



自旋太赫兹源：性能、调控及其应用

冯正 王大承 孙松 谭为

Spintronic terahertz emitter: Performance, manipulation, and applications

Feng Zheng Wang Da-Cheng Sun Song Tan Wei

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 208705 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200757

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200757>

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>

基于石墨烯的太赫兹波散射可调谐超表面

Graphene based tunable metasurface for terahertz scattering manipulation

物理学报. 2017, 66(20): 204101 <https://doi.org/10.7498/aps.66.204101>

高速太赫兹探测器

Ultrafast terahertz detectors

物理学报. 2018, 67(9): 090702 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180226>

基于石墨烯编码超构材料的太赫兹波束多功能动态调控

Dynamic multifunctional control of terahertz beam based on graphene coding metamaterial

物理学报. 2018, 67(11): 118102 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180125>

基于反射超表面产生太赫兹涡旋波束

Terahertz vortex beam generation based on reflective metasurface

物理学报. 2019, 68(23): 238101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191055>

专题：太赫兹自旋光电子

自旋太赫兹源：性能、调控及其应用*

冯正^{1)2)†} 王大承¹⁾²⁾ 孙松¹⁾²⁾ 谭为^{1)2)‡}

1) (中国工程物理研究院微系统与太赫兹研究中心, 成都 610200)

2) (中国工程物理研究院电子工程研究所, 绵阳 621999)

(2020年5月19日收到; 2020年5月27日收到修改稿)

自旋太赫兹源基于铁磁/非磁纳米薄膜异质结构中的超快自旋流-电荷流转换产生太赫兹脉冲, 具有超宽频谱、固态稳定、偏振可调、超薄结构、成本低廉等独特优点, 近年来引起很大的关注. 本文首先简要介绍太赫兹波、太赫兹自旋电子学及自旋太赫兹源; 其次从自旋太赫兹源的性能提升、调控及其应用3方面对其研究进展进行详细的综述, 分别为: 1) 基于自旋太赫兹源产生太赫兹的3个过程——超快自旋运输、光学激发、太赫兹出射的性能提升方法, 2) 自旋太赫兹源偏振和频谱的主动调控, 3) 自旋太赫兹源在太赫兹超宽谱测试、磁结构检测及成像、太赫兹超分辨近场成像等方面的应用; 最后总结全文, 指出自旋太赫兹源目前存在的问题, 并展望其发展方向.

关键词: 太赫兹, 自旋流, 超快自旋运输, 磁性异质结构

PACS: 87.50.U-, 85.75.-d, 75.78.Jp, 72.25.Rb

DOI: 10.7498/aps.69.20200757

1 引言

太赫兹 (THz) 波是指介于红外光和微波之间的电磁波, 频率范围通常定义为 0.1 THz 至 10.0 THz (1 THz 对应的波长为 300 μm , 对应的能量为 4 meV, 对应的时间尺度为 1 ps). 太赫兹波因其频带宽、光子能量低、安全性好、光谱分辨能力强、相干性强等优点, 在无线通信、雷达和成像、医学诊断、材料表征、安全检测等领域具有广泛的应用前景. 同时, 太赫兹光谱也是开展基础科学研究的强有力工具, 其原因在于众多凝聚态物理现象、宇宙背景辐射、生物大分子等的特征频率位于太赫兹波段或者特征时间在皮秒尺度^[1,2].

基于太赫兹波的重要性, 获得高性能的太赫兹源一直是业界普遍关注的热点. 太赫兹源可分为太

赫兹连续波源和太赫兹脉冲源两种类型. 其中太赫兹脉冲源基于飞秒激光器驱动, 是组成太赫兹时域光谱仪 (THz time domain spectroscopy, THz-TDS) 的核心器件^[3]. 太赫兹时域光谱仪是太赫兹科学技术发展史上最最重要的科学仪器之一, 可获得待测样品和材料的介电常数、电导率、分子振动吸收、共振吸收、时延等信息, 在材料表征、电子元件电路检测、生物医药检测等方面具有重要应用. 传统的基于激光泵浦的太赫兹脉冲源主要有电光晶体 (如 ZnTe, GaP, LiNbO₃ 等)、光电导天线、空气等离子体等^[4], 但它们在频谱、成本、简便性等方面存在一定瓶颈: 如 ZnTe 和 LiNbO₃ 电光晶体的频谱宽度最高只到 3 THz, 通过减小晶体的厚度可以提高频谱宽度, 如薄 GaP 晶体 (0.2 mm 厚) 最高达 7 THz, 但产生效率较低; 光电导天线最高频谱宽度为 7 THz, 效率相对较高, 但价格昂贵; 空气等

* 科学挑战专题 (批准号: TZ2018003)、国家自然科学基金青年科学基金 (批准号: 11504345, 11504346, 61905225, 62005256) 和中国工程物理研究院创新发展基金 (批准号: CX20200011) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: fengzheng@mtrc.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: tanwei@mtrc.ac.cn

离子体可到 10 THz 以上, 但系统复杂且存在频谱不稳定的因素. 而材料表征、生物医药检测等应用对于超宽带、高效率、低成本、固态便携式的太赫兹脉冲源具有强烈需求, 发展具备这些优良性能的太赫兹脉冲源并开发其应用, 具有重要价值.

自旋电子学 (spintronics) 基于电子自旋属性发展新一代高性能电子器件及系统. 近年来, 太赫兹和自旋电子学两门学科交叉融合, 形成了太赫兹自旋电子学 (THz spintronics) 这一新兴热门方向^[5]. 两门学科之所以能够结合, 主要在于自旋电子学的某些物理现象的特征频率位于太赫兹频段, 如反(亚)铁磁共振、磁振子 (magnon)、电磁振子 (electromagnon) 等^[6-8]; 或者某些物理过程的特征时间在皮秒尺度, 如超快退磁、超快自旋动力学等^[9,10]; 此外, 太赫兹波也提供了一种有效的非接触探针方法研究磁电阻、自旋输运过程等^[11,12]. 太赫兹自旋电子学已取得一系列成果, 同时促进了太赫兹和自旋电子学两门学科的发展. 太赫兹波在帮助我们更加深入理解自旋电子学相关物理和过程的同时, 自旋电子学也为太赫兹波器件的研究提供了新思路和新方法, 如本文所述的自旋太赫兹源 (spintronic THz emitter)^[13].

2013 年, 德国 Kampfrath 等^[13]在 *Nature Nanotechnology* 发表论文, 报道了一种新型的基于超快自旋流——电荷流转换的太赫兹脉冲产生方法. 其产生原理如图 1 所示: 1) 利用飞秒激光脉冲照射铁磁/非磁 (FM/NM) 金属纳米薄膜异质结构 (如 Fe/Au, Fe/Ru), 激发铁磁层中的自旋向上和自旋向下的非平衡载流子; 2) 非平衡载流子向相邻的非磁金属层扩散, 由于自旋向上和自旋向下的载流子的运动速度相差较大, 故形成超快的自旋(极化)流 J_s 从铁磁层注入非磁层; 3) 由于自旋轨道耦合作用导致的逆自旋霍尔效应^[14,15], 进入非磁层的超快自旋流 J_s 转换为瞬态电荷流 J_c ($J_c \propto J_s \times M$, M 为铁磁层磁化强度); 4) 瞬态电荷流 J_c 的时间尺度为亚皮秒量级, 从而向外辐射太赫兹脉冲, 由于 J_c 总与 M 垂直 (M 与外加磁场 H 平行), 故太赫兹脉冲的偏振方向总与外加磁场 H 垂直. 此新型太赫兹源具有众多优点, 如结构简单、制备成本低、偏振可调、固态稳定等, 更重要的是其频谱宽度大于 10 THz, 弥补了现有商用太赫兹脉冲源的不足. 由于其独特优点以及蕴含的丰富物理机制, 受到了国内外众多研究组的关注和研究, 将其

命名为自旋太赫兹源 (Spintronic THz emitter), 并涌现了一系列突出成果.

本文从自旋太赫兹源的性能提升、调控和应用 3 方面对其研究进展进行详细的综述: 第 2 节基于太赫兹产生的 3 个过程——超快自旋输运、光学激发、太赫兹出射, 分别介绍其性能提升方法; 第 3 节介绍自旋太赫兹源频谱和偏振的主动调控; 第 4 节介绍自旋太赫兹源在太赫兹超宽谱测试、磁结构探测及成像、太赫兹超分辨近场成像等方面的应用; 第 5 节为简要的总结与展望.

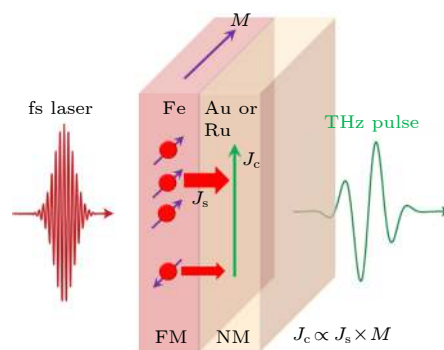


图 1 自旋太赫兹源原理

Fig. 1. Schematic of the spintronic THz emitter.

2 自旋太赫兹源的性能提升

自旋太赫兹源展示出众多独特优点, 但是文献^[13]中原型器件 (结构为 10 nm Fe/2 nm Au, 10 nm Fe/2 nm Ru) 的太赫兹产生效率很低, 仅有商用 ZnTe 晶体的 1% 左右; 如何提升其产生效率、场强等性能, 是决定其能否实用的关键. 此后国内外各个研究组利用各种方法, 已将其产生效率及功率提升至商用太赫兹脉冲源的水平. 这些提升方法主要基于太赫兹脉冲产生的三个过程开展: 1) 光学激发, 飞秒激光脉冲照射铁磁/非磁异质结构并相互作用, 激发超快自旋流; 2) 超快自旋输运, 超快自旋流从铁磁层注入非磁层, 并在非磁层中因自旋轨道耦合作用转换为瞬态电荷流; 3) 太赫兹出射, 时间尺度为亚皮秒的瞬态电荷流向外辐射太赫兹脉冲. 下面分别介绍基于这三个过程太赫兹性能提升的研究进展.

2.1 基于超快自旋输运的性能提升

首先介绍超快自旋输运过程, 超快自旋输运过程是自旋太赫兹源的核心过程, 共包含两个部分:

1) 超快自旋流产生并从铁磁层注入非磁层; 2) 注入非磁层的超快自旋流转换为瞬态电荷流. 最终辐射的太赫兹波电场强度 $E_{\text{THz}}(t)$ 正比于异质结构中的总电荷流大小 J_c 随时间的变化: $E_{\text{THz}}(t) \propto \frac{\partial J_c(t)}{\partial t}$. 增大超快自旋流的注入效率、自旋流-电荷流转换效率, 以及其他使总电荷流大小及其随时间变化率增大的方法, 均可提升太赫兹产生效率.

2016 年德国 Kampfrath 研究组 [16] 进一步报道了他们在自旋太赫兹源性能提升上的成果. 其性能提升方法主要基于自旋输运过程, 主要包括以下 4 种. 1) 选择大自旋霍尔角 γ 的非磁层. 自旋霍尔角 γ 表征自旋流转换为电荷流的效率 [17,18], 自旋霍尔角 γ 越大, 则太赫兹产生效率越高. 他们研究了不同非磁层的太赫兹出射强度与自旋霍尔电导 (正比于自旋霍尔角 γ) 的关系, 发现太赫兹出射强度、正负与自旋霍尔角 γ 的大小、正负一一对应, 其中重金属 Pt 出射强度最大, 相对于 Au 等金属有一个数量级以上的增强. 2) 优化铁磁/非磁材料组合. 铁磁层一方面决定了产生的超快自旋流的大小, 另一方面不同的铁磁/非磁界面也决定了超快自旋流注入非磁层的效率. 实验表明不同铁磁层 (3 nm)/Pt (3 nm) 的太赫兹出射强度, 除 Ni 较低外其他常见铁磁金属相差不大, CoFeB 略高于其他金属. 3) 优化结构厚度. 非磁层厚度决定自旋流的运输扩散从而影响总电荷流大小, 同时铁磁/非磁层厚度也与飞秒激光吸收利用率、太赫兹出射效率相关, 通过改变厚度太赫兹强度获得数倍提升. 4) 充分利用双向注入自旋流. 如图 2 所示, 在铁磁/非磁双层异质结构中铁磁层另一侧再添加一非磁层, 自旋流也可注入; 若两侧非磁层自旋霍尔角 γ 符号相反 (如 Pt 和 W) [19], 则电荷流可相干叠加, 实验结果显示此方法将太赫兹强度提升了 40%. 最终获得最优结构 W(2 nm)/CoFeB(1.8 nm)/Pt(2 nm); 与其他商用太赫兹脉冲源的性能对比可知, 它的时域波形幅值最大, 在频域上获得了最宽的频谱宽度 (>15 THz), 其在低频段的强度低于 ZnTe 晶体和光电导天线, 但在高频段则远好于其他太赫兹源, 显示出显著的性能优势.

同时期及稍后时间, 电子科技大学齐静波教授与复旦大学吴义政教授联合团队 [20]、新加坡 Yang 研究组 [21]、德国 Beigang 研究组 [22]、上海大学马国宏/金钻明团队 [23] 等各自报道了相关的材料与结

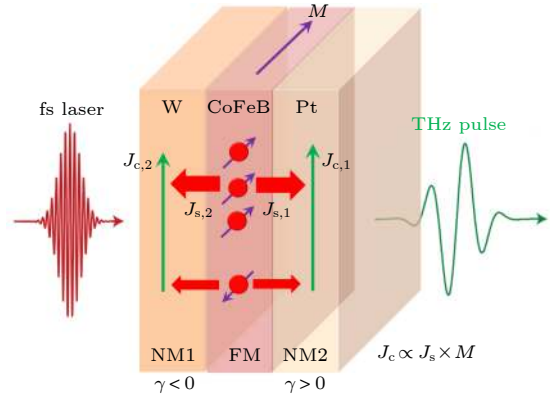


图 2 三层结构自旋太赫兹源

Fig. 2. Schematic of the trilayer spintronic THz emitter.

构优化结果. 其后众多研究组又发展出新的性能提升路径, 其中基于超快自旋流注入这一自旋输运过程方面, 日本 Mizukami 研究组 [24,25] 利用铁磁层掺杂、退火等方法增强注入的自旋流大小, 荷兰 Li 研究组 [26] 通过减小界面粗糙度、界面混杂等方法提升自旋流在界面的注入效率; 此外, Kampfrath 研究组 [27] 基于自旋塞贝克效应这一自旋流注入方法, 观测到绝缘层 YIG 向重金属 Pt 中注入超快纯自旋流而产生的太赫兹脉冲, 但信号较小. 在超快自旋流-电荷流转换这一自旋输运过程方面, 除了对传统单质重金属 Pt 等掺杂增大其自旋霍尔角从而提升太赫兹产生效率外 [28], 各研究组将新型量子材料及相关的新型自旋流-电荷流转换机制运用到自旋太赫兹脉冲源中, 也获得了丰富有趣的结果.

自旋流-电荷流转换机制有两种, 一种是前文所述的逆自旋霍尔效应, 它是一种体效应; 另外一种为逆 Rashba-Edelstein 效应 [29], 它是一种界面效应, 主要存在于金属异质结构界面 (如 Ag/Bi 界面, Cu/Bi 界面等)、拓扑绝缘体表面态、二维材料、二维电子气等. 美国 Jungfleisch 研究组 [30]、复旦大学吴义政教授与电子科技大学齐静波教授联合团队 [31] 分别将自旋流从铁磁层 (CoFeB 和 Fe) 注入 Ag/Bi 双层纳米薄膜, 观测到 Ag/Bi 界面的逆 Rashba-Edelstein 效应产生的太赫兹脉冲, 如图 3(a) 所示; 且后者详细研究了太赫兹强度随 Bi 层厚度的变化规律, 并证明 Ag/Bi 体系中逆 Rashba-Edelstein 效应和逆自旋霍尔效应可以相互叠加从而提升产生效率. 新加坡 Chia 和 Yang 联合团队 [32] 观测到铁磁/拓扑绝缘体异质 (Co/Bi₂Se₃) 产生太赫兹脉冲, 如图 3(b) 所示, 并指出其主要来源于 Bi₂Se₃ 表面态的逆 Rashba-Edelstein 效应; 其后, 他们实现了飞秒激光泵浦下超快自旋流从铁磁层

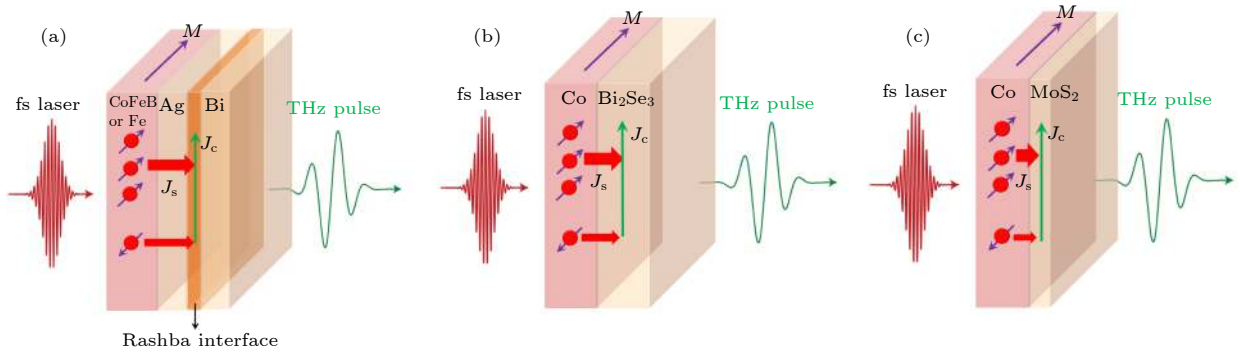


图 3 基于逆 Rashba-Edelstein 效应的太赫兹发射 (a) Ag/Bi 界面; (b) 拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 表面态; (c) 二维半导体材料 MoS_2
 Fig. 3. Schematic of THz emission via inverse Rashba-Edelstein effect: (a) Ag/Bi interface; (b) surface states of topological material Bi_2Se_3 ; (c) two-dimensional semiconductor MoS_2 .

Co 向二维半导体材料 MoS_2 的高效注入, 以及由于逆 Rashba-Edelstein 效应的自旋流-电荷流转换, 获得太赫兹脉冲^[33], 如图 3(c)所示. 以上体系产生的太赫兹强度具有一定的实用性, 虽还不及此前的重金属中因逆自旋霍尔效应产生的强度, 但为自旋太赫兹源的性能提升提供了新思路.

2.2 基于光学激发的性能提升

自旋太赫兹源的辐射强度正比于泵浦飞秒激光功率, 但由于其纳米薄膜结构的厚度通常为数纳米, 大部分激光能量被散射透射而非吸收^[16,22], 从而限制了太赫兹波产生效率.

本文作者团队及其合作者, 首先从理论上证明了纳米厚度金属薄膜存在天然的光学限制, 其对泵浦飞秒激光的吸收利用率不大于 50%. 针对这一问题, 提出一种金属-介质光子晶体结构, 以提高激光吸收利用率从而提升太赫兹产生效率^[34]. 其结构如图 4(a) 所示, 是以介质薄膜和金属薄膜 ($\text{NM}_1/\text{FM}/\text{NM}_2$) 为单元组成的周期性结构, 其中金属薄膜为 $\text{W}(1.8 \text{ nm})/\text{Fe}(1.8 \text{ nm})/\text{Pt}(1.8 \text{ nm})$, 介质薄膜选为 SiO_2 薄膜, 其厚度 d 为调控因子. 当激光在金属-介质光子晶体结构中传输时发生多重散射和干涉, 会抑制金属薄膜对激光的反射和透射, 增大金属薄膜对激光能量的吸收. 图 4(b) 左图显示了不同周期数 n 的光子晶体结构的激光吸收率随 SiO_2 介质层厚度 d 的变化 (实线为计算值, 实心符号为实验样品实测值), 对于每个周期其激光吸收率随着 d 的增大而增大, 且吸收率从 40% 左右提升至 90% 以上; 右图为相应样品的太赫兹出射强度随着厚度 d 的变化, 对于每个周期其太赫兹强度随厚度 d 的增大而增大, 与激光吸收率的变化规律相同. 图 4(c) 显示的是将太赫兹强度和激光吸收

率均归一化到标准的单周期自旋太赫兹源, 可明显看出两者随厚度变化呈现相同趋势, 但随着周期数 n 的增大太赫兹强度偏离激光吸收率越大, 其原因在于周期结构中后层金属薄膜对前层金属薄膜产生的太赫兹的反射及吸收; 将该因素纳入到太赫兹辐射模型, 可获得较好的拟合结果 (实线所示). 相比于标准的单周期自旋太赫兹源, 金属-介质光子晶体结构的产生效率提升到原来的 1.7 倍. 该工作将光学思想引入自旋太赫兹源的研究中, 为其性能提升提供了一种新途径. 其后, 英国 Herapath 团队^[35] 将光学介质谐振腔 ($\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ 周期性结构) 制备于自旋太赫兹源金属纳米薄膜上, 也通过提高激光吸收率提升了太赫兹产生效率.

除产生效率外, 太赫兹脉冲源的绝对场强亦是重要的一个性能指标. 高场强太赫兹脉冲在非线性物理等研究中具有重要的作用, 常规的高场强太赫兹脉冲源主要有 LiNbO_3 晶体、空气等离子体等^[36], 但前者带宽只到 3 THz, 后者的带宽虽然可超过 10 THz, 但存在不稳定因素. 自旋太赫兹源通过常规的薄膜生长方法 (磁控溅射、电子束蒸发、分子束外延等) 制备, 相较于传统的电光晶体、光电导天线等商用太赫兹脉冲源, 容易制备低成本大面积自旋太赫兹源. 德国 Kampfrath 课题组^[37] 将飞秒激光扩束泵浦到大面积的自旋太赫兹源上 (直径为 7.5 cm), 然后将产生的大光束太赫兹聚焦 (见图 5), 在保持超宽带 ($>10 \text{ THz}$) 的性能下, 获得了峰值电场大于 300 kV/cm 的太赫兹脉冲, 为研究非线性物理及操控物质提供了强有力手段.

另外值得一提的是, 相对于电光晶体、光电导天线等只对于特定的泵浦飞秒激光波长响应, 自旋太赫兹源对波长无选择性, 400—1600 nm 波长的飞秒激光均可有效激发太赫兹出射^[33,35].

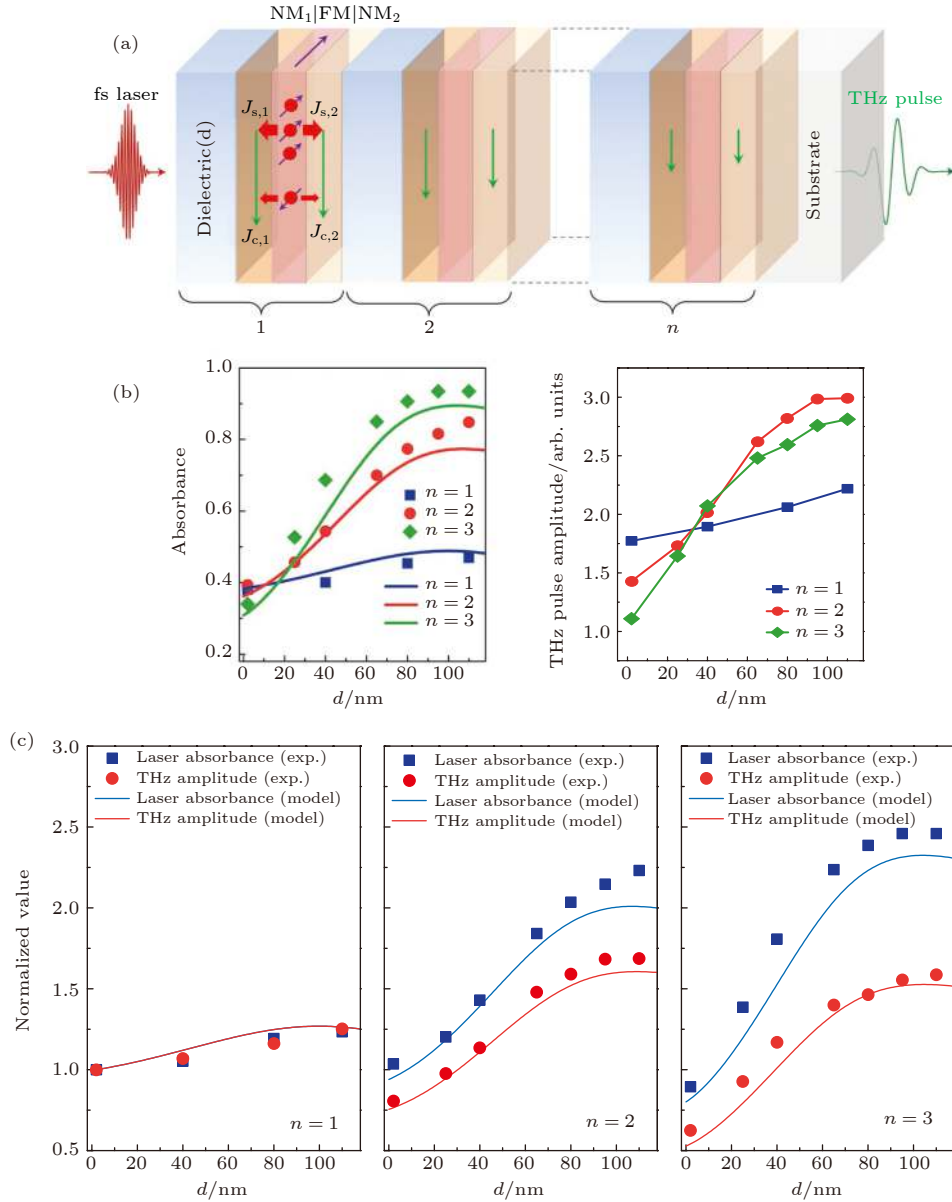


图 4 金属-介质光子晶体自旋太赫兹源^[34] (a) 结构示意图; (b) 不同周期样品的飞秒激光吸收率与太赫兹强度随介质层 SiO₂ 厚度 d 的变化; (c) 归一化的激光吸收率与太赫兹强度

Fig. 4. Metal-dielectric photonic crystal type spintronic THz emitter^[34]: (a) Schematic diagram; (b) fs laser absorbance and THz amplitude as the functions of SiO₂ thickness d for different repeats; (c) normalized THz amplitude and fs laser absorbance as the functions of SiO₂ thickness d for different repeats.

2.3 基于太赫兹出射的性能提升

自旋太赫兹源中超快自旋-电荷流随时间的变化向外辐射太赫兹脉冲, 其向外辐射效率由阻抗 Z 所决定, 阻抗越大, 辐射效率越高. 对于铁磁/非磁双层纳米薄膜异质结构来说, 其阻抗的表达式为^[16]

$$Z(\omega) = \frac{Z_0}{n_1(\omega) + n_2(\omega) + [\sigma_F(\omega)t_F + \sigma_N(\omega)t_N]}, \quad (1)$$

其中 Z_0 为自由空间阻抗, $Z_0 = 377 \Omega$; ω 为太赫兹波频率; $n_1(\omega)$ 和 $n_2(\omega)$ 分别为衬底和空气的折射

率; $\sigma_F(\omega)$ 和 $\sigma_N(\omega)$ 分别是铁磁层和非磁层的电导率; t_F 和 t_N 分别是铁磁层和非磁层的厚度. 由此可见, 自旋太赫兹源向外辐射的效率与自身金属薄膜的电导率和厚度密切相关; 此前改变薄膜材料种类、薄膜厚度以提升太赫兹产生效率, 同时也包含了向外辐射效率的优化和平衡. 若通过其他方法增大阻抗, 则可进一步提升产生效率. 德国 Bratschitsch 课题组^[38] 对异质结构 Fe(20 nm)/Pt(5 nm) 中的 Fe 掺入微量元素 Tb, 太赫兹强度随着 Tb 的掺杂

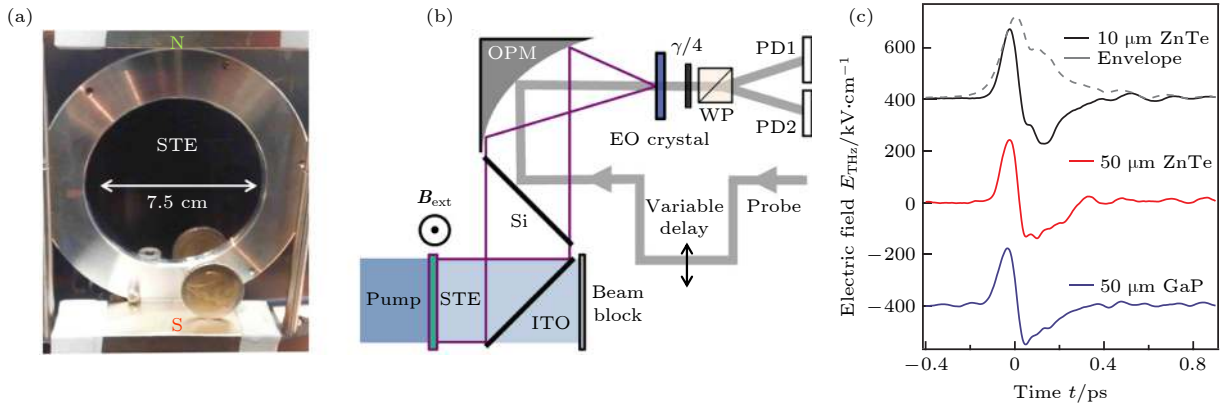


图 5 高场强自旋太赫兹源^[37] (a) 大面积自旋太赫兹源照片; (b) 实验装置示意图; (c) 太赫兹电场强度
 Fig. 5. High-field spintronic THz emitter^[37]: (a) Photograph of the large area spintronic terahertz emitter; (b) schematic of the experimental setup; (c) resulting THz electric fields.

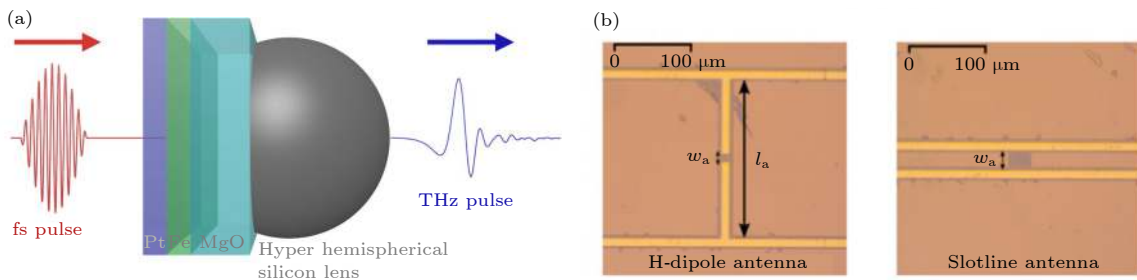


图 6 (a) 自旋太赫兹源与超半球硅透镜组合器件^[22]; (b) 自旋太赫兹源与天线结构耦合器件^[39]
 Fig. 6. (a) The integrated device of spintronic THz emitter and hyper hemispherical silicon lens^[22]; (b) the integrated device of spintronic THz emitter and antenna^[39].

量变化; 进一步实验表明 Tb 的掺杂改变了铁磁层的电导率, 太赫兹强度与电导率随 Tb 掺杂量的变化呈现对应关系, 掺杂最优结果相对非掺杂的太赫兹强度提升了 2 倍.

自旋太赫兹源通过衬底向外呈一定发散角辐射太赫兹波, 由于衬底/空气的折射率不匹配会发生反射损耗; 泵浦飞秒激光光斑越小, 太赫兹越发散, 损耗越大; 德国 Beigang 课题组^[22] 在衬底上贴装超半球硅透镜, 如图 6(a) 所示, 使衬底/空气界面耦合出更多的太赫兹, 太赫兹强度增强了 30 倍 (在光斑直径为 10 μm 的情况下). 此外, 在电磁学中, 天线可增强电磁波辐射效率; 德国 Nandi 团队^[39] 将自旋太赫兹源薄膜与天线结构耦合, 如图 6(b) 所示, 实测天线结构的太赫兹强度提高到纯薄膜结构的 2.42 倍.

3 自旋太赫兹源的调控

自旋太赫兹源有两个独特优点, 一是平面薄膜型结构, 二是其产生的太赫兹脉冲偏振方向总与外

加磁场垂直, 这两个优点决定了它具有较大的调控自由度. 下面介绍自旋太赫兹源偏振和频谱调控的相关进展.

3.1 偏振调控

自旋太赫兹源辐射线偏振的太赫兹波, 其偏振方向总是与外加磁场垂直, 因此通过旋转外加磁场, 即可有效调控太赫兹波的线偏振方向. 圆偏振的太赫兹波在手性分子、磁共振测试等方面具有重要应用^[40], 基于自旋太赫兹源线偏振与外加磁场垂直的特性, 研究人员发展出各种可调控圆偏振太赫兹源.

日本 Nakajima 研究组^[41] 将自旋太赫兹源薄膜结构与双折射液晶相集成, 其中液晶起到太赫兹相位延迟片的作用. 当外加磁场施加在不同方向时, 自旋太赫兹源产生的线偏振太赫兹与液晶相互作用并获得不同的相位延迟, 最终出射的太赫兹波在圆偏振态和线偏振态之间转换; 如对液晶施加一小电压, 可进一步调控圆偏振的太赫兹频点. 北京航空航天大学吴晓君、聂天晓团队^[42] 提出利用

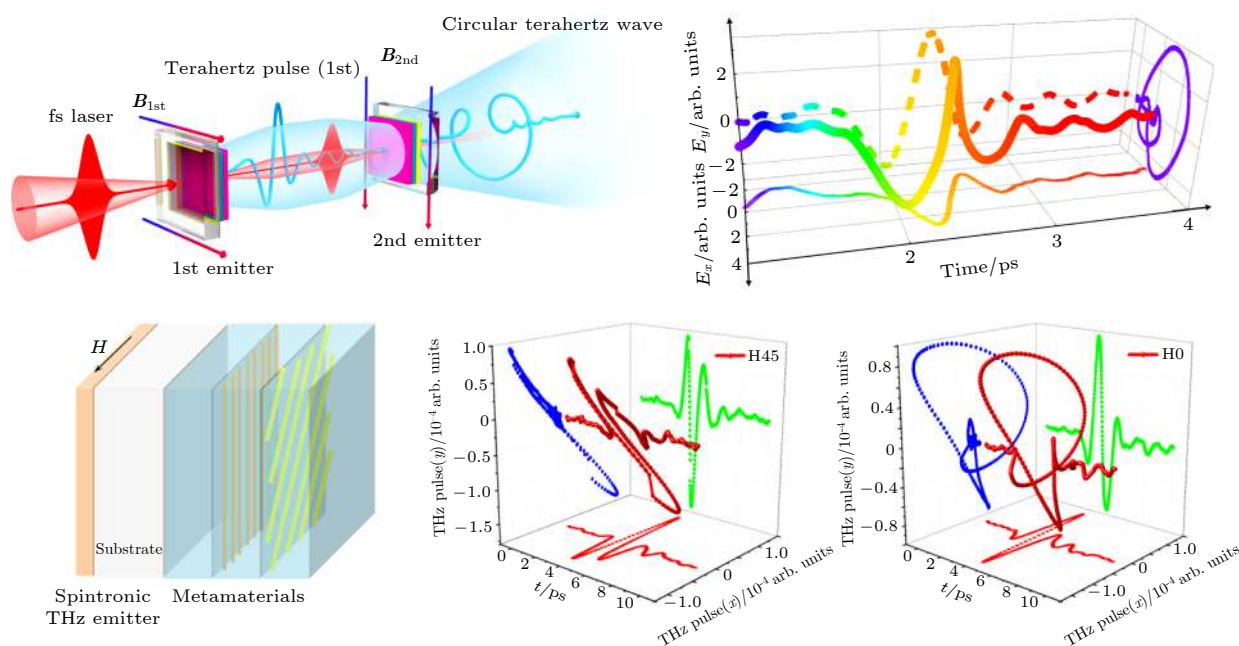

 图 7 偏振可调自旋太赫兹源 (a) 级联自旋太赫兹源^[42]; (b) 超材料集成自旋太赫兹源^[44]

 Fig. 7. Polarization-tunable spintronic THz emitter: (a) Cascade spintronic THz emitter^[42]; (b) metamaterial integrated spintronic THz emitter^[44].

两个级联自旋太赫兹源产生圆偏振太赫兹波, 如图 7(a) 所示, 飞秒激光脉冲激发第 1 个源后的透射光继续激发第 2 个, 两个源的外加磁场互相垂直产生正交的线偏振太赫兹相干叠加, 通过调节两个源之间的气压使正交偏振的相位差为 90° , 最终获得了圆偏振的太赫兹出射; 且通过改变两个源上的磁场方向, 可使太赫兹偏振态在线偏振、(左旋、右旋) 圆偏振之间切换; 此外, 该团队也利用弯曲的磁场产生椭圆偏振太赫兹波^[43]. 本文作者团队提出将金属-介质光子晶体自旋太赫兹源与超材料波片的集成器件^[44], 其中超材料为双层金属线栅结构, 被设计成宽带太赫兹 $1/4$ 波片; 通过旋转外加磁场使集成器件出射的太赫兹波在线偏振与圆偏振之间切换, 相对于此前的液晶集成器件, 其圆偏振频谱更宽.

3.2 频谱调控

自旋太赫兹源薄膜可通过光刻等微加工手段制备成图形化结构. 电子科技大学齐静波教授与复旦大学吴义政教授联合团队^[20] 将其制备成条带阵列, 固定外加磁场方向并旋转条带长轴与磁场的夹角, 改变了太赫兹频谱分布, 如图 8(a) 所示; 其原因在于产生太赫兹的瞬态电荷流总是沿垂直于外加磁场的方向运动, 改变夹角使条带边缘对瞬态电

荷流的积累与反射不同, 使其时空分布发生改变, 太赫兹频谱随之改变. 上海大学马国宏、金钻明课题组^[45] 独立报道了类似的调控结果. 新加坡 Yang 课题组^[46] 将自旋太赫兹源薄膜生长于高阻硅衬底并制备成三个条带, 条带两边添加电极; 在飞秒激光照射下, 当外加磁场与条带垂直时可产生沿条带方向运动的瞬态自旋-电荷流, 当电极两端施加电流也可产生沿条带方向运动光生瞬态电流, 这样就形成 1 个复合太赫兹源, 两者产生的太赫兹波可相干叠加, 如图 8(b) 所示; 实验结果表明, 施加电流时其产生的太赫兹频谱在低频段 (0.1—0.5 THz) 的强度增强了 2—3 个数量级. 北京航空航天大学吴晓君、聂天晓团队^[47] 利用相邻的飞秒激光脉冲对泵浦自旋太赫兹源, 通过改变两个脉冲对的时延, 有效地在亚皮秒时间尺度调控其产生的自旋流, 从而成功地调控其产生的太赫兹脉冲波形及对应的频谱, 如图 8(c) 所示.

4 自旋太赫兹源的应用

4.1 太赫兹超宽谱测试

自旋太赫兹源的频谱宽度可达 30 THz, 因此它可以对各种材料和器件进行超宽谱测试. 德国 Kampfrath 研究组^[16] 利用自旋太赫兹源测试了

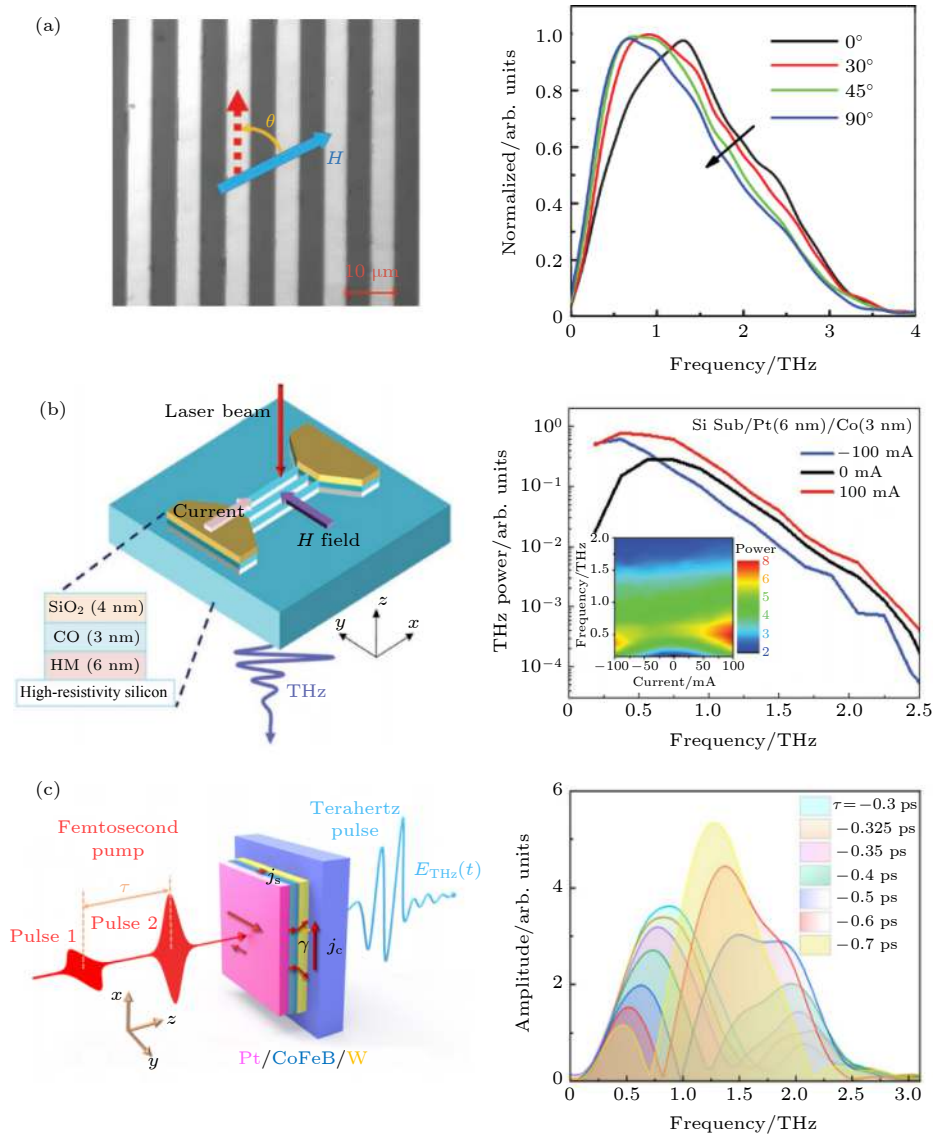


图 8 频谱可调自旋太赫兹源 (a) 条带图形自旋太赫兹源^[20]; (b) 电流增强复合自旋太赫兹源^[46]; (c) 飞秒激光脉冲对激发自旋太赫兹源^[47]

Fig. 8. Spectrum-tunable spintronic THz emitter: (a) Stripe patterned spintronic THz emitter^[20]; (b) current enhanced hybrid spintronic THz emitter^[46]; (c) dual-pulses pumped spintronic THz emitter^[47].

7.5 μm 厚的聚四氟乙烯的太赫兹透射谱, 在 6, 15 和 18 THz 观察到明显的共振吸收. 这与此前用空气等离子产生太赫兹脉冲的测试结果一致, 但空气等离子体产生太赫兹脉冲所需能量比自旋太赫兹源高 5 个数量级, 且系统复杂频谱不稳定, 因此自旋太赫兹源在超宽谱测试方面显现出极大的优势.

4.2 磁结构检测及成像

自旋太赫兹源产生的太赫兹偏振方向垂直于外加磁场的方向, 同时其产生的太赫兹强度与铁磁层磁滞回线一一对应, 因此可通过测试太赫兹强度

随磁场的变化获得铁磁层的磁滞回线^[28]. 日本 Bulgarevich 研究组^[48] 根据这一特性, 提出一种获得磁场分布的检测/成像芯片 (见图 9), 芯片结构为自旋太赫兹源薄膜/MgO 衬底/电光晶体 ZnTe/金反射镜; 当泵浦飞秒激光 (pump) 斜入射于自旋太赫兹源薄膜, 其产生的太赫兹脉冲经过衬底进入 ZnTe 晶体, 并被探测飞秒激光 (probe) 通过反射方式检测到; 而太赫兹脉冲的方向和强度与其感受到的局域磁场密切相关, 移动磁体使局域磁场发生变化从而改变检测到的太赫兹脉冲, 最终复现出磁场分布. 但此方法的成像精度有待进一步提高, 而这主要依赖于自旋太赫兹源的效率提升.

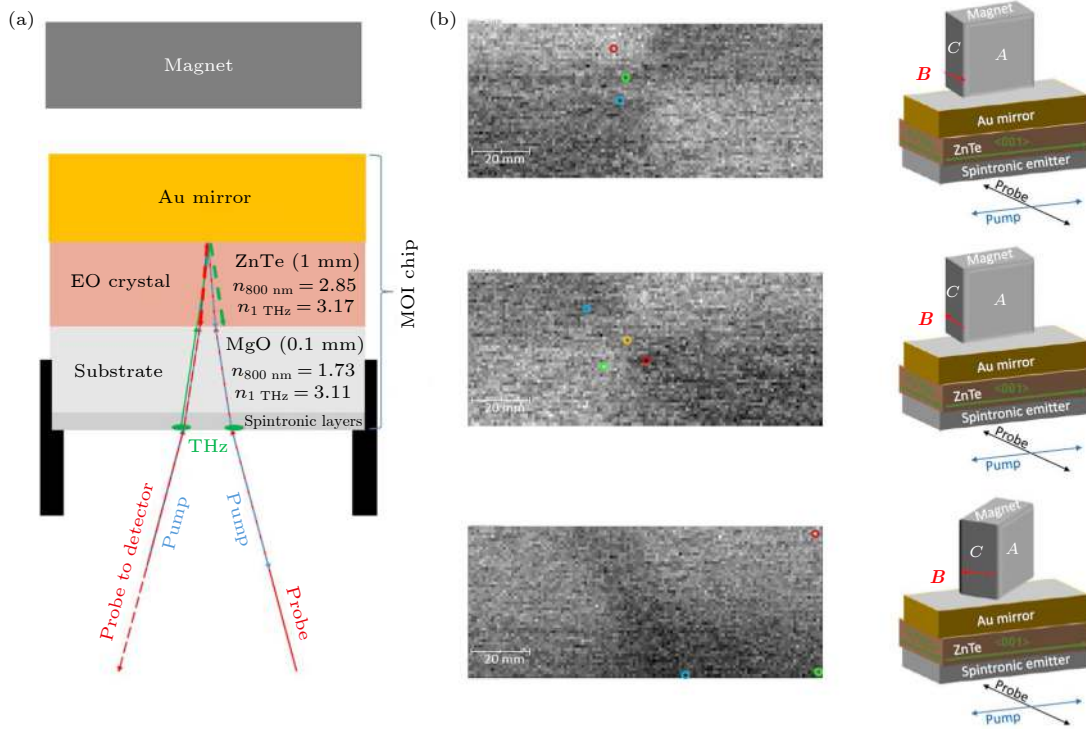


图 9 基于自旋太赫兹源的磁检测/成像芯片^[48] (a) 示意图; (b) 不同永磁铁取向下的磁分布成像图

Fig. 9. Magneto-optic sensor/imager based on spintronic THz emitter^[48]: (a) Schematic diagram; (b) magnetic images with different permanent magnet orientation.

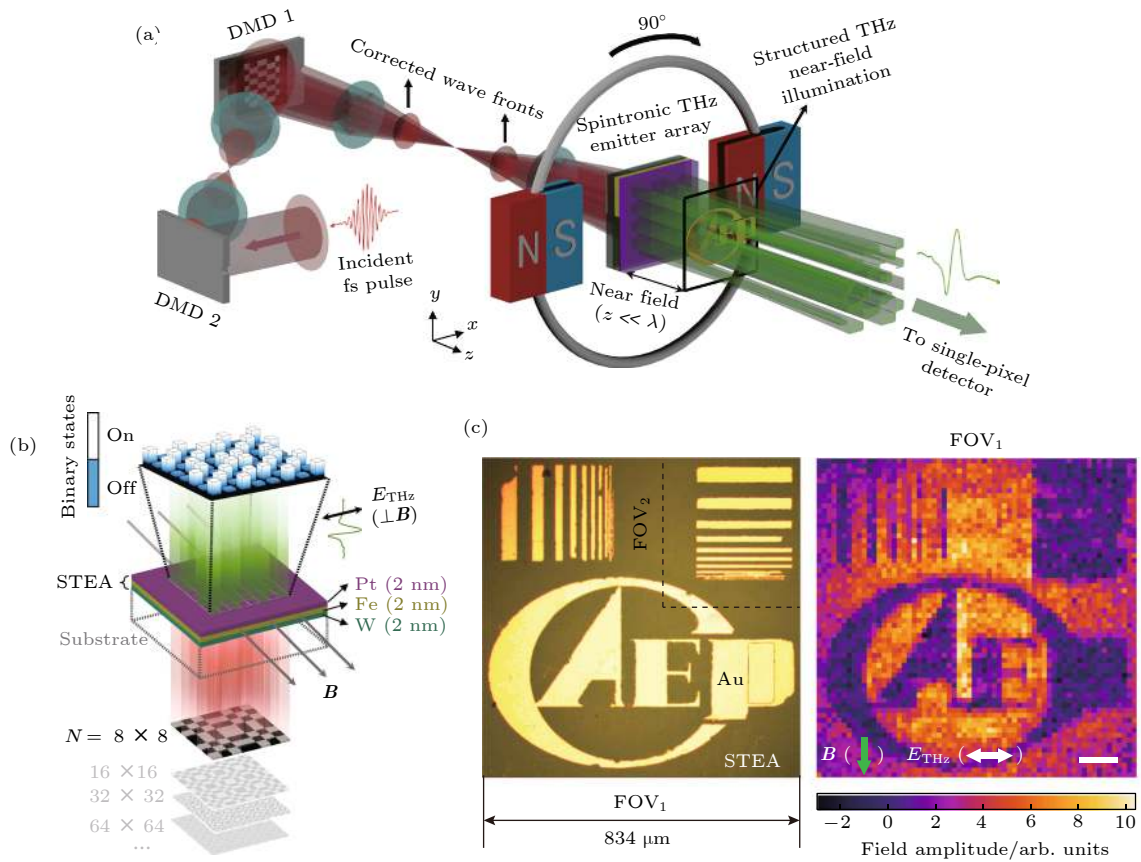


图 10 自旋太赫兹源阵列鬼成像显微术^[49] (a) 示意图; (b) 自旋太赫兹源阵列; (c) 成像物体的光学照片和太赫兹鬼成像图

Fig. 10. Ghost spintronic THz emitter array microscope (GHOSTEAM)^[49]: (a) Schematic of GHOSTEAM; (b) schematic of spintronic THz emitter array; (c) optical photo and THz ghost image of an object.

4.3 太赫兹超分辨近场成像

自旋太赫兹源的纳米薄膜结构产生的太赫兹脉冲强度可与毫米级 ZnTe 晶体相当,同时可与其他物体呈纳米级接近.基于以上特性,中国工程物理研究院朱礼国团队与本文作者团队及合作者^[49],成功地利用自旋太赫兹源实现了太赫兹超分辨近场成像.如图 10(a)所示,数字微镜阵列 DMD 对飞秒激光进行空间编码,然后照射自旋太赫兹源,其产生的太赫兹脉冲具备对应的空间编码特性,自旋太赫兹源可等效为自旋太赫兹源阵列 (spintronic THz emitter array, STEA),即在 DMD 控制下被光照的“单元”处于“on”状态,辐射太赫兹脉冲,而无光照的“单元”处于“off”状态,没有太赫兹脉冲发射,如图 10(b)所示.自旋太赫兹源阵列产生的太赫兹波在近场时其编码信息保持良好,不同编码的太赫兹波阵列经过成像目标后在远场单像素探测器获得不同的信号大小;变换编码采集对应的远场信号大小,再经过压缩鬼成像技术,可重构出近场目标的图像.图 10(c)分别显示了成像目标的光学照片和太赫兹鬼成像图,鬼成像的空间分辨率达到 $6.5 \mu\text{m}$ (1/100 波长),且其潜在的分辨率可以达到飞秒光的衍射极限.此外,基于自旋太赫兹源偏振可调的性质研究了偏振态对亚波长结构图像的影响,通过图像融合消除了图像的偏振效应;同时结合飞行时间测量,实现了太赫兹层析成像.他们将此方法命名为自旋太赫兹源阵列鬼成像显微术 (ghost spintronic THz emitter array microscope, GHOSTTEAM),并指出未来利用更加稳定的飞秒振荡器来驱动自旋太赫兹源可大幅提升成像帧率,缩短成像时间.

5 总结与展望

近年来,自旋太赫兹源因其众多优点获得国内外研究者的重点关注,并取得了一系列成果.本文分别从自旋太赫兹源的性能、调控及其应用 3 个方面,介绍了其研究进展.在性能提升方面,研究人员利用光子晶体、谐振腔、大面积激发-紧聚焦等方法提升泵浦飞秒激光的能量利用率,通过材料和结构优化等方法增大自旋流产生、注入强度和自旋流-电荷流转换效率,并引入新型量子材料及转换机制,基于阻抗匹配、超半球硅透镜及天线结构等

方法增强辐射,最终使其产生效率、场强等性能达到实用化水平;在调控方面,基于液晶相位延迟、级联、超材料等方法实现了自旋太赫兹源偏振态的主动调控,基于微结构、复合源结构、脉冲对激发等方法实现了自旋太赫兹源的频谱调控;在应用方面,利用自旋太赫兹源成功进行了太赫兹超宽谱测试、磁结构检测及成像、太赫兹超分辨近场成像.

虽然自旋太赫兹源的研究取得了显著进展,但还存在一些问题有待解决.如在飞秒振荡器驱动下其产生强度相比光电导天线仍有一定距离^[16],飞秒激光扩束-太赫兹聚焦下的强场太赫兹仍低于商用 LiNbO_3 晶体^[37];偏振态调控的频谱宽度较窄,频谱调控时其能量还主要集中于低频段;利用自旋太赫兹脉冲源(特别是强场)进行超宽谱测试的研究较少,磁结构检测及成像的灵敏度较低,太赫兹超分辨近场成像的速度较慢等.为解决这些问题,需要综合利用光学、太赫兹、自旋电子学等多学科交叉手段,进一步提升其产生效率,发展新的偏振、频谱调控方法,进一步增强应用实用性并发掘更多应用场景,最终同时推动自旋电子学和太赫兹两门学科的发展和技术进步.

参考文献

- [1] Tonouchi M 2007 *Nat. Photonics* **1** 97
- [2] Ferguson B, Zhang X C 2002 *Nat. Mater.* **1** 26
- [3] Withayachunnankul W, Naftaly M 2014 *J. Infrared Millim Terahertz Waves* **35** 610
- [4] Neu J, Schmittenmaer C A 2018 *J. Appl. Phys.* **124** 231101
- [5] Walowski J, Münzenberg M 2016 *J. Appl. Phys.* **120** 140901
- [6] Kampfrath T, Sell A, Klatt G, Pashkin A, Mährlein S, Dekorsy T, Wolf M, Fiebig M, Leitenstorfer A, Huber R 2010 *Nat. Photonics* **5** 31
- [7] Nishitani J, Kozuki K, Nagashima T, Hangyo M 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 221906
- [8] Chun S H, Shin K W, Kim H J, Jung S, Park J, Bahk Y, Park H, Kyoung J S, Choi D, Kim D 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 027202
- [9] Beaurepaire E, Turner G M, Harrel S M, Beard M C, Bigot J Y, Schmittenmaer C A 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 3465
- [10] Vicario C, Ruchert C, Ardanalamas F, Derlet P M, Tudu B, Luning J, Hauri C P 2013 *Nat. Photonics* **7** 720
- [11] Jin Z, Tkach A, Casper F, Spetter V, Grimm H, Thomas A, Kampfrath T, Bonn M, Kläui M, Turchinovich D 2015 *Nat. Phys.* **11** 761
- [12] Huisman T J, Mikhaylovskiy R V, Rasing T, Kimel A V, Tsukamoto A, de Ronde B, Ma L, Fan W J, Zhou S M 2017 *Phys. Rev. B* **95** 094418
- [13] 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

- [14] Valenzuela S O, Tinkham M 2006 *Nature* **442** 176
- [15] Saitoh E, Ueda M, Miyajima H, Tatara G 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 182509
- [16] Seifert T, Jaiswal S, Martens U, Hannegan J, Braun L, Maldonado P, Freimuth F, Kronenberg A, Henrizi J, Radu I, Beaupreire E, Mokrousov Y, Oppeneer P M, Jourdan M, Jakob G, Turchinovich D, Hayden L M, Wolf M, Münzenberg M, Kläui M, Kampfrath T 2016 *Nat. Photonics* **10** 483
- [17] Mosendz O, Pearson J E, Fradin F Y, Bauer G E, Bader S D, Hoffmann A 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 046601
- [18] Feng Z, Hu J, Sun L, You B, Wu D, Du J, Zhang W, Hu A, Yang Y, Tang D M, Zhang B S, Ding H F 2012 *Phys. Rev. B* **85** 214423
- [19] Pai C-F, Liu L, Li Y, Tseng H W, Ralph D C, Buhrman R A 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 122404
- [20] Yang D W, Liang J H, Zhou C, Sun L, Zheng R E, Luo S N, Wu Y Z, Qi J B 2016 *Adv. Opt. Mater.* **4** 1944
- [21] Wu Y, Elyasi M, Qiu X, Chen M, Liu Y, Ke L, Yang H 2017 *Adv. Mater.* **29** 1603031
- [22] Torosyan G, Keller S, Scheuer L, Beigang R, Papaioannou E T 2018 *Sci. Rep.* **8** 1311
- [23] Zhang S, Jin Z M, Zhu Z, Zhu W, Zhang Z, Ma G H, Yao J 2017 *J. Phys. D* **51** 034001
- [24] Sasaki Y, Kota Y, Iihama S, Suzuki K Z, Sakuma A, Mizukami S 2019 *Phys. Rev. B* **100** 140406
- [25] Sasaki Y, Suzuki K, Mizukami S 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 102401
- [26] Li G, Medapalli R, Mikhaylovskiy R V, Spada F E, Rasing T, Fullerton E E, Kimel A V 2019 *Phys. Rev. Mater.* **3** 084415
- [27] Seifert T, Jaiswal S, Barker J, Weber S T, Razdolski I, Cramer J, Gueckstock O, Maehrlin S F, Nadvornik L, Watanabe S, Ciccarelli C, Melnikov A, Jakob G, Münzenberg M, Goennenwein S T B, Woltersdorf G, Rethfeld B, Brouwer P W, Wolf M, Kläui M, Kampfrath T 2018 *Nat. Commun.* **9** 2899
- [28] Gueckstock O P 2018 *M. S. Thesis* (Berlin: Technische Universität Berlin)
- [29] 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
- [30] Jungfleisch M B, Zhang Q, Zhang W, Pearson J E, Schaller R D, Wen H, Hoffmann A 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 207207
- [31] 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 B 2018 *Phys. Rev. Lett.* **121** 086801
- [32] Wang X, Cheng L, Zhu D, Wu Y, Chen M, Wang Y, Zhao D, Boothroyd C B, Lam Y M, Zhu J, Battiato M, Song J C W, Yang H, Chia E E M 2018 *Adv. Mater.* **30** 1802356
- [33] Cheng L, Wang X, Yang W, Chai J, Yang M, Chen M, Wu Y, Chen X, Chi D, Goh K E J, Zhu J-X, Sun H, Wang S, Song J C W, Battiato M, Yang H, Chia E E M 2019 *Nat. Phys.* **15** 347
- [34] Feng Z, Yu R, Zhou Y, Lu H, Tan W, Deng H, Liu Q, Zhai Z, Zhu L, Cai J, Miao B, Ding H 2018 *Adv. Opt. Mater.* **6** 1800965
- [35] Herapath R I, Hornett S M, Seifert T S, Jakob G, Kläui M, Bertolotti J, Kampfrath T, Hendry E 2019 *Appl. Phys. Lett.* **114** 041107
- [36] Fülöp J A, Tzortzakis S, Kampfrath T 2020 *Adv. Opt. Mater.* **8** 1900681
- [37] Seifert T, Jaiswal S, Sajadi M, Jakob G, Winnerl S, Wolf M, Kläui M, Kampfrath T 2017 *Appl. Phys. Lett.* **110** 252402
- [38] Schneider R, Fix M, Heming R, De Vasconcellos S M, Albrecht M, Bratschitsch R 2018 *ACS Photonics* **5** 3936
- [39] Nandi U, Abdelaziz M S, Jaiswal S, Jakob G, Gueckstock O, Rouzegar S M, Seifert T S, Kläui M, Kampfrath T, Preu S 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 022405
- [40] Li J, Wilson C B, Cheng R, Lohmann M, Kavand M, Yuan W, Aldosary M, Agladze N, Wei P, Sherwin M S, Shi J 2020 *Nature* **578** 70
- [41] Qiu H, Wang L, Shen Z, Kato K, Sarukura N, Yoshimura M, Hu W, Lu Y, Nakajima M 2018 *Appl. Phys. Express* **11** 092101
- [42] Chen X H, Wu X J, Shan S Y, Guo F W, Kong D Y, Wang C, Nie T X, Pandey C D, Wen L G, Zhao W S 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 221104
- [43] Kong D, Wu X, Wang B, Nie T, Xiao M, Pandey C, Gao Y, Wen L, Zhao W, Ruan C, Miao J, Li Y, Wang L 2019 *Adv. Opt. Mater.* **7** 1900487
- [44] Feng Z, Wang D C, Ding H F, Cai J W, Tan W 2019 *Proceedings of The 10th International Conference on Metamaterials, Photonic Crystals and Plasmonics* Lisbon, Portugal, July 23–26, 2019 p626
- [45] Jin Z M, Zhang S, Zhu W, Li Q, Zhang W, Zhang Z, Lou S, Dai Y, Lin X, Ma G H 2019 *Phys Status Solidi Rapid Res Lett* **13** 1900057
- [46] Chen M, Wu Y, Liu Y, Lee K, Qiu X, He P, Yu J, Yang H 2018 *Adv. Opt. Mater.* **7** 1801608
- [47] Wang B, Shan S, Wu X J, Wang C, Pandey C, Nie T X, Zhao W, Li Y, Miao J, Wang L 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 121104
- [48] Bulgarevich D S, Akamine Y, Talara M, Magusara V K, Kitahara H, Kato H, Shihara M, Tani M, Watanabe M 2020 *Sci. Rep.* **10** 1158
- [49] Chen S, Feng Z, Li J, Tan W, Du L, Cai J, Ma Y, He K, Ding H F, Zhai Z H, Li Z R, Qiu C W, Zhang X C, Zhu L G 2020 *Light Sci. Appl.* **9** 99

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

Spintronic terahertz emitter: Performance, manipulation, and applications*

Feng Zheng^{1)2)†} Wang Da-Cheng¹⁾²⁾ Sun Song¹⁾²⁾ Tan Wei^{1)2)‡}

1) (*Microsystem and Terahertz Research Center, China Academy of Engineering Physics, Chengdu 610200, China*)

2) (*Institute of Electronic Engineering, China Academy of Engineering Physics, Mianyang 621999, China*)

(Received 19 May 2020; revised manuscript received 27 May 2020)

Abstract

Spintronic terahertz (THz) emitter, which is based on ultrafast spin-to-charge current conversion in ferromagnetic/nonmagnetic heterostructures, provides excellent advantages such as ultra-broadband, tunable polarization, and ultra-thin structure, thereby attracting increasing interests recently. In this review article, we first introduce the fundamental concepts of THz wave, THz spintronics and spintronic THz emitter. Next, we focus on the recent progress of spintronic THz emitter by closely looking at the performances, manipulations and applications. Performance improvement is presented based on the three fundamental processes: optical excitation, ultrafast spin transport, and THz emission. The active manipulation of polarization and spectral response, as well as the relevant applications such as ultra broadband measurements, magnetic structure detection and imaging, and THz near-field microscopy, are reviewed comprehensively. Finally, a brief summary and outlook are given.

Keywords: terahertz (THz), spin current, ultrafast spin transport, magnetic heterostructure

PACS: 87.50.U-, 85.75.-d, 75.78.Jp, 72.25.Rb

DOI: [10.7498/aps.69.20200757](https://doi.org/10.7498/aps.69.20200757)

* Project supported by the Science Challenge Project, China (Grant No. TZ2018003), the Young Scientists Fund of the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11504345, 11504346, 61905225, 62005256), and the China Academy of Engineering Physics Innovation Grant (Grant No. CX20200011).

† Corresponding author. E-mail: fengzheng@mtrc.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: tanwei@mtrc.ac.cn