硅基自旋光电子学太赫兹辐射源特性*

程宏阳[1)] 马倩茹[1)] 徐浩然[1)] 张慧萍[1)†] 金钻明[1)2)] 何为[3)] 彭滟[1)2)]

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) (同济大学上海智能科学与技术研究院, 上海 200092)

3) (中国科学院物理研究所, 磁学国家重点实验室, 北京 100190)

(2024 年 5 月 19 日收到; 2024 年 7 月 4 日收到修改稿)

将光电子器件集成到硅片上是光电子集成器件研发的首要步骤. 自旋光电子学太赫兹辐射源, 通常是由纳米厚度的铁磁/非磁性金属多层膜结构组成, 在飞秒激光辐照下能产生高质量、宽带太赫兹脉冲辐射. 本文利用飞秒激光脉冲在生长于硅衬底上的 Ta/CoFeB/Ir 铁磁/非磁性金属异质结中实现了高效、宽带的太赫兹相干脉冲辐射. 首先, Ta/CoFeB/Ir 异质结的太赫兹脉冲的极性随外加磁场的反转而反转, 太赫兹辐射的物理机制可以归结为超快自旋流-电荷流转换. 其次, 通过改变抽运激光的激发能量密度, 研究了 Ta/CoFeB/Ir 异质结的太赫兹辐射饱和现象. 此外, 通过研究 Ta/CoFeB/Ir 异质结的太赫兹发射特性随 Ir 层厚度的依赖关系, 不仅优化了器件的辐射强度, 而且获得了 Ir 层在太赫兹频率下的自旋扩散长度 ($\sim(0.59 \pm 0.12)$ nm). 该值小于通过自旋抽运技术获得的 GHz 频率下的自旋扩散长度 (1.34 nm), 表明不同频率范围对应于不同的电子输运机理.

关键词: 宽带太赫兹辐射, 铁磁异质结, 逆自旋霍尔效应, 自旋扩散长度

PACS: 78.47.D–, 78.20.–e, 71.70.Ej, 72.25.–b **DOI:** 10.7498/aps.73.20240703

1 引 言

太赫兹频段 (1 THz = 10^{12} Hz) 在电磁频谱中介于微波和红外光波之间的电磁波, 覆盖了固态体系中低能量的激发态. 太赫兹波的振荡周期对应于化学反应的时间尺度、固体中的元激发、声子的弛豫时间和自由载流子的碰撞时间. 大量有机大分子的振动和转动能级都处于太赫兹频段, 太赫兹波具有穿透性好, 光子能量低, 光谱分辨能力强、时间和空间相干性好等特性, 有望成为继微波和光子学技术之后人们探索世界的又一利器, 在成像、检测和传感等方面展现出重要的科学价值和广泛的应用前景[1–4].

为了充分利用太赫兹波的光谱探测能力, 产生带宽足够宽的太赫兹相干辐射成为了一项重要的研究挑战. 大多数的太赫兹辐射源都基于超短激光脉冲驱动, 常用的产生宽频太赫兹辐射方法包括光电导天线和非线性电光晶体[5,6]. 然而, 半导体和非线性晶体中产生的太赫兹辐射会在材料的光学声子共振频率附近衰减, 因此产生的太赫兹波的带宽会受到一定程度的限制[7,8]. 使用气体等离子体是产生超宽带太赫兹辐射的可行方法[9–11]. 这种方法的局限性在于必须使用飞秒激光放大器产生的光脉冲电离气体. 值得注意的是, 无论是厚度为毫米量级的非线性电光晶体, 还是气体等离子体, 都很

* 国家重点研发计划 (批准号: 2023YFF0719200, 2022YFA1404004)、国家自然科学基金 (批准号: 61988102, 62322115)、高等学校学科创新引智计划 (111 计划)(批准号: D18014) 和上海市科技创新行动计划 (批准号: 22JC1400200, 21S31907400) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: hpzhang@usst.edu.cn

难与微处理器相集成. 太赫兹技术及其应用的发展迫切需要研发频谱、偏振、功率等参数可调谐的高效、宽频带、可集成的太赫兹辐射源.

近年来, 自旋电子学和太赫兹两门学科逐渐交叉融合, 形成太赫兹自旋电子学这一新兴的研究领域[12,13]. 利用太赫兹辐射可以更好地理解电子自旋如何与磁子、声子以及带内的电子跃迁等实现相互作用[14]. 通过探测巨磁阻效应、隧穿磁电阻效应、自旋赛贝克效应等在太赫兹波段的特征, 可以进一步理解这些宏观现象的微观起源[12,15,16]. 值得注意的是, 基于自旋电子学材料的超快动力学效应, 一种由磁性金属和强自旋轨道耦合的重金属组成的纳米级尺度的异质结构太赫兹辐射源备受关注, 也被称为自旋光电子学太赫兹辐射源[17–20]. 与常用的光电导天线或光整流辐射源相比, 自旋光电子学太赫兹辐射源结构简单、无需任何刻蚀工艺, 使用方便、稳定性好, 制备成本相对较低, 能产生与气体等离子体太赫兹辐射源一样的无间断带宽. 自旋光电子学太赫兹辐射源产生的太赫兹脉冲的偏振和振幅可以通过外加磁场或电场进行调控[21–24]. 此外, 金属薄膜具有宽带光学吸收特性, 预示着该辐射源对驱动激光的波长无选择性, 即波长为400—1600 nm 的飞秒激光均可有效驱动自旋光电子学太赫兹辐射源产生宽带太赫兹辐射[25,26]. 近年来, 自旋光电子学太赫兹辐射源正逐步与其他成熟的实验系统结合实现集成应用, 如角分辨光电子发射能谱、扫描隧道显微镜等, 从而获得超快时间尺度上的动力学过程[27,28]. 除了与实验系统相集成, 纳米级厚度的自旋光电子学太赫兹辐射源有望与复杂的片上器件相集成, 这对研发下一代太赫兹光电子芯片具有重要意义.

近年来, 科学家们广泛地研究了铁磁 (FM)/非磁性重金属 (NM) 异质结产生的宽频带太赫兹辐射特性. 2013 年, Kampfrath 等[17] 比较了 Fe/Au 和 Fe/Ru 异质结发出的太赫兹脉冲. 2016 年, Seifert 等[18] 优化了双层和三层 FM/NM 异质结, 并从理论上研究了器件的总厚度对太赫兹辐射振幅的影响. 2017 年, Wu 等[29] 研究阐明了 FM/NM 双层异质结的太赫兹发射信号取决于各层的厚度. 相对于 Fe, Co 和 CoFe 作为 FM 层的自旋光电子学太赫兹辐射源, 基于 $Co_{20}Fe_{60}B_{20}$ (CoFeB) 作为 FM 层的异质结具有更强的太赫兹发射能力[30,31]. 自旋光电子学太赫兹辐射源的太赫兹辐射特性不仅强烈地依赖于 NM 层的种类、厚度, 而且受到衬底材料的影响[32,33]. 大部分的自旋光电子学太赫兹辐射源制备于氧化镁、石英等衬底上. 考虑到硅在电子学中发挥了核心作用, 因此将自旋光电子学太赫兹辐射源与硅电子学融合, 构建硅基自旋光电子学太赫兹辐射源具有重要的应用价值. 本文在硅衬底上制备了 Ta/CoFeB/Ir 三层膜异质结, 并获得了显著的太赫兹相干辐射输出. 通过调控异质结中 Ir 层的厚度, 可以有效调控太赫兹辐射的振幅. 通过 Ir 层厚度依赖的实验结果, 估算出 Ir 层中的自旋扩散长度约为 (0.59 ±0.12) nm. 实验结果表明, 自旋光电子学太赫兹辐射源能够与硅电子学器件相集成, 实现片上太赫兹辐射源.

2 异质结辐射源制备与实验表征

采用直流磁控溅射法制备硅基 Ta/CoFeB/Ir 异质结. 在氩气 Ar 压力为 0.5 Pa 的条件下, 在热氧化的 Si 衬底上先沉积 4 nm 的 Ta 作为缓冲层, 主要作用是减小异质结与衬底之间的应力, 提高薄膜质量. 在缓冲层上制备厚度为 8 nm 的铁磁层 CoFeB. 在铁磁层 CoFeB 上生长不同厚度的非磁性金属 Ir 层, 厚度分别为 0.4, 0.8, 1.2, 1.6, 2.4, 4, 6, 8, 10 nm. 直流磁控溅射系统的基压小于 4×10^{-5} Pa, Ta 层、CoFeB 层和 Ir 层的溅射速率分别是 0.27, 0.37 和 0.18 Å/s.

图 1(a) 为透射式太赫兹发射光谱系统. 钛宝石飞秒激光放大器输出激光脉冲的中心波长为 800 nm, 重复频率为 1 kHz、脉冲宽度为 120 fs. 飞秒激光脉冲通过分束器分为用于激发样品产生太赫兹脉冲的抽运光, 以及用于探测太赫兹辐射脉冲的探测光. 通过斩波器将抽运光以 500 Hz 的频率机械斩波. 抽运光正入射到 Ta/CoFeB/Ir 异质结上. Ta/CoFeB/Ir 异质结置于垂直于抽运光束方向 (沿 z 轴) 的稳恒磁场 $H=200$ mT(沿 y 轴) 中. Ta/CoFeB/Ir 异质结所产生的太赫兹辐射脉冲经过一组离轴抛物面镜聚焦到 1 mm 厚的 ⟨110⟩ ZnTe 电光晶体上. 探测光通过光学延迟线, 与太赫兹脉冲聚焦光束共线入射到 ⟨110⟩ ZnTe 晶体上. ZnTe 晶体的折射率在太赫兹脉冲的作用下发生双折射, 经过 ZnTe 晶体的探测光的偏振态随入射太赫兹脉冲时域波形的变化而改变. 通过 1/4 波片、沃拉斯顿棱镜和平衡桥光电探测器, 以探测光和

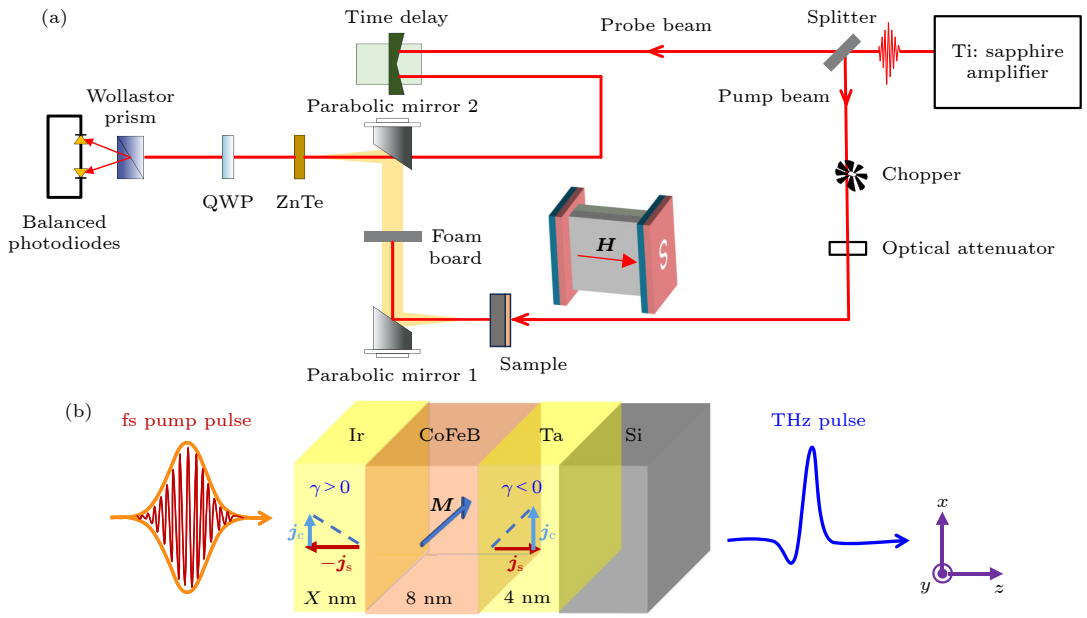


图 1 (a) 透射式太赫兹发射光谱实验系统示意图; (b) 硅基 Ta/CoFeB/Ir 异质结的太赫兹辐射物理机理示意图, 飞秒激光脉冲激发铁磁层中的自旋流 j_s 注入相邻的非磁性金属 Ta 和 Ir 层中, 转换成垂直于磁化强度 M 的电荷流 j_c

Fig. 1. (a) Experimental setup for THz emission spectroscopy in the configuration of transmission; (b) in silicon-based Ta/CoFeB/Ir THz spintronic heterostructures, a femtosecond laser pulse excites CoFeB FM layer, the spin current j_s injects into the adjacent Ta and Ir layers, and then is transformed into transverse charge current j_c, which is perpendicular to M.

太赫兹脉冲之间的时间延迟为函数, 获得太赫兹脉冲的时域信号. 实验均在室温下干燥空气中进行, 以防止空气中的水汽对太赫兹脉冲的吸收.

3 结果与讨论

图 2(a), (b) 分别给出了硅衬底上制备的 Ta (4 nm)/CoFeB (8 nm)/Ir (0.4 nm) 和 Ta (4 nm)/CoFeB(8 nm)/Ir(0.8 nm) 三层膜异质结在飞秒激光辐照后产生的太赫兹脉冲发射信号. 实验中, 正入射样品的 800 nm 抽运光的平均光功率为 50 mW, 光斑直径约为 3 mm, 即抽运光能量密度约为 1.4 mJ/cm^2.

飞秒激光脉冲照射在 FM/NM 纳米异质结构上, 由于铁磁材料能带结构的自旋相关性, 飞秒激光激发的多数自旋电子能跃迁到迁移率高的能带, 而少数自旋电子则跃迁到迁移率较低的能带 [17]. 非对称光激发产生的自旋向上电子和自旋向下电子输运速度和寿命不同, 非平衡载流子向相邻的重金属层扩散过程中形成了超快自旋流 $\boldsymbol{j}_s$. 由于 NM 层的自旋-轨道耦合效应产生的逆自旋霍尔效应 (ISHE) 或逆 Rashba-Edelstein 效应 (IREE), 或者两者兼具, 超快自旋流 $\boldsymbol{j}_s$ 转换成瞬态电荷流 $\boldsymbol{j}_c$. 瞬态电荷流 $\boldsymbol{j}_c$ 具有亚皮秒时间尺度的产生与衰减过程, 从而辐射太赫兹频段的电磁脉冲. 自旋流-电荷流转换机制遵循 $\boldsymbol{j}_c \propto \boldsymbol{j}_s \times \boldsymbol{M}$, 其中 $\boldsymbol{j}_c$ 是电荷流, $\boldsymbol{j}_s$ 是自旋流, $\boldsymbol{M}$ 是样品的磁化方向. 由于 $\boldsymbol{j}_c$ 垂直于铁磁层的磁化强度方向, 因此太赫兹辐射脉冲的偏振方向与外加磁场的方向垂直.

为了验证 Ta/CoFeB/Ir 异质结发射太赫兹脉冲的物理机制, 飞秒激光脉冲从 Ta/CoFeB/Ir 异质结的一侧入射, 当外加磁场翻转 180°, 从+$\boldsymbol{H}$ 变为–$\boldsymbol{H}$, Ta/CoFeB/Ir 异质结所发射的太赫兹脉冲的极性发生反转. 实验结果表明, 硅基 Ta/CoFeB/Ir 异质结的太赫兹辐射特性起源于异质结的磁性. 值得注意的是, 金属材料热化后, 基于黑体辐射能产生非相干的太赫兹辐射, 该辐射与磁场的方向无关. 因此, 本实验中, 基于斩波器-锁相放大器获得的是太赫兹相干脉冲辐射. 此外, $\pm\boldsymbol{H}$ 条件下测得的太赫兹辐射的振幅基本保持不变, 这也表明所辐射的太赫兹脉冲是线偏振的. 由于 Ta/CoFeB/Ir 异质结制备在硅衬底上, 无法翻转样品从衬底面入射研究太赫兹辐射与样品的对称性关系. 前期研究结果表明, 逆自旋霍尔效应是 Ta/CoFeB/Ir 异质结产生太赫兹辐射脉冲的主要物理机制, 而由铁磁层 CoFeB 的磁偶极辐射产生的太赫兹信号通常要小一个数量级. 值得注意的是, Ta 层与 Ir 层的自旋霍尔角 ($\gamma_{SH} = \boldsymbol{j}_c/\boldsymbol{j}_s$) 符号相反. 从铁磁层 CoFeB

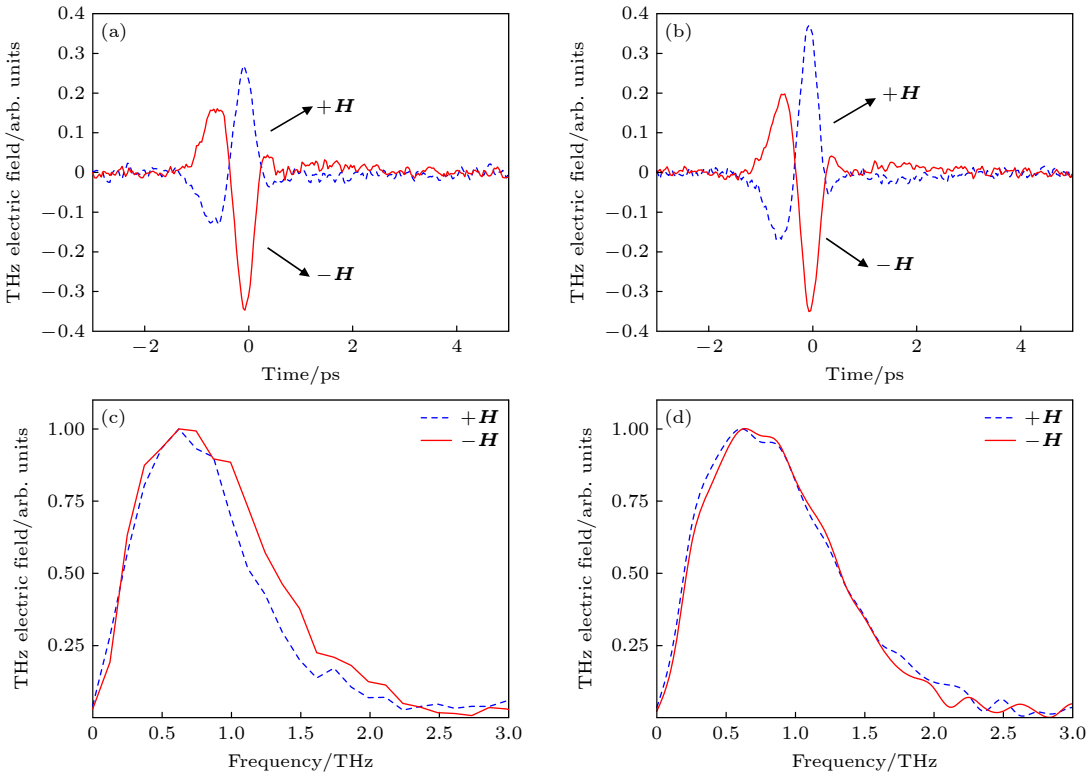


图 2 (a) Ta(4 nm)/CoFeB(8 nm)/Ir(0.4 nm) 和 (b) Ta(4 nm)/CoFeB(8 nm)/Ir(0.8 nm) 三层异质结典型的太赫兹辐射信号, 蓝色和红色曲线分别代表磁场方向为+***H***和−***H***时的太赫兹脉冲信号; 经傅里叶变换得到的归一化振幅谱 (c) Ta(4 nm)/CoFeB(8 nm)/Ir(0.4 nm) 和 (d) Ta(4 nm)/CoFeB(8 nm)/Ir(0.8 nm)

Fig. 2. (a) THz emission pulses of Ta(4 nm)/CoFeB(8 nm)/Ir(0.4 nm) and (b) Ta(4 nm)/CoFeB(8 nm)/Ir(0.8 nm) three-layer heterostructures under ±***H***; the corresponding normalized amplitude spectra by Fourier transform for (c) Ta(4 nm)/CoFeB(8 nm)/Ir(0.4 nm), (d) Ta(4 nm)/CoFeB(8 nm)/Ir(0.8 nm).

注入到金属 Ta 层与 Ir 层中的自旋流方向相反. 如图 1(b) 所示, 根据自旋流-电荷流转换机制, 方向相反的自旋流会转化为方向相同的超快电荷流, 从而相干地增加太赫兹辐射脉冲的振幅. 图 2(c), (d) 分别为 Ta(4 nm)/CoFeB(8 nm)/Ir(0.4 nm) 和 Ta(4 nm)/CoFeB(8 nm)/Ir(0.8 nm) 异质结时域信号的傅里叶变换结果. 硅衬底上制备的 Ta/CoFeB/Ir 异质结所产生的太赫兹辐射脉冲的中心频率约为 0.64 THz, 频谱范围覆盖 0.1—2.5 THz. 实验结果表明, 自旋光电子学太赫兹辐射源可以与硅基器件相集成, 且符合桌面式太赫兹时域光谱的应用需求.

如图 3(a) 所示, 从 0.42—3.36 mJ/cm^2 逐渐增大抽运激光脉冲的能量密度 $F_{\rm P}$, 观察 Ta(4 nm)/CoFeB(8 nm)/Ir(0.8 nm) 异质结产生的太赫兹脉冲的时域光谱变化. 实验结果表明, 随抽运激光脉冲能量密度的增大, 太赫兹辐射脉冲的时域波形并未发生显著的变化. 实验中所用的激光能量密度并未达到样品的破坏阈值. 图 3(b) 为该异质结的太赫兹发射脉冲的峰峰值随抽运光能量密度 $F_{\rm P}$ 的依赖关系. 太赫兹脉冲的峰峰值随着抽运光能量密度的增大而增大, 逐渐趋于饱和. 根据太赫兹辐射信号的饱和公式, $E_{\rm THz}(F_{\rm P}) \propto \dfrac{F_{\rm P}}{(F_{\rm P}+F_{\rm sat})}$, 式中 $F_{\rm P}$ 是抽运光的能量密度, $F_{\rm sat}$ 是饱和光能量密度, 对实验数据进行拟合. 根据图 3(b) 中红色虚线所示的拟合结果, 获得 Ta(4)/CoFeB(8)/Ir(0.8) 异质结的太赫兹辐射饱和能量密度为 0.73 mJ/cm^2. 该值小于双层异质结 Fe/Ru 的饱和能量密度 1 mJ/cm^2[17], 大于三层异质结 W/CoFeB/Pt 和 Ta/CoFeB/Pt 的饱和能量密度 0.47 mJ/cm^2 和 0.61 mJ/cm^2 [34].

图 4(a) 为不同 Ir 层厚度的 Ta/CoFeB/Ir 三层膜异质结的太赫兹辐射时域信号, Ir 层的厚度从 0.4 nm 增大到 10 nm. 激光脉冲能量密度为 1.40 mJ/cm^2. 图 4(b) 中的蓝色圆圈为太赫兹辐射脉冲的峰峰值随 Ir 层厚度的依赖关系. 太赫兹辐射脉冲的峰峰值随 Ir 层厚度的增大先增大, 当 Ir 层厚度大于 4.0 nm 时, 太赫兹辐射脉冲的振幅逐渐减小.

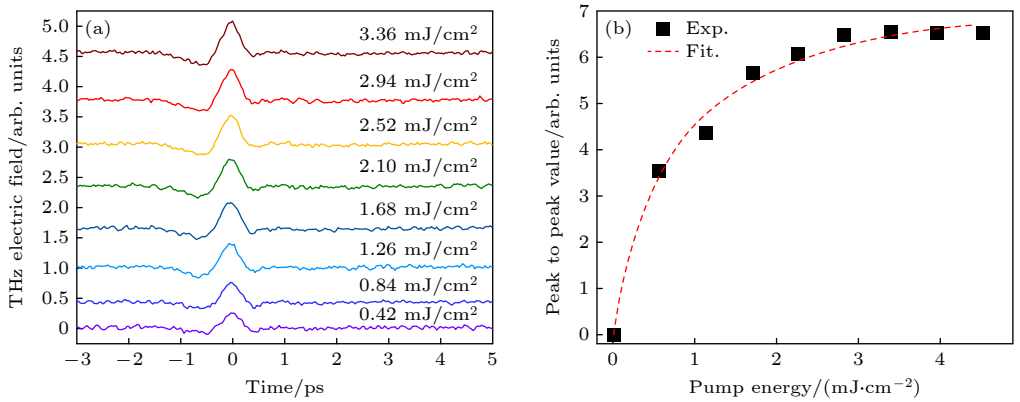


图 3 (a) Ta(4 nm)/CoFeB(8 nm)/Ir(0.8 nm) 异质结在不同抽运光能量密度下的太赫兹脉冲时域信号, 抽运激光的能量密度改变范围为 0.42—3.36 mJ/cm²; (b) 太赫兹辐射脉冲的峰峰值随入射激光脉冲能量密度的关系, 图中的实心方块为实验数据, 红色虚线为拟合结果

Fig. 3. (a) Time domain signals emitted from a Ta(4 nm)/CoFeB(8 nm)/Ir(0.8 nm) heterostructure measured under different pump fluences in a range of 0.42–3.36 mJ/cm²; (b) the peak to peak values of THz emission as a function of incident pump fluence, the symbols are raw data and the red dashed line is a fitting curve.

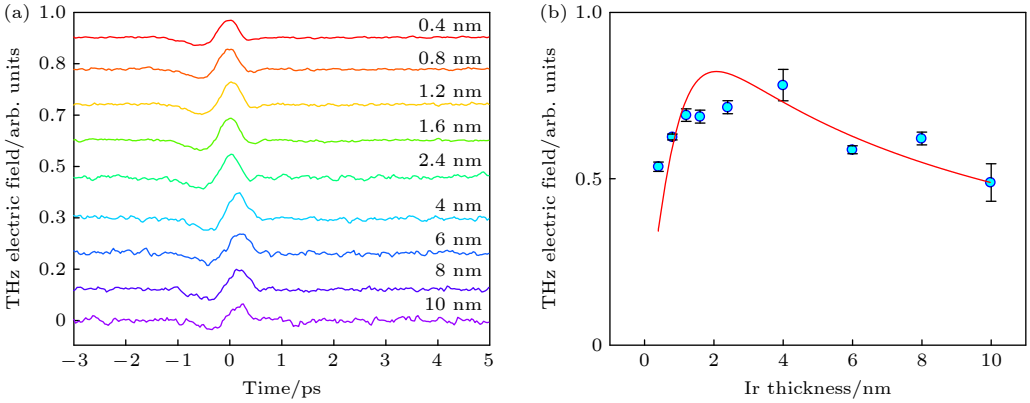


图 4 (a) Ta(4 nm)/CoFeB(8 nm)/Ir(x = 0.4—10 nm) 异质结的太赫兹辐射信号时域图; (b) 蓝色圆圈为太赫兹脉冲峰峰值随 Ir 层厚度的依赖关系; 红色曲线为 (1) 式的拟合曲线

Fig. 4. (a) THz emission from Ta(4 nm)/CoFeB(8 nm)/Ir (x = 0.4—10 nm); (b) the peak to peak amplitudes of THz emission as a function of thickness of Ir layer, the red line is a fit using a spin transport model Eq.(1).

Torosyan 等[35] 提出双层异质结太赫兹辐射电场的参数模型, 该模型包括了 FM 层和 NM 层各自的自旋扩散长度以及厚度:

$$E_{\mathrm{THz}} \propto \frac{P_{\mathrm{abs}}}{d_{\mathrm{FM}}+d_{\mathrm{NM}}}\tanh\left(\frac{d_{\mathrm{FM}}-d_0}{2\lambda_{\mathrm{pol}}}\right)\tanh\left(\frac{d_{\mathrm{NM}}}{2\lambda_{\mathrm{NM}}}\right) \times \frac{1}{n_{\mathrm{air}}+n_{\mathrm{sub}}+Z_0\cdot(\sigma_{\mathrm{FM}}d_{\mathrm{FM}}+\sigma_{\mathrm{NM}}d_{\mathrm{NM}})} \times \exp\left(-\frac{d_{\mathrm{FM}}+d_{\mathrm{NM}}}{S_{\mathrm{THz}}}\right), \tag{1}$$

式中, P_{abs} 是指双层异质结构吸收的抽运光功率密度. d_{FM} 和 d_{NM} 分别是 FM 层和 NM 层的厚度, d_0 为 FM 层具有铁磁特性的最小厚度, λ_{pol} 描述 FM 层中自旋极化饱和的特征常数. σ_{FM} 和 σ_{NM} 分别是 FM 层和 NM 层的电导率. λ_{NM} 描述在 NM 层中自旋扩散长度. S_{THz} 为 FM/NM 异质结的太赫兹波衰减系数的倒数. n_{air}, n_{sub}, Z_0 = 377 Ω 分别为空气的折射率、太赫兹频率范围衬底的折射率以及真空阻抗.

值得注意的是, 本研究中 Ta 层的厚度固定为 4 nm, CoFeB 层的厚度固定为 8 nm, 只改变了 Ir 层的厚度. 因此, 可以利用 (1) 式描述的太赫兹发射模型对实验数据进行拟合. 此时, CoFeB 的 d_0 取为 1.53 nm[36]. λ_{pol} 取为 0.3 nm[35], n_{sub} 取 3.425, σ_{CoFeB} = 0.6 × 10⁶ Ω⁻¹·m⁻¹ [37], σ_{Ir}= 4 × 10⁶ Ω⁻¹·m⁻¹ [38]. (1) 式中, λ_{NM} 和 S_{THz} 做为拟合参数. 尽管这个模型中忽略了自旋流在 NM 层上的背向反射, 仅把 Ir 层简化为指数型自旋流衰减层, 拟合曲线较好地解释了实验数据 (图 4(b) 中红色实线),

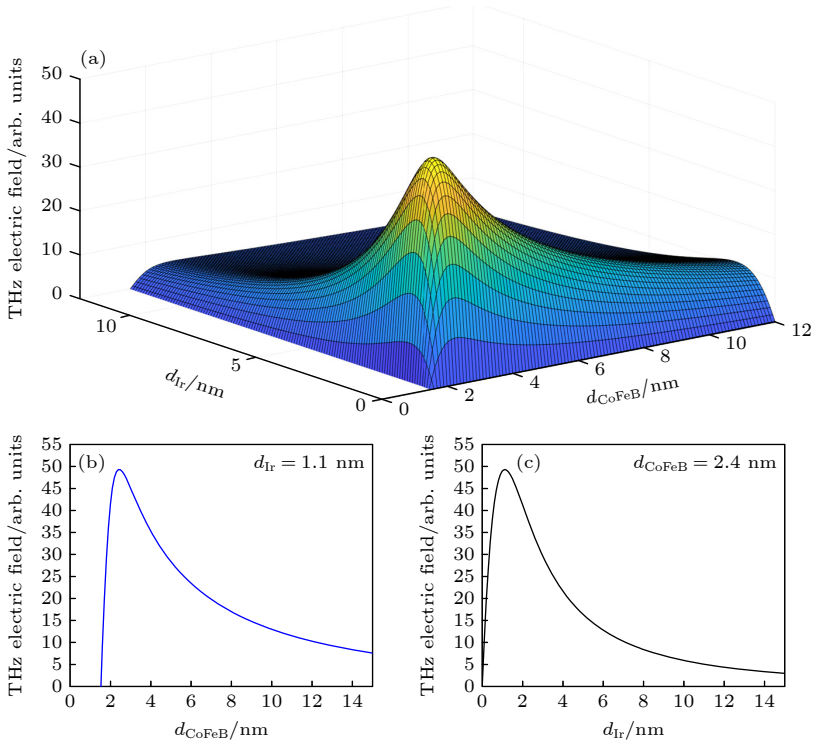


图 5 (a) 基于不同厚度 CoFeB/Ir 异质结的模拟太赫兹辐射强度的等高线图; (b) Ir 层为优化厚度 1.1 nm 时, 太赫兹辐射强度随 CoFeB 层厚度的依赖关系; (c) CoFeB 层为优化厚度 2.4 nm 时, 太赫兹辐射强度随 Ir 层厚度的依赖关系

Fig. 5. (a) Contour plot of the simulated terahertz amplitude based on the CoFeB and Ir layer thickness; (b) terahertz amplitude of CoFeB/Ir heterostructure in terms of CoFeB thickess variation, measured at thickness of Ir is 1.1 nm; (c) terahertz amplitude of CoFeB/Ir heterostructure as a function of Ir thickess, measured at thickness of CoFeB is 2.4 nm.

进而获得了太赫兹频率下非磁金属 Ir 层的平均自旋扩散长度 λ_{Ir} 为 (0.59 ± 0.12) nm. 之前我们研究了 CoFeB/Ir 异质结的自旋泵浦效应, 通过宽带铁磁共振技术测量了吉赫兹频率下 Ir 的自旋扩散长度为 1.34 nm[39]. 相比而言, 在吉赫兹波段测到的平均自旋扩散长度约为太赫兹波段的 2 倍, 表明当自旋输运从吉赫兹过渡到太赫兹频段后, 自旋输运的性质会发生改变. 采用自旋抽运和太赫兹光谱技术, 在反铁磁体 IrMn 中也观察到相似的结果[40]. 在 0.5—30 THz 频率内测得 $\lambda_{IrMn}\approx(0.4\pm0.1)$ nm$-(0.6\pm0.1)$ nm, 在 9.6 GHz 频率下测得 $\lambda_{IrMn}\approx(1.6\pm0.1)$ nm $-$ (2.2 ± 0.5) nm. 与吉赫兹实验相比, 在太赫兹频率下, 自旋流的特征传播长度短了 4 倍. 可能的原因在于, 在太赫兹频率下, 弹道电子输运机制占主导, 而在吉赫兹频率下, 电子扩散传输机制占主导, 且混合有磁振子输运的贡献[40]. 值得注意的是 FM 层与 NM 层的界面对自旋流-电荷流转换的贡献可以相当大, 甚至起主导作用.

利用 (1) 式描述的太赫兹发射模型, 当已知 FM 层和 NM 层的物理参数后, 可以优化厚度不同的 FM/NM 异质结的太赫兹辐射特性. 理论计算结果表明, Fe/Pt 双层异质结太赫兹辐射的优化组合是 Fe 层厚度为 1.6 nm, Pt 层厚度为 1.8 nm. Fe/Au 双层异质结太赫兹辐射源中的 Fe 层和 Au 层厚度的最佳组合为 1.8 nm 和 5.6 nm, 这与 Panahi 等[41] 报道的理论结果一致. 最后, 理论计算了 CoFeB/Ir 异质结的太赫兹辐射电场强度随 CoFeB 层和 Ir 层厚度的依赖关系, 如图 5(a) 所示. 当 CoFeB 层的厚度为 2.4 nm, Ir 层的厚度为 1.1 nm 时, CoFeB/Ir 异质结的太赫兹相干输出达到极值. 如图 5(b) 所示, 当 Ir 层的厚度优化为 1.1 nm 时, 太赫兹辐射的电场强度随 CoFeB 层厚度的增大先增大后减小, 当 CoFeB 层厚度达到 2.4 nm 时太赫兹辐射强度达到极大值. 如图 5(c) 所示, 当 CoFeB 层的厚度优化为 2.4 nm 时, 太赫兹电场强度随 Ir 层厚度的增大先增大, 当 Ir 层厚度为 1.1 nm 左右达到极大值. 当 Ir 层厚度超过 1.1 nm 后, 太赫兹辐射场强逐渐减小.

4 总 结

本文在硅片衬底上设计并制备了 Ta/CoFeB/

Ir 铁磁/非磁性金属异质结太赫兹辐射源. 首先验证了该硅基自旋光电子学太赫兹辐射源的太赫兹相干脉冲辐射的物理机制主要是逆自旋霍尔效应. 其次, 通过改变抽运激光的能量密度, 研究了 Ta/CoFeB/Ir 异质结的太赫兹辐射饱和现象. 此外, 通过研究 Ta/CoFeB/Ir 异质结的太赫兹发射特性随 Ir 层厚度的依赖关系, 获得了 Ir 层在太赫兹频率下的自旋扩散长度. 该值小于通过自旋抽运技术获得的吉赫兹频率下的自旋扩散长度, 表明不同频率范围对应于不同的电子输运机理. 最后, 从理论上优化了 CoFeB 层和 Ir 层的厚度, 以获得太赫兹辐射的极大值. 本文阐明了自旋光电子学太赫兹辐射源可以与硅基器件相集成, 且符合桌面式太赫兹时域光谱的应用需求, 同时也提出通过改变铁磁和非磁性金属层的厚度实现自旋光电子学太赫兹辐射源的优化.

参考文献

[1] Neu J, Schmuttenmaer C A 2018 *J. Appl. Phys* **124** 231101

[2] Lyu J M, Shen S Y, Chen L, Zhu Y M, Zhuang S L 2023 *Photoni X* **4** 31

[3] Zhu Y, Zang X F, Chi H X, Zhou Y W, Zhuang S L 2023 *Light Adv. Manuf.* **4** 104

[4] Zang X F, Yao B S, Chen L, Xie J Y, Guo X G, Balakin A V, Shkurinov A P, Zhuang S L 2021 *Light Adv. Manuf.* **2** 148172

[5] Han Z H, Sun K L, Cai Y J 2021 *Acta Opt. Sin.* **41** 258270 (in Chinese) [韩张华, 孙开礼, 蔡阳健 2021 光学学报 **41** 258270]

[6] Wu X J, Ren Z J, Kong D Y, Hao S B, Dai M C, Xiong H T, Li P Y 2022 *Chin. J Lasers* **49** 1914001 (in Chinese) [吴晓君, 任泽君, 孔德胤, 郝思博, 代明聪, 熊虹婷, 李培炎 2022 中国激光 **49** 1914001]

[7] Chen Q, Zhang X C 1999 *Appl. Phys. Lett.* **74** 3435

[8] Tu C M, Ku S A, Chu W C, Luo C W, Chen J C, Chi C C 2012 *J. Appl. Phys.* **112** 093110

[9] Zhang Z L, Chen Y P, Cui S, He F, Chen M, Zhang Z, Yu J, Chen L M, Sheng Z M, Zhang J 2018 *Nat. Photonics* **12** 554

[10] Fedorov V Y, Tzortzakis S 2020 *Light Sci. Appl.* **9** 186

[11] Zhang Z L, Chen Y P, Chen M, Zhang Z, Yu J, Sheng Z M, Zhang J 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 243901

[12] Jin Z M, Tkach A, Casper F, Spetter V, Grimm H, Thomas A, Kampfrath T, Bonn M, Kläui M, Turchinovich D 2015 *Nat. Phys.* **11** 761

[13] Jin Z M, Guo Y Y, Ji B Y, Li Z S, Ma G H, Cao S X, Peng Y, Zhu Y M, Zhuang S L 2022 *Acta Opt. Sin.* **51** 0751410 [金钻明, 郭颖钰, 季秉煜, 李章顺, 马国宏, 曹世勋, 彭滟, 朱亦鸣, 庄松林 2022 光子学报 **51** 0751410]

[14] Kampfrath T, Tanaka K, Nelson K A 2013 *Nat. Photonics* **7** 680

[15] Matsuda T, Kanda N, Higo T, Armitage N P, Nakatsuji S, Matsunaga R 2020 *Nat. Commun.* **11** 909

[16] Jin Z M, Li J G, Zhang W J, Guo C Y, Wan C H, Han X F, Cheng Z X, Zhang C, Balakin A V, Shkurinov A P, Peng Y, Ma G H, Zhu Y M, Yao J Q, Zhuang S L 2020 *Phys. Rev. Appl.* **14** 014032

[17] Kampfrath T, Battiato M, Maldonado P, Eilers G, No¨tzold J, Ma¨hrlein S, Zbarsky V, Freimuth F, Mokrousov Y, Blügel S, Wolf M, Radu I, Oppeneer P M, Münzenberg M 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 256

[18] Seifert T, Jaiswal S, Martens U, Hannegan J, Braun L, Maldonado P, Freimuth F, Kronenberg A, Henrizi J, Radu I, Beaurepaire 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

[19] Liu J Y, Lee K, Yang Y S, Li Z Q, Sharma R, Xi L F, Salim T, Boothroyd C, Lam Y M, Yang H, Battiato M, Chia E E M 2022 *Phys. Rev. Appl.* **18** 034056

[20] Wang Y K, Li W W, Cheng H, Liu Z, Cui Z Z, Huang J, Xiong B, Yang J W, Huang H L, Wang J L, Fu Z P, Huang Q P, Lu Y L 2023 *Commun. Phys.* **6** 280

[21] Wu W P, Lendinze S, Kaffash M T, Schaller R D, Wen H D, Jungfleisch M B 2022 *Appl. Phys. Lett.* **121** 052401

[22] Chu X B, Jin Z M, Wu X, Li J N, Shen Y, Wang R Y, Ji B Y, Li Z S, Peng Y 2023 *Acta Phys. Sin.* **72** 157801 (in Chinese) [褚欣博, 金钻明, 吴旭, 李婧楠, 沈阳, 王若愚, 季秉煜, 李章顺, 彭滟 2023 物理学报 **72** 157801]

[23] Agarwal P, Huang L S, Lim S T, Singh R 2022 *Nat. Commun.* **13** 4072

[24] Chaurasiya A, Li Z Q, Medwal R, Gupta S, Mohan J R, Fukuma Y, Asada H, E. M. Chia E, Rawat R S 2022 *Adv. Opt. Mater.* **10** 2201929

[25] Jin Z M, Guo Y Y, Peng Y, Zhang Z Y, Pang J Y, Zhang Z Z, Liu F, Ye B, Jiang Y X, Ma G H, Zhang C, Balakin A V, Shkurinov A P, Zhu Y M, Zhuang S L 2023 *Adv. Phys. Res.* **2** 2200049

[26] Levchuk A, Juvé V, Otomalo T O, Chirac T, Rousseau O, Solignac A, Vaudel G, Ruello P, Chauleau J P, Viret M 2023 *Appl. Phys. Lett.* **123** 012407

[27] Chen S H, Feng Z, Li J, Tan W, Du L H, Cai J W, Ma Y C, 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

[28] Cocker T L, Jelic V, Gupta M, Molesky S J, Burgess J A J, Reyes G D L, Titova L V, Tsui Y Y, Freeman M R, Hegmann F A 2013 *Nat. Photonics* **7** 620

[29] Wu Y, Elyasi M, Qiu X P, Chen M J, Liu Y, Ke L, Yang H 2017 *Adv. Mater.* **29** 1603031

[30] Sasaki Y, Kota Y, Iihama S, Suzuki K Z, Sakuma A, Mizukami S 2019 *Phys. Rcv. B* **100** 140406

[31] Zhang S N, Jin Z M, Zhu Z D, Zhu W H, Zhang Z Z, Ma G H, Yao J Q 2018 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51** 034001

[32] Vogel T, Omar A, Mansourzadeh S, Wulf F, Sabanés N M, Müller M, Seifert T S, Weigel A, Jakob G, Kläui M, Pupeza L, Kampfrath T, Saraceno C J 2022 *Opt. Express* **30** 20451

[33] Jin Z M, Peng Y, Ni Y Y, et al. 2022 *Laser Photonics Rev.* **16** 210068

[34] 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]

[35] Torosyan G, Keller S, Scheuer L, Beigang R, Papaioannou E T 2018 *Sci. Rep.* **8** 1311

[36] Belmeguenai M, Apalkov D, Gabor M, Zighem F, Feng G, Tang G 2018 *IEEE T. Magn.* **54** 11

[37] Seifert T S, Tran N M, Gueckstock O, et al. 2018 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51** 364003

[38] Saito Y, Tezuka N, Ikeda S, Endoh T 2021 *Phys. Rev. B.* **104** 064493
[39] Sun R, Li R, Xie Z K, Li Y, Zhao X T, Liu W, Zhang Z D, Zhu T, Cheng Z H, He W 2020 *J. Magn. Magn. Mater.* **497** 165971
[40] Gueckstock O, Seeger R L, Seifert T S, Auffret S, Gambarelli S, Kirchhof J N, Bolotin K I, Baltz V, Kampfrath T, Nádvorník L 2022 *Appl. Phys. Lett.* **120** 062408
[41] Panahi O, Yahyaei B, Mousavi S Y, Ghiasabad A M 2020 *Laser Phys.* **30** 055001

Terahertz emission characterization of silicon based ferromagnetic heterostructures*

Cheng Hong-Yang [1)] Ma Qian-Ru [1)] Xu Hao-Ran [1)] Zhang Hui-Ping [1)†]
Jin Zuan-Ming [1)2)] He Wei [3)] Peng Yan [1)2)]

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

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

3) (*State Key Laboratory of Magnetism*, *Institute of Physics*, *Chinese Academy of Sciences*, *Beijing* 100190, *China*)

(Received 19 May 2024; revised manuscript received 4 July 2024)

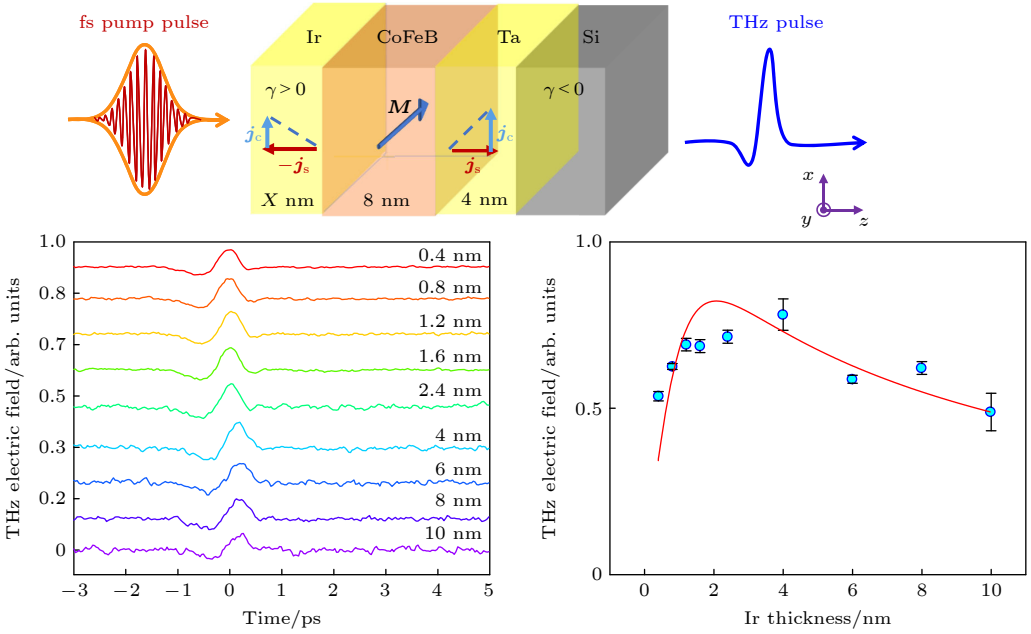
Abstract

Terahertz spectroscopy and imaging have many applications, so the generation of broadband terahertz radiation is very important, but now it faces some challenges. Opto-spintronic terahertz emitters, composed of nanometer-thin magnetic multilayer, can produce high-quality broad-band terahertz pulses. Integration of opto-spintronic terahertz emitters onto the silicon wafers is the first step towards their usage in modern photonic devices. In this work, Ta/CoFeB/Ir heterostructures are deposited on thermally oxidized silicon wafers by dc magnetron sputtering. Under the illumination of a femtosecond laser pulse on the Ta/CoFeB/Ir trilayer heterostructure grown on silicon substrate, a spin current can be generated in the ferromagnetic layer due to the ultrafast demagnetization. The spin current is transported and injected into the neighboring non-magnetic metal layers of Ta and Ir. Consequently, the spin current can be converted into the charge current due to the strong spin-orbit coupling. The sub-picosecond transient charge current gives rise to the terahertz radiation that enters into the free space. The terahertz electric field is fully inverted when the magnetization is reversed, which indicates a strong connection between THz radiation and spin order of the heterostructure. The THz radiation from Ta/CoFeB/Ir heterostructure covers the 0.1–2.5 THz frequency range with a maximum value of about 0.64 THz. We also investigate the dependence of THz peak-to-peak value on the pump fluence. The THz emission is found to be saturated at a pump fluence of ~0.73 mJ/cm^2. Our results demonstrate the existence of the strong spin-orbit coupling in the heavy metal Ir. Furthermore, we optimize the THz emission from the Ta/CoFeB/Ir heterostructure by changing the thickness of Ir layer. According to the thickness dependence of THz emission from the heterostructure, the propagation length of the spin current at THz frequencies is extracted to be about (0.59±0.12) nm, which is shorter than the GHz experimental measurement (~1.34 nm).

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant Nos. 2023YFF0719200, 2022YFA1404004), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61988102, 62322115), the 111Project (Grant No. D18014), and the Science and Technology Commission of Shanghai Municipality, China (Grant Nos. 22JC1400200, 21S31907400).

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

Our experimental observation is consistent with that in the antiferromagnet IrMn layer, which may be attributed to different transport regimes. Theoretically, the optimized thickness values for CoFeB and Ir layers are 2.4 nm and 1.1 nm, respectively.



Keywords: broadband terahertz radiation, ferromagnetic heterostructure, inverse spin hall effect, spin diffusion length

PACS: 78.47.D–, 78.20.–e, 71.70.Ej, 72.25.–b **DOI:** 10.7498/aps.73.20240703

物理学报 Acta Physica Sinica
Chinese Physical Society
Institute of Physics, CAS

硅基自旋光电子学太赫兹辐射源特性

程宏阳 马倩茹 徐浩然 张慧萍 金钻明 何为 彭滟

Terahertz emission characterization of silicon based ferromagnetic heterostructures

Cheng Hong-Yang Ma Qian-Ru Xu Hao-Ran Zhang Hui-Ping Jin Zuan-Ming He Wei Peng Yan

引用信息 Citation: Acta Physica Sinica, 73, 167801 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20240703
在线阅读 View online: https://doi.org/10.7498/aps.73.20240703
当期内容 View table of contents: http://wulixb.iphy.ac.cn
