

强场太赫兹脉冲波形和频谱的单发测量技术

雷弘毅^{1,2}, 孙方正^{1,2}, 陈浩^{1,2}, 卫妍玉^{1,2}, 张保龙¹, 廖国前^{1,3*}, 李玉同^{1,2,3,4**}¹中国科学院物理研究所北京凝聚态物理国家研究中心, 北京 100190;²中国科学院大学物理科学学院, 北京 100049;³松山湖材料实验室, 广东 东莞 523808;⁴上海交通大学 IFSA 协同创新中心, 上海 200240

摘要 基于超快超强激光的强场太赫兹辐射源通常具有较低的重复频率, 此类辐射源的表征和应用对太赫兹时域波形和频谱测量技术提出了新要求。介绍了中国科学院物理研究所光物理重点实验室发展的几种针对太赫兹脉冲时域波形和频谱的单发测量系统, 重点讨论了每种方案的设计原理和特点。这些单发探测方案适用于低重复频率的强场太赫兹脉冲源, 有助于准确表征太赫兹辐射性质、深入理解太赫兹产生机制、拓展强场太赫兹应用范围。

关键词 测量; 太赫兹辐射; 电光采样; 自相关测量

中图分类号 O433.1

文献标志码 A

DOI: 10.3788/CJL230790

1 引言

高功率太赫兹源和简便太赫兹探测技术的缺乏曾经是限制太赫兹科学发展的重要因素。最近几十年, 随着超快激光技术的发展, 各种基于超快激光的强场太赫兹辐射源不断涌现, 包括超快激光泵浦光导天线^[1-3]、非线性晶体^[4-6]、等离子体^[7-8]等不同的技术方案。由于激光-太赫兹能量转换效率有限, 增加泵浦激光功率是提升太赫兹强度最直接的方法之一。目前实验室可用的激光峰值功率最高可达到 PW 甚至 10 PW 量级^[9-10]。目前, 利用 100 TW 激光与大尺寸铌酸锂晶体的作用, 通过光整流效应可产生能量在 10 mJ 以上的太赫兹脉冲^[11]; 利用相对论强度 ($>10^{18}$ W/cm²) 激光与固体密度等离子体的相互作用, 可以产生能量约为 200 mJ 的极端太赫兹脉冲^[12-13]。近年来, 这类超高峰值功率激光驱动的强场太赫兹辐射源受到越来越多的关注。需要指出的是, 高功率泵浦激光器运行的重复频率往往很低。例如功率为 10 TW 级的激光器运行的重复频率最高为 10 Hz, 飞秒拍瓦激光器的重复频率不超过 1 Hz。受限于此, 这些基于高峰值功率激光的强太赫兹辐射源只能以很低的重复频率甚至单发模式运行。常规太赫兹时域波形和频谱测量方案主要包括自由空间电光采样方案^[14-15]、傅里叶变换红外光谱仪方案^[16-17]等, 它们都基于多发扫描, 并不适用于重复频率较低、稳定性不高的太赫兹辐射源。因此, 亟须发

展单发的太赫兹波形和频谱测量技术, 用于准确表征低重复频率太赫兹源的辐射性质和理解相关的太赫兹产生物理过程。此外, 强太赫兹源的出现使得极端太赫兹脉冲与物质的相互作用成为可能。强太赫兹脉冲泵浦样品可能出现一些亚稳态或不可逆的现象, 单发测量技术也是此类实验研究的基础。

围绕超强激光驱动的强场太赫兹辐射, 中国科学院物理研究所光物理重点实验室进行了多年探索, 在实验研究过程中逐渐发展和完善了一系列单发太赫兹波形和频谱测量系统。本文将总结近年来我们课题组使用和发展的几种单发太赫兹测量系统。这些系统按测量物理量分为两类: 一类是基于谱编码或空间编码电光采样的波形测量系统, 另一类是基于滤片堆栈或非共线自相关的超宽带频谱测量系统。本文将简要介绍这些单发测量系统的物理原理、特点、实验实现方案和典型测量结果。

2 单发太赫兹时域波形测量

目前的单发太赫兹时域波形单发测量大多基于自由空间电光采样法, 通过将太赫兹场的时间信息编码在探针光脉冲的可测量信息上, 实现类似扫描的效果^[18]。对于飞秒激光脉冲, 其可便捷测量的信息主要包括光谱信息以及光斑空间分布。因此, 目前常用的单发太赫兹时域波形测量方案分为谱编码和空间编码电光采样两大类。

收稿日期: 2023-05-04; 修回日期: 2023-06-09; 录用日期: 2023-06-19; 网络首发日期: 2023-06-29

基金项目: 国家自然科学基金(12122415, 12175306, 92050106, 11827807, 92250307)、国家重点研发计划(2021YFA1601700, 2021YFA1400204)、中国科学院稳定支持基础研究领域青年团队计划(YSTR-059)

通信作者: *gqliao@iphy.ac.cn; **ytli@iphy.ac.cn

2.1 自由空间电光采样法的基本原理

自由空间电光采样法是目前最常用的太赫兹时域波形测量技术,被广泛应用于太赫兹表征测试、谱学和成像。该技术在太赫兹领域中的应用可以追溯到 20 世纪 90 年代^[14]。其基本布局如图 1 所示。电光采样的基本过程如下:线偏振的探针光脉冲和待测的太赫兹辐射时空同步地入射到电光晶体上,太赫兹场作用于电光晶体产生双折射效应,探针光的偏振态得到调制。通过检测探针光的偏振变化即可以得到特定时刻的太

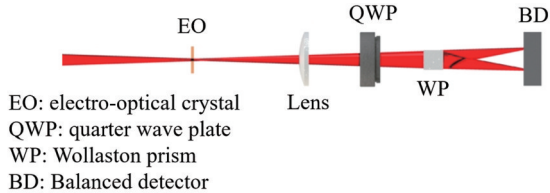


图 1 自由空间电光采样技术的基本布局^[19]

Fig. 1 Basic layout for free space electro-optical sampling technique^[19]

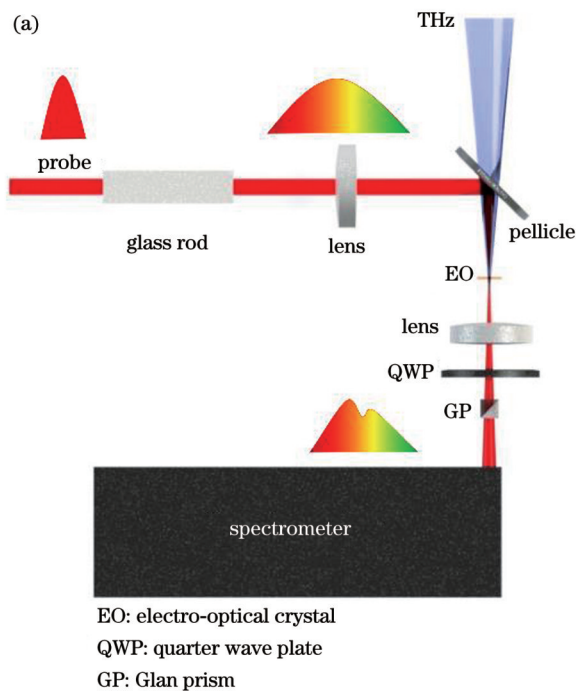


图 2 谱编码单发时域波形测量方案。(a)典型光路设计;(b)光谱仪测量的典型原始光谱数据;(c)典型太赫兹时域波形

Fig. 2 Spectro-encoding single-shot time-domain waveform measurement scheme. (a) Typical optical path design; (b) typical origin spectral data measured by spectrometer; (c) typical terahertz time-domain waveform

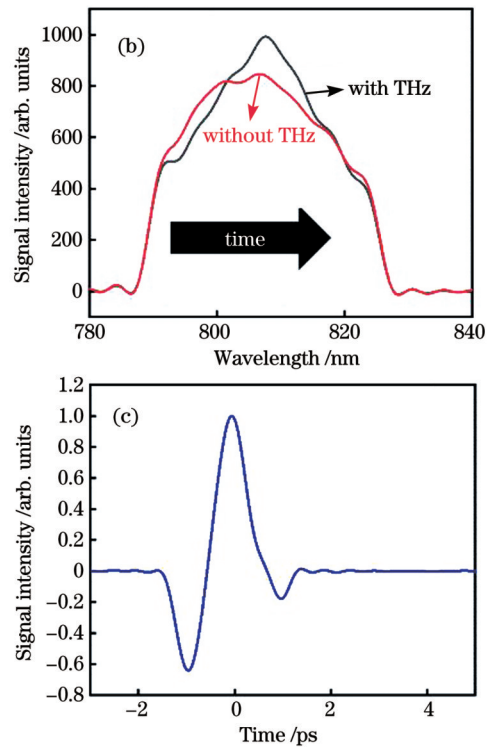
赫兹电场;通过扫描太赫兹和探针光脉冲之间的相对延时可得到太赫兹脉冲的时域波形。

谱编码方案的优势在于搭建简单,相比于扫描式电光采样,仅需将探针光展宽即可,实验实现较为容易。但此方案的劣势也较为明显,谱编码时间分辨率和探针激光脉宽的关系使得此方案无法同时实现高时间分辨和宽时间窗口。

谱编码方案的一种改进方式为利用频域干涉技术测量探针光的相位变化^[22-24]。此改进方案的原理为利

2.2 基于谱编码的单发电光采样

基于谱编码的单发太赫兹时域波形电光采样测量方案^[20](以下简称谱编码方案)的基本思路如下:利用飞秒激光脉冲的宽光谱特性,将探针光脉冲的色散展宽;对于近似线性啁啾展宽脉冲,不同光谱分量与不同时刻的瞬时太赫兹场在电光晶体处发生作用,因此太赫兹场时域波形被编码到探针光的光谱信息上。在实验中可以采用色散玻璃、展宽光纤、双光栅展宽器等元件对探针光进行展宽。谱编码方案的时间分辨率(Δt)受限于不确定性原理,由探针光的傅里叶变换极限及其展宽后的脉宽决定^[21],即 $\Delta t = \sqrt{\tau_0 \tau_L}$,其中 τ_0 为探针光的变换极限脉宽, τ_L 为探针光展宽后的脉宽。总时间窗口(T)受限于 τ_L 。图 2(b)、(c)显示了谱编码方案测量得到的钽酸锂晶体太赫兹源的时域波形典型结果。实验中使用高色散玻璃将 $\tau_0 = 70$ fs 的探针光展宽至 ~ 2.6 ps,对应时间分辨率约为 430 fs。



用两个在时间上间隔较短的脉冲,通过测量其光谱干涉在有/无太赫兹场下的变化,得到太赫兹时域波形。对于两个延时为 τ 的脉冲,两者在频谱上的叠加可以表示为

$$I(\omega) = |E_1(\omega) + E_2(\omega)e^{i\omega\tau}|^2 = I_1(\omega) + I_2(\omega) + 2\sqrt{I_1(\omega)I_2(\omega)}\cos[\Delta\phi(\omega) + \omega\tau], \quad (1)$$

式中： ω 为激光的角频率； $E_1(\omega)$ 、 $E_2(\omega)$ 为激光频谱的复振幅； $I_1(\omega)$ 、 $I_2(\omega)$ 为激光的频谱强度； $\Delta\phi(\omega)$ 为两束光的相位差。对于完全相同的两束激光，当存在一定时间差时，两者干涉会在频谱上引起周期性的条纹。当探针光出现相位变化时，探针光频谱上的条纹会发生改变。电光采样的本质就是对探针光相位的调制，因此可以利用这种方案测量太赫兹时域波形。

此改进方案的典型光路如图 3(a) 所示。在实验上，我们使用双光栅展宽器将变换极限附近的脉冲展

宽到 ~ 17 ps，其和铌酸锂晶体太赫兹共同聚焦在电光晶体上，由此将太赫兹时域信息编码到不同时刻的探针光的相位上。探针光在偏硼酸钡晶体(BBO)中发生双折射效应。在探测过程中使用格兰棱镜使两束光发生干涉，通过成像光谱仪得到频域的干涉条纹。啁啾展宽后的探针光和太赫兹光作用时，太赫兹光的时域信息被编码在不同时刻探针光的相位上。对比有/无太赫兹场时的干涉条纹，可以得到探针光的相位差，进而得到太赫兹时域波形。

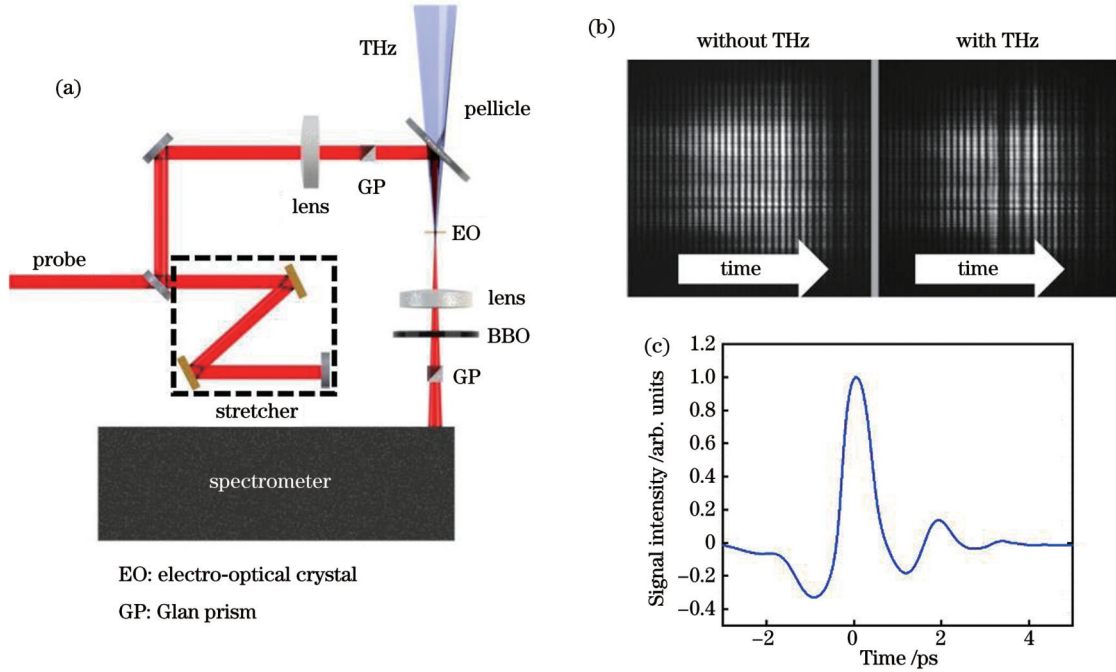


图 3 基于频域干涉技术的谱编码单发时域波形测量方案。(a) 典型光路设计；(b) 光谱仪测量的典型原始数据；(c) 典型太赫兹时域波形

Fig. 3 Spectro-encoding single-shot time-domain waveform measurement scheme based on spectral interferometry technique. (a) Typical optical path design; (b) typical origin spectral data measured by spectrometer; (c) typical terahertz time-domain waveform

谱编码改进方案的实验光路调节和数据处理过程比传统方案复杂，但其时间分辨为探针光变换极限量级^[25]，可以克服传统谱编码方案中不确定性原理带来的时间分辨限制，从而实现高时间分辨、宽时间窗口的太赫兹时域波形测量。

2.3 基于空间编码的单发电光采样

基于空间编码的太赫兹时域波形电光采样测量方案(以下简称空间编码方案)的基本思路如下:利用探针光的光斑空间分布信息,使空间上不同位置的探针光与不同时刻的太赫兹场相互作用,从而将太赫兹时域信息编码到探针光空间分布上。目前常用的空间编码方案有非共线编码^[26-27]和阶梯镜编码^[28-29]两种。

非共线空间编码方案的基本思路如下:平行的探针光斜入射到电光晶体上,因此光斑的不同部分到达电光晶体的时间不同,受到不同时刻的太赫兹场调制,从而太赫兹时间信息被编码到探针光光斑的空间分布

上。实验中此种方案的基本布局如图 4(a)、(b) 所示。太赫兹脉冲垂直聚焦在电光晶体上,平行的探针光斜入射在电光晶体上,经过电光晶体的探针光斑成像在相机上,通过在成像系统中加入 1/4 波片、沃拉斯顿棱镜等元件可实现对探针光偏振的检测。非共线空间编码方案的采样率与探针光入射角(α)、成像系统的放大率(M)以及探测相机的像素大小(w_{pixel})有关。对于入射角为 α 的探针光,系统的采样率可以表示为 $\Delta t = \frac{w_{\text{pixel}}}{Mc} \tan \alpha$, 其中 c 为光速。测量系统的时间分辨率由激光脉宽和采样率中的较大值决定。系统的总时间窗口 T 受太赫兹焦斑和探针光光斑的横向大小的影响,即 $T = \frac{w_{\text{spot}}}{Mc} \tan \alpha$, 其中 w_{spot} 为太赫兹焦斑和探针光斑尺寸的较小值。可以看出,非共线谱编码信号受到了太赫兹光斑横向分布的影响。因此,使用此种方案测量太赫兹时域波形时,需要依据太赫兹源的脉宽

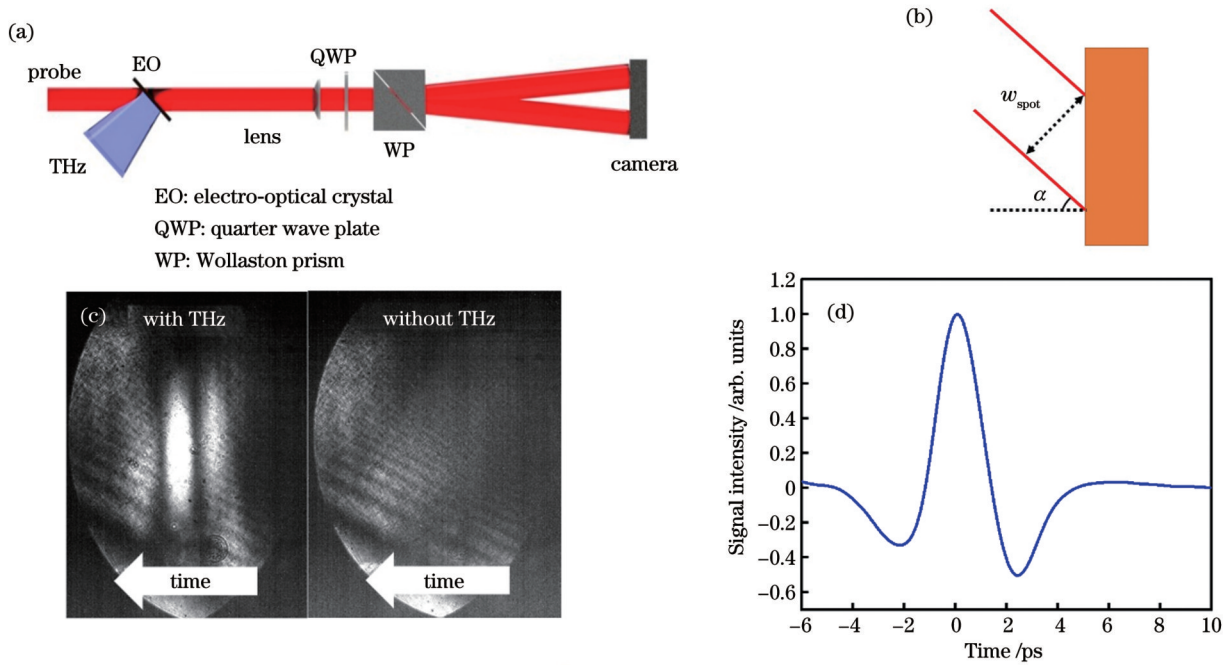


图4 非共线空间编码单发时域波形测量方案。(a)典型光路设计;(b)空间编码示意图;(c)相机测量的典型原始图像;(d)典型太赫兹时域波形

Fig. 4 Non-collinear spatial-encoding single-shot time-domain waveform measurement scheme. (a) Typical optical path design; (b) schematic of spatial encoding; (c) typical origin image captured by camera; (d) typical terahertz time-domain waveform

和光斑等性质,综合考虑时间分辨率和时间窗口,针对性地设置系统中的参数,比如采用合适的探针光入射角,并采用合适的成像放大率和小像素相机,获得满足要求的时间分辨率和时间窗口。

阶梯镜空间编码是一种可以同时实现高时间分辨、宽时间窗口的探测方案,主要利用阶梯状微结构改变探针光斑内不同位置处的光程。阶梯镜分为反射式阶梯镜和透射式阶梯镜两种。透射式阶梯镜利用激光在阶梯镜中的不同传播厚度,为探针光的不同空间部分引入延时。使用时只需要将阶梯镜放入常规扫描式太赫兹时域波形测量光路中,光路较为简单,但探针光在介质中传播会发生展宽,因此会影响探测系统的时间分辨率。反射式阶梯镜类似台阶^[30],探针光不同部分的反射面不同,从而在反射的不同子束中引入延时;其光路设计相对复杂,但不改变每个子束的脉宽,因此可以实现探针光变换极限脉宽量级的时间分辨率。反射式阶梯镜方案的光路如图5(a)所示,两个透镜组成4*f*成像系统,物面为阶梯镜镜面,像面为探测相机阵面,太赫兹光聚焦在焦平面上并与探针光焦点重合,在第二个透镜后方放置波片以及沃拉斯顿棱镜以对探针光偏振进行测量。反射式阶梯镜两个相邻台阶之间引入的延时可以表达为 $\Delta t = \frac{2h}{c} \cos \theta$,其中*h*为台阶的高度, θ 为探针光在阶梯镜上的入射角。为保证探测系统的采样率不受阶梯镜的影响,阶梯镜相邻台阶之间的时间间隔应小于等于探针激光的脉宽。在探针光入射角为22.5°的情况下,高度为5 μm的阶梯镜的

相邻台阶之间的时间延时约为30 fs,与常用的探针光脉宽相当。阶梯镜空间编码的时间窗口可以表达为 $T = N \times \Delta t$,其中*N*为阶梯镜的总台阶数。相比于非共线空间编码和典型的谱编码方案,反射式阶梯镜方案可以通过增加台阶的方式同时获得高时间分辨和宽时间窗口。实验中使用阶梯镜空间编码方案测量的飞秒激光-固体薄膜靶相互作用太赫兹源的原始图片和对应的时域波形如图5(b)、(c)所示。

2.4 小结

以上几种方案都可以单发测量太赫兹时域波形,并且可以通过合理的光路设计实现高时间分辨率和宽时间窗口,在强场太赫兹相关研究中有望成为重要的研究工具。本节中,我们通过多轮物理实验,在铌酸锂晶体太赫兹源和激光-固体薄膜靶相互作用太赫兹源上对这四种方案进行了实验演示。这些方案可以单发实现高时间分辨的太赫兹时域波形探测,但也存在共同的问题,即探测的带宽存在上限。电光采样的探测带宽上限有两个限制因素。第一个限制因素为电光采样过程中必须使用电光晶体。电光晶体中的声子吸收以及太赫兹-探针光的相位失配会导致电光采样只能测量较低频段的太赫兹辐射,对于常用的1 mm厚的碲化锌(ZnTe)晶体和100 m厚的磷化镓(GaP)晶体,其适用的频率范围分别为3 THz以下和8 THz以下^[31],如图6所示。第二个主要的限制因素为探针光的脉宽。根据采样定理,脉宽为30 fs的探针光的可探测带宽不超过15 THz。更高带宽的太赫兹脉冲时域波形测量需要更短脉宽的探针激光。

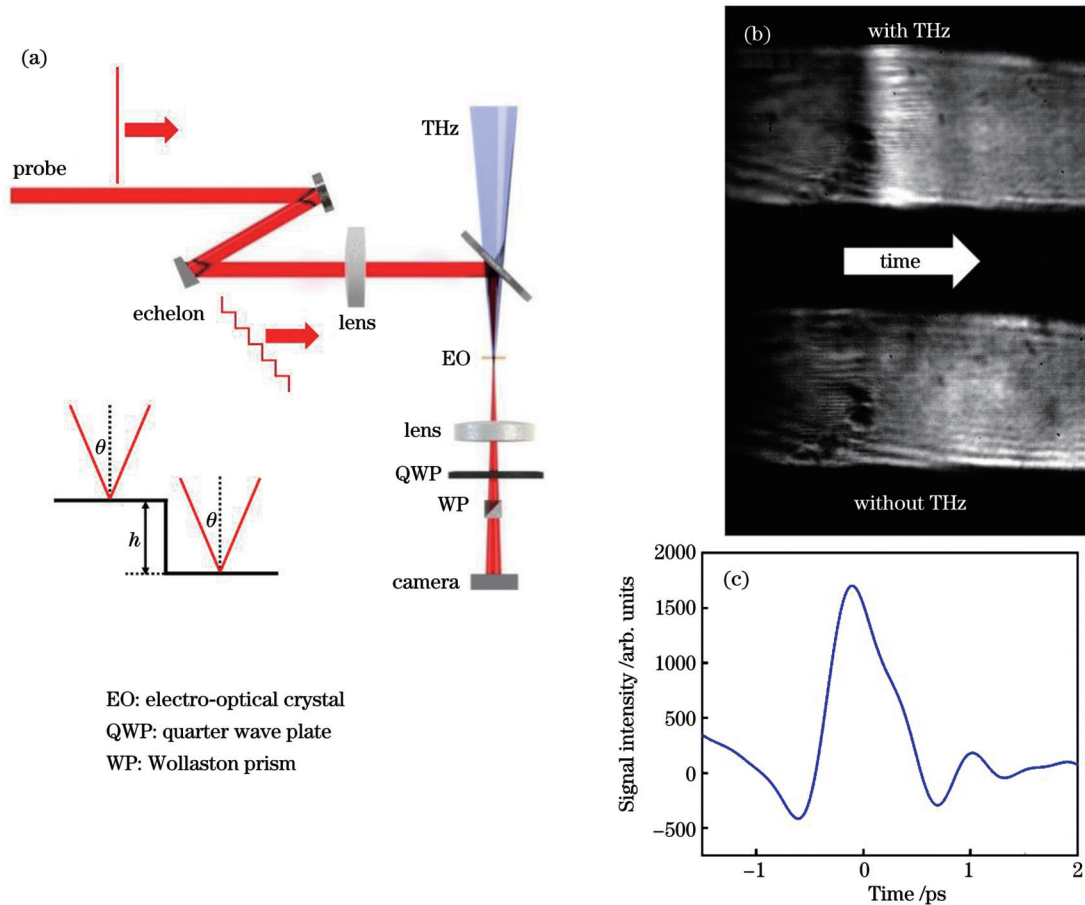


图 5 基于反射式阶梯镜的空间编码单发时域波形测量方案。(a) 典型光路设计, 插图为反射式阶梯镜引入的时间延迟的示意图; (b) 相机测量的典型原始数据; (c) 典型太赫兹时域波形
 Fig. 5 Spatial-encoding single-shot time-domain waveform measurement scheme based on reflective echelon prism. (a) Typical optical path design with time delay introduced by reflective echelon prism shown in inset; (b) typical origin image captured by camera; (c) typical terahertz time-domain waveform

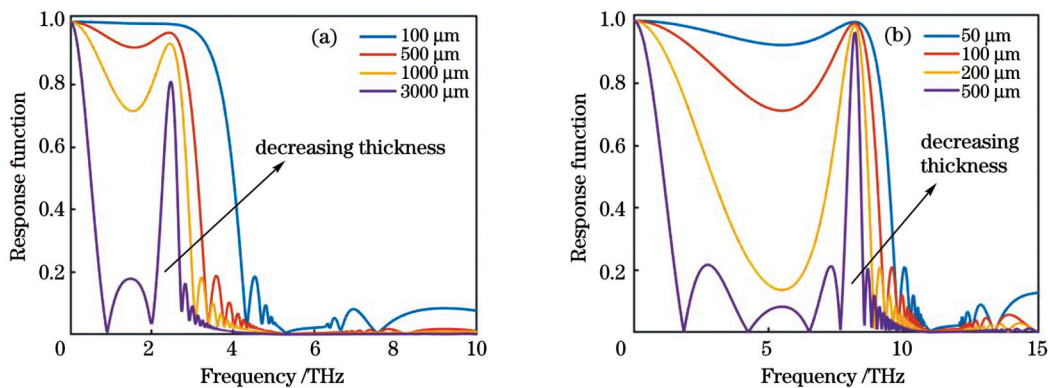


图 6 不同厚度的碲化锌晶体和磷化镓晶体的响应函数。(a) ZnTe; (b) GaP
 Fig. 6 Response functions of zinc telluride and gallium phosphide crystals with different thicknesses. (a) ZnTe; (b) GaP

3 单发超宽带太赫兹谱仪

激光等离子体太赫兹辐射源往往是超宽带的, 例如双色场光丝太赫兹源的带宽甚至可到百 THz^[32], 飞秒强激光与固体密度等离子体作用驱动的太赫兹源的带宽可以到 30 THz^[8], 已经超出了常用电光晶体的频谱响应范围。针对超宽带太赫兹辐射, 电光

采样需要 10 fs 量级脉宽的探针光脉冲, 然而超快超强激光实验室通常无法制备如此短脉宽的探针光。傅里叶变换红外光谱仪 (FTIR) 可测量超宽带频谱, 但依赖于多发扫描。基于这些考虑, 除了单发电光采样系统外, 我们还发展了两套单发超宽带太赫兹谱仪, 分别基于太赫兹带通滤片和非共线自相关技术。

3.1 多通道太赫兹谱仪

最直接的太赫兹频谱测量方案如下:使用太赫兹带通滤片对每个频率点处的太赫兹辐射能量进行测量,通过更换滤片即可实现对太赫兹光的频谱测量。对于强场太赫兹辐射,一次性使用多个不同频段段的太赫兹滤片对太赫兹频谱进行单发探测在实验上是可能的。基于此种思路,我们设计了一套由高阻硅片、太赫兹滤片和热释电探测器组成的多通道太赫兹谱仪^[33]。如图 7(a)所示,在谱仪中使用 7 片高阻硅片对太赫兹辐射进行分束并将其导入 8 个能量相似的通道,通过在每个通道中放置不同的太赫兹带通滤片,对入射太赫兹辐射进行滤波,并使用同规格的热释电探测器进行能量探测,实现太赫兹频谱单发测量。在此方案中,单个通道的信号强度可表示为

$$V_i = S_e(f_i) \times B_i \times S_p(f_i), \quad (2)$$

式中: $S_e(f_i)$ 为系统的谱响应率; B_i 为此通道使用的带通滤片的带宽; $S_p(f_i)$ 为太赫兹频谱; f_i 为第 i 个通道对应的太赫兹脉冲的频率。系统的谱响应率 $S_e(f_i)$ 表

示为

$$S_e(f_i) = T_{\text{window}}(f_i) \times T_{\text{focus}}(f_i) \times E_i \times T_{\text{BPF}}(f_i) \times S_{\text{detector}}(f_i), \quad (3)$$

式中: $T_{\text{window}}(f_i)$ 为太赫兹窗口的透过率; $T_{\text{focus}}(f_i)$ 为太赫兹聚焦元件的效率; E_i 为每通道能量与总能量的比值; $T_{\text{BPF}}(f_i)$ 为带通滤片的透过率; $S_{\text{detector}}(f_i)$ 为热释电探头自身的响应率。在探测系统光路和探测元件确定的情况下,可以对系统谱响应进行理论计算。谱仪使用的所有滤片的峰值透过率均超过 70%,带宽为中心频率的 10%~20%,通过合理选择滤片的工作频段,可以保证较宽的频谱测量范围。根据实验测量得到的信号,结合系统谱响应率,可反演得到太赫兹光在离散频率点处的频谱分布情况。

我们在飞秒激光和固体薄膜靶相互作用产生太赫兹辐射的实验中使用时多通道太赫兹谱仪进行测量,并结合系统的响应函数计算太赫兹光的频谱。实验中太赫兹频谱的测量结果如图 7(b)所示,在 0.1~30.0 THz 的频率区间内均有可分辨的频谱分量。

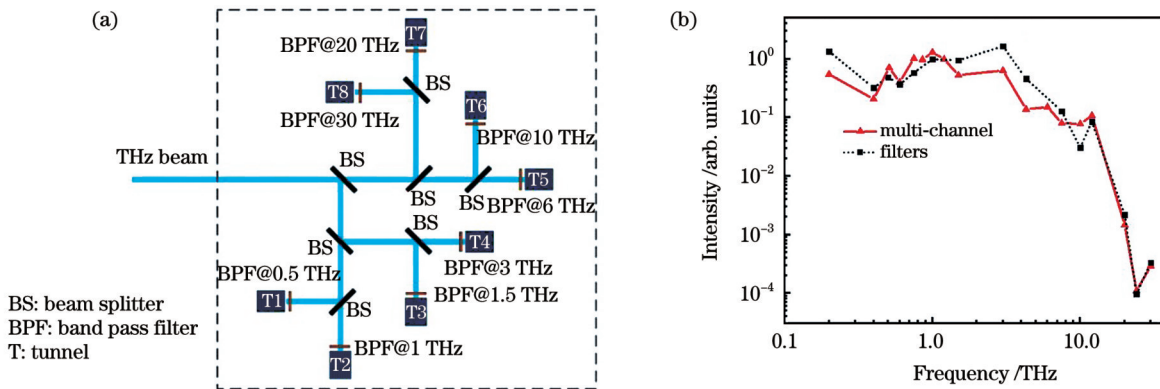


图 7 多通道太赫兹谱仪。(a)光路布局;(b)典型测量结果

Fig. 7 Multi-channel terahertz spectrometer. (a) Optical path layout; (b) typical measurement result

多通道太赫兹谱仪的优势为实验现象直观,不需要复杂的光路设计,实验操作相对简单,并且可实现宽频谱太赫兹光的单发测量。但其缺点也较为明显,只有在较强的太赫兹源下才能使用此方案进行测量,并且由于太赫兹带通滤片的限制,谱仪中的频率点离散,较难实现高太赫兹频谱分辨率。

3.2 非共线太赫兹自相关仪

为了实现高分辨率的超宽带太赫兹频谱的单发测量,最近我们在傅里叶变换光谱仪以及非共线空间编码方案的启发下,提出了一种新型的单发太赫兹自相关测量方案^[34]。此方案的设计如图 8(a)所示,平行的太赫兹光束被半透半反分束片分成两路,然后经过一定延时后分别被两个离轴抛物面镜聚焦,非共线重合在太赫兹相机上。如图 8(b)所示,在两束太赫兹脉冲存在延时 τ 的情况下,相机上的光斑信号可表示为

$$I(x) = \int |E_1(t) + E_2(t + \tau)|^2 dt = I_1 + I_2 + 2R(\tau), \quad (4)$$

$$R(\tau) = \int E_1(t) \cdot E_2^*(t + \tau) dt, \quad (5)$$

式中: $I(x)$ 为相机上的太赫兹脉冲强度; x 为位置坐标; $E_1(t)$ 和 $E_2(t + \tau)$ 为两束太赫兹脉冲的电场强度; $*$ 为取复共轭; I_1 和 I_2 为两束太赫兹脉冲的强度; $R(\tau)$ 为两束太赫兹脉冲的自相关信息。可以看出,当两束太赫兹脉冲呈时空交叠时,其干涉会对太赫兹脉冲的强度分布进行调制。如果两束太赫兹脉冲完全相同,则 $R(\tau)$ 为太赫兹脉冲的自相关函数。当两束太赫兹脉冲呈时空交叠时,通过测量太赫兹光斑分布可以得到太赫兹自相关信号,然后通过傅里叶变换即可得到太赫兹频谱。

此方案的频谱分辨率和带宽取决于系统中的非共线几何位型以及相机参数。对于像素大小为 δ 的相

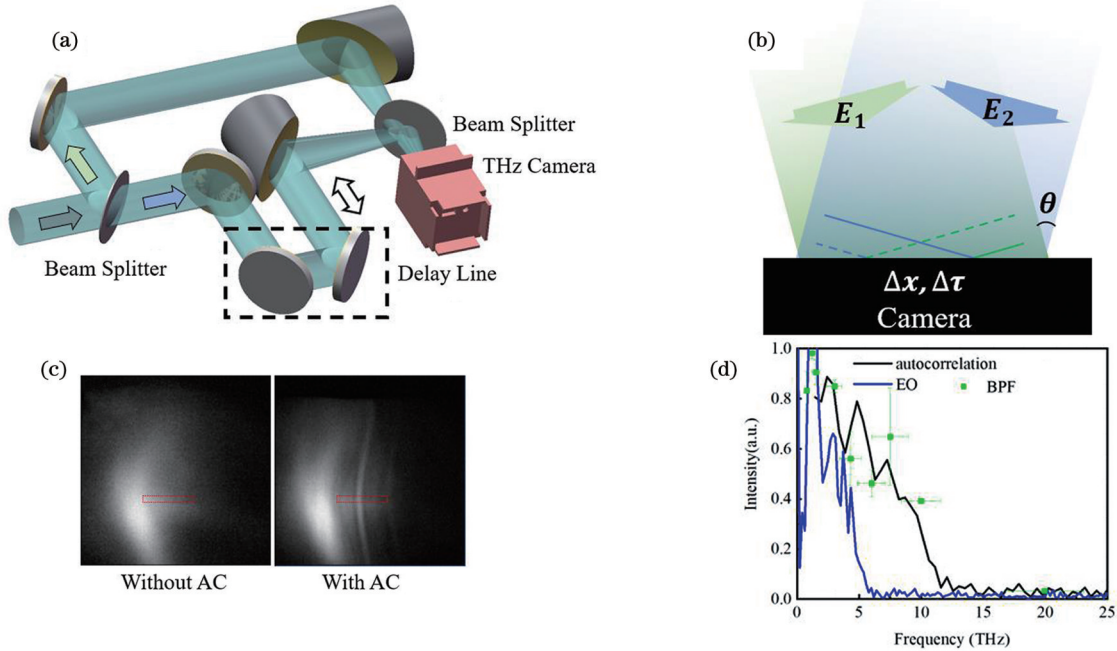


图 8 单发太赫兹自相关测量方案^[34]。(a)光路设计;(b)相机阵面上两束太赫兹脉冲的几何关系;(c)太赫兹背景光斑和典型的自相关信号光斑;(d)太赫兹频谱

Fig. 8 Single-shot terahertz autocorrelation measurement scheme^[34]. (a) Optical path design; (b) geometric relationship of two terahertz pulses on camera array; (c) terahertz background spot and typical autocorrelation signal spot; (d) terahertz spectra

机,其单像素的时间分辨率为 $\delta' = 2 \frac{\delta}{c} \sin\left(\frac{\theta'}{2}\right)$,其中 θ' 为两束太赫兹脉冲的夹角。由采样定理可知,单像素的时间分辨率决定了系统的测量带宽 (ω_{\max}),其大小为 $\omega_{\max} = \frac{1}{2\delta'} = \frac{c}{4\delta \sin\left(\frac{\theta'}{2}\right)}$ 。对于直径为 D 的太赫兹

光斑,系统的时间窗口可以表示为 $T = 2 \frac{D}{c} \sin\left(\frac{\theta'}{2}\right)$ 。相应地,系统的频谱分辨率为 $\omega_{\max} = \frac{1}{T} = \frac{c}{2D \sin\left(\frac{\theta'}{2}\right)}$ 。

我们在激光-固体薄膜靶相互作用太赫兹源下使

用此单发自相关仪对太赫兹光进行了测量,得到的原始数据以及从中得到的太赫兹频谱如图 8(c)、(d)所示。与电光采样测量的频谱相比,此方案测量得到的频谱更宽,并且与太赫兹滤片测量得到的结果也较为接近。实验标定得出时间分辨率为 ~ 9 fs/pixel,相应计算出的两束太赫兹脉冲的夹角为 $\sim 9.1^\circ$,对应的太赫兹频率的探测带宽可达 46 THz,谱分辨率约为 0.34 THz。

相比于各类单发电光采样方案,此方案的优势在于可测量的频谱带宽很宽,可以从太赫兹波段延伸到红外波段,并且无需额外光探针,光路设计相对简单,同时可以实现超宽带、高分辨率的太赫兹频谱测量。

表 1 总结和对比了文中介绍的几种单发测量方案。设计的单发太赫兹时域波形测量方案可以实现高

表 1 各类单发探测方案的对比

Table 1 Comparison of various single-shot detection schemes

Method	Time resolution	Time window	Spectral resolution	Spectral bandwidth	Advantage	Disadvantage
Spectral-encoding	$\sqrt{\tau_0 \tau_L}$	τ_L	$1/\tau_L$	Being limited by electro-optical crystal	Little modification compared to traditional scanning methods	Time resolution limited by chirped laser pulse duration
Spectral-encoding with spectral interferometry	τ_0	τ_L	$1/\tau_L$	Being limited by electro-optical crystal	High time resolution with large time window	Difficulty in optical alignment and data processing
Non-colinear spatial-encoding	$\frac{w_{\text{pixel}}}{Mc} \tan \alpha$	$\frac{w_{\text{spot}}}{Mc} \tan \alpha$	$1/\left(\frac{w_{\text{spot}}}{Mc} \tan \alpha\right)$	Being limited by electro-optical crystal and optical setup	Being ease in alignment	Conflicts between high time resolution and wide time window

Method	Time resolution	Time window	Spectral resolution	Spectral bandwidth	Advantage	Disadvantage
Spatial-encoding based on echelons	$\frac{2h}{c} \cos \theta$	$\frac{2Nh}{c} \cos \theta$	$1/\left(\frac{2Nh}{c} \cos \theta\right)$	Being limited by electro-optical crystal	High time resolution with large time window	Requiring high-precision echelons
Multi-channel terahertz spectrometer			Relying on filter bandwidth	Relying on filter central frequency	Being ease in alignment and data processing	Spectral resolution limited by filter, and requiring high terahertz energy
Single-shot terahertz autocorrelation	$2\frac{\delta}{c} \sin\left(\frac{\theta'}{2}\right)$	$2\frac{D}{c} \sin\left(\frac{\theta'}{2}\right)$	$\frac{c}{4\delta \sin\left(\frac{\theta'}{2}\right)}$	$\frac{c}{2D \sin\left(\frac{\theta'}{2}\right)}$	High spectral resolution with large spectral bandwidth	Requiring terahertz camera

时间分辨率、宽时间窗口的太赫兹时域波形测量, 未来有望在强场太赫兹泵浦探测实验中发挥独特的作用; 多通道太赫兹谱仪简单直接, 可用于评估宽带太赫兹辐射的大致频谱分布; 新型的太赫兹非共线自相关仪可以实现单发、超宽带太赫兹频谱测量, 同时具有一维空间分辨率, 并且可以扩展到频率更高的红外波段。

4 结 论

介绍了几种针对强场太赫兹脉冲波形和频谱的单发测量方案, 并对每种方案的原理、特点和实验布局进行了讨论。通过结合柱透镜成像等特殊设计, 单发太赫兹时域波形测量方案也可以兼具空间分辨能力, 在单发测量时域波形的同时还可以表征太赫兹辐射的角分布和角色散等性质。总之, 单发太赫兹测量方案作为常规太赫兹探测技术的有效补充, 将在准确表征低重复频率强场太赫兹脉冲源的辐射性质、深入理解太赫兹产生的物理过程、探索单发强场太赫兹的应用等方面提供重要的技术参考。

参 考 文 献

- [1] Hafez H A, Chai X, Ibrahim A, et al. Intense terahertz radiation and their applications[J]. *Journal of Optics*, 2016, 18(9): 093004.
- [2] Han Z H, Sun K L, Cai Y J. Research progress of micro-nano optical structure and terahertz radiation generation technology[J]. *Acta Optica Sinica*, 2021, 41(8): 0823017.
- [3] 靳延平, 杨勇, 徐新龙. 基于纳米天线阵列非线性光学效应的太赫兹辐射特性研究[J]. *光学学报*, 2022, 42(15): 1506001.
Jin Y P, Yang Y, Xu X L. Terahertz radiation characteristics based on nonlinear optical effect of nano-antenna array[J]. *Acta Optica Sinica*, 2022, 42(15): 1506001.
- [4] Hebling J, Almasi G, Kozma I Z, et al. Velocity matching by pulse front tilting for large area THz-pulse generation[J]. *Optics Express*, 2002, 10(21): 1161-1166.
- [5] Vicario C, Ovchinnikov A V, Ashitkov S I, et al. Generation of 0.9-mJ THz pulses in DSTMS pumped by a Cr: Mg₂SiO₄ laser[J]. *Optics Letters*, 2014, 39(23): 6632-6635.
- [6] Zhang B L, Ma Z Z, Ma J L, et al. 1.4-mJ high energy terahertz radiation from lithium niobates[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2021, 15(3): 2000295.
- [7] Gopal A, Herzer S, Schmidt A, et al. Observation of gigawatt-class THz pulses from a compact laser-driven particle accelerator [J]. *Physical Review Letters*, 2013, 111(7): 074802.
- [8] Liao G Q, Li Y T, Zhang Y H, et al. Demonstration of coherent terahertz transition radiation from relativistic laser-solid interactions [J]. *Physical Review Letters*, 2016, 116(20): 205003.
- [9] Danson C, Hillier D, Hopps N, et al. Petawatt class lasers worldwide[J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2015, 3(1): e3.
- [10] Danson C N, Haefner C, Bromage J, et al. Petawatt and exawatt class lasers worldwide[J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2019, 7(3): e54.
- [11] Wu X J, Kong D Y, Hao S B, et al. Generation of 13.9-mJ terahertz radiation from lithium niobate materials[J]. *Advanced Materials*, 2023, 35(23): e2208947.
- [12] Liao G Q, Li Y T, Liu H, et al. Multimillijoule coherent terahertz bursts from picosecond laser-irradiated metal foils[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 2019, 116(10): 3994-3999.
- [13] Liao G Q, Liu H, Scott G G, et al. Towards terawatt-scale spectrally tunable terahertz pulses via relativistic laser-foil interactions[J]. *Physical Review X*, 2020, 10(3): 031062.
- [14] Wu Q, Zhang X C. Free-space electro-optic sampling of terahertz beams[J]. *Applied Physics Letters*, 1995, 67(24): 3523-3525.
- [15] Nahata A, Weling A S, Heinz T F. A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling[J]. *Applied Physics Letters*, 1996, 69(16): 2321-2323.
- [16] Kim K Y, Taylor A J, Glowina J H, et al. Coherent control of terahertz supercontinuum generation in ultrafast laser-gas interactions[J]. *Nature Photonics*, 2008, 2(10): 605-609.
- [17] Ropagnol X, Kovács Z, Gilicze B, et al. Intense sub-terahertz radiation from wide-bandgap semiconductor based large-aperture photoconductive antennas pumped by UV lasers[J]. *New Journal of Physics*, 2019, 21(11): 113042.
- [18] Teo S M, Ofori-Okai B K, Werley C A, et al. Invited Article: single-shot THz detection techniques optimized for multidimensional THz spectroscopy[J]. *Review of Scientific Instruments*, 2015, 86(5): 051301.
- [19] Zhang X C, Xu J Z. THz air photonics[M]//Introduction to THz wave photonics. Boston: Springer, 2010: 97-125.
- [20] Jiang Z P, Zhang X C. Electro-optic measurement of THz field pulses with a chirped optical beam[J]. *Applied Physics Letters*, 1998, 72(16): 1945-1947.
- [21] Sun F G, Jiang Z P, Zhang X C. Analysis of terahertz pulse measurement with a chirped probe beam[J]. *Applied Physics Letters*, 1998, 73(16): 2233-2235.
- [22] Sharma G, Singh K, Al-Naib I, et al. Terahertz detection using spectral domain interferometry[J]. *Optics Letters*, 2012, 37(20): 4338-4340.
- [23] Zheng S Q, Pan X J, Cai Y, et al. Common-path spectral interferometry for single-shot terahertz electro-optics detection[J].

- Optics Letters, 2017, 42(21): 4263-4266.
- [24] Zheng S Q, Lin Q G, Cai Y, et al. Improved common-path spectral interferometer for single-shot terahertz detection[J]. Photonics Research, 2018, 6(3): 177-181.
- [25] Kim K Y, Alexeev I, Milchberg H M. Single-shot supercontinuum spectral interferometry[J]. Applied Physics Letters, 2002, 81(22): 4124-4126.
- [26] Shan J E, Weling A S, Knoesel E, et al. Single-shot measurement of terahertz electromagnetic pulses by use of electro-optic sampling [J]. Optics Letters, 2000, 25(6): 426-428.
- [27] Tian Q L, Du Y C, Xu H X, et al. Single-shot spatial-temporal electric field measurement of intense terahertz pulses from coherent transition radiation[J]. Physical Review Accelerators and Beams, 2020, 23(10): 102802.
- [28] Kim K Y, Yellampalle B, Taylor A J, et al. Single-shot terahertz pulse characterization via two-dimensional electro-optic imaging with dual echelons[J]. Optics Letters, 2007, 32(14): 1968-1970.
- [29] Shin T, Wolfson J W, Teitelbaum S W, et al. Dual echelon femtosecond single-shot spectroscopy[J]. Review of Scientific Instruments, 2014, 85(8): 083115.
- [30] Jin Z, Zhuo H B, Nakazawa T, et al. Highly efficient terahertz radiation from a thin foil irradiated by a high-contrast laser pulse[J]. Physical Review E, 2016, 94(3): 033206.
- [31] Casalbuoni S, Schlarb H, Schmidt B, et al. Numerical studies on the electro-optic detection of femtosecond electron bunches[J]. Physical Review Special Topics—Accelerators and Beams, 2008, 11(7): 072802.
- [32] Kim K Y, Glowacki J H, Taylor A J, et al. High-power broadband terahertz generation via two-color photoionization in gases[J]. IEEE Journal of Quantum Electronics, 2012, 48(6): 797-805.
- [33] Liu H, Liao G Q, Zhang Y H, et al. Study of backward terahertz radiation from intense picosecond laser-solid interactions using a multichannel calorimeter system[J]. High Power Laser Science and Engineering, 2019, 7(1): e6.
- [34] Sun F Z, Liao G Q, Lei H Y, et al. A non-collinear autocorrelator for single-shot characterization of ultrabroadband terahertz pulses [J]. Review of Scientific Instruments, 2022, 93(12): 123003.

Single-Shot Waveform and Spectrum Measurement Techniques for Strong Field Terahertz Pulses

Lei Hongyi^{1,2}, Sun Fangzheng^{1,2}, Chen Hao^{1,2}, Wei Yanyu^{1,2}, Zhang Baolong¹, Liao Guoqian^{1,3*},
Li Yutong^{1,2,3,4**}

¹*Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China;*

²*School of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China;*

³*Songshan Lake Materials Laboratory, Dongguan 523808, Guangdong, China;*

⁴*Collaborative Innovation Center of IFSA (CICIFSA), Shanghai Jiao Tong University, Shanghai 200240, China*

Abstract

Significance Terahertz (THz) radiation has emerged as a crucial tool in various research domains, including matter manipulation, electron acceleration, and biological physics. The distinct properties of THz radiation are attributed to its unique frequency range between the far infrared and microwave regions, which covers the vibrational and rotational frequency of numerous materials, whereby THz radiation acts as an effective tool for resonant manipulation of such materials. Furthermore, the smaller wavelength of THz radiation than microwaves and the short duration of pulsed terahertz sources result in high peak field strength, presenting an enormous potential for nonlinear matter control and electron acceleration.

Terahertz spectroscopy serves as a fundamental component of terahertz application research. However, its unique frequency range presents challenges in detecting terahertz spectrum, as traditional electronic and optical methods are not readily applicable. Intuitively, terahertz energy can be measured with energy meters such as bolometers or pyroelectric detectors. Through the scanning by the terahertz bandpass filter, the terahertz spectrum can be measured. The most prevalent technique for terahertz spectrum detection is the scanning free-space electro-optical sampling method, which necessitates multiple shots to measure the terahertz time-domain waveform. The frequency spectrum can be obtained with a Fourier transformation of the time-domain waveform. However, for low repetition rate terahertz sources and irreversible processes, the scanning method is challenging to utilize, necessitating the development of single-shot terahertz detection techniques.

Progress This study presents various single-shot terahertz time-domain waveform and frequency spectrum measurement techniques. The first section discusses single-shot time-domain waveform measurement methods, where the fundamental concept is to encode terahertz time-domain information into the properties of the probe laser, including spectral-encoding and spatial-encoding methods. The chirped ultrafast laser pulse is utilized to map the time information of terahertz radiation onto the spectrum of the probe laser, which is relatively easy to implement with minor modifications of standard scanning terahertz time-domain waveform measurement techniques. However, the time resolution of this technique is limited by the chirped probe pulse duration due to the uncertainty principle. To maintain time resolution at the transform limit of the probe laser, spectral interferometry techniques have been introduced, but the setup, alignment, and data processing required for this approach are more complex than those for standard spectral-encoding methods. Spatial-encoding methods represent another type of encoding, where terahertz time-domain information is encoded into the spatial distribution of the probe laser beam. The first type of spatial-encoding method is non-collinear spatial

encoding, which employs an oblique incident probe, and different parts of the beam arrive at the electro-optical crystal at different moments. The setup of this method is relatively simple, and no complex alignment is required in the experiment. However, the time resolution and time window of this approach are contingent on the incident angle and conflict with each other, necessitating careful consideration of the incident angle. The terahertz focal spot may also impact the time window and introduce distortion in the time-domain waveform. The second type of spatial-encoding method utilizes echelons, which have a stair-like shape, to introduce a time interval between different parts of the probe beam. Reflective echelons are more appropriate for measuring terahertz pulses with short pulse duration and may achieve higher time resolution than transmissive echelons. We conducted four types of single-shot terahertz time-domain waveform measurements in our experiment, and their results are presented. However, the spectrum bandwidth using the methods mentioned above may still be limited by the response of the electro-optical crystal and the pulse duration of the probe laser, even if the time resolution is sufficiently high through careful design of the terahertz time-domain waveform measurement system.

The second section discusses single-shot terahertz frequency spectrum measurement methods. For terahertz radiation, such as terahertz sources based on laser-solid density plasma interactions, whose frequencies can be up to 30 THz, our research team developed two types of ultrawide bandwidth single-shot spectrometers. The first spectrometer employs multiple terahertz energy detectors with varying terahertz bandpass filters. The terahertz beam is split using silicon wafers, enabling the measurement of the terahertz spectrum in a single shot. This approach has a relatively simple optical design, but the spectrum bandwidth and resolution are restricted by the bandpass filter. To achieve high spectrum resolution with wide spectrum bandwidth, we designed and experimentally demonstrated a novel terahertz autocorrelator, which has ultrawide bandwidth with high frequency resolution.

Conclusions and Prospects This study provides an overview of several single-shot terahertz time-domain waveform and frequency spectrum measurement methods developed at the Key Laboratory of Optical Physics in the Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences. The emphasis is placed on the design principles and characteristics of each method. These techniques are particularly applicable to strong terahertz sources with low repetition rates and are expected to significantly contribute to the characterization of terahertz radiation, an enhanced understanding of terahertz generation mechanisms, and the advancement of terahertz application research.

Key words measurement; terahertz radiation; electro-optical sampling; autocorrelation measurement