

极性反铁磁体 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的太赫兹发射谱

时立宇 吴东 王子潇 林桐 张思捷 刘巧梅 胡天晨 董涛 王楠林

Terahertz emission spectrum of polar antiferromagnet $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$

Shi Li-Yu Wu Dong Wang Zi-Xiao Lin Tong Zhang Si-Jie Liu Qiao-Mei Hu Tian-Chen Dong Tao
Wang Nan-Lin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 204206 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20201545

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201545>

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

层状铁磁体 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 的Andreev反射谱

Andreev reflection spectroscopy of ferromagnetic $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ with layered structure

物理学报. 2019, 68(24): 247201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191221>

$\text{Al}^{3+}/\text{Mo}^{6+}$ 双离子取代 ZrV_2O_7 中 $\text{Zr}^{4+}/\text{V}^{5+}$ 实现近零膨胀

Substitutions of dual-ion $\text{Al}^{3+}/\text{Mo}^{6+}$ for $\text{Zr}^{4+}/\text{V}^{5+}$ in ZrV_2O_7 for realizing near-zero thermal expansion

物理学报. 2017, 66(7): 076501 <https://doi.org/10.7498/aps.66.076501>

核 $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ -壳 $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$ 型磁体反磁化的微磁学模拟

Micromagnetic simulations of reversal magnetization in core $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ -shell $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$ type

物理学报. 2020, 69(14): 147501 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200435>

Mn 掺杂 $\text{Pb}(\text{In}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$ - $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - PbTiO_3 单晶微米尺度压电阵列的制备与铁电畴结构研究

Preparation and ferroelectric domain structure of micro-scale piezoelectric array fabricated by Mn doped $\text{Pb}(\text{In}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$ - $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - PbTiO_3 single crystal

物理学报. 2020, 69(18): 187701 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200544>

专题：太赫兹自旋光电子

极性反铁磁体 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的太赫兹发射谱*

时立宇 吴东 王子潇 林桐 张思捷

刘巧梅 胡天晨 董涛 王楠林†

(北京大学物理学院, 量子材料科学中心, 北京 100871)

(2020年6月12日收到; 2020年7月3日收到修改稿)

极性材料中, 电子受激发跃迁会改变材料的电极化矢量, 受到飞秒脉冲激光的激发时, 瞬态变化的电极化矢量会向外辐射电磁波, 产生太赫兹波段的发射谱. 在磁有序体系中, 受到相干激发的自旋波在进动弛豫的过程中, 会辐射相同频率的电磁波. 研究这些材料的太赫兹发射谱, 不仅有助于理解材料的铁电有序和磁有序的动力学过程, 也为寻找新的太赫兹源提供参考. 我们对极性反铁磁体 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的太赫兹发射谱进行了研究, 在 800 nm 飞秒激光的泵浦下, 材料中的电子发生跨越能隙的激发, 对电极化矢量产生超快调制, 观察到 0.1—3.5 THz 的宽带太赫兹激发谱, 太赫兹电场方向沿材料的固有电极化方向. 在进入磁有序后, 观测到两个新的单频太赫兹震荡, 分别位于 1.25 和 2.70 THz, 分别对应 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的两个反铁磁自旋波.

关键词: $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$, 极性反铁磁体, 太赫兹发射谱

PACS: 42.65.Re, 77.84.-s, 75.78.Jp

DOI: 10.7498/aps.69.20201545

1 引言

光谱学是测量物质性质的重要实验技术. 光谱实验中在红外与微波之间, 名为太赫兹的区域曾经长期存在着一段空白区, 其主要原因是受限于太赫兹的产生和探测技术上的困难. 而这一频率范围的研究在物理学中具有重要的意义, 物质中分子的振动, 晶格和自旋的集体激发, 甚至超导能隙等都涉及这一能量尺度. 近 30 年来, 人们发现许多材料在飞秒激光的激发下能够辐射相当强度的太赫兹区域电磁波. 这些基于飞秒激光的相干太赫兹源以及对应的探测技术得到蓬勃发展, 引起基础科学工作者的关注, 展现出应用前景. 而在寻找太赫兹源的过程中, 太赫兹发射谱也逐渐成为一种探测物质性质的新实验技术, 它直接反映材料的低能动力学过程, 能够为研究晶格对称性, 光生载流子运动,

磁振子运动等诸多物理问题提供关键信息^[1-3].

多铁性材料是指同时具有电极化有序和磁有序的材料, 有些多铁性材料中, 磁与电之间存在强烈的耦合效应. 这些磁电耦合材料具有神奇的性质, 例如受电场调控的磁化强度以及受磁场调控的电极化强度等. 磁电耦合材料在制作新型信息器件方面具有备受期待的应用前景, 对于其中电极化与自旋的超快动力学研究, 是凝聚态物理的前沿课题之一. 其中尤为引人注目的是研究光与磁电有序之间的动力学耦合作用, 尤其是应用飞秒脉冲激光及强场太赫兹脉冲对磁电耦合材料进行超快调控^[4]. 本文的工作中, 我们使用飞秒激光泵浦极性反铁磁体 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$, 测量到频率范围为 0.1—3.5 THz 发射谱, 太赫兹辐射的电场方向沿样品的电极化方向, 并分析发射太赫兹的起源. 在磁相变温度以下, 材料的电磁振子与磁振子也被相干激发, 在太赫兹时域谱线上表现出周期性振荡信号.

* 国家自然科学基金(批准号: 11888101)和国家重点基础研究发展计划(批准号: 2017YFA0302904, 2016YFA0300902)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: nlwang@pku.edu.cn

2 样品与实验系统介绍

极性磁体 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的晶格结构具有极性对称群 $P6_3mc$, 破缺中心反演对称, 自发电极化方向沿 c 方向. 降温至 $T_N = 60 \text{ K}$ 以下时, 形成长程磁有序, 如图 1 所示, 磁矩方向均沿 c 方向排列, 位于氧四面体中的铁与氧八面体中的铁具有不同大小的磁矩, 因此每个铁氧层具有亚铁磁性, 而相邻层间磁矩相反, 整体表现为反铁磁性. $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 近年来因具有显著的磁电效应而受到广泛关注 [5–7], 尤其是在太赫兹光谱中表现出多种奇异的性质, 如电磁振子 [8]、双折射 [9]、二向色性 [10]、磁振子极化激元 [11] 等.

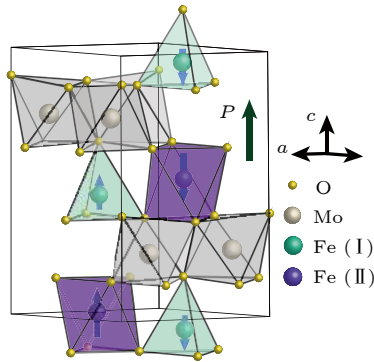


图 1 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 晶体的晶格结构与磁结构

Fig. 1. Crystal structure and magnetic structure of $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$.

我们采用气相运输方法生长高质量 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 单晶 [12,13], 从中挑选 ab 面和 ac 切面的 1—2 mm 大小的样品, 通过磁化率测量表征了样品的反铁磁相变温度 [11]. 为确定材料对 800 nm 光的吸收, 使用布鲁克公司的 80 V 傅里叶变换红外光谱仪测量了样品 ab 面的 80—22000 cm^{-1} 的反射谱, 通过 Kramers-Kronig 变换关系得到样品的光电导率等光学常数.

测量 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 太赫兹发射谱的实验光路图如图 2(a) 所示, 图中绿色区域充入氮气, 以避免空气中水汽吸收对太赫兹谱的干扰. 所用飞秒激光来自于光谱物理公司生产的钛蓝宝石激光放大器系统, 中心频率为 800 nm, 脉冲宽度 100 fs, 重复频率 1 kHz. 用分束片将激光分为两束, 功率较高的一束作为泵浦光, 由透镜 L2 聚焦在样品上激发出太赫兹辐射. 样品发射的太赫兹波由离轴抛物面镜收集并聚焦在 ZnTe 电光晶体上. 另一束较弱的激光作为采样光, 经过时间延迟线后通过透镜 L1 同

样聚焦在电光晶体上, 并与太赫兹波在晶体中重合, 对太赫兹进行电光采样. 受到太赫兹电场的影响, 电光晶体的折射率椭球发生改变, 进而改变穿过样品的采样光的偏振方向. 利用平衡探测测量采样光的偏振变化量, 正比于太赫兹的电场强度. 光路中的硅片用于阻挡穿过样品的泵浦光, 对太赫兹波则有很高的透射率. 本实验中, $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 对 800 nm 的泵浦光不透明, 也可以不放置硅片. 进行太赫兹发射谱测量时样品放置在牛津仪器生产的低温恒温器中, 测量温度为 10—300 K. 泵浦光垂直入射样品, 如图 2(b) 所示. 测量 ac 面的样品时, 设置 a 轴方向为水平方向, c 轴方向为垂直方向. 泵浦光的偏振方向则可以通过 $1/2$ 波片调节.

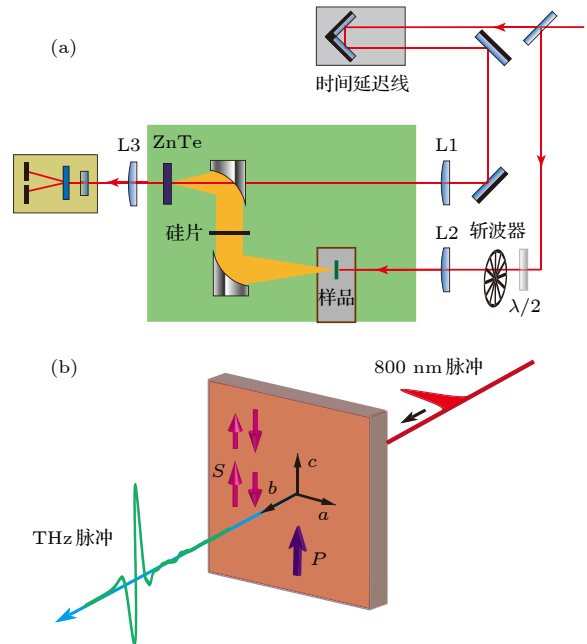


图 2 太赫兹发射谱测量实验示意图 (a) 实验光路图; (b) 泵浦光激发太赫兹的示意图

Fig. 2. schematic diagram of the measurement of the THz emission spectrum: (a) optical path of the experiment system; (b) schematic diagram of the THz emission from optical pump.

3 实验结果

图 3 所示为 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 太赫兹发射谱的测量结果. 首先测量泵浦光入射 ac 面的情况, $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 属于第一类多铁性材料, 在磁相变温度 T_N 以上已经破缺中心反演对称性, 在各个温度都可以观测到较强的太赫兹信号. 图 3(a) 为 60 K 时产生的太赫兹电场的时域谱线, 对时域谱线进行傅里叶变换可

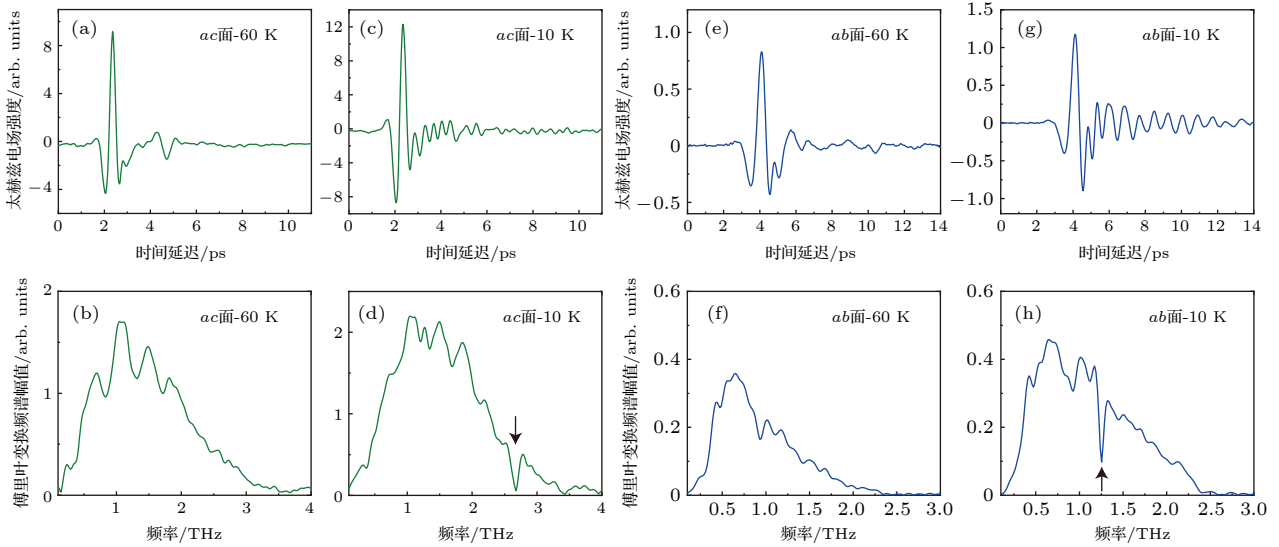


图3 太赫兹发射谱测量结果 (a) ac 面样品 60 K 的太赫兹发射谱的时域谱线; (b) (a) 图中时域谱线的傅里叶变换; (c) ac 面样品 10 K 的太赫兹发射谱的时域谱线; (d) (c) 图中时域谱线的傅里叶变换; (e) ab 面样品 60 K 的太赫兹发射谱的时域谱线; (f) (e) 图中时域谱线的傅里叶变换; (g) ab 面样品 10 K 的太赫兹发射谱的时域谱线; (h) (g) 图中时域谱线的傅里叶变换;

Fig. 3. THz emission spectra : (a) Time domain spectrum of ac plane at 60 K; (b) Fourier transform spectrum of (a); (c) time domain spectrum of ac plane at 10 K; (d) Fourier transform spectrum of (c); (e) time domain spectrum of ab plane at 60 K; (f) Fourier transform spectrum of (e); (g) time domain spectrum of ab plane at 10 K; (h) Fourier transform spectrum of (g).

以得到太赫兹的频谱, 图 3(b) 所示为 0.1—3.5 THz 的宽带辐射. 从时域谱线上可以看到, 在主信号峰之后 2 ps 的位置出现一个小信号峰, 另外在两个峰之间的谱线也不是单调光滑的曲线. 由于这些额外信号的存在, 图 3(b) 中得到的频域谱线不是一条光滑的曲线, 而是具有若干个起伏. 继续降温到相变温度以下的 10 K, 如图 3(c) 所示, 时域信号主峰值有所增强, 而杂项信号反而减弱. 最为明显的是, 在主信号峰之后可以看到一系列周期性振荡信号, 表明出现了孤立频率的电磁波辐射. 振荡的主要频率为 2.7 THz. 根据之前太赫兹时域光谱的报道^[8], $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 中的反铁磁自旋波激发在太赫兹区间有两支, 分别为 1.25 THz 和 2.7 THz, 其中 1.25 THz 的自旋波只有当太赫兹电场偏振方向垂直于 c 方向时才能观测到, 而与太赫兹磁场方向无关, 属于电场响应的特殊磁振子, 即电磁振子 (electromagnon). 而 2.7 THz 的自旋波只有当太赫兹磁场偏振方向垂直 c 方向时才能观测到, 而与太赫兹电场方向无关, 属于对磁场响应的普通磁振子 (magnon). 2.7 THz 与材料的磁振子能量对应, 表明自旋波受到了相干激发. 相干激发自旋波的方式可能有两种, 首先泵浦光激发的宽带太赫兹辐射包含 2.7 THz 的成分, 这部分太赫兹辐射可以相干激发自旋波^[14]. 另一方面, 飞秒激光直接泵浦自旋

也有多种方式可以激发自旋波, 例如光激发导致的自旋重排以及超快退磁效应等. 图 3(d) 中显示了傅里叶变换得到的频谱, 可以看到在 2.7 THz 处主要表现为吸收导致的低谷, 因此可以认为是自旋吸收了太赫兹导致的自旋波激发.

与 2.7 THz 处的明显吸收谷不同, 1.25 THz 的信号非常微弱. 但是由于 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 存在很强的磁电耦合效应, 电磁振子与电磁波的耦合强度应当强于磁振子与电磁波的耦合, 因此 1.25 THz 处应该观测到更强的振荡. 我们理解这一现象应当与产生的太赫兹波的偏振方向有关. 电磁振子是对电场响应的自旋波激发, 电磁波能有效激发电磁振子的条件是电磁波的电场方向垂直于 c 方向^[8]. 而普通磁振子是对磁场响应的自旋波, 它被电磁波激发的条件是, 电磁波的磁场方向垂直于自旋方向. 由此可知, 在 ac 面泵浦光激发的太赫兹电场的偏振方向主要沿晶体 c 轴方向, 因此电场与自旋方向重合, 而磁场与自旋方向垂直, 因此与电磁振子的耦合极弱, 而与磁振子耦合较强. 对 ab 面的太赫兹发射谱测量可以进一步验证这一结论.

图 3(e)—(h) 显示 ab 面的太赫兹发射谱测量结果. 在 60 K 测到的太赫兹信号十分微弱, 如图 3(e) 所示, 时域信号的峰值比 ac 面小了一个量级. ab 面信号微弱的现象与前面的分析一致, 因为在 ab

面偏振为 c 方向的太赫兹沿样品表面传播, 而系统只能测量到波矢方向沿 c 方向, 偏振方向在 ab 面内的太赫兹波. ab 面测到的频谱如图 3(f) 所示, 强度和频域范围都远小于 ac 面. 降温到 10 K, 信号强度有所增加, 同时观测到显著的 1.25 THz 周期性振荡信号, 对应 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 中的电磁振子, 如图 3(g) 所示. 图 3(h) 是其对应的傅里叶变换频域谱, 在 1.25 THz 出现很强吸收. 而由于频谱范围较窄, 在 2.7 THz 处已经没有谱重, 因此无法观测到磁振子的太赫兹信号.

为了分析宽带太赫兹的产生机制, 改变泵浦光的功率, 观测不同通量下太赫兹时域谱线的峰值大小, ac 面的时域信号峰值随泵浦光功率的变化如图 4(a) 所示. 太赫兹电场峰值强度与泵浦光通量表现出很好的线性关系, 表明样品在光泵浦下辐射太赫兹的过程属于二阶非线性过程, 我们随后基于二阶过程对太赫兹辐射的产生机理进行分析.

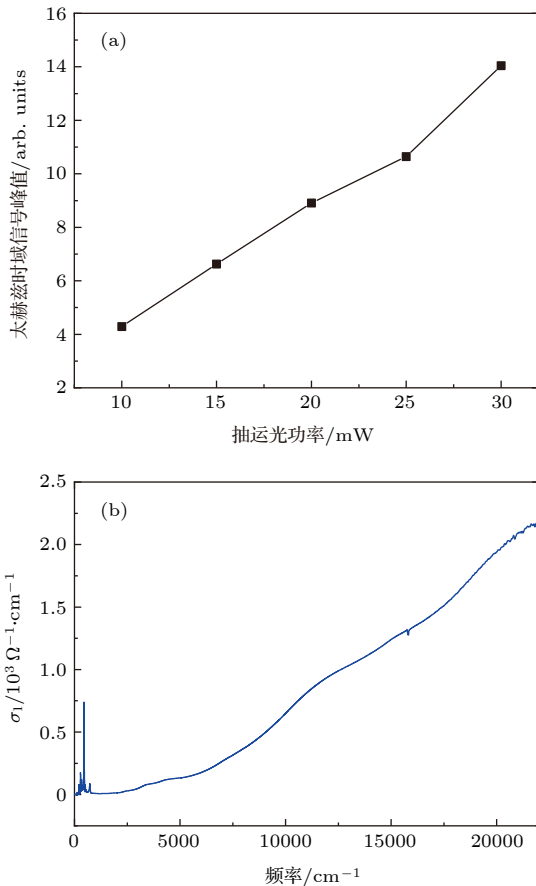


图 4 (a) 太赫兹时域信号峰值随泵浦光功率的变化; (b) 傅里叶变换光谱仪测得的 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的电导率谱

Fig. 4. (a) Fluence dependence of the THz intensity; (b) Optical conductivity of $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ measured by Fourier transform spectrometer.

4 分析与讨论

根据以上实验结果, 可以对 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 辐射太赫兹的机理进行分析. 许多材料在受到飞秒激光照射时能够激发出太赫兹辐射, 其中存在多种机制, 用公式表示为

$$\mathbf{E}_{\text{THz}} \propto \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} + \frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial t}(\nabla \times \mathbf{M}), \quad (1)$$

右边三项对应不同的太赫兹产生机制, 其中 \mathbf{P} , \mathbf{J} , \mathbf{M} 分别为非线性极化, 光生电流和磁化强度.

非线性极化产生太赫兹电场的一种常见方法是通过二阶非线性光学过程中的光整流效应^[15], 这是一种差频过程, 表示为

$$P_i^{(2)}(\Omega) \propto \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)}(\Omega, \omega + \Omega, -\omega) E_j(\omega + \Omega) E_k^*(\omega), \quad (2)$$

其中 $\chi_{ijk}^{(2)}$ 为二阶极化率张量, ω 为基频光频率, Ω 在差频过程中是两束光的频率差, 在光整流过程中则是同一束光不同成分之间的频率差, 由激光脉宽决定. 当激光脉宽为百飞秒时, 产生的差频信号就在太赫兹范围. 从 (2) 式中可以看到, 二阶电极化信号的强度正比于二阶极化率张量, 而二阶极化率张量需要遵守样品结构的对称性. $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的晶格对称群为 $P6_3mc$, 相应的二阶极化率张量非零分量为: $\chi_{ccc}^{(2)}$, $\chi_{caa}^{(2)} = \chi_{aca}^{(2)}$, 其中 $\chi_{caa}^{(2)}$ 和 $\chi_{aca}^{(2)}$ 具有相同的值. 而在我们的测量中, 无论泵浦光的偏振方向沿哪个方向, 产生太赫兹电场的主要分量都沿 c 轴方向, 且观测到相似的太赫兹时域谱线, 因此判断产生太赫兹的机制不是光整流效应. 另外, 光整流效应通常是在较大能隙的绝缘体材料中, 泵浦光能量低于材料能隙. 为确定 800 nm 的光子是否激发电子跨越能隙跃迁, 我们利用傅里叶变换红外光谱仪测量了样品在很宽能量范围的反射率谱, 通过 Kramers-Kronig 变换关系得到光电导率. 如图 4(b) 所示为光电导率实部 σ_1 的频谱, 可以看到 800 nm 的激光光子能量大于 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的能隙, 会产生跨越能隙的电子激发.

在砷化镓等半导体材料中, 脉冲激光的跨能隙激发会产生光生载流子, 如果外加偏压电场驱动这些载流子运动直至弛豫, 这些瞬态变化的光电流也会产生太赫兹辐射 $\mathbf{E}_{\text{THz}} \propto \partial \mathbf{J} / \partial t$, 太赫兹电场的偏振方向与外加电场的方向一致^[16]. 这种光生电

流产生太赫兹辐射的方法, 需要外加电场以驱动光生载流子运动. 但是近年来, 也发现在中心反演对称破缺的材料中, 不需要外加电场也能够产生光电流, 例如移位电流 (shift current)^[17]. 目前 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 并没有关于光电流的实验报道, 要验证是否有来自于光电流贡献的太赫兹辐射, 需要在光泵浦下直接测量电流, 以及进行外置偏压依赖的实验测量. 更为可能的起源是来自于电子受激跃迁对材料中固有的自发电极化强度的超快调控^[18–20]. 在非中心反演对称的极性材料中, 由于正负离子在空间上的分离, 导致形成一个个电偶极矩 \mathbf{p} , 并累积成宏观的自发性电极化 $\mathbf{P}_s = n\mathbf{p}$ (n 为单位体积内电偶极矩数目). 在受到脉冲激光激发时, 一部分电子被从价带激发到导带, 这部分电子不再贡献电偶极矩, 由此导致电极化强度的瞬间下降 $\mathbf{P}_s = (n - m)\mathbf{p}$. 类似于铁磁体中的自旋重排效应, 这一过程为非热过程, 具有超快的时间尺度, 从而产生太赫兹电场 $\mathbf{E}_{\text{THz}} \propto \partial^2 \mathbf{P} / \partial t^2$.

在 T_N 以下, 观测到的周期性振荡信号则是来自于相干激发的自旋波. 前面对电极化矢量调制产生的太赫兹波的电磁场能够相干地激发自旋波, 这些自旋按照一致的相位进动, 并不断向外辐射与自己频率相同的太赫兹波, 即表现为主信号峰之后, 电场强度的周期性振荡信号^[14].

实验中使用的样品为片状单晶, 厚度在 0.5 mm 以上. 但是根据红外光谱的测量结果, 可以估算出 800 nm 的光在 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的穿透深度只有 150 nm. 也就是说, 激光只激发了样品的表层, 也只有这一薄层在发射太赫兹, 其余部分反而是在吸收太赫兹, 幸好 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 对于太赫兹具有较好的透射率. 但是要想获得理想的太赫兹发射样品, 还需要寻找方法将样品制作成薄片乃至高质量的薄膜.

5 结 论

由 800 nm 飞秒激光对极性磁体 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 进行泵浦, 测量其太赫兹发射谱. 测量到频率范围为 0.1–3.5 THz 的太赫兹脉冲. 激发出的太赫兹强度不明显依赖于泵浦光的偏振方向, 而太赫兹的电场

方向沿样品 c 轴方向. 太赫兹辐射的可能来源为飞秒激光对样品电极化强度的超快调制. 在低温进入磁有序后, 时域谱线上观测到周期性振荡的单频太赫兹信号, 这些信号来自于被相干激发的反铁磁自旋波. 这些实验结果有助于理解多铁性材料的超快动力学性质, 以及寻找用脉冲激光对多铁性材料进行超快控制的方法, 也为寻找新的有效太赫兹源提供参考.

参考文献

- [1] Kawayama I, Zhang C H, Wang H B, Tonouchi M 2013 *Supercond. Sci. Tech.* **26** 093002
- [2] Turner G M, Harrel S M, Beard M C 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 3465
- [3] Klatt G, Hilser F, Qiao W, Beck M, Gebis R, Bartels A, Huska K, Lemmer U, Bastian G, Johnston M B, Fischer M, Faist J, Dekorsy T 2010 *Opt. Express* **18** 4939
- [4] Fiebig M, Lottermoser T, Meier D, Trassin M 2016 *Nat. Rev. Mater.* **1** 16046
- [5] Wang Y Z, Pascut G L, Gao B, Tyson T A, Haule K, Kiryukhin V, Cheong S W 2015 *Sci. Rep.-UK* **5** 12268
- [6] Kurumaji T, Ishiwata S, Tokura Y 2015 *Phys. Rev. X* **5** 031034
- [7] Li Y, Gao G, Yao K L 2017 *EPL (Europhysics Letters)* **118** 37001
- [8] Kurumaji T, Takahashi Y, Fujioka J, Masuda R, Shishikura H, Ishiwata S, Tokura Y 2017 *Phys. Rev. B* **95** 020405
- [9] Kurumaji T, Takahashi Y, Fujioka J, Masuda R, Shishikura H, Ishiwata S, Tokura Y 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 077206
- [10] Yu S K, Gao B, Kim J W, Cheong S W, Man M K L, Madéo J, Dani K M, Talbayev D 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 037601
- [11] Shi L Y, Wu D, Wang Z X, Lin T, Hu C M, Wang N L 2020 *arXiv* 2004.05823
- [12] Strobel P, Page Y L 1983 *J. Cryst. Growth* **61** 329
- [13] Strobel P, Page Y L, McAlister S P 1982 *J. Solid State Chem.* **42** 242
- [14] Zhou R Z, Jin Z M, Li G F, Ma G H, Cheng Z X, Wang X L 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 061102
- [15] Xu L, Zhang X C, Auston D H 1992 *Appl. Phys. Lett.* **61** 1784
- [16] Liu T A, Tani M, Nakajima M, Hangyo M, Sakai K, Nakashima S I, Pan C L 2004 *Opt. Express* **12** 2954
- [17] Sotome M, Nakamura M, Fujioka J, Ogino M, Kaneko Y, Morimoto T, Zhang Y, Kawasaki M, Nagaosa N, Tokura Y, Ogawa N 2019 *P. Natl. Acad. Sci. USA* **116** 1929
- [18] Takahashi K, Kida N, Tonouchi M 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 117402
- [19] Takahashi K, Tonouchi M 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 052908
- [20] Rana D S, Kawayama I, Mavani K, Takahashi K, Murakami H, Tonouchi M 2009 *Adv. Mater.* **21** 2881

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

**Terahertz emission spectrum of polar
antiferromagnet $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ ***Shi Li-Yu Wu Dong Wang Zi-Xiao Lin Tong Zhang Si-Jie
Liu Qiao-Mei Hu Tian-Chen Dong Tao Wang Nan-Lin †*(International Center for Quantum Materials, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)*

(Received 12 June 2020; revised manuscript received 3 July 2020)

Abstract

In polar materials, the transition of electrons in momentum space will change the spontaneous polarization. When excited by femtosecond pulse laser, the transient modulation of the electric polarization will radiate electromagnetic wave at terahertz frequency. In a magnetic ordered system, the coherent excited spin wave radiates electromagnetic waves of the same frequency in the process of precession and relaxation. The investigation of the terahertz emission spectra of these materials not only helps us to understand the ferroelectric and magnetic ordered dynamic processes of materials, but also provides a reference for searching for new terahertz sources. We study the terahertz emission spectrum of the polar antiferromagnet $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$. Under the pumping of 800 nm laser, electrons in the material are excited across the band gap leading the electric polarization to be ultra-fast modulated. The broadband terahertz excitation spectrum from 0.1 to 3.5 THz is observed, and the direction of the terahertz electric field is along the inherent electric polarization direction of the material. After entering into the magnetic order state, two new single-frequency terahertz oscillations are observed, located at 1.25 THz and 2.7 THz respectively, which correspond to the excitation of the two antiferromagnetic spin waves of $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$.

Keywords: $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$, polar antiferromagnet, THz emission spectrum**PACS:** 42.65.Re, 77.84.-s, 75.78.Jp**DOI:** [10.7498/aps.69.20201545](https://doi.org/10.7498/aps.69.20201545)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11888101) and the National Key Research and Development Program of China (Grant Nos. 2017YFA0302904, 2016YFA0300902).

† Corresponding author. E-mail: nlwang@pku.edu.cn