



高性能太赫兹发射：从拓扑绝缘体到拓扑自旋电子

王航天 赵海慧 温良恭 吴晓君 聂天晓 赵巍胜

High-performance THz emission: From topological insulator to topological spintronics

Wang Hang-Tian Zhao Hai-Hui Wen Liang-Gong Wu Xiao-Jun Nie Tian-Xiao Zhao Wei-Sheng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 200704 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200680

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200680>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

拓扑绝缘体中的超快电荷自旋动力学

Ultrafast charge and spin dynamics on topological insulators

物理学报. 2019, 68(22): 227202 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191433>

强三维拓扑绝缘体与磁性拓扑绝缘体的角分辨光电子能谱学研究进展

Angle resolved photoemission spectroscopy studies on three dimensional strong topological insulators and magnetic topological insulators

物理学报. 2019, 68(22): 227901 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191450>

基于蜂窝晶格声子晶体的双频带声拓扑绝缘体

Dual-band acoustic topological insulator based on honeycomb lattice sonic crystal

物理学报. 2019, 68(22): 224301 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190951>

三维拓扑绝缘体antidot阵列结构中的磁致输运研究

Magnetotransport in antidot arrays of three-dimensional topological insulators

物理学报. 2018, 67(4): 047301 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172346>

拓扑材料中的超导

Superconductivity in topological materials

物理学报. 2020, 69(2): 020301 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191627>

二维有机拓扑绝缘体的研究进展

Research progress of two-dimensional organic topological insulators

物理学报. 2018, 67(23): 238101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181711>

专题：太赫兹自旋光电子

高性能太赫兹发射：从拓扑绝缘体到拓扑自旋电子*

王航天¹⁾²⁾ 赵海慧¹⁾ 温良恭¹⁾²⁾ 吴晓君³⁾ 聂天晓^{1)2)†} 赵巍胜¹⁾²⁾

1) (北京航空航天大学微电子学院, 费尔北京研究院, 北京 100191)

2) (北京航空航天大学青岛研究院, 青岛 266000)

3) (北京航空航天大学电子信息工程学院, 北京 100191)

(2020年5月8日收到; 2020年6月4日收到修改稿)

利用飞秒激光脉冲激发铁磁/非磁异质结构有望实现高效太赫兹辐射, 从而打破制约太赫兹技术快速发展的瓶颈. 拓扑绝缘体是一种新型二维材料, 其自旋霍尔角远大于重金属材料, 可以与铁磁层结合构成自旋太赫兹发射器. 为了研究拓扑绝缘体/非磁异质结中的太赫兹产生和调控机理, 本综述从飞秒激光激发的超快光电流响应入手, 结合拓扑绝缘体的晶体结构与电子结构, 分析了拓扑绝缘体薄膜中的太赫兹发射机理, 揭示了不同非线性效应产生的超快光电流随外界条件的依赖关系, 证实了使用多种手段调控拓扑绝缘体出射非线性太赫兹辐射的可能性; 以铁磁/重金属异质结为例, 探究了自旋太赫兹发射器的优势与调控方法. 结合这两种发射机理, 通过非线性太赫兹与自旋太赫兹的合成作用, 可以实现在拓扑绝缘体/铁磁异质结中偏振可调谐的太赫兹发射.

关键词: 太赫兹源, 拓扑绝缘体, 超快光电流, 自旋太赫兹

PACS: 07.57.Hm, 85.75.-d, 64.70.Nd, 73.50.Pz

DOI: 10.7498/aps.69.20200680

1 引言

太赫兹波指的是频率介于 0.1—10.0 THz 之间的电磁波, 其频段在电磁波谱中位于微波和远红外之间, 在无损检测、保密通讯、凝聚态物理等领域都有广泛的应用前景^[1-5], 而缺乏低功耗、高效的辐射源是目前制约太赫兹技术发展的主要因素. 当前, 实验室中主要通过基于铌酸锂晶体倾斜波前技术的光整流技术来获得强场太赫兹辐射^[6,7]. 然而, 这种技术不仅对相位匹配的精确度要求高, 光路搭建复杂, 而且铌酸锂晶体对太赫兹辐射有强烈的吸收作用, 致使产生的高频太赫兹辐射不能得到

有效的利用. 其他光子学方法, 如基于有机晶体的光学整流方法^[8,9]、基于非线性晶体的差频效应^[10]、基于表面等离子体增强的大孔径光导天线等^[11,12], 都有各自的缺陷. 基于非线性晶体的差频效应得到的太赫兹频率过高, 很难推广到 15 THz 以下, 阻碍了光差频太赫兹辐射源在凝聚态领域的应用; 基于有机晶体的光学整流和光电导天线太赫兹辐射源受制于系统的复杂度, 无法获得稳定可靠的强场太赫兹输出. 因此, 寻找新的材料体系与物理结构设计的辐射源是太赫兹领域重要的研究方向.

最近, 一系列利用飞秒激光脉冲诱导磁性材料产生太赫兹辐射的实验引起了广泛关注^[13-15]. 在飞秒激光的激发下, 磁有序材料的超快退磁过程可

* 国家重点研发计划 (批准号: 2018YFB0407602)、国家自然科学基金 (批准号: 61774013, 11644004) 和国家科技重大专项 (批准号: 2017ZX01032101) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: nietianxiao@buaa.edu.cn

产生太赫兹辐射^[16–18]. 进一步, 2013年, Kamprath等^[19]首次利用飞秒激光脉冲激发铁磁/非磁金属异质结 Fe/Au, 应用逆自旋霍尔效应 (inverse spin-Hall effect, ISHE) 得到了太赫兹辐射, 开创了一种结合超快动力学与自旋电子学的新型自旋太赫兹发射器. 该发射方法具有制备简单、破坏阈值高、频带覆盖范围宽等优点. 然而, Au 的自旋霍尔系数较小, 降低了 ISHE 中自旋-电荷转换效率, 限制了辐射太赫兹的强度, 其太赫兹发射强度只有非线性晶体 ZnTe 的 1%. 近年来, 随着对异质结材料与结构的不断优化探索, 目前已能够在 W/CoFeB/Pt 的三层异质结中实现强度相当于 ZnTe 晶体的太赫兹发射^[20]. 然而, 自旋太赫兹发射器在单一脉冲的激发下仅能实现线偏振太赫兹辐射, 虽然可以通过双抽运^[21]或级联激光器^[22]激发任意偏振的太赫兹波, 但是这些系统设计较为复杂, 难以集成与小型化, 亟待突破性的进展.

三维拓扑绝缘体材料, 如 Bi_2Se_3 , Bi_2Te_3 , Sb_2Te_3 及其合金 $(\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x})_2\text{Se}_3$, $(\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x})_2\text{Te}_3$ 等最初仅作为热电材料而被广泛研究. 2008年, 斯坦福大学张首晟研究组^[23]在理论层面预言了二维拓扑绝缘体的存在, 由于其特殊的拓扑非平庸特性, 拓扑绝缘体再次引起人们的关注并迅速成为凝聚态物理方向的热门研究领域. 拓扑绝缘体还可以进一步地推广到三维体系^[24–26], 在三维拓扑绝缘体的体能带隙中存在无能隙的二维拓扑表面态. Fu 和 Kane^[27]通过理论计算提出了甄别三维拓扑绝缘体的简便方法, 并且得益于角分辨光电子能谱 (angular resolution photoelectron spectroscopy, ARPES) 的发展, 在实验上也已经证实了可以通过观测某种材料的表面态在两个时间反演不变点之间穿越费米能级的次数是否为奇数次来确定其是否具有拓扑性^[28]. 这种受时间反演对称保护的表面态赋予拓扑绝缘体很多特殊的性质, 如无质量的狄拉克费米子、自旋-动量锁定^[29]和无耗散螺旋性边缘态^[30]等. 通过在三维拓扑绝缘体中引入垂直的铁磁性, 会使上下表面态在狄拉克点打开能隙, 进而拥有不同的拓扑性质, 此时薄膜侧面作为两个不同拓扑相的边界, 会呈现手性的边缘态. 于是, 在三维拓扑绝缘体可以实现许多新奇的量子效应, 如量子反常霍尔效应^[31]、马约拉纳费米子等^[32]. 因此, 拓扑绝缘体被认为是实现未来超低功耗自旋电子器件和量子计算的重要材料^[33]. 更重要的是, 由于拓扑绝

缘体具有强自旋轨道耦合效应, 其自旋霍尔角超过已知重金属 1 个数量级以上^[34,35], 可以实现高效的自旋电荷转换, 所以, 将拓扑绝缘体与铁磁性材料结合构成异质结构有望实现高效可控自旋太赫兹源; 除了自旋太赫兹辐射外, 异质结中的拓扑绝缘体存在非线性瞬态光电流引起的太赫兹辐射^[36,37], 有望通过改变入射光偏振态等手段实现对两种太赫兹辐射的分别调制, 进而实现出射太赫兹波的任意调谐.

本综述从拓扑绝缘体的光电流分析入手, 首先介绍拓扑绝缘体中光电流引入的非线性太赫兹发射机理; 接下来, 通过分析铁磁/非磁异质结表面的自旋注入和自旋-电荷转换机制等超快磁学现象, 深入讨论了自旋太赫兹发射的理论机制; 进一步, 通过介绍拓扑绝缘体/铁磁异质结中太赫兹发射的研究进展, 讨论了拓扑自旋太赫兹的优势和未来的发展方向.

2 拓扑绝缘体中的太赫兹发射

2.1 拓扑绝缘体的基本结构

拓扑绝缘体是一种 V-VI 族半导体, 常见的辉砷矿单晶拓扑绝缘体 (Bi_2Se_3 族, 例如 Bi_2Te_3 , Sb_2Te_3) 呈六方晶系, 空间点群为 $D_{3d}^5(R\bar{3}m)$. 图 1 以 Bi_2Se_3 为例描述了拓扑绝缘体的晶格结构^[38]. 拓扑绝缘体可描述为由五层原子周期性排列而成的超晶格结构, 每五层原子为一个 QL (quintuple layer) 层, 厚度为 0.955 nm. 相邻两 QL 层之间由弱范德瓦耳斯力相连, 并不存在任何化学键, 因此使用机械剥离^[39]或湿法转移^[40]等方法可以从块材中轻易剥离出纳米级厚度的薄膜, 所以拓扑绝缘体也被认为是一种经典的二维材料. 除了从块材中剥离之外, 目前常用的制备拓扑绝缘体薄膜的方法是使用分子束外延技术 (molecular beam epitaxy), 通过对生长动力学的控制, 实现原子级别精度的薄膜生长, 并且可大幅减少材料的缺陷. 由于范德瓦耳斯作用可以一定程度上释放在生长过程中因薄膜-衬底晶格不匹配产生的应力, 所以拓扑绝缘体可以在失配度较高的衬底材料上生长^[41]. 在太赫兹发射实验中, 为了保证样品对飞秒激光的透射率, 常常使用蓝宝石 (Al_2O_3 0001) 作为生长拓扑绝缘体的衬底材料^[42].

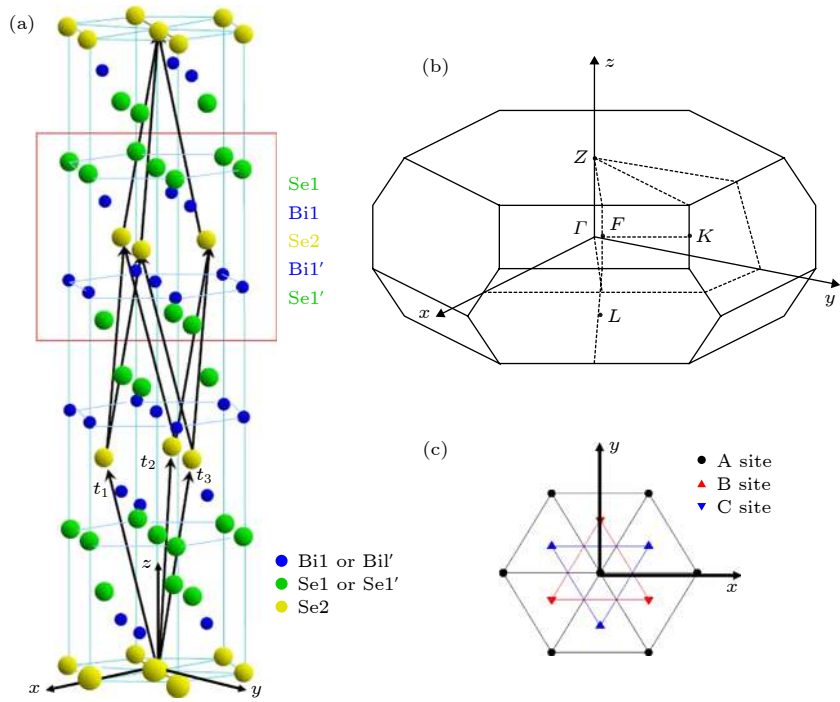


图 1 Bi_2Se_3 的晶体结构 (a) 三维晶体结构, $t_{1,2,3}$ 代表晶胞的基矢, 红色框标注的是 Bi_2Se_3 的 QL 层; (b) Bi_2Se_3 的布里渊区; (c) 在 xy 平面内, 三角形的晶格结构有 A, B, C 三种可能的结构^[38]

Fig. 1. The crystal structure of Bi_2Se_3 : (a) 3D schematic of the structure, where $t_{1,2,3}$ present the primitive lattice vector; (b) Brillouin zone of Bi_2Se_3 ; (c) the xy -plane triangle lattice has three possible positions A, B and C^[38].

在 Bi_2Se_3 的每个 QL 层内, 相邻原子之间由共价键相连, 原子按照 ABCAB 的晶体结构堆垛排列 (图 1(c)). 选择六方晶系的 a , b 和 c 作为晶系的 x , y 和 z 轴, 由图 1(a) 可知, Bi_2Se_3 沿 z 轴呈三重螺旋对称, 而沿 x 轴呈两重螺旋对称, 并且在原点呈空间反演对称. 图 1(c) 展示的是 Bi_2Se_3 晶格在 xy 平面的投影 (即晶体的 0001 面), 显然可以看出, 在晶体的表面空间反演对称性被破坏, 晶格的空间群也从 D_{3d}^5 变为 C_{3v} . 拓扑绝缘体这种中心对称破缺的晶体结构是纯拓扑绝缘体能够激发超快光电流的重要条件.

为了确认拓扑绝缘体的表面电子态, 常常使用 ARPES 来观测生长薄膜的表面和体能带结构. 由于拓扑绝缘体表面电子态具有导体的特性, 而体态绝缘, 所以可以通过 ARPES 观察到清晰的量子阱态, 如图 2 所示, 仍以 Bi_2Se_3 为例^[43]. 由于 Bi_2Se_3 主拓扑数为 1, 属于强拓扑绝缘体, 所以其表面态只包含一个狄拉克锥^[44]. 在 E - k 能带图中, 自旋轨道耦合导致体能带反转构成拓扑表面态, 表面态贯穿体带隙形成狄拉克锥. 不同于自旋简并的体能带, 这里的两条表面态是高度自旋极化的, 不同表面态上的电子自旋垂直于 E - k 面且极化方向相反.

由于时间反演对称保护, 在电子动量由 k 变为 $-k$ 时, 其自旋方向也会相应改变. 正是强自旋轨道耦合效应赋予了拓扑绝缘体表面的自旋-动量锁定特性, 同时此效应也使拓扑绝缘体能够通过 ISHE 实现高效自旋-电荷转换. 在实验上通常使用自旋霍尔角 (spin Hall angle, θ_{SHE}) 来描述某种材料的电荷-自旋相互转换能力^[45,46], 拓扑绝缘体的自旋霍尔角比普通重金属大得多, 因此可以用于实现高效自旋流利用, 进而实现高效自旋太赫兹发射, 这将在第 4 节详细讨论.

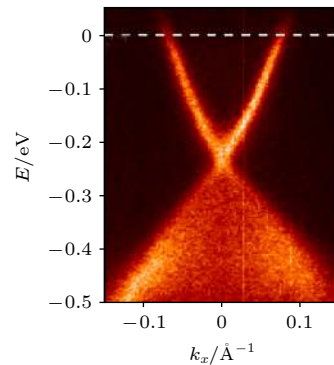


图 2 ARPES 能谱测量的 Bi_2Se_3 的表面能带结构^[43]

Fig. 2. ARPES measurements of surface electronic band of Bi_2Se_3 ^[43].

2.2 拓扑绝缘体中的超快光电流

飞秒激光是指时域脉冲宽度在飞秒量级的激光脉冲, 常用的飞秒激光中心波长为 800 nm, 激光能量为 1.5 eV. 拓扑绝缘体在受到飞秒激光脉冲激发时, 激光能量远大于其体带隙宽度 (约为 400 meV), 使得低能电子吸收能量向上跃迁^[47,48], 激发超快光电流 J , 产生太赫兹辐射, 其强度正比于 $\partial J/\partial t$. Fang 等^[49] 使用线偏振飞秒激光脉冲激发 Bi_2Te_3 , 并使用太赫兹时域光谱系统测量其出射的太赫兹信号, 进而得到拓扑绝缘体的超快光电响应. 他们将线偏振激光激发超快光电流的物理机理分为线性和非线性效应, 其中线性效应包括载流子的漂移和扩散运动^[50], 而非线性效应包括光生伏打效应 (photogalvanic effect, PGE)、光子牵引效应 (photo-drag effect, PDE) 以及光整流效应 (optical rectification, OR) 等二阶效应^[51–54]. 如图 3 所示,

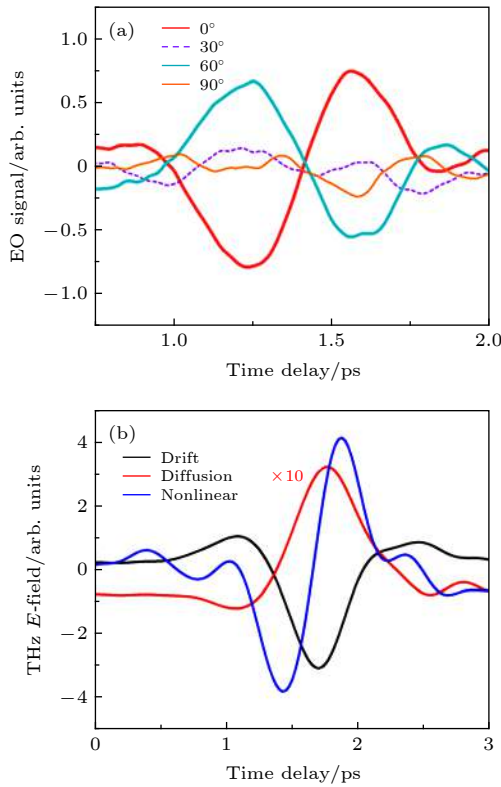


图 3 线偏振激光激发下拓扑绝缘体中的超快光电流效应 (a) 分离出的非线性效应产生的太赫兹电场随方位角的变化; (b) 不同效应产生的太赫兹分量在合成太赫兹辐射中的占比^[49]

Fig. 3. Separation of the photo-currents in topological insulator excited by linear femtosecond laser pulse: (a) The derived terahertz signals due to nonlinear currents as a function of azimuthal angle; (b) the extracted terahertz electric field generated by different effects^[49].

Fang 等通过对出射太赫兹的时域分解, 证明了拓扑绝缘体的非线性效应在超快光电流响应中占主导地位. 这种非线性效应引入的太赫兹辐射被称为非线性太赫兹辐射.

为了研究圆偏振光对拓扑绝缘体的激发作用, Hamh 等^[48] 在飞秒激光器后面添加一个 1/4 波片, 并转动波片的角度产生不同偏振态的激光激发 Bi_2Se_3 样品, 通过对出射太赫兹信号的分析得到光电流随激光偏振态的变化关系. 实验结果显示拓扑绝缘体中产生的超快光电流与入射光的手性有关 (图 4). 随后, Braun 等^[55] 证明了在圆偏振光的激发下, 拓扑绝缘体中存在一个与抽运光手性无关的转移电流和手性依赖的注入电流, 且左旋和右旋圆极化光激发的注入电流极性相反. 这两种电流都来自于拓扑绝缘体表面的 PGE 效应^[56].

在 1980 年, Belinicher 和 Sturman^[57] 曾经预言对称破缺晶体中存在 PGE 效应. 由 2.1 节可知,

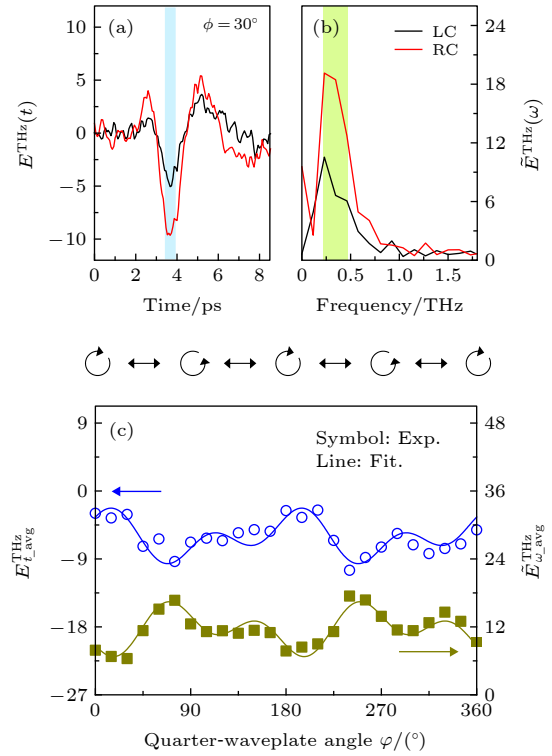


图 4 (a), (b) 样品方位角 $\phi = 30^\circ$, 在左旋和右旋圆极化光激发下, 时域和频域下 Bi_2Se_3 产生的太赫兹信号; (c) 太赫兹幅值随激光偏振态的变化关系, 其中蓝色曲线代表时域信号, 黄色曲线代表频域信号^[48]

Fig. 4. (a), (b) THz signals emitted from Bi_2Se_3 in time and frequency domains under illumination of left- and right-handed circularly polarized light where the azimuth $\phi = 30^\circ$; (c) THz-wave amplitudes as a function of the polarity of pump laser in time (blue curves) and frequency domains (yellow curves)^[48].

拓扑绝缘体在表面具有中心对称破缺的结构, 由于系统的不对称性激发和弛豫过程, 飞秒激光的照射可以使样品中产生由 PGE 效应引入的光电流, 并且根据激光的偏振态会产生两种不同的光电效应: 圆光生伏打效应 (circular photogalvanic effect, CPGE) 和线光生伏打效应 (linear photogalvanic effect, LPGE). 为了讨论不同偏振光对这两种光伏打效应的作用, 使用非线性响应理论来唯象地描述拓扑绝缘体材料中 PGE 效应引起的电磁辐射响应^[37,58]:

$$j_{\text{PGE}} = \sigma_{\lambda\mu\nu} E_{\mu}(\omega) E_{\nu}^*(\omega), \quad (1)$$

这里, j_{PGE} 代表 PGE 效应产生的二阶电流; $\sigma_{\lambda\mu\nu}$ 代表系统的三阶光电导张量; $E(\omega)$ 表示电场振幅为 E , 频率为 ω . 对于任意系统来说, 描述其物理性质的张量不随任何对称操作而改变. 然而, 由 (1) 式可知, 空间反演对称会使电流反向, 而 $E_{\mu}(\omega) E_{\nu}^*(\omega)$ 保持不变, 则其三阶张量变号, 即 $\sigma_{\lambda\mu\nu} \rightarrow -\sigma_{\lambda\mu\nu}$, 于是可以得到 $j_{\text{PGE}} = \sigma_{\lambda\mu\nu} E_{\mu}(\omega) E_{\nu}^*(\omega) = -\sigma_{\lambda\mu\nu} E_{\mu}(\omega) E_{\nu}^*(\omega) = 0$, 因此 PGE 效应只可能在非中心对称晶体中发生^[59,60]. 由图 5 可知, 拓扑绝缘体材料具有中心对称的体和非中心对称的表面, 所以可以推断出, PGE 效应只存在于拓扑绝缘体的表面. 进一步地可以将 (1) 式改写为^[61,62]

$$j_{\text{PGE}} = \gamma_{\lambda\mu} i(\mathbf{E} \times \mathbf{E}^*)_{\mu} + \chi_{\lambda\mu\nu} (E_{\mu} E_{\nu}^* + E_{\nu} E_{\mu}^*), \quad (2)$$

其中, 第一项代表 CPGE 对于超快光电流的贡献, 第二项代表 LPGE 的贡献. 由 (2) 式可知, 在线偏振光激发时, $\mathbf{E} \times \mathbf{E}^* = 0$, 即拓扑绝缘体表面产生的超快光电流没有 CPGE 的分量; 而在圆偏振光激发时, 其表面产生一个额外的 CPGE 光电流分量, 并且这个分量在左旋和右旋光激发时的极性相反. 也就是说, 在飞秒激光脉冲激发拓扑绝缘体的实验中, 如果使用 1/4 波片改变抽运光的极化状态, 由于 CPGE 只对圆偏振光有响应, 可以通过计算筛选出与波片转角呈 180° 周期的太赫兹信号, 即可以得到 CPGE 的贡献, 这与 Braun 等^[55] 的实验结果是一致的. 事实上, CPGE 效应与拓扑绝缘体的表面态有关, 其产生的光电流来源于两个跃迁过程: 体价带电子向表面态的跃迁和表面态电子向体导带的跃迁. 因此, 可以通过计算 CPGE 产生的太赫兹辐射, 分析样品的表面态性质, 如表面能带结构、表面载流子迁移率、不对称散射率等^[47,63,64].

在拓扑绝缘体的非线性效应中, 除了 LPGE 与 CPGE 之外, 还存在着 PDE 和二阶非线性 OR, 即飞秒激光脉冲激发拓扑绝缘体时的非线性光电流响应可以表示为

$$j_{\lambda} = j_{\text{PGE}} + T_{\lambda\delta\mu\nu} q_{\delta} E_{\mu} E_{\nu}^* + j_{\text{OR}}, \quad (3)$$

其中, 第二项描述了 PDE 对非线性电流的贡献.

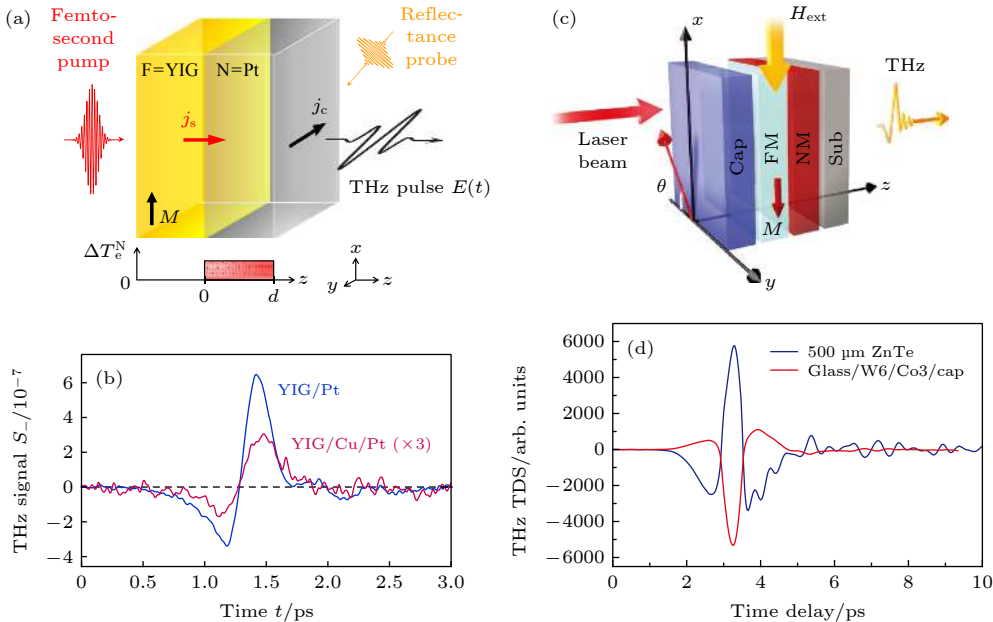


图 5 (a) Seifert 等^[74]使用的 YIG/Pt 异质结构; (b) 在 YIG/Pt 中插入 1.9 nm 的铜, 由于自旋注入被阻隔, 太赫兹信号减弱^[74]; (c) Wu 等^[82]使用的 W/Co 异质结构; (d) W/Co 异质结构的太赫兹发射强度接近于 500 μm 的 ZnTe 晶体^[82]

Fig. 5. (a) The YIG/Pt heterostructure used by Seifert. et al.^[74]; (b) after 1.9 nm Cu insertion, the THz field intensity deteriorates because the spin injection is impaired^[74]; (c) the Co/W heterostructure used by Wu et al.^[82]; (d) the THz waves emitted from Co/W have a peak intensity exceeding that of ZnTe crystals^[82].

当被激光照射时, 拓扑绝缘体中电子吸收光子动量跃迁, 产生 PDE 电流, 大小正比于光子动量 \mathbf{q} , 其张量可以表示为 $\sigma_{\lambda\mu\nu}(\mathbf{q}) = \mathbf{T}_{\lambda\delta\mu\nu}q_\delta$ [37,65]. 由于 $\mathbf{T}_{\lambda\delta\mu\nu}q_\delta$ 为四阶张量, 具有反对称性, 所以 PDE 效应不只存在于拓扑绝缘体的表面, 体中的 PDE 效应也会对整体的非线性电流有所贡献. (3) 式中第三项代表了 OR 的贡献, 当一个超短的激光脉冲入射到拓扑绝缘体上时, 晶体内部会形成极化场, 进而向外辐射电磁波. 当入射激光脉冲脉宽在亚皮秒量级时, 辐射的电磁波为太赫兹波. OR 可以使用三阶非线性张量 $\chi^{(2)}$ 描述, 其非线性极化 P^{OR} 可以表示为 [56]

$$P^{\text{OR}} = \varepsilon_0 \chi^{(2)} |E|^2, \quad (4)$$

其中 ε_0 为自由空间的电导率.

2.3 拓扑绝缘体中的太赫兹辐射调控

由 (2) 式可知, 左旋和右旋的极化光会在拓扑绝缘体表面激发极性相反的 CPGE 分量, 即抽运光的极化状态会影响拓扑绝缘体中的太赫兹发射. 事实上, 单层拓扑绝缘体中的太赫兹发射还受到很多因素影响, 如样品方位角 (晶体取向) ϕ , 飞秒激光的入射角 θ 等. 由 (4) 式可知, OR 产生的超快光电流只依赖于晶体取向, 即 OR 产生的太赫兹分量只与样品方位角有关, 改变入射角不会导致太赫兹波的变化. 在 PDE 中, 由于四阶张量 $\mathbf{T}_{\lambda\delta\mu\nu}q_\delta$ 的存在, PDE 表现出相同的方位角依赖特性, 然而, 由于 PDE 依赖于吸收光子的动量, 在改变激光入射角时, 出射的太赫兹极性会发生反转. 在 PGE 中, 无论是 CPGE 还是 LPGE 效应的产生, 都依赖于沿拓扑绝缘体表面分布的电场分量 [37,66], 所以在入射角翻转时, PGE 效应引起的太赫兹辐射极性也会随之反向. 特别地, 由于 CPGE 来源于拓扑绝缘体的表面态, 满足狄拉克锥的旋转对称性 [65], 所以 CPGE 引入的太赫兹分量不随样品方位角变化. 表 1 展示了不同非线性效应产生的超快光电流随各种因素的依赖关系 [56], 这里使用 1/4 波片的转角 α 代表激光偏振态的变化. 证实了使用多种手段控制拓扑绝缘体中产生的超快光电流, 进而对出射太赫兹进行调控的可能性.

值得注意的是, Tu 等 [56] 认为 LPGE 与方位角无关, 他们将出射太赫兹波中随方位角变化的分量归因于 PDE 和 OR 的贡献. 然而, 最近针对外

尔半金属的研究证明 LPGE 来源于不同元素原子之间电荷分离产生的转移电流, 这种转移电流沿原子间的化学键流动 [67]. 在 Bi_2Se_3 中, 由于 Bi—Se 键在 z 轴上的对称性 (图 5), LPGE 产生的光电流一定与样品方位角呈 120° 周期性变化. 这与 Braun 等 [55] 和 Fang 等 [49] 的结论是一致的.

表 1 拓扑绝缘体中的超快光电流与晶体取向 ϕ , 入射角 θ , 激光偏振态的依赖关系 [56]

Table 1. The details of the dependences of CPGE, LPGE, PDE, and OR on ϕ , θ , and α [56].

非线性效应	晶体方向 ϕ	入射角 ($\theta \rightarrow -\theta$)	1/4波片转角 α
CPGE	来源于表面态	极性反转	2α -周期
	与 ϕ 无关		$\sin(2\alpha)$
LPGE	来源于表面态	极性反转	4α -周期
	ϕ 依赖		$\sin(4\alpha)$
PDE	ϕ 依赖	极性反转	4α -周期
			$\cos 4\alpha$
OR	ϕ 依赖	极性不反转	4α -周期
			$\cos(4\alpha)$

3 铁磁/非磁异质结中的自旋太赫兹发射

第 2 节主要介绍了拓扑绝缘体单层薄膜中的超快光电流引起的太赫兹辐射, 这种方式发射的太赫兹波的偏振方向依赖于光电流的方向, 即晶体的方向. 然而, 最近的研究发现, 将拓扑绝缘体与铁磁材料组成异质结构, 由于超快自旋注入, 也可以产生太赫兹辐射 [68]. 其机理与铁磁/非磁异质结中的太赫兹发射相同, 在飞秒激光的照射下, 自旋塞贝克效应 [69,70] 或自旋超扩散现象 [71] 等自旋动力学效应使得自旋流从铁磁层注入到非磁层, 再由 ISHE 将自旋流转换成横向电荷电流 [72], 进而产生太赫兹脉冲, 其偏振方向垂直于外磁场方向. 为了更好地说明拓扑绝缘体/铁磁异质结作为自旋太赫兹发射器的优越性, 首先介绍铁磁/非磁异质结中的自旋太赫兹发射机理.

3.1 异质结中的超快自旋注入

对铁磁/非磁异质结施加一个面内的磁场, 在异质结受到飞秒激光照射时, 可以在非磁层检测到一个超快电流, 它来源于铁磁层中产生的自旋流. Uchida 等 [73] 认为这种自旋流来源于铁磁材料中

的自旋塞贝克效应. Seifert 等^[74]在 YIG/Pt 异质结中观察到了自旋塞贝克效应导致的超快自旋注入. 当飞秒激光照射时, 金属层的电子被激发撞击磁性层, 使其产生一个随机的转矩, 进而产生净自旋流 J_s , 其中 J_s 的极化矢量 σ 平行于铁磁层的磁矩 M . 由于自旋流的产生与光激发电子的热化与冷却过程有关, 其频率恰好处在亚皮秒量级, 因此自旋塞贝克效应引入的自旋流, 其动态频率在太赫兹频段. 进一步地, 由于非磁层的 ISHE, 自旋流被转变为横向电荷流, 这将在下一小节详细讨论.

然而, 并非所有的自旋注入现象都能单一地用自旋塞贝克效应解释. 当飞秒激光激发异质结时, 会在铁磁层激发超扩散的瞬态自旋流^[75,76], 进而导致自旋流注入. Kampfrath 等^[19]利用飞秒激光脉冲激发 Fe/Au 异质结, 观察到了太赫兹辐射, 并将异质结中的超快自旋注入归因于超扩散自旋传输 (superdiffusive spin transport). 在电子吸收能量跃迁后, 自旋向上的电子表现为 sp 轨道特性, 而自旋向下的电子表现为类 d 轨道特性. 由于上下自旋电子寿命与迁移率的不同, 两种电子的自旋取向也处于非平衡状态, 因此在铁磁层界面形成了自旋流的积累, 实现了自旋流向非磁层注入. 这种激光导致的超扩散自旋流, 其动态频率恰好处在亚皮秒量级, 因此也可以实现太赫兹量级的动态自旋注入^[77]. 与自旋塞贝克效应一致, 这种自旋流的极化方向与铁磁层磁化方向也是相同的.

除以上两种自旋注入机制之外, 磁性材料中超快退磁现象也会产生自旋流, 这种自旋注入机理被称为自旋抽运效应 (spin pumping effect). 由飞秒激光诱导的超快退磁现象在太赫兹领域已经被广泛地报道^[18,78], 在超快退磁的过程中, 铁磁层的自旋角动量转移到重金属层, 进而产生自旋注入. 由于自旋抽运的特征时间与自旋轨道相互作用有关, 其时间尺度为皮秒量级^[79], 因此同样可以产生太赫兹辐射. 然而, 由于飞秒激光引入的磁性变化很小, 所以自旋抽运效应导致的自旋注入很弱. Kampfrath 等^[19]计算了 Fe/Au 异质结中自旋抽运效应注入的自旋流比超扩散导致的超快自旋流小两个数量级以上.

值得注意的是, 目前尚缺乏统一的理论来描述异质结中的超快自旋注入过程, 特别是对于自旋塞贝克效应和超扩散效应这两种自旋注入机制, 现有的光学和电学手段无法将两种效应注入的自旋流

区分开来. 因此, 现在无法确切地指出哪种自旋注入机制的贡献对异质结中的太赫兹辐射占主导作用.

3.2 异质结中的自旋-电荷转化及太赫兹发射

在自旋流从铁磁层注入相邻非磁层中后, 由于非磁层材料的自旋轨道耦合作用, 不同自旋取向的电子朝不同的方向偏转, 转化为电荷的积累, 这就是 ISHE. 在自旋流 J_s 注入重金属层中后, 由于 ISHE, 自旋电子受到横向力矩的作用, 在重金属层的两端造成电荷积累, 进而产生横向电流 J_c , 其表达式为

$$J_c = D_{\text{ISHE}} J_s \times \sigma, \quad (5)$$

其中 D_{ISHE} 为自旋霍尔系数. 由于 J_c 处在亚皮秒的时间尺度上, 其辐射的电磁波频段恰好覆盖太赫兹范围, 因此, 在异质结中可以实现太赫兹发射, 其表达式为^[80,81]

$$E_{\text{THz}}(\omega) = J_c(\omega) \frac{eZ_0}{n_1 + n_2 + Z_0 \int_0^d dz \rho(\omega, z)}, \quad (6)$$

其中, n_1 和 n_2 为衬底和空气的折射率, e 为电子电荷, Z_0 为真空阻抗, ρ 为垂直方向的金属电导率. 由公式 (5) 和 (6) 可知, ISHE 产生的瞬态横向电流 J_c 方向垂直于自旋流的极化矢量 σ , 即异质结中的自旋太赫兹辐射偏振方向垂直于磁场方向. 这与 Kampfrath 等^[19]的研究结果一致. Seifert 等^[74]也在 YIG/Pt 异质结中实现了自旋太赫兹发射, 证实了飞秒激光引入的自旋塞贝克效应也是实现超快自旋注入的重要手段. 他们使用动态模型分离出注入的自旋流密度, 证明了自旋塞贝克效应起源于非磁层的界面.

经过对铁磁/非磁异质结的材料筛选与结构优化, 现在已经能够实现兼顾辐射强度、带宽与功耗的自旋太赫兹发射源. Wu 等^[82]研究了不同厚度下的铁磁与非磁层对出射太赫兹强度的影响, 发现 W(6 nm)/Co(3 nm) 双层异质结所辐射的太赫兹强度接近 ZnTe 晶体发射源. 并且, 这种结构的自旋太赫兹发射源还具有低功耗的特性, 即使激光能量密度降至 $0.6 \mu\text{J}/\text{cm}^2$, 仍能在异质结中实现稳定的太赫兹发射. Seifert 等^[20]使用 W/CoFeB/Pt 构成三层异质结构代替传统的双层结构, 由于 W 和 Pt 具有相反的自旋霍尔角, 两层界面中产生的太赫兹辐射可以相互叠加, 进而产生 1—30 THz

的相干增强太赫兹脉冲, 其能量转换效率甚至优于商用光电导天线和 GaP(110) 太赫兹发射源.

最近, Zhou 等^[83]首次利用反铁磁外尔半金属 Mn_3Sn 与重金属 Pt 构成的异质结实现了太赫兹发射. 由于 Mn_3Sn 具有反三角的自旋结构, 不同晶相的 Mn_3Sn 产生的纵向自旋流大小不同, 因而在制备过程中可以通过选择 Mn_3Sn 层的晶相来控制异质结出射太赫兹波的强度. 另外, 由于 Mn_3Sn 同时具有较大的自旋霍尔角, 这种外尔半金属也可以代替重金属层提供 ISHE. Zhou 等的研究不但证

明了太赫兹可以作为研究外尔半金属自旋结构的一种简便方法, 更证明了 Mn_3Sn 具有实现自旋太赫兹发射与调控的重要潜力.

3.3 铁磁/非磁异质结中的自旋太赫兹调制

由公式 (5) 可知, 异质结中发射的自旋太赫兹偏振方向垂直于磁化方向, 然而与拓扑绝缘体中发射的太赫兹不同, 自旋太赫兹不依赖于入射光的偏振状态. 也即, 自旋太赫兹源的抗干扰能力极强, 改变铁磁层磁化方向, 可以任意调控其偏振方向.

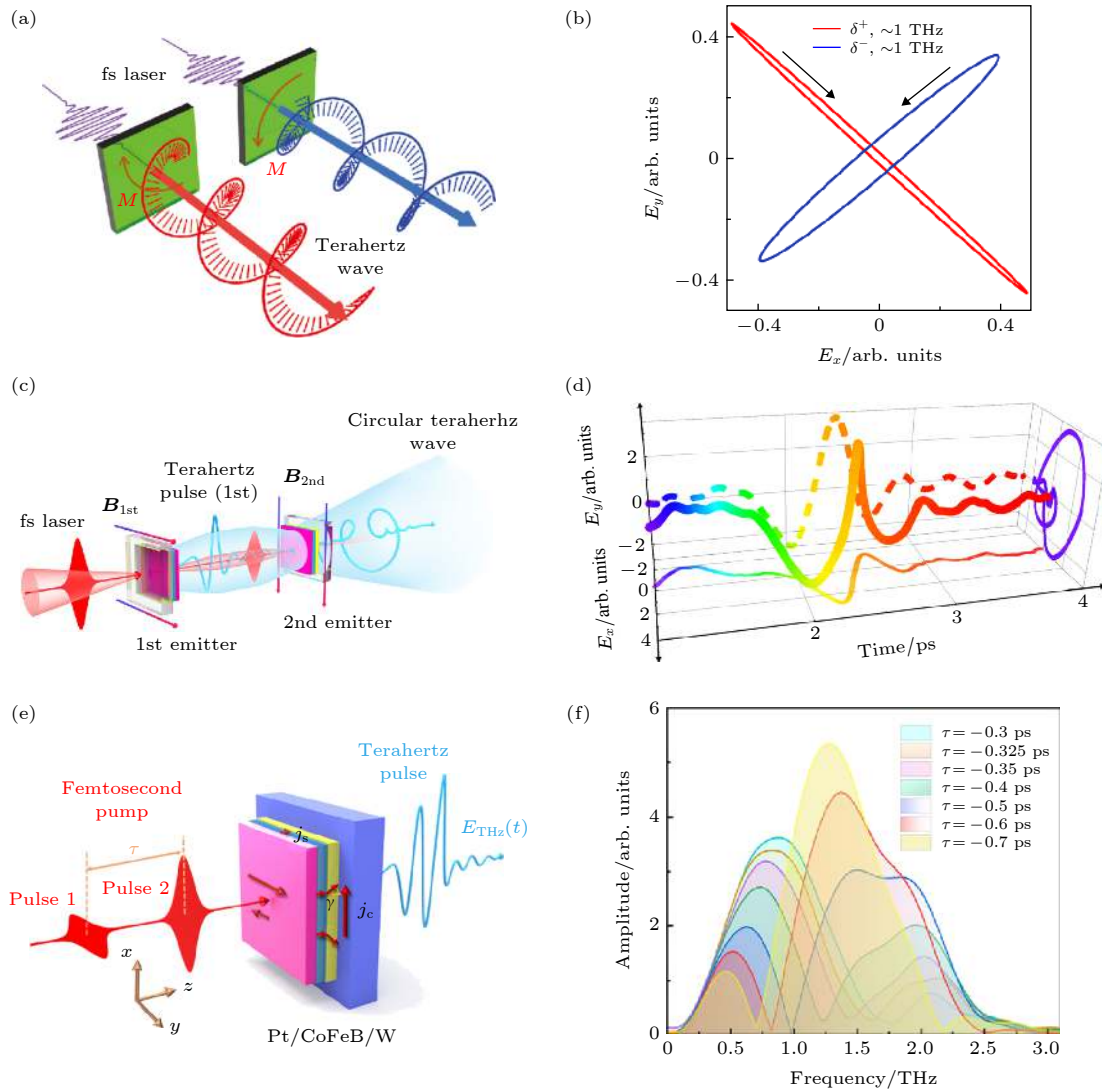


图 6 (a) 在异质结上施加手性相反的螺旋外磁场可以改变出射太赫兹波的手性; (b) 图 (a) 的利萨如曲线, 其中 σ^+ 与 σ^- 分别代表左旋与右旋极化的太赫兹信号^[85]; (c), (d) Chen 等^[22]设计的级联太赫兹发射器, 两级发射器铁磁层的磁化方向与入射光方向两两正交, 通过控制出射太赫兹的相位差和振幅, 可以在时域获得合成的圆偏振信号; (e), (f) Wang 等^[21]使用的双抽运自旋太赫兹发射器, 通过改变脉冲时延可以调控出射太赫兹的时域信号

Fig. 6. (a) Manipulation of the terahertz chirality by changing the twisted magnetic field distribution; (b) the Lissajous curves of the THz signals of (a), where σ^+ and σ^- present the signals with left-hand and right-hand polarity^[85]; (c), (d) the cascade spintronic terahertz emitter designed by Chen et al.^[22], a circularly polarized terahertz waves could be obtained by controlling the phase difference between two stage terahertz and their amplitude; (e), (f) Wang et al.^[21], the frequency could be manipulated by changing the delay time between two pump laser pulses.

然而,在均匀磁性的异质结中,发射的自旋太赫兹一定是线偏振的,这大大限制了自旋太赫兹源的应用途径.为了突破性这一局限,Hibberd等^[84]通过改变外磁场的方向,控制铁磁层磁矩分布,实现了对出射太赫兹偏振态的调控.他们使用两个极性相反的永磁铁作为磁场源,NiFe/Pt异质结作为太赫兹发射源,在调换永磁体极性时,异质结中出射的太赫兹极性反转.Kong等^[85]则从理论上证明了异质结中不均匀的磁性分布可以产生椭圆偏振的自旋太赫兹辐射.特别地,在不同磁性区域的有效面积相等且磁矩方向相互垂直时,还可以产生圆偏振极化的太赫兹辐射.他们讨论了出射太赫兹椭圆率与磁场极化状态的依赖关系并用实验加以证实.如图6(a),(b)所示,将样品置于螺旋的磁场中,在磁场的手性变化时,太赫兹波的极化方式由左旋变为右旋.然而,由于很难精准控制单级铁磁薄膜中的磁性分布,所以通过改变外磁场获得偏振可调谐的太赫兹辐射难度很大.Chen等^[22]报道了使用级联发射的方法可以产生可控椭圆偏振太赫兹波.他们在第一级样品上施加了水平方向的磁场,使其产生竖直偏振的太赫兹辐射,在第二级上施加了竖直方向上的磁场产生水平偏振的太赫兹辐射;通过改变两级薄膜之间的距离控制出射太赫兹波的相位差,实现了椭圆偏振太赫兹波的合成(图6(c)).进一步,当抽运光经过第一级的发射损耗与第二级铁磁薄膜本身对第一级辐射的太赫兹波的损耗相等时,可以实现圆偏振太赫兹波辐射(图6(d)).

除了实现时域调制之外,自旋太赫兹发射源在频域调制方面也具有无可比拟的优势.2019年,Wang等^[21]报道了双抽运效应对自旋太赫兹频谱的调节作用,如图6(e)—(f)所示,当使用两束飞秒激光同时抽运铁磁/非磁性金属异质结时,可以通过操控两束脉冲激光之间的偏振夹角和时延来实现对出射太赫兹频域信号的调制.

4 铁磁/拓扑绝缘体异质结中的自旋太赫兹发射

4.1 拓扑绝缘体的自旋霍尔角计算

第3节主要介绍了铁磁/非磁异质结中的自旋太赫兹发射,公式(5)和(6)表明在异质结中自旋太赫兹的发射效率取决于非磁层的自旋霍尔系数,而自旋霍尔系数正比于自旋霍尔角 θ_{SH} ,即异质结

非磁层的 θ_{SH} 越大,发射太赫兹的效率越高,这与Wu等^[82]的研究结果是一致的.他们测试了使用Co作为铁磁层,不同的重金属材料作为非磁层时,异质结的太赫兹发射强度,结果显示,当W作为非磁层时($\theta_{SH} = 0.4$ ^[86]),异质结出射的太赫兹峰值是Ta($\theta_{SH} = 0.15$ ^[87])作为非磁层时的10倍.而拓扑绝缘体具有特殊的自旋-动量锁定的拓扑表面态,强自旋轨道耦合作用赋予这种材料极大的自旋-电荷转换效率,其自旋霍尔角比普通重金属大得多,因此可以替代重金属材料构成自旋太赫兹发射器并实现高效太赫兹发射.

自旋-电荷转换效率指的是在自旋注入时,拓扑绝缘体利用ISHE将其转化成电荷流的能力.为了能够定量地计算拓扑绝缘体的自旋-电荷转换效率,Wang等^[88]使用自旋力矩铁磁共振(spin torque ferromagnetic resonance, ST-FMR)的方法测量了Bi₂Se₃的自旋霍尔角.如图7(a)所示,他们在Bi₂Se₃/Co₄₀Fe₄₀B₂₀(CFB)两端施加一个射频电流,通过外部整流电路测得输出的电压信号.在射频电流流经Bi₂Se₃层后,由于自旋霍尔效应在y方向发生极化,产生纯自旋流并注入到相邻的CFB中,改变CFB磁矩的阻尼矩引发磁矩进动,并且射频电流会在系统中产生一个y方向的有效场,也会使CFB受到力矩的作用.由于ST-FMR电压信号中对称线形分量来源于自旋流产生的阻尼矩,而反对

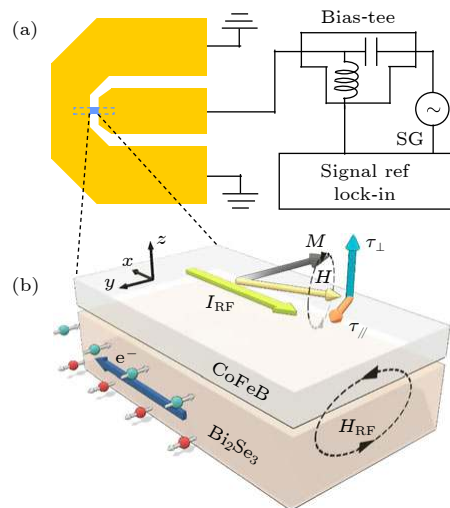


图7 (a) ST-FMR测试示意图,使用信号发生器(SG)给样品施加一个射频电流,通过测试样品的电压信号计算拓扑绝缘体的自旋霍尔角;(b)异质结中的磁矩进动过程^[88]

Fig. 7. (a) The schematic diagram of the ST-FMR measurement setup, an RF current from a signal generator (SG) is injected into the devices; (b) magnetization movements in the ST-FMR measurements^[88].

称线型分量来源于射频磁场的贡献^[89,90], 因此可以通过线形与非线形部分的比值来确定自旋流与电荷流的比值, 即自旋霍尔角 θ_{SH} . Wang 等通过计算得出 Bi_2Se_3 的自旋霍尔角为 1.75, 与过去的报道 ($\theta_{SH} = 2.0$ ^[91]) 接近. 表 2 展示了拓扑绝缘体与几种重金属自旋霍尔角的对比^[35], 从表 2 可以看出拓扑绝缘体的自旋-电荷转换效率是重金属的 10 倍以上. 因此, 除自旋太赫兹发射器之外, 拓扑绝缘体也被视为实现超低功耗磁随机存储器 (magnetic random access memory, MRAM) 等新型自旋电子器件的重要材料^[92].

表 2 拓扑绝缘体与几种重金属材料的自旋霍尔角^[35]
Table 2. Spin Hall angles of several topological insulators and common heavy metals^[35].

Material	θ_{SH}
Ta	0.15
W	0.40
Pt	0.08
Bi_2Se_3	2.00—3.50
$\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x}$	18.80
$\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x}$	52.00

4.2 绝缘体/铁磁异质结中的自旋太赫兹发射

由于拓扑绝缘体极大的自旋-电荷转换率, 在铁磁/拓扑绝缘体异质结中可以实现高效的自旋太赫兹发射. 2018 年, Wang 等^[68] 首次利用 $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{Co}$ 异质结实现了自旋太赫兹发射. 如图 8(a) 所示, 他们使用波长为 800 nm 功率为 60 mW 的飞秒激光垂直入射异质结, 激光激发使 Co 层产生超快自旋流并注入相邻的 Bi_2Se_3 中, 再由 ISHE 将飞秒激光诱导的自旋流转换成亚皮秒尺度上的横向电荷流, 进而产生太赫兹辐射. 为了排除单层拓扑绝缘体中非线性电流和铁磁层的超快退磁对出射太赫兹的贡献, 分别测量了飞秒激光激发下 Bi_2Se_3 和 Co 的太赫兹辐射, 如图 8(b) 所示, 显然异质结中自旋-电荷转换引入的自旋太赫兹发射在总太赫兹辐射中占据主导地位. 当抽运光从前入射变为后入射时, 太赫兹信号的极性发生 180° 的反转, 改变面外磁场的方向后, 也能观察到同样的极性反转现象 (图 8(c)). 这是因为入射方向与样品磁化强度的方向分别对应 ISHE 中的自旋流 \mathbf{J}_s 和自旋极化矢量 $\boldsymbol{\sigma}$ 的方向, 由公式 (5) 可知, 当激光的入射方向

或样品磁化方向改变时, ISHE 产生的电荷流反向, 即异质结产生的太赫兹辐射反向.

为了验证 $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{Co}$ 异质结的发射效率, Wang 等^[68] 使用与 Bi_2Se_3 表面相同厚度 (2 nm) 的 Pt 作为对照组, 对比他们产生自旋太赫兹幅度的差异.

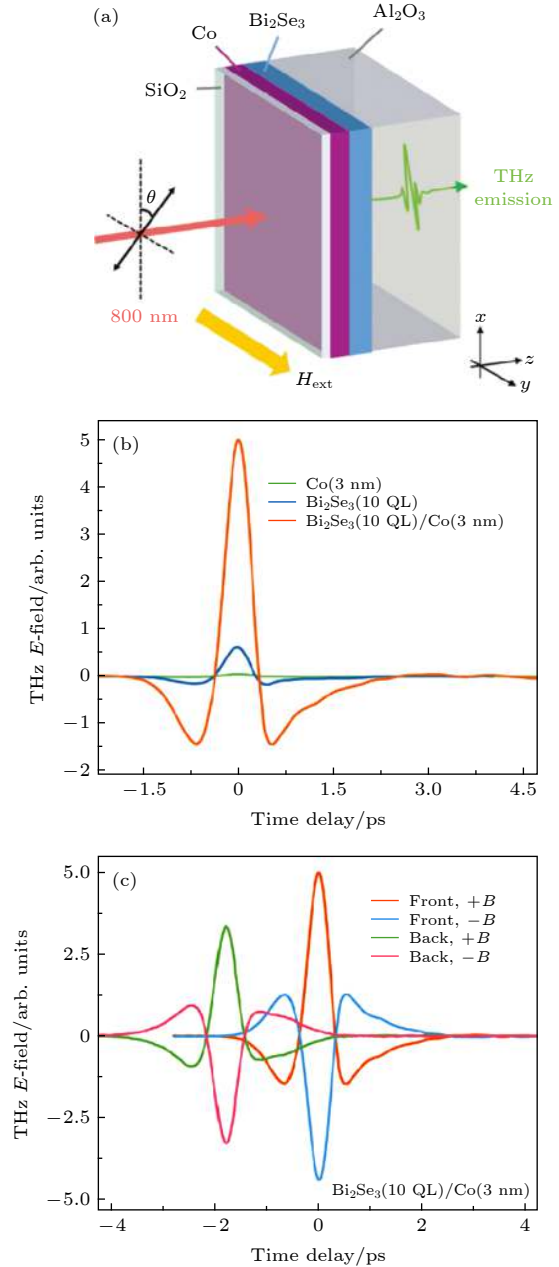


图 8 (a) $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{Co}$ 异质结构示意图; (b) 用飞秒激光分别激发 $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{Co}$, Co, Bi_2Se_3 产生的太赫兹信号; (c) 改变入射方向与面内磁场方向后, 异质结发射的太赫兹极性反转^[68]

Fig. 8. (a) The schematic diagram of the $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{Co}$ heterostructure; (b) THz waveforms generated from $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{Co}$, Co and Bi_2Se_3 ; (c) THz waveforms emitted from the heterostructure measured with front and back sample excitation and reversed magnetic field^[68].

实验结果显示, 在相同的有效厚度下, Bi_2Se_3 的发射效率是 Pt 的 1.7 倍, 其中 Bi_2Se_3 (10 nm)/Co (3 nm) 的发射效率更是可以与商用的 ZnTe 晶体相媲美. 更重要的是, 他们证明了拓扑绝缘体中的自旋-电荷转换对温度的变化不敏感. 这些优点充分说明了拓扑绝缘体/铁磁异质结对实现高效、稳定、廉价的太赫兹发射器的重要意义. 并且, 由于拓扑绝缘体特殊的拓扑表面态, 其本身就可以发射太赫兹信号, 因此对拓扑绝缘体/铁磁异质结的研究有望实现任意调谐的拓扑自旋太赫兹发射器.

4.3 拓扑自旋太赫兹发射器的前景

拓扑绝缘体在与铁磁层材料组合构成自旋太赫兹发射器时, 可以产生较大强度的自旋太赫兹辐射, 出射的自旋太赫兹波为线偏振且偏振方向只依赖于铁磁层的磁化方向. 然而, 由前面的讨论可知, 拓扑绝缘体单层薄膜即可辐射太赫兹, 其产生机理为材料内部的非线性效应. 如表 1 所示, 可以通过改变抽运光入射角、抽运光的极化状态和样品方位角对单层拓扑绝缘体出射太赫兹波进行调控. 因此, 可以通过控制外磁场方向与样品方位角, 调控单层拓扑绝缘体中非线性太赫兹的偏振方向. 由于自旋太赫兹发射不依赖于非线性效应, 即非线性太赫兹和自旋太赫兹的偏振方向会有一个夹角, 且超快电流的响应速度远大于自旋注入, 即两束太赫兹波之间一定存在一个相位差. 因此在飞秒激光激发时, 异质结中出射的两束太赫兹波可以在空间上合成椭圆极化的太赫兹波. 进一步地, 通过控制单层拓扑绝缘体中的超快光电流响应, 可以实现对出射太赫兹手性的调控.

在 2.2 节中讨论了拓扑绝缘体的各种非线性光电流效应, 可以看出拓扑绝缘体薄膜中的太赫兹发射与其狄拉克表面态有关, 然而, 在飞秒激光激发时, 由于体载流子对激光的吸收作用, 拓扑绝缘体产生的超快光电响应可能会被抑制 [93]. 因此, 可以改变拓扑绝缘体的费米能级, 使其落在体能隙上, 降低体载流子密度, 进而增强发射的太赫兹强度. 在实验上通常使用施加栅极电压 [94,95] 或掺杂金属元素 [96,97] 的方法调控拓扑绝缘体的费米能级. Pan 等 [98] 制备了带有顶电极的 $(\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x})_2\text{Se}_3$ 单层薄膜样品 (图 9(a)), 研究了飞秒激光激发下拓扑绝缘体内部超快光电流与栅极电压的关系. 如图 9(b) 所示, 当栅极电压为 0 V 时, 样品的纵向电阻 R_{xx}

最大, 此时样品费米能级处在体带隙中, 并且光电流的绝对值 $|C|$ 最大, 这与假设是一致的. Luo 等 [99] 也报道了相同的现象, 他们通过不同的方式生长了不同载流子浓度的 Bi_2Se_3 , 分别测量了不同样品出射的太赫兹幅度. 如表 3 所示, 在纯拓扑绝缘体中, 出射太赫兹波的强度随载流子浓度的减少而增加. 特别地, 当使用 Cu 掺杂降低 Bi_2Se_3 的载流子浓度后, 其出射太赫兹峰值强度增加 50 倍. Pan 等和 Luo 等的实验结果证明了使用光学之外的方法调控非线性太赫兹幅度的可能性.

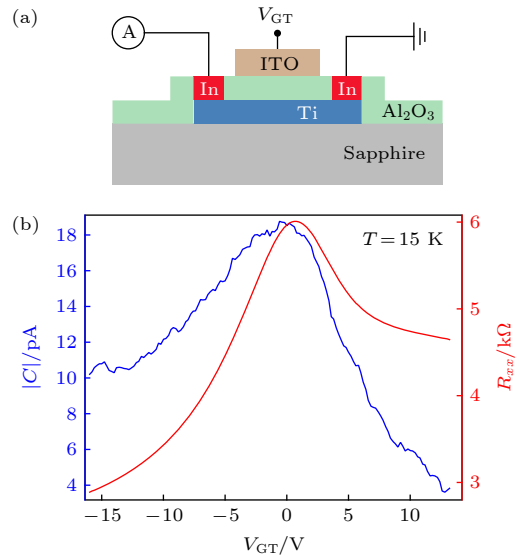


图 9 (a) Pan 等人制备的顶电极器件, 其中 Al_2O_3 作为介质层, ITO 作为电极材料; (b) $(\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x})_2\text{Se}_3$ 薄膜的光电流与纵向电阻随电压的变化情况 [98]

Fig. 9. (a) The Schematic diagram of the top-gate device prepared by Pan et al, where the Al_2O_3 is dielectric layer while the ITO serves as top gate material; (b) the gate-dependent longitudinal resistance and nonlinear current in $(\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x})_2\text{Se}_3$ film [98].

表 3 不同载流子浓度下 Bi_2Se_3 辐射的太赫兹峰值强度 [99]

Table 3. Carrier concentration and THz peak amplitude for Bi_2Se_3 films [99].

编号	材料	载流子浓度/ 10^{18} cm^{-3}	太赫兹峰值/ $\text{mV}\cdot\text{cm}^{-1}$
1	Bi_2Se_3	-75.5	1.24
2	Bi_2Se_3	-34.6	7.75
3	Bi_2Se_3	-31	5.27
4	Bi_2Se_3	-15.6	11.10
5	$\text{Cu}_{0.02}\text{Bi}_2\text{Se}_3$	-3.66	54.39
6	$\text{Cu}_{0.08}\text{Bi}_2\text{Se}_3$	-4.23	55.77
7	$\text{Cu}_{0.1}\text{Bi}_2\text{Se}_3$	-1.96	39.37
8	$\text{Cu}_{0.125}\text{Bi}_2\text{Se}_3$	-1.17	52.32

综上所述, 拓扑绝缘体/铁磁异质结可以发射手性可调的椭圆太赫兹波, 并且可以通过施加栅极电压控制出射非线性太赫兹的幅值, 如果能够结合这两个优势, 即通过改变晶格和磁场方向调控出射太赫兹的偏振态, 施加栅极电压改变非线性太赫兹分量的幅值, 就可以通过拓扑绝缘体/铁磁异质结实现任意调谐的太赫兹波发射。

5 结 论

针对拓扑绝缘体的研究成果, 不仅可以应用于低功耗自旋电子器件和量子计算器件, 而且对于研发低功耗可控太赫兹发射器也具有重要意义。

在这篇综述中, 首先, 从拓扑绝缘体的基本结构入手, 以 Bi_2Se_3 为例讨论了拓扑绝缘体的非中心对称表面, 结合 ARPES 分析了其拓扑保护的非平庸表面态. 这种特殊的能带结构是拓扑绝缘体实现高效自旋太赫兹发射的根本原因. 通过对拓扑绝缘体内部的几种非线性效应的分析, 说明了拓扑绝缘体薄膜出射太赫兹波对晶体方向 ϕ , 入射角 θ 或入射光偏振态的依赖关系, 即可以通过改变这些外界条件, 实现对出射非线性太赫兹辐射的调控。

接下来, 为了证明拓扑绝缘体/铁磁异质结作为自旋太赫兹发射器的优越性, 首先分析了基于铁磁/非磁异质结中的自旋太赫兹发射. 在飞秒激光的激发下, 由于自旋塞贝克效应等超快动力学效应, 在铁磁层中激发一个纯自旋流并被注入非磁层. 由于 ISHE, 注入的自旋流被转换成亚皮秒时间尺度上的横向电荷流, 进而产生太赫兹辐射. 自旋太赫兹具有稳定、廉价、低功耗、易于调控等优点, 比如可以通过级联两组异质结实现圆偏振的太赫兹发射, 或者通过双抽运激发异质结实现对太赫兹频谱的调控. 由于自旋太赫兹的偏振方向只依赖于铁磁层的磁化方向, 因此可以通过改变磁场分布实现手性可控太赫兹发射。

由于拓扑绝缘体有强自旋轨道耦合特性, 可以实现高效的自旋-电荷转化, 因此可以使用拓扑绝缘体材料代替非磁层构成拓扑自旋发射器. 在相同的有效厚度下, 拓扑绝缘体的自旋太赫兹发射效率是重金属的 1.7 倍, 经厚度优化后, 其发射效率可以与商用的 ZnTe 晶体相媲美. 拓扑自旋太赫兹发射器在保留自旋太赫兹优势的前提下, 可以通过改变晶体方向单独调控拓扑绝缘体中非线性效应产

生的太赫兹辐射, 其出射的非线性太赫兹波与异质结中出射的自旋太赫兹波可以在空间中合成椭圆太赫兹波. 并且, 可以通过施加栅极电压或掺杂调控拓扑绝缘体的费米能级, 进而改变出射非线性太赫兹的幅值. 将两个优点结合起来, 可以实现圆偏振的太赫兹发射. 目前国内外的研究表明, 基于拓扑绝缘体/铁磁异质结构的拓扑自旋太赫兹发射器可以成为实现偏振任意可调谐太赫兹脉冲辐射的一种有效方案。

参考文献

- [1] Jin Z, Mics Z, Ma G, Cheng Z, Bonn M, Turchinovich D 2013 *Phys. Rev. B* **87** 094422
- [2] Tonouchi M 2007 *Nat. Photonics* **1** 97
- [3] Nagatsuma T, Ducournau G, Renaud C C 2016 *Nat. Photonics* **10** 371
- [4] Sirtori C 2002 *Nature* **417** 132
- [5] Zhang B, He T, Shen J, Hou Y, Hu Y, Zang M, Chen T, Feng S, Teng F, Qin L 2014 *Opt. Lett.* **39** 6110
- [6] Kawase K, Sato M, Taniuchi T, Ito H 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 2483
- [7] Winnewisser C, Jepsen P U, Schall M, Schyja V, Helm H 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 3069
- [8] Han P Y, Tani M, Pan F, Zhang X C 2000 *Opt. Lett.* **25** 675
- [9] Kawase K, Hatanaka T, Takahashi H, Nakamura K, Taniuchi T, Ito H 2000 *Opt. Lett.* **25** 1714
- [10] Nahata A, Welting A S, Heinz T F 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 2321
- [11] Matsuura S, Tani M, Sakai K 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 559
- [12] Shi W, Yan Z J 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 228702 (in Chinese) [施卫, 闫志中 2015 物理学报 **64** 228702]
- [13] Kumar N, Hendrikx R W A, Adam A J L, Planken P C M 2015 *Opt. Express* **23** 14252
- [14] Gorelov S, Mashkovich E, Tsarev M, Bakunov M 2013 *Phys. Rev. B* **88** 220411
- [15] Mikhaylovskiy R, Hendry E, Kruglyak V, Pisarev R, Rasing T, Kimel A 2014 *Phys. Rev. B* **90** 184405
- [16] Beaurepaire E, Turner G M, Harrel S M, Beard M C, Bigot J Y, Schmuttenmaer C A 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 3465
- [17] 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
- [18] Shen J, Fan X, Chen Z, DeCamp M F, Zhang H, Xiao J Q 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 072401
- [19] Kampfrath T, Battiato M, Maldonado P, Eilers G, Nötzold J, Mährlein S, Zbarsky V, Freimuth F, Mokrousov Y, Blügel S, Wolf M, Radu I, Oppeneer P M, Münzenberg M 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 256
- [20] Seifert T, Jaiswal S, Martens U, Hannegan J, Braun L, Maldonado P, Freimuth F, Kronenberg A, Henrzi 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 *Nat. Photonics* **10** 483
- [21] Wang B, Shan S, Wu X, Wang C, Pandey C, Nie T, Zhao W, Li Y, Miao J, Wang L 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 121104
- [22] Chen X, Wu X, Shan S, Guo F, Kong D, Wang C, Nie T, Pandey C, Wen L, Zhao W, Ruan C, Miao J, Li Y, Wang L 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 221104

- [23] Bernevig B A, Hughes T L, Zhang S C 2006 *Science* **314** 1757
- [24] Fu L, Kane C L, Mele E J 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 106803
- [25] Moore J E, Balents L 2007 *Phys. Rev. B* **75** 121306
- [26] Roy R 2009 *Phys. Rev. B* **79** 195322
- [27] Fu L, Kane C L 2007 *Phys. Rev. B* **76** 045302
- [28] Xia Y, Qian D, Hsieh D, Wray L, Pal A, Lin H, Bansil A, Grauer D, Hor Y S, Cava R J 2009 *Nat. Phys.* **5** 398
- [29] Hsieh D, Xia Y, Qian D, Wray L, Dil J H, Meier F, Osterwalder J, Patthey L, Checkelsky J G, Ong N P, Fedorov A V, Lin H, Bansil A, Grauer D, Hor Y S, Cava R J, Hasan M Z 2009 *Nature* **460** 1101
- [30] König M, Wiedmann M, Brüne C, Roth A, Buhmann H, Molenkamp L W, Qi X L, Zhang S C 2007 *Science* **318** 766
- [31] Chang C Z, Zhang J, Feng X, Shen J, Zhang Z, Guo M, Li K, Ou Y, Wei P, Wang L L, Ji Z Q, Feng Y, Ji S, Chen X, Jia J, Dai X, Fang Z, Zhang S C, He K, Wang Y, Lu L, Ma X C, Xue Q K 2013 *Science* **340** 167
- [32] He Q L, Pan L, Stern A L, Burks E C, Che X, Yin G, Wang J, Lian B, Zhou Q, Choi E S, Murata K, Kou X, Chen Z, Nie T, Shao Q, Fan Y, Zhang S C, Liu K, Xia J, Wang K L 2017 *Science* **357** 294
- [33] Hsieh D, Qian D, Wray L, Xia Y, Hor Y S, Cava R J, Hasan M Z 2008 *Nature* **452** 970
- [34] Li Y, Edmonds K W, Liu X, Zheng H, Wang K 2019 *Adv. Quantum Technol.* **2** 1800052
- [35] Khang N H D, Ueda Y, Hai P N 2018 *Nat. Mater.* **17** 808
- [36] Ganichev S D, Ketterl H, Prettl W, Ivchenko E L, Vorobjev L E 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 3146
- [37] Ganichev S D, Prettl W 2003 *J. Phys.: Condens. Matter* **15** R935
- [38] Liu C X, Qi X L, Zhang H, Dai X, Fang Z, Zhang S C 2010 *Phys. Rev. B* **82** 045122
- [39] Kane C L, Mele E J 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 226801
- [40] Che X, Murata K, Pan L, He Q L, Yu G, Shao Q, Yin G, Deng P, Fan Y, Ma B, Liang X, Zhang B, Han X, Bi L, Yang Q H, Zhang H, Wang K L 2018 *ACS Nano* **12** 5042
- [41] He L, Kou X, Wang K L 2013 *Phys. Status Solidi RRL* **7** 50
- [42] Hamh S Y, Park S H, Han J, Jeon J H, Kahng S J, Kim S, Choi S H, Bansal N, Oh S, Park J, Kim J S, Kim J M, Noh D Y, Lee J S 2015 *Nanoscale Res. Lett.* **10** 1
- [43] Pan Z H, Fedorov A, Gardner D, Lee Y S, Chu S, Valla T 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 187001
- [44] Kane C L, Mele E J 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 146802
- [45] Wu H, Xu Y, Deng P, Pan Q, Razavi S A, Wong K, Huang L, Dai B, Shao Q, Yu G, Han X, Rojas-Sánchez J C, Mangin S, Wang K L 2019 *Adv. Mater.* **31** 1901681
- [46] Wang Y, Deorani P, Banerjee K, Koirala N, Brahlek M, Oh S, Yang H 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 257202
- [47] Zhu L G, Kubera B, Mak K F, Shan J 2015 *Sci. Rep.* **5** 10308
- [48] Hamh S Y, Park S H, Jerng S K, Jeon J H, Chun S H, Lee J S 2016 *Phys. Rev. B* **94** 161405
- [49] Fang Z, Wang H, Wu X, Shan S, Wang C, Zhao H, Xia C, Nie T, Miao J, Zhang C, Zhao W, Wang L 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 191102
- [50] Liu K, Xu J, Yuan T, Zhang X C 2006 *Phys. Rev. B* **73** 155330
- [51] Seifert P, Vaklinova K, Kern K, Burghard M, Holleitner A 2017 *Nano Lett.* **17** 973
- [52] Duan J, Tang N, He X, Yan Y, Zhang S, Qin X, Wang X, Yang X, Xu F, Chen Y 2014 *Sci. Rep.* **4** 4889
- [53] Kastl C, Kärnetzky C, Karl H, Holleitner A W 2015 *Nat. Commun.* **6** 6617
- [54] McIver J W, Hsieh D, Steinberg H, Jarillo-Herrero P, Gedik N 2011 *Nat. Nanotechnol.* **7** 96
- [55] Braun L, Mussler G, Hruban A, Konczykowski M, Schumann T, Wolf M, Münzenberg M, Perfetti L, Kampfrath T 2016 *Nat. Commun.* **7** 13259
- [56] Tu C M, Chen Y C, Huang P, Chuang P Y, Lin M Y, Cheng C M, Lin J Y, Juang J Y, Wu K H, Huang J C A, Pong W F, Kobayashi T, Luo C W 2017 *Phys. Rev. B* **96** 195407
- [57] Belinicher V I, Sturman B I 1980 *Phys.-Usp.* **23** 199
- [58] Junck A, Refael G, von Oppen F 2013 *Phys. Rev. B* **88** 075144
- [59] Maysonave J, Huppert S, Wang F, Maero S, Berger C, de Heer W, Norris T B, de Vaulchier L A, Dhillon S, Tignon J, Ferreira R, Mangeney J 2014 *Nano Lett.* **14** 5797
- [60] Obraztsov P A, Kaplas T, Garnov S V, Kuwata-Gonokami M, Obraztsov A N, Svirko Y P 2014 *Sci. Rep.* **4** 4007
- [61] Karch J, Olbrich P, Schmalzbauer M, et al. 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 227402
- [62] Bahk Y M, Ramakrishnan G, Choi J, Song H, Choi G, Kim Y H, Ahn K J, Kim D S, Planken P C M 2014 *ACS Nano* **8** 9089
- [63] Hamh S Y, Park S H, Han J, Jeon J H, Kahng S J, Kim S, Choi S H, Bansal N, Oh S, Park J 2015 *Nanoscale Res. Lett.* **10** 489
- [64] Tu C M, Yeh T T, Tzeng W Y, Chen Y R, Chen H J, Ku S A, Luo C W, Lin J Y, Wu K H, Juang J Y 2015 *Sci. Rep.* **5** 14128
- [65] Hosur P 2011 *Phys. Rev. B* **83** 035309
- [66] Olbrich P, Golub L, Herrmann T, et al. 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 096601
- [67] Gao Y, Kaushik S, Philip E, Li Z, Qin Y, Liu Y, Zhang W, Su Y, Chen X, Weng H 2020 *Nat. Commun.* **11** 720
- [68] Wang X, Cheng L, Zhu D, Wu Y, Chen M, Wang Y, Zhao D, Boothroyd C B, Lam Y M, Zhu J X, Battiato M, Song J C W, Yang H, Chia E E M 2018 *Adv. Mater.* **30** 1802356
- [69] Bosu S, Sakuraba Y, Uchida KI, Saito K, Ota T, Saitoh E, Takanashi K 2011 *Phys. Rev. B* **83** 224401
- [70] Jaworski C M, Yang J, Mack S, Awschalom D D, Heremans J P, Myers R C 2010 *Nat. Mater.* **9** 898
- [71] Battiato M, Carva K, Oppeneer P M 2012 *Phys. Rev. B* **86** 024404
- [72] Kimura T, Otani Y, Sato T, Takahashi S, Maekawa S 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 156601
- [73] Uchida K, Takahashi S, Harii K, Ieda J, Koshibae W, Ando K, Maekawa S, Saitoh E 2008 *Nature* **455** 778
- [74] Seifert T S, Jaiswal S, Barker J, Weber S T, Razdolski I, Cramer J, Gueckstock O, Maehrlein S F, Nadvornik L, Watanabe S 2018 *Nat. Commun.* **9** 1
- [75] Rudolf D, La-O-Vorakiat C, Battiato M, et al. 2012 *Nat. Commun.* **3** 1037
- [76] Eschenlohr A, Battiato M, Maldonado P, Pontius N, Kachel T, Holldack K, Mitzner R, Föhlisch A, Oppeneer P M, Stamm C 2013 *Nat. Mater.* **12** 332
- [77] Battiato M, Carva K, Oppeneer P M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 027203
- [78] Bennemann K H 2004 *J. Phys.: Condens. Matter* **16** R995
- [79] Kirilyuk A, Kimel A V, Rasing T 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 2731
- [80] Sasaki Y, Suzuki K Z, Mizukami S 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 102401
- [81] Torosyan G, Keller S, Scheuer L, Beigang R, Papaioannou E T 2018 *Sci. Rep.* **8** 1311
- [82] Wu Y, Elyasi M, Qiu X, Chen M, Liu Y, Ke L, Yang H 2017 *Adv. Mater.* **29** 1603031

- [83] Zhou X, Song B, Chen X, You Y, Ruan S, Bai H, Zhang W, Ma G, Yao J, Pan F 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 182402
- [84] Hibberd M, Lake D, Johansson N, Thomson T, Jamison S, Graham D 2019 *Appl. Phys. Lett.* **114** 031101
- [85] Kong D, Wu X, Wang B, Nie T, Xiao M, Pandey C, Gao Y, Wen L, Zhao W, Ruan C, Miao J, Li Y, Wang L 2019 *Adv. Opt. Mater.* **7** 1900487
- [86] Pai C F, Liu L, Li Y, Tseng H W, Ralph D C, Buhrman R A 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 122404
- [87] Liu L, Pai C F, Li Y, Tseng H W, Ralph D C, Buhrman R A 2012 *Science* **336** 555
- [88] Wang Y, Zhu D, Wu Y, Yang Y, Yu J, Ramaswamy R, Mishra R, Shi S, Elyasi M, Teo K L 2017 *Nat. Commun.* **8** 1
- [89] Kubota H, Fukushima A, Yakushiji K, Nagahama T, Yuasa S, Ando K, Maehara H, Nagamine Y, Tsunekawa K, Djayaprawira D D 2008 *Nat. Phys.* **4** 37
- [90] Liu L, Moriyama T, Ralph D, Buhrman R 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 036601
- [91] Mellnik A R, Lee J S, Richardella A, Grab J L, Mintun P J, Fischer M H, Vaezi A, Manchon A, Kim E A, Samarth N, Ralph D C 2014 *Nature* **511** 449
- [92] Fan Y, Upadhyaya P, Kou X, Lang M, Takei S, Wang Z, Tang J, He L, Chang L T, Montazeri M 2014 *Nat. Mater.* **13** 699
- [93] Kekatpure R D, Brongersma M L 2008 *Nano Lett.* **8** 3787
- [94] Chen J, Qin H J, Yang F, Liu J, Guan T, Qu F M, Zhang G H, Shi J R, Xie X C, Yang C L, Wu K H, Li Y Q, Lu L 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 176602
- [95] Jauregui L A, Pettes M T, Rokhinson L P, Shi L, Chen Y P 2015 *Sci. Rep.* **5** 8452
- [96] Souma S, Eto K, Nomura M, Nakayama K, Sato T, Takahashi T, Segawa K, Ando Y 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 116801
- [97] Wang Z, Lin T, Wei P, Liu X, Dumas R, Liu K, Shi J 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 159903
- [98] Pan Y, Wang Q Z, Yeats A L, Pillsbury T, Flanagan T C, Richardella A, Zhang H, Awschalom D D, Liu C X, Samarth N 2017 *Nat. Commun.* **8** 1037
- [99] Luo C W, Chen H J, Tu C M, Lee C C, Ku S A, Tzeng W Y, Yeh T T, Chiang M C, Wang H J, Chu W C 2013 *Adv. Opt. Mater.* **1** 804

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

High-performance THz emission: From topological insulator to topological spintronics*

Wang Hang-Tian¹⁾²⁾ Zhao Hai-Hui¹⁾ Wen Liang-Gong¹⁾²⁾
 Wu Xiao-Jun³⁾ Nie Tian-Xiao^{1)2)†} Zhao Wei-Sheng¹⁾²⁾

1) (*Fert Beijing Institute, School of Microelectronics, Beihang University, Beijing 100191, China*)

2) (*Qingdao Research Institute, Beihang University, Qingdao 266000, China*)

3) (*School of Electronic and Information Engineering, Beihang University, Beijing 100191, China*)

(Received 8 May 2020; revised manuscript received 4 June 2020)

Abstract

Ferromagnet/nonmagnet (FM/NM) heterostructure under the excitation of femtosecond laser has proved to be a potential candidate for high-efficiency terahertz (THz) emission. Topological insulator (TI) is a novel two-dimensional (2D) material with a strong spin-orbital coupling, which endows this material with an extremely large spin-Hall angle. Thus, TI appears to be an attractive alternative to achieving higher-performance spintronic THz emitter when integrated with ferromagnetic material. In this paper, we discuss the ultrafast photocurrent response mechanism in TI film on the basis of the analysis of its crystal and band structures. The discussion of the mechanism reveals a relationship between THz radiation and external conditions, such as crystal orientation, polarized direction and chirality of the laser. Furthermore, we review the spintronic THz emission and manipulation in FM/NM heterostructure. The disclosed relationship between THz radiation and magnetization directions enables an effective control of the THz polarization by optimizing the system, such as by applying twisted magnetic field or fabricating cascade emitters. After integration, the FM/TI heterostructure presents a high efficiency and easy operation in THz radiation. This high-performance topological spintronic THz emitter presents a potential for the achievement of arbitrary polarization-shaping terahertz radiation.

Keywords: terahertz source, topological insulator, ultrafast photocurrent, spintronic terahertz

PACS: 07.57.Hm, 85.75.-d, 64.70.Nd, 73.50.Pz

DOI: 10.7498/aps.69.20200680

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2018YFB0407602), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61774013, 11644004), and the National Key Technology Program of China (Grant No. 2017ZX01032101).

† Corresponding author. E-mail: nietianxiao@buaa.edu.cn