

太赫兹光谱揭示拓扑半金属 Co_2MnAl 薄膜中光载流子驱动的正负光电导转换*

王伊凡¹⁾ 孙梦佳²⁾ 李章顺¹⁾ 蓝志强¹⁾ 卢波¹⁾ 程臻³⁾ 肖美琪³⁾ 敬超²⁾ 金钻明¹⁾⁴⁾

1) (上海理工大学太赫兹技术创新研究院, 上海市现代光学系统重点实验室, 光学仪器与系统教育部工程中心, 太赫兹光谱与影像技术协同创新中心, 上海 200093)

2) (上海大学理学院物理系, 上海 200444)

3) (复旦大学物理学系, 应用表面物理国家重点实验室, 上海 200433)

4) (同济大学上海智能科学与技术研究院, 上海 200092)

摘要

本研究采用光泵浦-太赫兹探测光谱技术, 对比研究了拓扑半金属 Co_2MnAl 与传统 Fe 薄膜的超快太赫兹光电导特性, 观测到 Co_2MnAl 薄膜中光载流子驱动的正负光电导转换现象。利用磁场调制分离信号, 结合 Tinkham 模型定量分析光电导动力学, 发现 Fe 薄膜仅表现电子散射主导的负光电导, 弛豫过程不受泵浦能量密度影响。 Co_2MnAl 薄膜因自旋分辨的金属/半导体复合能带结构, 初始正光电导源于少数自旋半导体通道光生载流子增加, 后续快速转为负光电导则由动态极化子形成导致载流子迁移率降低引起, 其光电导峰值受泵浦能量密度调控。本研究阐明了 Co_2MnAl 薄膜超快光电特性及正负光电导转换的物理机制, 实现了对不同自旋电子动力学行为的光谱学区分, 为优化钴基哈斯勒合金太赫兹辐射性能、研发新型超快自旋电子器件提供了核心实验与物理依据。

关键词： 哈斯勒合金， Co_2MnAl ，太赫兹，光泵浦-太赫兹探测光谱

PACS： 78.47.D-, 78.20. - e, 73.63. -b, 72.40. +w

基金： 国家重点研发计划（批准号：2023YFF0719200）、国家自然科学基金（批准号：62322115, U24A20226, 62588201, 12274278, 62435010, 12274278）、上海教育发展基金会（批准号：24SG46）、高等学校学科创新引智计划（111 计划）（批准号：D18014）和上海市科技创新行动计划（批准号：22JC1400200, 21S31907400）资助的课题。

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

录用稿件，非最终出版稿

1 引言

哈斯勒合金作为一类三元金属间化合物，因其元素可替换性、结构可控性及物性与结构紧密相关的特点，在物理科学和材料科学领域备受关注^[1-5]。半金属哈斯勒合金具有独特的电子结构：多数自旋通道呈现金属特性，而少数自旋通道则形成带隙，理想情况下在费米能级处表现出 100% 的自旋极化^[6-8]。通过半金属哈斯勒合金的电子会呈现“自旋向上”或“自旋向下”的极化状态。此外，钴基哈斯勒合金兼具高居里温度和低磁阻尼常数等特性，使其成为自旋电子器件应用的候选材料^[9,10]。

此前研究表明， Co_2MnAl 作为一种铁磁性外尔半金属，具有拓扑能带特性，可增强本征反常霍尔效应与反常能斯特效应^[11,12]。Wang 等人阐明了基于铁磁 Heusler 合金 Co_2MnAl 的磁性三层结构中大的自旋霍尔效应和电流诱导的磁化反转^[13]。Li 等人在室温下，通过弱磁场改变了 Co_2MnAl 的能带拓扑结构。观察到由外尔点和节环参与的相变所诱导的可调谐的巨反常霍尔效应（AHE）^[14]。Qian 等人通过 Si 取代 Al 调控了多晶 Co_2MnAl 基哈斯勒磁体 $\text{Co}_2\text{MnAl}_{0.69}\text{Si}_{0.31}$ 的原子有序化与费米能级，实现了室温下优异的反常能斯特效应，并制备出性能良好的厘米级横向热电发生器，证实了该类多晶拓扑磁体在热电转换中的规模化应用潜力^[15]。Hait 等人制备出界面粗糙度小于 0.4 nm 的 $\text{WS}_2/\text{Co}_2\text{FeAl}$ 异质结，发现单层 WS_2 可使 8 nm 的 Co_2FeAl 阻尼常数提升约 41%，同时 WS_2 的引入提升了 Co_2FeAl 的表面各向异性性能密度^[16]。

尽管铁磁哈斯勒合金展现出令人期待的电学特性，但对哈斯勒合金中超快电子性质及其相应的光谱学行为的研究仍较为有限。近年来的研究主要集中在铁磁哈斯勒合金及其异质结构的太赫兹发射特性研究^[17,18]。Gupta 等人研究了 L_{21}/B_2 混

合相 $\text{Co}_2\text{FeAl}/\text{Pt}$ 异质结构的太赫兹发射特性，阐明了太赫兹电场振幅与 Co_2FeAl 和 Pt 层厚度的依赖关系^[19]。Bierhance 等人通过太赫兹发射光谱证实磁性外尔半金属 Co_2MnGa 和 Co_2MnAl 能实现与传统铁磁体铁相媲美的超快光驱动自旋注入效率和相近的电子自旋弛豫时间^[20]。Mandal 等人证实了 Co_2MnGa 单层膜的太赫兹发射特性受其拓扑特性主导，通过调控 Co_2MnGa 的成分可以改变费米能级附近外尔节点位置，通过调谐 AHE 进而调控太赫兹发射强度^[21]。Yadav 等人发现 Co_2MnGe 薄膜的太赫兹辐射发射机理不仅包含自旋无关的体光子拖拽效应与光学整流效应，而且发现了由圆偏振光伏效应 (circular photogalvanic effect, CPGE) 主导的自旋相关贡献^[22]。上述研究进展表明钴基哈斯勒合金在新型自旋电子器件和太赫兹发射器中具有潜在的应用价值，然而优化太赫兹辐射强度和带宽需要进一步深入了解材料中的超快载流子动力学过程。铁磁性外尔半金属哈斯勒合金具有独特的能带结构， Co_2MnAl 中多数自旋通道呈现金属特性，而少数自旋通道则具有半导体特性^[23]。仍然缺乏有效的光谱学实验手段区分 Co_2MnAl 合金中多数自旋与少数自旋电子不同的动力学行为。

载流子的光电导动力学对于光电器件中的光电转换至关重要。时间分辨的飞秒激光泵浦-太赫兹探测 (OPTP) 光谱技术是表征半导体材料和器件中超快光导响应的关键手段^[24-26]。超快光电导响应已被用于研究石墨烯^[27,28]，狄拉克半金属^[29,30]，铁磁金属及其异质结构^[31]中由独特能带结构主导的光生载流子散射机制，揭示了电荷、晶格乃至自旋自由度之间的动态相互作用。本论文采用时间分辨 OPTP 光谱，研究了 800 纳米飞秒激光诱导 Co_2MnAl 薄膜的超快太赫兹光电导特性。在不同光泵浦能量密度下，对比了 Co_2MnAl 薄膜和 Fe 薄膜中显著不同的光诱导载流子动力学。实验结果表明 Co_2MnAl 薄膜中，初始正光电导源于少数

自旋的“半导体”通道光生载流子增加。随后，在亚皮秒时间尺度上观察到太赫兹电导率迅速转变为负值。这种效应可归因于 Co_2MnAl 薄膜中多数自旋的“金属”动态极化子的形成导致光诱导载流子迁移率降低。研究表明，OFTP 光谱技术为探索哈斯勒合金中磁动力学与拓扑物理之间的相互作用提供了一个超快光谱学研究平台，有助于超快太赫兹器件和系统的研发^[32-34]。

2 样品

Co_2MnAl 薄膜采用脉冲激光沉积 (pulsed laser deposition, PLD) 技术在超高真空腔体内制备，衬底选用 $\text{MgO}(100)$ 单晶衬底。具体实验细节如下：沉积前，将 $\text{MgO}(100)$ 衬底经常规清洗工艺处理后置于超高真空沉积腔室中，随后将腔室背景真空度抽至 1.6×10^{-7} Torr，并将衬底温度稳定控制在 450°C ，保温一段时间以去除衬底表面吸附的水汽及杂质，确保衬底表面洁净度。沉积所用激光源为 KrF 准分子激光器，激光波长 248 nm，脉冲宽度 25 ns，激光以近 45° 入射角聚焦于旋转的 Co_2MnAl 靶材表面，以保证靶材均匀烧蚀及薄膜成分均匀性。激光泵浦能量密度设定为 358 mJ/脉冲，重复频率为 9 Hz。薄膜沉积过程中，腔室内压力始终维持在 1.6×10^{-7} Torr，沉积速率控制为 $3 \text{ \AA}/\text{min}$ 。通过控制沉积时间，制备得到厚度约为 20 nm 的 Co_2MnAl 薄膜。为防止薄膜在大气环境中发生氧化，沉积结束后，在 Co_2MnAl 薄膜表面原位沉积一层厚度约为 3 nm 的 Al_2O_3 保护层。

3 实验光路

光泵浦-太赫兹探测光谱测试基于钛蓝宝石再生放大器搭建实验平台，该放大器输出激光脉冲参数如下：脉冲宽度 120 fs，中心波长 800 nm，重复频率 1 kHz。实验装置示意图如图 1(a) 所示，其中红色线条代表激光束传播路径，蓝

色区域为太赫兹场区域。输出激光束经分束系统分为三路，分别用于太赫兹波产生、光泵浦及太赫兹波探测，具体功能如下：第一路激光用于驱动 ZnTe 晶体产生太赫兹波，太赫兹波经聚焦透镜聚焦后垂直入射至 Co_2MnAl 薄膜样品，用于表征太赫兹透射率随光泵浦延迟时间的演化规律。第二路作为光泵浦光束，垂直入射至样品表面，通过激光激发样品，不仅用以激发材料中的热电子，而且会诱导产生的太赫兹辐射信号，如图 1 (b) 所示，经 MgO 衬底透射后被探测系统收集。图 1 (c) 描述了 Fe 和 Co_2MnAl 薄膜费米面以上电子的光激发及其态密度示意图。第三路激光用于太赫兹波探测。

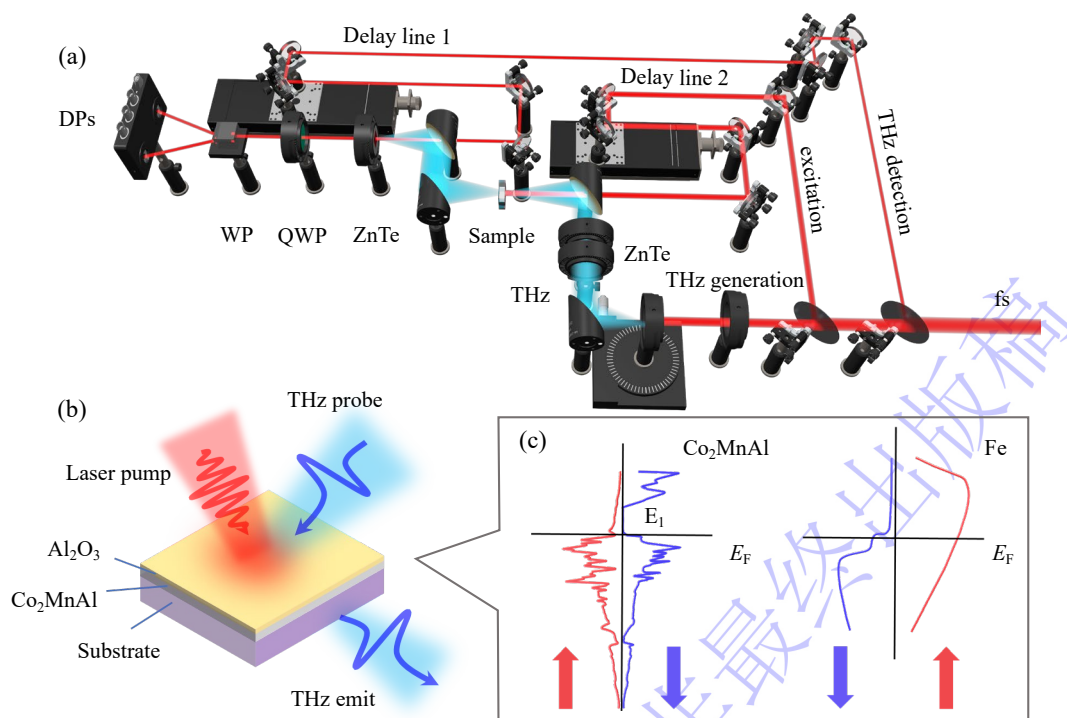


图 1 (a) 光泵浦-太赫兹探测光谱系统示意图； (b) Co_2MnAl 薄膜中太赫兹探测和太赫兹发射示意图； (c) Co_2MnAl 和 Fe 薄膜的能带结构示意图。

Fig. 1. (a) Schematic diagram of the optical pump-THz probe spectroscopy system; (b) Schematic diagram of THz detection and THz emission in Co_2MnAl thin films; (c) Schematic diagram of the energy band structure of Co_2MnAl and Fe thin films.

实验过程中，采用小孔径抛物面镜进行光束传输，有效抑制太赫兹波的传输损耗，保证信号传输效率。光泵浦光路中设置光学斩波器，设定斩波频率为 500 Hz，用于实现信号的锁相放大探测。样品被置于静态面内磁场环境中，磁场强度范围为 $\pm H=140$ mT。太赫兹电场信号采用 ZnTe 电光探测器进行探测，同时配置太赫兹波通光滤光片，用于滤除探测光路中的残余光脉冲，提升探测信号的信噪比。为避免空气中水分子对太赫兹波的吸收干扰，整个实验装置封装于充有干燥空气的腔体内。所有测试实验均在室温条件下完成，确保测试环境的稳定性与数据的可靠性。

4 实验结果

在 OPTP 技术的一维工作模式下，我们将电光采样探测光束的时序固定于太赫兹探测脉冲的峰值位置，并通过扫描延迟线 2 来调控泵浦激光脉冲与太赫兹探测脉冲之间的时间延迟^[35]。如图 2 (a) 和 (b) 所示，同时记录了 12 nm 的 Fe 和 20 nm 的 Co₂MnAl 样品在正向和反向磁场下时间分辨的太赫兹电场信号 $\Delta E^{\pm H}(t)$ 。除了观察到太赫兹探测脉冲在穿过样品后的变化之外，还观察到了在零延迟附近样品自身所产生的太赫兹辐射，如图 1 (b) 所示。我们将飞秒激光诱导产生的光泵浦-太赫兹探测信号表示为：

$$\Delta E^{\pm H}(t) = E_{emit}^{\pm H} + \Delta E(t) \quad (1)$$

式中 $E_{emit}^{\pm H}$ 对应受激发的铁磁薄膜产生的太赫兹辐射脉冲。 $\Delta E(t)$ 代表太赫兹探测脉冲穿过样品后，由泵浦光诱导太赫兹透射率信号的变化量， $\Delta E(t) = E_{trans}^{on} - E_{trans}^{off}$ 。 E_{trans}^{on} 与 E_{trans}^{off} 分别表示有泵浦光和无泵浦光时，太赫兹脉冲穿过样品的透射信号强度。外加磁场可对太赫兹辐射信号 $E_{emit}^{\pm H}$ 进行调制，而太赫兹透射信号变化量 $\Delta E(t)$ 不受磁场的影响。因此，只需将外加磁场在+H 与-H 之间切换，即可实现

$E_{emit}^{\pm H}$ 与 $\Delta E(t)$ 的信号分离:

$$E_{emit}(t) = \frac{1}{2}(\Delta E^{+H}(t) - \Delta E^{-H}(t)) \quad (2)$$

$$\Delta E(t) = \frac{1}{2}(\Delta E^{+H}(t) + \Delta E^{-H}(t)) \quad (3)$$

利用公式 (2), 图 2 (c) 和 (d) 分别得到了 12 nm 的 Fe 和 20 nm 的 Co_2MnAl 薄膜的太赫兹辐射信号 $E_{emit}(t)$ 。利用公式 (3), 图 2 (e) 和 (f) 分别获得了归一化的时间分辨太赫兹透射率 $\Delta E(t)/E_{trans}^{off}$ 。

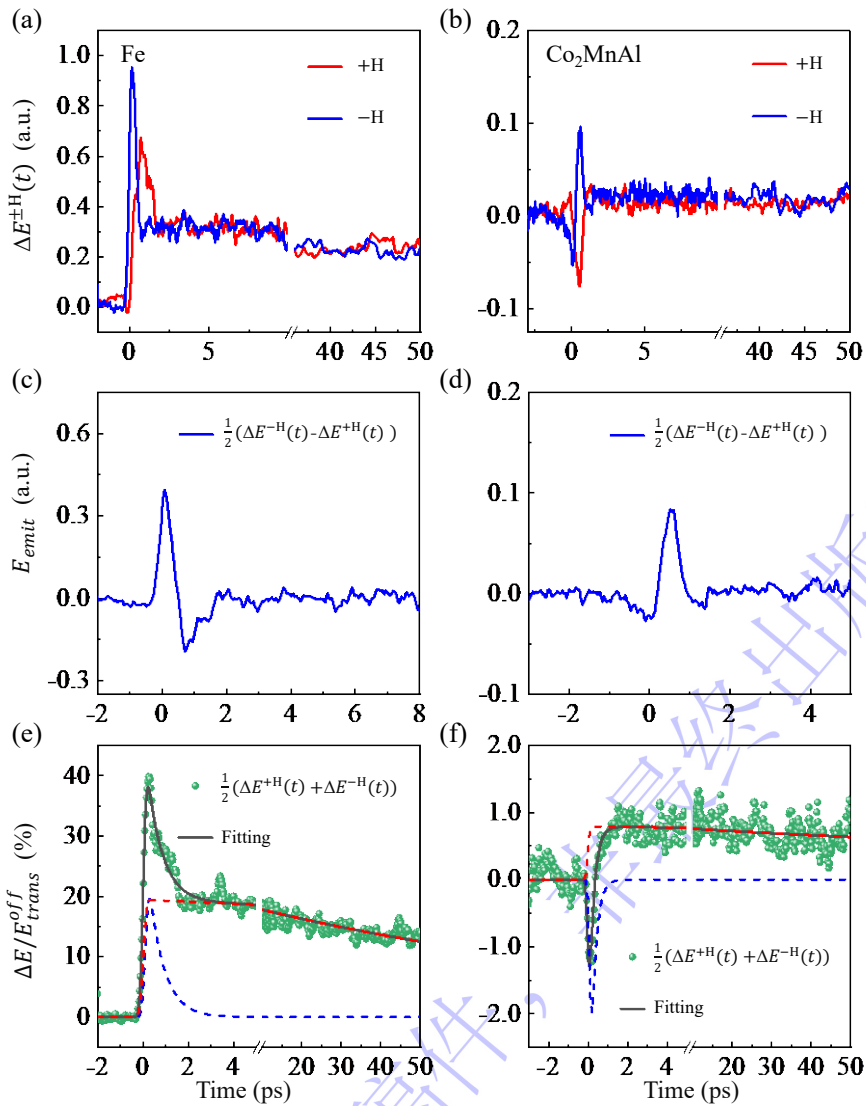


图 2 $\pm H$ 磁场条件下测得 (a) 12 nm 的 Fe 薄膜和 (b) 20 nm 的 Co_2MnAl 薄膜的 OPTP 曲线 $\Delta E^{\pm H}(t)$ 。泵浦激光能量密度为 1.70 mJ/cm^2 。基于公式 (2) 得到 (c) Fe 薄膜和 (d) Co_2MnAl 薄膜在外磁场条件下的太赫兹辐射信号 $E_{emit}(t)$ ；基于公式 (3) 得到 (e) Fe 薄膜

和 (f) Co_2MnAl 薄膜在泵浦光诱导下时间分辨太赫兹透射信号变化量 $\Delta E(t)/E_{trans}^{off}$ 。

Fig. 2. OPTP curves measured under $\pm H$ magnetic field conditions for (a) 12 nm thick Fe film and (b) 20 nm thick Co_2MnAl film, $\Delta E^{\pm H}(t)$. The pump fluence is 1.70 mJ/cm². Based on Eq (2), the THz radiation signals $E_{emit}(t)$ under external magnetic field conditions are obtained for (c) Fe and (d) Co_2MnAl film. Based on Eq (3), the time-resolved THz transmission signal changes $\Delta E(t)/E_{trans}^{off}$ induced by pump pulse are obtained for (e) Fe film and (f) Co_2MnAl film.

图 2(c) 为 12 nm 的 Fe 薄膜所产生的典型太赫兹电场信号。值得注意的是，太赫兹波的极性会随外加磁场的翻转而发生反转，太赫兹波的产生主要起源于磁偶极效应与反常霍尔效应^[36]。Stoner 型铁磁金属层中的超快自旋输运和超快退磁现象被认为源于广义自旋电压 $\mu^{F\uparrow}-\mu^{F\downarrow}$ ，该电压描述了铁磁层中多数自旋电子和少数自旋电子的化学势 $\mu^{F\uparrow}$ 和 $\mu^{F\downarrow}$ 的平衡过程^[37]。图 2(d) 为 20 nm 厚的 Co_2MnAl 薄膜所产生的典型太赫兹电场信号。与 Fe 薄膜类似，辐射的太赫兹波的极性会随外加磁场的翻转而发生反转，发射的太赫兹波的偏振方向与磁化方向垂直，表明 Co_2MnAl 薄膜产生的太赫兹波主要起源于磁效应。

图 2(e) 为 12 nm 厚的 Fe 薄膜在 800 nm 泵浦波长和 1.70 mJ/cm² 光强下的 $\Delta E(t)/E_{trans}^{off}$ ，主要反映了载流子的动力学特征，该值对应材料的面光电导率实部 $\Delta\sigma_{2D}(t)$ 。当金属薄膜 Fe 吸收飞秒激光脉冲后， $\Delta E(t)/E_{trans}^{off} > 0$ 。Fe 薄膜的太赫兹漂白信号对应于光诱导负值的太赫兹光电导率。负太赫兹光电导率最初是在通过化学气相沉积法制备的石墨烯单层中被观察到^[38,39]。 $\Delta E(t)/E_{trans}^{off}$ 可由以下唯象双指数公式描述：

$$\frac{\Delta E(t)}{E_{trans}^{off}} = H(t) \left[A_1 \exp\left(-\frac{t}{\tau_1}\right) + A_2 \exp\left(-\frac{t}{\tau_2}\right) \right] + C \quad (4)$$

式中 $H(t)$ 代表亥维赛阶跃函数， τ_1 与 τ_2 分别为快弛豫和慢弛豫时间常数， A_1 与 A_2

对应两个弛豫分量的幅值， C 为常数偏移量。通过对图 2 (e) 中 $\Delta E(t)/E_{trans}^{off}$ 进行拟合，提取得到两个时间常数。快弛豫过程（蓝色虚线）的时间常数 $\tau_1=0.66\pm 0.03$ ps，表征了 Fe 薄膜中电子-声子的耦合过程。电子-晶格的热化过程会使电子温度下降，负的太赫兹电导率恢复导致太赫兹透射率降低。当电子与晶格温度达到热平衡后，整个激发区域进入冷却阶段。慢弛豫过程（红色虚线）的时间常数 $\tau_2=113.2\pm 3.4$ ps，表征室温条件下晶格向薄膜材料无穷大热库的热输运过程。

图 2 (f) 为 20 nm 厚的 Co_2MnAl 薄膜同样在 800 nm 泵浦波长和 1.70 mJ/cm^2 光强下的 $\Delta E(t)/E_{trans}^{off}$ 。与 Fe 薄膜的动力学过程不同， Co_2MnAl 薄膜的光致响应 $\Delta E(t)/E_{trans}^{off}$ 呈现出不同时间尺度的阶段。首先，太赫兹振幅透射率下降为负值（光电导率升高）；其次，在 <1 皮秒时间尺度内，太赫兹振幅透射率迅速上升，从负值变为正值（光电导率从正值变为负值）；最后，在数十至数百皮秒时间尺度内，正的太赫兹透射率从极大值（光电导率最小值）缓慢恢复至平衡态。采用双指数函数公式（4），对图 2 (f) 中的瞬态太赫兹电场透射率进行拟合，得到了两个时间常数：负值的快弛豫过程（蓝色虚线）时间常数 $\tau_1=0.24\pm 0.02$ ps；正值的慢弛豫过程（红色虚线）的时间常数 $\tau_2=192.6\pm 32.6$ ps。

在本研究中，测量了不同激光能量密度条件下 Fe 和 Co_2MnAl 薄膜的 $\Delta E^{\pm H}(t)$ 曲线。利用公式（2）和（3），分别获得了不同激光能量密度下样品的 $E_{emit}(t)$ 和 $\Delta E(t)/E_{trans}^{off}$ 。由于薄膜样品的厚度远小于太赫兹辐射波长，可采用基于 Tinkham 方程的薄膜近似模型，对 OPTP 测试得到的瞬态太赫兹透射信号进行重构与解析，定量分析瞬态光电导率特性^[40,41]：

$$\Delta\sigma_{2D}(t) = \frac{1+n}{Z_0} \left(\frac{1}{1+\Delta E(t)/E_{trans}^{off}} - 1 \right) \quad (5)$$

式中， $n=3.46$ 为 MgO 基底在太赫兹频段的折射率^[42]， $Z_0=377 \Omega$ 为真空阻抗。将

实验测得的太赫兹透射率变化量 $\Delta E(t)/E_{trans}^{off}$ 代入该方程，即可得到面光电导率的实部动力学 $\Delta\sigma_{2D}(t)$ 。

图 3 (a) 展示了激光能量密度在 0.28~1.42 mJ/cm²范围内变化时，Fe 薄膜的太赫兹发射信号的时域波形。如图 3 (a) 插图所示，太赫兹发射信号的峰峰值随激光能量密度的增加呈线性增长趋势。图 3 (b) 展示了激光能量密度在 0.57~1.70 mJ/cm²范围内变化时，时间分辨太赫兹面电导率动力学过程。在泵浦-探测延迟时间接近 0 ps 时，面电导率迅速下降。负的太赫兹光电导率可以理解为：当激光脉冲被 Fe 薄膜吸收时，光子能量传递给载流子。这种能量转移通过电子-电子散射作用实现，使电子自由度迅速达到更高温度。电子散射率随之增加，导致电荷迁移率下降，最终引发负值光电导率现象^[31]。

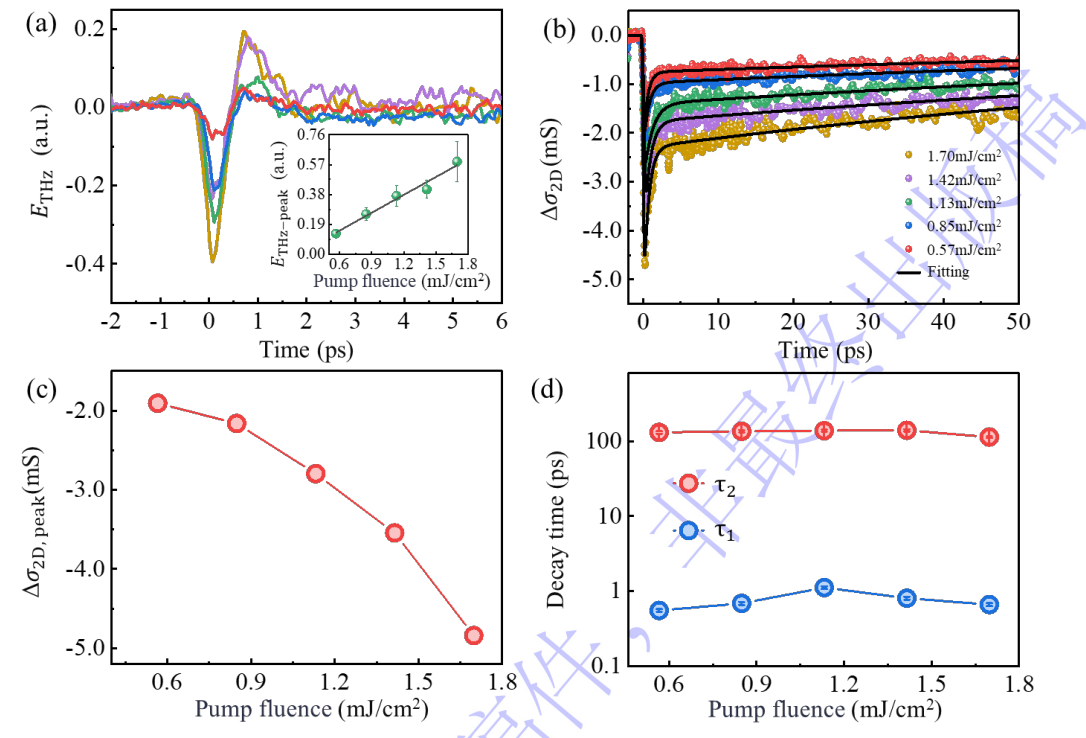


图 3 (a) 12 nm 的 Fe 薄膜在不同泵浦光脉冲能量密度下的太赫兹辐射信号，插图为太赫兹信号峰-峰值与泵浦脉冲能量密度的依赖关系； (b) 不同入射泵浦光脉冲能量密度下 Fe 薄膜面电导率 $\Delta\sigma_{2D}$ 的动力学； (c) $\Delta\sigma_{2D}$ 的峰值电导率随脉冲能量密度的变化关系； (d) 弛

豫过程时间常数随泵浦脉冲能量密度的依赖关系。

Fig. 3. (a) THz radiation signals of a 12 nm Fe thin film at various pump pulse fluences. Inset: the dependence of the THz signal peak-to-peak values on the pump fluence; (b) Dynamics of the sheet conductivity $\Delta\sigma_{2D}$ of the Fe thin film under different incident pump pulse fluences; (c) The dependence of the peak conductivity of $\Delta\sigma_{2D}$ on the pump fluence; (d) The dependence of the relaxation time constants on the pump fluences.

图 3 (c) 展示了负面电导率的峰值 $\Delta\sigma_{2D, peak}$ 与激光能量密度的关系。负的 $\Delta\sigma_{2D, peak}$ 随着激光能量密度的增加而减小。对 $\Delta\sigma_{2D}(t)$ 的恢复动力学进行双指数拟合, 图 3 (a) 中黑色实线为拟合结果, 得到快和慢两个时间常数。图 3 (d) 总结了 τ_1 和 τ_2 随激光能量密度的依赖关系。 τ_1 几乎不受激光能量密度的影响, 平均值约为 0.77 ± 0.22 ps。随着激光能量密度从 0.57 mJ/cm²增加至 1.70 mJ/cm², τ_2 在 131 ps 附近波动。 $\Delta\sigma_{2D}(t)$ 的恢复动力学过程呈现百皮秒量级的长时间特性, 这种长弛豫过程与电子向平衡态冷却相关, 取决于薄膜的热导率、厚度及衬底特性等因素。

图 4 (a) 展示了在 $0.85\sim 1.98$ mJ/cm²激光能量密度范围内, Co_2MnAl 薄膜的太赫兹发射信号的时域波形。太赫兹发射信号的峰-峰值随激光能量密度的增加呈线性增长趋势, 如图 4 (a) 插图所示。图 4 (b) 展示了在 $0.85\sim 1.98$ mJ/cm²的激光能量密度范围内, Co_2MnAl 薄膜面电导率 $\Delta\sigma_{2D}(t)$ 的动力学变化。光诱导太赫兹电导率初始增加为正值后, 随之发生向负值光导率的二次转变。

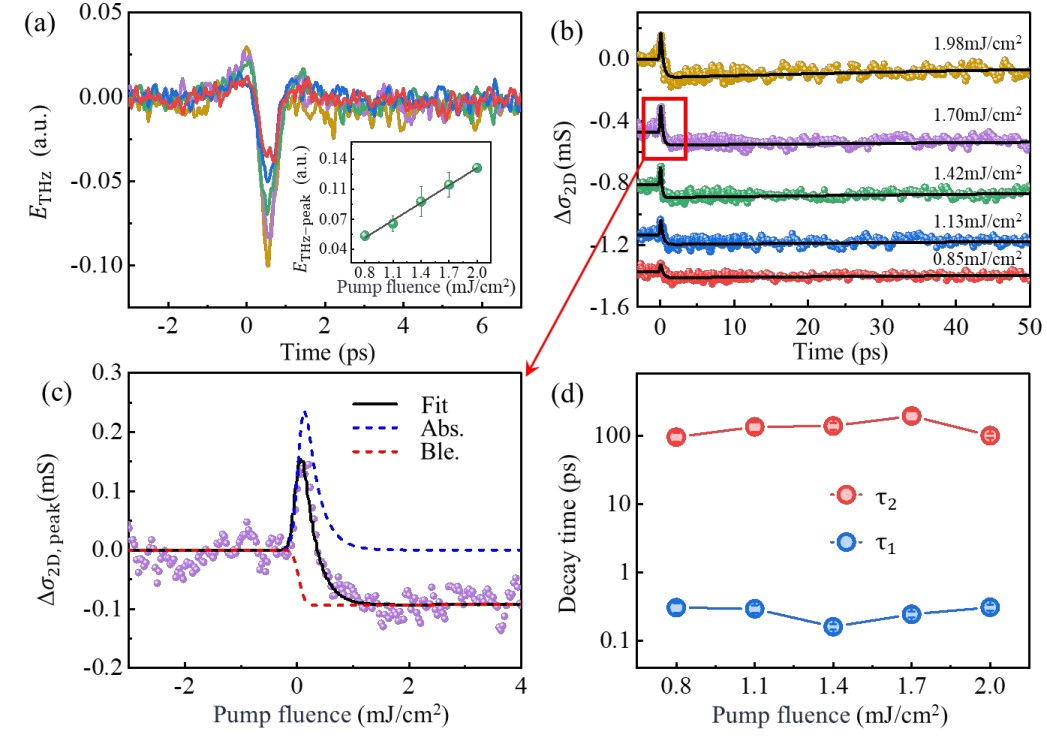


图 4 (a) 20 nm Co_2MnAl 薄膜在不同泵浦光脉冲能量密度下的太赫兹辐射信号，插图为太赫兹信号峰-峰值幅值与泵浦脉冲能量密度的依赖关系；(b) 不同入射泵浦光脉冲能量密度下 Co_2MnAl 薄膜面电导率 $\Delta\sigma_{2D}$ 的动力学；(c) 短时间窗口内 Co_2MnAl 薄膜在 1.70 mJ/cm^2 激光能量密度下的瞬态面电导率 $\Delta\sigma_{2D}$ ，蓝色和红色虚线分别代表着正电导率分量（光诱导吸收）和负电导率（光诱导漂白）分量；(d) 弛豫时间常数随泵浦脉冲能量密度的依赖关系。

Fig. 4. (a) THz radiation signals of a 20 nm Co_2MnAl thin film at various pump fluences, with the inset showing the dependence of the THz signal peak-to-peak amplitude on the pump fluence; (b) Dynamics of the sheet conductivity $\Delta\sigma_{2D}$ of the Co_2MnAl thin film under different incident pump fluences; (c) Observed transient sheet conductivity $\Delta\sigma_{2D}$ of the Co_2MnAl thin film within a short time window at a laser fluence of 1.70 mJ/cm^2 , where the blue and red dashed lines represent the positive conductivity component (photo-induced absorption, Abs.) and the negative conductivity component (photo-induced bleaching, Ble.), respectively; (d) Dependence of the

relaxation time constants on the pump pulse fluences.

图 4 (c) 为 Co_2MnAl 薄膜在 1.70 mJ/cm^2 激光能量密度下, 面电导率 $\Delta\sigma_{2D}(t)$ 初始过程的放大图。黑色曲线为使用公式 (4) 对数据进行的双指数衰减拟合结果。得到了一正一负两个光电导率分量, 分别对应着光诱导吸收 (Abs.) 和光诱导漂白 (Ble.) 效应。太赫兹电导率的变化 $\Delta\sigma = \Delta(n\mu)e$ (其中 e 为基本电荷), 可归因于光激发下载流子数量 (Δn) 和/或迁移率 ($\Delta\mu$) 的变化。如图 1 (c) 所示, Co_2MnAl 在费米能级附近具有与铁不同的电子能带结构, 金属与半导体共存。因此, Co_2MnAl 中的光诱导载流子行为既会体现半导体的正光电导性质, 也会体现金属的负光电导性质。当 $E < E_1$ 时, 半导体通道未被激发, 金属通道的光跃迁处于开启状态。太赫兹电导率的变化 $\Delta\sigma$ 的时间演化由 $\Delta\mu$ 主导。本实验中的光子能量 E (1.55 eV) $> E_1$ 时, 半导体和金属通道都将处于光激发状态, $\Delta\sigma$ 的时间演化由 Δn 和 $\Delta\mu$ 共同主导。观测到 Co_2MnAl 薄膜中性的光电导率随着激光能量密度的增加单调上升, 主要来源于“少数自旋”的半导体通道导带和价带中载流子数量的光致增加。这一现象在其他拓扑绝缘体中也有类似报道, 例如 Sb_2Te_3 ^[43] 和 Bi_2Se_3 ^[44]。在光激发下, 电子从价带被激发到导带。这些热电子随后迅速热化、冷却, 并在导带中形成一个热费米-狄拉克分布, 进而增强自由载流子对太赫兹辐射的吸收。这一过程耗时 $< 500 \text{ fs}$, 对应于 $\Delta\sigma_{2D}(t)$ 的上升过程。

紧接着, 正的光电导率 $\Delta\sigma_{2D}$ 快速下降, 从正值变为负值, 归因于电荷载流子迁移率的降低。光生热载流子与 Co_2MnAl 的晶格振动发生强相互作用, 电子-声子耦合使热载流子冷却, 同时载流子周围的晶格发生畸变, 形成迁移率降低的极化子。在石墨烯、过渡金属二硫族化合物、狄拉克半金属和钙钛矿等材料中也观测到了极化子的形成导致发生在亚皮秒尺度上迁移率的降低。Tomarchio 等人在

Co₂MnGa 拓扑半金属体系中，同样观测到了正光电导率到负光电导率的转换，解释为光诱导极化子的形成^[45]。如图 4 (d) 所示，Co₂MnAl 薄膜的 τ_1 几乎不受激光能量密度的影响，平均值约为 0.26 ± 0.06 ps，可归因于动态极化子的形成时间。在钙钛矿、高电导率 II 型狄拉克半金属 PtTe₂ 等多种材料中，动态极化子的形成具有相近的时间常数^[46,47]。

当 $\Delta\sigma_{2D}$ 完全变成负值后，随着激光能量密度从 0.85 mJ/cm²增至 1.70 mJ/cm² 时，负的光电导率随着激光能量密度的增加单调降低。可以理解为：更高的激光能量密度使载流子温度升高，热载流子冷却过程中，电子-声子耦合会激发更多声子，更多载流子通过电子-声子相互作用被“捕获”，因此高激光能量密度下的负太赫兹光电导信号更显著。本实验只观察到了单指数的极化子冷却过程， τ_2 在 94 ps- 192 ps 范围内波动，描述了极化子缓慢弛豫至平衡态的过程。低迁移率极化子准粒子表现出长寿命特性，这是由 Co₂MnAl 的低热导率造成极化子准粒子缓慢衰减所致。

5 结 论

本研究采用时间分辨飞秒激光泵浦-太赫兹探测光谱技术，对比研究拓扑半金属 Co₂MnAl 与传统铁磁 Fe 薄膜的太赫兹辐射和超快太赫兹光电导率特性。定量分析了泵浦光能量密度对薄膜光电导动力学及太赫兹辐射特性的调控规律。实验发现，Fe 薄膜仅表现电子散射主导的单一负光电导，弛豫过程基本不受泵浦光能量密度影响。而 Co₂MnAl 因具有自旋分辨的金属/半导体复合能带结构，观察到 Co₂MnAl 薄膜中光载流子驱动的正负光电导转换现象。初始正光电导源于少数自旋半导体通道的光致载流子增加，后续快速转为负光电导则由动态极化子形成导致的载流子迁移率降低引起。本研究为优化钴基哈斯勒合金太赫兹辐射性

能，研发新型超快自旋电子学器件提供了实验依据。

参考文献

- [1] Graf T, Felser C, Parkin S S P 2011 *Prog. Solid State Chem.* **39** 1
- [2] Manna K, Sun Y, Muechler L, Kübler J, Felser C 2018 *Nat. Rev. Mater.* **3** 244
- [3] Ye S, Zhi S Z, Ma X J, Bao X, Zhao P, Cheng J X, Duan S C, Lin C H, Wu Z X, Chen S Q, Qiu J M, Yin L, Zhang X H, Zhou Y F, Jiang F, Chen Z H, Cao F, Fu Y H, Zhang Q, Mao J 2025 *Nat. Commun.* **16** 1812
- [4] Farshchi R, Ramsteiner M 2013 *J. Appl. Phys.* **113** 191101
- [5] Kojima T, Kameoka S, Tsai A P 2019 *Sci. Technol. Adv. Mater.* **20** 445
- [6] De Groot R A, Mueller F M, Engen P G V, Buschow K H J 1983 *Phys. Rev. Lett.* **50** 2024
- [7] Galanakis I, Dederichs P H, Papanikolaou N 2002 *Phys. Rev. B* **66** 174429
- [8] Jourdan M, Minár J, Braun J, Kronenberg A, Chadov S, Balke B, Gloskovskii A, Kolbe M, Elmers H J, Schönhense G, Ebert H, Felser C, Kläui M 2014 *Nat. Commun.* **5** 3974
- [9] Elphick K, Frost W, Samiepour M, Kubota T, Takanashi K, Sukegawa H, Mitani S, Hirohata A 2021 *Sci. Technol. Adv. Mater.* **22** 235
- [10] Marchenkov V V, Semiannikova A A, Chernov E D, Lukoyanov A V, Irkhin V Y, Perevozchikova Y A, Marchenkova E B 2026 *Solid State Sci.* **172** 108155
- [11] Kübler J, Felser C 2016 *EPL* **114** 47005
- [12] Sakuraba Y, Hyodo K, Sakuma A, Mitani S 2020 *Phys. Rev. B* **101** 134407

- [13] Wang M Z, Pan C, Xie N, Qiu X P, Li Y F, Lang L L, Wang S Q, Cheng D S, Fan W J, Zhou S M, Shi Z 2025 *Adv. Sci.* **12** 2407171
- [14] Li P G, Koo J, Ning W, Li J G, Miao L X, Min L J, Zhu Y L, Wang Y, Alem N, Liu C X, Mao Z Q, Yan B H 2020 *Nat. Commun.* **11** 3476
- [15] Qian S, Chen M Z, Zhu T J, Fu C G 2025 *Ann. Phys.* **537** e00336
- [16] Hait S, Gupta N K, Sharma N, Pandey L, Kumar N, Barwal V, Kumar P, Chaudhary S 2022 *J. Appl. Phys.* **132** 133901
- [17] Jin Z M, Guo Y Y, Peng Y, Zhang Z Y, Pang J Y, Zhang Z Z, Liu F, Ye B, Jiang Y X, Ma G H, Zhang C, Balakin A V, Shkurinov A P, Zhu Y M, Zhuang S L 2023 *Adv. Phys. Res.* **2** 2200049
- [18] Zhang S N, Jin Z M, Liu X M, Zhao W Y, Lin X, Jing C, Ma G H 2017 *Opt. Lett.* **42** 3080
- [19] Gupta R, Husain S, Kumar A, Brucas R, Rydberg A, Svedlindh P 2021 *Adv. Opt. Mater.* **9** 2001987
- [20] Bierhance G, Markou A, Gueckstock O, Rouzegar R, Behovits Y, Chekhov A L, Wolf M, Seifert T S, Felser C, Kampfrath T 2022 *Appl. Phys. Lett.* **120** 082401
- [21] Mandal R, Momma R, Ishibashi K, Iihama S, Suzuki K, Mizukami S 2024 *NPG Asia Mater* **16** 30
- [22] Yadav E, Nivedan A, Kumar S 2024 *Appl. Phys. Lett.* **125** 132406
- [23] Katsnelson M I, Irkhin V Yu, Chioncel L, Lichtenstein A I, De Groot R A 2008 *Rev. Mod. Phys.* **80** 315
- [24] Ulbricht R, Hendry E, Shan J, Heinz T F, Bonn M 2011 *Rev. Mod. Phys.* **83** 543

- [25] Neu J 2023 *APL Photonics* **8** 071103
- [26] Mithun K P, Tripathi S, Roy A, Ravishankar N, Sood A K 2023 *Nanoscale* **15** 12670
- [27] Kar S, Mohapatra D R, Freysz E, Sood A K 2014 *Phys. Rev. B* **90** 165420
- [28] Tomadin A, Hornett S M, Wang H I, Alexeev E M, Candini A, Coletti C, Turchinovich D, Kläui M, Bonn M, Koppens F H L, Hendry E, Polini M, Tielrooij K J 2018 *Sci. Adv.* **4** eaar5313
- [29] Suo P, Zhang H Y, Yan S G, Zhang W J, Fu J B, Lin X, Hao S, Jin Z M, Zhang Y P, Zhang C, Miao F, Liang S J, Ma G H 2021 *Phys. Rev. Lett.* **126** 227402
- [30] Guo Y Y, Chen Z Q, Jin Z M, Wang X F, Zhang C, Balakin A V, Shkurinov A P, Peng Y, Zhu Y M, Zhuang S L 2024 *Adv. Funct. Mater.* **34** 2407749
- [31] Jin Z M, Hong H X, Sun Y, Li Z S, Li J, Peng J Y, Nie T X, Peng Y, Zhang C, Balakin A V, Shkurinov A P, Zhu Y M, Zhuang S L 2025 *Adv. Opt. Mater.* **13** e00951
- [32] Guo Y Y, Chen Z Q, Cai M, Jin Z M, Wang X F, Zhang C, Balakin A V, Shkurinov A P, Peng Y, Zhu Y M, Zhuang S L 2026 *ACS Photonics* **13** 1330
- [33] Lyu J M, Shen S Y, Chen L, Zhu Y M, Zhuang S L 2023 *PhotoniX* **4** 28
- [34] Fan J Y, Liu Q H, Huang Z X, Zhang Y X 2025 *EMS* **3** 0110332
- [35] Costa J D, Huisman T J, Mikhaylovskiy R V, Razdolski I, Ventura J, Teixeira J M, Schmool D S, Kakazei G N, Cardoso S, Freitas P P, Rasing Th, Kimel A V 2015 *Phys. Rev. B* **91** 104407
- [36] Lan Z Q, Li Z S, Xu H R, Liu F, Jin Z M, Peng Y, Zhu Y M 2024 *Chin. Phys. Lett.*

41 044203

- [37] Rouzegar R, Brandt L, Nádvořník L, Reiss D A, Chekhov A L, Gueckstock O, In C, Wolf M, Seifert T S, Brouwer P W, Woltersdorf G, Kampfrath T 2022 *Phys. Rev. B* **106** 144427
- [38] Tielrooij K J, Song J C W, Jensen S A, Centeno A, Pesquera A, Zurutuza Elorza A, Bonn M, Levitov L S, Koppens F H L 2013 *Nat. Phys* **9** 248
- [39] Docherty C J, Lin C T, Joyce H J, Nicholas R J, Herz L M, Li L J, Johnston M B 2012 *Nat. Commun.* **3** 1228
- [40] Glover R E, Tinkham M 1957 *Phys. Rev.* **108** 243
- [41] Jin Z M, Peng Y, Fang Y Q, Ye Z J, Fan Z Y, Liu Z L, Bao X C, Gao H, Ren W, Wu J, Ma G H, Chen Q L, Zhang C, Balakin A V, Shkurinov A P, Zhu Y M, Zhuang S L 2022 *Light Sci Appl* **11** 209
- [42] Hu Y, Zhang C L, Shen J L, Zhang X C 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 1772 (in Chinese)
[胡颖, 张存林, 沈京玲, 张希成 2004 *物理学报* **53** 1772]
- [43] Ye Z J, Jin Z M, Jiang Y X, Lu Q, Jia M H, Qian D, Huang X M, Li Z, Peng Y, Zhu Y M 2024 *Chin. Phys. B* **33** 074210
- [44] Valdés Aguilar R, Qi J, Brahlek M, Bansal N, Azad A, Bowlan J, Oh S, Taylor A J, Prasankumar R P, Yarotski D A 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 011901
- [45] Tomarchio L, Macis S, Mou S, Mosesso L, Markou A, Lesne E, Felser C, Lupi S 2024 *Adv. Sci.* **11** 2400247
- [46] Cinquanta E, Meggiolaro D, Motti S G, Gandini M, Alcocer M J P, Akkerman Q A, Vozzi C, Manna L, De Angelis F, Petrozza A, Stagira S 2019 *Phys. Rev. Lett.*

122 166601

[47] René De Cotret L P, Otto M R, Pöhls J H, Luo Z Z, Kanatzidis M G, Siwick B J

2022 Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. 119 e2113967119

录用稿件，非最终出版稿

The conversion of positive–negative photoconductivity driven by photoexcited carriers in topological semimetal Co_2MnAl thin films revealed with Terahertz Spectroscopy *

WANG Yifan¹⁾ SUN Mengjia²⁾ LI Zhangshun¹⁾ LAN Zhiqiang¹⁾ LU Bo¹⁾ CHENG Zhen³⁾

XIAO Meiqi³⁾ JING Chao²⁾ JIN Zuanming¹⁾⁴⁾ †

1) (Terahertz Technology Innovation Research Institute, Shanghai Key Lab of Modern Optical System, and Engineering Research Center of Optical Instrument and System (Ministry of Education), Terahertz Spectrum and Imaging Cooperative Innovation Center, University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China)

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

3) (Department of Physics, State Key Laboratory of Surface Physics, Fudan University, Shanghai 200433, China)

4) (Shanghai Institute of Intelligent Science and Technology, Tongji University, Shanghai 200092, China)

Abstract

In this study, we employ the time-resolved optical pump–terahertz probe (OPTP) spectroscopy based on a femtosecond laser system with a central wavelength of 800 nm, pulse duration of 120 fs, and repetition rate of 1 kHz to systematically explore the ultrafast terahertz photoconductive characteristics and terahertz emission properties of topological ferromagnetic Heusler semimetal Co_2MnAl thin films, with conventional ferromagnetic Fe thin films as a reference sample. By introducing magnetic field

modulation to fully separate terahertz emission signals from pump-induced transmission signals, and quantitatively analyzing the transient photoconductivity dynamics using the Tinkham thin-film approximation model, we directly observe a distinct photoexcited carrier-driven positive-negative photoconductivity conversion behavior in Co₂MnAl thin films under femtosecond laser excitation. In sharp comparison, Fe thin films only display negative photoconductivity governed by electron-electron scattering, and its relaxation processes show negligible dependence on pump laser fluence. Originating from the characteristic spin-resolved metallic/semiconducting dual band structure in Co₂MnAl, the initial positive photoconductivity within sub-picoseconds is ascribed to the increased population of photogenerated carriers in the minority-spin semiconducting channel, whereas the subsequent ultrafast switching to negative photoconductivity arises from the formation of dynamic polarons that drastically suppress carrier mobility. Furthermore, the photoconductivity peak magnitude of Co₂MnAl can be flexibly modulated by varying pump fluence. The peak-to-peak amplitudes of terahertz emission from both Co₂MnAl and Fe thin films exhibit a linear increase with increasing pump fluence, indicating a similar optical excitation mechanism dominated by magnetic dipole and anomalous Hall effects. This work not only clarifies the intrinsic ultrafast photophysical mechanisms and spin-dependent carrier dynamics in Co₂MnAl thin films, but also realizes the spectroscopic discrimination of majority-spin and minority-spin carrier behaviors, which provides critical experimental evidence and physical insights for

optimizing the terahertz radiation performance of cobalt-based Heusler alloys and designing high-performance ultrafast spintronic and terahertz optoelectronic devices.

Keywords: Heusler alloys, Co_2MnAl , terahertz, optical pump-THz probe spectroscopy

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2023YFF0719200), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 62322115, U24A20226, 62588201, 12274278, 62435010, 12274278), Shanghai Educational Development Foundation (Grant No. 24SG46), the 111 Project (Grant No. D18014), and the Science and Technology Commission of Shanghai Municipality, China (Grant Nos. 22JC1400200, 21S31907400).

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

The first author. E-mail: yier1031wang@163.com

录用稿件，非最终出版稿