

$Y_3Fe_5O_{12}$ (YIG)/Pt异质结构中基于超快自旋塞贝克效应产生太赫兹相干辐射研究

宋邦菊 金钻明 郭晨阳 阮舜逸 李炬康 万蔡华 韩秀峰 马国宏 姚建铨

Terahertz emission from $Y_3Fe_5O_{12}$ (YIG)/Pt heterostructures via ultrafast spin Seebeck effect

Song Bang-Ju Jin Zuan-Ming Guo Chen-Yang Ruan Shun-Yi Li Ju-Geng Wan Cai-Hua Han Xiu-Feng Ma Guo-Hong Yao Jian-Quan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 208704 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200733

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200733>

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>

非线性克尔效应对飞秒激光偏振的超快调制

Ultrafast polarization modulation of laser pulses at terahertz frequencies via optical Kerr effect

物理学报. 2018, 67(23): 237801 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181450>

掺铌SrTiO₃中的逆自旋霍尔效应

Inverse spin Hall effect in Nb doped SrTiO₃

物理学报. 2019, 68(10): 106101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190118>

三重简并拓扑半金属磷化钼的时间分辨超快动力学

Time-resolved ultrafast dynamics in triple degenerate topological semimetal molybdenum phosphide

物理学报. 2020, 69(7): 077801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191816>

超构材料中的光学量子自旋霍尔效应

Quantum spin Hall effect in metamaterials

物理学报. 2017, 66(22): 227803 <https://doi.org/10.7498/aps.66.227803>

基于合金介电常数的可控特性增强光子自旋霍尔效应

Enhanced photonic spin Hall effect due to controllable permittivity of alloy film

物理学报. 2018, 67(6): 064201 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20171824>

专题：太赫兹自旋光电子

$Y_3Fe_5O_{12}$ (YIG)/Pt 异质结构中基于超快自旋塞贝克效应产生太赫兹相干辐射研究*

宋邦菊¹⁾ 金钻明^{1)2)5)†} 郭晨阳³⁾ 阮舜逸¹⁾ 李炬赓¹⁾
万蔡华^{3)‡} 韩秀峰³⁾ 马国宏^{1)4)††} 姚建铨⁶⁾

1) (上海大学物理系, 上海 200444)

2) (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)

3) (中国科学院物理研究所, 北京 100190)

4) (上海科技大学-上海光机所超强超快联合实验室, 上海 201210)

5) (同济大学上海智能科学与技术研究院, 上海 200092)

6) (天津大学精密仪器与光电子工程学院, 天津 300110)

(2020年5月15日收到; 2020年6月11日收到修改稿)

铁磁/非磁异质结构中的超快自旋流-电荷流转换实现相干太赫兹辐射得到了广泛研究. 热自旋电子学结合了热输运与磁输运, 可以有效地产生和探测自旋的非平衡输运. 本文利用飞秒激光脉冲激发铁磁绝缘体钇铁石榴石 ($Y_3Fe_5O_{12}$, YIG)/Pt 异质结构, 通过超快自旋塞贝克效应 (SSE) 产生太赫兹 (THz) 相干辐射. 实验中, THz 脉冲的相位随外加磁场和激光入射样品顺序的反转而反转, 表明 THz 辐射与界面温度梯度的方向密切相关. 为了考察界面对 THz 辐射性能的影响, 系统地研究了 YIG/Pt 异质结构不同退火处理后的 THz 辐射情况. 实验发现, 生长在 $Gd_3Ga_5O_{12}$ (GGG) 衬底上的 YIG/Pt 经退火处理后再原生一层 Pt 膜, 其 THz 辐射强度提高了一个数量级. 归因于退火后增强了 YIG/Pt 界面的自旋混合电导率. 此外, 还研究了生长在高阻 Si 衬底上退火后优化结构的能量密度与 THz 辐射强度的关系, 拟合得到饱和能量密度约为 1.4 mJ/cm^2 . 实验结果表明, YIG/Pt 异质结构的界面调控能够优化 THz 辐射特性, 为基于超快 SSE 自旋电子学太赫兹发射器开辟了新的途径.

关键词: 太赫兹辐射, 超快光谱, 自旋塞贝克效应, 逆自旋霍尔效应**PACS:** 87.50.U, 78.47.D-, 75.47.-m, 71.70.Ej**DOI:** 10.7498/aps.69.20200733

1 引言

自旋电子学的研究和发展引发了电子信息技术的一场新的革命, 特别是在信息储存方面具有潜

在的应用价值. 与利用电子的电荷属性不同, 自旋电子学研究利用电子自旋作为信息载体, 通过调控自旋角动量实现信息的存储、处理和量子计算等. 自旋流的产生、调控及其探测在自旋电子学领域受到研究人员的广泛关注^[1-3]. 目前, 大多数的实验

* 国家自然科学基金 (批准号: 61975110, 11674213, 61735010, 11604202)、上海市青年科技启明星计划 (批准号: 18QA1401700)、上海市教育委员会和上海市教育发展基金会“晨光计划” (批准号: 16CG45) 和上海高校青年东方学者计划 (批准号: QD2015020) 资助的课题.

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

‡ 通信作者. E-mail: wancaihua@iphy.ac.cn

†† 通信作者. E-mail: ghma@staff.shu.edu.cn

中利用自旋霍尔效应 (SHE) 和逆自旋霍尔效应 (ISHE) 来产生和检测自旋流, 同时实现自旋流和电荷流之间的相互转换^[4-7]. 2013 年, 在铁磁 (FM) 和非磁性 (NM) 薄膜组成的超薄磁性金属多层膜结构中, Kampfrath 等^[8,9] 利用 ISHE 效应将 FM 层中光激发的自旋流转换为 NM 层中的瞬态横向电荷流, 从而辐射太赫兹 (THz) 脉冲. FM 层中自旋流的超快产生主要是基于超快激光脉冲诱导的多数自旋电子的迁移率高于少数自旋电子的迁移率所导致的^[10-13]. 随着研究的深入开展, 对异质结构中的重金属 NM 层的研究已经拓展到拓扑绝缘体^[14]、二维半导体^[15] 及反铁磁体^[16] 结构中. 经过厚度、材料与结构的系统优化, FM/NM 异质结构被认为是一种具有应用潜力的新型宽带太赫兹辐射源.

除了自旋流和电荷流的转换研究之外, 热流与自旋流的相互耦合也备受关注. 现阶段的研究主要集中在观测和理解自旋相关的热电效应——自旋塞贝克效应 (SSE), 即通过温差产生自旋流. SSE 效应是一种产生和检测自旋流的新机制^[17-19], 成为自旋电子学发展中值得关注的新方向——自旋卡诺电子学^[20,21]. 2013 年 Kikkawa 等^[19] 证明了在温度梯度下, FM 薄膜会向临近的 NM 金属层注入自旋流, 首次在几个毫米的尺度范围内观测到 SSE 信号, 并区别于反常能斯特效应. 近年来, 在铁磁金属 Co_2MnSi ^[20]、稀磁半导体 $(\text{Ga}, \text{Mn})\text{As}$ ^[21]、铁磁绝缘体 $\text{LaY}_2\text{Fe}_3\text{O}_{12}$ ^[22] 和 $(\text{Mn}, \text{Zn})\text{Fe}_2\text{O}_4$ ^[23] 等材料中都观察到了自旋相关的热电效应. 其中, 研究最为广泛的是铁磁绝缘体钇铁石榴石 ($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$, YIG). YIG 具有磁共振阻尼系数低 ($\alpha \approx 0.00070 \pm 0.00004$)、磁振子衰变长度长 (0.86 mm) 等优异的特性^[24], 是微波器件和磁光器件应用中重要的绝缘磁性材料. 高质量的 YIG 薄膜已广泛应用于自旋抽运效应^[25]、自旋塞贝克效应^[20] 和自旋霍尔电阻^[26] 的研究中. YIG 作为一种带隙为 2.85 eV 的绝缘体^[27], 与铁磁体将自旋极化的电子电流直接注入相邻的非磁性金属 Pt 层不同. 在 YIG/Pt 异质结构中, 自旋抽运是通过 Pt 层中的传导电子与 YIG 薄膜中的局域电子的交换相互作用实现的^[28]. Jungfleisch 等^[28] 研究了 YIG/Pt 异质结构中的有效阻尼系数, 以及 ISHE 电压与 YIG 层厚度的依赖关系. Geprags 等^[29] 利用 X 射线磁圆二向色性技术研究了 YIG/Pt 异质结构中存在感应磁矩. 2018 年, Seifert 等^[30] 使用飞秒光激发了 YIG(3 μm)/

Pt(5.5 nm) 结构, 利用发射光谱的传递函数, 通过重构 THz 电光取样信号清晰地展现出基于超快 SSE 效应的皮秒时间尺度上自旋流形成的基本物理过程. 尽管作者验证了超快时间尺度上的 SSE 效应, 然而研究中使用的 YIG 块体材料的厚度为 5 μm . 目前还没有实验研究表明飞秒激光是否能够在纳米尺度的 YIG/Pt 异质结构中通过超快 SSE 效应有效地产生 THz 辐射. 这对 THz 辐射器件的小型化和集成化将起到关键作用. 值得注意的是, 通过对 YIG 和 Pt 界面的优化提高基于超快 SSE 效应产生 THz 辐射的效率仍有待研究.

本文中, 我们在钆镓石榴石 ($\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$, GGG) 和高阻单晶 Si 片衬底上制备了 YIG/Pt 异质结构薄膜. 实验结果表明, 飞秒激光放大器输出的 120 fs 激光脉冲能在 YIG/Pt 异质结构中通过超快 SSE 效应产生 THz 相干辐射. 此外, 对 YIG/Pt 双层膜高温退火处理后再原位生长一层 Pt 薄膜, 通过优化 YIG/Pt 异质结构的界面, 大幅提高了 THz 辐射的产生效率. 实验结果表明, 生长在 GGG 衬底上的优化结构产生的 THz 辐射强度比优化前提高了一个数量级. 生长在高阻 Si 上的优化结构所产生的 THz 辐射强度是优化前的 2 倍. 实验结果为设计和制造高效的自旋电子学 THz 辐射源提供了一种新的研究思路, 对于超快热自旋电子学和自旋塞贝克效应相关研究具有重要的参考价值.

2 实验

实验中, 在钆镓石榴石 GGG(111) 衬底或高阻 Si(100) (>10000 $\Omega\cdot\text{cm}$) 衬底上制备了 5 种结构的样品. 在 1×10^{-6} Pa 真空溅射系统中沉积了 $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (YIG) 薄膜 (使用的射频电源 RF 为 100 W)、Pt 薄膜 (使用的直流电源 DC 为 100 W) 和 YIG/Pt 双层膜. 沉积后, 进行了高温氧气氛围退火处理, 进一步提高结晶质量. 本文制备的样品详细描述为: 结构①, 直接在 GGG 衬底上沉积 Pt 单层膜, 表示为 GGG//Pt(10 nm)(记为 GGG//Pt(10)); 结构②, 在 GGG 衬底上沉积双层膜, 表示为 GGG//YIG(60)/Pt(10), 不进行退火处理; 结构③, 在 GGG 或高阻 Si 衬底上先沉积 40 nm 的 YIG 单层膜, 在 800 $^\circ\text{C}$ 高温氧气氛围退火处理 1 h 后, 再生长一层 3 nm 的 Pt 膜, 表示为 GGG 或 Si//YIG(40)/Pt(3), 本文中样品结构中标记下划线的部分表示该层进行了高温退火处理; 结构④, 在 GGG 或

Si 衬底上先沉积 YIG(40)/Pt(3) 双层膜, 随后进行与结构③相同的高温退火处理, 样品表示为 GGG 或 Si//YIG(40)/Pt(3); 结构⑤, 在结构④的基础上再原位生长厚度为 3 nm 的 Pt 薄膜, 样品表示为 GGG 或 Si//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3). 其中

Pt^{1st} 表示第一层 Pt 薄膜, YIG 薄膜与 Pt^{1st} 薄膜一起进行了高温退火处理. Pt^{2nd} 表示第二层 Pt 薄膜. 5 种样品的结构以及归一化的 THz 发射峰值振幅如表 1 所示.

THz 发射实验光路如图 1(a) 所示. 使用钛宝

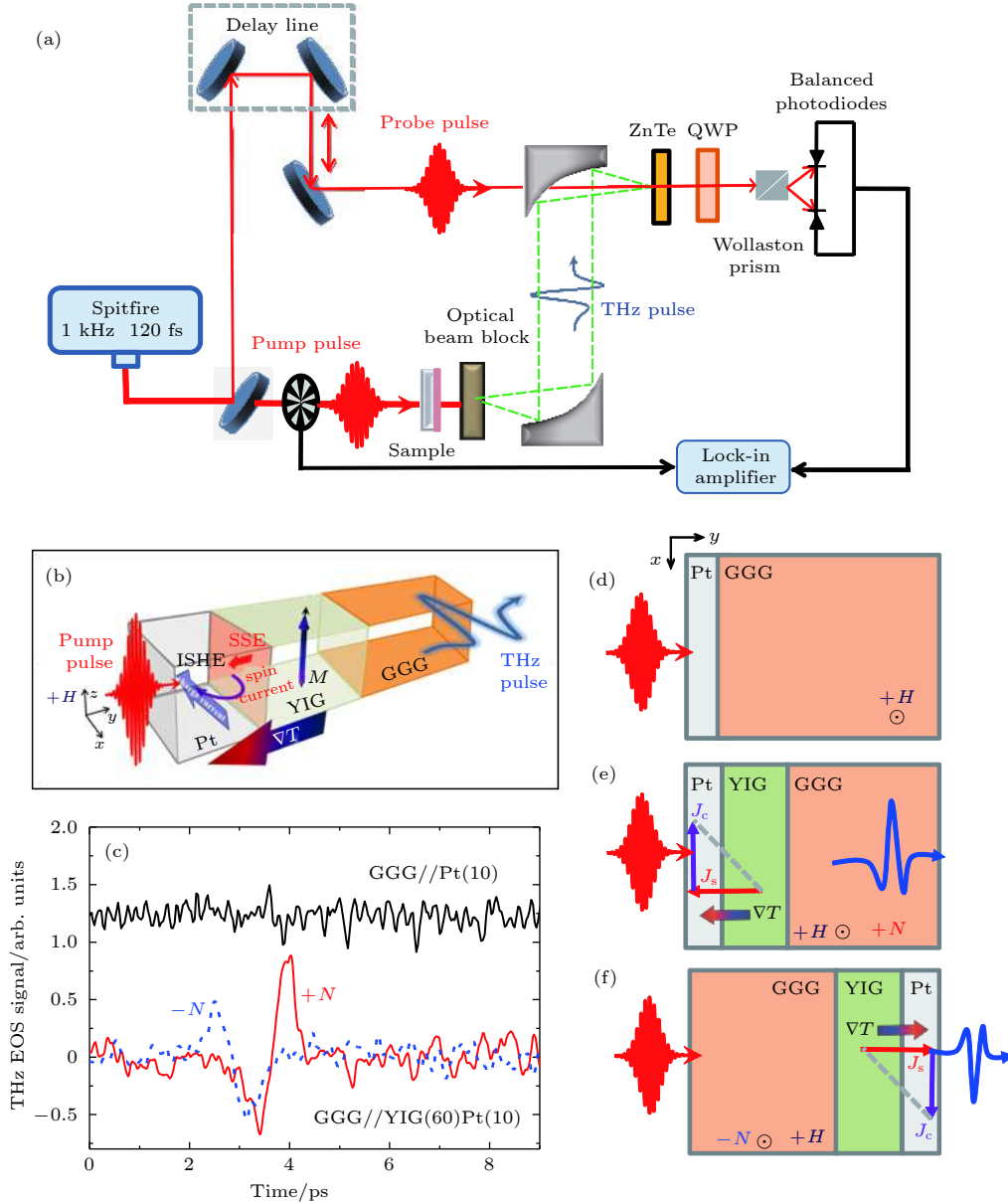


图 1 (a) THz 发射光谱实验装置图; (b) 在 YIG/Pt 双层膜结构中, 沿 z 轴方向外加面内磁场 $H = \pm 200$ mT, 飞秒激光诱导铁磁绝缘体和非磁性金属界面产生瞬态温度梯度 ∇T (沿着 $-y$ 轴; 红色表示高温, 蓝色表示低温), 超快 SSE 产生一个从 YIG 进入 Pt 层的自旋流 (沿着 $-y$ 轴), 基于 ISHE, 在 $-x$ 轴方向上产生瞬态电荷流; (c) 样品 GGG//Pt(10) 和 GGG//YIG(60)/Pt(10) 双层膜的 THz 辐射信号, $+N$ 和 $-N$ 分别表示激光脉冲从 Pt 膜一侧和 GGG 衬底一侧辐照样品; (d), (e), (f) 分别表示 (c) 中 GGG//Pt(10) 和 GGG//YIG(60)/Pt(10) 的 3 种激发构置下的 THz 辐射原理图

Fig. 1. (a) Schematic of experimental setup for THz generation; (b) schematic of the YIG/Pt bilayer sample placed in the static in-plane magnetic field of ± 200 mT. A femtosecond laser pulse excites the YIG/Pt bilayer, a temperature gradient ∇T is created at the interface of ferromagnetic insulator YIG and nonmagnetic metal Pt, launching a spin current (along the $-y$ direction; the red part means the high temperature side and the blue part describes the low temperature side) from YIG layer into the Pt layer based on the SSE. Within the Pt layer, the spin current is converted into a charge current (along the $-x$ direction) via ISHE; (c) measured electrooptic signal of THz emission from GGG//Pt(10) and GGG//YIG(60)/Pt(10) bilayer. THz emission signals are radiated with front ($+N$, red) and back ($-N$, blue) pumps; (d), (e), (f) the THz emission schematics of the three sample cases in (c).

表 1 5 种不同结构样品的制备过程及其归一化 THz 振幅对比
Table 1. Preparation processes of five different sample structures and their normalized THz amplitudes.

样品序号	样品结构(厚度/nm)	生长步骤	归一化THz振幅(强度/arb. units)
①	GGG//Pt(10)	沉积Pt膜	0
②	GGG//YIG(60)/Pt(10)	沉积YIG膜, 沉积Pt膜	0.076
③	GGG//YIG(40)/Pt(3), Si//YIG(40)/Pt(3)	沉积YIG膜, YIG膜退火, 沉积Pt膜	0.075, 0.045
④	GGG//YIG(40)/Pt(3), Si//YIG(40)/Pt(3)	沉积YIG膜, 沉积Pt膜, YIG/Pt双层膜退火	0, 0
⑤	GGG//YIG(40)/Pt ^{1st} (3)/Pt ^{2nd} (3), Si//YIG(40)/Pt ^{1st} (3)/Pt ^{2nd} (3)	沉积YIG膜, 沉积Pt膜 (1st), YIG/Pt双层膜退火, 沉积Pt膜 (2nd)	1.000, 0.121

石激光放大器系统 (Spitfire Pro), 飞秒激光单脉冲能量为 2 mJ, 中心波长为 800 nm, 重复频率为 1 kHz, 脉冲宽度为 120 fs. 实验光路中飞秒脉冲被 9:1 的分束器分为两路, 一路为激发光 (pump pulse, 90%), 一路为探测光 (probe pulse, 10%). 准直光束垂直入射到样品表面 (脉冲能量为 0.1 mJ) 用以产生超快自旋流. 使用泡沫板过滤激光脉冲, 只让 THz 脉冲通过. 离轴抛物镜将 THz 脉冲和经过延迟线的探测光脉冲 (脉冲能量为 0.05 μ J) 同时汇聚到 1 mm 厚 (110) 取向的 THz 探测电光晶体 ZnTe 上. 通过自由空间电光取样 (EOS) 记录下 THz 相干辐射信号. 实验中, 使用平衡差分探测器, 通过记录 THz 电场所诱导探测光时间分辨的椭圆率信号来反映 THz 辐射信号场强的大小. 如图 1(b) 所示, 沿 z 轴施加约 200 mT 的外加磁场, YIG 样品为面内磁化. 该外加磁场强度足够强, 能够使 YIG 的磁化强度达到饱和. 所有实验都在室温及干燥氮气氛围中进行.

除了铁磁共振, 也可以利用 SSE 效应实现自旋抽运. 与电流的产生过程不同, 自旋角动量转移不仅受传导电荷流的驱动, 也受系统间施加的转矩的驱动. SSE 通常发生在铁磁绝缘体 (FMI) 和 NM 的界面. 当飞秒激光脉冲激发 YIG/Pt 异质结构时, 首先会瞬态热化金属 Pt 层. 因此, 引起 YIG/Pt 界面产生一个瞬态的温度梯度 $\nabla T = T^{\text{NM}} - T^{\text{FMI}}$, 在 FMI 和 NM 界面诱导瞬态自旋流 \mathbf{J}_s , 表示为

$$\mathbf{J}_s = \mathcal{K} \cdot (T^{\text{NM}} - T^{\text{FMI}}), \quad (1)$$

其中 \mathcal{K} 是 SSE 系数^[30]. 与铁磁体中激光诱导基于巡游电子的超快自旋依赖的塞贝克效应不同, 此时由于瞬态温度变化所诱导的自旋流是由铁磁绝缘体 YIG 的磁振子 (magnon) 所承载. 超快 SSE 电流形成的微观过程可以理解为, 飞秒激光激发 Pt 层产生光生载流子倍增效应, 热电子不断冲击铁磁

绝缘体的界面. 通过两次连续的相互作用, 铁磁绝缘体对电子冲击所施加的随机转矩进行整流, 从而在界面产生从 YIG 进入 Pt 层的净自旋流^[30]. 之前的报道表明, 在 YIG/Pt 结构中, $\mathcal{K} \propto \frac{g_r \gamma \hbar}{2\pi \mathbf{M}_s V_a} k_B$, 其中 g_r 为自旋混合电导率, γ 为旋磁比, \hbar 为狄拉克常量, \mathbf{M}_s 为饱和磁化强度, V_a 是磁相干体积, k_B 是玻耳兹曼常数^[31]. 可以看出, 不同样品的 SSE 系数存在很大差异, 且非常敏感于异质结构的界面特性^[32]. 当自旋流注入非磁性 Pt 层后, 由于 Pt 的强自旋轨道耦合导致电子产生自旋依赖的偏转, 即 ISHE 效应. 如图 1(b) 所示, 通过 ISHE, 超快 SSE 诱导的自旋流转换成横向电荷流, 从而产生 THz 相干辐射^[8,9,33]. 通过对界面的优化, 我们预期能进一步优化 THz 辐射特性.

3 结果与讨论

在进行 YIG/Pt 界面优化之前, 首先比较了在 GGG 衬底上直接长 Pt 层和 YIG/Pt 双层异质结构在飞秒激光辐照下的 THz 发射信号. 图 1(c) 为室温干燥氮气氛围下, GGG//Pt(10) 和 GGG//YIG(60)/Pt(10) 结构的 THz 发射电光取样信号 (EOS). 当激光脉冲从 Pt 一侧进入样品, 直接在 GGG 衬底上生长 Pt 层的结构 GGG//Pt(10) 中没有观察到 THz 辐射信号. 然而, 在 60 nm 的铁磁绝缘体 YIG 和非磁性金属 Pt 组成的异质结构 GGG//YIG/Pt 中观察到明显的 THz 辐射 EOS 信号. 此时, 样品的磁化方向与 THz 偏振方向垂直. 当反转样品, 激光脉冲从 GGG 衬底一侧进入样品 (GGG 衬底和 YIG 层对于激光脉冲透明). 飞秒激光脉冲所建立的温度梯度为 Pt 层一侧温度高, YIG 一侧温度低. 在实验室坐标 xy 中, 图 1(e) 所示的温度梯度方向 ($-y$) 与图 1(f) 所示的温度梯度方向 ($+y$)

相反. 因此, 根据 (1) 式得到的自旋流 J_s 方向反号, 分别是 $-y$ 和 $+y$. 基于逆自旋霍尔效应, 从 YIG 层注入到 Pt 层的自旋流 J_s 转换为瞬态的电荷流 J_c , 其方向分别是 $-x$ 和 $+x$. 因此, THz 辐射脉冲的相位发生 180° 反向, 与实验结果符合. 目前的实验结果表明, THz 辐射并非来源于 Pt 金属层本身. 室温下 GGG 为顺磁绝缘体, 并不能通过温度梯度诱导产生自旋流^[34] (如图 1(d) 所示), 因此在 GGG//Pt 中没有观察到 THz 发射信号. 由于 SSE 的关键在于非平衡的热诱导产生自旋波, 当改变温度梯度的方向, 结果将导致 GGG//YIG/Pt 中观察到 THz 辐射极性反转. 实验结果表明, THz 辐射的产生机制来源于 YIG/Pt 界面的超快 SSE.

在空气中对 YIG 薄膜进行高温退火可以使微晶和非晶的 YIG 薄层再结晶^[35], 同时能抑制 YIG 层中氧空位的产生^[36]. 为了提高 YIG/Pt 结

构的 THz 辐射强度, 我们对 YIG/Pt 异质结构进行了 3 种退火处理. 如图 2(a) 所示, 我们比较了不同结构样品所产生的 THz 发射 EOS 信号. 实验使用的入射激光脉冲的能量密度约为 1.4 mJ/cm^2 , 从 Pt 层进入样品结构. 首先, 仅对高阻 Si 和 GGG 衬底上的 YIG 薄膜进行高温退火处理, 然后再生长 3 nm 的 Pt 层, 即 GGG//YIG(40)/Pt(3) 和 Si//YIG(40)/Pt(3). 如图 2(a) 所示, Si//YIG(40)/Pt(3) 和 GGG//YIG(40)/Pt(3) 异质结构都能辐射 THz 信号. 由于 Si 和 GGG 衬底对 THz 辐射吸收程度不同, 生长在 GGG 衬底上的 YIG(40)/Pt(3) 的 THz 辐射信号大于高阻 Si 衬底上的异质结构所辐射的 THz 信号. 与未经退火处理的 YIG/Pt 双层膜相比, 仅对 YIG 层进行退火并不能明显增强该结构的 THz 辐射强度. 已有的文献报道表明, 对在 800°C 退火后的 YIG 层表面溅射 Pt 层, YIG/Pt 结构的 SSE 效应未能得到显著的增强^[35], 这与

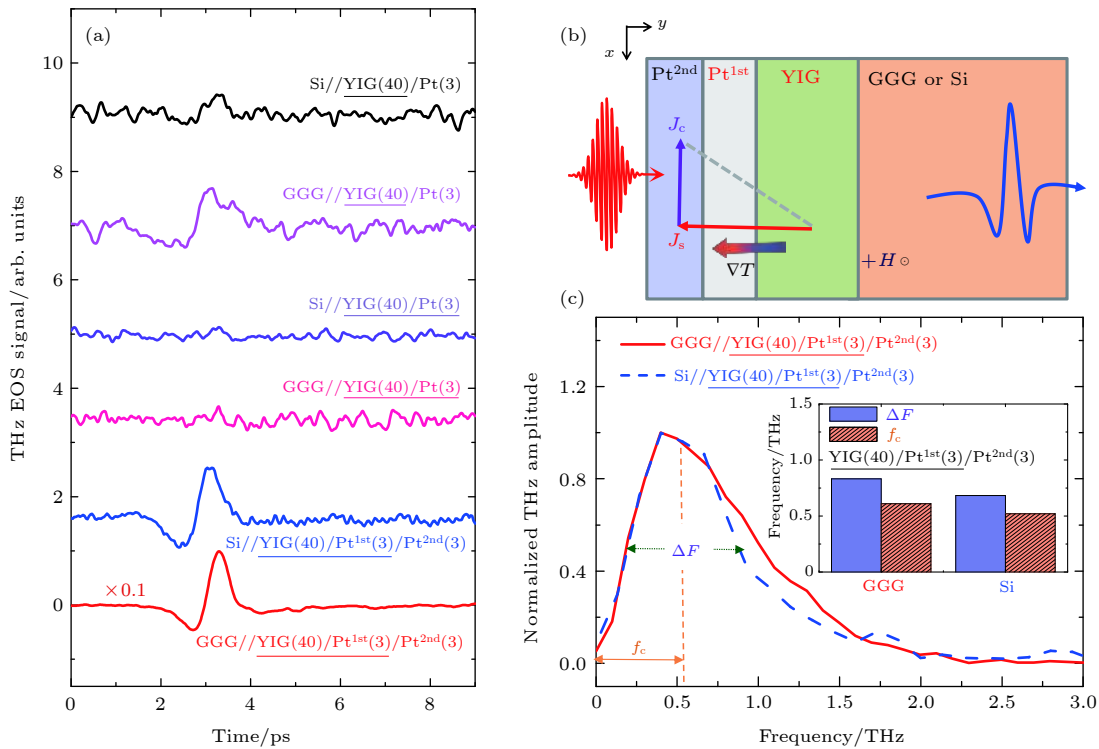


图 2 (a) GGG//YIG(40)/Pt(3), Si//YIG(40)/Pt(3), GGG//YIG(40)/Pt(3), Si//YIG(40)/Pt(3), GGG//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 和 Si//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 不同结构样品所产生的 THz 辐射脉冲; (b) 飞秒激光脉冲激发 YIG/Pt^{1st}/Pt^{2nd} 结构辐射 THz 信号示意图; (c) 将图 (a) 中 GGG//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 和 Si//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 的时域谱线进行傅里叶变换后的归一化频谱图, 插图为 THz 发射光谱的半高全宽 (ΔF) 和中心频率 (f_c)

Fig. 2. (a) THz emitted EOS waveforms of GGG//YIG(40)/Pt(3), Si//YIG(40)/Pt(3), GGG//YIG(40)/Pt(3), Si//YIG(40)/Pt(3), GGG//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) and Si//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) heterostructures (layer thickness in nm); (b) schematic view of THz generation in YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) heterostructures on GGG and Si substrates via SSE; (c) normalized frequency-domain THz signals of GGG//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) and Si//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) heterostructures. Inset: the full width at half maximum (ΔF) and center frequency (f_c) for the normalized THz amplitude spectrum.

目前的 THz 辐射实验结果相一致.

其次,我们将制备的 YIG/Pt 双层膜一同进行高温退火处理.原则上,通过 YIG/Pt 一同退火可以有效地提高自旋混合电导率 g_r , 增大自旋流 J_s 的产生效率,进而使基于 ISHE 转换的电荷流 J_c 得到提升.然而,实验发现无论是 GGG 衬底还是 Si 衬底上的 YIG(40)/Pt(3) 结构都不能有效地产生 THz 辐射信号,如图 2(a) 所示.主要原因在于,退火过程中的热应力不均导致了 YIG/Pt 异质结构一同退火后, Pt 层表面出现明显的裂纹,形成不连续的岛状结构.样品表面出现的裂纹极大程度阻碍电荷流的流动,从而严重抑制 THz 相干辐射的产生 [37,38].

最后,我们对高温退火后的 YIG/Pt 异质结构表面再生长一层 3 nm 的 Pt 层,即 GGG//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 和 Si//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3), 如图 2(b) 所示.在相同的实验条件下,相比于未经过退火处理的 YIG/Pt 异质结构,这两个样品所产生的 THz 辐射信号都得到了显著的加强,如图 2(a) 所示.与图 1(c) 中 GGG 衬底上生长的 YIG/Pt 相比,GGG//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 结构的 THz 辐射强度提高了一个数量级.此时的辐射强度约为 0.5 mm 厚的 ZnTe 晶体在相同实验条件下 THz 辐射强度的 2%. Si//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 的 THz 辐射强度比退火前增加了 1 倍左右.不同结构样品的归一化 THz 振幅对比见表 1.值得注意的是,之前的文献已经报道 Fe/Pt 异质结 THz 辐射源 [39] 中 Pt 层厚度的优化值为 3 nm.因此, YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 结构中 THz 辐射强度的增强不是由于 Pt 厚度的增加所导致的.我们认为 THz 辐射增强的主要原因是,在界面已经优化的 YIG(40)/Pt(3) 样品表面再溅射 3 nm 的 Pt,能有效弥补 Pt 层表面的裂纹,使得电荷流能有效转换成相干 THz 辐射脉冲,如图 2(b) 所示.图 2(c) 为 GGG//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 和 Si//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 结构的 THz 辐射时域信号经过傅里叶变换得到的归一化振幅谱,其频谱宽度覆盖 0.1—2.5 THz. THz 脉冲振幅谱线的半高全宽分别为 0.83 和 0.68 THz,中心频率分别为 0.61 和 0.52 THz,如图 2(c) 插图所示.

我们进一步研究了 GGG//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 异质结构所产生 THz 信号与外加磁场和激发装置的关系.如图 3(a) 所示,THz 发射信号的

相位随着 YIG 面内磁化方向 M 的反号发生 180° 相移,此时 THz 辐射信号的振幅不发生变化.为了进一步验证温度梯度是诱导超快自旋流从而产生 THz 发射信号的起源,我们改变了抽运光的入射方向.图 3(b) 表示飞秒激光分别从样品的 Pt^{2nd} 层一侧和 GGG 衬底一侧入射样品所产生 THz 辐射的时域波形.实验结果表明,当反转样品,在实验室坐标内温度梯度 ∇T 的符号反向,因此自旋流的方向反转了 180°,基于 ISHE 最终得到的 THz 脉冲极性反转.值得注意的是,反转样品过程中,THz 辐射脉冲在时域上的延迟是由于 800 nm 的飞秒激

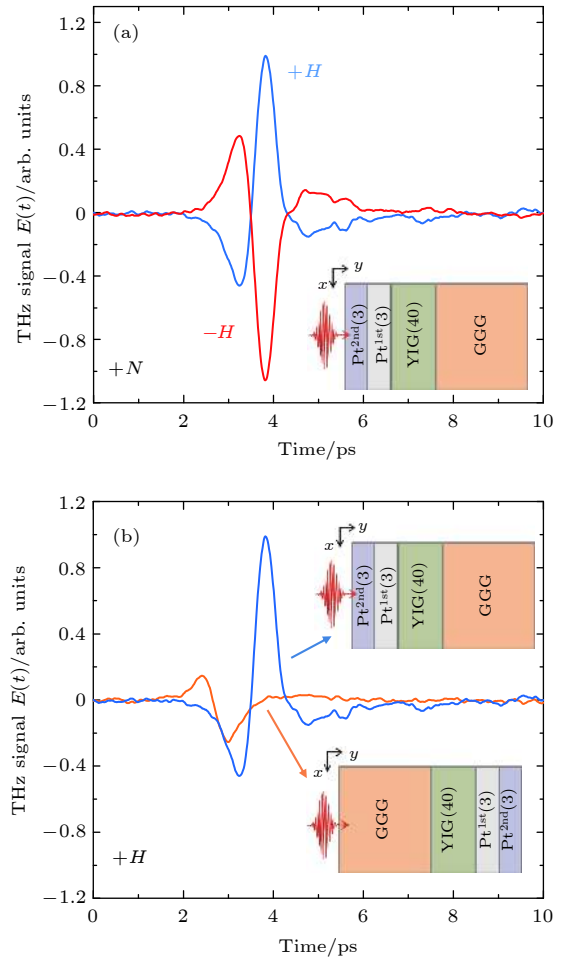


图 3 (a) 外加磁场 $+H$ (蓝线) 和 $-H$ (红线) 时, GGG//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 结构辐射的 THz 脉冲; (b) GGG//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 结构在不同激光激发装置下产生的 THz 脉冲,此时外加磁场固定为 $+H$, 插图: 飞秒脉冲激发样品的方向

Fig. 3. (a) THz signals emitted from the GGG//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) bilayers applied with $+H$ (blue line) and $-H$ (red line); (b) THz emission signals with front- (blue line) and back- (orange line) pumps with $+H$. Insets: Schematic view of the laser pulse exciting the sample from the different sides.

光与 THz 波在 GGG 衬底中的群速度失配所导致的。

图 4 给出了 Si//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 结构 THz 辐射峰峰值与抽运光能量密度的依赖关系。实验中固定外加磁场为 +200 mT, 入射激光脉冲从 Pt^{2nd} 层一侧入射。结果表明, THz 辐射强度随激光能量密度的增大而增大, 直至饱和。通过饱和公式 $E_{\text{THz}}(F_p) = A \times F_p / (F_p + F_{\text{sat}})$, 其中 A 为表征 THz 辐射的系数, F_p 为激光脉冲的能量密度, F_{sat} 为饱和能量密度^[40]。图 4 中对实验数据进行了较好的拟合。拟合结果得到该结构的饱和能量密度约为 (1.369 ± 0.047) mJ/cm²。饱和能量密度可以定性描述自旋流在 YIG 和 Pt 层界面的自旋积累效应^[41]。在高的抽运光能量密度下, 由于自旋积累效应限制了界面处 Pt 层中二次整流形成自旋极化电子的效率, 从而导致了 THz 辐射强度随抽运光能量密度的增加逐渐趋于饱和。目前的实验研究表明, 优化后的 YIG/Pt^{1st}/Pt^{2nd} 异质结构的 THz 辐射机理起源于超快塞贝克效应。且该结构的 THz 辐射强度均大于在同等实验条件下未经退火处理的 YIG/Pt 双层膜产生的 THz 辐射。

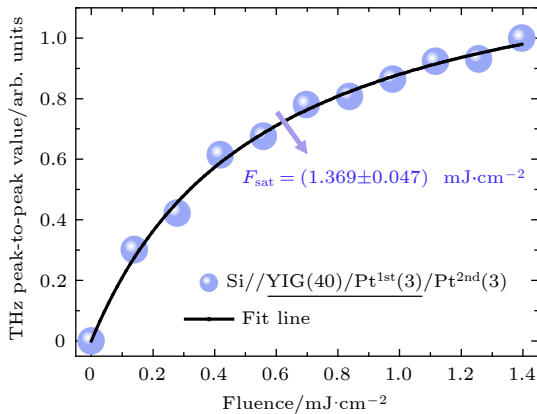


图 4 Si//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 异质结构所产生的 THz 脉冲峰峰值与入射光能量密度的依赖关系。图中紫色圆圈为实验数据点, 黑色曲线为拟合结果

Fig. 4. Peak-to-peak values of THz radiation from Si//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) as a function of incident pump fluence. Purple circles: experimental data; black curve: fit line.

4 结 论

本文首先利用 THz 发射光谱技术研究 YIG/Pt 双层异质结构的超快自旋动力学过程, 验证了其 THz 辐射主要来源于超快自旋塞贝克效应。其次, 通过对 GGG 和高阻 Si 两种衬底材料上制备的 YIG/

Pt 结构进行退火后再原位生长一层 Pt 薄膜, 实现对 YIG/Pt 结构界面的调控, 增强了 THz 辐射的强度。优化后的 YIG/Pt 结构产生的 THz 辐射的频谱范围覆盖了 0.1—2.5 THz, 基本符合桌面式 THz 时域光谱的应用需求。最后, 通过 THz 辐射的饱和能量密度的测量, 定性地分析了 YIG 层和 Pt 层界面的自旋积累效应。目前的实验结果表明, 纳米尺度 YIG/Pt 异质结构的界面调控能够优化 THz 辐射特性, 有望成为一种基于超快自旋塞贝克效应的宽带相干 THz 脉冲辐射源。本工作也为设计和制造基于 SSE 的磁振子-电荷流高效转换器提供了参考。

参考文献

- [1] Saitoh E, Ueda M, Miyajima H, Tataru G 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 182509
- [2] Mosendz O, Pearson J E, Fradin F Y, Bauer G E W, Bader S D, Hoffmann A 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 046601
- [3] Demidov V E, Urazhdin S, Ulrichs H, et al. 2012 *Nat. Mater.* **11** 1028
- [4] Hirsh J E 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 1834
- [5] Sinova J, Valenzuela S O, Wunderlich J, Back C H, Jungwirth T 2015 *Rev. Mod. Phys.* **87** 1213
- [6] Maekawa S, Adachi H, Uchida A, Ieda K, Saitoh J E 2013 *J. Phys. Soc. Jpn.* **82** 102002
- [7] Han F B, Zhang W X, Peng B, Zhang W L 2015 *Acta Phys. Sin.* **24** 247202 (in Chinese) [韩方彬, 张文旭, 彭斌, 张万里 2015 物理学报 **24** 247202]
- [8] Kampfrath T, Battiato M, Maldonado P, et al. 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 256
- [9] Seifert T, Jaiswal S, Martens U, et al. 2016 *Nat. Photon.* **10** 483
- [10] Battiato M, Carva K, Oppeneer P M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 027203
- [11] Eschenlohr A, Battiato M, Maldonado P, et al. 2013 *Nat. Mater.* **12** 332
- [12] Melnikov A, Razdolski I, Wehling T O, et al. 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 076601
- [13] Rudolf D, Chan L O, Battiato M, et al. 2012 *Nature Commun.* **3** 1037
- [14] Wang X, Cheng L, Zhu D, et al. 2018 *Adv. Opt. Mater.* **30** 1802356
- [15] Cheng L, Wang X B, Yang W F, et al. 2019 *Nat. Phys.* **15** 347
- [16] Zhou X, Song B, Chen X, et al. 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 182402
- [17] Bauer G E W, Saitoh E, van Wees B J 2012 *Nat. Mater.* **11** 391
- [18] Wolf S A, Awschalom D D, Buhrman R A, et al. 2001 *Science* **294** 1488
- [19] Kikkawa T, Uchida K, Shiomi Y, et al. 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 067207
- [20] Bosu S, Sakuraba Y, Uchida K, Saito K, Ota T, Saitoh E, Takanashi K 2011 *Phys. Rev. B* **83** 224401
- [21] Jaworski C M, Yang J, Mack S, Awschalom D D, Heremans J P, Myers R C 2010 *Nat. Mater.* **9** 898
- [22] Uchida K, Xiao J, Adachi H, et al. 2010 *Nat. Mater.* **9** 894
- [23] Uchida K, Nonaka T, Ota T, Nakayama H, Saitoh E 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 262504
- [24] Bai H, Zhan X Z, Li G, Su J, Zhu Z Z, Zhang Y, Zhu T, Cai

- J W 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 182401
- [25] Kajiwara Y, Harii K, Takahashi S, et al. 2010 *Nature* **464** 262
- [26] Nakayama H, Althammer M, Chen Y T, et al. 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 206601
- [27] Jia X, Liu K, Xia K, Bauer G E W 2011 *Europhys. Lett.* **96** 17005
- [28] Jungfleisch M B, Chumak A V, Kehlberger A, et al. 2015 *Phys. Rev. B* **91** 134407
- [29] Geprags S, Meyer S, Altmannshofer S, et al. 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 262407
- [30] Seifert T S, Jaiswal S, Barker J, et al. 2018 *Nat. Commun.* **9** 2899
- [31] Xiao J, Bauer G E W, Uchida K C, Saitoh E, Maekawa S 2010 *Phys. Rev. B* **81** 214418
- [32] Lu W T, Zhao Y W, Battiato M, Wu Y Z, Yuan Z 2020 *Phys. Rev. B* **101** 014435
- [33] Zhang S N, Zhu W H, Li J G, Jin Z M, Dai Y, Zhang Z Z, Ma G H, Yao J Q 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, 马国宏, 姚建铨 2018 *物理学报* **67** 197202]
- [34] Wu S M, Pearson J E, Bhattacharya A 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 186602
- [35] Saiga Y, Mizunuma K, Kono Y, Ryu J C, Ono H, Kohda M, Okuno E 2014 *Appl. Phys. Express* **7** 093001
- [36] Jacob K T, Rajitha G 2012 *Solid State Ionics* **224** 32
- [37] Jin Z, Zhang S, Zhu W, et al. 2019 *Phys. Status Solidi RRL* **13** 1900057
- [38] Song B, Song Y, Zhang S, et al. 2019 *Appl. Phys. Express* **12** 122003
- [39] Torosyan1 G, Keller S, Scheuer L, Beigang R, Papaioannou E T 2018 *Sci. Rep.* **8** 1311
- [40] Barnes M E, Berry S A, Gow P, et al. 2013 *Opt. Express* **21** 16263
- [41] Zhang S, Jin Z, Zhu Z, Zhu W, Zhang Z, Ma G, Yao J 2018 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51** 034001

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

Terahertz emission from $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (YIG)/Pt heterostructures via ultrafast spin Seebeck effect*

Song Bang-Ju¹⁾ Jin Zuan-Ming^{1)2)5)†} Guo Chen-Yang³⁾ Ruan Shun-Yi¹⁾
 Li Ju-Geng¹⁾ Wan Cai-Hua^{3)‡} Han Xiu-Feng³⁾
 Ma Guo-Hong^{1)4)††} Yao Jian-Quan⁶⁾

1) (*Department of Physics, Shanghai University, Shanghai 200444, China*)

2) (*Terahertz Technology Innovation Research Institute, Shanghai Key Lab of Modern Optical System, 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*)

3) (*Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

4) (*STU & SIOM Joint Laboratory for Superintense Lasers and the Applications, Shanghai 201210, China*)

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

6) (*College of Precision Instrument and Opto-electronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300110, China*)

(Received 15 May 2020; revised manuscript received 11 June 2020)

Abstract

Recently, ferromagnetic/non-magnetic heterostructures have been widely studied for the generation of terahertz (THz) emitter based on spin-to-charge conversion. Actually, thermal spintronics effectively combines thermal transport with magnetism for creating and detecting non-equilibrium spin transport. A spin current or

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61975110, 11674213, 61735010, 11604202), the Shanghai Rising-Star Program of Science and Technology Commission of Shanghai Municipality, China (Grant No. 18QA1401700), the Chen Guang Project of Shanghai Educational Development Foundation, China (Grant No. 16CG45), and the Young Eastern Scholar Project of Shanghai Municipal Education Commission, China (Grant No. QD2015020).

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

‡ Corresponding author. E-mail: wancaihua@iphy.ac.cn

†† Corresponding author. E-mail: ghma@staff.shu.edu.cn

voltage can be induced by a temperature bias applied to a ferromagnetic material, which is called spin Seebeck effect (SSE). In this paper, we present a SSE based THz emission by using the heterostructures made of insulating ferrimagnet yttrium iron garnet ($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$, YIG) and platinum (Pt) with large spin orbit coupling. Upon exciting the Pt layer with a femtosecond laser pulse, a spin Seebeck current arises, applying a temperature gradient to the interface. Based on the inverse spin Hall effect, the spin Seebeck current is converted into a transient charge current and then yields the THz transients, which are detected by electrooptic sampling through using a ZnTe crystal at room temperature. The polarity of the THz pulses is flipped by 180° when the direction of the external magnetic field is reversed. By changing the direction of the pump beam excitation geometry to vary the sign of the temperature gradient at the YIG/Pt interface, the polarity of the THz signal is reversed. Fast Fourier transformation of the THz signals yields the amplitude spectra centered near 0.6 THz with a bandwidth in a range of 0.1–2.5 THz. We systematically investigate the influence of annealing effect on the THz emission from different YIG/Pt heterostructures. It can be found that the THz radiation is achieved to increase ten times in the YIG/Pt grown on a $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ (GGG) substrate through high-temperature annealing. The mechanism of annealing effect can be the increase of the spin mixing conductance of the interface between YIG and Pt. Finally, we investigate the pump fluence dependent THz peak-to-peak values for the annealed YIG/Pt grown on the Si substrate. Due to the spin accumulation effect at the interface of the YIG/Pt heterostructure, the THz radiation intensity gradually becomes saturated with the increase of pump fluence. Our results conclude that annealing optimization is of importance for increasing the THz amplitude, and open a new avenue to the future applications of spintronic THz emitters based on ultrafast SSE.

Keywords: THz radiation, ultrafast spectroscopy, spin Seebeck effect, inversed spin-Hall effect

PACS: 87.50.U, 78.47.D-, 75.47.-m, 71.70.Ej

DOI: [10.7498/aps.69.20200733](https://doi.org/10.7498/aps.69.20200733)