

基于 IrMn/Fe/Pt 交换偏置结构的无场自旋太赫兹源

朱照照¹⁾²⁾ 冯正^{3)4)†} 蔡建旺¹⁾²⁾

1) (中国科学院物理研究所, 磁学国家重点实验室, 北京 100190)

2) (中国科学院大学, 物理科学学院, 北京 100049)

3) (中国工程物理研究院微系统与太赫兹研究中心, 成都 610200)

4) (中国工程物理研究院电子工程研究所, 绵阳 621999)

与目前常用的商用太赫兹源相比, 自旋太赫兹源具有超宽频谱、固态稳定、以及成本低廉等一系列优点, 这使得其成为下一代太赫兹源的主要研究焦点. 但自旋太赫兹源在使用时, 通常需要外加磁场使铁磁层的磁化强度饱和, 才能产生太赫兹波, 这大大制约了其应用前景. 在这里本文制备了一种基于 IrMn/Fe/Pt 交换偏置结构的自旋太赫兹波发生器, 通过 IrMn/Fe 中的交换偏置场和 Fe/Pt 中的超快自旋流注入与逆自旋霍尔效应相结合, 在无外加磁场下产生了强度可观的太赫兹波. 在 IrMn 和 Fe 的界面中插入超薄的 Cu, 可以使 Fe 在厚度很薄时在零场下实现饱和磁化, 并且其正向饱和场最高可达 -10 mT, 从而进一步提升无场下的太赫兹发射效率. 零场下出射的太赫兹波的动态范围超过 60 dB, 达到可实用化的水平. 通过旋转样品, 发现产生的太赫兹波的偏振方向也会随之旋转并且始终沿着面内垂直于交换偏置场的方向. 此外, 在此交换偏置结构的基础上, 引入了一层自由的铁磁金属层 Fe, 设计了一种以 IrMn/Fe/Pt/Fe 为核心结构的自旋阀太赫兹源, 发现产生的太赫兹强度在两层铁磁层反平行排列时比平行排列以及不引入自由铁磁金属层时均大约提升了 40%. 本文结果表明基于 IrMn/Fe/Pt 结构的自旋太赫兹信号源可以在无外场下产生可观的太赫兹信号并且其强度可以通过引入自由铁磁金属层来进一步增强, 偏振方向也可以通过旋转样品来进行调控, 这一系列优点使得其有望在下一代太赫兹信号发生器中发挥重要的作用.

关键词: 太赫兹, 交换偏置, 超快自旋输运, 磁性异质结构

PACS: 87.50.U, 85.75.-d, 75.78.Jp, 72.25.Rb

基金：科学挑战专题（批准号：TZ2018003）、国家自然科学基金（批准号：62027870）资助的课题。

† 通讯作者.E-mail: fengzheng_mtrc@caep.cn

第一作者.E-mail: zzzhu@iphy.ac.cn

1 引言

太赫兹（THz）波是指频率从 0.1 THz 到 10 THz，介于毫米波与红外光之间的电磁波。太赫兹波具有许多独特性质，比如透射性强、安全性好、光谱分辨能力强等，这些性质赋予太赫兹波广泛的应用前景，包括太赫兹雷达和通信、光谱和成像、无损探伤、安全检测等方面^[1]。由于太赫兹波具有许多重要的应用，获得稳定且高性能的太赫兹源，尤其是太赫兹脉冲源，一直都是人们研究的重点。目前太赫兹脉冲源主要是基于飞秒激光器驱动，通过将飞秒激光脉冲照射到电光晶体（如 ZnTe, GaP, LiNbO₃ 等）、光电导天线或者空气等离子体等特殊介质上，从而辐射出太赫兹脉冲^[2]。飞秒激光脉冲驱动电光晶体产生太赫兹是基于非线性的光整流效应，此方法产生的太赫兹强度可以实用，但其频谱宽度不宽，且电光晶体价格昂贵。光电导天线是由高阻的半导体衬底加上两个金属电极构成，两个电极之间施加直流偏置电压，飞秒激光脉冲照射电极之间的空隙产生自由电子和空穴对，它们在偏置电压的作用下形成时间尺度为皮秒的脉冲电流，从而辐射出太赫兹脉冲。光电导天线产生的太赫兹脉冲强度较高，但是频谱宽度有限，且需要外加偏置电压，价格也较高。当高功率的飞秒激光脉冲聚焦于空气产生等离子体，同样会辐射出太赫兹脉冲。此方法产生的太赫兹脉冲强度高且频谱宽，但需要大功率的飞秒激光器和额外的 BBO 晶体，系统非常复杂和昂贵。

由上可知，现有常规的太赫兹脉冲产生方法都有一定的局限性。因此，发展宽频谱、高效率、低成本、固态便携式的太赫兹脉冲发生器，具有重大的意义。2013 年，Kampfrath 等人设计了一种新型太赫兹源，称为自旋太赫兹源^[3]。与传统的非自旋太赫兹源相比，自旋太赫兹源利用了电子自旋这一额外的自由度，在铁磁/非磁的异质结构中通过自旋相关效应产生了超宽带（0-30 THz）并且偏振可以通过外磁场调节的太赫兹脉冲信号。然而在他们的工作中，自旋太赫兹源的

太赫兹产生效率,比商用的 ZnTe 晶体低约两个数量级.由于自旋太赫兹脉冲主要通过以下三个过程来产生^[4]: (1) 飞秒激光脉冲照射铁磁/非磁异质结构并与之相互作用从而激发超快自旋流; (2) 超快自旋流从铁磁层注入非磁层,并在非磁层中通过自旋轨道耦合转换为瞬态电荷流; (3) 非磁金属中的瞬态电荷流时间尺度为亚皮秒并向外辐射太赫兹脉冲.所以人们主要也主要基于这三个过程来对自旋太赫兹源的发射效率进行优化.经过长时间的尝试和努力,研究者们对于自旋太赫兹源的光学激发性能^[5, 6]、超快自旋输运性能^[4, 7-9]以及太赫兹的出射性能^[10-12]都进行了大幅度的提升,成功将其太赫兹产生效率及功率提升到了商用太赫兹源的水平.

尽管目前的基于铁磁/非磁异质结薄膜的自旋太赫兹源无论是在太赫兹脉冲产生效率、频谱宽度还是成本等多个方面都达到了商业应用的标准.但是目前的自旋太赫兹源要想产生太赫兹波,基本都需要外加磁场使铁磁层的磁化强度饱和.而外加磁场发生装置的引入会降低自旋太赫兹源的使用便捷性,从而阻碍其应用前景.虽然人们已经在磁性隧道结中利用钉扎层实现了无需外加磁场的自旋太赫兹发射^[13],但其强度较弱,无法应用于实际测量.因此能否设计出一种无外加磁场辅助且高效实用的自旋太赫兹源就成了人们亟需解决的问题.在这里设计了一种基于 IrMn/Fe/Pt 三层膜结构的自旋太赫兹源,通过引入反铁磁 IrMn 层,利用其与 Fe 界面的交换耦合而形成的交换偏置磁场^[14]来取代外磁场,再通过 Fe/Pt 中的超快自旋流注入与逆自旋霍尔效应相结合的过程,成功在无外场下实现了太赫兹脉冲的产生.在 IrMn 和 Fe 的界面中插入超薄的 Cu,可以使 Fe 在厚度很薄时具有百分之一百的剩余磁化强度,从而使其在无场下的太赫兹发射效率得到进一步提升,并且其正向饱和场最高可达-10 mT,远高于地磁场.零场下出射的太赫兹波的动态范围超过 60 dB,已达到商用的水平.此外,通过引入一层自由铁磁金属 Fe,制备了一种基于 IrMn/Fe/Pt/Fe 结构的自旋阀自旋太赫兹源,其太赫兹发射强度在两层 Fe 的磁化强度呈反平行排列时会有大幅提升.最后,设计了一个集成到太赫兹发射系统的样品旋转托,在无外场下用其将 IrMn/Fe/Pt 样品进行旋转,发现产生的太赫兹波的偏振方向也会随之转动并且始终垂直于面内交换偏置场的方向.结果表明基于 IrMn/Fe/Pt 三层膜结构的自旋太赫兹源不仅可以在无外场下产生可观的太赫兹信号,并且偏振方向可以通过旋转样品来进行调控,

这使得其有望在下一代太赫兹信号发生器中发挥重要的作用。

2 实验过程

本文采用直流磁控溅射方法，在（111）取向的MgO单晶衬底上生长了以Pt/IrMn/Fe/Pt为核心结构的多层膜，其中下层Pt厚度固定为1.5 nm, 用于诱导IrMn（厚度为6 nm）形成立方（111）织构；Fe的厚度范围在1-2.5 nm之间；上层Pt的厚度为1.8 nm，不仅可以将来自Fe的超快自旋流转化为电荷流还可以防止Fe被氧化。溅射系统的背底真空小于 4×10^{-5} Pa，溅射气压0.35 Pa，所有金属层的溅射速率范围都在0.4-0.7 Å/s. 为了诱导出样品的交换偏置场，所有的样品都在外加一个面内50 mT的偏置磁场下250 °C真空退火20 min. 样品的磁性采用振动样品磁强计（VSM）测量。

本文采用标准的太赫兹时域光谱装置用于产生和检测太赫兹脉冲波形. 所使用的飞秒激光脉冲为线偏振，脉冲宽度100 fs，中心波长800 nm，重复频率为80 MHz, 照射于交换偏置结构上的功率为900 mW. 在实验中，为了避免衬底对于太赫兹波的吸收，飞秒激光脉冲沿z轴从样品的衬底侧垂直表面入射，如图1

(a) 所示. Fe的磁矩方向由交换偏置场方向确定，在这里定义为y轴. 根据逆自旋霍尔效应的关系表达式，从薄膜表面发射的太赫兹电场信号偏振方向沿x轴，并且通过电光采样检测. 所有测量均在室温下进行. 此外，还配备了集成到太赫兹发射系统中的面内电磁铁（磁场范围为 ± 500 mT）以及面内样品旋转系统来研究太赫兹发射随着外磁场以及样品的角度的依赖关系。

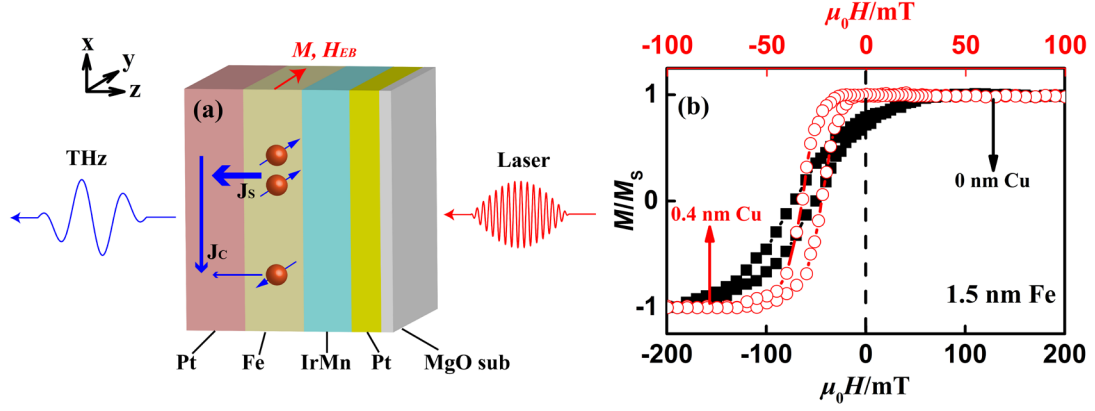


图 1 (a) 样品结构以及太赫兹信号激发示意图；(b) MgO(111)/Pt(1.5 nm)/IrMn(6 nm)/Fe(1.5 nm)/Pt(1.8 nm) (黑线) 和 MgO(111)/Pt(1.5 nm)/IrMn(6 nm)/Cu(0.4 nm)/Fe(1.5 nm)/Pt(1.8 nm) (红线) 在外场沿交换偏置方向时的磁化曲线。

Fig. 1. (a) Illustration of the layer stacking and THz excitation configuration; (b) $M-H$ loops for the MgO(111)/Pt(1.5 nm)/IrMn(6 nm)/Fe(1.5 nm)/Pt(1.8 nm) (black line) and MgO(111)/Pt(1.5 nm)/IrMn(6 nm)/Cu(0.4 nm)/Fe(1.5 nm)/Pt(1.8 nm) (red line) on the applied in-plane magnetic field parallel to the direction of the exchange bias field.

3 实验结果与讨论

根据前人的研究^[4], 对于结构为铁磁/非磁异质结薄膜的自旋太赫兹源, 太赫兹发射效率在金属层的厚度超过一定的临界厚度(4 nm 左右) 会随着厚度增加而大幅度衰减. 在这里为了保证样品的交换偏置性能, 反铁磁金属 IrMn 层厚度至少需要为 6 nm^[14], 而这就已经超过了太赫兹信号衰减的临界厚度, 因此需要减薄其余的金属层厚度来保证 THz 的发射强度. 图 1(b) 给出了样品 MgO(111)/Pt(1.5 nm)/IrMn(6 nm)/Fe(1.5 nm)/Pt(1.8 nm) 在外场沿交换偏置方向上的磁滞回线. 可以看出虽然样品具有高达 70 mT 的交换偏置场, 这也符合交换偏置场随铁磁金属厚度呈反比例变化的关系. 但铁磁金属层厚度过薄时, 其缺陷也会随之增多从而使矫顽力和饱和场增大. 最直观的反映就是磁化曲线发生倾斜并且在零场时样品的剩余磁化强度无法达到百分之百, 而由于自旋太赫兹源产生的太赫兹信号和铁磁金属的磁化强度成正比, 因此这会严重影响零场下的太赫兹发射性能. 为了

解决这个问题，在 IrMn 和 Fe 的界面上插入了 0.4 nm 的 Cu 分隔层来减少界面处的缺陷和局域形核点^[15, 16]，制备了 MgO(111)/Pt(1.5 nm)/IrMn(6 nm)/Cu(0.4 nm)/Fe(1.5 nm)/Pt(1.8 nm)样品，其磁化曲线如图 1(b)所示，可以看到磁化曲线的方形度得到的明显的改善，尽管交换偏置场下降到了 27 mT，但样品在零场下剩磁比达到了百分之百，这为在无场下得到可观的太赫兹信号打下了坚实的基础。并且考虑到样品已经在 250 °C 下进行过退火处理，这说明其交换偏置场的截止温度应该在 250 °C 以上，因而也具有良好的热稳定性。

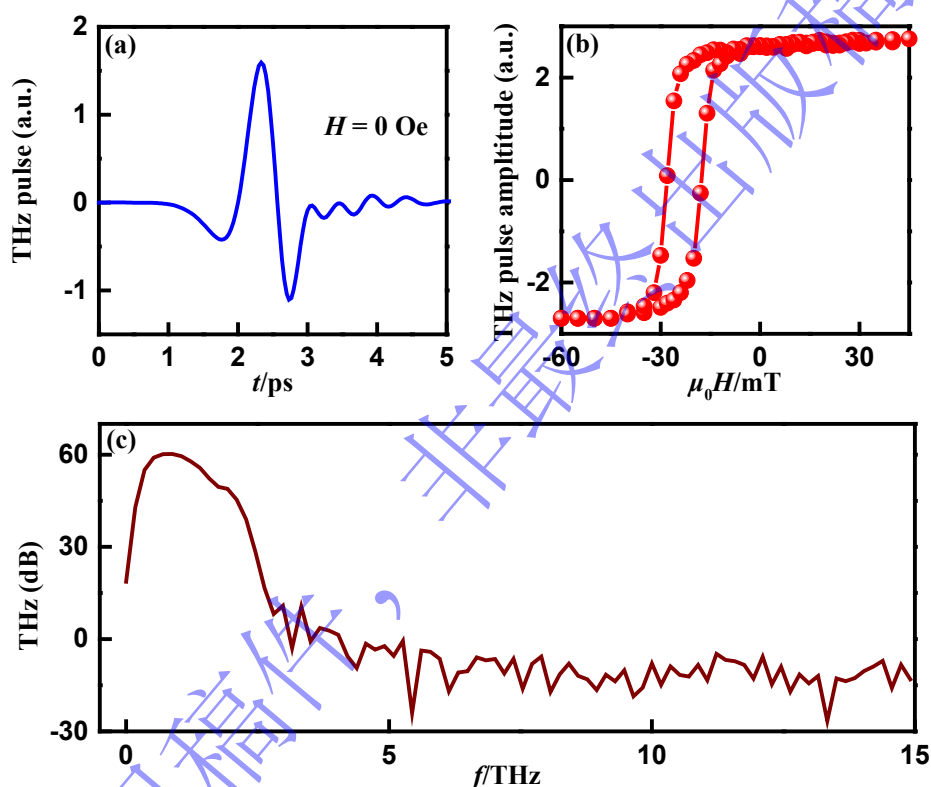


图 2 MgO(111)/Pt(1.5 nm)/IrMn(6 nm)/Cu(0.4 nm)/Fe(2 nm)/Pt(1.8 nm)无外场下的太赫兹脉冲信号 (a) 以及太赫兹脉冲振幅随外场的变化关系 (b)。(c) 由图(a) 得到的傅里叶谱图。

Figure 2. (a) THz emission signals of MgO(111)/Pt(1.5 nm)/IrMn(6 nm)/Cu(0.4 nm)/Fe(2 nm)/Pt(1.8 nm) samples without external field. (b) Magnetic dependence of the THz amplitude. (c) Fourier spectra obtained from the data in (a).

随后对样品进行了太赫兹发射性能测试，图 2 (a) 给出了样品

MgO(111)/Pt(1.5 nm)/IrMn(6 nm)/Cu(0.4 nm)/Fe(2 nm)/Pt(1.8 nm) 在外磁场为 0 时的太赫兹电场波形图，可以看出在零场下测量到了非常可观的太赫兹信号. 为了能够定量表示样品的太赫兹发射强度，将峰-峰间的强度差定义为太赫兹脉冲振幅^[17]. 图 2(b) 给出了样品的太赫兹脉冲振幅随着外磁场的变化的曲线，基本和具有交换偏置 Fe 的磁化翻转行为一致，并且其太赫兹振幅的正向饱和场为-10 mT, 远大于地磁场，符合真正的无场应用的标准. 根据自旋太赫兹波的发射理论^[3]，当飞秒脉冲激光照射到铁磁金属上会激发出自旋向上和向下的非平衡载流子，由于铁磁金属中多数和少数自旋的迁移率不同，最终会在界面处产生自旋极化流并且往非磁层中进行扩散，最后通过非磁层中的逆自旋霍尔效应将注入的自旋流转化为电荷流，用公式可以表示为

$$\mathbf{j}_c = \frac{2e}{h} \theta_{SHE} \mathbf{j}_s \times \mathbf{M}, \quad (1)$$

其中 θ_{SHE} 代表非磁层的自旋霍尔角， \mathbf{j}_s 代表自旋流的运动方向，由于 \mathbf{j}_s 始终沿着 z 轴，最后产生的电荷流 \mathbf{j}_c 及产生的太赫兹信号就只和铁磁金属的磁化强度 \mathbf{M} 有关，而这也和的测量结果一致. 图 2(c) 为图 2(a) 的傅里叶频谱结果，由于受到激光脉冲宽度以及电光采样 ZnTe 晶体的限制，只能得到 0-3 THz 的频谱图，但可以看到产生的太赫兹动态范围达到了 60 dB, 基本达到商用太赫兹时域光谱仪的水平.

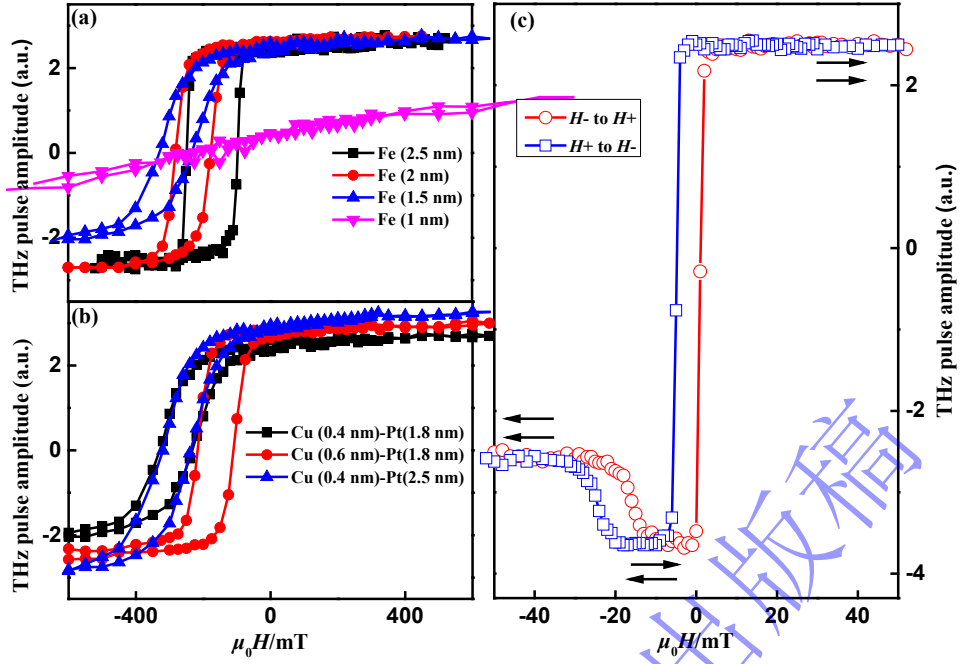


图 3 (a) $\text{MgO}(111)/\text{Pt}(1.5 \text{ nm})/\text{IrMn}(6 \text{ nm})/\text{Cu}(0.4 \text{ nm})/\text{Fe}(t_{\text{Fe}} \text{ nm})/\text{Pt}(1.8 \text{ nm})$ 样品 $t_{\text{Fe}}=1, 1.5, 2$, 和 2.5 nm 时太赫兹脉冲振幅随着外场的变化曲线. (b) $t_{\text{Fe}} = 1.5 \text{ nm}$ 时, 在不同的 Cu 和 Pt 厚度下其太赫兹脉冲振幅随外场的变化曲线. (c) $\text{MgO}(111)/\text{Pt}(1.5 \text{ nm})/\text{IrMn}(6 \text{ nm})/\text{Cu}(0.4 \text{ nm})/\text{Fe}(2.5 \text{ nm})/\text{Pt}(1.8 \text{ nm})$ 与 $\text{MgO}(111)/\text{Fe}(1.5 \text{ nm})/\text{Pt}(1.8 \text{ nm})$ 的太赫兹脉冲信号对比. (d) $\text{MgO}(111)/\text{Pt}(1.5 \text{ nm})/\text{IrMn}(6 \text{ nm})/\text{Cu}(0.4 \text{ nm})/\text{Fe}(1.5 \text{ nm})/\text{Cu}(1 \text{ nm})/\text{Pt}(1.8 \text{ nm})/\text{Fe}(2 \text{ nm})/\text{SiO}_2(5 \text{ nm})$ 自旋阀样品的太赫兹脉冲振幅随外场的变化曲线.

Figure 3. (a) THz amplitude as a function magnetic field for the $\text{MgO}(111)/\text{Pt}(1.5 \text{ nm})/\text{IrMn}(6 \text{ nm})/\text{Cu}(0.4 \text{ nm})/\text{Fe}(t_{\text{Fe}} \text{ nm})/\text{Pt}(1.8 \text{ nm})$ samples, where $t_{\text{Fe}} = 1, 1.5, 2$, and 2.5 nm . (b) Comparison of the magnetic dependent THz amplitude in 1.5 nm Fe with different thickness of Cu and Pt. (c) The effect of 6 nm IrMn layer on THz signals. (d) THz pulse amplitude of $\text{MgO}(111)/\text{Pt}(1.5 \text{ nm})/\text{IrMn}(6 \text{ nm})/\text{Cu}(0.4 \text{ nm})/\text{Fe}(1.5 \text{ nm})/\text{Cu}(1 \text{ nm})/\text{Pt}(1.8 \text{ nm})/\text{Fe}(2 \text{ nm})/\text{SiO}_2(5 \text{ nm})$ sample measured in dependence on the applied field.

随后改变了铁磁金属层的厚度, 研究了 Fe 的厚度 (t_{Fe}) 分别为 $1, 1.5, 2$ 和 2.5 nm 的太赫兹脉冲振幅随外场的变化关系, 如图 3 (a) 所示. 可以看出当 $t_{\text{Fe}} >$

1 nm 时, 样品在零场下具有相同的太赫兹脉冲振幅, 并且交换偏置场随着 t_{Fe} 的增加而逐渐减小, 但正向饱和场在 2 nm 时为最优. 而当 Fe 厚度为 1 nm 时, 此时其形貌会发生从均匀薄膜到不均匀的岛状结构的转变^[18], 从而严重影响其磁性, 导致无法观测到太赫兹信号. 综合以上考虑, 认为 2 nm 厚度的 Fe 最有利于无场下的太赫兹信号产生. 此外, 还改变了 Cu 分隔层和上层 Pt 的厚度, 发现样品的太赫兹发射效率会随着 Cu 和 Pt 厚度的增大而少量增加, 如图 3 (b) 所示. 以上的结果可以定性的用如下的物理图像来解释^[4]: 自旋太赫兹脉冲电场强度可以近似认为由样品铁磁层对飞秒激光脉冲的吸收率 (P)、自旋流在非磁金属中转化为电荷流的效率 ($\theta_{SHE}j_s$) 以及电荷流转化为电磁辐射的效率 (Z) 所决定, 并且与 $P\theta_{SHE}j_sZ$ 成正比. 当样品金属层厚度较厚时, P 与 Z 都和非铁磁金属层的厚度的倒数呈正相关关系. 从样品结构可知多层膜的厚度由反铁磁 IrMn 主导, 因此适当变化铁磁金属和其它非磁金属的厚度对 P 和 Z 都影响不大. 此外, 当把 Fe 上层的 Pt 层去除, 换之以 5 nm SiO_2 保护层后, 发现样品无法产生太赫兹信号, 这说明 IrMn 层对于太赫兹波的产生是没有贡献的. 由于 IrMn 也具有较大的自旋霍尔角以及较高的电阻率, 我们的结果说明铁磁/反铁磁界面不利于超快自旋流的产生和传输, 而只有与 Fe 相邻的 Pt 才会对 $\theta_{SHE}j_s$ 产生贡献, 并且 Pt 厚度越厚, $\theta_{SHE}j_s$ 越大, 从而产生的太赫兹强度越大.

最近有研究表明^[19, 20], 在具有铁磁/非磁/铁磁结构的自旋太赫兹源中, 当两层铁磁层的磁化强度反平行时, 两层铁磁层同时向非磁层注入的自旋流将转换成同向的电荷流相互叠加, 从而增强太赫兹强度. 受到这些工作的启发, 在基于交换偏置结构样品的基础上, 在上层 Pt 上又生长一层自由的铁磁金属层 Fe, 设计了以 IrMn/Fe/Pt/Fe 为核心结构的自旋太赫兹信号发生器. 并且为了使两层 Fe 实现完全的脱耦, 还在 Fe 和 Pt 的界面处插入了 1 nm 的 Cu 分隔层, 最终制备了结构为 $MgO(111)/Pt(1.5 \text{ nm})/IrMn(6 \text{ nm})/Cu(0.4 \text{ nm})/Fe(1.5 \text{ nm})/Cu(1 \text{ nm})/Pt(1.8 \text{ nm})/Fe(2 \text{ nm})/SiO_2(5 \text{ nm})$ 自旋阀太赫兹信号发生器. 图 3 (c) 给出了其产生的太赫兹振幅随着外场的变化关系曲线, 可以看出两层 Fe 的磁化翻转曲线已经完全实现分离, 而在零场下当两层铁磁金属反平行排列时, 其产生的太赫兹振幅的绝对值比平行排列以及不引入自由铁磁金属层时均提升了 40% 左右. 还需要强调的是, 利用和前面提到的铁磁金属层反平行排列可以提升太赫兹发射

效率类似的原理，如果在上方的 Fe 层再添加一种与 Pt 自旋霍尔角相反的材料（如 W），就可以在上层 Pt 两侧同时注入自旋流，并且其产生的电荷流也可以相干叠加，从而进一步提升无场下太赫兹的发射效率^[4]，这也是下一步优化的目标。

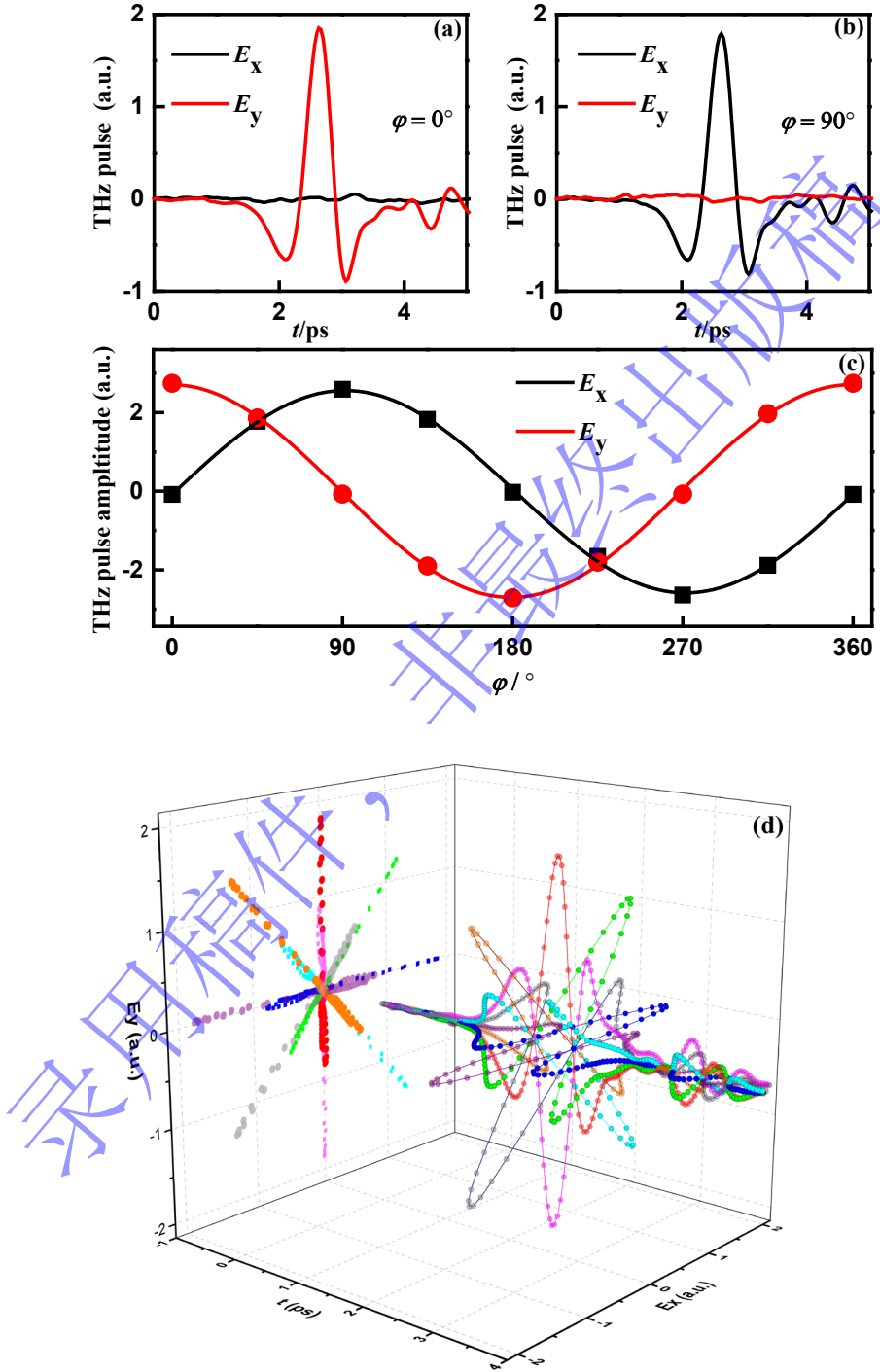


图 4 MgO(111)/Pt(1.5 nm)/IrMn(6 nm)/Cu(0.4 nm)/Fe(2 nm)/Pt(1.8 nm)在 $\varphi = 0^\circ$ (a)

和 $\varphi = 90^\circ$ (b) 时偏振方向分别沿 x 和 y 方向的太赫兹脉冲信号, 其中 φ 定义为交换偏置场方向在面内与 x 轴的夹角. (c) 太赫兹脉冲偏振方向沿 x 和 y 方向的分量随 φ 的变化关系, 实线代表用 cos 函数进行拟合的结果. (d) 不同 φ 下, 太赫兹脉冲的矢量分布示意图.

Figure 4. THz emission signals with x-directional and y-directional polarization for the MgO(111)/Pt(1.5 nm)/IrMn(6 nm)/Cu(0.4 nm)/Fe(2 nm)/Pt(1.8 nm) sample at $\varphi = 0^\circ$ (a) and $\varphi = 90^\circ$ (b), respectively. Where φ is defined as the relative angle between the direction of the exchange bias field and x axis. (c) x-directional and y-directional polarization THz pulse amplitude as a function of φ . Solid lines in (c) are fitting curves using a cosine function. (d) The distribution of THz emission signals vector at different φ .

最后, 将展示具有交换偏置的自旋太赫兹源在偏振调控上的巨大优势. 在通常的自旋太赫兹发射过程中, 由于太赫兹脉冲偏振方向总与铁磁金属磁化方向垂直, 如 (1) 式所示. 因此人们往往通过施加一个足够让铁磁金属饱和磁化的可旋转的外加磁场, 来调控太赫兹波的偏振方向. 而在这里, 利用了交换偏置的等效磁场来取代外磁场, 从而只需要旋转样品就可以实现对太赫兹波的偏振方向进行调控. 为了实现这个目标, 设计了一个集成到太赫兹发射系统的样品面内旋转托, 将具有交换偏置的样品进行旋转, 在不同的面内转角 (φ) 下测量了样品发射的太赫兹在 x 和 y 方向上的分量, φ 定义为交换偏置场在面内与 x 轴的夹角. 图 4 (a) 和图 4 (b) 给出了在 $\varphi = 0^\circ$ 和 $\varphi = 90^\circ$ 时太赫兹发射信号, 为了更好的反映太赫兹波偏振方向的旋转, 同时测量了太赫兹波在偏振方向沿 x 和 y 方向两个方向的结果, 发现只有极化方向沿着垂直于交换偏置的太赫兹波才能被观测到. 图 4 (c) 给出了两个偏振方向的太赫兹波振幅随着 φ 的变化曲线, 结果可以用标准的 cos 函数进行拟合, 表明对于具有交换偏置场的自旋太赫兹源, 只需要简单的旋转样品就可以对太赫兹的偏振方向进行调控. 将 x 和 y 方向上的太赫兹分量合成为矢量, 可获得不同转角方向下的太赫兹波形, 如图 4 (d) 所示. 从图中可以看出, 旋转样品, 出射的线偏振太赫兹波的偏振方向也会随之旋转, 进一步增加了其实用性.

4 结 论

设计了一种基于 IrMn/Fe/Pt 异质结构的无场自旋太赫兹波发生器, 利用反铁磁层 IrMn 与 Fe 界面的交换耦合而形成的交换偏置磁场来取代外磁场, 在零场下产生了可观的太赫兹信号. 其出射的太赫兹波的动态范围超过 60dB, 达到可实用化的水平. 为了提高样品在无场下的发射性能, 可以在 IrMn 和 Fe 的界面中插入超薄的 Cu 减小 Fe 的矫顽力和饱和场, 从而使 Fe 在零场下的剩磁比达到 100%, 并且其正向饱和场最高可达 -10 mT, 完全达到无场应用的标准. 将样品绕着其法线方向旋转, 发现产生的太赫兹波的偏振方向也会随之转动并且始终垂直于面内交换偏置场的方向. 此外, 通过引入一层自由铁磁金属 Fe, 制备出一种基于 IrMn/Fe/Pt/Fe 结构的自旋阀自旋太赫兹源, 其太赫兹发射强度在两层 Fe 的磁化强度呈反平行排列时会有大幅提升, 预估其结构设计上还有很大优化空间. 结果表明基于 IrMn/Fe/Pt 三层膜结构的自旋太赫兹源不仅可以在无外场下产生可观的太赫兹信号, 并且偏振方向可以通过旋转样品来进行调控, 假以时日有望在下一代太赫兹信号发生器中发挥重要的作用.

参考文献

- [1] Tonouchi M 2007 *Nat. Photonics* **1** 97
- [2] Neu J, Schmuttenmaer C A 2018 *J. Appl. Phys.* **124** 231101
- [3] Kampfrath T, Battiato M, Maldonado P, Eilers G, Notzold J, Mahrlein S, Zbarsky V, Freimuth F, Mokrousov Y, Blugel S, Wolf M, Radu I, Oppeneer P M, Munzenberg M 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 256
- [4] Seifert T, Jaiswal S, Martens U, Hannegan J, Braun L, Maldonado P, Freimuth F, Kronenberg A, Henrizi J, Radu I, Beaupaire E, Mokrousov Y, Oppeneer P M, Jourdan M, Jakob G, Turchinovich D, Hayden L M, Wolf M, Münzenberg M, Kläui M, Kampfrath T 2016 *Nat. Photonics* **10** 483
- [5] Feng Z, Yu R, Zhou Y, Lu H, Tan W, Deng H, Liu Q, Zhai Z, Zhu L, Cai J, Miao B, Ding H 2018 *Adv. Optical Mater.* **6** 1800965
- [6] Herapath R I, Hornett S M, Seifert T S, Jakob G, Klauui M, Bertolotti J, Kampfrath T, Hendry E 2019 *Appl. Phys. Lett.* **114** 041107

- [7] Wu Y, Elyasi M, Qiu X P, Chen M J, Liu Y, Ke L, Yang H 2017 *Adv. Mater.* **29** 1603031
- [8] Yang D W, Liang J H, Zhou C, Sun L, Zheng R, Luo S N, Wu Y Z, Qi J B 2016 *Adv. Optical Mater.* **4** 1944
- [9] Sasaki Y, Kota Y, Iihama S, Suzuki K Z, Sakuma A, Mizukami S 2019 *Phys. Rev. B* **100** 140406(R)
- [10] Schneider R, Fix M, Heming R, de Vasconcellos S M, Albrecht M, Bratschitsch R 2018 *Acs Photonics* **5** 3936
- [11] Nandi U, Abdelaziz M S, Jaiswal S, Jakob G, Gueckstock O, Rouzegar S M, Seifert T S, Klaui M, Kampfrath T, Preu S 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 022405
- [12] Torosyan G, Keller S, Scheuer L, Beigang R, Papaioannou E T 2018 *Sci. Rep.* **8** 1311
- [13] Li J G, Jin Z M, Song B J, Zhang S N, Guo C Y, Wan C H, Han X F, Cheng Z X, Zhang C, Lin X, Ma G H, Yao J Q 2019 *Jpn. J. Appl. Phys.* **58** 090913
- [14] Nogues J, Schuller I K 1999 *J. Magn. Magn. Mater.* **192** 203
- [15] Gokemeijer N J, Ambrose T, Chien C L 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 4270
- [16] Liu T, Zhu T, Cai J W, Sun L 2011 *J. Appl. Phys.* **109** 094504
- [17] Zhang H, Feng Z, Zhang J, Bai H, Yang H, Cai J, Zhao W, Tan W, Hu F, Shen B, Sun J 2020 *Phys. Rev. B* **102** 024435
- [18] Zou L K, Zhang Y, Gu L, Cai J W, Sun L 2016 *Phys. Rev. B* **93** 075309
- [19] Fix M, Schneider R, de Vasconcellos S M, Bratschitsch R, Albrecht M 2020 *Appl. Phys. Lett.* **117** 132407
- [20] Zhang Q, Yang Y, Luo Z, Xu Y, Nie R, Zhang X, Wu Y 2020 *Phys. Rev. Appl.* **13** 054016

Field-free spintronic terahertz emitters based on IrMn/Fe/Pt exchange bias heterostructures*

Zhaozhao Zhu^{1) 2)} Zheng Feng^{3) 4)} † Jian-Wang Cai^{1) 2)}

1) (Beijing National Laboratory for Condensed Matter, Institute of Physics,
Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, People's Republic of China)

2) (School of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences,
Beijing 100049, People's Republic of China)

3) (Microsystem and Terahertz Research Center, China Academy of Engineering Physics,
Chengdu 610200, China)

4) (Institute of Electronic Engineering, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621999,
China)

Abstract

Spintronic terahertz (THz) emitter has the advantages such as lower cost, broader spectrum and easier operation compared with the commercial THz emitters, and thus has become the focus of research towards the next generation THz source. However, in such spintronic THz emitter, an external magnetic field is technological required to align the orientations of the magnetization, which is detrimental for practical applications. Here, a spintronic terahertz emitters based on IrMn/Fe/Pt exchange bias structure is presented. By means of ultrafast spin injection on Fe/Pt interface followed by the spin-to-charge conversion in Pt, plus the effective magnetic field originating from the IrMn/Fe interface, THz pulse with considerable intensity can be generated in such structure without the assist of external field. Besides, the remanent magnetization for thin Fe is enhanced by the insertion of ultrathin Cu to IrMn/Fe interface, which is

beneficial to the field-free THz emission. The range of obtained dynamic THz spectrum exceeds 60 dB and the positive saturation field can reach up to ~ -10 mT by optimizing the multilayer thickness, meeting the standard for commercial application. By rotating the sample, it is found that the polarization direction of the generated THz wave circulates simultaneously and keeps perpendicular to the direction of exchange bias field in the film plane. Moreover, we designed a spin valve THz emitter based on the structure of IrMn/Fe/Pt/Fe by adding a free ferromagnetic Fe layer to the exchange bias multilayers. The emitted THz pulse amplitude is larger for the antiparallel alignment of the Fe layers at zero field compared with the parallel alignment or exchange bias structure. The work show that the spin terahertz emitter based on IrMn/Fe/Pt exchange bias structure can produce considerable terahertz signal without external field. What's more, the polarization direction of the emitted THz signal can be easily manipulated by rotating the sample. Because of this series of advantages, such exchange bias heterostructures is expected to play an important role in the design of next generation THz source.

Keywords: Terahertz (THz), exchange bias, ultrafast spin transport, magnetic heterostructure

* Project supported by the Science Challenge Project, China (Grant No. TZ2018003), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 62027870).