

利用双泵太赫兹发射光谱技术表征铁磁异质结构中的超快自旋动力学*

卢波¹⁾ 李卓熠²⁾³⁾⁴⁾ 葛振杰¹⁾ 李章顺¹⁾ 黄晨¹⁾ 陆显扬²⁾³⁾⁴⁾

徐永兵²⁾³⁾⁴⁾ 金钻明¹⁾⁵⁾

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) (南京大学, 自旋电子学国家重点实验室, 苏州 215163)

3) (南京大学, 集成电路学院, 苏州 215163)

4) (南京大学, 电子科学与工程学院, 江苏省先进光子与电子材料重点实验室, 南京 210093)

5) (同济大学, 上海智能科学与技术研究院, 上海 200092)

摘要

理解铁磁异质结构中由超快激光诱导的自旋动力学, 对基础理论研究和未来自旋电子器件的发展都具有重要意义。本文将光泵浦-太赫兹发射 (OPTE) 光谱技术与微观三温模型 (M3TM) 相结合, 建立了一种简单高效的超快自旋动力学表征方法。研究中我们通过该方法实现了对典型 Pt/CoFeB/Ta/SiO₂ 铁磁异质结构中超快自旋动力学的定性与定量表征。在实验中我们观测到磁化动力学的多个特征阶段: 首先是在小于 0.2 ps 时间尺度内发生的磁化快速淬灭过程, 随后出现两个分别由电子-声子与自旋-声子相互作用主导的不同磁恢复阶段。此外, 我们通过 M3TM 确定了随泵浦能量密度变化的电子-声子耦合系数及晶格弛豫时间, 结果证明这些参数对磁化恢复动力学过程起主导作用。该实验结果进一步加深了在

超快时间尺度下对自旋与电荷输运基本机制的理解,也为后续精准调控超快自旋动力学行为提供了重要依据。

关键词: 铁磁异质结, 光泵浦 - 太赫兹发射, 超快自旋动力学, 电子 - 声子耦合, 微观三温模型

PACS: 75.75.-c, 75.78.-n, 78.47.J-, 72.25.-b

基金: 国家重点研发计划(2023YFF0719200), 国家自然科学基金(62322115、U24A20226、62588201、62435010、62335012), 上海市教育发展基金会(24SG46), 111 引智计划(D18014); 上海市科学技术委员会重大项目(YDZX20193100004960); 上海市科学技术委员会项目(22JC1400200)。

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

录用稿件, 非最终出版稿

1 引言

1996年,自Beaurepaire团队首次报道飞秒激光激发下铁磁镍薄膜在数百飞秒时间尺度内发生显著退磁以来^[1],超快退磁已发展为凝聚态物理与自旋电子学领域的核心前沿方向之一^[2-6]。在超快激发后的亚皮秒至皮秒时间尺度内,初始退磁过程主要由激光激发引起的电子系统快速升温所驱动,随后通过多种散射与耦合机制实现角动量从自旋系统向声子系统的转移^[7-11]。

退磁时间通常反映自旋相关散射过程的特征时间尺度。而在皮秒甚至更长时间范围内,磁恢复过程主要由角动量耦合机制主导^[12,13]。不同耦合机制的相对贡献取决于材料组成、层状结构、界面特性以及激发条件等因素^[14-16]。在铁磁(FM)/非磁(NM)异质结构中,自旋角动量还可通过额外的界面机制耗散,进而影响自旋泵浦^[17]、自旋记忆损失^[18]、Rashba耦合效应^[19]、双磁振子散射^[20]以及界面能带杂化^[21]等过程。FM/NM异质结构中的超快自旋动力学为新一代高速数据存储与信息处理技术的发展提供了重要途径^[22-26]。

为研究激光诱导的超快磁化动力学,科研人员已发展出多种时间分辨实验技术,分别针对自旋、电子与声子等自由度^[27,28]。其中,时间分辨磁光克尔效应(TR-MOKE)^[1,29-32]与磁性诱导的二次谐波产生(MSHG)^[33,34]主要对磁有序与自旋动力学敏感;时间分辨双光子光电子发射^[35,36]、时间分辨X射线磁圆二色性(XMCD)^[37,38]以及太赫兹发射光谱^[39-42]则能同时对载流子与自旋动力学响应。

近年来发展起来的光泵浦-太赫兹发射(OPTE)技术为研究超快自旋动力学提供了新的实验手段,已成功应用于FeRh中的反铁磁-铁磁相变^[43,44]、W/CoFeB/Pt异质结构中的非线性磁响应^[45]、Fe中的超快退磁过程^[46]以及Co/Pt与TbCo/Pt中的光能量依赖退磁行为^[47]。本研究利用OPTE技术成功拓展了超快

太赫兹磁测量的时间探测窗口^[46]，实现了对亚皮秒至数十皮秒时间尺度内不同瞬态磁化分量的分辨。但目前 OPTE 技术尚未实现对电子 - 声子与自旋 - 晶格耦合动力学的同时探测，且无法获取超快磁化强度的绝对值。事实上，这一问题通常需要通过实验结果与理论模型的结合共同完成。

为从理论上描述激光诱导的超快退磁过程，B. Koopmans 等人提出的微观三温度模型 (M3TM) 已被证实能够重现激光诱导的退磁现象，并基于自旋翻转散射机制模拟电子自旋无序^[48,49]。该模型包括电子、晶格和自旋子系统，同时引入了 Elliott-Yafet 型自旋翻转概率^[50,51]。另一方面，超扩散自旋电流也已被证实在金属薄膜及多层结构的退磁过程起着关键作用^[52,53]。近期的量子输运理论研究表明，太赫兹辐射不仅来源于非磁层中产生的电荷电流，还包含由于退磁过程在铁磁层内部产生的额外电荷电流贡献^[54-56]。

CoFeB 作为一种重要技术应用价值的材料，具备高自旋极化率、在磁隧道结铁磁电极结构中表现出大的隧道磁阻效应以及较低的本征吉尔伯特阻尼等特性^[57]。在本工作中，我们结合光泵浦 - 太赫兹发射 (OPTE) 光谱与微观三温模型 (M3TM)，对 Pt/CoFeB/Ta/SiO₂ 异质结构中的超快自旋动力学展开了系统研究。实验上，采用无损全光双泵浦太赫兹发射光谱技术探测超快退磁和自旋弛豫过程。理论上，我们引入含特定有效参数的微观 M3TM 模型，对自旋动力学实验数据实现了良好的定量拟合，研究结果成功分辨出亚皮秒至数十皮秒时间尺度内瞬态磁化的不同分量。铁磁异质结 THz 辐射源在通信、光谱及成像等领域具有潜在的应用价值^[58-61]。

2 样品制备

实验中所用多层结构 Pt(2 nm)/CoFeB(2 nm)/Ta(2 nm) 通过直流/射频磁控溅射

在单晶 SiO₂基底上于室温条件下沉积制备。沉积过程中，系统本底真空度为 3×10^{-8} Torr，其中 Pt/CoFeB 层采用 10 W 直流功率，Ta 层采用 15 W 功率，在 7 mTorr 氩气氛围下进行。为保证薄膜厚度的均匀性，沉积过程中基底以 5 rpm 持续旋转。薄膜生长完成后，在无外磁场条件下对样品进行 250 °C、60 分钟的原位真空退火处理。

3 实验方法

如图 1(a) 所示，实验中采用线偏振飞秒激光脉冲（中心波长 800 nm，脉宽 35 fs，重复频率 1kHz）。激光束首先通过第一分束器分为泵浦光与探测光两部分，其中泵浦光进一步经第二分束器分为两束独立的泵浦脉冲（Pump1 与 Pump2）。当机械斩波器置于两个分束器之间时，可对 Pump1 或 Pump2 进行选择性地调制，实现对样品 Pt/CoFeB/Ta 的激发并产生太赫兹辐射。产生的太赫兹信号通过两个离轴抛物面镜进行收集并聚焦至 1mm 厚度的电光晶体 ZnTe 上。基于电光采样原理，通过调节探测光路径中的延迟线 Delay1，可以精确控制泵浦脉冲与探测脉冲之间的时间延迟 t ，从而获取样品太赫兹发射的时域波形。当斩波器置于 Pump1 光路中时，仅信号泵浦 Pump1 被调制，而 Pump2 作为控制脉冲用于诱导样品中的超快退磁过程。为确保提取信号反映的是由先到达的控制脉冲所引起的瞬态调制效应，我们调节延迟电机固定在太赫兹信号峰值 E_{peak} 位置。在此条件下，当控制脉冲引发样品退磁时，由信号泵浦产生的太赫兹发射与样品磁化强度呈正相关关系^[44]，可以有效测量控制脉冲引起的太赫兹峰值变化。通过调节控制脉冲光路中的延迟线 Delay2，改变信号脉冲与控制脉冲之间的相对延迟 Δt 。通过监测信号光路产生的太赫兹发射在控制脉冲作用下的调制行为，即可以观测样品的超快自旋动力学过程。为保证较高的信噪比，两束激光均聚焦于样品表面，形成约 5 mm

直径的光斑；同时，通过电磁铁施加 ± 200 mT 的面内磁场，使样品保持在饱和磁化状态。所有实验均在室温环境下进行。

图 1(b)展示了双泵浦脉冲与 FM/NM 异质结构的相互作用过程。先通过调节信号与控制泵浦之间的时间延迟 Δt ，实现对瞬态磁化响应的调控与分辨。再通过监测太赫兹发射峰值幅度的归一化变化 ($\frac{\Delta E_{peak}(\Delta t)}{E_{peak}}$)，追踪超快自旋动力学过程 ($\frac{\Delta M}{M}(\Delta t)$)，包括初始退磁过程及后续磁化恢复过程。根据文献^[62]的计算结果，CoFeB 对太赫兹辐射的趋肤深度约为 $1\mu\text{m}$ ，显著大于薄膜厚度，证实太赫兹透射分布在样品整个厚度范围内均匀。

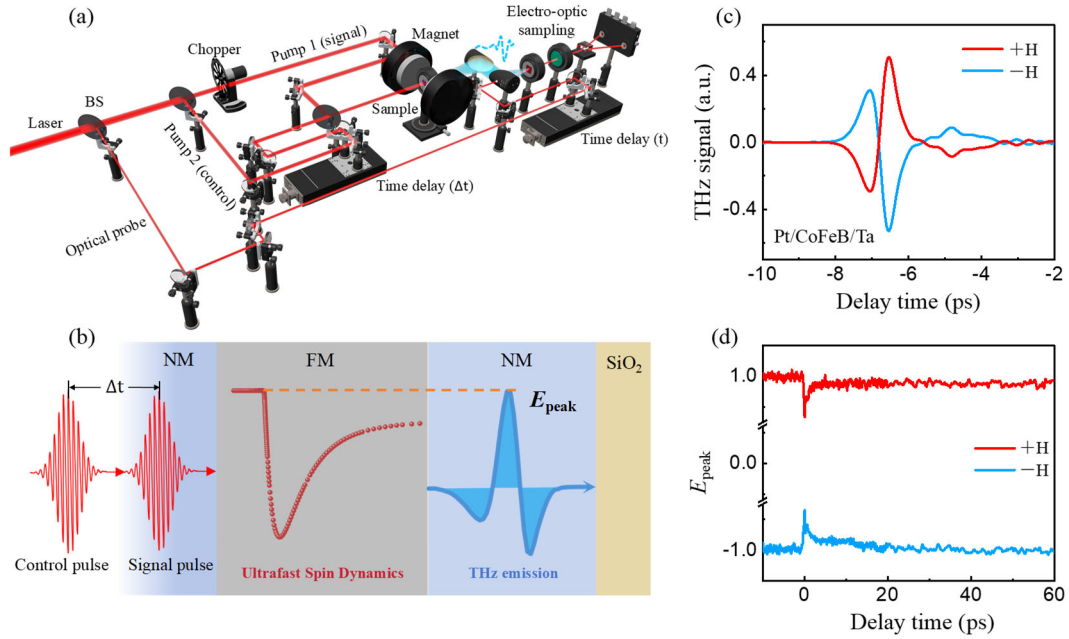


图 1 实验光路原理示意及实验结果 (a) 外加磁场条件下双光束 OPTE 光谱系统示意图；

(b) 具有可调时间延迟 Δt 的双泵浦脉冲驱动 FM/NM 异质结构的激发示意图；(c)

Pt/CoFeB/Ta/SiO₂在 $\pm H$ 条件下的太赫兹发射信号；(d) 对应的归一化超快 OPTE 信号。控

制脉冲与信号脉冲的泵浦能量密度分别为 0.23 mJ/cm^2 和 0.6 mJ/cm^2 。

Fig. 1. Schematic diagram of the experimental optical setup and measurement results under an

applied magnetic field: (a) Schematic illustration of the dual-beam OPTE spectroscopy setup

under an external magnetic field; (b) Excitation scheme of the FM/NM heterostructure driven by two pump pulses with a tunable delay Δt ; (c) THz emission signal and (d) normalized ultrafast OPTE signal from Pt/CoFeB/Ta/SiO₂ under $\pm H$. The pump fluences for control and signal pulse are 0.23 mJ/cm² and 0.6 mJ/cm², respectively.

4 结果与讨论

在开展基于 OPTE 的超快自旋动力学研究之前，我们首先对 Pt/CoFeB/Ta 异质结构的太赫兹发射性能进行了表征。在未引入控制泵浦脉冲的条件下，对样品进行面内磁场下的太赫兹发射光谱测量。图 1(c)给出了在外加磁场+H 与-H 条件下测得的太赫兹发射信号，该信号对磁化的面内分量高度敏感。两组信号呈现出反对称的时间演化特征：当磁场方向反转时，太赫兹信号的极性随之翻转，而幅值与波形几乎保持不变。这一特征响应证实磁化方向是决定太赫兹辐射符号的主要因素，与逆自旋霍尔效应（ISHE）主导的自旋 - 电荷转换过程中电偶极辐射的极性规律高度一致^[63,64]。相同样品的详细研究结果已在参考文献^[65]中给出，进一步验证了该结论。

图 1(d) 展示了通过 OPTE 测量获得的太赫兹发射峰值电场 (E_{peak}) 随时间延迟 Δt 的演化关系。在+H 与-H 两种磁化取向， $E_{\text{peak}}(\Delta t)$ 信号表现出符号相反但时间演化几乎一致的特征。在零延迟附近出现快速下降，随后在较长时间尺度上逐渐恢复。初始快速下降对应于飞秒激光诱导的超快退磁过程，而后续恢复过程反映了电子 - 自旋 - 晶格耦合系统的热化动力学。上述结果表明，通过监测 ($E_{\text{peak}}(\Delta t)$) 可以实现对退磁过程以及快、慢恢复过程的分辨，验证了 OPTE 技术在研究超快自旋动力学方面的可行性。

为深入研究实验观测结果的物理机制，我们对 Pt/CoFeB/Ta 异质结构开展了

不同控制泵浦能量密度下的 OPTE 测量。图 2(a) 给出了不同泵浦能量密度条件下的 $\frac{\Delta E_{peak}(\Delta t)}{E_{peak}}$ 动力学曲线。如图 2(b) 所示, $\left| \frac{\Delta E_{peak}(\Delta t)}{E_{peak}} \right|$ 的最大值随控制泵浦能量密度的增加而显著增大: 当泵浦能量密度由 0.15 mJ/cm^2 提高至 0.46 mJ/cm^2 时, 其最大值由约 25% 增加至约 58%。这一结果表明, 提高控制泵浦能量密度会增强超快退磁幅度。需要指出的是, 尽管退磁幅值随能量密度变化, 其动力学曲线的整体形状基本保持不变。所有测量结果均呈现出典型的三阶段演化特征: 首先为亚皮秒时间尺度内的超快磁化骤降, 其次为皮秒尺度内的快速恢复过程, 最后为延伸至更长时间尺度的缓慢弛豫过程。为定量描述实验中观测到的 $\frac{\Delta E_{peak}(\Delta t)}{E_{peak}}$ 动力学行为, 本文采用包含退磁与磁化恢复过程的双指数唯象模型对实验数据进行拟合 [46]:

$$\frac{\Delta E_{peak}(\Delta t)}{E_{peak}} = [1 - \text{erf}\left(-2\ln(2)\frac{\Delta t}{\tau_m}\right)] \times \left[(A - B)\exp\left(-\frac{\Delta t}{\tau_f}\right) + B\exp\left(-\frac{\Delta t}{\tau_s}\right) + C \right] \quad (1)$$

其中, 参数 A 与 B 分别表征快速恢复前后的退磁幅值; τ_m 为超快退磁时间常数。方括号内的表达式代表发生在不同时间尺度上的磁化恢复过程, 由快速恢复时间常数 τ_f 和慢速恢复时间常数 τ_s 表征。其中, τ_f 主要归因于电子 - 声子耦合过程 [66], 而 τ_s 则对应自旋角动量与晶格之间的交换过程 [67,68], 两者反映了不同物理机制在磁化弛豫中的作用。

$\frac{\Delta E_{peak}(\Delta t)}{E_{peak}}$ 曲线可通过式 (1) 实现良好拟合, 如图 2(a) 中黑色实线所示。为便于比较, 不同曲线在纵向进行了平移处理。通过拟合过程可以提取各特征时间常数。图 2(c) 给出了不同泵浦能量密度下获得的退磁时间 τ_m 。结果表明, 退磁时间随泵浦通量的变化极小, 平均退磁时间 $\bar{\tau}_m \sim 0.18 \pm 0.02 \text{ ps}$ 。该结果与已有报道相近, 如磁隧道结 CoFeB/MgO/CoFeB 的退磁时间为 $0.090 \sim 0.120 \text{ ps}$ [69]、TR-MOKE 测量的 L1₀-FePt 薄膜退磁时间为 0.20 ps [70], 以及双色泵浦 - 探测技术测得的

[Co/Pt]₃多层膜退磁时间为 0.16 ps^[71]。对于 3d 铁磁金属而言，诱发超快退磁的物理机制通常归因于磁振子的非相干激发^[72,73]。需要指出的是，本工作中 CoFeB 异质结构的 τ_m 明显快于文献^[46]中 12 nm 厚 Fe 薄膜的 0.37 ± 0.02 ps。该结果表明，Ta 与 Pt 层具有强自旋 - 轨道耦合，能够促进自旋输运并降低 τ_m ，证实了 FM/NM 异质结构中自旋电流的产生及其高效输运。此外，FM/NM 界面处的电子散射还可引入额外的界面声子发射通道，同时自旋 - 轨道耦合强度的增强也可能提高自旋翻转概率。

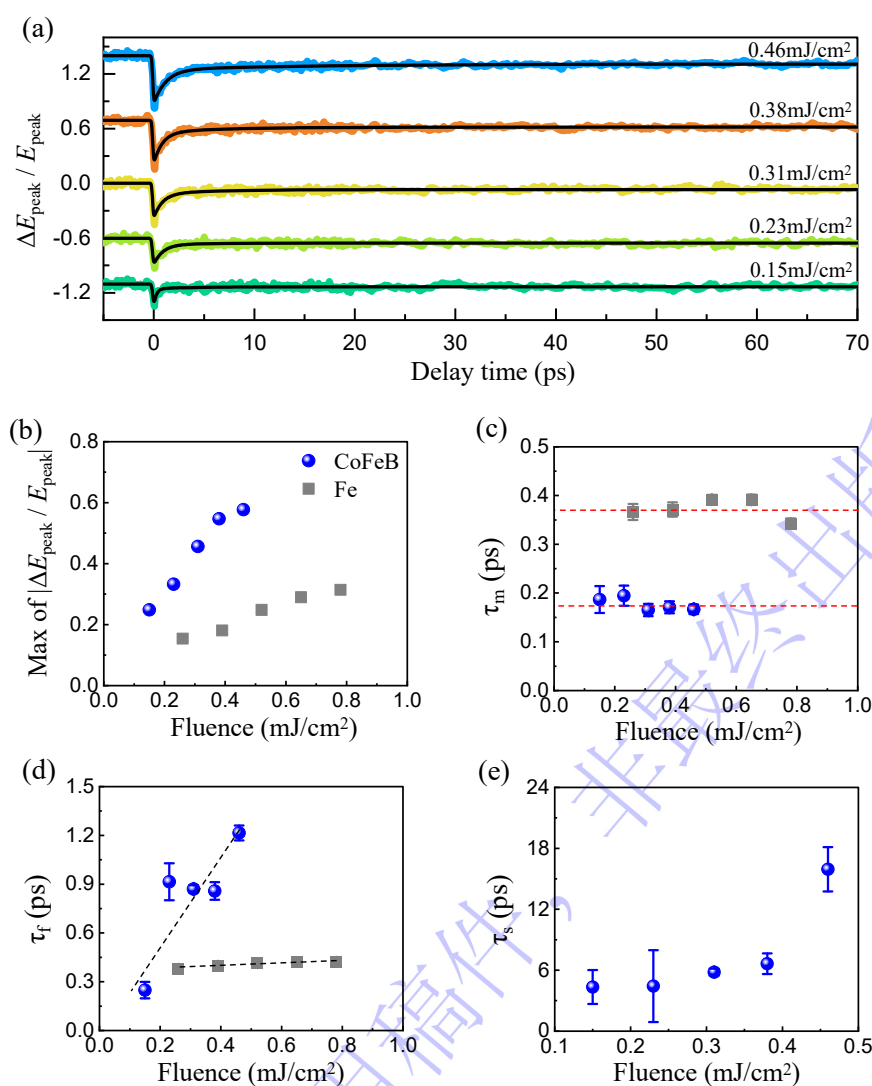


图 2 Pt/CoFeB/Ta/SiO₂控制脉冲能量密度依赖实验测量及其拟合结果 (a) 在不同控制泵浦能量密度 (0.15–0.46 mJ/cm²) 条件下测得的 Pt/CoFeB/Ta/SiO₂样品的 OPTC 信号，其中信

号泵浦能量密度固定为 0.6 mJ/cm^2 ；(b) $\left| \frac{\Delta E_{peak}(\Delta t)}{E_{peak}} \right|$ 的峰值随控制泵浦能量密度的变化关系；(c) 退磁时间 τ_m 、(d) 快速恢复时间 τ_f 及 (e) 慢恢复时间 τ_s 随控制泵浦能量密度的变化关系。虚线为线性拟合结果，误差棒表示由拟合函数得到的标准偏差。

Fig. 2. Experimental measurements and fitting results of the fluence-dependent response in Pt/CoFeB/Ta/SiO₂: (a) OPTE signals were measured for Pt/CoFeB/Ta/SiO₂ samples under various control pump fluences ranging from 0.15 to 0.46 mJ/cm², while keeping the signal pump fluence fixed at 0.6 mJ/cm²; (b) The maximum value of $\left| \frac{\Delta E_{peak}(\Delta t)}{E_{peak}} \right|$ as function of control-pump fluence; (c) Demagnetization time τ_m , (d) fast recovery time τ_f and (e) slow recovery time τ_s as functions of the control-pump fluence. The dashed lines are linear fits. The error bars are the standard deviation calculated from the fitting function.

在超快退磁过程之后，电子与自旋子系统通过电子 - 声子及自旋 - 声子耦合向晶格子系统传递能量。自旋系统的冷却会抑制退磁并导致部分磁化恢复。图 2(d)与图 2(e)分别给出了随控制泵浦能量密度变化的 τ_f 与 τ_s 。随着控制泵浦能量密度增加， τ_f 值由 $0.25 \pm 0.05 \text{ ps}$ 增加至 $1.21 \pm 0.05 \text{ ps}$ 。如图 2(d)所示，与此前研究的 Fe 单层相比，Pt/CoFeB/Ta 多层结构中 $\tau_f(F)$ 的斜率更大，表明非磁层在决定电子 - 晶格耦合强度方面起到了重要作用。图 2(e)显示，自旋 - 声子相互作用的时间常数 τ_s 约为 $4.35 \pm 1.67 \sim 15.94 \pm 2.17 \text{ ps}$ ，与 CoFeB/MgO/CoFeB 体系中的研究结果一致^[68]。需要指出的是，自旋 - 晶格弛豫过程能量尺度由面内磁晶各向异性能量决定^[74]，其时间常数可表示为：

$$\tau_s = \frac{1}{A_{\theta_D}(T)|E_{anisot}|^2} \quad (2)$$

其中， $A_{\theta_D}(T)$ 描述声子布居数， $|E_{anisot}|$ 为磁各向异性能量。 $A_{\theta_D}(T)$ 的瞬态变化与声子产生相关，该过程发生在更慢的时间尺度上，因此在本研究的时间区间内可

忽略不计。随着控制泵浦能量密度增加，会增强自旋涨落，导致 $|E_{aniso}|$ 减小。这也解释了再较高泵浦能量密度下观测到的 τ_s 更慢的原因，可归因于瞬态磁各向异性性能的减弱。

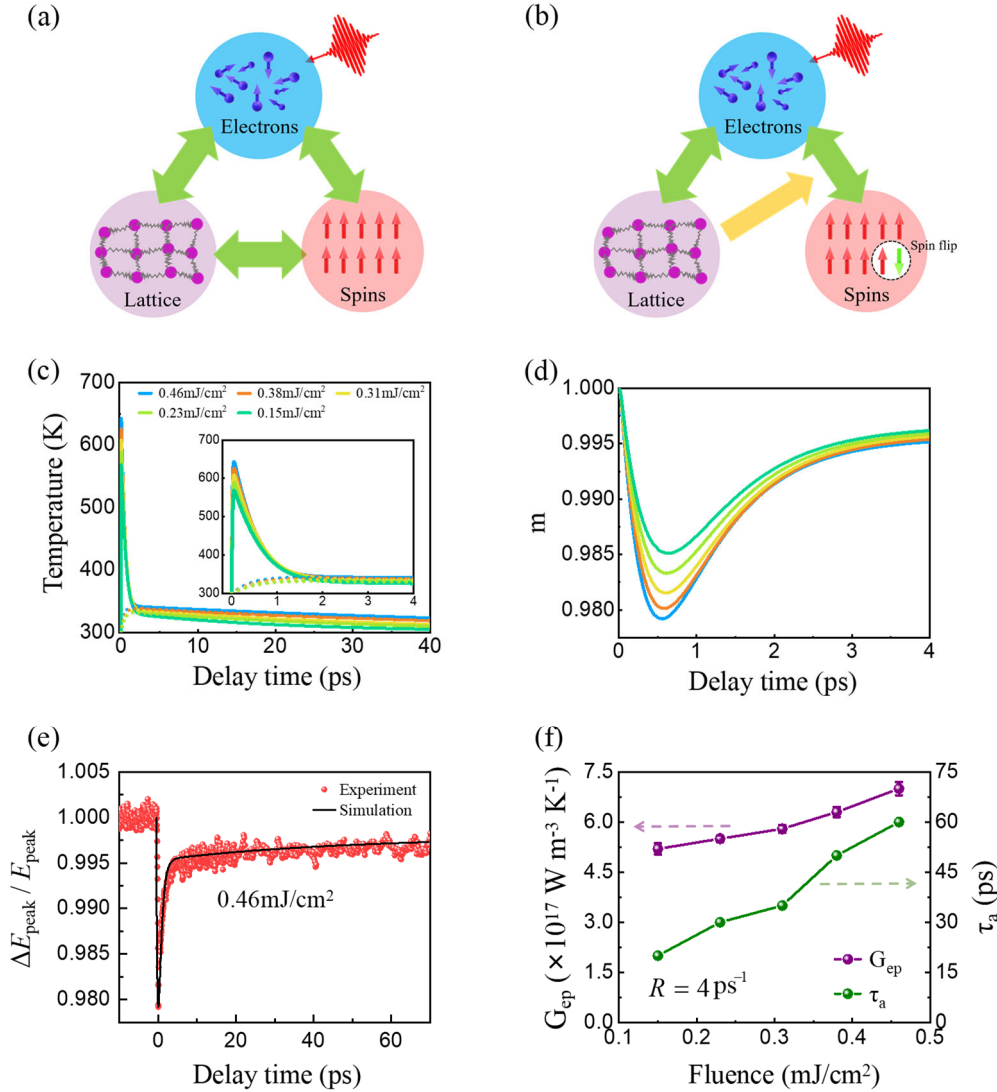


图 3 微观三温度模型理论与实验数据拟合 (a) 三温模型和 (b) 微观三温模型示意图，其中电子可通过电子 - 声子散射过程向晶格传递角动量并实现自旋翻转；(c) 在不同控制脉冲能量密度下，电子与声子温度的全时间及初始时间窗口演化，其中实线表示电子温度，虚线表示声子温度；(d) 不同泵浦能量密度下归一化磁化强度 $m = M/M_S$ 的时间演化；(e) 在激发能量密度为 0.46 mJ/cm^2 条件下 m 的超快演化过程，黑色实线为基于式 (3) - (5) 对实验数据进行的非线性拟合结果；(f) 由 M3TM 模型拟合得到的电子 - 声

子耦合常数 G_{ep} 与晶格弛豫时间 τ_a 随控制泵浦能量密度的变化关系。

Fig. 3. Microscopic three-temperature model theory and fitting results of the fluence-dependent experimental data: Illustration of (a) three temperature model and (b) microscopic three temperature model. An electron can change its spin by transferring angular momentum to the lattice through an electron-phonon scattering process; (c) The full-time and initial-time windows of electron and phonon temperatures dynamics under varying control-pulse fluences. The solid lines represent the electron temperature, while the dashed lines denote the phonon temperature; (d) The temporal evolutions of the magnetization change normalized to the saturation magnetization $m = M/M_S$, with varied pump fluence; (e) The ultrafast evolution of the m as a function of time for excitation fluence of 0.46 mJ/cm^2 . The black solid line represents the nonlinear fit corresponding to the experimental data, based on equations (3)-(5); (f) Best-fit values of G_{ep} and τ_a obtained from the M3TM model for different control-pump fluences.

为理解实验中观测到的磁化恢复过程，图 3(a)给出了由 Beaulieu 等提出的三温模型（3TM）。该模型假设存在自旋、晶格、电子三个热库，三者通过电子-声子、电子-自旋和自旋-晶格耦合实现能量交换，自旋热库温度的变化对应角动量的损失，但该模型无法解释子系统间的角动量输运过程。相比之下，图 3(b)所示的微观三温模型（M3TM）不包含直接的自旋-晶格耦合项，而是认为自旋通过声子的吸收或发射实现自旋翻转。因此，本文采用基于 Elliott - Yafet 散射机制的 M3TM 模型^[48]，该模型包含自由电子（e）、声子（p）和自旋（s）激发三个部分。在理论处理上，为简化分析我们忽略自旋比热，并将电子气体近似为瞬时热化系统。考虑到薄膜厚度远小于探测尺度，可将模型简化为一维情形，从而得到描述电子与声子子系统温度演化的耦合微分方程组^[48,75,76]：

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \kappa \frac{T_e}{T_p} \nabla^2 T_e - G_{ep}(T_e - T_p) + S(z, t), \quad (3)$$

$$C_p(T_p) \frac{\partial T_p}{\partial t} = G_{ep}(T_e - T_p) + \frac{C_p(T_a - T_p)}{\tau_a}, \quad (4)$$

$$\frac{dm}{dt} = Rm \frac{T_p}{T_C} \left[1 - m \coth\left(\frac{mT_C}{T_e}\right) \right], \quad (5)$$

其中， T_e 与 T_p 分别表示电子与声子温度， C_e 与 C_p 为电子和声子对应的热容。在式

(3)中，采用线性近似 $C_e(T_e) = \gamma_e T_e$ ，其中材料相关参数 $\gamma_e = 700 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-2}$ [77]；电子热导率采取 Fe 的数值 $\kappa = 80 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ [78]。 G_{ep} 为电子 - 声子耦合常数， $S(z, t)$ 表示具有高斯分布的激光能量项， ∇ 表示沿穿透深度 z 的偏微分算子。在式(4)中，假设声子比热 C_p 与温度无关， $C_p = 2.7 \times 10^6 \text{ J} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$ ；环境温度 T_a 与晶格弛豫时间 τ_a 用于描述晶格冷却过程。在式(5)中，归一化磁化强度定义为 $m = M/M_S$ ，其中 M_S 为 0 K 下的饱和磁化强度， T_C 为居里温度， R 为表征退磁速率的材料参数。

基于式(3) - (5)，我们计算得到了不同激光能量密度激发下 T_e 与 T_p 的时间演化，如图 3(c)所示。在数值模拟中，当激发能量密度为 0.46 mJ/cm^2 时，电子温度峰值可达约 643 K，逐渐接近 Fe 的居里温度 ($T_C=1043\text{K}$)；而晶格系统则通过电子 - 声子耦合在皮秒时间尺度内升温。如图 3(c)插图所示，电子温度的衰减与声子温度的上升由两者之间的耦合强度决定。随后，在热耗散项作用下，两者均逐渐衰减至环境温度 T_a 。模拟结果表明，超快退磁行为来源于 T_e 与 T_p 的时间演化过程。图 3(d)给出了不同激发能量密度下归一化磁化强度 m 的时间演化。在使用式(3) - (5)进行拟合时，我们通过固定退磁参数 $R = 4 \text{ ps}^{-1}$ ，并将电子 - 声子耦合常数 G_{ep} 与热扩散时间常数 τ_a 作为可调参数对实验数据进行拟合。图 3(e)给出了控制泵浦能量密度为 0.46 mJ/cm^2 时的拟合结果，结果表明 M3TM 模型能够很好地再现实验结果，剩余能量密度下的拟合见补充材料 (图 S1)。图 3(f)展

示了不同泵浦能量密度下 G_{ep} 与 τ_a 的变化关系，随着泵浦能量密度增加， G_{ep} 由 5.2×10^{17} 增加至 $7 \times 10^{17} \text{ W} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$ ，这与文献报道 CoFeB 的 $5.5 \times 10^{17} \text{ W} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$ ^[76] 和 Co 的 $6 \times 10^{17} \text{ W} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$ ^[79]数值一致。此外， τ_a 随控制泵浦能量密度从 0.15 增加至 0.46 mJ/cm² 而增大。该结果表明在磁化恢复过程中，自旋翻转主要通过吸收声子实现并受到电子 - 声子耦合强度的调控。

5 结论

本研究提出了一种光泵浦 - 太赫兹发射 (OPTE) 方法，实现了在室温条件下对光激发 Pt/CoFeB/Ta 异质结中超快磁化动力学和自旋运输的探测。该方法能够有效区分不同自旋动力学过程，观测约 0.18 ps 的超快退磁过程，以及随后在约 1 ps 和数皮秒时间尺度上的电子 - 自旋向晶格的能量转移过程。研究结果强调了层间角动量输运在退磁动力学中的关键作用，表明了 OPTE 光谱技术成为优化磁光数据存储介质及太赫兹辐射器件的重要实验平台。

录用稿件，非最终出版稿

参考文献

- [1] Beaurepaire E, Merle J C, Daunois A, Bigot J Y 1996 *Phys. Rev. Lett.* **1996**, 76, 4250
- [2] Kirilyuk A, Kimel A V, Rasing T 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 2731
- [3] Neeraj K, Sharma A, Almeida M, Matthes P, Samad F, Salvan G, Hellwig O, Bonetti S 2022 *Appl. Phys. Lett.* **120** 102406
- [4] Lu W T, Yao C W, Yan Z, Yuan Z, 2025 *Acta Phys. Sin.* **74** 068501 (in Chinese)
[芦闻天, 姚春伟, 严志, 袁喆 2025 物理学报 **74** 068501]
- [5] Liu P F, Xu T, Liu Q, Dong J C, Lin T, Zhang Q H, Lan X K, Sheng Y, Wang C Y, Pei J J, Yang H X, Gu L, Wang K Y 2025 *Newton* **1** 100004
- [6] Yang X, Feng H M, Liu J N, Zhang X Q, He W, Cheng Z H 2024 *Acta Phys. Sin.* **73** 157501 (in Chinese) [杨旭, 冯红梅, 刘佳南, 张向群, 何为, 成昭华 2024 物理学报 **73** 157501]
- [7] Dornes C, Acremann Y, Savoini M, Kubli M, Neugebauer M J, Abreu E, Huber L, Lantz G, Vaz C A F, Lemke H, Bothschafter E M, Porer M, Esposito V, Rettig L, Buzzi M, Alberca A, Windsor Y W, Beaud P, Staub U, Zhu D, Song S, Glownia J M, Johnson S L 2019 *Nature* **565** 209
- [8] Kang K, Omura H, Yesudas D, Lee O, Lee K J, Lee H W, Taniyama T, Choi G M 2023 *Nat. Commun.* **14** 3619
- [9] Tsatsoulis T, Illg C, Haag M, Mueller B Y, Zhang L, Fahnle M 2016 *Phys. Rev. B* **93** 134411
- [10] Hennecke M, Radu I, Abrudan R, Kachel T, Holldack K, Mitzner R, Tsukamoto

- A, Eisebitt S 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 157202
- [11] Tauchert S R, Volkov M, Ehberger D, Kazenwadel D, Evers M, Lange H, Donges A, Book A, Kreuzpaintner W, Nowak U, Baum P 2022 *Nature* **602** 73
- [12] Dikshit S N, Nisar A, Dixit B, Kaur B, Shukla A K, Kumar A, Chen J, Wang J P, Fulara H, Kaushik B K 2025 *Phys. Rep.* **1140** 1
- [13] Chen X W, Adam R, Bürgler D E, Wang F Z, Lu Z Y, Pan L N, Heidtfeld S, Greb C, Liu M H, Liu Q F, Wang J B, Schneider C M, Cao D R 2025 *Phys. Rep.* **1102** 1
- [14] Zhang L L, He X D, Wang J S, Tong L P, Chen S W, Meng W D, Liu Z, Zhou X W, Xi L, Zuo Y L, Ren Y 2024 *J. Magn. Magn. Mater.* **605** 172343
- [15] Parchenko S, Riepp M, Marotzke S, Åberg Larsson A, Kapaklis V, Oppeneer P M, Scherz A 2024 *Phys. Rev. B* **110** 054425
- [16] Mukhopadhyay S, Pal P K, Manna S, Mitra C, Barman A 2024 *Phys. Rev. B* **109** 024437
- [17] Zhang W, Liu Q, Yuan Z, Xia K, He W, Zhan Q F, Zhang X Q, Cheng Z H 2019 *Phys. Rev. B* **100** 104412
- [18] Dolui K, Nikolić B K 2017 *Phys. Rev. B* **96** 220403
- [19] Sánchez J C R, Vila L, Desfonds G, Gambarelli S, Attané J P, De Teresa J M, Magén C, Fert A 2013 *Nat. Commun.* **4** 2944
- [20] Zhu L J, Zhu L J, Ralph D C, Buhrman R A 2020 *Phys. Rev. Appl.* **13** 034038
- [21] Hsu Y T, Park K, Kim E A 2017 *Phys. Rev. B* **96** 235433
- [22] Ma M Y, Li Z Y, Ruan X Z, Wu J, Wang R F, Liu T Y, Du J, Lu X Y, Xu Y B 2023 *Adv. Electron. Mater.* **9** 2201331

- [23]Kampfrath T, Kirilyuk A, Mangin S, Sharma S, Weinelt M 2023 *Appl. Phys. Lett.* **123** 050401
- [24]Panda S N, Mondal S, Sinha J, Choudhury S, Barman A 2019 *Sci. Adv.* **5** eaav7200
- [25]Xu H R, Yang Y H, Jin Z M, Wang P, Feng Z, Wang T, Yue W S, Chen C, Chen F, Zhu Y M, Peng Y, Zhang D L, Jiang Y, Zhuang S L 2025 *Commun. Phys.* **8** 115
- [26]Bilyk V R, Dubrovin R M, Zvezdin A K, Kirilyuk A I, Kimel A V 2025 *Newton* **1** 100132
- [27]Eschenlohr A, Persichetti L, Kachel T, Gabureac M, Gambardella P, Stamm C 2017 *J. Phys.: Condens. Matter* **29** 384002
- [28]Razdolski I, Alekhin A, Martens U, Bürstel D, Diesing D, Münzenberg M, Bovensiepen U, Melnikov A 2017 *J. Phys.: Condens. Matter* **29** 174002
- [29]Shibata H, Okano M, Watanabe S 2018 *Phys. Rev. B* **97** 014438
- [30]Lattery D M, Zhu J, Zhang D L, Wang J P, Crowell P A, Wang X J 2018 *Appl. Phys. Lett.* **113** 162405
- [31]Bhardwaj R, Caretta A, Laterza S, Coltrioli G, Cautero F, Bharti A, Dev K, Parisse P, Di Giorgio C, Annapoorni S, Kandasami A, Malvestuto M 2025 *Sci. Rep.* **15** 21155
- [32]Wang Z, Sun T, Jiang Z Z, Yuan M J, Huang Y, Ren Y F, Hou D, Li T, Liu X Y, Luo X, Chai Y S, Kimel A, Sun Y P, Sheng Z G 2025 *Natl. Sci. Rev.* **12** nwaf185
- [33]Regensburger H, Vollmer R, Kirschner J 2000 *Phys. Rev. B* **61** 14716
- [34]Chen J, Wiczorek J, Eschenlohr A, Xiao S, Tarasevitch A, Bovensiepen U 2017 *Appl. Phys. Lett.* **110** 092407

- [35] Pickel M, Schmidt A B, Donath M, Weinelt M 2006 *Surf. Sci.* **600** 4176
- [36] Cinchetti M, Sánchez Albaneda M, Hoffmann D, Roth T, Wüstenberg J P, Krauß M, Andreyev O, Schneider H C, Bauer M, Aeschlimann M 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 177201
- [37] Gupta D, Pankratova M, Riepp M, Pereiro M, Sanyal B, Ershadrad S, Hehn M, Pontius N, Schüßler-Langeheine C, Abrudan R, Berggard N, Bergman A, Eriksson O, Boeglin C 2025 *Nat. Commun.* **16** 3097
- [38] Abrudan R, Hennecke M, Radu F, Kachel T, Holldack K, Mitzner R, Donges A, Khmelevskiy S, Deák A, Szunyogh L, Nowak U, Eisebitt S, Radu I 2021 *Phys. Status Solidi RRL* **15** 2100047
- [39] 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
- [40] Beaurepaire E, Turner G M, Harrel S M, Beard M C, Bigot J Y, Schmuttenmaer C A 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 3465
- [41] Bilyk V R, Dubrovin R M, Zvezdin A K, Kirilyuk A I, Kimel A V 2025 *Newton* **1** 100132
- [42] Cheng H Y, Ma Q R, Xu H R, Zhang H P, Jin Z M, He W, Peng Y 2024 *Acta Phys. Sin.* **73** 167801 (in Chinese) [程宏阳, 马倩茹, 徐浩然, 张慧萍, 金钻明, 何为, 彭滢 2024 物理学报 **73** 167801]
- [43] Awari N, Semisalova A, Deinert J C, Lenz K, Lindner J, Fullerton E, Uhlíř V, Li J, Clemens B, Carley R, Scherz A, Kovalev S, Gensch M 2020 *Appl. Phys. Lett.* **117** 122407

- [44] Li G, Medapalli R, Mentink J H, Mikhaylovskiy R V, Blank T G H, Patel S K K, Zvezdin A K, Rasing Th, Fullerton E E, Kimel A V 2022 *Nat. Commun.* **13** 2998
- [45] Wang B, Shan S Y, Wu X J, Wang C, Pandey C, Nie T X, Zhao W S, Li Y T, Miao J G, Wang L 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 121104
- [46] Huang C, Li Z S, Lu B, Wang Y F, Cai M, Xi L, Zhang H P, Jin Z M 2025 *J. Chem. Phys.* **163** 224202
- [47] Yu I C, Ko S, Kim W T, Park B G, Ham B S, Kim K J, Rotermund F 2025 *Commun. Mater.* **7** 15
- [48] Koopmans B, Malinowski G, Dalla Longa F, Steiauf D, Fähnle M, Roth T, Cinchetti M, Aeschlimann M 2010 *Nat. Mater.* **9** 259
- [49] Roth T, Schellekens A J, Alebrand S, Schmitt O, Steil D, Koopmans B, Cinchetti M, Aeschlimann M 2012 *Phys. Rev. X* **2** 021006
- [50] Carva K, Battiato M, Oppeneer P M 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 207201
- [51] Griepe T, Atxitia U 2023 *Phys. Rev. B* **107** L100407
- [52] Battiato M, Carva K, Oppeneer P M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 027203
- [53] Rudolf D, La-O-Vorakiat C, 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 *Nat. Commun.* **3** 1037
- [54] Varela-Manjarres J, Kefayati A, Jungfleisch M B, Xiao J Q, Nikolić B K 2024 *Phys. Rev. B* **110** L060410
- [55] Kefayati A, Nikolić B K 2024 *Phys. Rev. Lett.* **133** 136704
- [56] Kefayati A, Ren Y, Jungfleisch M B, Gundlach L, Xiao J Q, Nikolić B K 2025

Phys. Rev. B **111** L140415

[57] Panda S N, Rana B, Otani Y, Barman A 2022 *Adv. Quantum Technol.* **5** 2200016

[58] Fan J, Liu Q H, Huang Z X, Zhang Y X 2025 *Electromag. Sci.* **3** 0110332

[59] 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

[60] Lyu J M, Shen S Y, Chen L, Zhu Y M, Zhuang S L 2023 *Photonix* **4** 28

[61] Hirohata A, Koizumi H, Oue D, Matsuo M 2025 *Newton* **1** 100192

[62] Bonetti S, Hoffmann M C, Sher M J, Chen Z, Yang S H, Samant M G, Parkin S S

P, Dürr H A 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 087205

[63] Jiang Y X, Li Z S, Li Z Y, Jin Z M, Lu X Y, Xu Y B, Peng Y, Zhu Y M 2023 *Opt.*

Lett. **48** 2054

[64] 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

[65] Li Z S, Jiang Y X, Jin Z M, Li Z Y, Lu X Y, Ye Z Y, Pang J Y, Xu Y B, Peng Y

2022 *Nanomaterials* **12** 4267

[66] Besbas J, Loong L M, Wu Y, Yang H 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 232408

[67] Derrico A M, Basini M, Unikandanunni V, Paudel J R, Kareev M, Terilli M, Wu

T, Alostaz A, Klewe C, Shafer P, Gloskovskii A, Schlueter C, Schneider C M,

Chakhalian J, Bonetti S, Gray A X 2026 *Adv. Mater.* **38** e12328

[68] Ji B Y, Jin Z M, Wu G J, Li J G, Wan C, Han X F, Zhang Z Z, Ma G H, Peng Y,

Zhu Y M 2023 *Appl. Phys. Lett.* **122** 111104

- [69]He W, Zhu T, Zhang X Q, Yang H T, Cheng Z H 2013 *Sci. Rep.* **3** 2883
- [70]Xie Z K, Cai Y H, Tang M, Zhou J, Liu J L, Peng J, Jiang T R, Shi Z, Chen Z F
2023 *Materials* **16** 5086
- [71]Wang F Z, Bürgler D E, Adam R, Parlak U, Cao D R, Greb C, Heidtfeld S,
Schneider C M 2021 *Phys. Rev. Research* **3** 033061
- [72]Zhang W T, Maldonado P, Jin Z M, Seifert T S, Arabski J, Schmerber G,
Beaurepaire E, Bonn M, Kampfrath T, Oppeneer P M, Turchinovich D 2020 *Nat.
Commun.* **11** 4247
- [73]Haag M, Illg C, Fähnle M 2014 *Phys. Rev. B* **90**, 014417
- [74]Müller G M, Walowski J, Djordjevic M, Miao G X, Gupta A, Ramos A V, Gehrke
K, Moshnyaga V, Samwer K, Schmalhorst J, Thomas A, Hütten A, Reiss G,
Moodera J S, Münzenberg M 2009 *Nat. Mater.* **8** 56
- [75]Wang C, Chen Y P, Xia T H, Wang L Z, Qi R Z, Zhang J Y, Sheng Z M 2023 *Appl.
Phys. Lett.* **123** 152403
- [76]Selz F, Kölbel J, Paries F, Von Freymann G, Molter D, Mittleman D M 2025 *ACS
Photonics* **12** 5257
- [77]Xue N, Shi H H, Zhang K L, Liu Z Y 2025 *Phys. Rev. A* **111** 023512
- [78]Wang G H, Li Y X 2019 *J. Appl. Phys.* **126** 125118
- [79]Zhang P L, Yang Y H, Chen A, Shi Y, Wang Y P, Du L C, Ding D J 2019 *Opt.
Commun.* **452** 83

Characterization of ultrafast spin dynamics in ferromagnetic heterostructures using double-pump terahertz emission spectroscopy *

LU Bo¹⁾ LI Zhuoyi²⁾³⁾⁴⁾ GE Zhenjie¹⁾ LI Zhangshun¹⁾ HUANG Chen¹⁾, LU Xianyang²⁾³⁾⁴⁾

XU Yongbing²⁾³⁾⁴⁾ JIN Zuanming¹⁾⁵⁾†

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) (National Key Laboratory of Spintronics, Nanjing University, Suzhou 215163, China)

3) (School of Integrated Circuits, Nanjing University, Fudan University, Suzhou 215163, China)

4) (Jiangsu Provincial Key Laboratory of Advanced Photonic and Electronic Materials, School of Electronic Science and Engineering, Nanjing University, Nanjing 210093, China)

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

Abstract

In this study, we systematically investigate the ultrafast spin dynamics and underlying physical mechanisms of Pt/CoFeB/Ta/SiO₂ ferromagnetic heterostructures at room temperature by using a femtosecond laser-based dual-pump optical pump–terahertz emission (OPTE) spectroscopy combined with the microscopic three-temperature model (M3TM). This integrated approach enables the qualitative characterization and quantitative analysis of ultrafast magnetization

dynamics, which serves as a simple and efficient strategy for probing spin–charge coupling in magnetic heterostructures. The time-resolved OPTE measurements clearly resolve a three-stage ultrafast magnetization evolution process: an ultrafast demagnetization within a sub-0.2 ps timescale, followed by two distinguishable magnetization recovery stages dominated by electron–phonon interaction and spin–phonon interaction, respectively. Quantitative analysis demonstrates that the demagnetization time is nearly independent of the control pump fluence, and is significantly shorter than that of single-layer Fe films in our previous work. This accelerated demagnetization is attributed to the introduction of Ta and Pt nonmagnetic layers, which strongly enhance the spin–orbit coupling and promote efficient interlayer spin transport and angular momentum transfer. Moreover, increasing the pump fluence intensifies spin fluctuations, reduces the transient magnetic anisotropy, and thus slows down the spin–phonon relaxation process. By quantitatively fitting the experimental dynamics with the M3TM, we successfully extract the key kinetic parameters including the electron–phonon coupling constant and lattice relaxation time. Both parameters show a monotonic increase with rising pump fluence, revealing a higher efficiency of energy transfer from the electronic subsystem to the lattice subsystem under stronger photoexcitation. These results explicitly highlight the crucial role of interlayer angular momentum transport in ultrafast demagnetization dynamics. This study not only deepens the fundamental understanding of ultrafast spin and charge transport mechanisms in ferromagnetic heterostructures, but also provides essential experimental

benchmarks and theoretical guidance for the design and optimization of high-performance magneto-optical storage devices and terahertz emission devices.

Keywords: Ferromagnetic heterostructures, optical pump–THz emission, ultrafast spin dynamics, electron–phonon coupling, microscopic three-temperature model

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (2023YFF0719200), the National Natural Science Foundation of China (62322115, U24A20226, 62588201, 62435010, 62335012), Shanghai Educational Development Foundation (Grant No. 24SG46), the 111 Project (D18014); the Key project supported by Science and Technology Commission Shanghai Municipality (YDZX20193100004960), and the Science and Technology Commission of Shanghai Municipality (22JC1400200).

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

The first author. E-mail: lb1536367523@outlook.com