

# 双光梳光谱技术研究进展

路桥<sup>1,2</sup>, 时雷<sup>1</sup>, 毛庆和<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>中国科学院安徽光学精密机械研究所安徽光子器件与材料省级实验室, 安徽 合肥 230031;

<sup>2</sup>中国科学技术大学, 安徽 合肥 230026

**摘要** 基于光学频率梳的双光梳光谱技术(DCS)集高分辨率、高灵敏度、宽光谱覆盖和快速测量等优势于一身;近年来,DCS发展迅速,新原理、新方法、新技术和新应用不断涌现,极有必要对其发展现状进行系统梳理,对其未来发展趋势进行客观述评。为了给相关科技人员在把握DCS发展全貌时提供参考,从光梳出发,以异步光学取样原理与噪声特性为主线,对DCS的测量原理、实现方案、性能指标、应用技术、仪器化,以及未来可能的发展趋势进行综合述评与预测。

**关键词** 光谱学; 双光梳光谱技术; 光学频率梳; 激光光谱学; 超快激光技术

中图分类号 O433

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201845.0400001

## Research Advances in Dual-Comb Spectroscopy

Lu Qiao<sup>1,2</sup>, Shi Lei<sup>1</sup>, Mao Qinghe<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>Anhui Provincial Key Laboratory of Photonics Devices and Materials, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Hefei, Anhui 230031, China;

<sup>2</sup>University of Science and Technology of China, Hefei, Anhui 230026, China

**Abstract** The dual-comb spectroscopy (DCS) based on optical frequency combs (OFCs) offers a revolutionary new spectroscopic method that can combine the advantages of high spectral resolution, high detection sensitivity, broadband spectral coverage, and fast measurement in one. In the past few years, the DCS has experienced rapid development, resulting in numerous demonstrations of new measuring principles and implementation schemes, as well as the availability of new measuring technologies and applications. Therefore, it is necessary to systematically review the current development status for the DCS and predict its future trends objectively. To provide a reference for relevant scientific and technical personnel to grasp the whole development of DCS, based on the mechanism of asynchronous optical sampling and the noise properties, we begin with the OFC and provide a comprehensive review on research advances of DCS regarding measuring principles, implementation schemes, performance indexes, application technologies, and instrumentations, and predict possible development trends in the future.

**Key words** spectroscopy; dual-comb spectroscopy; optical frequency comb; laser spectroscopy; ultrafast laser technology

**OCIS codes** 300.6360; 280.0280; 300.6190; 320.7160

## 1 引言

光学频率梳(OFC)简称光梳,在时域中为等间

距的超短激光脉冲序列,在频域中为由等间隔腔纵模构成的梳齿线,相邻梳齿之间的间隔(一般处于射频频波段)精确地等于脉冲序列的重复频率。光梳的

收稿日期: 2017-09-20; 收到修改稿日期: 2017-10-29

基金项目: 国家自然科学基金(61377044)、中国科学院战略性先导科技专项(B类)(XDB21010300)、国家重点研发计划(2017YFB0405100,2017YFB0405200)、国家 973 计划(2013CB934304)

作者简介: 路桥(1992—),男,博士研究生,主要从事超短脉冲光纤激光技术与应用方面的研究。

E-mail: luqiao@mail.ustc.edu.cn

导师简介: 毛庆和(1963—),男,博士,研究员,博士生导师,主要从事纤维光学、激光物理与器件及其应用技术等方面的研究。E-mail: mqinghe@aiofm.ac.cn (通信联系人)

发明如同在频域内找到了一把标尺,使光学频率与微波频率标准相关联,解决了光频直接计量的问题<sup>[1-2]</sup>。不仅如此,光梳在光原子钟<sup>[3]</sup>、时频传递与分配<sup>[4]</sup>、精密激光光谱<sup>[5]</sup>等领域也发挥着越来越重要的作用,并逐渐应用于阿秒科学<sup>[6]</sup>、天文观测<sup>[7-8]</sup>、任意波形发生<sup>[9]</sup>、超精密测距<sup>[10]</sup>等领域。迄今,研究人员已可基于飞秒锁模激光器<sup>[11]</sup>、连续波(CW)激光器幅度或相位调制<sup>[12]</sup>,以及CW激光微腔非线性效应<sup>[13]</sup>等机制,构建出不同制式的光梳。其中,基于飞秒锁模激光器的光梳技术方案最受关注,对其研究也最为深入、系统,是当前最主流的光梳方案,美国天体物理联合实验室(JILA)的Hall<sup>[14]</sup>和德国马普研究所(MPQ)的Hänsch<sup>[15]</sup>因在发明这种光梳中的杰出贡献而分享了2005年度一半的物理学诺贝尔奖。

宽带、高稳定度光梳已在精密激光光谱领域掀起了一场革命,在短短十几年的时间内就已经发展出了许多光谱分析新方法、新技术与新应用<sup>[16-19]</sup>。概括起来,围绕光梳的精密激光光谱技术大致可分为3类:1)用作傅里叶变换光谱(FTS)或色散光谱仪的宽带相干光源,可改善光谱分析仪器的主动光谱探测性能<sup>[16,18]</sup>;2)将光梳的高品质激光脉冲耦合至光腔,通过游标光谱方法<sup>[17]</sup>,提升腔衰落或腔增强光谱的检测灵敏度等指标;3)利用光梳的高度相干性,通过异步光取样的双光梳光谱技术(DCS)<sup>[19]</sup>。相比于前2种技术,DCS因具有功能强大、性能优良、结构简单、易于实现等优势而更受重视。事实上,DCS是通过采用2台具有微小重复频率差的光梳,再由这2台光梳输出相干脉冲序列之间的异步光取样来实现光谱分析与测量的,其基本原理与FTS方法类似,但是无需采用FTS中的动镜来实现光谱扫描,使得DCS可将任何传统光谱分析方法都无法同时获得的宽光谱覆盖、高检测灵敏度、高分辨率、快速测量等指标集于一身,加上光梳本身所具有的高频率精度,DCS展现出了无与伦比的综合性能。自2002年Schiller<sup>[20]</sup>首次提出DCS概念以及2004年Keilmann等<sup>[21]</sup>首次验证其有效性以来,DCS为精密激光光谱领域带来了革命性的进展,国际上也掀起了研究热潮。美国国家标准计量局(NIST)和科罗拉多大学、德国MPQ、加拿大Laval大学等著名科研机构在奠定DCS基础方面都做出了许多开创性工作<sup>[22-24]</sup>,并描绘出了广阔的应用前景<sup>[19,25-26]</sup>,促使世界主要国家,如日本、韩国、意大利、法国等相继加入了对DCS的研究与应用

中<sup>[27-29]</sup>,快速推动了相关研究的进展。我国近期也开启了对DCS的研究<sup>[30-33]</sup>,并取得了初步成果。

近年来,已有多篇关于DCS的综述<sup>[19,25,33]</sup>被报道,尽管这些综述的侧重点不同,但都对DCS不同发展阶段的成果进行了梳理和归纳,对推动DCS的发展与应用具有促进作用。鉴于近几年DCS的新原理、新方法、新技术和新应用不断涌现,故而极有必要结合DCS的最新成果,对其发展现状进行系统梳理,并对其未来发展趋势进行客观述评。本文从光梳出发,以异步光学取样与噪声特性为主线,对DCS的测量原理、实现方案、应用技术,以及未来可能的发展趋势进行综合述评与预测,以期对相关科技人员在把握DCS发展全貌时提供参考。

## 2 光学频率梳

尽管基于飞秒锁模激光器<sup>[11]</sup>、CW激光的光电调制<sup>[12]</sup>与微腔非线性效应<sup>[13]</sup>的光梳都可用来构建DCS系统<sup>[34-36]</sup>,但应用最广的仍然是飞秒锁模激光频率梳。DCS发展初期主要采用飞秒锁模钛宝石激光频率梳,随着近几年飞秒锁模光纤激光脉冲性能的不断改善,以及飞秒光纤激光器在小型化与低成本方面的优势,研究人员正逐步以飞秒光纤激光频率梳为主来构建DCS系统。为了阐明DCS的原理方案,先对飞秒锁模激光频率梳进行简单介绍。

理想的锁模激光器输出脉冲电场 $E(t)$ 在时域中的表达式<sup>[37]</sup>为

$$E(t) = A(t) \exp[i\omega_c t + i(\varphi_{\text{ceo}} t / T_r + \varphi_0)] * \sum_{m=-\infty}^{+\infty} \delta(t - mT_r), \quad (1)$$

式中: $t$ 为时间变量; $A(t)$ 为时域脉冲包络函数; $\omega_c$ 为载波频率; $\varphi_{\text{ceo}}$ 为载波包络偏移相位,反映脉冲包络与载波分别以群速度与相速度在谐振腔内传播一周时间 $T_r$ 而产生的相位差; $\varphi_0$ 为初始相位; $\delta(\cdot)$ 为狄拉克函数; $m$ 为整数;\*为卷积运算。同样,也可在频域中将理想锁模激光器输出脉冲序列的电场 $\tilde{E}(\omega)$ 描述为一系列相位相关、等间隔的纵模(梳齿线)叠加,即

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{A}(\omega - \omega_c) \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \delta(\omega - 2\pi n f_r - 2\pi f_{\text{ceo}}), \quad (2)$$

式中: $\omega$ 为角频率变量; $n$ 为整数; $f_r = 1/T_r$ 为脉冲序列的重复频率,亦即频域内的梳齿间隔; $f_{\text{ceo}} = \varphi_{\text{ceo}} / (2\pi T_r)$ 为载波包络偏移频率; $\tilde{A}(\omega - \omega_c)$ 为频域电场包络。定义 $f_n = \omega / (2\pi)$ 是序号为 $n$ 的梳齿

频率,当且仅当  $f_n = nf_r + f_0$  (梳齿方程)时,(2)式中的狄拉克函数值才不为 0,这表明激光器的频域电场为由梳齿方程和频域电场包络函数确定的梳齿结构。 $f_r$  和  $f_{ceo}$  一般均处于射频波段,而  $f_n$  处于光频波段。由梳齿方程可知,序数  $n$  是  $10^6$  左右的大整数。可见,光梳如同一个杠杆,直接连接了射频和光频波段。

受环境等噪声的影响,锁模激光器会偏离理想的运行状态,从而导致输出脉冲的到达时间产生抖动,载波相位出现涨落,表现为在  $f_r$  和  $f_{ceo}$  上叠加了噪声,使得梳齿方程变为  $f_n(t) = nf_r(t) + f_{ceo}(t)$ <sup>[38]</sup>,即  $f_r$  和  $f_{ceo}$  随时间而变化。由于任意给定梳齿的频率仅由  $f_r$  和  $f_{ceo}$  决定,因此为了稳定梳齿频率,必须设法稳定  $f_r$  和  $f_{ceo}$ 。根据锁模激光器理论<sup>[39]</sup>,可分别通过反馈调节激光器的腔长和抽运电流来实现对  $f_r$  和  $f_{ceo}$  两个自由度的正交控制。这样,通过反馈控制就将  $f_r$  和  $f_{ceo}$  同时锁定至频率标准,从而可稳定任意梳齿的频率,即构成了光梳。理想锁模激光器输出脉冲电场的时域和频域结构示意图如图 1(a)所示。

光梳锁定方案主要有 3 种<sup>[40]</sup>,如图 1(b)所示。第 1 种方案是将  $f_r$  和  $f_{ceo}$  锁定至射频参考,先由高速光探测器结合频率计数器直接探测出  $f_r$ ,并利用高非线性光纤产生倍频程超连续谱,再采用  $f-2f$  自差拍技术探测出  $f_{ceo}$ <sup>[41]</sup>,然后通过反馈控制电路调节激光器的腔长和抽运电流,将  $f_r$  和  $f_{ceo}$  锁定至射频参考,该方案称为自参考锁定技术<sup>[42]</sup>;第 2 种方案是采用光学频率参考分别锁定由  $f-2f$  自差拍技术测得的  $f_{ceo}$  和与光学频率参考最邻近的梳齿(频率为  $f_{n0}$ ),称为完全自参考法<sup>[43]</sup>;第 3 种方案与第 2 种方案类似,将光梳两条最邻近的梳齿(频率为  $f_{n0}$  与  $f_{n1}$ )分别锁定到对应的两个光学频率参考<sup>[44]</sup>。除此之外,还可通过光整流技术来自动消除  $f_{ceo}$ ,即采用同一台锁模激光器输出脉冲序列中的不同频谱成分作为基频光,再由差频产生(DFG)技术消除  $f_{ceo}$ ,而  $f_r$  只需通过常规手段锁定即可,以此来构建 DFG 光梳<sup>[45]</sup>。DFG 光梳通常处于长波红外波段,在提出  $f-2f$  自差拍技术探测  $f_{ceo}$  方法之前,这种光整流方法是用来消除  $f_{ceo}$  的主要技术方案<sup>[46]</sup>。

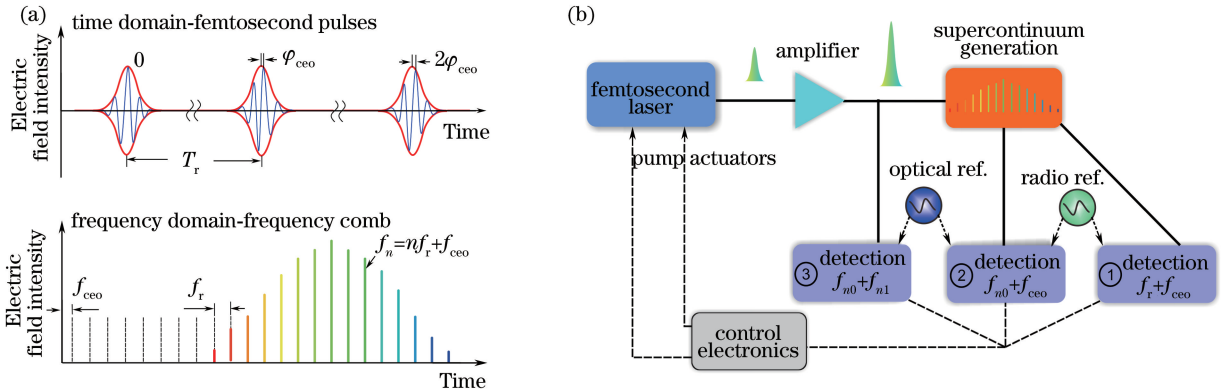


图 1 (a)理想锁模激光器输出脉冲电场的时域和频域结构示意图;(b)光梳的 3 种典型锁定方案

Fig. 1 (a) Time domain and frequency domain diagrams for pulse electric field of ideal mode-locking laser;

(b) three typical locking schemes for OFCs

光梳锁定过程可将射频或光频标准的高稳定、低相噪、窄线宽特性通过  $f_r$  和  $f_{ceo}$  传递到光梳的各梳齿线。但是,任意一种锁定方案都难以完全抑制叠加在  $f_r$  和  $f_{ceo}$  上的所有噪声,即锁定后的光梳仍携带残留噪声。通常,由梳齿频率(或  $f_r$  和  $f_{ceo}$ )的艾伦偏差和相位噪声功率谱密度(PSD)来定量表征残留噪声的大小与频谱分布<sup>[47]</sup>。为了方便,有时也以梳齿线宽来衡量,例如,光梳短期稳定性的优劣主要体现在梳齿线宽上。与光频计量与时频传递应用中注重长期稳定性不同,在本文涉及的精密光谱应用中,对光梳的短期稳定性,特别是秒量级测量时间

内的稳定性和相干性有极为严格的要求。研究<sup>[48]</sup>表明,光梳残留噪声性能取决于飞秒激光器的结构设计、锁定方案、反馈控制回路精度与带宽等因素,固体钛宝石飞秒锁模激光器、Figure 9 型和基于非线性偏振旋转(NPE)的色散管理孤子光纤激光器的噪声性能相对优良。基于射频标准的自参考锁定方案构建的光梳通过长时间平均可有效抑制梳齿频率漂移,梳齿频率保持了较好的长期稳定性( $10^{-14} \sim 10^{-16}$ ),可以满足光频计量等方面的应用需求。但是,前述的杆杠效应使得  $f_r$  的微小抖动在光学梳齿处都被放大  $n \sim 10^6$  倍,从而导致梳齿的短

期稳定性较差,一般约为 $10^{-11} \sim 10^{-13}$ ,梳齿线宽为 kHz 到数百 kHz<sup>[40]</sup>。采用基于光频参考的完全自参考锁定方案构建的光梳可以避免杠杆效应,梳齿的短期稳定性高达 $10^{-16}$ 以上,梳齿线宽在亚 Hz 量级<sup>[49]</sup>,更适合本文涉及的精密光谱应用。

### 3 DCS 的测量原理

DCS 的光谱测量原理与以光梳作为光源的 FTS 主动测量原理极为相似。

当以光梳作为 FTS 的光源时,如图 2(a)<sup>[25]</sup>所示,光梳输出脉冲序列经 FTS 干涉仪的半透半反镜分为 2 束,并由固定镜和移动镜分别反射,构成静臂(红色)和动臂(蓝色)脉冲,合束后通过样品,再由光电探测器检测及后续数据采集。通过移动

反射镜实现动臂脉冲对静臂脉冲的扫描或同步取样,可采集到“自相关式”干涉图,该干涉图经傅里叶变换即可获得样品的吸收谱<sup>[50]</sup>。以具有微小重复频率差的 2 台光梳分别替代上述动臂和静臂脉冲,即可构建出如图 2(b)所示的 DCS 系统。光梳 1 和光梳 2 存在微小的重复频率差,2 个脉冲序列在时域上将相互“穿越”,实现异步光取样,同样也可产生如图 2(c)所示的“互相关式”干涉图,不仅如此,通过异步光取样替代机械运动扫描可使干涉图不断地自动更新,从而大幅提高了产生干涉图的速度。DCS 在频域上类似于多外差光谱分析,可将光频与物质相互作用的信息转换到射频域上来直接检测,如图 2(d)所示,这可大幅降低对光谱信号检测的难度。

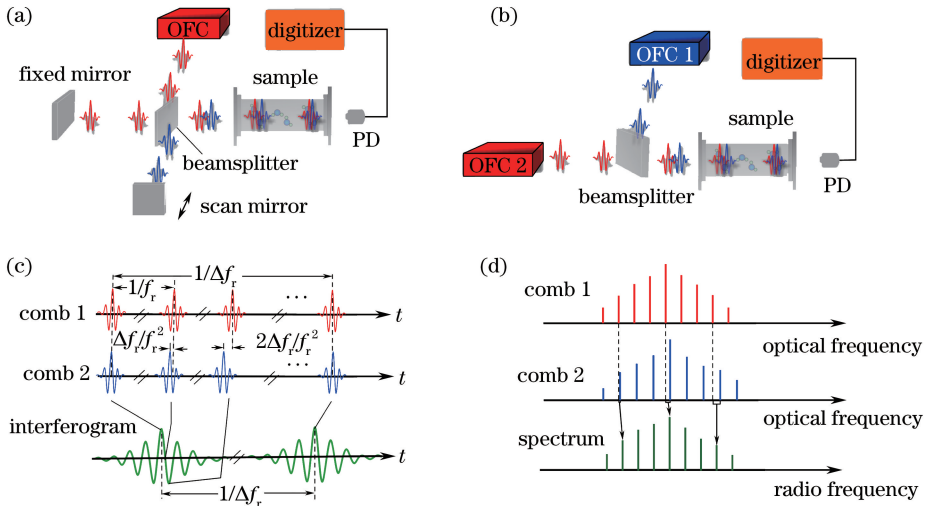


图 2 (a) 基于光梳的 FTS 主动测量原理示意图<sup>[25]</sup>; (b) DCS 测量原理示意图<sup>[25]</sup>; (c) DCS 的时域异步光取样测量过程; (d) DCS 的频域多外差测量过程

Fig. 2 (a) Schematic for actively measuring principle of OFC-based FTS<sup>[25]</sup>; (b) schematic for DCS measuring principle<sup>[25]</sup>; (c) asynchronous optical sampling and measuring process in time domain; (d) multiheterodyne in frequency domain for measuring process of DCS

假定来自光梳 1 和光梳 2 的脉冲在某时刻入射到探测器,其电场分别为  $E_1(t) = \exp(i\varphi_1)A_1(t)$  和  $E_2(t) = \exp(i\varphi_2)A_2(t + \tau)$ , 其中  $\varphi_1$  和  $\varphi_2$  分别为来自光梳 1 和光梳 2 的脉冲载波相位,  $A_1$  为光梳 1 的脉冲电场包络,  $A_2$  为光梳 2 的脉冲电场包络,  $\tau$  为时间延迟。经光电探测和采集后得到的电信号可表示为  $V(t) = h(t) * \{ [E_1(t) + E_2(t)] [E_1^*(t) + E_2^*(t)] \}$ , 其中  $h(t)$  为光电探测器与信号采集过程的总冲击响应函数。若略去直流项, 则有  $V(t) \propto h(t) * [E_1(t)E_2^*(t)]$ , 于是, 可采集到干涉图信号  $V(\tau) \propto \exp(i\Delta\varphi) \int h(t') A_1(t-t') A_2^*(t-t'-\tau) dt'$ , 其中  $t'$  为探测器响应尺度的时间变量,  $\Delta\varphi = \varphi_1 - \varphi_2$ 。

由于  $E_1(t)$  和  $E_2(t)$  均为飞秒脉冲的电场, 这使得其包络乘积  $A_1(t)A_2^*(t + \tau)$  的非零时间远短于光电探测响应时间, 从而在  $A_1(t)A_2^*(t + \tau)$  非零时,  $h(t)$  可视为常数。

在无样品时, 经探测和采集后的干涉图信号  $V(\tau)$  可表示为

$$V_{\text{ref}}(\tau) \propto \exp(i\Delta\varphi) A_1(\tau) * A_2^*(-\tau). \quad (3)$$

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

$$V_{\text{test}}(\tau) \propto V_{\text{ref}}(\tau) * h_s(\tau). \quad (4)$$

当测得  $V_{\text{ref}}(\tau)$  和  $V_{\text{test}}(\tau)$  后, 通过卷积运算即可得到  $h_s(\tau)$  及其相应的频域响应  $H_s(f)$ <sup>[51]</sup>。值

得指出的是,在图 2(b)所示的 DCS 中,由于来自 2 台光梳的脉冲经合束后才通过样品,因此测得的干涉图信号具有对称性,经傅里叶变换后只能获得样品响应的幅度谱;若仅以来自于 1 台光梳的脉冲序列通过样品,然后再与另 1 台光梳脉冲序列合束后进行检测[如图 4(a)所示],则所得干涉图具有非对称性,这时,经傅里叶变换后不仅可以得到样品的幅度谱,还可以得到相位谱<sup>[22]</sup>。

为了更清晰地理解 DCS 的测量原理,现举例说明。若以重复频率  $f_r = 100$  MHz、重复频率差  $\Delta f_r = 1$  kHz 的 2 台光梳构建 DCS 系统,那么,每隔  $t = 1/f_r = 10$  ns 便会产生一对源于不同光梳的脉冲对,且在任意一个脉冲对内,2 个脉冲之间的相对时间延迟比上一脉冲对增加了  $\tau = \Delta f_r / f_r^2 = 100$  fs。若以其中 1 台光梳的输出脉冲序列触发数据采集,即数据采集率为 100 MHz,则可记录 100 fs 内的样品响应变化。通常,将描述与数据采集相联系的时间标尺称为实验室时间,而将描述脉冲对内 2 个脉冲之间相对延迟的时间标尺称为有效时间<sup>[24]</sup>。通过异步光取样,DCS 可将飞秒级有效时间(样品响应)倍增至可探测的实验室时间。与此相对应,通过多外差过程,DCS 在频域内将光频下转换至于探测的射频波段,如图 2(d)所示。即有效时间与实验室时间之间满足伸缩变换关系,伸缩因子为  $f_r / \Delta f_r = 10^5$ 。由于 2 台光梳的重复频率差为  $\Delta f_r = 1$  kHz,因此采集的干涉图更新率为 1 kHz,从而给定采集的干涉图(有效)时间宽度为  $(1/\Delta f_r) / (f_r / \Delta f_r) = 1/f_r = 10$  ns。于是,在不考虑切趾时,根据傅里叶变换原理<sup>[47]</sup>,标称光谱分辨率恰好为  $f_r = 100$  MHz。

## 4 实现方案

如第 3 节所述,DCS 通过异步光取样记录干涉图,再由傅里叶变换得到光谱响应。但是,脉冲对内非相邻梳齿线之间的拍频同样也会被探测器检测到,这会导致得到的如图 2(d)所示的射频梳混叠了非相邻梳齿线之间的拍频信号,不再与光频梳齿一一对应,从而使得经伸缩变换后的光谱无法分辨<sup>[36]</sup>。为此,必须使异步光取样过程满足 Nyquist 采样定理所规定的带宽限制<sup>[24]</sup>。因此,实际应用中,在探测器前须插入可调带通滤光片,通过分段测量再缝合在一起来获取完整光谱<sup>[24]</sup>。另外,光梳的单脉冲能量一般仅在亚 nJ 量级,单次记录的干涉图信噪比(SNR)极低,但是在 DCS 中,2 个脉冲序列

相互“穿越”实现异步光取样,干涉图连续不断地自动更新,因此可通过记录大量的干涉图,再进行相干平均来抑制噪声,从而提高 SNR<sup>[24,52]</sup>。遗憾的是,由于干涉图信号实质上是源于 2 台光梳脉冲对的载波电场之间的互相关函数,而脉冲载波电场所对应的光学周期仅约为 5 fs(假定光载波频率为 200 THz),因此,构建 DCS 的 2 台光梳之间任何微小的脉冲定时抖动(重复频率噪声)和载波相位波动(偏移频率噪声)均会导致干涉图失真,且这种多彩干扰在后续数据处理中无法消除<sup>[22]</sup>;不仅如此,光梳之间互相干性不足导致的干涉图失真反过来又将不允许通过对干涉图进行相干平均来提高 SNR。因此,为了通过相干平均提高 DCS 的检测 SNR,进而提高灵敏度,对构建 DCS 的 2 台光梳的相干性(即噪声性能)提出了极高要求,这种互相干性要求可在频域上加以阐明。在频域上,DCS 可看成是多外差光谱仪,源自 2 台光梳的相应梳齿经探测器拍频,产生射频梳  $f_{n,\tau} = n\Delta f_r + \Delta f_{\text{ceo}}$ ,如图 2(d)所示,这样,若要实现对该射频梳的梳齿分辨,其梳齿线宽必须比  $\Delta f_r$  更窄。不仅如此,为了相干检测出射频梳齿,其线宽还应小于单幅干涉图采集时间的倒数,这就要求 DCS 的 2 台光梳还应具有极好的短期相干稳定性,即相对线宽窄<sup>[22]</sup>。

正是 DCS 对 2 台光梳的互相干性要求极高,才导致 DCS 概念自 2002 年提出后无法获得高度互相干的光梳光源,直到 2004 年才由 Keilmann 等<sup>[21]</sup>首次实验验证成功。在 Keilmann 等<sup>[21]</sup>的实验中,以同一台飞秒锁模钛宝石激光器的输出脉冲作为基频抽运和信号脉冲,通过 DFG 技术获得已消除偏移频率的 10  $\mu\text{m}$  波段中红外的脉冲序列,并通过精密温控和封装等稳定技术,使重复频率在数分钟内的漂移量仅为 1 Hz,从而获得了高度相干的中红外光梳,以这种光梳作为 DCS 光源,实现了对  $\text{C}_2\text{HCl}_3$  样品的光谱测量,并可进行数次相干平均来提高检测 SNR<sup>[21]</sup>。此后的大量实验结果表明,光梳的任何残留噪声( $f_r$  或  $f_{\text{ceo}}$  噪声)均会造成干涉图失真,使得 DCS 无法达到理论上由光梳重复频率所设定的光谱分辨率,尽管基于射频参考锁定的光梳在光频计量应用中展现出了优良性能,但其短期稳定性受射频参考本身的限制,仅为  $10^{-11} \sim 10^{-13}$ ,毫秒内的  $f_r$  和  $f_{\text{ceo}}$  噪声均不能满足要求,用于 DCS 时难以实现有效相干平均<sup>[22]</sup>。

为了将 DCS 推向实用,研究者经过不懈努力,通过不同的技术路线发展出了不同的实现方案,其

中有代表性的方案有 3 种:1)通过提高光梳的绝对相干性来实现 DCS 中 2 台光梳之间的高度互相干,以消除干涉图失真,从而实现相干平均<sup>[24,36,51,53]</sup>;2)实时跟踪记录光梳的定时抖动和相位波动,再利用记录的定时抖动和相位波动,通过混频并重新定义干涉图采集时间网格来消除干涉图失真,从而实现有效相干平均<sup>[22-23,37,54-55]</sup>;3)发展具有内禀互相干性的光梳来构建 DCS 系统<sup>[30,56-58]</sup>。下面对这 3 种代表性实现方案分别进行讨论。

#### 4.1 相干 DCS

提高 DCS 中 2 台光梳之间互相干性的最直接方案是提高每台光梳的绝对相干性,而光梳相干性或噪声性能在很大程度上取决于其锁定方案。当采用基于光频参考的完全自参考方案锁定光梳时,就可以避免前述杠杆效应引起的过大光学频率噪声,从而使得锁定的光梳(光载波)具有与光频参考相同的相干性。正是出于这样的考虑,NIST 的 Coddington 等<sup>[24]</sup>采用超稳腔锁定的 2 台 CW 激光器作为光频参考,再通过前述第 3 种光梳锁定方案来锁定 DCS 的 2 台光梳,使得这 2 台光梳的梳齿线宽达到惊人的 Hz 量级,从根本上确保了光梳之间的互相干性,不仅有效消除了干涉图失真,还允许对干涉图进行数十 min 的相干平均,从而大幅提高了

DCS 的检测灵敏度。

图 3 所示为 Coddington 等<sup>[24]</sup>提出的基于光频参考的光梳锁定方案示意图,包括光频参考获取和光梳锁定 2 个部分。采用超稳光腔和 Pound-Drever-Hall(PDH)稳频技术<sup>[22]</sup>,先将 1535 nm 和 1560 nm 的 2 台 CW 光纤激光器线宽稳定到 Hz 量级,且数天内的频率漂移仅为 10~30 kHz;再以这 2 台 CW 激光器作为光频参考,分别检测出它们与光梳中各自最邻近梳齿线间的拍频误差信号,再由 1560 nm 和 1535 nm CW 激光器产生的 2 个拍频误差信号分别独立地驱动伺服系统,反馈控制飞秒锁模光纤激光器的腔长(PZT)和抽运电流,从而实现对光梳的锁定。事实上,这种锁定方案是直接将光梳的 2 条最邻近梳齿分别锁定到 1560 nm 和 1535 nm 的 2 个光学频率参考。为此,实验中将 1560 nm CW 激光器产生的拍频误差信号分频后,分别反馈控制大响应带宽(约为 100 kHz)的腔外声光调制器(AOM)和大动态范围的腔内 PZT,同时将 1535 nm CW 激光器产生的拍频误差信号反馈控制抽运电流源(带宽约为 10 kHz),最终,使得光梳锁定后的梳齿线宽达到 Hz 量级,积分相位噪声达 0.27~0.47 rad(积分区间为 [0.1 Hz,3 MHz]),对应于 0.22~0.38 fs 的时间抖动<sup>[24]</sup>。

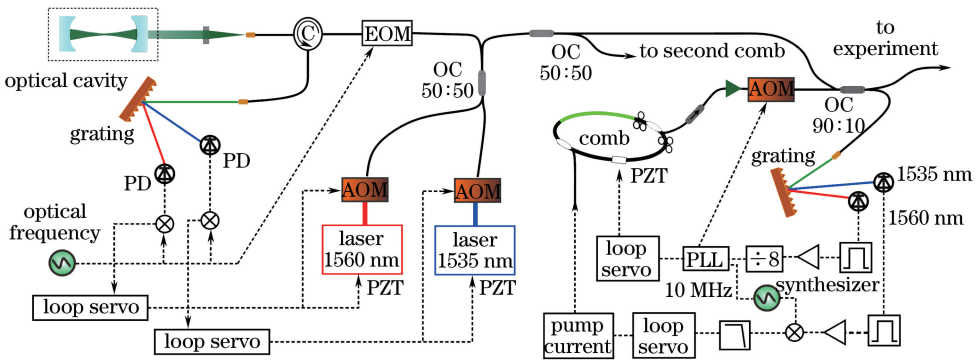


图 3 光频参考锁定光梳的结构示意图<sup>[24]</sup>

Fig. 3 Configuration of OFC locked with optical frequency reference scheme<sup>[24]</sup>

Coddington 等<sup>[36]</sup>将上述方案锁定的 2 台光梳分别作为本地(LO)光梳和源光梳,构建出了如图 4(a)所示的典型 DCS 系统。2 台光梳的重复频率均约为 100 MHz,重复频率之差为 1 kHz。源光梳通过待测样品氰化氢气体(HCN)后,再与 LO 光梳合束与检测。为了避免混叠,在探测器前插入了带宽为 2 nm 的可调带通滤光片,并采用平衡探测器抑制强度噪声干扰,提高检测 SNR。数据采集以 LO 光梳脉冲作为时钟,干涉图数据点的采集与相干

平均由可编程逻辑门阵列(FPGA)自动实现。由于所用 2 台光梳的相对线宽仅为 0.3 Hz,因此可以对采集的干涉图直接实现 3000 次以上的有效相干平均,在线性相位补偿后,可实现  $10^5$  次相干平均<sup>[24]</sup>。所用光梳的绝对相干性好,使得其具有极高的互相干性,因此这种 DCS 称为相干 DCS。在图 4(a)中,由于仅以源光梳脉冲通过样品,再与本地光梳脉冲合束后检测,使得干涉图具有非对称性,因此可同时测得样品的幅度谱和相位谱。图 4(b)所示为利用该 DCS 装置

测量得到的 HCN 样品的相位谱和透过谱<sup>[36]</sup>。由图 4(b)可知,在 192~195 THz 区域内的 HCN 吸收线清晰可辨,分辨率达到了理论值 100 MHz,实现了单根梳齿线的分辨,不仅如此,高达数千次的相干平

均使得测得的光谱 SNR 也高达 35 dB。图 4(c)所示为测量数据中 195 THz 附近的放大图<sup>[36]</sup>。由图 4(c)可知,测量值与理论计算值相当吻合,表明利用这种相干 DCS 装置能够获得极高的测量精度<sup>[36]</sup>。

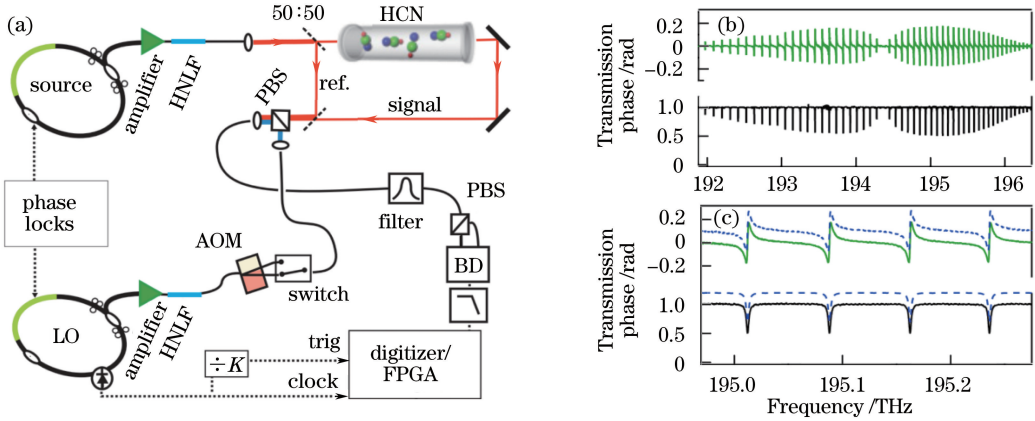


图 4 (a)相干 DCS 的结构示意图<sup>[36]</sup>; (b)测量的 HCN 相位和透过光谱<sup>[36]</sup>; (c)图 4(b)中 195 THz 附近的局部放大图,其中相位(绿色实线)和透过谱的实测值(黑色实线)与吸收谱数据经 Kramers-Kronig 关系计算后的结果(蓝色点线, 偏置 0.1 rad)相吻合<sup>[36]</sup>

Fig. 4 (a) Configuration of coherent DCS<sup>[36]</sup>; (b) measured phase and transmission spectra for HCN sample<sup>[36]</sup>; (c) local zoom near 195 THz in Fig.4(b), measured phase (green curve) and transmission spectra (black curve) agree well with theoretical results (dotted blue line, and offset by 0.1 rad) calculated from absorption data through Kramers-Kronig relation<sup>[36]</sup>

采用相干 DCS 装置的实验室测量获得成功 后,Rieker 等<sup>[59]</sup>将该装置用于 km 级开放光程多组

分路径平均温室气体(CO<sub>2</sub>、CH<sub>4</sub>、H<sub>2</sub>O 等)浓度的 在线测量,图 5(a)所示为实验现场图。在实验中,

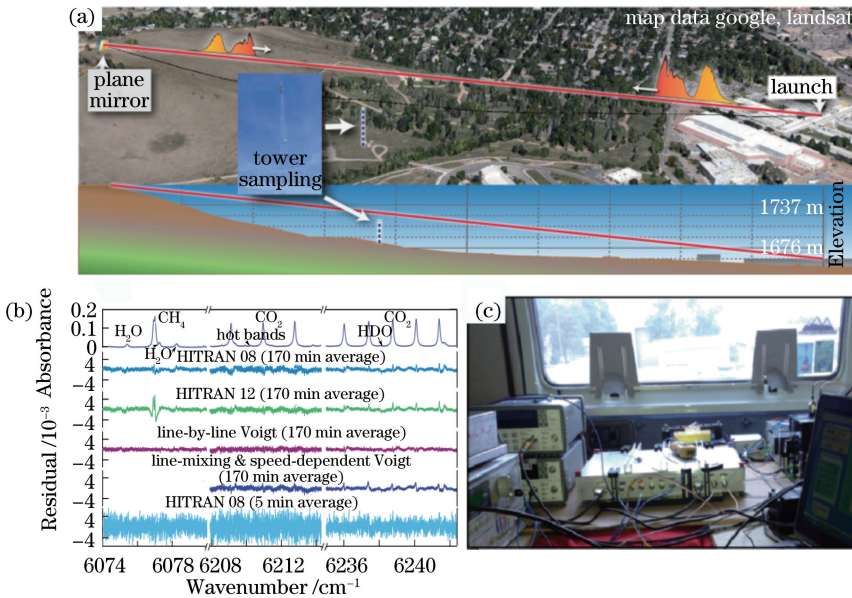


图 5 (a)相干 DCS 用于开放光程多组分温室气体在线测量实验现场<sup>[59]</sup>; (b) DCS 测量结果与 HITRAN 数据库结果的对比<sup>[59]</sup>; (c)车载光梳实物照片<sup>[61]</sup>

Fig. 5 (a) Experimental site layout of open-path multicomponent greenhouse gas online measurements with coherent DCS<sup>[59]</sup>; (b) comparison of results of greenhouse gases measured by coherent DCS with those calculated with HITRAN database<sup>[59]</sup>; (c) photograph of vehicle-borne OFC<sup>[61]</sup>

源光梳和 LO 光梳同时在相同的路径上传输,使得大气湍流效应对测量结果的影响可忽略<sup>[60]</sup>,通过对 5 min 内测得的干涉图 ( $3 \times 10^5$  幅) 进行相干平均,反演得到的光谱 SNR 高达 588 (若进行 170 min 的相干平均,SNR 则约为 2000)。在测量和相干平均时间为 5 min 的条件下,经光谱反演测得  $H_2O$ 、 $CO_2$  和  $CH_4$  的体积分数精度分别优于  $2.2 \times 10^{-5}$ 、 $10^{-6}$  和  $3 \times 10^{-12}$ ,如图 5(b) 所示。未来若采用更宽带宽、更高功率的光梳,则可测气体的种类、测量距离和探测灵敏度均将进一步得到提升。得益于近年来发展的全保偏光纤光梳,采用光频锁定后构建的光梳已可搭载在车载平台上,如图 5(c) 所示<sup>[61]</sup>,这为发展高精度现场测量 DCS 设备奠定了基础。

## 4.2 自适应 DCS

相干 DCS 方案的测量精度高,但采用了基于超稳腔的光频锁定技术,价格昂贵,系统复杂,不利于发展成实用化的低成本 DCS 仪器。为此,加拿大 Laval 大学的 Giaccari 等<sup>[37]</sup>于 2008 年率先提出了一种实时跟踪记录光梳的定时抖动与相位波动,再在后续数据采集与处理中消除这些定时抖动与相位波动的方案,该方案能有效消除干涉图失真,进而允许通过相干平均来提高检测 SNR<sup>[23,37,55]</sup>。由于该方案通过跟踪记录误差信号,并以误差信号进行实时校正,因此也称为自适应 DCS 方案。Giaccari 等<sup>[37]</sup>最初设计的基于光纤 Bragg 光栅 (FBG) 跟踪记录误差信号的自适应 DCS 方案结构及其测量结果如图 6 所示。

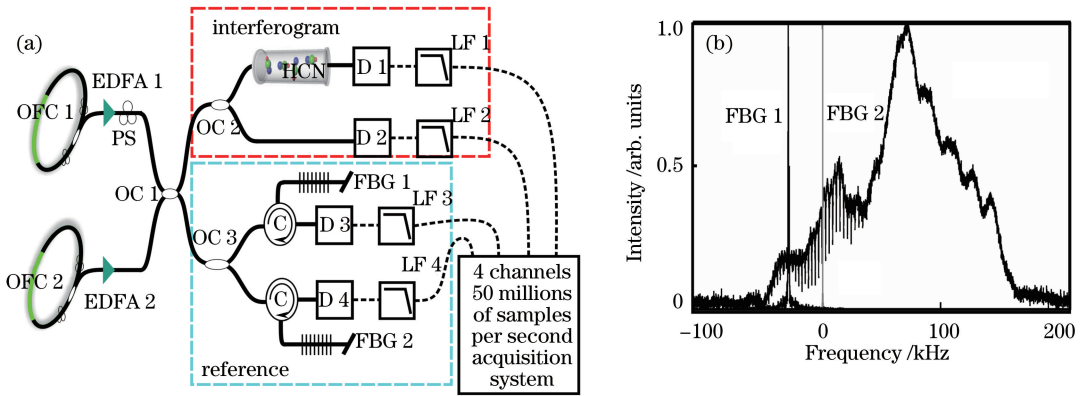


图 6 (a) 基于 FBG 跟踪记录误差信号的自适应 DCS 方案<sup>[37]</sup>; (b) 自适应 DCS 的测量结果<sup>[37]</sup>

Fig. 6 (a) Adaptive DCS scheme based on tracking-recording error signal technique with FBG<sup>[37]</sup>; (b) measured results with adaptive DCS<sup>[37]</sup>

自适应 DCS 方案结构分为测量和参考 2 个通道,参考通道采用 2 只 FBG 分别实时记录 2 台光梳之间的定时抖动和相位波动。若假定  $h_{c1}(t) = a_{c1}(t) \exp(i2\pi f_{c1}t)$  是 FBG 1 的冲击响应,其中  $a_{c1}(t)$  为基带冲击响应,  $f_{c1}$  为 FBG 1 的中心波长,光梳 1、光梳 2 的脉冲电场包络  $A_{1,2}(t)$  可以视为冲击函数  $\delta(t)$ ,则光梳 1、光梳 2 的第  $k$  个脉冲经过 FBG 1 后的电场为

$$s_{n,c1}(t) = E_n(t) * h_{c1}(t) = a_{c1}[t - T_n(k)] \exp\{i2\pi f_{c1}[t - T_n(k)] + i\varphi_n(k)\}, \quad (n=1,2), \quad (5)$$

式中  $T_n(k)$  为光梳  $n$  的第  $k$  个脉冲的到达时间。经光电探测后的交流电信号为

$$s_d(t) = h_d[t - T_1(k)] A_1[\Delta T(k)] \cdot \exp[i2\pi f_{c1} \Delta T(k) + i\Delta\varphi(k)], \quad (6)$$

式中:  $h_d(t)$  为探测器冲击响应;  $A_1(\tau) =$

$\int_{-\infty}^{\infty} a_{c1}(u) a_{c1}^*(u + \tau) du$  为 FBG 1 基带冲击响应的自相关函数;  $\Delta T(k) = T_2(k) - T_1(k)$  和  $\Delta\varphi(k) = \varphi_2(k) - \varphi_1(k)$  分别为 2 台光梳第  $k$  个脉冲对内 2 个脉冲之间的时间延迟和相位差,它们既包含了由重复频率和重复频率差决定的固定部分  $k\Delta f/f_c^2$ ,同时也包含了与 2 台光梳互相关性相关的相对时间抖动  $\delta T$  和相位波动  $\delta\varphi$ 。在(5)式和(6)式中作变换  $c1 \rightarrow c2$ ,即可得到 2 台光梳通过 FBG 2 的相应结果。

经与光梳 1 脉冲同步的时钟采样和数字化后,由 FBG 1、FBG 2 端口分别提取到的电信号  $r_{1d}[k]$  和  $r_{2d}[k]$  为

$$r_{1d}[k] = A_1[\Delta T(k)] \exp[i2\pi f_{c1} \Delta T(k) + i\Delta\varphi(k)], \quad (7)$$

$$r_{2d}[k] = A_2[\Delta T(k)] \exp[i2\pi f_{c2} \Delta T(k) + i\Delta\varphi(k)]. \quad (8)$$

可见,2 台光梳的相对时间抖动和相位波动信息通



过  $r_{1d}[k]$  和  $r_{2d}[k]$  被实时记录。

另一方面,测量通道(如图 6 所示)采集的样品干涉图信号具有与(7)式和(8)式相同的形式,即

$$V[k] = A_m [\Delta T(k)] \cdot \exp[i2\pi f_m \Delta T(k) + i\Delta\varphi(k)], \quad (9)$$

式中:  $f_m$  为样品频域响应的中心频率,  $A_m[\Delta T(k)]$  为 2 台光梳脉冲基带电场互相关函数与样品基带冲激响应的自相关函数的卷积,若采用非对称式测量,则为 2 台光梳脉冲基带电场互相关函数与样品基带冲激响应之间的卷积<sup>[55]</sup>。若构成 DCS 的 2 台光梳完全互相干,则  $\Delta T(k)$  和  $\Delta\varphi(k)$  可由脉冲序数  $k$  进行换算,即  $\Delta T(k) = k\Delta f_r/f_r^2$ ,  $\Delta\varphi(k) = 2\pi k\Delta f_{\text{ceo}}/f_r$  (由于干涉图周期性自动更新,因此  $k$  在每幅干涉图中央极大值处置零)。当以光梳 1 光梳脉冲作为触发时钟采集干涉图数据  $V[k]$  时,  $V[k]$  与  $\Delta T(k)$  具有一一对应关系,可用时域二维数组  $(k\Delta f_r/f_r^2, V(k\Delta f_r/f_r^2))$  表征干涉图数据,傅里叶变换后可得正确的光谱。但是,当  $\Delta T(k)$  和  $\Delta\varphi(k)$  还包含因 2 台光梳互相干性低而产生的  $\delta T$  和  $\delta\varphi$  时,采集到的干涉图数据则为  $V(k\Delta f_r/f_r^2 + \delta T) \exp(i\delta\varphi)$ , 这样,若仍以采集时间网格  $\Delta f_r/f_r^2$  对干涉图数据进行傅里叶变换,则将导致光谱失真。

将(7)式归一化后再与(9)式相乘(通过数字或模拟电路容易实现这类混频运算),可得

$$V[k] \frac{r_{1d}^*[k]}{|r_{1d}[k]|} = A_m [\Delta T(k)] \cdot \exp[i2\pi(f_m - f_{c1})\Delta T(k)]. \quad (10)$$

(10)式表明,对以光梳 1 光梳脉冲作为时钟触发采集的干涉图数据进行混频运算,其结果就可以消除测量的干涉图数据点的相位波动。另一方面,若以(7)式和(8)式测得的干涉图数据(参考信号)进行相乘运算,则得

$$r_{\text{grid}}[k] = \frac{r_{1d}^*[k]r_{2d}[k]}{|r_{1d}[k]| |r_{2d}[k]|} = \exp[i2\pi(f_{c2} - f_{c1})\Delta T(k)]. \quad (11)$$

由(11)式可见,  $r_{\text{grid}}[k]$  是以  $\Delta T(k)$  为时间变量、 $f_{c2} - f_{c1}$  为恒定频率的正弦信号。若假设起始时刻为  $\Delta T(0) = 0$ , 则  $r_{\text{grid}}[k]$  第  $k$  次过零点时,有  $\Delta T(k) = k/(f_{c2} - f_{c1})$ 。若以  $r_{\text{grid}}[k]$  过零点这一事件对应的时刻触发干涉图采集,则采集到的干涉图数据为二维数组  $(k/(f_{c2} - f_{c1}), V[k/(f_{c2} - f_{c1})])$ , 即消除了干涉图延迟时间轴因 2 台光梳之间相对时间抖动和相位波动而造成的失真,进而允许对其实现相干平均。

采用上述跟踪校正方案, Giaccari 等<sup>[37]</sup> 于 2008 年成功地对 HCN 的吸收谱进行了测量,并实现了 10 次相干平均,干涉图的 SNR 可以达到 20,相干平均后的光谱如图 6(b)所示。在该测量中采用 2 只 FBG 提取参考信号,而 FBG 限制了脉冲对内脉冲的时延量,即仅能有效采集到部分时间延迟下的干涉图数据,使测得的光谱分辨率仅为  $0.067 \text{ cm}^{-1}$  (2 GHz)。此外,与 FBG 相互作用的脉冲对内 2 个脉冲能量极低<sup>[55]</sup>,造成了参考信号的 SNR 难以提高。

为此, Roy 等<sup>[23]</sup> 于 2012 年改用 2 台窄线宽 CW 激光器作为中间振荡器来代替 2 只 FBG。由于这种替代在本质上只是以 CW 激光器频域响应取代 FBG 频域响应来获取参考信号,因此 CW 激光器获取到的参考信号具有与(7)式相似的形式。例如,由第 1 台 CW 激光器获取的参考信号<sup>[55]</sup>可表示为

$$r_{1d}[k] = P_{\text{CW1}} \sqrt{P_{\text{OFC1},\lambda1} P_{\text{OFC2},\lambda2}} \exp\{i2\pi f_{\text{CW1}} \Delta T(k) + i\Delta\varphi(k) + i\varphi_{\text{CW1}}[\Delta T(k)]\}, \quad (12)$$

式中  $P_{\text{CW1}}$  为第 1 台 CW 激光器的功率,  $P_{\text{OFC1},\lambda1}$  和  $P_{\text{OFC2},\lambda2}$  分别为 2 台光梳中与该 CW 激光器最邻近梳齿  $\lambda_1$  和  $\lambda_2$  的功率,  $f_{\text{CW1}}$  为该 CW 激光器的中心频率,  $\varphi_{\text{CW1}}[\Delta T(k)]$  为时间延迟  $\Delta T(k)$  内 CW 激光器引入的相位差。若所采用的 CW 激光器的线宽  $\Delta\nu$  足够窄,如  $\Delta\nu = 30 \text{ kHz}$ ,则在频率噪声为白噪声的近似下,在时间延迟  $\Delta T = 10 \text{ ns}$  (对应于典型的干涉图数据点采集时间间隔)内,由 CW 激光器引入的相位波动仅为  $\varphi_{\text{CW1}} = \sqrt{2\pi\Delta\nu\Delta T} = 43 \text{ mrad}$ ,由(12)式可知,如此低的相位波动对参考信号幅值的影响可以忽略。这样就可采用(7)~(11)式所描述的方案校正干涉图信号。不仅如此,由于采用了 CW 激光器代替 FBG,因此能有效采集到完整时间延迟下的干涉图数据,并且,通过与功率相对较高的 CW 激光器之间拍频,使得采集到的参考信号的 SNR 也大幅提升。Roy 等<sup>[23]</sup> 以 CW 激光器代替 FBG 构建出 DCS 系统,对  $\text{C}_2\text{H}_2$  成功实现了长达 24 h 的干涉图实时校正和相干平均,相干平均后的干涉图的 SNR 高达 55 dB,使得光谱分辨率也达到了所用光梳重复频率决定的 100 MHz,在构建的 DCS 系统中采用基于 FPGA 的实时跟踪校正,方便地实现了对海量数据的高速处理与存储。

在文献[23, 37, 55]研究的基础上,2014 年,诺贝尔奖获得者 Hänsch 也报道了一种自适应 DCS 系统,其结构示意图如图 7(a)所示。该 DCS 采用 2

台自由运转光梳(未锁定的锁模光纤激光器)构建, 并采用商用常规射频电子器件构建模拟电路来产生基于 CW 激光器与自由运转光梳拍频的 AS 1 和 AS 2 参考校正信号, 通过将采集的干涉图信号与 AS 1 混频来消除相位误差, 再以 AS 2 时钟重新定义采样时间网格以消除定时抖动, 大幅降低了对数据处理和存储软硬件的要求。利用图 7(a) 所示的 DCS 系统, 同样也允许通过相干平均提高 SNR, 进

而抑制光谱失真。图 7(b) 所示为恒定时钟和自适应时钟取样时测得的  $C_2H_2$  吸收谱与 HITRAN 数据库结果的对比。由图 7(b) 可知, 该 DCS 系统已可实现梳齿分辨的光谱分辨率<sup>[22]</sup>。最近, 自适应 DCS 又出现了新的进展<sup>[62-63]</sup>, 采用卡尔曼数字滤波器, 可直接由采集的干涉图提取定时和相位抖动参考信号, 从而无须再通过 FBG 和 CW 激光器来提取。

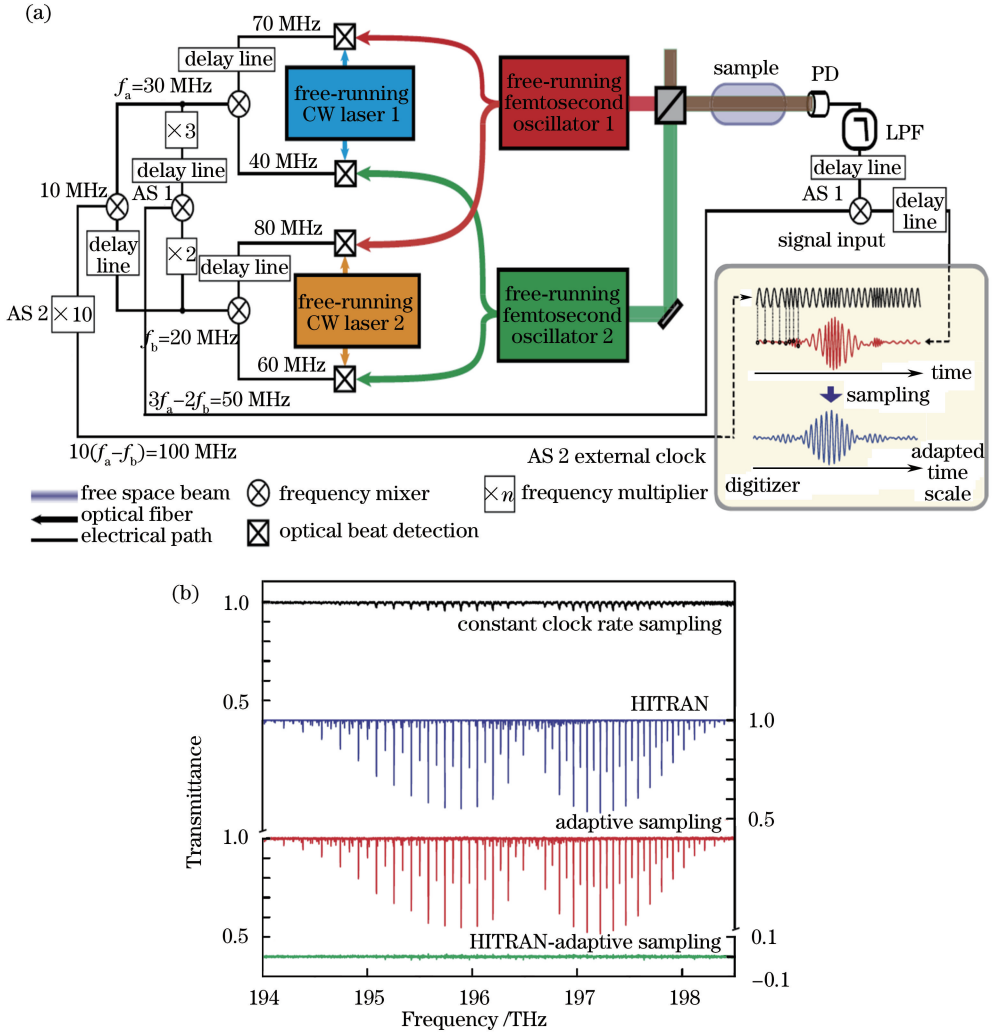


图 7 (a) 基于 CW 激光参考的自适应 DCS 示意图<sup>[22]</sup>; (b) 恒定时钟和自适应时钟取样时测得的  $C_2H_2$  吸收谱与 HITRAN 数据库结果的对比<sup>[22]</sup>

Fig. 7 (a) Schematic of adaptive DCS based on CW laser references<sup>[22]</sup>; (b) comparison of  $C_2H_2$  absorption spectra respectively measured by constant and adaptive clocks sampling with those obtained by using HITRAN database<sup>[22]</sup>

### 4.3 单光梳 DCS

相干 DCS 采用超稳光腔获取超窄线宽的超稳激光器光频参考, 并由光频锁定方案确保 2 台光梳的绝对相干性, 最终实现光梳之间的互相干性, 锁定技术要求高, 系统装置复杂; 自适应 DCS 通过实时跟踪记录光梳之间的相对时间抖动和相位波动, 再

在干涉图采集处理过程中加以校正, 重建光梳之间的互相干性, 数据处理电子线路与算法也较繁杂。事实上, 避免干涉图失真从而实现相干平均的关键是, 确保 DCS 中 2 台光梳脉冲序列之间的高度互相干性。若 2 个脉冲序列由同一台光梳(或飞秒激光器)产生, 则它们将具有天然的互相干性, 由此构建

的 DCS 不仅可避免干涉图失真,实现相干平均,而且因只需一台激光器而具有结构简单、低成本等优点。但问题是,如何由同一台光梳产生出具有微小重复频率差的 2 个脉冲序列。经近年来的努力,由同一台光梳通过调谐其谐振腔,结合腔外延时线技术,或参考光纤通信中的多路复用技术,通过对偏振、波长和传输路径的复用,已可产生具有微小重复频率差的 2 个互相干脉冲序列,并由此构建出了基于单台光梳的 DCS 系统,且进行了演示测量实验。

图 8(a)所示为 Lee 等<sup>[27]</sup>于 2015 年设计的基于腔调谐和延时复用技术的单光梳 DCS 方案。该方案采用双伺服控制装置分别调节飞秒光纤激光器腔内位移平台和电光调制器(EOM),实现了脉冲重复频率的线性扫频(扫频精度直接溯源至铷钟),线性

扫频的脉冲序列通过不等臂干涉仪,干涉仪 2 个臂的长度通过反馈稳定,这样,干涉仪输出端将输出具有重复频率差的 2 串脉冲序列,进而可实现异步光取样,如图 8(b)所示。利用图 8(a)所示的 DCS 系统, Lee 等<sup>[27]</sup>对 HCN 样品进行了吸收光谱测量,结果表明,该 DCS 系统可对 8 THz 带宽的光谱进行测量,光谱分辨率可达 0.5 GHz,在 6200 s 单次测量时间内,获得的 SNR 为 350。尽管该 DCS 系统仅以自由运转的飞秒激光器作为光源,但是,脉冲重复频率线性扫频需溯源至铷钟,光纤干涉仪臂长须主动控制,以消除环境扰动的影响,从而使得整个系统的控制复杂,实现难度大;并且,因受到重复频率线性扫描速率的限制而测量耗时长,制约了这种 DCS 方案的实际应用。

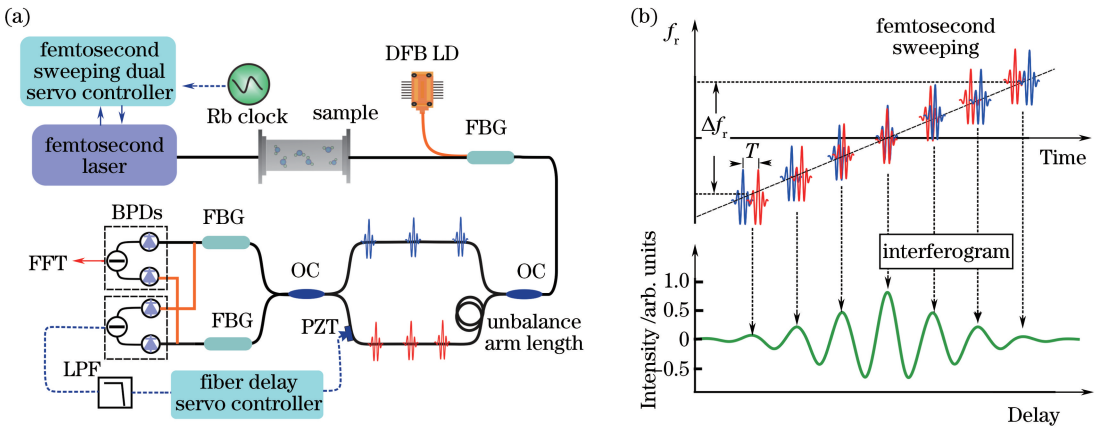


图 8 基于腔调谐与延时复用技术的单光梳 DCS 方案的结构示意图和测量原理<sup>[27]</sup>。 (a)结构示意图; (b)测量原理  
Fig. 8 Configuration and measuring principle of DCS scheme based on single OFC with repetition rate tuned and time-delay-multiplexing technique<sup>[27]</sup>. (a) Configuration; (b) measuring principle

通过调控飞秒脉冲在激光腔内的偏振、传输方向与双波长运转等,也可使同一台飞秒锁模激光器输出 2 种不同特性的飞秒脉冲序列。例如,当激光谐振腔内为保偏介质时,使飞秒锁模激光器中 2 个相互正交偏振方向的脉冲同时实现锁模运转,则腔内介质的双折射效应将自然使得 2 个正交偏振方向的锁模脉冲具有微小的重复频率差;当飞秒锁模激光器设计成双向工作,且不同传输方向的脉冲谐振腔腔长稍有不同时,同样也可产生具有微小重复频率差的双向脉冲序列;此外,当飞秒锁模激光器设计成双波长运转时,因中心波长不同和群速度色散不同而使得输出双波长脉冲序列也具有微小的重复频率差。基于上述思路,研究者从 2010 年开始设计、研制这类旨在用来构建 DCS 的具有微小重复频率差的飞秒脉冲锁模激光器。例如,2014 年, Gong 等<sup>[64]</sup>研制出了一种双偏振锁模光纤激光器,该激光

器的中心波长处于 1560 nm 附近,但包含了重复频率为 17 MHz 的 2 种不同偏振脉冲序列,重复频率差约为 86 Hz;2015 年, Link 等<sup>[58]</sup>研制出了一种中心波长为 966 nm 的双偏振锁模半导体激光器,双偏振脉冲重复频率约为 1.89 GHz,重复频率差为 5 MHz。2016 年, Ideguchi 等<sup>[57]</sup>采用克尔锁模技术研制出了一种中心波长为 850 nm 的腔内双向传输双输出端的固体飞秒激光器,输出脉冲的重复频率约为 932 MHz,重复频率差为 325 Hz。特别重要的是,该飞秒激光器输出的 2 列脉冲所对应的梳齿在 1 ms 内的相对线宽可达 13 kHz,并且,利用该飞秒激光器构建出了如图 9(a)所示的 DCS 装置,对 Nd:YVO<sub>4</sub> 吸收谱进行测量时,获得了 93 GHz 的光谱分辨率;同年, Zhao 等<sup>[30]</sup>采用双波长飞秒锁模光纤激光器构建出了如图 9(b)所示的单光梳 DCS 系统,所用单光梳输出的 2 个脉冲序列的重复频率约为

53 MHz, 重复频率差约为 1.2 kHz, 10 dB 光谱交叠范围为 1528~1543 nm, 在 20 ms 内测得梳齿相对线宽达 250 Hz, 表明 2 个脉冲序列具有很好的互相干性, 利用该单光梳 DCS 系统对 C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> 吸收谱进行了成功测量, 允许的相干平均次数达 199, 使得 SNR 为 100, 从而获得了 188 MHz (1.5 pm) 的光谱分辨率; 也是在 2016 年, Mehravar 等<sup>[65]</sup> 采用双向输出的飞秒锁模光纤激光器构建出一种单光梳 DCS 系统, 双向输出脉冲的光谱覆盖基本相同, 中心波长均约为 1555 nm, 重复频率为 72 MHz, 重复频率差为 82 Hz, 1 s 内梳齿相对线宽为 1.6 kHz. 利用该单光梳构建的 DCS 系统对 HCN 吸收谱进行了测量, 允

许进行 15 次相干平均, SNR 达 50, 从而获得了约 1 GHz 的光谱分辨率. 2017 年, Hébert 等<sup>[56]</sup> 进一步将上述单光梳 DCS 与自适应方案结合起来运用, 所用单光梳为 1555 nm 波段芯片衬底型双向输出激光器, 输出脉冲序列的重复频率为 822 MHz, 重复频率差约为 10.5 kHz, 测得 71 ms 内的相对线宽为 12.9 kHz. 为了改善 2 个脉冲序列之间的互相干性, 利用直接从干涉图中提取的参考信号对干涉图自身的相位和定时误差进行校正, 经过校正后的相对线宽可达 28 Hz, 利用该 DCS 对 HCN 吸收谱测量时, 允许的相干平均次数增加到 700, 光谱 SNR 提高到 300, 分辨率达 822 MHz.

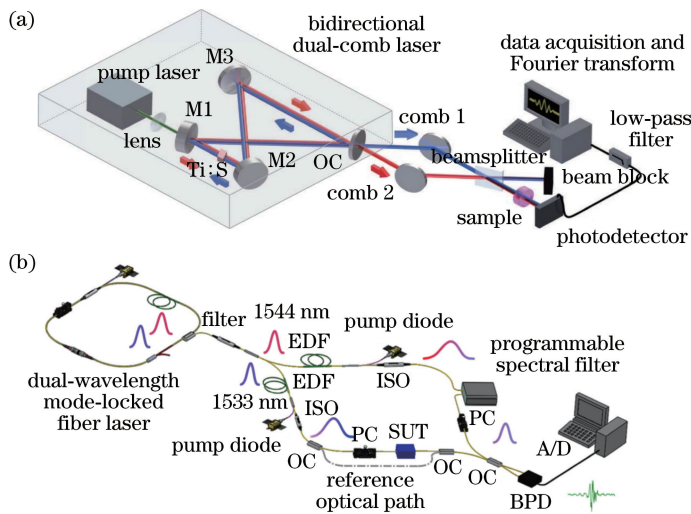


图 9 (a) 基于腔内双向传输双输出端的单激光器 DCS<sup>[57]</sup>; (b) 基于双波长锁模的单个光纤激光器 DCS<sup>[30]</sup>

Fig. 9 (a) DCS based on single laser source with dual-output ports extract lights respectively propagating in different directions inside cavity<sup>[57]</sup>; (b) DCS with dual-wavelength mode-locked fiber laser<sup>[30]</sup>

上述由单个激光器输出的具有微小重复频率差的 2 个脉冲序列来构建 DCS 系统的方案, 因抑制了共模噪声而使得 2 个脉冲序列可保持天然的互相干性<sup>[56]</sup>, 并且具有结构简单、易于集成和成本低等优势, 受到了广泛关注. 这种单光梳 DCS 方案正成为近年来的又一个研究热点, 其关键是如何开发出紧凑、稳定的飞秒锁模激光器, 并使该激光器能输出具有微小重复频率差的高度互相干 2 个脉冲序列.

## 5 未来趋势

迄今已发展出了上述 3 种主要的 DCS 实现方案, 这 3 种方案均可实现(或重建)异步光取样所需 2 个脉冲序列之间的高度互相干性, 从而允许通过相干平均来提高光谱测量的分辨率和 SNR. 基于 3 种实现方案的演示应用实验均表明, DCS 是一种集高分辨率、高灵敏度、宽光谱覆盖, 以及实时测量等

指标于一身的新型光谱分析技术. 尽管如此, DCS 毕竟问世不久, 不论是光谱测量性能指标, 还是应用领域及相关仪器研制等方面, 在未来仍然具有很大的发展空间.

### 5.1 性能指标

分辨率、灵敏度、光谱测量范围和测量时间是考察一种光谱测量技术优劣最为重要的 4 项指标. 相比于其他光谱分析技术, DCS 的最大优势在于它在原理上可使这 4 项指标同时达到高性能, 但与其他光谱技术比较, 具体每项指标并无明显优势. 因此, 提高这 4 项关键性能指标是未来 DCS 发展的首要任务.

#### 5.1.1 光谱分辨率

在不考虑切趾的情况下, DCS 的分辨率在原理上严格等于所用光梳的重复频率<sup>[50]</sup>, 因此, 提高 DCS 分辨率的最直接方法是降低光梳的重复频率. 但是, 低重复频率光梳的腔较长, 受环境扰动影响严

重,高稳定度、甚低重复频率光梳的研制仍然存在极大困难。2016年,Hébert等<sup>[66]</sup>提出了一种采用脉冲相位调制法等降低光梳重复频率的方案,如图10(a)所示,该方案使得在大幅提高光谱分辨率的同时,避开了高稳定度、甚低重复频率光梳研制的困难。该方案成功地将DCS的1台光梳重复频率由100 MHz等效降低为原来的1/127,实现了787 kHz的光谱分辨率。2014年,日本大阪大学的Yasui等提出了一种采用光谱交织法间接提高DCS

分辨率的方案<sup>[28,67-69]</sup>,所用DCS结构如图10(b)所示,通过小幅步进调谐信号光梳的重复频率,并测量出不同重复频率时的多外差光谱,就可得到具有微小频率偏移的多组射频梳,且这些射频梳在频率轴上相互均匀交错。这样,将这些多组光谱数据整合在一起进行光谱反演时,就会有效提高数据密度,从而提高光谱分辨率。利用该方法对低压CH<sub>3</sub>CN气体进行测量的实验结果表明,光谱分辨率可达1.25 MHz<sup>[67]</sup>。

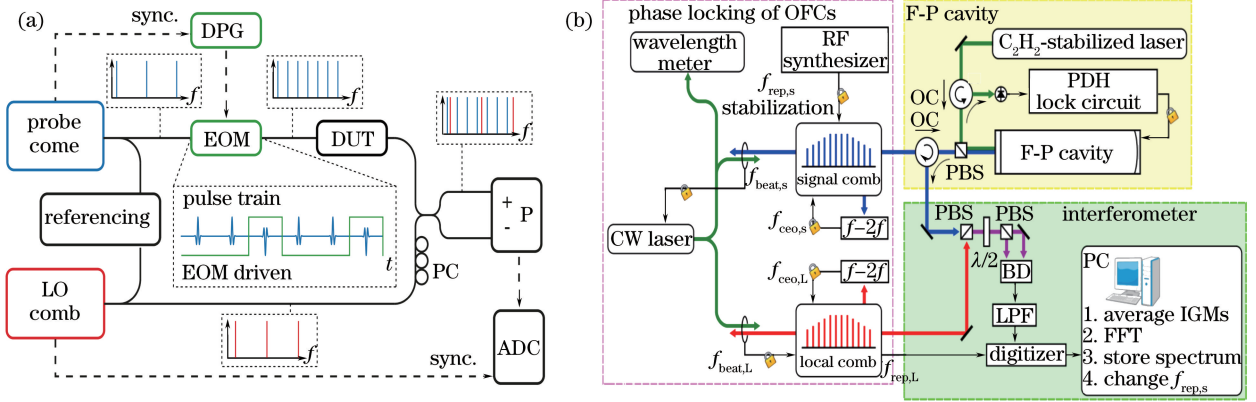


图10 (a)基于脉冲相位调制技术<sup>[66]</sup>和(b)光谱交织方法<sup>[69]</sup>提高DCS光谱测量分辨率的原理方案  
 Fig. 10 Operation principles and realization schemes for improving spectral resolution of DCS with  
 (a) phase-modulated pulse technique<sup>[66]</sup> and (b) spectral interleave scheme<sup>[69]</sup>

通过脉冲相位调制等效降低光梳重复频率和光谱交织处理方法均可突破光梳重复频率对DCS分辨率的限制,使得DCS光谱分辨率在理论上仅受限于所用光梳梳齿的相对线宽<sup>[24]</sup>。但是,脉冲相位调制法在提高分辨率的同时,因采样定理的限制而在相当程度上牺牲了光谱的测量范围,而光谱交织处理方法则因需大幅增加测量时间来采集多组光谱数据而影响DCS的测量实时性。显然,这类问题有待于进一步研究解决。

### 5.1.2 探测灵敏度

在DCS中,探测灵敏度通常由测得光谱的SNR高低进行描述<sup>[70-71]</sup>。事实上,DCS实测光谱 $H(\nu)$ 与真实光谱 $H_0(\nu)$ 存在差别,由(3)式和(4)式可知,二者之间满足 $H(\nu) = \tilde{V}_{\text{test}}(\nu) / \tilde{V}_{\text{ref}}(\nu) = H_0(\nu) + \sigma$ ,其中 $\tilde{V}_{\text{test}}(\nu)$ 为测量通道采集干涉图电压值的傅里叶变换, $\tilde{V}_{\text{ref}}(\nu)$ 为参考通道采集干涉图电压值的傅里叶变换, $\sigma$ 为标准偏差,而光谱SNR则定义为 $R_{\text{SN}} = \sigma^{-1}$ <sup>[72]</sup>。影响DCS光谱SNR的因素有2种:一是测量过程中引入的加性和乘性噪声;加性噪声主要是散粒噪声、光源相对强度噪声和因

探测器有限动态范围造成的测量噪声;乘性噪声则为2个脉冲序列之间的相对时间抖动和相位波动<sup>[70]</sup>。另一种影响因素与DCS的测量条件相关,包括干涉图采集时间、光谱元素数量、测量波段、样品间相互作用距离,等等。现有研究<sup>[70]</sup>已表明,测量条件对DCS光谱SNR的影响可近似描述为 $R_{\text{SN}} \propto \sqrt{T} / M$ ,其中 $T$ 为干涉图采集总时间, $M$ 为由分辨率和光谱范围共同决定的光谱元素总数。这样,就可以定义光谱SNR的品质因数 $F_{\text{SNR}}$ <sup>[25,70]</sup>,即 $F_{\text{SNR}} = R_{\text{SN}} M / \sqrt{T}$ ,从而评价测量过程中加性和乘性噪声对光谱SNR的影响。 $F_{\text{SNR}}$ 越大,在相同光谱元素总数和干涉图采集总时间下的光谱SNR越高,即测量过程中引入的噪声水平越低。目前已报道的大部分DCS的 $F_{\text{SNR}}$ 约为 $10^6 \sim 10^7$ ,而在文献[21]中,DCS系统允许进行连续24 h的干涉图相干平均,故其品质因数高达 $2 \times 10^8 \text{ Hz}^{1/2}$ ,为迄今最高。此外,传统光谱分析中习惯采用平均时间1 s内单位光谱元素恰好可被探测的吸收度,即噪声等效吸收(NEA),来评价光谱分析仪器的探测灵敏度。为了方便与其他光谱测量技术比较,文献[72-73]也给

出了表征 DCS 的 NEA 表达式, 即  $\alpha_{\min} = (L_{\text{eff}}R_{\text{SN}})^{-1}\sqrt{T/M}$ , 其中  $\alpha_{\min}$  和  $L_{\text{eff}}$  分别为单位光谱元素的 NEA 和有效相互作用长度。这样,  $\alpha_{\min}$  直接与样品浓度相对应, 其值越小, 灵敏度越高。

表 1 所示为本文归纳的部分典型 DCS 探测灵敏度性能参数。由表 1 可知, DCS 探测灵敏度已达到较高水平, 特别是腔增强 DCS(CE-DCS)的 NEA 已达到  $10^{-10} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ , 可实现优于  $10^{-12}$  (体积分数)量级  $\text{CO}_2$  气体的探测<sup>[73]</sup>。尽管如此, 如何进一步提高 DCS 的探测灵敏度, 以满足超痕量(如人类呼吸气体、同位素等)物质探测应用的需求, 仍然是未来的一项重要挑战。由于 DCS 光谱 SNR 的主要影响因素是测量过程引入的加性与乘性噪声, 以及包括干涉图采集时间与光谱元素数量等相关的测量条件, 因此, 提高 DCS 灵敏度的技术途径也主要应围绕这 2 个方面进行。在噪声抑制方面, 相干和自适应 DCS 方案分别通过确保和重建 2 台光梳

的互相干性来抑制光梳光源的乘性噪声, 进而运用相干平均来有效抑制光梳的加性噪声<sup>[70]</sup>, 最终使得 DCS 光谱 SNR 受光源噪声的影响达到极低水平。但是, 如何在单光梳的 DCS 等方案中提高 2 个脉冲序列间的互相干性, 以及如何在兼顾分辨率、光谱测量范围和测量时间等性能指标的同时, 抑制光源噪声对灵敏度的影响, 未来仍需要深入研究。另外, 在传统光谱分析技术中, 改善测量条件可有效提高探测灵敏度, 该方案在提高 DCS 探测灵敏度时同样有效。研究已表明, 光梳光谱范围应选与样品相互作用强的波段, 如气体分子中红外基带强吸收波段<sup>[16]</sup>, 利用长程吸收池、多次反射吸收池、开放式长程测量和腔增强技术均可有效提高 DCS 的探测灵敏度<sup>[19]</sup>, 尤其是腔增强技术。演示实验已表明, 该技术可将 DCS 的 NEA 由  $10^{-7} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$  提高至优于  $10^{-10} \text{ cm}^{-1} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ <sup>[71]</sup>, 这类工作目前正在快速推进中。

表 1 已报道的 DCS 的性能指标

Table 1 Performance indexes for reported DCS

| DCS                       | NEA / ( $\text{cm}^{-1} \cdot \text{Hz}^{-1/2}$ ) | $F_{\text{SNR}} / (\text{Hz}^{1/2})$ | SNR                    | Resolution /GHz | Spectrum coverage        |
|---------------------------|---|--------------------------------------|------------------------|-----------------|--------------------------|
| CE-DCS <sup>[73]</sup>    | $1 \times 10^{-10}$                               | $4.6 \times 10^5$                    | 380@18 $\mu\text{s}$   | 4,500           | 20 nm@1040 nm            |
| CE-OE-DCS <sup>[72]</sup> | $1.5 \times 10^{-8}$                              | $2.9 \times 10^4$                    | 189@320 s              | 0.203           | 50 GHz@1550 nm           |
| OP-DCS <sup>[59]</sup>    | $7.3 \times 10^{-10}$                             | $1.4 \times 10^6$                    | 588@300 s              | 0.100           | 32 nm@1620 nm            |
| LA-DCS <sup>[23]</sup>    | $2.2 \times 10^{-7}$                              | $2.3 \times 10^8$                    | 316000@24 h            | 0.100           | 18 THz@1560 nm           |
| A-DCS <sup>[22]</sup>     | $4.2 \times 10^{-7}$                              | $1.25 \times 10^7$                   | 20@467 $\mu\text{s}$   | 1,100           | 14.5 THz@1560 nm         |
| OPO-DCS <sup>[74]</sup>   | $5.3 \times 10^{-7}$                              | $5.3 \times 10^6$                    | 81@720 $\mu\text{s}$   | 6,000           | 10.5 THz@3 $\mu\text{m}$ |
| Raman-DCS <sup>[75]</sup> | $2 \times 10^{-6}$                                | $1.8 \times 10^7$                    | 1000@296 $\mu\text{s}$ | 120,000         | 42 THz@12 $\mu\text{m}$  |
| OE-DCS <sup>[35]</sup>    | $1.7 \times 10^{-9}$                              | $1.3 \times 10^6$                    | 2600@52 ms             | 0,300           | 35 GHz@1550 nm           |
| MC-DCS <sup>[34]</sup>    | $2.5 \times 10^{-7}$                              | $3 \times 10^6$                      | 74@20 $\mu\text{s}$    | 22,000          | 4 THz@1550 nm            |

Notes: CE-DCS represents cavity enhanced DCS; CE-OE-DCS represents cavity enhanced opto-electronic comb DCS; OP-DCS represents open-path DCS; LA-DCS represents long-term averaged DCS; A-DCS represents adaptive DCS; OPO-DCS represents optical parametric oscillator comb DCS; Raman-DCS represents coherent Raman DCS; OE-DCS represents opto-electronic comb DCS; MC-DCS represents micro-comb DCS.

### 5.1.3 光谱测量范围

DCS 光谱测量范围主要受限于所用光梳光谱覆盖范围, 现有光梳光谱大多处在近红外波段。为了满足不同波段 DCS 光谱测量的需要, 研究者早就开始发展紫外、深紫外、中远红外甚至 THz 波段的光梳, 所用方法主要是非线性变频技术。例如: 基于近红外光梳, 利用惰性气体(如氙气)高次谐波产生(HHG)获取紫外、深紫外波段的光梳<sup>[76]</sup>; 利用 BBO 等非线性晶体的二次谐波产生效应(SHG)获取可见光波段光梳<sup>[54, 77]</sup>; 通过 DFG<sup>[21, 52, 78]</sup>和光参量振荡技术(OPO)<sup>[74, 79]</sup>获取中远红外光梳; 利用光导天线技术(PCA)获取 THz 波段光梳<sup>[67, 74, 79-81]</sup>, 等等。为

了避免非线性变频拓展光梳波段过程中所涉及的复杂调控与锁定, 同时也为了降低成本与系统复杂性, 研究者正在发展基于掺  $\text{Cr}^{2+}$  锁模激光器<sup>[82]</sup>、量子级联激光器(QCL)<sup>[83]</sup>等直接产生中红外光梳的技术, 发展适合 DCS 应用的不同光学波段的光梳技术将是未来的研究重点之一。

现有近红外波段光梳的 DCS 光谱探测范围一般仅约为几十纳米<sup>[82]</sup>。近年来, 基于高非线性光纤或微结构光纤光谱拓宽的光梳, 已实现了超过 1 个倍频程的超宽带 DCS 光谱测量<sup>[84-85]</sup>; 同时, 基于光与待测物质之间的非线性相互作用<sup>[86]</sup>, 还发展出了双光子<sup>[87]</sup>和拉曼相干光谱<sup>[88]</sup>拓展 DCS 光谱测量范

围的方案,通过运用光纤级联拉曼效应,可在数百纳米范围内调谐飞秒脉冲的中心波长<sup>[89]</sup>。

图 11 所示为部分已报道的 DCS 光谱的测量波段与范围(所用光谱拓展技术包括 PCA<sup>[44,64-65,76,78]</sup>、OPO<sup>[71,76]</sup>、DFG<sup>[19,49,75]</sup>、QCL<sup>[80]</sup>、SHG<sup>[51,74,83]</sup>、HHG<sup>[73]</sup>等)。由于不同光学波段的

光谱特征反映了不同物质成分和物质不同层次的结构特性,而宽光谱测量范围意味着多组分同时测量。因此,未来 DCS 仍将沿着开发不同测量波段和拓展光谱覆盖 2 个方向发展,特别是目前尚处于空白的深紫外波段 DCS、稳定且可靠的中远红外和 THz 波段 DCS。

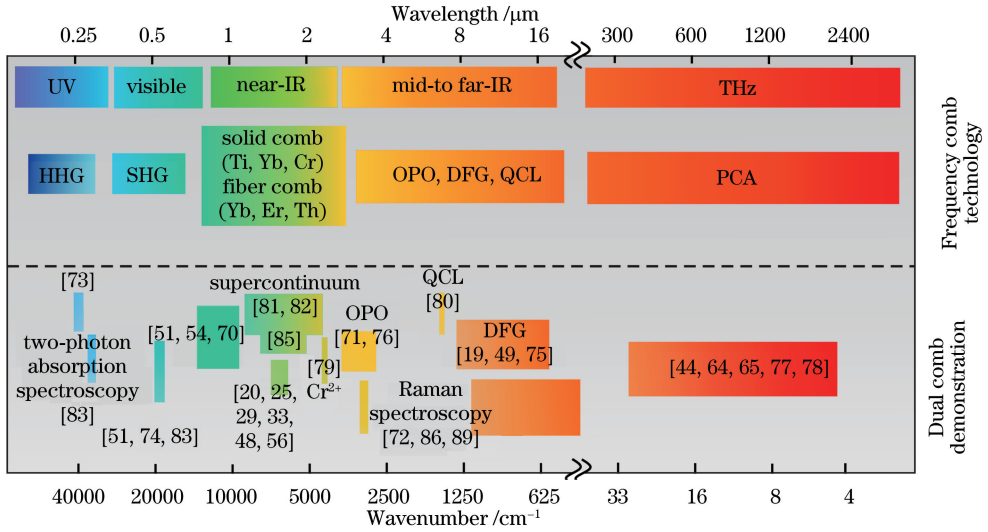


图 11 已报道的 DCS 光谱测量波段与范围

Fig. 11 Measurable wavebands and spectral ranges for DCS published

### 5.1.4 测量时间

假定数据采集处理和光谱反演所需时间可忽略,DCS 的光谱测量时间为干涉图更新时间、相干平均次数以及为了满足 Nyquist 采样定理而进行光谱分段测量的分段数的乘积。通过增大重复频率差可缩短干涉图更新时间;通过增大相互作用距离或采用腔增强等技术可使光谱的 SNR 提高<sup>[73]</sup>,从而可减少所需的相干平均次数;而通过采用并行检测技术<sup>[27]</sup>可实现多个光谱段的同时测量,这些方法均可用来缩短 DCS 的光谱测量时间。原理上,DCS 的光谱测量时间极限取决于干涉图更新时间,增大重复频率差  $\Delta f_r$  可缩短干涉图的更新时间,但是,光谱探测带宽  $\Delta\nu = f_r^2/2\Delta f_r$  因受采样定理限制而将随之减小,这就使得光谱分段测量的分段数增加,导致分段测量与光谱缝合误差增大。因此,增大  $\Delta f_r$  时,应适当增加重复频率  $f_r$ ,同时还应减小重复频率增加对光谱分辨率的影响。尽管如此,研究<sup>[90]</sup>已表明:提高重复频率差以缩短干涉图更新时间,并运用高重复频率光梳,仍然十分有利于缩短 DCS 的光谱测量时间;而通过结合腔增强等技术提高光谱 SNR 来减少所需相干平均次数,同样也是缩短 DCS 光谱测量时间的有效途径<sup>[73]</sup>。

### 5.2 应用技术

作为一种新型的主动光谱探测方法,DCS 可通过探测分析光谱响应来获得物质种类、结构及含量等信息。由于最先发展的基于飞秒锁模钛宝石激光器和光纤激光器的光梳光谱覆盖范围处于可见与近红外波段,而  $\text{CO}_2$ 、 $\text{CH}_4$ 、 $\text{C}_2\text{H}_2$  和  $\text{HCN}$  等气体分子的振转泛频吸收带恰好处于该波段,因此,在 DCS 发明之初就被用于大气成分检测与分析。目前,通过应用 DCS 已能在实验室内很好地开展高分辨率高灵敏度多组分实时大气成分光谱分析,在温室气体成分与浓度在线探测方面也取得了良好的实际应用效果<sup>[26]</sup>。但是,现有 DCS 系统的测量距离较短,仅能测量路径的平均结果,不具备空间分辨能力,且仅限于对温室气体和水汽的探测,探测灵敏度尚有待于进一步提高。因此,未来需发展高功率光梳技术,以解决当前 DCS 大气成分探测中可探测距离短的不足,还需发展宽带和中远红外光梳,以扩大可测量的气体种类和提高探测灵敏度。近期已演示成功了基于光梳测距与 DCS 相结合的光谱激光雷达技术<sup>[91]</sup>,这对未来运用 DCS 开展距离分辨的大气成分分析和浓度探测提供了新思路。

在大气探测领域中的成功应用与示范促使

DCS 正快速应用于材料科学、生物化学、食品安全、药物研发等众多领域,待测样品也由气相发展至固相和液相。例如:2016 年, Ideguchi 等<sup>[57]</sup> 利用 DCS 成功测量出 Nd:YVO<sub>4</sub> 晶体的透射谱;同年, Asahara 等<sup>[92]</sup> 利用非对称式 DCS 测量出了硅晶圆等材料的复透射谱及复折射率。此外,基于光与物质间的非线性相互作用,利用 DCS 还测得了 Rb 泡的双光子吸收光谱,由此分析出其能级结构<sup>[87]</sup>;采用相干拉曼 DCS 实现了对生物化学材料中多组分有机物的检测<sup>[88]</sup>,等等。总之,DCS 应用技术正处在快速发展中,可以预见,随着远红外和 THz 波段光梳技术的发展,DCS 的应用领域必将大幅扩展,应用技术也会得到不断进步与完善。

随着近年来 DCS 的性能提升与应用领域的扩

展,研究人员开始考虑同时兼具高时空分辨率(或灵敏度)的 DCS。例如:通过与扫描显微镜技术相结合,使相干拉曼 DCS 具有一定的空间分辨能力,从而发展出光谱成像应用(如图 12 所示),进而实现对材料或生物组织的光谱成像检测<sup>[75]</sup>;通过采用高重复频率光梳,同时增大光梳间的重复频率差,成功地提高了时间分辨率<sup>[90]</sup>,这就使得 DCS 可望实现对理化动力学过程的分析检测。此外,采用腔衰荡光梳光谱技术<sup>[93]</sup> 已能在人类呼吸气体中检测到幽门螺旋杆菌<sup>[94-95]</sup>,并成功探测到体积分数为  $43 \times 10^{-15}$  的 CO<sub>2</sub> 中的放射性<sup>14</sup>C 同位素<sup>[96]</sup>,这为未来应用 DCS 进行呼吸气体检测与病理分析,以及建立相应数据库、宽带超痕量物质结构分析等应用提出迫切而又有现实可能性的重大需求。

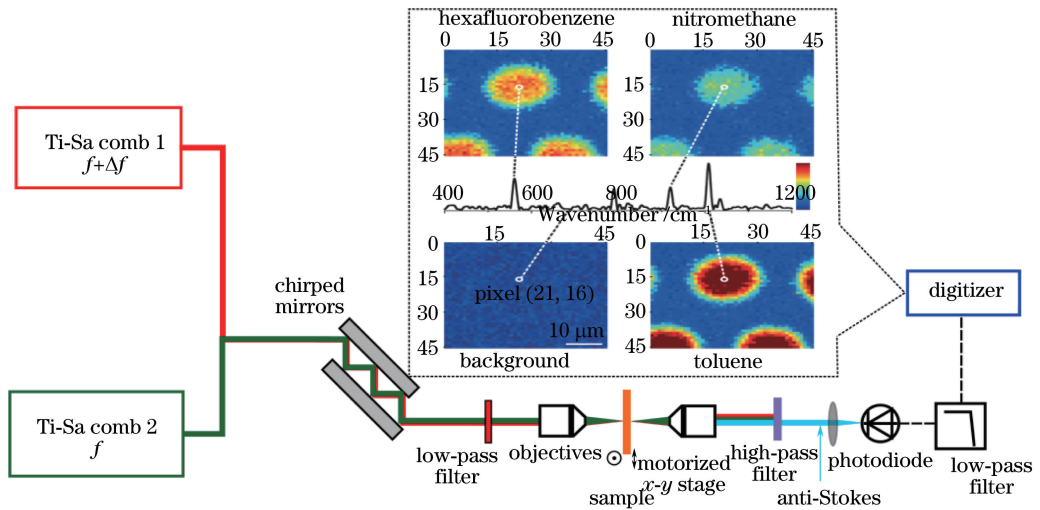


图 12 相干拉曼 DCS 及其测量的光谱与成像结果<sup>[75]</sup>

Fig. 12 Coherent Raman DCS and its measured spectral and imaging results<sup>[75]</sup>

综上,DCS 应用技术的未来发展主要包括 2 个方面:一是持续提升 DCS 性能指标以满足各不同应用领域对可测物质种类、浓度及测量时间等的需求;二是在推进 DCS 实际应用的同时,通过揭示与运用光与物质非线性相互作用,进一步发展 DCS 的新型应用技术<sup>[97]</sup>。

### 5.3 仪器研制

DCS 仪器设备是其技术与应用发展的直接体现,设计与研制 DCS 仪器设备,特别是便携式、可搭载于运动平台的现场探测仪器设备,也是未来 DCS 的发展重点。在研发 DCS 仪器设备时,首要问题是研发稳定、紧凑的光梳光源。全保偏光纤型光梳的稳定性好<sup>[98]</sup>,可望成为 DCS 仪器设备的可靠光梳源;基于微腔型<sup>[34]</sup>和芯片衬底的光梳<sup>[56]</sup>具有结构紧凑、价格低廉等优势,未来若能有效提升其性能

与稳定性,它也将成为 DCS 仪器中极具竞争力的光梳源。其次,尽管相干 DCS 方案性能卓越,但因需采用超稳腔而不适合用来发展仪器设备,自适应 DCS 以及基于单光梳的自适应 DCS 方案则在仪器化方面优势明显;近期提出的主从结构光梳锁定方案<sup>[99]</sup>、射频光频复合锁定方案<sup>[100]</sup>可能也是未来 DCS 仪器设备的备选方案。最后,开发先进的集成与封装工艺,提升环境隔离水平<sup>[32]</sup>,运用 FPGA 等技术提高集成度,同样也是研发 DCS 仪器设备的关键因素。尽管早已出现商售光梳,对光梳的稳健性也开展了系列研究<sup>[61,98,101-102]</sup>,韩国先进科学技术所<sup>[103-104]</sup>和德国 MPQ<sup>[105-106]</sup>甚至已分别将光纤型光梳搭载于低轨卫星和深空探测火箭上,开展了太空环境下光梳稳定性测试和精密光频计量应用研究,但是,DCS 仪器设备尚未商售。鉴于 DCS 的独特优



势和广阔的应用前景,世界主要国家正在纷纷投入巨资加速研发,美国、德国等发达国家早已开始申请注册了核心技术专利,主要涉及宽带超连续谱(SC)光源<sup>[107]</sup>、新型激光器<sup>[108-109]</sup>和微腔光梳<sup>[110]</sup>等光源技术,基于相干锁定<sup>[111]</sup>、前馈锁定<sup>[112]</sup>和腔增强光谱技术<sup>[113]</sup>等的DCS结构方案,以及光谱成像<sup>[114]</sup>、近场应用<sup>[115]</sup>、(危险)气体监测<sup>[116]</sup>和CW波长与线宽高精度测量<sup>[117]</sup>等应用技术,相信在不久的将来就会出现DCS商用设备。面对这种竞争激烈的局面,如何设计与研发具有自主知识产权的DCS仪器设备,将是未来我国发展DCS及其应用的重点挑战之一。

## 6 总 结

光梳是一种高精度、高稳定度且具有梳状光谱结构的高品质激光源,在光频计量、时频传递与分配、精密激光光谱等众多领域应用广泛。近年已发展出多种基于光梳的精密激光光谱技术,其中DCS因具有可同时获取高分辨率、高灵敏度、宽光谱覆盖和快速测量等优点而倍受关注。DCS光谱探测的实质是利用2列具有微小重复频率差的光梳脉冲实现异步光学取样,采集干涉图,进而反演出待测样品的光谱。但是,2台光梳之间任何微小的脉冲定时抖动和载波相位波动均会导致干涉图失真,不能运用相干平均来提高干涉图的SNR。鉴于此,相继发展出了不同的实现方案,包括相干DCS、自适应DCS和具有内禀互相干性单光梳的DCS方案。DCS已用于高分辨率、高灵敏度的多组分实时大气成分光谱分析,并在温室气体成分与浓度在线探测方面取得了良好的实际应用效果。当前,研究者仍然在着力提高DCS的主要性能指标,以满足不同应用领域对可测物质种类、浓度及测量时间等方面的需求,包括突破受重复频率制约的分辨率、受光梳噪声和测量条件制约的灵敏度、开发不同测量波段光梳并拓展DCS测量光谱的范围,采用并行检测等技术以缩短DCS的测量时间等,同时还通过揭示与运用光与物质的非线性相互作用来发展DCS新型应用技术。由于仪器设备是技术与应用发展的直接体现,因此设计与研制DCS仪器设备,特别是便携式、可搭载于运动平台的现场探测仪器设备,已成为当前和未来DCS发展的一项重点工作。

## 参 考 文 献

[1] Udem T, Holzwarth R, Hänsch T W. Optical

frequency metrology[J]. *Nature*, 2002, 416(6877): 233-237.

[2] Sun Q, Yang Y, Meng F, *et al.* High-precision measurement of terahertz frequency based on frequency comb[J]. *Acta Optica Sinica*, 2016, 36(4): 0412002.  
孙青, 杨奕, 孟飞, 等. 基于频率梳的太赫兹频率精密测量方法研究[J]. *光学学报*, 2016, 36(4): 0412002.

[3] Chou C W, Hume D B, Rosenband T, *et al.* Optical clocks and relativity[J]. *Science*, 2010, 329(5999): 1630-1633.

[4] Predehl K, Grosche G, Raupach S M F, *et al.* A 920-kilometer optical fiber link for frequency metrology at the 19th decimal place[J]. *Science*, 2012, 336(6080): 441-444.

[5] Holzwarth R, Udem T, Hänsch T W, *et al.* Optical frequency synthesizer for precision spectroscopy[J]. *Physical Review Letters*, 2000, 85(11): 2264-2267.

[6] Krausz F, Ivanov M. Attosecond physics [J]. *Reviews of Modern Physics*, 2009, 81(1): 163-234.

[7] Steinmetz T, Wilken T, Araujo-Hauck C, *et al.* Laser frequency combs for astronomical observations [J]. *Science*, 2008, 321(5894): 1335-1337.

[8] Wu Y J, Ye H Q, Han J, *et al.* Astronomical laser frequency comb for high resolution spectrograph of 2.16 m telescope[J]. *Acta Optica Sinica*, 2016, 36(6): 0614001.  
吴元杰, 叶慧琪, 韩建, 等. 2.16 m 望远镜高分辨率光谱仪的天文光学频率梳[J]. *光学学报*, 2016, 36(6): 0614001.

[9] Cundiff S T, Weiner A M. Optical arbitrary waveform generation[J]. *Nature Photonics*, 2010, 4(11): 760-766.

[10] Coddington I, Swann W C, Nenadovic L, *et al.* Rapid and precise absolute distance measurements at long range[J]. *Nature Photonics*, 2009, 3(6): 351-356.

[11] Diddams S A, Jones D J, Ye J, *et al.* Direct link between microwave and optical frequencies with a 300 THz femtosecond laser comb [J]. *Physical Review Letters*, 2000, 84(22): 5102-5105.

[12] Torres-Company V, Weiner A M. Optical frequency comb technology for ultra-broadband radio-frequency photonics [J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2014, 8(3): 368-393.

[13] Del'Haye P, Schliesser A, Arcizet O, *et al.* Optical frequency comb generation from a monolithic microresonator [J]. *Nature*, 2007, 450(7173): 1214-1217.

- [14] Hall J L. Nobel lecture: defining and measuring optical frequencies[J]. *Reviews of Modern Physics*, 2006, 78(4): 1279-1295.
- [15] Hänsch T W. Nobel lecture: passion for precision [J]. *Reviews of Modern Physics*, 2006, 78(4): 1297-1309.
- [16] Adler F, Maslowski P, Foltynowicz A, *et al.* Mid-infrared Fourier transform spectroscopy with a broadband frequency comb [J]. *Optics Express*, 2010, 18(21): 21861-21872.
- [17] Gohle C, Stein B, Schliesser A, *et al.* Frequency comb vernier spectroscopy for broadband, high-resolution, high-sensitivity absorption and dispersion spectra [J]. *Physical Review Letters*, 2007, 99(26): 263902.
- [18] Diddams S A, Hollberg L, Mbele V. Molecular fingerprinting with the resolved modes of a femtosecond laser frequency comb [J]. *Nature*, 2007, 445(7128): 627-630.
- [19] Coddington I, Newbury N, Swann W. Dual-comb spectroscopy[J]. *Optica*, 2016, 3(4): 414-426.
- [20] Schiller S. Spectrometry with frequency combs[J]. *Optics Letters*, 2002, 27(9): 766-768.
- [21] Keilmann F, Gohle C, Holzwarth R. Time-domain mid-infrared frequency-comb spectrometer [J]. *Optics Letters*, 2004, 29(13): 1542-1544.
- [22] Ideguchi T, Poisson A, Guelachvili G, *et al.* Adaptive real-time dual-comb spectroscopy [J]. *Nature Communications*, 2014, 5: 3375.
- [23] Roy J, Deschênes J D, Potvin S, *et al.* Continuous real-time correction and averaging for frequency comb interferometry[J]. *Optics Express*, 2012, 20(20): 21932-21939.
- [24] Coddington I, Swann W, Newbury N. Coherent dual-comb spectroscopy at high signal-to-noise ratio [J]. *Physical Review A*, 2010, 82(4): 043817.
- [25] Ideguchi T. Dual-comb spectroscopy[J]. *Optics and Photonics News*, 2017, 28(1): 32-39.
- [26] Cossel K C, Waxman E M, Finneran I A, *et al.* Gas-phase broadband spectroscopy using active sources: progress, status, and applications [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2017, 34(1): 104-129.
- [27] Lee K, Lee J, Jang Y S, *et al.* Fourier-transform spectroscopy using an Er-doped fiber femtosecond laser by sweeping the pulse repetition rate [J]. *Scientific Reports*, 2015, 5: 15726.
- [28] Hsieh Y D, Iyonaga Y, Sakaguchi Y, *et al.* Spectrally interleaved, comb-mode-resolved spectroscopy using swept dual terahertz combs[J]. *Scientific Reports*, 2014, 4: 3816.
- [29] Cassinerio M, Gambetta A, Coluccelli N, *et al.* Absolute dual-comb spectroscopy at 1.55  $\mu\text{m}$  by free-running Er<sup>+</sup> fiber lasers [J]. *Applied Physics Letters*, 2014, 104(23): 231102.
- [30] Zhao X, Hu G Q, Zhao B F, *et al.* Picometer-resolution dual-comb spectroscopy with a free-running fiber laser [J]. *Optics Express*, 2016, 24(19): 21833-21845.
- [31] Yang H L, Wei H Y, Zhang H Y, *et al.* Performance estimation of dual-comb spectroscopy in different frequency-control schemes[J]. *Applied Optics*, 2016, 55(23): 6321-6330.
- [32] Yang H L, Wei H Y, Chen K, *et al.* Simply-integrated dual-comb spectrometer via tunable repetition rates and avoiding self-referencing [J]. *Optics Express*, 2017, 25(7): 8063-8072.
- [33] Yu Z J, Han H N, Wei Z Y. Progress in dual-comb spectroscopy[J]. *Physics*, 2014, 43(7): 460-467. 于子蛟, 韩海年, 魏志义. 双光梳光谱学研究进展 [J]. *物理*, 2014, 43(7): 460-467.
- [34] Suh M G, Yang Q F, Yang K Y, *et al.* Microresonator soliton dual-comb spectroscopy[J]. *Science*, 2016, 354(6312): 600-603.
- [35] Millot G, Pitois S, Yan M, *et al.* Frequency-agile dual-comb spectroscopy [J]. *Nature Photonics*, 2016, 10(1): 27-30.
- [36] Coddington I, Swann W, Newbury N. Coherent multiheterodyne spectroscopy using stabilized optical frequency combs [J]. *Physical Review Letters*, 2008, 100(1): 013902.
- [37] Giaccari P, Deschênes J D, Saucier P, *et al.* Active Fourier-transform spectroscopy combining the direct RF beating of two fiber-based mode-locked lasers with a novel referencing method [J]. *Optics Express*, 2008, 16(6): 4347-4365.
- [38] Newbury N R, Swann W C. Low-noise fiber-laser frequency combs (invited) [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2007, 24(8): 1756-1770.
- [39] Newbury N R, Washburn B R. Theory of the frequency comb output from a femtosecond fiber laser[J]. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 2005, 41(11): 1388-1402.
- [40] Droste S, Ycas G, Washburn B R, *et al.* Optical frequency comb generation based on erbium fiber lasers[J]. *Nanophotonics*, 2016, 5(2): 196-213.
- [41] Jones D J, Diddams S A, Ranka J K, *et al.* Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis [J]. *Science*, 2000, 288(5466): 635-639.
- [42] Wu H Y, Shi L, Ma T, *et al.* Design and

- development technique for optical frequency comb based on femtosecond fiber lasers [J]. Chinese Journal of Lasers, 2017, 44(6): 0601008.
- 吴浩煜, 时雷, 马挺, 等. 基于飞秒光纤激光器的光频率梳设计与研制技术[J]. 中国激光, 2017, 44(6): 0601008.
- [43] Diddams S A, Udem T, Bergquist J C, *et al.* An optical clock based on a single trapped  $^{199}\text{Hg}^+$  ion [J]. Science, 2001, 293(5531): 825-828.
- [44] Swann W C, Baumann E, Giorgetta F R, *et al.* Microwave generation with low residual phase noise from a femtosecond fiber laser with an intracavity electro-optic modulator[J]. Optics Express, 2011, 19(24): 24387-24395.
- [45] Fehrenbacher D, Sulzer P, Liehl A, *et al.* Free-running performance and full control of a passively phase-stable Er: fiber frequency comb[J]. Optica, 2015, 2(10): 917-923.
- [46] Baltuška A, Fuji T, Kobayashi T. Controlling the carrier-envelope phase of ultrashort light pulses with optical parametric amplifiers [J]. Physical Review Letters, 2002, 88(13): 133901.
- [47] Standards Coordinating Committee 27. IEEE standard definitions of physical quantities for fundamental frequency and time metrology - Random instabilities[S]. New York: IEEE, 1999: 1139.
- [48] Kim J W, Song Y J. Ultralow-noise mode-locked fiber lasers and frequency combs: principles, status, and applications[J]. Advances in Optics and Photonics, 2016, 8(3): 465-540.
- [49] Pang L H, Han H N, Zhao Z B, *et al.* Ultra-stability Yb-doped fiber optical frequency comb with  $2 \times 10^{18}/\text{s}$  stability in-loop [J]. Optics Express, 2016, 24(25): 28993-29000.
- [50] Griffiths P R, Haseh J A D. Fourier transform infrared spectrometry [M]. 2nd ed. New Jersey: John Wiley & Sons, 2006: 19-36.
- [51] Coddington I, Swann W C, Newbury N R. Coherent linear optical sampling at 15 bits of resolution[J]. Optics Letters, 2009, 34(14): 2153-2155.
- [52] Brehm M, Schliesser A, Keilmann F. Spectroscopic near-field microscopy using frequency combs in the mid-infrared[J]. Optics Express, 2006, 14(23): 11222-11233.
- [53] Coddington I, Swann W C, Newbury N R. Time-domain spectroscopy of molecular free-induction decay in the infrared[J]. Optics Letters, 2010, 35(9): 1395-1397.
- [54] Ideguchi T, Poisson A, Guelachvili G, *et al.* Adaptive dual-comb spectroscopy in the green region [J]. Optics Letters, 2012, 37(23): 4847-4849.
- [55] Deschênes J D, Giaccari P, Genest J. Optical referencing technique with CW lasers as intermediate oscillators for continuous full delay range frequency comb interferometry[J]. Optics Express, 2010, 18(22): 23358-23370.
- [56] Hébert N B, Genest J, Deschênes J D, *et al.* Self-corrected chip-based dual-comb spectrometer [J]. Optics Express, 2017, 25(7): 8168-8179.
- [57] Ideguchi T, Nakamura T, Kobayashi Y, *et al.* Kerr-lens mode-locked bidirectional dual-comb ring laser for broadband dual-comb spectroscopy [J]. Optica, 2016, 3(7): 748-753.
- [58] Link S M, Klenner A, Mangold M, *et al.* Dual-comb modelocked laser[J]. Optics Express, 2015, 23(5): 5521-5531.
- [59] Rieker G B, Giorgetta F R, Swann W C, *et al.* Frequency-comb-based remote sensing of greenhouse gases over kilometer air paths[J]. Optica, 2014, 1(5): 290-298.
- [60] Sinclair L C, Giorgetta F R, Swann W C, *et al.* Optical phase noise from atmospheric fluctuations and its impact on optical time-frequency transfer[J]. Physical Review A, 2014, 89(2): 023805.
- [61] Sinclair L C, Coddington I, Swann W C, *et al.* Operation of an optically coherent frequency comb outside the metrology lab [J]. Optics Express, 2014, 22(6): 6996-7006.
- [62] Burghoff D, Yang Y, Hu Q. Computational multiheterodyne spectroscopy[J]. Science Advances, 2016, 2(11): e1601227.
- [63] Sterczewski L A, Westberg J, Patrick L, *et al.* Computational adaptive sampling for multiheterodyne spectroscopy [C]. Conference on Lasers and Electro-Optics, 2017: JW2A.80.
- [64] Gong Z, Zhao X, Hu G Q, *et al.* Polarization multiplexed, dual-frequency ultrashort pulse generation by a birefringent mode-locked fiber laser [C]. Conference on Lasers and Electro-Optics, 2014: JTh2A.20.
- [65] Mehravar S, Norwood R A, Peyghambarian N, *et al.* Real-time dual-comb spectroscopy with a free-running bidirectionally mode-locked fiber laser[J]. Applied Physics Letters, 2016, 108: 231104.
- [66] Hébert N B, Michaud-Belleau V, Magnan-Saucier S, *et al.* Dual-comb spectroscopy with a phase-modulated probe comb for sub-MHz spectral sampling[J]. Optics Letters, 2016, 41(10): 2282-2285.
- [67] Yasui T, Iyonaga Y, Hsieh Y D, *et al.* Super-

- resolution discrete Fourier transform spectroscopy beyond time-window size limitation using precisely periodic pulsed radiation[J]. *Optica*, 2015, 2(5): 460-467.
- [68] Yasui T, Ichikawa R, Hsieh Y D, *et al.* Adaptive sampling dual terahertz comb spectroscopy using dual free-running femtosecond lasers[J]. *Scientific Reports*, 2015, 5: 10786.
- [69] Okubo S, Hsieh Y D, Inaba H, *et al.* Near-infrared broadband dual-frequency-comb spectroscopy with a resolution beyond the Fourier limit determined by the observation time window [J]. *Optics Express*, 2015, 23(26): 33184-33193.
- [70] Newbury N R, Coddington I, Swann W. Sensitivity of coherent dual-comb spectroscopy [J]. *Optics Express*, 2010, 18(8): 7929-7945.
- [71] Foltynowicz A, Masłowski P, Ban T, *et al.* Optical frequency comb spectroscopy [J]. *Faraday Discussions*, 2011, 150: 23-31.
- [72] Fleisher A J, Long D A, Reed Z D, *et al.* Coherent cavity-enhanced dual-comb spectroscopy[J]. *Optics Express*, 2016, 24(10): 10424-10434.
- [73] Bernhardt B, Ozawa A, Jacquet P, *et al.* Cavity-enhanced dual-comb spectroscopy [J]. *Nature Photonics*, 2009, 4(1): 55-57.
- [74] Jin Y, Cristescu S M, Harren F J M, *et al.* Femtosecond optical parametric oscillators toward real-time dual-comb spectroscopy [J]. *Applied Physics B*, 2015, 119(1): 65-74.
- [75] Ideguchi T, Holzner S, Bernhardt B, *et al.* Coherent Raman spectro-imaging with laser frequency combs [J]. *Nature*, 2013, 502 (7471): 355-358.
- [76] Carlson D R, Wu T H, Jones R J. Dual-comb intracavity high harmonic generation[C]. *Frontiers in Optics*, 2014: FTh1A.2.
- [77] Potvin S, Genest J. Dual-comb spectroscopy using frequency-doubled combs around 775 nm[J]. *Optics Express*, 2013, 21(25): 30707-30715.
- [78] Schliesser A, Brehm M, Keilmann F, *et al.* Frequency-comb infrared spectrometer for rapid, remote chemical sensing[J]. *Optics Express*, 2005, 13(22): 9029-9038.
- [79] Zhang Z W, Gu C L, Sun J H, *et al.* Asynchronous midinfrared ultrafast optical parametric oscillator for dual-comb spectroscopy[J]. *Optics Letters*, 2012, 37(2): 187-189.
- [80] Yasui T, Nose M, Ihara A, *et al.* Fiber-based, hybrid terahertz spectrometer using dual fiber combs [J]. *Optics Letters*, 2010, 35(10): 1689-1691.
- [81] Yasui T, Kabetani Y, Saneyoshi E, *et al.* Terahertz frequency comb by multifrequency-heterodyning photoconductive detection for high-accuracy, high-resolution terahertz spectroscopy[J]. *Applied Physics Letters*, 2006, 88(24): 241104.
- [82] Bernhardt B, Sorokin E, Jacquet P, *et al.* Mid-infrared dual-comb spectroscopy with 2.4  $\mu\text{m}$   $\text{Cr}^{2+}$ : ZnSe femtosecond lasers [J]. *Applied Physics B*, 2010, 100(1): 3-8.
- [83] Villares G, Hugi A, Blaser S, *et al.* Dual-comb spectroscopy based on quantum-cascade-laser frequency combs [J]. *Nature Communications*, 2014, 5: 5192.
- [84] Zolot A M, Giorgetta F R, Baumann E, *et al.* Direct-comb molecular spectroscopy with accurate, resolved comb teeth over 43 THz [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(4): 638-640.
- [85] Okubo S, Iwakuni K, Inaba H, *et al.* Ultra-broadband dual-comb spectroscopy across 1.0-1.9  $\mu\text{m}$ [J]. *Applied Physics Express*, 2015, 8: 082402.
- [86] Glenn R, Mukamel S. Nonlinear transmission spectroscopy with dual frequency combs [J]. *Physical Review A*, 2014, 90(2): 023804.
- [87] Hipke A, Meek S A, Ideguchi T, *et al.* Broadband Doppler-limited two-photon and stepwise excitation spectroscopy with laser frequency combs [J]. *Physical Review A*, 2014, 90(1): 011805.
- [88] Ideguchi T, Bernhardt B, Guelachvili G, *et al.* Raman-induced Kerr-effect dual-comb spectroscopy [J]. *Optics Letters*, 2012, 37(21): 4498-4500.
- [89] Portuondo-Campa E, Bennès J, Balet L, *et al.* Tuneable dual-comb spectrometer based on commercial femtosecond lasers and reference cell for optical frequency calibration[J]. *Applied Physics B*, 2016, 122: 1-9.
- [90] Mohler K J, Bohn B J, Yan M, *et al.* Dual-comb coherent Raman spectroscopy with lasers of 1-GHz pulse repetition frequency [J]. *Optics Letters*, 2017, 42(2): 318-321.
- [91] Boudreau S, Lévasseur S, Perilla C, *et al.* Chemical detection with hyperspectral lidar using dual frequency combs[J]. *Optics Express*, 2013, 21 (6): 7411-7418.
- [92] Asahara A, Nishiyama A, Yoshida S, *et al.* Dual-comb spectroscopy for rapid characterization of complex optical properties of solids [J]. *Optics Letters*, 2016, 41(21): 4971-4974.
- [93] Thorpe M J, Moll K D, Jones R J, *et al.* Broadband cavity ringdown spectroscopy for sensitive and rapid molecular detection[J]. *Science*, 2006, 311(5767): 1595-1599.

- [94] Thorpe M J, Balslev-Clausen D, Kirchner M S, *et al.* Cavity-enhanced optical frequency comb spectroscopy: application to human breath analysis [J]. *Optics Express*, 2008, 16(4): 2387-2397.
- [95] Crosson E R, Ricci K N, Richman B A, *et al.* Stable isotope ratios using cavity ring-down spectroscopy: determination of  $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$  for carbon dioxide in human breath[J]. *Analytical Chemistry*, 2002, 74(9): 2003-2007.
- [96] Galli I, Bartalini S, Borri S, *et al.* Molecular gas sensing below parts per trillion: radiocarbon-dioxide optical detection [J]. *Physical Review Letters*, 2011, 107(27): 270802.
- [97] Picque N. Fourier transform spectroscopy with laser frequency combs [C]. *Fourier Transform Spectroscopy and Hyperspectral Imaging and Sounding of the Environment*, 2015: FT2A.1.
- [98] Sinclair L C, Deschenes J D, Sonderhouse L, *et al.* Invited article: a compact optically coherent fiber frequency comb [J]. *Review of Scientific Instruments*, 2015, 86(8): 081301.
- [99] Chen Z J, Yan M, Hänsch T W, *et al.* A phase-stable dual-comb interferometer [J/OL]. *arXiv*, 2017: 1705.04214 (2017-05-11). <https://arxiv.org/ftp/arxiv/papers/1705/1705.04214.pdf>.
- [100] Truong G W, Waxman E M, Cossel K C, *et al.* Accurate frequency referencing for fieldable dual-comb spectroscopy[J]. *Optics Express*, 2016, 24(26): 30495-30504.
- [101] Feng Y, Xu X, Hu X H, *et al.* Environmental-adaptability analysis of an all polarization-maintaining fiber-based optical frequency comb[J]. *Optics Express*, 2015, 23(13): 17549-17559.
- [102] Baumann E, Giorgetta F R, Nicholson J W, *et al.* High-performance, vibration-immune, fiber-laser frequency comb[J]. *Optics Letters*, 2009, 34(5): 638-640.
- [103] Lee J, Lee K, Jang Y S, *et al.* Testing of a femtosecond pulse laser in outer space[J]. *Scientific Reports*, 2014, 4: 5134.
- [104] Jang Y S, Lee J, Kim S, *et al.* Space radiation test of saturable absorber for femtosecond laser [J]. *Optics Letters*, 2014, 39(10): 2831-2834.
- [105] Lezius M, Wilken T, Deutsch C, *et al.* Space-borne frequency comb metrology [J]. *Optica*, 2016, 3(12): 1381-1387.
- [106] Wilken T, Lezius M, Hänsch T W, *et al.* A frequency comb and precision spectroscopy experiment in space[C]. *Conference on Lasers and Electro-Optics*, 2013: AF2H.5.
- [107] Tadanaga O, Okubo A, Inaba H, *et al.* Wideband optical frequency comb light source for use in e. g. dual comb spectroscopy application, has nonlinear optical medium emitting light of first and second wavelength among lights in input of optical frequency comb: JP2016212261A[P]. 2016-12-15.
- [108] Zheng Z, Zhao X, Liu L, *et al.* Method and system for measuring optical asynchronous sampled signal: WO2013127370[P]. 2013-09-06.
- [109] Kieu K Q. Dual-comb spectroscopy with a free-running bidirectionally mode-locked fiber laser: WO2016196677A1[P]. 2016-12-08.
- [110] Kippenberg T, Del'Haye P, Schliesser A. Method and apparatus for optical frequency comb generation using a monolithic micro-resonator: US7982944[P]. 2011-07-19.
- [111] Kieu K Q. Method for interrogating absorbing sample using dual-comb spectroscopy system, involves using mode-locked laser to be mode-locked, and detecting interference pattern produced by interference between pulses after traversing sample: WO2016196677A1[P]. 2016-12-08.
- [112] Fermann M E, Marangoni M, Gatti D. Laser system for line narrowing of frequency shifted continuous wave (CW) lasers has frequency shifter, generating line narrowed and CW laser output, which is driven by signal derived from beat signal in feedforward configuration: WO2013148757A1, US2015185141A1, US9097656B2[P]. 2013-11-03.
- [113] Chandler D W, Strecker K E. Dual-etalon cavity-ring-down frequency-comb spectrometer system defines spectrums of light which includes multiple optical frequencies, by frequency-comb signals, respectively: WO2012003046A2, WO2012003046A3, US2012002212A1, US8693004B2[P]. 2012-01-05.
- [114] Fermann M E, Hartl I. Coherent dual scanning laser system for e. g. optical imaging of test sample, has optical reference comprising optical element that generates reference signal for measurement of time delay between pulses of pulse pair as function of time: US2014219298A1, US9252560B2[P]. 2014-08-07.
- [115] Fermann M E, Hartl I. Coherent dual scanning laser system for optical imaging system used in e. g. microscopy, has optical element that generates frequency converted spectral output having frequency comb comprising harmonics of oscillator repetition rates: WO2010101690A1, US2010225897A1, US8120778B2, CN102349205A, CN102349205B, JP2012519879W, JP5663499B2, DE112010000981T5[P]. 2010-09-09.

[116] Newbury N R, Coddington I, Swann W C. Method for performing comb-based spectroscopy of hydrogen cyanide gas sample in workhorse system for e. g. research application, involves real time summing digitized sample to generate averaged signal pulse: US2011069309A1, US8564785B2[P]. 2011-03-24.

[117] Coddington I, Newbury N R, Swann W C. Comb-based spectroscopy method for measuring continuous wave source at time-bandwidth limited resolution, involves Fourier transforming product of digitized samples to yield wideband spectrum of source at resolution by comb repetition rate: US2013342836A1, US9557219B2[P]. 2013-12-26.