采用自由运行脉冲激光器进行异步光学采样太赫兹光谱学的抖动校正

Mayuri Nakagawa*、Natsuki Kanda、Toshio Otsu、Isao Ito、Yohei Kobayashi 和 Ryusuke Matsunaga东京大学物性研究所，东京大学，千叶县柏市柏之叶 5-1-5，邮编 277-8581，日本 *通讯作者：mayuri_nakagawa@issp.u-tokyo.ac.jp

摘要： 我们展示了一种使用两个自由运行振荡器进行异步光学采样（ASOPS）太赫兹（THz）时域光谱学的抖动校正方法。该方法同时记录太赫兹波形和激光重复频率差的谐波 Δf_r，以监测用于软件抖动校正的抖动信息。通过将残余抖动抑制到 0.1 ps 以下，在不损失测量带宽的情况下实现了太赫兹波形的累积。我们的水蒸气测量成功分辨出低于 1 GHz 的吸收线宽，展示了一种无需反馈控制或额外连续波太赫兹源、具有灵活、简单且紧凑配置的稳健异步光学采样系统。

1. 引言

用于太赫兹时域光谱（THz-TDS）的异步光学采样（ASOPS）采用两台重复频率略有差异的脉冲激光器来产生和探测太赫兹脉冲，无需机械延迟台即可实现高分辨率宽带光谱和高速扫描 [1]。ASOPS 的应用拓展了太赫兹时域光谱的目标对象，使其能够用于具有窄吸收线的物质，例如气体分子 [2–4]。由于挥发性有机化合物气体的太赫兹吸收光谱具有多样性，可作为光谱指纹来区分不同的分子种类，因此，高分辨率异步光学采样太赫兹时域光谱有望应用于环境安全领域 [5]。除气体分子外，异步光学采样太赫兹时域光谱也

有望用于药物中尖锐吸收线的宽带和时间分辨光谱分析 [6] 或用于 DNA 等生物分子 [7–10], 从而获取宽带光谱，并以高速扫描观察其随时间的变化。

尽管异步光学采样太赫兹时域光谱具有潜在优势，但由于缺乏灵活性且技术难度较高，其尚未得到充分应用。最棘手的问题是两台脉冲激光器的定时抖动。除非将其抑制到小于太赫兹波的周期

e

，也就是 约 1 ps，否则累积过程会使太赫兹波形数据失真或相互抵消。在异步光学采样中，太赫兹时域光谱中的时间延迟会按 $f_{r2}/\Delta f_r$ 的比例扩展至实验室时间，其中 f_{r1} 和 f_{r2} 分别是门控脉冲和太赫兹脉冲的重复频率，而 $\Delta f_r \equiv f_{r2} - f_{r1}$ 是两者重复频率之差。因此，抖动表现为 f_{r2} 和 Δf_r 的波动。考虑到波动与平均值之间的比率， Δf_r 的波动对异步光学采样的抖动影响更大。为解决抖动问题，典型的异步光学采样装置会直接或间接地稳定 Δf_r，方法包括对激光腔长 [2–4,11,12], 或激光二极管电流施加反馈控制，或使用电光调制器 [13–16]。此外，还可以通过设计腔特性来稳定 Δf_r ，例如采用单腔的偏振复用、双波长双向模式 [17–23], ，或采用具有热耦合与机械耦合的独立腔 [24,25]。另一种方案是以根据抖动调整的采样时刻记录异步光学采样信号，这种方法称为“自适应采样”[26]。与分别锁定每个重复频率相比，该方法能够实现更精确的测量。然而，生成自适应时钟需要额外的连续波（CW）太赫兹激光器。尽管这些异步光学采样系统已成功展示了太赫兹光谱的高分辨率和高扫描速率，但稳频和特殊采样方案需要昂贵和/或复杂的设备，例如能够通过压电元件稳频的脉冲激光腔、特殊的双激光器配置，或额外的连续波太赫兹激光器。对于实际应用，人们迫切需要设计一种新型无抖动异步光学采样系统，使其比传统系统更灵活、设备体积更小、成本更低。

在本研究中，我们提出了一种采用软件后处理算法的异步光学采样太赫兹时域光谱抖动校正方法。我们提供了一种信号生成装置和

软件程序，用于校准抖动，并展示了对自由运行脉冲激光器测量结果进行抖动校正的方法。在这次为时 16 分钟的测量中，扫描速率在 12–28 Hz 之间大幅波动，但抖动仍得到了有效校正，从而能够累积异步光学采样信号，同时保持太赫兹频率范围内的带宽。我们通过高精度、高光谱分辨率测量低压水蒸气，验证了抖动校正方案的有效性，分辨出线宽小于 1 GHz 的谱线。我们的方法无需任何频率稳定措施，包括模式复用激光器或反馈回路；校准仅需一个简单电路和单个射频（RF）信号发生器，无需连续波激光器。这种简化的装置降低了成本，并提高了电气系统的稳健性；要实现准确的长期反馈控制，该系统原本需要高超的技术能力和稳定的环境。此外，光源选择的灵活性将拓展异步光学采样太赫兹时域光谱的应用目的与对象。

2. 采样与分析方法

所提出的抖动校正方法的基本思路是：通过异步光学采样同步采集频率为 Δf_{r} 的射频信号和太赫兹波信号，并在记录完整数据集后通过软件校正抖动。我们采用第十四次谐波（$14\Delta f_{\mathrm{r}}$）作为射频信号。在本研究中，我们将此 $14\Delta f_{\mathrm{r}}$ 信号称为校准信号，并将太赫兹波形称为异步光学采样信号。在不存在任何抖动或漂移的理想情况下，校准信号是频率恒定为 $14\Delta f_{\mathrm{r}}$ 的完美正弦信号。然而，存在抖动时，校准信号会发生畸变，其相位不再与实验室时间成正比。我们提出通过分析校准信号的相位来校准时间轴。将该相位转换为太赫兹波形的时间轴，即可校正异步光学采样信号中的抖动。请注意，电路中的频率相关相移也会使校准信号的相位发生畸变。我们考虑了啁啾效应，并在软件中对其进行补偿。

本章第 2.1 节介绍用于采集异步光学采样信号和校准信号的光学和电子系统。第 2.2 节讨论利用校准信号的过零时刻进行相位重建的方案。第 2.2 和 2.3 节介绍一种软件算法，用于校正电路中啁啾导致的相位偏移以及由

波动引起的 Δf_r 抖动。最后，第 2.3 节介绍用于提高信噪比（SNR）的累积系统。

2.1. 数据采集

本装置中的脉冲光源为两台掺镱光纤激光器，中心波长约为 1 μm，重复频率为 f_{r1}~f_{r2}~101 MHz，脉冲持续时间分别为 70 和 90 fs。太赫兹脉冲由无偏压大面积发射器（TeraBlast，Protemics GmbH）产生，并通过在 (110) 磷化镓晶体中进行电光采样并采用平衡探测的方式检测。该测量得到以下三种波形：

CH0. 泵浦激光器和门控激光器的干涉图（IFG），用作触发信号。
CH1. 频率为 $14\Delta f_r$ 且不断变化的射频信号，作为校准信号。CH2. 太赫兹波的平衡探测信号，作为异步光学采样信号。

该方法所用的光学和电子装置如图1所示。上述三个信号通过采样时钟频率为 $2f_{r1}$ 的采样时钟，在 CH0–CH2 中采集。

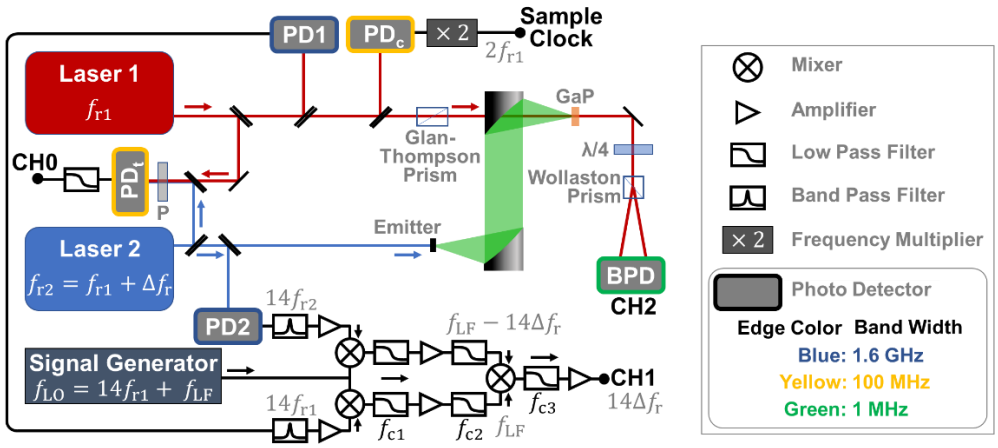

图1. 数据采集装置。PD_t：光电探测器，BPD：平衡光电探测器。P：偏振片，λ/4：四分之一波片。光电探测器边缘的颜色表示其带宽。

光电探测器（PD_t）检测到的干涉图经过滤波，以滤除高于 f_r 的频率分量，从而提取清晰的中心突发，用作触发信号。采样时钟信号由 PD_c 检测到的 f_{r1} 生成。采样时钟重复频率经电子倍频，增至原来的两倍，使其处于数字化仪的时钟范围内，并在软件中除以一个整数。电路

图1底部所示的电路用于生成校准信号 $14\Delta f_r$。PD1 和 PD2 的检测信号，包括 nf_r $(n = 1、2、.....)$，首先经过滤波，以提取 $n = 14$ 附近的频率。为了更清晰地提取与 $n = 14$ 相关的频率，利用频率为 f_{LF} 和 $f_{LF} - 14\Delta f_r$ 的拍频信号，将它们转换为足够低的频率。该拍频信号由射频信号发生器 f_{LO} 产生。 f_{LF} 与 $f_{LF} - 14\Delta f_r$ 之间的拍频用作校准信号。电路中从左到右三个低通滤波器的截止频率 f_{c1}、f_{c2}、和 f_{c3} 确定为 $28f_r > f_{c1} = f_{c2} > f_{LF} > f_{c1}/2 > 7\Delta f_r$。

2.2 校准信号的相位重建

为创建新的时间轴，根据过零时刻重建校准信号的相位。该过程如图2所示。

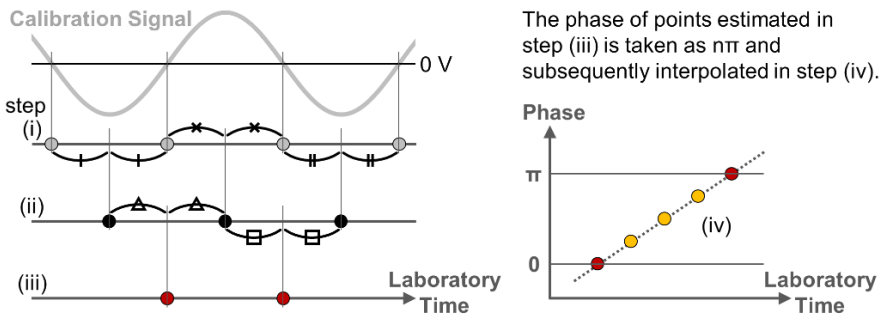

图2。抖动校正算法。(i)至(iv)的标记表示相位重建过程的步骤。

在实际数据中，校准信号会受到末级放大器电路非线性的轻微畸变。因此，必须谨慎设计这一处理过程，使其不受下降沿与上升沿过零时刻不均匀性的影响。首先，我们检测实验室时间 (i) 处上升沿和下降沿的过零点。随后确定这些过零点的中点，如 (ii) 所示。点 (ii) 的间距均匀，但原点偏移仍存在偏差。进一步将 (ii) 的中点设为基准，如 (iii) 所示，即可消除偏移偏差。(iii) 中的相位定义为 $0, \pi, 2\pi$ ....随后利用线性插值重建 (iii) 中各点之间的中间相位 (iv)。

2.3 电路中的啁啾校正

利用第 2.1 节和第 2.2 节中的方案，可以校正大部分抖动。频率 $14\Delta f_{\mathrm{r}}$ 的波动也会引起抖动，其来源是电子电路（例如末级低通滤波器和放大器）中与频率相关的相移，或称“啁啾”。这里，我们通过比较记录的校准信号与干涉图来补偿这种啁啾延迟。我们将干涉图中每隔 $1/\Delta f_{\mathrm{r}}$ 的脉冲串时序用作信号累积的触发时刻。在无啁啾的情况下，第 2.2 节中确定的相位在每个触发时刻都应相同，只有恒定增量 $(14 \times 2\pi)$ 除外。因此，我们可以检查触发时刻处的相位，以判断啁啾效应。还可以利用时域中的相位间隔确定各点的频率。通过拟合这些数据得到相位-频率曲线后，即可根据频率随实验室时间的变化，确定整个数据集的相位延迟。最后，从第 2.2 节确定的相位中减去该相位延迟。

2.4 抖动校正与累积

通过将第 2.3 节确定的相位映射到太赫兹波形的新时间轴上，可同时校正包括啁啾效应在内的整体抖动。具体而言，触发间隔在相位轴上为 $14 \times 2\pi$ ，在新时间轴上为 $1/f_{\mathrm{r2}}$ 。因此，将每个采集数据点的相位除以 $14 \times 2\pi \times f_{\mathrm{r2}}$，即可将其重新缩放为时间轴。

为提高信噪比，我们对抖动校正后的信号进行了累积。为在相同的时刻累积数据，我们对校正后的数据进行插值，使时间轴上的间隔相等。随后，按照触发时刻截取插值数据并取平均。请注意，如果未校正抖动，累积过程中信号会相互抵消，在高频下尤其如此。为在宽带范围内保持信号强度，必须在抖动校正后进行累积处理。

3. 实验与讨论

3.1 抖动校正和信号累积的考察

我们测量异步光学采样信号，以考察抖动校正的效果。图3(a)展示了测量开始时 CH0 至 CH2 的原始数据，其中

存在偏移。由于自由运行振荡器不可避免地会发生漂移和波动， Δf_{r} 根据记录的校准信号计算得出的近似频率在 16 分钟的测量过程中从 12 Hz 变化到 28 Hz。为明确抖动校正的效果，图 3(b)展示了抖动校正前的异步光学采样信号。深绿色和浅绿色数据分别表示用于累积的首次和末次扫描。尽管两个信号具有相同的触发器，但由于 Δf_{r}的漂移，太赫兹脉冲的脉冲串时序彼此不同。我们使用第 2 节所述的方法校正记录数据中的抖动和漂移。为将校正时间轴的脉冲间时间范围设为$1/f_{\mathrm{r2}}$，分析时采用近似频率 $f_{\mathrm{r2}} = 100.78$ MHz。

为确定电子学中的啁啾效应，通过此次测量获得校准信号的相位延迟与频率之间的关系，如图3(d)所示。黑色圆点表示各触发时刻的数据。相位延迟通过将触发时的相位除以 $14 \times 2\pi$ 后取余数来估算。图3(d)中白色圆圈标出的筛选后数据点用于拟合。拟合得到的二次曲线以青色线条表示，用于确定每个数据点处的相位延迟。抖动校正后的异步光学采样信号如图3(c)所示。校正后，太赫兹信号的脉冲串时序成功匹配。

残余抖动按如下方式进行定量估算：由于噪声的影响，难以直接估算异步光学采样太赫兹信号中的抖动，因此确定校正后校准信号与触发时刻之间的抖动。具体而言，将校准信号在触发时刻上进行啁啾扣除后的相位除以$14 \times 2\pi$ ，再将余数除以 $14 \times 2\pi \times f_{\mathrm{r2}}$ ，以换算为时间。残余抖动是触发与下一次触发之间的时间变化，如图 3(e)所示。整个测量过程的均方根为 0.09 ps。这保证了校正后的残余抖动不会损害太赫兹波信号累积的带宽。

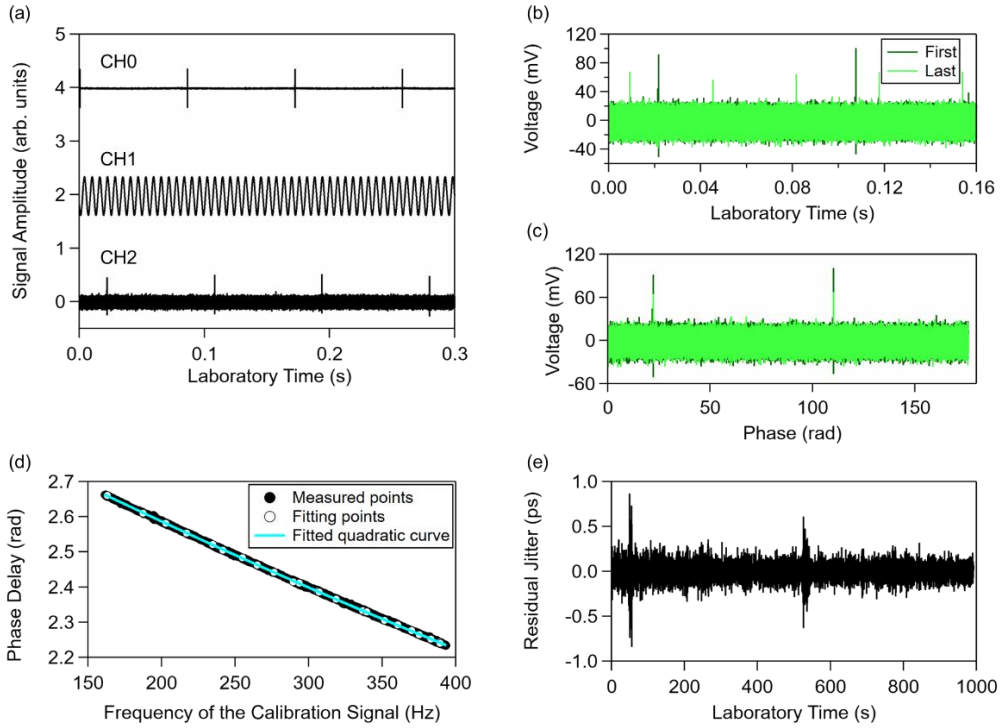

图 3. 抖动校正的过程及效果。(a) 采集的原始数据。(b) 数据采集过程中首次和末次扫描的原始异步光学采样信号。(c) 首次和末次扫描的校正后异步光学采样信号。(d) 用于确定电子学啁啾的拟合。(e) 各次扫描的残余抖动。

在一次持续 16 分钟的测量中，通过两个脉冲间隔执行信号累积 10,970 次。平均前后的时域波形如图 4(a)所示。绿色数据表示累积前的信号，平均后的波形以蓝色曲线表示。对于每个数据点，分别以浅色和鲜艳颜色显示短（40 ps）和长（20 ns）时间范围内的波形。累积后，噪声降低，但太赫兹脉冲的尖锐脉冲仍保持其波形。根据图 4(a)得到的功率谱如图 4(b)所示。

在图 4(b)中，累积前，较长时间窗下的光谱中几乎看不到信号（浅绿色）。累积后，由于高频范围内的噪声底降低了约 10,000 倍，因此可以观察到信号；这对应于 10,970 次平均（浅蓝色）。采用较短的时间窗也能有效降低噪声底，但代价是光谱分辨率变差。噪声底降低了约

5000 倍，这与时间窗长度之比相对应。不进行累积时，可在噪声底之上观察到最高达 1 太赫兹的太赫兹信号（鲜绿色）。累积进一步降低了噪声底，使得检测频率可达 2 太赫兹（鲜蓝色）。图 3(b) 中的鲜绿色和鲜蓝色光谱在 1 太赫兹以下的频率范围内吻合良好。这些结果证实，在太赫兹频率范围内成功实现了具有大带宽的抖动校正累积。

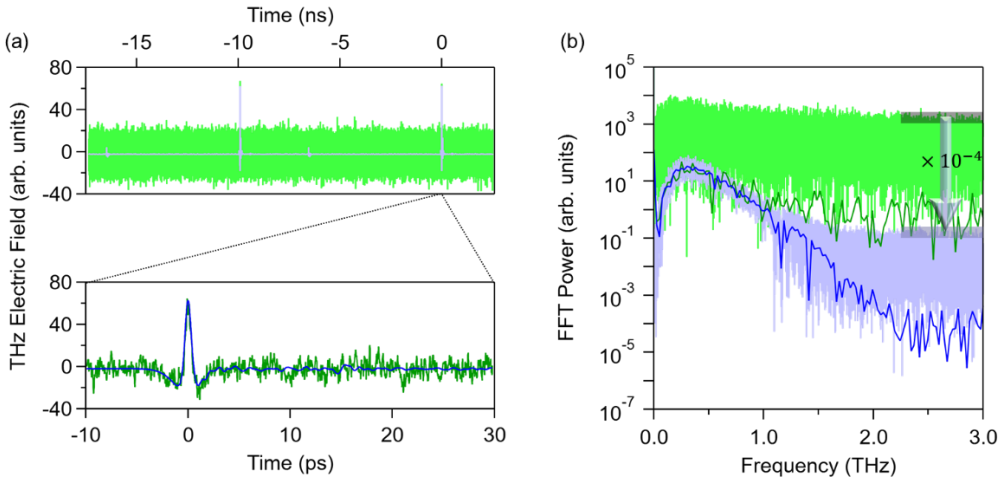

图 4. 经抖动校正的异步光学采样信号。(a)(b) 分别为单次扫描（绿色）和 10,970 次扫描（蓝色）的时域波形和功率谱。浅色（鲜艳色）分别对应时间窗为 40 ps（20 ns）的数据。

3.2 水蒸气测量

为展示精细的频率分辨率，我们对水蒸气进行测量。为定量评估光学密度，使用图 5(a) 所示装置将气体池抽真空，然后充入饱和水蒸气。在这种情况下，水的吸收线比大气压下的吸收线更尖锐 [27]。测量在 24.8 °C 下进行，此时饱和水蒸气压估计为 3131 Pa。整个太赫兹光路均用干燥氮气吹扫。气体池长度为 168.2 mm，两端各封有一片厚度为 3.2 mm 的聚四氟乙烯（PTFE）窗片。

在此次测量中，根据记录的校准信号确定 Δf_{r}，其因漂移而在 19.5 至 24.7 Hz 之间变化。f_{r1} 也由频率计以 1 s 的门控时间记录。随后，根据这些 Δf_{r} 和 f_{r1} 得到 f_{r2}。记录的 f_{r1} 和得到的 f_{r2} 数值如图 5(b) 所示。为了提高准确度

校正时间轴，采用变化的 f_{r2}的平均值 100,782,386 Hz，将脉冲间隔校准为 $1/f_{r2}$。由于此次测量中 f_{r2} 的变化为 8.5 Hz，因此在 1 THz 处测得的太赫兹频率梳频率变化约为 $8.5\ \text{Hz} \times (1\ \text{THz}/f_{r2}) = 84\ \text{kHz}$，远小于频率分辨率 f_{r2}。

测得的功率谱如图5(c)左图中的黑色曲线所示。水蒸气吸收造成的窄凹陷显示在右图中。根据HITRAN数据库计算得到的吸收线[28] 也以蓝色曲线形式显示在图5(c)中，并作了偏移。在计算中，通过考虑压力、温度和传播长度，对线宽和吸收强度进行了定量评估。计算得到的吸收线宽度分别为0.90、0.85和0.91吉赫兹。测得的光谱与数据库在吸收强度和线宽方面均吻合良好。这些结果证实了抖动校正的异步光学采样具有高频率分辨率。

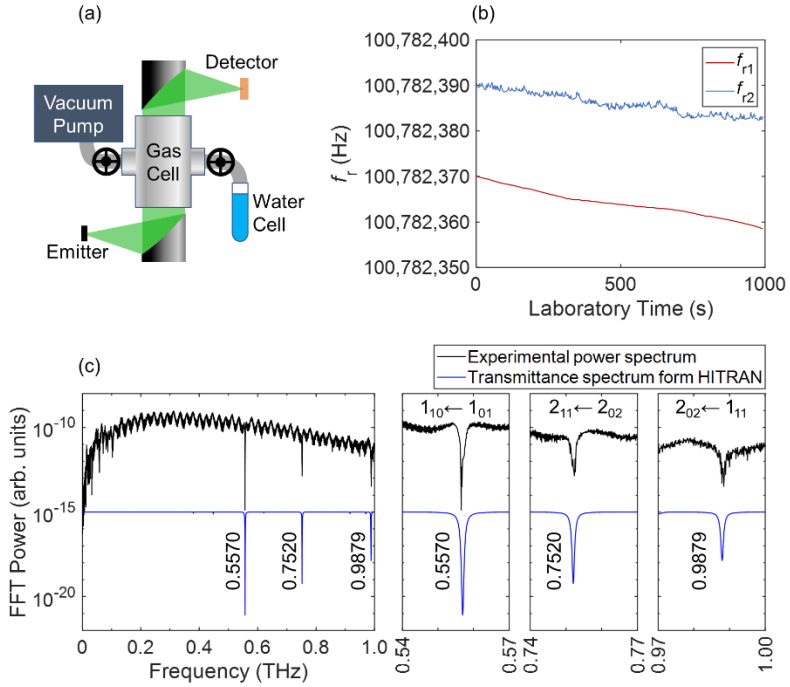

图 5. (a) 带水蒸气池的装置示意图。(b) 测量水蒸气期间重复频率的变化。(c) 太赫兹脉冲的光谱及水蒸气的吸收线。分配的跃迁标注在放大的图中[29,30]。

3.3 讨论

本节讨论该方法的有效性及其与传统异步光学采样的区别。我们的方法假设异步光学采样中的抖动主要由 Δf_{r}的波动引起。在此背景下，我们的方法与以锁定 Δf_{r} 或其谐波[2,11]来实现频率稳定的先前研究思路相似。然而，由于反馈机制的容差限制，当波动较大时，有时很难实现对 Δf_{r} 的锁定。因此，据我们所知，先前通过锁定 Δf_{r}实现稳频的异步光学采样系统，还会锁定 f_{r} 以及 Δf_{r}。

在这些锁定方案中，通过对射频参考信号与 $n\Delta f_{\mathrm{r}}$ 的混频信号进行低通滤波器处理，为反馈回路生成误差信号。稳频的带宽受射频信号生成的稳定性和低通滤波器截止频率的限制。相比之下，我们的方法直接监测 Δf_{r} 的谐波，而不是生成误差信号。此外，尽管使用了射频信号发生器，在获取 f_{LF} 和 $f_{\mathrm{LF}} - 14\Delta f_{\mathrm{r}}$ 的拍频时，射频振荡 f_{LO} 的波动会被动抵消。因此，我们的方法不受射频参考信号或低通滤波器稳定性的限制。使用接近 $14f_{\mathrm{r}}$ 的该射频本地振荡器可以清晰地检测 $14\Delta f_{\mathrm{r}}$，从原理上抑制快速抖动，带宽最高可达 $14\Delta f_{\mathrm{r}}/2$。由于无需稳频的抖动校正对 Δf_{r} 的波动具有更高的容忍度，我们的方法可以应用于相互独立的自由运行振荡器。

大多数异步光学采样太赫兹时域光谱技术使用干涉图、和频产生或脉冲激光器的双光子吸收作为信号累积的触发器 [3,11,12,18,31]。然而，使用此类触发器只能校正每隔 $1/\Delta f_{\mathrm{r}}$ 的触发时刻附近的抖动。此外，它们还忽略了重缩放因子 $\Delta f_{\mathrm{r}}/f_{\mathrm{r2}}$ 随实验室时间的变化，导致数据距触发时刻越远，抖动越大。正如先前在双梳光谱方案中的研究 [33–36] 所示，利用干涉图的时间间隔和相位，可以通过软件算法校正触发器之间整个时间窗内的抖动。然而，在这些方法中，抖动的跟踪速度受限于干涉图的重复频率 Δf_{r} [37]。要校正更快的抖动，必须提高跟踪速度。正如双梳光谱研究所报告的 [38,39]，记录 $n\Delta f_{\mathrm{r}}$ 信号可以提高速度。

我们在异步光学采样中采用的后处理算法可将跟踪速度提高至

至 $14\Delta f_r$，从而克服了 Δf_r 干涉图抖动校正方法的局限性。这是因为我们分别检测梳齿间隔为 f_r 的各个激光器，而干涉图检测中，梳齿间隔 Δf_r 限制了抖动跟踪速率。我们将这一限制对应的频率提高到 f_r，远高于 Δf_r。此外，异步光学采样太赫兹时域光谱无需载波包络偏移频率信息。直接用光电探测器检测各个激光器，也有助于消除载波包络偏移频率的影响，这是因为光电探测器的响应速度较慢。因此，我们的系统简化了异步光学采样太赫兹时域光谱中的抖动观测。

另一种在不进行频率稳定的情况下为异步光学采样获得足够带宽的方法是自适应采样。已知该方法通过使用 n 次谐波作为采样时钟来抑制抖动，其中 $n\sim f_{CW}/f_r$。要将这种方法应用于异步光学采样太赫兹时域光谱，首先获取光电导（PC）太赫兹梳的 n 阶模式与太赫兹连续波激光器之间的拍频信号，然后利用每台脉冲激光器对应的拍频信号生成高频自适应时钟。该方法的抖动跟踪速率远高于我们的方法，能够实时校正抖动；但它需要频率为 f_{CW} 的太赫兹连续波激光器，以及额外的光电导天线来产生高频谐波。此外，对应于高偏移频率相位噪声的快速抖动通常不会显著影响抖动量。我们的方法的优势在于，只需使用易于生成的最低必要高频参考信号，便能充分校正抖动。我们的系统由彼此独立、自由运行的激光器组成，而与其他任何低抖动配置相比，提供一个不带连续波激光器的单一射频信号发生器要容易得多。

为进一步抑制抖动，$n\Delta f_r$ 用于校准抖动的频率应更高。可以通过改变校准信号的编号 $n=14$，调整 f_{LO} 和滤波器频率，或增大 Δf_r来实现。在当前系统中，放大引起的不需要的谐波及其不同的相位延迟，妨碍了对非零电压下的相位进行准确检测。未来，失真更小的放大过程将抑制校准信号的非谐性。失真更小的信号可使我们利用校准信号的整个相位，从而校正快得多的抖动。

为提高信噪比，采用更高 f_r 的激光器是缩短

过长时间窗的更好方案；距离太赫兹脉冲突发越远，噪声越大。尽管缩短时间窗会降低频率分辨率，但其分辨率对于大多数实际应用来说已足够精细。缩短时间窗可加快扫描速率，从而便于频繁累积。更高的 f_r 也有助于降低异步光学采样信号的测量速度，进而确保测量带宽。

我们的方法在应用上的一个预期优势是，可以从多种脉冲光源中自由选择。我们的方法无需通过压电元件控制激光谐振腔，因此可以自由选择具有不同中心频率、脉冲宽度和重复频率的激光器，甚至可以使用市售的自由运行钛蓝宝石激光器进行 ASOPS 实验。由于该方法预计也能抵御环境变化，因此有望利用我们的方法进行长期测量，甚至在户外测量。利用系统体积小、ASOPS 速度快的特点，还可能实现频率分辨率高且便于携带的太赫兹时域光谱系统。我们监测 $n\Delta f_r$ 的构想也可应用于其他新技术。例如，我们的方法可用于增强光谱交错ASOPS；该技术通过扫描 f_r [40]来提高频率分辨率。该方法的分辨率取决于扫描 f_r的步长。应用我们的方法后，通过抑制抖动， f_r 便可连续扫描。我们的方法还有望解决电子控制光学采样中的定时抖动问题，该技术通过调制两台脉冲激光器之一的 f_r [41]。

4. 结论

我们展示了一种新的抖动校正方法，通过重复频率差的第十四次谐波，在软件中校正异步光学采样信号。即使使用自由运行振荡器，校正后的残余抖动也被抑制到小于 0.1 ps。如此充分的抖动抑制使我们能够在保持测量带宽和分辨率的同时累积异步光学采样信号。利用干涉图评估残余抖动，以及在校正抖动后成功进行信号平均，证明了该方法有望实现宽带太赫兹时域光谱。通过测量低压

气体池中窄于 1 GHz 的尖锐吸收峰，证实了异步光学采样的频率分辨率。我们的方法从尺寸、成本、稳健性和光源选择等方面提高了异步光学采样系统的灵活性。特别是，与传统方案不同，这项测量只需一台射频信号发生器。此外，参考频率无需连续波激光光源。重要的是，该方法可用于温度骤变的独立脉冲激光器。这些优点使异步光学采样更有潜力根据测量目标选择最合适的频率和脉冲特性，并构建便携且稳健的测量系统。 我们的方法可应用于许多领域，例如医学、结构检测，以及用于太赫兹以外频率的各种泵浦-探测异步光学采样。

资助： 日本学术振兴会科学研究费助成事业（JP22K18269）和日本科学技术振兴机构PREST项目（JPMJPR20LA和JPMJPR2006）。

利益披露： 作者声明不存在利益冲突。

数据可用性： 如有合理请求，本研究数据可向通讯作者获取。

参考文献：

1. T. Yasui、E. Saneyoshi 和 T. Araki, 《用于实现超高光谱分辨率和快速数据采集的异步光学采样太赫兹时域光谱》，Appl. Phys. Lett. **87**，061101 (2005)。https://doi.org/10.1063/1.2008379。 2. G. Klatt、R. Gebs、H. Schäfer、M. Nagel、C. Janke、A. Bartels 和 T. Dekorsy, 《高分辨率太赫兹光谱仪》，《IEEE量子电子学精选主题期刊》**17**(1)，159–168 (2011)。https://doi.org/10.1109/jstqe.2010.2047635。 3. T. Yasui、K. Kawamoto、YD. Hsieh、Y. Sakaguchi、M. Jewariya、H. Inaba、K. Minoshima、F. Hindle 和 T. Araki, 《面向低压气相分析的异步光学采样太赫兹时域光谱：提高光谱分辨率与准确度》，Opt. Express **20**(14)，15071–15078 (2012)。https://doi.org/10.1364/oe.20.015071。 4. Y.-D. Hsieh、S. Nakamura、D. G. Abdelsalam、T. Minamikawa、Y. Mizutani、H. Yamamoto、T. Iwata、F. Hindle 和 T. Yasui, 《利用基于光纤的异步光学采样太赫兹时域光谱，在大气压下对混有非目标气溶胶的气体分子进行动态太赫兹光谱分析》，Sci. Rep. **6**，28114 (2016)。https://doi.org/10.1038/srep28114。

5. V. Galstyan、A. D’Arco、M. D. Fabrizio、N. Poli、S. Lupi 和 E. Comini，《挥发性有机化合物的检测：从化学气体传感器到太赫兹光谱》，Rev. Anal. Chem. 40(1)，33–57 (2021)。https://doi.org/10.1515/revac-2021-0127。 6. T. Sasaki、T. Sakamoto 和 M. Otsuka，《太赫兹光谱中对中等分子量药物晶体质量评估有价值的尖锐吸收峰》，J. Infrared Millim. Terahertz Waves 39，828–839 (2018)。https://doi.org/10.1007/s10762-018-0494-2。 7. B. M. Fischer、M. Walther 和 P. U. Jepsen，《利用太赫兹时域光谱研究DNA组分的远红外振动模式》，Phys. Med. Biol. 47，3807 (2002)。https://doi.org/10.1088/0031-9155/47/21/319。 8. T. Globus、D. Woolard、T. W. Crowe、T. Khromova、B. Gelmont 和 J. Hesler，《液相生物材料的太赫兹傅里叶变换表征》，J. Phys. D: Appl. Phys. 39，3405 (2006)。https://doi.org/10.1088/0022- 3727/39/15/028。 9. W. Zhang、E. R. Brown、M. Rahman 和 M. L. Norton，《微升DNA溶液中太赫兹吸收特征的观测》，Appl. Phys. Lett. 102，023701 (2013)。https://doi.org/10.1063/1.4775696。 10. X. Yang、X. Zhao、K. Yang、Y. Liu、Y. Liu、W. Fu 和 Y. Luo，《太赫兹光谱与成像的生物医学应用》，Trends Biotechnol. 34(10)，810–824 (2016)。https://doi.org/10.1016/j.tibtech.2016.04.008。 11. G. Klatt、R. Gebs、C. Janke、T. Dekorsy 和 A. Bartels，《光谱覆盖范围超过 6 太赫兹的快速扫描太赫兹精密光谱仪》，Opt. Express 17，22847–22854 (2009)。https://doi.org/10.1364/oe.17.022847。 12. J. T. Good、D. B. Holland、I. A. Finneran、P. B. Carroll、M. J. Kelley 和 G. A. Blake，《跨越十个数量级的高分辨率异步光学采样太赫兹时域与频率梳光谱仪》，Rev. Sci. Instrum. 86，103107 2015 101063 14932567 ( )。https://doi.org/ . / . . 13. M. Oeri、O. Peters、M. Wolferstetter 和 R. Holzwarth，《适用于脉冲飞秒激光器的紧凑型高速采样引擎》，Proc. SPIE 11348，1134808 (2020)。https://doi.org/10.1117/12.2558423。 14. M. Nakagawa、M. Okano 和 S. Watanabe，《无机械运动部件的偏振敏感太赫兹时域光谱系统》，Opt. Express 30(16)，29421–29434 (2022)。https://doi.org/10.1364/oe.460259。 15. M. Okano 和 S. Watanabe，《基于双频率梳系统的异步光学采样太赫兹时域光谱无触发数据采集》，Opt. Express 30(22)，39613–39623 (2022)。https://doi.org/10.1364/oe.472192。 16. N. Surkamp、B. Döpke、C. Brenner、K. Orend、C. Baer、T. Musch、T. Prziwarka、A. Klehr、A. Knigge、M. R. Hofmann，《用于太赫兹异步光学采样的锁模二极管激光器》，Proc. SPIE 10917，109171C (2019)。https://doi.org/10.1117/12.2508396。 17. X. Zhao、G. Hu、B. Zhao、C. Li、Y. Pan、Y. Liu、T. Yasui 和 Z. Zheng,

“采用自由运行光纤激光器的皮米分辨率双梳光谱”，Opt. Express 24, 21833–21845 (2016). https://doi.org/10.1364/oe.24.021833. 18. G. Hu, T. Mizuguchi, R. Oe, K. Nitta, X. Zhao, T. Minamikawa, T. Li, Z. Zheng, and T. Yasui. “采用单台自由运行光纤激光器的双梳太赫兹光谱”，Sci. Rep. 8, 11155 (2018). https://doi.org/10.1038/s41598-018-29403-9. 19. A. E. Akosman and M. Y. Sander, “采用正交偏振交错脉冲的锁模光纤激光器产生双梳”，Opt. Express 25, 18592 18602 2017 101364 25018592 – ( ). https://doi.org/ . /oe. . . 20. B. Willenberg, J. Pupeikis, L. M. Krüger, F. Koch, C. R. Phillips, and U. Keller, “用于光学采样应用的单个自由运行偏振复用腔产生的飞秒双梳 Yb:CaF_2 激光器”，Opt. Express 28, 30275– 30288 (2020). https://doi.org/10.1364/oe.403072. 21. S. Mehravar, R. A. Norwood, N. Peyghambarian, and K. Kieu, “采用自由运行双向锁模光纤激光器的实时双梳光谱”，Appl. Phys. Lett. 108, 231104 (2016). https://doi.org/10.1063/1.4953400. 22. T. Ideguchi, T. Nakamura, Y. Kobayashi, and K. Goda, “用于宽带双梳光谱的克尔透镜锁模双向双梳环形激光器”，Optica 3, 748–753 (2016). https://doi.org/10.1364/optica.3.000748. 23. R. D. Baker, N. T. Yardimci, Y.-H. Ou, K. Kieu, and M. Jarrahi, “采用双向锁模光纤激光器的自触发异步光学采样太赫兹光谱”，Sci. Rep. 8, 14802 (2018). https://doi.org/10.1038/s41598- 018-33152-0. 24. G. Villares, J. Wolf, D. Kazakov, M. J. Süess, A. Hugi, M. Beck, and J. Faist, “基于量子级联激光器频率梳的片上双梳”，Appl. Phys. Lett. 107(25), 251104 (2015). https://doi.org/10.1063/1.4938213. 25. Y. Nakajima, Y. Kusumi, and K. Minoshima, “基于全保偏腔结构的机械共用双梳光纤激光器”，Opt. Lett. 46, 5401–5404 (2021). https://doi.org/10.1364/ol.440818. 26. T. Yasui, R. I chikawa, Y.-D. Hsieh, K. Hayashi, H. Cahyadi, F. Hindle, Y. Sakaguchi, T. Iwata, Y. Mizutani, H. Yamamoto, K. Minoshima and H. Inaba, “采用两台自由运行飞秒激光器的自适应采样双梳太赫兹光谱”，Sci. Rep. 5, 10786 (2015). https://doi.org/10.1038/srep10786. 27. P. F. Bernath, “压力展宽”，载于《原子和分子光谱》（牛津大学出版社，2005），第 28-29 页。28. I. E. Gordon, L. S. Rothman, R. J. Hargreaves, R. Hashemi, E. V. Karlovets, F. M. Skinner, E. K. Conway, C. Hill, R. V. Kochanov, Y. Tan, P. Wcisło, A. A. Finenko, K. Nelson, P. F. Berna, M. Birk, V. Boudon, A. Campargue, K. V. Chance, A. Coustenis, B. J. Drouin, J.-M. Flaud, R. R. Gamache, J. T. Hodges, D. Jacquemart, E. J. Mlawer, A. V. Nikitin, V. I. Perevalov, M. Rotger, J. Tennyson, G. C. Toon, H. Tran, V. G. Tyuterev, E. M. Adkins, A. Baker, A. Barbe, E. Canè, A. G. Császár, A. Dudaryonok, O. Egorov, A. J. Fleisher, H. Fleurbaey, A. Foltynowicz, T. Furtenbacher, J. J. Harrison, J.-M. Hartmann, V.-M. Horneman,

X. Huang, T. Karman, J. Karns, S. Kassi, I. Kleiner, V. Kofman, F. Kwabia-Tchana, N. N. Lavrentieva, T. J. Lee, D. A. Long, A. A. Lukashevskaya, O. M. Lyulin, V. Yu. Makhnev, W. Matt, S. T. Massie, M. Melosso, S. N. Mikhailenko, D. Mondelain, H. S. P. Müller, O. V. Naumenko, A. Perrin, O. L. Polyansky, E. Raddaoui, P. L. Raston, Z. D. Reed, M. Rey, C. Richard, R. Tóbiás, I. Sadiek, D. W. Schwenke, E. Starikova, K. Sung, F. Tamassia, S. A. Tashkun, J. Vander Auwera, I. A. Vasilenko, A. A. Vigasin, G. L. Villanueva, B. Vispoel, G. Wagner, A. Yachmenev, and S. N. Yurchenko, “HITRAN2020 分子光谱数据库”, 《定量光谱学与辐射传递》277, 107949 (2022). https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2021.107949. 29. T. Seta, H. Hoshina, Y. Kasai, I. Hosako, C. Otani, S. Loßow, J. Urban, M. Ekström, P. Eriksson, and D. Murtagh, “556.936 和 752.033吉赫兹处水蒸气谱线的压力展宽系数”, 《定量光谱学与辐射传递》109(1), 144–150 (2008). https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2007.06.004. 30. H. Hoshina, T. Seta, T. Iwamoto, I. Hosako, C. Otani, and Y. Kasai, “使用太赫兹时域光谱仪精确测量水蒸气压力展宽参数”, 《定量光谱学与辐射传递》109(12–13), 2303-2314 (2008). https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2008.03.005. 31. H. Zhang, B. Su, X. Yang, Y. Wu, J. He, C. Zhang, and D. R. Jones, “由脉冲相干重合导出的异步光学采样数据采集触发信号”, Rev. Sci. Instrum. 89, 113108 (2018). https://doi.org/10.1063/1.5051072. 32. I. Coddington, W. C. Swann, and N. R. Newbury, “采用稳频光学频率梳的相干多外差光谱学”, Phys. Rev. Lett. 100, 013902 2008 101103 101049901 ( ). https://doi.org/ . / physrevlett. . . 33. D. Burghoff, Y. Yang, and Q. Hu, “计算多外差光谱学”, Sci. Adv. 2(11), e1601227 (2016). https://doi.org/10.1126/sciadv.1601227. 34. N. B. Hébert, J. Genest, J.-D. Deschênes, H. Bergeron, G. Y. Chen, C. Khurmi, and D. G. Lancaster, “自校正芯片式双梳光谱仪”, Opt. Express 25, 8168–8179 (2017). https://doi.org/10.1364/oe.25.008168. 35. H. Yu, K. Ni, Q. Zhou, X. Li, X. Wang, and G. Wu, “无外部光学参考信息的双梳干涉仪数字误差校正”, Opt. Express 27, 29425–29438 (2019). https://doi.org/10.1364/oe.27.029425. 36. H. Yu, Y. Li, Q. Ma, Q. Zhou, X. Li, W. Ren, and K. Ni, “基于环境共用光纤激光器和数字误差校正的相干平均双梳光谱仪”, Opt. Laser Technol. 156, 108498 (2022). https://doi.org/10.1016/j.optlastec.2022.108498. 37. N. B. Hébert, V. Michaud-Belleau, J. -D. Deschênes and J. Genest, “双梳干涉测量中的自校正极限”, IEEE J. Quantum Electron. 55(4), 8700311, 1–11 (2019). https://doi.org/10.1109/jqe.2019.2918935. 38. O. Kara, Z. Zhang, T. Gardiner, and D. T. Reid, “采用自由运行振荡器和来自射频参考的绝对光学校准的双梳中红外光谱学”, Opt. Express 25, 16072-16082 (2017). https://doi.org/10.1364/oe.25.016072。

39. Z. Zhu, K. Ni, Q. Zhou, and G. Wu, 《用于实现相位稳定双梳干涉仪的数字校正方法》, Opt. Express **26**, 16813-16823 (2018). https://doi.org/10.1364/oe.26.016813.40. Y.-D. Hsieh, Y. Iyonaga, Y. Sakaguchi, S. Yokoyama, H. Inaba, K. Minoshima, F. Hindle, T. Araki, and T. Yasui, 《采用扫频双太赫兹频率梳的光谱交错、梳齿分辨光谱学》, Sci. Rep. **4**, 3816 (2014). https://doi.org/10.1038/srep03816.41. Y. Kim and D.-S. Yee, 《基于电子控制光学采样的高速太赫兹时域光谱》, Opt. Lett. **35**, 3715–3717 (2010). https://doi.org/10.1364/ol.35.003715.