

铁磁异质结构中的超快自旋流调制实现相干太赫兹辐射

张顺浓 朱伟骅 李炬赓 金钻明 戴晔 张宗芝 马国宏 姚建铨

Coherent terahertz radiation via ultrafast manipulation of spin currents in ferromagnetic heterostructures

Zhang Shun-Nong Zhu Wei-Hua Li Ju-Geng Jin Zuan-Ming Dai Ye Zhang Zong-Zhi Ma Guo-Hong Yao Jian-Quan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 197202 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20181178

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20181178>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I19>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[垂直自由层倾斜极化层自旋阀结构中的磁矩翻转和进动](#)

Magnetization reversal and precession in spin valve structures with a perpendicular free layer and a tilted polarizer layer

物理学报.2017, 66(12): 127201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.127201>

[三阶分布反馈太赫兹量子级联激光器的远场分布特性](#)

Far-field analysis of third-order distributed feedback terahertz quantum cascade lasers

物理学报.2017, 66(9): 099501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.66.099501>

[铁磁/重金属双层薄膜结构中磁性状态的稳定性分析](#)

Stability of magnetization states in a ferromagnet/heavy metal bilayer structure

物理学报.2015, 64(13): 137201 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.137201>

[铁磁绝缘体间的极薄 \$\text{Bi}_2\text{Se}_3\$ 薄膜的相变研究](#)

Phase transition of ultrathin Bi_2Se_3 film sandwiched between ferromagnetic insulators

物理学报.2013, 62(3): 037202 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.037202>

铁磁异质结构中的超快自旋流调制 实现相干太赫兹辐射*

张顺浓¹⁾ 朱伟骅²⁾ 李炬赓¹⁾ 金钴明^{1)3)†} 戴晔¹⁾ 张宗芝^{2)‡}
马国宏^{1)3)††} 姚建铨⁴⁾

1) (上海大学理学院物理系, 上海 200444)

2) (复旦大学信息科学与工程学院, 上海 200082)

3) (上海科技大学-上海光机所超强超快联合实验室, 上海 201210)

4) (天津大学精密仪器与光电子工程学院, 天津 300110)

(2018年6月15日收到; 2018年7月26日收到修改稿)

利用飞秒激光脉冲在生长于二氧化硅衬底上的W/CoFeB/Pt和Ta/CoFeB/Pt两类铁磁/非磁性金属异质结构中实现高效、宽带的相干THz脉冲辐射. 实验中, THz脉冲的相位随外加磁场的反转而反转, 表明THz辐射与样品的磁有序密切相关. 为了考察三层膜结构THz辐射的物理机制, 分别研究了构成三层膜结构的双层异质结构(包括CoFeB/W, CoFeB/Pt和CoFeB/Ta)的THz辐射. 实验结果都与逆自旋霍尔效应相符合, W/CoFeB/Pt和Ta/CoFeB/Pt三层膜结构所辐射的THz强度优于同等激发功率下的ZnTe(厚度0.5 mm)晶体. 此外, 还研究了两款异质结构和ZnTe的THz辐射强度与激发光脉冲能量密度的关系, 发现Ta/CoFeB/Pt的饱和能量密度略大于W/CoFeB/Pt的饱和能量密度, 表明自旋电子在Ta/CoFeB/Pt中的界面积累效应相对较小.

关键词: 太赫兹波, 超快光谱, 自旋流, 逆自旋霍尔效应

PACS: 72.25.-b, 95.85.Gn, 78.47.D-, 71.70.Ej

DOI: 10.7498/aps.67.20181178

1 引言

太赫兹(Terahertz, THz)波介于远红外和微波之间, 覆盖频率范围从0.1—10 THz^[1-3]. THz波不仅在医学成像、安全检查、产品检测、空间通信等领域有广泛的应用前景^[4-7], 而且THz脉冲是凝聚态物质中许多低能量元激发的共振探针^[8]. THz科学技术发展的关键问题之一是THz源^[9,10]. 基于光子学方法的THz源主要包括: 碲化锌(ZnTe)

光整流效应^[11,12]和低温生长的砷化镓(LT-GaAs)光电导天线产生THz脉冲^[13,14]. 这两种方法具有成熟度高、产生THz脉冲的电场强度高、稳定性好等优点. 除了光整流和光电导天线, 基于光子学的THz辐射源还包括空气等离子体、非线性光混频、自由电子激光器等. 考虑新的材料体系、新的物理起源和新的微纳结构设计THz辐射源一直是THz科学技术领域重要的研究方向.

2004年, 法国科学家Beaurepaire等^[15]首次利用飞秒激光脉冲诱导Ni薄膜产生皮秒量级的THz

* 国家自然科学基金(批准号: 11604202, 11674213, 61735010, 51671057, 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: zzzhang@fudan.edu.cn

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

电磁辐射,并将这种电磁辐射归结于磁性材料的超快退磁.同年,Hilton等^[16]利用飞秒激光脉冲激发Fe薄膜也观测到了THz波辐射.2012年,Shen等^[17]研究了Ni-Fe合金中超快退磁辐射THz峰值与材料磁进动阻尼系数之间的关联.2015年,Nishant等^[18]报道飞秒激光脉冲在Co薄膜中辐射THz波,并且给出薄膜厚度与THz辐射强度的依赖关系.2013年,Gorelov等^[19]在钽镓石榴石(TGG)磁光晶体中发现基于逆法拉第效应辐射切伦科夫型THz波.2015年,Mikhaylovskiy等^[20,21]利用飞秒激光激发稀土铁氧化物TmFeO₃和ErFeO₃单晶,通过交换相互作用的超快光调制辐射自旋波频率的THz波.尽管许多研究表明,磁有序材料在飞秒激光辐照下能产生THz辐射,然而基于磁有序材料的THz辐射强度相比于ZnTe晶体而言可忽略不计,很难成为THz辐射源的候选材料.值得注意的是,德国科学家Kampfrath等^[22]在2013年首次利用飞秒激光脉冲激发铁磁/非磁金属异质结构(Fe/Au和Fe/Ru),通过逆自旋霍尔效应实现强THz辐射.通过实验中测到的远场THz辐射脉冲,根据传播函数计算得到近场THz脉冲,并以之重构瞬态电荷流动力学,其超快动力学过程的时间尺度大约在1 ps左右^[22].经过铁磁层和非磁金属层材料的甄选以及样品结构(包括构成异质结构的每一层材料厚度)等的进一步优化,铁磁/非磁金属异质结构所辐射的THz波强度已经能与ZnTe晶体相媲美^[23-25].特别是厚度为5.6 nm的W/CoFeB/Pt三层膜结构在激光振荡器(重复频率为80 MHz)产生的10 fs, 1 nJ的飞秒激光脉冲激发后,能产生1—30 THz频谱上无间断的THz脉冲.研究表明,三层膜结构的THz能量转换效率甚至优于基于激光振荡器在0.25 mm的GaP(110), 1 mm的ZnTe(110)以及光电导天线中的THz辐射^[26].最近一系列的研究结果极大地激发了包括自旋电子学领域、超快光谱学领域以及THz科学与技术领域科研人员广泛的研究兴趣^[27-30].

先前的研究报道中,所用的飞秒激光器的激发能量密度小于0.5 mJ/cm²,目的在于展示飞秒激光振荡器实现高效THz辐射的能力.当然,对于自旋电子学的THz发射器而言,由激光放大器产生的毫焦级飞秒光脉冲驱动THz辐射源的效果和能力仍有待研究.本文以飞秒激光放大器输出的120 fs激光脉冲入射到铁磁/非磁金属三层膜异质结构中,

产生了实用、宽带、偏振可调谐的相干THz辐射.所得THz脉冲宽度约1.2 ps,频谱范围0—2.5 THz.通过改变施加的磁场方向,改变光入射样品中铁磁和非磁层的顺序,以及比较两个三层膜结构所辐射的THz脉冲等实验结果,证实逆自旋霍尔效应是产生THz辐射的主要物理机制.实验研究THz辐射强度与激发光能量密度的关系,并比较了基于自旋流的异质结构和ZnTe晶体的饱和光能量密度.我们认为异质结构中THz辐射的饱和现象可以解释为高激发能量密度下自旋流在铁磁层和非磁金属层界面的积累效应.

2 实验

室温下,在双面抛光的熔融石英(SiO₂)衬底上,通过低成本、高成膜质量的磁控溅射法,在超真空腔中(1×10^{-8} Torr)生长纳米级厚度的三层膜异质结构NM₁/FM/NM₂.两层非磁性金属(NM)层NM₁为Pt, NM₂为W或者Ta.两层NM之间夹一层铁磁(FM)层Co₂₀Fe₆₀B₂₀,如图1所示.本文制备的两种三层膜结构分别为SiO₂(500 μm)/W(4 nm)/Co₂₀Fe₆₀B₂₀(4nm)/Pt(4 nm)和SiO₂(500 μm)/Ta(4 nm)/Co₂₀Fe₆₀B₂₀(4 nm)/Pt(4 nm).溅射中使用高纯的W, Pt, Ta和Co₂₀Fe₆₀B₂₀靶材来制备样品,溅射速率用台阶仪定标,分别为0.034, 0.050, 0.042和0.022 nm/s.实验中,通过改变溅射时间来控制样品厚度.各层的膜厚控制精度为4.0 nm ± 0.2 nm.图1(c)所示为我们设计的自旋电子学THz发射器结构.

如图1(a)所示,实验中使用钛宝石激光放大器系统(Spitfire Pro),其输出激光脉冲中心波长800 nm,脉冲宽度约为120 fs,重复频率1 kHz.准直光束垂直入射到异质结构表面.W/CoFeB/Pt异质结构的磁化曲线如图1(d)所示.异质结构的面内磁化可用永磁体所产生的±200 mT磁场所饱和.为了使抽运脉冲与THz辐射脉冲在光路中分离,在异质结构辐射THz光束后,用聚四氟乙烯片挡住多余的抽运光.通过常规的电光(EO)取样方法来记录瞬态THz电场;将THz光束和800 nm取样光束聚焦到(110)取向的ZnTe(1 mm)EO晶体中;用平衡桥光电探测器记录THz电场所诱导的取样光椭圆率信号;所有实验都在室温及干燥氮气氛围中进行.

当近红外飞秒抽运脉冲激发FM/NM异质结构时,会在铁磁层中产生瞬态非平衡电子分布.重要的是,铁磁层中的多数自旋电子和少数自旋电子的输运特性显著不同(包括寿命、载流子密度和电子迁移率).光激发的多数自旋电子具有类sp带电子特征,比类d带的少数自旋电子的输运速度快,即实现自旋流的超快光注入^[31-34].与自旋依赖的塞贝克效应类似,自旋流的极化方向与样品的磁化方向一致^[35].自旋流从铁磁层注入相邻的非金属层,非金属层材料由于强的自旋轨道耦合导致电子产生自旋依赖的偏转,称为逆自旋霍尔效应(ISHE).如图1(c)所示,ISHE将飞秒激光诱导的

自旋流($\pm J_s$)转换成亚皮秒时间尺度上的横向(沿着y轴)电荷流 $J_c \propto \gamma J_s \times n$,其中 γ 是自旋霍尔角, n 是自旋极化的单位矢量.电荷流的大小不仅与 γ 相关,还取决于入射激光的能量密度、整个异质结构的厚度以及自旋流在非金属覆盖层中的弛豫长度^[29,30].如图1(b)所示,瞬态电荷流 J_c 将辐射THz电磁脉冲^[29,30],

$$E_{\text{THz}}(\omega) = \frac{eZ_0}{n_1 + n_2 + Z_0 \int_0^d dz \sigma(\omega, z)} J_c(\omega), \quad (1)$$

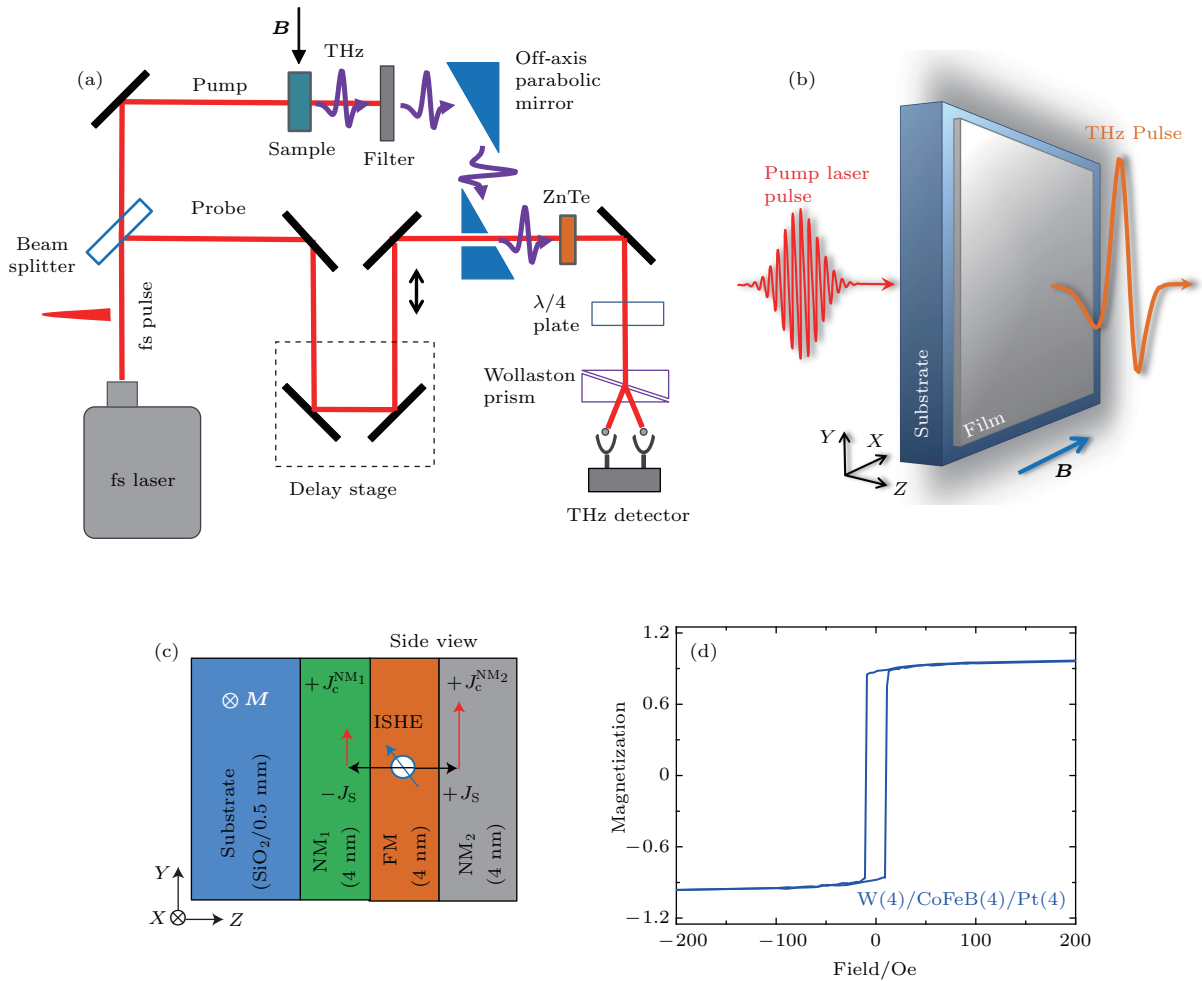


图1 (a) THz发射光谱实验装置图; (b) 基于自旋电子学结构的太赫兹发射器,飞秒激光脉冲将来自铁磁(FM)层(具有面内磁化M)的自旋流 J_s 注入相邻的非金属(NM)层中; (c) 逆自旋霍尔效应(ISHE)将这些自旋电流转换成垂直于磁化强度的面内电荷流 J_c , NM_1 和 NM_2 具有符号相反的自旋霍尔角导致两层NM层中的亚皮秒电荷流相互叠加; (d) W/CoFeB/Pt三层膜结构沿平行膜面方向的磁滞回线

Fig. 1. (a) Experimental setup for THz generation; (b) THz emitter based on spintronic heterostructures, femtosecond laser pulse excites ferromagnetic (FM) layer (in-plane magnetization M), the spin current J_s injects into the adjacent non-ferromagnetic (NM) layers; (c) inverse spin Hall effect (ISHE) transforms the spin current into an in-plane transverse charge current J_c , an enhanced sub-picosecond charge current is produced within NM_1 and NM_2 , which have opposite spin Hall angles; (d) magnetic hysteresis loop for W/CoFeB/Pt with magnetic field lies in the film plane.

其中, n_1 和 n_2 是衬底和空气的折射率, e 代表电荷, $Z_0 \approx 377 \Omega$ 为真空阻抗, σ 为 z 方向上的金属电导率. 因此, 要进一步提高 THz 辐射效率, 不仅要选择自旋轨道耦合强的非磁金属层, 而且需要综合考虑以上参数才能得到高效 THz 辐射. 基于不同厚度的 CoFeB/Ru, CoFeB/Pd 和 CoFeB/Pt 辐射 THz 波的实验结果 [36], 实验中我们选取了厚度为 4 nm 的 Pt 作为 NM₂ 材料. 三层膜结构中的另外一个金属层我们选取的是与 Pt ($\gamma = 0.08$) 的自旋霍尔角符号相反的 W ($\gamma = -0.30$) 和 Ta ($\gamma = -0.15$) [37]. 如图 1(c) 所示, NM₁/FM/NM₂ 三层膜结构中, 自旋流 ($\pm \mathbf{J}_s$) 在 NM₂(Pt) 和 NM₁(W 或 Ta) 中产生的瞬态电荷流相位一致, 即 $\mathbf{J}_c = J_c^{NM_1} + J_c^{NM_2}$. 因此, 我们预期三层膜结构能产生比双层异质结构 CoFeB/Pt 更强的 THz 辐射.

3 结果与讨论

在进行三层膜样品测试之前, 首先研究了组成三层膜结构的双层膜的 THz 发射信号. 图 2(a) 为在干燥氮气环境下, 实验所记录的 CoFeB/Pt, CoFeB/W 和 CoFeB/Ta 典型的 THz 电光取样信号. 可以看出 CoFeB/Pt 的 THz 辐射脉冲的峰峰值远大于 CoFeB/W 和 CoFeB/Ta 的 THz 辐射强度. CoFeB/W 的 THz 辐射峰峰值略大于 CoFeB/Ta 的辐射强度. 此外, 值得注意的是 CoFeB/W 和 CoFeB/Ta 所辐射的 THz 脉冲的相位与 CoFeB/Pt 辐射的 THz 脉冲相位呈 π 相位反转, 这是由于 W 和 Ta 的自旋霍尔角 γ 的符号与 Pt 的相反 [38]. 此外, THz 辐射的相位随磁场的反向发生 π 相位反转, 所辐射的 THz 脉冲的线偏振方向垂直于样品的面内磁化方向. 实验结果表明 THz 辐射的产生机制确实与样品的磁有序有关.

基于双层膜的实验结果, 研究了两类三层膜结构 W/CoFeB/Pt 和 Ta/CoFeB/Pt 的 THz 辐射. 如图 1(c) 和图 2(a) 所示, 由于 Pt 和 W (Ta) 的自旋霍尔角的符号相反, 光激发自旋流注入到 Pt 层和 W (Ta) 层后所转换成的电荷流的相位相同, 从而能相干增强 THz 辐射. 这一预言在实验上得到了证实, 如图 2(b) 和图 2(c) 所示, 可以看到两类 FM/NM 三层膜结构的 THz 辐射强度都高于 CoFeB/Pt. 具体而言, 当激光能量密

度为 1.4 mJ/cm^2 , W/CoFeB/Pt 和 Ta/CoFeB/Pt 的 THz 峰峰值相比于 CoFeB/Pt 分别高了 9.6% 和 0.8%. 实验观察到, THz 脉冲的半高全宽约为 1.2 ps. 可以通过外加一个小磁场 ($B = 200 \text{ mT}$) 改变异质结构的面内磁化方向, 从而改变 THz 辐射的

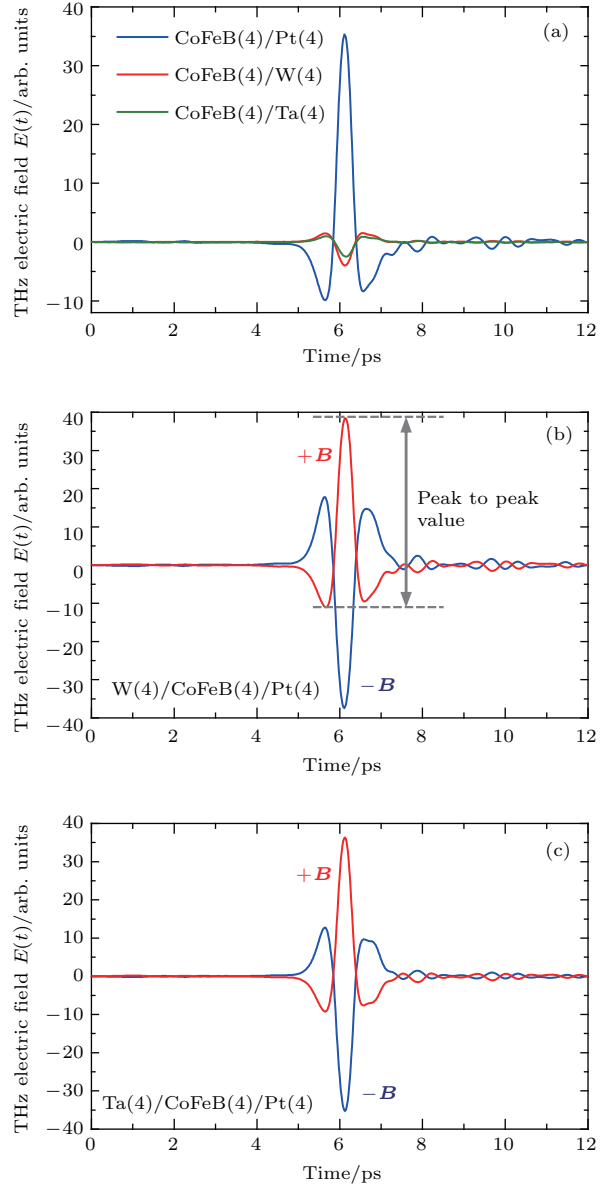


图 2 (a) 双层膜异质结构 CoFeB/Pt, CoFeB/W, CoFeB/Ta 典型的 THz 电光取样信号; (b) W/CoFeB/Pt 和 (c) Ta/CoFeB/Pt 在面内磁化方向相反的情况下, THz 辐射脉冲的电光取样信号, 红色和蓝色曲线分别代表磁场方向为 $+B$ 和 $-B$ 时的 THz 脉冲信号; 括号内的数字表示该层膜的厚度, 单位为 nm
 Fig. 2. (a) Typical electric field of the THz radiation from the heterostructures of CoFeB/Pt, CoFeB/W, CoFeB/Ta, respectively; THz radiation signals from (b) W/CoFeB/Pt and (c) Ta/CoFeB/Pt for two opposite directions of the magnetic field, $+B$ (red curve) and $-B$ (blue curve), respectively. The numbers in parentheses indicate the thickness of the layer, unit is nm.

线偏振方向. 图 2(b) 和图 2(c) 中, 我们反转了外加磁场的方向 ($+B \rightarrow -B$), 可以看到 THz 脉冲的相位完全反转. 所有实验结果都符合我们对自旋电子学器件基于 ISHE 实现 THz 发射过程的理解 [39,40].

文献 [41, 42] 报道, THz 相干脉冲和激光加热铁磁金属产生非相干黑体辐射都对 THz 辐射有贡献. Seifert 等 [26] 的实验结果表明到达探测器的黑体辐射比相干 THz 辐射的功率小得多. 实际上, NM/FM 异质结构的瞬时温度以及由此产生的黑体辐射不能跟上抽运光功率的调制频率. 另外, 来自样品的黑体辐射基本不受外加磁场的影响. 因此, 本工作中基于斩波器-锁相放大器获得的是相干 THz 脉冲辐射.

值得注意的是, 铁磁层吸收飞秒激光脉冲产生的超快退磁也可能产生相干 THz 脉冲 [43,44]. 基于超快退磁效应, 铁磁层所产生的 THz 相干辐射被认为与样品的构置方向 (对称性) 无关. 即光辐照与 Pt/CoFeB 和 CoFeB/Pt 所产生的 THz 脉冲的相位应该保持一致. 然而, 这与所观察到的实验结果相反, 实验中测得的 THz 脉冲的相位强烈地取决于光脉冲经过铁磁层 (CoFeB) 和金属层 (Pt 和 W) 的顺序. 如图 3 所示, 飞秒激光从衬底一侧入射和从金属 Pt 一侧入射情况下 THz 辐射的时域波形. 当样品被磁化到一个方向 (固定外磁场的施加方向), 改变激光入射的顺序, 可以看到 THz 波形的极性发生 180° 反转. 原因在于反转样品, 相当于反转了自旋流的流向 ($\mathbf{J}_s \rightarrow -\mathbf{J}_s$). 根据逆自旋霍尔效应, $-\mathbf{J}_c = (-\mathbf{J}_s) \times \mathbf{M}$, 反向电荷流实现 THz 辐射的相位 180° 反转 ($-E(t) \propto -\frac{\partial J_c}{\partial t}$). 根据实验结果得到的结论是: 对于磁性/非磁金属异质结构的 THz 相干辐射而言, 退磁效应的贡献很小甚至可以忽略不计, 基于自旋流扩散的 ISHE 效应占绝对主导地位.

如图 4(a) 所示, 在时域上, 我们对三层膜异质结构的 THz 辐射与 0.5 mm 厚 ZnTe 晶体辐射的 THz 脉冲进行比较. 实验所用的飞秒激光能量密度为 1.4 mJ/cm^2 . 实验结果表明, W/CoFeB/Pt 和 Ta/CoFeB/Pt 所辐射的 THz 脉冲峰峰值超过了相同实验条件下 0.5 mm 的 ZnTe (110) 晶体的辐射强度. 将图 4(a) 中的时域脉冲 $E_{\text{THz}}(t)$ 经过傅里叶变换得到复振幅谱 $|E_{\text{THz}}(\omega)|$, 如图 4(b) 所示. 可见, 在 120 fs 的激光脉冲激发下, 自旋电子学异质结构的 THz 辐射频谱宽度与 ZnTe 晶体的相近, 频谱范

围覆盖了 0—2.5 THz, 已经完全符合桌面式 THz 时域光谱的应用需求.

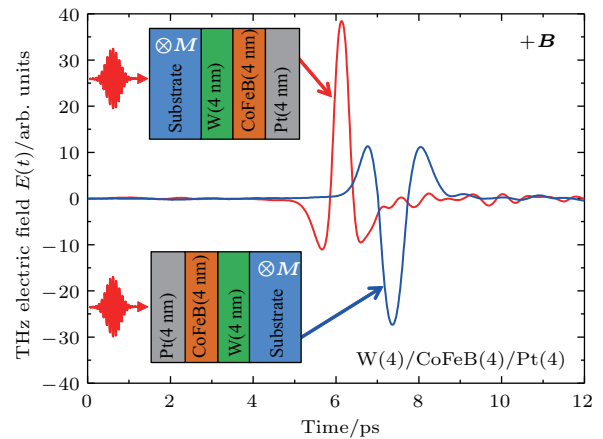


图 3 异质结构 W/CoFeB/Pt 与激发光束在不同的构置下产生的 THz 脉冲, 实验中外磁场的方向固定为 $+B$
 Fig. 3. The orientation of the structures with respect to the pump beam and the generated THz pulses for W/CoFeB/Pt layer structure, measured under the magnetic field of $+B$.

图 5 给出了两个 FM/NM 异质结构 THz 发射脉冲的峰峰值随抽运光能量密度 F_P 的依赖关系. 增加激光的能量密度指的是: 保持激光的光斑大小不变, 通过改变中性可调衰减片以改变激光的功率, 从而增加或减小入射到样品表面的激光能量密度. 在实验所用的抽运光能量密度范围内, THz 脉冲波形的峰峰值随着激光能量密度的增加而增加, 最终趋于饱和. 实验数据可以通过饱和公式 $E_{\text{THz}}(F_P) \propto F_P / (F_P + F_{\text{sat}})$ 描述 [45], 式中的 F_P 是抽运光能量密度, F_{sat} 是饱和能量密度. 拟合结果如图 5 所示, W/CoFeB/Pt 和 Ta/CoFeB/Pt 的 THz 辐射饱和能量密度分别为 $F_{\text{sat}} = 0.47 \text{ mJ/cm}^2$ 和 0.61 mJ/cm^2 , 小于先前报道的 Fe/Ru 双层膜结构中 THz 辐射的饱和能量密度 1 mJ/cm^2 .

研究表明, 饱和能量密度可以定性描述自旋流在金属覆盖层中的自旋积累效应 [36]. 因此在高的抽运光能量密度下, 自旋积累效应限制了金属层中的自旋极化电子的密度, 从而减缓了 THz 辐射随抽运光增加而增长的趋势. 实验结果表明, Ta/CoFeB/Pt 的饱和能量密度略大于 W/CoFeB/Pt, 这表明相比于 W, Ta 覆盖层中的自旋积累效应相对较小. 目前的实验结果表明, 两种三层膜 Ta/CoFeB/Pt 和 W/CoFeB/Pt 异质结构在高的激发能量密度下所辐射的 THz 峰峰值

均大于0.5 mm厚的ZnTe晶体在相同实验条件下的辐射强度. 此外, 实验结果表明, 异质结构所辐射的THz脉冲的频谱宽度基本上与抽运光能

量密度无关. 现有的研究表明, THz脉冲的频谱宽度主要由瞬态自旋流动力学的变化快慢所决定^[24–27,36].

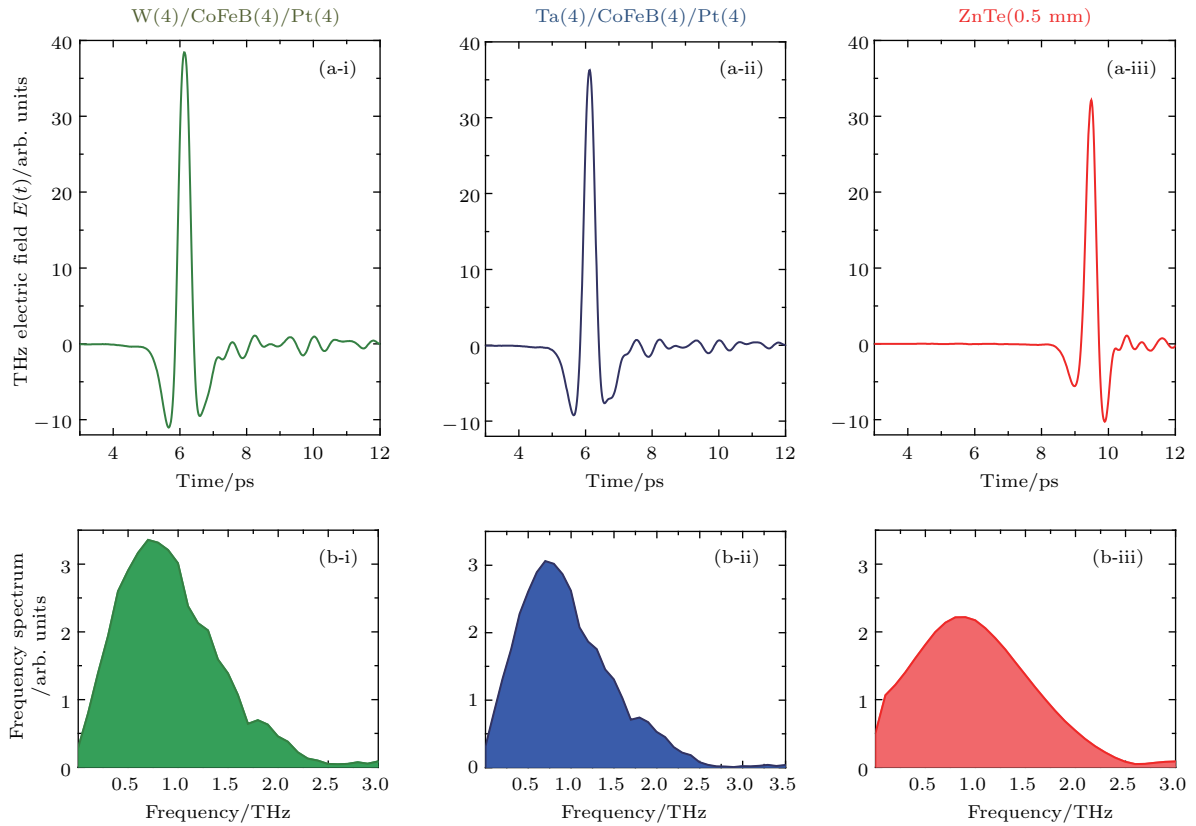


图4 三层膜异质结构 W/CoFeB/Pt 和 Ta/CoFeB/Pt 与 0.5 mm 厚 ZnTe (110) 晶体辐射 THz 脉冲在 (a) 时域上和 (b) 频域上的比较结果

Fig. 4. THz radiation from the heterostructures of W/CoFeB/Pt and Ta/CoFeB/Pt, compared with 0.5 mm-thickness ZnTe (110) in (a) time- and (b) frequency-domain.

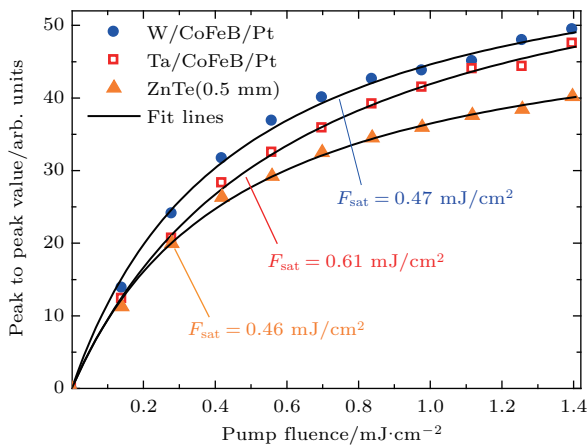


图5 W/CoFeB/Pt 和 Ta/CoFeB/Pt 异质结构以及 ZnTe 的 THz 辐射峰峰值随入射光脉冲能量密度的关系, 图中的符号为实验数据, 黑色实线为拟合结果

Fig. 5. The peak to peak values of THz radiation as a function of incident pump fluence for W/CoFeB/Pt, Ta/CoFeB/Pt, and ZnTe, respectively. The symbols are raw data and the black lines are fitting curves.

4 结 论

本文设计了两种铁磁/非磁金属异质结构 THz 辐射器, 首先验证其 THz 辐射的物理机制主要源于逆自旋霍尔效应. 其次, 比较了三层膜 W/CoFeB/Pt 和 Ta/CoFeB/Pt 异质结构辐射 THz 相干脉冲的能力. 在实验所用的光能量密度范围内, W/CoFeB/Pt 的 THz 辐射强度略高于 Ta/CoFeB/Pt, 然而 Ta/CoFeB/Pt 的 THz 饱和能量密度略大于 W/CoFeB/Pt. 通过 THz 辐射的饱和能量密度, 可以定性分析金属覆盖层中自旋极化电子的累积效应. 本工作处于自旋电子学 THz 辐射源研制的起步阶段, 不仅抽运脉冲的激发能量和脉冲持续时间尚需优化, 就发射器本身而言, 包括其工作温度、铁磁和非磁金属层材料的选择、组成的序列及其级联发射配置等都值得进一步改进

和优化。目前的实验结果和国内外研究进展表明，基于铁磁/非磁性金属异质结构逐渐成为宽带相干 THz 脉冲辐射的一种有效方案。

参考文献

- [1] Tonouchi M 2007 *Nat. Photon.* **1** 97
- [2] Ferguson B, Zhang X C 2002 *Nat. Mater.* **1** 26
- [3] Jin Z, Tkach A, Casper F, Spetter V, Grimm H, Thomas A, Kampfrath T, Bonn M, Kläui M, Turchinovich D 2015 *Nat. Phys.* **11** 761
- [4] Ulbricht R, Hendry E, Shan J, Heinz T F, Bonn M 2011 *Rev. Mod. Phys.* **83** 543
- [5] Fischer B M, Walther M, Jepsen P U 2002 *Phys. Med. Biol.* **47** 3807
- [6] Siegel P H 2004 *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* **52** 2438
- [7] Zhang R, Li H, Cao J C, Feng S L 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 4618 (in Chinese) [张戎, 黎华, 曹俊诚, 封松林 2009 物理学报 **58** 4618]
- [8] Jin Z, Mics Z, Ma G, Cheng Z, Bonn M, Turchinovich D 2013 *Phys. Rev. B* **87** 094422
- [9] Lewis R A 2014 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **47** 374001
- [10] Wang W M, Zhang L L, Li Y T, Sheng Z M, Zhang J 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 124202 (in Chinese) [王伟民, 张亮亮, 李玉同, 盛政明, 张杰 2018 物理学报 **67** 124202]
- [11] Nahata A, Welington A S, Heinz T F 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 2321
- [12] Zhong K, Yao J Q, Xu D G, Zhang H Y, Wang P 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 034210 (in Chinese) [钟凯, 姚建铨, 徐德刚, 张会云, 王鹏 2011 物理学报 **60** 034210]
- [13] Matsuura S, Tani M, Sakai K 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 559
- [14] Shi W, Yan Z J 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 228702 (in Chinese) [施卫, 闫志巾 2015 物理学报 **64** 228702]
- [15] Beaurepaire E, Turner G M, Harrel S M, Beard M C, Bigot J Y, Schmuttenmaer C A 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 3465
- [16] Hilton D J, Averitt R D, Meserole C A, Fisher G L, Funk D J, Thompson J D, Taylor A J 2004 *Opt. Lett.* **29** 1805
- [17] Shen J, Fan X, Chen Z, de Camp M F, Zhang H, Xiao J Q 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 072401
- [18] Nishant K, Hendrikx R W, Adam A J, Planken P C 2015 *Opt. Express* **23** 14252
- [19] Gorelov S D, Mashkovich E A, Tsarev M V, Bakunov M I 2013 *Phys. Rev. B* **88** 220411
- [20] Mikhaylovskiy R V, Hendry E, Kruglyak V V, Pisarev R V, Rasing T, Kimel A V 2014 *Phys. Rev. B* **90** 184405
- [21] Mikhaylovskiy R V, Hendry E, Secchi A, Mentink J H, Eckstein M, Wu A, Pisarev R V, Kruglyak V V, Katsnelson M I, Rasing T, Kimel A V 2015 *Nature Commun.* **6** 8190
- [22] 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, Münzenberg M 2013 *Nature Nanotech.* **8** 256
- [23] Wu Y, Elyasi M, Qiu X, Chen M, Liu Y, Ke L, Yang H 2017 *Adv. Mater.* **29** 1603031
- [24] Yang D, Liang J, Zhou C, Sun L, Zheng R, Luo S, Wu Y, Qi J 2016 *Adv. Opt. Mater.* **4** 1944
- [25] Qiu H S, Kato K, Hirota K, Sarukura N, Yoshimura M, Nakajima M 2018 *Opt. Express* **26** 15247
- [26] Seifert T, Jaiswal S, Martens U, Hannegan J, Braun L, Maldonado P, Freimuth F, Kronenberg A, Henrizi J, Radu I, Beaurepaire E, Mokrousov Y, Oppeneer P M, Jourdan M, Jakob G, Turchinovich D, Hayden L M, Wolf M, Münzenberg M, Kläui M, Kampfrath T 2016 *Nature Photon.* **10** 483
- [27] Seifert T, Jaiswal S, Sajadi M, Jakob G, Winnerl S, Wolf M, Kläui M, Kampfrath T 2017 *Appl. Phys. Lett.* **110** 252402
- [28] Seifert T, Martens U, Günther S, Schoen M A W, Radu F, Chen X Z, Lucas I, Ramos R, Aguirre M H, Algarabel P A, Anadón A, Körner H S, Walowski J, Back C, Ibarra M R, Morellón L, Saitoh E, Wolf M, Song C, Uchida K, Münzenberg M, Radu I, Kampfrath T 2017 *Spin* **7** 1740010
- [29] Torosyan G, Keller S, Scheuer L, Beigang R, Papaioannou E T 2018 *Sci. Rep.* **8** 1311
- [30] Sasaki Y, Suzuki K Z, Mizukami S 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 102401
- [31] Battiato M, Carva K, Oppeneer P M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 027203
- [32] Eschenlohr A, Battiato M, Maldonado P, Pontius N, Kachel T, Holldack K, Mitzner R, Föhlich A, Oppeneer P M, Stamm C 2013 *Nat. Mater.* **12** 332
- [33] Melnikov A, Razdolski I, Wehling T O, Papaioannou E T, Roddatis V, Fumagalli P, Aktsipetrov O, Lichtenstein A I, Bovensiepen U 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 076601
- [34] Rudolf D, Chan L O, Battiato M, Adam R, Shaw J M, Turgut E, Maldonado P, Mathias S, Grychtol P, Nembach H T, Silva T J, Aeschlimann M, Kapteyn H C, Murnane M M, Schneider C M, Oppeneer P M 2012 *Nature Commun.* **3** 1037
- [35] Cramer J, Seifert T, Kronenberg A, Fuhrmann F, Jakob G, Jourdan M, Kampfrath T, Kläui M 2018 *Nano Lett.* **18** 1064
- [36] Zhang S, Jin Z, Zhu Z, Zhu W, Zhang Z, Ma G, Yao J 2018 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51** 034001
- [37] Hao Q, Xiao G 2015 *Phys. Rev. Appl.* **3** 034009
- [38] Tanaka T, Kontani H, Naito M, Naito T, Hirashima D S, Yamada K, Inoue J 2008 *Phys. Rev. B* **77** 165117
- [39] Huisman T J, Mikhaylovskiy R V, Costa J D, Freimuth F, Paz E, Ventura J, Freitas P P, Blugel S, Mokrousov Y, Rasing T, Kimel A V 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 455
- [40] Huisman T J, Rasing T 2017 *J. Phys. Soc. Jpn.* **86** 011009
- [41] Wang X M, Zhao Y, Wang X M, Jiang T, Shen C L, Li W H, Peng L P, Yan D W, Zhan Z Q, Deng Q H, Wu W D, Tang Y J 2015 *Mater. Lett.* **153** 81
- [42] Li Y, Wang X, Xiong Z, Cao L, Chen J, Wang X, Shen C, Peng L, Zhao Y, Li W, Deng Q, Wang J, Yu J, Yin H, Wu W 2016 *J. Alloy. Compd.* **686** 841
- [43] Kinoshita Y, Kida N, Sotome M, Miyamoto T, Iguchi Y, Onose Y, Okamoto H 2016 *ACS Photon.* **3** 1170
- [44] Zhang S, Jin Z, Liu X, Zhao W, Lin X, Jing C, Ma G 2017 *Opt. Lett.* **42** 3080
- [45] Barnes M E, Berry S A, Gow P, McBryde D, Daniell G J, Beere H E, Ritchie D A, Apostolopoulos V 2013 *Opt. Express* **21** 16263

Coherent terahertz radiation via ultrafast manipulation of spin currents in ferromagnetic heterostructures*

Zhang Shun-Nong¹⁾ Zhu Wei-Hua²⁾ Li Ju-Geng¹⁾ Jin Zuan-Ming^{1)3)†} Dai Ye¹⁾
 Zhang Zong-Zhi^{2)‡} Ma Guo-Hong^{1)3)††} Yao Jian-Quan⁴⁾

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

2) (Department of Optical Science and Engineering, Fudan University, Shanghai 200082, China)

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

4) (College of Precision Instrument and Opto-electronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300110, China)

(Received 15 June 2018; revised manuscript received 26 July 2018)

Abstract

The development of efficient terahertz (THz) radiation sources is driven by the scientific and technological applications. To date, as far as the radiation of THz pulses is concerned, the widely used methods are biased semiconductor, electro-optical crystal and air plasma, which are excited separately by femtosecond laser pulses. The mechanisms involved in these THz sources are photo-carrier acceleration, second order nonlinear effect, and plasma oscillations, respectively. Here, we report the generation of coherent THz radiation in the designed ferromagnetic/non-magnetic metallic W/CoFeB/Pt and Ta/CoFeB/Pt trilayers on SiO₂ substrates, excited separately by ultrafast laser pulses. The transient THz electric field is fully inverted when the magnetization is reversed, which indicates a strong connection between THz radiation and spin of the sample. We present the THz radiation results of the bilayers, CoFeB/W, CoFeB/Pt and CoFeB/Ta, which are comprised of the trilayer heterostructures used in our experiments. We find that all experimental results are in good agreement with the results from the inversed spin-Hall effect (ISHE) mechanism. Owing to the ISHE, the transient spin current converts into a transient transverse charge current, which launches the THz electromagnetic wave. In our experiments, W or Ta has an opposite spin Hall angle to Pt. Therefore, the amplitude of the THz emission can be increased by a constructive superposition of two charge currents in metallic layers. Our results indicate that the peak-values of the THz radiation covering the 0–2.5 THz range from W/CoFeB/Pt and Ta/CoFeB/Pt are stronger than that from 0.5 mm thick ZnTe (110) crystal, under very similar excitation conditions. Finally, we investigate the dependence of peak-to-peak values for two different heterostructures on the pump fluence. The saturations of THz pulse at pump fluences of ~ 0.47 mJ/cm² and ~ 0.61 mJ/cm² are found for W/CoFeB/Pt and Ta/CoFeB/Pt heterostructures, respectively. The saturation can be generally attributed to the spin accumulation effect and laser-induced thermal effect. Our results indicate that the spin accumulation effect, by which the density of spin-polarized electrons is restricted in a non-magnetic metallic layer, is slightly less pronounced for Ta/CoFeB/Pt system at high fluences. Our findings provide a new pathway for fabricating the spintronic THz emitter, which is comparable to the conventional nonlinear optical crystals.

Keywords: THz radiation, ultrafast spectroscopy, spin current, inversed spin-Hall effect

PACS: 72.25.-b, 95.85.Gn, 78.47.D-, 71.70.Ej

DOI: 10.7498/aps.67.20181178

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11604202, 11674213, 61735010, 51671057, 11774220), the Young Eastern Scholar, China (Grant No. QD2015020), “Chen Guang” Project of the Shanghai Municipal Education Commission of China and the Shanghai Education Development Foundation of 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: zzzhang@fudan.edu.cn

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