面向多维感知的计量级中红外光谱学

Baoqi Shi,[1,2,*] *Chenxi Zhang,*[1,3,*] *Ming-Yang Zheng,*[4,5,*] *Yue Hu,*[1,6] *Zeying Zhong,*[1,6] *Zhenyuan Shang,*[1,6] *Wenbo Ma,*[4] *Xiu-Ping Xie,*[4,5] *Xue Bai,*[1,7] *Yi-Han Luo,*[1] *Anting Wang,*[2] *Hairun Guo,*[8] *Qiang Zhang,*[4,5,9,10] 和 *Junqiu Liu*[1,5,†]

[1] 国际量子科学院和深圳福田南方科技大学量子技术与工程研究院，深圳 *518048*，中国 [2] 中国科学技术大学光学与光学工程系，合肥 *230026*，中国[3]深圳大学物理与光电工程学院，深圳 *518060*，中国[4]济南量子技术研究院和中国科学院量子信息与量子物理卓越创新中心、中国科学技术大学，济南 *250101*，中国[5]合肥国家实验室、中国科学技术大学，合肥 *230088*，中国[6]南方科技大学，深圳 *518055*，中国[7]*Qaleido Photonics*，深圳 *518048*，中国[8]特种光纤与光接入网重点实验室、上海大学，上海 *200444*，中国[9]合肥微尺度物质科学国家研究中心和物理科学学院、中国科学技术大学，合肥 *230026*，中国[10]中国科学院量子信息与量子物理卓越创新中心、中国科学技术大学，合肥 *230026*，中国

arXiv:2602.00958v1 [physics.optics] 1 Feb 2026

中红外光谱窗口对于分子指纹识别和大气传感至关重要，但要充分发挥其潜力，目前仍受制于一项根本性的仪器权衡：现有系统无法同时实现宽带宽、高光子通量和计量学频率保真度。在此，我们通过展示一种基于差频产生的计量级光谱系统，解决了这一瓶颈。该系统由可广泛调谐、可溯源至原子标准的近红外二极管激光器驱动。我们的系统可在 3–3.7 微米大气窗口内连续调谐，输出功率超过 45 毫瓦，绝对频率准确度达 7.2 兆赫兹。我们利用这一优势，突破集成光子学领域的一项关键障碍：明确识别并消除氮化硅微谐振器中由氢引起的吸收，使光学损耗降低 88 倍。我们进一步揭示，二氧化硅包层中的多声子吸收是中红外集成光子学的根本限制因素。最后，我们展示了该系统的多功能性：其散射韧性激光雷达能够穿透光学浓雾，双模态传感则可同时获取目标距离和化学成分。通过将频率计量的严谨性与宽带传感的多功能性相结合，这一架构为复杂环境中的多维感知确立了新范式。

中红外（MIR）光谱区域涵盖分子的基频振转跃迁，其吸收截面比近红外（NIR）泛频大几个数量级[1]。这种独特的灵敏度为诸多变革性应用奠定了基础，从行星尺度的温室气体监测到无创医学诊断[2–4]。在要求严苛的场景中——例如太空中的生命保障监测，或动态工业环境中的传感——系统必须快速、明确地分辨复杂的化学混合物[5]。因此，高性能光谱技术需要集多种能力于一身，而这些能力很少能在单台仪器中兼具：实现多物种覆盖的宽带宽、区分重叠谱线的高分辨率、精确的频率测定、高光谱亮度、高信噪比（SNR）以及实时处理速度。

尽管需求迫切，现有技术仍受制于根本性的权衡，如图1a 所示。傅里叶变换红外光谱（傅里叶变换红外光谱）[6] 具有宽带宽优势，但受限于亮度低和频率保真度（即精密度和准确度）有限。相较之下，中红外双频梳光谱学[7–10] 虽能实现高精度、时间分辨测量，却将光功率分散在数万条梳齿上。这导致光功率谱密度（PSD）较低，严重限制了长光程遥感中每种模式可用的光子通量[11]。与之相反，连续波（CW）可调谐激光器——例如量子级联激光器[12]，带间级联激光器[13]，或光学参量振荡器[14–16]——可最大限度地提高光子通量和相互作用长度，而这对几乎所有超灵敏光学探测都至关重要。然而，这些光源历来受限于无跳模调谐范围有限，无法实现复杂分子指纹识别所需的连续宽带表征。

理想的光谱平台将通过把连续波激光器的相干性和高光子通量与频率梳的带宽以及计量标准的绝对准确度相结合，弥合这一间隙。这样的综合远不止是一项渐进式改进；它是开启中红外科学新前沿的先决条件，如图1d所示。例如，在半导-

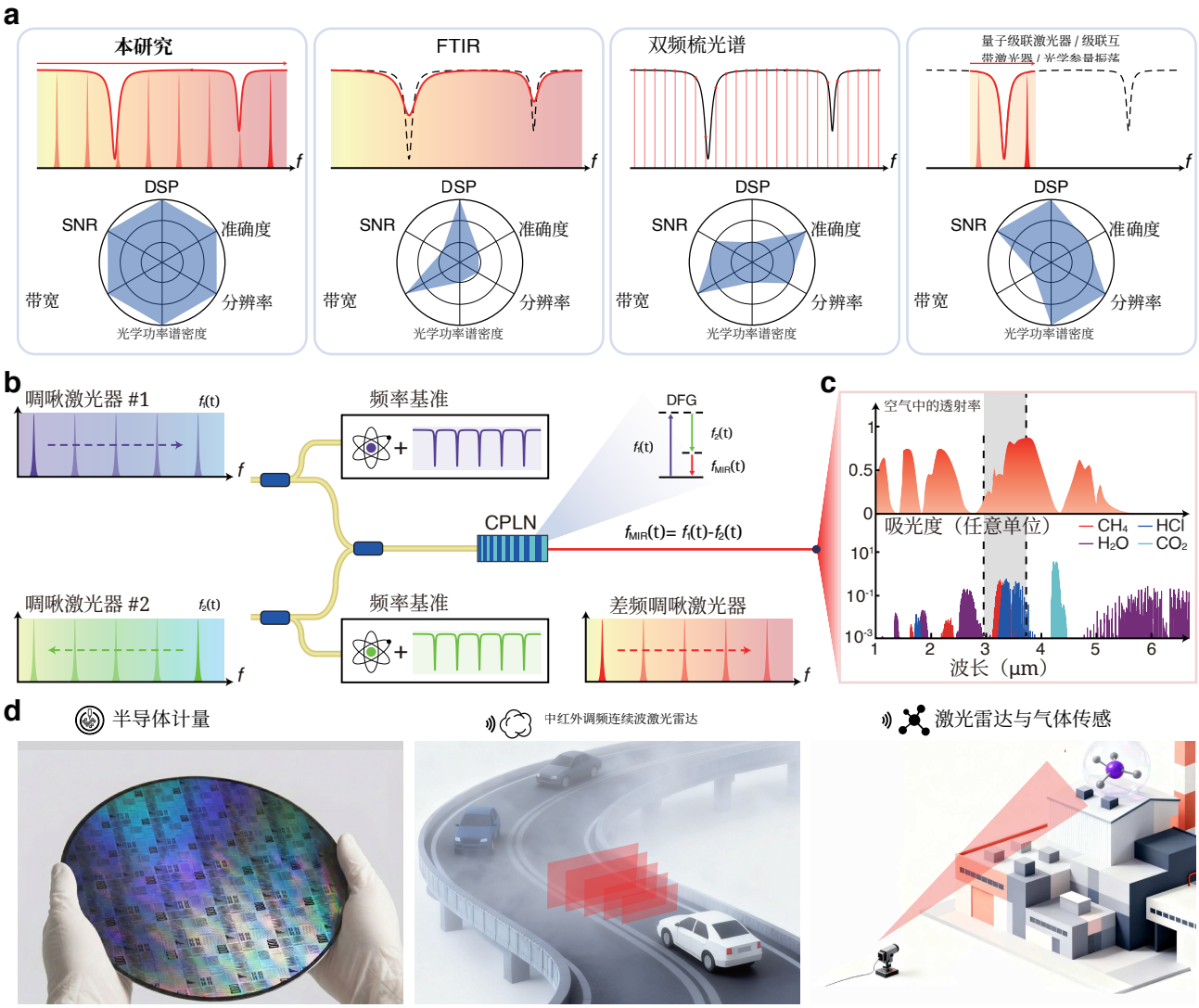


图1. **打破性能权衡的计量级中红外光谱系统**. **a.** 与成熟技术的性能基准比较：傅里叶变换红外（FTIR）光谱、双频梳光谱和标准可调谐连续波激光光谱（包括 QCL、ICL 和 OPO）。雷达图展示了我们的方法如何消除根本性的仪器性能权衡：通过简化的数字信号处理（DSP），独特地结合高光功率谱密度（PSD）、高信噪比（SNR）、连续宽带宽以及计量级频率准确度和精密度。**b.** 架构示意图。通过在啁啾周期极化铌酸锂（CPLN）波导中对两台近红外啁啾激光器进行差频产生（DFG），合成一台宽范围可调谐的中红外连续波激光器。近红外泵浦激光器的瞬时频率经过光纤腔严格校准，并以原子超精细跃迁为参考。 **c.** 大气透射[17] （上）和分子吸收谱[18,19] （下）。系统针对 3–3.7μm 波段，利用高透射率的大气窗口，最大限度地减少 H_2O 和 CO_2 干涉，同时探测 CH_4 和 HCl 的强吸收指纹。 **d.** 我们的中红外平台推动的新兴应用：无损半导体计量、抗散射调频连续波激光雷达，以及同步测距与气体传感。

体制造中，尽管中红外光源被用于监测化学物质，但具有绝对频率准确度和精细频率分辨率的光谱仪对于将制造引起的误差与材料本征缺陷区分开来至关重要。同样，对于自动驾驶而言，标准近红外激光雷达会因米氏散射而在浓雾中失效[20]，，而能够穿透复杂环境的中红外激光雷达可显著提升安全标准

标准。最终，将光谱分辨率与时空相干性相结合，开启了一种新范式：将空间几何与化学成分融合为统一的多维地图。

在此，我们展示了一套计量学级中红外光谱系统，该系统同时融合宽带宽、高亮度、高信噪比以及实时处理潜力。如图1b所示，我们的方法

利用由两台宽调谐、无跳模的近红外外腔二极管激光器（ECDLs）驱动的差频产生（DFG）。为确保频率准确度，两台泵浦激光器（分别覆盖1035–1086纳米和1536–1580纳米）均相对光纤腔进行严格校准，并参考原子超精细跃迁[21], ，从而获得7.2兆赫兹的频率准确度（见方法）。通过在啁啾周期极化铌酸锂（CPLN）波导中放大并混频这些泵浦光，我们产生高达45.0 mW的中红外辐射。详情见方法、扩展数据图1和2以及补充材料注释1和2。该配置可实现7.49太赫兹的单个无跳模调谐范围，以及19.1太赫兹（3001–3711纳米）的总覆盖范围。此外，我们通过表征中红外激光器的动态线宽来确定基本频率分辨率，在100μ秒积分时间内测得平均值为242千赫兹（见补充材料注释3）。

我们有针对性地选择 3–3.7μm 大气窗口[17]——这一区域具有极高的透射率，可最大限度地减少普遍存在的 H_2O 和 CO_2 的干扰，同时最大限度地提高对烃类（例如 CH_4）和工业污染物（例如氯化氢）的灵敏度[19], ，如图 1c 所示。借助这一平台，我们展示了三种不同的应用：（1）一种用于集成光子学的计量探针，我们利用它分离并减轻氮化硅微谐振器中的材料诱导光学损耗；（2）一种能够穿透致密散射介质的调频连续波（FMCW）激光雷达；（3）一种双模态传感器，可从单一波形中同时获取目标距离和痕量气体指纹。

中红外集成光子学。集成光子学[22–27] 在近红外电信通信波段已迅速成熟，但中红外光谱窗口仍是一个前沿领域，在化学传感[28] 和自由空间通信[29]方面蕴藏着巨大的未开发潜力。近期进展带来了关键的中红外组件，包括窄线宽布里渊激光器[30], 环形激光器[31], 微梳[32–36]和可调滤波器[37]。在各种材料平台中，氮化硅（Si_3N_4）凭借超低损耗和高功率承受能力，是推动这一生态系统拓展至中红外的理想候选材料[38]。然而，Si_3N_4 器件在 3.5 μm 以上的可扩展性，仍因二氧化硅（SiO_2）包层中多声子吸收的出现而未能明晰[39–41]。尽管这种材料吸收在块体材料中已有充分记录，但其对波导损耗的具体贡献——该损耗取决于模式限制随光谱的变化——尚未得到严格量化。因此，由于缺乏能够区分可控工艺缺陷与材料吸收极限的计量方法，相关进展一直停滞不前。

释放中红外集成光子学的潜力，需要能够同时提供高频率准确度、高分辨率和宽光谱覆盖范围的表征工具。这些能力对于量化高品质因数（高-Q）共振[42], 、验证色散工程[43], 以及使共振与分子跃迁对齐[44]不可或缺。借助我们的系统，我们报告了对高-Q Si_3N_4 微谐振器进行的计量级宽带表征，并将其工作范围扩展至尚未探索的 3–3.7 μm波段。

图2a 红色曲线展示了基于低压化学气相沉积（LPCVD）沉积后的硅$_3N_4$ 薄膜微环谐振器的透射光谱。如图2b 所示，通过洛伦兹拟合（见方法）提取每个共振的本征损耗 $\kappa_0/2\pi$ 。将所有在 3–3.7 μm 范围内探测到的共振的 $\kappa_0/2\pi$ 转换为线性传播损耗 α 后，我们发现了明显的频率相关损耗特征，如图2c 中的红点所示。我们注意到，95 THz 附近观察到的局部不连续性源于临界耦合交叉点处参数不可区分，详见补充说明4。尤为重要的是， α 在接近 100 THz（≈ 3.0 μm）时显著增加，峰值达到 $\alpha = 2646$ dB m^{-1}。我们将这一特征认定为沉积后的硅$_3N_4$ 薄膜中残余 N-H 键的吸收指纹；该薄膜的前驱体涉及氨（NH_3）。

根据这一光谱指纹，我们通过增加高温退火处理（温度高于 1200°C），优化该 Si_3N_4 器件的制造工艺，以消除残余氢[47,48]。详情见补充材料注释 5。图2a–c 中的蓝色曲线证明了这一缓解措施的有效性，并显示退火器件的损耗大幅降低。对于图 $\omega/2\pi = 95.448$ 2b 中频率为 $\kappa_0/2\pi$ THz 的模式， $Q_0 = \omega/\kappa_0$ 从 1.6 GHz 降至 0.35 GHz，对应 2.7×10^5的提升。具体而言，100 THz 下的 α 值从 2646 dB m^{-1} 骤降至仅 30 dB m^{-1}，损耗降低了 88 倍，证实氮氢吸收得到了抑制。

消除氮氢杂质后，显现出一种独特的损耗特征：频率越低，衰减越大。有限元模拟排除了几何泄漏（弯曲和衬底耦合）是造成这种衰减的主要因素（见方法）。在 81 THz（≈3.7 μm）下，计算得到的辐射损耗仅为 $\sim$11.4 dB m^{-1}，比测量值 $\sim$420 dBm^{-1}低一个数量级以上。我们认为，这种额外损耗源于模式离域进入具有吸收性的 SiO_2 包层[49]。对波导几何结构进行坡印廷矢量分析发现，在 81 THz 下，31% 的光功率在包层中传播，如扩展数据图3所示。鉴于该光谱窗口内 SiO_2 多声子吸收开始显著增强[39,40,49], ，如此显著的模式重叠足以解释观测到的损耗下限。因此，增大波导宽度可增强光学限制，为缓解这一限制提供直接途径。更多微谐振器的表征结果见补充材料注释 4。

此外，我们的计量级准确度和精密度

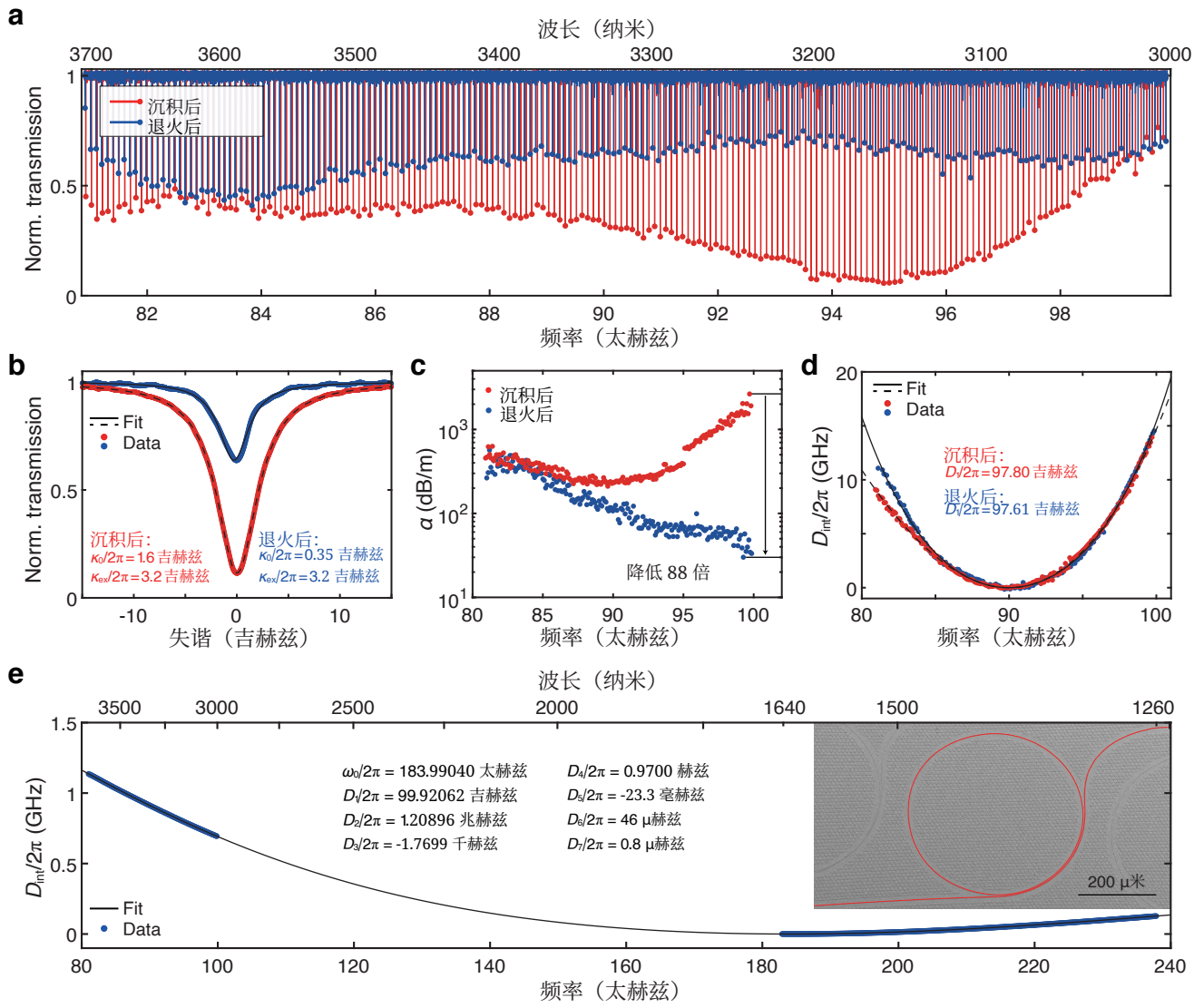


图2. **氮化硅微谐振器中的宽带光谱表征与损耗缓解**。**a**。同一 Si_3N_4 微谐振器在退火前（沉积后，红色）和退火后（蓝色）的宽带透射光谱。**b**。95.448 THz 处单个共振的线形对比分析。高温退火将本征损耗 $\kappa_0/2\pi$ 从 1.6 GHz（沉积后，红色）降低至 0.35 GHz（退火后，蓝色），同时外部耦合率保持恒定，为 $\kappa_{ex}/2\pi = 3.2$ GHz。**c**。由 $\kappa_0/2\pi$转换得到的频率相关光传播损耗 α。退火大幅消除了 N-H 键，其吸收峰位于 100 THz（≈ 3.0 微米）处。衰减 α 从 2646 dB m^{-1}（沉积后，红色）降低至 30 dB m^{-1}（退火后，蓝色），降低了 88倍。**d**。拟合至四阶多项式的积分色散（$D_{int}/2\pi$）曲线。退火使中心频率 $\omega_0/2\pi = 90.011$ THz 处的自由光谱范围（FSR，$D_1/2\pi$）从 97.80 GHz 移至 97.61 GHz，反映了折射率和群折射率的变化。**e**。跨倍频程色散表征（1260–3711 纳米）。该曲线由同一器件近红外（1260–1640 纳米，546 个共振）和中红外（3001–3711 纳米，192 个共振）波段的测量结果拼接而成，并拟合至七阶多项式。插图：Si_3N_4 微谐振器的伪彩色扫描电子显微镜图像（波导以红色突出显示）。

使我们能够绘制微谐振器色散曲线（见方法）。图 2d 对比了退火前后 $SiD_{int}/2\pi N_3N_4$ 微谐振器的实测积分色散（[50,51]）。尽管波导几何结构未发生变化，色散差异也由氮氢吸收通过克拉默斯-克罗尼格关系引起。

这些结果表明，我们的系统是一种强大的无损诊断工具，可用于指导制造工艺迭代。此外，通过分流一部分近红外泵浦光，我们的系统能够同时表征近红外和中红外光谱窗口。图2e 展示了从一个微谐振器获得的跨倍频程色散曲线，拼接

近红外（1260–1640 纳米）和中红外（3001–3711 纳米）波段的数据。这种宽带能力对于验证色散工程至关重要[43] 适用于需要跨倍频程光谱的应用[52], ，包括超连续谱生成[53–55]、微梳生成[32,33,44,56]和频率转换[57,58]。除硅$_3$N$_4$, 外，我们的光谱系统对于推动其他中红外平台的发展同样至关重要，包括硫系玻璃[30], III-V族材料[35,55],硅[33,49,59],锗[60–62], 以及硅锗[63]。

抗散射测距。激光雷达是自主系统空间感知的基石。尽管调频连续波激光雷达具有散粒噪声极限灵敏度且不受环境光影响[24,64], 标准近红外（例如，1.55μm）实现方案在雾或烟雾等散射介质中会遭受严重衰减，对安全关键应用构成独特风险[20]。为应对这一脆弱性，我们利用中红外光谱优异的传播特性，如图3a所示。由于散射强度通常与波长成反比（例如瑞利散射），将工作波段移至 3–3.7μm 大气窗口，与 1.55 μm 相比可显著降低衰减。

我们使用包含受控雾室的对比测试平台验证这一穿透能力（见“方法”），如图3b所示。通过水雾发生器模拟散射环境，并利用同向传播的 1064 nm 探测激光器实时测量光学密度（OD$_{1064}$）。为确保严格对比，我们将标准近红外系统（中心波长为 1.55μm）和中红外系统（中心波长为 3.56μm）的参数设为相同：1 mW 光功率和$B = 125$ GHz 调谐带宽。我们通过内在的精细频率校准补偿啁啾非线性。详情见补充材料注释 6。

图3d 展示了中红外信号的显著韧性。随着散射密度增加，近红外信号（蓝色曲线）迅速消光，在 OD $_{1064} = 4$ 时降至噪声底以下。与此形成鲜明对比的是，在相同条件下，中红外信号（红色曲线）仍保持 23 dB 的强劲信噪比。即使达到探测器的动态范围极限（OD $_{1064} = 5$），中红外系统仍保持可分辨的 19 dB 信噪比。图 3c 证明，这一光谱优势直接转化为成像性能：近红外点云完全被噪声淹没，而中红外系统能够以高保真度解析出浓雾中 1.62 m 处钢制目标的深度轮廓。

除了抗散射能力外，高精度测距还需要宽光谱带宽。利用系统宽广的无跳模调谐范围，我们将调制带宽扩展至 $B = 7.49$ 太赫兹。该带宽不仅提升了轴向分辨率（$\delta R \propto c/2B$），还通过傅里叶域处理增益大幅提高了信噪比：信号能量集中在更窄的频谱单元中，从而抑制宽带噪声背景。图3d 展示了这一提升： $B = 7.49$ 太赫兹配置（绿色曲线）相比 $B = 125$ 吉赫兹基线（红色曲线），将噪声底降低了 12 dB。

我们将测距精度 σ 定义为标准差与均值之比，并通过图 3e 中的直方图分析进行量化。在晴朗条件下（OD$_{1064} = 0$），近红外和窄带（$B = 125$ 吉赫兹）中红外系统均达到相近的精密度 $\sigma \approx 15$ μm。然而，随着浑浊度增加，窄带系统的精密度因信噪比恶化而显著下降：$\sigma = 97.2$ μm（近红外，OD$_{1064} = 2$ ），$\sigma = 87.5$ μm（中红外，OD$_{1064} = 5$ ）。相比之下，宽带（$B = 7.49$ 太赫兹）中红外系统展现出卓越的韧性，在清洁空气中保持 $\sigma = 1.76$ μm 的精密度，即使在极端衰减条件下（OD$_{1064} = 5$），精密度也仅略微下降至 $\sigma = 2.19$ μm。这些结果表明，高带宽中红外调频连续波激光雷达是在强散射环境中实现精密测距的可靠方案。通过穿透高浓度颗粒物，该技术为全天候自动驾驶以及关键应急应用开辟了道路，例如穿透充满烟雾的建筑物成像，或穿透浓密云层以协助搜救任务。

光谱测距。城市环境日益复杂，亟需感知技术实现范式转变——从简单的几何测绘迈向多维感知，同时获取化学成分[65]。为弥合这一差距，我们利用系统覆盖的 3–3.7μm 波段，使其兼具精密测距仪和计量级气体传感器的功能，如图 4a 所示。这种双重能力对于监测有害污染物至关重要，例如氯化氢（HCl）——它是化石燃料燃烧和废物焚烧产生的有毒副产物，会危害人类健康和生态系统。

如图 4c 所示，我们的方法重新定义了从调频连续波激光雷达信号中提取信息的方式。传统上，激光雷达系统仅通过快速傅里叶变换（FFT）从拍频中提取距离信息，通常将振幅变化视为噪声或衰落而舍弃。然而，在中红外波段，信号包络编码了介质的光谱吸收“指纹”。为恢复这一信息，我们使用希尔伯特变换（HT），将吸收引起的强度变化与频率调制的拍频信号解耦[66]。算法详情见补充材料注释7。关键在于，该方法利用相干探测的外差增益，由强本地振荡器放大微弱的回波信号。这种增强使我们即使面对非合作性散射目标，也能实现计量级光谱反演。

我们使用图所示的测试平台验证这种双模态感知。4b。中红外光束被分成两路。在测量臂中，光束穿过充满氯化氢混合物的多程气体池，然后从钢制目标上反射回来。背反射光束再次穿过该气体池，随后与参考臂中的光束混合。这一

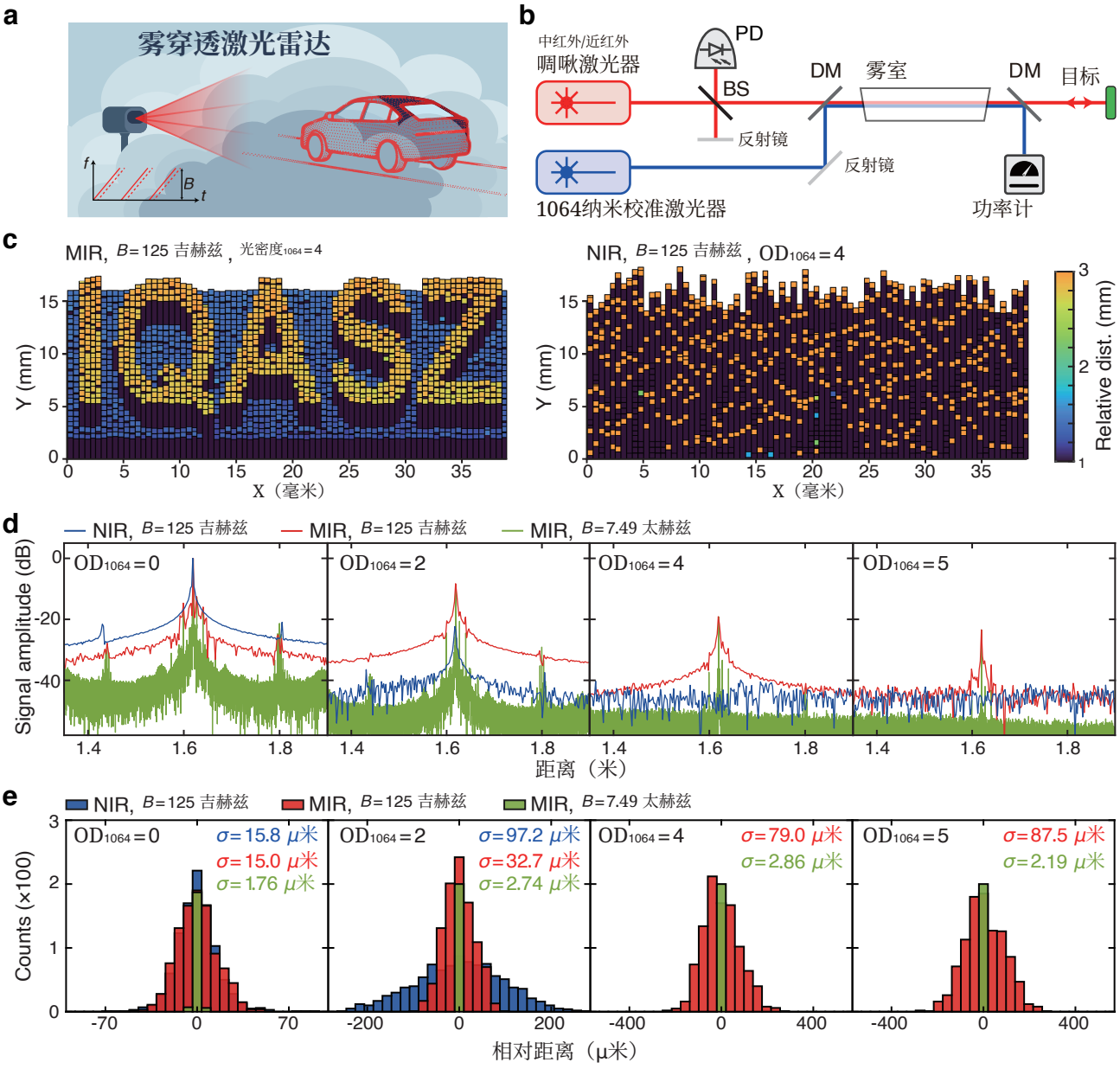


图 3. **抗散射中红外调频连续波激光雷达**。**a**。雾穿透概念示意图。插图为调谐带宽为 B的测距波形时频表示。发射信号（实线）与接收回波（虚线）之间的时间延迟编码了目标距离。**b**。实验测试平台。通过受控雾室模拟散射环境，并实时监测共传播的1064 nm参考激光器的光学密度（OD_{1064}）来校准雾密度。PD，光电探测器。BS，分束器。DM，双色镜。**c**。在浓雾中（$OD_{1064}=4$）使用相同调谐带宽（$B=125$ 吉赫兹）对钢制目标进行深度成像比较。中红外系统成功分辨出目标结构“IQASZ”，而标准近红外系统则完全被噪声淹没。**d**。信号抗散射能力。近红外信号（蓝色，$B=125$ 吉赫兹）在 $OD_{1064}=4$时消失，而中红外信号（红色，$B=125$ 吉赫兹）即使在 $OD_{1064}=5$时仍可分辨。绿色曲线表示带宽为 $B=7.49$ 太赫兹的中红外模式，与红色曲线相比，噪声底抑制了 12 dB。**e**。测距精度直方图。随着不透明度增加，窄带信号（蓝色和红色，$B=125$ 吉赫兹）的精度迅速下降，而宽带中红外模式（绿色，$B=7.49$ 太赫兹）即使在 $OD_{1064}=5$下也能保持稳健的微米级精度。

装置模拟了以固体背景为背景的污染物云团遥感探测。

处理单个波形可得到两种不同的数据集。首先，对拍频信号进行快速傅里叶变换，准确解析出目标距离为 1.32 m，如图4d 所示。其次，通过希尔伯特变换进行振幅提取，重建出

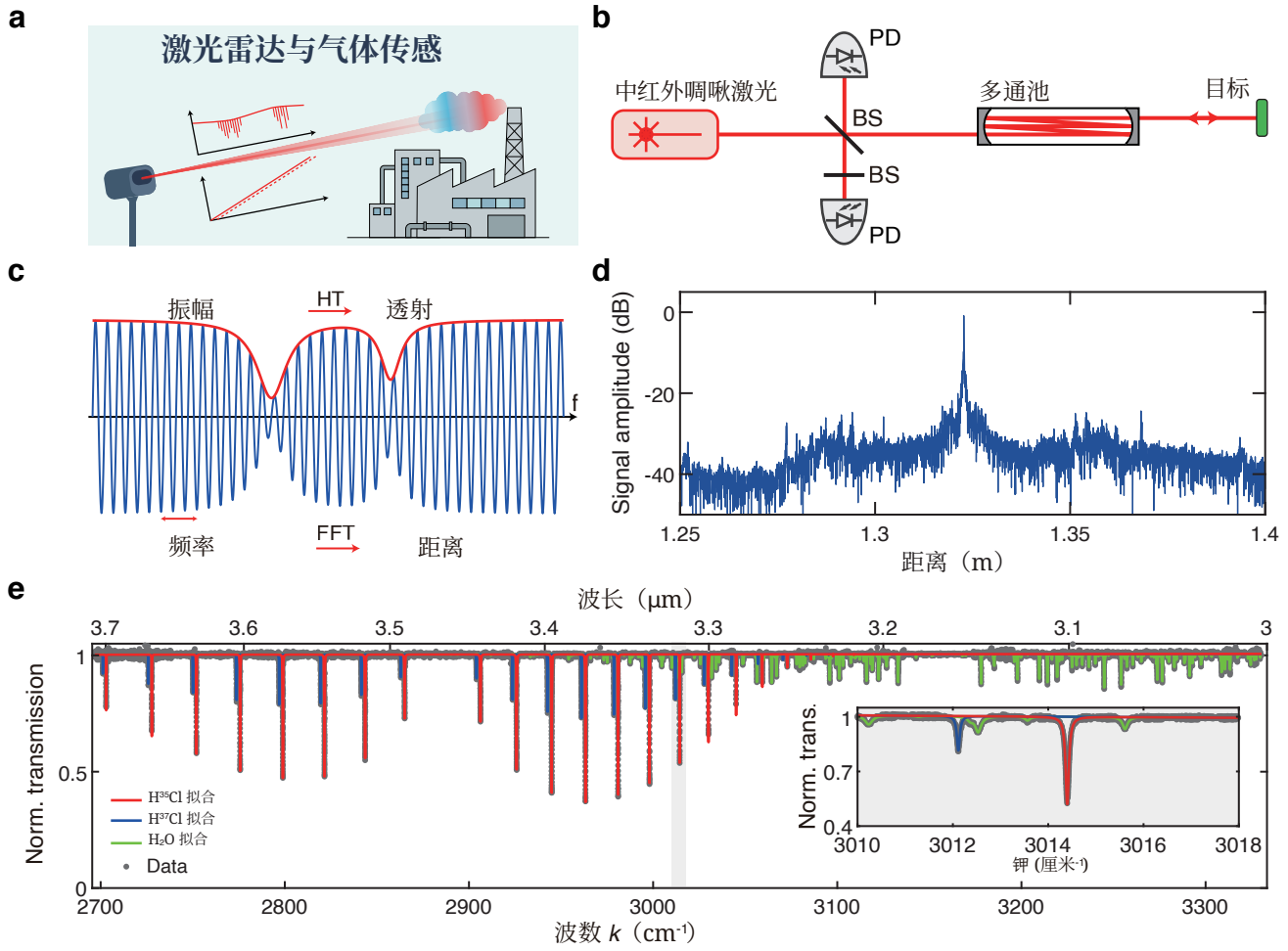


图 4. **利用单一光波形同时测距与化学识别**。**a**。双模态感知的概念示意图：系统测量目标的物理距离，同时分析中间介质的化学成分。**b**。实验测试平台。使用充有氯化氢混合物的多程气体池模拟工业排放场景。PD，光电探测器。BS，分束器。**c**。信号解耦原理。干涉拍频信号承载相互正交的信息通道：距离编码于频率调制中（通过快速傅里叶变换，FFT，提取），而光谱指纹编码于振幅包络中（通过希尔伯特变换，HT，提取）。**d**。重建的激光雷达距离剖面，精确定位出 1.32 m 处的目标。**e**。定量光谱分析。提取的透射光谱分辨出 HCl 同位素分子（$H^{35}Cl$ 和 $H^{37}Cl$）的不同转动-振动跃迁，以及背景大气中的 H_2O 水蒸气。多组分光谱拟合测得 HCl 浓度为 82 ppm，H_2O 浓度为 0.50%。

路径积分透射光谱，如图4e 所示。提取的光谱与 HITRAN 数据库[19], 吻合，能够分辨精细的光谱特征，包括不同的氯化氢同位素体（$H^{35}Cl$ 和 $H^{37}Cl$），以及大气中水$_2$蒸气的干扰。多组分拟合[67] 得出氯化氢浓度为 82 ppm，水$_2$浓度为 0.50%，证实了该系统具有高灵敏度和高光谱分辨率。这种连续、宽带且达到计量学级别的测量能力，对于分析复杂气体混合物至关重要。通过将光谱学与激光雷达测距相结合，我们的系统为城市环境监测提供了一种多维感知工具，不仅能够检测有害排放物，但其在三维空间中的精确定位与识别。

结论。我们已经证明，MIR 中光谱带宽、光子通量与频率保真度之间历来存在的权衡已不再是根本性限制。通过将宽范围可调谐的近红外连续波激光器与可溯源至原子标准的严格校准相结合，我们基于差频产生的架构为在 3–3.7μm 光谱窗口内进行连续探测提供了确定性工具。与图5a 所列的先进光源进行基准比较后，我们的平台展现出独特的性能优势：它在实现绝对频率准确度的同时，提供最宽的连续调谐覆盖范围，从而实质上推动了计量学级光谱学的普及。

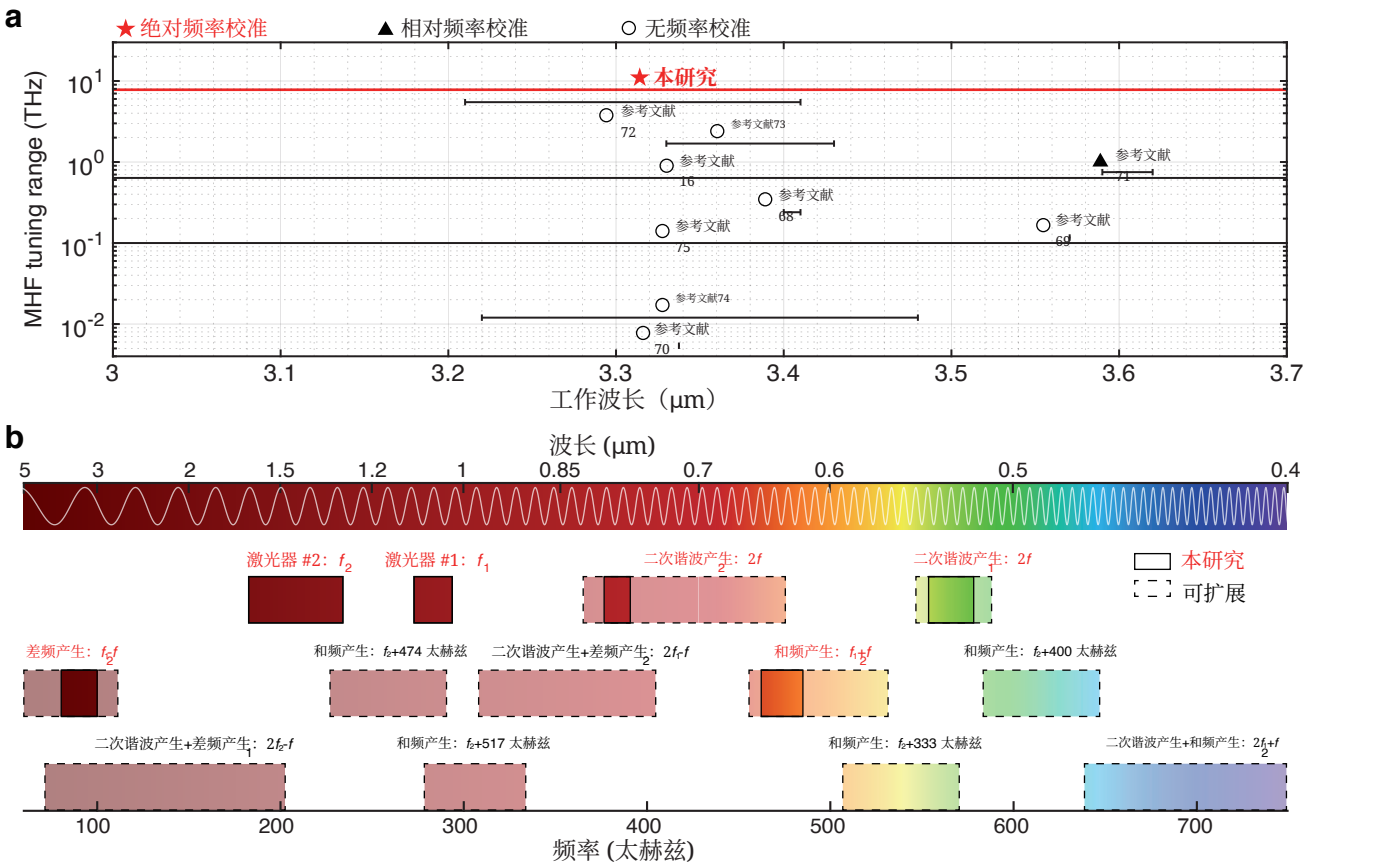


图5. **性能基准测试与可扩展多光谱合成**. **a.** 当前最先进连续波激光器的无跳模（MHF）调谐范围与工作波长的比较[16,68–75]。数据点按频率校准能力分类：绝对（星形）、相对（三角形）和无（圆形）。本系统确立了新的性能基准，在提供最宽连续调谐范围的同时具备绝对频率准确度。 **b**。光谱覆盖图涵盖从可见光到中红外（0.4–5 微米）。实心色块表示本研究中实验产生的波段，包括主要近红外泵浦光（1020–1098 纳米和1260–1640 纳米）及其非线性转换产物：二次谐波产生（518–541 纳米和766–795 纳米）、和频产生（618–644 纳米）以及差频产生（3001–3711 纳米）。虚线框表示通过拉曼放大或与辅助光源进一步混频而理论上可达到的区域，例如517 太赫兹光泵浦半导体激光器、474 太赫兹氦氖激光器、400 太赫兹二极管激光器或333 太赫兹二极管激光器。这表明该平台有潜力在整个0.4–5 微米范围内实现无缝、无间隙的光谱合成。

该平台的变革潜力已通过其对不同领域的即时影响得到证明。在集成光子学领域，该系统克服了 Si_3N_4 的关键光谱限制，精准定位并消除了氢致吸收。消除这些外源杂质后，二氧化硅包层中的多声子吸收显现为根本性障碍，从而确立了增强模式限制这一解锁平台全部 MIR 潜力的关键路径。与此同时，在自由空间传感领域，该平台弥合了空间测距与化学分析之间的间隙，使激光雷达系统能够穿透不透明散射介质，并在单一光波形中同时识别有害污染物。

展望未来，这种架构具有天然的可扩展性。如图5b 所示，我们已实现测量——

测量带宽覆盖主要近红外泵浦光（1020–1098 纳米和1260–1640 纳米）及其非线性频率转换产物，包括二次谐波产生（SHG：518–541 纳米和 766–795 纳米，见补充材料说明1）、和频产生（SFG：618–644 纳米，见补充材料说明8）和差频产生（3001–3711 纳米），涵盖从可见光到中红外的范围。当前系统只是更广泛光谱合成方案中的一个节点。通过采用不同的非线性过程组合，同一组近红外泵浦激光器可经频率转换覆盖 0.4–5 微米光谱。这为构建统一的超宽带光谱引擎铺平了道路，使其能够探测整个分子世界中的电子、振动和转动跃迁。最终，通过将计量学频率保真度与非线性光学的灵活性相结合，我们的工作为多维感知奠定了新的基础，

释放中红外光谱的全部信息容量。

方法

宽带中红外合成。中红外光通过周期性极化铌酸锂波导中的差频产生而生成。为克服传统相位匹配的带宽限制，我们采用啁啾极化策略。在双折射相位匹配（BPM）和均匀准相位匹配（QPM）中，[76,77]，动量守恒$\Delta k = 0$仅在较窄的波长范围内得到严格满足。如波矢（k）图（扩展数据图1a）所示，固定的光栅矢量 $2\pi/\Lambda$无法补偿由泵浦失谐引起的相位失配，从而导致振荡功率传输而非累积增长。相比之下，我们的器件采用啁啾准相位匹配（CQPM）分布，其中极化周期 $\Lambda(z)$沿传播轴 z连续变化。空间相关的光栅矢量 $2\pi/\Lambda(z)$确保对于任意泵浦光对（k_1与 k_2），在设计带宽内，相位匹配条件在空间上局域于特定的纵向位置。因此，不同的光谱分量在波导的不同位置开始频率转换，同时保持较高的输出功率。

为合成宽带中红外激光器，啁啾激光器 #1 从 1035 纳米扫描至 1042 纳米（2.01 太赫兹），而啁啾激光器 #2 则沿相反方向从 1580 纳米扫描至 1536 纳米（5.47 太赫兹）。如扩展数据图 1b所示，该配置合成了从 3001 纳米至 3243 纳米的中红外扫描，在 0.89 秒内实现了 7.49 太赫兹的无跳模调谐带宽。通过离散步进激光器 #1 的起始波长（1035、1057 和 1079 纳米），中红外输出实现了从 3001 纳米至 3711 纳米的无缝覆盖，如扩展数据图 1c所示。完整带宽扫描的总耗时不到 5 秒。扩展数据图 1d显示，该系统在泵浦参数 $\lambda_1 = 1070$ 纳米（$P_1 = 4.0$ 瓦）和 $\lambda_2 = 1550$ 纳米（$P_2 = 5.6$ 瓦）下，输出功率最高可达 45.0 毫瓦。

光谱系统搭建与相对频率跟踪。扩展数据图2a 和补充说明 1 中详细介绍的实验架构，旨在实现五个不同区域（I–V）的多光谱同步运行。区域 I（1020–1098 nm）和区域 II（1260–1640 nm）分别对应两台近红外外腔二极管激光器（啁啾激光器 #1 和 #2）的基频输出。这些近红外种子光源通过非线性频率转换产生三个衍生波段：可见光输出（区域 III，518–541 nm，通过二次谐波产生实现）、中红外输出（IV区，3001–3711 nm，通过差频产生实现）以及近可见光输出（区域 V，766–795 nm，通过二次谐波产生实现）。尽管近红外种子激光器具有宽广的调谐范围，系统的有效工作带宽实际上受掺镱光纤放大器（1035–1086 nm）和掺铒光纤放大器（1532–1590 nm）的增益曲线限制。因此，只有处于这些增益窗口内的光谱分量才能达到所需功率，以便为周期性极化铌酸锂波导提供泵浦光；啁啾准相位匹配条件则进一步筛选出高效频率转换波段。该配置具体将放大的基频近红外扫描映射至以下目标频率：1036–1082 nm 对应 518–541 nm（区域 III）；1532–1590 nm 对应 766–795 nm（区域 V）；以及由 1035–1086 nm 和 1536–1580 nm 组合而成的泵浦光对应 3001–3711 nm（IV区）。

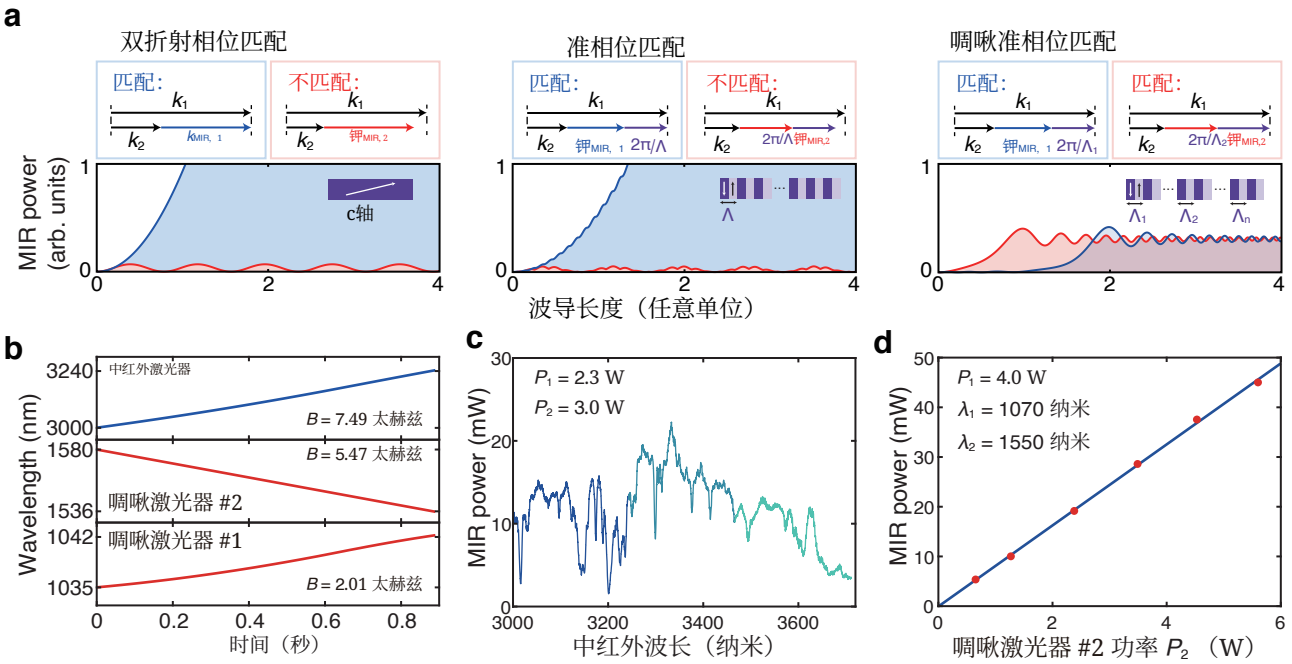
在区域I和II中，我们通过将啁啾激光器 #1 和 #2 参考至光纤腔，进行相对频率校准。该方法见参考文献[78]，详细信息见补充材料注1。光纤腔的FSR值（激光器 #1 为 32.32 MHz，激光器 #2 为 55.58 MHz）经过精确表征，可用作相对频率标尺。通过记录并计算啁啾激光器经过的光纤共振数量，可得出激光器的相对频率偏移。光纤共振提供离散的频率标记，而低于自由光谱范围的瞬时频率则通过对不平衡马赫-曾德尔干涉仪（UMZI）的干涉条纹进行插值来解析[79]。使用希尔伯特变换[66]提取瞬时相位 $\phi(t)$后，我们计算相邻采样点之间的相位差 $\Delta\phi$。相应的频率偏移 Δf 由此推导得出：

$$\Delta f = \frac{\mathrm{FSR}}{\phi_{\mathrm{FSR}}} \cdot \Delta\phi, \tag{1}$$

其中，ϕ_{FSR} 是对应于一个腔自由光谱范围的相位变化。

用于绝对频率可溯源性的原子参考。我们通过CPLN波导对基频近红外激光器进行倍频，以获取原子参考线。对于啁啾激光器 #1，二次谐波产生覆盖518–541纳米波段（扩展数据图2a中的区域 III），其中碘分子（I_2）提供了密集的超精细跃迁谱系。我们采用调制转移光谱学[80,81]来以亚兆赫兹精度分辨这些跃迁，并利用反向传播泵浦-探测构型产生具有高鉴频器斜率的误差信号（详见补充材料注1）。为建立绝对频率参考，我们采用I_2 R(56)32-0、R(53)31-0和P(28)30-0谱线的超精细跃迁，这些谱线的实验频率值已 उपलब्ध[81–83] 并列于补充材料注1中。绝对频率轴锚定于I_2 R(56)32-0谱线（$f_{\mathrm{ref},1} = 563.2600$ 太赫兹）[82]。我们利用I_2 P(28)30-0谱线的超精细跃迁（$f_{\mathrm{ref},2} = 560.1518$ 太赫兹）验证由光纤腔得到的相对频率校准。我们观测到测量值与参考文献[83]中的数值之间存在 $\Delta_1 = -35.8$ 兆赫兹的均方根（RMS）偏差，这归因于光纤腔自由光谱范围中的残余色散。因此，我们对二次谐波（SH）激光频率应用如下校正：

$$f'_{\mathrm{SH1}} = \frac{f_{\mathrm{SH1}} - f_{\mathrm{ref},1}}{1+\epsilon_1} + f_{\mathrm{ref},1} \tag{2}$$



扩展数据图1. **相位匹配机制与宽带中红外合成性能**。**a**。双折射相位匹配（BPM）、准相位匹配（QPM）和啁啾准相位匹配（CQPM）的比较。上：波矢（k）图；下：中红外功率沿波导的变化。与双折射相位匹配和均匀准相位匹配不同，后两者仅在单个相位匹配波长处（蓝色区域）呈现功率单调增长，而在其他波长处则表现为振荡（红色区域）；啁啾准相位匹配采用空间变化的极化周期 $\Lambda(z)$，使不同纵向位置 z分别满足相位匹配条件，从而实现宽带差频产生。**b**。通过光纤腔和原子超精细跃迁校准的实时频率调谐曲线。啁啾激光器 #1的扫描范围为1035纳米至1042纳米（带宽2.01太赫兹），啁啾激光器 #2的扫描范围为1580纳米至1536纳米（带宽5.47太赫兹）。近红外激光器反向啁啾，在0.89秒内合成出连续、无跳模的中红外调谐带宽，达7.49太赫兹（3001–3243纳米）。**c**。全光谱覆盖。将激光器 #1的起始波长步进调至1035、1057和1079纳米，可实现从3001纳米至3711纳米的无缝覆盖。采用激光器 #1功率 $P_1 = 2.3$ 瓦和激光器 #2功率 $P_2 = 3.0$ 瓦测得这些调谐曲线。**d**。功率传输特性。固定 $\lambda_1 = 1070$ 纳米、 $\lambda_2 = 1550$ 纳米和 $P_1 = 4.0$ 瓦时，中红外输出功率随泵浦功率 P_2 的变化。在 $P_2 = 5.6$ 瓦时，中红外功率达到最大值45.0毫瓦。

其中 $\epsilon_1 = \Delta_1/(f_{\mathrm{ref},\,1} - f_{\mathrm{ref},\,2})$。将公式 2 应用于$I_2$ R(53)31-0跃迁的测量值（$f_{\mathrm{ref},\,3}$ =561。4205 太赫兹），如扩展数据图 2b所示，相对于文献值的残余均方根偏差为11.7兆赫兹[81]。这确定了SH激光器的准确度为 $\delta_{\mathrm{SH1}} \approx 11.7$ 兆赫兹，对应于啁啾激光器 #1基频的频率准确度为$\delta_{\mathrm{laser1}} = \delta_{\mathrm{SH1}}/2 \approx 5.9$ 兆赫兹。

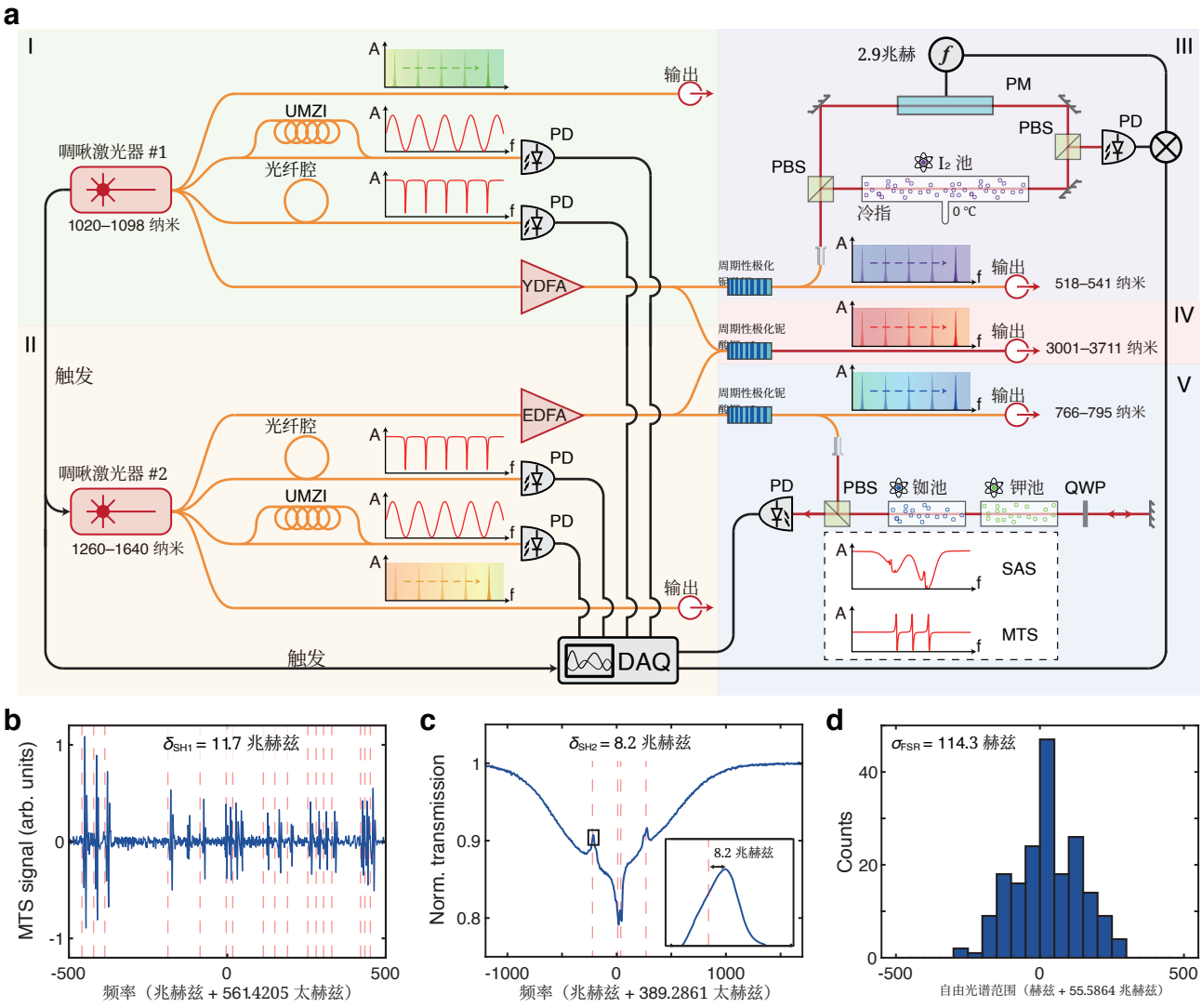
对于啁啾激光器 #2，二次谐波产生以766–795纳米波段为目标（扩展数据图2a中的区域 V），其中铷（Rb）和钾（K）原子提供不同的超精细跃迁。我们采用饱和吸收光谱学，以亚兆赫兹精密度分辨这些跃迁（详见补充材料注1）。为建立绝对频率参考，我们利用与铷 D2 线、K D1及K D2线相关的超精细跃迁，其频率已通过实验测量[84,85] 并在补充材料注1中给出。绝对频率轴锚定于铷 D2 线（$f_{\mathrm{ref},4} = 384.2286$ 太赫兹）[84]。与K相关的超精细跃迁

D2线（$f_{\mathrm{ref},5} = 391.0165$ 太赫兹）[85] 用于检验我们借助光纤腔进行的相对频率校准的准确度。我们的测量值与参考文献[85]中的数值之间的均方根偏差为 $\Delta_2 = 28.4$ 兆赫兹。我们进一步按如下方式校正二次谐波激光器的频率：

$$f'_{\mathrm{SH2}} = \frac{f_{\mathrm{SH2}} - f_{\mathrm{ref},4}}{1 + \epsilon_2} + f_{\mathrm{ref},4} \qquad (3)$$

其中 $\epsilon_2 = \Delta_2/(f_{\mathrm{ref},4} - f_{\mathrm{ref},5})$。将公式 3 应用于钾 D1 线的测量（$f_{\mathrm{ref},6} = 389.2861$ 太赫兹），如扩展数据图 2c 所示，相对于文献值的残余均方根偏差为 8.2 兆赫兹[85]。由此得出二次谐波激光器精度为 $\delta_{\mathrm{SH2}} \approx 8.2$ 兆赫兹，对应于啁啾激光器 #2 的基频精度为 $\delta_{\mathrm{laser2}} = \delta_{\mathrm{SH2}}/2 \approx 4.1$ 兆赫兹。

准确度与精密度的量化。在扩展数据图2a的IV区，中红外激光器通过差频产生。中红外激光器的绝对频率准确度由互不相关的不确定



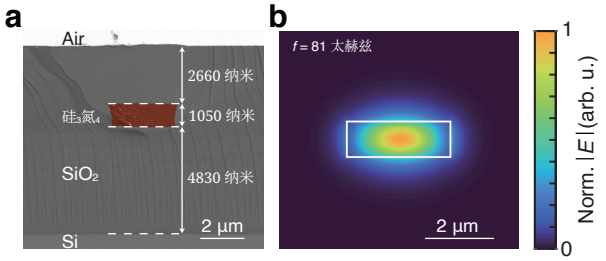
扩展数据图2. **实验装置与频率计量性能**。**a**。光谱系统示意图，按功能划分为五个区域：区域 I 和区域 II 通过光纤腔和不平衡马赫-曾德尔干涉仪跟踪两台近红外泵浦激光器的相对频率校准；区域 III 和区域 V 通过倍频至可见/近可见波段建立绝对频率参考；区域 IV 则产生中红外差频产生输出。PD，光电探测器；PBS，偏振分束器；QWP，四分之一波片；DAQ，数据采集系统；PM，相位调制器。右下角插图展示了饱和吸收光谱（SAS）和调制转移光谱（MTS）的原理。**b**。啁啾激光器 #1（区域 III，518–541 纳米）的绝对频率验证。通过 MTS 测得的 I_2 R(53)31-0谱线超精细跃迁分辨结果，相对于参考数据（红色虚线）的残余均方根偏差为 $\delta_{\mathrm{SH1}} = 11.7$ 兆赫兹。**c**。啁啾激光器 #2（区域 V，766–795 纳米）的绝对频率验证。通过 SAS 测得的钾 D1 线超精细跃迁分辨结果，相对于参考数据（红色虚线）的残余均方根偏差为 $\delta_{\mathrm{SH2}} = 8.2$ 兆赫兹。**d**。光纤腔自由光谱范围的长期稳定性。对 1490 纳米处测得的 FSR 值进行直方图统计，24 小时内的标准差为 $\sigma_{\mathrm{FSR}} = 114.3$ 赫兹。

度（泵浦激光器）所决定：

$$\delta_{\mathrm{MIR}} = \sqrt{\delta^2_{\mathrm{laser1}} + \delta^2_{\mathrm{laser2}}} \approx 7.2\ \mathrm{MHz}. \qquad (4)$$

系统的精密度最终由光纤腔自由光谱范围的稳定性决定。如扩展数据图2d所示，在1490纳米处进行24小时长期监测，测得自由光谱范围的标准差为 $\sigma_{\mathrm{FSR}} = 114.3$赫兹。在啁啾激光器全部5.47太赫兹调谐范围内

#2（$N \approx 10^5$ 自由光谱范围步进），累积频率不确定度按$\sigma_{\mathrm{cumulative}} = \sigma_{\mathrm{FSR}}\sqrt{N} \approx 36.1$千赫兹标度。对于啁啾激光器 #1，较窄的调谐范围（2.01太赫兹）意味着相应更小的累积误差贡献。由于中红外频率通过差频产生合成，总频率不确定度仍由激光器 #2主导，且显著小于中红外激光器的动态线宽（242千赫兹，见补充材料注3）。因此，该系统的



扩展数据图3. **波导几何结构和模式限制**。**a**。Si_3N_4 波导横截面的伪彩色扫描电子显微镜图像，该波导由SiO_2 包层封装。Si_3N_4 芯层以红色突出显示。**b**。81 太赫兹处（$\lambda \approx 3.7$ 微米）的基模 TE_{00} 模式分布模拟图，显示归一化电场强度 $|E|$。

精密度受激光线宽而非频率校准的限制。

微谐振器色散和损耗表征。我们通过测量并将谐振频率拟合为以下多项式来提取积分色散 D_{int}：

$$D_{\mathrm{int}}(\mu) = \omega_\mu - \omega_0 - D_1\mu = \sum_{n=2}^{\cdots} \frac{D_n \mu^n}{n!} \tag{5}$$

其中 $\omega_\mu/2\pi$ 是相对于参考模式的第 μ阶模式的频率 $\omega_0/2\pi$， $D_1/2\pi$ 是微谐振器自由光谱范围， D_2 描述群速度色散（GVD），而D_3， D_4 等描述高阶色散项。群折射率由下式推导得到 $n_g = c/(D_1 L)$，其中 $L = 1.429$ mm 是图 2 中微谐振器的物理腔长。为量化损耗，将共振拟合为洛伦兹模型[86,87]：

$$T(\omega) = 1 - \frac{4\kappa_{\mathrm{ex}}\kappa_0}{\Delta\omega^2 + (\kappa_{\mathrm{ex}} + \kappa_0)^2} \tag{6}$$

其中 $\Delta\omega/2\pi$ 是激光失谐， $\kappa_0/2\pi$ 是本征损耗率， $\kappa_{\mathrm{ex}}/2\pi$ 是外部耦合强度。波导中的光传播损耗（单位为 dB m^{-1}）按 $\alpha \approx (27.27 \cdot n_g)/(\lambda \cdot Q_0)$ 计算，其中 $Q_0 = \omega/\kappa_0$ 是本征 Q因子。

几何泄漏和光学限制的有限元模拟。为量化波导弯曲和衬底泄漏产生的辐射损耗，我们在柱坐标系中进行有限元法（FEM）模拟。扩展数据图 3a 显示了波导横截面的扫描电子显微镜（SEM）图像，随后据此建立 FEM 模拟模型。计算域对硅$_3N_4$ 波导（宽度 $w = 3000$ 纳米，高度 $h = 1050$ 纳米）及硅$_2$包层建模，并置于硅（Si）衬底上；边界向空气和硅区域延伸 1 微米，以确保场充分衰减。为将几何泄漏与材料衰减隔离开来，我们采用无损材料模型，仅使用硅$_3N_4$,SiO_2,和硅的折射率实部。

我们通过有效折射率的虚部评估辐射泄漏， n''。在 81 太赫兹下，弯曲半径为 $r = 40$ 微米时的模拟结果为$n'' \approx 3.5 \times 10^{-6}$。将半径增大至 150 微米后，该数值显著降低至 $n'' \approx 7.8 \times 10^{-7}$。进一步增大至 $r = 200$ 微米时，结果几乎不再变化（$n'' \approx 7.7 \times 10^{-7}$），表明曲率引起的弯曲损耗在衬底泄漏下限处消失。因此，对于实验微谐振器半径 $r = 227.5$ 微米，弯曲损耗的贡献极小。残余衬底泄漏 $n'' \approx 7.7 \times 10^{-7}$ 对应于 $\alpha = 4\pi n''/\lambda \cdot 10\log_{10} e \approx$11.4 dB m^{-1}的传输损耗。该理论极限比实验测得的背景值 ~420 dB m^{-1}低一个数量级以上，证实材料吸收而非结构泄漏是主要损耗机制。

为考察光学模式与包层之间的相互作用，我们分析坡印廷矢量分布。扩展数据图3b 展示了 81 太赫兹处基横电（TE $|E|$ ）模式的归一化电场幅值$_{00}$。对功率通量进行积分后发现，在包层中传播的光功率比例从 100 太赫兹处的 21% 上升至 81 太赫兹处的 31%。这一趋势证实，低频下的光学约束减弱。鉴于 SiO_2 在约 86 太赫兹（3.5μm）[39,40,49]，开始出现强烈的多声子吸收，81 太赫兹处（~3.7μm）的模式重叠增加，与观测到的衰减趋势一致，表明与 SiO_2 包层的相互作用是造成损耗的重要来源。

雾室。为模拟雾天环境，我们使用一座长 1.4 m 的环境舱，配备超声雾化装置。水微滴由离心风机送入，散射密度由精密进气阀调节。被动排气口可实现自然的大气平衡，从而维持稳态流动。环境舱通过宽带 CaF_2 窗口提供光学通道，窗口相对于光轴以 ~10° 角度安装，以抑制法布里-珀罗共振。电阻加热使窗口表面温度保持在露点以上，以防止冷凝引起的散射。

资助信息：本研究获得中国国家重点研发计划（项目编号：2024YFA1409300）、国家自然科学基金委员会（项目编号：12261131503、12404417、12404436、62075233）、量子科学与技术—国家科技重大专项（2023ZD0301500）、深港科技创新合作区（HZQB-KCZYB2020050）、深圳市科技计划（项目编号：RCJC20231211090042078）、粤港科技合作资助计划（项目编号：2024A0505040008）、山东省重点研发计划（项目编号：2021ZDPT01）、山东省自然科学基金（ZR2021LLZ013、ZR2022LLZ009）以及中国科学院基础研究青年科学家项目（YSBR-69）的支持。

致谢：感谢 Shui-Ming Hu 就中红外光源进行了富有成效的讨论，感谢 Wei Sun、Jinbao Long 和 Shuyi Li 协助开展实验，感谢 Sanli Huang、Jiahao Sun 和 Chen Shen

协助制备 Si_3N_4 样品，并感谢潘建伟和余大鹏为本项目提供关键支持。

作者贡献：B. S.、C. Z.、Y. H. 和 Y.-H. L. 搭建了实验装置并开展了实验，X. B.、H. G. 和 A. W. 提供了协助。M. Z.、W. M. 和 X.-P. X. 制备了 CPLN 器件，Q. Z. 负责指导。Z. Z.、Z. S. 和 J. L. 制备了 Si_3N_4 器件。B. S.、C. Z.、M. Z. 和 J. L. 分析了数据，并在其他人的意见基础上撰写了稿件。J. L. 和 Q. Z. 负责协调合作。J. L. 发起并指导了该项目。**利益冲突**：B. S.、Y.-H. L. 和 J. L. 就与本研究相关的事项提交了专利申请。J. L. 和 X. B. 正在 Qaleido Photonics 开发异质集成氮化硅光子技术。其他作者声明不存在利益冲突。

数据可用性声明：本研究中用于生成图表的代码和数据将在这篇预印本发表后发布于 Zenodo 仓库。

* 这些作者对本研究的贡献相同。 † liujq@iqasz.cn

[1] A. Schliesser, N. Picqué, and T. W. Hänsch, Nature Photonics 6, 440 (2012). [2] C. R. Petersen, U. Møller, I. Kubat, B. Zhou, S. Dupont, J. Ramsay, T. Benson, S. Sujecki, N. Abdel-Moneim, Z. Tang, D. Furniss, A. Seddon, and O. Bang, Nature Photonics 8, 830 (2014). [3] S. A. Diddams, K. Vahala, and T. Udem, Science 369, eaay3676 (2020). [4] Q. Liang, A. Bisht, A. Scheck, P. G. Schunemann, and J. Ye, Nature 638, 941 (2025). [5] I. Coddington, N. Newbury, and W. Swann, Optica 3, 414 (2016). [6] J. Hodgkinson and R. P. Tatam, 《测量科学与技术》24, 012004 (2012). [7] G. Ycas, F. R. Giorgetta, E. Baumann, I. Coddington, D. Herman, S. A. Diddams, and N. R. Newbury, Nature Photonics 12, 202 (2018). [8] C. Bao, Z. Yuan, L. Wu, M.-G. Suh, H. Wang, Q. Lin, and K. J. Vahala, 《自然·通讯》12 (2021), 10.1038/s41467-021-26958-6. [9] D. Peng, C. Gu, Z. Zuo, Y. Di, X. Zou, L. Tang, L. Deng, D. Luo, Y. Liu, and W. Li, 《自然·通讯》14 (2023), 10.1038/s41467-023-36509-w. [10] Z. Wan, Y. Chen, X. Zhang, M. Yan, and H. Zeng, Light: Science & Applications 14 (2025), 10.1038/s41377-025-01891-1.[11] F. R. Giorgetta, I. Coddington, E. Baumann, W. C. Swann, and N. R. Newbury, Nature Photonics 4, 853 (2010). [12] J. Faist, F. Capasso, D. L. Sivco, C. Sirtori, A. L. Hutchin- son, and A. Y. Cho, Science 264, 553 (1994). [13] I. Vurgaftman, R. Weih, M. Kamp, J. R. Meyer, C. L. Canedy, C. S. Kim, M. Kim, W. W. Bewley, C. D. Merritt, J. Abell, and S. Höfling, 《物理学杂志D：应用物理》48, 123001 (2015). [14] Z.-T. Zhang, C.-F. Cheng, Y. R. Sun, A.-W. Liu, and S.-M. Hu, Optics Express 28, 27600 (2020). [15] Z.-T. Zhang, Y. Tan, J. Wang, C.-F. Cheng, Y. R. Sun, A.-W. Liu, and S.-M. Hu, 《光学快报》45, 1013 (2020). [16] D. B. Foote, M. J. Cich, W. C. Hurlbut, U. Eismann, A. T. Heiniger, and C. Haimberger, Optics Express 29, 5295 (2021). [17] J. D. Musgraves, J. Hu, and L. Calvez, 《施普林格玻璃手册》(Springer Nature, 2019). [18] C. S. Goldenstein, V. A. Miller, R. Mitchell Spearrin, and C. L. Strand, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 200, 249 (2017). [19] I. Gordon, L. Rothman, R. Hargreaves, R. Hashemi, E. Karlovets, F. Skinner, E. Conway, C. Hill, R. Kochanov, Y. Tan、P. Wcisło、A. Finenko、K. Nelson、P. Bernath、M. Birk、V. Boudon、A. Campargue、K. Chance、A. Coustenis、B. Drouin、J.-M. Flaud、R. Gamache、J. Hodges、D. Jacquemart、E. Mlawer、A. Nikitin、V. Perevalov、M. Rotger、J. Tennyson、G. Toon、H. Tran、V. Tyuterev、E. Adkins、A. Baker、A. Barbe、E. Canè、A. Császár、A. Dudaryonok、O. Egorov、A. Fleisher、H. Fleurbaey、A. Foltynowicz、T. Furtenbacher、J. Harrison、J.-M. Hartmann、V.-M. Horneman、X. Huang、T. Karman、J. Karns、S. Kassi、I. Kleiner、V. Kofman、F. Kwabia-Tchana、N. Lavrentieva、T. Lee、D. Long、A. Lukashevskaya、O. Lyulin、V. Makhnev、W. Matt、S. Massie、M. Melosso、S. Mikhailenko、D. Mondelain、H. Müller、O. Naumenko、A. Perrin、O. Polyansky、E. Raddaoui、P. Raston、Z. Reed、M. Rey、C. Richard、R. Tóbiás、I. Sadiek、D. Schwenke、E. Starikova、K. Sung、F. Tamassia、S. Tashkun、J. Vander Auwera、I. Vasilenko、A. Vigasin、G. Villanueva、B. Vispoel、G. Wagner、A. Yachmenev和S. Yurchenko，Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 277, 107949 (2022年)。[20] Y. Zhang、A. Carballo、H. Yang和K. Takeda，《ISPRS摄影测量与遥感杂志》196, 146 (2023年)。[21] D. W. Preston，《美国物理学杂志》64, 1432 (1996年)。[22] D. Thomson、A. Zilkie、J. E. Bowers、T. Komljenovic、G. T. Reed、L. Vivien、D. Marris-Morini、E. Cassan、L. Virot、J.-M. Fédéli、J.-M. Hartmann、J. H. Schmid、D.-X. Xu、F. Boeuf、P. O'Brien、G. Z. Mashanovich和M. Nedeljkovic，《光学杂志》18, 073003 (2016年)。[23] P. Marin-Palomo、J. N. Kemal、M. Karpov、A. Kordts、J. Pfeifle、M. H. P. Pfeiffer、P. Trocha、S. Wolf、V. Brasch、M. H. Anderson、R. Rosenberger、K. Vijayan、W. Freude、T. J. Kippenberg和C. Koos，《自然》546, 274 (2017年)。[24] I. Kim、R. J. Martins、J. Jang、T. Badloe、S. Khadir、H.-Y. Jung、H. Kim、J. Kim、P. Genevet和J. Rho，《自然·纳米技术》16, 508 (2021年)。[25] H. Shu、L. Chang、Y. Tao、B. Shen、W. Xie、M. Jin、A. Netherton、Z. Tao、X. Zhang、R. Chen、B. Bai、J. Qin、S. Yu、X. Wang和J. E. Bowers，《自然》605, 457 (2022年)。[26] K. Y. Yang、C. Shirpurkar、A. D. White、J. Zang、L. Chang、F. Ashtiani、M. A. Guidry、D. M. Lukin、S. V. Pericherla、J. Yang、H. Kwon、J. Lu、G. H. Ahn、K. Van Gasse、Y. Jin、S.-P. Yu、T. C. Briles、J. R. Stone、D. R. Carlson、H. Song、K. Zou、H. Zhou、K. Pang、H. Hao、L. Trask、M. Li、A. Netherton、L. Rechtman、J. S. Stone、J. L. Skarda、L. Su、D. Vercruysse、J.-P. W. MacLean、S. Aghaeimeibodi、M.-J. Li、D. A. B. Miller、D. M. Marom、A. E. Willner、J. E. Bowers、S. B. Papp、P. J. Delfyett、F. Aflatouni和J. Vučković，《自然·通讯》13 (2022年), 10.1038/s41467-022-35446-4。

[27] X. Guo、X. Ji、B. Yao、T. Tan、A. Chu、O. Westreich、A. Dutt、C. Wong和Y. Su，纳米光子学 12, 167–196 (2023年)。[28] J. Zhou、D. Al Husseini、J. Li、Z. Lin、S. Sukhishvili、G. L. Coté、R. Gutierrez-Osuna和P. T. Lin，《科学报告》12 (2022年), 10.1038/s41598-022-09597-9。[29] H. Dely、T. Bonazzi、O. Spitz、E. Rodriguez、D. Gacemi、Y. Todorov、K. Pantzas、G. Beaudoin、I. Sagnes、L. Li、A. G. Davies、E. H. Linfield、F. Grillot、A. Vasanelli和C. Sirtori，Laser & Photonics Reviews 16 (2021年), 10.1002/lpor.202100414。[30] K. Ko、D. Suk、D. Kim、S. Park、B. Sen、D.-G. Kim、Y. Wang、S. Dai、X. Wang、R. Wang、B. J. Chun、K.-H. Ko、P. T. Rakich、D.-Y. Choi和H. Lee，《自然·通讯》16 (2025年), 10.1038/s41467-025-58010-2。[31] J. Fuchsberger、T. P. Letsou、D. Kazakov、R. Szedlak、F. Capasso和B. Schwarz，Optica 12, 985 (2025年)。[32] C. Y. Wang、T. Herr、P. Del'Haye、A. Schliesser、J. Hofer、R. Holzwarth、T. W. Hänsch、N. Picqué和T. J. Kippenberg，《自然·通讯》4, 1345 (2013年)。[33] M. Yu、Y. Okawachi、A. G. Griffith、M. Lipson和A. L. Gaeta，Optica 3, 854 (2016年)。[34] B. Meng、M. Singleton、J. Hillbrand、M. Franckié、M. Beck和J. Faist，Nature Photonics 16, 142 (2021年)。[35] N. Opačak、D. Kazakov、L. L. Columbo、M. Beiser、T. P. Letsou、F. Pilat、M. Bra mbilla、F. Prati、M. Piccardo、F. Capasso和B. Schwarz，《自然》625, 685 (2024年)。[36] D. Kazakov、T. P. Letsou、M. Piccardo、L. L. Columbo、M. Brambilla、F. Prati、S. Dal Cin、M. Beiser、N. Opačak、P. Ratra、M. Pushkarsky、D. Caffey、T. Day、L. A. Lugiato、B. Schwarz和F. Capasso，《自然》641, 83 (2025年)。[37] D. Kazakov、T. P. Letsou、M. Beiser、Y. Zhi、N. Opačak、M. Piccardo、B. Schwarz和F. Capasso，《自然·通讯》15 (2024年), 10.1038/s41467-023-44628-7。[38] Z. Ye、H. Jia、Z. Huang、C. Shen、J. Long、B. Shi、Y.-H. Luo、L. Gao、W. Sun、H. Guo、J. He和J. Liu，Photonics Research 11, 558 (2023年)。[39] R. A. Soref、S. J. Emelett和W. R. Buchwald，光学杂志A：纯粹与应用光学 8, 840–848 (2006年)。[40] R. Kitamura、L. Pilon和M. Jonasz，《应用光学》46, 8118 (2007年)。[41] H. Lin、Z. Luo、T. Gu、L. C. Kimerling、K. Wada、A. Agarwal和J. Hu，纳米光子学 7, 393 (2017年)。[42] K. J. Vahala，《自然》424, 839 (2003年)。[43] Y. Okawachi、M. R. E. Lamont、K. Luke、D. O. Carvalho、M. Yu、M. Lipson和A. L. Gaeta，光学快报 39, 3535 (2014年)。[44] A. G. Griffith、R. K. W. Lau、J. Cardenas、Y. Okawachi、A. Mohanty、R. Fain、Y. H. D. Lee、M. Yu、C. T. Phare、C. B. Poitras、A. L. Gaeta和M. Lipson，《自然·通讯》6, 6299 (2015年)。[45] W. A. Lanford和M. J. Rand，应用物理杂志 49, 2473 (1978年)。[46] K. O. Bugaev、A. A. Zelenina和V. A. Volodin，《国际光谱学杂志》2012, 281851 (2012年)。[47] K. Luke、Y. Okawachi、M. R. E. Lamont、A. L. Gaeta和M. Lipson，光学快报 40, 4823 (2015年)。[48] J. Liu、A. S. Raja、M. Karpov、B. Ghadiani、M. H. P. Pfeiffer、B. Du、N. J. Engelsen、H. Guo、M. Zervas和T. J. Kippenberg，Optica 5, 1347 (2018年)。[49] S. A. Miller、M. Yu、X. Ji、A. G. Griffith、J. Cardenas、A. L. Gaeta和M. Lipson，Optica 4, 707 (2017年)。[50] V. Lucarini、K.-E. Peiponen、J. J. Saarinen和E. M. Vartiainen，克拉默斯-克罗尼格关系与求和规则于线性光学（Springer Berlin Heidelberg，2005年）。[51] Y. Hu、Z. Shang、C. Zhang、W. Zheng、H. Long、S. Huang、B. Shi、Z. Zhong、Y. Ning、H. Tan、W. Sun、Y.-H. Luo、X. Ying、Z.-C. Niu和J. Liu，即将发表于arXiv（2026年）。[52] A. Rao、G. Moille、X. Lu、D. A. Westly、D. Sacchetto、M. Geiselmann、M. Zervas、S. B. Papp、J. Bowers和K. Srinivasan，Light: Science & Applications 10（2021年），10.1038/s41377-021-00549-y。[53] H. Guo、C. Herkommer、A. Billat、D. Grassani、C. Zhang、M. H. P. Pfeiffer、W. Weng、C.-S. Brès和T. J. Kippenberg，Nature Photonics 12，330（2018年）。[54] D. Grassani、E. Tagkoudi、H. Guo、C. Herkommer、F. Yang、T. J. Kippenberg和C.-S. Brès，《自然·通讯》10，1553（2019年）。[55] G. Granger、M. Bailly、H. Delahaye、C. Jimenez、I. Tiliouine、Y. Leventoux、J.-C. Orlianges、V. Couderc、B. Gérard、R. Becheker、S. Idlahcen、T. Godin、A. Hideur、A. Grisard、E. Lallier和S. Février，Light: Science & Applications 12（2023年），10.1038/s41377-023-01299-9。[56] H.-J. Chen、Q.-X. Ji、H. Wang、Q.-F. Yang、Q.-T. Cao、Q. Gong、X. Yi和Y.-F. Xiao，《自然·通讯》11，2336（2020年）。[57] M. A. Foster、A. C. Turner、J. E. Sharping、B. S. Schmidt、M. Lipson和A. L. Gaeta，《自然》441, 960（2006年）。[58] Q. Li、M. Davanço和K. Srinivasan，Nature Photonics 10，406（2016年）。[59] F. Li、S. D. Jackson、C. Grillet、E. Magi、D. Hudson、S. J. Madden、Y. Moghe、C. O' Brien、A. Read、S. G. Duvall、P. Atanackovic、B. J. Eggleton和D. J. Moss，Optics Express 19，15212（2011年）。[60] Y.-C. Chang、V. Paeder、L. Hvozdara、J.-M. Hartmann和H. P. Herzig，《光学快报》37，2883（2012年）。[61] M. Nedeljkovic、J. S. Penades、V. Mittal、G. S. Murugan、A. Z. Khokhar、C. Littlejohns、L. G. Carpenter、C. B. E. Gawith、J. S. Wilkinson和G. Z. Mashanovich，Optics Express 25，27431（2017年）。[62] A. Sánchez-Postigo、A. Ortega-Moñux、J. Soler Penadés、A. Osman、M. Nedeljkovic、Z. Qu、Y. Wu、Í. Molina-Fernández、P. Cheben、G. Z. Mashanovich和J. G. Wangüemert-Pérez，Optics Express 29，16867（2021年）。[63] V. Turpaud、T.-H.-N. Nguyen、H. Dely、N. Koompai、A. Bricout、J.-M. Hartmann、N. Bernier、J. Krawczyk、G. Lima、S. Edmond、E. Herth、C. Alonso-Ramos、L. Vivien和D. Marris-Morini，Optics Express 32，17400（2024年）。[64] N. Li、C. P. Ho、J. Xue、L. W. Lim、G. Chen、Y. H. Fu和L. Y. T. Lee，Laser & Photonics Reviews 16, 2100511（2022年）。[65] P. Kumar、L. Morawska、C. Martani、G. Biskos、M. Neophytou、S. Di Sabatino、M. Bell、L. Norford和R. Britter，Environment International 75，199（2015年）。[66] L. Marple，IEEE Transactions on Signal Processing 47，2600（1999年）。[67] J. Olivero和R. Longbothum，Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer 17，233（1977年）。[68] K. Krzempek、G. Sobon和K. M. Abramski，Optics Express 21，20023（2013年）。[69] S. Forouhar、C. Borgentun、C. Frez、R. M. Briggs、M. Bagheri、C. L. Canedy、C. S. Kim、M. Kim、W. W. Bewley、C. D. Merritt、J. Abell、I. Vurgaft man和J. R. Meyer，Applied Physics Letters 105（2014年），10.1063/1.4892655。[70] L. Dong、F. K. Tittel、C. Li、N. P. Sanchez、H. Wu、C. Zheng

快报 **24**, A528 (2016). [71] Z. Qu、J. Nwaboh、O. Werhahn 和 V. Ebert，流动、湍流与燃烧**106**, 533 (2020). [72] Q. Wang、Z. Wang、T. Kamimoto、Y. Deguchi、S. Cao、D. Wen 和 D. Takahara，光谱学学报A辑：分子与生物分子光谱学 **265**, 120333 (2022). [73] J. Gong、R. Q. Yang、Z. Wang 和 J.-J. He，IEEE 光子学技术快报 **35**, 309 (2023). [74] I. Dunayevskiy、J. Kriesel、R. Briggs、C. S. Kim、M. Kim、C. L. Canedy、W. W. Bewley、I. Vurgaftman 和 J. R. Meyer，见 第十九届量子传感与纳米电子学及光子学会议，M. Razeghi、G. A. Khodaparast 和 M. S. Vitiello 编（SPIE，2023），第18页。 [75] S. M. Shah Riyadh、H. Telfah、I. W. Jones、J. S. Bersson、C.-F. Cheng、S.-M. Hu、D. B. Foote 和 J. Liu，《光学快报》 **49**, 4230 (2024). [76] M. Yamada、N. Nada、M. Saitoh 和 K. Watanabe，应用物理快报 **62**, 435 (1993). [77] C. Wang、C. Langrock、A. Marandi、M. Jankowski, M. Zhang、B. Desiatov、M. M. Fejer 和 M. Lončar，《Optica》5，1438（2018）。 [78] Y.-H. Luo、B. Shi、W. Sun、R. Chen、S. Huang、Z. Wang、J. Long、C. Shen、Z. Ye、H. Guo 和 J. Liu，《Light: Science & Applications》13，83（2024）。 [79] T. Ahn、J. Y. Lee 和 D. Y. Kim，《应用光学》44，7630（2005）。 [80] J. H. Shirley，《光学快报》7，537（1982）。 [81] F. Cheng、K. Deng、K. Liu、H. Liu、J. Zhang 和 Z. Lu，《美国光学学会杂志B辑》36，1816（2019）。 [82] A. Arie 和 R. L. Byer，《美国光学学会杂志B辑》10，1990（1993）。 [83] N.-C. Shie、S.-E. Chen、C.-Y. Chang、W.-F. Hsieh 和 J.-T. Shy，《美国光学学会杂志B辑》30，2022（2013）。 [84] D. A. Steck，“碱金属d线数据”，（2023）。 [85] T. G. Tiecke，“钾的性质”，（2019）。 [86] M. Aspelmeyer、T. J. Kippenberg 和 F. Marquardt，《现代物理评论》86，1391（2014）。 [87] M. H. P. Pfeiffer、J. Liu、A. S. Raja、T. Morais、B. Ghadi-ani 和 T. J. Kippenberg，《Optica》5，884（2018）。

《计量级中红外光谱实现多维感知》补充材料

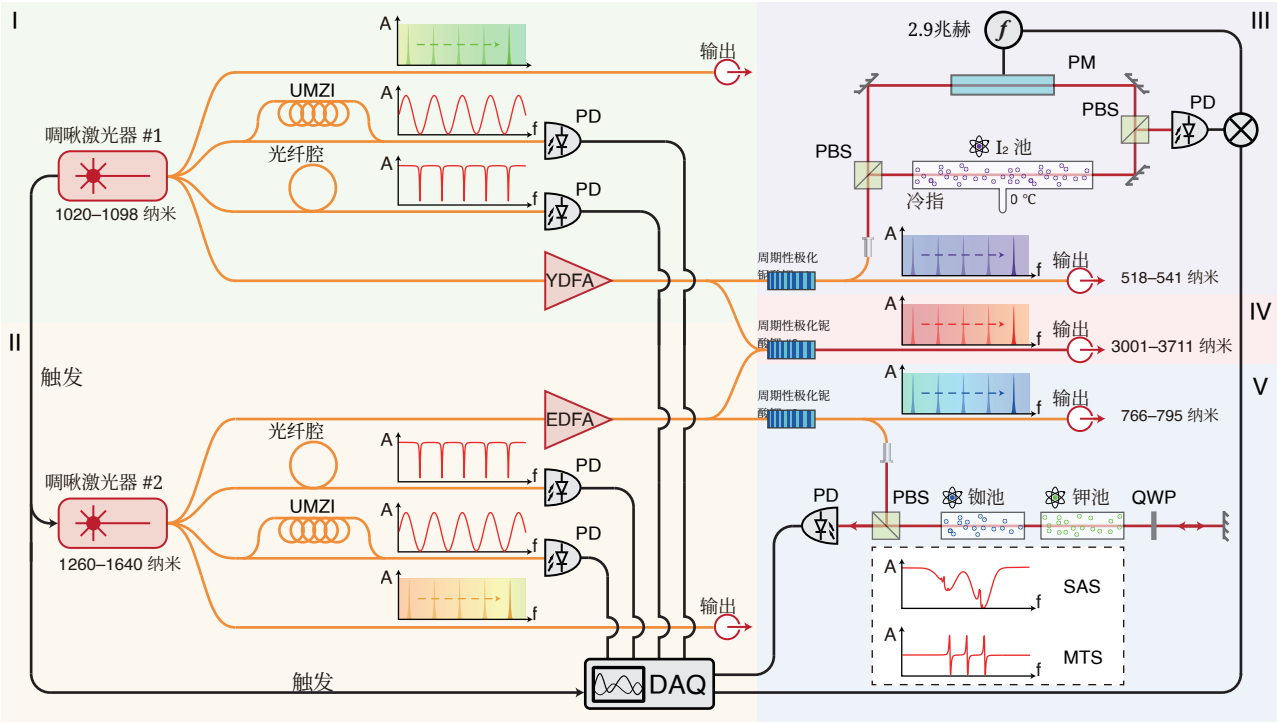
Baoqi Shi、[1,2] Chenxi Zhang、[1,3] Ming-Yang Zheng、[4,5] Yue Hu、[1,6] Zeying Zhong、[1,6] Zhenyuan Shang、[1,6] Wenbo Ma、 4
Xiu-Ping Xie、[4,5] Xue Bai、[1,7] Yi-Han Luo、[1] Anting Wang、[2] Hairun Guo、[8] Qiang Zhang、[4,5,9,10] 和 Junqiu Liu[1], 5、 *

[1] *International Quantum Academy and Shenzhen Futian SUSTech Institute for Quantum Technology and Engineering、 Shenzhen 518048、 China*
[2] *Department of Optics and Optical Engineering、 University of Science and Technology of China、 Hefei 230026、 China*
[3] *College of Physics and Optoelectronic Engineering、 Shenzhen University、 Shenzhen 518060、 China*
[4] *Jinan Institute of Quantum Technology and CAS Center for Excellence in Quantum Information and Quantum Physics、 University of Science and Technology of China、 Jinan 250101、 China*
[5] *Hefei National Laboratory、 University of Science and Technology of China、 Hefei 230088、 China*
[6] *Southern University of Science and Technology、 Shenzhen 518055、 China*
[7] *Qaleido Photonics、 Shenzhen 518048、 China*
[8] *Key Laboratory of Specialty Fiber Optics and Optical Access Networks、 Shanghai University、 Shanghai 200444、 China*
[9] *Hefei National Research Center for Physical Sciences at the Microscale and School of Physical Sciences、 University of Science and Technology of China、 Hefei 230026、 China*
[10] *CAS Center for Excellence in Quantum Information and Quantum Physics、University of Science and Technology of China、 Hefei 230026、 China*

补充说明1. 光谱系统配置与频率计量

实验架构如补充图1所示，旨在同时在五个不同区域（I–V）实现多光谱运行。区域I（1020–1098纳米）和区域II（1260–1640纳米）代表两台近红外（NIR）外腔二极管激光器（ECDL，即啁啾激光器 #1和#2）的基频输出。啁啾激光器 #1由一台Toptica CTL 激光器组成，可在1020–1098纳米范围内进行无跳模调谐。啁啾激光器 #2由三台Santec TSL 激光器组成，共同覆盖1260–1360纳米、1355–1485纳米和1480–1640纳米范围。

这些近红外种子激光器通过非线性频率转换驱动三个衍生波段的产生：可见光输出（区域 III，518–541 nm，通过二次谐波产生（SHG））、中红外（MIR）输出（IV区，3001–3711 nm，通过差频产生（DFG））以及近可见光输出（区域 V，766–795 nm，通过 SHG）。尽管近红外种子激光器具有宽广的调谐范围，但系统的有效工作带宽实际上受掺镱光纤放大器（YDFA，1035–1086 nm）和掺铒光纤放大器（EDFA，1532–1590 nm）的增益曲线限制。因此，只有处于这些增益窗口内的光谱分量才能达到所需功率，以泵浦啁啾周期极化铌酸锂（CPLN）波导；在波导中，啁啾准相位匹配（CQPM）条件进一步筛选出高效频率转换波段。该配置将放大的基频近红外扫描具体映射到以下目标频率：1036–1082 nm 对应 518–541 nm（区域 III）；1532–1590 nm 对应 766–795 nm（区域 V）；以及 1035–1086 nm 和 1536–1580 nm 的组合泵浦光对应 3001–3711 nm（IV区）。



补充图1. 实验装置。a. 光谱系统示意图，按功能划分为五个区域：区域I和II通过光纤腔和不平衡马赫-曾德尔干涉仪跟踪两台近红外泵浦激光器的相对频率校准；区域III和V通过倍频至可见/近可见波段建立绝对频率参考；IV区产生中红外差频产生输出。PD，光电探测器；PBS，偏振分束器；QWP，四分之一波片；DAQ，数据采集系统；PM，相位调制器。右下角插图说明了饱和吸收光谱（SAS）和调制转移光谱（MTS）的原理。

相对频率校准（区域 I 和 II）

为监测啁啾过程中基频激光器的相对频率变化，我们采用自由光谱范围（FSR）经过精确表征的光纤环形腔作为相对频率标尺。

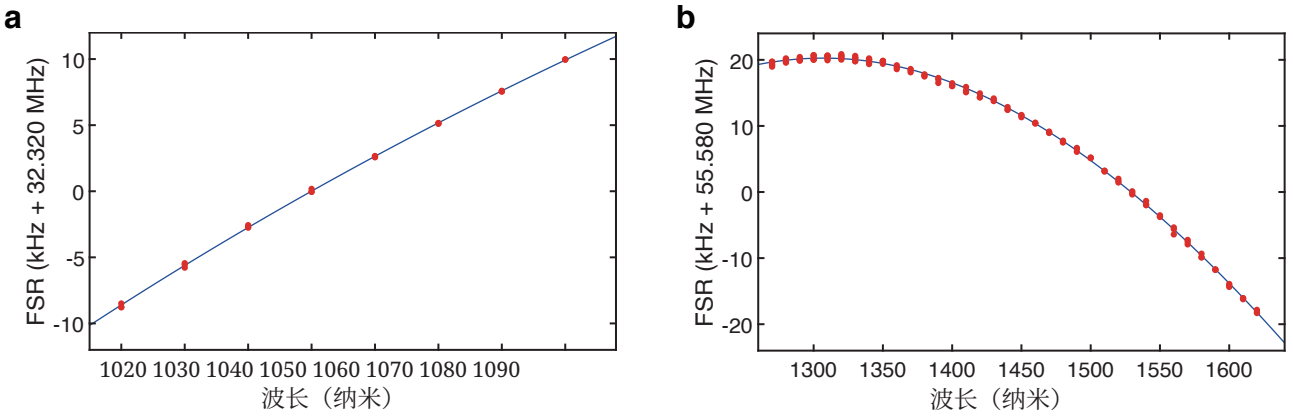
对于区域 I 中的啁啾激光器 #1，采用参考文献[1]所述的边带调制法对光纤腔的自由光谱范围进行校准。该技术利用三个相邻的共振，测量不同波长下的局部自由光谱范围，从而补偿测量带宽内色散引起的变化。我们测量了 1020 至 1098 纳米范围内的自由光谱范围，并使用二次多项式拟合数据（补充图 2a），从而实现二阶色散校准。

类似地，对于区域 II 中的啁啾激光器 #2，我们采用第二个光纤环形腔。测量其在 1260 至 1640 纳米范围内的自由光谱范围，并用三次多项式进行拟合，以校准至三阶色散（补充图2）。

通过记录并计数啁啾激光器扫过的光纤共振数量，计算啁啾激光器的相对频率偏移。光纤共振提供离散的频率标记，而不平衡马赫-曾德尔干涉仪（UMZI）的干涉条纹经插值后，可解析低于一个自由光谱范围的瞬时频率[2]。通过希尔伯特变换[3] 提取瞬时相位 $\phi(t)$，计算相邻采样点之间的相位差 $\Delta\phi$ 。随后得出相应的频率偏移 Δf：

$$\Delta f = \frac{\mathrm{FSR}}{\phi_{\mathrm{FSR}}} \cdot \Delta\phi, \tag{1}$$

其中， ϕ_{FSR} 是对应一个腔自由光谱范围的相位变化。



补充图 2. 光纤腔的校准。a. 测得的光纤腔自由光谱范围（FSR）在 1020 至 1098 纳米范围内的变化。使用二次多项式公式拟合 FSR 曲线。b. 测得的光纤腔 FSR 在 1260 至 1640 纳米范围内的变化。使用三次多项式公式拟合 FSR 曲线。

可见光波段与绝对校准（区域 III）

在区域 III 中，啁啾激光器 #1 的输出经掺镱光纤放大器放大后，在周期性极化铌酸锂波导（CPLN#1）中进行二次谐波产生，获得 518 至 541 μm 的可调谐输出。为实现宽带二次谐波产生相位匹配，CPLN#1 沿长度方向的极化周期从 6.3 线性啁啾至 7.3 μm。调谐曲线如补充图 3a 所示，在 5.0 W 泵浦功率下，二次谐波（SH）功率达到 45.9 mW（补充图 3b）。

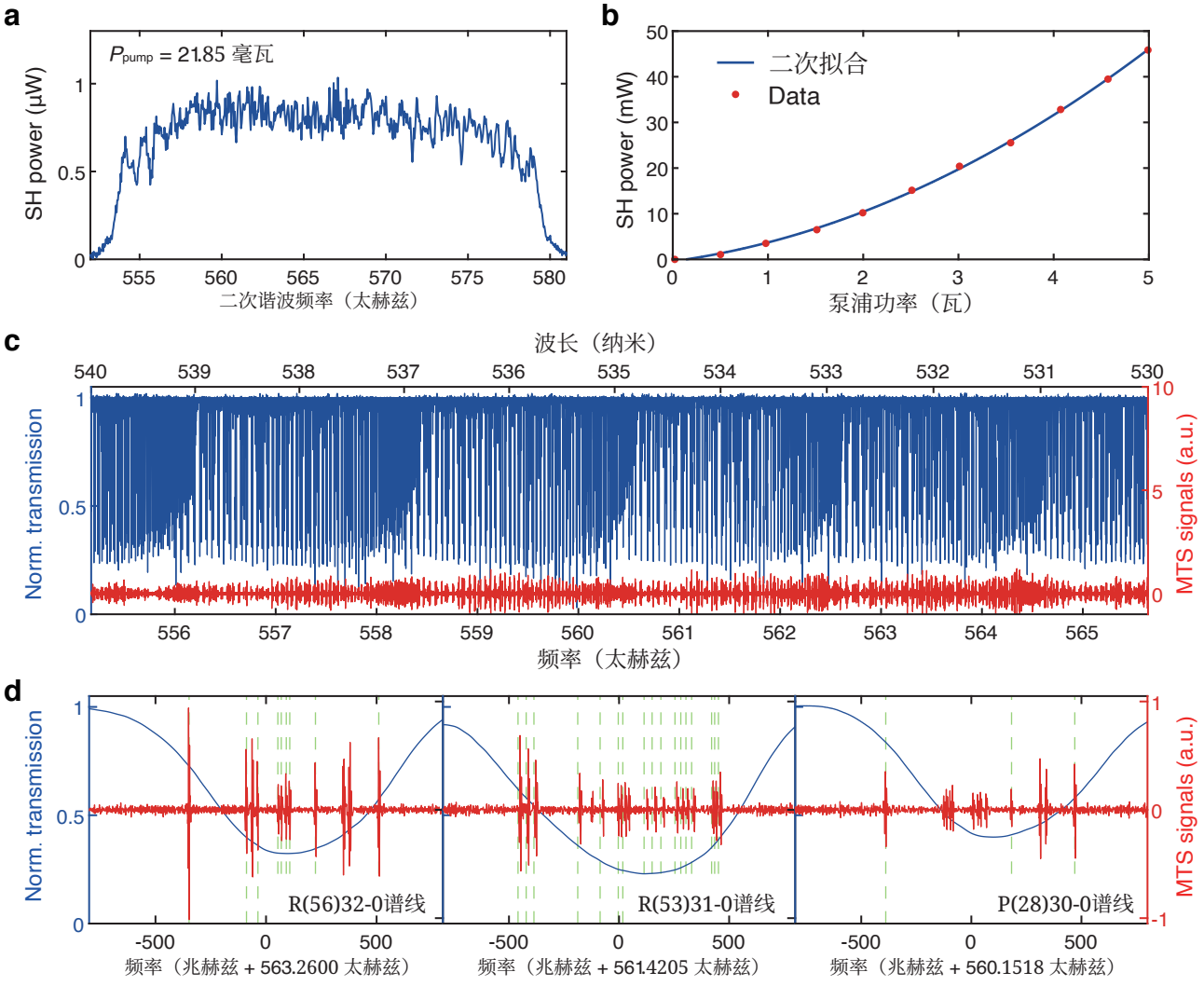
该波段的绝对频率校准通过分子碘（I_2[4–6]）的调制转移光谱（MTS）实现。如补充图 1所示，装置采用一支长 50 cm 的 I_2 蒸气池，其冷指通过热电制冷器（TEC）稳定在 0 °C，以抑制碰撞展宽。以 2.9 兆赫的频率调制 5 mW 泵浦光束以产生边带，并使其与 0.5 mW 探测光束相互作用。当激光与超精细跃迁共振时，四波混频会将边带转移至探测光束，随后对探测光束进行解调以提取调制转移光谱信号。我们在 518–541 nm 波段进行调制转移光谱测量（补充图 3c 显示了其中 530–540 nm 的子区间）。

为建立绝对频率参考，我们利用 I_2 R(56)32-0、R(53)31-0 和 P(28)30-0 谱线的超精细跃迁（补充图3d 中为放大视图）。用于

绝对频率标定的超精细跃迁频率列于补充表I中。绝对频率轴锚定于 I_2 R(56)32-0 谱线（$f_{\mathrm{ref},\ 1} = 563.2600$ 太赫兹）[7]。我们利用 I_2 P(28)30-0 谱线的超精细跃迁（$f_{\mathrm{ref},\ 2} = 560.1518$ 太赫兹）验证由光纤腔得到的相对频率校准。我们观察到，测量值与参考文献[8]，中的数值之间的均方根（RMS）偏差为 $\Delta_1 = -35.8$ 兆赫兹，我们将其归因于光纤腔自由光谱范围的残余色散。因此，我们对二次谐波激光频率应用如下修正：

$$f'_{\mathrm{SH1}} = \frac{f_{\mathrm{SH1}} - f_{\mathrm{ref},1}}{1 + \epsilon_1} + f_{\mathrm{ref},1} \tag{2}$$

其中 $\epsilon_1 = \Delta_1/(f_{\mathrm{ref},\ 1} - f_{\mathrm{ref},\ 2})$。将公式 2 应用于对 I_2 R(53)31-0 跃迁的测量（$f_{\mathrm{ref},\ 3} = 561.4205$ 太赫兹），相对于文献值的残余均方根偏差为 11.7 兆赫兹[5]。由此确定二次谐波激光器精度为 $\delta_{\mathrm{SH1}} \approx 11.7$ 兆赫兹，对应啁啾激光器 # 1 的基频精度为 $\delta_{\mathrm{laser1}} = \delta_{\mathrm{SH1}}/2 \approx 5.9$兆赫兹。



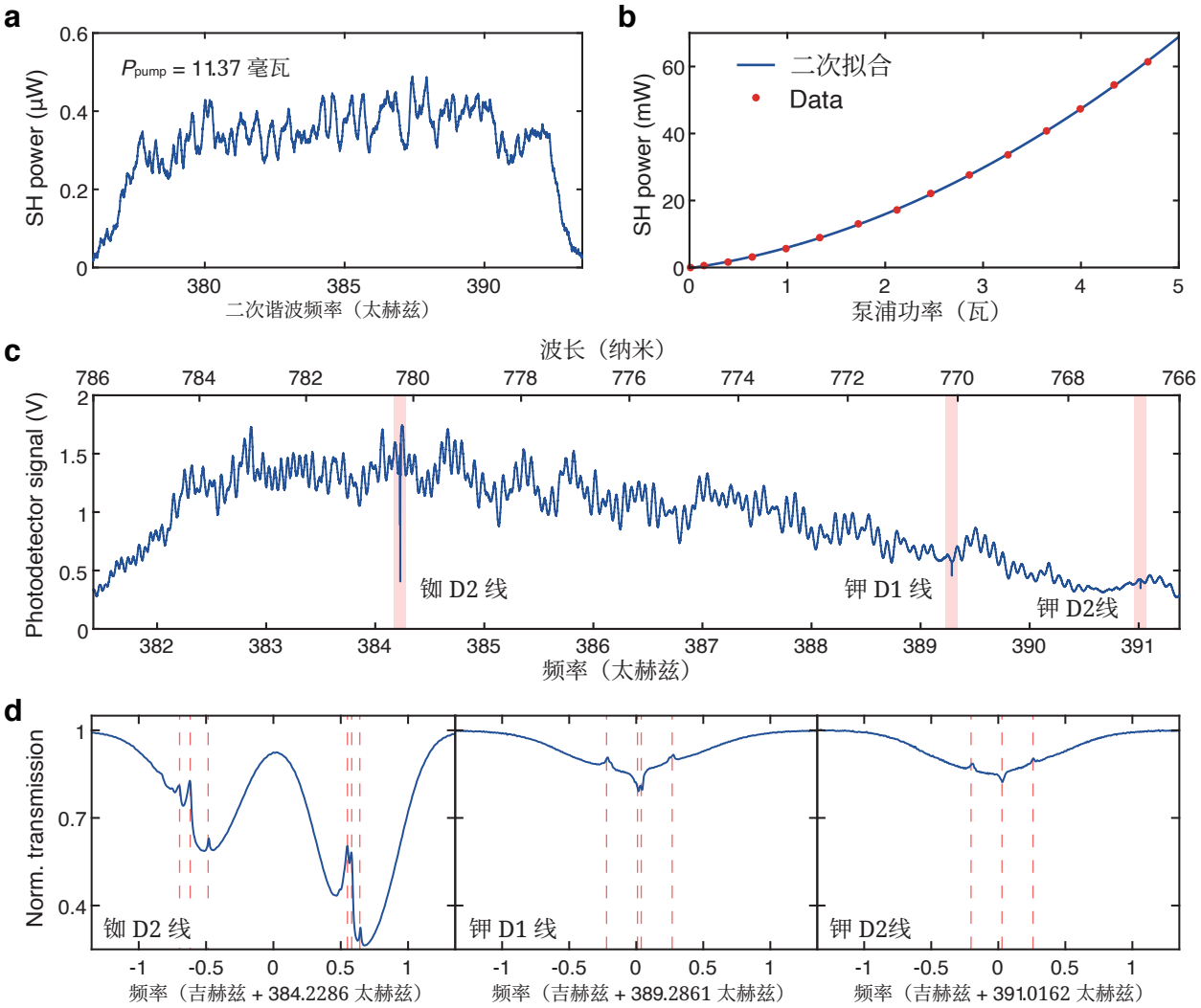
补充图 3. 可见光波段的宽带二次谐波产生性能及绝对频率参考。a. CPLN#1 波导产生的二次谐波激光器带宽。 $P_{\mathrm{pump}} = 21.85$ 毫瓦。b. CPLN#1 波导在不同泵浦功率 P_{pump} 下产生的 518–541 纳米二次谐波功率，波长为 1064 纳米。c. I_2 的吸收光谱和调制转移光谱。d. 测得的 I_2 的 R(56)32-0、R(53)31-0 和 P(28)30-0 谱线。调制转移光谱信号清晰分辨出与这些谱线相关的超精细跃迁，并将其用作啁啾激光器 #1 的绝对频率参考。

近可见光波段与绝对频率校准（区域 V）

在区域 V 中，啁啾激光器 #2 经掺铒光纤放大器放大，并在 CPLN#3 中进行倍频，产生 766–795 纳米光。为实现宽带二次谐波产生相位匹配，CPLN#3 的极化周期沿程线性啁啾，从 18.1 变化至 19.9 μm。调谐曲线见补充图 4a，在 5.0 W 泵浦光下，二次谐波功率达到 68.6 mW（补充图 4b）。

采用铷（Rb）和钾（K）的饱和吸收光谱（SAS）进行绝对频率校准。该装置（补充图 1）使用两个串联的 10 厘米蒸气池，分别装有铷和钾。两束反向传播的二次谐波光束在蒸气池内重叠；当强泵浦光束与超精细跃迁共振时，会为探测光束产生一个透明窗口，从而在多普勒展宽谱线中形成窄峰。

蒸气池产生的光电探测信号如补充图4c所示，其中可分辨出铷 D2 线、K D1 和 D2线。补充图4d展示了铷 D2、K D1 和 K D2 线的放大轮廓。已识别的具体超精细跃迁及其对应的文献频率详见补充表II。



补充图 4. 近可见光波段的宽带二次谐波产生性能与绝对频率参考。a. CPLN#3 波导产生的二次谐波激光器带宽。 $P_{\mathrm{pump}} = 11.37$ 毫瓦。b. CPLN#3 波导在 1560 纳米处、不同泵浦功率 P_{pump} 下产生的 766–795 纳米二次谐波功率。c. 铷原子和钾原子的饱和吸收光谱。d. 铷 D2线、钾 D1 和钾 D2线的饱和吸收光谱。用于绝对频率参考的十三个峰以红色虚线标出。

绝对频率轴以铷 D2 线（$f_{\mathrm{ref},\ 4} = 384.2286$ 太赫兹）[9]为基准。我们利用与 K D2 线相关的超精细跃迁（$f_{\mathrm{ref},\ 5} = 391.0165$ 太赫兹）[10] 来检验基于光纤腔的相对频率校准准确度。测量值与参考文献[10]中的数值之间的均方根偏差为 $\Delta_2 = 28.4$ 兆赫兹。我们进一步校正了二次谐波激光器的频率，如下所示：

$$f'_{\mathrm{SH2}} = \frac{f_{\mathrm{SH2}} - f_{\mathrm{ref},4}}{1+\epsilon_2} + f_{\mathrm{ref},4} \tag{3}$$

其中 $\epsilon_2 = \Delta_2/(f_{\mathrm{ref},\ 4} - f_{\mathrm{ref},\ 5})$。将公式 3 应用于钾 D1 线的测量（$f_{\mathrm{ref},\ 6} = 389.2861$ 太赫兹）时，相对于文献值的残余均方根偏差为 8.2 兆赫兹[10]。由此确定二次谐波激光器精度为 $\delta_{\mathrm{SH2}} \approx 8.2$兆赫兹，对应于啁啾激光器 #2 的基频精度为 $\delta_{\mathrm{laser2}} = \delta_{\mathrm{SH2}}/2 \approx 4.1$ 兆赫兹。

中红外波段（IV区）

在 IV区，通过差频产生获得中红外辐射（3001–3711 nm）。啁啾激光器 #1 和 #2 的放大输出由高功率光纤波分复用器（WDM）合束后耦合至 CPLN#2。波导输出经氟化钙（CaF_2）透镜准直至自由空间，并使用锗（Ge）窗口滤除残余泵浦光束。

表 I。参　　考频率：用于区域 III 校准的 I_2 超精细跃迁。

谱线	Ref.	频率（太赫兹）
R(56)32-0	[7]	563.259651971, 563.259911669, 563.259963337, 563.260053449, 563.260068965, 563.260091597, 563.260107314, 563.260223513, 563.260509925
R(53)31-0	[5]	561.420041099, 561.420078214, 561.420113401, 561.420312353, 561.420413980, 561.420496396, 561.420517033, 561.420613626, 561.420650083, 561.420689990, 561.420753971, 561.420780437, 561.420803713, 561.420829676, 561.420920348, 561.420934177, 561.420951343
P(28)30-0	[8]	560.151411260, 560.151982649, 560.152269813

表 II. Rb 和 K 饱和吸收峰的参考频 率，用于区域 V 的校准。
$CO(i,j)$ 和 $CO'(i,j)$ 分别表示基 态和激发态交叉共振。

Line	Ref.	归属	频率（太赫兹）
^{87}铷 D2	[9]	$F = 2 \to CO'(1,3)$	384.227903407
		$F = 2 \to CO'(2,3)$	384.227981877
		$F = 2 \to F' = 3$	384.228115203
^{85}铷 D2	[9]	$F = 3 \to CO'(2,4)$	384.229149669
		$F = 3 \to CO'(3,4)$	384.229181369
		$F = 3 \to F' = 4$	384.229241689
K D1	[10]	$F = 2 \to CO'(1,2)$	389.2858787
		$CO(1,2) \to CO'(1,2)$	389.2861095
		$CO(1,2) \to F' = 2$	389.2861373
		$F = 1 \to F' = 2$	389.2863681
K D2	[10]	$F = 2 \to F'$	391.0159969
		$CO(1,2) \to F'$	391.0162278
		$F = 1 \to F'$	391.0164586

补充说明 2. CPLN波导的设计与制作

器件设计与理论框架

本研究设计并制作了 CPLN 波导，通过差频产生覆盖 3001–3711 nm 的宽带中红外激光。补充图 5a 和 b 展示了器件的横截面与纵向几何结构。铌酸锂（$LiNbO_3$）脊形波导的顶部宽度为 9μm，刻蚀深度为 5 μm，总厚度为 10 μm，侧壁角为 70°。器件总长度为 20 mm。为满足宽光谱范围内的啁啾准相位匹配条件，极化周期（Λ）沿传播方向从 27 μm 线性啁啾至 28μm。

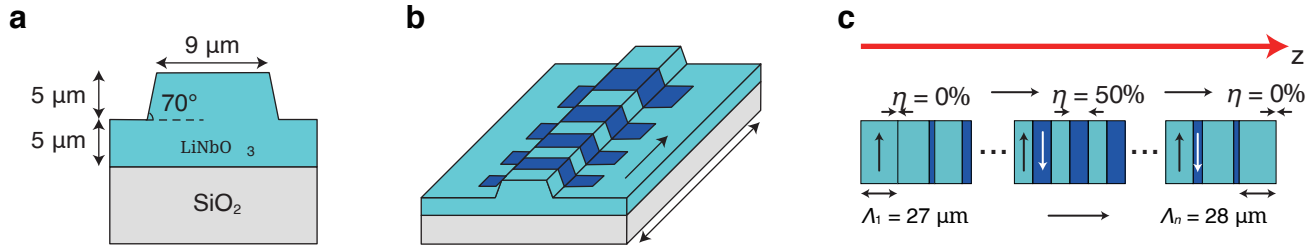
在低转换效率区间（泵浦未耗尽近似）并假设群速度失配可忽略时，理论上的差频产生光谱响应可由非线性光栅轮廓的傅里叶变换描述：

$$\left|\widehat{D}(\omega)\right|^2 = \left|\frac{2\pi}{\lambda_{\text{signal}} n_{\text{idler}}} \int_{-\infty}^{\infty} \mathrm{d}z\ \tilde{d}(z) \exp\left(-i\Delta k' z\right)\right|^2, \tag{4}$$

此处， $\Delta k' = k_{\text{pump}} - k_{\text{signal}} - k_{\text{idler}}$ 表示由材料色散引起的波矢失配，其中 k 是相应光频下的波矢。下标“pump”“signal”和“idler”分别指输入场（来自啁啾激光器 #1 和啁啾激光器 #2）以及生成的中红外输出。 $\tilde{n}_{\text{idler}}$表示闲频光波长处的有效折射率。复函数 $d(z)$描述了沿传播轴 z分布的有效非线性光学系数：

$$\tilde{d}(z) = \mathrm{rect}(z/L)\,\frac{2}{\pi}\sin[\pi\eta(z)]\exp\left[-i\int_0^z K_{\text{CQPM}}(z')\mathrm{d}z'\right], \tag{5}$$

其中 $\eta(z)$为极化占空比， L 为相互作用长度， $K_{\text{CQPM}}(z) = 2\pi/\Lambda(z)$对应局部光栅矢量。如式4所示，差频产生调谐曲线直接映射为光栅结构的空间频率谱[11]。准相位匹配结构由空间变化的极化周期 $\Lambda(z)$和占空比 $\eta(z)$表征，详见补充图5c。此处， $\eta(z)$表示单个局部周期内反转畴所占的比例。



补充图 5. 周期性极化铌酸锂波导的设计与几何结构。a. 脊形波导几何结构示意图。$LiNbO_3$, 铌酸锂。SiO_2, 二氧化硅。b. 显示周期性极化铌酸锂波导极化周期 Λ 和占空比 η 的纵向轮廓。

用于实现光谱平坦度的占空比加窗

要实现具有平坦光谱轮廓的宽带中红外激光器，优化差频产生过程的光谱响应至关重要。我们评估了沿整个传播长度具有均匀占空比（$\eta = 50\%$）的周期性极化铌酸锂波导（补充图 6a，蓝色曲线）。通过模拟泵浦光固定为 1079 nm、信号光在 1500 至 1650 nm 范围内扫描时的差频产生过程，理论调谐曲线预测中红外光谱覆盖范围为 3309–3632 nm（补充图 6b）。然而，非线性相互作用区的突然截断会引入显著的通带波纹，即吉布斯振荡。

为抑制这些效率振荡，我们对极化占空比 η进行空间渐变加窗。在线性渐变加窗方案中， η 在最初的 3 mm 内从 0% 线性增加至 50%，并在

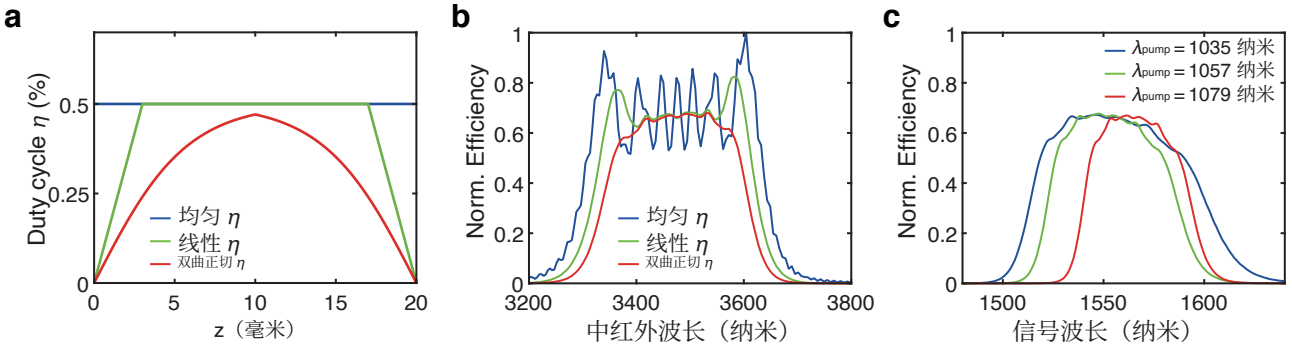
最后的 3 mm（补充图6a，绿色曲线）内对称地逐渐减小。理论调谐曲线显示，波纹得到了一定程度的抑制（补充图6b）。然而，在调谐曲线的带边附近仍存在明显的波动。因此，我们采用了更稳健的双曲正切（tanh）加窗轮廓（补充图6a，红色曲线），其定义如下：

$$\eta(z) = \begin{cases} 0.5\tanh\left(\frac{\beta z}{L}\right) & 0 < z \le L/2 \\ 0.5\tanh\left[\frac{\beta(L-z)}{L}\right] & L/2 < z \le L \end{cases} \tag{6}$$

其中 L 为波导长度，β 为切趾参数[12]。通过设置 $\beta = 7$，该轮廓有效消除了相互作用区的硬截断，从而抑制吉布斯振荡，同时保持带宽（3330–3615 nm）。所得调谐曲线呈现出理想的平顶光谱轮廓，如补充图6b 所示。

虽然切趾可确保光谱响应平坦，但宽带能力本质上源于啁啾光栅结构。该设计提供了倒格矢的连续分布（K_{CQPM}），使啁啾准相位匹配条件能够在宽范围的泵浦波长和信号波长下得到满足。从物理上看，改变泵浦波长或信号波长，只会使局域相互作用区沿波导纵轴移动，而不会牺牲转换效率。

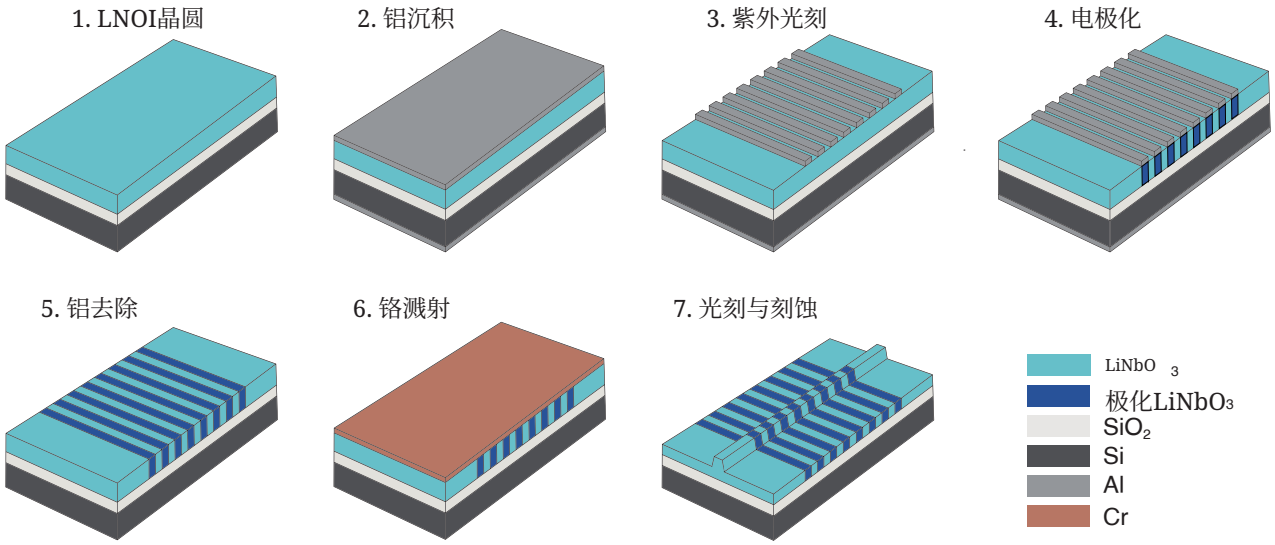
利用啁啾准相位匹配宽泛的接受范围，我们采用泵浦调谐策略，以克服固定泵浦波长的带宽限制。如补充图6c 所示，在 λ_{pump} 1035 nm、1057 nm 和 1079 nm 之间切换时，信号波长在 1536–1580 nm 范围内调谐，均能持续满足相位匹配条件。因此，通过协同调谐泵浦激光器和信号激光器，我们能够产生宽带中红外激光光谱。正如正文所示，该双调谐方案可实现从 3001 nm 到 3711 nm 的连续覆盖，表明同步调谐工作于掺镱光纤放大器（泵浦光）和掺铒光纤放大器（信号光）增益带内的激光器，可有效覆盖整个分子官能团区。



补充图 6. 为实现宽带光谱平坦度而优化的极化占空比轮廓。a. 占空比 η 沿传播方向的空间分布。比较了三种轮廓：均匀分布（蓝色）、线性渐变加窗方案（绿色），以及形状参数为 $\beta = 7$ （红色）的双曲正切（tanh）渐变加窗轮廓。b. 与三种波导设计对应的理论差频产生调谐曲线。c. 不同泵浦波长 λ_{pump}对应的理论差频产生调谐曲线。

周期性极化铌酸锂波导的制备工艺

周期性极化铌酸锂波导的制备流程如补充图 7所示。该器件制备于商用绝缘体上铌酸锂（LNOI）晶圆（NANOLN Inc.）上，其结构包括一层厚度为 10-μm 的 z 切 MgO 掺杂 $LiNbO_3$ 薄膜，键合在厚度为 2-μm 的热 SiO_2 层上，并以硅衬底为基底。首先，通过电子束蒸发在 $LiNbO_3$ 表面制备铝（Al）电极，随后采用标准紫外光刻和湿法刻蚀进行图案化。接着，在电极间施加高压脉冲，实现周期极化。之后，去除铝电极，并在薄膜上溅射和图案化铬（Cr）硬掩模。最后，采用电感耦合等离子体（ICP）刻蚀，将脊形波导几何结构转移至 $LiNbO_3$ 层中。

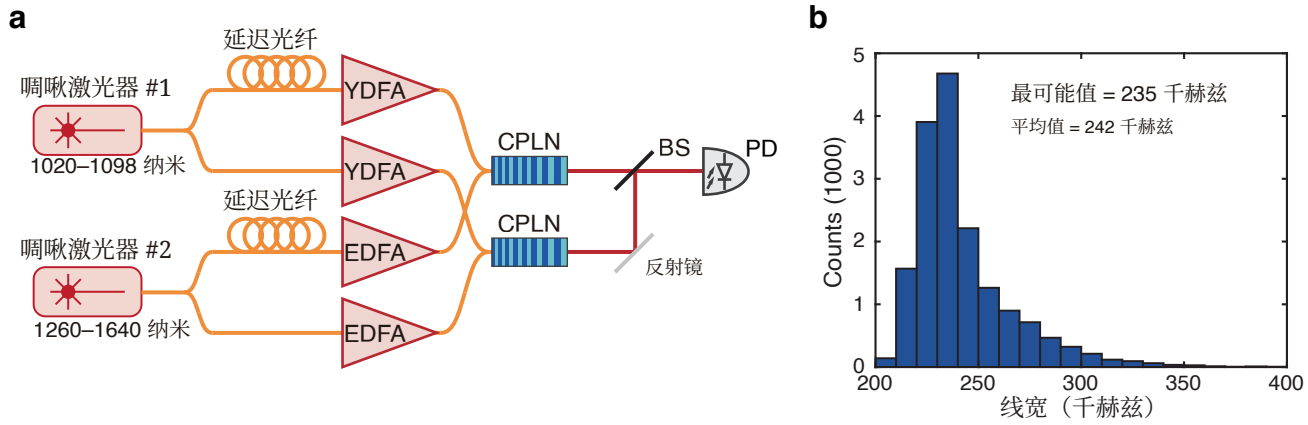


补充图7. CPLN波导的制备工艺流程。LNOI，绝缘体上铌酸锂。Si，硅。Al，铝。Cr，铬。

补充说明3. 中红外激光器的动态线宽

补充图 8a 展示了用于表征中红外激光器动态线宽的自延迟外差装置。为确保信号失相干，啁啾激光器 #1 被分为两路。其中一路通过一段长达 20,408 米的光纤，产生的时间延迟超过激光器的相干时间。随后，两路信号均由掺镱光纤放大器放大。同样，啁啾激光器 #2 被分为两路，其中一路通过一段长达 20,216 米的光纤进行延迟；两路信号均由掺铒光纤放大器放大。来自激光器 #1 和激光器 #2 的未延迟泵浦光在周期性极化铌酸锂波导中进行差频产生，生成第一束中红外光束。与此同时，延迟后的泵浦光在另一条周期性极化铌酸锂波导中生成第二束中红外光束。因此，生成的两束中红外光束彼此不相干。这些光束在空间上合束，其干涉拍频信号由光电探测器（PD）记录。

在中心波长为 3.56 μm 的测量过程中，激光以约 1.4 THz/s 的速率啁啾。记录时间域拍频信号，并使用窗长为 100μs 的短时傅里叶变换（STFT）将其转换到频域。我们分析了 16,775 个拍频信号的线宽，所得直方图见补充图 8b。100-μs 窗对应的统计线宽为 242 kHz，最可能值为 235 kHz。该测得的线宽包含激光的本征线宽、啁啾非线性以及光纤延迟线中的波动。根据这些结果，我们确定光谱系统的频率分辨率为 242 kHz。



补充图8。a. 自延迟外差测量示意图。BS，分束器。b. 3.56 μm 处测得的中红外啁啾激光动态线宽直方图。这里选取 16,775 段拍频信号，并使用 STFT 进行处理，以提取激光线宽。

补充　说明 4. 中红外微谐振器表征　　n

硅$_3$氮$_4$ 微谐振器的表征在 3001–3711 nm（81–100 太赫兹）波段进行。器件采用宽度均匀为 3 μm 的波导，母线波导与微谐振器之间的耦合间隙分别为 300、350、400 和 450 nm。为提取损耗参数，将测得的共振拟合到洛伦兹模型[13,14]:

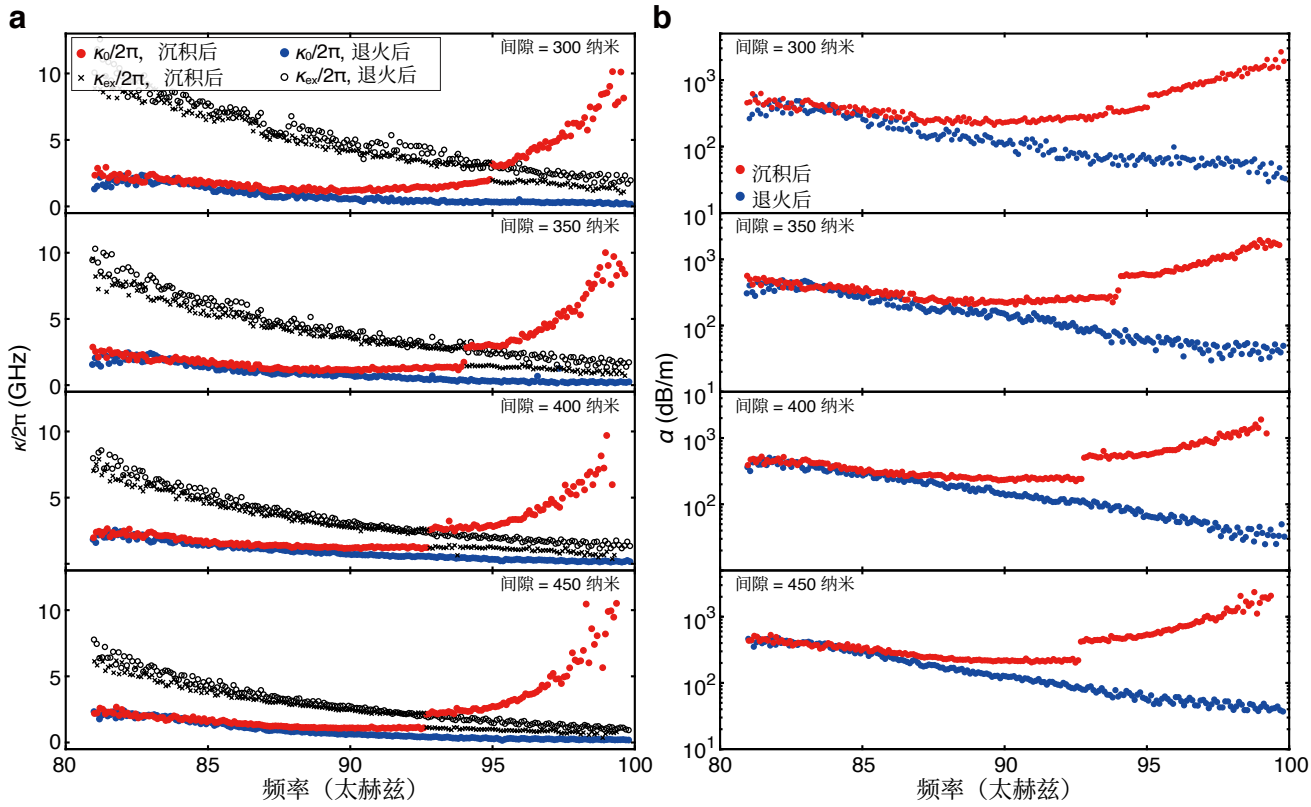
$$T(\omega) = 1 - \frac{4\kappa_{\mathrm{ex}}\kappa_0}{\Delta\omega^2 + (\kappa_{\mathrm{ex}} + \kappa_0)^2} \tag{7}$$

其中，$\Delta\omega/2\pi$ 为激光失谐，$\kappa_0/2\pi$ 为本征损耗，$\kappa_{\mathrm{ex}}/2\pi$ 为外部耦合强度。结果汇总于补充图 9a。

在 93–95 太赫兹窗口内，提取的 κ_0 和 κ_{ex} 沉积态谐振器的参数呈现局部不连续性。该光谱区域对应于一个交叉点，此处强烈材料吸收的开始会驱动系统从过耦合状态转变为欠耦合状态。虽然透射曲线在交换 κ_0 和 κ_{ex}（公式 7）后在数学上保持不变，但我们通过验证 κ_{ex}

对间隙尺寸的指数依赖关系（补充图 9a）来消除这一歧义。观测到的交叉点附近数值伪影源于这两个拟合参数在数值上变得无法区分（$\kappa_0 \approx \kappa_{ex}$）。在此极限情况下，实验噪声因素——例如光电探测器暗电流和背景波动——掩盖了二者之间的差异，从而引入数值偏差，表现为所观测到的不连续性。

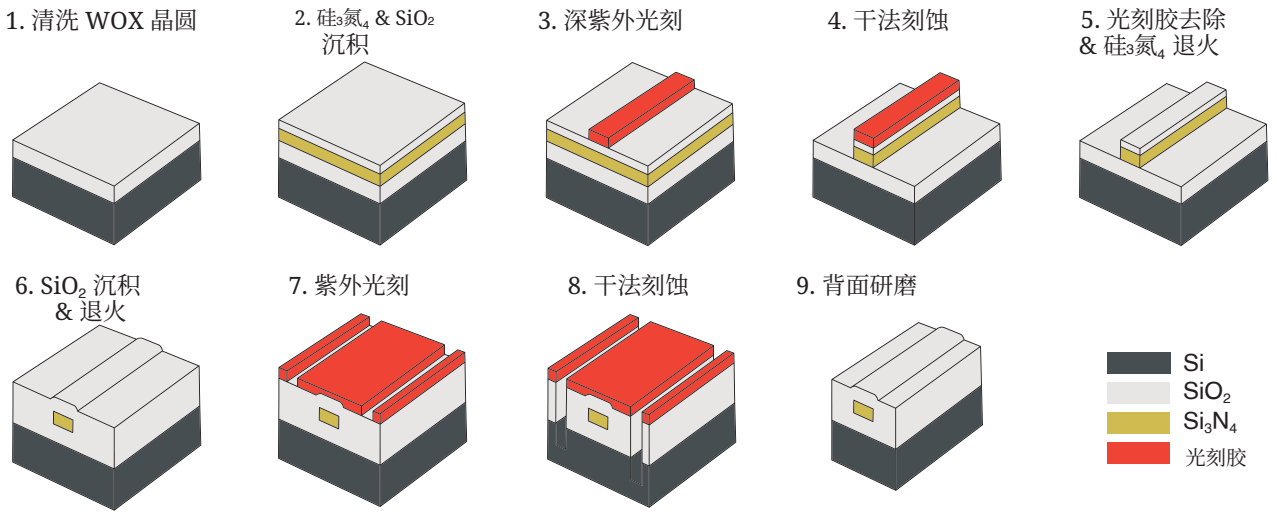
相应的线性传播损耗 α汇总于补充图 9b 中。沉积后的 Si_3N_4微谐振器在接近 100 THz 处呈现出强烈的吸收特征，这归因于 N-H 键伸缩振动；在测量器件中，峰值损耗范围为 ~1900 至 2650 dB m^{-1} 。重要的是，高温热退火可将这些损耗降低两个数量级，使传输损耗降至 ~30 dB m^{-1} （100 THz 处）。



补充图 9. 硅$_3$氮$_4$ 微谐振器的表征。a. 针对波导与微谐振器间隙为 300、350、400 和 450 纳米时，提取的本征损耗（$\kappa_0/2\pi$）和外部耦合强度（$\kappa_{ex}/2\pi$）随频率的变化。 κ_{ex} 随间隙变化的趋势可用于识别耦合机制。b. 随频率变化的线性传播损耗（α）。沉积后器件在约 100 太赫兹附近表现出强吸收峰，归因于 N-H 键伸缩振动。高温退火将这些损耗抑制约两个数量级，使背景损耗降至 ~30 dB m^{-1}。

补充说明 5. 氮化硅集成波导的制备工艺

氮化硅 (Si_3N_4) 集成波导采用优化的深紫外 (DUV) 减法工艺[15]，，在 150 毫米（6 英寸）硅晶圆上制备，如补充图 10 所示。首先，通过低压化学气相沉积 (LPCVD)，在带有热生长湿法二氧化硅 (SiO_2) 缓冲层的硅衬底上沉积厚度为 1050 纳米的 Si_3N_4 薄膜。为缓解 LPCVD Si_3N_4 薄膜特有的高固有拉应力（~1.1–1.4 GPa），我们采用多步沉积法，并在各步骤之间进行热循环[16]。该方法有效缓解了薄膜应力，制得无裂纹晶圆。随后，通过 LPCVD 沉积 SiO_2 硬掩模层。利用深紫外步进光刻定义器件图案，并通过干法刻蚀将图案转移至 SiO_2 硬掩模和下方的 Si_3N_4 层。刻蚀过程中采用优化的 CHF_3/O_2 气体化学体系，以确保形成超光滑的垂直侧壁，这对于最大限度降低光散射损耗至关重要。去除光刻胶后，将晶圆置于氮气氛围中，在 1200 °C 下进行热退火。此高温退火步骤可去除残余氢杂质，从而显著抑制与 N-H 键相关的光吸收损耗。最后，沉积厚度为 3 微米的 SiO_2 顶部包层，随后在 1200 °C 下进行第二次退火。通过紫外光刻和深干法刻蚀定义芯片端面及尺寸，再通过背面研磨和切割将晶圆分割成单个芯片。



补充图10. 6英寸晶圆硅$_3$氮$_4$ 化硅代工制造的深紫外减法工艺流程。WOX，热湿氧化层（SiO_2）。

补充说明6. 调频连续波激光雷达的啁啾非线性线性化

在实际的调频连续波（FMCW）系统中，频率啁啾偏离完美线性是不可避免的[17]。瞬时激光频率， $f_{\mathrm{L}}(t)$，会因实际器件限制而偏离理想的线性斜坡（$f_0+\gamma t$），其描述如下：

$$f_{\mathrm{L}}(t) = f_0 + \gamma t + \delta\nu(t),$$

其中， f_0 是起始频率， γ 是名义啁啾速率， $\delta\nu(t)$表示随时间变化的频率非线性。从根本上说，瞬时光相位 $\phi(t)$根据定义与频率相关： $f_{\mathrm{L}}(t) = \frac{1}{2\pi}\frac{\mathrm{d}\phi(t)}{\mathrm{d}t}$。

拍频信号源于本地振荡器场（时间为 t）与目标反射的信号场之间的干涉，往返延迟为 τ。由此产生的拍频信号取决于这两个场之间的相位差： $\Delta\phi(t) = \phi(t) - \phi(t-\tau)$。在延迟远小于啁啾持续时间（$\tau \ll T_{\mathrm{chirp}}$）的近似条件下，我们可以围绕 t，对 $\phi(t-\tau)$ 作一阶泰勒级数展开：

$$\phi(t-\tau) \approx \phi(t) - \tau\frac{\mathrm{d}\phi(t)}{\mathrm{d}t}.$$

代入频率-相位关系 $\frac{\mathrm{d}\phi}{\mathrm{d}t} = 2\pi f_{\mathrm{L}}(t)$后，可得相位差：

$$\Delta\phi(t) \approx \tau\frac{\mathrm{d}\phi(t)}{\mathrm{d}t} = 2\pi\tau f_{\mathrm{L}}(t).$$

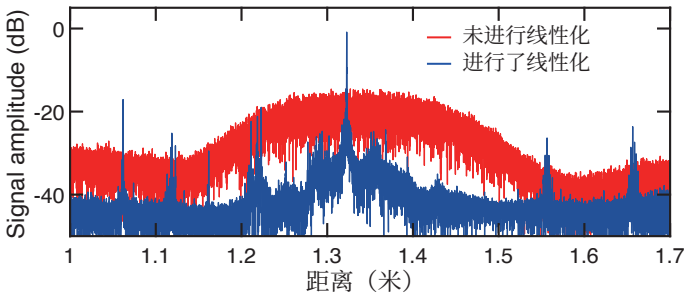
因此，检测到的拍频信号电压与该相位差的余弦成正比：

$$V(t) \propto \cos\left(\Delta\phi(t)\right) \approx \cos\left(2\pi\tau f_{\mathrm{L}}(t)\right).$$

采用标准的均匀时域采样（$\Delta t =$ 常数），非线性项 $\delta\nu(t)$ 会使余弦自变量呈现非均匀变化，导致仪器线形发生光谱展宽，如补充图 11所示。为对此进行校正，我们将信号域从时间 t 转换至光频 f_{L}。在此域中，信号表示为：

$$V(f_{\mathrm{L}}) \propto \cos\left(2\pi \cdot \tau \cdot f_{\mathrm{L}}\right).$$

这一变换使信号光成为纯正弦波，其光谱振荡频率严格由延迟 τ决定，与啁啾动态无关。实验上，我们利用以原子超精细跃迁为参考的光纤环形腔校准瞬时频率。通过将干涉图重采样到均匀光频网格（$\Delta f_{\mathrm{L}} =$常数）上，非线性 $\delta\nu$（t）得到有效补偿，从而恢复系统的傅里叶变换极限分辨率，如补充图 11所示。



补充图11. 线性化前后激光雷达距离剖面的比较。

补充说明 7. 气体透射光谱的反演

按照补充说明6所述的频率线性化，干涉数据被重新采样到均匀光频网格 f_{L}上。本说明概述了用于获取归一化气体透射光谱 $T(f_{\mathrm{L}})$的信号光模型和处理流程。

光电探测器记录的拍频信号源于本地振荡器（LO）场 E_{LO} 与探测场 E_{probe} 之间的外差干涉。探测场经过气体样品后，携带由比尔-朗伯定律描述的分子吸收特征：$|E_{\mathrm{probe}}| = |E_{\mathrm{in}}|\sqrt{T(f_{\mathrm{L}})}$，其中 E_{in} 表示入射到气体池的场。由于本地振荡器场和入射场均源自同一激光源，其输出功率随频率变化 $P_0(f_{\mathrm{L}})$，因此它们的场振幅按 $|E_{\mathrm{LO}}| \propto |E_{\mathrm{in}}| \propto \sqrt{P_0(f_{\mathrm{L}})}$缩放。因此，所得拍频信号——即干涉交叉项——按以下规律缩放：

$$V_{\mathrm{sig}}(f_{\mathrm{L}}) \propto \mathrm{Re}\left[E^{*}_{\mathrm{LO}}(f_{\mathrm{L}})E_{\mathrm{probe}}(f_{\mathrm{L}})\right] \propto P_0(f_{\mathrm{L}})\sqrt{T(f_{\mathrm{L}})}.$$

与此同时，参考光电探测器监测激光输出强度，得到基线信号 $V_{\mathrm{ref}}(f_{\mathrm{L}}) \propto P_0(f_{\mathrm{L}})$。

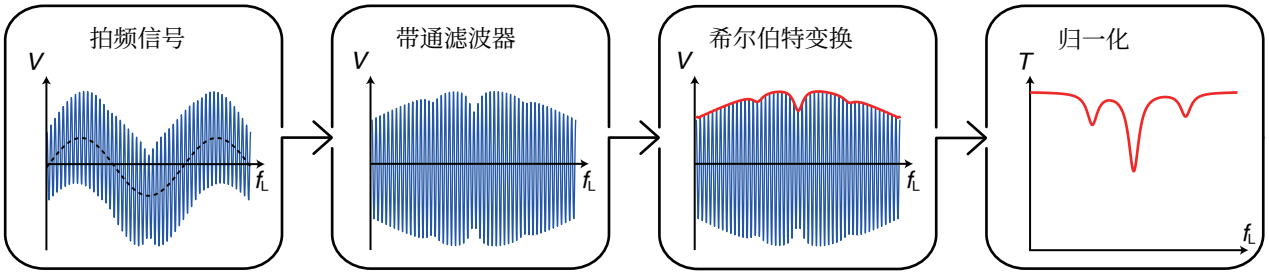
数据处理流程如补充图 12所示。为从低频背景和高频噪声中分离出干涉项，$V_{\mathrm{sig}}(f_{\mathrm{L}})$在拍频附近进行带通滤波。随后，我们通过希尔伯特变换 $A(f_{\mathrm{L}})$提取瞬时幅度（包络）[3]，$\mathcal{H}$：

$$A(f_{\mathrm{L}}) = |V_{\mathrm{sig}}(f_{\mathrm{L}}) + i\mathcal{H}[V_{\mathrm{sig}}(f_{\mathrm{L}})]| \propto P_0(f_{\mathrm{L}})\sqrt{T(f_{\mathrm{L}})}.$$

最后，为了获得强度透射光谱，将包络的平方除以参考信号的平方进行归一化。此操作可有效消除共模激光功率波动：

$$T_{\mathrm{meas}}(f_{\mathrm{L}}) = \frac{A^2(f_{\mathrm{L}})}{[V_{\mathrm{ref}}(f_{\mathrm{L}})]^2} \propto \frac{P_0^2(f_{\mathrm{L}}) \cdot T(f_{\mathrm{L}})}{P_0^2(f_{\mathrm{L}})} = T(f_{\mathrm{L}}).$$

随后使用 Savitzky–Golay滤波器[18] 对导出的光谱进行平滑处理，以提高光谱拟合的信噪比。



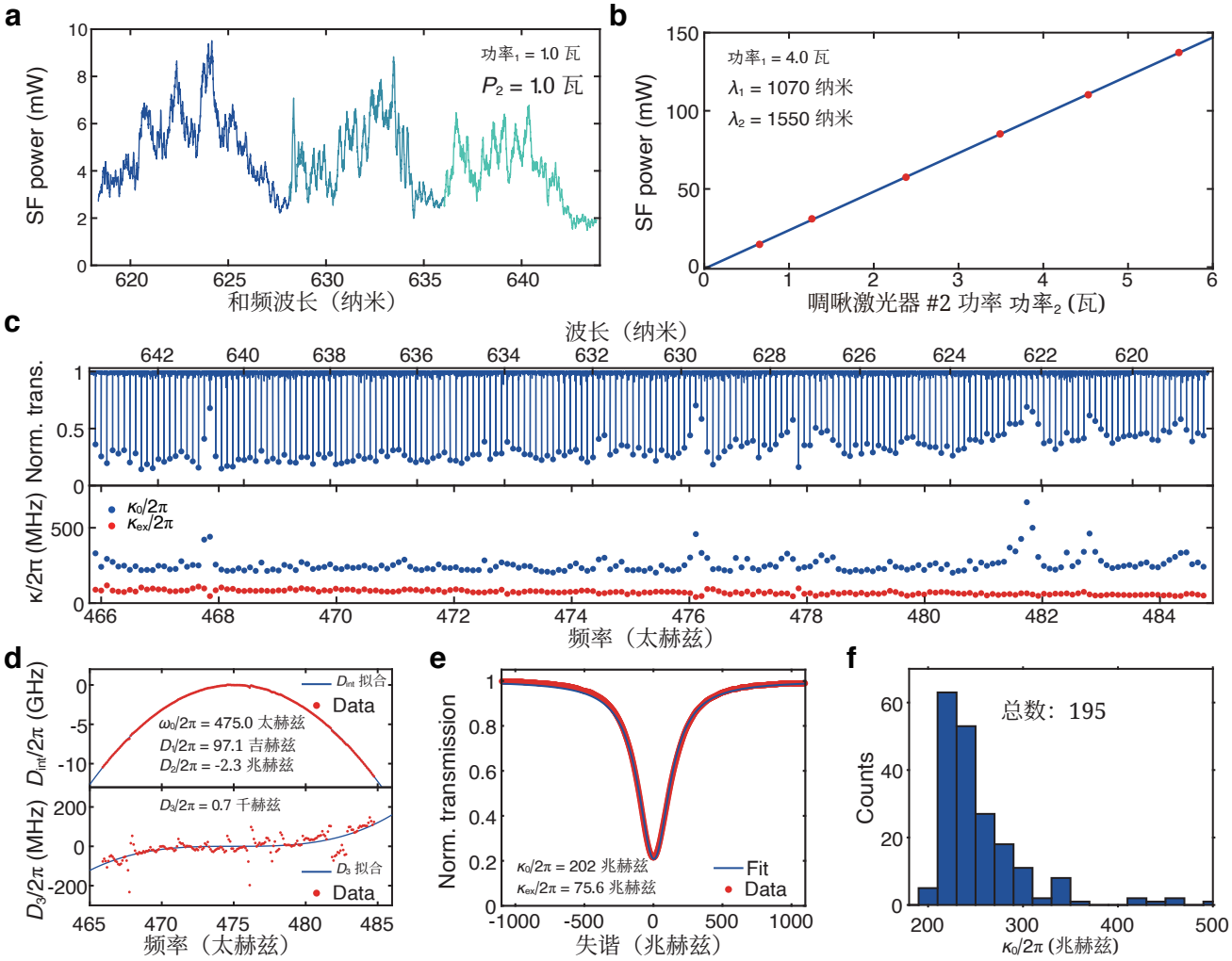
补充图12。信号处理流程。

补充　说明8。可见光波段的和频产生

除差频产生外，还可以利用周期性极化铌酸锂波导实现和频产生（SFG）。该周期性极化铌酸锂波导的顶部宽度为 7 微米，刻蚀深度为 5 微米，总厚度为 10 微米，侧壁角为 $70°$。器件总长度为 20 mm。为在宽光谱范围内满足啁啾准相位匹配条件，沿传播方向将极化周期（Λ）从 10.97 微米线性啁啾至 12.47 微米，占空比（η）则采用具有 $\beta = 6$ 的 tanh切趾轮廓。通过使啁啾激光器 #1 和啁啾激光器 #2 沿相同光谱方向同步啁啾，我们合成了覆盖 618 至 644 纳米的和频扫描，实现了 7.49 THz 的无跳模

调谐带宽（补充图 13a）。在泵浦参数为 $\lambda_1 = 1070$ 纳米（$P_1 = 4.0$ 瓦）和 $\lambda_2 = 1550$ 纳米（$P_2 = 5.6$ 瓦）时，系统的最大输出功率达到 137 mW（补充图 13b）。

随后使用和频激光器表征一款硅$_3$氮$_4$ 微谐振器。其归一化透射光谱（618–641 纳米）见补充图 13c（上图）。补充图13e 展示了典型的共振拟合，显示 $\kappa_0/2\pi = 202.0$ 兆赫兹和 $\kappa_{ex}/2\pi = 75.6$ 兆赫兹。我们对扫描范围内的所有共振进行了洛伦兹拟合；提取出的 $\kappa_0/2\pi$ 和 $\kappa_{ex}/2\pi$ 数值绘于补充图13c（下图）。补充图 13f 中的统计分析得出最可能值为 $\kappa_0/2\pi = 220$ 兆赫兹，对应于 $Q_0 = 2.2\times10^6$，线性传播损耗为 43 dB/m。此外，微谐振器色散的表征达到了三阶项（D_3），详见补充图 13d。



补充图13. 可见光波段的宽带二次谐波产生性能和绝对频率参考。a. 全光谱覆盖表征。通过逐步调整啁啾激光器 #1 的起始波长（1035、1057 和 1079 纳米），系统实现了从 618 到 644 纳米的无缝覆盖。这些调谐曲线是在啁啾激光器 #1 的功率设为 $P_1 = 1.0$ W、啁啾激光器 #2 的功率设为 $P_2 = 1.0$ W 时测得的。b. 功率传输测量。绘制和频输出功率随 P_2 的变化（固定参数：$\lambda_1 = 1070$ 纳米、$\lambda_2 = 1550$ 纳米、$P_1 = 4.0$ W）。在 $P_2 = 5.6$ W 时产生了最大和频功率 137 mW。c. 氮化硅微谐振器在 618 至 644 纳米范围内的透射光谱。d. 测得的微谐振器积分色散曲线及其三阶拟合 D_{3o}。偏差定义为 $[D_{\mathrm{int}}(\mu) - D_2\mu^2/2]/2\pi$，呈现出明显的 D_3 趋势。e. 在 472.2 THz 处测得的一个欠耦合共振的透射率。f. 一个微谐振器中 195 个共振的测量 $\kappa_0/2\pi$ 值直方图，显示最可能值为 $\kappa_0/2\pi = 220$ 兆赫兹。

补充参考文献

* liujq@iqasz.cn [1] Y.-H. Luo, B. Shi, W. Sun, R. Chen, S. Huang, Z. Wang, J. Long, C. Shen, Z. Ye, H. Guo, and J. Liu, Light: Science & Applications 13, 83 (2024). [2] T. Ahn, J. Y. Lee, and D. Y. Kim, 应用光学 44, 7630 (2005). [3] L. Marple, IEEE Transactions on Signal Processing 47, 2600 (1999). [4] J. H. Shirley, 光学快报 7, 537 (1982). [5] F. Cheng, K. Deng, K. Liu, H. Liu, J. Zhang, and Z. Lu, 《美国光学学会杂志B辑》36, 1816 (2019). [6] B. Shi, M.-Y. Zheng, Y. Hu, Y. Zhao, Z. Shang, Z. Zhong, Z. Chen, Y.-H. Luo, J. Long, W. Sun, W. Ma, X.-P. Xie, L. Gao, C. Shen, A. Wang, W. Liang, Q. Zhang, and J. Liu, 《自然·通讯》16 (2025), 10.1038/s41467-025-61970-0. [7] A. Arie and R. L. Byer, 《美国光学学会杂志B辑》10, 1990 (1993). [8] N.-C. Shie, S.-E. Chen, C.-Y. Chang, W.-F. Hsieh, and J.-T. Shy, 《美国光学学会杂志B辑》30, 2022 (2013). [9] D. A. Steck, “碱金属d线数据,” (2023). [10] T. G. Tiecke, “钾的性质,” (2019). [11] G. Imeshev, M. A. Arbore, M. M. Fejer, A. Galvanauskas, M. Fermann, and D. Harter, 《美国光学学会杂志B辑》17, 304 (2000). [12] T. Umeki, M. Asobe, T. Yanagawa, O. Tadanaga, Y. Nishida, K. Magari, and H. Suzuki, 美国光学学会会刊B辑 26, 2315 (2009). [13] M. Aspelmeyer, T. J. Kippenberg, and F. Marquardt, 《现代物理评论》86, 1391 (2014). [14] M. H. P. Pfeiffer, J. Liu, A. S. Raja, T. Morais, B. Ghadiani, and T. J. Kippenberg, Optica 5, 884 (2018). [15] Z. Ye, H. Jia, Z. Huang, C. Shen, J. Long, B. Shi, Y.-H. Luo, L. Gao, W. Sun, H. Guo, J. He, and J. Liu, Photonics Research 11, 558 2023( ). [16] A. Gondarenko, J. S. Levy, and M. Lipson, 光学快报 17, 11366 (2009). [17] B. Shi, Y.-H. Luo, W. Sun, Y. Hu, J. Long, X. Bai, A. Wang, and J. Liu, Photonics Research 12, 663 (2024). [18] A. Savitzky and M. J. E. Golay, 分析化学 36, 1627 (1964).