



## 退火效应增强铁磁异质结太赫兹发射实验及机理

高扬 Chandan Pandey 孔德胤 王春 聂天晓 赵巍胜 苗俊刚 汪力 吴晓君

## Annealing effect on terahertz emission enhancement from ferromagnetic heterostructures

Gao Yang Chandan Pandey Kong De-Yin Wang Chun Nie Tian-Xiao Zhao Wei-Sheng Miao Jun-Gang Wang Li Wu Xiao-Jun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 200702 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200526

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200526>

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

铁磁异质结构中的超快自旋流调制实现相干太赫兹辐射

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

物理学报. 2018, 67(19): 197202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181178>

铁磁/非磁金属异质结中的拓扑霍尔效应

Topological Hall effect in ferromagnetic/non-ferromagnetic metals heterojunctions

物理学报. 2018, 67(13): 131202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180369>

太赫兹互补金属氧化物半导体场效应管探测器理论模型中扩散效应研究

Diffusion part in terahertz complementary metal oxide semiconductor transistor detector model

物理学报. 2017, 66(12): 127302 <https://doi.org/10.7498/aps.66.127302>

微纳尺度多铁异质结中电驱动磁反转

Electric field driven magnetic switching in nanoscale multiferroic heterostructures

物理学报. 2018, 67(15): 157512 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181219>

专题：太赫兹自旋光电子

## 退火效应增强铁磁异质结太赫兹发射实验及机理\*

高扬<sup>1)</sup> Chandan Pandey<sup>2)</sup> 孔德胤<sup>1)</sup> 王春<sup>3)4)</sup> 聂天晓<sup>2)5)†</sup>赵巍胜<sup>2)5)</sup> 苗俊刚<sup>1)</sup> 汪力<sup>3)</sup> 吴晓君<sup>1)‡</sup>

1) (北京航空航天大学电子信息工程学院, 北京 100191)

2) (北京航空航天大学微电子学院, 大数据科学与脑机智能高精尖创新中心, 北京 100191)

3) (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家重点实验室, 北京 100190)

4) (中国科学院大学物理学院, 北京 100049)

5) (北京航空航天大学青岛研究所, 北航歌尔联合微电子研究所, 青岛 266000)

(2020年4月10日收到; 2020年5月6日收到修改稿)

系统研究了退火效应对飞秒激光脉冲驱动的基于钴铁硼/重金属异质结辐射太赫兹波的影响. 通过对发射样品进行退火处理, 在钨/钴铁硼结构中观察到三倍增强的太赫兹波辐射, 而铂/钴铁硼结构中太赫兹波的强度也获得了双倍提升. 通过太赫兹时域光谱系统对异质结样品的透射测量和四探针法电阻率测量实验, 验证了退火效应的主要机理可能源于材料结晶引起的热电子平均自由程增加, 以及材料对太赫兹波的吸收降低. 本研究不仅加深了对自旋太赫兹辐射机理的理解, 而且为研制高性能太赫兹辐射源及其应用有一定的贡献.

关键词: 太赫兹产生, 铁磁/重金属异质结, 退火效应, 超扩散模型

PACS: 07.57.Hm, 42.65.Re, 85.75.-d, 78.47.J-

DOI: 10.7498/aps.69.20200526

## 1 引言

太赫兹科学与技术的研究和应用离不开高效的太赫兹辐射源<sup>[1]</sup>. 在飞秒激光激发的太赫兹源中<sup>[2-5]</sup>, 基于磁性材料的太赫兹发射器具有超宽带、低成本、易集成等优点<sup>[6-17]</sup>, 近期受到广泛的关注, 已成为太赫兹领域研究热点. 但是, 这种新型太赫兹源的研究仍处于起步阶段, 辐射机理、偏振调控、器件制备、稳定性等仍需要进一步更加深入地研究. 这种新型太赫兹源的基本原理是飞秒激光脉冲与铁磁异质结发生相互作用, 将电子激发到费米能级以上的子带中<sup>[18]</sup>, 由于自旋向上和自旋

向下的电子具有不同的密度和迁移率, 因此产生了纵向自旋极化电流. 当该自旋极化流到达重金属层时, 由于逆自旋霍尔效应<sup>[7,8]</sup>, 该电流被转换为面内横向电荷电流, 基于麦克斯韦辐射理论, 继而产生太赫兹波辐射. 在辐射过程中, 通过在异质结自旋发射器上使用非均匀磁场和级联发射等方式, 可以实现高质量的椭圆和圆偏振太赫兹产生<sup>[19,20]</sup>, 并对产生的太赫兹波偏振实现调控. 不仅如此, 通过双抽运发射技术可以实现对飞秒自旋电流和太赫兹辐射的相干调控, 进而研究这个过程的非线性自旋动力学过程<sup>[21]</sup>. 这些工作进一步表明自旋太赫兹发射具有很丰富的物理和很好的潜在应用价值. 同时, 材料类型 (特别是重金属材料的自旋霍尔

\* 北京市自然科学基金 (批准号: 4194083)、国家自然科学基金 (批准号: 61905007, 61774013, 11827807, 61731001) 和国家重点研发计划 (批准号: 2019YFB2203102) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: [nietianxiao@buaa.edu.cn](mailto:nietianxiao@buaa.edu.cn)‡ 通信作者. E-mail: [xiaojunwu@buaa.edu.cn](mailto:xiaojunwu@buaa.edu.cn)

角) 和几何结构对太赫兹波的发射性能有非常重要的影响<sup>[8]</sup>. 除此之外, 材料的制备条件也极有可能影响太赫兹波的辐射特性<sup>[11]</sup>. Sasaki 等<sup>[11]</sup> 证明了在钽/钴铁硼/氧化镁薄膜上, 退火效应可以提高太赫兹波的发射强度. 他们提出了两种可能的机理, 一种是硼原子扩散到钽层中, 引起自旋霍尔角的增大以及热电子速度弛豫长度的减小<sup>[22]</sup>; 另一种是氧化镁层的存在, 使钴铁硼层结晶, 从而导致热电子平均自由程增加<sup>[11]</sup>. 而这种退火效应对太赫兹波强度的增强作用是否也可以扩展到钨(铂)/钴铁硼异质结体系中, 从而进一步提升该材料体系的太赫兹辐射效率, 是本文关注的焦点, 但还没有被人们深入研究过.

本文通过对比研究退火和未退火的钨/钴铁硼、铂/钴铁硼样品产生太赫兹辐射的特性, 观察到退火样品产生的太赫兹波强度高于未退火样品, 对于钨/钴铁硼材料, 增强因子高达 3 倍. 通过太赫兹时域光谱系统以及四探针法实验, 对退火效应的物理机理进行深入研究, 证实钴铁硼层结晶所引起的热电子平均自由程的增加可能是退火后太赫兹波增强的主要原因.

## 2 实验装置与测量结果

太赫兹波发射实验的装置如图 1 所示. 驱动激光器采用了商用钛: 蓝宝石激光振荡器, 产生中心波长为 800 nm, 脉冲宽度为 70 fs, 重复频率为 80 MHz 的超快脉冲. 90% 的激光功率用于抽运铁磁异质结样品产生太赫兹波, 剩余能量用于光电采样探测太赫兹波<sup>[23]</sup>. 从图 1 可以看出, 产生太赫兹波的激光脉冲经过一个透镜(焦距为 150 mm) 聚焦到发射样品上. 产生激光照射到样品上的光斑直径约为 0.5 mm. 产生的太赫兹波经过 4 个抛物面镜的准直与聚焦后, 与探测激光脉冲一起到达探测晶体碲化锌(厚度为 1 mm, 晶向<110>) 上. 太赫兹电磁波通过线性电光效应诱导探测晶体折射率发生变化, 通过 1/4 波片、沃拉斯顿棱镜和一对平衡探头间接探测折射率的变化, 通过锁相放大技术获得太赫兹时域电场波形. 在这个实验中, 我们并未对太赫兹光谱仪抽真空或充入氮气以排除水蒸汽的影响. 所有的实验测量均在室温下进行.

我们在钴铁硼/重金属的双层样品上进行了太赫兹波发射实验, 双层样品包括钨(2.2)/钴铁硼

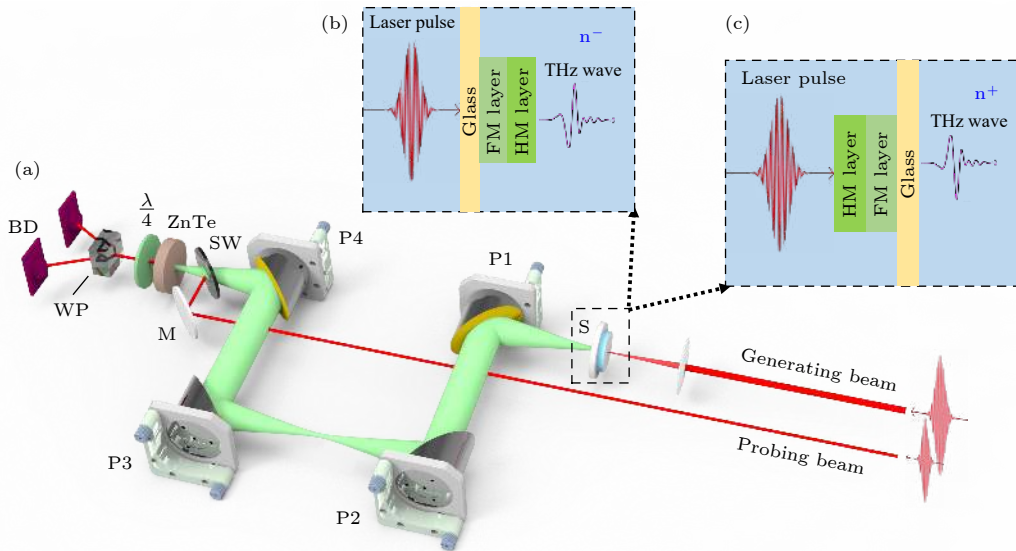


图 1 实验装置示意图以及样品结构信息 (a) 太赫兹发射实验装置: BD, 平衡探测器; WP, 沃拉斯顿棱镜;  $\lambda/4$ , 1/4 波片; SW, 硅片; M, 铝反射镜; P1—P4, 90°离轴抛物面镜; S, 样品; (b), (c) 对  $n^-$  和  $n^+$  的定义: 抽运激光入射到玻璃基底定义为  $n^-$ , 入射异质结薄膜定义为  $n^+$ . HM, 重金属, 包括钨和铂; FM, 铁磁性金属, 即钴铁硼

Fig. 1. Schematic diagram of experimental setup and sample structure information. (a) Experimental setup of the terahertz emission system. BD, balanced detector; WP, Wollaston prism;  $\lambda/4$ , quarter wave plate; SW, silicon wafer; M, aluminum mirror; P1—P4, 90° off-axis parabolic mirrors; S, sample; (b) and (c) definitions of  $n^-$  and  $n^+$ . When the laser pulses first incident onto the glass substrate, it is defined as  $n^-$ , while the other case is defined as  $n^+$ . HM, heavy metals including W and Pt; FM, ferromagnetic metal CoFeB.

(2.0), 钨 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 和铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2), 括号中的数字表示相应材料层的厚度, 单位是 nm. 样品的衬底材料是玻璃, 厚度是 1 mm. 样品是在高真空 AJA 溅射系统中制备而成, 制作过程中基本压力为  $10^{-9}$  Torr ( $1 \text{ Torr} = 1.33 \times 10^2 \text{ Pa}$ )<sup>[24]</sup>. 通过优化沉积条件来确保最佳质量和可重复性, 钨、钴铁硼和铂的生长速率分别为 0.21, 0.06 和  $0.77 \text{ \AA/s}$ . 在制备过程中, 通过均匀旋转样品以确保良好的均匀性. 为了进行对比研究, 将本实验中的所有样本分为两组, 分别为退火和未退火组. 退火温度为  $280 \text{ }^\circ\text{C}$ , 退火时间为 1 h. 在退火过程中, 外部磁场设置为 1 T. 在进行太赫兹波发射实验时, 施加的静磁场强度为 50 mT.

图 2(a), (e) 是飞秒激光照射样品示意图和样品的双层结构图. 图 2(b), (d) 分别给出了飞秒激光脉冲入射到钨 (2.2)/钴铁硼 (2.0) 纳米薄膜时, 退火和未退火样品辐射的太赫兹时域波形及其对应的频谱 ( $n^+$ ) (光谱的吸收线来自水蒸气). 在添加均匀磁场的情况下, 产生的主要是线偏振太赫兹波, 偏振方向与外加磁场方向垂直. 本实验中外加磁场方向为水平方向, 因此, 产生的太赫兹波为线偏振, 且方向为竖直方向. 实验结果表明, 退火效

应确实提高了太赫兹波发射强度. 当抽运激光脉冲入射在  $n^+$  侧时, 退火和未退火样品辐射的太赫兹波信号峰峰值之比为  $P_{+退火}/P = 2.9$ . 而当抽运激光脉冲入射在  $n^-$  侧时, 也可以观察到这种增强行为. 在这种情况下, 如图 2(c) 所示, 退火样品的太赫兹波强度是未退火样品太赫兹波强度的 3.2 倍.

此外, 我们还观察到了辐射的太赫兹波出现了极性反转行为, 这证明了逆自旋霍尔效应机理的方向性对称破坏性质. 同样, 无论抽运激光脉冲入射到样品的  $n^+$  或  $n^-$  侧, 在铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 纳米薄膜都探测到了退火效应引起的太赫兹波发射增强 (见图 2(f) 和图 2(g)). 对于  $n^+$  和  $n^-$ , 信号峰峰值之比分别为  $P_{+退火}/P = 2.3$  和  $P_{-退火}/P = 2.1$ . 其中, 钨和铂样品中  $n^+$  和  $n^-$  之间的细微差异可能是玻璃基底在光学频率范围和太赫兹波频率范围的吸收系数不同所致. 如果忽略掉这种小影响, 可以得出结论: 通过退火效应, 钨 (2.2)/钴铁硼 (2.0) 和铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 纳米薄膜的太赫兹波发射强度分别提高了 3 倍和 2 倍, 这一结果比前人研究报道使用钽 (5.0)/钴铁硼 (1.0)/氧化镁 (2.0) 异质结的实验结果要高出很多<sup>[1]</sup>. 在钽 (5.0)/钴铁硼 (1.0)/氧化镁 (2.0) 异质结的太赫兹发射实验中,

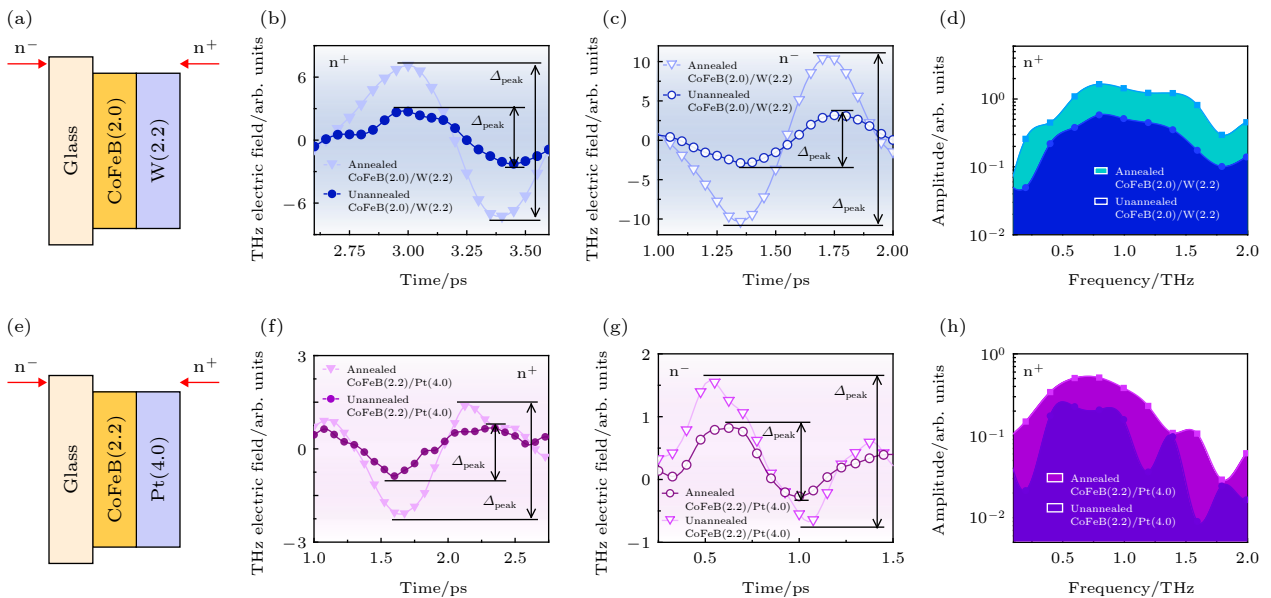


图 2 (a), (e) 钴铁硼 (2.0)/钨 (2.2) 和钴铁硼 (2.2)/铂 (4.0) 双层结构示意图; (b), (c) 退火和未退火的钴铁硼 (2.0)/钨 (2.2) 样品辐射的时域太赫兹波形, 分别对应  $n^+$  和  $n^-$  情况; (f), (g) 退火和未退火的铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 样品辐射的时域太赫兹波形, 分别对应  $n^+$  和  $n^-$  情况; (d), (h) 退火和未退火钴铁硼 (2.0)/钨 (2.2)、钴铁硼 (2.2)/铂 (4.0) 样品辐射太赫兹波的频谱

Fig. 2. (a), (e) Bilayer structure diagram of CoFeB(2.0)/W(2.2) and CoFeB(2.2)/Pt(4.0); (b), (c) terahertz temporal waveforms from the CoFeB(2.0)/W(2.2) samples with and without annealing, for the cases of  $n^+$  and  $n^-$ , respectively; (f), (g) terahertz temporal waveforms from the Pt(4.0)/CoFeB(2.2) samples with and without annealing, for the cases of  $n^+$  and  $n^-$ , respectively; (d), (h) terahertz spectra obtained from CoFeB(2.0)/W(2.2) and CoFeB(2.2)/Pt(4.0), respectively, with and without annealing.

采用了退火前后太赫兹信号的峰值进行对比, 而该实验仅获得 1.5 倍的提升.

从图 2(d), (h) 的发射频谱上可以看出, 对于钨 (2.2)/钴铁硼 (2.0) 样品, 退火效应产生的太赫兹发射信号振幅的提升反应在了整个辐射频段上, 而且非常明显. 但是对于铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 样品, 由于未退火的双层样品产生的太赫兹辐射信号本身就偏弱 (见图 2(f), (g)), 将时域信号转换为频谱信号之后, 噪声的信号被放大, 在图 2(h) 上出现了一些振荡. 由于自旋太赫兹辐射的主要能量集中在 0.5—1.2 THz 之间, 对于高频辐射信号, 退火效应引起的提升变得不明显.

为了消除由样品厚度引起的干扰, 选择了相同厚度的钨 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 和铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 异质结用于后续实验. 图 3(a) 给出了退火后从这两个样品发射的时域太赫兹波形. 可以看出, 两个样品发射的太赫兹波相位相反, 这是由于钨和铂的自旋霍尔角分别为负和正导致<sup>[8]</sup>. 此外, 钨/钴铁硼的信号比铂/钴铁硼高 1.9 倍. 这种现象可能是因为钨的自旋霍尔角大于铂<sup>[24]</sup>. 如图 3(b) 所示, 当飞秒激光脉冲入射到  $n^-$  侧时, 观察到钨 (4.0)/钴

铁硼 (2.2) 辐射的太赫兹波振幅是铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 的 5 倍. 同样, 在图 3(d),(e) 中, 未退火情况下, 观察到钨 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 辐射太赫兹波振幅比铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 更大的现象. 这些现象清楚地表明, 无论是否退火, 基于钨的太赫兹波发射器的发射强度始终大于基于铂的发射器. 通过这些实验, 我们可以排除样品厚度带来的干扰, 且证明了在铁磁异质结中钨比铂更适合作为重金属层, 从而带来更大的太赫兹波发射强度. Seifert 等<sup>[8]</sup> 已有报道称, 钨或铂/钴铁硼系统由于其固有的大自旋霍尔角而具有实现高发射效率的能力. 根据上述结果, 通过将退火效应扩展到这一高效的双层体系结构中, 实现了太赫兹波发射的三倍增强.

### 3 讨论

以前的报道指出, 当提高退火温度时, 钴铁硼会经历从非晶态到纳米晶嵌入的非晶态的相变<sup>[25–27]</sup>, 而退火不会对晶体结构以及钨<sup>[28]</sup> 和铂<sup>[25]</sup> 中相关的性质产生显著影响. 这种再结晶可能会提高钴铁

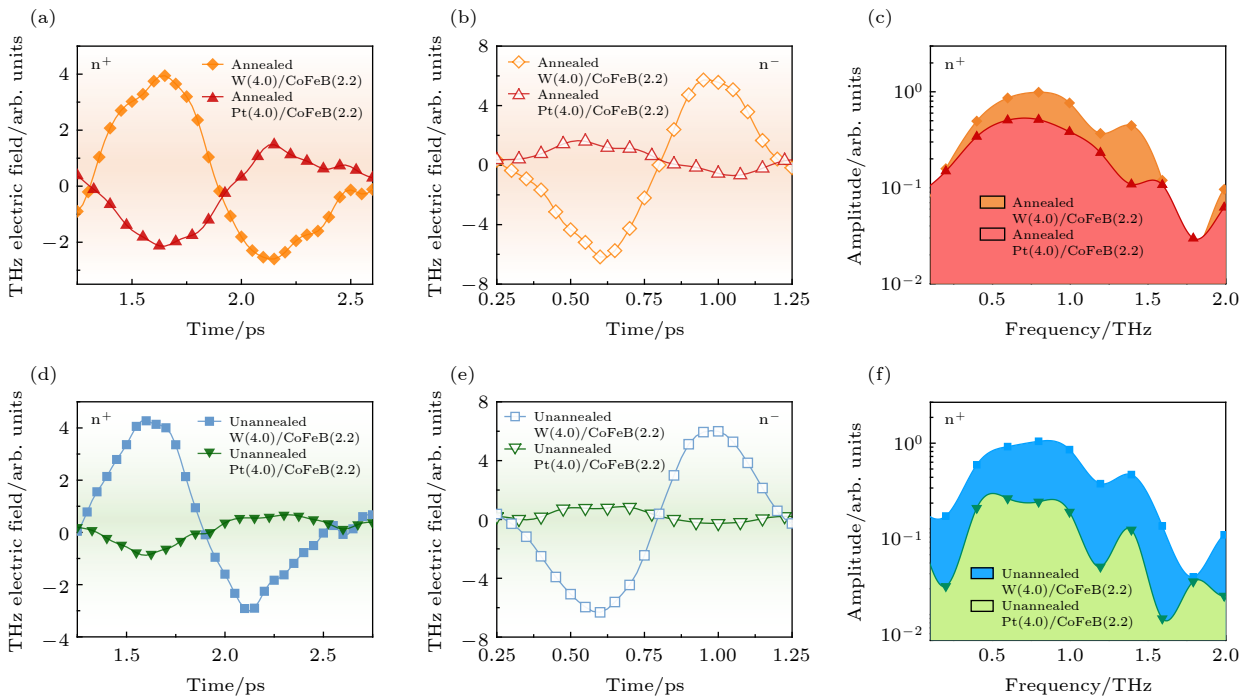


图 3 (a), (b) 当两个样品都经退火处理, 飞秒激光脉冲分别从正 ( $n^+$ ) 和负 ( $n^-$ ) 侧入射到钨 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 和铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 纳米薄膜上产生的太赫兹时域信号; (d), (e) 未退火样品的结果; (c), (f) 退火和未退火的钴铁硼 (2.2)/钨 (4.0) 和钴铁硼 (2.2)/铂 (4.0) 辐射太赫兹波的频谱

Fig. 3. (a), (b) terahertz temporal waveforms in the annealed W(4.0)/CoFeB(2.2) and Pt(4.0)/CoFeB(2.2) nanofilms from the positive ( $n^+$ ) and negative ( $n^-$ ) sides, respectively; (d), (e) results from both the samples without annealing; (c), (f) terahertz spectra radiated from annealed and unannealed CoFeB(2.2)/W(4.0) and CoFeB(2.2)/Pt(4.0), respectively.

硼层中太赫兹波的传输和自旋电流的生成,从而增强退火样品中太赫兹波的发射. 为了深入了解退火效应对太赫兹波发射增强的影响,我们随后在样品中可能的机理进行了全面的分析. 第一个是在退火和未退火的钨 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 和铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 样品上进行太赫兹波透射实验. 该实验在太赫兹时域光谱仪中进行. 这套太赫兹时域光谱仪与太赫兹发射系统共用飞秒激光振荡器,但产生太赫兹的辐射源采用低温生长砷化镓光导天线,探测太赫兹波采用 1 mm 厚的碲化锌晶体<sup>[29]</sup>. 在这个测量中,太赫兹光路部分充入氮气以消除水蒸气的影响. 相比于未退火样品,经过退火处理的两个样品的太赫兹波透射强度显现出轻微并且可重复的增强现象,见图 4(a),(b). 在钨 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 中,传输的太赫兹信号的强度增加了 1.36%,而在铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 中,该数值增加了 3.75%. 以上结果表明,退火效应确实可以增强太赫兹波的透射,进而通过降低发射过程中材料对太赫兹波的吸收率来提高太赫兹波发射. 但是,考虑到退火后样

品发射的太赫兹波强度具有 2 倍和 3 倍增大,以上因素有可能并不是主要原因.

为了进一步探讨其中的潜在机理,我们讨论了退火对钴铁硼层中自旋电流产生的影响,该影响可能会显著影响太赫兹波的发射. 自旋电流通常可能与载流子的散射和薄膜的磁化强度有关. 因此我们首先在退火和未退火情况下,对铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2)、钨 (2.2)/钴铁硼 (2.0) 和钨 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 进行纵向磁光克尔效应测量. 由于所有样品在退火后均表现出非常相似的变化行为,因此图 4(c) 的插入图中只展示了铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 的典型结果. 退火前后的磁滞回线在矫顽力和饱和磁场方面均未观察到差异,这表明磁化强度不是退火后太赫兹波发射增强的主要原因.

接下来,通过四探针实验测量了退火和未退火样品的电阻率,以揭示退火过程中载流子的散射演变. 如图 4(c) 所示,与未退火相比,退火后的两个样品的电阻率均显著降低. 其中,退火后钨 (2.2)/钴铁硼 (2.0) 的电阻率约降低为未退火样品的

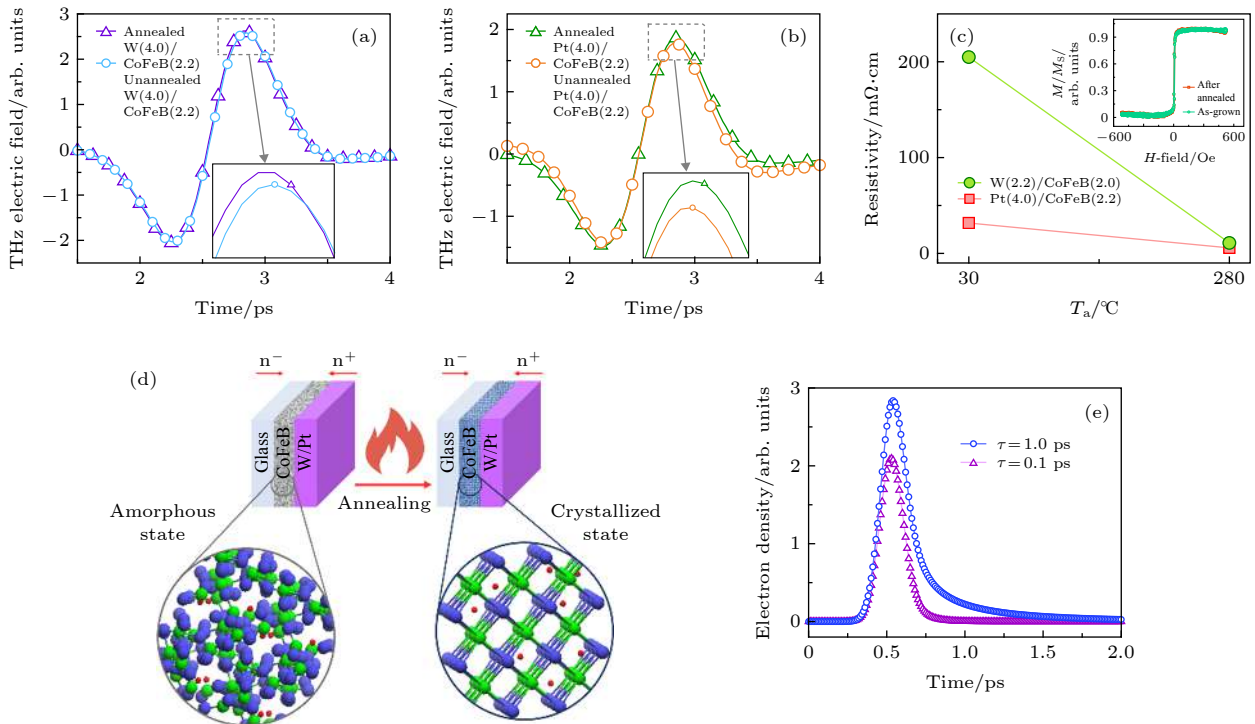


图 4 (a), (b) 退火和未退火状态下, 钨 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 和铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 样品透射的太赫兹时域信号, 插图为峰值放大图; (c) 样品电阻率的退火温度依赖性, 插图为样品的磁光克尔测量结果; (d) 退火前后, 钴铁硼从非晶态结晶转为结晶态的原子结构示意图; (e)  $z = z_s$  处, 电子密度的模拟结果, 其中电子速度  $v = 0.5$  nm/fs

Fig. 4. (a) Transmitted terahertz signals in W(4.0)/CoFeB(2.2) and (b) Pt(4.0)/CoFeB(2.2) with and without annealing. Inset: Enlarged peak values. (c) The annealing temperature dependence of the resistivity of samples. Inset: result of magneto-optic Kerr measurement of the samples. (d) Schematic diagram of the atomization of CoFeB crystallize from amorphous state to crystalline state before and after annealing. (e) The simulation results of electron density at  $z = z_s$ . The electron velocity  $v = 0.5$  nm/fs.

1/20, 而铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 的电阻率约降低为未退火样品的 1/5. 如前文图 2(b),(c),(f),(g) 中所示, 钨 (2.2)/钴铁硼 (2.0) 在退火后, 太赫兹信号获得约 3 倍增强, 铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 获得约 2 倍增强. 两种样品退火前后发射太赫兹信号强度变化与电阻率变化结果趋势一致.

如图 4(d) 所示, 钴铁硼倾向于从非晶态转为结晶态, 因此结晶可能导致由非晶态引起的原子尺度无序状态的减少, 最终导致自旋晶格散射的减少<sup>[30]</sup>. 在我们的实验中退火样品电阻率的显著降低也证实了这种机理, 继而可能导致热电子的平均自由程增加.

根据均匀介质材料中的超扩散模型<sup>[31]</sup>, 第一次散射之前的电子密度为

$$n^{[1]} = n_{\delta}^{[1]} * S, \quad (1)$$

其中  $S$  是外部源,  $*$  表示卷积,  $n_{\delta}^{[1]}$  表示为

$$n_{\delta}^{[1]} = \frac{1}{2v} \frac{1}{t - t_s} \exp\left(-\frac{t - t_s}{\tau}\right) \Theta\left(t - t_s - \left|\frac{z - z_s}{v}\right|\right), \quad (2)$$

其中,  $\tau$  表示电子寿命,  $t$  是时间,  $t_s$  和  $z_s$  是脉冲源的时间和位置,  $v$  是电子速度. 热电子平均自由程的增加将导致较低的散射概率, 从而导致电子寿命增加, 进而造成电子密度的增长. 图 4(e) 是  $z = z_s$  处电子密度的模拟结果. 假设该源是宽度为 100 fs 的高斯脉冲, 其峰值为 0.5 ps. 从图 4(e) 可以清楚地看到, 当电子寿命  $\tau$  从 0.1 ps 增加到 1.0 ps 时, 电子密度也会相应增加. 根据电荷流与颗粒密度之间的关系

$$J_c = evn(z, t), \quad (3)$$

这里假设粒子速度  $v$  恒定, 那么电荷流  $J_c$  将随着电子密度的增大而增大, 继而导致电荷流  $J_c$  辐射的太赫兹波增加, 最终导致更高的太赫兹波发射强度.

对于三层样品钨 (2.0)/钴铁硼 (2.2)/铂 (2.0), 我们测量了退火和未退火样品的太赫兹发射信号, 但是并没有观察到太赫兹发射信号的明显变化. 我们推测在钴铁硼/钨 (铂) 双层结构实验中所使用的退火参数可能并不适用于钨 (2.0)/钴铁硼 (2.2)/铂 (2.0) 三层异质结发射器. 三层结构比双层结构更为复杂, 双层样品中的钴铁硼直接生长在玻璃衬底上, 而三层样品中的钴铁硼生长在两层重金属之间. 我们测量了退火和未退火情况下三层样品的电阻率. 与双层样品电阻率在退火前后的显著变化不

同的是, 三层样品的电阻率在退火前后并没有明显变化, 说明退火后三层样品原子尺度无序并未减小, 相应的自旋晶格散射也未降低. 这一结果与三层样品在退火前后的太赫兹波发射信号没有明显变化也非常符合, 进一步说明了退火导致热电子平均自由程的增加是太赫兹发射信号强度增大的主要原因. 当然, 为了进一步阐明这个问题, 需要对三层样品的退火条件进行系统的研究, 这也是我们下一步研究的方向.

有报道显示, 退火除了可以通过促使钴铁硼结晶从而抑制电子散射外, 还可以显著增强异质界面的质量. Zega 等<sup>[32]</sup> 通过对铁/砷化铝镓异质结进行退火处理, 使异质结中的自旋注入效率提升了 44%, 并且他们使用透射电镜在异质结中观察到了由于退火产生的有序界面, 而有序的晶格结构会提高界面对自旋流的透射率. 因此, 本文中退火也可能导致钴铁硼层和重金属层之间界面质量的提升, 而界面质量的提升进一步增加非平衡态超快自旋流从钴铁硼层注入铂或钨层的效率, 最终提升发射太赫兹信号的强度.

## 4 结 论

本文观察到在飞秒激光脉冲驱动下的钨/钴铁硼和铂/钴铁硼双层体系结构的磁性纳米薄膜中, 太赫兹波的发射强度提高了约 3 倍. 我们将信号的增强现象归结为退火效应引起的晶格失序的减少导致热电子平均自由程的增加, 以上结论通过太赫兹波时域透射谱测量、四探针法电阻率测量和超扩散模型的验证.

通过这些实验观察和定性分析扩展了退火效应的应用范围, 以寻求最佳自旋电子太赫兹波源. 此项研究不仅有助于进一步深入了解飞秒自旋动力学的基本物理原理, 而且还为高效太赫兹源的制备提供了优化策略.

## 参考文献

- [1] Zhang X C, Shkurinov A, Zhang Y 2017 *Nat. Photonics* **11** 16
- [2] Wu X J, Ma J L, Zhang B L, Chai S S, Li Y T 2017 *Opt. Express* **26** 7107
- [3] Hafez H A, Chai X, Ibrahim A, Mondal S, Férachou D, Ropagnol X, Ozaki T 2016 *J. Opt.* **18** 093004
- [4] Wu X, Quan B, Xu X, Hu F, Li W 2013 *Appl. Surf. Sci.* **285** 853
- [5] Wu X, Xu X, Lu X, Wang L 2013 *Appl. Surf. Sci.* **279** 92

- [6] Zhang S N, Zhu W H, Li J G, Jin Z M, Dai Y, Zhang Z Z 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 197202 (in Chinese) [张顺浓, 朱伟骅, 李炬赓, 金钻明, 戴晔, 张宗芝 2018 *物理学报* **67** 197202]
- [7] Kampfrath T, Battiato M, Maldonado P, Eilers G, Nötzold J, Mährlein S, Zbarsky V, Freimuth F, Mokrousov Y, Blügel S 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 256
- [8] Seifert T, Jaiswal S, Martens U, Hamnegeer J, Braum L, Maldonado P, Freimuth F, Kronenberg A, Henrizi J, Radu I 2016 *Nat. Photonics* **10** 483
- [9] Huisman T J, Mikhaylovskiy R V, Costa J D, Freimuth F, Paz E, Ventura J, Freitas P P, Blügel S, Mokrousov Y, Rasing T 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 455
- [10] Wu Y, Elyasi M, Qiu X, Chen M, Liu Y, Ke L, Yang H 2017 *Adv. Mater.* **29** 1603031
- [11] Sasaki Y, Suzuki K, Mizukami S 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 102401
- [12] Feng Z, Yu R, Zhou Y, Lu H, Tan W, Deng H, Liu Q C, Zhai Z H, Zhu L G, Cai J W, Miao B F, Ding H F 2018 *Adv. Opt. Mater.* **6** 1800965
- [13] Qiu H S, Kato K, Hirota K, Sarukura N, Yoshimura M, Nakajima M 2018 *Opt. Express* **26** 15247
- [14] Zhou C, Liu Y P, Wang Z, Ma S J, Jia M W, Wu R Q, Zhou L, Zhang W, Liu M K, Wu Y Z, Qi J 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 086801
- [15] Torosyan G, Keller S, Scheuer L, Beigang R, Papaioannou E T 2018 *Sci. Rep.* **8** 1311
- [16] Zhang S, Jin Z, Zhu Z, Zhu W, Zhang Z, Ma G, Yao J 2017 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51** 034001
- [17] Jungfleisch M B, Zhang Q, Zhang W, Pearson J E, Schaller R D, Wen H, Hoffmann A 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 207207
- [18] Battiato M, Carva K, Oppeneer P 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 27203
- [19] Kong D Y, Wu X J, Wang B, Nie T X, Xiao M, Pandey C, Gao Y, Wen L G, Zhao W S, Ruan C J, Miao J G, Li Y T, Wang L 2019 *Adv. Opt. Mater.* **7** 1900487
- [20] Chen X H, Wu X J, Shan S Y, Guo F W, Kong D Y, Wang C, Nie T X, Pandey C, Wen L G, Zhao W S, Ruan C J, Miao J G, Li Y T, Wang L 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 221104
- [21] Wang B, Shan S S, Wu X J, Wang C, Pandey C, Nie T X, Zhao W S, Li Y T, Miao J G, and Wang L 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 121104
- [22] Yuasa S, Suzuki Y, Katayama T, Ando K 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 242503
- [23] Wu Q, Zhang X C 1995 *Appl. Phys. Lett.* **67** 3523
- [24] Sinova J, Valenzuela S O, Wunderlich J, Back C, Jungwirth T 2015 *Rev. Mod. Phys.* **87** 1213
- [25] Belmuguenai M, Aitoukaci K, Zighem F, Gabor M, Petrisor J T, Mos R, Tiusan C 2018 *J. Appl. Phys.* **123** 113905
- [26] Swamy G V, Pandey H, Srivastava A, Dalai M, Maurya K, Rashmi, Rakshit R 2013 *AIP Advances* **3** 072129
- [27] Huang S X, Chen T Y, Chien C L 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 242509
- [28] Hao Q, Chen W, Xiao G 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 182403
- [29] Guo F W, Pandey C, Wang C, Nie T X, Wen L G, Zhao W S, Miao J G, Wang L, Wu X J 2020 *OSA Continuum*. **3** 893
- [30] Bonetti S, Hoffmann M, Sher M J, Chen Z, Yang S H, Samant M, Parkin S, Dürr H 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 087205
- [31] Battiato M, Carva K, Oppeneer P M 2012 *Phys. Rev. B* **86** 022404
- [32] Zega T J, Hanbicki A T, Erwin S C, Zutic I U, Kioseoglou G, Li C H, Jonker B T, Stroud R M 2006 *Microsc. Microanal.* **12** 972

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

# Annealing effect on terahertz emission enhancement from ferromagnetic heterostructures\*

Gao Yang<sup>1)</sup> Chandan Pandey<sup>2)</sup> Kong De-Yin<sup>1)</sup> Wang Chun<sup>3)4)</sup>  
 Nie Tian-Xiao<sup>2)5)†</sup> Zhao Wei-Sheng<sup>2)5)</sup> Miao Jun-Gang<sup>1)</sup>  
 Wang Li<sup>3)</sup> Wu Xiao-Jun<sup>1)‡</sup>

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

2) (*Beijing Advanced Innovation Center for Big Data and Brain Computing, School of Microelectronics, Beihang University, Beijing 100191, China*)

3) (*Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

4) (*School of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

5) (*Beihang-Goertek Joint Microelectronics Institute, Qingdao Research Institute, Beihang University, Qingdao 266000, China*)

( Received 10 April 2020; revised manuscript received 6 May 2020 )

## Abstract

We systematically investigate the influence of annealing effect on terahertz (THz) generation from CoFeB/heavy metal heterostructures driven by femtosecond laser pulses. The THz yield is achieved to increase triply in W/CoFeB through annealing effect, and doubly in Pt/CoFeB. The annealing effect originates from both the decrease of synthetic effect of THz absorption and the increase of hot electron mean free path induced by crystallization, with the latter being dominant, which is experimentally corroborated by THz transmission measurement of time-domain spectrum and four-probe resistivity  $t$ . Our observations not only deepen understand the spintronic THz radiation mechanism but also provide a novel platform for high speed spintronic opto-electronic devices.

**Keywords:** terahertz emission, ferromagnetic/heavy metal heterostructure, annealing effect, super-diffusion model

**PACS:** 07.57.Hm, 42.65.Re, 85.75.-d, 78.47.J-

**DOI:** 10.7498/aps.69.20200526

\* Project supported by Beijing Natural Science Foundation (Grant No. 4194083), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61905007, 61774013, 11827807, 61731001), and the National Key R&D Program of China (Grant No. 2019YFB2203102).

† Corresponding author. E-mail: [nietianxiao@buaa.edu.cn](mailto:nietianxiao@buaa.edu.cn)

‡ Corresponding author. E-mail: [xiaojunwu@buaa.edu.cn](mailto:xiaojunwu@buaa.edu.cn)