

引用格式: TIAN Ye, GUO Si-lin, ZENG Yu-shan, *et al.* High-field Terahertz Sources and Matter Manipulation (Invited)[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2020, 49(11):1149001

田野,郭丝霖,曾雨珊,等. 强场太赫兹光源及其物质调控研究(特邀)[J]. 光子学报, 2020, 49(11):1149001

## 强场太赫兹光源及其物质调控研究(特邀)

田野, 郭丝霖, 曾雨珊, 宋立伟, 冷雨欣, 李儒新

(中国科学院上海光学精密机械研究所 强场激光物理国家重点实验室 超强激光科学卓越创新中心, 上海 201800)

**摘 要:**介绍了基于超快激光的强场太赫兹波产生技术、探测技术及其在物质调控研究中的应用. 强场太赫兹波的产生机制主要包括: 晶体非线性效应、激光等离子体相互作用、太赫兹自由电子激光等. 太赫兹波的探测技术包括: 电光采样探测、空气偏压相干探测和单发探测等. 最后介绍了强场太赫兹光源在物质调控研究中的应用, 特别指出将强场太赫兹光源与第四代 X 射线光源相结合, 在物性表征和调控方面具有广阔的应用前景.

**关键词:**超快激光; 强场太赫兹波; 太赫兹波的产生和探测; 物质调控

中图分类号: TN241

文献标识码: A

doi: 10.3788/gzxb20204911.1149001

### High-field Terahertz Sources and Matter Manipulation (Invited)

TIAN Ye, GUO Si-lin, ZENG Yu-shan, SONG Li-wei, LENG Yu-xin, LI Ru-xin

(State Key Laboratory of High Field Laser Physics, CAS Center for Excellence in Ultra-intense Laser Science, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)

**Abstract:** The generation and detection technology of high-field terahertz wave based on ultrafast laser and its applications on matter manipulation are introduced. The mechanism of the generation of strong-field terahertz wave includes: nonlinear effects in crystals, laser plasma interaction, terahertz free electron laser, and so on. Terahertz detection technology includes: electro-optical sampling, air biased coherent detection, single-shot detection, and so on. Finally, the application of strong-field terahertz wave in matter manipulation is introduced. Especially, it is pointed out that the combination of strong-field terahertz sources and the fourth generation X-ray source has broad application prospects in the characterization and control of matter properties.

**Key words:** Ultrafast laser; Strong-field terahertz wave; Generation and detection of terahertz wave; Matter manipulation

**OCIS Codes:** 140.7090; 040.2235; 300.6495

## 0 引言

太赫兹(Terahertz, THz)波是频率为 0.1~10 THz(1 THz=10<sup>12</sup> Hz)的电磁波,其波长为 0.03~3 mm,在电磁波谱上介于微波与红外光之间,处于光学和电子学的交叉区域. 频率为 1 THz 的波,振荡周期为 1 ps (10<sup>-12</sup> s),单光子能量是 4.1 meV,特征温度为 48 K,对应波数  $k=33\text{ cm}^{-1}$ . 在过去很长一段时间内,由于缺乏有效的产生和探测技术,致使这一波段成为电磁波谱上的空白区域,即“THz Gap”. 20 世纪 80 年代中期以

**基金项目:**国家自然科学基金(Nos. 11874372, 11922412),中国科学院战略先导 B 类项目(No. XDB16),中国科学院基础前沿科学研究计划(No. ZDBS-LY-SLH018),中国科学院青年促进会项目,中科院海外人才引进计划,上海市青年科技启明星项目

**第一作者:**田野(1986—),男,研究员,博士,主要研究方向为超快激光与太赫兹物理. Email: tianye@siom.ac.cn

**通讯作者:**宋立伟(1983—),男,副研究员,博士,主要研究方向为飞秒激光技术与太赫兹物理. Email: slw@siom.ac.cn

**收稿日期:**2020-08-14; **录用日期:**2020-09-29

<http://www.photon.ac.cn>

来,电子技术、半导体技术和激光技术的发展,特别是超短脉冲激光技术的进步推动了 THz 波产生和探测技术的飞速发展,使它越来越广泛地应用于基础科学研究、生物医学检测、安全检测、移动通信等领域<sup>[1]</sup>.

与其它波段电磁波相比,THz 波有许多独特性质,包括:

#### 1) 安全性

X 射线的光子能量达到 keV 量级,长时间照射生物细胞会引起损伤. THz 波的光子能量在 meV 量级,低于各类化学键的键能,为非电离辐射,不会产生电离反应. 该特性对人体、细胞等生物样品的检测有着重要的意义. 因为水对 THz 波有强烈的吸收,它无法穿透皮肤组织.

#### 2) 穿透性

THz 波对许多非金属固体材料和非极性液体有较好的穿透性,这使得它可以被应用于透视成像、无损检测等领域. THz 波的波长远大于空气中的悬浮颗粒,使得这些颗粒对 THz 波的散射较弱,是火灾或尘土境况下的理想光源.

#### 3) 光谱分辨能力

THz 波的频谱范围覆盖了包括蛋白质、DNA、毒品等大分子的转动频率和其中部分基团的振动频率,它们在 THz 波段表现出强烈的吸收和色散. 并且由于谱带较宽,其特征谱检测范围可以根据被测样本的特异性而有更多的选择区间.

#### 4) 物质调控能力

THz 波的电场能够激发物质的低激发态,如晶格振动、分子转动、自旋进动、载流子运动等. 强场 THz 波调控晶体的能带结构,激发超导、相变、对称性改变等过程;强场 THz 波还能够激发分子的振动和转动状态、控制自由电荷运动,甚至直接与电子束作用实现电子加速和调制.

本文主要介绍基于超快激光技术的 THz 光源、THz 探测技术,以及部分强场 THz 物质调控实验研究. 其中,THz 光源包括基于非线性光学晶体的 THz 光源、基于激光等离子体相互作用的 THz 光源以及基于自由电子激光的 THz 光源. THz 探测技术包括电光取样探测、空气偏压相干探测和单发探测技术<sup>[2]</sup>.

## 1 强场 THz 光源

长期以来,由于缺乏高效的 THz 光源、高灵敏度的 THz 探测器和可用于 THz 波段的商用光学元件和仪器,THz 科学的发展受到较大的阻碍,对强场 THz 波与物质相互作用的研究多停留在理论层面. 基于电子学方法的 THz 光源的带宽较窄,单脉冲能量和峰值场强都很低;而基于超强超短脉冲激光的 THz 辐射源带宽可超过 100 THz<sup>[3]</sup>,且峰值场强较高(场强可达 MV/cm 量级或更高),可以作为激发光源研究 THz 波与物质的相互作用. 本节主要介绍和讨论强场 THz 光源,包括基于非线性光学晶体、基于激光等离子体相互作用以及基于自由电子激光的强场 THz 光源.

### 1.1 非线性光学晶体 THz 源

#### 1.1.1 电光晶体整流

早在 1984 年, AUSTON D H 等提出了通过光整流效应(Optical Rectification, OR)这一二阶非线性过程产生 THz 波的方案<sup>[4]</sup>. 此后的数十年,基于电光晶体整流法产生 THz 波的研究逐渐发展起来<sup>[5-6]</sup>. 电光晶体整流是一种利用单脉冲能量较高的飞秒激光作为泵浦光源来驱动电光晶体的光整流效应(光致直流电场)来产生 THz 波的方法. 所使用晶体主要有碲化锌(ZnTe)、铌酸锂(LiNbO<sub>3</sub>)、磷化镓(GaP)、钽酸锂(LiTaO<sub>3</sub>)晶体及有机晶体等<sup>[7]</sup>. 光整流法所产生的 THz 脉冲强度通常与入射光场强度的平方成正比,且与入射光偏振、晶体光轴方向、晶体极化系数等密切相关. 此方法中,驱动激光与 THz 波在晶体中的相位匹配是关键因素之一. 当满足相位匹配条件时,驱动激光在晶体中传播时不断产生相干的 THz 波,最终从晶体中辐射出 THz 波的强度较高. 晶体中的相位匹配条件<sup>[2]</sup>可以写成

$$n(\omega_2)\omega_2 - n(\omega_1)\omega_1 = n(\omega_{\text{THz}})\omega_{\text{THz}} \quad (1)$$

式中, $\omega_1$ 、 $\omega_2$ 为驱动激光的两种频率成分, $\omega_{\text{THz}}$ 为 THz 波的频率, $\omega_1, \omega_2 \gg \omega_{\text{THz}}$ .  $n(\omega_1)$ 、 $n(\omega_2)$ 、 $n(\omega_{\text{THz}})$ 分别为晶体对频率为 $\omega_1$ 、 $\omega_2$ 和 $\omega_{\text{THz}}$ 的光的折射率.

2014 年, VICARIO C 等利用单脉冲能量只有 33 mJ、波长为 1.25  $\mu\text{m}$  的红外飞秒激光泵浦 DSTMS 有机

晶体,获得了单脉冲能量为0.9 mJ的THz波,其能量转换效率高达3%,聚焦峰值电场高达42 MV/cm,光谱覆盖1~6 THz<sup>[8]</sup>.次年,该小组进一步使用DSTMS和OH1有机晶体,产生109 μJ THz波,并进行波前调制,聚焦到近衍射极限的单波长尺度,得到了83 MV/cm的THz电场<sup>[9]</sup>.

对于低频单周期的THz波,通常会使用LiNbO<sub>3</sub>和LiTaO<sub>3</sub>晶体等具有高非线性系数的晶体.然而在这类材料中,由于THz波的相速度小于驱动激光的群速度,共线相位匹配的方式将导致辐射形成类似切伦科夫辐射锥的空间分布,限制了晶体中驱动激光-THz波的能量转换效率.2002年,HEBLING J等提出波前倾斜技术,通过光栅驱动激光的波前倾斜,实现了THz波和驱动激光在非线晶体中的速度匹配<sup>[10]</sup>.目前,波前倾斜技术已广泛应用于强场激光驱动下的低频THz波(0.1~1 THz)产生.2014年,FÜLÖP J等使用图1所示的装置,利用波前倾斜技术实现相位匹配,在LiNbO<sub>3</sub>晶体中获得了单脉冲能量为0.4 mJ的THz波<sup>[11-12]</sup>.最近,WU X等获得了单脉冲能量为1.4 mJ的THz波,是该方案所产生的THz波能量纪录<sup>[12]</sup>.

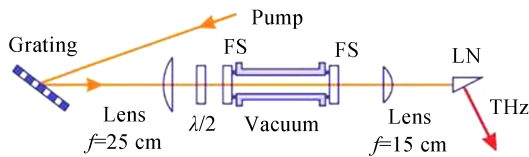


图1 基于波前倾斜技术在LiNbO<sub>3</sub>晶体中产生强场THz波<sup>[12]</sup>

Fig.1 The generation of strong-field THz pulses in LiNbO<sub>3</sub> crystal based on tilted-pulse-front technique<sup>[12]</sup>

对于窄带多周期THz波,可以采用准相位匹配的周期极化(periodically poled)晶体来产生.2019年,JOLLY S W等通过人为引入高阶色散调整谱相位的办法,利用能量为1.2 J、脉宽为260 ps,中心频率为800 nm,谱宽为30 nm的激光入射到周期长度为330 μm的周期极化LiNbO<sub>3</sub>(Periodically Poled Lithium Niobate, PPLN)晶体上,获得了0.6 mJ,中心频率为0.361 THz,带宽为1%的多周期THz波<sup>[13]</sup>,这是目前利用周期极化晶体产生THz波的最高能量纪录.

基于强激光驱动晶体光整流效应产生的波光束质量较好、性能相对稳定,是目前实验室广泛采用的强场THz光源.但是受到晶体损伤阈值和相位匹配有效作用距离的限制,利用晶体光整流得到THz辐射,无法依靠增加激光能量来提升其场强.

### 1.1.2 光学差频技术

光学差频技术(Difference Frequency Generation, DFG)是激光频率转换的常用技术,其过程是三波相互作用的参量过程.ZHONG K等在2017年对差频THz源基于非线性光学晶体的THz源进行了详细的介绍<sup>[14]</sup>.2008年,HUBER R等将此技术应用于THz波的产生中,在高频段(>10 THz)获得了强场THz波输出<sup>[15]</sup>.实验中,钛宝石激光器驱动两台光参量放大器(Optical Parametric Amplifier, OPA),分别输出可调谐的红外激光脉冲.由于两OPA的种子光来自同一白光超连续谱,两束红外信号光相对相位稳定,在晶体中差频得到相位稳定的THz波.THz波频率为两红外激光的频率差,通过调节红外激光频率,产生THz波的频率可在10~72 THz之间调谐,最高场强可达100 MV/cm.2010年,JUNGER F等用1.18 μm和1.28 μm的两红外光在GaSe晶体中差频,在22 THz获得了单周期THz脉冲,峰值场强为12 MV/cm<sup>[16]</sup>.基于此光源,他们进行了一系列强场THz波与物质相互作用的实验研究,包括材料中的相干操控,THz谐波的产生,探索材料中晶格和电子的快速演化过程等<sup>[17-24]</sup>.2017年,德国CAVALLERI A课题组<sup>[25]</sup>用两束啁啾红外激光在DSTMS中差频,获得了4~18 THz可调谐的窄带THz波,可用于致密材料和化合物的低能选择激发.2018年,上海光机所团队基于这一机制用强激光泵浦双OPA(实验装置如图2),在30 THz频段获得了280 MV/cm的峰值场强,并激发气体电离产生超连续谱<sup>[26]</sup>.

红外激光差频产生强场THz波是光学参量放大、差频等激光技术在THz波段的新应用,其优点在于输出脉冲的频率较高,同等能量下具有更短的脉宽和更强的聚焦能力,峰值场强也更高.差频技术的另一个优点是频率可大范围调谐,但是,GaSe等无机材料支持的频率集中在10 THz以上,难以获得更低频段的强场THz波;而DSTMS等有机材料在强激光泵浦下容易发生光整流效应,难以通过差频机制获得可调谐的强场THz波.

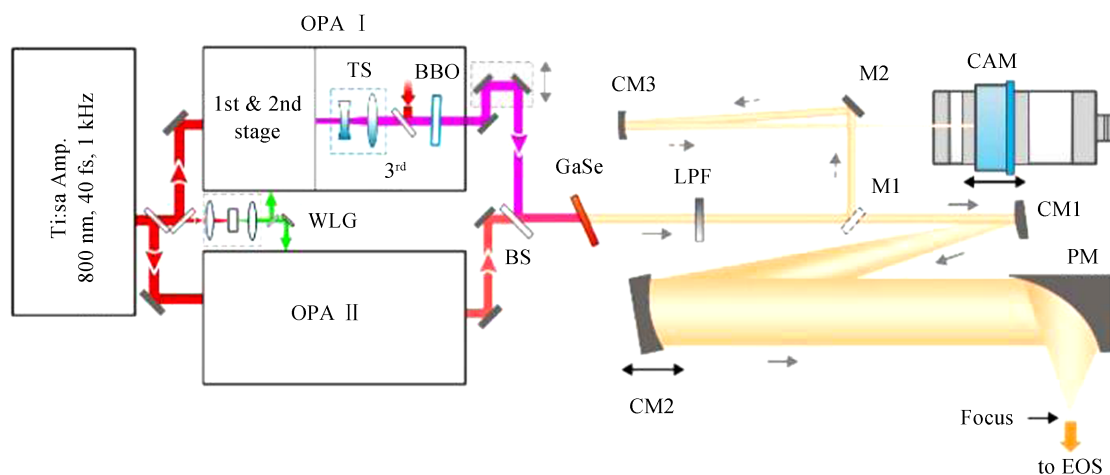
图2 激光差频产生强场 THz 波装置<sup>[26]</sup>

Fig.2 Setup of strong-field THz generation via different frequency generation (DFG) process<sup>[26]</sup>. Reprinted with permission from Ref. [26] © The Optical Society

## 1.2 基于激光等离子体相互作用的强场 THz 光源

### 1.2.1 激光与气/液体等离子体作用

基于气体等离子体的 THz 辐射源是一种宽带短脉冲 THz 光源。1993 年,加州大学伯克利分校 HAMSTER H 等首次实验证实超快激光与气体等离子体相互作用能产生 THz 波<sup>[27]</sup>。此后,科研人员对超快激光驱动气体“成丝”产生 THz 波展开了一系列的研究。所谓“成丝”是指超快激光在介质中传播时,由电离、聚焦、散焦等效应而形成的稳定的等离子体通道,其距离可以达到衍射极限的数倍,并且自身没有明显的发散<sup>[28]</sup>。这种不会受到介质损伤阈值限制且能在远距离空气中激发 THz 波的方法,为 THz 远程探测提供了新手段<sup>[29]</sup>。2012 年,上海光机所团队利用少周期激光脉冲驱动空气成丝,通过光场调制产生了相位和偏振都可控的 THz 波<sup>[30]</sup>,实验装置如图 3 所示。

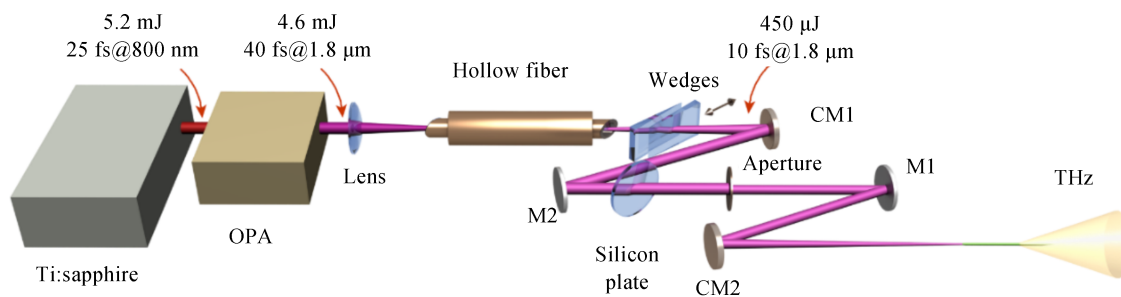
图3 少周期激光驱动空气成丝产生波形和偏振可控的 THz 波<sup>[30]</sup>

Fig.3 THz generation and control in the air plasma driven by few-cycle laser pulses<sup>[30]</sup>. Reprinted figure with permission from Ref. [30] Copyright (2020) by the American Physical Society

成丝过程可以使超快激光脉冲变为具有宽光谱(紫外-THz 波段)<sup>[31-36]</sup>、高强度<sup>[37]</sup>及少数脉冲宽度周期的新光源<sup>[38-41]</sup>。其中利用少周期激光脉冲驱动空气成丝,通过光场调制可产生相位和偏振皆可控的 THz 辐射<sup>[30, 42]</sup>。2000 年,COOK D J 等将钛宝石激光器输出的飞秒脉冲和它的倍频聚焦到空气中,获得了单周期的 THz 波,场强达到 2 kV/cm,光谱覆盖 0.1~5 THz<sup>[43]</sup>。2014 年,KIM K Y 等利用 15 mJ、30 fs、1 kHz 的激光脉冲驱动空气成丝,获得场强 8 MV/cm,单脉冲能量 1.44 μJ 的 THz 波,光谱覆盖 0.1~20 THz<sup>[44]</sup>。2016 年,该课题组又将 50 mJ 的飞秒激光倍频并聚焦在空气中产生了单脉冲能量为 30 μJ 的 THz 波,场强达到 21 MV/cm,激光-THz 波能量转化效率约为  $7 \times 10^{-4}$ <sup>[45]</sup>。2020 年,KOULOULIDIS A D 等利用大功率中红外激光驱动空气成丝,获得了单脉冲能量 0.185 mJ 的单周期 THz 波,能量转换效率高达 2.36%<sup>[46]</sup>,场强达到 100 MV/cm,为后续 THz 频段极端非线性研究需要<sup>[47]</sup>提供了新型光源。除了气体成丝,DEY I 等将强激光脉冲聚焦在液

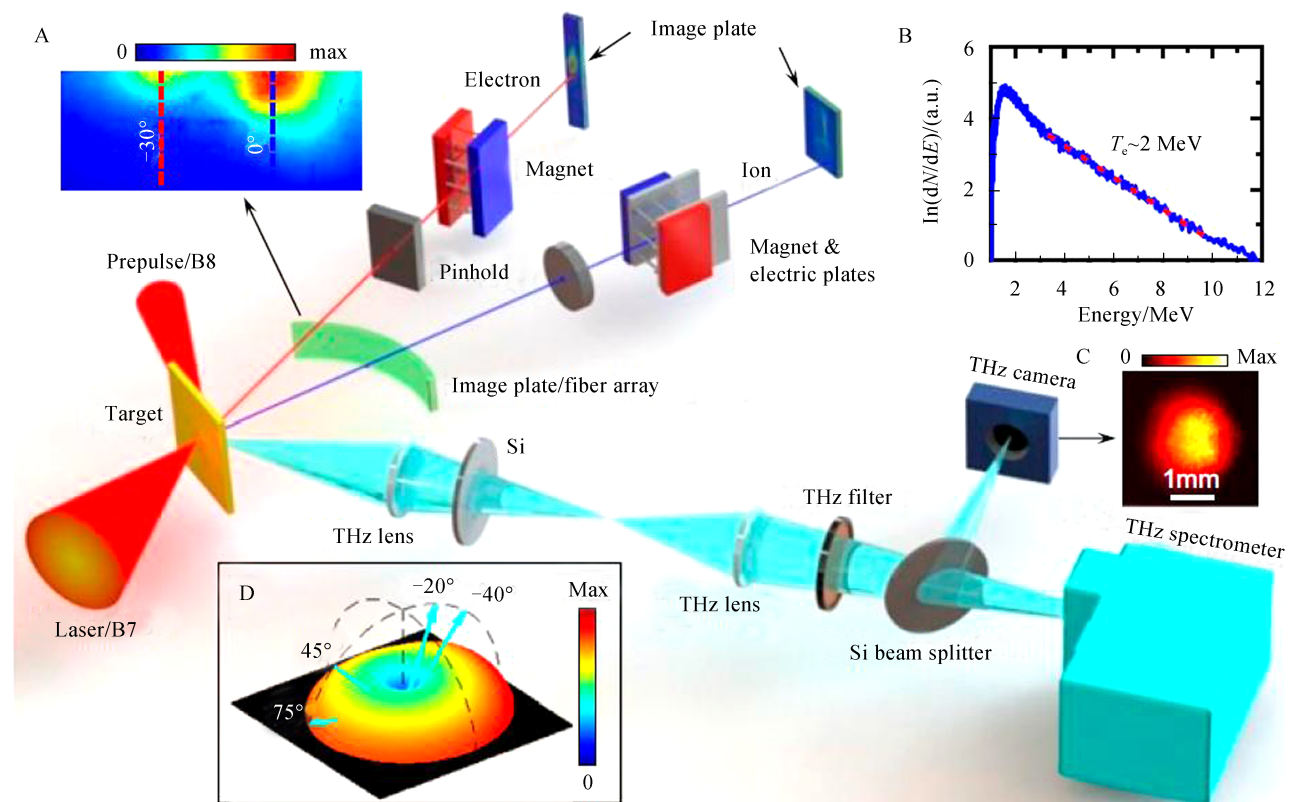
体中成丝,获得了更高的转化效率<sup>[48]</sup>.最近,ZHANG X C团队在液态水中观察到THz辐射<sup>[49]</sup>.

超快激光成丝产生THz波的物理解释主要有基于宏观理论-四波混频模型<sup>[50-56]</sup>和微观动力学理论-光电流模型<sup>[57-58]</sup>.此外,一些研究团队根据各自的研究提出了不同的物理解释.CHENG C C等认为源于成丝过程中的洛伦兹力导致自由电子和质子纵向位移及相应偶极辐射<sup>[59]</sup>;AMICO C D团队认为电流在光丝中随着激光脉冲移动而形成瞬时切伦科夫形式辐射,由此产生THz波<sup>[60-61]</sup>;WU H C等研究表明纵向电子运动和横向密度梯度之间的交叉耦合,导致超快激光成丝辐射前向的THz波<sup>[62]</sup>;ZHANG Y Z等通过引入激光和THz波宏观传播效应,扩展了二维等离子体电流模型<sup>[63]</sup>等.总之,超快激光成丝辐射THz波的物理机制有多种理论模型,目前尚存在较大争议.

虽然激光驱动气体/液体成丝所产生的THz辐射光谱宽度大,可覆盖0.1~100 THz甚至更宽,且理论上不存在激光损伤的问题.但是,由于产生效率较低( $<10^{-4}\sim 10^{-5}$ ),在特定频段内的能量不高,并且由于是高度非线性过程,其稳定性不高,一般不适合做单一动力学过程的激发光源.

### 1.2.2 与固体等离子体作用

随着激光功率的提高,采用超强超短激光与固体等离子体作用也将产生更强的THz辐射.LIAO G Q等所观察到的THz特性与等离子体波的模态转换模型一致,认为THz波是激光在低密度等离子体中传播时,通过受激拉曼散射和自调制激光尾场依次激发的<sup>[64]</sup>.SHENG Z M等发现超强超快激光与等离子体通道相互作用时,激光尾场线性模式转换产生强THz辐射<sup>[65]</sup>.目前,世界上最高能量的THz辐射是基于激光与固体薄膜靶作用的渡越辐射产生的.2013年,GOPAL A等从600 mJ激光辐照的钛薄膜后表面得到了460  $\mu\text{J}$ 、0.1~30 THz频谱范围的THz辐射,并将THz辐射的产生归因为靶背鞘层离子加速引起的瞬态电流变化<sup>[66]</sup>;同年,他们通过将泵浦激光能量提高到1 J,使钛薄膜靶的后表面辐射的THz波能量提高到了700  $\mu\text{J}$ <sup>[67]</sup>.2019年,上海交通大学的LIAO G Q等利用60 J的超强皮秒激光脉冲与金属铜箔作用,在靶背面获得了约50 mJ的超强THz脉冲<sup>[68]</sup>.这一结果将THz辐射的能量纪录提高了近两个数量级,其实验装置如图4所示.为了判



A: Angular distribution of electrons measured with an image plate stack; B: Measured electron energy spectrum and an exponential decay function curve fit; C: Image of the THz spot measured with a CMOS-based THz camera; D: Theoretically evaluated spatial distribution of THz radiation emitted from the target-rear surface, and cyan arrows indicating the THz detection directions.

图4 激光与金属铜箔作用产生强THz辐射的实验装置示意图<sup>[68]</sup>

Fig.4 Schematic diagram of experimental apparatus for strong THz radiation generated by laser interacting with copper foil<sup>[68]</sup>

定 THz 波的产生机制, 实验中 LIAO G Q 等在靶背面人为引入了一束预脉冲来控制靶背表面的预等离子密度梯度标长, 通过判定预等离子体标长对鞘层电场的影响, 得出 THz 辐射源于渡越辐射, 而不是由鞘场加速带电粒子产生.

上述激光与平面固体靶作用产生 THz 辐射的特点是频谱较宽, 单脉冲能量高(毫焦量级)但能量转换效率较低( $<0.1\%$ ). 激光与固体靶的相互作用过程中, 固体靶的形状、材料、密度、厚度和结构等因素都将影响相互作用结果甚至作用机制. 因此, 利用不同结构的靶也会影响 THz 波的产生效率和背后的物理过程. 机制探索方面的一项进展是由上海光机所的 TIAN Y 等于 2017 年提出的飞秒激光驱动的金属丝波导螺旋波荡器机制<sup>[69]</sup>. 利用该机制, 3 mJ 的激光脉冲与直径 50  $\mu\text{m}$  的钨丝作用最终产生了 25  $\mu\text{J}$  的 THz 能量, 实现接近 1% 的能量转换效率. 实验示意图如图 5 所示, 当激光脉冲聚焦至金属丝靶的表面时, 在丝靶的表面激发一个瞬态的强径向电场. 在该径向电场的作用下, 部分电子将围绕金属丝以螺旋轨迹运动, 类似于微型周期振荡器中的电子运动. 由于初始阶段的电子脉宽复制了飞秒激光脉冲的时间尺度, 且电子束的螺旋运动周期远小于 THz 波长, 飞秒电子围绕金属丝的螺旋运动满足相干辐射 THz 波的条件. 超快激光驱动的金属丝可以理解为一个微型螺旋波荡器, 飞秒电子束在其中沿金属丝螺旋运动并且在 THz 波段辐射增强.

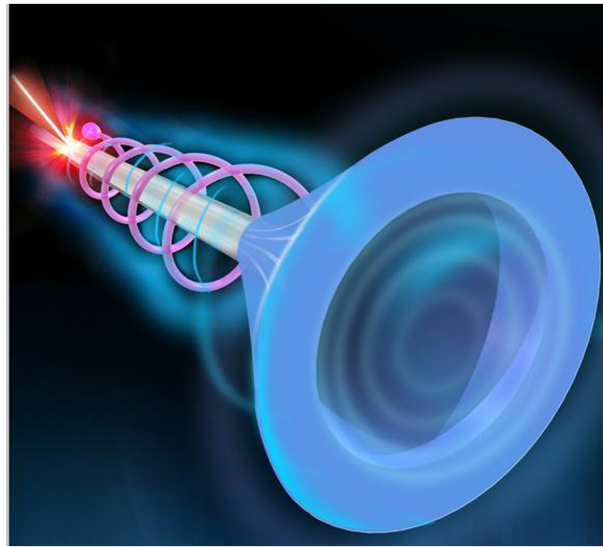


图 5 激光与金属丝靶相互作用微型螺旋波荡器 THz 源. 在激光辐照的导线上产生的瞬态径向电场, 以螺旋方式引导电子并产生 THz 发射的原理图

Fig. 5 THz source of micro helical oscillator based on the interaction between laser and wire target. Schematic diagram of how a transient radial electric field created on a laser-irradiated wire can guide electrons in a helical manner and produce THz emission

### 1.3 基于自由电子激光的强场 THz 光源

1971 年, 斯坦福大学的 MADEY J 首次提出了自由电子激光(Free Electron Laser, FEL)的概念<sup>[70]</sup>, 并于 1975 年首次检测到波长为 10.6  $\mu\text{m}$  的自由电子激光增益<sup>[71]</sup>. 自由电子激光在 X 射线波段获得了巨大的成功, 成为人类近代科学研究的生力军. 在 THz 波段, 自由电子激光可以产生高重复频率、可调谐的强场 THz 波, 这使得基于自由电子激光装置的 THz 光源受到关注, 并支撑了一系列前沿科学研究. 2015 年, 在第 37 届国际自由电子激光会议上, 研究者们计划在世界范围内建造的 20 台自由电子激光装置, 其中有 8 台可以工作在 THz 波段<sup>[72]</sup>.

常见的自由电子激光有三种, 分别是谐振腔式自由电子激光<sup>[73]</sup>、高增益高次谐波型自由电子激光<sup>[74]</sup>和自放大自发辐射型自由电子激光<sup>[75]</sup>. 基于自由电子激光的 THz 光源大多采用谐振腔式, 装置主要包括电子束加速装置、波荡器以及光学谐振腔. 相对论能量的电子束通过摇摆器或波荡器时在周期性磁场的作用下摆动, 随之产生 THz 频段的自发同步辐射, 该辐射由谐振腔收集后, 在电子束流脉冲作用下不断谐振增益, 受激放大, 最后获得饱和输出. 自由电子激光的波长可调谐<sup>[76]</sup>, 即可以通过改变电子束能量或波荡器磁场周期来改变辐射波长, 因此, 这一机制产生的 THz 波具有频率可调谐的优点.

基于自由电子激光的 THz 光源重复频率和平均功率较高,一定范围内频率连续可调谐、光束质量较好.德国亥姆赫兹德累斯顿罗森多夫研究中心(HZDR)的 TELBE 装置能够输出 0.3~3 THz 可调谐,重复频率为 100 kHz 的多周期 THz 波<sup>[77]</sup>,实验装置如图 6. 2017 年,中国工程物理研究院 THz 自由电子激光装置(CAEP THz FEL,CTFEL)是国内首台工作在高重复频率、高占空比状态的 THz 谐振腔型自由电子激光器<sup>[78-81]</sup>,在 1~3 THz 频段可输出宏脉冲平均功率大于 10 W 的 THz 波.

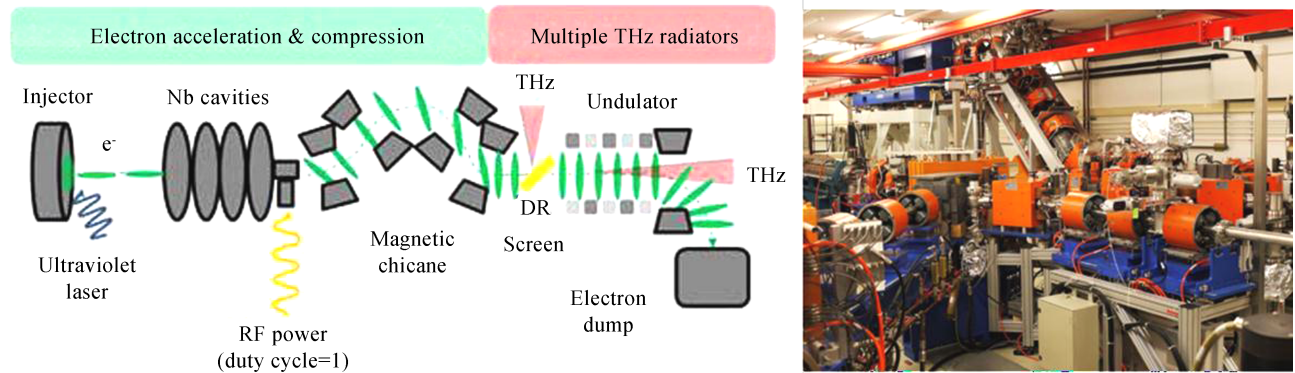


图 6 HZDR 的 THz 自由电子激光装置(TELBE)<sup>[77]</sup>  
Fig.6 THz FEL in HZDR (TELBE)<sup>[77]</sup>

虽然 THz 自由电子激光的重复频率和平均功率较高,但是其单脉冲能量仅能达到微焦量级,峰值场强较低,且光谱较窄,一般是多周期 THz 脉冲,在更高场强 THz 应用中受到限制.而且其装置体积庞大,造价昂贵.

如今,强场 THz 光源的发展已成为光学、电子学、材料学、化学、生命科学等领域关注的焦点,更高场强、更宽带宽的 THz 光源是近年来世界范围内的研究热点,极端强场 THz 科学的时代已经到来<sup>[82]</sup>.

## 2 THz 波探测技术

THz 波探测技术通常有相干探测和非相干探测的方法,而若要充分完整的得到 THz 波的信息,必须采用全面探测 THz 波振幅和相位的相干探测法进行探测.本文主要对相干探测中的电光取样探测、单发探测以及空气偏压相干探测进行介绍.

### 2.1 电光取样探测

20 世纪 90 年代中期,包括 ZHANG X C 等在内的三个科研小组<sup>[83-85]</sup>相继报道了 THz 脉冲的电光采样探测方法(Free-space electro-optic sampling method).电光采样探测法可以同时探测到 THz 波的振幅和相位,是基于光学泡克尔斯效应(Pockels effect,又称线性电光效应)的一种探测方法,也可以看作是光整流过程的逆过程.常用的电光晶体有 ZnTe<sup>[84]</sup>、GaP<sup>[86]</sup>及一些有机晶体<sup>[87]</sup>.其探测光路示意图如图 7 所示<sup>[88]</sup>,当一束飞秒激光与 THz 脉冲同时入射到电光晶体上,由于 THz 波的脉冲宽度远大于飞秒激光脉冲的振荡时间,因此

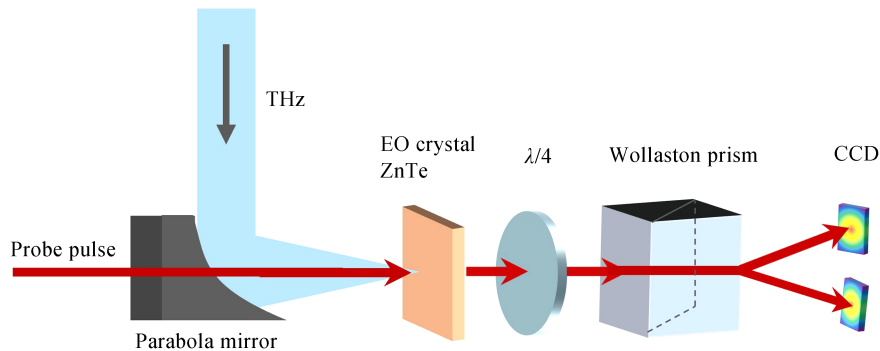


图 7 利用电光采样探测 THz 波  
Fig.7 THz measurement by electro-optical sampling

相比于激光脉冲, THz 电场可看成是一个准静态电场. 在 THz 电场的作用下, 泡克尔斯效应使电光晶体的折射率椭球发生改变, 飞秒激光在经过电光晶体时发生双折射, 其偏振的变化正比于该时刻 THz 电场的强度. 因此, 通过记录不同时刻飞秒激光脉冲的偏振变化就可以探测完整的 THz 振幅和相位信息. 为了得到 THz 波的时域波形, 需要改变飞秒激光脉冲与 THz 脉冲之间的时间延迟, 所以电光采样是一种时间扫描探测方法.

电光采样探测法需要采用电光系数较大的非线性晶体作为电光晶体, 并且由于飞秒激光与 THz 波在电光晶体中的传播速度不同会导致走离效应, 所以需要使得群速度失配与电光晶体厚度的乘积小于 THz 脉冲宽度, 这样便可以扫描得到 THz 波的时域波形<sup>[89]</sup>. 此方法探测的 THz 波的谱宽一般会受到电光晶体的本征声子吸收的限制, 因此不同的电光晶体在探测相同的宽带 THz 波时, 可能得到不同的光谱. 此外, 由于泡克尔斯效应是利用电场改变飞秒激光脉冲的相位来探测的, 当 THz 波场强很强时, 探测到的 THz 波会发生变形.

## 2.2 空气偏压相干探测法

THz 波的空气偏压相干探测法 (Air-Biased-Coherent-Detection, ABCD) 起源于 THz 场致二次谐波的产生<sup>[90-91]</sup>, 是利用空气做介质, 在外加偏置电场下相干探测 THz 波. 不同于电光采样探测法会受限于电光晶体声子吸收的影响, ABCD 探测法可以探测到很宽的谱宽. 其原理见图 8, 探测光和 THz 波在偏置电场作用下在空气中产生激光二次谐波. 利用光学滤波片来过滤激光基频光, 然后利用光电倍增管来探测激光二次谐波信号. 目前, 使用 ABCD 的方法可探测的最大谱宽为 30 THz<sup>[92]</sup>, 大大拓展了 THz 波宽带测量能力.

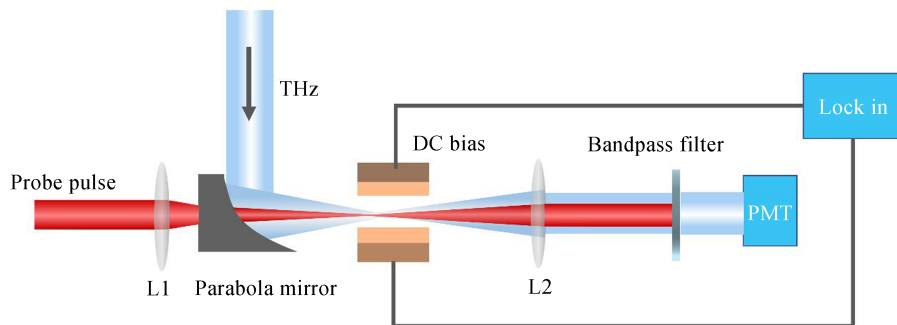


图 8 空气偏压相干探测  
Fig.8 Air bias coherent detection

## 2.3 单发探测

电光采样法和 ABCD 法都需要连续改变探测光与 THz 波之间的时间延迟来获得完整的时域波形. 这种方式虽然时间分辨率和信噪比较高, 但是无法实现对 THz 波的实时测量, 也无法对 THz 波与物质相互作用中的不可逆过程进行探测. 另外, 大功率激光系统的重复频率通常较低, 无法采用电光采样和 ABCD 等扫描的探测方式测量它们产生的 THz 辐射. 对此, 人们发展了 THz 单发探测技术, 实时探测 THz 波的电场, 其中包括光谱编码 (spectral encoding)、空间编码 (spatial encoding) 以及互相关 (cross correlation) 测量技术等.

### 2.3.1 光谱编码

1998 年, ZHANG X C 等提出光谱编码的单发 THz 探测技术<sup>[93]</sup>, 其原理与电光采样相似, 但将电光采样中的超短探测脉冲替换成啁啾展宽的脉冲, 如图 9. 探测脉冲经过光栅对 (引入负啁啾) 或一段色散玻璃 (引入正啁啾) 后, 不同频率成分的光谱在时间上被分开, 当 THz 波和啁啾探测脉冲同时经过电光晶体时, THz 电场通过泡克尔斯效应“编码”到探测光的偏振变化上. 此时, 通过光谱仪检测有、无 THz 电场调制时探测脉冲光谱强度分布的变化, 便可以提取出 THz 波的时域波形. 但是, 将频率与时间对应违背了不确定性原理<sup>[94]</sup>, 其时间分辨率会因受到频率-时间变换的限制而无法提升到较高水平.



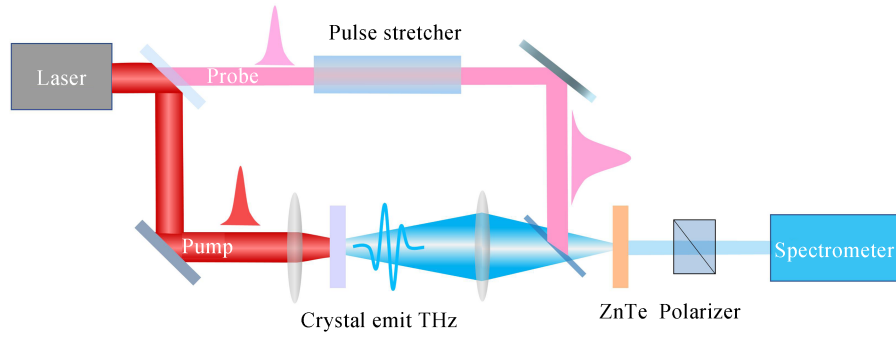


图9 光谱编码的实验装置示意图

Fig.9 Schematic diagram of experimental apparatus for spectral coding

### 2.3.2 空间编码

2000年,SHAN J等首次提出将探测脉冲和THz脉冲以一定角度重合在电光晶体上,通过两脉冲波前产生的时间差来探测THz电场,即空间编码探测(又称非共线交叉法),解决了光谱编码中时间分辨率受限的困难,实验装置如图10<sup>[95]</sup>.不同时刻的THz时域信息就被线性“编码”到了探测光的横向包络的强度变化上,通过在探测光后方放置一个阵列CCD就可以获得THz波的时域波形.

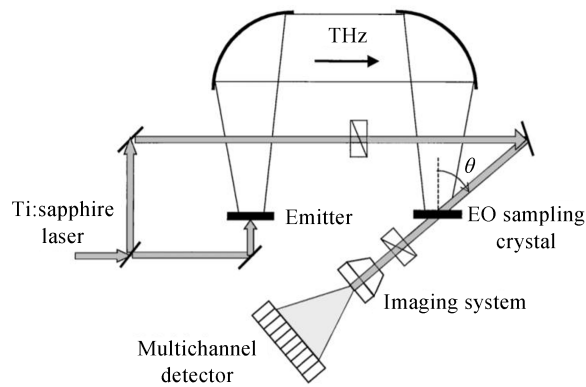


图10 空间编码探测装置图<sup>[95]</sup>

Fig.10 Space coded detection device diagram<sup>[95]</sup>. Reprinted with permission from Ref. [95] © The Optical Society

空间编码探测方法具有较高的时间分辨率,可以达到展宽前探测脉冲的傅里叶变换极限脉宽.但是,这种方法同样也有缺陷,如电光效应发生距离不够长,导致灵敏度较弱<sup>[96]</sup>;为了保证探测的THz波形不出现很大畸变,需要探测光波前足够均匀等<sup>[94]</sup>.KAWADA Y等先后提出了基于色散棱镜或透射光栅的共线一维空间编码方式,其原理与光整流中的波前倾斜技术相同<sup>[97-98]</sup>.这种方式用引入色散替代了探测光斜入射,提高了一维空间编码的探测效率.

此外,还可以通过阶梯镜实现共线空间编码,利用激光脉冲在阶梯镜上不同阶梯处反射或透射时经历的光程各不相同,将其分割成一系列不同时序的小脉冲,相邻脉冲间的延迟代表了阶梯镜测量的时间精度.2007年,KIM K等提出了二维空间编码,利用两块正交放置的阶梯镜产生了倾斜的激光波阵面,如图11<sup>[99]</sup>.空间编码这种方式的探测光时间窗口以及时间精度都由阶梯镜的阶梯高度以及相邻台阶高度差控制,因此,可以获得较高的时间精度和较宽的探测宽度;但与此同时也降低了探测信噪比,对阶梯镜加工提出更高要求.

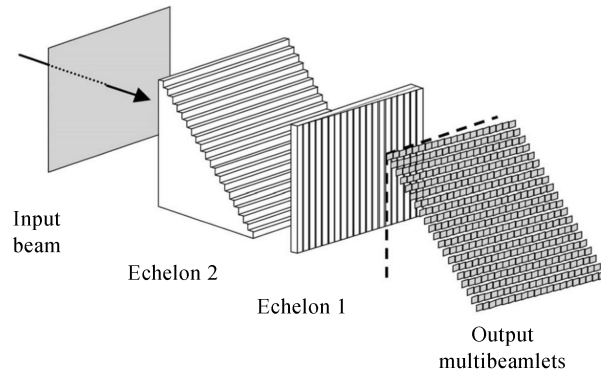
图11 二维阶梯镜产生倾斜波前<sup>[99]</sup>

Fig.11 A two-dimensional stepladder produces a tilted wavefront<sup>[99]</sup>. Reprinted with permission from Ref. [99] © The Optical Society

### 2.3.3 互相关

互相关术区别于光谱编码和空间编码光路最大的不同是在光路中除了有泵浦光和啁啾展宽的探测光之外,还引入了一束超短脉冲的激光与信号进行和频域干涉,利用空间-时间对应的方法来处理啁啾脉冲中包含的 THz 电场信息<sup>[100]</sup>,分为非线性<sup>[101]</sup>和线性<sup>[102]</sup>互相关编码技术,见图 12.互相关技术中,啁啾探测光首先与 THz 信号共同经过电光晶体,记录了 THz 波的时域信息,随后为了提高光谱编码的空间分辨率,在啁啾探测脉冲的光路上放置一块 BBO 晶体使其与另一束飞秒探测光交叉入射并且又以空间编码的方式发生互相关.通过 CCD 记录的不同空间位置的强度信息就可以得到 THz 波的时域信息;线性互相关技术的光路与光谱编码相似,但在探测光中多引入了一束超短脉冲与啁啾探测光进行干涉.由于干涉信号的傅里叶变换恰好为两束探测光电场的互相关函数,因此,对提取的干涉信号进行傅里叶变换就可以计算出 THz 波的时域信息.

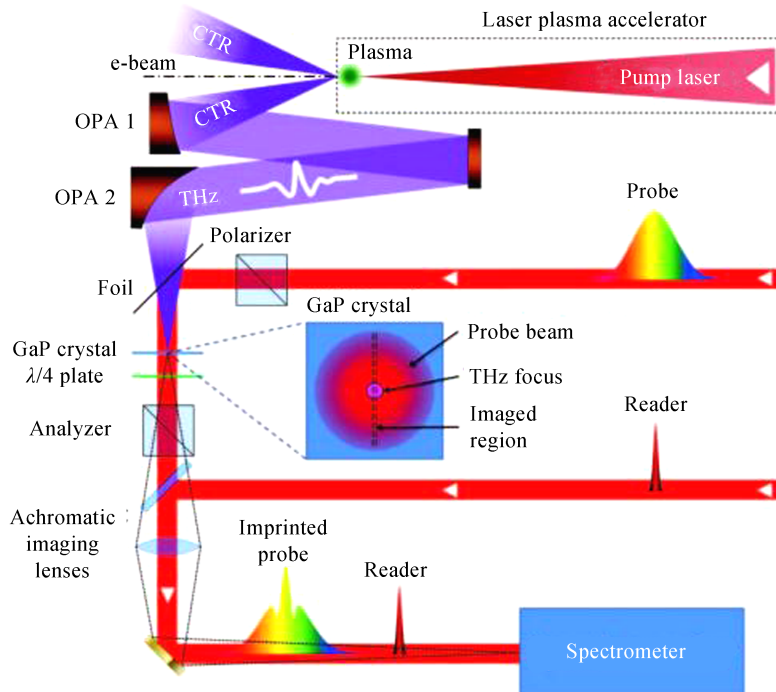
图12 互相关编码技术<sup>[102]</sup>

Fig.12 Linear cross-correlation technique<sup>[102]</sup>. Reprinted with permission from Ref. [102] © The Optical Society

### 3 强场 THz 波物质调控

随着强场 THz 波产生和探测技术的发展,这一新型光源受到各领域研究者的重视,并被应用到超导激发、材料相变、分子操控等前沿研究中.强场 THz 波被认为是极具研究价值和应用前景的新型光源,主要基于几方面原因:1)许多分子的共振频率都在 THz 波段,因此 THz 光谱为研究这些物质提供了难以替代的工具;2)高频光电子设备的运行极限速度处于 THz 频率;3)THz 波的振荡周期对应了基本化学反应的时间尺度,如固体中弱的集体激发,声子的弛豫时间和自由载流子碰撞时间等<sup>[82]</sup>.图 13 列举了几种 THz 波段内的物质激发频率.利用这些特性,强场 THz 波与物质相互作用能够激发物质的低激发态,改变物质的电磁学以及光学特性,为人类探索物质世界开辟了新的维度.本节主要介绍 THz 波在操控、探测电子束及物质调控等方面的应用.

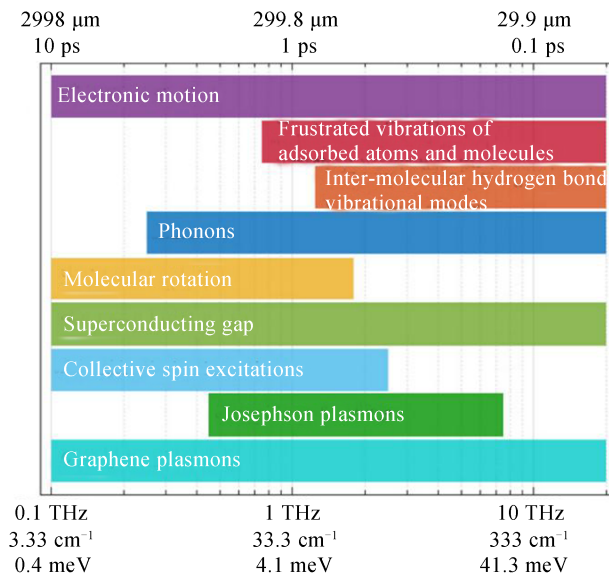


图 13 THz 波段内物质的特征激发频率<sup>[103]</sup>

Fig.13 Characteristic excitation frequencies of substances in the THz band<sup>[103]</sup>

#### 3.1 电子调控和加速

THz 波的特殊频段给电子束操控(加速、压缩、聚焦等)和探测提供了介于射频和激光场间的折中选项.以电子加速为例,THz 波的加速梯度介于射频和激光之间,能够达到 GV/m 量级,加速电量能够达到 pC 量级,同时,THz 波相对较宽的脉宽对时间抖动的容忍度较高.对于 1 THz 的电磁波而言,1% 周期的抖动对应的时间尺度为 10 fs,在现有技术可以控制的范围内.此外,THz 波毫米量级的波长在加工波导等结构上也易于实现.

2015 年,NANNIE A 等率先进行了 THz 电子加速的原理验证实验,其实验装置和加速结果如图 14,结果表明,部分电子在 3 mm 的作用距离内获得了 7 keV 的能量增益,这一结果首次在实验上证实了 THz 波加速电子束的可行性<sup>[104]</sup>.其中,图 14(b)和(c)分别为 THz 关闭和 THz 开启时,由微通道板记录的 59 kV 电子束的横向电子密度.图 14(d)为在微通道板上由于磁偶极子的偏转引起的模拟和测量的电子束能谱的比较.图 14(e)在微通道板上用 THz 加速电子束时模拟和测量电子束的比较.

2018 年,ZHANG D F 等提出一种多层的横向泵浦 THz 波导结构(Segmented Terahertz Electron Accelerator and Manipulator, STEAM),利用该装置可以精确控制波导内的电磁场模式以及电子在叠加场中的相位,从而实现电子加速、聚焦、压缩以及条纹相机等多个功能的动态转换<sup>[105]</sup>.STEAM 装置实现:1)电子能量增益 30 keV,相当于实现 70 MV/m 的加速梯度;2)脉宽压缩,将电子脉宽从约 670 fs 压缩至约 100 fs;3)聚焦,峰值聚焦强度大于 2 kT/m;4)电子条纹相机,分辨率大于 140 μrad/fs.基于上述工作,2019 年,ZHANG D F 等进一步将两个 STEAM 级联,让初始能量为 55 keV,电量约为 1 fC 的电子束经过第一级的脉

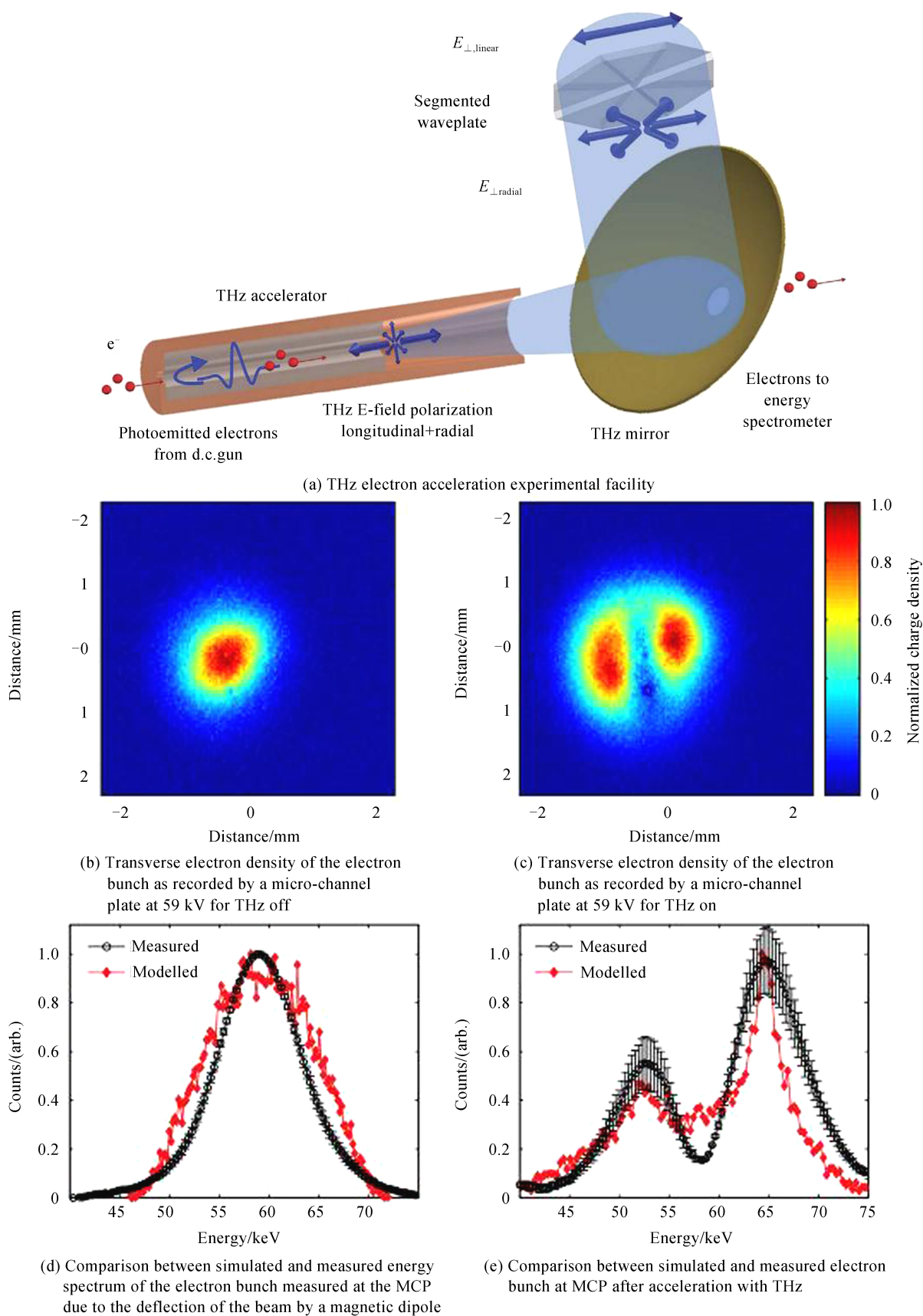


图 14 THz 电子加速的原理验证实验<sup>[104]</sup>

Fig.14 Principle verification experiment of Terahertz electron acceleration<sup>[104]</sup>

宽压缩后再进入第二级 STEAM 加速<sup>[106]</sup>. 利用两束单周期 THz 波泵浦, 电子在该装置内的能量增长达到了 70 keV, 相当于实现了 200 MV/m 的加速梯度. 这一结果刷新了目前利用 THz 波加速非相对论电子的加速能量记录.

另一方面, 在操控相对论电子方面的研究上, CURRY E 等于 2016 年提出了逆自由电子激光(Inverse Free Electron Laser, IFEL) 方案<sup>[107]</sup>. 该方案通过在自由电子激光装置的周期振荡器内插入一个弯曲平行板波导管(Curved Parallel Plate Waveguide, CPPWG) 来实现 THz 和电子的相速度以及群速度匹配. 利用该方案, CURRY E 等在 2018 年实验实现了 30 cm 长作用区域的 THz 加速, 使注入的 4~9 MeV 电子获得了 150 keV 的能量增益<sup>[108]</sup>.

### 3.2 THz 条纹相机探测超快电子

在一个振荡场中, 若电子的脉宽小于电场周期, 电子束内不同时刻的电子将在电场不同相位感受到不同程度的偏转, 因而电子脉冲的时域信息被相应转换成了空间分布, 即电子条纹相机. 利用条纹相机可以实现亚周期的电子度量. 在电子条纹相机中, 电场的强度和变化的快慢决定了电子在该相机中的偏转速度或条纹速度, 因此, 对于特定频率的电场, 通过增加电场强度可以提高条纹相机的分辨能力. 利用 THz 谐振腔增强的 THz 条纹相机方案最早由 KEALHOFER C 等于 2016 年提出, 其实验装置如图 15 所示<sup>[109]</sup>. 在该工作中, 蝶形 THz 谐振腔中的场增强 THz 波提供了偏转电子的振荡电场, 当注入到蝶形结构的 THz 能量为 40 nJ、中心频率为 0.3 THz 时, 对穿过谐振腔内的 70 keV 电子束, 实验测到电子的偏转速度为 8  $\mu\text{rad}/\text{fs}$ , 相当于 4.4  $\mu\text{m}/\text{fs}$  的条纹速度. 由于受 THz 波电场强度的限制, THz 条纹相机初期发展的实验装置几乎都是建立在类似的狭缝类型结构上, 利用亚周期谐振结构内的场增强提高 THz 电场的强度, 从而获得更高的条纹速度.

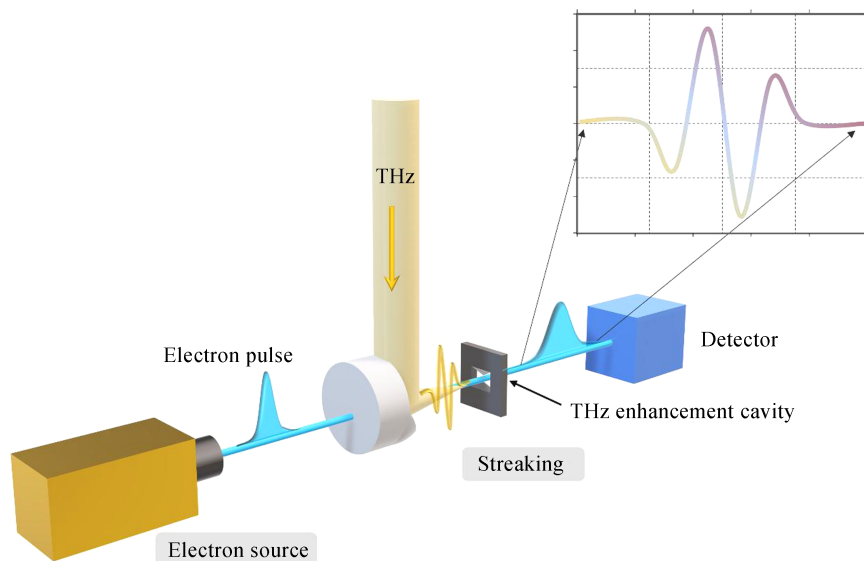
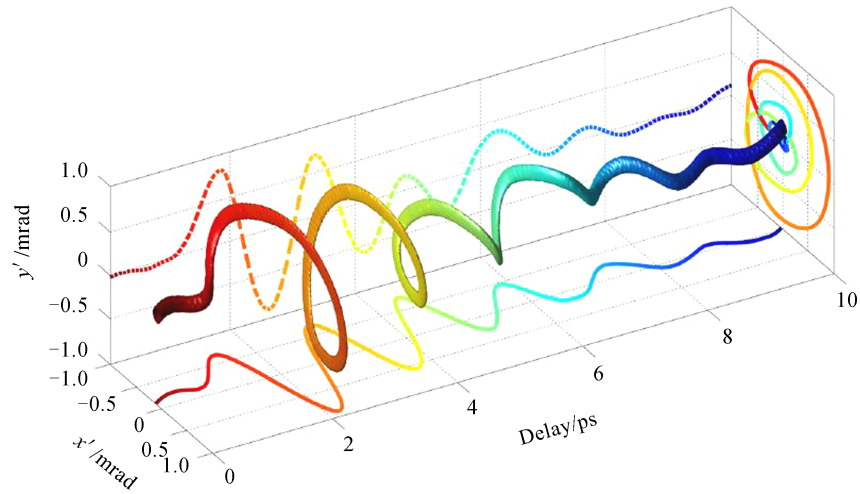


图 15 THz 谐振腔实现电子条纹相机成像

Fig.15 THz streaking of electrons based on a THz resonator

2019 年, 上海交通大学的 ZHAO L R 等对谐振结构 THz 条纹相机进行了改进, 实验中, 电子偏转形成的束斑通过改变两束 THz 波的相对相位(即改变 THz 波偏振方向)控制, 实验结果如图 16<sup>[110]</sup>. 相比未进行偏振控制的 THz 条纹相机而言, 该方案的优势是拥有更大的动态范围, 如线性偏振 THz 条纹相机的动态范围不到半周期, 而圆偏振的动态范围覆盖整个周期; 另一方面, 调控电子束的分布也更加均匀.

除了前文提及的谐振腔和波导管, THz 波还可以与纳米曲率尖端结合, 利用尖端近场发生场增强效应展开物理研究. 2013 年, COCKER T L 等将 THz 波与扫描隧穿电子显微镜(Scanning Tunneling Microscopes, STMs)结合, 利用 THz 电场控制扫描针尖的隧穿电离过程<sup>[111]</sup>; 2014 年, WIMMER L 等通过研究红外光场在尖端激发的电子在叠加 THz 电场中的能谱与叠加场延时的关系, 实现了对电子轨迹的控制并成功反演出了 THz 波近场的电场时域波形, 如图 17<sup>[112]</sup>; 2016 年, LI S 等利用纳米曲率钨针的尖端场增强效



(a) Measured electron beam 3D deflectogram with circularly polarized THz pulse

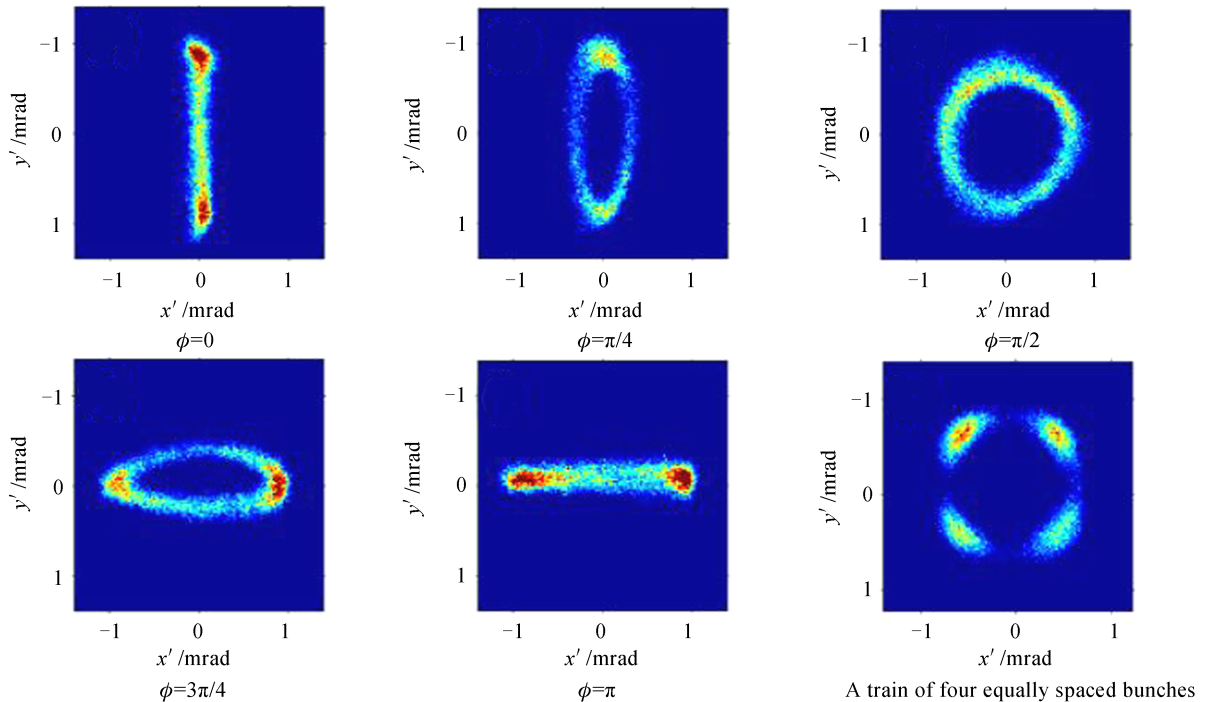
(b) Measured deflected beam distribution when the relative phase of the two THz pulses in the Martin-Puplett interferometer is set at different  $\phi$  and deflected beam distribution for a train of four equally spaced bunches图 16 圆偏振 THz 波对电子束的三维偏转<sup>[110]</sup>

Fig.16 Three-dimensional deflection of an electron beam by circular polarization THz wave<sup>[110]</sup>. Reprinted figure with permission from Ref. [110] Copyright (2020) by the American Physical Society

应,将尖端发射的电子加速到了 5 keV 能量等<sup>[113]</sup>.

除了直接测量电子以外,THz 条纹相机还能用于间接探测一些其他超快物理过程.GRGURAŠ I 等在自由电子激光产生的 X 射线光路中,通过引入一小团气体与 X 射线相互作用产生电子束,该电子束的时域脉冲波形会复制 X 射线的波形.因此,利用 THz 探测产生的超快电子就能反推 X 射线的时域脉冲波形等信息<sup>[114]</sup>,实验装置示意图如图 18.

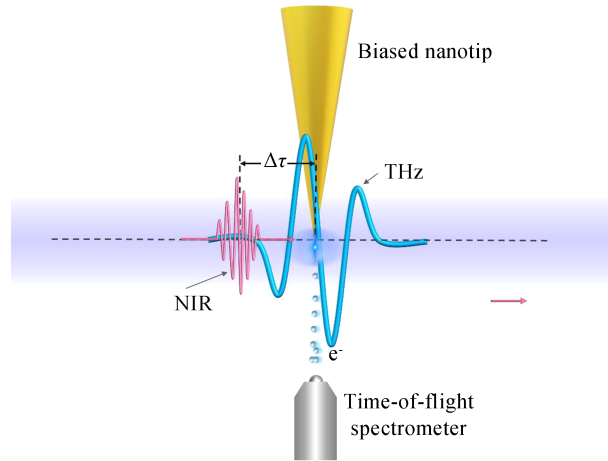


图 17 尖端近场的 THz 条纹相机,用 THz 脉冲控制纳米尖端光电发射

Fig.17 Tip near field THz streaking camera, control of nanotip photoemission with terahertz pulses

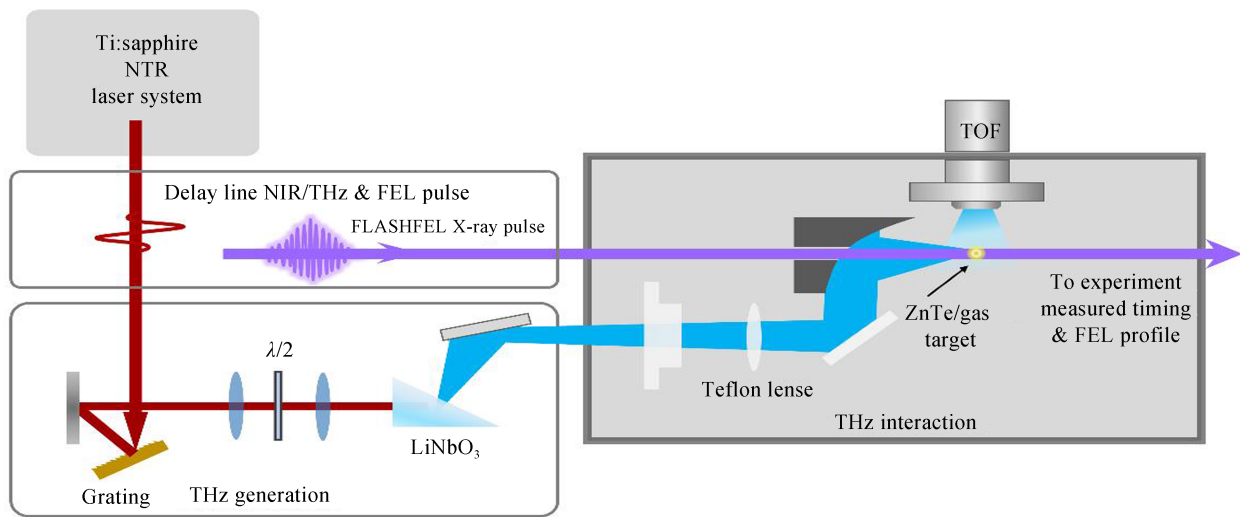


图 18 THz 条纹相机间接探测 X 射线谱装置示意图

Fig.18 Indirect measurement of X-ray spectrum by THz streaking

### 3.3 物质调控

#### 3.3.1 驱动原子尺度物态调控、量子调控

强场 THz 波具有皮秒时间尺度的强电场/磁场,可以在短时间内激发晶格振荡、电荷、自旋变化,为物质结构的超快控制提供了可能.理论上,当脉冲光场强足够强的时候,基于微扰论的低阶响应理论便不再适用.此时,光场通过跟电子、声子的耦合足以改变材料的内禀性质,从而起到直接调控物态的作用.通常可以通过两种途径来实现强场 THz 波的物态调控:1)通过将 THz 波跟声子耦合,以及声子之间的非线性作用达到调控固体结构的效果,从而改变体系的根本物性,如超导、磁性、铁电性、能带性质等;2)通过周期性光场跟电子轨道的直接耦合来调控电子的能带结构、轨道性质、自旋性质等诸多物理性质,即所谓的“Floquet 调控”.

与微波相比,强场 THz 波的峰值场强更大,周期更短,对物态调控能力更强;与可见/红外光相比,THz 波频率较低,与固体内部各低能模式能量匹配,可以实现模式选择的相干激发和操控.强场 THz 脉冲与晶体的声子、激子和极化子等原激发共振时,有可能利用强 THz 波驱动诸如晶体极化翻转,高次谐波及光子-极化子间的强耦合.从而可能导致高温超导相、新奇拓扑相等一系列的在平衡态下不存在的物态.更有意义的是,THz 波低光子能量(1 THz~4.1 meV)和对电导率非常敏感的特点可以用来探索拓扑金属(Dirac 和 Weyl 金属)费米面附近电子非平衡态动力学.目前,利用强场 THz 波已经获得了光诱导的高温超导如氧

化钇钡铜(Yttrium Barium Copper Oxide, YBCO)、 $K_3C_{60}$ 等<sup>[115-116]</sup>、巨磁阻材料( $Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$ , PCMO)中的动态相分离<sup>[117]</sup>、量子临界现象中的扰动行为<sup>[118]</sup>、关联体系中的“隐藏金属相”<sup>[119-120]</sup>、氧化物( $SrTiO_3$ )中的铁电相<sup>[121]</sup>等一系列具有优异性质的新奇量子物态。

在化学研究领域, THz波能够与自旋激发、等离激元、分子间化学键等固体内部自由度发生相互作用, 因此也是调控表面化学和催化反应的一个极为有效的手段。一般而言, 催化反应调控所涉及的活性位结构(如声子)和电子结构(如费米面附近能带精细结构和导带电子), 电荷转移, 以及光催化中所涉及的激子迁移都与THz波的能量相匹配。因而, 相对于传统的光学光子所具有的过量能量, THz辐射有望成为一种精细、高选择性且有效的调控表面化学与催化反应的工具。2006年LIU Z等利用红外自由电子激光首次给出了可以通过激发Si-H振动模式, 实现氢原子的模式选择性解吸的证据<sup>[122]</sup>。2015年, LARUE J L利用斯坦福直线加速器(Linac Coherent Light Source, LCLS)的准半周期强场THz相干渡越辐射(Coherent Transit Radiation, CTR)诱导了Ru(0001)表面的CO选择性催化, 反应过程原理如图19<sup>[123]</sup>。该实验采用以中心峰值场为10 MV/cm的THz脉冲成功在室温诱导了Ru表面CO氧化的进行。与传统的热或者光子激发过程(通常优先诱导反应物分子CO的扩散和脱附)不同, THz脉冲的强电场与电子浴相互作用, 可引导反应走向CO氧化, 同时抑制了CO解吸途径。这些实验都显示了THz辐射进行选择性振动激发, 实现可控操纵反应和过程的可能。

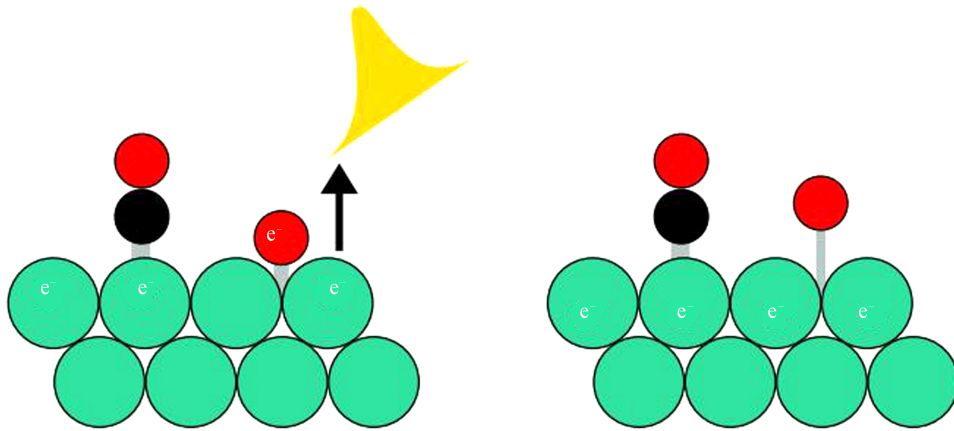


图19 强场THz波与表面化学<sup>[123]</sup>

Fig.19 Intense THz wave and surface chemistry<sup>[123]</sup>. Reprinted figure with permission from Ref.[123] Copyright(2020) by the American Physical Society

### 3.3.2 分子超快动力学研究

强场THz波可以激发各物态分子不同的动力学过程。对于气体分子, 由于极性特征, 单周期的强场THz波可以激发其分子转动和取向。图20展示了THz波和光波对分子的定向/取向过程<sup>[103]</sup>。这一过程对气体高

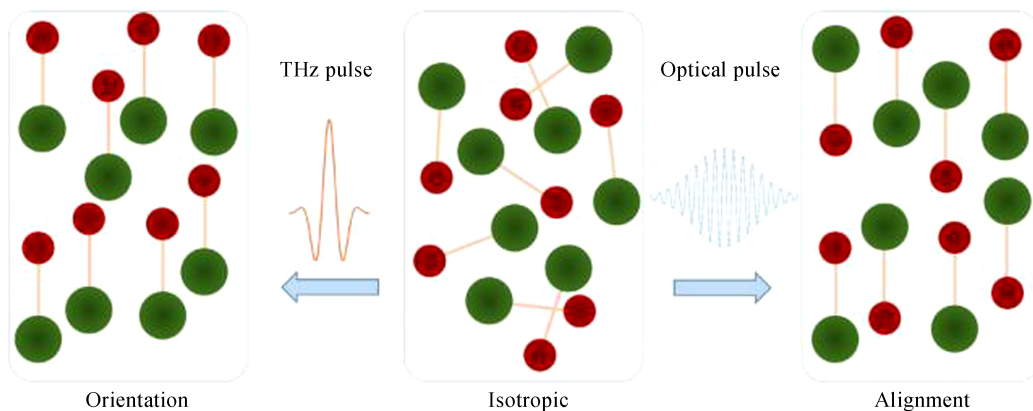


图20 THz波和光波对气态小分子的定向<sup>[103]</sup>

Fig.20 Orientation of small molecules in the gaseous state by THz and light waves<sup>[103]</sup>



次谐波的产生、光电子角分布测量、超快 X 射线衍射和分子强场电离等研究具有重要意义。

对于液体分子,分子的旋转受到限制,进而激发振动模式.强场 THz 波可以同时激发分子转动和电子迁移,诱导介质中的光学双折射,即克尔效应.通过研究不同液体在光学波段和 THz 波诱导下的克尔效应,可以发现在极性液体中,THz 波激发的克尔效应比光学波段诱导的强一个数量级,见图 21<sup>[124]</sup>.

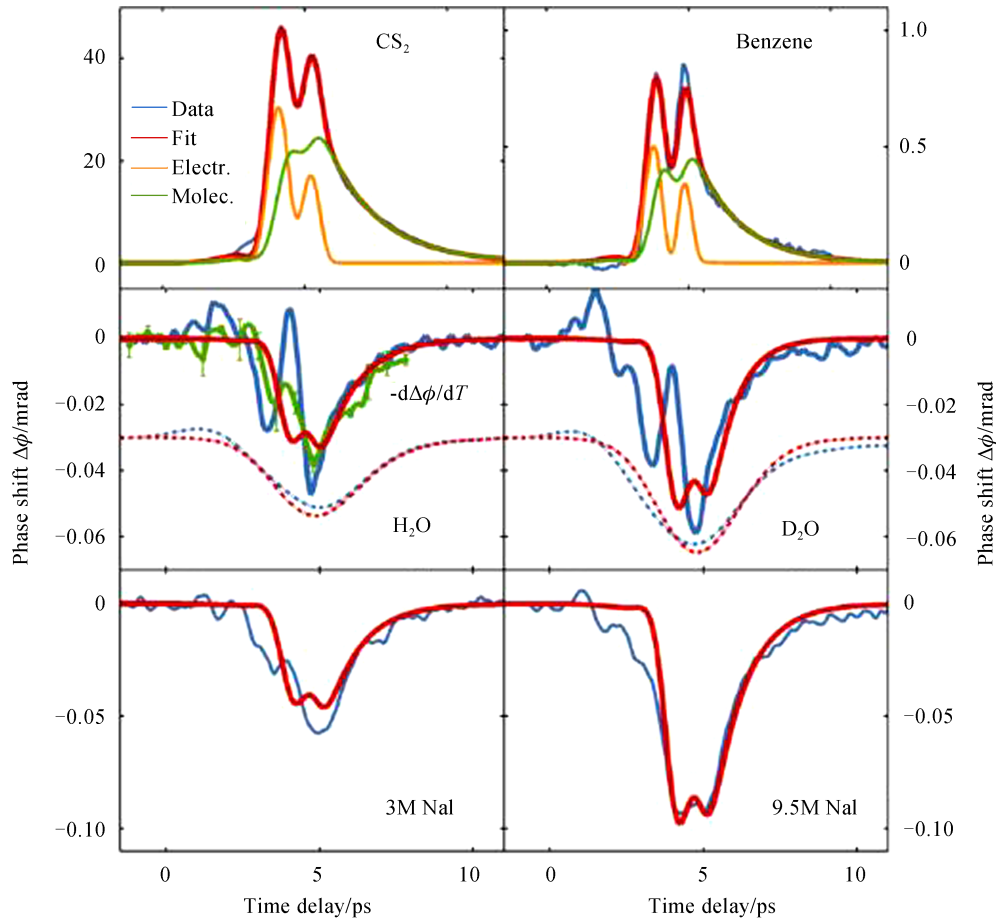


图 21 强场 THz 波驱动下各种液体的光克尔效应<sup>[124]</sup>

Fig.21 Optical Kerr effect of various liquids driven by strong-field THz wave<sup>[124]</sup>

### 3.3.3 驱动水科学研究

水是地球上最重要的液体之一,人类对于水的研究也由来已久,但水分子的某些基本性质(如水的极化率等)至今仍无法研究透彻,极大阻碍了水模型的完善和对蛋白质折叠等一系列生化反应的理解.利用强场 THz 波驱动水分子内发生电子迁移和分子转动,并探测此过程中水分子光学和电学特性的变化,以及进一步地,探测盐的水溶液在强 THz 电场驱动下折射率等性质变化和这些变化的温度依赖特性,能够帮助我们了解水分子的极性特征、水分子之间的氢键动力学以及水的溶解特性,更能加深人们对水分子结构和动力学的认识,为水分子模型的建立提供基本参数.

2018 年,ZALDEN P 等首次观察到在 THz 波驱动下液态水表现出与固体介质不同的双折射性质,称为“反常克尔效应”,提出该效应是由于 THz 电场同时激发了水分子的转动和电子迁移,两者对感生极化的影响是反向的,感生双折射是二者综合影响的结果,并认为水的极化率沿其偶极矩方向低于垂直于其的平均值<sup>[124]</sup>.

在之前的研究中,包括诺奖得主 ZEWAIL A 在内的多个团队曾用红外激光激发水分子,观察到 20 K 的温度跳变<sup>[125-127]</sup>,见图 22.所谓“温度跳变”(Temperature-Jump),即在强场 THz 波的驱动下,大量的能量在短时间内传递到水的内部,创造出一个过热的无结构环境.由于红外激光的光子能量较高,若提高泵浦激光能量,水分子会被击穿,所以较低的光子能量的 THz 波与水分子相互作用时,更能够与整个分子甚至分子基

团相耦合,同时驱动所有振动和转动模式,包括:分子质心的平动、分子内的振动以及分子整体的转动,从而将能量传递到分子的所有动能形式.数值模拟发现,在强度 $5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 的THz波的驱动下,水分子的温度可以在几百飞秒内从300 K跳变到超过1 000 K.这一过程若能实现,将成为水分子动力学研究的重要突破,对温度跳变理论、液体分子动力学、化学和生物反应过程的研究具有重要意义.然而,上述工作虽然初步证实了THz波激发下水分子的转动过程发生的时间尺度在百飞秒量级,但是由于泵浦激光功率限制,用于激发的THz波场强仅为0.5 MV/cm,难以在实验中观测到明显的温度跳变.如能大幅提高THz波场强,并利用红外瞬态吸收谱和其它精密测量技术探测水分子及盐溶液中的能量传输和温度跳变过程,可以获得明显的温度跳变,为生物、化学过程提供极端研究条件.

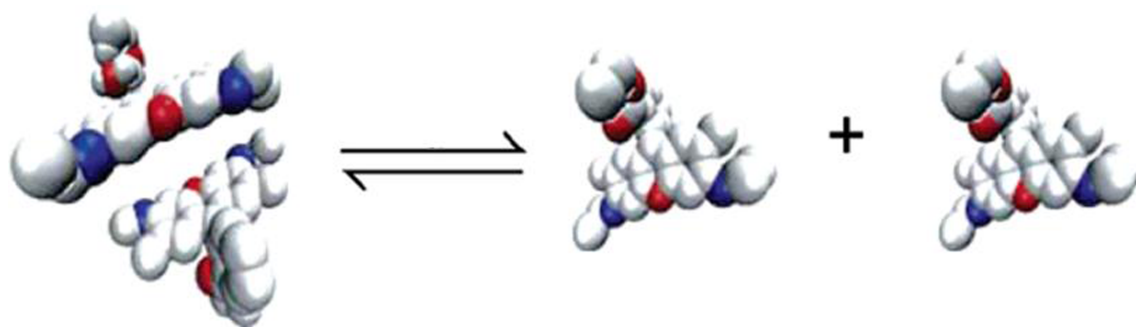


图22 激光破坏水分子网络平衡而激发温度跳变<sup>[127]</sup>

Fig.22 The laser disrupts the equilibrium of the water molecular network and triggers a temperature jump<sup>[127]</sup>. Reprinted with permission from Ref. [127] Copyright (2020) American Chemical Society

### 3.3.4 驱动生物大分子研究

在相对较大的分子中,THz波可以激发非局域振动模式.一般情况下,非线性分子的振动模式数为 $3N-6$ ,其中 $N$ 为原子数,即模态的数目随分子的复杂程度而增加.频率较大的振动模( $\approx 40\sim 120 \text{ THz}$ ,即所谓的中红外模)是局域的,与化学键的伸缩有关.如,肽和蛋白质的中红外光谱通常探索肽链的特征振动模式-CO-NH-.其中一种模式是酰胺I,它对应于位于-CO-NH-上的C=O键的伸缩.图23举例说明了五丙氨酸的酰胺I(Ala-Ala-Ala-Ala-Ala)在THz波激发下的振动模式<sup>[128]</sup>.与红外/可见波段的激光相比,THz波驱动的振动模式是非局域化的,它分布在分子的多个区域甚至整个分子,见图23(b)和(c).除了非局域分子内振动,THz波还可以共振激发分子间和分子内低能键(如氢键等)的核运动.这些非共价键在蛋白质折叠结构的稳定性、DNA双链的结合、大分子与周围分子的相互作用等方面发挥着重要作用.如,五丙氨酸在2.85 THz的振动模式与图中灰色虚线椭圆内的氢键拉伸有关.这种氢键形成了包含10个原子( $\text{C}_{10}$ )的分子内环,这种环通常出现于蛋白质中的 $\beta$ -转动中.

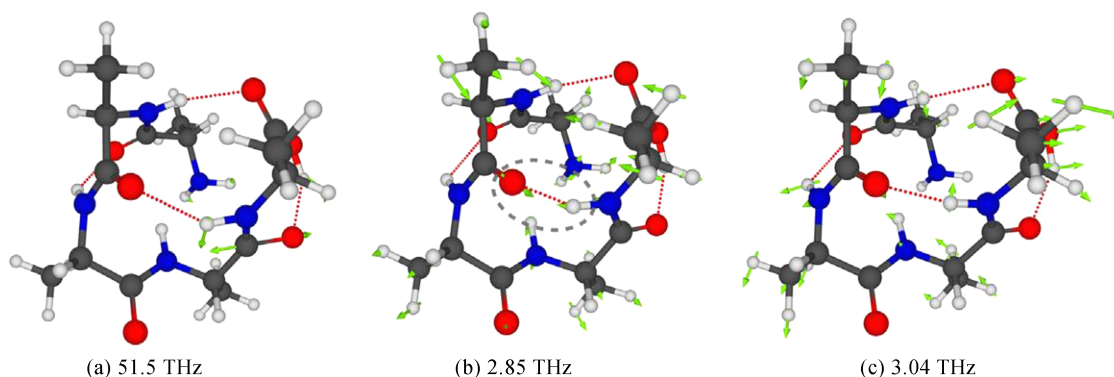


图23 强场THz波与蛋白质中的分子动力学<sup>[128]</sup>

Fig.23 Intense THz pulses and molecular dynamics in proteins<sup>[128]</sup>

### 3.4 时间分辨纳米级成像

对空间结构在纳米尺度的复杂靶材料进行多维光谱表征是极具挑战性的课题.使用同步 THz 泵浦和 X 射线探测的相干衍射成像提供了可行的解决方案<sup>[82]</sup>.如图 24, THz 波作为泵浦来改变目标靶材中的原子结构,高亮度的超短软 X 光与 THz 波同步,  $\Delta\tau$  是 X 光和 THz 波之间的时间延迟.通过 X 光的散射捕获原子结构图像,来实现 THz 波泵浦-X 光探针时间分辨纳米级成像.这种将强场 THz 波与 X 光相结合,通过泵浦-探测相干衍射成像的方法,可以应用于探究极端强电场下的物质特性,为物理学、材料学、化学、生命科学等研究领域及各交叉学科领域,提供了全新的研究手段.

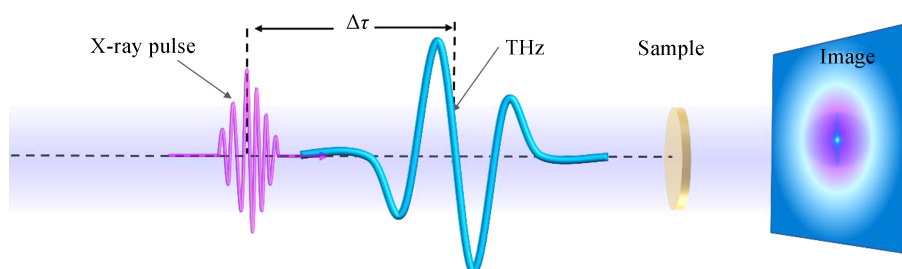


图 24 采用 THz 泵浦-X 光探测进行时间分辨纳米级成像的泵浦-探测实验

Fig.24 Conceptual illustration of a pump-probe experiment employing a THz pump and an X-ray probe for time-resolved nanoscale imaging

## 4 结论

本文主要介绍了基于超快激光技术的 THz 光源和 THz 波探测技术.产生强场 THz 波的方法主要包括基于非线性光学晶体、基于激光等离子体相互作用以及基于自由电子激光的 THz 波产生装置. THz 波的探测技术主要包括电光取样探测、空气偏压相干探测和单发探测技术.随后,围绕强场 THz 波在电子调控/加速、探测超快电子、物质调控及时间分辨纳米级成像等领域的相关应用进行了介绍.

随着现代科技的迅猛发展,无论是军事、科研还是民用领域,都对强场 THz 相关技术的需求日益增强.作为一种新型光源,强场 THz 波在物理学、材料学、化学、生物学等各个领域都有巨大的应用潜力,并已经引起世界各国尤其是科技发达国家的重视.世界各研究机构分别将强场 THz 波应用在原子分子操控、电子加速、高温超导、新型材料、表面化学、生物分子学等研究中,发现了许多新现象、新机制.强场 THz 光源和研究平台在世界范围内具有旺盛的需求,并且受到越来越多研究者的青睐.通过将强场 THz 波与红外光、可见光、X 光等相结合,探究极端条件下物质的特性并实现物质操控,将开启一个以非线性光与物质相互作用为特征的极端 THz 科学的时代.可以预见,在不久的将来,强场 THz 波将和强场红外激光一样走向前沿科技舞台的中央.

### 参考文献

- [1] 唐福. 基于激光等离子体的太赫兹辐射源研究[D]. 重庆: 重庆大学, 2018:20.
- [2] 府伟灵, 罗阳. 太赫兹技术及其生物学应用[M]. 1st ed. 北京: 人民卫生出版社, 2017.
- [3] CHEN L, SUTTON E, LEE H, *et al.* Over 100-THz bandwidth selective difference frequency generation at LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> nanojunctions[J]. *Light: Science & Applications*, 2019, **8**(1): 24.
- [4] AUSTON D H, CHEUNG K P, SMITH P R. Picosecond photoconducting Hertzian dipoles[J]. *Applied Physics Letters*, 1984, **45**(3): 284-286.
- [5] HU B, ZHANG X C, AUSTON D, *et al.* Free-space radiation from electro-optic crystals[J]. *Applied Physics Letters*, 1990, **56**: 506-508.
- [6] XU L, ZHANG X C, AUSTON D. Terahertz beam generation by femtosecond optical pulses in electro-optic materials[J]. *Applied Physics Letters*, 1992, **61**: 1784-1786.
- [7] DING Y J, ZOTOVA I B. Second-order nonlinear optical materials for efficient generation and amplification of temporally-coherent and narrow-linewidth terahertz waves[J]. *Optical and Quantum Electronics*, 2000, **32**(4): 531-552.
- [8] VICARIO C, OVCHINNIKOV A, ASHITKOV S, *et al.* Generation of 0.9-mJ THz pulses in DSTMS pumped by a Cr:Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> laser[J]. *Optics Letters*, 2014, **39**(23): 6632-6635.
- [9] VICARIO C, JAZBINSEK M, OVCHINNIKOV A V, *et al.* High efficiency THz generation in DSTMS, DAST and OH1 pumped by Cr:forsterite laser[J]. *Optics Express*, 2015, **23**(4): 4573-4580.
- [10] HEBLING J, ALMÁSI 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.
- [11] FÜLÖP J A, OLLMANN Z, LOMBOSI C S, *et al.* Efficient generation of THz pulses with 0.4 mJ energy[J]. *Optics Express*, 2014, **22**(17): 20155-20163.
- [12] FÜLÖP J, TZORTZAKIS S, KAMPFRATH T. Laser-driven strong-field terahertz sources[J]. *Advanced Optical Materials*, 2020, **8**(3): 1900681.
- [13] JOLLY S W, MATLIS N H, AHR F, *et al.* Spectral phase control of interfering chirped pulses for high-energy narrowband terahertz generation[J]. *Nature Communications*, 2019, **10**(1): 2591.
- [14] ZHONG Kai, SHI Wei, XU De-gang, *et al.* Optically pumped terahertz sources[J]. *Science China*, 2017, **60**(12): 1810-1818.
- [15] SELL A, LEITENSTORFER A, HUBER R. Phase-locked generation and field-resolved detection of widely tunable terahertz pulses with amplitudes exceeding 100 MV/cm[J]. *Optics Letters*, 2008, **33**(23): 2767-2769.
- [16] JUNGINGER F, SELL A, SCHUBERT O, *et al.* Single-cycle multiterahertz transients with peak fields above 10 MV/cm[J]. *Optics Letters*, 2010, **35**(15): 2645-2647.
- [17] BAIERL S, HOHENLEUTNER M, KAMPFRATH T, *et al.* Nonlinear spin control by terahertz-driven anisotropy fields[J]. *Nature Photonics*, 2016, **10**(11): 715-718.
- [18] EISELE M, COCKER T L, HUBER M A, *et al.* Ultrafast multi-terahertz nano-spectroscopy with sub-cycle temporal resolution[J]. *Nature Photonics*, 2014, **8**(11): 841-845.
- [19] SCHUBERT O, HOHENLEUTNER M, LANGER F, *et al.* Sub-cycle control of terahertz high-harmonic generation by dynamical Bloch oscillations [J]. *Nature Photonics*, 2014, **8**(2): 119-123.
- [20] KAMPFRATH T, SELL A, KLATT G, *et al.* Coherent terahertz control of antiferromagnetic spin waves[J]. *Nature Photonics*, 2011, **5**(1): 31-34.
- [21] PASHKIN A, PORER M, BEYER M, *et al.* Femtosecond response of quasiparticles and phonons in superconducting  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  studied by wideband terahertz spectroscopy[J]. *Physical Review Letters*, 2010, **105**(6): 067001.
- [22] LANGE C, MAAG T, HOHENLEUTNER M, *et al.* Extremely nonperturbative nonlinearities in gas driven by atomically strong terahertz fields in gold metamaterials[J]. *Physical Review Letters*, 2014, **113**(22): 227401.
- [23] JUNGINGER F, MAYER B, SCHMIDT C, *et al.* Nonperturbative interband response of a bulk insb semiconductor driven off resonantly by terahertz electromagnetic few-cycle pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2012, **109**(14): 147403.
- [24] BAYER A, POZIMSKI M, SCHAMBECK S, *et al.* Terahertz light - matter interaction beyond unity coupling strength [J]. *Nano Letters*, 2017, **17**(10): 6340-6344.
- [25] LIU B, BROMBERGER H, CARTELLA A, *et al.* Generation of narrowband, high-intensity, carrier-envelope phase-stable pulses tunable between 4 and 18 THz[J]. *Optics Letters*, 2017, **42**(1): 129-131.
- [26] BAI Ya, CHENG Chang-jie, LI Xiao-lu, *et al.* Intense broadband mid-infrared pulses of 280 MV/cm for supercontinuum generation in gaseous medium[J]. *Optics Letters*, 2018, **43**(4): 667-670.
- [27] HAMSTER H, SULLIVAN A, GORDON S, *et al.* Subpicosecond, electromagnetic pulses from intense laser-plasma interaction[J]. *Physical Review Letters*, 1993, **71**(17): 2725-2728.
- [28] YANG Jing, ZHAO Jia-yu, GUO Lan-jun, *et al.* Study of terahertz radiation from filamentation induced by ultrafast laser pulses [J]. *Infrared and Laser Engineering*, 2015, **44**(3): 996-1007.  
杨晶, 赵佳宇, 郭兰军, 等. 超快激光成丝产生太赫兹波的研究[J]. *红外与激光工程*, 2015, **44**(3): 996-1007.
- [29] WANG T J, DAIGLE J F, CHEN Y, *et al.* High energy THz generation from meter-long two-color filaments in air[J]. *Laser Physics Letters*, 2010, **7**(7): 517-521.
- [30] BAI Ya, SONG Li-wei, XU Rong-jie, *et al.* Waveform-controlled terahertz radiation from the air filament produced by few-cycle laser pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2012, **25**(108): 255004.
- [31] NIBBERING E T. Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air[J]. *Optics Letters*, 1996, **1**(21): 62-65.
- [32] KASPARIAN J. Infrared extension of the super continuum generated by femtosecond terawatt laser pulses propagating in the atmosphere[J]. *Optics Letters*, 2000, **18**(25): 1397-1399.
- [33] BRODEUR A, CHIN S L. Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media [J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 1999, **16**(4): 637-650.
- [34] LIU Jian-sheng, SCHRÖDER H, CHIN S L, *et al.* Space-frequency coupling, conical waves, and small-scale filamentation in water[J]. *Physical Review A*, 2005, **72**: 762-776.
- [35] LIU Jian-sheng. Nonlinear propagation of fs laser pulses in liquids and evolution of supercontinuum generation[J]. *Optics Express*, 2005, **25**(13): 10248-10259.
- [36] WANG Zhan-xin, LIU Jian-sheng, LI Ru-xin, *et al.* Wavefront control to generate ultraviolet supercontinuum by filamentation of few-cycle laser pulses in argon[J]. *Optics Letters*, 2010, **2**(35): 163-165.
- [37] KASPARIAN J, SAUERBREY R, CHIN S L. The critical laser intensity of self-guided light filaments in air[J]. *Applied Physics B*, 2000, **71**(6): 877-879.
- [38] GAO Hui, ZHAO Jia-yu, LIU Wei-wei. Control of multiple filamentation induced by ultrafast laser pulses[J]. *Optics & Precision Engineering*, 2013, **21**(3): 598-607.
- [39] HAURI C P, KORNELIS W, HELBING F W, *et al.* Generation of intense, carrier-envelope phase-locked few-cycle laser pulses through filamentation[J]. *Applied Physics B*, 2004, **79**(6): 673-677.
- [40] CHEN Xiao-wei, LENG Yu-xin, LIU Jun, *et al.* Pulse self-compression in normally dispersive bulk media[J]. *Optics Communications*, 2006, **259**(1): 331-335.
- [41] LIU Jian-sheng, LI Ru-xin, XU Zhi-zhan, *et al.* Few-cycle spatiotemporal soliton wave excited by filamentation of a femtosecond laser pulse in materials with anomalous dispersion[J]. *Physical Review A*, 2006, **74**: 520-523.

- [42] SONG Li-wei, BAI Ya, XU Rong-jie, *et al.* Polarization control of terahertz waves generated by circularly polarized few-cycle laser pulses[J]. *Applied Physics Letters*, 2013, **103**: 261102-261102.
- [43] COOK D J, HOCHSTRASSER R M. Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air[J]. *Optics Letters*, 2000, **25**(16): 1210-1212.
- [44] OH T I, YOO Y J, YOU Y S, *et al.* Generation of strong terahertz fields exceeding 8 MV/cm at 1 kHz and real-time beam profiling[J]. *Applied Physics Letters*, 2014, **105**(4): 041103.
- [45] KUK D, YOO Y J, ROSENTHAL E W, *et al.* Generation of scalable terahertz radiation from cylindrically focused two-color laser pulses in air[J]. *Applied Physics Letters*, 2016, **108**(12): 121106.
- [46] KOULOUKLIDIS A D, GOLLNER C, SHUMAKOVA V, *et al.* Observation of extremely efficient terahertz generation from mid-infrared two-color laser filaments[J]. *Nature Communications*, 2020, **11**(1): 292.
- [47] KAMPFRATH T, SELL A, KLATT G, *et al.* Coherent terahertz control of antiferromagnetic spin waves[J]. *Nature Photonics*, 2010, **5**(1): 31-34.
- [48] DEY I, JANA K, FEDOROV V Y, *et al.* Highly efficient broadband terahertz generation from ultrashort laser filamentation in liquids[J]. *Nature Communications*, 2017, **8**(1): 1184.
- [49] JIN Q, E Y, WILLIAMS K, *et al.* Observation of broadband terahertz wave generation from liquid water[J]. *Applied Physics Letters*, 2017, **111**(7): 071103.
- [50] COOK D J, HOCHSTRASSER R M. Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air[J]. *Optics Letters*, 2000, **25**(16): 1210-1212.
- [51] MARKUS K. Terahertz-pulse generation by photoionization of air with laser pulses composed of both fundamental and second-harmonic waves[J]. *Optics Letters*, 2004, **29**(10): 1120-1122.
- [52] XIE Xu, DAI Jian-ming, ZHANG X C. Coherent control of thz wave generation in ambient air[J]. *Physical Review Letters*, 2006, **96**: 075005.
- [53] ZHANG Y, CHEN Y, MARCEAU C, *et al.* Non-radially polarized THz pulse emitted from femtosecond laser filament in air[J]. *Optics Express*, 2008, **16**(20): 15483-15488.
- [54] OH T I, YOU Y S, KIM K Y. Two-dimensional plasma current and optimized terahertz generation in two-color photoionization[J]. *Optics Express*, 2012, **20**(18): 19778-19786.
- [55] HOUARD A, LIU Y, PRADE B, *et al.* Polarization analysis of terahertz radiation generated by four-wave mixing in air [J]. *Optics Letters*, 2008, **33**(11): 1195-1197.
- [56] ZHANG Yi-zhu, CHEN Yan-ping, XU Sheng-qi, *et al.* Portraying polarization state of terahertz pulse generated by a two-color laser field in air[J]. *Optics Letters*, 2009, **34**(18): 2841-2843.
- [57] KIM K Y, GLOWNIA J H, TAYLOR A J, *et al.* Terahertz emission from ultrafast ionizing air in symmetry-broken laser fields[J]. *Optics Express*, 2007, **15**(8): 4577-4584.
- [58] KIM K Y, TAYLOR A J, GLOWNIA J H, *et al.* Coherent control of terahertz supercontinuum generation in ultrafast laser - gas interactions[J]. *Nature Photonics*, 2008, **2**(10): 605-609.
- [59] CHENG C C, WRIGHT E, MOLONEY J. Generation of electromagnetic pulses from plasma channels induced by femtosecond light strings[M]. 2001.
- [60] AMICO C D. Conical forward THz emission from femtosecond-laser-beam filamentation in air [J]. *Physical Review Letters*, 2007, **98**(23): 235002.
- [61] AMICO C D, HOUARD A, AKTURK S, *et al.* Forward THz radiation emission by femtosecond filamentation in gases: theory and experiment [J]. *New Journal of Physics*, 2008, **10**(1): 013015.
- [62] WU H C, MEYER-TER-VEHN J, RUHL H, *et al.* Terahertz radiation from a laser plasma filament [J]. *Physical Review E: Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics*, 2011, **83**: 036407.
- [63] ZHANG Yi-zhu, CHEN Yan-ping, XU Sheng-qi, *et al.* Portraying polarization state of terahertz pulse generated by a two-color laser field in air[J]. *Optics Letters*, 2009, **34**(18): 2841-2843.
- [64] LIAO G Q, LI Y T, LI C, *et al.* Bursts of terahertz radiation from large-scale plasmas irradiated by relativistic picosecond laser pulses[J]. *Physical Review Letters*, 2015, **25**(114): 255001.
- [65] SHENG Zheng-ming, MIMA K, ZHANG Jie, *et al.* Emission of electromagnetic pulses from laser wakefields through linear mode conversion[J]. *Physical Review Letters*, 2005, **94**(9): 095003.
- [66] 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**: 074802.
- [67] GOPAL A, SINGH P, HERZER S, *et al.* Characterization of 700  $\mu$ J T rays generated during high-power laser solid interaction[J]. *Optics Letters*, 2013, **38**: 4705-4707.
- [68] LIAO Guo-qian, LI Yu-tong, LIU Hao, *et al.* Multimillijoule coherent terahertz bursts from picosecond laser-irradiated metal foils[J]. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 2019, **116**(10): 3994-3999.
- [69] TIAN Ye, LIU Jian-sheng, BAI Ya-feng, *et al.* Femtosecond-laser-driven wire-guided helical undulator for intense terahertz radiation[J]. *Nature Photonics*, 2017, **11**(4): 242-246.
- [70] MADEY J M J. Stimulated emission of bremsstrahlung in a periodic magnetic field[J]. *Journal of Applied Physics*, 1971, **42**(5): 1906-1913.
- [71] ELIAS L R, FAIRBANK W M, MADEY J M J, *et al.* Observation of stimulated emission of radiation by relativistic electrons in a spatially periodic transverse magnetic field[J]. *Physical Review Letters*, 1976, **36**(13): 717-720.
- [72] COHN K R, BLAU J, COLSON W B, *et al.* Free electron lasers[C]. Korea: Proceedings of the 37th International Free Electron Laser Conference, 2015.
- [73] NEIL G R. Fel oscillators[C]. Porland: Proceedings of the 2003 Particle Accelerator Conference, 2003.

- [74] ZAMBON P, WITTEMAN W J, SLOT P J MVAN DER. Comparison between a FEL amplifier and oscillator[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 1994, **341**(1): 88-92.
- [75] SALDIN E L, SCHNEIDMILLER E A, YURKOV M V. Coherence properties of the radiation from SASE FEL[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 2003, **507**(1): 106-109.
- [76] COLSON W B. Tutorial on classical free electron laser theory[J]. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 1985, **237**(1): 1-9.
- [77] GREEN B, KOVALEV S, ASGEKAR V, *et al.* High-field high-repetition-rate sources for the coherent thz control of matter[J]. *Scientific Reports* 2016, **6**: 22256.
- [78] LI Ming, YANG Xing-fan, XU Zhou, *et al.* First lasing of CAEP THz free electron laser[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2017, **29**(10): 100101.  
黎明, 杨兴繁, 许州, 等. CAEP 太赫兹自由电子激光首次饱和出光[J]. *强激光与粒子束*, 2017, **29**(10): 100101.
- [79] DOU Yu-huan, SHU Xiao-jian, DENG De-rong. Design and simulations of CAEP high power THz free-electron laser [J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2013, **3**: 662-666.  
窦玉焕, 束小建, 邓德荣. 中物院高功率 THz FEL 装置的理论分析和优化设计[J]. *强激光与粒子束*, 2013, **3**: 662-666.
- [80] XU Zhou, YANG Xing-fan, LI Ming, *et al.* Design of a high average power terahertz-FEL facility [J]. *Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology*, 2013(1): 1-6.  
许州, 杨兴繁, 黎明, 等. 高平均功率太赫兹自由电子激光装置设计[J]. *太赫兹科学与电子信息学报*, 2013(1): 1-6.
- [81] LI Peng, JIAO Yi, BO Wei. Start-to-end simulation of CAEP FEL-THz beamline[J]. *High Power Laser and Particle Beams*, 2014, **8**: 213-217.  
李鹏, 焦毅, 柏伟. 中国工程物理研究院 FEL-THz 束线从头至尾模拟设计[J]. *强激光与粒子束*, 2014, **8**: 213-217.
- [82] ZHANG X C, SHKURINOV A, ZHANG Yan. Extreme terahertz science[J]. *Nature Photonics*, 2017, **11**: 16-18.
- [83] NAHATA A, AUSTON D, HEINZ T, *et al.* Coherent detection of freely propagating terahertz radiation by electro-optic sampling[J]. *Applied Physics Letters*, 1996, **68**: 150-152.
- [84] WU Q, ZHANG X C. Free-space electro-optic sampling of terahertz beam[J]. *Applied Physics Letters*, 1996, **67**: 3523-3525.
- [85] JEPSEN P, WINNEWISSER C, SCHALL M, *et al.* Detection of THz pulses by phase retardation in lithium tantalate [J]. *Physical Review E*, 1996, **53**: R3052-R3054.
- [86] WU Q, ZHANG X C. 7 THz broadband GaP electro-optic sensor[J]. *Applied Physics Letters* 1997, **70**: 1784-1786.
- [87] WU Q, ZHANG X C. Ultrafast electro-optic field sensors[J]. *Applied Physics Letters*, 1996, **68**(12): 1604-1606.
- [88] STOJANOVIC N, DRESCHER M. Accelerator- and laser-based sources of high-field terahertz pulses[J]. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 2013, **46**: 192001.
- [89] CHEN Q, TANI M, JIANG Zhi-ping, *et al.* Electro-optic transceivers for terahertz-wave applications[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2001, **18**(6): 823-831.
- [90] NAHATA A, HEINZ T. Detection of freely propagating terahertz radiation by use of optical second-harmonic generation [J]. *Optics Letters*, 1998, **23**: 67-69.
- [91] COOK D J, CHEN J X, MORLINO E A, *et al.* Terahertz-field-induced second-harmonic generation measurements of liquid dynamics[J]. *Chemical Physics Letters*, 1999, **309**: 221-228.
- [92] DAI J, CLOUGH B, HO I C, *et al.* Recent progresses in terahertz wave air photonics [J]. *IEEE Transactions on Terahertz Science and Technology*, 2011, **1**: 274-281.
- [93] JIANG Zhi-ping, ZHANG X C. Electro-optic measurement of THz field pulses with a chirped optical beam[J]. *Applied Physics Letters*, 1998, **72**: 1945-1947.
- [94] TEO S, OFORI-OKAI B, WERLEY C, *et al.* Invited article: Single-shot THz detection techniques optimized for multidimensional THz spectroscopy[J]. *The Review of Scientific Instruments*, 2015, **86**: 051301.
- [95] SHAN J, 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.
- [96] LI Chun, LIAO Guo-qian, LI Yu-tong. Non-scanning systems for far-infrared radiation detection from laser-induced plasmas[J]. *High Power Laser Science and Engineering*, 2015, **2**: 1-5.
- [97] KAWADA Y, YASUDA T, NAKANISHI A, *et al.* Single-shot terahertz spectroscopy using pulse-front tilting of an ultra-short probe pulse[J]. *Optics Express*, 2011, **19**: 11228-11235.
- [98] KAWADA Y, YASUDA T, TAKAHASHI H, *et al.* Real-time measurement of temporal waveforms of a terahertz pulse using a probe pulse with a tilted pulse front[J]. *Optics Letters*, 2008, **33**: 180-182.
- [99] KIM K, YELLAMPALLE B, TAYLOR A, *et al.* Single-shot terahertz pulse characterization via two-dimensional electro-optic imaging with dual echelons[J]. *Optics Letters*, 2007, **32**: 1968-1970.
- [100] STEVEN P J. High-temporal-resolution, single-shot characterization of terahertz pulses[J]. *Optics Letters*, 2003, **28**(18): 1710-1712.
- [101] JAMISON S P, SHEN Jing-ling, MACLEO A M, *et al.* High-temporal-resolution, single-shot characterization of terahertz pulses[J]. *Optics Letters*, 2003, **28**(18): 1710-1712.
- [102] MATLIS N H, PLATEAU G R, TILBORG J VAN, *et al.* Single-shot spatiotemporal measurements of ultrashort THz waveforms using temporal electric-field cross correlation[J]. *Journal of the Optical Society of America B*, 2011, **28**(1): 23-27.

- [103] SALEN P, BASINI M, BONETTI S, *et al.* Matter manipulation with extreme terahertz light: progress in the enabling THz technology[J]. *Physics Reports*, 2019, **836-837**:1-74.
- [104] NANNI E A, HUANG W R, HONG K-H, *et al.* Terahertz-driven linear electron acceleration [J]. *Nature Communications*, 2015, **6**(1): 8486.
- [105] ZHANG D, FALLAHI A, HEMMER M, *et al.* Segmented terahertz electron accelerator and manipulator (STEAM) [J]. *Nature Photonics*, 2018, **12**(6): 336-342.
- [106] ZHANG D, FALLAHI A, HEMMER M, *et al.* Femtosecond phase control in high-field terahertz-driven ultrafast electron sources[J]. *Optica*, 2019, **6**(7): 872-877.
- [107] CURRY E, FABBRI S, MUSUMECI P, *et al.* THz-driven zero-slippage IFEL scheme for phase space manipulation [J]. *New Journal of Physics*, 2016, **18**: 113045.
- [108] CURRY E, FABBRI S, MAXSON J, *et al.* Meter-scale terahertz-driven acceleration of a relativistic beam [J]. *Physical Review Letters*, 2018, **120**(9): 094801.
- [109] KEALHOFFER C, SCHNEIDER W, EMBERGER D, *et al.* All-optical control and metrology of electron pulses[J]. *Science*, 2016, **352**(6284): 429.
- [110] ZHAO Ling-rong, WANG Zhe, TANG Heng, *et al.* Terahertz oscilloscope for recording time information of ultrashort electron beams[J]. *Physical Review Letters*, 2019, **122**(14): 144801.
- [111] COCKER T L, JELIC V, GUPTA M, *et al.* An ultrafast terahertz scanning tunnelling microscope [J]. *Nature Photonics*, 2013, **7**(8): 620-625.
- [112] WIMMER L, HERINK G, SOLLI D R, *et al.* Terahertz control of nanotip photoemission[J]. *Nature Physics*, 2014, **10**(6): 432-436.
- [113] LI S, JONES R R. High-energy electron emission from metallic nano-tips driven by intense single-cycle terahertz pulses [J]. *Nature Communications*, 2016, **7**(1): 13405.
- [114] GRGURAŠ I, MAIER A R, BEHRENS C, *et al.* Ultrafast X-ray pulse characterization at free-electron lasers [J]. *Nature Photonics*, 2012, **6**(12): 852-857.
- [115] CANTALUPPI A, BUZZI M, NICOLETTI D, *et al.* Pressure tuning of light-induced superconductivity in  $K_3C_{60}$  [J]. *Nature Physics*, 2018, **14**: 831-841.
- [116] TSAI T R, CHI C C, HORNG S F. Terahertz responses of high-resistivity YBCO thin films [J]. *Physica C: Superconductivity*, 2003, **391**: 281-288.
- [117] SCHOENLEIN R, POLLI D, RINI M, *et al.* Coherent orbital waves during an Ultrafast Photo-induced Insulator-metal Transition in a magnetoresistive manganite[J]. *Nature Materials*, 2007, **6**(9): 643-647.
- [118] ESPOSITO V, MANKOWSKY R, FECHNER M, *et al.* Nonlinear electron-phonon coupling in doped manganites [J]. *Physical Review Letters*, 2017, **118**(24): 247601.
- [119] KOZINA M, FECHNER M, MARSIK P, *et al.* Terahertz-driven phonon upconversion in  $SrTiO_3$  [J]. *Nature Physics*, 2019, **15**: 387-392.
- [120] KATAYAMA I, AOKI H, TAKEDA J, *et al.* Ferroelectric soft mode in a  $SrTiO_3$  thin film impulsively driven to the anharmonic regime using intense picosecond terahertz pulses [J]. *Physical Review Letters*, 2012, **108**: 097401.
- [121] LI Xian, QIU Tian, ZHANG Jia-hao, *et al.* Terahertz-field-induced ferroelectricity in quantum paraelectric  $SrTiO_3$  [M]. 2018.
- [122] LIU Z, FELDMAN L C, TOLK N H, *et al.* Desorption of H from Si(111) by resonant excitation of the Si-H vibrational stretch mode [J]. *Science*, 2006, **312**(5776): 1024-1026.
- [123] LARUE J L, KATAYAMA T, LINDENBERG A, *et al.* Thz-pulse-induced selective catalytic CO oxidation on Ru [J]. *Physical Review Letters*, 2015, **115**(3): 036103.
- [124] ZALDEN P, SONG Li-wei, WU Xiao-jun, *et al.* Molecular polarizability anisotropy of liquid water revealed by terahertz-induced transient orientation [J]. *Nature Communications*, 2018, **9**(1): 2142.
- [125] YE Man-ping, LI Heng, ZHANG Qing-li, *et al.* Intermolecular hydrogen bonds formed between amino acid molecules in aqueous solution investigated by temperature-jump nanosecond time-resolved transient mid-IR spectroscopy [J]. *Chinese Journal of Chemical Physics*, 2007, **20**(4): 461-467.
- [126] GAVRILA G, GODEHUSEN K, WENIGER C, *et al.* Time-resolved X-ray absorption spectroscopy of infrared-laser-induced temperature jumps in liquid water [J]. *Applied Physics A*, 2009, **96**(1): 11-18.
- [127] MA Hai-rong, WAN Chao-zhi, ZEWAIL A H. Ultrafast T-jump in water: Studies of conformation and reaction dynamics at the thermal limit [J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2006, **128**(19): 6338-6340.
- [128] CHIN W, PIUZZI F, DIMICOLI I, *et al.* Probing the competition between secondary structures and local preferences in gas phase isolated peptide backbones [J]. *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2006, **8**(9): 1033-1048.