

非线性克尔效应对飞秒激光偏振的超快调制

林贤 金钻明 李炬赓 郭飞云 庄乃锋 陈建中 戴晔 阎晓娜 马国宏

Ultrafast polarization modulation of laser pulses at terahertz frequencies via optical Kerr effect

Lin Xian Jin Zuan-Ming Li Ju-Geng Guo Fei-Yun Zhuang Nai-Feng Chen Jian-Zhong Dai Ye Yan Xiao-Na Ma Guo-Hong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 237801 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20181450

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20181450>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I23>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

基于磁圆二向色谱的单层 MoS_2 激子能量和线宽温度依赖特性

Temperature dependent excitonic transition energies and linewidths of monolayer MoS_2 probed by magnetic circular dichroism spectroscopy

物理学报.2018, 67(14): 147801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180615>

量子相干态的二维电子光谱测量的原理、应用和发展

Quantum coherence measurement with femtosecond time-resolve two-dimensional electronic spectroscopy: principles, applications and outlook

物理学报.2018, 67(12): 127801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180783>

晶格失配应力对单晶 $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ 膜磁畴结构的影响

Effect of lattice mismatch stress on magnetic domain of epitaxial single crystal $(\text{BiTm})_3(\text{GaFe})_5\text{O}_{12}$ film

物理学报.2018, 67(11): 117801 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180192>

应用双非简并四波混频理论研究原子的碰撞效应

Theoretical study of atom collision by two-nondegenerate four-wave mixing

物理学报.2016, 65(15): 154206 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.154206>

室温下 CdSe 胶体量子点超快自旋动力学

Room-temperature ultrafast spin dynamics in colloidal CdSe quantum dots

物理学报.2012, 61(20): 207202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.207202>

非线性克尔效应对飞秒激光偏振的超快调制*

林贤¹⁾ 金钻明^{1)2)†} 李炬赓¹⁾ 郭飞云³⁾ 庄乃锋³⁾ 陈建中³⁾
戴晔¹⁾ 阎晓娜¹⁾ 马国宏^{1)2)‡}

1) (上海大学物理系, 上海 200444)

2) (上海光机所-上海科技大学超强超短激光及其应用联合实验室, 上海 201210)

3) (福州大学化学化工学院, 福州 350002)

(2018年7月30日收到; 2018年10月1日收到修改稿)

研究了近红外飞秒激光的偏振在太赫兹频率的超快调制. 利用抽运-探测光谱技术, 通过改变两个脉冲之间的延迟时间可以控制光脉冲的旋转角. 在Li:NaTb(WO₄)₂磁光晶体中观察到探测光的偏振随延迟时间变化的高速振荡, 振荡信号的中心频率为0.19 THz. 这种超快偏振调制现象可以解释为, 抽运-探测实验构置中, 前向传播的抽运光诱导的光学克尔非线性引起被晶体远端表面所反射的背向传播的探测光脉冲偏振面的额外旋转. 通过改变抽运光的圆偏振旋性可以控制探测光调制信号的相位和振幅. 实验结果表明, 非线性光学克尔效应可以作为一种全新的手段, 在磁光晶体中实现近红外飞秒激光以太赫兹频率的超快偏振调控. 这将在超快磁光调制器等全光器件中得以应用. 实验结果将有助于偏振依赖的超快动力学过程的研究.

关键词: 超快光谱, 克尔效应, 磁光效应, 太赫兹

PACS: 78.47.J-, 42.65.Hw, 78.20.Ls, 95.85.Gn

DOI: 10.7498/aps.67.20181450

1 引言

光的偏振描述的是光波中电场的振荡方向. 控制光的偏振不仅蕴含丰富的物理意义, 而且具有技术上的应用价值. 比如, 由正交线偏振片组成的3维(3D)眼镜可以让我们的眼睛同时接受两个稍有不同图像, 从而形成具有表现深度的场景. 随着超短激光脉冲的发展, 以超高速主动控制光的偏振也取得了显著的进展^[1-4]. 在亚纳秒时间尺度上的电光偏振调制器已经广泛地应用于光纤通信领域^[5]. 最近, Yang等^[6]通过超薄半导体层的带内光学激发实现了飞秒脉冲的偏振开关. 该技术中最关键的两点是: 1) 对某一种偏振具有完美吸收; 2) 对等离子共振频率可实现超快调制^[6,7].

控制光的偏振, 除了电光调制, 还有磁光调制.

法拉第效应在磁光调制器和隔离器中的广泛应用, 长期以来一直是磁光学的标志^[8]. 法拉第效应成功解释了线偏振光经过磁光晶体时, 线偏振面发生旋转的现象. 通常认为, 线偏振光由右旋和左旋圆偏振光叠加而成. 相反的圆偏振光在磁光晶体中以不同的速度传播, 两者的相位延迟导致出射的线偏振光的偏振方向发生旋转^[9]. 同样有趣的是逆法拉第效应, 即一个强的圆偏振光诱导材料产生有效磁化强度. 逆法拉第效应类似于受激拉曼散射, 涉及材料中光的非弹性散射^[10,11]. Kimel等^[10]利用圆偏振飞秒激光脉冲的逆法拉第效应, 实现了非热、相干地操纵材料系统的磁化矢量. 超短脉冲激光对电子自旋的动态控制引起了人们的广泛关注^[12-16]. 研究动机是其在超快时间尺度上, 在高密度数据存储、自旋电子学和量子计算等领域有潜在的应用前景.

* 国家自然科学基金(批准号:11604202, 11674213, 61735010, 11774220)、上海高校青年东方学者(批准号: QD2015020)、上海市教育委员会和上海市教育发展基金会“晨光计划”(批准号: 16CG45)和上海市青年科技启明星计划(批准号: 18QA1401700)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: physics_jzm@shu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: ghma@staff.shu.edu.cn

目前主要有两种方法实现超快磁光调制. 一种是直接方法, 通过时间上变化的磁场来改变光的偏振方向. 目前而言, 最短的磁场脉冲可由自由空间传播的太赫兹 (THz) 脉冲来获得, 具有宽带光谱的 THz 脉冲已经被证实可以直接与铁磁金属的磁化耦合, 从而改变光的偏振方向^[17,18]. 此外, Riordan 等^[19]利用磁光晶体铽镓石榴石 (terbium gallium garnet, TGG) 作为磁光取样晶体, 实验测量的是自由空间传播的 THz 脉冲的磁场分量. 另一种则是间接方法实现高频的准单色调制, 即飞秒激光或者 THz 脉冲激发电子、晶格或自旋共振, 并以共振频率实现光偏振态的超快调制^[20–24]. 其中典型的例子是, 利用 THz 脉冲的磁场分量通过瞬态 Zeeman 转矩与 NiO 单晶的基态自旋相互作用, 调制频率约为 1 THz^[20].

最近, Kim 等^[25]的研究表明, 由脉冲应力所产生的光学不均一性的传播将产生所谓的激光诱导声学孤子. 这种情况下, 法拉第信号的调制频率由声波的传播速度决定, 处在 GHz 频段^[26]. 然而, 光通信和光电子学的快速发展需要材料的光学特性以更快的速度调制, 且有更高的调制频率.

2016 年, Subkhangulov 等^[27]的实验发现, 基于非线性光学克尔效应, 强的激光可以产生以相对论速度运动的光学不均一性, 即诱导产生线二向色性. 利用以激光脉冲群速度移动的线二向色性, 探测光脉冲偏振态的调制频率可达 THz 频段^[27,28]. Mikhaylovskiy 等^[29]发现在法拉第旋光晶体 $\text{Tb}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ 中, 在外加磁场和极低温度 ($T = 1.9 \text{ K}$) 条件下, 强的线偏振抽运光通过非线性光学克尔效应, 可以实现相对方向传播的探测光偏振态的单频 THz 调制.

本文中, 在室温条件下, 使用圆偏振飞秒抽运光在磁光晶体 $\text{LiNaTb}(\text{WO}_4)_2$ 中诱导的克尔非线性, 实现了探测光脉冲在 THz 频率的偏振调控. 通过改变圆偏振抽运光的偏振态 (从左旋圆偏振光逐渐变换到右旋圆偏振光), 可以调控调制信号的大小, 并实现相位反转. 此外, 我们的实验结果表明在透明介质的抽运-探测光谱实验中, 光脉冲的传播效应将起到重要的作用.

2 实验描述

我们通过固相合成法合成了多晶原料, 并采用高温提拉法 (Czochralski 法) 生长了 Li^+ 掺杂

的 $\text{LiNaTb}(\text{WO}_4)_2$ 晶体^[30]. Li^+ 掺杂浓度为 18%, 生长方向为 c 轴, 提拉速度为 1.5 mm/h, 晶体的转速为 10 r/min, 退火时间 44 h, 晶体照片如图 1 插图所示. $\text{LiNaTb}(\text{WO}_4)_2$ 晶体的晶胞参数为 $a = 0.523 \text{ nm}$, $b = 0.523 \text{ nm}$, $c = 1.137 \text{ nm}$. 如图 1 所示, 该晶体在可见光波段具有极高的透明度.

先前的研究工作表明, $\text{LiNaTb}(\text{WO}_4)_2$ 是一个顺磁性磁光晶体, 该晶体在 532 nm 处的法拉第旋转角为 $-146.73^\circ/\text{cm}$, 费尔德常数为 $-216.5 \text{ rad}/(\text{m}\cdot\text{T})$. 该晶体具有与 TGG 相比拟的磁光性能, 可以用作法拉第隔离器的磁光材料^[31].

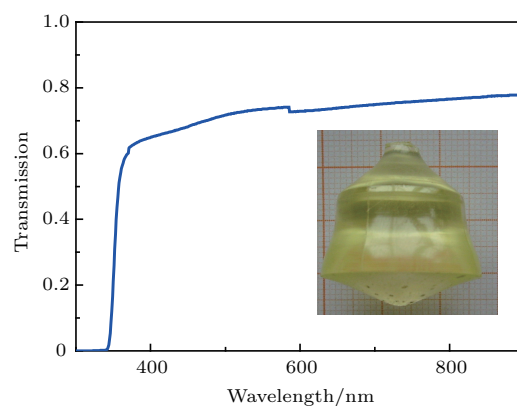


图 1 $\text{LiNaTb}(\text{WO}_4)_2$ 磁光晶体在可见光波段的透过率光谱, 晶体照片如插图所示

Fig. 1. Transmission spectrum of $\text{LiNaTb}(\text{WO}_4)_2$ at room temperature. Inset: the crystal of $\text{LiNaTb}(\text{WO}_4)_2$.

时间分辨的抽运-探测光谱系统如图 2(a) 所示. 我们使用的是钛蓝宝石激光再生放大器, 脉冲宽度 120 fs, 中心波长为 800 nm, 脉冲的重复频率 1 kHz. 抽运光和探测光的中心波长都为 800 nm (1.55 eV). 抽运光和探测光同时聚焦到样品的同一点上, 抽运光光斑的直径约为 200 μm , 探测光光斑全部包含在抽运光光斑内. 抽运和探测激光脉冲在入射到样品表面时存在一个约为 20° 的夹角, 因为晶体厚度较小, 抽运和探测光在晶体内部可以近似认为共线传播. 反射的抽运与探测光会自行分开. 实验中, 我们用光阑挡住反射的抽运光脉冲, 只让探测脉冲进入探测器. 探测光强远远小于抽运光强, 强度比大于 10. 利用四分之一波片, 可以变换抽运光的偏振态 (左旋、右旋圆偏振或线偏振光), 而探测光始终保持为线偏振. 探测光的偏振态变化由光电二极管组成的光学平衡桥和锁相放大器检测. 实验中对抽运光使用 500 Hz 的斩波频率以提高信噪比. 所有的实验均在室温下进行.

3 实验结果与讨论

图 2(b) 和图 2(c) 分别展示的是典型的时间分辨抽运光诱导探测光的克尔椭圆率和旋转角信号. 通过在抽运光路上放置的四分之一波片来改变入射抽运光的偏振态. 如图 2 所示, $\psi = 45^\circ$ 和 $\psi = 135^\circ$ 分别代表抽运光为右旋和左旋圆偏振光, 而 $\psi = 95^\circ$ 代表抽运光几乎为线偏振光.

首先可以看到, 椭圆偏振光可以诱导克尔旋转

角和椭圆率信号在负延迟时间出现振荡, 而线偏振抽运光激发的振荡信号不明显. 不同椭圆偏振态的抽运光作用下, 光诱导椭圆率和旋转角的振荡调制信号的振幅和相位随抽运光偏振态的变化而变化. 当抽运光为左旋圆偏振和右旋圆偏振态时, 振荡调制信号的振幅最大. 此外, 值得注意的是, 圆偏振抽运光诱导的振荡调制信号只存在于有限的时间窗口 (-40 — 0 ps), 且为单频振荡. 该振荡所在的时间窗口宽度约为 40 ps, 振荡在时间窗口外消失.

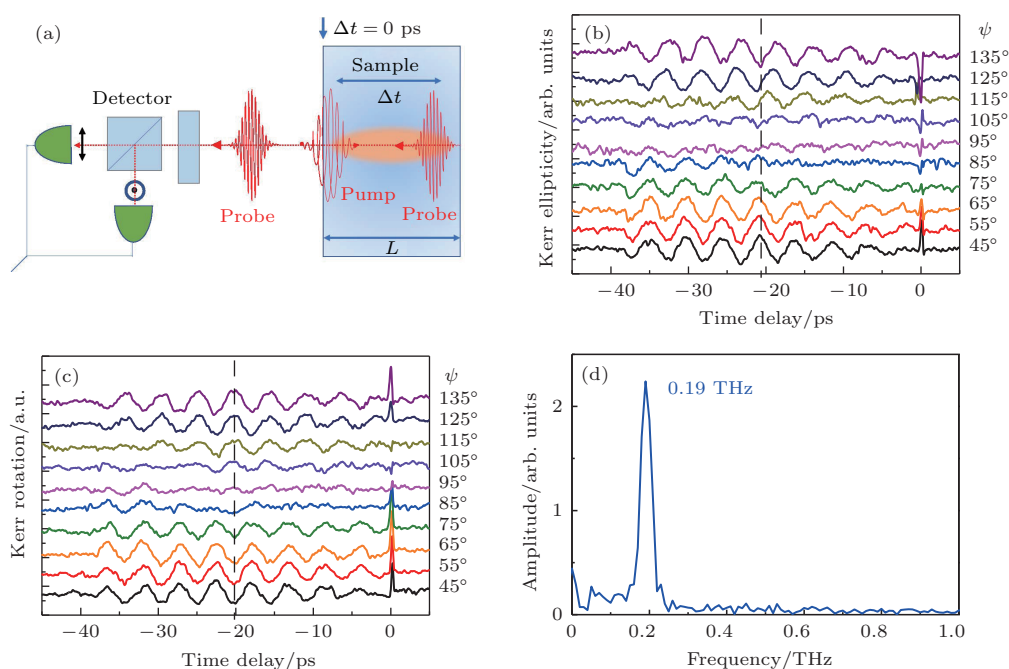


图 2 实验系统与实验结果 (a) 抽运 (圆偏振或线偏振光)-探测 (线偏振光) 光谱实验光路示意图; (b) 时间分辨抽运光诱导探测光的 Kerr 椭圆率; (c) 时间分辨抽运光诱导探测光的 Kerr 旋转信号; (d) 瞬态法拉第调制信号 (左旋圆偏振抽运) 的傅里叶变换谱, 可见调制的中心频率为 0.19 THz; 图中 ψ 为入射的抽运光的线偏振方向与四分之一波片快轴间的夹角, 可以将抽运光的偏振态从右旋圆偏振 ($\psi = 45^\circ$) 变化到任意椭圆偏振态和左旋圆偏振 ($\psi = 135^\circ$); 为了表示更清晰, (b) 和 (c) 图中曲线在垂直方向做了平移; 激发能量密度为 96 mJ/cm²; 实验中未施加外磁场, 测试环境为室温

Fig. 2. Experiment system and experiment results: (a) The geometry of the pump-probe experiment, an intense fs pump pulse is incident normally along axis of the sample, the scheme of the ultrafast optical Kerr modulation via counter-propagating laser pulses; (b) Kerr ellipticity; (c) Kerr rotation transient signal induced by the pump beam with fluence of 96 mJ/cm² for different polarized states (pump polarization azimuth ψ is the angle between the linearly polarized plane of the pump pulse and the fast axis of the quarter-wave plate); (d) the FFT spectrum of the signal with the limited time window of the observed oscillations for the pump beam with right-handed circularly polarization.

选取抽运光为左旋圆偏振时的克尔椭圆率信号进行傅里叶变换, 如图 2(d) 所示, 得到的振荡频率为 $\Omega = 0.19$ THz. 这一频率不能解释为 Tb³⁺ 离子的基态 7F_6 多重态能级间的光诱导相干和跃迁 (频率在 1.36 THz 和 2.25 THz), 也不是约为 5 THz 的声子模式^[27,32,33]. 此外, 这一振荡出现在负延迟时间, 也从另一个角度说明了该振荡不是源自于晶

体的模式, 否则将违背因果律.

为了阐述实验观察到的克尔旋转角和椭圆率的超快调制, 我们建立了一个简单的模型, 以分析探测光束传播通过一个由抽运光产生的对向传播的克尔非线性极化区域. 光学克尔效应指的是, 强电场可以在任何材料中通过正比于场强平方的偶极子诱导光学各向异性^[1]. 偶极子的取向沿着立方

结构材料的电场方向. 因此, 强的抽运激光脉冲可以产生沿着其偏振方向的光各向异性轴. 当另一束探测光传播经过抽运光所激发的区域会感受到双折射效应^[34]. 光学克尔效应已经广泛应用于研究分子结构、凝聚态系统, 包括液体、塑性晶体之间的相互作用^[35,36].

由于光学克尔效应导致的偏振旋转由探测光的偏振和抽运光诱导样品的各向异性轴之间的夹角 φ 所决定^[29],

$$\Delta\theta \propto \sin(2\varphi), \quad (1)$$

探测光偏振与抽运光诱导样品的各向异性轴之间的夹角 φ 来源有两个部分, 包括由样品的静态磁光法拉第效应引起的探测光和抽运光的旋转,

$$\varphi = -\alpha_{\text{pr}}ML + (\alpha_{\text{pr}} + \alpha_{\text{pu}})M \frac{c\Delta t}{n_{\text{pr}} + n_{\text{pu}}}, \quad (2)$$

式中的 α_{pr} 与 α_{pu} 分别为探测光波长和抽运光波长处的磁光系数, M 是样品的磁化强度, L 是样品的厚度, c 是真空光速, n_{pr} 与 n_{pu} 是探测光和抽运光的群速度折射率指数. 由于本文使用的抽运和探测波长一致, 即 $\alpha_{\text{pr}} = \alpha_{\text{pu}}$, $n_{\text{pr}} = n_{\text{pu}}$, (2) 式可以简写为

$$\varphi = -\alpha_{\text{pr}}ML + \alpha_{\text{pr}}M \frac{c\Delta t}{n_{\text{pr}}}, \quad (3)$$

式中 α_{pr} 与 α_{pu} 为抽运和探测脉冲之间的时间延迟. $\Delta t = 0$ ps 选择为两个脉冲相遇在样品的前端面, 如图 2(a) 所示. 将 (3) 式代入 (1) 式, 因此得到探测光克尔旋转信号的振荡频率为

$$\Omega = \frac{2\alpha_{\text{pr}}Mc}{n_{\text{pr}}}. \quad (4)$$

由 (4) 式可见, 振荡频率正比于样品的磁化强度和磁光系数, 反比于样品在探测光波段的群折射率指数. 本文中所测得 0.19 THz 的调制频率取决于样品中极小的剩磁和磁光系数. 如图 2(a) 所示, 抽运光与后界面反射的 (反向传播) 探测光相互作用. 探测光偏振的旋转是由于对向传播的抽运脉冲通过光学克尔效应产生的圆二向色性不均一性导致的. 因此, 可以通过改变探测光相对于抽运光在晶体中的位置, 控制探测光脉冲的相对偏振角度. 这一位置由抽运和探测光之间的时间延迟来确定. 因此, 实验中我们观察到探测光的偏振以调制频率 Ω 随抽运探测延迟时间 Δt 振荡.

根据所建立的模型, 只要探测脉冲离开晶体, 即探测脉冲不再与反向传播的光学克尔非线性区

相遇, 瞬时克尔旋转角的超快调制必然会消失. 考虑样品在抽运光和探测光波长下的群速度折射率指数 n_{pr} , 可以计算得到探测脉冲与反向传播的光学克尔非线性区相互作用的最大时间延迟 $\Delta\tau$, 即超快调制的时间窗口为

$$\Delta\tau = \frac{L(n_{\text{pr}} + n_{\text{pu}})}{c}, \quad (5)$$

式中 c 为真空光速, L 为晶体厚度, n_{pr} 为在抽运和探测光波长处磁光晶体的群速度折射率. 对于我们的实验, $L = 3$ mm, $n_{\text{pr}} = n_{\text{pu}} \approx 2$. 由此模型简单估计的调制信号持续时间为 $\Delta\tau \approx 40$ ps, 这与实验结果一致.

此外, 如图 2(b) 和图 2(c) 所示, 实验所观察到的振荡信号强烈依赖于抽运脉冲的偏振态. 当用线偏振抽运光激发, 探测光的偏振和抽运光诱导样品的各向异性轴之间的夹角 φ 是固定的. 在没有外加磁场的情况下, 观察不到振荡调制信号. 相对而言, 圆偏振光的振动方向随时间变化, 其旋转电矢量端点的轨迹为圆形. 圆偏振飞秒脉冲诱导了基于光学克尔效应的圆二向色性. 当圆偏振抽运脉冲变为椭圆偏振抽运脉冲时, 振荡信号的振幅明显减小, 这是由于圆二向色性的减弱. 当抽运光的偏振从左旋圆偏振变为右旋圆偏振, 可以看到振荡信号的相位发生 π 相移, 这也与所提出的模型符合.

通过改变抽运光能量密度 (从 32 mJ/cm² 增加到 96 mJ/cm²) 所得到的瞬时克尔调制信号, 如图 3(a) 所示. 对调制信号进行傅里叶变换 (图 3(b)), 并取振荡频率处的调制幅度以抽运光功率密度为函数做图, 如图 3(c) 所示. 超快调制的振幅随抽运光能量密度的增加而增加. 然而, 增加的趋势并非严格按照线性正比例关系. 值得注意的是, 正如上述模型所预计, 振荡频率和时间窗口 $\Delta\tau$ 都与抽运光能量密度无关. 对于同向传播的脉冲而言, 抽运光与探测光的相互作用导致出现一个类高斯型的峰^[37,38]. 这个峰也出现在实验中克尔调制时域信号的零延迟点处, 如图 3(a) 箭头所示.

最后需要指出的是, 非线性克尔效应的调制可以在任何反向传播的脉冲下得到^[29]. 在我们的实验中, 当探测脉冲的传播早于抽运脉冲 ($\Delta t < 0$), 从晶体后表面反射的探测光反向传播通过整个抽运脉冲. 光学克尔非线性扮演了圆二向色性或者双折射“平面”的角色, 传播经过探测脉冲. 因此, 探测光获得一个附加的时间依赖的偏振改变, 即探

测光偏振调制. 这种情况下, 测量到反射的探测光克尔信号的调制出现在负延迟时间上 [27,28]. 由于实验条件的限制, 未能施加与光传播方向一致的磁

场, 本工作中还没有实现调制频率的连续调谐. 后续将继续生长高质量的磁光晶体, 系统研究晶体厚度对振荡时间窗口的调制.

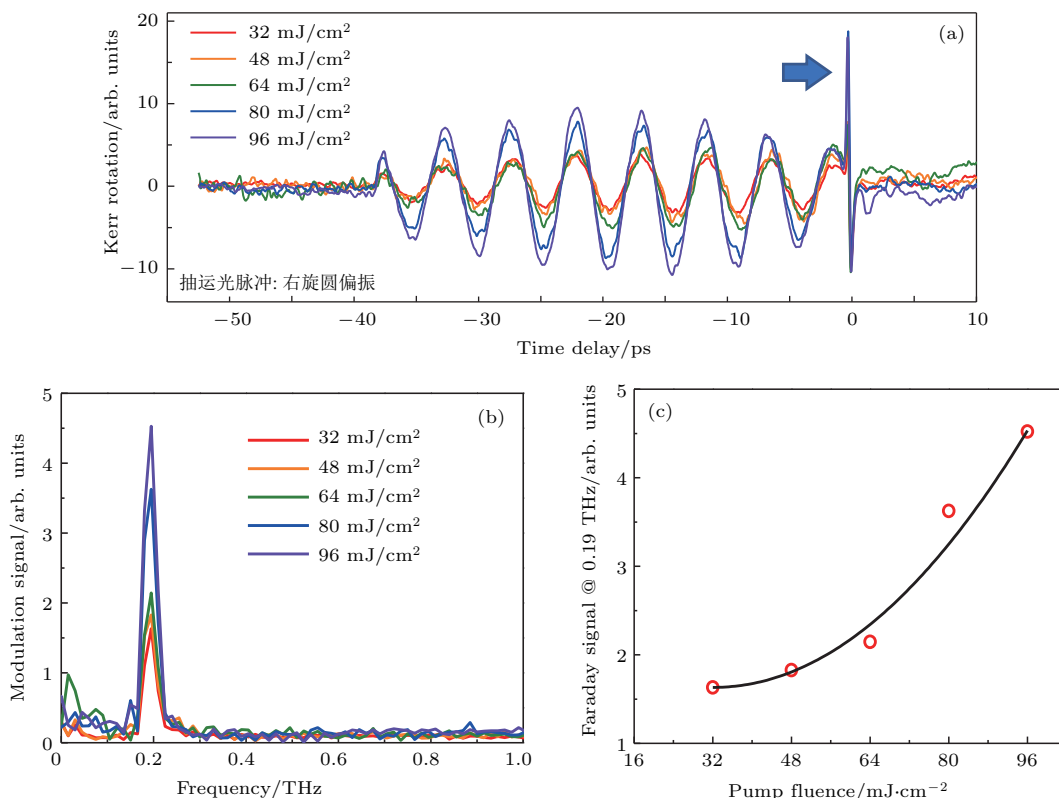


图3 不同能量密度的圆偏振抽运光作用下的瞬态克尔调制信号及其傅里叶变换光谱 (a) 瞬态克尔调制信号; (b) 傅里叶变换光谱; (c) 调制频率为0.19 THz处的调制强度随抽运光能量密度的依赖关系
 Fig. 3. Transient pump-induced Kerr rotation and its FFT spectrum of the probe for different pump fluence at room temperature: (a) Transient pump-induced Kerr rotation; (b) the FFT spectrum; (c) the modulation amplitude as a function of pump fluence, when the modulation frequency equals 0.19 THz.

4 结 论

我们利用圆偏振光演示了一个加强的 THz 频率的克尔调制信号. 利用一个强激光脉冲产生的光学克尔效应, 诱导出在介质中移动的复折射率不均匀性, 可以获得明显的探测脉冲偏振调制信号. 我们的实验结果为设计新型的 works 于 THz 时钟频率的全光 (磁光) 调制器件提供了可能性. 另一方面, 抽运-探测磁光效应已经成为研究超快自旋动力学的重要工具, 并且得到了快速发展. 从本文的实验结果看, 抽运和探测光脉冲的传播效应会导致探测光脉冲克尔信号的振荡. 这些振荡信号可能会被误以为是自旋激发模式. 因此, 我们的工作对透明介质中的抽运探测磁光研究具有重要的参考价值. 此外, 皮秒时间尺度上光的偏振调制将有助于全光数据处理, 从而获得偏振依赖的超快动力学

过程, 所研究的领域跨度从凝聚态物质直至分子光谱学.

参考文献

- [1] Svirko Y P, Zheludev N I 1998 *Polarization of Light in Nonlinear Optics* (New York: John Wiley & Sons) p1
- [2] Wraback M, Shen H 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 1288
- [3] Gansen E J, Jarasiunas K, Smirl A L 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 971
- [4] Wismer M S, Stockman M I, Yakovlev V S 2017 *Phys. Rev. B* **96** 224301
- [5] Bull J D, Jaeger N A F, Kato H, Fairburn M, Reid A, Ghanipour P 2004 *Proc. SPIE* **5577** 133
- [6] Yang Y M, Kelley K, Sachet E, Campione S, Luk T S, Maria J P, Sinclair M B, Brener I 2017 *Nature Photon.* **11** 390
- [7] Li D F 2017 *Nature Photon.* **11** 336

- [8] Liu G Q, Le Z Q, Shen D F 2001 *Magneto Optics* (Shanghai: Science and Technology Press) pp29–70 (in Chinese) [刘公强, 乐志强, 沈德芳 2001 磁光学 (上海: 科学技术出版社) 第 29—70 页]
- [9] Zvezdin A K, Kotov V A 1997 *Modern Magneto-Optics and Magneto-optical Materials* (Boca Raton: CRC Press) p1
- [10] Kimel A V, Kirilyuk A, Usachev P A, Pisarev R V, Balbashov A M, Rasing T 2005 *Nature* **435** 655
- [11] Pershan P S, Ziel J P V D, Malmstrom L D 1966 *Phys. Rev.* **143** 574
- [12] Jin Z, Ma H, Wang L, Ma G, Guo F, Chen J 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 201108
- [13] Higo T, Man H, Gopman D B, Wu L, Koretsune T, Erve O M J V, Kabanov Y P, Rees D, Li Y F, Suzuki M T, Patankar S, Ikhlas M, Chien C L, Arita R, Shull R D, Orenstein J, Nakatsuji S 2018 *Nature Photon.* **12** 73
- [14] Kirilyuk A, Kimel A V, Rasing T 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 2731
- [15] Wang H, Jin Z, Liu X, Zhang Z, Lin X, Cheng Z, Ma G 2017 *Appl. Phys. Lett.* **110** 252407
- [16] Bossini D, Konishi K, Toyoda S, Arima T, Yumoto J, Kuwata-Gonokami M 2018 *Nature Phys.* **14** 370
- [17] Vicario C, Ruchert C, Ardana-Lamas F, Derlet P M, Tudu B, Luning J, Hauri C P 2013 *Nature Photon.* **7** 720
- [18] Shalaby M, Vicario C, Hauri C P 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 182903
- [19] Riordan J A, Sun F G, Lu Z G, Zhang X C 1997 *Appl. Phys. Lett.* **71** 1452
- [20] Kampfrath T, Sell A, Klatt G, Pashkin A, Mährlein S, Dekorsy T, Wolf M, Fiebig M, Leitenstorfer A, Huber R 2011 *Nature Photon.* **5** 31
- [21] Zhang Z B, Ma X B, Jin Z M, Ma G H, Yang J B 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 097401 (in Chinese) [张郑兵, 马小柏, 金钻明, 马国宏, 杨金波 2012 物理学报 **61** 097401]
- [22] Jin Z, Ma H, Li D, Wang L, Ma G, Guo F, Chen J 2011 *Appl. Phys. B* **104** 59
- [23] Jin Z, Mics Z, Ma G, Cheng Z, Bonn M, Turchinovich D 2013 *Phys. Rev. B* **87** 094422
- [24] Grishunin K, Huisman T, Li G Q, Mishina E, Rasing T, Kimel A V, Zhang K, Jin Z, Cao S, Ren W, Ma G, Mikhaylovskiy R V 2018 *ACS Photon.* **5** 1375
- [25] Kim J W, Vomic M, Bigot J Y 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 166601
- [26] Scherbakov A V, Salasyuk A S, Akimov A V, Liu X, Bombeck M, Brüggemann C, Yakovlev D R, Sapega V F, Furdyna J K, Bayer M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 117204
- [27] Subkhangulov R R, Mikhaylovskiy R V, Zvezdin A K, Kruglyak V V, Rasing T, Kimel A V 2016 *Nature Photon.* **10** 111
- [28] Ghamsari B G, Berini P 2016 *Nature Photon.* **10** 74
- [29] Mikhaylovskiy R V, Subkhangulov R R, Rasing T, Kimel A V 2016 *Opt. Lett.* **4** 5071
- [30] Guo F Y, Zhuang N F, Zhao B, Chen J Z 2009 *J. Synth. Cryst.* **38** 1059 (in Chinese) [郭飞云, 庄乃锋, 赵斌, 陈建中 2009 人工晶体学报 **38** 1059]
- [31] Liu J, Guo F, Zhao B, Zhuang N, Chen Y, Gao Z, Chen J 2008 *J. Cryst. Growth* **310** 2613
- [32] Gruber J B, Sardar D K, Yow R M, Valiev U V, Mukhammadiev A K, Sokolov V Y, Amin I, Lengyel K, Kachur I S, Piryatinskaya V G, Zandi B 2007 *J. Appl. Phys.* **101** 023108
- [33] Gavignet-Tillard A, Hammann J, Seze L D 1973 *J. Phys. Chem. Solids* **34** 241
- [34] Righini R 1993 *Science* **262** 1386
- [35] Farrer R A, Fourkas J T 2003 *Acc. Chem. Res.* **36** 605
- [36] Zhu B H, Wang F F, Zhang K, Ma G H, Gu Y Z, Guo L J, Qian S X 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 6557 (in Chinese) [朱宝华, 王芳芳, 张琨, 马国宏, 顾玉宗, 郭立俊, 钱士雄 2008 物理学报 **57** 6557]
- [37] Jin Z M, Guo F Y, Ma H, Wang L H, Ma G H, Chen J Z 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 087803 (in Chinese) [金钻明, 郭飞云, 马红, 王立华, 马国宏, 陈建中 2011 物理学报 **60** 087803]
- [38] Guo F, Sun Y, Yang X, Chen X, Zhao B, Zhuang N, Chen J 2016 *Opt. Express* **24** 5734

Ultrafast polarization modulation of laser pulses at terahertz frequencies via optical Kerr effect*

Lin Xian¹⁾ Jin Zuan-Ming^{1)2)†} Li Ju-Geng¹⁾ Guo Fei-Yun³⁾ Zhuang Nai-Feng³⁾
Chen Jian-Zhong³⁾ Dai Ye¹⁾ Yan Xiao-Na¹⁾ Ma Guo-Hong^{1)2)‡}

1) (Department of Physics, Shanghai University, Shanghai 200444, China)

2) (SIOM&STU Joint Laboratory for Superintense Lasers and the Applications, Shanghai 201210, China)

3) (College of Chemistry and Chemical Engineering, Fuzhou University, Fuzhou 350002, China)

(Received 30 July 2018; revised manuscript received 1 October 2018)

Abstract

Polarized light has already been widely used for photography and display technologies. Magneto-optical Faraday effect, i.e., the light polarization rotates in the magnetic field applied to the material in the direction of light propagation, plays a crucial role in the interaction between light and spin. Faraday effect allow us to understand the nature of magnetization in condensed materials. As an effect opposite to the Faraday effect, the magnetization can be induced in a transparent medium exposed to a circularly polarized electromagnetic wave, which is called inverse Faraday effect. Knowledge of the mechanism provides the opportunities of modulation devices in photonics, ultrafast opto-magnetism and magnonics. In this paper, we experimentally demonstrate a proof-of-concept ultrafast polarization modulation by employing circularly polarized light to demonstrate a strengthened terahertz (THz) frequency Kerr modulation signal, at room temperature. By using the transient pump-probe spectroscopy with the reflected geometry, we are able to demonstrate the feasibility of such an ultrafast magneto-optical polarization modulation at 0.19 THz in a paramagnetic Li:NaTb (WO₄)₂ crystal with a thickness of 3 mm. The time-resolved modulation signal is explained by the interaction between two counter-propagating laser pulses (central photon energy of 1.55 eV) within the crystal via the optical Kerr effect. We find that the amplitude of the modulation increases with the pump fluence increasing, while the modulation frequency is dependent neither on the pump fluence nor on polarization of pump beam. However, it can further be found that the phase and amplitude of the transient Kerr modulation are strongly dependent on the helicity of the circularly polarized pump pulses. Indeed, these oscillating signals may be mistaken for spin excitation modes. The present findings allow us to get an insight into the transient magneto-optical dynamical process in transparent medium. In addition, the polarization modulation of ultrashort laser pulse on a picosecond time scale will facilitate all-optical data processing, as well as the polarization-dependent ultrafast dynamics in various material systems, which span from condensed matter to molecular spectroscopy. In this regard, our experimental results provide a possibility for designing novel all-optical (magneto-optical) modulators operating at THz clock frequencies. The magneto-optical polarization response modulated at THz frequencies may have new possibilities for designing all-optical devices, such as ultrafast modulators.

Keywords: ultrafast spectroscopy, Kerr effect, magneto-optical effect, terahertz

PACS: 78.47.J-, 42.65.Hw, 78.20.Ls, 95.85.Gn

DOI: 10.7498/aps.67.20181450

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11604202, 11674213, 61735010, 11774220), the Young Eastern Scholar at Shanghai Institutions of Higher Learning, China (Grant No. QD2015020), the "Chen Guang" Project of Shanghai Municipal Education Commission and Shanghai Education Development Foundation, China (Grant No. 16CG45), and the Shanghai Rising-Star Program, China (Grant No.18QA1401700).

† Corresponding author. E-mail: physics_jzm@shu.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: ghma@staff.shu.edu.cn