arXiv:2602.13907v1 [physics.optics] 14 Feb 2026

真空紫外双光梳光谱

John J. McCauley[1†]、DylanP. Tooley[1, 2†]、R.JasonJones[1*]

[1]詹姆斯·C·怀恩特光学科学学院，亚利桑那大学，美国亚利桑那州图森，邮编 85721。[2]亚利桑那大学物理系，美国亚利桑那州图森，邮编 85721。

*通讯作者。电子邮箱：rjjones@arizona.edu；
†这些作者对本研究贡献相同。

摘要

光学频率梳对精密光谱学产生了重大影响，也提升了我们探测原子、分子以及近年来核跃迁的能力，从而进一步理解它们的基本性质，以及其动力学和复杂相互作用如何影响我们所观察到的世界。为了拓展可研究的能量尺度和系统类型，人们一直在探索从太赫兹到真空紫外频率及更高频率范围的频率梳光源。随着这些频率梳光源的发展，双梳光谱得以实现，可对复杂光谱进行宽带吸收测量，突破直接单光梳光谱的局限。然而，迄今为止，双梳方法仍无法直接探测许多位于具有挑战性的真空紫外波长范围内的重要跃迁。在此，我们利用腔内高次谐波产生，展示了真空紫外双梳光谱。该多次谐波光源用于测量室温乙炔和氨样品在 $\lambda = 210$ nm 和 $\lambda = 149$ nm 处的分子吸光度光谱。通过这些测量，可以在绝对频率精度下分辨拥挤分子光谱的多普勒展宽结构。我们对真空紫外双梳光谱测量中的噪声贡献进行了表征，为该区域未来的研究和技术发展提供指导。

关键词： 光学频率梳、紫外、分子光谱学

电磁频谱的紫外区域包含大量直接源自基态的强原子和分子跃迁，可提供理解基本过程以及推动科学技术进步所需的关键定量信息。尽管将精密激光光源扩展至紫外区域已取得了长足进展，但真空紫外（VUV）（$10 < \lambda < 200$nm）区域——大气气体（如 O_2会强烈吸收 [1]）在光源生成和光谱仪设计方面一直面临技术挑战。高分辨率真空紫外光谱学的进步将影响众多行业和研究领域。例如，对原子和分子种群中处于中性及低电离态的强紫外跃迁进行光谱学研究，可以极大地助力多个领域的等离子体诊断，包括监测聚变反应堆中的关键物种、表征面向等离子体材料的退化 [2], 、表征高超声速中的激波层边界 [3, 4], ，以及研究表面-等离子体相互作用对活性物种数密度的影响，服务于医学、表面去污 [5],和半导体刻蚀工艺 [6], 仅举几例。对基本物理定律和常数的检验，以及对量子电动力学的基准测试，通常依赖于对简单分子（例如 H_2, D_2）中真空紫外跃迁的精密测量，以及对里德伯态 [7, 8], 多电荷离子 [9], 乃至核跃迁 [10]的直接测量。此外，系外行星研究需要获取分子气体（如二氧化碳、乙炔和氨）的准确且高分辨率的真空紫外吸收截面数据，以构建模型，研究恒星辐射在这些行星高层大气中诱导的光化学过程 [11–14]。

虽然真空紫外光谱学有多种方法，但每种方法在应用于这些场景时都有各自的局限性和复杂性。色散光谱仪适用于许多宽带研究 [15], ，但要进行精确测量，需要复杂的校准 [16], ，且其光谱分辨率最终也受到限制 [17]。真空紫外傅里叶变换光谱仪（FTS）已崭露头角，能够为发射光谱学提供更高的分辨率和更简便的校准 [18, 19] ；也有少数实例使用放电光源进行吸收光谱学 [20]。然而，对于真空紫外傅里叶变换吸收光谱学，同步辐射源

通常需要束线来提供相干连续谱光源 [21–23]。

二十年前，腔内高次谐波产生（iHHG）的首次演示将光学频率梳扩展至真空紫外 [24, 25]。此后，许多实验利用iHHG在真空紫外波段开展直接频率梳光谱测量，实现了无与伦比的光谱分辨率和绝对频率校准（例如，参见[26–30]）。最近，对钍核同质异能素的高精度测量彰显了真空紫外频率梳的影响力 [10]。基于该跃迁实现核钟的可能性 [31, 32]带来了通过测量基本物理常数来检验物理模型的令人振奋的前景，并凸显了精密真空紫外激光光谱学与光源开发的重要性 [33–35]。

然而，真空紫外直接频率梳光谱的一个持续局限是，仅使用单个频率梳时，难以测量其宽带宽内的多个吸收特征。这使得真空紫外直接频率梳光谱只能用于窄带测量，且仅能测量稀疏、彼此充分分离的跃迁。为克服这一挑战，在较长波长范围内，双梳光谱（DCS）已被证明是测量拥挤的原子与分子光谱的一种强大方法，其宽带测量的分辨率最终仅受单个梳齿线宽的限制 [36, 37]。在双梳光谱中，来自一对重复频率略有不同的频率梳的脉冲（$\Delta f_{rep} = f_{rep,\,1} - f_{rep,\,2}$）相互重叠，随着连续脉冲逐步交错，逐渐形成干涉图（IGM）。对该干涉图进行傅里叶变换，可得到下变频至射频范围的光谱。双梳光谱具有许多与傅里叶变换光谱仪相同的优点，例如高分辨率和宽带宽；此外，它无需运动部件，且能够更快速地测量时间分辨事件 [38, 39]。此外，由于两把光学频率梳具有相干结构，双梳光谱能够实现高精度的绝对频率测量。然而，此前双梳光谱仪仅适用于较长波长，直到最近才扩展至深紫外（DUV）（$200 < \lambda < 280$ nm） [40–46]。在此，我们利用两把镱基红外频率梳的iHHG产生深紫外 5^{th}次谐波（$\lambda = 210$ nm）和真空紫外 7th 次谐波（λ =150 nm），用于双梳光谱。在这两个谐波处，我们展示了

DCS系统具备对与系外行星光化学研究相关的室温分子气体进行多普勒分辨吸光度光谱测量并测定绝对频率的能力。本研究将双梳光谱的覆盖范围扩展至此前无法触及的光谱范围，从而在真空紫外波段实现快速、绝对频率测量，并兼具高光谱分辨率和大带宽。

1 结果

1.1 腔内高次谐波双梳光谱仪

实验装置示意图如图1所示。一对自行搭建的镱光纤激光器产生中心波长近乎相同的光脉冲列，中心波长约为 $\lambda = 1050$ nm，重复频率为 $f_{rep} = 77.8$ MHz，脉冲持续时间为 150 fs，平均功率为 20 W。（更多详情请参见“方法”。）这些脉冲列分别耦合到长度相近的无源飞秒增强腔（fsEC）中，腔内平均功率达到 5 kW [47, 48]。

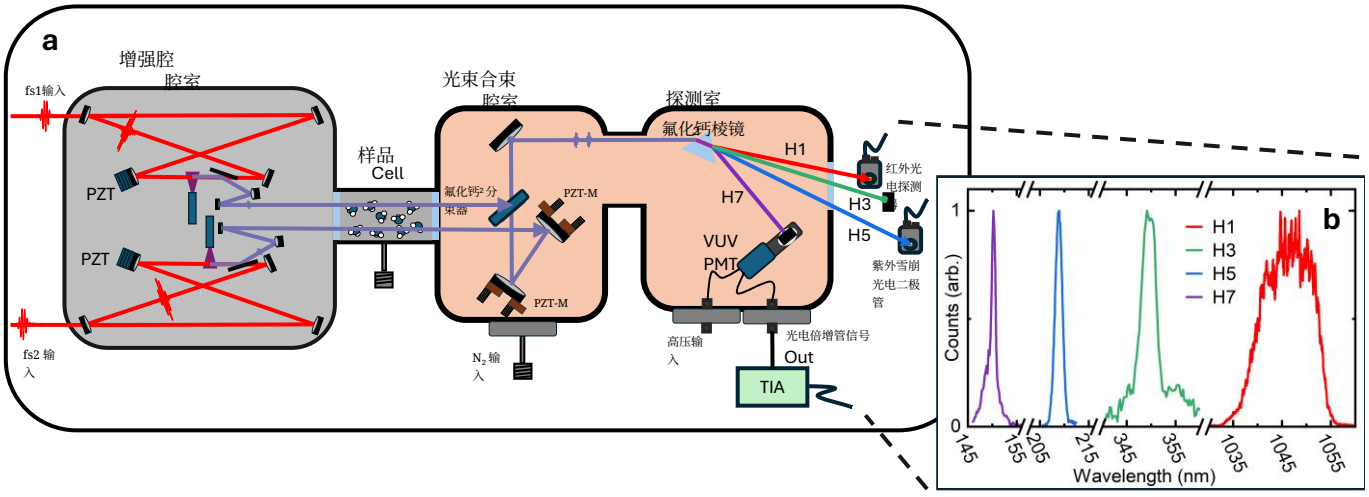

图1 腔内高次谐波产生与双梳光谱束线。a，腔内高次谐波产生的实验示意图，显示每个频率梳耦合输出的共线谐波如何经样品池进入氮气吹扫腔，并在压电控制反射镜（PZT-M）的配合下，通过紫外分束器（BS）实现重合。随后，谐波经CaF_2 棱镜分离，基频（H1）由红外光电二极管（IR PD）测量，5th 次谐波（H5）由紫外增强型雪崩光电二极管（UV APD）测量，7th （H7）则由日盲光电倍增管（PMT）测量。真空腔室馈通件将高压（HV）偏置电压传送至PMT，并将PMT输出的光电流传送至外部跨阻放大器（TIA）。**b**，由不同光谱仪探测到的基频与谐波光谱的低分辨率测量结果。

采用 Pound-Drever-Hall（PDH）技术，利用飞秒增强腔镜上的快速压电换能器（PZT），将每个飞秒增强腔的腔长锁定到入射脉冲列。氩气喷流引入腔焦点之后，焦点处的峰值强度超过 $5 \times 10^{13}\,\mathrm{W/cm^2}$。氩气中的高次谐波产生过程会生成基频光束的奇次谐波，并由蓝宝石掠入射片（GIP）耦出，入射角为 70°。这些 GIP 在宽带范围内对 s 偏振紫外光具有较高的菲涅耳反射率，并在基频光束上镀有增透膜，确保在飞秒增强腔中循环的脉冲损耗较低 [49]。耦出的谐波经过 GIP 后，由一面曲面镜准直。

为实现所产生的共线谐波脉冲序列在空间上的重叠，我们将光束引导穿过一只带 CaF_2 窗口的样品池，并送入氮气吹扫腔室，过程中使用 Al+MgF_2 镀膜反射镜，再通过镀膜 CaF_2 真空紫外分束器将它们合并。压电驱动镜架可对真空紫外光束的空间重叠进行精细调节，同时维持氮气吹扫环境。随后，使用 CaF_2 棱镜将合并光束中的各谐波级次在空间上分离。 7th 谐波真空紫外光梳由日盲光电倍增管（PMT）检测。基频、 3^{rd}和 5th 谐波被分出，并在合束腔室外进行准直。基频双光梳干涉图用于数据采集过程中的定时和触发， 5th 则由紫外增强型硅雪崩光电二极管（APD）检测。根据测得的光电倍增管光电流，我们估算探测器上每个光梳的 7th 谐波功率为 $\sim$0。6 μW，足以进行双光梳干涉图检测。考虑到真空紫外束线中光学元件预期的反射和透射损耗，我们保守估计耦出的 7th 谐波真空紫外功率为 $\sim$11。5 μW/光梳。如图1b 所示，使用多种光谱仪测量了低分辨率谐波光谱。目前的双光梳光源已延伸至真空紫外 7^{th} 谐波；不过，我们预计离子化驱动高次谐波产生过程也会产生相当强的极紫外谐波（$\lambda < 120$ nm），但目前这些谐波会被 CaF_2 透射光学元件吸收。

1.2 双光梳表征

在抽空的样品池中，使用采样率为 $\Delta f_{rep} = 147$ Hz 的 14位数字化仪记录来自 5th 次谐波 APD 和 7th 次谐波光电倍增管的干涉图。我们对
通过测量并校正中心突发的包络位置和慢相位变化，获取时域中的干涉图。在以往的紫外研究中，即使在光子受限的功率水平下，相干平均也依然有效 [46]。然而，飞秒增强腔的共振条件限制了频率梳的载波包络偏移频率（f_{ceo}）的任意选择，而这通常是进行相干平均所需的一个自由度。因此，在平均之前，我们必须分别对干涉图进行相位校正，这要求干涉图的单次时域信噪比（SNR）达到 > 1。图2 展示了具有代表性的单次干涉图以及 10,000 条记录的平均结果。

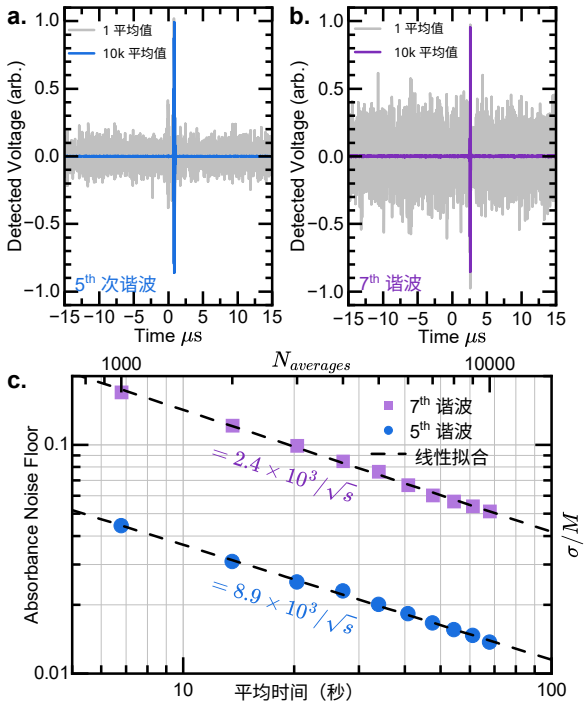

图2 双梳干涉图检测与平均 a-b，检测到的 5th 和 7th 次谐波单次干涉图（灰色）将中心突发任意缩放至 ± 1 单位后，进行相位校正并平均 10,000 次（**a.**蓝色，**b.** 紫色）。**c**，对于平均时间τ，吸光度光谱的噪声底随$\sqrt{\tau}$降低。在此，对 5th 和 7th 次谐波干涉图均进行处理，以解析各自光学带宽范围内的$M = 1000$ 个光谱元素，分别为 $\Delta\nu_{res} = 4$ 和 7 GHz。

对于每个谐波，平均后的 IGM 均采用 Blackman-Harris 窗进行加窗处理，以达到预期的仪器分辨率。此处， 5th (7th) 谐波在其 4 THz（7 THz）带宽内的分辨率为 4 GHz（7 GHz），因此每个谐波光谱包含 $M = 1000$ 个频率分辨单元。虽然对完整长度的平均 IGM 所能达到的最佳分辨率最终仅受梳齿间隔 f_{rep}的限制，但在这些测量中，我们以能够分辨第 1.3节和1.4节所报告测量中的多普勒展宽分子吸收特征为目标，设定了具有实际意义的分辨本领。加窗后 IGM 的傅里叶变换幅值给出透射双梳功率谱；该光谱经归一化，得到无特征的吸光度光谱，并用于分析深紫外和真空紫外双梳光谱吸光度测量的性能。在 $\tau \sim 1$ 分钟内记录的 10,000 次平均结果中，透射光谱半高全宽范围内吸光度噪声底的标准差达到σ =0.015（对应 5th 谐波）和 σ =0.05（对应 7th。如图 2所示，噪声底以预期的$\sqrt{\tau}$ 依赖关系 [50]趋近于这些数值。根据这一性能，我们计算得到双梳光谱的品质因数 FOM=

$\frac{M}{\sigma\sqrt{\tau}} = 8.9 \times 10^3/\sqrt{\text{s}}$（对应 5th 谐波），以及 FOM=$2.4 \times 10^3/\sqrt{\text{s}}$（对应 7th）。这些结果表明，我们的深紫外和真空紫外双梳光谱仪能够以较低的最小可检测吸光度和较高的信噪比测量分子吸收，且分辨率足以分辨室温下典型的分子多普勒线宽。

1.3 5th 次谐波乙炔吸收

使用 5th 双梳光谱激光系统的谐波，我们将目标吸收特征~ ~设定在附近 $\lambda = 210$ nm，并将乙炔（C $A \leftarrow X$ H_{22}）的 [13, 51] 波段内每把梳状光谱的红外光谱中心调谐至附近 $\lambda = 1050$ nm。我们向长度为 $P = 50$cm 的样品池中注入压力为 $L \sim 14$ Torr 的乙炔气体。本次测量中，$\Delta f_{rep} = 101$Hz。记录 10,000 幅干涉图，经相位校正、平均和加窗处理后，得到单幅干涉图。得到的双梳透射光谱（S_{sig}）如图 3a 所示；根据加窗函数确定的分辨率为 4 GHz（0.6 pm）。

所获取的透射光谱由低于 $f_{rep}/2 = 39$ MHz的射频（RF）载波组成。然而，由于互相干光梳以已知光频率的连续波（CW）激光器为参考（见方法），该射频透射光谱可自校准至绝对光频率。透射光谱显示出许多拥挤的吸收特征，并构建了一个伪参考（S_{ref}），以匹配背景光谱形状。最后，我们计算出图 $A = \ln(S_{ref}/S_{sig})$所示的吸光度光谱3b。为验证对该乙炔吸收带的绝对频率测量结果，我们将其与在 SOLEIL同步辐射光源 DESIRS光束线的傅里叶变换光谱仪上以 15 GHz 分辨率测得的乙炔截面进行比较 [13]。如图3所示，两种吸收光谱的独立波长校准结果高度吻合。此外，先前报道的 4×10^{-20} cm^2 的截面对应于在 $\lambda = 209.7$ nm 附近的分子带头，结合乙炔池的温度和压力，可预测吸光度为 $A = 1$，这与测得的吸光度非常接近。

1.4 7th 次谐波氨吸收

接下来，我们使用真空紫外 7th 次谐波，瞄准以 $\lambda = 149$ nm 为中心的 $B \leftarrow X$ 波段中的氨（NH_3）吸收特征。根据先前的 5th 次谐波乙炔测量结果，我们将红外光梳光谱调谐 $\Delta\lambda$ =7 nm，从而调谐了 7 次谐波的真空紫外光谱

次谐波波长调谐 1 nm（13.5 THz），以与此吸收特征重叠。该调节幅度超过任一单独位置的真空紫外带宽，展示了此方法在靶向吸收研究中的波长灵活性。此前抽真空的样品池长度为 $L \sim 4.5$ cm，充入压力为 $P = 0.8$ Torr 的氨。本次测量中，$\Delta f_{rep} = 188$ Hz。采用与 5th 谐波吸光度研究相似的处理方法，对记录的 15,000 个 7th 次谐波真空紫外干涉图进行相位校正、平均和加窗处理，得到分辨率为 7 GHz（0.5 pm）的绝对频率透射光谱，如图4a 所示。如图4b 所示，吸光度光谱同样由透射光谱和构建的伪参考得到。将这张首个双梳光谱真空紫外吸光度光谱与此前报道的截面 [14] 进行比较，展示了双梳光谱在真空紫外波段的优良性能，以及其凭借绝对频率校准分辨复杂分子吸收带的能力。

2 讨论

尽管深紫外和真空紫外双梳光谱仪已经能够分辨室温分子气体的吸收结构，但未来的发展将有助于提升信噪比、分辨率和平均时间的综合表现，这一表现由双梳光谱品质因数表征。为了更好地了解当前测量中的噪声

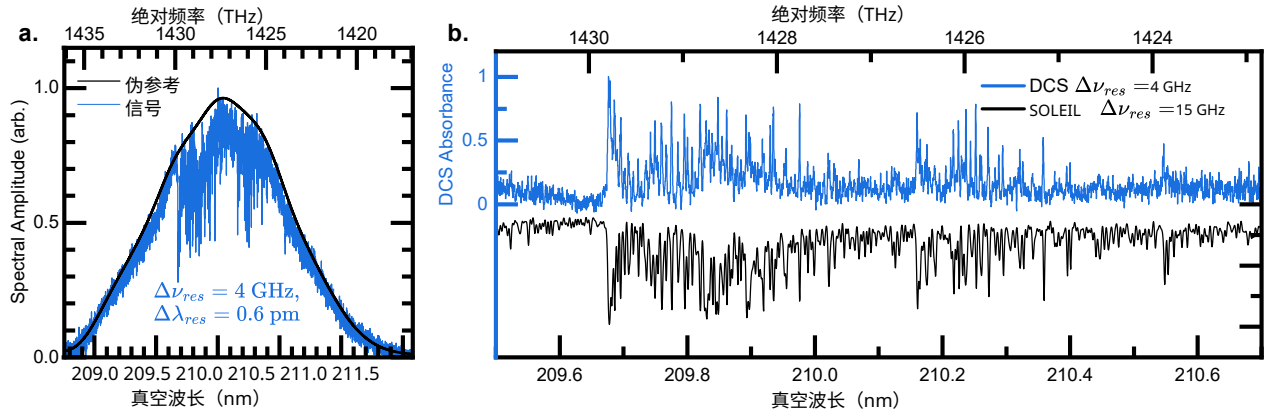

图 3 使用 5th 次谐波在 $\lambda = 210$ nm 处进行的乙炔深紫外双梳光谱。a，经过分辨率为 4 GHz、平均 10,000 次处理的双梳透射光谱（蓝色）和经过平滑处理的伪参考（黑色）。**b**，双梳吸光度光谱（蓝色）与在 SOLEIL 同步辐射装置上以 15 GHz 分辨率测得的乙炔吸收截面（黑色）进行比较 [13]。

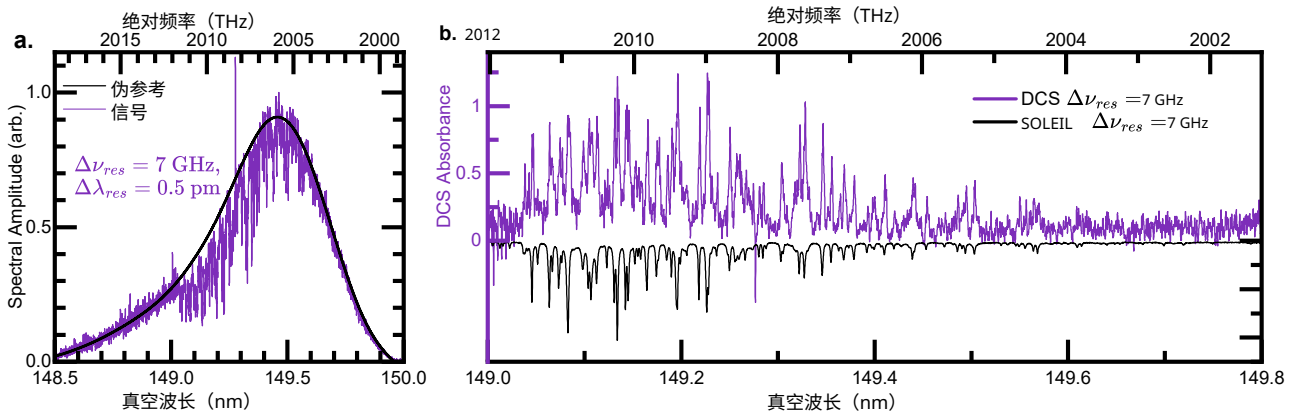

图 4 使用 7th 次谐波对氨进行的真空紫外双光梳光谱，波长为 $\lambda = 149$ nm。a，经过 7 GHz 分辨率处理并平均 15,000 次的双梳透射光谱（紫色）与平滑后的伪参考光谱（黑色）。**b**，将双梳吸光度光谱（紫色）与在 SOLEIL 同步辐射光源上以 7 GHz 分辨率测得的氨吸收截面（黑色）进行比较 [14]。

主导 7th 谐波处的测量，我们计算了探测噪声、散粒噪声、激光相对强度噪声（RIN）和动态范围的预期贡献 [50]。有关这些噪声贡献的计算详情，请参见方法。图5 显示了不同探测到的真空紫外光梳功率下预期的信噪比（红色），以及本次初步演示的信噪比和真空紫外功率（星号）。此次测量受探测噪声和探测动态范围主导。

真空紫外区域的双梳光谱探测要求极具挑战性。具体而言，需要具有高灵敏度、低噪声和高带宽的探测器。本文使用日盲光电倍增管，其规格确实满足这些要求；然而，在由足够快速的跨阻放大器（TIA）将微弱的光电倍增管光电流转换为更稳定的电压信号之前，该电流特别容易受到杂散电流噪声的干扰。我们推测，真空紫外光电倍增管与外部跨阻放大器之间真空腔体馈通处引入的杂散电流噪声，是探测噪声极限的主要来源，并计算了其贡献，如图5所示。此外，光电倍增管的最大输出电流与该杂散噪声之比决定了探测动态范围的极限。在未来的实验中，改进馈通件设计和/或采用快速、低噪声、真空兼容的跨阻放大器，将有助于突破探测噪声和探测动态范围的限制。提高光电倍增管的最大输出电流，则能进一步改善后者。我们估计，通过这些改进，双梳品质因数可提高近一个数量级，从而改善信噪比、分辨率和/或平均时间，优于本文所述的测量结果。或者，若可用的真空紫外探测器得到发展，具备高带宽、高响应度和真空兼容性（例如真空紫外雪崩光电二极管），真空紫外双梳光谱测量的质量也将显著提升。

通过这些探测改进，提高检测到的真空紫外功率将提高双梳品质因数直至达到激光相对强度噪声带来的限制。图5 中对这一相对强度噪声限制的估计较为保守，因为散粒噪声的影响可能掩盖了真实的相对强度噪声贡献。在相对强度噪声受限测量中，真空紫外平衡探测将进一步提升性能。我们预计，随着谐波分离效率的提高以及真空紫外光束线的其他改进，未来测量中探测器接收到的真空紫外功率将会增加。虽然本文所述测量所需的每个梳齿输出耦合的 7th 谐波真空紫外功率超过 10 μW 即已足够，但在其他测量中，我们通过提高氙气背压，使每个 20 μW 的 7th 谐波真空紫外光梳输出耦合功率超过了上述数值。然而，这种更高的真空紫外功率会给长时间采集带来额外困难；在首先解决上述探测限制之前，进一步提高功率并不会带来显著影响。

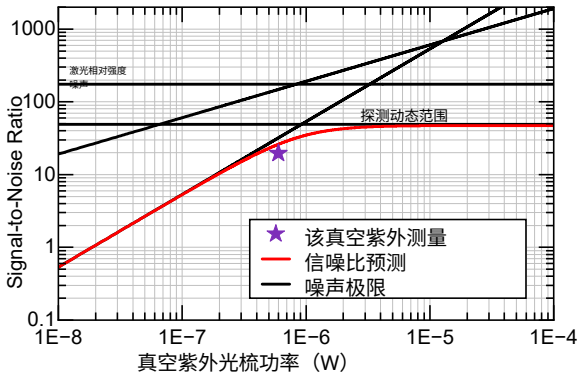

图5 真空紫外双光梳光谱噪声分析。对于 $M = 1000$ 个频率分辨单元（在 $\Delta\nu_{BW} = 7$ THz 光学带宽内分辨率为 $\Delta\nu_{res}$ =7 GHz）、$\tau = 68$ s 的平均时间，以及每个梳状光在探测器上的功率为 0.6 μW 时，我们的真空紫外双光梳测量信噪比接近 20（星号）。其他探测到的梳状光功率下的预期信噪比（红色）根据各种噪声源贡献（黑色）计算得出。

这些结果首次展示了真空紫外波段的双梳光谱。我们分辨出了复杂分子吸光度光谱中的多普勒展宽线宽，且信噪比高。

DCS系统的绝对频率和光度精度将使人们能够借助适度的桌面式基础设施，在真空紫外波段开展进一步的针对性吸收截面研究。此外，iHHG双梳光源提供了一种可扩展的方法，可将双梳光谱进一步拓展至极紫外波段。在这一超出 CaF_2 光学元件透射带的范围内，可利用先前已展示的波前分割分束器和菲涅耳波带片光学元件 [17, 30] 使高次谐波重叠并记录其干涉图。在真空紫外波段实现双梳光谱，为这一具有挑战性的光谱范围提供了一种强大的光谱学方法，能够实现快速采集、绝对频率精度、宽带宽，且光谱分辨率仅受梳齿线宽限制。通过直接从基态激发高能跃迁，精确探测复杂的原子与分子量子结构及其动力学，这一能力为定量测量开辟了新机遇，并有望对从等离子体诊断到天体物理学和基础科学等领域产生重大影响。

参考文献

[1] 标准化国际组织：ISO 21348太阳辐照度光谱类别的定义。《环境》**5**，6–7（2007）

[2]B´echu，S.、Lemaire，J.、Gavilan，L.、Aleiferis，S.、Shakhatov，V.、Lebedev，Y.A.、Fombaron，D.、Bonny，L.、Menu，J.、B`es，A.、等：通过真空紫外傅里叶变换吸收光谱直接测量由ECR等离子体接触材料产生的电子基态转动-振动激发D_2分子。定量光谱学与辐射传输学报**257**，107325（2020年）

[3]Holloway，M.E.、Boyd，I.D.：高超声速气流热化学动力学建模的敏感性分析。《热物理学与传热学杂志》**36**（3），584–593（2022年）

[4] Krish, A., Streicher, J.W., Hanson, R.K.：用于开发双色转动温度诊断的激波加热的一氧化氮（2000 K 至 6000 K）光谱分辨紫外吸收测量。《定量光谱学与辐射传递杂志》**280**, 108073 (2022年)

[5] Peverall, R., Ritchie, G.A.：大气压等离子体中分子自由基密度的光谱技术与测量。《等离子体源科学与技术》**28**(7), 073002 (2019)

[6] Hori, M., Goto, T.：等离子体中用于半导体加工的自由基测量进展。Plasma Sources Science and Technology **15**(2), 74 (2006)

[7]Hussels, J., H¨olsch, N., Cheng, C.-F., Salumbides, E.J., Bethlem, H.L., Eikema, K.S., Jungen,C., Beyer, M., Merkt, F., Ubachs, W.：氘分子的电离能和解离能的改进测定。Physical Review A **105**(2), 022820 (2022)

[8]Roth, C., Velasco, A.M., Gr¨undeman, E.L., Collombon, M., Beyer, M., Barbe, V., Eikema, K.S.：用于检验分子量子理论的分子氘高精度拉姆齐频梳光谱。《分子物理》**121**(17-18), 2211405 (2023年)

[9]Berengut, J., Dzuba, V., Flambaum, V., Ong, A.：用于精密激光光谱学和搜寻 α变化的多电荷离子中的电子-空穴跃迁。《物理评论快报》**106**(21), 210802（2011年）

[10] Zhang, C., Ooi, T., Higgins, J.S., Doyle, J.F., Wense, L., Beeks, K., Leitner, A., Kazakov, G.A., Li, P., Thirolf, P.G.,等： $^{229\mathrm{m}}$Th 核同质异能跃迁与 ^{87}Sr 原子钟的频率比。《自然》**633**(8028), 63–70（2024年）

[11]Venot, O., Fray, N., B´enilan, Y., Gazeau, M.-C., H´ebrard, E., Larcher, G., Schwell, M., Dobrijevic, M., Selsis, F.：高温下对 CO_2 吸收截面的真空紫外测量及其在系外行星研究中的应用。《天文学与天体物理学》**551**, 131（2013年）

[12] Ranjan,S.,Schwieterman,E.W.,Harman, C., Fateev, A., Sousa-Silva, C., Seager, S., Hu, R.: 无氧非生物宜居行星大气的光化学：新 H_2O 截面的影响。《天体物理学杂志》**896**(2), 148 (2020年)

[13] Fleury,B.,Poveda, M.,Benilan,Y., Veillet,R.,Venot, O., Tremblin, P., Fray, N., Gazeau, M.-C., Schwell, M., Jolly, A., 等：乙炔真空紫外吸收截面的高温测量及其在温暖系外行星大气中的应用。《天文学与天体物理学》**693**, 82 (2025年)

[14] Pratt, S.T., Jacovella, U., Boy´e-P´eronne,S., Ashfold, M.N., Joyeux, D., De Oliveira, N., Holland, D.M.: 59,000 至 93,000 cm^{-1} 范围内室温氨和喷射冷却氨的高分辨率吸收光谱。《分子光谱学杂志》**396**, 111810 (2023年)

[15] Trichard, F., Moncayo, S., Devismes, D., Pelascini, F., Maurelli, J., Feugier, A., Sasseville, C., Surma, F., Motto-Ros, V.：《利用激光诱导击穿光谱进行元素成像的紧凑型真空紫外光谱仪评估：在矿芯表征中的应用》。Journal of Analytical Atomic Spectrometry **32**(8),1527–1534 (2017年)

[16] Fr¨ohler-Bachus, C., Friedl, R., Briefi, S., Fantz, U.：波长范围为46–300 nm的真空紫外光谱仪绝对辐射定标。定量光谱学与辐射传输学报**259**, 107427 (2021)

[17] Samson, J.A., Ederer, D.L.: 真空紫外光谱学。Academic Press (2000)

[18] Thorne, A., Harris, C., Wynne-Jones,I., Learner, R., Cox, G.: 一种用于真空紫外的傅里叶变换光谱仪：设计与性能。《物理学杂志E：科学仪器》 **20**(1), 54 (1987)

[19] Griesmann, U., Kling, R., Burnett, J.H., Bratasz, L.: NIST FT700 真空紫外傅里叶变换光谱仪：在紫外光谱学和辐射测量学中的应用。载于：紫外大气与空间遥感：方法与仪器 II，第 3818 卷，第 180–188 页 (1999)。SPIE

[20] Murray, J., Yoshino, K., Esmond, J., Parkinson, W., Sun, Y., Dalgarno, A., Thorne, A.P., Cox, G.: NO 的 δ (0, 0)和 β (7, 0)带的真空紫外傅里叶变换光谱。《化学物理学杂志》 **101**(1), 62–73 (1994)

[21] Yoshino, K., Smith, P., Parkinson, W., Thorne, A., Ito,K.：真空紫外傅里叶变换光谱仪与同步辐射的结合。《科学仪器评论》**66**(2), 2122–2124（1995年）

[22] Matsui, T., Cheung, A.-C., Leung, K.-S., Yoshino, K., Parkinson, W., Thorne, A.,Murray, J., Ito, K., Imajo, T.：利用真空紫外傅里叶变换光谱学对 O_2 的舒曼–龙格带进行高分辨率吸收截面测量。《分子光谱学杂志》**219**(1), 45–57（2003）

[23] De Oliveira, N., Roudjane, M., Joyeux, D., Phalip- pou, D., Rodier, J.-C., Nahon, L.：真空紫外范围内低至 40 nm 的高分辨率宽带宽傅里叶变换吸收光谱。《自然·光子学》**5**(3), 149–153（2011年）

[24] Jones, R.J., Moll, K.D., Thorpe, M.J., Ye, J.: 通过飞秒增强腔内的高次谐波产生，在真空紫外波段实现相干相位频率梳。《物理评论快报》**94**(19), 193201 (2005)

[25]Gohle, C., Udem, T., Herrmann, M., Rauschen- berger, J., Holzwarth, R., Schuessler, H.A., Krausz, F., H¨ansch, T.W.: 极紫外频率梳。《自然》**436**(7048), 234–237 (2005)

[26]Ozawa, A., Rauschenberger, J., Gohle, C., Her- rmann, M., Walker, D.R., Pervak, V., Fernandez, A., Graf, R., Apolonski, A., Holzwarth, R, 等: 用于高分辨率光谱学的高次谐波频率梳。《物理评论快报》**100**(25), 253901 (2008)

[27] Yost, D.C., Schibli, T.R., Ye,J., Tate, J.L., Hostetter, J., Gaarde, M.B., Schafer, K.J.: 由阈下谐波产生的真空紫外频率梳。《自然·物理》**5**(11), 815–820 (2009)

[28] Bernhardt, B., Ozawa, A., Vernaleken, A., Pupeza, I., Kaster, J., Kobayashi, Y., Holzwarth, R., Fill, E., Krausz, F., H¨ansch, T.W.,等：在可见光波段通过飞秒增强腔产生的真空紫外频率梳。《光学快报》**37**(4),503–505 (2012)

[29]Ozawa, A., Kobayashi, Y.：氩原子的真空紫外频率梳光谱学。《物理评论A：原子、分子与光学物理》**87**(2), 022507 (2013年)

[30] Benko,C., Allison, T.K.,Cing¨oz,A.,Hua,L.,Labaye, F., Yost, D.C., Ye, J.：相干时间超过1秒的极紫外辐射。《自然·光子学》**8**(7), 530–536 (2014)

[31] Elwell, R., Schneider, C., Jeet, J., Terhune, J.E.S., Morgan, H.W.T.,Alexandrova, A.N., Tran Tan, H.B., Derevianko, A., Hudson, E.R.：固态基质中^{229}钍原子核同质异能跃迁的激光激发。《物理评论快报》**133**, 013201（2024年）

[32] Tiedau, J., Okhapkin, M.V., Zhang, K., Thielking, J., Zitzer, G., Peik, E., Schaden, F., Pronebner, T., Morawetz, I.,De Col,L.T., Schneider,F., Leitner,A., Pressler, M., Kazakov, G.A., Beeks, K., Sikorsky, T., Schumm, T.：钍-229原子核的激光激发。《物理评论快报》**132**, 182501（2024年）

[33] Uzan, J.-P.：变化的常数、引力与宇宙学。《相对论领域综述》**14**(1), 1–155 (2011年)[34]Flambaum, V.V.：增强原子核和原子中洛伦兹不变性与爱因斯坦等效原理违反的效应。《物理评论快报》**117**, 072501 (2016)[35] Safronova, M., Budker, D., DeMille, D., Kimball, D.F.J., Derevianko, A., Clark, C.W.：利用原子和分子寻找新物理。《现代物理评论》**90**(2), 025008 (2018)

[36] Coddington, I., Newbury, N., Swann, W.：双梳光谱。Optica **3**(4), 414–426 (2016)

[37]Picqu´e, N., H¨ansch, T.W.：频率梳光谱。《自然·光子学》**13**(3)，146–157（2019）

[38] Bergevin, J., Wu, T.-H., Yeak, J., Brumfield, B.E., Harilal, S.S., Phillips, M.C., Jones, R.J.：激光诱导等离子体的双梳光谱。《自然·通讯》**9**(1)，1273（2018）

[39] Zhang, Y., Weeks,R.R., Lecaplain, C., Harilal, S.S., Yeak, J., Phillips, M.C., Jones, R.J.: 突发模式双梳光谱。《光学快报》**46**(4), 860– 863 (2021年)

[40] McCauley, J.J., Phillips, M.C., Weeks, R.R., Zhang, Y.,Harilal,S.S., Jones,R.J.:深紫外双梳光谱。Optica**11**(4), 460–463 (2024年)

[41] Hofer, T., Hehl, G., Meyer, J.G., Pronin, O.: 自由运行的深紫外双梳光谱。《物理学杂志B：原子、分子与光学物理》**58**(10), 105403 (2025年)

[42] Li, Q.,Bai, H., Teng,X., Chen, H.,Mai, H., Zhang, Z., Zhang, J., Xuan, H.: 来自薄片激光器的深紫外双梳。《超快科学》**5**, 0087 (2025年)

[43]Chang, K.F., Lesko, D.M., Mashburn, C., Chang, P., Tsao, E., Lind, A.J., Diddams, S.A.: 多谐波近红外–紫外双梳光谱仪。《光学快报》**49**(7),1684–1687 (2024年)

[44] F¨urst, L., Kirchner, A., Eber, A., Siegrist, F., Vora, R., Bernhardt, B.: 宽带近紫外双梳光谱。Optica **11**(4),471–477(2024年)[45]Muraviev, A., Konnov, D., Vasilyev, S., Vodopy- anov, K.L.: 具有一百万个分辨梳齿的双频梳紫外光谱。Optica **11**(11), 1486–1489 (2024年)[46] Xu, B., Chen, Z., H¨ansch, T.W., Picqu´e, N.: 近紫外光子计数双梳光谱。《自然》**627**(8003),289–294 (2024年)[47] Jones, R.J., Diels, J.-C., Jasapara, J., Rudolph, W.: 将超短脉冲序列的频率、相位和重复频率稳定至法布里–珀罗参考腔。《光学通讯》**175**(4-6), 409–418 (2000)[48]Jones, R.J., Ye, J.: 通过在无源光学腔中相干叠加放大飞秒脉冲。《光学快报》**27**(20), 1848–1850(2002)[49]Fischer, J., Drs, J., Labaye, F., Modsching, N., M¨uller, M., Wittwer, V.J., S¨udmeyer, T.: 利用镀膜掠入射板高效耦出腔内高次谐波的极紫外光。《光学快报》**30**(17),30969–30979 (2022)

[50]Newbury, N.R., Coddington, I., Swann, W.：相干双梳光谱的灵敏度。《光学快报》**18**(8), 7929–7945 (2010)[51] B´enilan, Y., Smith, N., Jolly, A., Raulin, F.: 中紫外乙炔吸收系数的长波长范围温度变化。《行星与空间科学》**48**(5), 463–471 (2000)[52]Martinez, O.：具有正群速度色散的3000倍光栅压缩器：在1.3-1.6 μm区域光纤补偿中的应用。《IEEE量子电子学学报》**23**(1), 59–64 (1987)

3 方法

3.1 红外频率梳光源

每台自制频率梳均源自一台非线性偏振旋转锁模掺镱光纤振荡器，其输出在双包层光纤预放大器中放大。放大器的平均输出功率标称值为 $1-2$ W。脉冲被展宽至 ~ 2 ps的脉冲宽度，并使用马丁内兹展宽器 [52], 进行光谱滤波，从而控制随后由光子晶体光纤功率放大器（PCF）放大的光谱部分。商用光子晶体光纤模块可产生高达50 W的平均功率，但在当前实验中我们仅使用了接近20 W的输出。脉冲被压缩至持续时间为 ~ 150 fs，并耦合进入飞秒增强腔。我们估计增强因子为250，从而获得~ 5 kW的平均腔内功率，腔焦点处的光束直径约为 $\sim 22\ \mu$m。在腔焦点之后不久，我们引入氩气喷流，其峰值强度超过 $5\times10^{13}\,\mathrm{W/cm^2}$,，足以驱动高次谐波过程。该气体喷流源自内径为 $100\ \mu$m的玻璃毛细管，氩气背压接近1500 Torr。气体喷流安装在压电驱动平移台上，以实现最佳谐波产率。

我们通过将梳齿光学锁定到两个连续波参考激光器（波长分别为 $\lambda = 1050$ 和 1064 nm），建立了这两把频率梳之间进行双梳光谱测量所需的相干性。这两个连续波参考激光器本身通过 PDH 锁定，预先稳定到同一个参考腔上。此外，我们使用红外波长计精确测量其中一个连续波参考激光器的绝对频率，测量精度为 0.3 GHz。

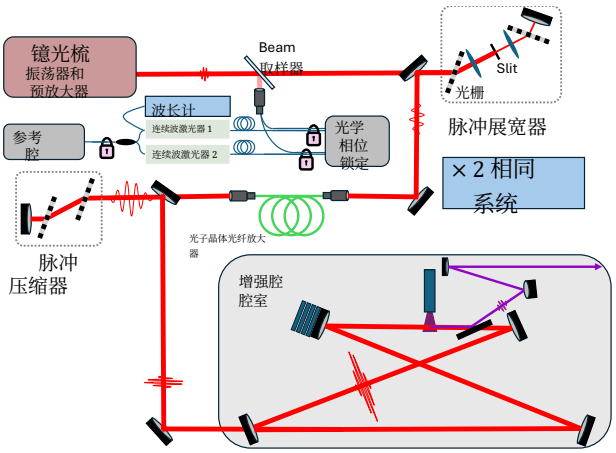

图 6 镱梳示意图。示意光束从镱光纤振荡器和预放大器出发，依次经过脉冲展宽器、光子晶体光纤（PCF）放大器和脉冲压缩器，最终到达被动增强腔。频率梳模式通过光学锁相控制，锁定至预先稳定的连续波（CW）参考激光器，其中一台激光器的频率由波长计测量。

3.2 绝对频率校准

由于两把光学频率梳的干涉可以实现从光学频率到射频频率的一一映射，因此我们能够独立校准双梳测量的绝对光频率。在当前配置中，我们使用两种光学锁定方式来稳定频率梳模态。通过测量梳重复频率、使用波长计测量一个连续波参考激光器的绝对频率，以及测定频率梳相对于该参考激光器的偏移相位锁定，我们可以得知所有梳模态的绝对频率。由于高次谐波过程会由这些频率梳模态产生和频谐波，因此我们也能精确确定真空紫外频率梳模态。通过选择足够小的 Δf_{rep} （$\sim$ 150 Hz），由这些已知梳模态产生的每个外差干涉频率都会映射到一个小于 $f_{rep}/2$ 的唯一射频频率。这种一一对应关系使我们能够在与其他真空紫外参考源或吸收线位置进行比较之前，直接将射频域测量校准为真空紫外绝对光频率。

3.3 双梳噪声计算

如第2节所述，我们计算了多个来源的预期噪声贡献，以了解此处所展示的真空紫外测量的局限性，并预测未来使用改进型器件且探测器接收到更多真空紫外功率时测量可能达到的信噪比。这里，我们介绍基于标准双梳光谱理论框架推导这些计算的详细过程 [50]。考虑到双梳光谱噪声由四个来源构成——探测噪声、散粒噪声、相对强度噪声和动态范围——我们预计噪声水平为

$$\sigma = \frac{M\sqrt{\epsilon}}{0.8\sqrt{\tau}}\sqrt{a_{NEP}/P_c^2 + a_{range} + a_{shot}/P_c + a_{RIN}}$$

对于 M 个频率分辨单元，占空比为 ϵ $=\Delta\nu_{res}/f_{rep}$，平均时间为 τ，探测器上的单梳功率为 P_c，噪声贡献为 a_i。

对于探测噪声，我们受限于光电倍增管与外部跨阻放大器之间真空腔室馈通处的杂散电流噪声 $I_{rms}\sim 1.3\ \mu$A。该电流噪声将噪声等效功率项限制在 a_{NEP} $=1.7\times10^{-22}$ W^2/Hz。杂散电流噪声与光电倍增管 $100\ \mu$A最大输出电流之比决定了探测动态范围为 $a_{range} = 2\times10^{-10}$ 1/Hz。所用光电倍增管在 $\lambda = 150$ nm处的量子效率为40%，因此散粒噪声贡献为 a_{shot} $=$ 1.3 $\times10^{-17}$ W/Hz。最后，测得真空紫外激光器相对强度噪声为-114 dBc/Hz，且在相关双梳载波范围内基本保持恒定，因此相对强度噪声贡献为 $a_{RIN} = 1.6\times10^{-11}$ 1/Hz。

当 $P_c\sim 0.6\ \mu$W 的真空紫外光梳功率作用于探测器时，这些项预测的双梳噪声极限为 σ $=$ 0.04 ，对应M $=$ 1000 个频率分辨单元，平均时间为 $\tau = 68$ 秒，与我们测得并在图2中展示的 0.05 真空紫外噪声极限非常接近。此外，根据这些项

以及上述关于 σ 的方程，可以很容易地预测不同探测器真空紫外功率下的双梳噪声极限，或在改善探测噪声或抑制激光相对强度噪声后得到的双梳噪声极限，如图5 及相关讨论所示。

补充信息 不适用

致谢 作者感谢 Eric R. Hud- son 和 James E. S. Terhune 协助使用真空紫外光电倍增管。作者感谢 KelbyB.Todd 提供宝贵的讨论意见，并协助进行气体处理。

声明

资助 资助由美国空军科学研究办公室提供 [FA9550-20-1-0273]。JJM 获得了国防科学与工程研究生奖学金计划的资助。

利益冲突/竞争性利益作者声明不存在需要披露的利益冲突。

伦理审批和参与同意 不适用

发表同意 不适用

数据可用性可根据合理请求提供。

材料可用性不适用

代码可用性不适用