用于高通量超快电子衍射的高重复频率太赫兹和紫外辐射

A. Ryabov[1], K. Amini[1,*]

[1]Max-Born-Institut，Max-Born-Str. 2A，12489，柏林，德国。*通讯作者邮箱：kasra.amini@mbi-berlin.de

摘要

将飞秒太赫兹（THz）和紫外（UV）光源扩展至高重复频率，对于实现高通量超快光谱学和成像应用至关重要。然而，受热效应、相位匹配限制和材料损伤的制约，这些光源在高平均功率下的高效产生仍面临挑战。本文展示了由同一台工作于40–600 kHz的Yb:KGW激光器驱动的宽带太赫兹和紫外光生成。太赫兹辐射通过化学计量比$MgO:LiNbO_3$ 中的光学整流产生，采用线聚焦几何结构，得到能量为55–92 nJ的单周期脉冲，峰值电场为37–90千伏/厘米。电光采样和光束质量测量表明，通过在晶体内横向移动产生区域，可灵活调控中心频率、带宽和场振幅之间的关系。采用较短的泵浦脉冲可保持太赫兹转换效率；而在100 kHz下使用较长脉冲时，由于累积热效应，太赫兹输出最多降低至原来的四分之一。飞秒257.5 nm紫外脉冲通过β-硼酸钡中的级联四次谐波产生，转换效率在40 kHz时超过10%，并可稳定运行至600 kHz。这些结果展示了一种紧凑且热稳定的平台，可实现高平均功率非线性转换，并与下一代高重复频率超快电子衍射和光谱系统直接相关。

引言

高重复频率产生太赫兹（THz）和紫外（UV）辐射，在超快光学、成像和光谱学领域日益重要。在这些光谱区域提供飞秒、高平均功率光束的能力，是原子与分子光物理学[1,2]，凝聚态物理学[3–5]以及材料科学[6]中各类实验的基础。除光谱学之外，太赫兹和紫外脉冲也是紧凑型超快电子源[7]的关键推动因素：低能量（pJ-nJ）紫外脉冲驱动光发射，以产生电子探针[8]，；nJ 级太赫兹场能够对相对论电子束团进行时间压缩和条纹成像[9]，；而 μJ 级紫外脉冲则常用于对目标样品进行光激发。尽管太赫兹和紫外脉冲在超快科学中发挥着核心作用，要将太赫兹与紫外光生成的重复频率有效提升至数十千赫兹（kHz）以上，仍是一项重大的实验挑战。

基于镱的飞秒激光系统如今通常能够以数十至数百千赫兹的重复频率输出 μJ-mJ 脉冲，平均功率超过 100 W，[10–12] 并开始迈向千瓦[13,14,12] 及更高[15,16] 功率级别。这些镱（Yb）光源使得在前所未有的平均功率下实现高通量非线性转换成为可能，前提是妥善控制热吸收、相位匹配和损伤阈值。然而，要在 100 kHz 或更高重复频率下产生高能量太赫兹和紫外脉冲仍然困难，部分原因是关于高热负载和高平均功率负载下非线性转换的研究有限。

微焦耳级的太赫兹产生[17–30] 已通过采用倾斜脉冲前沿方案的非共线光学整流得以实现[18,31] [18,19,25]。这种方案具有较高的转换效率，但涉及复杂的几何结构，且在高平均功率下会面临显著的热挑战[32]。相比之下，在掺镁铌酸锂晶体上采用线聚焦的共线几何结构[3]，通过光学整流产生太赫兹辐射[20]，提供了一种更简单、更稳健的途径。这种方法可降低热负荷，同时产生宽带单周期太赫兹辐射，重复频率达数十

千赫兹[20]。紫外光生成方面，人们已探索多种策略，包括在双折射晶体中进行非线性上转换[33–35] 、采用高压激光加工玻璃池[36,37]，、在充气光纤中产生共振色散波[38–41]，以及在稀有气体中进行四波混频[42,43]。基于Yb的激光器的基频输出通常集中在1030 nm，因此其直接三次谐波产生无法像基于钛宝石的系统那样达到紫外波段。在双折射β-硼酸钡（BBO）晶体中对1030 nm激光进行级联四次谐波产生（FHG）[44] β，可提供一种紧凑、高效的途径来生成257.5 nm紫外光[45] ；但在亚皮秒泵浦脉冲持续时间下，将其扩展至100 kHz以上的可行性仍鲜有研究。

本文中，我们对由同一套 Yb:KGW薄盘激光系统（Light Conversion CARBIDE，1030 nm，320 fs FWHM，2 mJ，80 W，重复频率为 40 kHz 且可调至 2 MHz）驱动的高重复频率太赫兹和紫外光生成进行了全面的实验研究。太赫兹辐射通过化学计量比 MgO:$LiNbO_3$ 中的光学整流产生，采用线聚焦几何结构；而 257.5 nm 紫外脉冲则通过 BBO 中的级联四次谐波产生生成。我们系统地考察了这两种过程随重复频率、脉冲持续时间和泵浦功率的变化规律——太赫兹产生的重复频率范围为 40 kHz 至最高 100 kHz，紫外光生成则最高可达 600 kHz。我们观察到高效、稳定的太赫兹发射，能量最高达 92 nJ，且具有单周期波形；紫外光生成的能量范围则从 nJ 级到 pJ 级，适用于产生电子探针。这为高平均功率超快光源（例如超快电子衍射（超快电子衍射，UED））建立了一个可扩展的平台[2,7,46–48,8]。我们首先分析不同重复频率、泵浦脉冲持续时间和泵浦功率下的太赫兹产生，随后研究 BBO 中级联四次谐波转换随重复频率的变化。

图1展示了基于参考文献[20]的太赫兹产生装置光学示意图。柱面望远镜和平凸透镜通过沿y轴放大并沿x轴聚焦，使1030 nm辐射形成线焦点（3.4 mm × 56 μm $1/e^2$ 半径）。偏振方向为y的线焦点照射到一块掺镁化学计量比$LiNbO_3$ 薄片（$1 \times 10 \times 10$ mm^3）上。线焦点几何形状和化学计量比掺杂均可降低晶体的热负荷。1030 nm脉冲能量在40 kHz和100 kHz下均可调至最高225 μJ（即平均功率分别为9 W和22 W），脉冲持续时间则通过光栅压缩器在320 fs至1 ps之间调节。硅棱镜（顶角40.4°）与$LiNbO_3$ 薄片的出射面光学接触，以高效耦出产生的太赫兹辐射[20]。$LiNbO_3$ （0.5 THz时为$n = 5.0$）与硅（$n = 3.4$）之间的折射率匹配可最大限度地减少界面处的全内反射损耗，并实现近切伦科夫相位匹配提取，频率最高可达~2 THz。棱镜与晶体之间的光学接触消除了空气间隙，从而抑制菲涅耳反射损耗，并避免法布里-珀罗干涉造成时间太赫兹波形失真。柱面透镜前的1030 nm泵浦脉冲经机械斩波后，使用热释电探测器（Gentec-EO）测量共线几何结构中产生并耦出的太赫兹光束的平均功率，同时使用太赫兹光束剖面仪（Pyrocam-III，Spiricon公司）记录空间分布。电光采样（EOS）测量在电光采样晶体（ZnTe，0.5 mm）中进行，以太赫兹辐射作为泵浦，以弱1030 nm脉冲作为探测光，从而获取时间电场波形。透射后的1030 nm探测光束经过四分之一波片和沃拉斯顿棱镜，随后入射到平衡光电二极管探测器上进行EOS探测。这些EOS测量使我们能够确定太赫兹脉冲对比度（即切伦科夫脉冲与$-x$ 脉冲的比值），以及两个切伦科夫脉冲之间的延迟。

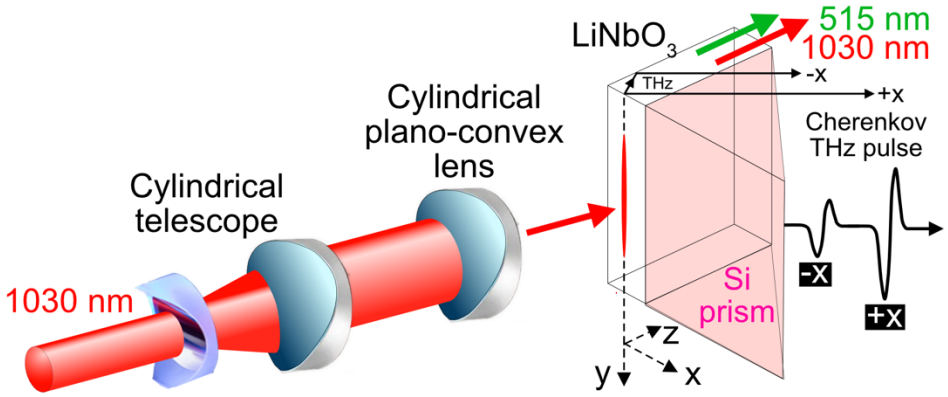


图 1。太赫兹产生的实验装置。柱面望远镜和平凸透镜在 $LiNbO_3$ 薄片上形成 y 偏振线焦点，产生的太赫兹辐射通过光学接触的硅棱镜高效耦出。图中显示了 $-x$ 和 $+x$ 切伦科夫太赫兹脉冲。

图2总结了不同脉冲持续时间（320 fs和1000 fs）、重复频率（40 kHz和100 kHz）以及$LiNbO_3$薄片上不同x位置处，发射的太赫兹脉冲能量随输入1030 nm能量的变化关系。在晶片中心（$x = 0.0$ mm）处，使用214 μJ的1030 nm总输入能量可产生最高55 nJ的$+x$ 切伦科夫太赫兹辐射（见图2a），对应的转换效率为2.6×10^{-4}，接近Tsarev等人报告的最佳效率等[20]。将线焦点沿x轴从中心向外移动，会使发射的太赫兹能量逐渐增加（见图2c）。随着产生区域向出射面（$+x$ 切伦科夫辐射侧，见图1）移动，太赫兹场的内部传播距离缩短，从而降低吸收和全内反射损耗。因此，更多太赫兹频谱能够透射通过晶体，并在太赫兹光学元件固定的数值孔径（NA）范围内被收集，其中包括原本会在$LiNbO_3$ 薄片内部更深处被吸收的高频分量。

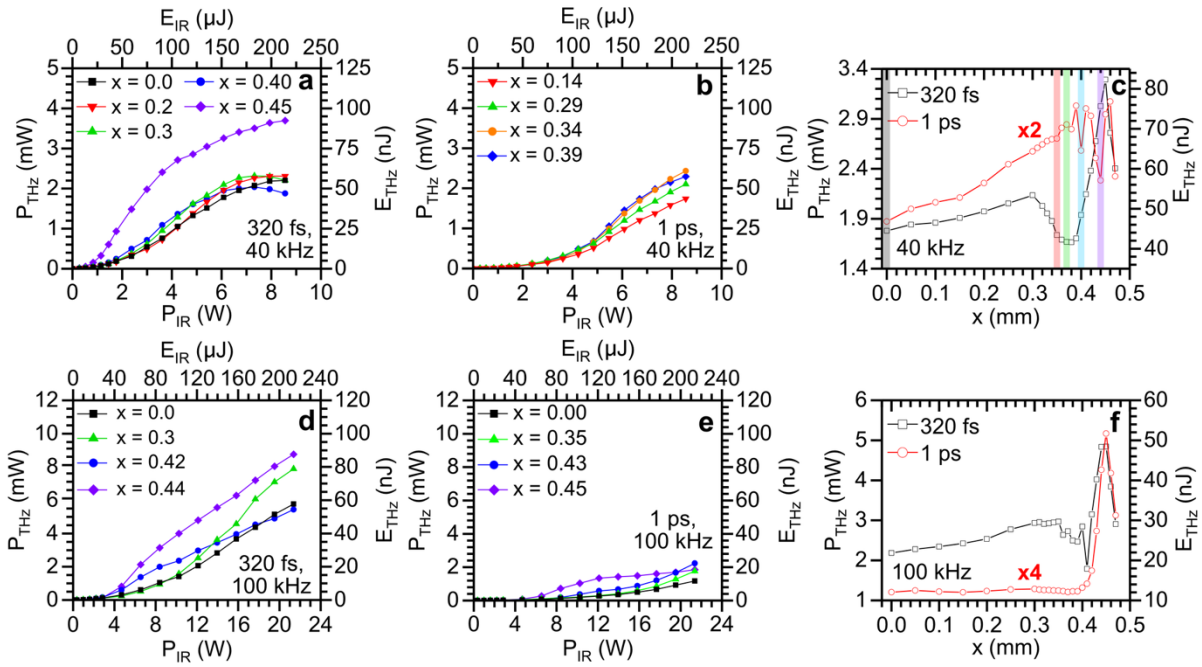


图 2。40 kHz（上）和 100 kHz（下）下发射的太赫兹辐射。(a-b) 测得的太赫兹输出随 1030 nm 红外 (IR) 输入功率的变化，脉冲持续时间分别为 320 fs (a) 和 1 ps (b)。(c) 在 40 kHz 下，测得的太赫兹输出随 $LiNbO_3$ 薄片处 1030 nm 线焦点的 x 位置变化；输入脉冲持续时间为 320 fs（黑色方块）和 1 ps（红色圆圈）。(d-f) 与 (a-c) 相同，但频率为 100 kHz。测得的太赫兹辐射仅针对 $+x$ 切伦科夫脉冲和斩 chopper开启时段进行报告。

在接近 $x \approx 0.38$ mm 处出现局部最小值，这是因为较短的 320 fs 泵浦脉冲（见图2c中的绿色阴影和黑色分布）会产生更宽的太赫兹辐射，且频率越高的成分以越大的内部切伦科夫角发射。部分辐射以超过收集数值孔径的角度离开晶体，导致检测信号减弱。当产生区域位于出射面约一个太赫兹衰减长度以内（$x > 0.40$ mm）时，吸收和反射损耗会大幅降低，使太赫兹场能够直接耦合到自由空间中。这种增强的出耦合效应足以抵消数值孔径收集损耗，从而使检测到的太赫兹能量急剧增加，并使低频和高频成分中的更大比例得以逸出晶体。在晶体边缘（$x = 0.45$ mm）处，发射的太赫兹能量达到 92 nJ，比晶片中心高 67%，对应的转换效率为 4.3×10^{-4}。

在 100 kHz、脉宽为 320 fs 的条件下（见图2d），位置依赖行为依然存在，不过约在 $x = 0.38$ mm 处的下降幅度较小。这表明太赫兹频谱发生了轻微的热诱导软化，随后内部切伦科夫角减小；由此带来的收集效率提升，部分抵消了在 40 kHz 下占主导的角度过填充损耗。即使平均泵浦功率达到 22 W，太赫兹产生仍保持高效，在 100 kHz 下脉冲能量为 54–88 nJ，说明 $LiNbO_3$ 中的光学整流依然稳定，并且可扩展至高重复频率。

为进一步考察频率依赖行为，我们采用更长的 1 ps 泵浦脉冲研究太赫兹产生（见图2b和图2e），实验条件与 Tsarev *et al.*[20] 的条件相近。在 40 kHz 下，较长的 1 ps 脉冲产生了频谱更窄、频率更低的太赫兹辐射，其相干长度更长，内部发射角更小。当产生区域远离晶片中心时，较短的内部传播路径降低了吸收损耗，因此尽管峰值强度较低，出耦合仍保持高效。然而，在靠近出射面处（$x > 0.4$ mm），相互作用体积减小会截断太赫兹场的相干累积，在边界处引入相消干涉，导致探测到的能量急剧下降——这一现象在所有数据集中均一致出现（图2c、f）。总体而言，在 40 kHz 下，采用 1 ps 脉冲产生的太赫兹脉冲能量为 44–61 nJ。

相比之下，在 100 kHz 下使用 1 ps 泵浦脉冲时，太赫兹输出（12–22 nJ）比其他所有测量配置（44–92 nJ）低四倍。这一下降不能单纯归因于脉冲持续时间更长，因为在 40 kHz 下，将脉冲持续时间从 320 fs 增至 1 ps 时，太赫兹产率基本保持不变。100 kHz 下较低的太赫兹转换效率，实际上源于 $LiNbO_3$ 板内的累积热效应（例如太赫兹吸收增加、热透镜效应、热光去相位），这些效应会扭曲相位匹配并限制有效非线性相互作用长度。尽管如此，在 100 kHz 下使用较短的 320 fs 脉冲，仍能高效产生太赫兹，这表明较短脉冲带来的更高峰值强度以及更宽的泵浦带宽，可在热梯度累积之前驱动更强的瞬时非线性极化（即光学整流），凸显了短脉冲激发对于实现高平均功率的重要性。

在$LiNbO_3$ 晶体的选定x位置进行EOS测量（见图2c中的阴影区域），直接证实了根据图2推断的位置相关光谱和时间行为。在晶片中心，太赫兹场呈单周期形态，光谱峰值位于0.52 THz（见图3a-b中的黑色实线分布）。远离晶片中心时，会出现额外振荡和高频分量（见图3b中的灰色斜线），使频率分布变宽，并出现1 THz以上的光谱成分（图3b中的竖直虚线）。在靠近出射面的位置（$x = 0.45$ mm），平均频率升至0.67 THz。尽管太赫兹转换效率在出射面达到最大值，但第一个半周期的振幅与晶片中心产生的振幅相比下降了23%。这不利于基于太赫兹的电子压缩和条纹实验，因为这些实验依赖最陡峭的单周期场来

获得最高的太赫兹场强，从而实现最强的电子偏转。EOS测量证实，在40 kHz下，1 ps的较长脉冲会产生频率较低的单周期太赫兹波形，其中心频率为0.36 THz（见图3a-b中的黑色点线分布），接近Tsarev等人在类似泵浦条件下报道的数值（0.26 THz）。

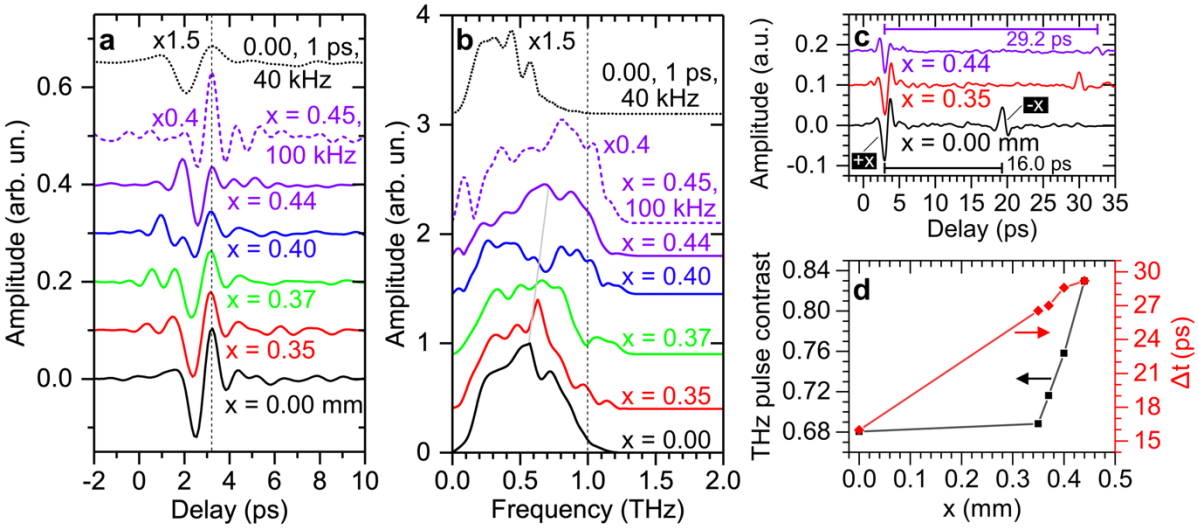


图 3。 发射的太赫兹辐射的电光采样（EOS）测量。(a) 在 40 kHz（实线）和 100 kHz（虚线）下，线焦点位于 $LiNbO_3$ 薄片不同 x 位置时的 EOS 测量结果。图中还显示了 40 kHz 下持续时间为 1 ps 的扫描结果（黑色点线）。(b) 从 (a) 图所示的 EOS 测量结果中提取的频谱。灰色斜线标示了 40 kHz 下中心频率的偏移。黑色竖直虚线标示了 1 THz 及以上的光谱成分。(c) 40 kHz 下，在 $LiNbO_3$ 薄片上选取的三个 x 位置处的 EOS 测量结果，显示了 $+x$ 和 $-x$ 切伦科夫脉冲。两束切伦科夫脉冲之间的时间延迟以水平线段标示。(d) $LiNbO_3$ 薄片上线焦点的 x 位置变化时，$+x$ 至 $-x$ 切伦科夫脉冲的太赫兹脉冲对比度（黑色）以及两束脉冲之间的延迟（红色）。

在 100 kHz 下进行的 EOS测量在出射面附近呈现出类似特征，例如时域和频域中均出现高频分量（见图 3a-b 中的紫色虚线），同时保持了相近的单周期波形。这些观察结果进一步证实，对于 320 fs 的脉冲，提高重复频率不会使波形或其光谱成分劣化。不过，这也表明，转换效率本身并不足以作为性能指标——准确了解时域和频域场结构至关重要。因此，对于基于太赫兹的电子测量，在晶体中心附近产生太赫兹仍是最佳选择。相比之下，对于太赫兹光谱学研究，将产生区域设置在出射面附近可能更有优势，因为这样可以增强高频光谱成分。

还需要注意的是，泵浦脉冲参数也会影响最佳线聚焦几何形状、$LiNbO_3$ 晶片的尺寸，以及 $LiNbO_3$ 晶片中的有效相互作用长度。与 Tsarev 等人[20]（1 ps，300 μJ）相比，我们的脉冲更短、能量更低（320 fs，220 μJ）；根据他们的模型，最佳聚焦参数为 $w_x = 18$ μm 和 $w_y = 22.7$ mm，理想的 $LiNbO_3$ 晶体长度为 2.2 mm，对应的频谱峰值为 0.83 THz。考虑到我们的晶片长度为 10 mm，瑞利长度约束要求采用更松散的聚焦（$w_x = 39 - 46$ μm），以维持相互作用区域内均匀的泵浦强度。这种更宽松的聚焦使太赫兹单周期脉冲持续时间增至 645 fs，并使预测的频谱峰值移至 ~0.50 THz，与在晶体中心（$x = 0.0$ mm）通过 EOS测量得到的 0.52 THz 极为吻合。

在时域中，电光采样数据还显示存在一个次级太赫兹波形，它对应于具有相反相位的 $-x$ 切伦科夫脉冲（见图3c），这一现象

此前 Tsarev 等人曾简要报道过。随着产生区域从晶片中心（x = 0.0 mm）移至出射面（x = 0.44 mm），这一向后发射的太赫兹分量会受到强烈吸收，导致其振幅显著降低。与此同时，$+x$ 与$-x$ 切伦科夫脉冲之间的时间延迟从 16.0 ps 增至 29.2 ps（图 3d 中的红色分布）。相应的太赫兹脉冲对比度定义为$+x$ 与$-x$ 切伦科夫脉冲振幅之比，在达到 $x =$ 0 35 ~0 83 . mm 之前基本保持恒定（~0.68）；超过该位置后，对比度急剧上升（.），这证实了当产生位置接近$+x$ 切伦科夫出射面时，反射的$-x$ 切伦科夫脉冲会逐渐衰减。

对 100 kHz 太赫兹辐射进行的光束剖面测量（图 4）显示，晶片中心处的半高全宽直径为 1.15 mm（见图 4a 插图），而靠近出射面处缩小至 0.67 mm（见图 4b 插图）；这与高频分量增加、从而使聚焦更紧密的情况一致。根据测得的太赫兹脉冲能量和光束腰，估算空气中的峰值电场强度[20] 在中心处最高可达 37 千伏/厘米，在出射面附近最高可达 90 千伏/厘米。这些数值高于 Tsarev 等人在 0.265 太赫兹源中报告的 30 千伏/厘米，这主要是因为我们的太赫兹频率更高，能够在脉冲能量相当的情况下实现更紧密的聚焦，而且我们的太赫兹源可提供能量更高的单周期脉冲，同时不损失时间保真度。

光束质量 M^2 测量结果进一步证实了这些发现。晶片中心处的太赫兹辐射（见图 4）测得 $M_x^2 = 1.34$ 和 $M_y^2 = 1.73$（图 4a），在出射面附近则改善至 $M_x^2 = 1.02$ 和 $M_y^2 = 1.15$（图 4b）。较低的 M^2 值表明光束更接近类高斯太赫兹光束，且像散减小；这与图 4b 所示更对称的空间分布一致，其光束质量接近衍射极限。这一改善归因于出射面处传播距离缩短且内部反射减少，从而抑制了晶体内累积的波前畸变和角度色散。

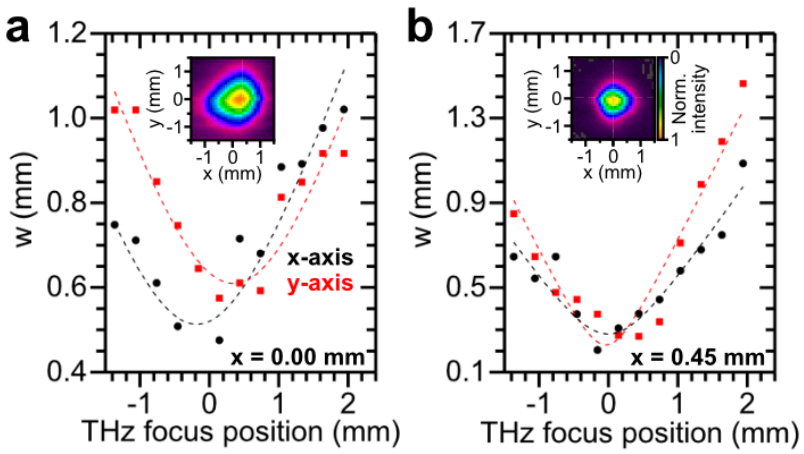


图 4。 (a-b) 在 $LiNbO_3$ 晶片中心 (a) 和靠近出射面 (b) 处测得的太赫兹辐射光束剖面及 M^2 测量结果，分别沿 x 轴（黑色）和 y 轴（红色）测量。图中显示测量值（方形、圆形）和拟合值（虚线）对应的 $1/e^2$ 半径，并嵌入了太赫兹焦点位置处的光束剖面图像。

总的来说，电光采样和光束剖面测量表明，所发射太赫兹场的时间、光谱和空间特性对 $LiNbO_3$ 晶片内的产生位置十分敏感。在出射面附近产生太赫兹辐射可通过改善出耦合来提高带宽和转换效率；而在晶片中心产生的单周期场峰值振幅更高，有利于太赫兹驱动电子压缩和条纹成像。这种场强与带宽之间的权衡凸显了 $LiNbO_3$ 源的可调谐性及其扩展至高平均功率的潜力。

基于这些结果，接下来我们将使用同一基于镱的激光平台，通过级联四次谐波产生（FHG）研究紫外辐射的产生，将高重复频率非线性转换的研究拓展至相关光子能量范围，以适用于

电子脉冲的光发射和样品激发，尤其适用于高重复频率超快电子衍射（UED）。

紫外辐射的四次谐波产生

图5a展示了对应于1030 nm处四次谐波产生的级联两级二次谐波产生方案。1030 nm基频脉冲（<60 mW，<1.5 μJ，320 fs）通过一台1:1开普勒望远镜，焦点处放置一块BBO晶体（直径为<30 μm 1/e^2），用于I类二次谐波产生（θ = 23.4°），生成515 nm辐射。谐波分离器反射剩余的1030 nm光，同时透射515 nm光束，使其进入第二台1:1开普勒望远镜；其中第二块BBO晶体产生257.5 nm辐射的I类二次谐波。紫外输出由紫外谐波分离器分离，并由紫外高反射镜引导至诊断设备。图5b–d展示了测得的1030 nm、515 nm和257.5 nm光束的光谱及空间分布。光谱测得的1030 nm、515 nm和257.5 nm处半高全宽带宽分别为5.6 nm、1.75 nm和0.68 nm，对应的傅里叶变换极限（FTL）脉冲时长分别为280 fs、225 fs和144 fs，与每级二次谐波产生中预期的$\sqrt{2}$ 脉冲展宽一致。

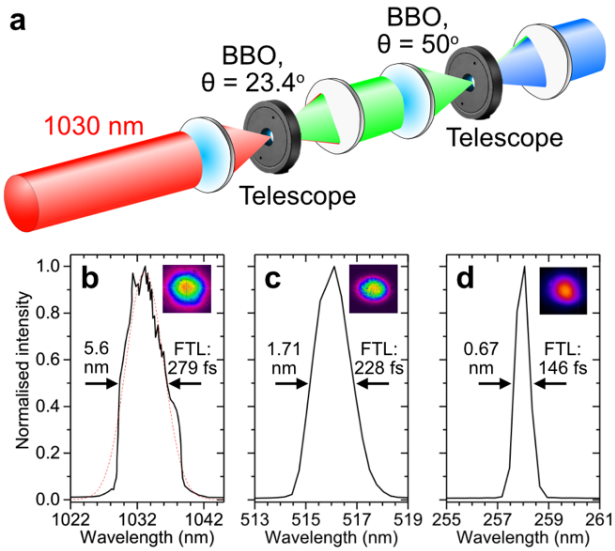


图 5。 紫外辐射的四次谐波产生（FHG）。（a）级联 FHG 装置示意图。（b-d）1030 nm、515 nm 和 257.5 nm 光束的光谱和光束轮廓，并标出了其半高全宽带宽和傅里叶变换极限（FTL）脉冲持续时间。光谱的高斯拟合以红色点线分布表示。

图 6 总结了 40 kHz 至 600 kHz 下的四次谐波产生（FHG）。在红外（IR）功率较低时，紫外输出随功率增加而上升，并在约 55 mW 时趋于饱和（见图 6a）。随着重复频率逐级提高，最大紫外脉冲能量约每级降低一个数量级（见图 6b），在 40 kHz 时为 10–100 nJ，在 100 kHz 时为 >10 nJ，在 200 kHz 时为 >2 nJ，在 600 kHz 时为 >50 pJ。该能量范围符合超快电子衍射（UED）的光发射要求：1 pJ–10 nJ 足以产生含有 1–10^6 个电子的电子束团。[8] 即使在 200 kHz 和 600 kHz 下，也能获得可用的束团电荷（分别为 >10^5 和 >5,000 个电子[8]），这证明了最高达 600 kHz 的高重复频率 UED 运行具有可行性；对于电子束中每个脉冲含有超过 100 个电子的 UED 应用，这一点尤为重要。在 40 kHz 下，四次谐波转换效率最高，超过 10%；在 100 kHz、200 kHz 和 600 kHz 下，则分别降至 <3%、<1% 和 <0.1%。所有重复频率下的最高效率均出现在 ~55 mW 红外功率处，这表明 BBO晶体中的热效应限制了相位匹配。在更高功率下，基频辐射与谐波辐射之间的反向转换会降低转换效率，

正如高强度二次谐波产生（SHG）和四次谐波产生（FHG）过程中所预期的那样，强烈的谐波累积会导致能量再转换。[49]

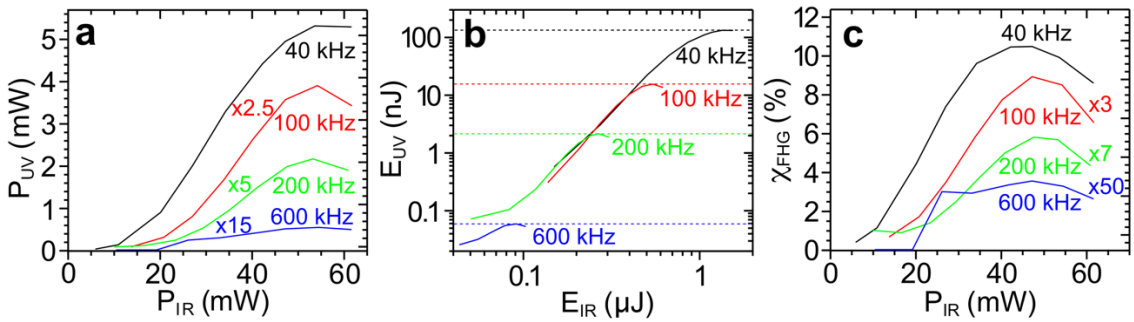


图 6。通过四次谐波产生（FHG）发射的紫外辐射。(a) 不同重复频率下，测得的紫外功率随 1030 nm 红外功率的变化。(b) 相应的紫外脉冲能量随红外脉冲能量的变化。(c) 四次谐波转换效率随红外功率的变化。

这种级联四次谐波产生方案为直接从镱激光平台生成紫外脉冲提供了一种紧凑、低复杂度的途径，尤其适用于基频波长为 1030 nm 的情况。所展示的低能量四次谐波产生级能够稳定地产生 nJ–pJ 量级的脉冲，适用于超快电子衍射中的光发射。通过对高能基频脉冲下的热管理、光束尺寸、聚焦、群延迟色散及 BBO晶体厚度进行审慎管理和优化，可将这一四次谐波产生方案扩展至 μJ 级紫外光生成；这将是未来的研究方向。

结论

总之，我们展示了由基于镱的飞秒激光系统驱动的太赫兹辐射和紫外辐射的可扩展高重复频率生成。利用 $LiNbO_3$ 中的光学整流实现最高 100 kHz 的重复频率，并通过级联四次谐波产生实现 600 kHz 的重复频率，这证实了高效非线性转换可在比大多数超快电子衍射系统高两到三个数量级的重复频率下实现；这些系统以每脉冲超过 100 个电子的电子束作为探测束。太赫兹场提供时间压缩和条纹成像所需的场强，而紫外脉冲则提供光发射和激发所需的光子能量。通过适当的热管理和晶体优化，实现 μJ 级紫外光生成已指日可待。这些结果为新一代高通量超快电子衍射系统指明了清晰的发展路径：以每秒数万至数十万次的重复频率运行，达到低于 100 fs 的分辨率，并实现阿托库仑至皮库仑级的束团电荷。

致谢

我们感谢欧洲研究理事会为 ERC启动基金“TERES”（资助编号：101165245）及 Lasers4EU（资助编号：101131771，项目编号：37011）提供资金支持。我们感谢 Peter Baum、Joel Kuttruff、Roman Peslin、Wolfgang Krueger、Michael Woerner、Thomas Elsaesser、Arnaud Rouzèe 和 Marc J. J. Vrakking 提供支持。

作者声明

利益冲突

作者没有需要披露的利益冲突。

作者贡献

Andrey Ryabov 和 Kasra Amini 参与了这项工作的所有方面。

数据可用性

本文所报告结果的相关数据目前尚未公开，但可应合理请求向作者索取。

参考文献

[1] S. Fleischer、Y. Zhou、R.W. Field 和 K.A. Nelson，《强单周期太赫兹脉冲诱导的分子取向与排列》，Phys. Rev. Lett. **107**(16), 163603 (2011)。[2] M. Centurion、T.J.A. Wolf 和 J. Yang，《利用电子衍射对分子进行超快成像》，《年度物理化学评论》**73**(1), 21–42 (2022)。[3] P. Zalden、L. Song、X. Wu、H. Huang、F. Ahr、O.D. Mücke、J. Reichert、M. Thorwart、P.K. Mishra、R. Welsch、R. Santra、F.X. Kärtner 和 C. Bressler，《太赫兹诱导的瞬态取向揭示液态水的分子极化率各向异性》，《自然·通讯》**9**(1), 2142 (2018)。[4] T. Elsaesser、K. Reimann 和 M. Woerner，《非线性太赫兹光谱学的概念与应用，第二版》（IOP Publishing，2024）。[5] C. Consani、G. Auböck、F. van Mourik 和 M. Chergui，《紫外二维光谱学揭示肌红蛋白中的超快色氨酸到血红素的电子转移》，《科学》**339**(6127), 1586–1589 (2013)。[6] S. Zhong，《太赫兹无损检测进展：综述》，《机械工程前沿》**14**(3), 273–281 (2019)。[7] D. Filippetto、P. Musumeci、R.K. Li、B.J. Siwick、M.R. Otto、M. Centurion 和 J.P.F. Nunes，《超快电子衍射：观测物质的动态状态》，《现代物理评论》**94**(4), 045004 (2022)。[8] F.R. Diaz、M. Mero 和 K. Amini，《采用直接电子探测的高重复频率超快电子衍射》，Struct. Dyn. **11**(5), 054302 (2024)。[9] C. Kealhofer、W. Schneider、D. Ehberger、A. Ryabov、F. Krausz 和 P. Baum，《电子脉冲的全光控制与计量》，《科学》**352**(6284), 429–433 (2016)。[10] T. Nagy、S. Hädrich、P. Simon、A. Blumenstein、N. Walther、R. Klas、J. Buldt、H. Stark、S. Breitkopf、P. Jójárt、I. Seres、Z. Várallyay、T. Eidam 和 J. Limpert，《产生平均功率为318 W的三周期毫焦耳级激光脉冲》，Optica，**6**(11), 1423–1424 (2019)。[11] S. Hädrich、E. Shestaev、M. Tschernajew、F. Stutzki、N. Walther、F. Just、M. Kienel、I. Seres、P. Jójárt、Z. Bengery、B. Gilicze、Z. Várallyay、Á. Börzsönyi、M. Müller、C. Grebing、A. Klenke、D. Hoff、G.G. Paulus、T. Eidam 和 J. Limpert，《载波包络相位稳定的少周期激光系统，可输出功率超过100 W、能量为1 mJ、少于两个周期的脉冲》，《光学快报》，**47**(6), 1537–1540 (2022)。[12] F.J. Furch、T. Witting、M. Osolodkov、F. Schell、C.P. Schulz 和 M.J. J Vrakking，《用于阿秒科学的高功率、高重复频率激光光源》，J. Phys. Photonics **4**(3), 032001 (2022)。[13] E. Shestaev、S. Hädrich、N. Walther、T. Eidam、A. Klenke、I. Seres、Z. Bengery、P. Jójárt、Z. Várallyay、Á. Börzsönyi 和 J. Limpert，《载波包络偏移稳定的相干合成掺镱光纤啁啾脉冲放大器，平均功率达1 kW》，《光学快报》，**45**(23), 6350–6353 (2020)。[14] Y. Pfaff、G. Barbiero、M. Rampp、S. Klingebiel、J. Brons、C.Y. Teisset、H. Wang、R. Jung、J. Jaksic、A.H. Woldegeorgis、M. Trunk、A.R. Maier、C.J. Saraceno 和 T. Metzger，《200 mJ、1 kW超快薄盘放大器的非线性脉冲压缩》，《光学快报》，**31**(14), 22740–22756 (2023)。[15] M. Müller、C. Aleshire、A. Klenke、E. Haddad、F. Légaré、A. Tünnermann 和 J. Limpert，《10.4 kW相干合成超快光纤激光器》，《光学快报》，OL **45**(11), 3083–3086 (2020)。[16] M. Müller、J. Buldt、H. Stark、C. Grebing 和 J. Limpert，《用于高功率少周期脉冲压缩的多程池》，《光学快报》，**46**(11), 2678–2681 (2021)。[17] M. Theuer、G. Torosyan、C. Rau、R. Beigang、K. Maki、C. Otani 和 K. Kawase，《利用硅棱镜输出耦合器从铌酸锂晶体高效产生切伦科夫型太赫兹辐射》，《应用物理快报》**88**(7), 071122 (2006)。

[18] S.-W. Huang、E. Granados、W.R. Huang、K.-H. Hong、L.E. Zapata 和 F.X. Kärtner，《在低温冷却的铌酸锂中通过光学整流实现高转换效率、高能量太赫兹脉冲》，《光学快报》，**38**(5), 796–798 (2013)。[19] K. Ravi、W.R. Huang、S. Carbajo、E.A. Nanni、D.N. Schimpf、E.P. Ippen 和 F.X. Kärtner，《利用倾斜脉冲前沿通过光学整流产生太赫兹辐射的理论》，《光学快报》，**23**(4), 5253–5276 (2015)。[20] M.V. Tsarev、D. Ehberger 和 P. Baum，《利用带硅输出耦合器的铌酸锂薄片产生高平均功率强太赫兹脉冲》，《应用物理 B》**122**(2), 30 (2016)。[21] F. Meyer、N. Hekmat、S. Mansourzadeh、F. Fobbe、F. Aslani、M. Hoffmann 和 C.J. Saraceno，《对平均功率为100 W的锁模薄盘振荡器进行光学整流》，《光学快报》，**43**(24), 5909–5912 (2018)。[22] F. Meyer、T. Vogel、S. Ahmed 和 C.J. Saraceno，《单周期、兆赫兹重复频率、平均功率为66 mW的太赫兹源》，《光学快报》，**45**(9), 2494–2497 (2020)。[23] T.O. Buchmann、E.J.R. Kelleher、K.J. Kaltenecker、B. Zhou、S.-H. Lee、O.-P. Kwon、M. Jazbinsek、F. Rotermund 和 P.U. Jepsen，《在HMQ-TMS中以兆赫兹重复频率产生亚毫瓦、多倍频程太赫兹波》，《光学快报》，**28**(7), 9631–9641 (2020)。[24] P.L. Kramer、M.K.R. Windeler、K. Mecseki、E.G. Champenois、M.C. Hoffmann 和 F. Tavella，《利用千瓦级、亚100飞秒激光源推动高重复频率非线性太赫兹科学》，《光学快报》，**28**(11), 16951–16967 (2020)。[25] L. Wang、G. Tóth、J. Hebling 和 F. Kärtner，《用于太赫兹产生的倾斜脉冲前沿方案》，《激光与光子学评论》**14**(7), 2000021 (2020)。[26] S. Mansourzadeh、T. Vogel、M. Shalaby、F. Wulf 和 C.J. Saraceno，《利用带金刚石基底的有机晶体BNA实现毫瓦级平均功率、兆赫兹重复频率的宽带太赫兹产生》，《光学快报》，**29**(24), 38946–38957 (2021)。[27] C. Millon、S. Houver 和 C.J. Saraceno，《由紧凑型工业镱激光器驱动、平均功率为24 mW的400 kHz重复频率太赫兹时域光谱系统》，《光学快报》，**31**(5), 7922–7932 (2023)。[28] Y. Wang、T. Vogel、M. Khalili、S. Mansourzadeh、K. Hasse、S. Suntsov、D. Kip 和 C.J. Saraceno，《利用薄铌酸锂进行高功率腔内单周期太赫兹脉冲产生》，Optica，**10**(12), 1719–1722 (2023)。[29] T. Vogel、S. Mansourzadeh 和 C.J. Saraceno，《基于铌酸锂倾斜脉冲前沿的单周期、643毫瓦平均功率太赫兹源》，《光学快报》，**49**(16), 4517–4520 (2024)。[30] R. Löscher、T. Vogel、S. Mansourzadeh、M. Khalili、A. Omar、Y. Wang、M. Hoffmann 和 C.J. Saraceno，《高平均功率激光驱动少周期太赫兹源》，arXiv，(2025)。[31] J.A. Fülöp、Z. Ollmann、C. Lombosi、C. Skrobol、S. Klingebiel、L. Pálfalvi、F. Krausz、S. Karsch 和 J. Hebling，《高效产生能量为0.4毫焦耳的太赫兹脉冲》，《光学快报》，**22**(17), 20155–20163 (2014)。[32] K. Ravi、W.R. Huang、S. Carbajo、X. Wu 和 F. Kärtner，《利用倾斜脉冲前沿通过光学整流产生太赫兹辐射的限制》，《光学快报》，**22**(17), 20239–20251 (2014)。[33] J. Ringling、O. Kittelmann 和 F. Noack，《通过非线性光学晶体中的频率混合，高效产生用于氟化氩增益模块放大的193纳米亚皮秒种子脉冲》，《光学快报》，**17**(24), 1794–1796 (1992)。[34] J. Ringling、O. Kittelmann、F. Noack、G. Korn 和 J. Squier，《通过放大的钛宝石激光脉冲进行频率转换，产生可调谐的近真空紫外飞秒脉冲》，《光学快报》，**18**(23), 2035–2037 (1993)。[35] F. Rotermund 和 V. Petrov，《飞秒钛宝石激光器的四次谐波产生》，Optics Letters，第23卷，第13期，1040-1042，（1998）。[36] M. Galli、V. Wanie、D.P. Lopes、E.P. Månsson、A. Trabattoni、L. Colaizzi、K. Saraswathula、A. Cartella、F. Frassetto、L. Poletto、F. Légaré、S. Stagira、M. Nisoli、R.M. Vázquez、R. Osellame 和 F. Calegari，《深紫外亚2飞秒脉冲的产生》，《光学快报》，**44**(6), 1308–1311 (2019)。[37] V. Wanie、P. Barbato、J. Hahne、S. Ryabchuk、A.B. Wahid、D. Amorim、E.P. Månsson、A. Trabattoni、R. Osellame、R. Martínez Vázquez 和 F. Calegari，《紫外超连续谱

采用差分泵浦集成玻璃芯片实现生成，” J. Phys. Photonics **6**(2), 025005 (2024年). [38] N.Y. Joly, “利用氩气填充光子晶体光纤实现明亮的空间相干可调波长深紫外激光源，” Phys. Rev. Lett. **106**(20), (2011年). [39] F. Köttig, F. Tani, C.M. Biersach, J.C. Travers, 和 P.S.J. Russell, “在兆赫重复频率下生成微焦耳级深紫外脉冲，” Optica, **4**(10), 1272–1276 (2017年). [40] J.C. Travers, T.F. Grigorova, C. Brahms, 和 F. Belli, “通过中空毛细管光纤中的孤子动力学生成高能自压缩脉冲和紫外光，” Nat. Photonics **13**(8), 547–554 (2019年). [41] C. Brahms, 和 J.C. Travers, “高效紧凑的可调谐超快深紫外激光脉冲光源，重复频率为50千赫，”《光学快报》，**48**(1), 151–154 (2023年). [42] C.G. Durfee, S. Backus, M.M. Murnane, 和 H.C. Kapteyn, “利用导波实现紫外波段超宽带相位匹配光学参量生成，”《光学快报》，**22**(20), 1565–1567 (1997年). [43] M. Ghotbi, P. Trabs, M. Beutler, 和 F. Noack, “通过非共线四波混频生成可调谐的小于45飞秒的脉冲，”《光学快报》，**38**(4), 486–488 (2013年). [44] H. Turcicova, O. Novak, L. Roskot, M. Smrz, J. Muzik, M. Chyla, A. Endo, 和 T. Mocek, “皮秒二极管泵浦薄盘激光器产生的257纳米和206纳米深紫外辐射的新观察结果，”《光学快报》，**27**(17), 24286–24299 (2019年). [45] B. Willenberg, F. Brunner, C.R. Phillips, 和 U. Keller, “通过群速度匹配频率转换获得的高功率皮秒深紫外光源，” Optica, **7**(5), 485–491 (2020年). [46] M. Volkov, E. Willinger, D.A. Kuznetsov, C.R. Müller, A. Fedorov, 和 P. Baum, “Ti3C2Tx MXene中的光开关纳米波纹，” ACS Nano **15**(9), 14071–14079 (2021年). [47] K.M. Siddiqui, D.B. Durham, F. Cropp, F. Ji, S. Paiagua, C. Ophus, N.C. Andresen, L. Jin, J. Wu, S. Wang, X. Zhang, W. You, M. Murnane, M. Centurion, X. Wang, D.S. Slaughter, R.A. Kaindl, P. Musumeci, A.M. Minor, 和 D. Filippetto, “高重复频率下的相对论性超快电子衍射，” Struct. Dyn. **10**(6), 064302 (2023年). [48] C.J.R. Duncan, M. Kaemingk, W.H. Li, M.B. Andorf, A.C. Bartnik, A. Galdi, M. Gordon, C.A. Pennington, I.V. Bazarov, H.J. Zeng, F. Liu, D. Luo, A. Sood, A.M. Lindenberg, M.W. Tate, D.A. Muller, J. Thom-Levy, S.M. Gruner, 和 J.M. Maxson, “多尺度时间分辨电子衍射：莫尔材料案例研究，” Ultramicroscopy **253**, 113771 (2023年). [49] J. Xu, J. Guo, Z. Gao, P. Xue, Z. Tu, J. Li, L. Guo, 和 X. Liang, “飞秒二次谐波产生中的时空演化与反转换，”《光学快报》，**33**(14), 29111–29117 (2025年).