中经过微腔的能量变化。由于示波器的高采样速率，即使在超快的 1 THz/s 扫描速度时，该方案依然能够分辨线宽为 15 MHz 的微腔吸收谱，如图 1.18 所示。实验表明 1 MHz 分辨率由二极管激光器的扫描速度和频率梳的频率稳定性决定，在更快的扫描速度下，无法以足够的信噪比记录校准标记点。

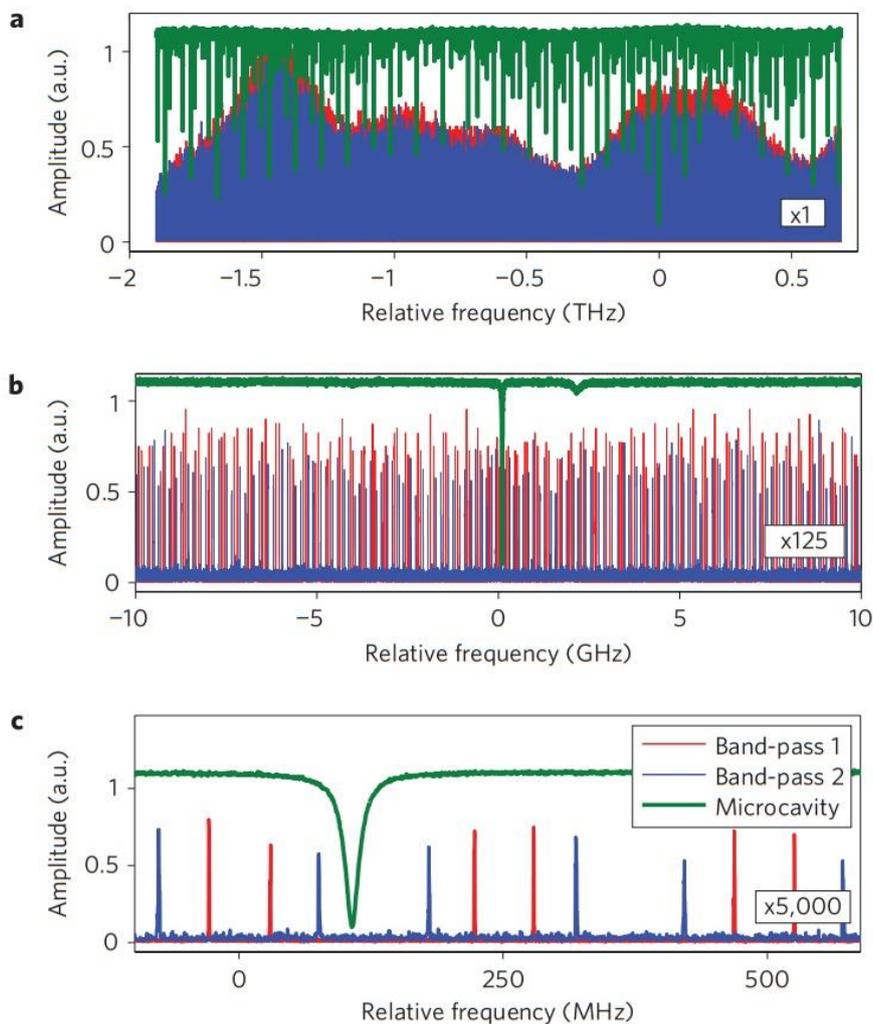


图 1.18 光频梳校准的扫描透射光谱<sup>[134]</sup>。

2021 年，中国科大实现了基于光频梳可调激光器扫描与锁定技术<sup>[135]</sup>，不仅能够完成可调激光器的快速精确扫描，而且可以将可调激光器锁定于任意的光频梳梳齿，图 1.19 展示了锁定与扫描的原理。这种扫描锁定技术被用于实验室内气体吸收光谱的探测和大气气体光谱的分布式遥感。

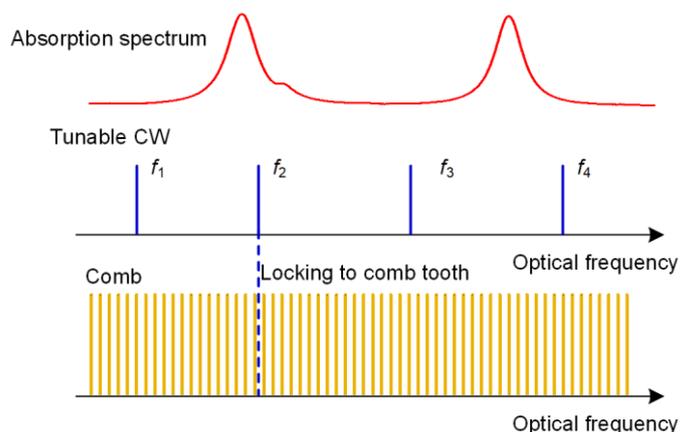


图 1.19 光频梳参考的扫描锁定可调激光器。

## 1.4 飞秒时域拉伸技术的发展

### 1.4.1 飞秒时域拉伸技术简介

飞秒脉冲可以在超短的时间内记录瞬态现象，但在时域上解析飞秒级持续时间信息非常困难，都超出了光电探测器和模拟数字转换器（ADC）的采样能力。飞秒脉冲包含宽光谱信息，传统光谱分析技术需要进行光谱扫描，无法实现高重频（100 MHz 级）飞秒脉冲的实时采样。时域拉伸技术<sup>[136]</sup>利用群速度色散将超短脉冲在时域上色散为宽脉冲（ns 级），使得单像素探测器可以完整记录脉冲时域信息。并且由于群速度色散，不同频率的光在时域上分散开，出现了时域信息与光谱的实时映射（图 1.20）。

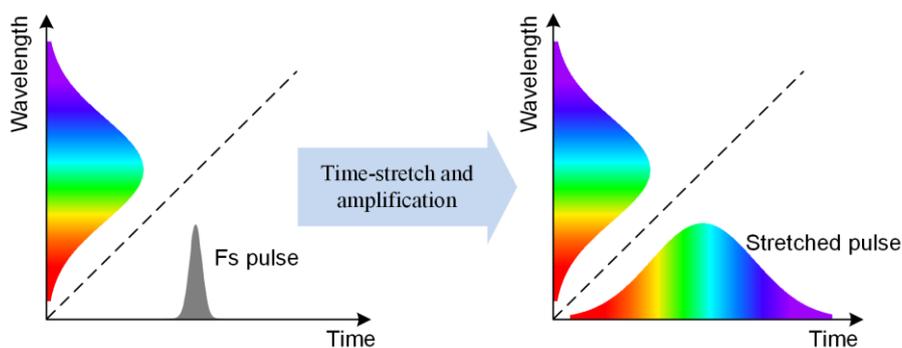


图 1.20 飞秒脉冲经时域拉伸前后的时频映射关系。

时域拉伸技术克服了电子数字化仪的速度限制<sup>[137]</sup>（如图 1.21），使我们能够在时域上进行超快光谱测量<sup>[138-140]</sup>、测距<sup>[141-143]</sup>和成像<sup>[144-146]</sup>等。目前基于时域拉伸技术的测量技术已经可以实现每秒数万亿帧的刷新率的连续测量<sup>[147]</sup>。

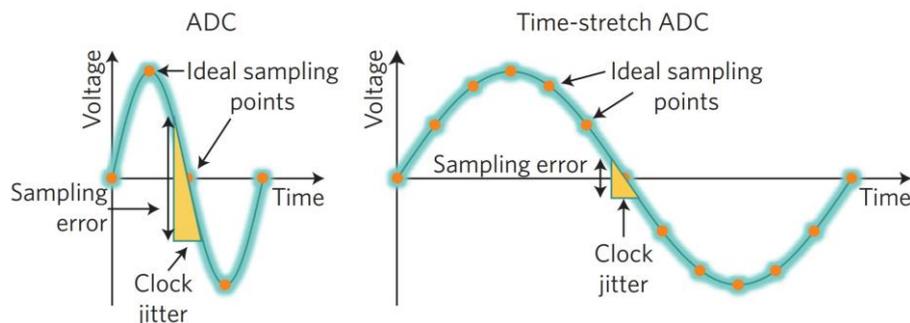


图 1.21 电子数字化瓶颈和时域拉伸的解决方案。

时域拉伸技术可以追溯到起初的与空间菲涅尔衍射类比的时域中实时色散傅里叶变换。1981 年华沙技术大学 Tomasz Jansson 等人在单模光纤中发现由于色散引起的时域自成像现象<sup>[148]</sup>，1983 年他结合空间菲涅尔衍射和色散导致的时域信号畸变，提出了实时离散傅里叶变换的概念<sup>[149]</sup>。1997 年 R. M. Fortenberry<sup>[150]</sup>，1999 年 Bahram Jalali<sup>[140]</sup>以及 J. Azaña<sup>[151]</sup>在实验中发现，色散后的锁模激光的光谱映射到了时域中，通过直接采集时域信号可以完成了光谱分析。

2000 年之后，研究者们不断对实时色散傅里叶变换或时域拉伸技术进行深入的研究和应用。渥太华大学 Jianping Yao 课题组利用啁啾光纤光栅，实现了基于锁模飞秒激光的时频映射<sup>[152,153]</sup>，啁啾微波脉冲的产生<sup>[154,155]</sup>和飞秒光谱整形<sup>[156,157]</sup>。2008 年，Bahram Jalali 课题组提出放大的离散傅里叶变换用于实时的光谱分析和测距<sup>[138,139,143]</sup>。2009 年，北京航空航天大学的夏海云和张春熹提出基于实时离散傅里叶变换的超快测距激光雷达，并在理论和实验中分析了色散系统中高阶色散的影响<sup>[141,142]</sup>。同年，Keisuke Goda、Kevin K. Tsia 和 Bahram Jalali 将时域拉伸技术用于超快二维成像，实现了比传统超快相机至少高出 1000 倍帧率的成像系统<sup>[144]</sup>。近十年以来，时域拉伸技术被应用到更多的超快探测领域，如记录锁模激光器锁模形成过程<sup>[158-162]</sup>、细胞超快成像和计数<sup>[163-172]</sup>。详细的应用举例将在下一节介绍。

实现时域拉伸技术的关键之一在于选择色散器件，目前使用的色散器件包括光纤、啁啾光纤布拉格光栅、波导阵列光栅和空间色散光栅等<sup>[136]</sup>。其中单模光纤和色散光纤表现出良好的线性色散，使得其在理论研究和实验中都得到广泛应用。并且在 1.5  $\mu\text{m}$  光纤通信波段，光源、光纤和调制器等设备器件成熟。

光纤中色散的特性可以通过折射率  $n(\omega)$  相对于光的角频率  $\omega$  的关系表现出来，当谐振频率远离光频率时， $n(\omega)$  可以由塞尔迈耶方程近似表示 (Sellmeier equation)<sup>[173-176]</sup>：

$$n^2(\omega) = 1 + \sum_{j=1}^a \frac{B_j \omega_j^2}{\omega_j^2 - \omega^2} \quad (1.6)$$

其中  $\omega_j$  是谐振频率,  $B_j$  为  $j$  级谐振强度, 研究范围内的所有材料的谐振包括在了上式中的求和符号中<sup>[177]</sup>。谐振频率和谐振强度可以由实验中光纤的色散曲线拟合至上式并取  $a = 3$  获得<sup>[178]</sup>。

超短脉冲的在光纤中传播, 光纤色散在起着至关重要的作用, 因为与脉冲相关的不同频率成分以  $c/n(\omega)$  给出的不同速度传播。在数学上, 光纤色散的影响是通过在脉冲频谱中心的频率  $\omega_0$  处展开成模式传播常数  $\beta$  的泰勒级数表示的:

$$\beta(\omega) = n(\omega) \frac{\omega}{c} = \beta_0 + \beta_1(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \beta_2(\omega - \omega_0)^2 + \dots \quad (1.7)$$

其中 
$$\beta_k = \left( \frac{d^k \beta}{d\omega^k} \right)_{\omega=\omega_0} \quad (k = 0, 1, 2, \dots). \quad (1.8)$$

$d$  为微分符号,  $\beta_1$  和  $\beta_2$  是与折射率  $n(\omega)$  有关的参量, 可以表示为:

$$\beta_1 = \frac{1}{v_g} = \frac{n_g}{c} = \frac{1}{c} \left( n + \omega \frac{dn}{d\omega} \right) \quad (1.9)$$

$$\beta_2 = \frac{1}{c} \left( 2 \frac{dn}{d\omega} + \omega \frac{d^2 n}{d\omega^2} \right) \quad (1.10)$$

$$\beta_3 = \frac{1}{c} \left( 3 \frac{d^2 n}{d\omega^2} + \omega \frac{d^3 n}{d\omega^3} \right) \quad (1.11)$$

其中  $n_g$  是群折射率,  $v_g$  是群速度。参量  $\beta_2$  为二阶模式传播常数, 表示群速度色散 (group-velocity dispersion, GVD), 与脉冲展宽有关,  $\beta_3$  为三阶模式传播常数, 表示三阶色散 (third-order dispersion, TOD)<sup>[174]</sup>。在光纤中, 常用的色散参量  $D$  是与  $\beta_2$  有关的:

$$D = \frac{d\beta_1}{d\lambda} = -\frac{2\pi c}{\lambda^2} \beta_2 = -\frac{\lambda}{c} \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \quad (1.12)$$

色散斜率为 
$$S = \frac{dD}{d\lambda} = \frac{4\pi c}{\lambda^3} \beta_2 + \left( \frac{2\pi c}{\lambda^2} \right)^2 \beta_3 \quad (1.13)$$

色散参量  $D$  和色散斜率  $S$  还是与光纤芯经、纤芯-包层折射率差和光纤横截面结构设计有关的。在实际用于中, 使用光纤的长度  $L$  和色散参量  $D$  的乘积可以得到光纤的色散值, 色散值越大, 将会导致超短脉冲的展宽越明显。

## 1.4.2 时域拉伸超快测距和成像的应用

### 超快测距

飞秒时域拉伸技术出现后, 在超快测距领域引发了革命性的进展。

2006 年光州科学技术学院 Sucbei Moon 提出基于色散傅里叶变换的光学相干层析技术 (OCT), 使用基于色散傅里叶变换的实时被动扫频<sup>[179]</sup>, 实现了远超传统基于扫描激光器的 OCT。如图 1.22, 利用产生的拉伸脉冲的预校准时间-波长关系, 可以用高速光电探测系统在时域中测量光谱干涉图。光源内部不包含任何运动部件, 因此, 它能够表现出非常高的有效扫频率。由于扫描机制是真正被动的, 频率-时间关系基本稳定, 不需要任何重新校准过程。该方案在 5 MHz 的线扫描速率时获得了轴向  $8 \mu\text{m}$  的距离分辨率。

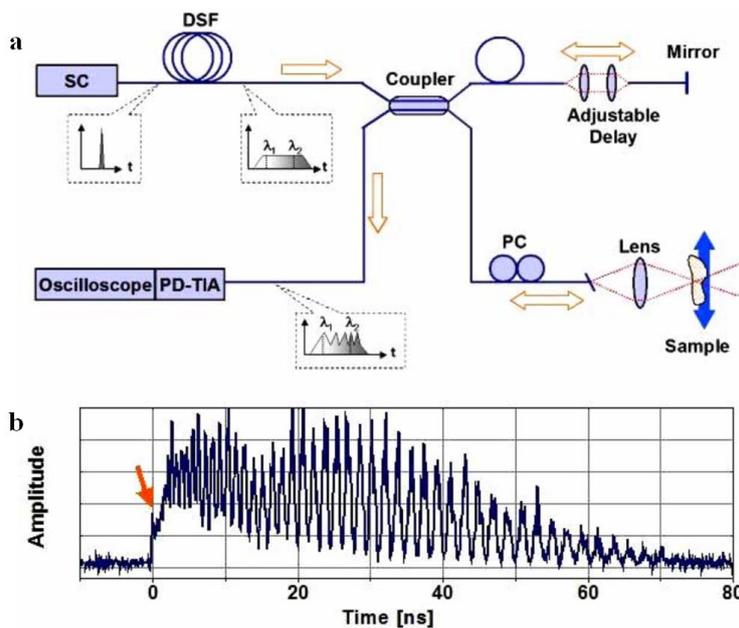


图 1.22 基于色散傅里叶变换的光学相干层析技术<sup>[179]</sup>。

2008 年 Bahram Jalali 课题组将分布式拉曼放大技术与光纤中色散傅里叶变换结合, 对色散光纤中的脉冲信号同时进行时域拉伸和功率放大, 这种内部放大克服了色散元件中与非本征传播损耗相关的有害光学损耗。即使使用高功率的泵浦光增加增益也可以最大程度避免非线性失真, 大大提高了测量信噪比和灵敏度。完成了 25 MHz 刷新速率的位移测量和条形码读取<sup>[143]</sup>。

2009 年夏海云等人提出基于实时色散傅里叶变换的马赫曾德尔干涉仪 (Mach-Zehnder interferometer, MZI), 用于实现距离的超快测量, 其原理图见图 1.23。在 48.6 MHz 的刷新速率下, 完成了动态测量范围为 8.17 mm, 标准误差为 334 nm 和平均误差为 85 nm 的高速高精度探测<sup>[142]</sup>。2010 年该团队提出了以非平衡色散补偿实时离散傅里叶变换中高阶色散的影响, 并验证了该方法探测高速振动目标的能力<sup>[141]</sup>。

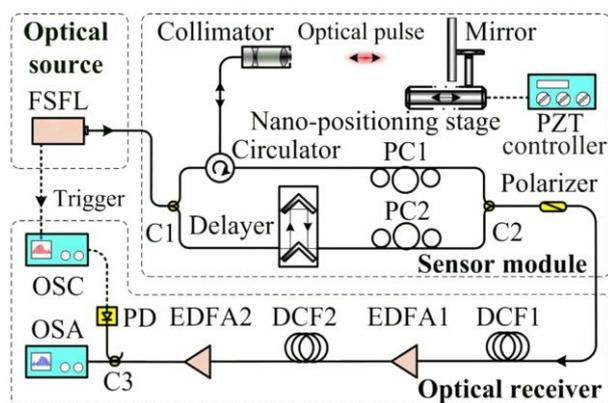


图 1.23 基于实时色散傅里叶变换的超快测距原理图<sup>[142]</sup>。

2018 年美国劳伦斯利弗莫尔国家实验室 Michelle Rhodes 等人报道了基于实时色散傅里叶变换干涉测距法<sup>[180]</sup>，提出了对爆炸驱动的高速运动物体的距离测量的应用方向，图 1.24 展示了其原理图。通过分析色散光纤的三阶色散对时频映射关系的影响，在数据分析时进行补偿，完成了 27 cm 动态范围内 30  $\mu\text{m}$  的测量精度。

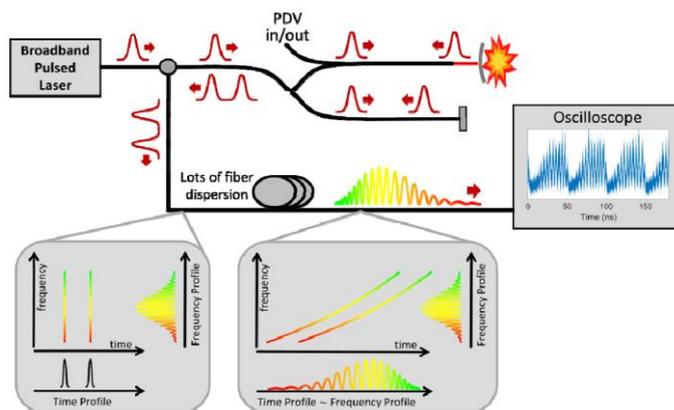


图 1.24 高速运动物体的超快位移测量<sup>[180]</sup>。

## 超快成像

实时色散傅里叶变换技术不仅推动了超快测距领域的发展，也为超快成像领域带来了革新，使得成像速度的世界纪录不断被刷新。

2009 年，Bahram Jalali 课题组结合空间色散和时域色散，提出了串行时间编码放大显微镜<sup>[144]</sup>。如图 1.25 所示，该方法将宽谱脉冲光源空间色散成二维探测阵列，探测阵列得到的图像信息被编码于时域拉伸后的光谱和脉冲中，通过使用单像素探测器和示波器采集时域信息，能够采集二维的图像信息。这种成像方法不需要电荷耦合器件来采集二维图像信息，大大提高了成像速度。实验中该成像技术能以 16.1 MHz 的帧率和 440 ps 的快门速度进行连续实时成像，同时还演示了超快的微流体流动和激光烧蚀过程中相爆效应的实时成像，对非重复瞬时现象的捕捉能力远超出商用的超快相机。

2012 年 Bahram Jalali 课题组将串行时间编码放大显微镜技术应用于超快微流体中的细胞的成像，通过结合自聚焦微流体技术、光电通信技术和信息技术，实现了前所未有的每秒 100,000 粒子的细胞成像速度<sup>[171]</sup>。

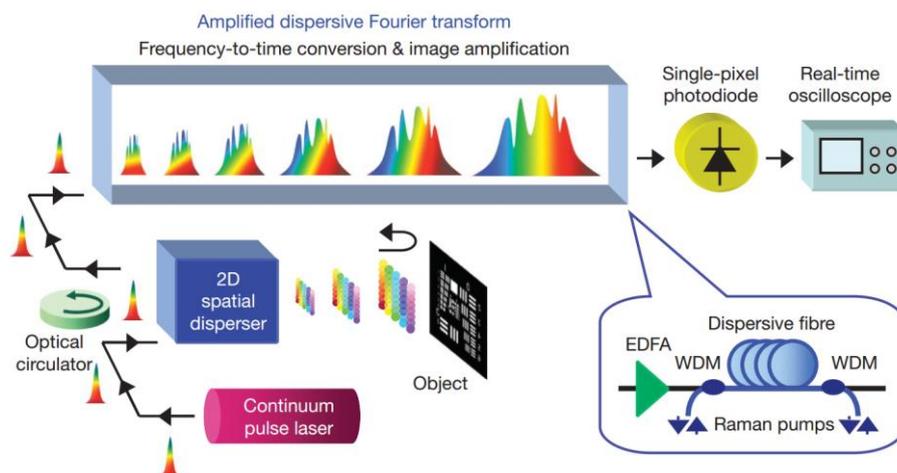


图 1.25 时域拉伸超快成像技术原理<sup>[144]</sup>。

2014 年日本东京大学 Keisuke Goda 课题组在时域拉伸超快成像技术的基础上，将单个脉冲在空间中分离成线列的多个探测脉冲，并通过线列的成像传感器进行探测。这种被称为连续定时全光学映射摄影(sequentially timed all-optical mapping photography)的超快成像技术打破记录，完成 4.4 万亿帧每秒的程序速率<sup>[147]</sup>，其原理图如图 1.26 所示。实验中完成捕捉等离子体动力学和晶格振动波，这两者以前很难用传统方法在单次拍摄中实时观察到。

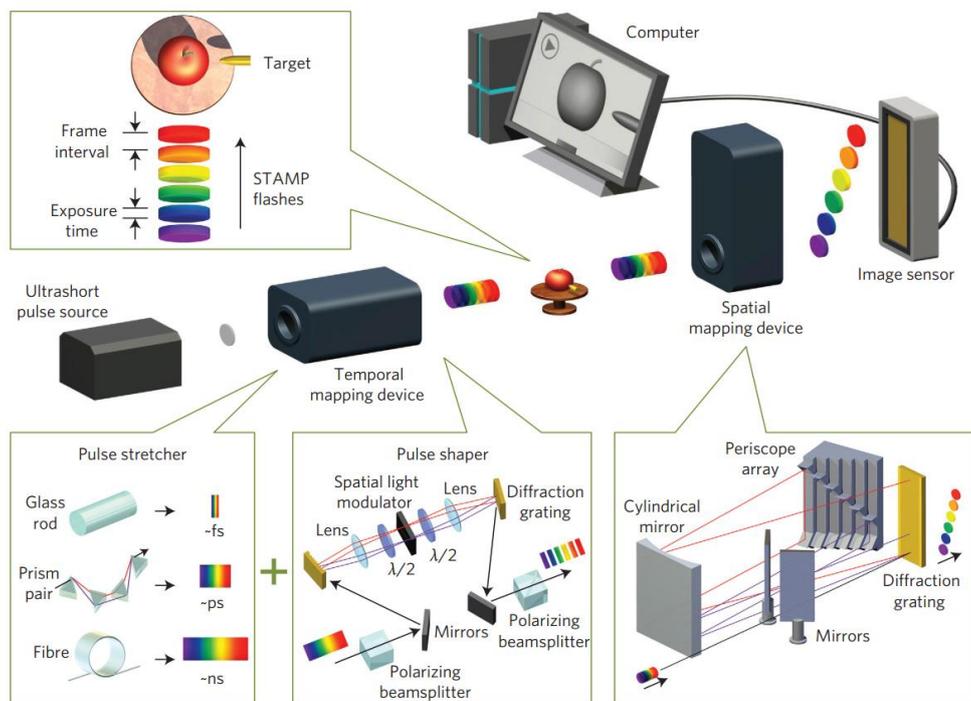


图 1.26 基于时域拉伸的顺序定时全光学映射摄影<sup>[147]</sup>。

2020年加州大学伯克利分校 Na Ji 课题组与香港大学 Kevin K. Tsia 课题组合作，提出基于自由空间角啾啾增强延迟（free-space angular-chirp-enhanced delay, FACED）的色散技术，结合双光子荧光显微镜，首次将时域拉伸成像技术应用于小鼠体内的神经活动<sup>[181]</sup>，原理见图 1.27。该技术清晰记录了清醒小鼠中神经元的自发和感觉诱发的阈上和阈下的电活动，成像帧率达 3000 帧每秒，空间分辨率亚微米级。

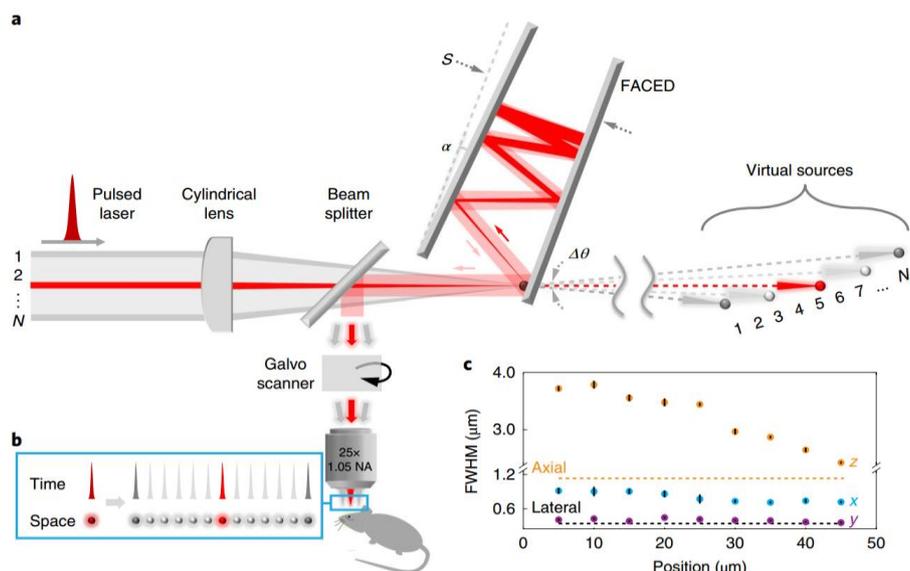


图 1.27 应用于小鼠神经活动观测的时域拉伸成像技术<sup>[181]</sup>。

### 1.4.3 时域拉伸超快光谱分析

实时的光谱测量提供了动态过程的宝贵信息，尤其是非重复现象，例如爆炸、燃烧、化学反应和激光在腔内形成过程等。传统的光谱仪扫描速度慢，无法实现快速测量。近些年迅速发展的双频梳光谱学虽然能够实现快速且分辨率高的光谱分析，但是由于 DCS 相当于被动扫描的傅里叶变换光谱学，完整的光谱信息至少需要在两个频梳的  $f/\Delta f$  个脉冲之间进行扫描完成，这使得双频梳光谱学无法实现单发脉冲的实时测量。时域拉伸技术的出现，为实时的光谱测量提供了可能。

2008 年基于时域拉伸的光谱技术实现了刷新速率为 1.25 MHz，光谱分辨率为 8 pm 的实时光谱探测<sup>[138]</sup>。

2016 年至今，这种可以实现单发脉冲的光谱测量技术在瞬时非重复现象领域发挥了重要作用，尤其是在锁模激光器的锁模状态建立期间的光谱动力学研究方面。尽管激光器锁模的技术已经很成熟，但是直接测量锁模过程一直都是一个挑战，尤其是锁模的时间尺度<sup>[158]</sup>。在这之前，通常根据自由运转激光器的射频测量来估计锁模过程的时间尺度，对各种自启动激光器的射频光谱分析表明，模式相干时间在 100  $\mu\text{s}$  范围内。同时，最终形成飞秒脉冲的临界状态是皮秒级的波动。对这种瞬态动力学进行时间和光谱分辨的研究尤其具有挑战性，因为跃迁

是非重复性的，并且是从噪声波动开始的，所以每个锁模事件代表一个具有独特光谱-时间特征的奇异事件。因此，不仅需要实时光谱分析的能力，还需要长时间的记录能力。

图 1.28 展示了由时域拉伸光谱仪直接记录的单次锁模过程的光谱-时间动力学结果，可以看出由很多皮秒的波动最终形成一个稳定的锁模飞秒脉冲。在这之后，更多的超快非线性现象也被揭开面纱，如飞秒孤子分子的动力学过程<sup>[160,182]</sup>和流氓波<sup>[183]</sup>。

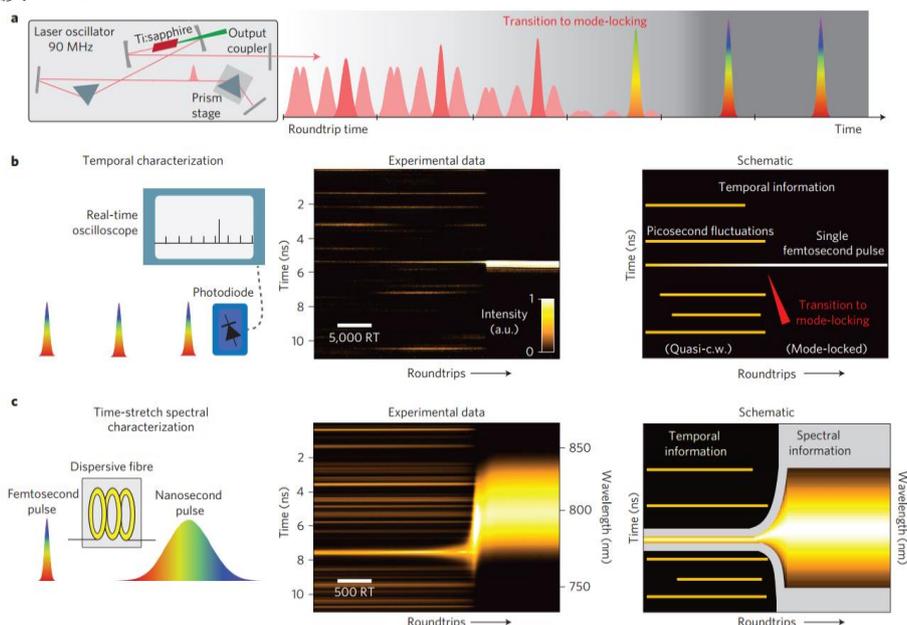


图 1.28 锁模飞秒脉冲的实时建立<sup>[160]</sup>。

除了揭示物理学中的瞬时超快光谱，时域拉伸光谱技术也能够胜任燃烧过程中超快化学成分变化的记录。2020年 J. G. Mance 等人基于时域拉伸光谱学记录了燃烧过程中乙炔和羟基自由基快速红外吸收光谱<sup>[184]</sup>，采集速率为 6.25 MHz。其原理如图 1.29 所示。在气体光谱的演化过程中，不仅包含了多种分子浓度的变化，而且包含了温度和压强的变化。未来该技术将在高压冲击波、炸药爆炸和燃烧冲击波的研究中发挥重要作用。

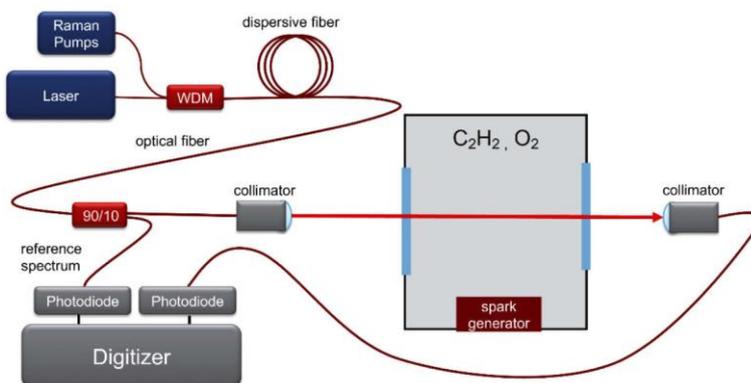


图 1.29 时域拉伸光谱学用于燃烧过程的光谱分析<sup>[184]</sup>。

2020 年中国科大实现基于时域拉伸超快光谱学<sup>[128]</sup>，完成了超快超高分辨率的 HCN 气体光谱分析，最快可实现 100 MHz 重复频率的单发脉冲探测，光谱分辨率 4.3 pm。

## 1.5 研究意义和论文主要内容

### 1.5.1 研究意义

飞秒激光因其独特的时频特征，不断推动着超快超精密探测领域的发展。在时域上，飞秒脉冲拥有超短的探测时间和超快的重复频率，在频域上，飞秒光频梳是超稳定的频率标准。飞秒时域拉伸技术和光频梳技术都在科学研究和实际应用中彰显了重要作用。时域拉伸技术将飞秒脉冲的探测能力发挥到了极致，不仅能够采集到超快的瞬时现象，而且通过将瞬时光谱信息在时域上展开，降低了探测器和电子学仪器的采样速度要求。稳定的光频梳为广泛的精密测量提供了时间和频率基准，构建了优于铯原子钟的全光原子钟<sup>[39]</sup>。基于飞秒激光的时频研究能够为物理学、化学和生物学等领域带来新的突破。1999 年飞秒化学、2005 年光频梳和 2018 年超短脉冲压缩放大技术的发明者们都被授予了诺贝尔奖，未来飞秒激光一定会带来更多领域的技术革新。

气体的光谱包含了气体的浓度、环境的温度和压强信息，在一些超快过程中记录气体的光谱变化能够更清晰的揭示其中的物理和化学现象。例如对发动机尾焰的实时光谱记录可以完成发动机各个工作阶段的气体成分分析，以及尾焰的温度和压强的分析，从而对发动机燃烧性能进行评估，对燃料配比进行优化<sup>[185]</sup>。建立能够运用于航空发动机尾焰的光谱分析技术是很大的挑战但也是国家的重大需求。



#### Fast Spectroscopic Temperature and Pressure Measurements Using a Time Stretch-Dispersive Fourier Transformation

STL-031-18 ■ Year 1 of 1

Jason Mance,<sup>1,\*</sup> Brandon La Lone,<sup>a</sup> Jonathan Madajian,<sup>a</sup> Eric Larson,<sup>a</sup>  
Mike Grover,<sup>a</sup> and Ruben J. Valencia<sup>a</sup>

<sup>1</sup>mancegj@nv.doc.gov, (805) 681-2366  
<sup>a</sup>Special Technologies Laboratory

图 1.30 2018 年美国能源部年度定向研发报告。

在 2018 年美国能源部的一份年度定向研发报告中<sup>[185]</sup>，基于时域拉伸-色散傅里叶变换的光谱分析技术被列为重要一节(图 1.30)。报告中指出燃烧过程的超快光谱分析的重要性，并计划采用时域拉伸光谱技术分析乙炔燃料的燃烧过程的组分的浓度变化，以及温度和压强的变化。2020 年能源部下属的特种实验室引用了本章中的基于时域拉伸光谱技术的超快气体探测工作，进一步进行了燃烧实验，并展望了其在高压冲击波和爆炸等过程的应用前景。

本文研究的目的是结合时域拉伸技术和光频梳光谱学，论证新概念的高精度、实时和单发脉冲探测的频梳光谱学，完成气体光谱的超快探测。实时的高精度光谱分析技术在超快探测领域至关重要，但目前仅仅使用时域拉伸技术或者光频梳技术的光谱分析方法都还存在不足。首先，基于时域拉伸技术的光谱法在时域中无法实现频梳梳齿分辨的高灵敏度探测；其次，基于双频梳的光谱分析方法无法实现单发脉冲的实时探测。同时实现频梳梳齿分辨和单发脉冲实时探测是一个挑战，但也是光频梳光谱学发展的重要一步。

### 1.5.2 论文主要内容

本文的研究对象是中心波长在 1550 nm 附近的飞秒脉冲和飞秒光频梳。

本文的基础理论是飞秒时域拉伸技术和光频梳光谱学。

本文的研究目的是开发基于飞秒时域拉伸技术和光频梳的超快和高精度光谱分析技术。

第一章 回顾了光频梳光谱学和飞秒时域拉伸技术。重点介绍了双频梳光谱学的发展和应用，特别是概述了单腔双频梳光谱学的出现和发展。重点介绍了飞秒时域拉伸技术在超快光谱学领域的应用。

第二章 基于飞秒光频梳的时域色散特性，提出了非平衡时域拉伸光谱学。针对超快气体探测的重要性，将非平衡时域拉伸光谱学应用于实时的气体光谱分析。

第三章 指出非平衡时域拉伸光谱学中宽带射频梳的数据采集、存储和处理的困难，提出基于微波光子学信号处理技术对宽带射频谱进行实时处理。发现该方案能够将任意光谱先干涉至电谱，再调制至设定的 1550 nm 附近的特点，由此提出一种可以实现任意光谱转换至 1550 nm 附近的超分辨光谱仪。

第四章 提出低采样带宽的多外差光频梳光谱学。研究了扫描单频光与光频梳拍频的特征，提出时域拉伸技术对光频梳自拍频的抑制作用，利用光频梳参考的扫描单频光实现低采样需求的多外差光频梳光谱学。

第五章 提出基于时域拉伸的光谱时域选通技术在气体光谱分析激光雷达领域的应用前景。展望了微型化色散器件和光频梳在光谱分析领域的应用前景。

第六章 回顾论文主要内容，总结论文的创新点，展望论文的后继研究工作。

## 第二章 基于飞秒非平衡时域拉伸光谱学的超快气体探测

针对超快气体光谱探测的重要性，本章将论证一种新概念的时域拉伸光谱学，不仅能够完成实时光谱分析，而且能够实现频梳齿分辨的高灵敏度和高光谱分辨率。将时域拉伸技术和光频梳技术的结合是关键的理论创新，本章将先介绍飞秒光频梳经时域拉伸后的时频映射关系，再介绍搭建的用于超快气体探测的非平衡时域拉伸光谱学。

### 2.1 时域拉伸后光频梳的时频映射关系

色散的引入即时域拉伸将导致飞秒脉冲的展宽，展宽后的脉冲与光谱形成映射关系。本文讨论的色散傅里叶变换都是满足远场条件<sup>[186]</sup>，即类比于空间衍射中的夫琅禾费衍射条件<sup>[186]</sup>，引入的大色散量可以将频率分量在时域上分开。对于飞秒光频梳，其频率分量是一个一个分散的单纵模，单纵模之间的间隔为频梳的重复频率  $f_{rep}$ 。如图 1.21 所示，当引入足够大的色散时，不仅完成了时域脉冲包络与光谱的映射，而且可以将时域拉伸后的频梳齿在时域上看作是一一分开。相邻梳齿在时域上分开的延时为  $DLc/f_{rep}$ ，其中  $c/f_{rep}$  是梳齿间隔的波长表示。

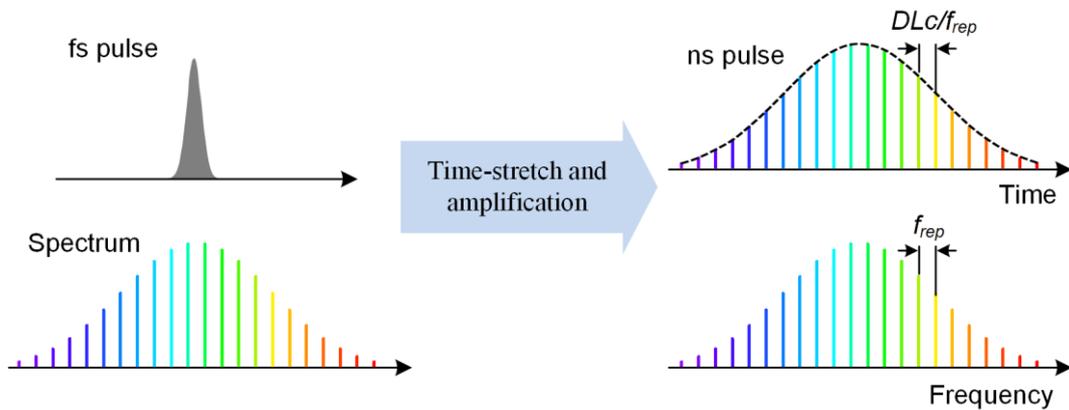


图 2.1 飞秒脉冲经时域拉伸前后的时频映射关系。

考虑到双频梳光谱学的特征，两个频梳拥有微小的重频差，在频域中拍频形成光频梳至电频梳的转换。如果在时域中引入不同的色散，梳齿在时域上的间隔也会出现微小的差异。这种差异虽然与频梳的微小重频差不同，但同样可以产生将光频梳信息转换至射频梳的功能，这一功能将在 2.2 节中的非平衡时域拉伸中介绍。此外，时域拉伸后的光频梳齿有望在时域上被一一选择性通过，这在频域上是很难被滤波出来的。

## 2.2 非平衡时域拉伸干涉仪

### 2.2.1 平衡与非平衡时域拉伸的干涉对比

单个飞秒频梳的脉冲经时域拉伸后的时频映射关系已在图 2.1 展示，当另一个脉冲也经相同色散值的时域拉伸后，两个脉冲中的频率分量在时域中展开的示意图见图 2.2a。其中的探测脉冲中包含的特征为目标气体的吸收线。这种具有相同色散值，即平衡色散的脉冲进行相干探测时，能够产生图 2.2a 中的非啁啾的时域干涉条纹。电频域非啁啾的干涉条纹经傅里叶变换后，形成窄带的电频谱，这种窄带的电频谱的频率信息反映了两个脉冲之间的延时，因此可以作为距离测量的表征，而无法表现光谱信息。

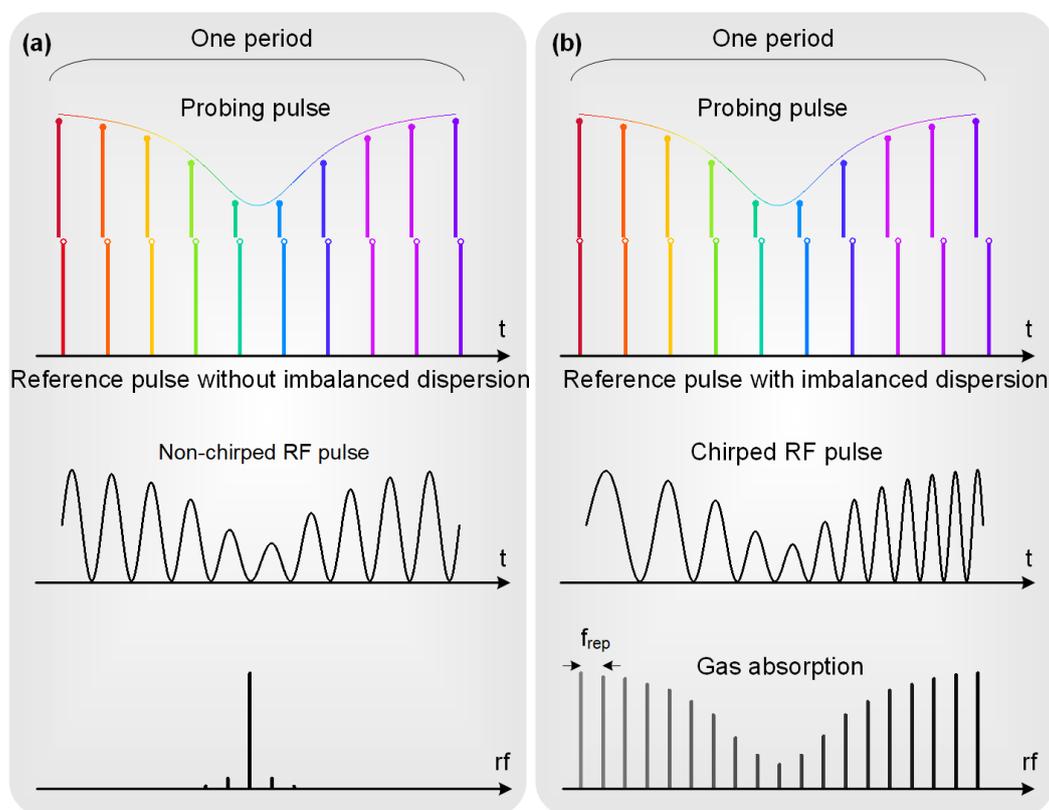


图 2.2 平衡与非平衡时域拉伸的干涉对比。

图 2.2b 展示了非平衡时域拉伸干涉的现象，参考脉冲与探测脉冲经历和不同色散值的时域拉伸。若探测脉冲中引入的色散值为  $DL$ ，参考脉冲中引入的色散值为  $D(L+\Delta L)$ ，那么两个脉冲中的频率分量在时域中被拉开的时间将出现微小的差异  $D\Delta Lc/f_{rep}$ 。由于这种微小重频差异的存在，时域中两个脉冲在干涉时进行了相互的光谱采样，形成了啁啾的时域干涉条纹。对啁啾的时域干涉条纹进行傅

里叶变换后,有趣的现象出现了,探测脉冲中的待测吸收线特征映射到了电频谱中,完成了光频梳至射频梳的下转换。我们将这种方法称为飞秒非平衡时域拉伸光谱学。FITSS 中脉冲的相互采样与双频梳光谱学 (DCS) 非常类似,并且光频梳至射频梳的转换功能也与 DCS 类似。区别之一在于,DCS 的脉冲之间的采样需要公式 1.3 中  $M$  个脉冲完成,而 FITSS 仅需单个脉冲与单个脉冲进行干涉采样。区别之二在于,DCS 产生的射频梳梳齿间隔为  $\Delta f_{rep}$ ,而 FITSS 产生的射频梳梳齿间隔为  $f_{rep}$ 。

### 2.2.2 基于 Optiwave 光学建模软件的色散参数优化

上一小节中介绍了 FITSS 的原理,本小节中进行 FITSS 的光学建模,分析系统的色散系数对干涉结果的影响。基于 Optiwave OptiSystem 7.0 光学建模软件搭建的非平衡时域拉伸干涉仪如图 2.3 所示,干涉仪的基本结构为光纤马赫曾德尔干涉仪 (MZI)。飞秒光频梳重频为 100 MHz,中心波长设置在 1553.33 nm,经 0.5 nm 带宽高斯滤波后进入时域拉伸模块,该模块由色散光纤和光纤放大器组成,色散光纤的长度  $L$ 、色散系数  $D$  和色散斜率  $S$  分别设置为 80 km、-164.9 ps/nm/km 和 -0.5775 ps/nm<sup>2</sup>/km。色散后的脉冲进入 MZI 的探测臂和参考臂,探测臂中包含一由滤波器代替的光谱吸收特征,参考臂包含额外的色散光纤,长度为  $\Delta L$ 。MZI 中探测脉冲和参考脉冲合束进入光电探测器,最后由射频频谱分析仪采集电频谱。

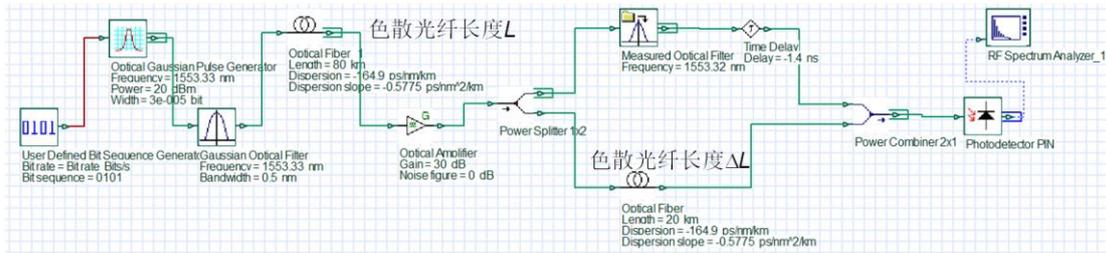


图 2.3 非平衡时域拉伸干涉仪的仿真光路图。

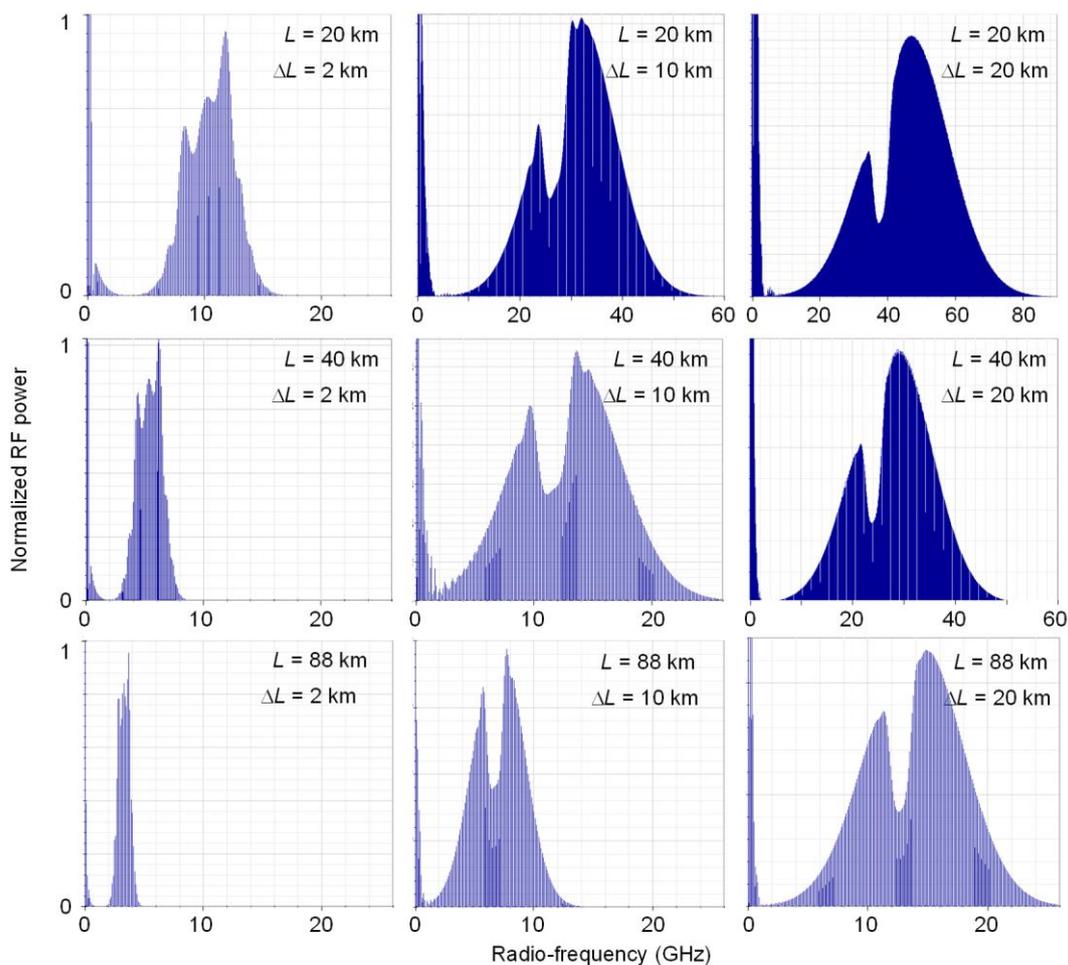


图 2.4 不同色散光纤的长度对干涉结果的影响。

干涉仪中存在的两部分色散光纤影响着 FITSS 的性能，通过改变长度  $L$  和  $\Delta L$  来模拟输出的电频谱，部分参数的输出结果如图 2.4 所示。随着  $L$  的不断增大（图中由上到下），MZI 输出的电频谱不断变窄，降低采样带宽；随着  $\Delta L$  的增加，电频谱带宽增加，且待测的吸收特征在电频谱中不断展开。较小的  $\Delta L$  会导致频谱中获得的吸收特征震荡，但较大的  $\Delta L$  会使得电频谱的带宽增加，这时候就需要增加  $L$  来降低电频谱的带宽。因此我们需要在时域拉伸模块和参考臂的非平衡色散中都使用大的色散值，最终优化的实验参数为  $L = 88 \text{ km}$ ,  $\Delta L = 20 \text{ km}$ ，将气体的吸收光谱映射在  $25 \text{ GHz}$  的射频谱中，射频谱中频梳的梳齿间隔为  $100 \text{ MHz}$ 。

### 2.2.3 高阶色散对时域拉伸干涉测量的影响

时域拉伸系统中的二阶色散也就是群速度色散使得光频梳中的每个频率分量在时域上线性展开，但高阶色散会引起时频映射关系的非线性，是必须要被考虑的。基于时域拉伸中的瞬时频率理论，考虑到三阶色散，仿真中 MZI 的探测

脉冲和参考脉冲的瞬时频率 ( $\omega_p$  和  $\omega_r$ ) 可以表示为:

$$\omega_p(t) = t/\beta_2 L - \beta_3 L t^2 / 2(\beta_2 L)^3 \quad (2.1)$$

$$\omega_r(t) = (t-\tau)/\beta_2(L+\Delta L) - \beta_3(L+\Delta L)(t-\tau)^2 / 2[\beta_2(L+\Delta L)]^3 \quad (2.2)$$

其中,  $\omega_p$  和  $\omega_r$  为相对脉冲中心频率的光角频率,  $t$  为相对的群延时时间,  $\tau$  为探测脉冲和参考脉冲的相对延时,  $\beta_2$  和  $\beta_3$  分别为二阶和三阶模式传播常数, 详细表达式见公式 1.10 和 1.11。MZI 干涉仪输出的拍频信号可以有公式 2.1 和 2.2 计算:

$$\omega_f(t) = |\omega_p(t) - \omega_r(t)| \quad (2.3)$$

公式 2.3 中的拍频信号可以分为线性色散引起的拍频  $\omega_s$  和三阶色散引起的拍频  $\omega_T$ , 可以分别表示为:

$$\omega_s(t) = t/\beta_2 L - (t-\tau)/\beta_2(L+\Delta L) \quad (2.4)$$

$$\omega_T(t) = \beta_3(L+\Delta L)(t-\tau)^2 / 2[\beta_2(L+\Delta L)]^3 - \beta_3 L t^2 / 2(\beta_2 L)^3 \quad (2.5)$$

在上一节的仿真实验中, 设置的色散光纤参数分别为色散系数  $D = -164.9$  ps/nm/km 和色散斜率  $S = -0.5775$  ps/nm<sup>2</sup>/km。由公式 1.12 和 1.13 可求得色散光纤的二阶和三阶传播模式常数分别为  $\beta_2 = 210$  ps<sup>2</sup>/km 和  $\beta_3 = -1.289$  ps<sup>3</sup>/km。代入上一节优化后的色散光纤长度, 给出滤波后飞秒光频梳的光谱范围为 0.9 nm, MZI 中两臂的延时  $\tau$  为 25 ps。则可根据公式 2.4 计算出由线性色散引起的拍频信号的频率啁啾范围为 1.10 GHz 至 21.91 GHz, 根据公式 2.5 计算出由三阶色散引起的频率啁啾范围为 3.73 kHz 至 82.19 MHz。可以看出三阶色散引起的频率啁啾远小于线性色散的, 忽略三阶色散引入的系统误差小于 0.39%, 因此为了分析的简单, 在实验中不考虑三阶色散的影响。

## 2.3 超快气体探测实验

### 2.3.1 实验设计

根据 2.2.2 小节中光学建模后的优化结果, 我们设计了如图 2.5 所示的 FITSS 超快气体探测实验光路。光路图中标记点位置的时域脉冲和光谱的映射关系, 在图 2.6 的时频空间中表示。光源采用的是重频为 100 MHz 的光纤飞秒激光器, 光谱范围覆盖 1500-1650 nm, 见图 2.5a 和 2.6a。由于 C 和 L 波段包含大量气体吸收特征, 因此该飞秒激光器可以用于宽光谱的多种气体探测。首先, 飞秒光谱由可编程滤波器挑选光谱范围后对目标气体进行探测 (图 2.5b 和 2.6b), 测量不同的气体吸收特征仅需调节可编程滤波器的滤波范围即可, 实验中测量单条吸收线

的滤波范围为 0.9 nm。接着，飞秒脉冲进入时域拉伸和放大模块，2.2.2 小节中优化的时域拉伸系统的色散补偿光纤（DCF）长度为 88 km，这些色散补偿光纤引入的插入损耗约为 65 dB，因此在时域拉伸模块中必须要使用掺铒光纤放大器（EDFA）进行能量的放大。并且由于 EDFA 的增益有限，实验中需要 3 个 EDFA 进行多级的时域拉伸和放大，色散并放大后的时频映射关系见图 2.6c。经时域拉伸后的脉冲包络会受到色散光纤的透过率以及 EDFA 的不平坦增益的影响，并且在后续的傅里叶变换中，我们希望使用接近高斯脉冲来抑制窗口带来的边带响应，因此我们需要对展宽后的脉冲进行调制。由于时域拉伸后的光谱和脉冲形成映射关系，对于脉冲或者光谱进行调制会得到一样的效果，在这里我们采用强度调制器对脉冲的包络进行调制，形成高斯脉冲包络（图 2.6d）。强度调制波形由信号发生器输出的波形控制。

高斯脉冲包络进入到光纤 MZI 中，分为探测脉冲和参考脉冲（图 2.6e 和 2.6f），探测脉冲进入包含目标气体的腔内，目标气体为氰化氢的同素异形体  $\text{H}^{13}\text{CN}$ ，气体腔长度为 48 cm，压强为 100 torr；参考脉冲经过额外的色散光纤，形成非平衡时域拉伸，采用的色散光纤长度为 20 km。探测脉冲和参考脉冲的相对延时由参考臂中的光学延时器调节。两个脉冲都经偏振控制器（polarization controller, PC）和起偏器（polarizer）进行偏振调节，增加干涉条纹的对比度。最后经耦合器耦合后进入探测器，产生的干涉信息由示波器接收（图 2.6g），并进行傅里叶变化得到射频谱（2.6h）。图 2.6h 中包含了存在气体吸收时和不存在气体吸收时的射频谱，通过比较两个频谱，可以得到归一化的气体吸收特征。

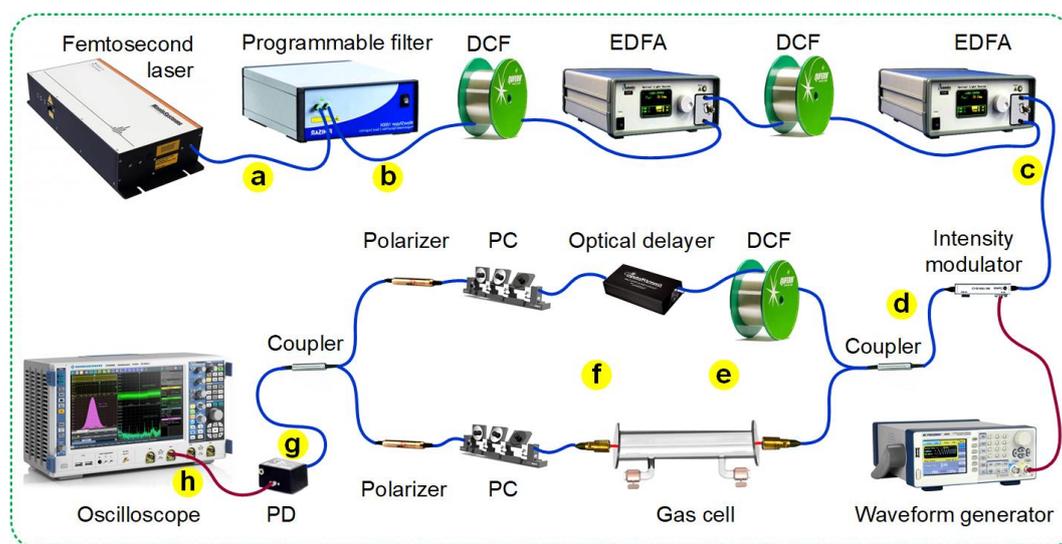


图 2.5 FITSS 超快气体探测实验光路。

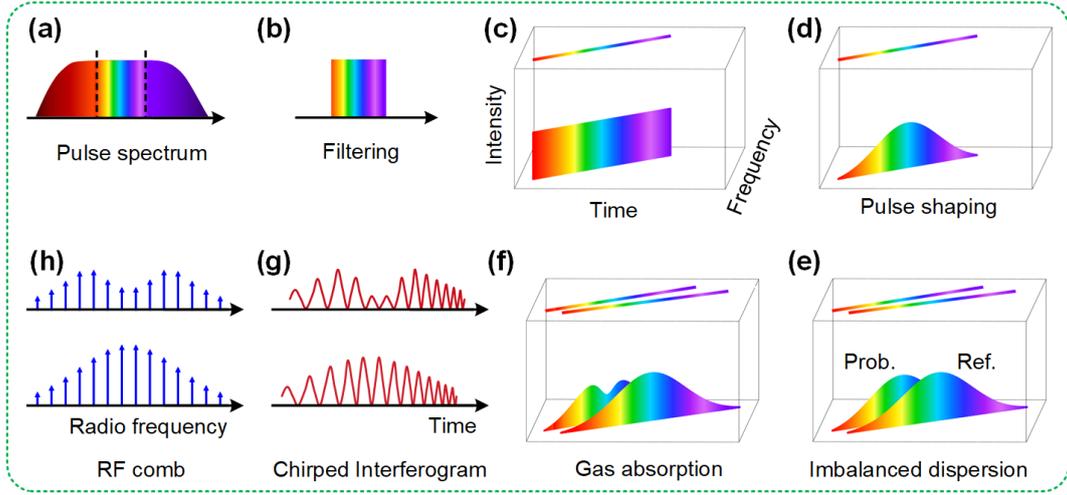


图 2.6 与图 2.5 中标记点对应的时频空间映射关系图。

为了便于理解调制后的高斯脉冲在 MZI 中的传输过程，我们引入色散后的复光谱和脉冲函数对干涉的过程进行解释。首先，调制后的高斯脉冲的光谱能量可以表示为  $I(\omega) = G_G(\omega)$ ，其中  $G_G(\omega)$  为高斯脉冲函数，目标气体的吸收光谱特征为 Voigt 线型，表示为  $G_V(\omega)$ 。因此在 MZI 中探测脉冲和参考脉冲的光谱能量可以分别表示为：

$$I_p(\omega) = G_G(\omega)[1 - G_V(\omega)] \quad (2.6)$$

$$I_r(\omega) = G_G(\omega) \quad (2.7)$$

则他们的复光谱函数可以分别写为：

$$a_p(\omega) = [I_p(\omega)]^{0.5} \varphi(j\omega) \quad (2.8)$$

$$a_r(\omega) = [I_r(\omega)]^{0.5} \varphi(j\omega) \quad (2.9)$$

经过时域拉伸后的脉冲相当于光谱经傅里叶变换，忽略时域拉伸过程中的高阶色散，探测脉冲和参考脉冲的复脉冲函数为：

$$a_p(t) = h_p \exp(jt^2/2\beta_2 L) [a_p(\omega)]_{\omega=t/\beta_2 L} \quad (2.10)$$

$$a_r(t) = h_r \exp[j(t-\tau)^2/2\beta_2(L+\Delta L)] [a_r(\omega)]_{\omega=(t-\tau)/\beta_2(L+\Delta L)} \quad (2.11)$$

其中  $h_p$  和  $h_r$  为两脉冲的复振幅，表示为：

$$h_p = H_0 (j2\pi\beta_2 L)^{-0.5} \exp(-j\beta_0 L) \quad (2.12)$$

$$h_r = H_0 [j2\pi\beta_2(L+\Delta L)]^{-0.5} \exp[-j\beta_0(L+\Delta L)] \quad (2.13)$$

其中， $H_0$  为光纤透过率常数， $\beta_0$  为零阶模式传输常数。为了简化方程的表示，引入  $C_p = h_p \exp(jt^2/2\beta_2 L)$  和  $C_r = h_r \exp[j(t-\tau)^2/2\beta_2(L+\Delta L)]$ ，则公式 2.10

和 2.11 可以写作：

$$a_p(t) = C_p [G_G(t/\beta_2 L)]^{0.5} [1 - G_V(t/\beta_2 L)]^{0.5} \exp[j\varphi(t/\beta_2 L)] \quad (2.14)$$

$$a_r(t) = C_r \{G_G[(t-\tau)/\beta_2(L+\Delta L)]\}^{0.5} \exp\{j\varphi[(t-\tau)/\beta_2(L+\Delta L)]\} \quad (2.15)$$

接着，探测脉冲和参考脉冲经合束后进入到探测器，MZI 相干探测产生的相干项的响应电流如图 2.6g 所示，可以表示为：

$$i(t) = [G_E(t)]^{0.5} [1 - G_V(t/\beta_2 L)]^{0.5} \cos[\omega_f(t)t] \quad (2.16)$$

其中  $G_E(t) = |C_p| |C_r| G_G[(t-\tau)/\beta_2(L+\Delta L)] G_G(t/\beta_2 L)$  为无气体吸收的包络。

$|C_p| = H_0 (2\pi\beta_2 L)^{-0.5}$  和  $|C_r| = H_0 [2\pi\beta_2(L+\Delta L)]^{-0.5}$  为常数。 $\omega_f(t) = |\omega_p(t) - \omega_r(t)|$  为拍频的频率，可见公式 2.3。由公式 2.1 和 2.2，可将拍频频率写为：

$$\omega_f(t) = t/\beta_2 L - (t-\tau)/\beta_2(L+\Delta L) \quad (2.17)$$

当 MZI 中不存在非平衡色散时，即  $\Delta L = 0$  时，MZI 输出的拍频是一个与延时有关系的常数  $\omega_f = \tau/\beta_2 L$ 。当  $\Delta L$  不为 0 时，MZI 输出的拍频是与时间相关的啁啾频率，射频频率范围为  $\omega_f(t_{\min})$  至  $\omega_f(t_{\max})$ 。通过对公式 2.16 中的探测器的响应电流进行傅里叶变换，我们可以发现得到的射频谱中包含气体吸收特征，如图 2.6h 所示。

### 2.3.2 超快探测结果

MZI 干涉仪输出的周期性时域干涉图如图 2.7 所示，图 2.7a 中是在无气体腔时探测的参考信号，用于对图 2.7b 中的有气体吸收特征的结果进行归一化。由于飞秒激光器的重频为 100 MHz，时域干涉图的周期与飞秒激光的周期一致，为 10 ns，也就是说 FITSS 实现了单发脉冲的实时探测，单个周期内的探测结果已经包含了完整的气体吸收特征。相比于图 1.10 展示 DCS 方法，FITSS 不需要  $f_{\text{rep}}/\Delta f_{\text{rep}}$  个探测脉冲和参考脉冲进行相互采样，而是单个探测脉冲和参考脉冲进行相干探测。因此获得了比 DCS 高几个数量级的探测速度。

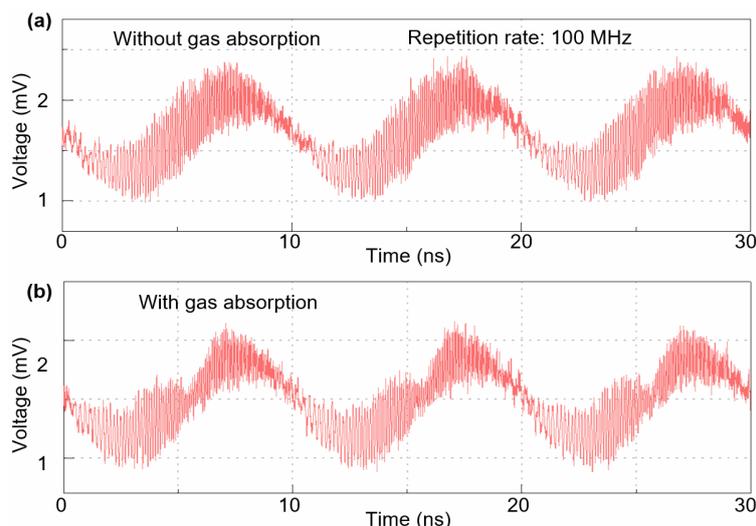


图 2.7 周期性的时域干涉条纹。(a) 无气体吸收的参考；(b) 有气体吸收。

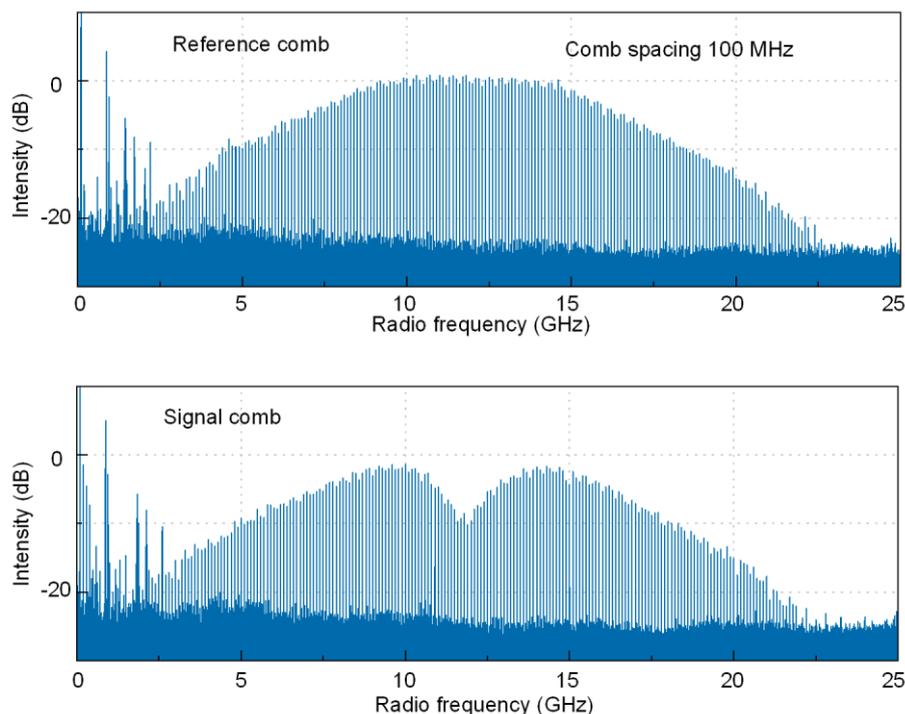


图 2.8 时域干涉条纹傅里叶变换后的射频谱，频梳间隔为 100 MHz。

对图 2.7 中的时域干涉图进行傅里叶变换，得到了图 2.8 中的梳齿分辨的射频谱。图 2.8a 为无气体吸收的参考频梳，2.8b 为有气体吸收的信号频梳。频梳的梳齿间隔为 100 MHz，这与出射的飞秒光频梳的梳齿间隔一致。气体吸收特征包含在信号频梳的顶点中，通过与参考频梳的归一化，便可以获得。虽然我们在图 2.8b 中的时域干涉图中也可以获得气体吸收特征，但是由于时域采集中高频采样会带来传输和存储困难。所以我们进行了进一步的傅里叶变换，产生的射频梳也是非常有趣的现象，相当于我们实现了光频梳至射频梳的光谱信息下转换。

在 DCS 中，这需要两个光频梳才能实现的功能，我们通过一个光频梳结合时域拉伸技术实现了。

值得一提的是，实验中探测脉冲和参考脉冲来自同一激光器，具有固有的相干性，因此实验中的飞秒光频梳采用自由运行状态，不需要复杂的锁相控制电路来稳定重频和偏频。相比于 DCS 极大简化了实验装置，拥有更好的抗干扰能力和长时间探测的能力。

根据压强为 100 torr 的  $\text{H}^{13}\text{CN}$  的吸收谱线模型，我们可以用 Voigt 函数对原始光谱进行拟合，如图 2.9 所示，我们选择了中心波长为 1547.43 nm（中心频率 193.736 THz）的 P7 吸收线进行 Voigt 线型拟合。图 2.10a 展示了原始光谱与拟合后吸收线的对比，二者残差的统计标准差为 0.027。拟合后的吸收线作为 FITSS 方法的测量结果与光谱仪进行了对比，如图 2.9b 所示，光谱仪测量结果在峰值位置比 FITSS 稍低，这是因为光谱仪分辨率（0.02 nm，2.5 GHz）较低导致的峰值位置分辨差。本实验中 FITSS 的光谱分辨率为 540 MHz，光谱分辨率是与电频梳梳齿间隔 100 MHz 形成对应关系，同时也受到系统中的色散光纤长度  $L$  和  $\Delta L$  控制，下一小节中将详细讨论他们的关系。由光谱仪获得 0.9 nm 范围的单条吸收线所需时间约 1s，但是 FITSS 采集单条吸收线的时间为 250  $\mu\text{s}$ ，并且是累积 25,000 发脉冲获得的，可见 FITSS 在超快光谱分析领域有很大的应用前景。

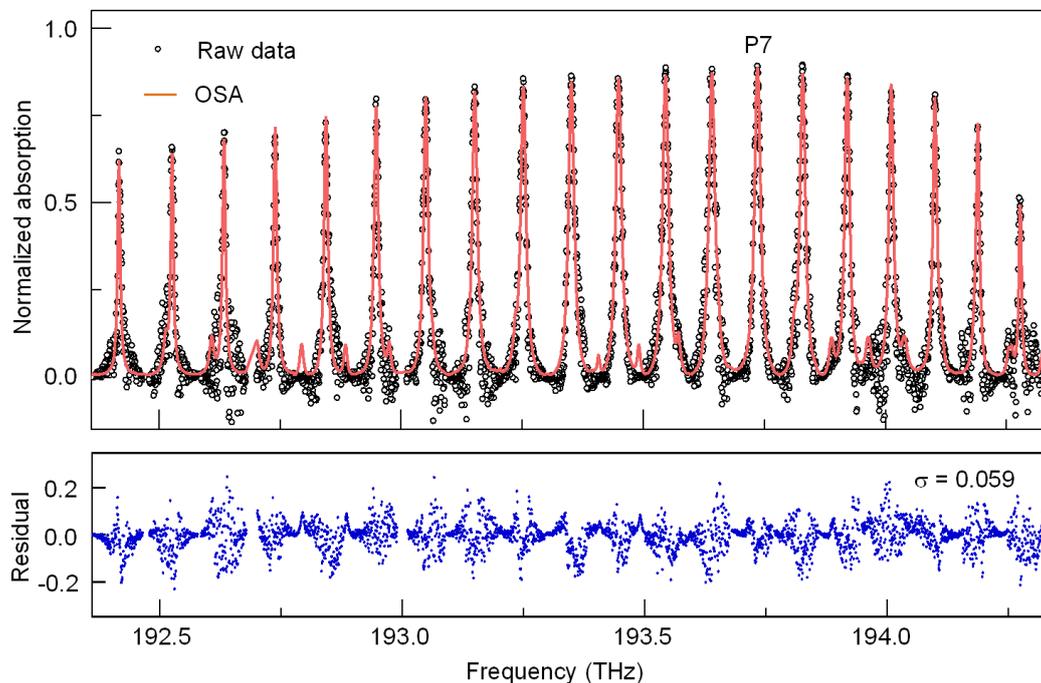


图 2.9 FITSS 采集的款光谱范围气体吸收特征。

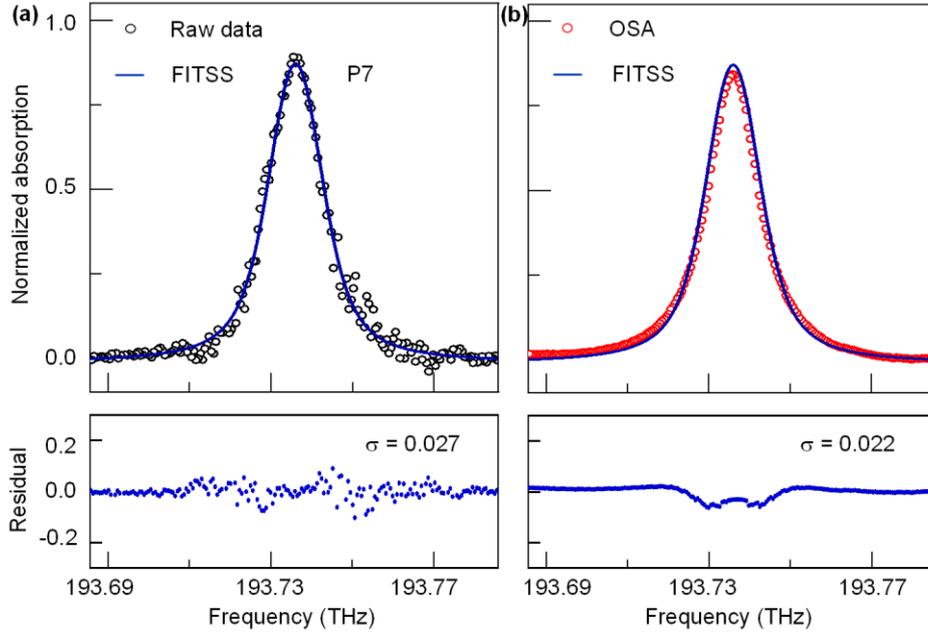


图 2.10 原始光谱的 Voigt 线型拟合。

### 2.3.3 光谱压缩系数和分辨率

在 1.3.1 小节和公式 1.3 中介绍了双频梳光谱学的光谱压缩特征，即光谱范围为  $f_{comb}$  的频梳经 DCS 干涉测量后，下转换至射频梳的频谱范围被压缩为  $f_{comb}/M$ ， $M$  被称为压缩系数。DCS 中的光频梳与射频梳形成一一对应的关系，射频梳中梳齿间隔  $\Delta f_{rep}$  对应光频梳中的梳齿间隔  $f_{rep}$ ，将获得的射频梳频谱范围乘以压缩系数  $M$  就可以恢复待测光谱，因此其光谱分辨率也就是  $\Delta f_{rep}M = f_{rep}$ 。

在 FITSS 中，同样存在光谱压缩特征。上一小节中测量的单条吸收线的光谱范围为 0.9 nm (112.5 GHz)，FITSS 输出的电频谱范围约为 21 GHz。由公式 2.3 和 2.4 给出的拍频时频方程可知，当输入的光谱范围为 0.9 nm，MZI 两臂延时为 25 ps 时，输出的电频谱范围为 1.10 GHz 至 21.91 GHz，光谱压缩系数  $M'$  可由此计算为 5.4。因此，在图 2.8 中得到射频谱的气体吸收特征后，射频谱的范围乘以压缩系数便可以恢复光谱域的气体吸收线。压缩系数决定着射频谱的范围，影响着 FITSS 对采集带宽的要求，通过增大压缩系数，可以降低采样带宽。如图 2.5 所示的仿真结果以及公式 2.3 和 2.4，通过增加色散光纤长度  $L$  可以缩小射频谱的范围，即提高压缩系数。

FITSS 的光谱分辨率同样与压缩系数相关，在图 2.8 的频谱中梳齿间隔为  $f_{rep} = 100$  MHz，将射频梳恢复至光频梳需要乘以压缩系数 5.4，所以恢复的光谱中梳齿间隔为 540 MHz，即 FITSS 的光谱分辨率为  $Mf_{rep}$ 。显而易见的是，提高光谱分辨需要降低压缩系数或者降低重复频率，但降低压缩系数意味着更高的采样带宽，增加数据采集和处理的难度。因此通过降低重复频率来提高光谱分辨率是

可行的，此时光谱分辨率和光谱采集速度将是相互制约的。对于有高精度要求而无快速探测速度要求的光谱分析中，可以通过在光路中的强度调制器降低重复频率，实现提高光谱分辨率的目的，例如重频降至 1 MHz 时，光谱分辨率将达到 5.4 MHz。对于有高速探测需求的光谱分析中，不能以牺牲重复频率来提高分辨率，本实验中 FITSS 最高可以 100 MHz 的采集频率捕捉光谱信息。

### 2.4 小结

1. 根据飞秒时域拉伸原理分析光频梳在时域拉伸过程中的特殊情况，并对比了干涉仪中引入相等（平衡）和不相等（非平衡）的色散时，相干探测的过程和结果的区别，由此引出非平衡时域拉伸干涉仪。

2. 采用 Optiwave OptiSystem 7.0 软件进行了光学建模，分析了不同色散光纤长度对 FITSS 输出结果的影响，得到了优化的色散光纤参数。并根据仿真中设计的光纤参数讨论了高阶色散对 FITSS 的影响。

3. 进行了  $\text{H}^{13}\text{CN}$  气体吸收谱线的超快探测实验，分析了实验过程中脉冲的演化，验证了 FITSS 单发脉冲实时探测的能力。

4. 进一步讨论了 FITSS 中的光谱压缩系数、光谱分辨率和探测速度的相互制约关系。

### 第三章 基于光谱映射的宽光谱分析技术

时域拉伸技术实现了光谱至时域的映射，FITSS 完成了光谱至电谱的映射。本章在已论证的 FITSS 方法基础上，提出一种将任意光谱映射至特定光谱范围进行分辨的光谱技术，并从仿真和实验中验证了宽光谱映射的特征和高分辨的潜力。这一章涉及的关键技术为微波光子学<sup>[187]</sup> (microwave photonics) 信号处理技术。

#### 3.1 传统光栅光谱仪发展的瓶颈

光栅光谱仪作为高分辨率、宽光谱范围和高可靠性的光谱分析仪器，已经是光学实验室必备的基础设备。光栅光谱仪的分辨率受到衍射光栅的分辨本领和狭缝大小的限制（如图 3.1），衍射光栅分辨本领随着光栅线色散和衍射级次的增大而增大，另外狭缝会导致光谱的展宽，使得光谱仪无法达到理论分辨率。目前商用的光栅光谱仪在可见光波段和近红外 800-1700 nm 范围可以实现 0.02 nm 分辨率，在 2.0-3.0  $\mu\text{m}$  以上可以实现 0.1 nm 分辨率，在 5.0  $\mu\text{m}$  附近可以实现 0.2 nm 分辨率。使用光栅光谱仪实现全波段的高分辨光谱分析是非常困难的，这需要超宽光谱响应的衍射光栅和 CCD，对光栅的加工工艺也是极大的挑战。

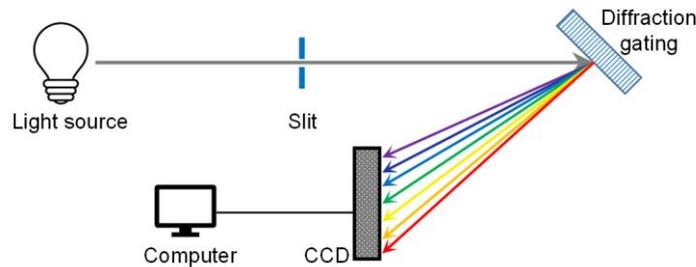


图 3.1 传统光栅光谱仪原理。

在较窄的光谱范围内进行光谱的超分辨是可行的，例如：YOKOGAWA 公司生产的 AQ6373B 光谱仪在 400-470 nm 实现了 0.01nm 的分辨率；以及 LTB 公司生产的 Super Demon 光谱仪可以在 200 nm 附近实现 0.001nm 的分辨率。这得益于在特定光谱范围拥有高光谱分辨本领的衍射光栅。同样，我们可以在其他光谱范围设计高分辨本领的衍射光栅，实现窄带范围的高分辨率光谱分析。但是窄带范围的高分辨率又限制了这种光谱仪的应用场景。能否将窄带的高分辨光谱仪应用于其他光谱范围的分析？这看似矛盾的猜想，或许可以通过光谱映射的方式实现。

通过微波光子学技术，可以实现微波信号至光谱的调制，因此在 FITSS 基

基础上, 可以将射频梳调制至光频域。由于调制后的光谱位置取决于载波, 输入到 FITSS 中的任意光谱均可以被映射至载波光谱范围进行分辨。本章引入微波光子技术的初衷在于解决 FITSS 输出的电谱带宽高、采集困难的问题, 随着进一步的研究, 我们开发了光谱至光谱映射的功能, 提出了低光谱分辨率的区域映射至高分辨率区域进行分辨的方法。

## 3.2 超快气体探测中的数据处理问题

在第 2 章论证的 FITSS 方法中, 由于其输出的是覆盖低频至高频的微波脉冲, 因此采用了高速的光电探测器接收高频的时域干涉信号, 并使用高采样带宽的示波器对干涉条纹进行采样。实验中的实时数据处理是很大的挑战, 需要采样带宽大于 20 GHz 的示波器进行实时连续采集和傅里叶变换。示波器具有有限的存储速度、存储深度和数据处理速度, 将很难胜任超快气体探测中的速度和记录时间要求。因此, 在之前的实验中我们采用先记录短时间数据, 再进行数据分析获得目标气体吸收光谱, 以验证 FITSS 的超快探测能力。

接下来, 我们介绍一种基于微波光子学的宽带信号处理方法, 能够有效解决上述的问题。

## 3.3 微波光子学信号处理技术

### 3.3.1 微波光子学简介

微波光子学是融合了微波 (300 MHz – 300 GHz) 技术和光子技术的交叉学科, 其基本目的是利用光子学的技术实现微波信号的产生、传输、控制和处理<sup>[187–189]</sup>。微波信号的全光处理是其中最重要的课题之一, 已经得到了广泛的研究<sup>[190,191]</sup>。全光微波信号处理方式相比于直接电学处理, 主要优势包括高速、大带宽、低损耗和抗电磁干扰。一般来说, 微波光子信号处理器由三个关键模块组成: 电光调制模块、信号处理模块和光电转换模块。

电光调制模块按照调制方式可以分为内调制和外调制, 其中内调制是在激光形成过程中加载微波信号, 从而改变激光的输出。内调制的带宽取决于激光器内器件的谐振频率<sup>[192]</sup>, 因此需要优化激光器的内部结构和封装设计来实现高带宽的内调制<sup>[193]</sup>。使用铟镓砷量子阱半导体激光器<sup>[194]</sup>、外腔激光器和分布式布拉格反射器激光器等已经实现大于 30 GHz 的调制带宽<sup>[195]</sup>。加州大学伯克利分校的研究人员使用光学注入锁定到垂直腔面发射激光器中实现了超过 50 GHz 的调制频率<sup>[196]</sup>。

外调制是在激光形成后, 通过调制器将微波信号加载在激光中, 不影响激光

器的结构和设计,并且具有大调制带宽和调制深度、多调制类型等优点。为了在外部调制器中提供所需的电光效应,可以使用铌酸锂<sup>[197,198]</sup>、半导体或聚合物等材料<sup>[199]</sup>,并且干涉结构通常用于实现宽频率响应。目前商用的马赫曾德尔干涉仪结构的铌酸锂调制器的带宽超过 40 GHz,基于最新半导体制造工艺的调制器可以达到 110 GHz 的调制带宽<sup>[198]</sup>。

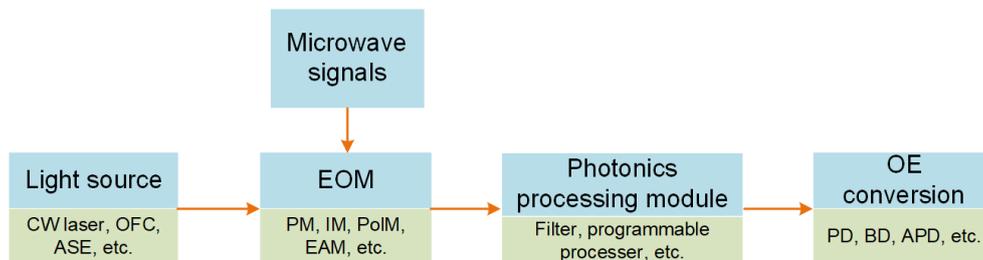


图 3.2 微波光子技术的通用系统结构。

图 3.2 显示了微波光子技术的通用系统架构。可以看出,该系统由光源、电光调制器 (EOM)、光子处理模块和光电转换模块组成。光源可以是单波长连续波激光器 (CW laser)、锁模脉冲激光器 (MLL)、光频梳 (OFC) 或宽带光源(如放大自发辐射源, ASE)。EOM 可以是强度、相位、偏振或电吸收调制器<sup>[200]</sup>。将微波信号及其待测量的参数加载到 EOM,以调制来自光源的光载波,微波信号常以边带的形式与光载波共同出现。携带微波信号的调制光信号然后被发送到光子处理模块,该光子处理模块可以是光纤布拉格光栅(FBG)、光学梳状滤波器、集成谐振器或波导光栅滤波器,以在光域中对边带的信号进行处理。处理后的边带信号由光电探测器接收,完成微波信号在光子学器件中的信号处理。基于这种通用系统结构,已经提出了许多光子微波测量技术,包括瞬时频率、频谱、时频分布、多普勒频移和相位噪声测量<sup>[201]</sup>。

### 3.3.2 微波测量领域的应用

本小节中介绍微波光子学在频谱和瞬时频率测量领域的应用。

基于频率或波长扫描的频谱或光谱分析是电学或光学领域中信号测量的有力工具。对于图 3.2 所示的通用系统结构,测量操作是通过扫描光源的波长或滤波器的透射或反射光谱响应来完成的。然而,对于波长可调的激光源,快速扫描过程中的波长稳定性相对较差,这将降低测量精度。因此,有效的解决方案是使用具有固定波长的激光源,但是扫描是使用微调滤波器来完成的。通常,用于扫描的滤光器可以是法布里-珀罗标准具<sup>[202]</sup>、中阶梯衍射光栅<sup>[203]</sup>、FBG<sup>[204]</sup>或可调光子微波滤光器<sup>[205]</sup>。S. T. Winnall 等人使用法布里-珀罗标准具进行扫描,实现了 40 GHz 的频率测量范围和 90 MHz 的分辨率<sup>[202]</sup>。P. Rugeland 等人利用具有陡

斜率传输带宽的可调 FBG 来分析微波信号的频谱，提供了从 2 - 9 GHz 的频率测量范围<sup>[204]</sup>。Honglei Guo 等人使用具有 15 个通道的单片集成中阶梯衍射光栅来测量微波信号的频谱，当单调扫描通道的波长时，对于从 0 到 15 GHz 的频率测量范围，获得了 50 MHz 的分辨率<sup>[203]</sup>。如果全部使用 15 个通道，整体测量范围可以是 225 GHz。

基于频率扫描的微波光子测量技术能够分析长时间周期或非周期信号的频谱，但不能捕捉瞬时频率。对于超快测量、雷达和电子战等各种应用来说，瞬时频率测量至关重要。一般来说，微波光子学的瞬时频率测量可以通过将频率信息映射到光或微波功率来实现，功率信息可以实时测量，从而实现瞬时频率的测量。频率-功率映射可以使用光学滤波器、光学混合单元或色散延迟元件来实现。

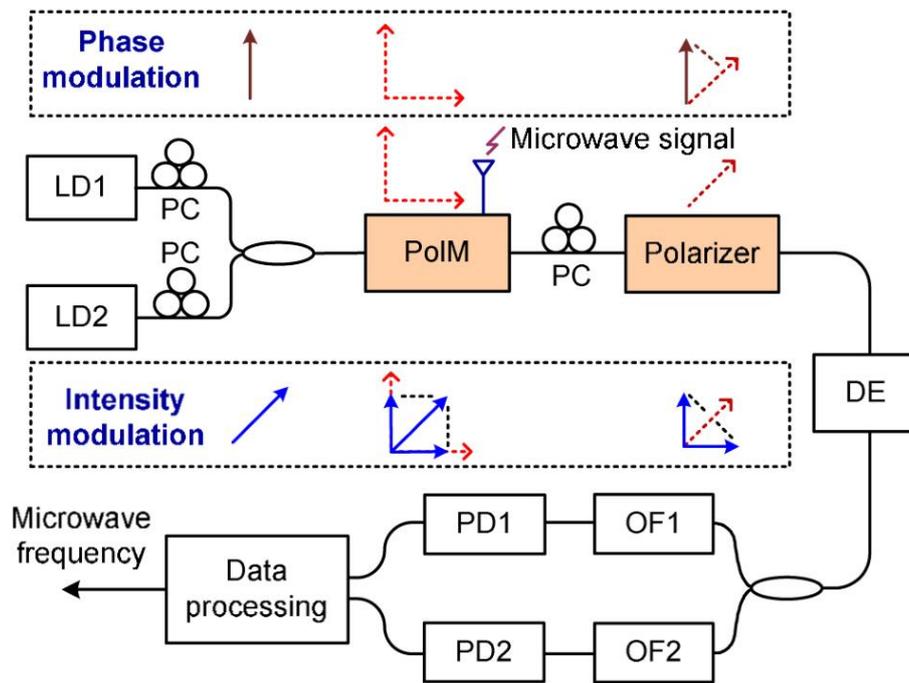


图 3.2 基于单个偏振调制器实现的瞬时频率测量<sup>[206]</sup>。

Xihua Zou 等人在基于单个偏振调制器实现频率测量性能的提升和系统的精简<sup>[206]</sup>，完成了 17 GHz 范围的瞬时频率测量，测量精度 $\pm 0.2$  GHz。如图 3.3 所示，偏振调制器是一种特殊的可以同时实现强度和相位调制的器件。强度调制和相位调制的光信号都进入色散元件。由于色散元件的色散，获得了两个互补的色散诱导的功率罚函数。之后，相位调制信号和强度调制信号由两个滤光器分离，并在两个光电探测器处转换成电信号，由于色散引起的功率罚函数的互补性质，两个功率罚函数之间的比率在大的频率范围内具有大的斜率。因此提高了频率测量的范围和分辨率。

Lijie Zhao 等人基于强度调制器和可编程滤波器，实现动态范围、灵敏度可

调的瞬时微波频率测量，并应用于超快测距实验<sup>[207]</sup>。如图 3.4 和 3.5 所示，首先纳米移动台的位移信息通过平衡的时域拉伸干涉仪映射至微波频率；接着微波信号被加载到强度调制器的一阶边带；最后边带光频被分成两路，一路经可编程滤波器形成与透过率的函数，另一路作为参考，通过直接测量两路的光功率的比值，就得到微波频率信息。这种基于微波光子学实时频率测量的技术实现了 15 mm 位移范围内 7.64  $\mu\text{m}$  的测量误差，和 45 mm 位移范围内 37.73  $\mu\text{m}$  的测量误差。

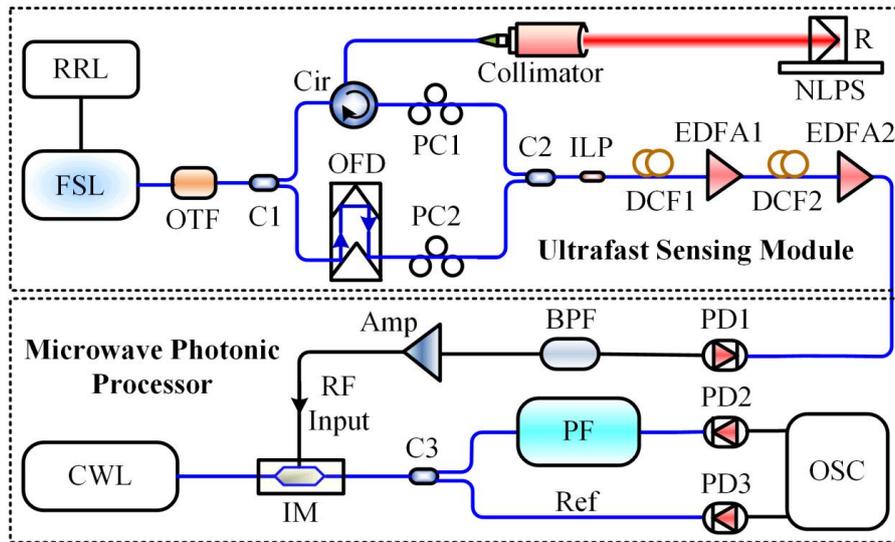


图 3.3 基于微波光子信号处理的超快飞秒激光测距示意图<sup>[207]</sup>。

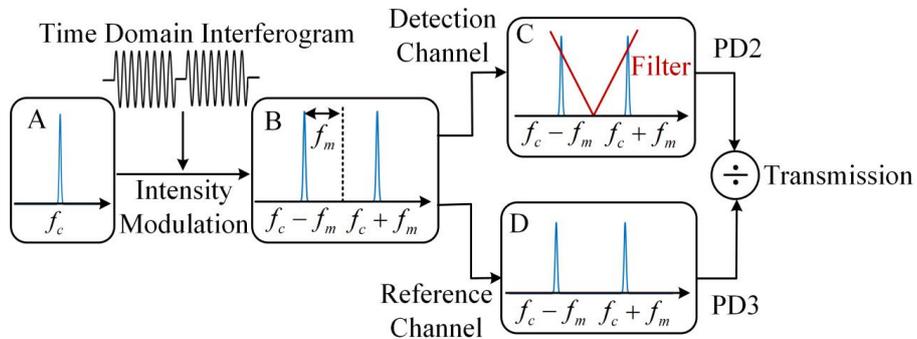


图 3.4 微波光子信号处理的工作原理<sup>[207]</sup>。

### 3.4 宽带啁啾微波信号的光学调制

上一节中提到了微波频率的测量，但涉及的是窄带的微波信号。因为 FITSS 输出的频谱范围覆盖低频至高频，因此，我们要实现宽带啁啾微波信号的调制。接下来将介绍宽带微波信号的产生，以及宽带微波信号的光学调制。

#### 3.4.1 宽带啁啾微波信号的产生

脉冲压缩在现代雷达系统中是得到了广泛应用的，其中频率啁啾或相位调制通常用于调制发射信号，以增加时间带宽积，从而提高雷达距离分辨率和探测距离<sup>[208]</sup>。啁啾微波脉冲通常基于电子电路在电域中产生<sup>[209,210]</sup>，但是具有小时间带宽积的和低中心频率的限制。对于产生中心频率达到几十 GHz 甚至几百 GHz 的啁啾脉冲，通常使用基于光子学的方案，例如基于频域脉冲整形<sup>[211-213]</sup>、时域脉冲整形<sup>[214-216]</sup>和直接空间至时间映射<sup>[217-219]</sup>等方法。如图 3.5 和 3.6 所示，Chao Wang 等人基于光谱整形和时频映射完成啁啾微波脉冲的生成<sup>[154]</sup>。该方法在萨格奈克干涉仪中加入啁啾的 FBG，形成具有线性增加或减少的自由谱间距，通过调节萨格奈克干涉仪中的时间延迟，可以控制产生的啁啾微波脉冲的中心频率和啁啾率的正负。

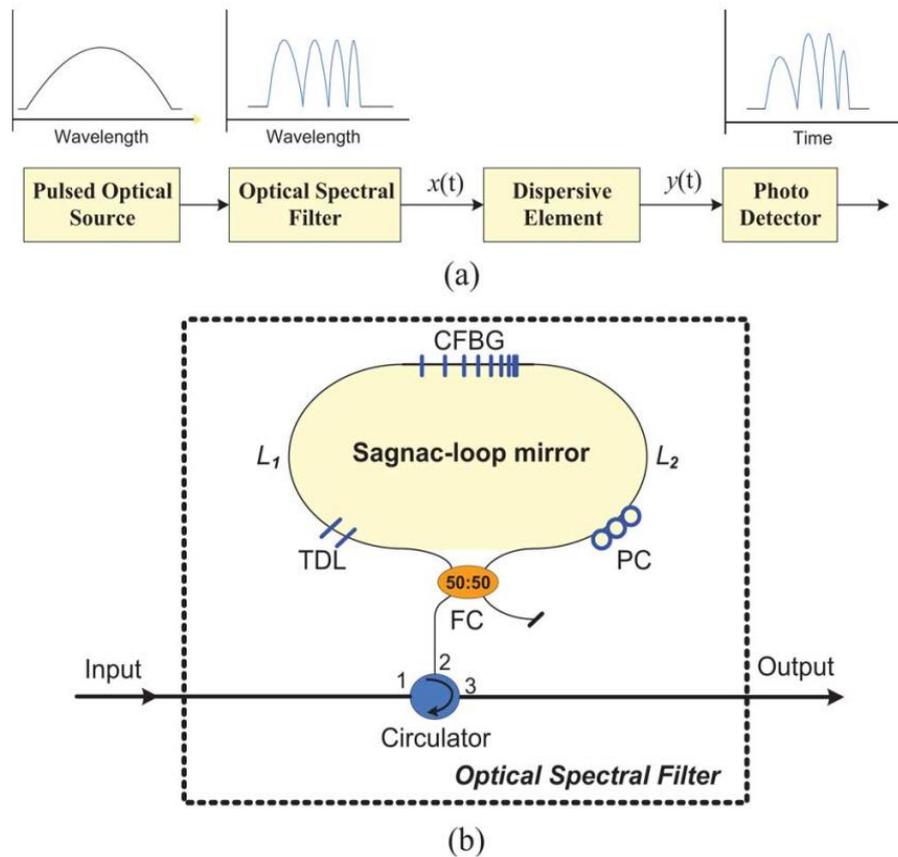


图 3.5 引入线性啁啾 FBG 的萨格奈克干涉仪，用于生成啁啾微波脉冲<sup>[154]</sup>。

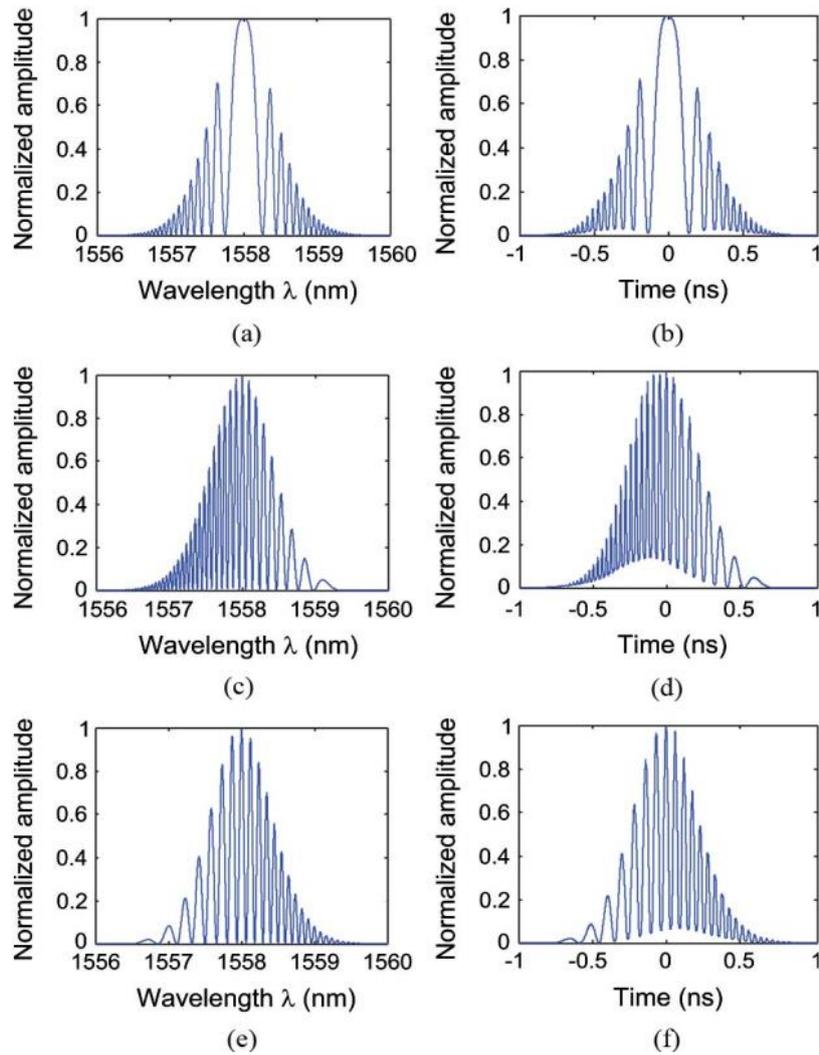


图 3.5 啁啾微波脉冲的时域和频域信息<sup>[154]</sup>。

本文第二章 FITSS 实验中实现宽带啁啾微波信号的方法为在 MZI 的两个干涉臂中引入不同的色散。在这之前，使用两个啁啾率不同的 FBG 也被用于啁啾微波脉冲的产生。如图 3.5 和 3.6 所示，Avi Zeitouny 等人使用两个线性啁啾率分别为 0.072 nm/cm 和 0.112 nm/cm 的 FBG，对锁模激光器脉冲的进行不同的色散，脉冲干涉后形成啁啾的微波脉冲<sup>[210]</sup>。

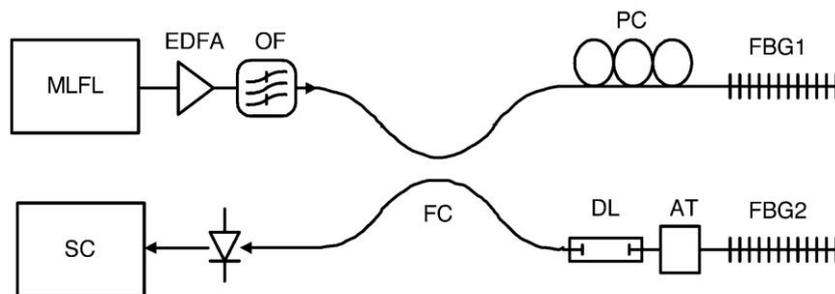
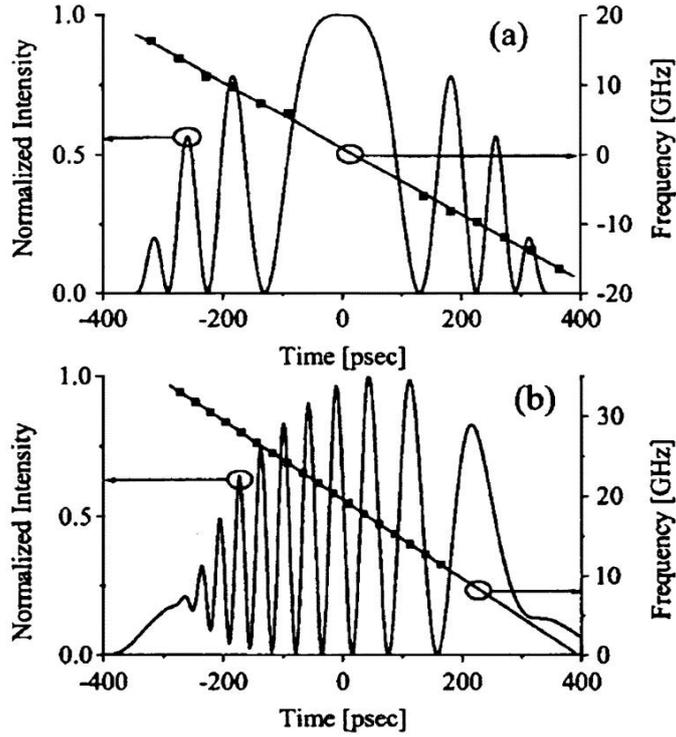


图 3.5 基于线性啁啾 FBG 的啁啾微波脉冲产生<sup>[210]</sup>。


 图 3.6 啁啾微波脉冲和其时频关系<sup>[210]</sup>。

### 3.4.2 基于 Optiwave 软件的光学调制仿真

基于 Optiwave 光学建模软件，我们在图 2.4 的基础上建立宽带啁啾微波信号的仿真。如图 3.7 所示，FITSS 光路被缩略为子系统，其输出经微波带通滤波器滤除直流信号后进入幅度调制器，调制器的载波为 1550 nm 直流激光，调制器的输出由光谱分析仪读取。

FITSS 输出的频谱为频梳齿，可以看作是多个微波频率分量的组合，其电场强度为

$$a(t) = \sum_i A_i \cos(\omega_i t) \quad (3.1)$$

其中  $A_i$  为每个微波分量的振幅， $\omega_i$  为每个微波分量的角频率， $i$  取决于 FITSS 输出频梳齿的个数。

输入幅度调制器的直流光载波的电场强度为

$$e_0(t) = A_0 \cos(\omega_0 t + \varphi_0) \quad (3.2)$$

其中  $A_0$  为振幅， $\omega_0$  为角频率， $\varphi_0$  为相位角。当调制信号  $a(t)$  经幅度调制器加载到直流光载波上时，调幅波的电场强度为

$$\begin{aligned} e(t) &= A_0 \cos(\omega_0 t + \varphi_0) + \sum_i A_i \cos(\omega_i t) \cos(\omega_0 t + \varphi_0) \\ &= A_0 \left[ 1 + \sum_i m_i \cos(\omega_i t) \right] \cos(\omega_0 t + \varphi_0) \end{aligned} \quad (3.3)$$

式中  $m_i = A_i/A_0$ ，为调幅系数，利用三角函数公式将上式展开，得到

$$e(t) = A_0 \cos(\omega_0 t + \varphi_0) + \sum_i \left\{ \frac{m_i}{2} A_0 \cos[(\omega_0 + \omega_i)t + \varphi_0] + \frac{m_i}{2} A_0 \cos[(\omega_0 - \omega_i)t + \varphi_0] \right\} \quad (3.4)$$

由上式可知，调幅波包含三部分频率成分，第一部分为载波分量；第二、三部分是因加载在调制器上的微波频率而生成的新分量，被称为边频带，并且这些新分量相对载波分量发生偏移，偏移频率与原先微波频率相等。因此 FITSS 输出的电频梳齿被调制成光谱上等间隔的光频梳，梳齿间隔与电频梳中相等。

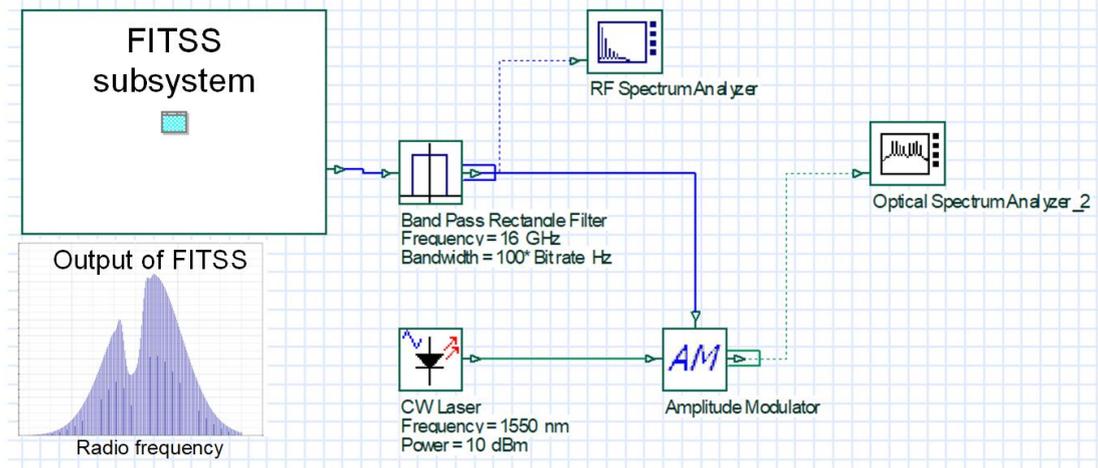


图 3.7 基于 Optiwave 软件进行宽带啁啾微波信号的光学调制。

仿真中调制器输出的调幅波如图 3.8 所示，载波位于 1550 nm，下上边带分别位于载波两侧，都包含了气体吸收特征图。3.7b 展示了放大的下边带，当仿真中的光谱仪分辨率设置为 0.01 nm 时，我们无法分辨边带光谱中的梳齿结构，但光谱的包络与 FITSS 输出的电频谱一致。当设置的光谱仪分辨率小于 0.0001 nm 时，可以分辨光谱中的梳齿结构，如图 3.9 所示。由公式 3.4 可知，其中的光频梳梳齿间隔与调制信号的电频梳梳齿间隔一致，为 0.0008 nm (100 MHz)。

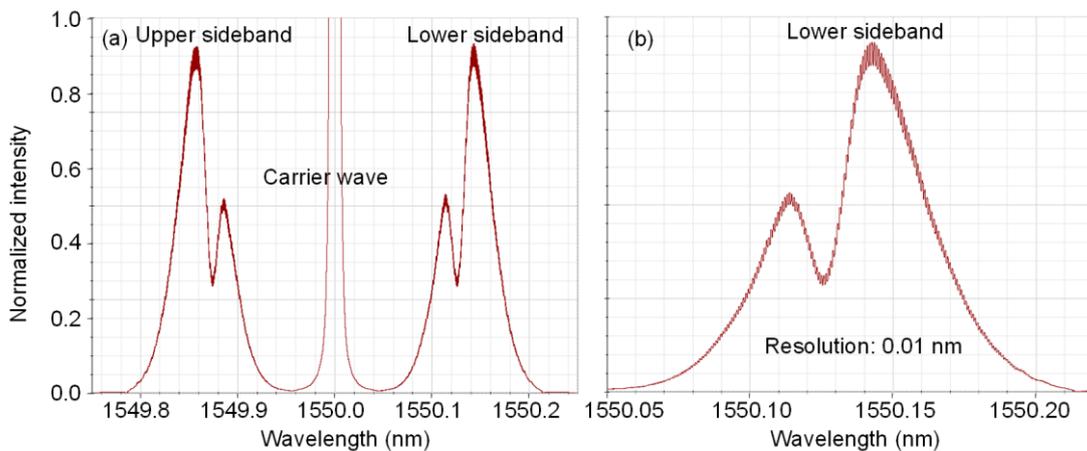


图 3.8 仿真输出的调幅波光谱。

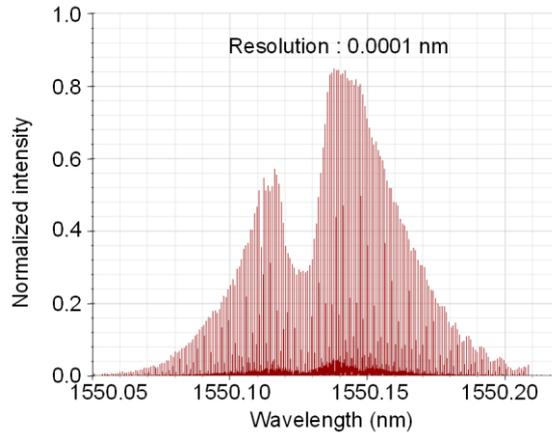


图 3.9 仿真设置光谱仪分辨率为  $0.0001 \text{ nm}$  时，可分辨光谱中的梳齿。

这种宽带微波信号调制方法完成了电频谱至光谱的映射。FITSS 中输入的待测光谱可以是光源的任意光谱范围，但经光谱至电谱，再至光谱的映射后，任意光谱范围均映射至  $1550 \text{ nm}$  附近。此时，我们只需要设计在  $1550 \text{ nm}$  附近高分辨本领的光栅，便可以完成光源任意光谱范围的高分辨，这相比于设计宽谱范围高分辨本领的光栅容易很多。并且对于中红外或者远红外光源，直接进行分辨的光谱分辨率低，映射至  $1550 \text{ nm}$  附近后分辨率可以高出一个数量级。

### 3.5 基于光谱映射的宽光谱分析实验

#### 3.5.1 实验设计

按照图 3.7 所示的仿真实验，我们搭建了如图 3.10 所示的实验光路。图中上半部分为 FITSS 方法，与图 2.6 中实验光路一致，下半部分为宽带微波信号调制光路，探测器输出的微波信号先经带通滤波器（ $2\text{-}26 \text{ GHz}$ ）滤除直流信号，再通过微波放大器进行能量放大，最后输入到强度调制器。强度调制器的光载波为波长是  $1548.49 \text{ nm}$  的直流光激光器（Continuous-wave laser, CWL），输出的调制波由光谱仪（OSA）接收。

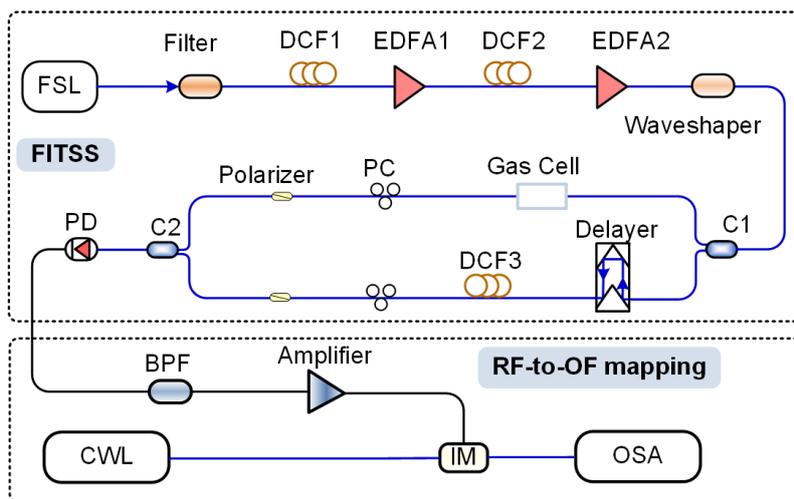


图 3.10 仿真设置光谱仪分辨率为 0.0001 nm 时,可分辨光谱中的梳齿。

宽带微波调制信号如图 3.11 所示, a 和 b 两图分别为无气体吸收线和有气体吸收线时的微波调制信号, b 图中包含了  $H^{13}CN$  气体的 P13 吸收线。

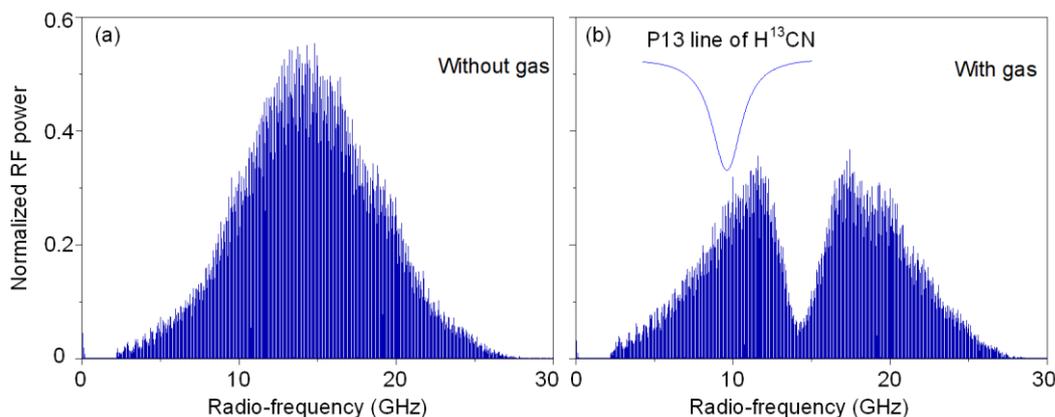


图 3.11 有无气体吸收线的微波调制信号。

### 3.5.2 边带光谱分析

由于实验中使用的强度调制器为马赫曾德尔干涉型调制器,因此输出光谱中包含高阶的边带。通过调节输入微波功率使得强度调制器工作在小信号调制条件,并调节半波电压使得输出的一阶边带最强,此时我们得到了载波抑制的调制波。调制器输出的下边带如图 3.12a 所示,图中的无气体吸收特征的边带作为参考,可以恢复待测的  $H^{13}CN$  P13 吸收线。但是我们发现图 3.12a 中的吸收线深度明显弱于调制前图 3.11b 微波信号中的吸收深度,这是由于我们使用的光谱仪分辨率低导致的, 0.02 nm 的分辨率不仅减弱了吸收线的深度,而且展宽了吸收线的宽度。在光谱仪分辨能力有限的情况下,我们选择通过去卷积的方式将光谱仪的响应去除,从而得到实际的待测吸收特征。

如图 3.12b 所示,为了获得光谱仪的响应曲线,我们使用光谱仪采集线宽小

于 20 kHz 的直流光，得到的光谱为半高宽约 0.02 nm 的展宽后光谱，这展宽后的光谱可作为光谱仪的响应曲线。

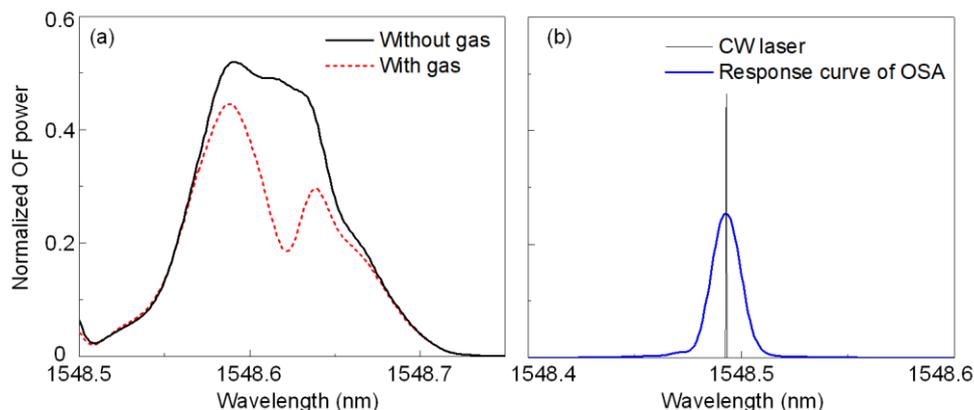


图 3.12 (a) 光谱仪采集的调制器输出光谱；(b) 光谱仪采集的窄线宽直流光光谱。

将图 3.12a 中的调制器输出光谱分别进行光谱仪响应曲线的去卷积 (Deconvolution)，结果如图 3.13 所示。去卷积后的光谱出现一些波动，这些波动在去卷积之前不明显是因为光谱仪能分辨的线宽为 0.02 nm，所以宽度小于 0.02 nm 的波动将被平滑。同时图 3.13b 中目标气体吸收线的吸收线也被更好的分辨，与去卷积之前对比，深度变深，并且宽度变窄。通过比较去卷积后的调制器输出光谱，可以恢复目标气体吸收光谱。

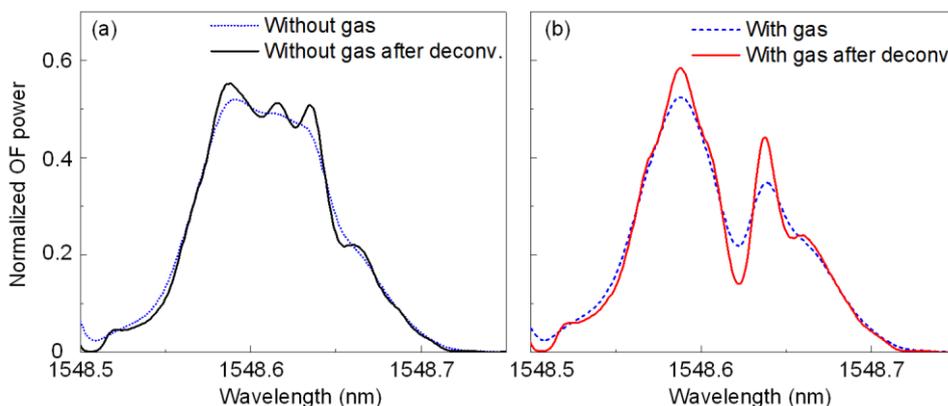


图 3.13 调制器输出光谱去卷积后结果。

将图 3.13a 和 b 中去卷积后光谱进行归一化后，得到图 3.14a 中的气体吸收线。比较去卷积前后的吸收光谱，可以看出去卷积前测得的吸收线没能获得完整的吸收深度信息，造成较大的测量误差。去卷积后的吸收光谱恢复了目标气体吸收特征，但也使得光谱中的波动更明显。由于待测的  $H^{13}CN$  气体压强为 100 torr，我们可以使用 Voigt 线型对获得的吸收光谱进行拟合以消除光谱中的波动。进行线型拟合之前，我们需要对光谱范围进行恢复，因为调制器输出的光谱范围相较待测光谱是经过压缩的。根据 FITSS 方法的原理，微波调制信号频谱范围

是输入光谱范围的压缩，压缩系数为 5.4。而调制器输出的光谱范围与微波调制信号的频谱范围相同，因此具有相同的压缩系数。根据压缩系数恢复的气体吸收线和其 Voigt 线型拟合结果如图 3.14b 所示，拟合后的结果与理论的目标气体吸收线保持一致。通过宽带微波信号的调制，我们在载波的光谱范围完成了目标气体吸收线的获取，实现了待测光谱范围至载波附近的映射。通过调节 FITSS 中的可编程滤波器，光源范围的光谱都可以被映射至同一载波附近进行分析，这使得在载波光谱附近的光谱仪可以被用于宽范围的光谱分析。

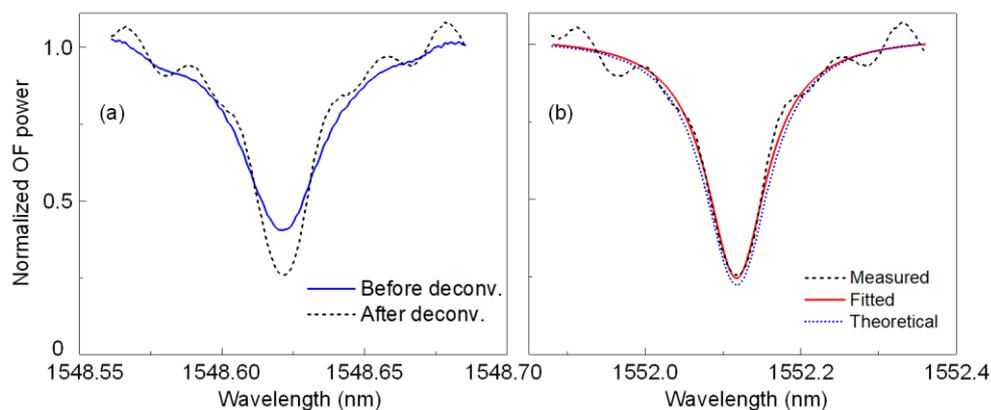


图 3.14 (a) 归一化后的气体吸收特征；(b) 乘以压缩系数后的吸收光谱，以及 Voigt 线型拟合后与输入的理论吸收线性比较。

### 3.6 基于光谱映射的光谱仪设计

基于上一节完成的光谱-电谱-光谱的映射，我们进行了宽光谱范围高分辨光谱仪的设计。如图 3.15 所示，上图为通用的光谱映射思路，下图为本章中的映射方案举例。首先，待测的光谱是难以被高分辨或者直接分辨，例如处于中红外或者远红外的光谱。目前商用的  $5\ \mu\text{m}$  的光栅光谱仪分辨率为  $0.2\ \text{nm}$ ，不仅分辨率低，而且成本高昂。接着，待测光谱映射至中间态，中间态可以是本章中 FITSS 输出的电频域，也可以是通过其他方法映射至时域等状态。之后，从中间态映射至光谱分辨率高的范围，例如可见光和近红外。最终使用高分辨率的光谱分析仪对映射后的光谱进行分析。本章中采用的是  $1.5\ \mu\text{m}$  的光栅光谱仪，其分辨率可以升级为  $0.01\ \text{nm}$ 。并且这种光谱映射的方案是将不同区域的待测光谱映射至同一目标区域，对于目标区域的窄带光谱范围进行分辨，可以设计分辨本领更高的衍射光栅。

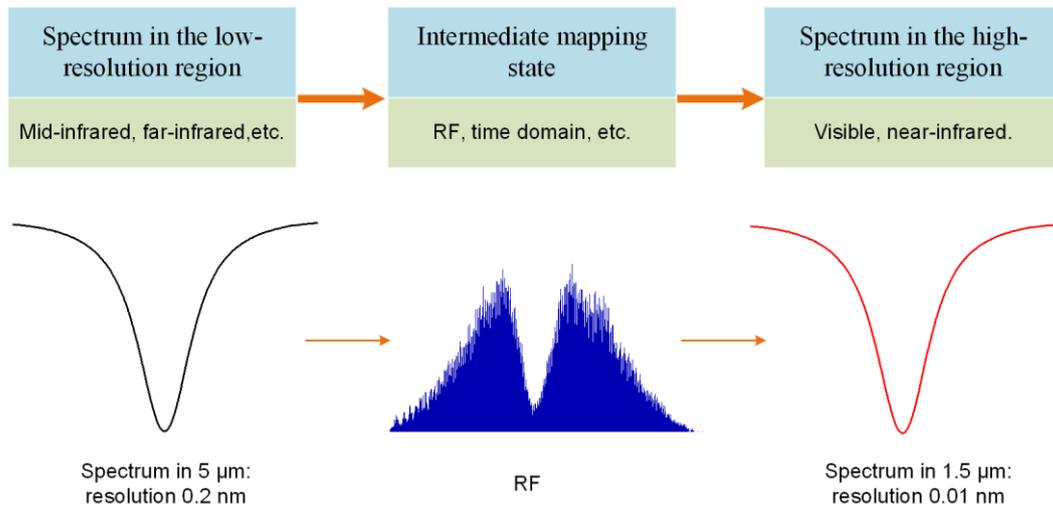


图 3.15 基于光谱映射的光谱仪原理设计。

### 3.7 小结

1. 针对传统光栅光谱仪直接分辨的发展瓶颈，引出光谱映射的解决思路。
2. 提出采用微波光子学中微波信号调制技术解决 FITSS 实验中宽带微波信号的采集困难问题，并回顾了微波光子学在微波频率测量领域的应用。
3. 通过 Optiwave 软件仿真宽带微波信号的光学调制，验证了宽带电谱至光谱的映射。
4. 在 FITSS 实验基础上，搭建了宽带微波信号的调制实验。调制器输出光谱中发现由于光谱仪分辨低导致的吸收线展宽和深度减弱问题，通过去卷积将输出光谱中的光谱仪响应曲线去除，恢复目标气体吸收光谱。
5. 展望了基于光谱映射的宽光谱分辨光谱仪的设计，将原本处于低分辨率区域的光谱经映射关系转换至可以被高分辨的特定窄光谱范围。并且通过设计窄带光谱范围内超分辨的光栅和光谱仪，能够完成光谱的超分辨，形成光谱“显微镜”。

## 第四章 基于频率扫描和锁定的低带宽多外差光谱学

第二章和第三章中的光谱分析技术虽然不需要复杂的频梳锁定系统,但涉及高带宽电谱的采样或调制,这使得系统的实时光谱分析受到阻碍,难以被用于实际测量。本章介绍一种低采样带宽需求的多外差光频梳光谱学,首先分析单频光与光频梳的多外差干涉原理,再提出扫描锁定的方式降低多外差探测的采样带宽,实现气体吸收光谱的快速分析。

### 4.1 多外差光频梳光谱学简介

多外差光频梳光谱学最早在 2002 年 S. Schiller 的双频梳光谱学中实现<sup>[220]</sup>,拥有微小频梳间隔的两个光频梳在频域中发生多次梳齿之间外差探测,电频域中形成多个外差探测的频率分量,并且频谱与光谱一一对应,如图 4.1 所示。详细的双频梳介绍可见 1.2.1 小节。

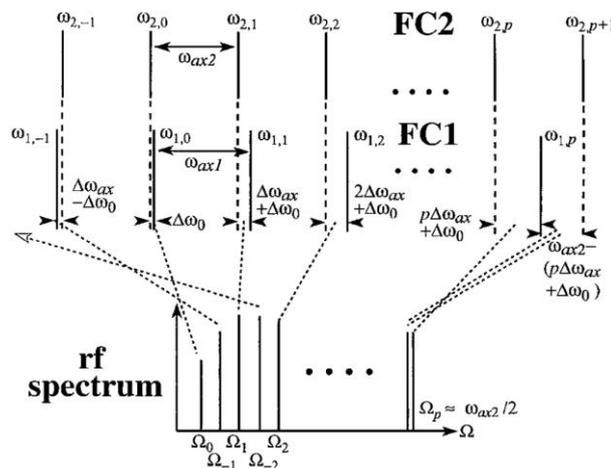


图 4.1 双频梳的多外差探测原理<sup>[221]</sup>。

多外差探测方式同样存在与单频光与光频梳的拍频中<sup>[221]</sup>,因为单频光与所有的频梳齿拍频,将频梳中光谱特征转换至电频域。相比于双频梳中的多外差探测,单频光与频梳多外差探测系统简单,易于实现,并且单频光的能量比频梳中单个梳齿能量高出 3-4 个数量级,所以获得的拍频信号能量也更高<sup>[221-225]</sup>。

### 4.2 单频光与光频梳的多外差探测

#### 4.2.1 单频光与光频梳多外差干涉原理

如图 4.2 所示,单频光  $f_{SF}$  与光频梳梳齿  $f_n$  的频率间隔为  $\Delta f$ ,  $f_{SF}$  与所有频梳干涉则形成图 4.2b 中的电频梳。在不限定光频梳梳齿个数的前提下,光频梳和单频光的电场可以分别写为:

$$E_{FC}(t) = \sum_{n=0}^{\infty} A_n \cos \left[ 2\pi (f_{ceo} + nf_{rep}) t \right] \quad (4.1)$$

$$E_{SF}(t) = A_{SF} \cos(2\pi f_{SF} t) \quad (4.2)$$

式中  $A_n$  和  $A_{SF}$  分别为每个梳齿和单频光的电场振幅。单频光与频梳干涉形成的电场能量为：

$$I_{MH}(t) = |E_{FC}(t) + E_{SF}(t)|^2 = \left| \sum_{n=0}^{\infty} A_n \cos \left[ 2\pi (f_{ceo} + nf_{rep}) t \right] + A_{SF} \cos(2\pi f_{SF} t) \right|^2 \quad (4.3)$$

干涉中不仅包含单频光与频梳干涉，也包括梳齿之间的干涉，这里引入整数  $i$  和  $j$  表示不同的频梳齿，公式 4.3 展开可得

$$\begin{aligned} I_{MH}(t) = & \sum_{n=0}^{\infty} \left\{ A_n \cos \left[ 2\pi (f_{ceo} + nf_{rep}) t \right] \right\}^2 + \left[ A_{SF} \cos(2\pi f_{SF} t) \right]^2 \\ & + 2 \sum_{i,j} A_i A_j \cos \left[ 2\pi (f_{ceo} + if_{rep}) t \right] \cos \left[ 2\pi (f_{ceo} + jf_{rep}) t \right] \\ & + 2 A_{SF} \cos(2\pi f_{SF} t) \sum_n A_n \cos \left[ 2\pi (f_{ceo} + nf_{rep}) t \right] \end{aligned} \quad (4.4)$$

式中第一项为光频梳梳齿能量的总和，第二项为单频光的能量，第三项为不同梳齿之间的干涉项，第四项为单频光与光频梳的干涉项。用三角公式将公式 4.4 展开可得：

$$\begin{aligned} I_{MH}(t) = & \frac{1}{2} \sum_{n=0}^{\infty} A_n^2 \left\{ \cos \left[ 4\pi (f_{ceo} + nf_{rep}) t \right] + 1 \right\} + \frac{1}{2} A_{SF}^2 \left[ \cos(4\pi f_{SF} t) + 1 \right] \\ & + \sum_{i,j} A_i A_j \left\{ \cos \left[ 2\pi (2f_{ceo} + if_{rep} + jf_{rep}) t \right] + \cos \left[ 2\pi (i-j) f_{rep} t \right] \right\} \\ & + A_{SF} \sum_n A_n \left\{ \cos \left[ 2\pi (f_{SF} + f_{ceo} + nf_{rep}) t \right] + \cos \left[ 2\pi (f_{SF} - f_{ceo} + nf_{rep}) t \right] \right\} \end{aligned} \quad (4.5)$$

当使用商用的高速探测器接收干涉光时，公式 4.5 中包含的光频部分都无法被接收，只有频率在电频域的信号能够被接收，所以探测器响应的干涉信号包含以下三个部分：

$$\begin{aligned} I_{Det}(t) = & \frac{1}{2} \left( \sum_{n=0}^{\infty} A_n^2 + A_{SF}^2 \right) + 2 \sum_{i,j} A_i A_j \cos \left[ 2\pi (i-j) f_{rep} t \right] \\ & + A_{SF} \sum_n A_n \cos \left[ 2\pi (f_{SF} - f_{ceo} + nf_{rep}) t \right] \end{aligned} \quad (4.6)$$

其中，第一项为直流信号，第二项为梳齿之间的干涉信号，第三项为单频光与梳齿的干涉信号。

由 4.6 式可以看出，在光频梳的梳齿数量无限的情况下，探测器输出的直流信号能量和梳齿之间的干涉信号能量都为无限大，单频光与梳齿的干涉信号能量最小。实际情况中，梳齿的个数是有限的，但直流信号和梳齿之间的干涉信号依然明显强于单频光与梳齿的干涉信号。如图 4.2b 所示，在电频域可以探测到其

中公式 4.6 中的三个分量，分别为：频率为 0 的直流（DC）分量，频率为重频  $f_{rep}$  的整数倍的梳齿间干涉分量，频率为  $|kf_{rep} \pm \Delta f|$  ( $k$  为整数) 的单频光与梳齿的干涉分量，前两个分量均不包含频梳中的光谱信息。虽然包含频梳中光谱信息的分量能量相对较小，但比双频梳光谱学中梳齿与梳齿拍频的能量高出  $E_{SF}/E_{tooth}$  倍，其中  $E_{SF}$  为单频光能量， $E_{tooth}$  单个梳齿的能量，可以获得更高的信噪比，只不过是高的采集带宽为代价的。这种多外差干涉可以在单个飞秒光频梳的脉冲持续时间内完成，也就是可以实现单发脉冲的超快探测。

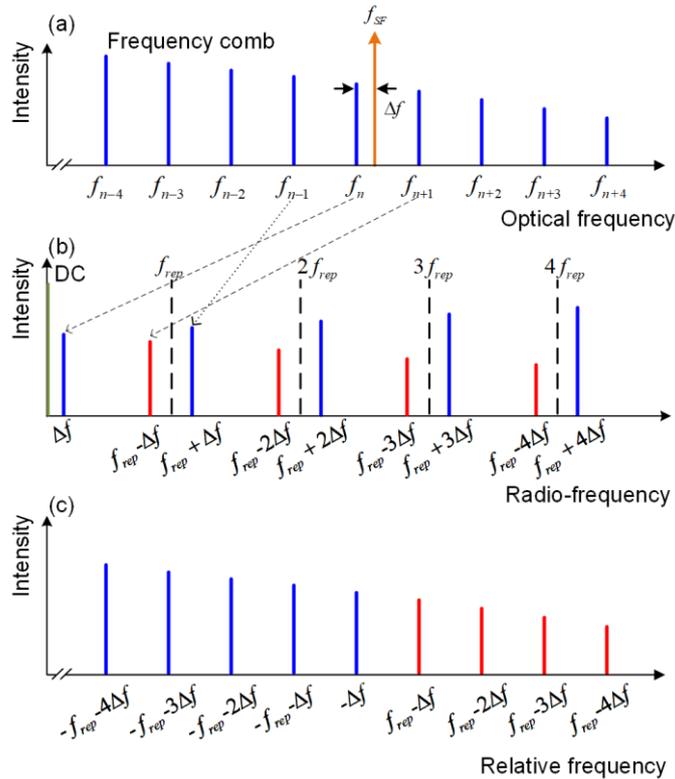


图 4.2 单频光与光频梳多外差探测原理。

图 4.2b 中频率为  $|kf_{rep} \pm \Delta f|$  的电谱包含了频梳的光谱信息，只是单频光两侧的频梳齿经干涉后重叠在了电频域，需要对重叠的电频梳进行展开来恢复频梳中光谱信息。将图 4.2b 中频率为  $kf_{rep} + \Delta f$  的梳齿以频率 0 向负轴对折，得到如图 4.2c 所示的与图 4.2a 中对应的光谱信息，此时的相对频率是相对于单频光的频率，因此加上单频光的频率即可完全恢复光频梳的光谱信息。

### 4.2.2 多外差探测的光谱学应用

上一节中介绍了单频光与光频梳干涉的原理，验证了这种多外差干涉法可以用于光频梳光谱的相干探测。

2012 年 Keiichiro Urabe 和 Osamu Sakai 利用这种干涉法进行了氩亚稳态原子吸收光谱实验<sup>[221,222]</sup>。如图 4.3 所示，使用重频为 81 MHz 的的钛蓝宝石锁模飞

秒激光器作为探测光，用于探测气体腔中的氫亚稳态原子，频率锁定的外腔半导体激光器作为单频光，用于与探测光干涉，将飞秒激光中的光谱信息干涉至电频域。因为待测的吸收光谱带宽为 GHz 级别，所以使用带宽为 40 GHz 的光电探测器和 100 GHz 的频谱分析仪分别接收和采样单频光与飞秒激光的多外差干涉信号。

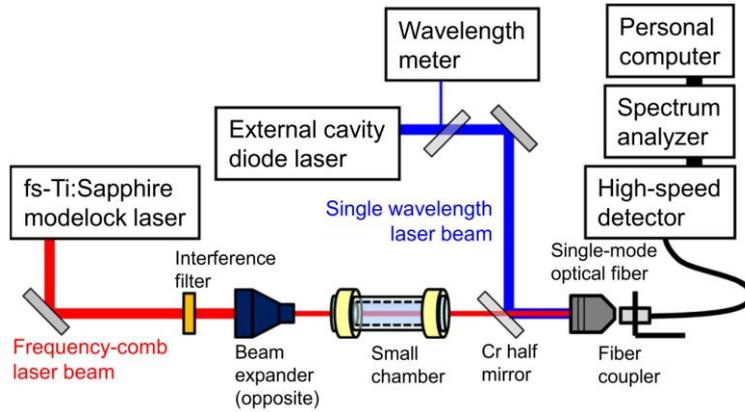


图 4.3 单频光与光频梳多外差探测氫亚稳态原子吸收光谱<sup>[221]</sup>。

干涉后的电谱如图 4.4a 所示，其中能量较强的电频梳齿为光频梳梳齿之间的干涉信号，能量较弱的所需的单频光与光频梳的干涉信号。发现待测的电频梳齿信号比无光谱信息的梳齿信号弱了大于 40 dB，虽然能够获得图 4.4b 中的吸收光谱，但待测电谱的信噪比低，并且需要 GHz 以上的采样带宽。

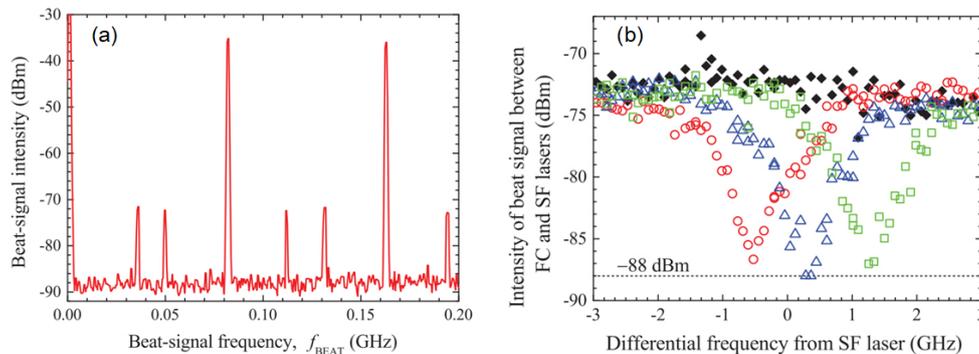


图 4.4 (a) 频谱仪获得的低频干涉信息；(b) 不同单频光频率时获得的吸收光谱<sup>[221]</sup>。

由于单频光与光频梳多外差探测的方式需要高带宽的采集电路，实现多种气体探测需要更高的采样带宽，成本高昂。2019 年 Jaehyun Lee 等人提出使用多路单频光同时与宽谱的光频梳进行多外差探测<sup>[223]</sup>，将光频梳中的多种气体吸收线同时干涉至电频域，实现多种气体的实时探测，解决传统方案中需要更高采样带宽的问题。如图 4.5 所示，实验验证了同时测量两种气体的方案，待测光谱位于 1572 nm 的 CO<sub>2</sub> 吸收线和 1550 nm 的 H<sup>13</sup>CN 吸收线。为了避免两个单频光与光频梳的拍频在电频域重叠，需要将两个单频激光的频率进行锁定至光频梳，并且

与梳齿的偏移频率 $\Delta f_1$ 和 $\Delta f_2$ 不同。多外差探测的结果如图 4.5b 所示，两个单频光与频梳的拍频可以在电频谱的频率中分辨开，频率为 $|kf_{rep} \pm \Delta f_1|$ 的频谱分量为 1572 nm 附近的光谱信息，频率为 $|kf_{rep} \pm \Delta f_2|$ 的频谱分量为 1550 nm 附近的光谱信息。

该方案使用 8 GHz 的采样带宽完成了两个光谱范围为 16 GHz 的气体吸收线同时采集，采集时间为 10  $\mu$ s。虽然实现了两种气体的同时超快探测，但是需要的采样带宽依然很高，并且没有考虑光频梳梳齿之间干涉的能量高于单频光与频梳干涉信号能量对实验结果的影响。

2017 年 Taro Hasegawa 和 Hiroyuki Sasada 提出使用平衡探测器接收多外差探测电谱可以抑制梳齿之间的干涉信号<sup>[225]</sup>。

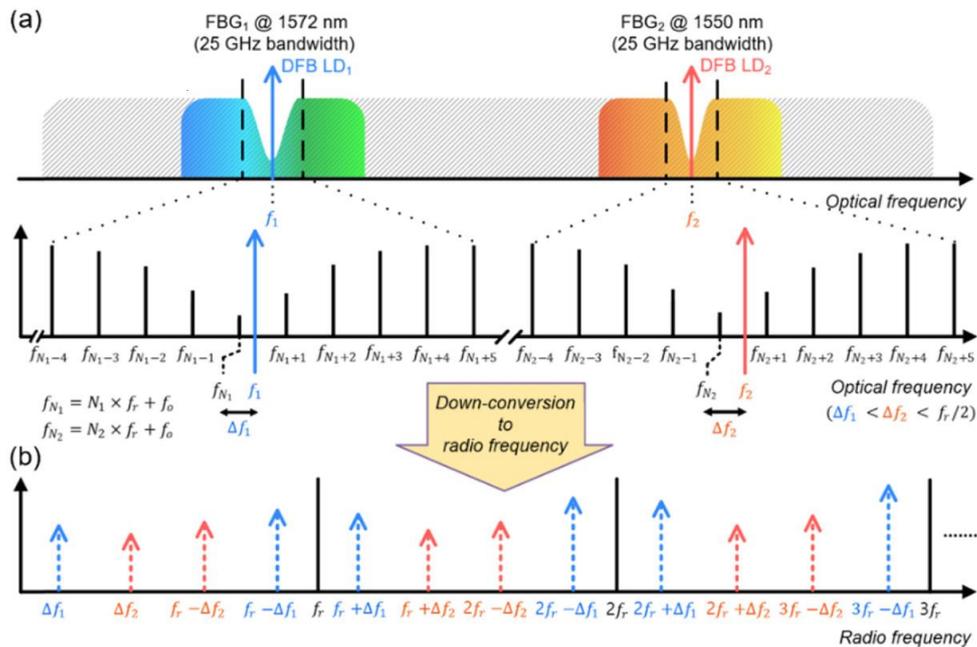


图 4.5 同时探测两种气体光谱的多外差光谱分析技术<sup>[223]</sup>。

### 4.2.3 低带宽多外差探测的实现方式

由 4.2.1 小节的原理分析和 4.2.2 小节的应用举例，可以发现这种多外差探测的采样带宽取决于目标气体吸收特征的光谱范围，数个连续光谱吸收特征的范围将为目前的电子学采样带宽带来非常大的困难。虽然采用多个单频激光器可以同时采样光频梳中多个气体吸收线，但这没有从根本上解决高带宽采样的问题。

单频光扫描是实现宽光谱采样的直接方式，在这种多外差探测中，单频光的扫描相当于对光频梳进行扫描采样。只需在扫描过程中采集多外差干涉的低频分量，便可以逐步获得完整的光谱信息。在通常情况下，研究者们避免采用扫描采样的方式，因为扫描过程中的频率稳定性差，无法获得高信噪比的采样光谱。事实上，光频梳可以作为频率标准，为扫描激光器提供频率参考，并且可以将扫描激光器锁定在单个梳齿，实现频率稳定。下一节将介绍基于光频梳参考的频率扫

描和锁定技术，实现低采样带宽的多外差光谱学。

### 4.3 光频梳参考的频率锁定和扫描技术

#### 4.3.1 单频光的频率锁定和扫描

频率锁定的单频激光器在激光雷达、微波信号产生和冷原子物理等领域都有重要的作用，是提高系统频率稳定性和信噪比的关键。单频激光器的频率锁定方式主要有光学注入锁定<sup>[226-228]</sup>、光学锁相环<sup>[229]</sup>和吸收线中心锁定<sup>[230,231]</sup>等。注入锁定的方式可以追溯到 17 世纪，Christiaan Huygens 观察到安装在同一面墙上的两个时钟的钟摆频率最终会被锁定<sup>[232]</sup>，他推断钟摆会向墙壁发送微小的振动而形成机械地相互锁定。注入锁定的方式早期的应用领域是无线电通信，用于微波振荡器的频率锁定<sup>[233]</sup>。直到 1960 年第一个激光振荡器被实现<sup>[30]</sup>，注入锁定被用于光学频率。光注入锁定的工作过程为：来自主激光器的光被注入到从激光器，他们的频率不一定相同；主激光与从激光相干结合，导致从激光器的内部光场发生变化，偏离其自由运行值；最后，当激光器动态稳定时，从激光频率被拉向主激光频率，直到它等于主波长，锁定其频率和相位。锁定后，从激光器将跟踪主激光频率，直到与自由运行的频率偏差变得过大时，从激光器从主激光频率解锁，并以腔的自由状态运行。由于光学注入锁定的范围和稳定性受限，通常会结合光学锁相环进行进一步的频率锁定<sup>[228]</sup>。

光学锁相环中通常包括主激光器、从激光器、外差探测模块和微波参考源。主和从激光源的频率不同，经外差探测获得频率为两个激光源频率差的拍频信号。拍频信号与微波参考源输出的频率信号混频，并送入相位检测器，然后输出与参考微波信号的的相位误差信号。环路滤波器滤出后的误差信号被用于调谐从激光器的频率，以最小化相位误差。当两个光源之间的频率偏移保持恒定且等于偏移发生器的频率偏移时，环路获得锁定<sup>[229]</sup>。

吸收线中心锁定的方式以分子原子的吸收线中心作为频率标准，主要用于特定的气体探测激光雷达<sup>[231]</sup>。例如差分吸收激光雷达中 on 波长需要处于吸收最深的位置，使用气体腔中吸收谱对激光能量的调制，实现 on 波长至吸收线中心的锁定。

随着飞秒激光器和光频梳的发展，时间和频率稳定性不断被刷新。光频梳拥有梳齿状的频率标准尺，可以作为宽光谱范围的光频率参考。结合上述的注入锁定或者锁相环方式，能够将光频梳梳齿的稳定性传递至单频激光器。如图 4.6 所示的光频梳参考的单频光示意图，外腔半导体激光器（ECDL）拥有 100 nm 以上的宽调谐范围，与光频梳的光谱范围有很好的重合，因此在整个 ECDL 的调谐范围内，都可以使用频梳齿作为频率参考源。当可调单频激光器 ECDL 频率

为 $f_1$ 时, 将其锁定在邻近的梳齿 $f_n$ , 锁定的偏移频率为 $\Delta f$ 。可调激光器扫描其频率时, 将依次与频梳的各个梳齿相遇, 直到下一个频率锁定位置。可调激光器扫描至 $f_3$ 时, 被锁定在梳齿 $f_m$ 附近, 偏移频率同样为 $\Delta f$ 。这种频梳参考的频率扫描和锁定方式可以使可调激光器在宽谱范围内快速调谐, 并锁定在指定的频率, 可以更加灵活运用于光谱的精密扫描。

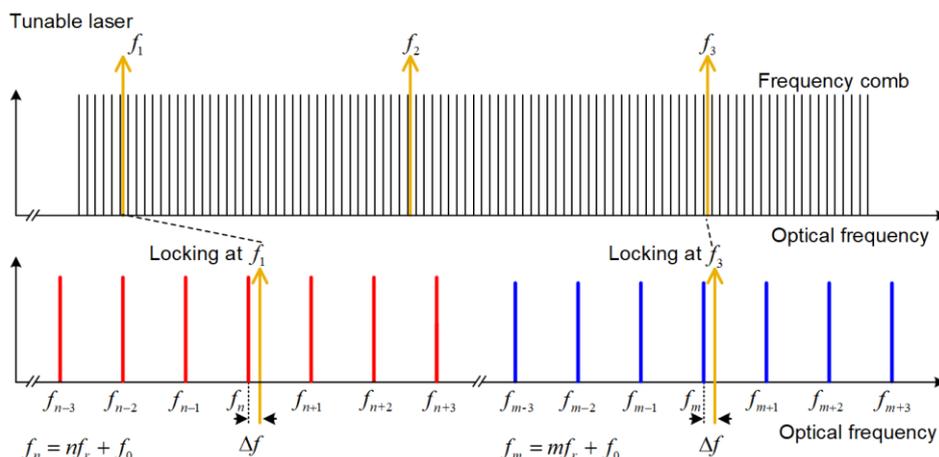


图 4.6 光频梳参考的单频激光频率锁定和扫描示意图。

### 4.3.2 频率锁定效果和扫描间隔计算

为了实现上一小节中所述的单频光扫描和锁定, 我们搭建了如图 4.7 所示的反馈锁定回路。可调激光器的频率分别由内部的电机和压电陶瓷 (PZT) 进行粗调和细调, 可以完成 1530-1620 nm 光谱范围的无跳模频率调节。光频梳的重频 100 MHz 和偏频 20 MHz 都锁定于铷原子钟, 得到的频率稳定性为 1 s 累计时间艾伦方差  $5 \times 10^{-12}$  和 1000 s 累计时间艾伦方差  $8.5 \times 10^{-14}$ 。频率反馈锁定回路的锁定流程为:

1. 光频梳经滤波器后与可调激光进入 3dB 耦合器, 耦合器输出接入平衡探测器, 平衡探测器接收了宽带的拍频信号。
2. 低通滤波器 LPF 用于滤出可调激光器与其最接近的频梳齿的拍频信号, 这个最低频的信号总是小于梳齿间隔的一半, 因此滤波器的带宽小于 50 MHz。
3. 经低通滤波后的拍频频率信息被频率计数器 (Counter) 读取。
4. 拍频频率传至计算机, 在程序中与设定的频率值进行对比, 如 20 MHz, 拍频频率与设定频率的偏差值将反馈回可调激光器。
5. 可调激光器根据频率差的大小调谐激光频率, 使得频率差达到最小并保持在最小值, 完成反馈锁定回路。

锁定过程中的频率读取和可调激光器频率控制均由计算机中程序控制, 因此可以灵活地完成频率锁定与扫描。锁定过程完成后, 可由程序控制反馈回路暂停

工作，进入频率扫描过程，到达扫描指定位置后再次开启反馈锁定回路。锁定和扫描过程中的拍频信号会被程序完整记录。

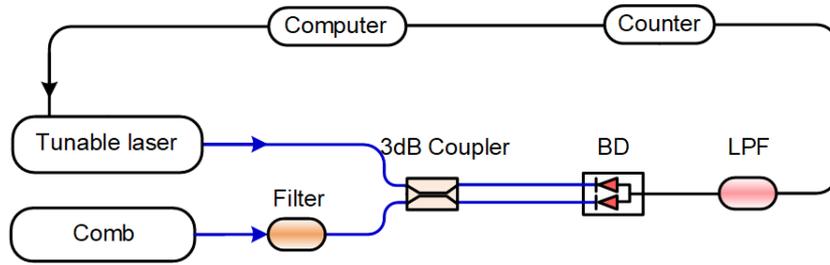


图 4.7 光频梳参考的单频激光频率锁定和扫描光路图。

在频率锁定过程中，拍频信号的抖动反映了可调激光器的频率抖动，如图 4.8a 所示，记录了拍频信号随着时间的变化。当可调激光器频率被锁定在  $f_3$ 、 $f_4$  和  $f_5$  时，拍频信号稳定在 20 MHz 附近；当可调激光器频率从一个频率点扫描至另一个频率点时，由于扫描过程中与频梳齿依次相遇（图 4.6），拍频信号形成三角波状的变化趋势。图 4.8b 统计了累积锁定 50 s 的拍频频率分布，拍频的均值为 19.88 MHz，标准差为 1.06 MHz。这样的频率稳定性对于分析光谱范围为 GHz 级别的气体吸收光谱是足够的。

图 4.8c 和 d 放大了频率扫描过程中拍频形成的三角波状轨迹，通过分析拍频的变化轨迹，可以准确计算扫描的频率间隔。如图 4.8c 和 e 所示，当可调激光器频率从  $f_3$  扫描至  $f_4$  时，可调激光器首先远离频梳齿  $f_m$ ，之后一次经过梳齿  $f_{m+1}$ 、 $f_{m+2}$ 、 $f_{m+3}$  和  $f_{m+4}$ ，最后锁定在梳齿  $f_{m+4}$  右侧，锁定的偏移频率为  $\Delta f = 20$  MHz。这个过程形成的三角波轨迹有 4 个峰和 4 个谷，因此  $f_3$  至  $f_4$  的频率间隔为  $4f_{rep}$ 。如图 4.8d 和 f 所示，当可调激光频率从  $f_4$  扫描至  $f_5$  时，首先远离梳齿  $f_{m+4}$ ，最后锁定在  $f_{m+8}$  左侧，形成的三角波轨迹包含 4 个峰和三个谷，因此  $f_4$  至  $f_5$  的频率间隔为  $4f_{rep} - 2\Delta f$ 。

传统的频率扫描过程是无法被记录下来的，通常需要绝对的频率测量，如使用波长计来读取不同位置的频率。在光频梳参考的频率锁定和扫描方式中，不仅完成了单频光至梳齿的锁定，而且实现了频率扫描间隔的实时记录和准确计算。

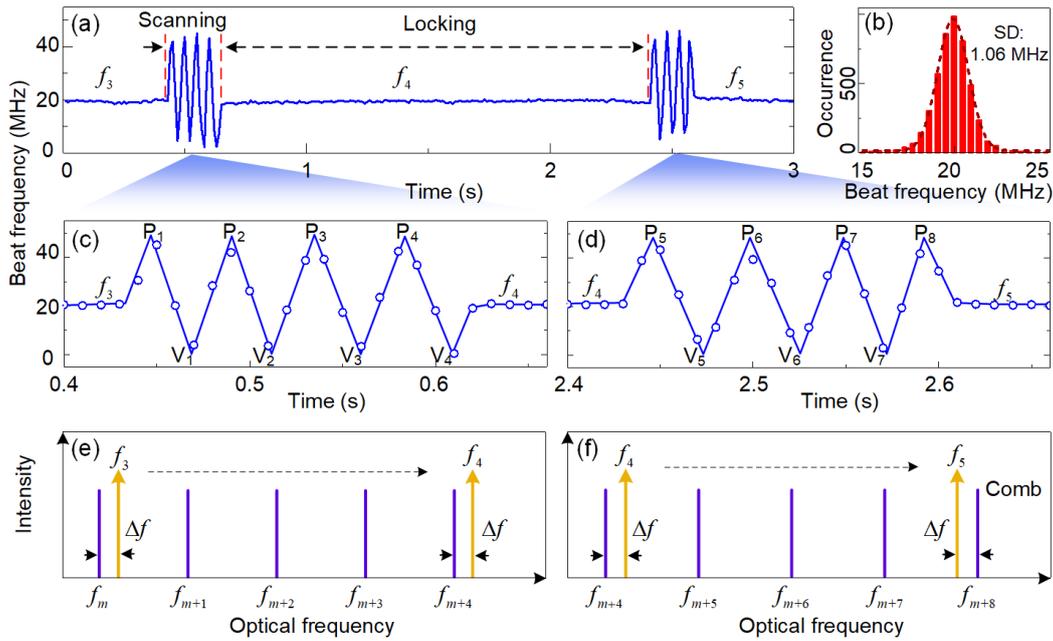


图 4.8 频率锁定过程和锁定效果。

## 4.4 气体光谱的低带宽多外差探测

### 4.4.1 实验设计

低带宽多外差探测是指在单频光与光频梳拍频后只采集 MHz 级别的低频部分，并通过扫描单频光获得范围为几十 GHz 的完整光谱。单频光在不同频率与光频梳干涉，将光谱信息转换至电谱信息，不同频率点的电谱信息组合成待测的光谱。

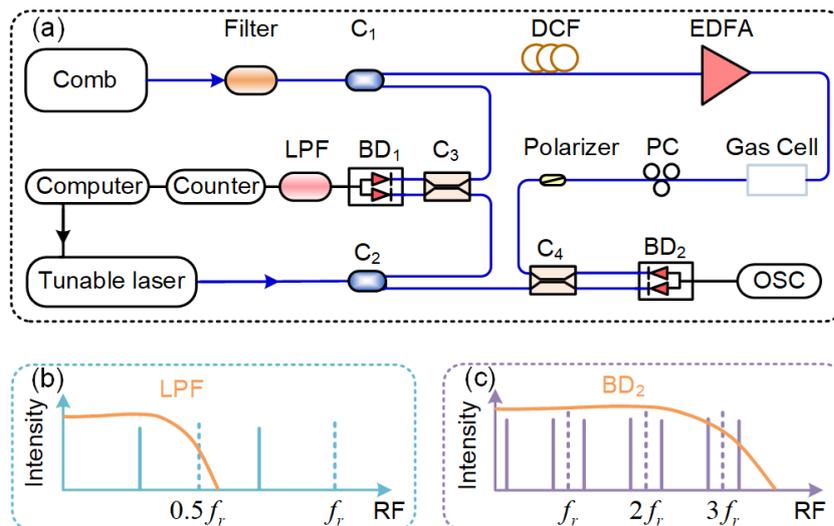


图 4.9 低带宽多外差探测光路图。

实验光路如图 4.9a 所示，分为频率锁定和扫描模块，以及多外差探测模块。光频梳和可调激光器分别经分束器  $C_1$  和  $C_2$  分出 10% 能量进入频率锁定和扫描模

块, 该模块光路与图 4.7 中一致。其中的平衡探测器  $BD_1$  输出和低通滤波器 LPF 的响应曲线如图 4.9b 所示,  $BD_1$  接收了单频光与光频梳的多个拍频信号, LPF 滤出了拍频中的最低频信号, 反映了单频光与最邻近的频梳齿的拍频。在多外差探测模块中, 重频为 100 MHz 的飞秒光频梳首先经过色散补偿光纤 DCF 和光纤放大器 EDFA, 飞秒脉冲被色散为纳秒脉冲后再放大能够获得更大的脉冲能量, 这也是啁啾脉冲放大技术的实现方式。放大后的飞秒光频梳进入气体腔获得目标气体的吸收特征, 再经偏振控制器 PC 和起偏器 polarizer 调节偏振态后与可调激光器的 90% 能量一起进入 3dB 耦合器  $C_4$ , 最后一起进入平衡探测器  $BD_2$  进行多外差干涉。 $BD_2$  的带宽为 350 MHz, 其响应曲线如图 4.9c 所示, 在响应范围内共有 7 个拍频信号, 反映了光频梳中在一个单频光频率点附近的光谱。

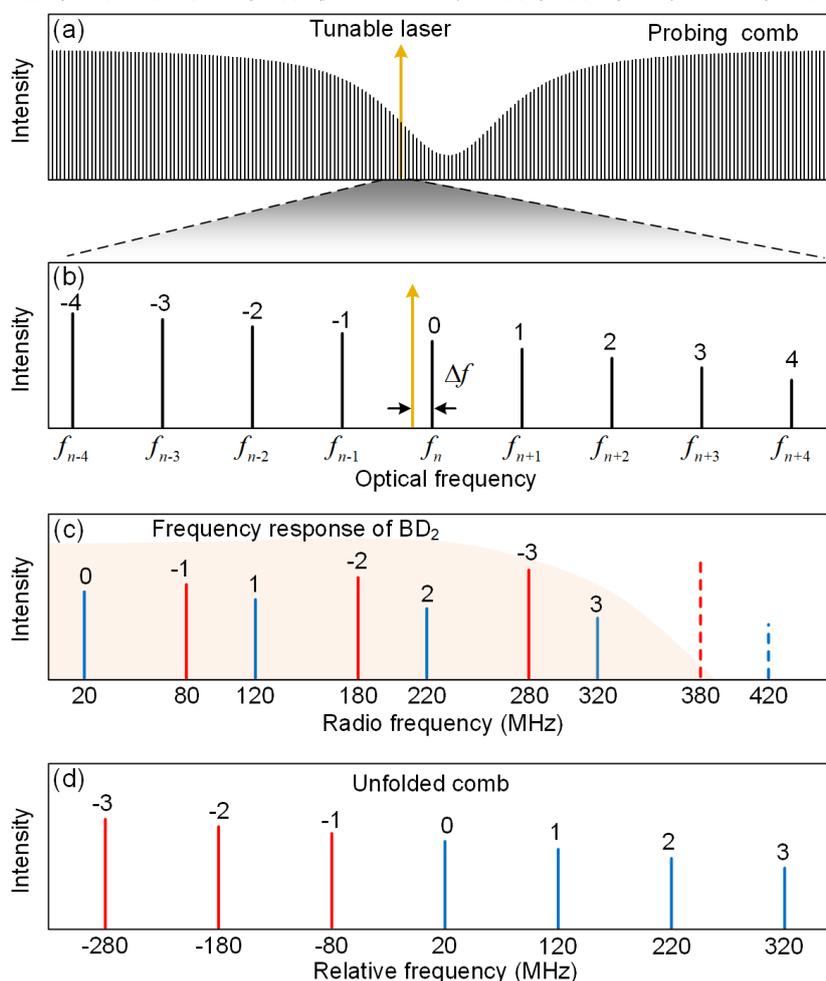


图 4.10 (a) 可调激光器在单个频率点与光频梳的多外差拍频信号; (b) 对拍频结果进行展开, 恢复对应的光谱信息。

图 4.10 示意了在单个频率点的多外差拍频结果, 因为可调激光器与频梳齿锁定的偏移频率是  $\Delta f = 20$  MHz, 所以探测模块的拍频分别为  $|k \times 100 \pm 20|$  MHz, 见图 4.10c。折叠的频谱经展开后得到图 4.10d 的相对于可调激光频率的频谱。在单个可调激光器频率点的采样中, 拍频信号最高频率为 320 MHz, 商用的采集

卡和处理器可以完成对该拍频信号进行快速采集和处理。

低带宽的采样范围获取了可调激光器附近的光频梳光谱信息,通过执行如图 4.6 和 4.7 所示的频率扫描和锁定方案,可以将可调激光器的频率分别锁定在目标气体吸收线的任意位置,进行完整光谱的采样。

#### 4.4.2 梳齿间拍频的抑制

在之前报道的单频光与光频梳多外差探测的光谱学方法中,频梳齿之间的拍频能量远大于单频光与光频梳拍频的能量,为了抑制这种梳齿间拍频的,通常是使用平衡探测的接收方式<sup>[225]</sup>。在实验中,我们发现平衡探测有较好的抑制效果,但依然无法将其抑制至噪声水平。如图 4.11 所示,当我们使用 PD 接收拍频信号时,频率为 100 MHz 的整数倍的频谱能量高于单频光与梳齿拍频 30 dB 以上,此时累计时间为 10  $\mu$ s,这些梳齿间拍频信号不包含光谱信息,但给数据分析增加了难度。当使用平衡探测器 BD 接收时,100 MHz 整数倍的频谱信息明显被抑制,但由于频梳齿的高频率稳定性,增加累积时间后,梳齿间拍频信号的能量依然会超过单频光与梳齿拍频。

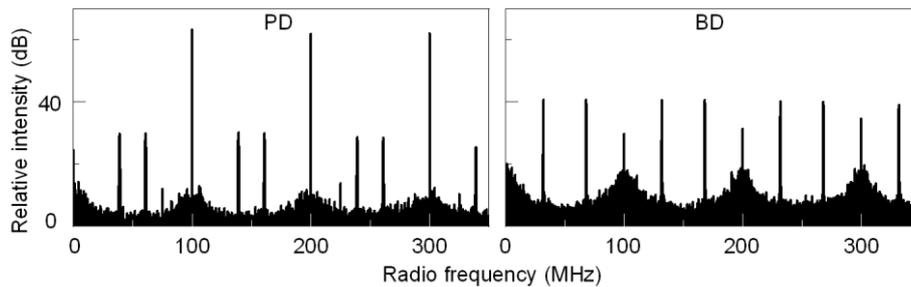


图 4.11 平衡探测器对梳齿间拍频的抑制效果。

为了进一步抑制梳齿间拍频信号,我们在实验中加入色散光纤,以降低梳齿之间的相干效率。也就是说,图 4.9 中的 DCF 有双重作用,一个是实现啁啾脉冲放大,另一个是抑制梳齿间拍频。如图 4.11a 和 b 所示,我们首先验证了不存在单频光的情况下,DCF 对梳齿之间的拍频的抑制效果。可以发现 100 MHz 整数倍的拍频信号均得到抑制,只留下脉冲的 100 MHz 重频信息。接着,我们进行了 DCF 在多外差探测实验中给的抑制效果,可以看出梳齿间拍频信号得到了进一步抑制,接近噪声的水平。因此,我们同时采用平衡探测和色散控制的方式,最大化抑制了梳齿间拍频信号的能量,在这样的情况下,频谱中只包含我们想要的拍频信号,极大的简化了数据处理过程。

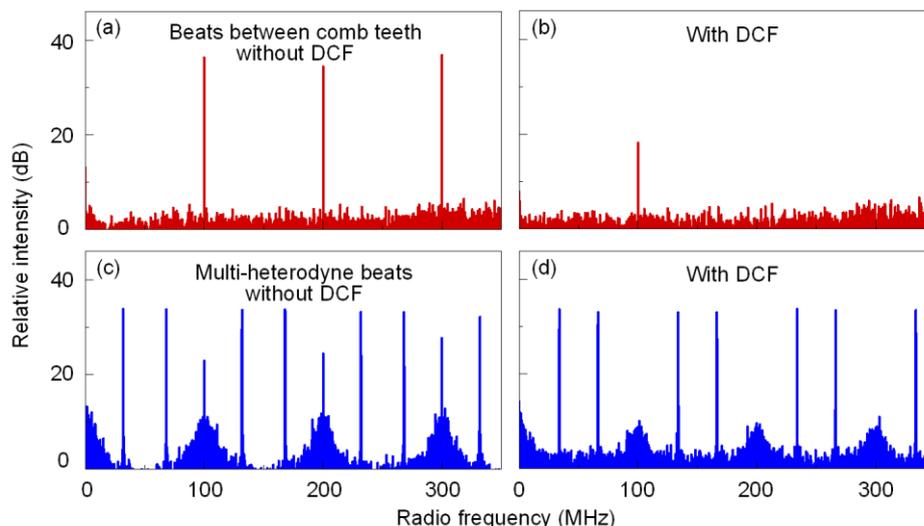


图 4.12 色散光纤对梳齿间拍频的抑制效果。

#### 4.4.3 宽谱扫描模式

在光谱分析过程中，通常我们需要先进行宽谱且快速的扫描，去寻找待测的光谱特征，再在待测光谱附近进行精密的光谱扫描。这样的分析逻辑同样可以运用于多外差光谱学中，可调激光器中的电机粗扫描和 PZT 精细扫描分别对应着光谱分析过程中所需的宽谱和精密扫描。

在宽谱扫描模式中，电机的最快扫描速度为 10 nm/s，最小的扫描间隔是 8 pm。在快速的扫描过程中，将可调激光器锁定在频梳齿是不可行的，也是不必要的，因为快速宽谱的扫描模式的目的是搜索待测的吸收光谱，只要发现目标光谱，便可以切换至精密分析模式。如图 4.13 所示，在扫描速度 0.1 nm/s 时获得的  $\text{H}^{13}\text{CN}$  气体吸收线，扫描结果与光谱仪 OSA 的测量结果保持较好的一致性。可以发现宽谱扫描模式中获得的扫描光谱存在明显的能量抖动和频率偏移，这是在快速扫描过程中频率不稳定导致的。单频光频率的不稳定使得其与光频梳的拍频频谱也随之抖动。不过这种模式可以用于发现待测的吸收光谱，节省使用精密分析模式所需的时间。

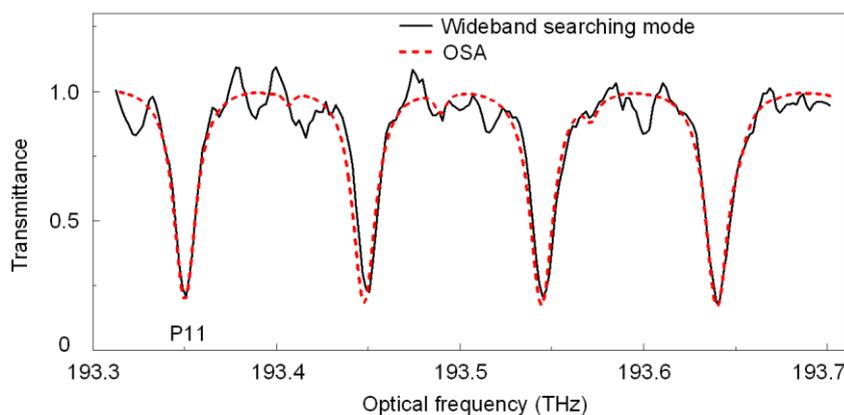


图 4.13 宽谱扫描模式获得的光谱。

## 4.4.3 精密分析模式

在获得图 4.13 中的扫描结果后，我们选择对  $\text{H}^{13}\text{CN}$  的 P11 吸收线进行精密分析。P11 线的光谱范围约 80 GHz，但实验中可调激光器的 PZT 扫描范围仅有 40 GHz，因此使用 PZT 可以扫描该吸收线的一半。对于待测的压强为 100 torr 的气体腔，其吸收光谱可以用 Voigt 函数拟合，因此采集一半的吸收线进行线型拟合同样可以获得待测的光谱。如图 4.14 所示，在精密分析模式中，可调激光器分别锁定在 5 个频率点  $f_a, f_b, f_c, f_d$  和  $f_e$ ，频率点的间隔分别为 5.76 GHz, 7.34 GHz, 12.3 GHz 和 15.3 GHz。每个锁定的频率点完成的低频多外差探测中可以获得 7 个电频梳齿，图 4.14 中的蓝色点为每个电频梳齿的顶点。其中频率点  $f_a$  处获得的多外差探测频谱如图 4.15 所示，单个频率点进行了 4 次测量并平均，每次测量的数据采集时间为 100  $\mu\text{s}$ 。由于单频光在锁定后的频率抖动的标准差为  $\pm 1.06$  MHz，所以 4 次测量结果的频谱是与单频光的频率变化相关的。如图 4.15b 所示，4 次测量中 20 MHz 附近的拍频信号分布在 18 MHz 至 22 MHz 内，在数据分析时，对 4 次测量的电频梳齿顶点进行平均，并认为是在 20 MHz 的频谱，累计时间为 400  $\mu\text{s}$ 。图 4.15 中 5 个频率点的总共采集时间为 2 ms。对 5 次采集的 35 个顶点进行 Voigt 线型拟合后，得到图中所示的黑色线型结果。拟合后的结果与光谱仪采集的吸收光谱保持较好一致性。图中底部的偏差结果分别为精密分析模式的原始顶点数据与 Voigt 线型拟合的偏差，以及拟合线型与光谱仪测试结果的偏差。原始数据点与拟合结果的最大相对偏差为 3%。

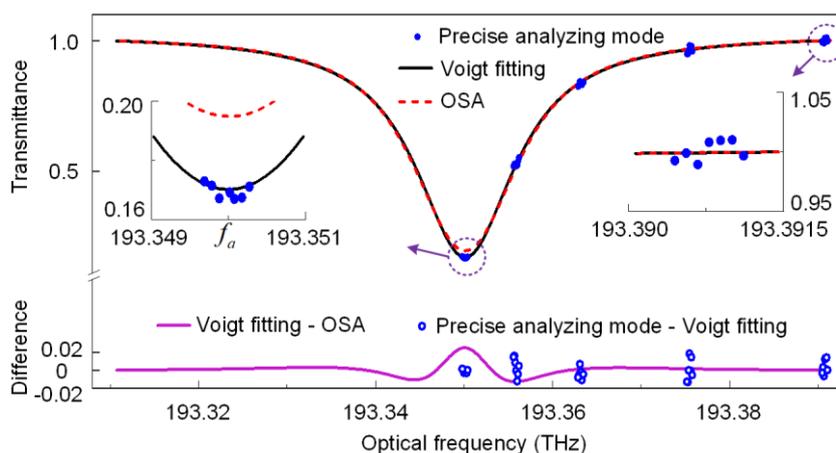


图 4.14 精密分析模式获得的光谱。

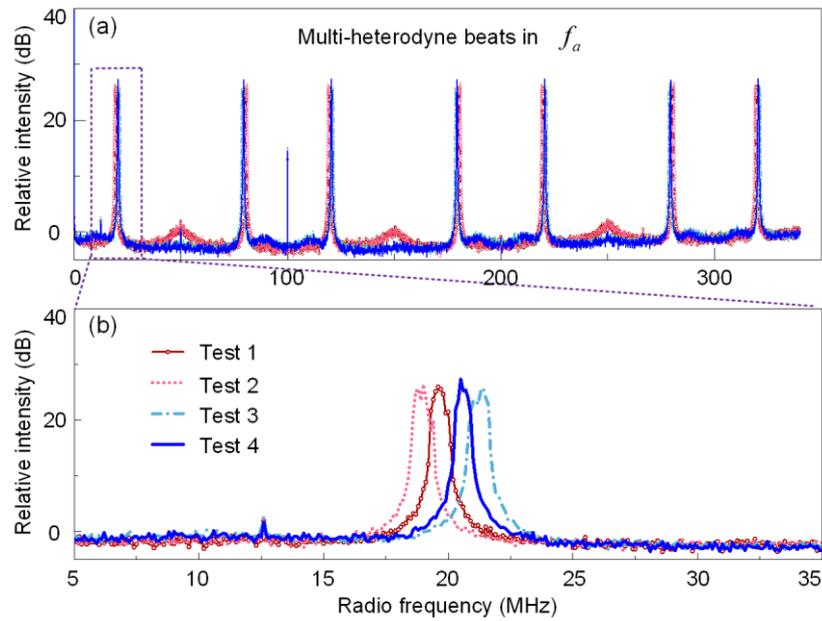


图 4.15 锁定的频率点  $f_a$  与频梳多外差干涉的 4 次测量结果。

结合宽谱扫描模式和精密分析模式，该多外差探测系统具有以下特点：1. 在 350 MHz 的低采样带宽下完成宽光谱范围的快速扫描和精密分析；2. 数据采集时间为 ms 甚至  $\mu\text{s}$  级别；3. 可实时处理；4. 频率锁定后的标准差达到 1.06 MHz；5. 频率扫描间隔可准确计算。

#### 4.5 小结

1. 针对目前单频光与光频梳多外差探测中的高带宽采集需求，提出一种基于频率扫描和锁定的低带宽采样方式。
2. 光频梳不仅可以作为探测光，而且可以同时作为扫描激光器的频率标准，完成了使用频梳参考的可调激光器频率锁定和扫描方案，该方案可以实现 1 MHz 稳定度的频率锁定以及频率间隔的准确计算。
3. 在多外差探测中提出宽谱扫描和精密分析两种模式，提供了更灵活的应用功能。

## 第五章 时域拉伸在大气光谱分析中的应用展望

前面第二至第四章的内容介绍了飞秒激光在实验室环境的气体超快探测,考虑到大气遥感的迫切需求,以及飞秒激光宽光谱和高重频的优势,本章将展望一种基于时域拉伸和选通的大气光谱分析技术,用于快速遥感气体成分。

### 5.1 气体探测激光雷达中的频率扫描和锁定

根据探测机制的不同,气体探测激光雷达可分差分吸收激光雷达、拉曼激光雷达、高光谱分辨激光雷达等。目前,最常用的是差分吸收激光雷达,其中最常采用的是双频率差分吸收激光雷达,其中一个波长的激光在目标气体上的吸收截面强,另外一个波长的激光在目标气体上的吸收截面弱,通过探测这两路激光回波信号的比值,可确定不同距离处目标气体的成分<sup>[234]</sup>。双频率差分吸收激光雷达的缺点在于单套设备仅可实现单种气体的成分探测。多频率差分吸收激光雷达可以扫描光谱,获得宽光谱范围多种气体的成分信息<sup>[235,236]</sup>。但频率扫描会带来多种问题,例如:机械扫描速度受限和频率稳定性差,因此在实验中需要设计快速的频率扫描方式和锁定环路。

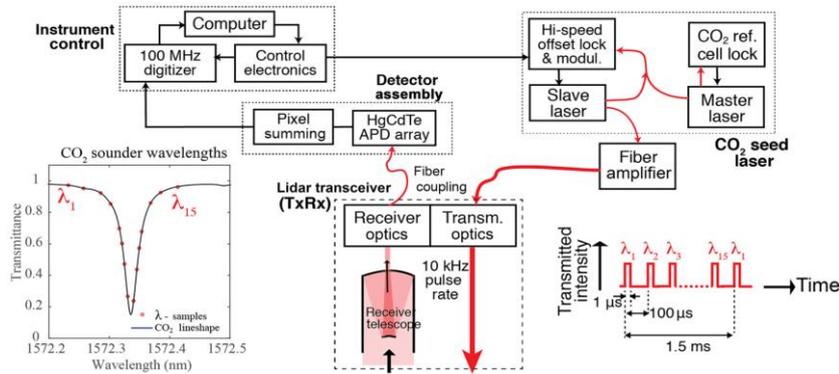


图 5.1 多波长路径积分差分吸收激光雷达系统图<sup>[235]</sup>。

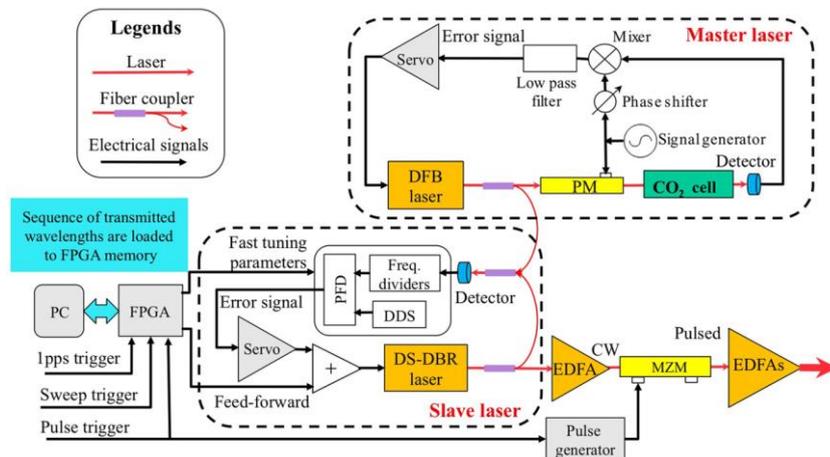


图 5.2 频率扫描和锁定原理图<sup>[235]</sup>。

如图 5.1 和 5.2 所示，为了实现频率扫描和锁定，结合了气体吸收锁定和锁相环技术<sup>[235]</sup>。虽然完成了多频率扫描，但是由于锁定技术的局限性，难以实现宽谱范围内多条气体吸收光谱的扫描，因此仍然需要对不同气体采用不同的锁定和参考装置。

2021 年中国科大实现基于光频梳锁定和扫描方案的气体探测激光雷达<sup>[135]</sup>，完成了自由空间距离分辨的多种气体光谱遥感。如图 5.3 所示，该激光雷达中单频光的锁定和扫描方案与 4.3 节一致，由于在频域中进行激光频率扫描的不稳定性，必须对单频光进行频率锁定。光频梳参考的锁定方案有稳定性高和调谐范围宽等优势，但是也面临着锁定过程和调谐过程耗时长的问题。

针对这种频率锁定和扫描技术带来的挑战，直接在频域难以获得最佳的解决方案，因此我们考虑借助时域拉伸技术的时频映射关系，在时域中实现频率扫描。

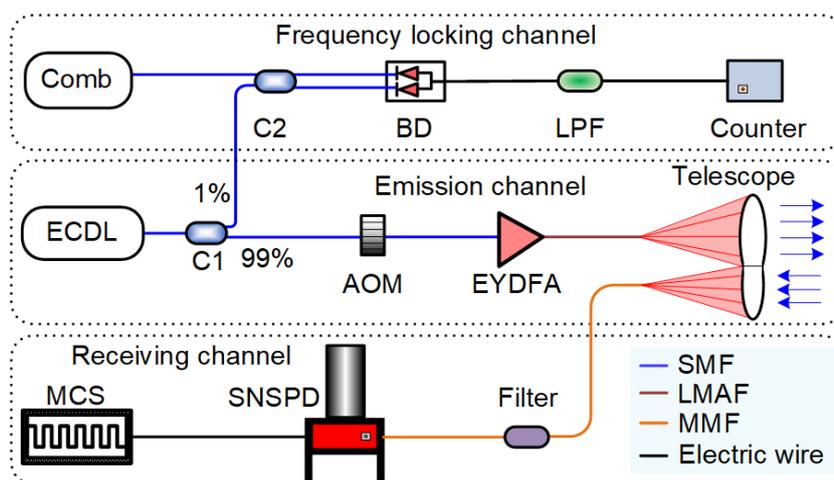


图 5.3 基于光频梳频率锁定和扫描的气体探测激光雷达原理图。

## 5.2 时域拉伸和频率选通

在 1.3.1 小节和 2.2 节中展现了飞秒激光经时域拉伸后的时频性质，由于群速度色散，飞秒激光中的频率成分在时域中展开，不同频率信息映射在不同时间。因此，我们在时域脉冲中的调制将对应到光谱中的调制，通过在时域中进行选通可以实现光谱中的滤波。

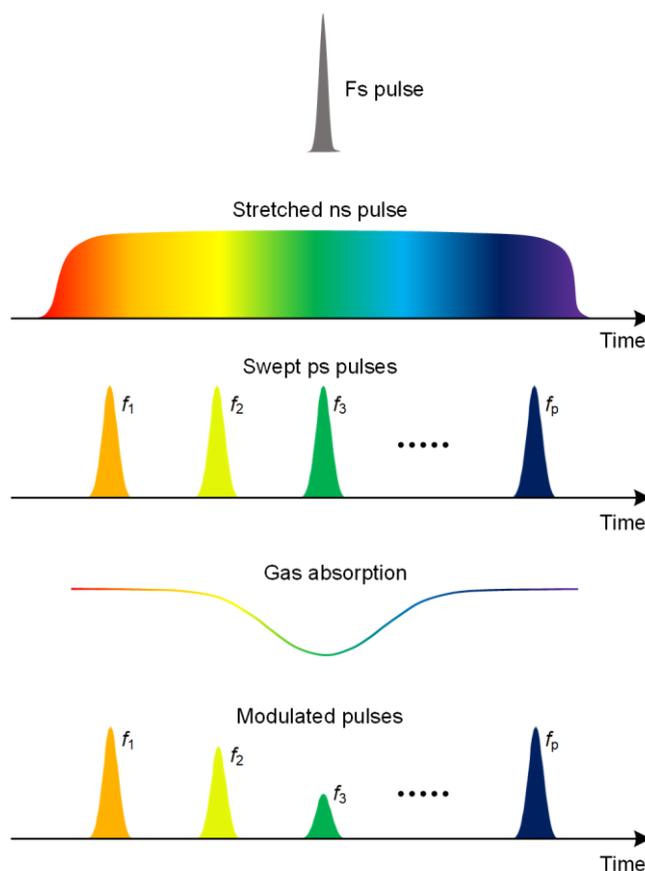


图 5.4 时域拉伸和频率选通原理图

如图 5.4 所示的时域拉伸和频率选通原理图，飞秒激光经时域拉伸成为纳秒脉冲，当总色散为  $16 \text{ ns/nm}$  时， $0.6 \text{ nm}$  光谱范围的光谱将在  $9.6 \text{ ns}$  的时域脉冲中展开。通过光学调制器产生的 ps 脉冲，可以将拉伸后的 ns 脉冲中频率分量进行选择，实现了时域中的光学滤波。时域中光学频率的扫描只需要调节光学调制器中 ps 脉冲的延时即可完成，光学调制器由信号发生器触发，所以光学频率扫描是电学上扫描脉冲延时完成的。这种扫描方式速度快，稳定性高，不需要光频域中的复杂频率锁定过程。由于选通后不同的 ps 脉冲代表了不同的光频率，将这些脉冲分别出射至大气中，采集回波信号，便能够完成气体光谱的遥感。

在实现拉伸和频率选通方案中，有两个关键点需要考虑，一是光谱至时域的映射方法，二是用于选通的 ps 脉冲的生成。在关键点一中，通常使用超短脉冲和色散器件完成时频映射，但是这种实现方式存在成本高和插入损耗大的问题。此时需要考虑用非相干宽谱光源代替超短脉冲源，用线性啁啾布拉格光栅<sup>[237]</sup>、阵列波导光栅<sup>[238]</sup>和时间透镜<sup>[239,240]</sup>等代替传统的色散光纤。如图 5.6 所示，图 a 为锁模激光器色散前后的时频映射关系；图 b 和 c 为非相干光源经时间透镜聚焦机制的实时光谱映射；图 d 为啁啾光纤布拉格光栅形成的光谱映射，同样可以用于非相干宽谱光源。

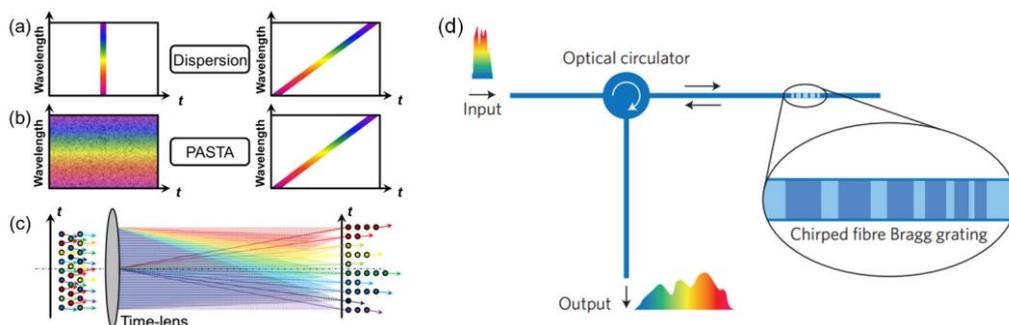


图 5.6 使用时间透镜<sup>[240]</sup>和啁啾布拉格光栅<sup>[237]</sup>形成的光谱至时域映射。

对于关键点二，ps 选通脉冲的宽度影响着选通的频率分辨率，如果 1 nm 的光谱范围被拉伸后的脉冲宽度为 10 ns，那么想实现 0.01 nm 的最小选通间隔，就至少需要 100 ps 的选通脉冲。生成 ps 选通脉冲需要 ps 的电学脉冲和光学调制器，光学调制器的响应速度可以达到 40 GHz，因此输出 ps 级的脉冲是足够的。Ps 电学脉冲的生成可以采用几十 GHz 以上采样率的任意波形发生器或者电学超短脉冲发生器。

### 5.3 基于时域拉伸和频率选通的气体探测激光雷达

根据上一节在时域中进行频率选通的方案，可以设计出如图 5.7 所示的气体光谱探测激光雷达原理图。首先，宽谱光源经光谱-时域映射装置实现光谱分量在时域上展开；接着，电学 ps 脉冲发生器输出 ps 脉冲调制信号至电光调制器 EOM，形成光学 ps 脉冲，通过扫描该脉冲的延时，实现时域中光谱的扫描；之后，ps 脉冲进入掺饵光纤放大器 EDFA 进行能量放大；放大后的脉冲经扩束器扩束后出射至大气；最后，大气中回波信号由探测器接收，不同出射脉冲代表了不同频率的光谱。

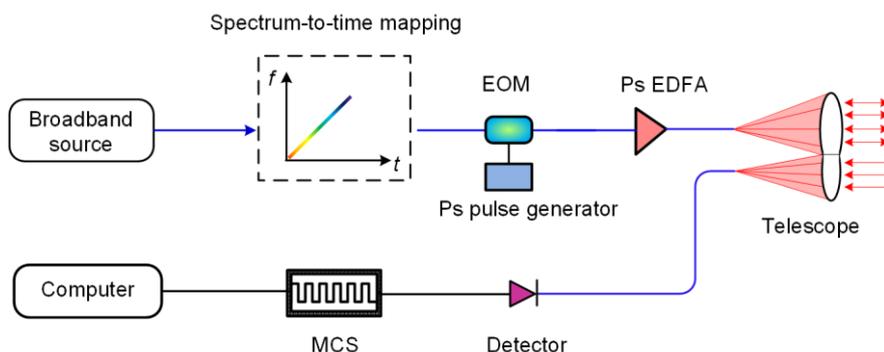


图 5.7 基于时域拉伸和频率选通的气体探测激光雷达原理图。

### 5.4 小结

1. 分析了传统气体光谱探测激光雷达的频率扫描问题，提出基于时域拉伸和频率选通的光谱扫描技术。

2. 展望了基于时域拉伸和频率选通的气体探测激光雷达，该雷达可以在时域中对频率进行快速扫描，并且不需要频率锁定，相比传统的频域光谱扫描方式更加稳定，易于集成化。

## 第六章 总结

论文回顾了飞秒激光的时域和频域性质；介绍了光频梳光谱学的发展和单腔双频梳光谱学的进步；介绍了时域拉伸技术在超快探测领域的应用。采用光学软件仿真、理论和实验论证的方法，研究了光频梳的非平衡时域拉伸和宽带微波信号的调制。结合时域拉伸技术和双频梳光谱学思想，提出非平衡时域拉伸光谱学，进行了气体光谱的超快探测。运用微波光子学中的光学调制技术，实现了宽光谱映射的光谱分析方法。另外，采用光频梳参考的频率锁定和扫描技术，提出了低带宽的多外差光谱分析方法。

论文研究的几个结论如下：

1. 双频梳光谱学可以完成单个梳齿分辨的光谱分析，而无法实现单发脉冲实时探测，一次光谱的分析需要累积数量等于压缩系数的脉冲个数；而传统时域拉伸光谱学能够实现单发脉冲的实时探测，而无法实现梳齿分辨。结合单腔双频梳光谱学的思想和时域拉伸技术的特点，提出非平衡时域拉伸光谱学技术。
2. 指出平衡时域拉伸和非平衡时域拉伸干涉仪的区别，平衡时域拉伸干涉仪应运用于窄电谱分析实验，如超快测距；非平衡时域拉伸干涉仪应运用于宽电谱分析实验。非平衡时域拉伸光谱学 FITSS 能够完成气体光谱至电频梳的实时映射，不仅可以实现单发脉冲探测，而且拥有梳齿分辨的测量结果。分辨率与光频梳重频和时域拉伸系数相关，最快探测速度与重复频率一致，分辨率与探测速度存在相互制约关系。
3. 引入微波光子学信号处理方法解决 FITSS 中宽带微波信号的采集和处理问题，可以将待测光谱映射至载波  $1.5 \mu\text{m}$  进行分辨。针对传统光谱仪只能在特定范围高分辨的问题，设计了一种基于宽光谱映射的光谱分析方法，原本处于低分辨率的光谱区域可以通过光谱映射方法转换至高分辨率区域进行分析。
4. 充分利用光频梳的等间隔频率标准，实现可调单频激光的快速扫描和锁定。针对单频光与光频梳的多外差探测中存在的高带宽数据采集问题，采用这种频梳参考的单频光扫描和锁定技术，不仅能获得程序化和稳定的频率锁定，而且能够实现低带宽的超快气体光谱分析。
5. 时域拉伸技术可以在气体探测激光雷达中发挥重要作用。展望了一种时域拉伸和频率选通的频率扫描方法，可以运用于大气光谱遥感，不需要传统气体探测激光雷达中的光谱扫描和锁定。时域拉伸技术的实现可以使用成本低的

宽谱非相干光源。

论文的创新点主要有以下几点：

1. 针对光频梳和时域拉伸技术的各自优势，首次提出非平衡时域拉伸光谱学，这是一种结合了双频梳思想与时域拉伸技术的方法。FITSS 不仅实现了光频梳至电频梳转换的高分辨率光谱分析，而且拥有单发脉冲实时探测的能力，在高分辨的超快气体探测领域有应用潜力。
2. 利用宽电谱调制技术，将 FITSS 中宽电谱映射至光谱进行分析，形成了光谱至电谱、电谱再至光谱的映射关系，首次提出一种基于宽光谱映射的光谱分析技术，可将难以分辨的光谱映射至高分辨区域进行分析。
3. 提出光频梳参考的单频光频率锁定和扫描技术，为单频光与光频梳的多外差探测提供程序化和稳定的扫描光源，实现了低带宽的多外差光谱学，用于超快气体光谱分析。程序化的扫描锁定方案提供了宽谱扫描模式和精密分析模式，使得该光谱分析方法向实际应用更进一步。

论文的后继研究工作主要有以下两点：

1. 将时域拉伸技术运用于大气光谱遥感。基于时域拉伸和频率选通原理，使用宽谱非相干光源和色散器件建立光谱至时域映射关系，以及使用 ps 脉冲实现时域中的频率选通和扫描。为气体探测激光雷达提供稳定且快速的扫描光源，实现大气气体光谱的快速分析。
2. 随着集成光子学和光学微腔的发展，微型光频梳源将逐渐产品化。未来可以使用微型光频梳作为光谱学分析工具，提高系统的集成度和稳定度。

## 参 考 文 献

- [1] Fork, R. L., Greene, B. I., and Shank, C. V., Generation of optical pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse mode locking[J]. Appl. Phys. Lett. 1981, 38(9): 671–672.
- [2] Valdmanis, J. A., Fork, R. L., and Gordon, J. P., Generation of Femtosecond Optical Pulses Directly From Lasers Balancing Self-Phase Modulation, Group Velocity Dispersion, Saturable Absorption, and Saturable Gain[J]. 1985, 10(3): 80–82.
- [3] Zewail, A. H., Femtochemistry: Atomic-scale dynamics of the chemical bond[J]. J. Phys. Chem. A 2000, 104(24): 5660–5694.
- [4] Hänsch, T. W., Nobel lecture: Passion for precision[J]. Rev. Mod. Phys. 2006, 78(4): 1297–1309.
- [5] Hall, J. L., Nobel lecture: Defining and measuring optical frequencies[J]. Rev. Mod. Phys. 2006, 78(4): 1279–1295.
- [6] Strickland, D. and Mourou, G., Compression of amplified chirped optical pulses[J]. Opt. Commun. 1985, 55(6): 447–449.
- [7] Mourou, G., Nobel Lecture: Extreme light physics and application[J]. Rev. Mod. Phys. 2019, 91(3): 30501.
- [8] Strickland, D., Nobel Lecture: Generating high-intensity ultrashort optical pulses[J]. Rev. Mod. Phys. 2019, 91(3): 30502.
- [9] Cundiff, S. T. and Ye, J., Colloquium: Femtosecond optical frequency combs[J]. Rev. Mod. Phys. 2003, 75(1): 325–342.
- [10] Jones, D. J., Carrier-Envelope Phase Control of Femtosecond Mode-Locked Lasers and Direct Optical Frequency Synthesis[J]. Science 2000, 288(5466): 635–639.
- [11] Cundiff, S. T., Phase stabilization of ultrashort optical pulses[J]. J. Phys. D. Appl. Phys. 2002, 35(8): .
- [12] Nedialkov, N. N., Imamova, S. E., and Atanasov, P. A., Ablation of metals by ultrashort laser pulses[J]. J. Phys. D. Appl. Phys. 2004, 37(4): 638–643.
- [13] Von Der Linde, D., Sokolowski-Tinten, K., and Bialkowski, J., Laser-solid interaction in the femtosecond time regime[J]. Appl. Surf. Sci. 1997, 109–110: 1–10.
- [14] Liu, X., Du, D., and Mourou, G., Laser ablation and micromachining with

- ultrashort laser pulses[J]. *IEEE J. Quantum Electron.* 1997, 33(10): 1706–1716.
- [15] Li, G., Fan, H., Ren, F., Zhou, C., Zhang, Z., Xu, B., Wu, S., Hu, Y., Zhu, W., Li, J., Zeng, Y., Li, X., Chu, J., and Wu, D., Multifunctional ultrathin aluminum foil: oil/water separation and particle filtration[J]. *J. Mater. Chem. A* 2016, 4(48): 18832–18840.
- [16] Zhang, Z., Zhang, Y., Fan, H., Wang, Y., Zhou, C., Ren, F., Wu, S., Li, G., Hu, Y., Li, J., Wu, D., and Chu, J., A Janus oil barrel with tapered microhole arrays for spontaneous high-flux spilled oil absorption and storage[J]. *Nanoscale* 2017, 9(41): 15796–15803.
- [17] Wu, D., Zhang, Z., Zhang, Y., Jiao, Y., Jiang, S., Wu, H., Li, C., Zhang, C., Li, J., Hu, Y., Li, G., Chu, J., and Jiang, L., High-Performance Unidirectional Manipulation of Microdroplets by Horizontal Vibration on Femtosecond Laser-Induced Slant Microwall Arrays[J]. *Adv. Mater.* 2020, 32(48): 1–11.
- [18] Li, G., Zhang, Z., Wu, P., Wu, S., Hu, Y., Zhu, W., Li, J., Wu, D., Li, X., and Chu, J., One-step facile fabrication of controllable microcone and micromolar silicon arrays with tunable wettability by liquid-assisted femtosecond laser irradiation[J]. *RSC Adv.* 2016, 6(44): 37463–37471.
- [19] Lin, W., Lai, T., Cheng, Y., Zheng, X., Xu, X., and Mo, D., 19fs-pulse generation from a self mode-locked Ti:Sapphire laser[J]. *Guangxue Xuebao/Acta Opt. Sin.* 1995, 15(8): 1151–1152.
- [20] Backus, S., Peatross, J., Huang, C. P., Murnane, M. M., and Kapteyn, H. C., Ti:sapphire amplifier producing millijoule-level, 21-fs pulses at 1 kHz[J]. *Opt. Lett.* 1995, 20(19): 2000.
- [21] Sala, K. and Richardson, M. C., Optical Kerr effect induced by ultrashort laser pulses[J]. *Phys. Rev. A* 1975, 12(3): 1036–1047.
- [22] Asaki, M. T., Huang, C.-P., Garvey, D., Zhou, J., Kapteyn, H. C., and Murnane, M. M., Generation of 11-fs pulses from a self-mode-locked Ti:sapphire laser[J]. *Opt. Lett.* 1993, 18(12): 977.
- [23] Jovanovic, I., Comaskey, B. J., Ebberts, C. A., Bonner, R. A., Pennington, D. M., and Morse, E. C., Optical parametric chirped-pulse amplifier as an alternative to Ti:sapphire regenerative amplifiers[J]. *Appl. Opt.* 2002, 41(15): 2923.
- [24] Dubietis, A., Butkus, R., and Piskarskas, A. P., Trends in chirped pulse optical parametric amplification[J]. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* 2006, 12(2): 163–172.

- [25] Ye, J., Schnatz, H., and Hollberg, L. W., Optical Frequency Combs: From Frequency Metrology to Optical Phase Control[J]. *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* 2003, 9(4): 1041–1058.
- [26] Reichert, J., Holzwarth, R., Udem, T., and Hänsch, T. W., Measuring the frequency of light with mode-locked lasers[J]. *Opt. Commun.* 1999, 172(1): 59–68.
- [27] Diddams, S. A., Vahala, K., and Udem, T., Optical frequency combs: Coherently uniting the electromagnetic spectrum[J]. *Science* 2020, 369(6501): .
- [28] Bryant, J. H., The first century of microwaves-1886 to 1986[J]. *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* 1988, 36(5): 830–858.
- [29] Hertz, H., *Untersuchungen Ueber Die Ausbreitung Der Elektrischen Kraft* (Univ. Autònoma de Barcelona, 1989), 2.
- [30] Maiman, T. H., Stimulated optical radiation in ruby[J]. 1960, .
- [31] Udem, T., Phasenkohärente optische frequenzmessungen am wasserstoffatom. Bestimmung der rydberg-konstanten und der 1S Lamb-verschiebung[J]. *Laser* 1997, 2(f1): f2.
- [32] Karshenboim, S. G., Pavone, F. S., Bassani, F., Inguscio, M., and Hänsch, T. W., *The Hydrogen Atom: Precision Physics of Simple Atomic Systems* (Springer, 2007), 570.
- [33] Nakagawa, K., Kourogi, M., and Ohtsu, M., Proposal of a frequency-synthesis chain between the microwave and optical frequencies of the Ca intercombination line at 657 nm using diode lasers[J]. *Appl. Phys. B* 1993, 57(6): 425–430.
- [34] Stock, M., Davis, R., De Mirandés, E., and Milton, M. J. T., Corrigendum: The revision of the SI - The result of three decades of progress in metrology[J]. *Metrologia* 2019, 56(4).
- [35] Diddams, S. A., Jones, D. J., Ye, J., Cundiff, S. T., Hall, J. L., Ranka, J. K., Windeler, R. S., Holzwarth, R., Udem, T., and Hänsch, T. W., Direct link between microwave and optical frequencies with a 300 THz femtosecond laser comb[J]. *Phys. Rev. Lett.* 2000, 84(22): 5102–5105.
- [36] Ye, J., Yoon, T. H., Hall, J. L., Madej, A. A., Bernard, J. E., Siemsen, K. J., Marmet, L., Chartier, J. M., and Chartier, A., Accuracy comparison of absolute optical frequency measurement between harmonic-generation synthesis and a frequency-division femtosecond comb[J]. *Phys. Rev. Lett.* 2000, 85(18):

- 3797–3800.
- [37] Hinkley, N., Sherman, J. A., Phillips, N. B., Schioppo, M., Lemke, N. D., Beloy, K., Pizzocaro, M., Oates, C. W., and Ludlow, A. D., An Atomic Clock with 10-18 Instability[J]. *Science* 2013, 341(6151): 1215–1218.
- [38] Bloom, B. J., Nicholson, T. L., Williams, J. R., Campbell, S. L., Bishof, M., Zhang, X., Zhang, W., Bromley, S. L., and Ye, J., An optical lattice clock with accuracy and stability at the 10-18 level[J]. *Nature* 2014, 506(7486): 71–75.
- [39] Ludlow, A. D., Boyd, M. M., Ye, J., Peik, E., and Schmidt, P. O., Optical atomic clocks[J]. *Rev. Mod. Phys.* 2015, 87(2): 637–701.
- [40] Campbell, S. L., Hutson, R. B., Marti, G. E., Goban, A., Oppong, N. D., McNally, R. L., Robinson, J. M., Zhang, W., and Bloom, B. J., A Fermi-degenerate three-dimensional optical lattice clock[J]. 2017, 94(October): 90–94.
- [41] Steinmetz, T., Wilken, T., Araujo-Hauck, C., Holzwarth, R., Hänsch, T. W., Pasquini, L., Manescau, A., D’Odorico, S., Murphy, M. T., Kentischer, T., Schmidt, W., and Udem, T., Laser frequency combs for astronomical observations[J]. *Science* 2008, 321(5894): 1335–1337.
- [42] Probst, R. A., Milaković, D., Toledo-Padrón, B., Lo Curto, G., Avila, G., Brucalassi, A., Canto Martins, B. L., de Castro Leão, I., Esposito, M., González Hernández, J. I., Grupp, F., Hänsch, T. W., Kellermann, H., Kerber, F., Mandel, O., Manescau, A., Pozna, E., Rebolo, R., de Medeiros, J. R., Steinmetz, T., Suárez Mascareño, A., Udem, T., Urrutia, J., Wu, Y., Pasquini, L., and Holzwarth, R., A crucial test for astronomical spectrograph calibration with frequency combs[J]. *Nat. Astron.* 2020, 4(6): 603–608.
- [43] Metcalf, A. J., Anderson, T., F.Bender, C., Blakeslee, S., Brand, W., Carlson, D. R., Cochran, W. D., Diddams, S. A., Endl, M., Fredrick, C., Halverson, S., Hickstein, D. D., Hearty, F., Jennings, J., Kanodia, S., Kaplan, K. F., Levi, E., Lubar, E., Mahadevan, S., Monson, A., Ninan, J. P., Nitroy, C., Osterman, S., Papp, S. B., Quinlan, F., Ramsey, L., Robertson, P., Roy, A., Schwab, C., Sigurdsson, S., Srinivasan, K., Stefansson, G., Sterner, D. A., Terrien, R., Wolszczan, A., Wright, J. T., and Ycas, G., Stellar Spectroscopy in the Near-infrared with a Laser Frequency Comb[J]. *arXiv* 2019, 6(2): .
- [44] Coddington, I., Newbury, N., and Swann, W., Dual-comb spectroscopy[J]. *Optica* 2016, 3(4): 414.

- [45] Cossel, K. C., Waxman, E. M., Giorgetta, F. R., Cermak, M., Coddington, I. R., Hesselius, D., Ruben, S., Swann, W. C., Truong, G.-W., Rieker, G. B., and Newbury, N. R., Open-path dual-comb spectroscopy to an airborne retroreflector[J]. *Optica* 2017, 4(7): 724.
- [46] Rieker, G. B., Giorgetta, F. R., Swann, W. C., Kofler, J., Zolot, A. M., Sinclair, L. C., Baumann, E., Cromer, C., Petron, G., Sweeney, C., Tans, P. P., Coddington, I., and Newbury, N. R., Frequency-comb-based remote sensing of greenhouse gases over kilometer air paths[J]. *Optica* 2014, 1(5): 290.
- [47] Picqué, N. and Hänsch, T. W., Frequency comb spectroscopy[J]. *Nat. Photonics* 2019, 13(3): 146–157.
- [48] Eckstein, J. N., Ferguson, A. I., and Hänsch, T. W., High-Resolution Two-Photon Spectroscopy with Picosecond Light Pulses[J]. *Phys. Rev. Lett.* 1978, 40(13): 847–850.
- [49] Schliesser, A., Picqué, N., and Hänsch, T. W., Mid-infrared frequency combs[J]. *Nat. Photonics* 2012, 6(7): 440–449.
- [50] Schunemann, P. G., Zawilski, K. T., Pomeranz, L. A., Creedon, D. J., and Budni, P. A., Advances in nonlinear optical crystals for mid-infrared coherent sources[J]. *J. Opt. Soc. Am. B* 2016, 33(11): D36.
- [51] Ruehl, A., Gambetta, A., Hartl, I., Fermann, M. E., Eikema, K. S. E., and Marangoni, M., Widely-tunable mid-infrared frequency comb source based on difference frequency generation[J]. *Opt. Lett.* 2012, 37(12): 2232.
- [52] Bartalini, S., Cancio, P., Giusfredi, G., Mazzotti, D., De Natale, P., Borri, S., Galli, I., Leveque, T., and Gianfrani, L., Frequency-comb-referenced quantum-cascade laser at 44  $\mu\text{m}$ [J]. *Opt. Lett.* 2007, 32(8): 988.
- [53] Yasui, T., Kabetani, Y., Saneyoshi, E., Yokoyama, S., and Araki, T., Terahertz frequency comb by multifrequency-heterodyning photoconductive detection for high-accuracy, high-resolution terahertz spectroscopy[J]. *Appl. Phys. Lett.* 2006, 88(24): .
- [54] Gaeta, A. L., Lipson, M., and Kippenberg, T. J., Photonic-chip-based frequency combs[J]. *Nat. Photonics* 2019, 13(3): 158–169.
- [55] Kippenberg, T. J., Holzwarth, R., and Diddams, S. A., Microresonator-based optical frequency combs[J]. *Science* 2011, 332(6029): 555–559.
- [56] Griffith, A. G., Lau, R. K. W., Cardenas, J., Okawachi, Y., Mohanty, A., Fain, R., Lee, Y. H. D., Yu, M., Phare, C. T., Poitras, C. B., Gaeta, A. L., and Lipson, M.,

- Silicon-chip mid-infrared frequency comb generation[J]. *Nat. Commun.* 2015, 6: 61–5.
- [57] Kippenberg, T. J., Gaeta, A. L., Lipson, M., and Gorodetsky, M. L., Dissipative Kerr solitons in optical microresonators[J]. *Science* 2018, 361(6402): .
- [58] Dutt, A., Joshi, C., Ji, X., Cardenas, J., Okawachi, Y., Luke, K., Gaeta, A. L., and Lipson, M., On-chip dual-comb source for spectroscopy[J]. *Sci. Adv.* 2018, 4(3): 1–10.
- [59] Stern, B., Ji, X., Okawachi, Y., Gaeta, A. L., and Lipson, M., Battery-operated integrated frequency comb generator[J]. *Nature* 2018, 562(7727): 401–405.
- [60] Vainio, M. and Halonen, L., Mid-infrared optical parametric oscillators and frequency combs for molecular spectroscopy[J]. *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2016, 18(6): 4266–4294.
- [61] Meek, S. A., Poisson, A., Guelachvili, G., Hänsch, T. W., and Picqué, N., Fourier transform spectroscopy around 3  $\mu\text{m}$  with a broad difference frequency comb[J]. *Appl. Phys. B Lasers Opt.* 2014, 114(4): 573–578.
- [62] Mayer, A. S., Phillips, C. R., Langrock, C., Klenner, A., Johnson, A. R., Luke, K., Okawachi, Y., Lipson, M., Gaeta, A. L., Fejer, M. M., and Keller, U., Offset-Free Gigahertz Midinfrared Frequency Comb Based on Optical Parametric Amplification in a Periodically Poled Lithium Niobate Waveguide[J]. *Phys. Rev. Appl.* 2016, 6(5): .
- [63] Maidment, L., Schunemann, P. G., and Reid, D. T., Molecular fingerprint-region spectroscopy from 5 to 12  $\mu\text{m}$  using an orientation-patterned gallium phosphide optical parametric oscillator[J]. *Opt. Lett.* 2016, 41(18): 4261.
- [64] Seidel, M., Xiao, X., Hussain, S. A., Arisholm, G., Hartung, A., Zawilski, K. T., Schunemann, P. G., Habel, F., Trubetskov, M., Pervak, V., Pronin, O., and Krausz, F., Multi-watt, multi-octave, mid-infrared femtosecond source[J]. *Sci. Adv.* 2018, 4(4): eaaq1526.
- [65] Wang, C. Y., Herr, T., Del’Haye, P., Schliesser, A., Hofer, J., Holzwarth, R., Hänsch, T. W., Picqué, N., and Kippenberg, T. J., Mid-infrared optical frequency combs at 2.5  $\mu\text{m}$  based on crystalline microresonators[J]. *Nat. Commun.* 2013, 4.
- [66] Griffith, A. G., Lau, R. K. W., Cardenas, J., Okawachi, Y., Mohanty, A., Fain, R., Lee, Y. H. D., Yu, M., Phare, C. T., Poitras, C. B., Gaeta, A. L., and Lipson, M., Silicon-chip mid-infrared frequency comb generation[J]. *Nat. Commun.* 2015,

- 61–5.
- [67] Hugi, A., Villares, G., Blaser, S., Liu, H. C., and Faist, J., Mid-infrared frequency comb based on a quantum cascade laser[J]. *Nature* 2012, 492(7428): 229–233.
- [68] Sterczewski, L. A., Westberg, J., Patrick, L., Kim, C. S., Kim, M., Canedy, C. L., Bewley, W. W., Meritt, C. D., Vurgaftman, I., Meyer, J. R., and Wysocki, G., Multiheterodyne spectroscopy using interband cascade lasers[J]. *arXiv* 2017, 57(1): .
- [69] Consolino, L., Taschin, A., Bartolini, P., Bartalini, S., Cancio, P., Tredicucci, A., Beere, H. E., Ritchie, D. A., Torre, R., Vitiello, M. S., and De Natale, P., Phase-locking to a free-space terahertz comb for metrological-grade terahertz lasers[J]. *Nat. Commun.* 2012, 3.
- [70] Burghoff, D., Kao, T. Y., Han, N., Chan, C. W. I., Cai, X., Yang, Y., Hayton, D. J., Gao, J. R., Reno, J. L., and Hu, Q., Terahertz laser frequency combs[J]. *Nat. Photonics* 2014, 8(6): 462–467.
- [71] Rösch, M., Beck, M., Süess, M. J., Bachmann, D., Unterrainer, K., Faist, J., and Scalari, G., Heterogeneous terahertz quantum cascade lasers exceeding 1.9 THz spectral bandwidth and featuring dual comb operation[J]. *Nanophotonics* 2018, 7(1): 237–242.
- [72] Okubo, S., Iwakuni, K., Inaba, H., Hosaka, K., Onae, A., Sasada, H., and Hong, F. L., Ultra-broadband dual-comb spectroscopy across 1.0-1.9  $\mu\text{m}$ [J]. *Appl. Phys. Express* 2015, 8(8): 2–6.
- [73] Bernhardt, B., Ozawa, A., Jacquet, P., Jacquy, M., Kobayashi, Y., Udem, T., Holzwarth, R., Guelachvili, G., Hänsch, T. W., and Picqué, N., Cavity-enhanced dual-comb spectroscopy[J]. *Nat. Photonics* 2010, 4(1): 55–57.
- [74] Villares, G., Hugi, A., Blaser, S., and Faist, J., Dual-comb spectroscopy based on quantum-cascade-laser frequency combs[J]. *Nat. Commun.* 2014, 51–3.
- [75] Link, S. M., Maas, D. J. H. C., Waldburger, D., and Keller, U., Dual-comb spectroscopy of water vapor with a free-running semiconductor disk laser[J]. *Science* 2017, 356(6343): 1164–1168.
- [76] Yu, M., Okawachi, Y., Griffith, A. G., Picqué, N., Lipson, M., and Gaeta, A. L., Silicon-chip-based mid-infrared dual-comb spectroscopy[J]. *Nat. Commun.* 2018, 9(1): 6–11.
- [77] Suh, M.-G., Yang, Q.-F., Yang, K. Y., Yi, X., and Vahala, K. J., Microresonator

- soliton dual-comb spectroscopy[J]. *Science* 2016, 354(6312): 600–603.
- [78] Finneran, I. A., Good, J. T., Holland, D. B., Carroll, P. B., Allodi, M. A., and Blake, G. A., Decade-spanning high-precision terahertz frequency comb[J]. *Phys. Rev. Lett.* 2015, 114(16): 1–5.
- [79] Ycas, G., Giorgetta, F. R., Baumann, E., Coddington, I., Herman, D., Diddams, S. A., and Newbury, N. R., High-coherence mid-infrared dual-comb spectroscopy spanning 2.6 to 5.2  $\mu\text{m}$ [J]. *Nat. Photonics* 2018, 12(April): 1–7.
- [80] Maidment, L., Schunemann, P. G., and Reid, D. T., Molecular fingerprint-region spectroscopy from 5 to 12  $\mu\text{m}$  using an orientation-patterned gallium phosphide optical parametric oscillator[J]. *Opt. Lett.* 2016, 41(18): 4261.
- [81] Muraviev, A. V., Smolski, V. O., Loparo, Z. E., and Vodopyanov, K. L., Massively parallel sensing of trace molecules and their isotopologues with broadband subharmonic mid-infrared frequency combs[J]. *Nat. Photonics* 2018, 12(4): 209–214.
- [82] Millot, G., Pitois, S., Yan, M., Hovhannisyann, T., Bendahmane, A., Hänsch, T. W., and Picqué, N., Frequency-agile dual-comb spectroscopy[J]. *Nat. Photonics* 2016, 10(1): 27–30.
- [83] Zhao, S., Gong, P., Bai, L., Xu, X., Zhang, S., Sun, Z., Lin, Z., Hong, M., Chen, C., and Luo, J., Beryllium-free  $\text{Li}_4\text{Sr}(\text{BO}_3)_2$  for deep-ultraviolet nonlinear optical applications[J]. *Nat. Commun.* 2014, 5(May): 1–7.
- [84] Jones, R. J., Moll, K. D., Thorpe, M. J., and Ye, J., Phase-coherent frequency combs in the vacuum ultraviolet via high-harmonic generation inside a femtosecond enhancement cavity[J]. *Phys. Rev. Lett.* 2005, 94(19): 1–4.
- [85] Gohle, C., Udem, T., Herrmann, M., Rauschenberger, J., Holzwarth, R., Schuessler, H. A., Krausz, F., and Hänsen, T. W., A frequency comb in the extreme ultraviolet[J]. *Nature* 2005, 436(7048): 234–237.
- [86] Porat, G., Heyl, C. M., Schoun, S. B., Benko, C., Dörre, N., Corwin, K. L., and Ye, J., Phase-matched extreme-ultraviolet frequency-comb generation[J]. *Nat. Photonics* 2018, 12(7): 387–391.
- [87] Marian, A., Stowe, M. C., Lawall, J. R., Felinto, D., and Ye, J., Esearch rticle[J]. 2004, (December): .
- [88] Cingöz, A., Yost, D. C., Allison, T. K., Ruehl, A., Fermann, M. E., Hartl, I., and Ye, J., Direct frequency comb spectroscopy in the extreme ultraviolet[J]. *Nature* 2012, 482(7383): 68–71.

- [89] Yost, D. C., Matveev, A., Grinin, A., Peters, E., Maisenbacher, L., Beyer, A., Pohl, R., Kolachevsky, N., Khabarova, K., Hänsch, T. W., and Udem, T., Spectroscopy of the hydrogen 1S-3S transition with chirped laser pulses[J]. *Phys. Rev. A* 2016, 93(4): 1–7.
- [90] Morgenweg, J., Barmes, I., and Eikema, K. S. E., Ramsey-comb spectroscopy with intense ultrashort laser pulses[J]. *Nat. Phys.* 2013, 10(1): 30–33.
- [91] Thorpe, M. J., Broadband Cavity Ringdown Spectroscopy for Sensitive and Rapid Molecular Detection[J]. *Science* 2006, 311(5767): 1595–1599.
- [92] Diddams, S. A., Hollberg, L., and Mbele, V., Molecular fingerprinting with the resolved modes of a femtosecond laser frequency comb[J]. *Nature* 2007, 445(7128): 627–630.
- [93] Gohle, C., Stein, B., Schliesser, A., Udem, T., and Hänsch, T. W., Frequency comb vernier spectroscopy for broadband, high-resolution, high-sensitivity absorption and dispersion spectra[J]. *Phys. Rev. Lett.* 2007, 99(26): 1–4.
- [94] Mandon, J., Guelachvili, G., and Picqué, N., Fourier transform spectroscopy with a laser frequency comb[J]. *Nat. Photonics* 2009, 3(2): 99–102.
- [95] Keilmann, F., Gohle, C., and Holzwarth, R., Time-domain mid-infrared frequency-comb spectrometer[J]. 2004, 29(13): 1542–1544.
- [96] Coddington, I., Swann, W. C., and Newbury, N. R., Coherent multiheterodyne spectroscopy using stabilized optical frequency combs[J]. *Phys. Rev. Lett.* 2008, 100(1): 11–14.
- [97] Hoghooghi, N., Wright, R. J., Makowiecki, A. S., Swann, W. C., Waxman, E. M., Coddington, I., and Rieker, G. B., Broadband coherent cavity-enhanced dual-comb spectroscopy[J]. *Optica* 2019, 6(1): 28.
- [98] Picqué, N. and Hänsch, T. W., Photon-level broadband spectroscopy and interferometry with two frequency combs[J]. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 2020, 117(43): 26668–26691.
- [99] Schliesser, A., Picqué, N., and Hänsch, T. W., Mid-infrared frequency combs[J]. *Nat. Photonics* 2012, 6(7): 440–449.
- [100] Giorgetta, F. R., Ycas, G., Cossel, K. C., Waxman, E. M., Baumann, E., Newbury, N. R., and Coddington, I., Mid-Infrared Dual-Comb Spectroscopy of Volatile Organic Compounds Across Long Open-Air Paths[J]. 2019 Conf. Lasers Electro-Optics, CLEO 2019 - Proc. 2019, 6(2): 165–168.
- [101] Coburn, S., Alden, C. B., Wright, R., Cossel, K., Baumann, E., Truong, G. W.,

- Giorgetta, F., Sweeney, C., Newbury, N. R., Prasad, K., Coddington, I., and Rieker, G. B., Continuous regional trace gas source attribution using a field-deployed dual frequency comb spectrometer[J]. arXiv 2017, 5(4): .
- [102] Truong, G.-W., Waxman, E. M., Cossel, K. C., Baumann, E., Klose, A., Giorgetta, F. R., Swann, W. C., Newbury, N. R., and Coddington, I., Accurate frequency referencing for fieldable dual-comb spectroscopy[J]. Opt. Express 2016, 24(26): 30495.
- [103] Villares, G., Wolf, J., Kazakov, D., Süess, M. J., Hugi, A., Beck, M., and Faist, J., On-chip dual-comb based on quantum cascade laser frequency combs[J]. Appl. Phys. Lett. 2015, 107(25): .
- [104] Wang, Y., Soskind, M. G., Wang, W., and Wysocki, G., High-resolution multi-heterodyne spectroscopy based on Fabry-Perot quantum cascade lasers[J]. Appl. Phys. Lett. 2014, 104(3): 1–6.
- [105] von Ribbeck, H.-G., Brehm, M., van der Weide, D. W., Winnerl, S., Drachenko, O., Helm, M., and Keilmann, F., Spectroscopic THz near-field microscope[J]. Opt. Express 2008, 16(5): 3430.
- [106] Yasui, T., Nose, M., Ihara, A., Kawamoto, K., Yokoyama, S., Inaba, H., Minoshima, K., and Araki, T., Fiber-based, hybrid terahertz spectrometer using dual fiber combs[J]. Opt. Lett. 2010, 35(10): 1689.
- [107] Klatt, G., Gebbs, R., Schäfer, H., Nagel, M., Janke, C., Bartels, A., and Dekorsy, T., High-resolution terahertz spectrometer[J]. IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. 2011, 17(1): 159–168.
- [108] Ideguchi, T., Holzner, S., Bernhardt, B., Guelachvili, G., Picqué, N., and Hänsch, T. W., Coherent Raman spectro-imaging with laser frequency combs[J]. Nature 2013, 502(7471): 355–358.
- [109] Schliesser, A., Brehm, M., Keilmann, F., and van der Weide, D. W., Frequency-comb infrared spectrometer for rapid, remote chemical sensing[J]. Opt. Express 2005, 13(22): 9029.
- [110] Zhu, F., Bicer, A., Askar, R., Bounds, J., Kolomenskii, A. A., Kelessides, V., Amani, M., and Schuessler, H. A., Mid-infrared dual frequency comb spectroscopy based on fiber lasers for the detection of methane in ambient air[J]. Laser Phys. Lett. 2015, 12(9): .
- [111] Zhang, Z., Gu, C., Sun, J., Wang, C., Gardiner, T., and Reid, D. T., Asynchronous mid-infrared broadband optical parametric oscillator for

- dual-comb spectroscopy[J]. EPJ Web Conf. 2013, 41(2): 187–189.
- [112] Jin, Y., Cristescu, S. M., Harren, F. J. M., and Mandon, J., Femtosecond optical parametric oscillators toward real-time dual-comb spectroscopy[J]. Appl. Phys. B Lasers Opt. 2015, 119(1): 65–74.
- [113] Baumann, E., Giorgetta, F. R., Swann, W. C., Zolot, A. M., Coddington, I., and Newbury, N. R., Spectroscopy of the methane  $\nu_3$  band with an accurate midinfrared coherent dual-comb spectrometer[J]. Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys. 2011, 84(6): .
- [114] Bernhardt, B., Sorokin, E., Jacquet, P., Thon, R., Becker, T., Sorokina, I. T., Picqué, N., and Hänsch, T. W., Mid-infrared dual-comb spectroscopy with 2.4  $\mu$  m Cr 2+:ZnSe femtosecond lasers[J]. Appl. Phys. B Lasers Opt. 2010, 100(1): 3–8.
- [115] Zolot, A. M., Giorgetta, F. R., Baumann, E., Nicholson, J. W., Swann, W. C., Coddington, I., and Newbury, N. R., Direct-comb molecular spectroscopy with accurate, resolved comb teeth over 43 THz[J]. Opt. Lett. 2012, 37(4): 638.
- [116] Jin, Y., Cristescu, S. M., Harren, F. J. M., and Mandon, J., Two-crystal mid-infrared optical parametric oscillator for absorption and dispersion dual-comb spectroscopy[J]. Opt. Lett. 2014, 39(11): 3270.
- [117] Zhu, F., Mohamed, T., Strohaber, J., Kolomenskii, A. A., Udem, T., and Schuessler, H. A., Real-time dual frequency comb spectroscopy in the near infrared[J]. Appl. Phys. Lett. 2013, 102(12): .
- [118] Cassinerio, M., Gambetta, A., Coluccelli, N., Laporta, P., and Galzerano, G., Absolute dual-comb spectroscopy at 1.55  $\mu$  m by free-running Er: fiber lasers[J]. Appl. Phys. Lett. 2014, 104(23): 1–5.
- [119] Potvin, S. and Genest, J., Dual-comb spectroscopy using frequency-doubled combs around 775 nm[J]. Opt. Express 2013, 21(25): 30707.
- [120] Hipke, A., Meek, S. A., Ideguchi, T., Hänsch, T. W., and Picqué, N., Broadband Doppler-limited two-photon and stepwise excitation spectroscopy with laser frequency combs[J]. Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys. 2014, 90(1): 1–5.
- [121] Ideguchi, T., Poisson, A., Guelachvili, G., Hänsch, T. W., and Picqué, N., Adaptive dual-comb spectroscopy in the green region[J]. Opt. Lett. 2012, 37(23): 4847.
- [122] Schuster, V., Liu, C., Klas, R., Dominguez, P., Rothhardt, J., Limpert, J., and Bernhardt, B., Ultraviolet Dual Comb Spectroscopy: A Roadmap[J]. 2020, .

- 
- [123] Ideguchi, T., Poisson, A., Guelachvili, G., Picqué, N., and Hänsch, T. W., Adaptive real-time dual-comb spectroscopy[J]. *Nat. Commun.* 2014, 53375.
- [124] Zhao, X., Hu, G., Zhao, B., Li, C., Pan, Y., Liu, Y., Yasui, T., and Zheng, Z., Picometer-resolution dual-comb spectroscopy with a free-running fiber laser[J]. *Opt. Express* 2016, 24(19): 21833.
- [125] Mehravar, S., Norwood, R. A., Peyghambarian, N., and Kieu, K., Real-time dual-comb spectroscopy with a free-running bidirectionally mode-locked fiber laser[J]. *Appl. Phys. Lett.* 2016, 108(23): 1–6.
- [126] Yang, Q. F., Yi, X., Yang, K. Y., and Vahala, K., Counter-propagating solitons in microresonators[J]. *Nat. Photonics* 2017, 11(9): 560–564.
- [127] Link, S. M., Klenner, A., and Keller, U., Dual-comb modelocked lasers: semiconductor saturable absorber mirror decouples noise stabilization[J]. *Opt. Express* 2016, 24(3): 1889.
- [128] Zhang, Z., Xia, H., Yu, S., Zhao, L., Wei, T., and Li, M., Femtosecond imbalanced time-stretch spectroscopy for ultrafast gas detection[J]. *Appl. Phys. Lett.* 2020, 116(17): 171106.
- [129] Udem, T., Holzwarth, R., and Hänsch, T. W., Optical frequency metrology[J]. *Nature* 2002, 416(6877): 233–237.
- [130] Zhang, W., Wei, H., Yang, H., Wu, X., and Li, Y., Comb-referenced frequency-sweeping interferometry for precisely measuring large stepped structures[J]. *Appl. Opt.* 2018, 57(5): 1247.
- [131] Giorgetta, F. R., Coddington, I., Baumann, E., Swann, W. C., and Newbury, N. R., Fast high-resolution spectroscopy of dynamic continuous-wave laser sources[J]. *Nat. Photonics* 2010, 4(12): 853–857.
- [132] Wu, X., Wei, H., Zhang, H., Ren, L., Li, Y., and Zhang, J., Absolute distance measurement using frequencysweeping heterodyne interferometer calibrated by an optical frequency comb[J]. *Appl. Opt.* 2013, 52(10): 2042–2048.
- [133] Baumann, E., Giorgetta, F. R., Coddington, I., Sinclair, L. C., Knabe, K., Swann, W. C., and Newbury, N. R., Comb-calibrated frequency-modulated continuous-wave lidar for absolute distance measurements[J]. *Opt. Lett.* 2013, 38(12): 2026.
- [134] Del’Haye, P., Arcizet, O., Gorodetsky, M. L., Holzwarth, R., and Kippenberg, T. J., Frequency comb assisted diode laser spectroscopy for measurement of microcavity dispersion[J]. *Nat. Photonics* 2009, 3(9): 529–533.

- 
- [135] Yu, S., Zhang, Z., Li, M., and Xia, H., Wide-band precise spectrum analysis lidar incorporating comb-referenced scanning laser[J]. *Opt. Express* 2021, 1–12.
- [136] Mahjoubfar, A., Churkin, D. V., Barland, S., Broderick, N., Turitsyn, S. K., and Jalali, B., Time stretch and its applications[J]. *Nat. Photonics* 2017, 11(6): 341–351.
- [137] Coppinger, F., Bhushan, A. S., and Jalali, B., Photonic time stretch and its application to analog-to-digital conversion[J]. *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* 1999, 47(7 PART 2): 1309–1314.
- [138] Chou, J., Solli, D. R., and Jalali, B., Real-time spectroscopy with subgigahertz resolution using amplified dispersive Fourier transformation[J]. *Appl. Phys. Lett.* 2008, 92(11): 3–6.
- [139] Solli, D. R., Chou, J., and Jalali, B., Amplified wavelength-time transformation for real-time spectroscopy[J]. *Nat. Photonics* 2008, 2(1): 48–51.
- [140] Kelkar, P. V., Coppinger, F., Bhushan, A. S., and Jalali, B., Time-domain optical sensing[J]. *Electron. Lett.* 1999, 35(19): 1661.
- [141] Xia, H. and Zhang, C., Ultrafast and Doppler-free femtosecond optical ranging based on dispersive frequency-modulated interferometry[J]. *Opt. Express* 2010, 18(5): 4118.
- [142] Xia, H. and Zhang, C., Ultrafast ranging lidar based on real-time[J]. *Opt. Lett.* 2009, 34(14): 2108–2110.
- [143] Goda, K., Tsia, K. K., and Jalali, B., Amplified dispersive Fourier-transform imaging for ultrafast displacement sensing and barcode reading[J]. *Appl. Phys. Lett.* 2008, 93(13): 98–101.
- [144] Goda, K., Tsia, K. K., and Jalali, B., Serial time-encoded amplified imaging for real-time observation of fast dynamic phenomena[J]. *Nature* 2009, 458(7242): 1145–1149.
- [145] Goda, K., Motafakker-Fard, A., and Jalali, B., Phase-contrast serial time-encoded amplified microscopy[J]. *Opt. InfoBase Conf. Pap.* 2009, 977(c): 131109.
- [146] Tsia, K. K., Goda, K., Capewel, D., and Jalali, B., Performance of serial time-encoded amplified microscopy[J]. *Opt. InfoBase Conf. Pap.* 2010, 18(10): 10016–10028.
- [147] Nakagawa, K., Iwasaki, A., Oishi, Y., Horisaki, R., Tsukamoto, A., Nakamura,

- A., Hirose, K., Liao, H., Ushida, T., Goda, K., Kannari, F., and Sakuma, I., Sequentially timed all-optical mapping photography (STAMP)[J]. *Nat. Photonics* 2014, 8(9): 695–700.
- [148] Jansson, T. and Jansson, J., Temporal self-imaging effect in single-mode fibers[J]. 1981, 71(11): 0–3.
- [149] Jansson, T., Real-time Fourier transformation in dispersive optical fibers[J]. *Opt. Lett.* 1983, 8(4): 232.
- [150] RM Fortenberry, W. S., "Apparatus for characterizing short optical pulses," (1997).
- [151] Azaña, J., Chen, L. R., Muriel, M. A., and Smith, P. W. E., Experimental demonstration of real-time Fourier transformation using linearly chirped fibre Bragg gratings[J]. *Electron. Lett.* 1999, 35(25): 2223–2224.
- [152] Chi, H. and Yao, J., Fiber chromatic dispersion measurement based on wavelength-to-time mapping using a femtosecond pulse laser and an optical comb filter[J]. *Opt. Commun.* 2007, 280(2): 337–342.
- [153] Hao Chi and Jianping Yao, Chirped RF Pulse Generation Based on Optical Spectral Shaping and Wavelength-to-Time Mapping Using a Nonlinearly Chirped Fiber Bragg Grating[J]. *J. Light. Technol.* 2008, 26(10): 1282–1287.
- [154] Wang, C. and Yao, J., Chirped microwave pulse generation based on optical spectral shaping and wavelength-to-time mapping using a sagnac loop mirror incorporating a chirped fiber bragg grating[J]. *J. Light. Technol.* 2009, 27(16): 3336–3341.
- [155] Zhang, W. and Yao, J., Silicon-based on-chip electrically-tunable spectral shaper for continuously tunable linearly chirped microwave waveform generation[J]. *J. Light. Technol.* 2016, 34(20): 4664–4672.
- [156] Wang, C. and Yao, J., Simultaneous optical spectral shaping and wavelength-to-time mapping for photonic microwave arbitrary waveform generation[J]. *IEEE Photonics Technol. Lett.* 2009, 21(12): 793–795.
- [157] Xiang, P., Zheng, X. ping, Zhang, H. yi, Li, Y. quan, and Wang, R., Photonic generation of BFSK RF signals based on optical pulse shaping[J]. *Optoelectron. Lett.* 2012, 8(5): 368–371.
- [158] Herink, G., Jalali, B., Ropers, C., and Solli, D. R., Resolving the build-up of femtosecond mode-locking with single-shot spectroscopy at 90 MHz frame rate[J]. *Nat. Photonics* 2016, 10(5): 321–326.

- [159] Song, Y., Shi, X., Wu, C., Tang, D., and Zhang, H., Recent progress of study on optical solitons in fiber lasers[J]. *Appl. Phys. Rev.* 2019, 6(2): 0–20.
- [160] Liu, X., Yao, X., and Cui, Y., Real-Time Observation of the Buildup of Soliton Molecules[J]. *Phys. Rev. Lett.* 2018, 121(2): 23905.
- [161] Ryczkowski, P., Närhi, M., Billet, C., Merolla, J. M., Genty, G., and Dudley, J. M., Real-time full-field characterization of transient dissipative soliton dynamics in a mode-locked laser[J]. *Nat. Photonics* 2018, 12(4): 221–227.
- [162] Liu, X. and Pang, M., Revealing the Buildup Dynamics of Harmonic Mode-Locking States in Ultrafast Lasers[J]. *Laser Photonics Rev.* 2019, 13(9): 1–9.
- [163] Zhang, C., Qiu, Y., Xu, J., Wong, K. K. Y., and Tsia, K. K., A minute-continuous-wave-stabilized picosecond supercontinuum source for ultrafast serial time-encoded amplified microscopy (STEAM)[J]. *Opt. InfoBase Conf. Pap.* 2011, 19(17): 160–162.
- [164] Wong, T. T. W., Chan, A. C. S., Wong, K. K. Y., and Tsia, K. K., Pixel super-resolution in serial time-encoded amplified microscopy (STEAM)[J]. *CLEO Sci. Innov. CLEO\_SI 2012* 2012, 1(c): 4–5.
- [165] Nitta, N., Iino, T., Isozaki, A., Yamagishi, M., Kitahama, Y., Sakuma, S., Suzuki, Y., Tezuka, H., Oikawa, M., Arai, F., Asai, T., Deng, D., Fukuzawa, H., Hase, M., Hasunuma, T., Hayakawa, T., Hiraki, K., Hiramatsu, K., Hoshino, Y., Inaba, M., Inoue, Y., Ito, T., Kajikawa, M., Karakawa, H., Kasai, Y., Kato, Y., Kobayashi, H., Lei, C., Matsusaka, S., Mikami, H., Nakagawa, A., Numata, K., Ota, T., Sekiya, T., Shiba, K., Shirasaki, Y., Suzuki, N., Tanaka, S., Ueno, S., Watarai, H., Yamano, T., Yazawa, M., Yonamine, Y., Di Carlo, D., Hosokawa, Y., Uemura, S., Sugimura, T., Ozeki, Y., and Goda, K., Raman image-activated cell sorting[J]. *Nat. Commun.* 2020, 11(1): 1–16.
- [166] Jiang, Y., Lei, C., Yasumoto, A., Kobayashi, H., Aisaka, Y., Ito, T., Guo, B., Nitta, N., Kutsuna, N., Ozeki, Y., Nakagawa, A., Yatomi, Y., and Goda, K., Label-free detection of aggregated platelets in blood by machine-learning-aided optofluidic time-stretch microscopy[J]. *Lab Chip* 2017, 17(14): 2426–2434.
- [167] Lau, A. K. S., Shum, H. C., Wong, K. K. Y., and Tsia, K. K., Optofluidic time-stretch imaging—an emerging tool for high-throughput imaging flow cytometry[J]. *Lab Chip* 2016, 16(10): 1743–1756.
- [168] Lei, C., Ito, T., Ugawa, M., Nozawa, T., Iwata, O., Maki, M., Okada, G.,

- Kobayashi, H., Sun, X., Tiamsak, P., Tsumura, N., Suzuki, K., Di Carlo, D., Ozeki, Y., and Goda, K., High-throughput label-free image cytometry and image-based classification of live *Euglena gracilis*[J]. *Biomed. Opt. Express* 2016, 7(7): 2703.
- [169] Lei, C., Guo, B., Cheng, Z., Goda, K., Lei, C., Guo, B., Cheng, Z., and Goda, K., Optical time-stretch imaging: Principles and applications APPLIED PHYSICS REVIEWS — FOCUSED REVIEW Optical time-stretch imaging: Principles and applications[J]. *Appl. Phys. Rev.* 2016, 0111021–14.
- [170] Ugawa, M., Lei, C., Nozawa, T., Ideguchi, T., Carlo, D. Di, Ota, S., Ozeki, Y., and Goda, K., High-throughput optofluidic particle profiling with morphological and chemical specificity[J]. *Opt. Lett.* 2015, 40(20): 4803.
- [171] Goda, K., Ayazi, A., Gossett, D. R., Sadasivam, J., Lonappan, C. K., Sollier, E., Fard, A. M., Hur, S. C., Adam, J., Murray, C., Wang, C., Brackbill, N., Di Carlo, D., and Jalali, B., High-throughput single-microparticle imaging flow analyzer[J]. *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* 2012, 109(29): 11630–11635.
- [172] Wei, X., Kong, C., Sy, S., Ko, H., Tsia, K. K., and Wong, K. K. Y., Ultrafast time-stretch imaging at 932 nm through a new highly-dispersive fiber[J]. *Biomed. Opt. Express* 2016, 7(12): 5208.
- [173] Agrawal, G. P., 非线性光纤光学原理及应用[M]. 电子工业出版社, 2010.
- [174] Agrawal, G. P., *Nonlinear fiber optics*[M]. Springer, 2000.
- [175] Marcuse, D., *Light transmission optics*[M]. New York 1982.
- [176] Feng, X., Poletti, F., Camerlingo, A., Parmigiani, F., Petropoulos, P., Horak, P., Ponzio, G. M., Petrovich, M., Shi, J., Loh, W. H., and Richardson, D. J., Dispersion controlled highly nonlinear fibers for all-optical processing at telecoms wavelengths[J]. *Opt. Fiber Technol.* 2010, 16(6): 378–391.
- [177] Adams, M. J., *An introduction to optical waveguides*[J]. 1981, .
- [178] Cohen, L., Comparison of single-mode fiber dispersion measurement techniques[J]. *J. Light. Technol.* 1985, 3(5): 958–966.
- [179] Moon, S. and Kim, D. Y., Ultra-high-speed optical coherence tomography with a stretched pulse supercontinuum source[J]. *Opt. Express* 2006, 14(24): 11575.
- [180] Bennett, C., Perry, D., and Rhodes, M. A., Accuracy and precision in broadband laser ranging[J]. 2018, (February): 10.
- [181] Wu, J., Liang, Y., Chen, S., Hsu, C. L., Chavarha, M., Evans, S. W., Shi, D., Lin, M. Z., Tsia, K. K., and Ji, N., Kilohertz two-photon fluorescence microscopy

- imaging of neural activity in vivo[J]. *Nat. Methods* 2020, 17(3): 287–290.
- [182] Stratmann, M., Pagel, T., and Mitschke, F., Experimental observation of temporal soliton molecules[J]. *Phys. Rev. Lett.* 2005, 95(14): 1–4.
- [183] Klein, A., Masri, G., Duadi, H., Sulimany, K., Lib, O., Steinberg, H., Kolpakov, S. A., and Fridman, M., Ultrafast rogue wave patterns in fiber lasers[J]. *Optica* 2018, 5(7): 774.
- [184] Mance, J. G., La Lone, B. M., Madajian, J. A., Turley, W. D., and Veerer, L. R., Time-stretch spectroscopy for fast infrared absorption spectra of acetylene and hydroxyl radicals during combustion[J]. *Opt. Express* 2020, 28(20): 29004.
- [185] Yao, M., Zheng, Z., and Liu, H., Progress and recent trends in homogeneous charge compression ignition (HCCI) engines[J]. *Prog. Energy Combust. Sci.* 2009, 35(5): 398–437.
- [186] Solli, D. R., Gupta, S., and Jalali, B., Optical phase recovery in the dispersive Fourier transform[J]. *Appl. Phys. Lett.* 2009, 95(23): 93–96.
- [187] Capmany, J. and Novak, D., Microwave photonics combines two worlds[J]. *Nat. Photonics* 2007, 1(6): 319–330.
- [188] Yao, J., Microwave Photonics[J]. *J. Light. Technol.* 2009, 27(3): 314–335.
- [189] Seeds, A. J. and Williams, K. J., Microwave Photonics[J]. *J. Light. Technol.* 2006, 24(12): 4628–4641.
- [190] Minasian, R. A., Photonic signal processing of microwave signals[J]. *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* 2006, 54(2): 832–846.
- [191] Capmany, J., Member, S., Ortega, B., and Pastor, D., Discrete-Time Optical Processing of[J]. *J. Light. Technol.* 2005, 23(2): 702–723.
- [192] Esquivias, I., Weisser, S., Larkins, E. C., Rosenzweig, J., Tasker, P. J., and Fleissner, J., Control of Differential Gain, Nonlinear Gain, and Damping Factor for High-Speed Application of GaAs-Based MQW Lasers[J]. *IEEE J. Quantum Electron.* 1993, 29(6): 1648–1659.
- [193] Tucker, R. S. and Pope, D. J., Microwave Circuit Models of Semiconductor Injection Lasers[J]. *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* 1983, 31(3): 289–294.
- [194] Nagarajan, R., Levy, S., and Bowers, J. E., Millimeter wave narrowband optical fiber links using external cavity semiconductor lasers[J]. *J. Light. Technol.* 1994, 12(1): 127–136.
- [195] Matsui, Y., Murai, H., Arahira, S., Kutsuzawa, S., and Ogawa, Y., 30-GHz bandwidth 1.55- $\mu\text{m}$  strain-compensated InGaAlAs-InGaAsP MQW laser[J].

- IEEE Photonics Technol. Lett. 1997, 9(1): 25–27.
- [196] Chrostowski, L., Zhao, X., Chang-hasnain, C. J., Shau, R., Ortsiefer, M., and Amann, M., Injection-Locked 1.55  $\mu\text{m}$  VCSELs[J]. 2006, 18(2): 6–8.
- [197] Noguchi, K., Mitomi, O., and Miyazawa, H., Millimeter-wave Ti:LiNbO<sub>3</sub> optical modulators[J]. J. Light. Technol. 1998, 16(4): 615–619.
- [198] Mercante, A. J., Yao, P., Shi, S., Schneider, G., Murakowski, J., and Prather, D. W., 110 GHz CMOS compatible thin film LiNbO<sub>3</sub> modulator on silicon[J]. Opt. Express 2016, 24(14): 15590.
- [199] Chen, D., Fetterman, H. R., Chen, A., Steier, W. H., Dalton, L. R., Wang, W., and Shi, Y., Demonstration of 110 GHz electro-optic polymer modulators[J]. Appl. Phys. Lett. 1997, 70(25): 3335–3337.
- [200] Ido, T., Tanaka, S., Suzuki, M., Koizumi, M., Sano, H., and Inoue, H., Ultra-high-speed multiple-quantum-well electro-absorption optical modulators with integrated waveguides[J]. J. Light. Technol. 1996, 14(9): 2026–2034.
- [201] Zou, X., Lu, B., Pan, W., Yan, L., Stöhr, A., and Yao, J., Photonics for microwave measurements[J]. Laser Photonics Rev. 2016, 10(5): 711–734.
- [202] Winnall, S. T. and Lindsay, A. C., A fabry-perot scanning receiver for microwave signal processing[J]. IEEE Trans. Microw. Theory Tech. 1999, 47(7 PART 2): 1385–1390.
- [203] Guo, H., Xiao, G., Mrad, N., and Yao, J., Measurement of microwave frequency using a monolithically integrated scannable echelle diffractive grating[J]. IEEE Photonics Technol. Lett. 2009, 21(1): 45–47.
- [204] Rugeland, P., Yu, Z., Sterner, C., Tarasenko, O., Tengstrand, G., and Margulis, W., Photonic scanning receiver using an electrically tuned fiber Bragg grating[J]. Opt. Lett. 2009, 34(24): 3794.
- [205] Vidal, B., Mengual, T., and Martí, J., Photonic technique for the measurement of frequency and power of multiple microwave signals[J]. IEEE Trans. Microw. Theory Tech. 2010, 58(11 PART 2): 3103–3108.
- [206] Zou, X., Pan, S., and Yao, J., Instantaneous microwave frequency measurement with improved measurement range and resolution based on simultaneous phase modulation and intensity modulation[J]. J. Light. Technol. 2009, 27(23): 5314–5320.
- [207] Zhao, L., Xia, H., Hu, Y., Wu, T., Zhang, Z., Han, J., Wu, Y., and Luo, T., Time-Stretched Femtosecond Lidar Using Microwave Photonic Signal

- Processing[J]. *J. Light. Technol.* 2020, 38(22): 6265–6271.
- [208] Barton, D. K., *Radar System Analysis and Modeling* (Artech House, 2004).
- [209] Griffiths, H. D. and Bradford, W. J., Digital generation of high time-bandwidth product linear FM waveforms for radar altimeters[J]. *IEE Proceedings, Part F Radar Signal Process.* 1992, 139(2): 160–169.
- [210] Zeitouny, A., Stepanov, S., Levinson, O., and Horowitz, M., Optical generation of linearly chirped microwave pulses using fiber Bragg gratings[J]. *IEEE Photonics Technol. Lett.* 2005, 17(3): 660–662.
- [211] Weiner, A. M., Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators[J]. *Rev. Sci. Instrum.* 2000, 71(5): 1929–1960.
- [212] Jiang, Z., Leaird, D. E., and Weiner, A. M., Optical arbitrary waveform generation and characterization using spectral line-by-line control[J]. *Conf. Lasers Electro-Optics 2006 Quantum Electron. Laser Sci. Conf. CLEO/QELS 2006* 2006, 24(7): 2487–2494.
- [213] Shen, M. and Minasian, R. A., Toward a high-speed arbitrary waveform generation by a novel photonic processing structure[J]. *IEEE Photonics Technol. Lett.* 2004, 16(4): 1155–1157.
- [214] Saperstein, R. E., Alić, N., Panasenko, D., Rokitski, R., and Fainman, Y., Time-domain waveform processing by chromatic dispersion for temporal shaping of optical pulses[J]. *JOSA B* 2005, 22(11): 2427–2436.
- [215] Azaña, J., Berger, N. K., Levit, B., and Fischer, B., Reconfigurable generation of high-repetition-rate optical pulse sequences based on time-domain phase-only filtering[J]. *Opt. Lett.* 2005, 30(23): 3228–3230.
- [216] Azaña, J., Berger, N. K., Levit, B., and Fischer, B., Broadband arbitrary waveform generation based on microwave frequency upshifting in optical fibers[J]. *J. Light. Technol.* 2006, 24(7): 2663.
- [217] Leaird, D. E. and Weiner, A. M., Femtosecond direct space-to-time pulse shaping[J]. *IEEE J. Quantum Electron.* 2001, 37(4): 494–504.
- [218] McKinney, J. D., Leaird, D. E., and Weiner, A. M., Millimeter-wave arbitrary waveform generation with a direct space-to-time pulse shaper[J]. *Opt. Lett.* 2002, 27(15): 1345–1347.
- [219] McKinney, J. D., Seo, D., Leaird, D. E., and Weiner, A. M., Photonically assisted generation of arbitrary millimeter-wave and microwave electromagnetic waveforms via direct space-to-time optical pulse shaping[J]. *J.*

- Light. Technol. 2003, 21(12): 3020.
- [220] Schiller, S., Spectrometry with frequency combs[J]. Opt. Lett. 2002, 27(9): 766.
- [221] Urabe, K. and Sakai, O., Multiheterodyne interference spectroscopy using a probing optical frequency comb and a reference single-frequency laser[J]. Phys. Rev. A - At. Mol. Opt. Phys. 2013, 88(2): 1–5.
- [222] Urabe, K. and Sakai, O., Absorption spectroscopy using interference between optical frequency comb and single-wavelength laser[J]. Appl. Phys. Lett. 2012, 101(5): 1–5.
- [223] Lee, J., Lee, K., Yang, J., Kim, Y.-J., and Kim, S.-W., Comb segmentation spectroscopy for rapid detection of molecular absorption lines[J]. Opt. Express 2019, 27(6): 9088.
- [224] Hébert, N. B., Michaud-Belleau, V., Anstie, J. D., Deschênes, J.-D., Luiten, A. N., and Genest, J., Self-heterodyne interference spectroscopy using a comb generated by pseudo-random modulation[J]. Opt. Express 2015, 23(21): 27806.
- [225] Hasegawa, T. and Sasada, H., Direct-comb molecular spectroscopy by heterodyne detection with continuous-wave laser for high sensitivity[J]. Opt. Express 2017, 25(16): A680.
- [226] York, R. A. and Itoh, T., Injection- and phase-locking techniques for beam control[J]. IEEE Trans. Microw. Theory Tech. 1998, 46(11 PART 2): 1920–1929.
- [227] Hui, R., D’Ottavi, A., Mecozzi, A., and Spano, P., Injection locking in distributed feedback semiconductor lasers[J]. IEEE J. Quantum Electron. 1991, 27(6): 1688–1695.
- [228] Lau, E. K., Wong, L. J., and Wu, M. C., Enhanced modulation characteristics of optical injection-locked lasers: A tutorial[J]. IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. 2009, 15(3): 618–633.
- [229] Bordonalli, A. C., Walton, C., and Seeds, A. J., High-Performance Phase Locking of Wide Line width Semiconductor Lasers by Combined Use of Optical Injection Locking and Optical Phase-Lock Loop[J]. J. Light. Technol. 1999, 17(2): 328–342.
- [230] Koch, G. J., Automatic laser frequency locking to gas absorption lines[J]. Opt. Eng. 2003, 42(6): 1690.
- [231] Refaat, T. F., Petros, M., Antill, C. W., Singh, U. N., and Yu, J., Wavelength locking to CO<sub>2</sub> absorption line-center for 2- $\mu$ m pulsed IPDA lidar application

- [J]. Lidar Remote Sens. Environ. Monit. XV 2016, 9879(May 2016): 987904.
- [232] Pikovsky, A., Kurths, J., Rosenblum, M., and Kurths, J., Synchronization: A Universal Concept in Nonlinear Sciences (Cambridge university press, 2003), (12): .
- [233] Adler, R., A Study of Locking Phenomena in Oscillators[J]. Proc. IRE 1946, 34(6): 351–357.
- [234] Browell, E. V., Ismail, S., and Grant, W. B., Differential absorption lidar (DIAL) measurements from air and space[J]. Appl. Phys. B Lasers Opt. 1998, 67(4): 399–410.
- [235] Abshire, J. B., Ramanathan, A. K., Riris, H., Allan, G. R., Sun, X., Hasselbrack, W. E., Mao, J., Wu, S., Chen, J., Numata, K., Kawa, S. R., Yang, M. Y. M., and DiGangi, J., Airborne measurements of CO<sub>2</sub> column concentrations made with a pulsed IPDA lidar using a multiple-wavelength-locked laser and HgCdTe APD detector[J]. Atmos. Meas. Tech. 2018, 11(4): 2001–2025.
- [236] Wagner, G. A. and Plusquellic, D. F., Multi-frequency differential absorption LIDAR system for remote sensing of CO<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>O near 16 μm[J]. Opt. Express 2018, 26(15): 19420.
- [237] Torres-Company, V., Lancis, J., and Andrés, P., Incoherent frequency-to-time mapping: application to incoherent pulse shaping[J]. J. Opt. Soc. Am. A 2007, 24(3): 888.
- [238] Yegnanarayanan, S., Trinh, P. D., and Jalali, B., Recirculating photonic filter: a wavelength-selective time delay for phased-array antennas and wavelength code-division multiple access[J]. Opt. Lett. 1996, 21(10): 740.
- [239] Zhang, C., Xu, J., Chui, P. C., and Wong, K. K. Y., Parametric spectro-temporal analyzer (PASTA) for real-time optical spectrum observation[J]. Sci. Rep. 2013, 31–6.
- [240] Zhang, C., Xu, Y., Wei, X., Tsia, K. K., and Wong, K. K. Y., Time-stretch microscopy based on time-wavelength sequence reconstruction from wideband incoherent source[J]. Appl. Phys. Lett. 2014, 105(4): 1–5.

## 在读期间发表的学术论文与取得的其他研究成果

已发表论文：（第一作者 4 篇，其中共同第一作者 2 篇）

- [1] **Zhen Zhang**, Haiyun Xia, Saifen Yu, Lijie Zhao, Tianwen Wei, and Manyi Li, "Femtosecond imbalanced time-stretch spectroscopy for ultrafast gas detection," *Appl. Phys. Lett.* **116**(17), 171106 (2020), IF: 3.6.
- [2] Dong Wu<sup>#</sup>, **Zhen Zhang**<sup>#</sup>, Yiyuan Zhang<sup>#</sup>, Yunlong Jiao, Shaojun Jiang, Hao Wu, Chuanzong Li, Chenchu Zhang, Jiawen Li, Yanlei Hu, Guoqiang Li, Jiaru Chu, and Lei Jiang, "High-Performance Unidirectional Manipulation of Microdroplets by Horizontal Vibration on Femtosecond Laser-Induced Slant Microwall Arrays," *Adv. Mater.* **32**(48), 1–11 (2020), IF: 27.4. 共同一作，学生一作，Dong Wu 是硕士阶段的导师。
- [3] **Zhen Zhang**, Yinghui Zhang, Hua Fan, Yulong Wang, Chen Zhou, Feifei Ren, Sizhu Wu, Guoqiang Li, Yanlei Hu, Jiawen Li, Dong Wu, and Jiaru Chu, "A Janus oil barrel with tapered microhole arrays for spontaneous high-flux spilled oil absorption and storage," *Nanoscale* **9**(41), 15796–15803 (2017), IF: 6.9. **Cover Paper**
- [4] Guoqiang Li<sup>#</sup>, **Zhen Zhang**<sup>#</sup>, Peichao Wu, Sizhu Wu, Yanlei Hu, Wulin Zhu, Jiawen Li, Dong Wu, Xiaohong Li, and Jiaru Chu, "One-step facile fabrication of controllable microcone and micromolar silicon arrays with tunable wettability by liquid-assisted femtosecond laser irradiation," *RSC Adv.* **6**(44), 37463–37471 (2016), IF: 3.1. 共同一作
- [5] Saifen Yu, **Zhen Zhang**, Manyi Li, and Haiyun Xia, Multi-frequency differential absorption lidar incorporating comb-referenced scanning laser for gas spectrum analysis, *Optics Express* (2021), IF: 3.7.
- [6] Lijie Zhao, Haiyun Xia, Yanlei Hu, Tengfei Wu, **Zhen Zhang**, Jibo Han, Yunbin Wu, and Tiancheng Luo, "Time-Stretched Femtosecond Lidar Using Microwave Photonic Signal Processing," *J. Light. Technol.* **38**(22), 6265–6271 (2020), IF: 4.3.
- [7] Yachao Zhang, Ying Li, Yanlei Hu, Xuelin Zhu, Yaowei Huang, **Zhen Zhang**, Shenglong Rao, Zhijiang Hu, Weixin Qiu, Yulong Wang, Guoqiang Li, Liang Yang, Jiawen Li, Dong Wu, Wenhao Huang, Chengwei Qiu, Jiaru Chu, "Localized Self-Growth of Reconfigurable Architectures Induced by a Femtosecond Laser on a Shape-Memory Polymer," *Adv. Mater.* **30**(49), 1–9 (2018), IF: 27.4.
- [8] Renyan Wang, Peichao Wu, **Zhen Zhang**, Bing Xu, Yanlei Hu, Wulin Zhu, Jiawen Li, Jiaru Chu, Dong Wu, and Guoqiang Li, "High-quality microhole arrays by water-assisted

- femtosecond laser perforating for improved particle sorting," *Opt. Eng.* **57**(05), 1 (2018), IF: 1.1.
- [9] Feifei Ren, Guoqiang Li, **Zhen Zhang**, Xuedong Zhang, Hua Fan, Chen Zhou, Yulong Wang, Yinghui Zhang, Chaowei Wang, Kai Mu, Yahui Su, and Dong Wu, "A single-layer Janus membrane with dual gradient conical micropore arrays for self-driving fog collection," *J. Mater. Chem. A* **5**(35), 18403–18408 (2017), IF: 11.3.
- [10] Yang Lu, Liandong Yu, **Zhen Zhang**, Sizhu Wu, Guoqiang Li, Peichao Wu, Yanlei Hu, Jiawen Li, Jiaru Chu, and Dong Wu, "Biomimetic surfaces with anisotropic sliding wetting by energy-modulation femtosecond laser irradiation for enhanced water collection," *RSC Adv.* **7**(18), 11170–11179 (2017), IF: 3.1.
- [11] Yishan Zeng, Hua Fan, Bing Xu, **Zhen Zhang**, Feifei Ren, Chen Zhou, Sizhu Wu, Yanlei Hu, Wulin Zhu, Yahui Su, Jiaru Chu, Jiawen Li, Guoqiang Li & Dong Wu, "A facile strategy to integrate robust porous aluminum foil into microfluidic chip for sorting particles," *Microfluid. Nanofluidics* **21**(12), 1–8 (2017), IF: 2.4.
- [12] Xuedong Zhang, Yahui Su, Jincheng Ni, Zhongyu Wang, Yulong Wang, Chaowei Wang, Feifei Ren, **Zhen Zhang**, Hua Fan, Weijie Zhang, Guoqiang Li, Yanlei Hu, Jiawen Li, Dong Wu, and Jiaru Chu, "Optical superimposed vortex beams generated by integrated holographic plates with blazed grating," *Appl. Phys. Lett.* **111**(6), (2017), IF: 3.6.
- [13] Chen Zhou, Guoqiang Li, Chuanzong Li, **Zhen Zhang**, Yachao Zhang, Sizhu Wu, Yanlei Hu, Wulin Zhu, Jiawen Li, Jiaru Chu, Zhijia Hu, Dong Wu, and Liandong Yu, "Three-level cobblestone-like TiO<sub>2</sub> micro/nanocones for dual-responsive water/oil reversible wetting without fluorination," *Appl. Phys. Lett.* **111**(14), (2017), IF: 3.6.
- [14] Guoqiang Li, Hua Fan, Feifei Ren, Chen Zhou, **Zhen Zhang**, Bing Xu, Sizhu Wu, Yanlei Hu, Wulin Zhu, Jiawen Li, Yishan Zeng, Xiaohong Li, Jiaru Chu and Dong Wu, "Multifunctional ultrathin aluminum foil: oil/water separation and particle filtration," *J. Mater. Chem. A* **4**(48), 18832–18840 (2016), IF: 11.3.
- [15] Guoqiang Li, Yang Lu, Peichao Wu, **Zhen Zhang**, Jiawen Li, Wulin Zhu, Yanlei Hu, Dong Wu and Jiaru Chu, "Fish scale inspired design of underwater superoleophobic microcone arrays by sucrose solution assisted femtosecond laser irradiation for multifunctional liquid manipulation," *J. Mater. Chem. A* **3**(36), 18675–18683 (2015), IF: 11.3.
- [16] 裘家伟、章振、余赛芬、魏天问、袁金龙、夏海云, "1.5 微米大气探测激光雷达研究进展", *红外与激光工程*, 50(3), 20210079, 2021.[特邀文章]

待发表论文：（第一作者 2 篇，共同第一作者 1 篇）

- [1] **Zhen Zhang**, Saifen Yu, Haiyun Xia, Lijie Zhao, Low-bandwidth multi-heterodyne spectroscopy using comb and tunable laser. **In Review**.
- [2] Saifen Yu, **Zhen Zhang**, Haiyun Xia, Xiankang Dou, Manyi Li, Tianwen Wei, Lu Wang, Pu Jiang, Yunbin Wu, Chengjun Zhang, Lixing You, Yihua Hu, Tengfei Wu, Lijie Zhao, Mingjia Shangguan, Leigang Tao, Jiawei Qiu, Photon-counting Distributed Free-space Spectroscopy. **In Review**. 共同一作
- [3] **Zhen Zhang**, Haiyun Xia, Lijie Zhao, Tianwen Wei, Saifen Yu, Ultrafast gas analysis by mapping an optical spectrum over wideband to 1550nm region. **In Preparation**.

专利：

- [1] **Zhen Zhang**, Mingjia Shangguan, Haiyun Xia, Xiankang Dou, Xianghui Xue, Lidar for detecting atmospheric composition based on time-stretch and gating. OP2019-US-0520.201116.
- [2] 李国强, **章振**, 胡衍雷, 吴东, 褚家如, 黄文浩, 一种飞秒激光加工多彩结构色的方法、加工系统及采集系统, 专利号: ZL 201610327644.0
- [3] 夏海云, 余赛芬, 岳斌, 上官明佳, **章振**, 窦贤康, “一种环境气体的扫描探测方法及激光雷达”, 专利号 ZL 201910440252.9
- [4] **章振**, 夏海云, 赵力杰, 余赛芬, 窦贤康, “一种飞秒激光雷达以及气体成分探测方法”, 201810818525.4 (已受理)

其他成果和奖项

2016 年中国科学技术大学青年创新基金项目（10 万，负责人）；

第 46 届日内瓦国际发明展特别金奖，GOLD MEDAL with the congratulations of the jury, International Exhibition of Inventions of Geneva（排名 2/3，学生第一）；

第 45 届日内瓦国际发明展银奖，SILVER MEDAL（排名 1/7）。



## 致 谢

求学二十一载，每一段时光都是那么难忘，每一个地点都想再踏上一遍。从那间一、二年级共用的教室走出来，我看到了启蒙老师对我的期待；到那个欢声笑语的小学，我看到了伙伴们一起下课、放学；到那个似乎没有停歇的初中，发现了自我鞭策后流下的泪水；到那个大家都说辛苦的高中，我却觉得那是我笑容最多的时候；到那个包罗万象的大学，我发现每个人的选择都造就他们现在精彩的生活；到这个充满奋斗的研究生生涯，我看到无数和大家一起进步的画面，看到了多位导师和师兄在这六年间对我的教导，这都成为我宝贵的财富。回首这一段求学路，感谢国家，感谢所有帮助我的恩师、亲人和朋友。

首先感谢导师窦贤康教授给予我进入空间物理专业深造的机会，让我进入到一流的平台进行研究，与顶尖的学者们交流；他在学术上高瞻远瞩的眼光和教育中的使命感和责任感令人尊敬。

感谢导师褚家如教授领我进入科大，褚老师一丝不苟的工作作风和敏锐的学术洞察力一直影响着我，使我建立了正确的科研态度。

感谢导师夏海云教授在研究工作中不厌其烦的教诲和指导，以及生活的关怀和照顾。能够认识夏老师是我科研生涯中最幸运的事，在硕转博的关键点，他让我做出了改变未来的决定；在攀登学术的高峰时，他让我明白了方向、原则和规范的重要性；在人生的规划中，他让我认识到做出对人类、国家和人民有用的事情才算是科研人员的初衷。

感谢导师吴东教授在研究生初期阶段对我的指导和帮助，吴老师丰富的学术经验让我受益匪浅。

感谢师兄李国强教授，李师兄是这些年教我做人做事的大哥，他也一直提醒着我要更加努力。他的领导力和执行力影响着当年我们小组的所有人，也使得我们成为最佳拍档。

感谢地空学院的薛向辉教授、雷久侯教授、傅云飞教授、陆全明教授、刘睿教授、王荣生教授、王传兵教授、陶鑫教授、刘宇副教授、陈廷娣工程师，感谢微纳米工程实验室的胡衍雷副教授、李家文副教授、朱五林工程师、徐国莲老师，感谢感谢他们对我的鼓励和帮助。同时感谢论文评语和答辩委员会所有老师，感谢高志球研究员、胡以华教授、强希文研究员、武腾飞研究员、袁仁民教授、刘诚教授、董昌明教授。

感谢师兄上官明佳研究员，上官师兄在我学习激光雷达的过程中提供了非常重要的帮助，带我了解了实验中的每一个细节；每次师兄一出手，事情总能够解决，让我明白严谨的态度一直是把事情做好的基石。

感谢师兄王冲副研究员和裘家伟教授，他们在学习上对我耐心的帮助让我快速进步，他们那为了目标而不懈努力的态度让我收获良多。

感谢微尺度国家实验室的陶雷刚师兄和余超师兄，他们在实验和结果中的帮助与讨论让我事半功倍。

感谢微纳米工程实验室的劳召欣师兄、倪劲成师兄、张晨初师兄，他们已经成为各个研究领域的杰出学者，一直都是我学习的榜样。

感谢董晶晶、岳斌、李伏如、赵自豪、潘宁在很多方面给我提供支持。

感谢激光雷达课题组的师弟师妹们，感谢赵力杰、李蔓一、魏天问，他们在我需要的时候总是高效率的帮助我解决问题；感谢吴云斌、王璐、袁金龙、刘健江、唐大为、江浦、吴柯南、张云鹏、苏练、罗天成、程柄瑜、曾建伟、强蔚、孙旻、武秀一直以来的帮助。感谢微纳米工程实验室的樊华、张亚超、张亦元、吴培超、任飞飞、张雪东、周晨、王宇龙、张迎辉、蒋绍军、胡凯，感谢他们在硕士阶段对我的帮助。感谢我的同学夏有君、吴贤斌对我学习和生活的帮助。

感谢余赛芬同学在实验和数据处理帮助、生活中的鼓励，我们完成了博士阶段最棒最精彩的工作。

最后，感谢我的母亲对我无私的奉献，教育和陪伴我成长；感谢我的岳父岳母对我的宽容和厚爱。

章振  
中国科学技术大学  
2021年5月