



(12) 发明专利

(10) 授权公告号 CN 102246016 B

(45) 授权公告日 2015. 09. 23

- (21) 申请号 200980136475. 0
- (22) 申请日 2009. 07. 20
- (30) 优先权数据  
61/083, 620 2008. 07. 25 US
- (85) PCT国际申请进入国家阶段日  
2011. 03. 17
- (86) PCT国际申请的申请数据  
PCT/IB2009/006282 2009. 07. 20
- (87) PCT国际申请的公布数据  
W02010/010437 EN 2010. 01. 28
- (73) 专利权人 国立科学研究中心  
地址 法国巴黎  
专利权人 南巴黎大学
- (72) 发明人 纳塔莉·佩克 盖伊·盖拉切维里  
朱利安·芒登
- (74) 专利代理机构 北京三友知识产权代理有限公司 11127  
代理人 李辉 吕俊刚
- (51) Int. Cl.  
G01J 3/453(2006. 01)
- (56) 对比文件  
US 2005206904 A1, 2005. 09. 22, 说明书第

41 段,附图 3.

C. GOHLE, B. STEIN, A. SCHLIESSER, T. UDEM, T. HANSCH. Frequency comb vernier spectroscopy for broadband, high-resolution, high-sensitivity absorption and dispersion spectra. 《PHYSICAL REVIEW LETTERS》. 2007, 第 99 卷 26309-1-263902-4.

J. ZHANG, Z. H. LU, L. J. WANG. Precision measurement of the refractive index of air with frequency combs. 《OPTICS LETTERS》. 2005, 第 30 卷 (第 24 期), 3314-3316.

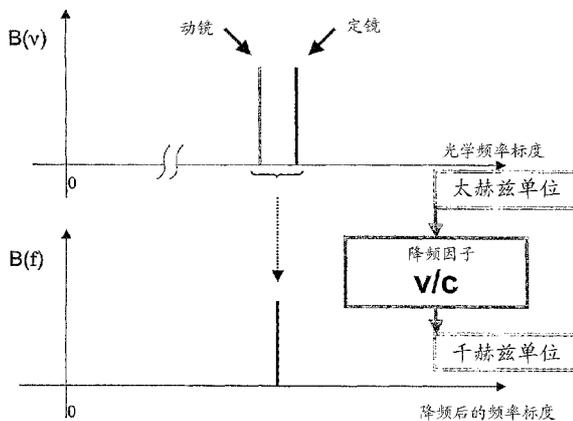
Julien Mandon, Guy Guelachvili, Nathalie Picque. Fourier transform spectroscopy with a laser frequency comb. 《NATURE PHOTONICS》. 2009, 第 3 卷 99-102.

审查员 李培培

权利要求书1页 说明书8页 附图13页

(54) 发明名称  
具有频率梳光源的傅里叶变换光谱仪

(57) 摘要  
本发明涉及一种傅里叶变换光谱仪 (1), 包括: 相干光源 (2); 干涉仪 (4), 被设置为将所述相干光源分为两部分或更多部分, 以通过频率或相位诱发效应在这两部分或更多部分之间产生干涉; 检测装置 (5), 被设置为检测所述干涉, 其中所述相干光源包括具有频率重复率的频率梳发生器 (2), 并且所述检测装置被设置为检测频率梳的以所述频率重复率或所述频率重复率的倍数分开的频率对的差拍。



CN 102246016 B

1. 一种用于分析样本的傅里叶变换光谱仪, 该傅里叶变换光谱仪包括:

- 相干光源, 其包括具有限定的频率重复率的频率梳发生器, 其中所述相干光源被分为两个反向传播光束, 一个用于红移, 一个用于蓝移;

- 基于振幅或波前分割的双输入双输出傅里叶变换干涉仪, 其包括定臂和动臂, 并且被设置为将所入射的光束分为两部分, 每一部分沿着一个臂行进, 以在这两部分之间产生干涉并对所述两个反向传播光束进行分析;

- 差分检测装置, 其被设置为获得在所述双输入双输出傅里叶变换干涉仪的两个输出处测量的两个结果干涉图之间的差异,

其中, 所述样本位于所述相干光源与所述双输入双输出傅里叶变换干涉仪之间的光路上, 其中, 利用直流电放电, 被分为所述两个反向传播光束的所述相干光源经由所述样本入射到所述双输入双输出傅里叶变换干涉仪。

2. 根据权利要求 1 所述的傅里叶变换光谱仪, 其中, 所述差分检测装置还被设置为检测频率梳的以所述频率重复率或所述频率重复率的倍数被分开的频率对的差拍。

3. 根据权利要求 1 所述的傅里叶变换光谱仪, 其中, 所述双输入双输出傅里叶变换干涉仪是迈克尔逊干涉仪。

4. 根据权利要求 1 或 2 所述的傅里叶变换光谱仪, 该傅里叶变换光谱仪还包括: 至少一个多次发射池, 其被设置为容纳要被所述傅里叶变换光谱仪分析的所述样本。

5. 根据权利要求 1 或 2 所述的傅里叶变换光谱仪, 该傅里叶变换光谱仪还包括: 至少一个高精细腔, 其被设置为容纳要被所述傅里叶变换光谱仪分析的所述样本。

## 具有频率梳光源的傅里叶变换光谱仪

[0001] 相关申请的引用

[0002] 本申请要求 2008 年 7 月 25 日提交的序号为 61/083620 的美国临时申请的优先权，在此通过引用将上述申请的全部内容并入本公开。

### 技术领域

[0003] 本发明涉及光学光谱测定 (spectrometry) 领域。其旨在提供一种傅里叶光谱仪和一种使用这种傅里叶光谱仪来测量样本的光谱的方法。

### 背景技术

[0004] 更具体地来讲，本发明旨在提供一种傅里叶光谱仪，该傅里叶光谱仪包括：

[0005] - 相干光源；

[0006] - 干涉仪，其被设置为通过振幅或波前分离将所述相干光源分为两部分，以在这两部分之间产生干涉；

[0007] - 检测装置，其被设置为检测所述干涉。

[0008] 这样的傅里叶光谱仪例如在“Femtosecond laser Fourier Transform absorption spectroscopy”，Mandon et al. OPTICS LETTERS, June 15, 2007 Vol. 32, No. 12 p. 1677-1679 中有所描述。在该文献中，相干光源是  $\text{Cr}^{4+}$ :YAG 飞秒锁模激光器。

[0009] 然而，在上述文献中，使用  $\text{Cr}^{4+}$ :YAG 飞秒锁模激光器作为光源存在一些缺陷。锁模激光器的重复率 (repetition rate) 不是恒定的，并且锁模激光器的脉冲之间的相移是不稳定的。结果，锁模的光谱没有表现出由尖锐和等距的频率标记所形成的梳状结构。因为缺少这种梳状结构，所以必须知道一些参考种类样本的光谱，以便对光谱仪进行校准。此外，只能在锁模激光器的频率与由于多普勒效应而偏移了的同一频率之间测量干涉。因此，光谱仪的噪声级受限于由干涉仪产生的、通常是在音频域中的条纹扫描率，并且受限于锁模激光器的振幅噪声。此外，这样的光谱仪不能同时提供样本所经历的吸收和色散。

[0010] 本发明的目的是提供一种能够克服已知技术的上述局限的改进型傅里叶光谱仪。

[0011] 本发明基于主要用在计量学环境下的频率梳发生器能提供令人满意的稳定脉冲的思想，从而克服上面列举的缺陷。

[0012] 根据第一方面，本发明涉及一种傅里叶变换光谱仪，该傅里叶变换光谱仪包括：

[0013] - 相干光源；

[0014] - 干涉仪，其被设置为将所述相干光源分成两部分或更多部分，以通过频率或相位诱导效应在这两部分或更多部分之间产生干涉；

[0015] - 检测装置，其被设置为检测所述干涉，

[0016] 其中，所述相干光源包括具有频率重复率的频率梳发生器，并且在本发明的特定实施方式中，所述检测装置可被设置为检测由所述频率重复率或所述频率重复率的倍数分离的所述频率梳的频率对的差拍 (beating)。

[0017] 在现有技术中，根据特定频率与通过干涉仪的移动臂产生的多普勒效应或相移效

应而移频得到的该频率的差拍来进行检测。对于本发明来说有利的是,使用频率梳的重复率的稳定性,根据由频率重复率或频率重复率的倍数(即,频率重复率的  $N$  倍,其中  $N \geq 1$ ) 分离的频率对来进行检测。

[0018] 利用这种新型的检测,干涉图样的噪声级至少降低了 1000。

[0019] 干涉仪优选为基于将进入源分为两个光束的振幅或波前分离的干涉仪。例如,可以是迈克尔逊(Michelson)干涉仪,其最简单的光学配置包括:固定镜、动镜以及被设置为将相干光源分为两部分的分离装置,第一部分被设置为在固定镜上反射,而第二部分被设置为在动镜上反射。所有常规的干涉图样记录过程(一个或多个动镜或没有动镜、一个或多个固定镜或没有固定镜、产生干涉图样的光程差线性变化或没有变化)都是可用的。

## 附图说明

[0020] 将参照附图来详细阐述本发明的优选实施方式,附图中:

[0021] 图 1 例示了具有单色源和迈克尔逊干涉仪的傅里叶变换光谱仪中的降频;

[0022] 图 2 例示了对于用频率梳作为源的迈克尔逊干涉仪的动镜效果;

[0023] 图 3 例示了根据本发明的光谱仪的第一实施方式;

[0024] 图 4 例示了对于用频率梳作为源的迈克尔逊干涉仪的动镜效果以及以梳重复率所决定的速率进行同步检测的可能性;

[0025] 图 5 例示了根据本发明的光谱仪的第二实施方式;

[0026] 图 6 示出了利用根据本发明的光谱仪获得的吸收光谱;

[0027] 图 7 是根据本发明的实验和计算的吸收和色散光谱之间的比较;

[0028] 图 8 和图 9 例示了本发明对于速度调制的方面;

[0029] 图 10 和图 11 例示了本发明对于塞曼光谱术的方面;

[0030] 图 12 和图 13 例示了本发明对于偏振调制的方面。

## 具体实施方式

[0031] 将参照附图详细阐述本发明的优选实施方式,在附图中相同的附图标记表示相同的元件。这里展示的光谱仪(此后称为具有频率梳光源的傅里叶变换光谱仪或 1C-FTS)主要致力于傅里叶变换光谱术和所有相关的仪器方法(高光谱成像、显微镜检查法、振动圆二色、衰减全反射、塞曼(Zeeman)调制、速度调制、选择性检测技术、时间分辨光谱法.....),但是要注意,也可以使用超出这里描述的应用的具有频率梳光源的双光束干涉仪。例如,这里描述的具有频率梳光源的双光束干涉仪能被设置为用在光学相干断层成像(OCT)、干涉长度测量、机载激光雷达系统(LIDAR)、反射学中。这里没有具体描述的基于波前或振幅重组的其它干涉应用也可以受益于利用频率梳光源和此后描述的同步检测技术产生频率或相位激发(induced)效应的双光束或多光束干涉仪。

[0032] 如图 1 所示并从中可知,利用单色光源和迈克尔逊干涉仪的傅里叶变换光谱术以等于  $2v/c$  的降频因子提供了光学频率到音频范围的降频(down-conversion),其中  $v$  是干涉仪动镜速度, $c$  是光速。

[0033] 讨论根据本发明的频率梳发生器。光学频率梳(FC)是包括相位相干等距激光线的光学光谱。频率梳在本领域是公知的,例如参照专利"Generation of

stabilized, ultra-short light pulses and the use thereof for synthesizing optical frequencies " R. Holzwarth, J. Reichert, T. Udem, T. W. Hänsch, US 专利 6785303, 2004 或 " Method and device for producing radio frequency waves ", R. Holzwarth, T. Udem, T. W. Hänsch, US 专利 7026594, 2006 或出版物 " Optical frequency metrology " T. Udem, R. Holzwarth, T. W. Hänsch Nature 416, 233 (2002), 并且最常用于频率计量学中。

[0034] 多数情况下使用了飞秒激光器, 这导致了飞秒频率梳 (FFC)。在这种情况下, 两条连续线之间的距离  $f_{\text{rep}}$  取决于锁模激光腔长度。对于飞秒激光器来讲, 光谱范围约为几百 nm 的量级。可使用生成超连续谱的技术来增大该范围。于是, 构成频率梳的线的数量可以约为  $10^6$  或更多。已知梳线频率可具有极高的精确度。在各种文章中都可以找到关于基于光学频率合成的飞秒激光器的详细内容, 例如《Femtosecond optical frequency combs》Cundiff et al, Review of Modern Physics vol. 75, p. 325-342 (2003) 或《Optical frequency metrology》, Udem et al, Nature vol 416, p. 233-237 (2002)。

[0035] 总之, 当使用飞秒频率梳时, 锁模激光器以时间周期  $T = 1/v_g$  周期性地发射超短脉冲, 其中  $l$  是激光腔的长度,  $v_g$  是净群速度。由于腔中的色散, 群速度和相速度不同, 导致载波相对于每个脉冲包络的波峰产生相移。在频域中, 光谱 (周期性脉冲序列的傅里叶变换) 由激光模式的梳齿组成, 其中这些梳齿通过脉冲重复频率  $f_{\text{rep}}$  分开。模式频率遵循这样的关系:  $f_n = n f_{\text{rep}} + f_0$ , 其中,  $n$  是整数,  $f_0$  归于包络脉冲 - 脉冲相移。目前, 梳齿输出光谱能跨越多于一个倍频程 (octave),  $f_{\text{rep}}$  和  $f_0$  的稳定性的最好水平是与  $10^{-19}$  中大于一部分的完美格 (perfect grid) 没有偏离。

[0036] 换句话说, 频率梳是由等距线构成的光谱。从锁模激光器生成频率梳需要周期性不仅应用于脉冲包络, 还要应用于脉冲的整个电场, 包括它们的光学相位, 除去恒定相位以外。需要脉冲之间的相干。频率梳发生器还可以基于被非线性光纤中的超连续谱生成展宽的飞秒振荡器。

[0037] 飞秒锁模激光器产生的频率梳得益于它们极短的脉冲时长而可以得到很大的光谱范围。能够通过超连续谱生成利用基于高非线性光纤的光谱展宽来进一步增强该光谱范围。已知该光谱展宽保留了梳状结构。锁模激光器可以被非线性光纤展宽, 和 / 或其可以耦合到变频系统, 例如差 / 和 (difference/sum) 频率生成、谐波发生和 / 或参数相互作用 (interaction)。

[0038] 可选地, 在合适的材料 (包括环形微谐振器或光纤) 中的四波混频能产生这些梳。调相电光设备也可产生这些梳。

[0039] 根据本发明的第一实施方式, 利用进入的频率梳光源, 干涉仪根据光程差  $\Delta$  来提供两个不同频率梳之间的干涉图样 (图 2)。被定镜 (fixed mirror) 臂反射的第一梳在第二臂中的另一个由于动镜 (moving mirror) 而导致多普勒频移时类似于初始梳。由等于  $2v/c$  的光学频率降频因子得到了记录在单个检测器上的干涉图, 其中  $v$  是动镜速度,  $c$  是光速。一般而言, 光学频率降频因子  $2v/c$  通常将红外信号移到音频频率范围 ( $\sim 10\text{kHz}$ )。在我们已知的动镜干涉仪中, 最高的降频因子已经将光学信号降到  $1\text{MHz}$  范围 (P. R. Griffiths, B. L. Hirsche, C. J. Manning, Ultra-rapid-scanning Fourier transform infrared spectrometry, Vib. Spectrosc. 19, 165 (1999)), 但是光谱分辨率严重受限 ( $120\text{GHz}$ )。如果

光谱仪分辨出光源的梳状结构,则分辨出的梳线能用于光谱的波数标度的自校准。这是一个重要的优点,因为在没有频率梳光源的传统 FTS 中,波数标度的精确度主要受限于总是存在于两个不同光程之间借以记录单色参考和分析源的微小失调。在没有频率梳光源的传统 FTS 中,当想要进行精确测量时,必须将提供内部分子波数标准的样本放在分析源的路径上,并且在实验期间同时进行记录。利用根据本发明的 1C-FTS,梳状源提供的精确频率标记在被分辨时,在整个光谱上都是可用的。因为频率梳源的高亮度,本发明的该第一实施方式还是改善传统 FTS 中信噪比或记录时间的一种非常简单的方式。本发明的显著优点是,与被频率梳注入的高精细腔不同,无需在灵敏度和频谱扩展之间进行折衷。

[0040] 现在参照图 3 来描述根据本发明的第一实施方式的光谱仪 1。光谱仪 1 被用于具有频率梳光源的傅里叶变换光谱术 (1C-FTS)。1C-FTS 包括使用频率梳 2 来探测关注样本 3 的吸收作用。样本可以放在多次反射池 (multipass cell) 中或高精细腔中。用连接到采集系统 5 的傅里叶变换干涉仪 4 来分析与样本交互后的光。对得到的干涉图进行傅里叶变换以给出光谱。

[0041] 根据本发明的第二实施方式,得益于频率梳周期性结构,能够在更高的降频频率处提供干涉信号,其载波在频率梳重复率处(在图 4 的示例中是 140MHz)。此外,该载波调制频率与动镜的速度无关。图 4 的第一行表示在检测器上干涉的两个梳。第二行仅选择了四条激光线,其显示了两对相距 140MHz 的邻近线。由于动镜产生的多普勒频移而导致的传统降频音频信号(在图 4 的示例中是 10kHz)是每对线的干涉信号。该信号依赖频率;换句话说,每对线中的线间距离与频率呈线性变化。另一方面,每对线之间的距离具有相同的频率变化,但是移位到恒定的 140MHz 频率。因此以频率梳重复率对两对四条线之间的差拍 (beating) 信号进行同步检测是可能的。光学降频因子移位到射频范围中,这使检测频率改善了  $10^4$ 。除了干涉图中的技术噪声的电势下降外,在相同的高分辨率记录序列内同时测量了光谱特征的吸收和色散。该第二实施方式保留了第一实施方式中描述的所有其它方面。

[0042] 如图 5 所示,为了增强灵敏度,可以将样本放在多次反射池或高精细腔 6 中。此外,根据本发明的第二实施方式,由于光源拥有梳状结构,所以可以用锁定 (lock-in) 装置 7 执行梳频率下的锁定检测。梳状结构可以为光源所固有,也可以利用外部调制器(例如 EOM)来创建。

[0043] 根据第二实施方式的具体实施例,利用配备有快速铟镓砷 (InGaAs) 检测器的柯勒斯型 (Connes-type) 双输出步进模式干涉仪,记录了原则证明 (Proof-of-principle) 光谱。激光器频率梳源以约 50mW 平均输出功率在  $1.5\mu\text{m}$  区中生成  $\sim 40\text{fs}$  的脉冲。Frep 等于 140MHz。其腔包括被 1064nm Nd:YVO4 激光器泵浦的  $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$  晶体、用于锁模的半导体可饱和吸收镜以及用于色散补偿的啁啾镜。商业锁定放大器执行同步检测。在个人计算机上执行数据存储和计算。以  $\text{Cr}^{4+}:\text{YAG}$  频率梳的重复率下从同步 rf 检测得到  $\text{C}_2\text{H}_2$  的宽带吸收和色散光谱。图 6 显示了吸收光谱。图 7 给出了根据本发明的此具体实施方式的实验和计算的吸收和色散光谱的适当比较。毋庸置疑,由于一些很容易理解的限制因素,SNR 的数量级小于期望,这些因素中包括干涉信号的不足的电子检测链和国产飞秒振荡器的噪声特性。本限制仅来自商业锁定放大器的有限动态范围。基于经过良好测试 (well-tested) 的解决方案的专用电子的发展能容易地克服该限制。该展示明确地表示了致力于精确吸收和色散分布 (profile) 的高分辨快速和灵敏测量的、根据本发明的方法的可行性。

[0044] 可以使用通过皮秒 (picosecond) 或纳秒 (nanosecond) 锁模而种 (seed) 的超连续光谱产生高非线性光纤来实现本发明。取决于关于脉冲 - 脉冲相滑移的噪声, 从这样的源可或不可实现频率梳。然而, 根据本发明的具体实施方式, 这足以对源重复率进行实时检测, 或简单地锁定脉冲重复率。然后可以利用或不利用外部调制器的帮助来执行干涉图的射频检测。根据上面描述的本发明的第二实施方式, 源的梳状结构使得能够以梳率的倍数直接执行相敏射频检测。

[0045] 由于激光器亮度、多普勒受限分辨率、腔增强和高频调制检测的组合优点, 具有频率梳光源的 FTS 带来了期望的灵敏度。另外, 在光谱信号很强的红外域中进行操作将有助于增强灵敏度级别。由于该方法中嵌入了激光器亮度、分辨率和红外操作的效果, 所以我们在此讨论增加吸收路径长度并实现高频调制的方式。

[0046] 利用如图 5 所示的已插入了将被分析的样本的多次反射池或高精细腔, 获得了等长吸收路径。

[0047] 在可调谐激光光谱术中, 高精细腔已经成为通过腔增强或腔衰荡 (ring-down) 光谱术而达到高灵敏度的最有效的方式之一。例如在 Gohle et al. "Frequency comb Vernier spectroscopy for broadband, high resolution, high-sensitivity absorption and dispersion spectra", Physical Review Letters vol. 99, nb. 263902 (2007) 中已经报道了将锁模激光器耦合到高精细腔的一些尝试。为了保证有效耦合到腔内, 将构成脉冲序列的所有频率分量调谐成与对应的腔模式共振。主要困难是组合低损耗的镜面特性和色散管理宽带。尽管宽带 Ti:Sa 频率梳最近已相干地耦合到 100nm 的高精细腔 ( $F = \sim 5000$ ), 但这样的实验很复杂, 因为它们需要特殊的镜面设计。它们受限于光谱带宽。将超连续 (octave-spanning) 的梳匹配到具有几千精细度的腔当前是一个难处理的任务 (delicate task), 但原因仅在技术方面。导致的对光谱带宽的严重限制可以表示对傅里叶光谱仪的极端限制, 如果不是对色散光谱仪的话。

[0048] 可以实现一种替代方法。该方法具有色散不充当光谱带宽的滤波的优点。宽带激光器耦合到配备有由对于超短脉冲的宽带介质涂层制成的透镜的多次反射池。White、Herriott 或 Robert 型设计是合适的方法。利用对于反射系数的 99% 的悲观值, 从 2m 基细胞, 500m-1km 的光程长度是可行的, 这多亏激光束的高输出功率 ( $> 10\text{mW}$ ) 和小范围 (étendue)。这带来了约  $10^3$  的灵敏度改进。如果必要的话, 将在池输出处执行色散补偿。

[0049] 低噪声级是由于根据本发明的原始检测技术利用了频率梳结构的结果。

[0050] 为从嘈杂的背景中提取微弱信号, 实际上认为调制技术是一种理想的工具。小的共振信息被编码到技术噪声相对弱的频率区域。各种方案使得能够快速连续地比较开共振 (on-resonant) 和关共振 (off-resonant) 情况。随后的解调生成了没有输出的信号信道, 除非存在共振。最成功的调制技术之一称为调频 (FM) 光谱术, 如 "Frequency-modulation spectroscopy: a technique for measuring weak absorptions and dispersions", Bjorklund, Optics Letters vol. 5p. 15-17 (1980) 中所公开的。其快速和灵敏的检测性能使得它在非线性激光器光谱术中非常流行。其高灵敏度主要是由于在 MHz 或 GHz 频域中的高调制频率, 在 MHz 或 GHz 频域中激光源的振幅噪声级通常达到了散粒噪声 (shot-noise) 极限。可以通过将入射电流调制到二极管激光器、或使用外部相位调制器来实现这样的高频调制。到目前为止, FM 光谱术是仅有的可调谐光谱方法。在大多数方案中, 通过在原子 /

分子共振上扫描激光器波长来获取线形 (line shape)。

[0051] 如前面说明的,本发明提供了一种基于高频调制来提供高灵敏度、分辨率和宽光谱带宽的新颖光谱测定技术。FTS 的主要优点之一是其即时 (at once) 记录扩展光谱范围和容易访问红外域的实验能力。为了实现高灵敏度,在经典步进模式干涉仪中,已经展示了一种调制干涉图的新颖方式,例如在 Mandon et al “Frequency Modulation Fourier Transform Spectroscopy: a broadband method for measuring weak absorptions and dispersions”, *Optics Letters* vol 32, p. 2206-2208 (2007) 中。关键概念是执行 rf 调制。同时测量了与光谱特征相关联的吸收和色散。

[0052] 利用具有频率梳发生器光源 FTS 实验,以恒定射频调制了傅里叶变换光谱仪输出端口处的节拍信号,其中该恒定射频比干涉仪光转换产生的音频频率大了约  $10^4$  倍。可以同步地对其进行检测。灵敏度与调制频率成比例地增大。

[0053] 梳状结构可以直接来自源,或可以由外部调制器产生。取决于关于脉冲-脉冲相滑移的噪声,可或可不从源实现“真正”(real) 频率梳。然而,这足以使这些实验对直接反馈到锁定或简单地锁定脉冲重复率的源重复率进行实时检测。

[0054] 现在讨论得益于 1C-FTS 而能够新实现的一些方法的利用 1C-FTS 的实现方案。

[0055] 该实现的第一方面涉及选择性光谱术。

[0056] 第一,速度调制意图选择性地检测分子离子的跃迁。在大部分可调谐激光器或经典 FTS 配置中,放电炉内部的 ac 电场以放电频率来改变离子的净漂移速度。这导致了它们跃迁的频率的同步多普勒频移(一般非常小),而中性核素 (neutral species) 保持没有位移。因此 ac 调制处的同步检测消除了中性信号。

[0057] 利用 1C-FTS,可以实现不同的方案。这里仅讨论两种。可以使用它们的任意组合。

[0058] 第一种方案利用了如图 8 所示的 dc 放电。激光器频率梳发生源能被分为两个反向传播光束,一个用于红移,一个用于蓝移,并利用双输入双输出干涉仪 9 对其进行分析。可以通过图 8 所示的差分检测或后验 (posteriori) 进行的在干涉仪的输出 1 和输出 2 处测量的两个结果干涉图之间的差异带来了选择性信息。得到光谱的差而非干涉图的差也是可行的。

[0059] 如图 9 所示,第二种方案利用 ac 调制放电炉 10 来获取以放电调制的频率进行同步检测而恢复的干涉图。

[0060] 第二,在塞曼光谱术中,一般周期性地变换与源相互作用的磁场。在同步或差分检测之后,将仅检测通过磁场的频移跃迁。然而,必须考虑塞曼分裂的对称性:必须调制  $B_c+B_m$  和  $B_c-B_m$  之间的场,其中  $B_c$  和  $B_m$  是磁场的两个常数值。 $B_c$  能等于  $B_m$ ,但不能是零,否则将不能检测到信号变化。

[0061] 利用 1C-FTS,能够调制磁场(如图 10 所示),或者将梳状光束分为两个光束,对于利用双输入干涉仪的差分检测,一个光束用常数磁场  $B_c+B_m$  探测细胞,另一个光束用常数磁场  $B_c-B_m$  探测细胞(如图 11 所示)。

[0062] 与塞曼光谱术类似,可以施加电场,并调制电场,以选择性地检测对斯塔克效应 (Stark effect) 灵敏的跃迁。

[0063] 第三,偏振调制有助于选择性地检测偏振敏感跃迁。其也被称为线性 (s 和 p 偏振之间的比较) 或振动圆二色 (左右圆偏振辐射的比较)。研究对象的一些示例是薄固体膜、

液晶中的手性分子或分子取向,或来自顺磁物类的塞曼跃迁。两种偏振状态的辐射吸收之间的差异往往非常小。思想是利用在两种不同状态下偏振的光对从样本交互中得到的光谱快速连续地进行比较。

[0064] 利用 1C-FTS 可以实现不同的方案。如图 12 所示,能够对梳光束应用偏振调制器 11,并快速连续地测量具有给定偏振的一个干涉图和具有另一偏振的第二干涉图,并且通过同步检测或后验来对它们进行相减。如图 13 所示,还能够利用互补偏振 12 和 13 将梳光束分为两个光束,并执行直接差分检测。

[0065] 第四,对于短命核素的选择性检测,关注的是浓度调制 (concentration modulation)。利用 1C-FTS,频率梳发生器探测以给定频率被正弦调制的分子源 (一般是放电炉)。通过根据本发明的干涉仪来分析分子源输出处的光束。以频率的两倍来检测干涉图的光谱,从而移除了所有稳定核素 (它们具有未经放电源调制的强度) 的跃迁。通过调整检测相位,还能获得与源的时间行为有关的信息。

[0066] 能够在单个实验中从上面列出的检测方案中的一些同时获益。

[0067] 该实现的第二方面涉及时间分辨应用。

[0068] 在传统光谱术中,由于 FTS 的所有广为人知的优点,特别是观察的宽光谱范围,时间分辨 FTS 是调查动力现象的一种有力的工具。它包括在每个光程差位置对观察到的源的演进进行时间采样。在实验结尾,获得与源演进的时间采样一样多的干涉图,然后进行变换以给出光谱,每个光谱都表征了给定时刻的光源。

[0069] 类似地,能够为改进的动力学研究开发出时间分辨 1C-FTS。根据干涉仪类型和看到的时间分辨率,可以实现多种方案。

[0070] 利用步进模式干涉仪,可以获得任何类型的时间分辨率。利用快速扫描干涉仪,可以使用文献中的已成功实现的同步方案。当使用脉冲激光源时,泵浦探测 (pump-probe) 实验也是可行的,脉冲激光源例如为飞秒频率梳、超连续谱源或锁模激光器。

[0071] 应该注意,还能执行对时间分辨或调制光谱的相关分析。

[0072] 该实现的第三方面涉及反射光谱术。

[0073] 利用 1C-FTS,能够看到被样本反射的光,而不是看到经样本透射的光。反射可以是漫反射或镜面反射。样本可以是位于平坦反射面上的块状材料、材料层 (比激光辐射的波长更薄或更厚)。

[0074] 此外,衰减全反射使得能够用很简单的样本制备来探测固相或液相的样本。探测光束以在与样本直接接触的内部表面上反射至少一次的方式穿过精心挑选的晶体。该反射形成了一般延伸到样本中几微米的消逝波。来自每个消逝波的衰减能量都被传回光束,然后 FT 光谱仪在晶体透射的光束离开晶体时收集该光束。

[0075] 利用激光束探测晶体 / 样本集合,可以容易地实现衰减全反射 1C-FTS。

[0076] 本发明还可适用于如下所述的空间分辨测量。

[0077] 第一,由于激光束的截面能够很小,所以能选择性地探测宏观样本的微小空间区域。

[0078] 第二,映射样本组成的有效方式是用阵列检测器同时测量所有 FT 光谱。对来自图像的每个点的光谱进行同时测量称为高光谱成像,获得的光谱阵列是超立方体。

[0079] 利用 1C-FTS,类似地能够在干涉仪的输出处对阵列检测器上的物体进行成像。

[0080] 第三,利用 1C-FTS 的显微镜检查法应该汇集了利用傅里叶变换光谱术的显微镜检查法和利用激光源的显微镜检查法的优点。能够预料空间分辨率的增加以及精确的光谱诊断。

[0081] 第四,由于激光束的低发散度和高强度,1C-FTS 能探测长柱样本。可选地,激光束可以在到达关注的样本之前传播长的距离。

[0082] 还能实现 LIDAR 型 1C-FTS 实验:能收集并分析来自强宽带激光器的样本散射光。

[0083] 还应该考虑本发明的以下方面。

[0084] 借助于非线性处理(例如,差和频率发生、参数的相互作用、光整流、谐波发生……),能够开发出目前难以进入的光谱区(例如,THz 或 VUV 区)中的 1C-FTS。使用检测方案的逆向非线性处理也是可能的,即,将光重新转换到灵敏检测器可用的区域。

[0085] 此外,期望 1C-FTS 是用于诊断诸如等离子体、环境空气、工业生产链、检漏、有害气体检测等各种介质的工具。光谱术的所有经典特性都被保留:在现场(in situ)、本地或远程操作、非侵入性诊断、定量测量……。

[0086] 光子检测器可以包括简单的光电探测器(光电二极管、测辐射热计、天线)或耦合到光电探测器的非线性变频器,如倍频器。应该注意,可以用麦克风或高 Q 值压电晶体元件(例如石英音叉)来代替光子检测器。

[0087] 气相色谱法(GC)、高效液相色谱法(HPLC)或超临界流体色谱法(SFC)可以结合到 1C-FTS。

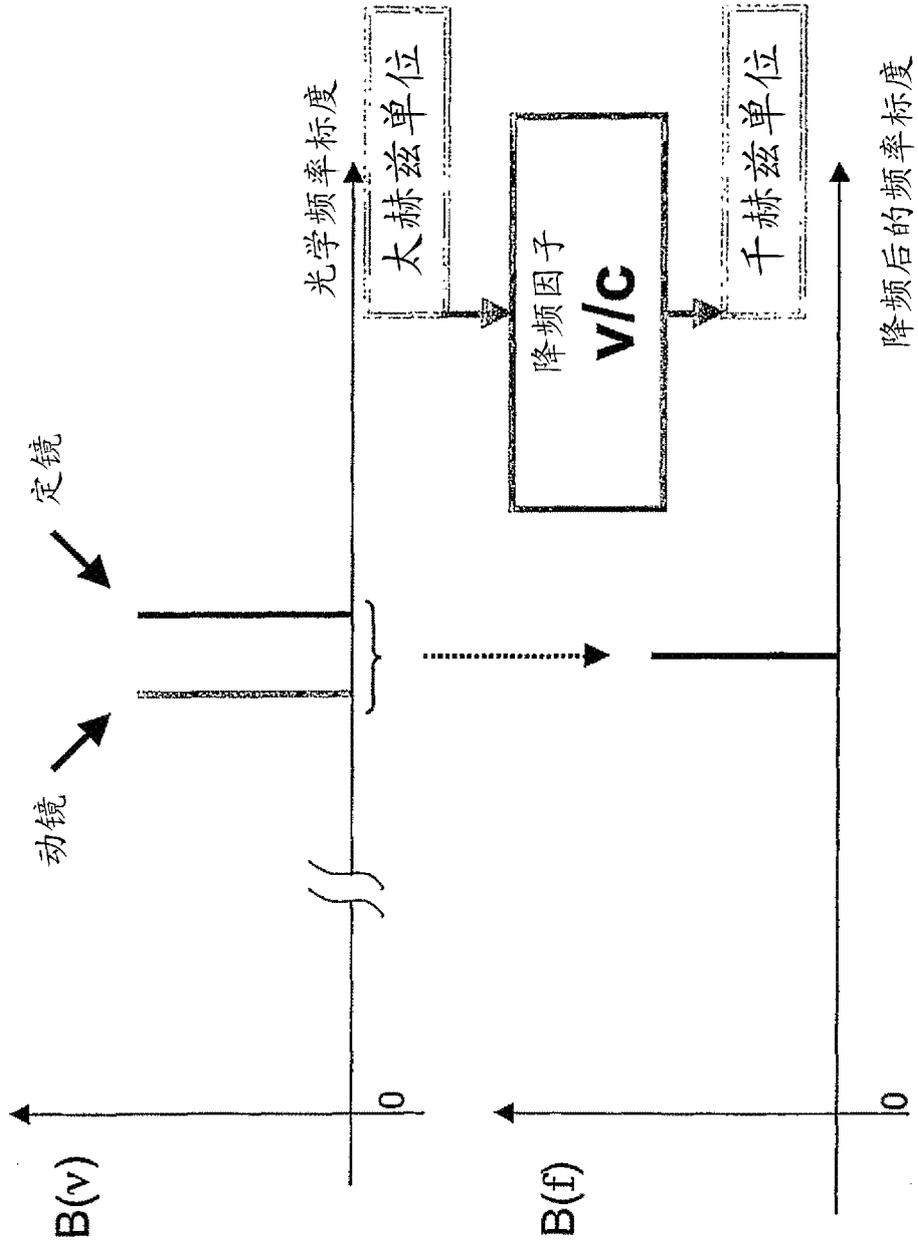
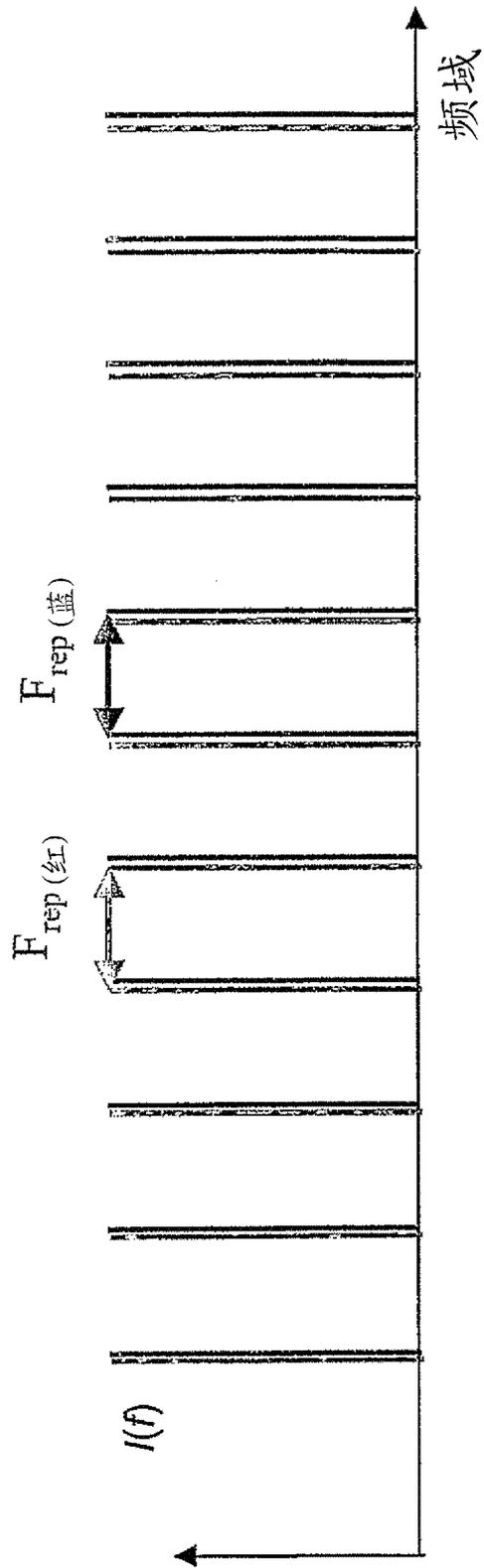


图 1



动镜效果

$$F_{\text{rep}}(\text{红}) = f_{\text{rep}}(\text{蓝}) (1 - 2v/c)$$

图 2

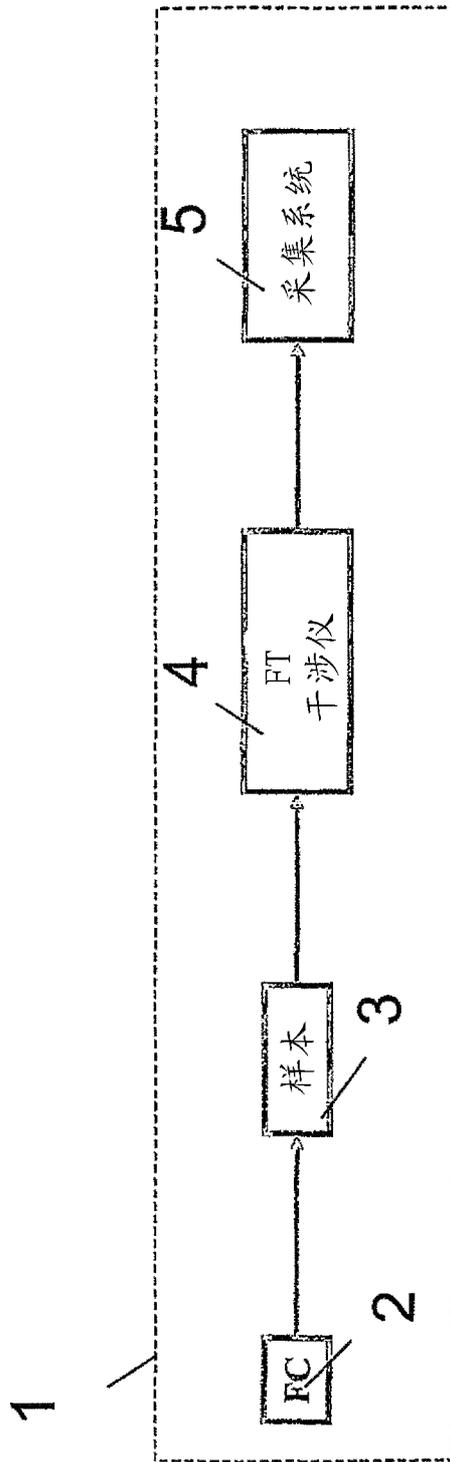


图 3

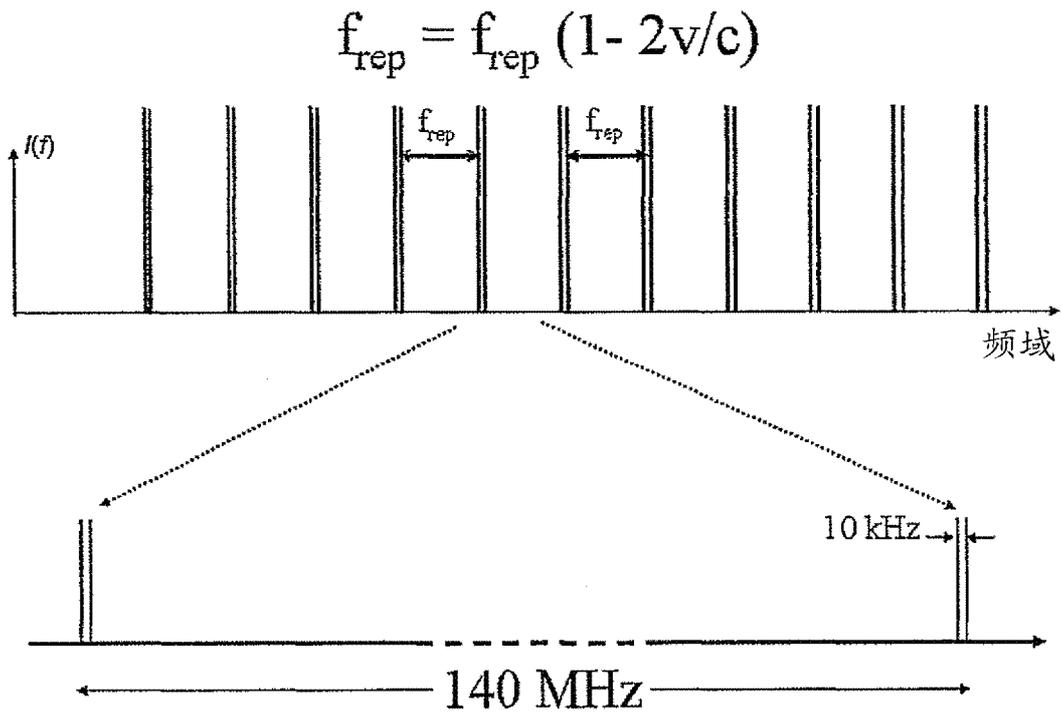


图 4

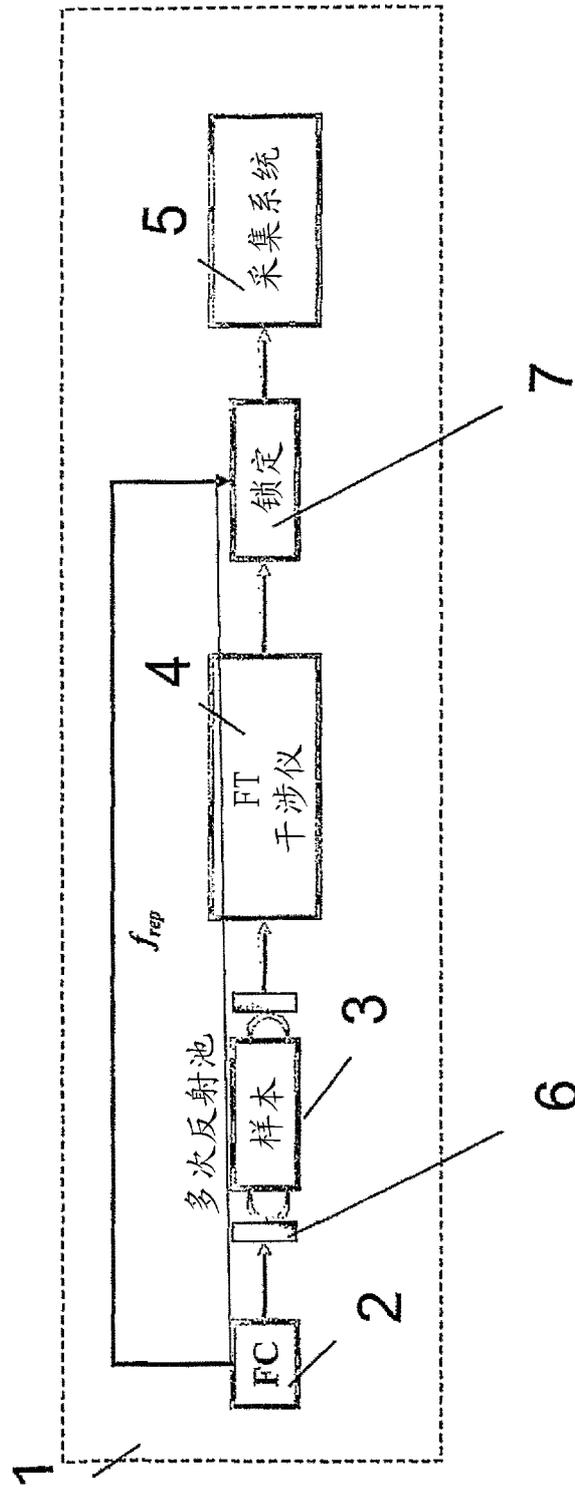


图 5

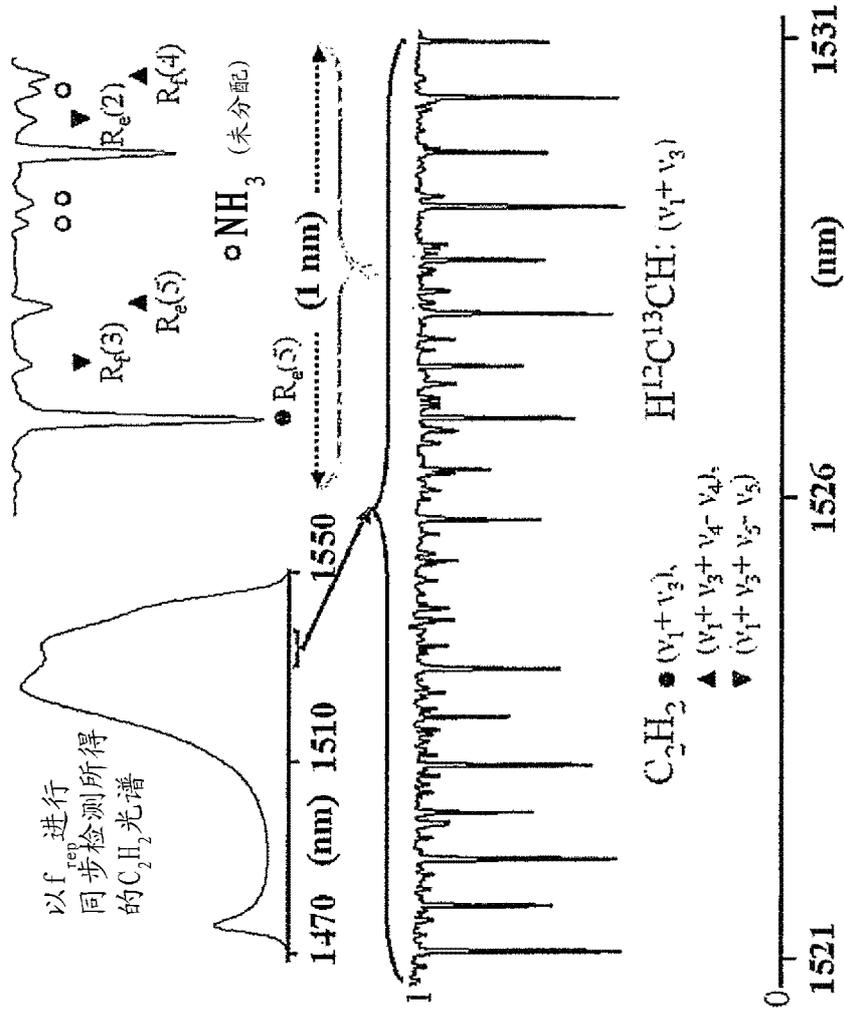


图 6

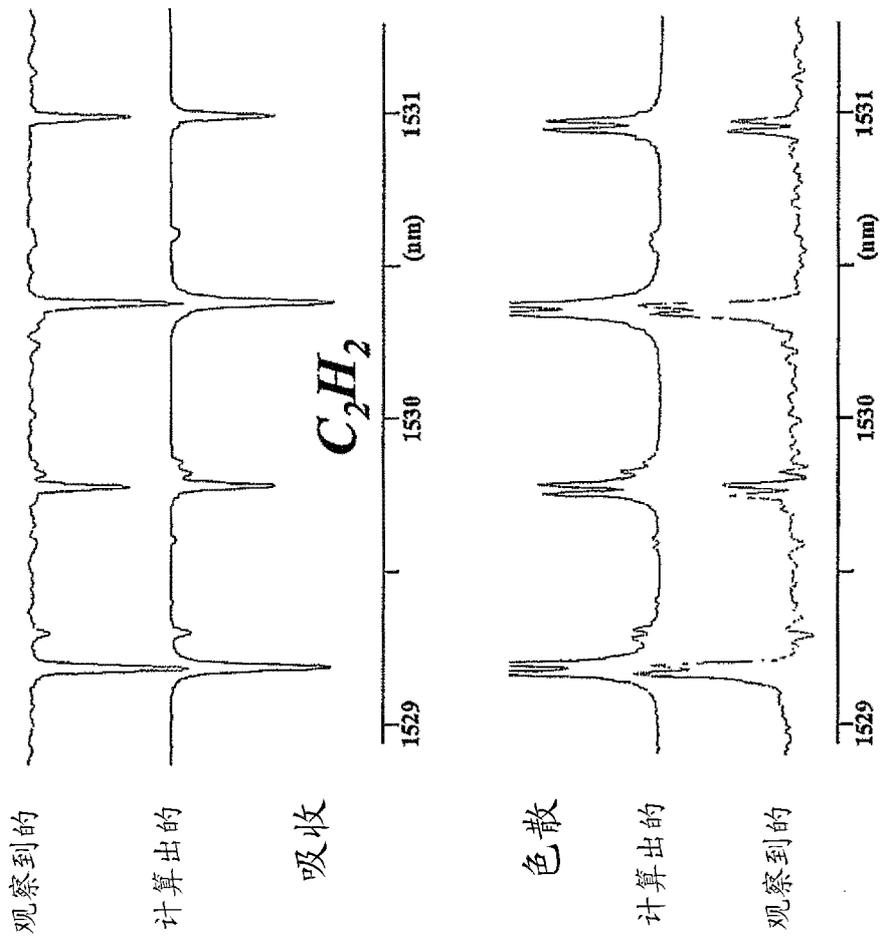


图 7

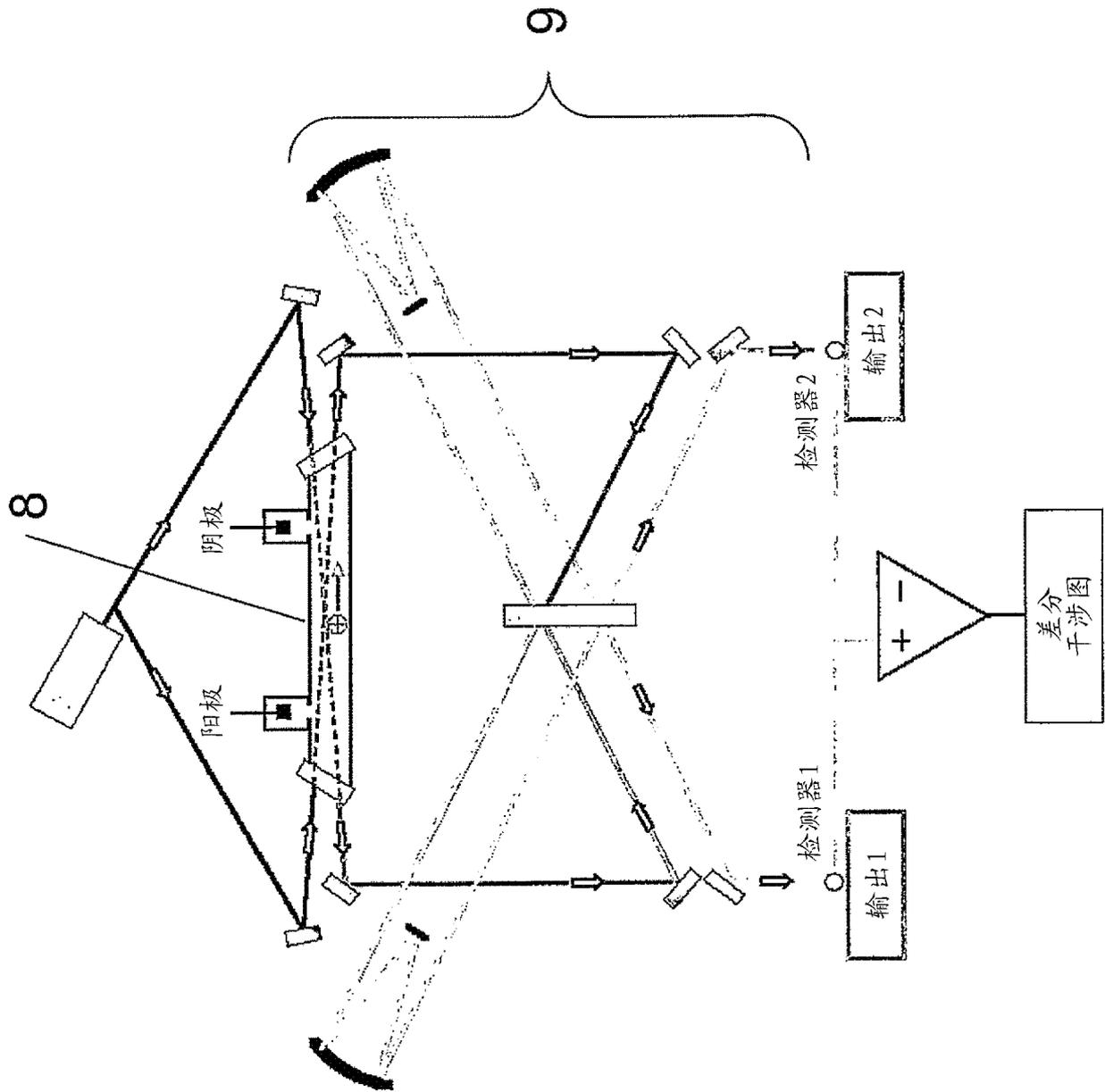


图 8

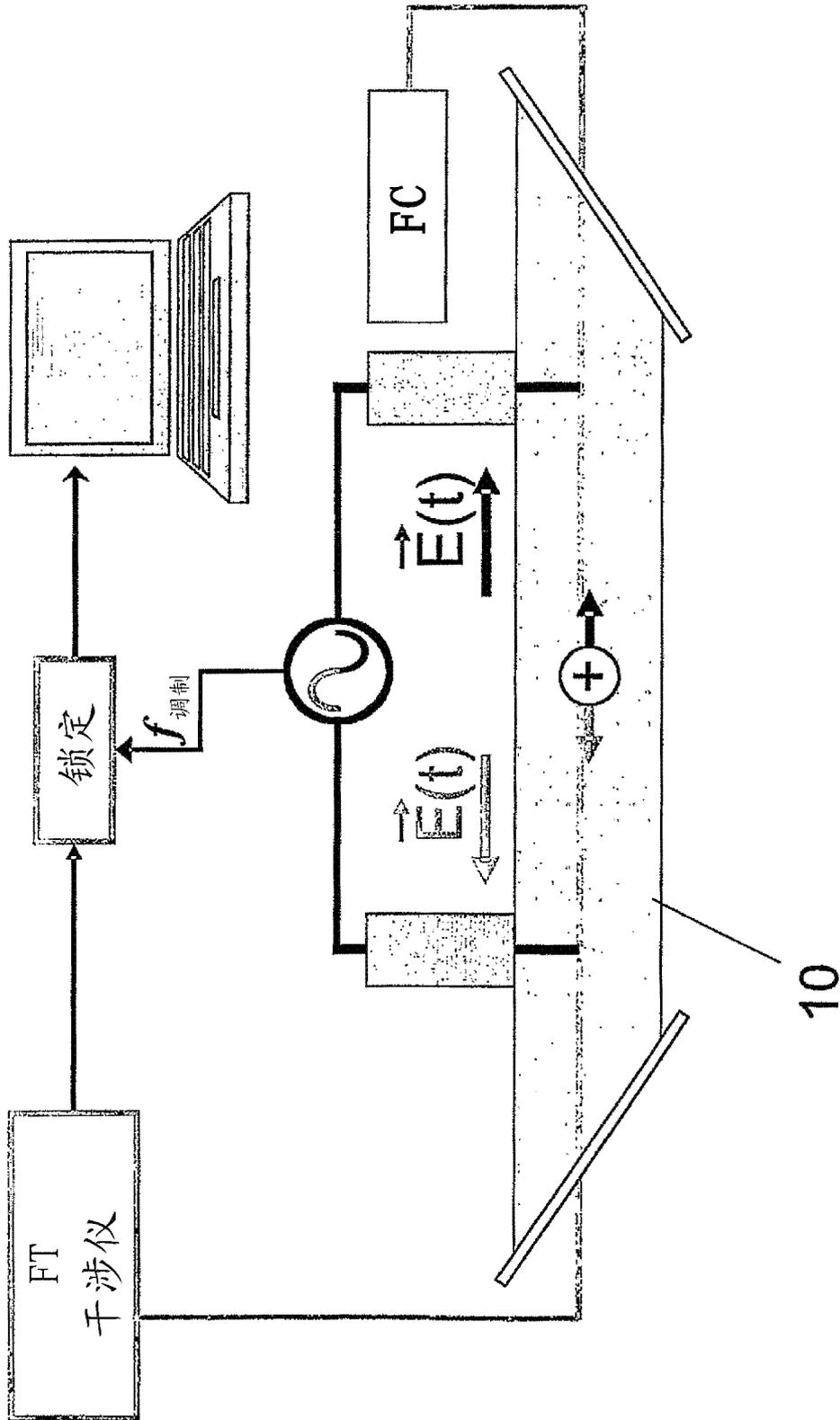


图 9

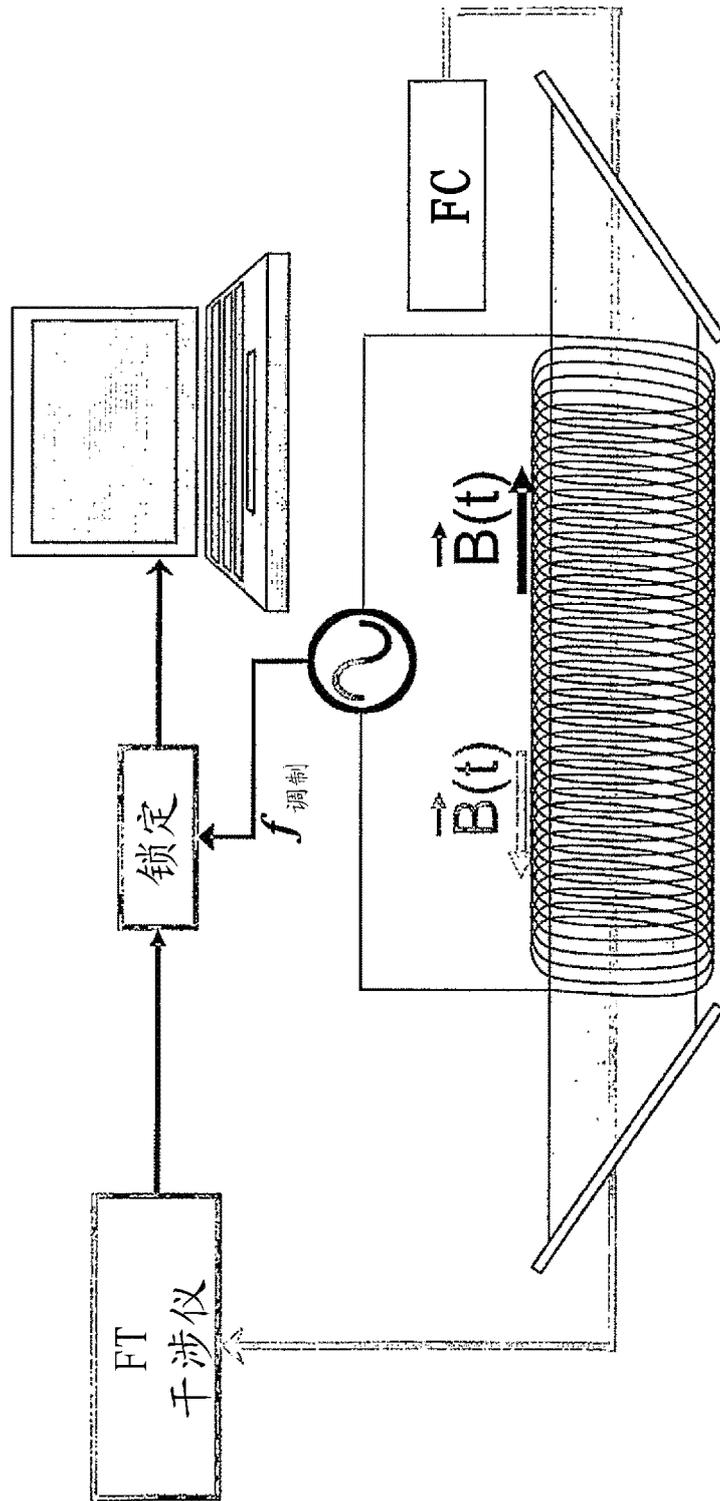


图 10

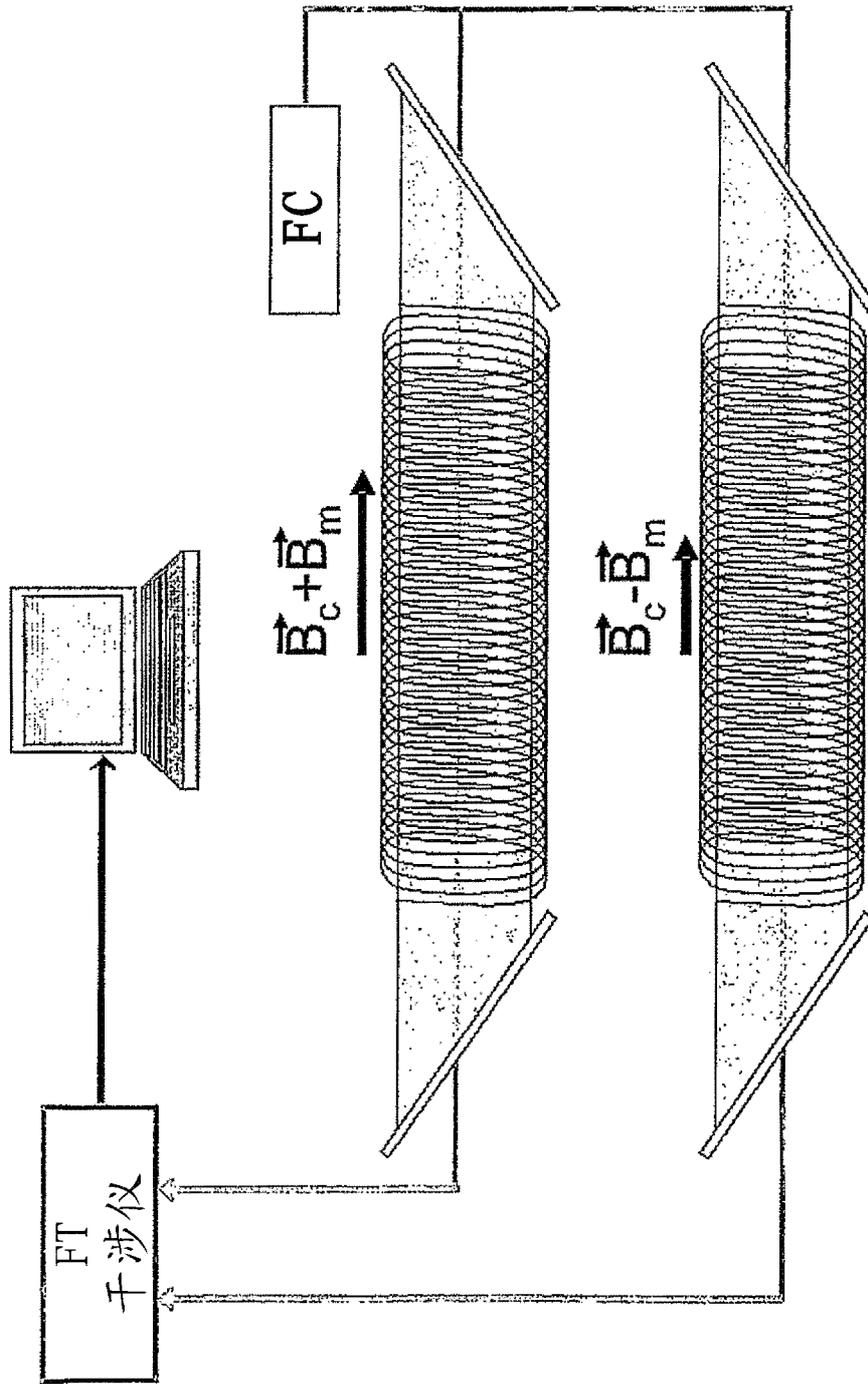


图 11

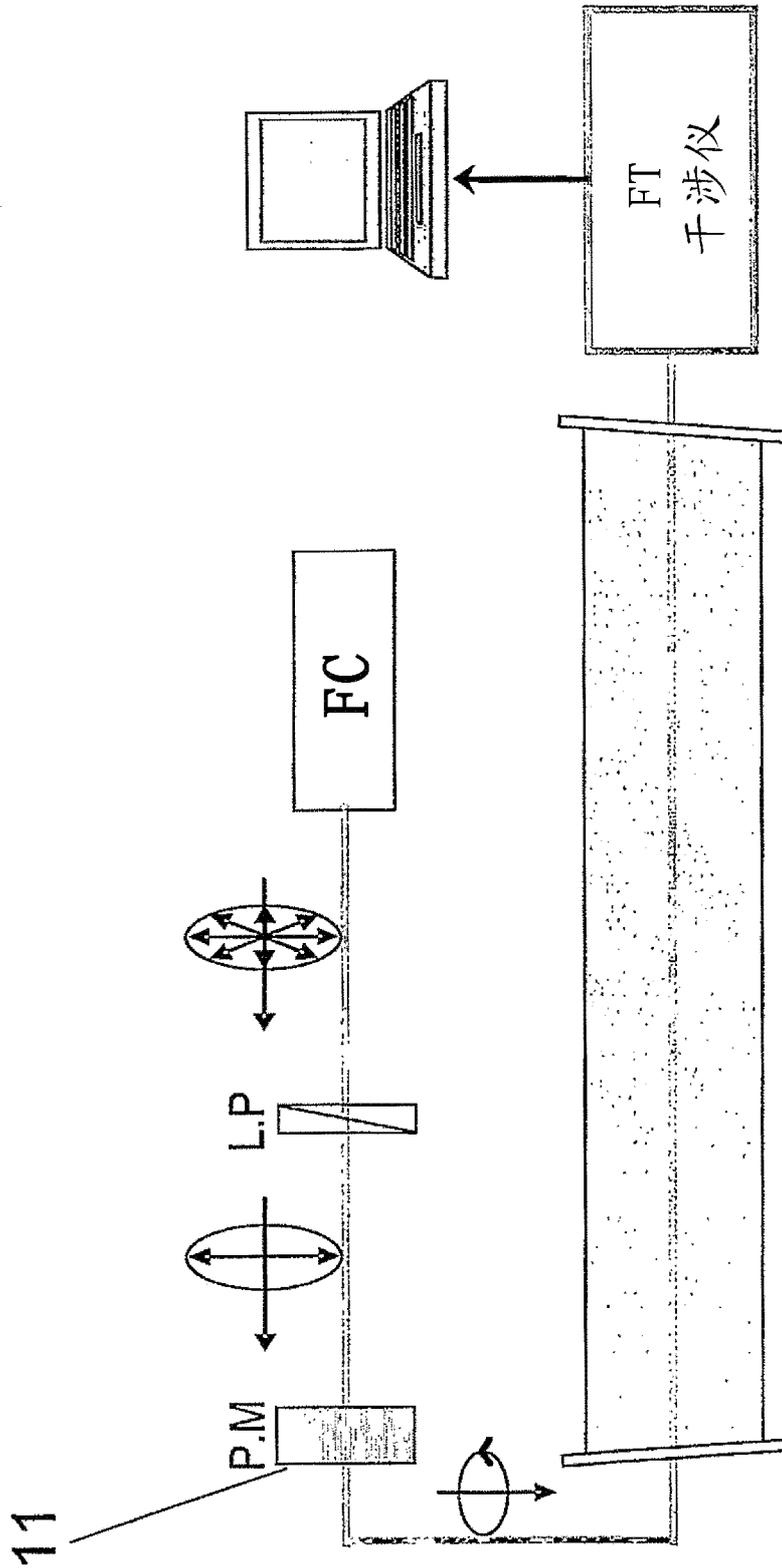


图 12

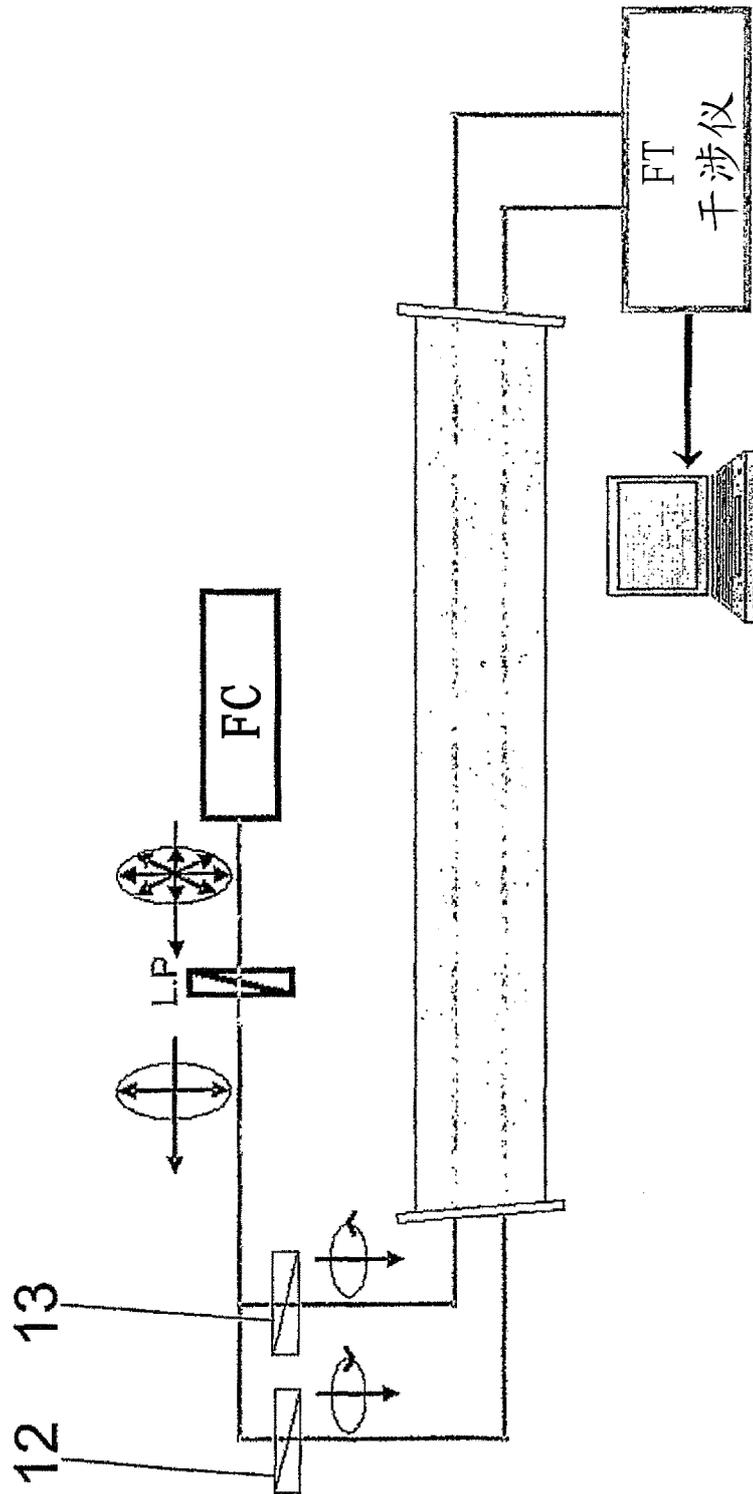


图 13