

太赫兹自旋光电子专题编者按

Preface to the special topic: Terahertz spintronic optoelectronics

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 200101 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.200101

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.200101>

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

柔性电子专题编者按

Preface to the special topic: Flexible electronics

物理学报. 2020, 69(17): 170101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.170101>

光学超构材料专题编者按

Preface to the special topic: Optical metamaterials

物理学报. 2020, 69(15): 150101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.150101>

电介质材料和物理专题编者按

Preface to the special topic: Dielectric materials and physics

物理学报. 2020, 69(12): 120101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.120101>

探索凝聚态中的马约拉纳粒子专题编者按

Preface to the special topic: Majorana in condensed matter

物理学报. 2020, 69(11): 110101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.110101>

低维材料非线性光学与器件专题编者按

Preface to the special topic: Nonlinear optics and devices of low-dimensional materials

物理学报. 2020, 69(18): 180101 <https://doi.org/10.7498/aps.69.180101>

InAs/GaSb量子阱中太赫兹光电导特性

Terahertz photoconductivity in InAs/GaSb based quantum well system

物理学报. 2018, 67(18): 187301 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180769>

专题：太赫兹自旋光电子

太赫兹自旋光电子专题编者按

DOI: 10.7498/aps.69.200101

太赫兹辐射在电磁波谱上位于红外和微波之间, 频率通常划定为 0.1—10.0 THz. 太赫兹光子能量低 (约 4.1 meV (1 THz)), 对应半导体带内载流子动力学和非线性光学效应所需能量, 对应关联电子体系中众多重要的单粒子和集体激发能量尺度, 对应液态水氢键网络的慢弛豫转动能级, 生物大分子集体振动频率, 宇宙大爆炸背景辐射的主要能量等. 太赫兹技术不仅可用于研究关联电子体系的量子多体问题, 水科学和复杂生物体系的能量转移和转化问题, 宇宙起源和生命起源的本质问题, 而且在移动通信、检测病毒、医疗成像、安检反恐、探索宇宙等方面有着极其重要的应用前景. 随着 5G 的普及, 6G 应用已提上日程. 6G 将全面进入太赫兹时代, 太赫兹技术也逐渐走进了大众的视野, 成为人类认识世界的“第三只眼睛”.

1971 年, 人们在铈酸锂晶体中获得了人类历史上第一束太赫兹脉冲激光. 经过近半个世纪的快速发展, 虽然部分太赫兹技术已逐步从实验室研究向应用阶段过渡, 但太赫兹领域的关键瓶颈问题依然没有得到很好的解决. 高效率辐射源、高灵敏度探测器和功能器件的缺乏, 直接阻碍了太赫兹科学与技术的发展, 成为电磁场与电磁波领域的关键核心问题之一. 事实上, 一个国家的太赫兹技术水平很大程度上取决于该国的太赫兹源水平, 进而牵动了其他相关领域的发展. 由于太赫兹源的缺乏, 现有太赫兹研究大多处于弱场被动检测的线性区, 然而产生强场太赫兹辐射并用其驱动物质发生相变或精确操控物质量子状态已经成为太赫兹领域重要发展方向.

自旋电子学与太赫兹科技在近二十年来经历了它们狂热的青春期, 都领略着自己空前繁荣的辉煌时代. 随着学科交叉融合的深入, 太赫兹与自旋电子学的联手正在创造更多的惊喜. 例如, 1) 超快激光泵浦的自旋激发太赫兹辐射为低成本、超宽带、易集成、偏振可调谐的太赫兹辐射源提供了思路; 2) 太赫兹时域光谱技术及其与低温和强磁场的结合, 为磁性系统自旋动力学表征和研究提供了新的方法; 3) 利用强太赫兹辐射的电场或磁场分量对磁性或其他物质系统实现非绝热量子状态调控是令人非常着迷而热门的研究课题.

为进一步促进国内同行的交流, 《物理学报》组织出版了“太赫兹自旋光电子”专题, 邀请活跃在本领域的部分专家, 从太赫兹与自旋体系的物理和材料方面, 以不同的视角介绍本领域的最新进展和未来趋势. 鉴于太赫兹科学与技术和自旋电子学属于交叉学科, 具有多样性及复杂性的特点, 本专题只能重点介绍太赫兹自旋光电子领域的部分研究成果, 与读者和同行分享. 从研究内容上, 目前可大致分为两类: 一是探索自旋太赫兹发射物理规律, 寻找下一代新型太赫兹辐射材料; 二是探索太赫兹电磁场和电磁波与自旋材料的相互作用物理和应用.

希望本专题能有助于扩大太赫兹自旋光电子学在海内外华人学者中的影响, 吸引更多学者, 尤其是年轻学者的关注和加入, 为我国在本领域的蓬勃发展增添新生力量.

(客座编辑: 吴晓君 北京航空航天大学; 王楠林 北京大学)

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

Preface to the special topic: Terahertz
spintronic optoelectronics

DOI: 10.7498/aps.69.200101

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¹⁾ Chandan Pandey²⁾ 孔德胤¹⁾ 王春³⁾⁴⁾ 聂天晓^{2)5)†}
赵巍胜²⁾⁵⁾ 苗俊刚¹⁾ 汪力³⁾ 吴晓君^{1)‡}

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^[1]. 在飞秒激光激发的太赫兹源中^[2–5], 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^[6–17], 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^[18], 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^[7,8], 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^[19,20], 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^[21]. 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: niantianxiao@buaa.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: 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 [8]. 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 [11]. Sasaki 等 [11] 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 [22]; 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 [11]. 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, 剩余能量用于电光采样探测太赫兹波 [23]. 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 $\langle 110 \rangle$) 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

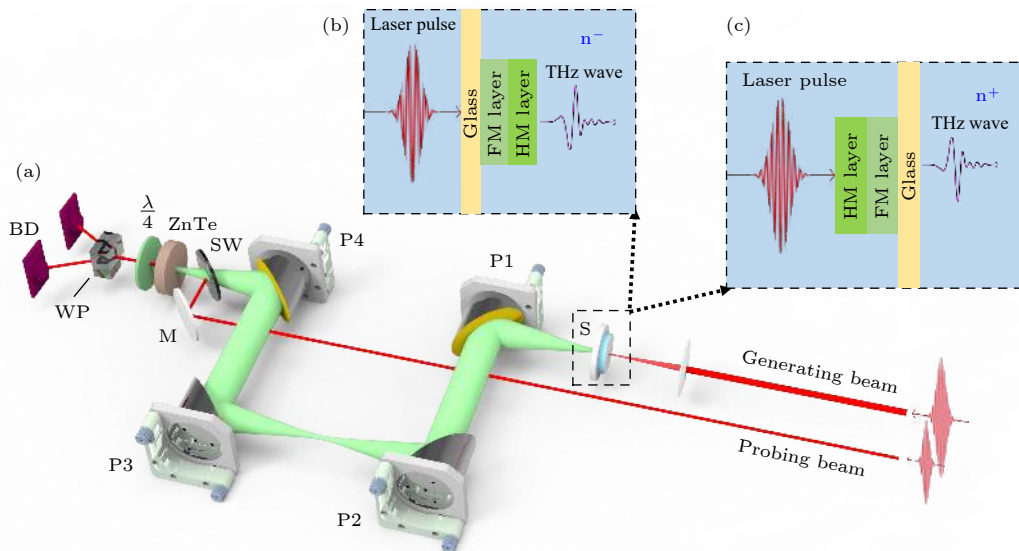


图 1 实验装置示意图以及样品结构信息 (a) 太赫兹发射实验装置: BD, 平衡探测器; WP, 沃拉斯顿棱镜; $\lambda/4$, 1/4 波片; SW, 硅片; M, 铝反射镜; P1—P4, 90°离轴抛物面镜; S, 样品; (b), (c) 对 n^- 和 n^+ 的定义: 抽运激光入射到玻璃基底定义为 n^- , 入射异质结薄膜定义为 n^+ . HM, 重金属, 包括钨和铂; FM, 铁磁性金属, 即钴铁硼

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 ($1 \text{ Torr} = 1.33 \times 10^2 \text{ Pa}$)^[24]. 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 Å/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°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^[11]. 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,

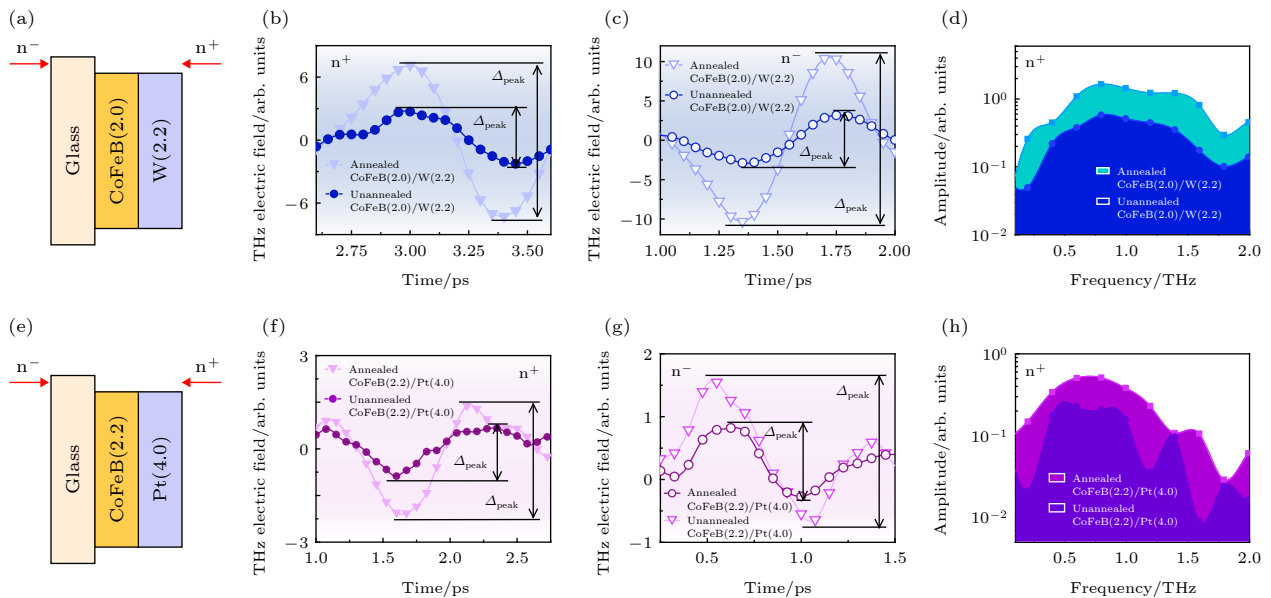


图 2 (a), (e) 钴铁硼 (2.0)/钨 (2.2) 和钴铁硼 (2.2)/铂 (4.0) 双层结构示意图; (b), (c) 退火和未退火的钴铁硼 (2.0)/钨 (2.2) 样品辐射的时域太赫兹波形, 分别对应 n^+ 和 n^- 情况; (f), (g) 退火和未退火的铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 样品辐射的时域太赫兹波形, 分别对应 n^+ 和 n^- 情况; (d), (h) 退火和未退火钴铁硼 (2.0)/钨 (2.2), 钴铁硼 (2.2)/铂 (4.0) 样品辐射太赫兹波的频谱

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^[8]. 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^[24]. 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^[8] 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^[25–27], 而退火不会对晶体结构以及钨^[28] 和铂^[25] 中相关的性质产生显著影响. 这种再结晶可能会提高钴铁

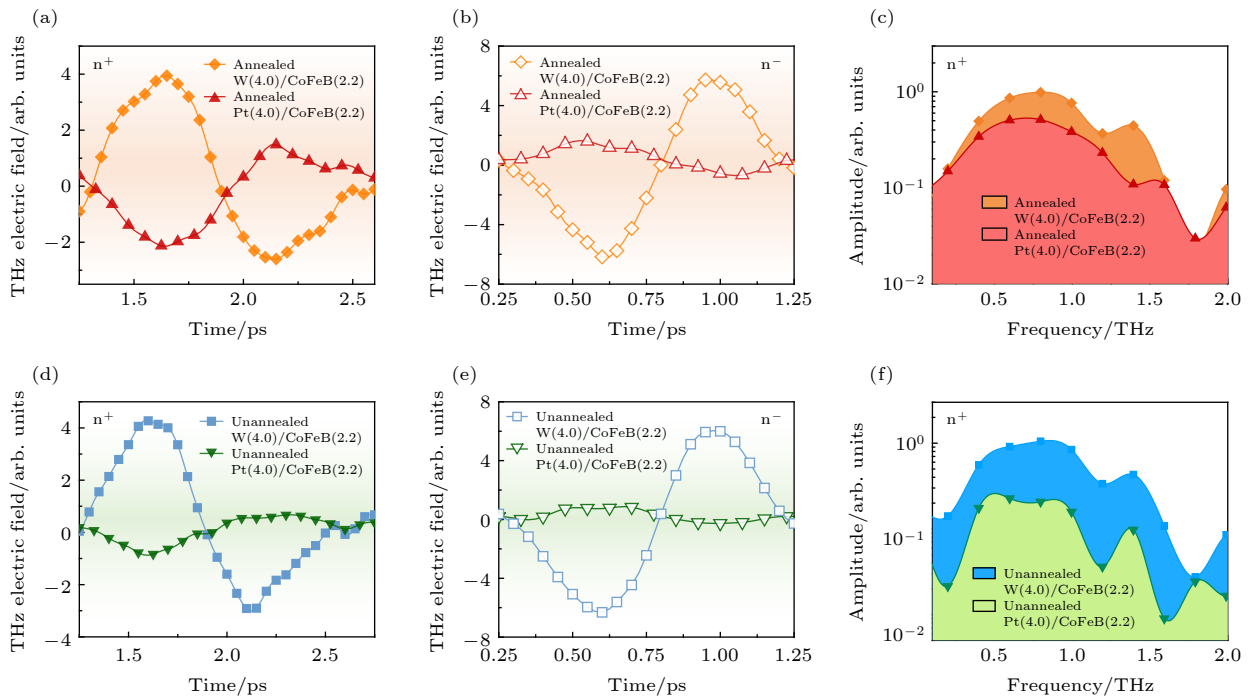


图 3 (a), (b) 当两个样品都经退火处理, 飞秒激光脉冲分别从正 (n^+) 和负 (n^-) 侧入射到钨 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 和铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 纳米薄膜上产生的太赫兹时域信号; (d), (e) 未退火样品的结果; (c), (f) 退火和未退火的钴铁硼 (2.2)/钨 (4.0) 和钴铁硼 (2.2)/铂 (4.0) 辐射太赫兹波的频谱

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^[29]. 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

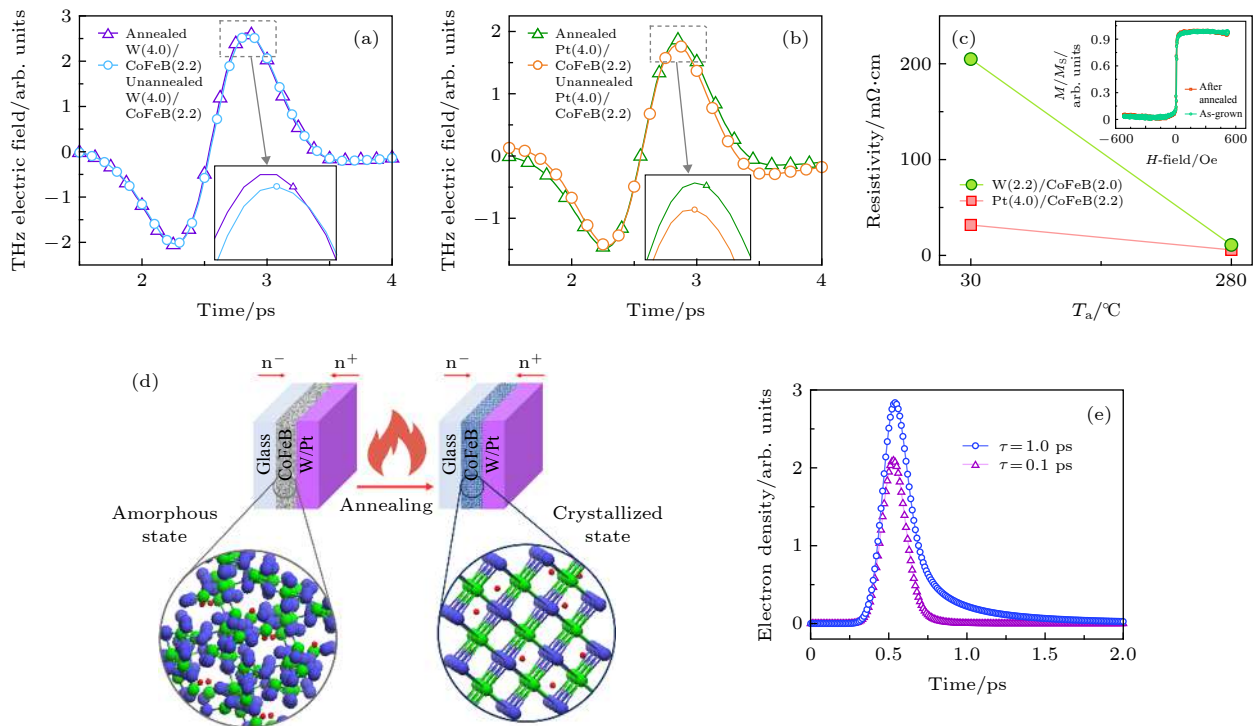


图 4 (a), (b) 退火和未退火状态下, 钨 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 和铂 (4.0)/钴铁硼 (2.2) 样品透射的太赫兹时域信号, 插图为峰值放大图; (c) 样品电阻率的退火温度依赖性, 插图为样品的磁光克尔测量结果; (d) 退火前后, 钴铁硼从非晶态结晶转为结晶态的原子结构示意图; (e) $z = z_s$ 处, 电子密度的模拟结果, 其中电子速度 $v = 0.5 \text{ nm/fs}$

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 $v = 0.5 \text{ nm/fs}$.

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^[30]. 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^[31], 第一次散射之前的电子密度为

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

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, τ 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 τ 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结界面的质量. Zega 等^[32] 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, Hammegann 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] Belmeguenai M, Aitoukaci K, Zighem F, Gabor M, Petrisor J T, Mos R, Tiusan C 2018 *J. Appl. Phys.* **123** 113905
- [26] Swampy 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 Yang¹⁾ Chandan Pandey²⁾ Kong De-Yin¹⁾ Wang Chun³⁾⁴⁾
 Nie Tian-Xiao^{2)5)†} Zhao Wei-Sheng²⁾⁵⁾ Miao Jun-Gang¹⁾
 Wang Li³⁾ Wu Xiao-Jun^{1)‡}

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

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

自旋电子太赫兹源研究进展

许涌 张帆 张晓强 杜寅昌 赵海慧 聂天晓 吴晓君 赵巍胜

Research advances in spintronic terahertz sources

Xu Yong Zhang Fan Zhang Xiao-Qiang Du Yin-Chang Zhao Hai-Hui Nie Tian-Xiao Wu Xiao-Jun
Zhao Wei-Sheng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 200703 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200623

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200623>

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>

太赫兹液晶材料与器件研究进展

Research progress of terahertz liquid crystal materials and devices

物理学报. 2019, 68(8): 084205 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20182275>

高相干超快电子源研究进展

Recent progress of high-coherence ultrafast electron sources

物理学报. 2017, 66(15): 152901 <https://doi.org/10.7498/aps.66.152901>

太赫兹半导体激光光频梳研究进展

Research progress of terahertz semiconductor optical frequency combs

物理学报. 2020, 69(18): 189501 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200399>

专题：太赫兹自旋光电子

自旋电子太赫兹源研究进展*

许涌^{1)2)#} 张帆^{1)2)#} 张晓强²⁾ 杜寅昌²⁾ 赵海慧¹⁾
聂天晓¹⁾ 吴晓君^{3)†} 赵巍胜^{1)2)‡}

1) (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)

2) (北京航空航天大学合肥创新研究院, 合肥 230012)

3) (北京航空航天大学电子信息工程学院, 北京 100191)

(2020 年 4 月 27 日收到; 2020 年 5 月 23 日收到修改稿)

太赫兹频段在电磁波谱上位于红外和微波之间, 兼具宽带性、低能性、高透性、指纹性等诸多优势特性, 在航空航天、无线通信、国防安全、材料科学、生物医疗等领域具有重要的应用前景. 太赫兹科学与技术的发展和应用在很大程度上受限于源的水平, 新型太赫兹辐射源的机理研究和器件研制至关重要. 自旋太赫兹发射不仅从物理上提供了操控飞秒自旋流的可能, 而且有望成为下一代超宽带、低成本、高效率新型太赫兹源的优选. 本文系统地综述了自旋电子太赫兹源的发展历程、实验装置、发射机理、材料选择, 以及前景展望, 重点介绍了飞秒激光诱导的超快自旋流、铁磁和非磁界面的自旋电荷转换以及太赫兹发射等物理机制方面的研究进展. 本文还分别介绍了基于重金属、拓扑绝缘体、Rashba 界面和半导体等体系的自旋电子太赫兹源.

关键词: 太赫兹源, 铁磁/非磁异质结, 超快退磁, 自旋电荷转换**PACS:** 07.57.Hm, 65.80.-g, 64.70.Nd, 85.75.-d**DOI:** 10.7498/aps.69.20200623

1 概述

在过去的二十年里, 利用飞秒激光激发和操控磁化动力学过程一直是个活跃的研究领域. 1996 年 Beaupaire 等^[1]首次发现飞秒激光在 Ni 薄膜上诱导了亚皮秒的超快退磁效应. 超快退磁效应的时间尺度远小于自旋进动时间, Beaupaire 等^[1]的开创性实验引发了人们对超快磁化动力学的关注和研究.

飞秒激光脉冲和自旋间的相互作用让人们可以在亚皮秒时间尺度上实现自旋操控, 对整个自旋电子学带来极大的应用前景. 随后文献中报道了更多磁性金属材料的超快退磁现象. 实验上超快退磁

效应的主要研究手段是时间分辨磁光克尔效应 (time-resolved magneto-optic Kerr effect, TRMOKE), 伴随着对超快退磁机制的深入研究, 人们发现超快时间尺度上磁光信号存在非磁性的贡献, 因此超快退磁实验结果的可靠性长期存在着质疑和争论^[2-4]. 超快磁化动力学研究需要独立于 TRMOKE 的实验方案. 2004 年 Beaupaire 等^[5]率先利用磁性材料的太赫兹发射谱研究超快退磁效应, 他们观测到飞秒激光照射到磁性材料产生的太赫兹脉冲. 该方案利用麦克斯韦电磁感应的原理, 即超快退磁产生的磁偶极子变化伴随着太赫兹波的发射.

磁性薄膜退磁产生的太赫兹发射信号较弱, 因

* 国家自然科学基金 (批准号: 11904016, 61905007, 61627813)、北航合肥创新研究院项目 (批准号: BHKX-19-01, BHKX-19-02) 和北京市自然科学基金 (批准号: 4194083) 资助的课题.

同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: xiaojunwu@buaa.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: weisheng.zhao@buaa.edu.cn

此自旋太赫兹发射谱在较长时间内一直作为研究超快磁动力学过程的辅助手段, 未受到广泛的重视^[6,7]. 然而, 铁磁 (ferromagnetic, FM)/非磁 (non-magnetic, NM) 异质结的太赫兹发射由于引入了自旋-电荷流转换 (spin-charge conversion, SCC) 机制获得极大成功. 2013 年, Kampfrath 等^[8]报道了 Fe/Au 和 Fe/Ru 异质结中的太赫兹发射实验, 他们发现利用逆自旋霍尔效应 (inverse spin Hall effect, ISHE) 可以有效地把热电子层间扩散引起超快自旋流转化为面内的电荷流, 从而提高太赫兹辐射性能. 2016 年 Seifert 等^[9]进一步对铁磁/非磁异质结进行了材料、厚度等一系列优化, 并且把铁磁/非磁双层结构改良为 W/CoFeB/Pt 三层结构. 他们发现在 10 fs 激光入射的条件下, 自旋薄膜不仅可以实现 1—30 THz 的超宽带辐射, 而且在该条件下太赫兹发射的效率、带宽等指标达到或超过商业化的光导天线和非线性晶体. Wu 等^[10]也报道了铁磁/非磁双层膜的太赫兹发射信噪比达到了 65 dB.

本文主要介绍利用磁性异质结材料实现太赫兹发射的实验和理论方面的进展, 回顾了各种材料体系中的自旋太赫兹发射的研究进展, 涵盖了超快磁化动力学的基础理论、自旋-电荷流转换机制、材料体系、性能优化等多个方面.

2 太赫兹实验装置

2.1 太赫兹时域发射光谱

历史上, 第一个利用脉冲激光作用于铌酸锂晶体产生太赫兹脉冲于 1971 年获得^[11], 通过光电导

天线产生太赫兹脉冲于 1981 年实现^[12]. 然后, 贝尔实验室的 Auston 等^[13]采用电光采样方法实现了太赫兹波的相干探测, 得到了太赫兹波的时域波形. 1995 年, 电光取样技术被提出^[14]. 自旋电子太赫兹源的实验研究主要依靠太赫兹时域光谱仪 (terahertz time-domain spectroscopy, THz-TDS). 基于此发展而来的 THz-TDS 目前已经有成熟的商业化解决方案.

THz-TDS 的典型光路图如图 1 所示. 超快飞秒激光被分成抽运光和探测光, 两束光之间的光程差由延迟线控制. 抽运光激发太赫兹源产生太赫兹波, 90°离轴抛物面镜^[15]用于准直和聚焦太赫兹波. 太赫兹波经一次准直后聚焦在待测样品上, 经过样品透射后的太赫兹波经过二次准直后聚焦在太赫兹探测器上. 探测光作用于太赫兹探测器利用线性电光效应或者光电导效应均可探测太赫兹波的瞬时电场, 改变抽运光和探测光之间的光程差可以得到太赫兹波的时域波形. 瞬时改变探测光与太赫兹脉冲的延迟, 可以对太赫兹脉冲进行时域采样, 通过傅里叶变换可得到相应的频域谱.

基于上述太赫兹时域光谱系统, 只需将实验装置中的发射器更换为自旋电子太赫兹源就可以进行发射机理和特性的研究. 自旋发射器不仅可以用于低能飞秒激光振荡器抽运, 还可以用于高能飞秒激光放大器抽运. 为此, 产生的太赫兹辐射既可用于高信噪比的物质表征应用, 也可用于强场太赫兹非线性研究. 此外, 自旋器件中的太赫兹发射来源于磁偶极子或超快电流脉冲, 因此 THz-TDS 常被用于研究材料的超快磁动力学行为和自旋相关的输运行为等, 未来太赫兹发射谱将可能更多地用于表征反铁磁体中自旋极化电流的输运.

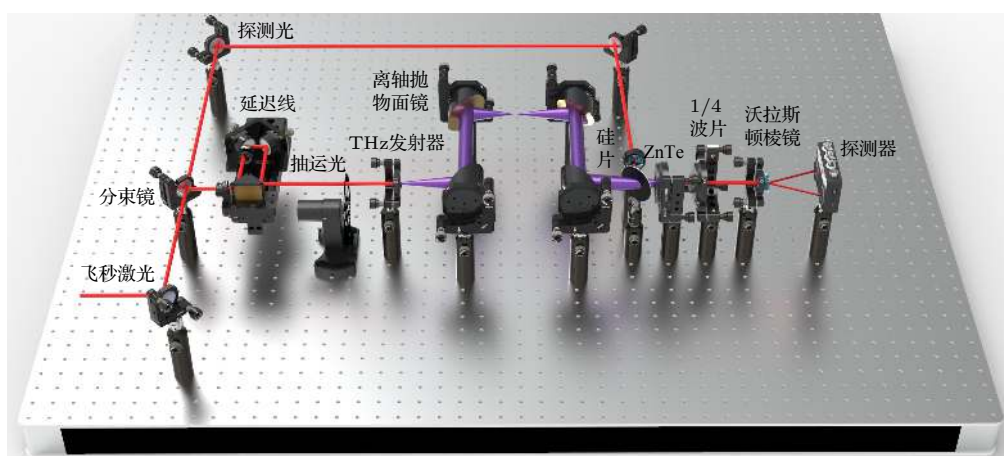


图 1 透射式太赫兹发射谱仪的光路示意图

Fig. 1. Schematic diagram of experimental setup of spintronic terahertz emission spectroscopy in transmission geometry.

2.2 太赫兹源

THz-TDS 中常见的太赫兹源包括光电导天线以及各种非线性晶体. 商用的光电导天线主要是低温 GaAs 或 InGaAs, 通过光电导效应产生太赫兹辐射. 天线由半导体材料基底和在其上镀的两个电极构成, 飞秒激光照射天线表面产生的光生载流子在两电极之间的强电场作用下加速, 形成瞬态电流, 从而辐射太赫兹波. 但是由于空间电荷效应和电场击穿, 无法使用较大功率的抽运激光和施加较强的电场, 因此限制了此方法产生太赫兹辐射的效率. 另一方面, 商用化的光电导天线加工工艺难度大, 制备成本高, 且易损坏.

非线性晶体是通过光整流效应产生太赫兹辐射. 当飞秒激光在非线性晶体中传播时, 不同频率成分的光在晶体中的差频作用会产生一个低频极化电场, 从而向外辐射太赫兹波. 除了 LiNbO₃, ZnTe 等常用的无机晶体外, DAST, DSTMS, OH1 等有机晶体也能与飞秒激光作用产生较强的太赫

兹辐射^[16-18]. 非线性晶体与飞秒激光作用产生的太赫兹辐射具有信号强度大、频谱范围宽的优点, 但由于非线性晶体存在声子吸收以及损伤阈值等因素, 难以进一步提高抽运激光的能量, 因此无法产生更强的太赫兹辐射. 此外, 这些非线性晶体无法批量生长, 价格较高, 且尺寸受到限制.

自旋电子太赫兹源 (图 2) 利用飞秒激光和铁磁薄膜的相互作用产生太赫兹波. 自旋电子太赫兹源不仅可以产生超宽带太赫兹辐射, 而且还可以实现强场太赫兹辐射, 同时还具有高效、廉价的特点, 在众多太赫兹源中, 具有独特的优势. 相较于电光晶体的尺寸受限, 磁性多层膜可以使用磁控溅射设备大规模低成本均匀制备. 2017 年, Seifert 等^[19]提出可以使用扩束后的激光脉冲 (能量为 5.5 mJ, 中心波长为 800 nm, 持续时间为 40 fs, 重复频率为 1 kHz) 来激发强场太赫兹发射. 他们采用半高宽为 4.8 cm 的飞秒激光作用到大面积的自旋薄膜上, 成功产生持续时间仅为 230 fs 的单周期太赫兹脉冲, 且峰值电场高达 300 kV/cm.

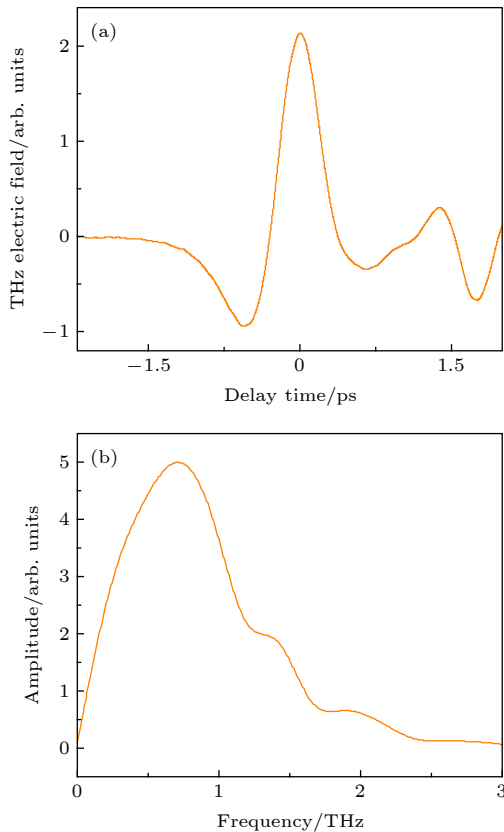


图 2 铁磁/非磁异质结太赫兹发射 (a) 时域波形; (b) 频谱

Fig. 2. The time-domain waveform and frequency-domain spectrum of the terahertz wave emitted by FM/NM heterostructures: (a) The time-domain waveform; (b) frequency-domain spectrum.

3 自旋电子太赫兹源辐射机制

3.1 超快自旋流的产生和输运

通常材料中的光吸收由复折射率决定, 金属的光学性质唯象地由复折射率 $\tilde{n} = n + i\kappa$ 表征, 其中 n 为折射率, κ 消光系数. 纳米多层膜结构中存在多个层间界面, 需要考虑光场在多界面间的反射过程. 传输矩阵法 (transfer matrix method) 在光学中常用于分析光在多层结构中传播和吸收. 此外最近文献中报道了通过表面等离极化激元^[20]和光子晶体结构^[21]等方法可进一步调控光在空间上的吸收. 飞秒激光脉冲在时间上为高斯分布, Wang 等^[22]在双抽运实验中采用了一对飞秒激光脉冲, 通过改变两个激光脉冲之间的时间差可以调控光场在时间上的分布.

对于常见的磁性金属材料, 光与金属之间的相互作用发生在光电场和金属导带电子之间. 光子能量以热的形式通过碰撞转移到电子, 线偏振光与材料的相互作用主要体现为能量的传递. Beaupaire 等^[1]利用三温度模型 (three-temperature model) 唯象地解释了 Ni 的超快退磁效应. 三温度模型假设存在电子 (e)、自旋 (s) 和晶格 (p) 三者独立的子系统, 三个子系统的温度 (T) 分别为 T_e , T_s 和 T_p ,

比热容 (C) 分别为 C_e , C_s 和 C_p , 三个子系统间的能量传递速率用 G_{es} , G_{ep} 和 G_{sp} 描述. 当电子受到飞秒激光激发后, 自旋表现出不同于电子的温度演化过程. 三温度模型能够唯象地解释 Ni 薄膜中的亚皮秒退磁曲线. 但是, 该模型仅讨论了电子、自旋和晶格之间的能量传递, 并未分析超快退磁效应中的角动量传递. Koopmans 等 [23] 进一步考虑了微观的自旋翻转散射 (Elliott-Yaffet 散射) 过程, 提出了微观三温度模型 (microscopic three-temperature model). 该模型成功解释了在过渡金属材料 and 稀土材料中发现的两类退磁行为.

除了局域的能量弛豫和散射机制外, 非局域的自旋输运也影响着超快退磁效应 [24]. 电子受飞秒激光激发成自旋极化的热电子, 异质结样品中光场能量分布的不均匀性导致了自旋极化热电子的输运 (自旋流). 热电子输运的类型取决于长度尺度和自旋散射率. 在弱散射条件下, 几乎不受散射影响的电子输运为弹道输运; 在强散射条件下, 输运是扩散类型. Choi 等 [25] 研究了强散射条件下的自旋输运过程, 他们发现 Pt (30 nm)/FM/Cu 结构中, 飞秒激光激发 Pt 一侧间接地加热 FM 层. 由于 Pt 中电子-电子和电子-声子散射较强, 热电子的非弹性平均自由程为 5 nm, 因此到达 FM 层的热电子密度被大大地抑制. 根据角动量的守恒, FM 层因加热产生的退磁效应产生了自旋流. TRMOKE 结果证实自旋流输运满足扩散方程. Bergeard 等 [26] 和 Xu 等 [27] 研究了弱散射条件下的退磁效应. 他们发现 Pt(5 nm)/Cu(5—300 nm)/FM 结构中, Pt (5 nm) 受飞秒激光的激发产生热电子, 热电子穿过 Cu 到达 FM 层并产生退磁效应. 他们发现当 Cu 层的厚度小于 200 nm 时, 穿过 Cu 层的热电子表现出弹道输运的特点.

超扩散输运发生在扩散输运和弹道输运之间. 超扩散输运中, 少部分粒子进行长距离的弹道输运, 而大部分粒子是散射的. Battiato 等 [28,29] 指出超扩散输运可能引发超快退磁效应. 在常见的 3d 铁磁金属中激发产生的多数自旋电子和少数自旋电子寿命不同, 多数载流子具有高的平均自由程, 而少数载流子的移动性较差. 多数自旋会导致磁性薄膜中大多数载流子从表面转移而产生退磁. 此外, 由于铁磁金属 (如 Fe, Co 和 Ni) 中自旋向上 (多数) 电子的密度、带速和寿命的乘积高于自旋向下 (少数) 电子的密度、带速和寿命的乘积, 因

此超扩散输运产生的电流是自旋极化的. Nenno 等 [30] 提出了一种基于玻耳兹曼输运方程求解热电子分布函数的方法. 模拟结果表明在超扩散机制下, 飞秒激光脉冲触发了具有皮秒上升时间的自旋输运过程. 由于非平衡热电子输运的驱动力来自于样品空间上的温度梯度, 因此飞秒激光激发的自旋输运也可以看作是一种超快自旋相关的塞贝克 (Seebeck) 效应 [25,31,32].

3.1.1 光子能量的影响

对于基于 NM/FM 结构的全金属磁性多层膜, 文献报道了可见光到近红外多个波长抽运激光诱导的太赫兹发射结果. 多个研究均表明抽运激光在电子系统中注入的能量, 而抽运激光的波长对太赫兹发射效率影响不大. 自旋流是由抽运脉冲激发的热电子引起, 所涉及的光学跃迁的细节影响较小 [33–35]. 然而, 最近 Cheng 等 [36] 在 FM/MoS₂ 结构中将超快自旋流可注入半导体材料单层 MoS₂, 并发射太赫兹脉冲. 由于铁磁金属/半导体界面势垒的存在, 该体系的自旋注入过程强烈地依赖于光子能量.

3.1.2 旋光性相关的太赫兹发射

当圆偏振光作用在材料上时, 激光脉冲和材料之间除了能量转移外还伴随着角动量转移. 圆偏振光可诱导产生一个平行于光波矢量的有效磁场, 这个效应称为逆法拉第效应 (inverse Faraday effect, IFE). 逆法拉第效应在激光诱导的磁性薄膜的全光翻转 (all-optical switching) 中起着至关重要的作用 [37,38]. 此外, 半导体中的研究证实圆偏振光还可以直接诱导产生自旋极化的电子. 根据跃迁的光学选择定则, 圆偏振光可以在导带内产生自旋极化电子. 在磁性半导体中, 自旋极化电子产生光自旋传递矩 (optical spin transfer torque, OSTT) 作用于磁性半导体的磁矩 [39,40]. 常见 3d 铁磁金属中, 理论计算 [41] 和实验测量结果 [42] 都证实 IFE 和 OSTT 往往同时存在. Huisman 等 [43] 的实验发现 Co/Pt 界面的面内磁矩受圆偏振光作用而发生偏转, 并且进而通过逆自旋轨道转矩 (inverse spin-orbit torque) 飞秒脉冲电流并辐射太赫兹波.

磁矩受圆偏振光作用而倾斜的方向是 $[\mathbf{M} \times \boldsymbol{\sigma}]$, 其中 $\boldsymbol{\sigma}$ 是平行或反平行于光传播方向的单位矢量 [43]. 异质结界面存在空间反演对称性破缺和自旋轨道

耦合, 圆偏振光诱导的磁矩倾斜通过反自旋轨道转矩 (inverse spin orbit torque) 产生光电流 $j_e = \chi \mathbf{n} \times [\mathbf{M} \times \sigma] I$, 其中 χ 是一个系数, $\mathbf{n}$ 是界面法向量, I 是圆偏振光的光强. Huisman 等 [43] 通过圆偏振光激发 Co/Pt 界面的太赫兹辐射, 发现入射光的旋光特性决定了光电流的方向. 最近 Li 等 [44] 研究了 Co/Pt 界面的微观结构特性在光电流的产生中起的作用. Jungfleisch 等 [45] 报道了 Rashba 界面 Ag/Bi 的旋光性相关的太赫兹发射. 相比于超快退磁产生的旋光性无关的太赫兹发射, 旋光性相关的太赫兹发射强度通常要弱一到两个数量级.

3.2 自旋-电荷转换

2013 年 Kampfrath 等 [8] 通过自旋轨道耦合实现了自旋-电荷流的转换, 从而大大提高了自旋薄膜的太赫兹发射效率. 自旋电子太赫兹发射器由铁磁 (FM) 和非铁磁 (NM) 金属薄膜组成的双层结构. 飞秒激光脉冲激发产生 FM/NM 热电子的超扩散输运过程, 自旋流注入 NM 通过自旋-电荷转换将亚皮秒的自旋流转化为电荷流. 本节主要讨论因超快热退磁产生的超快自旋流转化为电荷流的机制.

3.2.1 逆自旋霍尔效应

过去 10 年里自旋霍尔效应 (spin Hall effect, SHE) 是自旋电子学非常活跃的研究方向 [46–48]. SHE 将非磁材料中的电流转换成横向自旋流, 从而在边缘的产生自旋累积. 早期 SHE 的研究集中在半导体中. 实验上, 磁光效应 [49] 和输运测量 [50] 证实了半导体材料中自旋霍尔效应的存在. 近年来的研究发现在强自旋轨道耦合 (spin orbit coupling, SOC) 的重金属或合金中, SHE 诱导的自旋流可以有效地诱导纳米磁器件的磁矩翻转或磁畴位移 [51,52].

自旋轨道耦合也带来了 SHE 的逆过程, 即逆自旋霍尔效应 (inverse spin Hall effect, ISHE). ISHE 将一个纵向的自旋流 j_s 转化成横向的电荷流 $j_c \propto \theta_{SH} j_s$, 其中 θ_{SH} 代表了材料的自旋霍尔角. 在铁磁共振实验中, 研究人员已经将 ISHE 用于自旋流的探测中 [53,54]. 类似地, 磁性材料在飞秒激光的作用下产生超快自旋流, 并且注入到强 SOC 的非磁层中, ISHE 将超快自旋流转化为超快电荷流, 从而产生太赫兹辐射 (图 3).

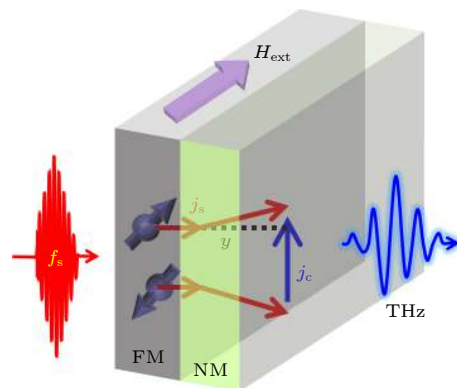


图 3 面内磁化的铁磁薄膜 FM 被飞秒激光激发, 自旋极化的非平衡热电子注入非磁层. 根据逆自旋霍尔效应, 多数电子和少数电子在不同方向偏转, 从而将纵向自旋流转换为横向的电荷流, 产生了太赫兹发射

Fig. 3. The in-plane magnetized ferromagnetic layer is excited by the femtosecond laser, which induces the injection of non-equilibrium spin-polarized hot electrons into the non-magnetic layer. The spin-majority electrons and the spin-minority electrons are deflected into opposite directions due to inverse spin Hall effect. The longitudinal spin current is converted into a transverse electric current and leads to the terahertz emission.

3.2.2 逆埃德尔斯坦 (Edelstein) 效应

拓扑绝缘体体系中存在强自旋-轨道相互作用, 材料表面态形成两个自旋分裂能带. 狄拉克点上/下能带的等高线形成顺时针/逆时针的自旋-动量锁定 (spin-momentum locking). 利用拓扑绝缘体的表面/界面可高效地将电荷流转化为自旋流, 即埃德尔斯坦效应 (Edelstein effect, EE) (见图 4), 其逆过程 [55] 被称为逆埃德尔斯坦效应 (inverse Edelstein effect, IEE). 当从相邻的铁磁 (FM) 层注入自旋流 j_s 到 Dirac 表面态时, 通过 IEE 将产生横向二维电荷电流 $j_c = \lambda_{IEE} j_s$, 其中 λ_{IEE} 代表自旋-电荷转换的效率. 实验上通常通过铁磁共振的产生自旋流注入拓扑绝缘体. 文献 [56–59] 中报道了 α -Sn, Bi_2Se_3 等拓扑绝缘体的自旋-电荷转换效应.

除拓扑绝缘体外, 在二维电子气体 (2DEG) 中形成的 Rashba 界面也表现出高效的自旋-电荷相互转换. 在一些异质结中, 由于自旋-轨道耦合以及空间反演对称性的破缺, Rashba 界面形成了两重简并的能带结构, 其中自旋和动量是紧密关联. 强烈的 Rashba 耦合一般需要 Bi, Pb, W 等强 SOC 的重金属 [60,61]. Rojas-Sánchez 等 [62] 研究了 Bi/Ag 界面的自旋可通过 IEE 效应高效地转换电荷流.

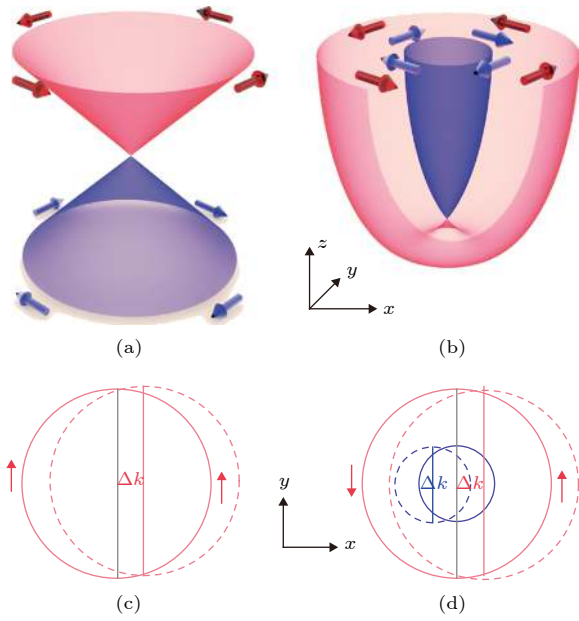


图4 (a) 拓扑绝缘体表面的能量色散关系图; (b) Rashba 界面的能量色散关系图, Rashba 界面态和拓扑绝缘体表面态中形成了强烈的自旋-动量锁定; (c) 拓扑绝缘体表面的逆 Edelstein 效应; (d) Rashba 界面的逆 Edelstein 效应, 注入 y 极化的自旋流密度诱导出 x 方向的电荷流^[57]

Fig. 4. (a) Energy dispersion of the Rashba interface; (b) energy dispersion of the topological insulator. Strong spin-momentum locking can be observed in interface states of the Rashba interface and surface states of the topological insulator; (c) the inverse Edelstein effect of Rashba interfaces; (d) the inverse Edelstein effect of topological insulator surface states. The y -polarized spin current induces a charge current in the x direction^[57].

3.3 太赫兹发射

3.3.1 磁偶极子

从经典的麦克斯韦电磁学理论可以得知磁偶极子能够发射电磁波, 磁性材料中飞秒激光可以通过激发超快退磁过程. 飞秒激光诱导自旋动力学的一个重要发现是, 太赫兹应该直接从铁磁层的磁化变化中发出. 假设抽运脉冲相干地激发了薄膜中的基本磁偶极子, 产生一种磁矩沿着 x 方向时变磁化, 那么远场发出的电场 $E_y(t) = \frac{\mu_0}{4\pi^2 r} \frac{\partial^2 M_x}{\partial t^2} \left(t - \frac{r}{c}\right)$ 太赫兹波的沿着 z 方向传播, 电场沿 y 方向极化, 其中 M_x 是磁矩的 x 分量, r 为到磁偶极子的距离, μ_0 为真空磁导率, c 为光速. 磁偶极子发射太赫兹瞬态电场由磁矩随时间的二次导数决定. 2004 年 Beaupaire 等^[5] 通过超快退磁诱导的磁偶极子辐射解释了铁磁薄膜 Cr(3 nm)/Ni(4.2 nm)/Cr(7 nm) 的太赫兹辐射效应. 2019 年 Huang 等^[63] 测量了 Co(30 nm) 薄膜的 TRMOKE 信号和太赫兹发射

信号, 发现 TRMOKE 的二阶导数与观测到的太赫兹发射信号一致.

通常在采用厚铁磁层和线偏振抽运激光器时, 铁磁层的超快退磁和再磁化过程起主导作用, 其他太赫兹发射机制 (3.2 节) 可以忽略. Huisman 等^[64] 在稀土过渡金属合金中发现了例外. 他们比较了 TRMOKE 和太赫兹发射光谱得到的超快磁化动力学. 他们发现在纯 Co 和 GdFeCo 中, 磁光克尔效应和太赫兹发射光谱的结果在定性和定量吻合得较好, 但对于 NdFeCo 的太赫兹发射谱表明该材料的此动力学过程比 TRMOKE 测得的结果更快, 两种表征方法差异可能来源于 Nd 轨道磁矩的影响.

3.3.2 脉冲电流

磁偶极子发射太赫兹较弱, 可忽略. 超快自旋流经过自旋-电荷转换为超快脉冲电流 $\mathbf{J}$, 超快脉冲电流发射太赫兹的解满足 $\nabla^2 \mathbf{E} + \omega^2 \mu_0 \varepsilon \mathbf{E} = \mu_0 i \omega \mathbf{J}$, 其中 ε 是介电常数和角频率 ω . 该微分方程揭示了太赫兹辐射是如何从超快电流脉冲产生的^[65]. Nenno 等^[66] 假设脉冲电荷流密度与位置无关, 得到了太赫兹电场的解析解.

4 自旋电子太赫兹源材料体系

FM/NM 结构中铁磁层材料选择对太赫兹信号幅度影响较小, 非磁层材料选择对太赫兹信号幅度影响很大. NM 层内和 FM/NM 界面处的自旋-电荷转换机制决定着太赫兹发射的行为和效率. 以下主要回顾不同 NM 层情形下的太赫兹发射结果.

4.1 重金属

当 NM 层是重金属时, 偏振无关的太赫兹发射过程占主导地位, 而偏振相关的太赫兹发射强度通常会弱一到两个数量级^[44]. 偏振无关的太赫兹发射过程中逆自旋霍尔效应起关键作用, 太赫兹发射行为具有以下特点: 1) 所发射的太赫兹波为线性偏振, 其电场方向垂直于样品磁化方向; 2) 太赫兹发射与抽运光的偏振方向无关; 3) 当外磁场方向翻转或者当 FM/NM 的生长顺序调换时, 太赫兹电场的方向随之翻转.

4.1.1 发射性能优化

自旋太赫兹发射源的优化从非磁层材料、异质结厚度、多周期结构和引入其他发射机制等多个

角度展开.

1) 非磁层材料优化. ISHE 主导的太赫兹发射中, 太赫兹波的极性由非磁层的自旋霍尔角的符号决定^[9,10,67]. 例如 Pt, Ir, Gd, Ru, Pd 等的太赫兹辐射极性与 W, Ta 相反, 自旋轨道耦合较弱的 Cu 太赫兹信号很弱. 因为 W 和 Pt 自旋霍尔角较大且符号相反, Seifert 等^[9]设计了 W/CoFeB/Pt 三层结构以提高太赫兹振幅. 三层结构充分利用了前后两个方向传播的自旋流. Chen 等^[68]发现 Co/IrMn 异质结中, IrMn 层可以将自旋流转化为电荷流产生太赫兹发射. IrMn 的厚度为 1 nm 时太赫兹信号强度出现峰值, 该厚度与 IrMn 的自旋扩散长度一致.

2) 异质结厚度优化. 研究人员系统地研究了 CoFeB/Pt, Co/Pt, Co/W, Fe/Pt 等铁磁/非磁结构的厚度依赖性研究^[10,19,69]. Co/Pt 体系中当改变铁磁层厚度时, 太赫兹信号的强度通常首先随着铁磁层厚度先增大后减小; 当改变非磁层厚度时, 太赫兹信号的强度均随着非磁层厚度的增加而增大, 然后趋于饱和. 非磁层 Pt 在厚度为 3 nm 左右太赫兹信号强度饱和. 上述的厚度依赖关系可以通过 FM/NM 结构中的自旋输运理论解释. 在飞秒激光作用下产生的非平衡自旋流受 NM 层的自旋扩散长度的限制. 当 NM 厚度小于自旋扩散长度时, 太赫兹信号随着薄膜厚度的增加; 当非磁层厚度大于自旋扩散长度厚, 多余的非磁层对太赫兹发射没有贡献. 进一步的研究表明非磁层厚度依赖关系需要综合考虑异质结构中自旋输运、界面的自旋损耗^[70]以及异质结材料的电学和光学特性的影响^[71].

3) 衬底及多层膜晶体结构的影响. Torosyan 等^[71]和 Nenno 等^[72]比较了外延生长在 MgO 和 Al₂O₃ 衬底上的 Fe/Pt 异质结, 其中 Fe 在 MgO 衬底上能够较好地外延生长. 太赫兹发射谱表明 MgO 衬底的异质结在低于 3 THz 的动态范围超过了 60dB, 明显优于 Al₂O₃ 衬底. Sasaki 等^[73]发现 300 °C 对退火后的 Ta/CoFeB/MgO 薄膜的太赫兹发射强度提高 1.5 倍. 退火工艺提高了 CoFeB 薄膜结晶化程度, 因而增加了 CoFeB 层中多数自旋热电子平均自由程.

4.1.2 稀土-过渡金属磁性层

稀土-过渡金属 (real earth-transition metal, RE-TM) 合金的两个磁性亚晶格, 即稀土晶格和过

渡金属晶格间存在反铁磁耦合, 两种亚晶格的磁化强度具有不同的温度依赖性, 因此通过改变合金成分和温度都可以调节材料的净磁化强度. RE-TM 在温度补偿点或成分补偿点时净磁化强度将为零, 但 RE-TM/NM 双层膜仍可发射太赫兹波. RE-TM 在补偿点仍可以激发超扩散自旋流, 其净磁化强度与发射的太赫兹信号没有很强的关联性^[68,74]. 过渡金属亚晶格的自旋分裂带更接近费米能级, 因此, 抽运激光所产生的超扩散自旋电流主要由过渡金属亚晶格中的电子所贡献^[75]. RE-TM 在补偿点附近时表现出垂直各向异性, 面内磁化强度分量的降低会带来太赫兹发射强度的下降. 另外, Schneider 等^[76,77]分析了不同成分的 GdFe/Pt 和 TbFe/Pt, 他们发现太赫兹发射强度随着 RE-TM 合金中稀土元素成分的增加而降低.

4.1.3 铁磁绝缘体

磁性材料中温度梯度诱导出相同方向自旋流的效应称为自旋塞贝克效应 (spin Seebeck effect, SSE). 对于钇铁石榴石/非磁金属 (YIG/NM) 异质结, YIG 在垂直于膜面的温度梯度作用下产生自旋流并注入到 NM 层, 非磁层中的 ISHE 效应进一步将自旋流转化为可测量的电荷流. YIG/Cu_{1-x}Ir_x 中, Cramer 等^[78]分别使用直流加热和超快光脉冲加热的方法产生直流和超快的温度梯度, 并且通过测量电压或太赫兹辐射来研究 SSE 诱导产生的自旋流. 两种测量方法得到一致的结果, 表明 SSE 在太赫兹频率仍然成立. Seifert 等^[32,43]使用脉宽为 10 fs 的激光脉冲激发 YIG/Pt 异质结的太赫兹发射信号, 并且从时域太赫兹发射谱提取出 SSE 产生的自旋流变化过程. 他们发现自旋流产生和衰减发生在数百飞秒内. 该时间尺度与 Pt 电子温度下降对应的时间尺度一致.

4.2 拓扑绝缘体

由于拓扑绝缘体的自旋霍尔角要大于传统的重金属, 如 W 和 Pt. Pt 的自旋霍尔角大概为 0.1, 而 2018 年 Khang 等^[79]发现 Bi_{0.9}Sb_{0.1} 薄膜的自旋霍尔角可达到 50, 所以在利用材料自旋-电荷转换效率的铁磁/非铁磁层的异质结中, NM 层是拓扑绝缘体的太赫兹发射效率要远高于 NM 为重金属的效率. 2018 年, Wang 等^[80]首次利用 FM/Bi₂Se₃ 异质结辐射出太赫兹, 将其归因于自旋-电荷转换

效应 (ISHE 和 IEE).

除了利用拓扑绝缘体的自旋-电荷转化特性, 单独拓扑绝缘体在激光入射下在表面发生一些光电效应, 如光致丹倍效应 (photo Dember effect)、光整流、光牵引等效应, 均可以辐射出太赫兹. 2012 年, McIver 等^[81]通过探测拓扑绝缘体表面的光电流发现当 (椭) 圆偏振激光入射到拓扑绝缘体上时, 会有非线性光电流产生, 且该电流的方向会随着入射激光的手性反转, 将其归因于光电效应 (photogalvanic effect). 在 2016 年 Braun 等^[82]利用拓扑绝缘体材料, 进行太赫兹波的反射发射实验, 发现由于拓扑绝缘体的表面具有非中心反演对称性, 有漂移电流 (drift current)、移位电流 (shift current) 和注入电流 (injection current) 的产生, 进而辐射出太赫兹波, 且辐射出的太赫兹波与入射激光的偏振状态相关. 注入电流是由于当 (椭) 圆偏振光入射到拓扑绝缘体时, 只激发狄拉克锥中自旋向上 (或向下) 的电子, 由此引起的电子分布不均匀产生的电流. 2017 年, Seifert 等^[83]发现除了表面耗尽场引起的漂移电流外, 光致 Dember 效应产生的扩散电流也可导致拓扑绝缘体的太赫兹发射. 2019 年, Fang 等^[84]通过测量太赫兹反射发射, 发现 Bi_2Te_3 的漂移电流的贡献要比扩散电流的贡献大一个量级, 而非线性电流的贡献则超过了漂移电流和扩散电流的贡献, 证明了拓扑绝缘体表面对光有超快非线性响应. 但以上所描述的拓扑绝缘体太赫兹发射均为反射发射, 信号较小, 达不到拓扑绝缘体作为太赫兹辐射源的标准.

4.3 Rashba 界面

4.3.1 重金属表面

$\text{Bi}(111)/\text{Ag}$ 界面具有很强的 Rashba 自旋轨道耦合, 2018 年 Jungfleisch 等^[45]和 Zhou 等^[85]分别报道了 Bi/Ag 的太赫兹发射效应. 与逆自旋霍尔效应的太赫兹发射过程相比, Bi/Ag 体系的太赫兹发射主要有如下两个特点.

第一个特点是 Ag 和 Bi 的生长顺序影响了太赫兹发射信号的相位. 在逆自旋霍尔效应的太赫兹发射中, 对于特定样品 FM/NM , 翻转样品可以翻转自旋流的方向, 从而发射的符号相反. 而 Zhou 等^[85]发现在 Ag 和 Bi 厚度合适时, $\text{Fe}/\text{Ag}/\text{Bi}$ 和 $\text{Fe}/\text{Bi}/\text{Ag}$ 发射的太赫兹信号在形状和强度上

几乎是相同的, 但信号的符号正好相反. 此时自旋流的方向是相同的. 由于 Ag/Bi 在厚度很薄的时候存在着合金化的现象, 因此部分合金化的 Ag/Bi 同时存在逆自旋霍尔效应和 Rashba 界面效应. 改变 AgBi 的沉积顺序可以改变 IEE 太赫兹发射的相位, 从而与 ISHE 发射的太赫兹信号相互叠加或者抵消.

第二个特点是 Bi/Ag 体系中圆偏振光所激发的太赫兹波存在平行于磁矩方向的 y 分量, 并且太赫兹辐射的电场由抽运光的旋光性决定, σ^+ 和 σ^- 激发的太赫兹电场相位相差 180° . 与垂直于磁矩的 x 方向分量相比, y 方向的信号强度大大降低. 两种成分的比率是 $E_y/E_x \approx 0.03$.

4.3.2 氧化物界面二维电子气

Zhang 等^[86]测量了氧化物二维电子器 $\text{FM}/\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ 太赫兹发射谱, 并且自旋-电荷电流转换过程可以通过门电压调控. 改变温度过程中, 太赫兹频谱出现了 SrTiO_3 在低温下的软声子模式.

4.3.3 过渡金属硫族化合物 (transition metal dichalcogenides)

单层过渡金属硫族化合物 (TMDs), 如 MX_2 ($M = \text{Mo}, \text{W}; X = \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$) 同时具有强自旋轨道耦合和反转对称性破缺^[87,88]. Battiato 等^[89]首先在理论上分析了飞秒激光作用下半导体材料中的超快自旋注入效应. 随后 Cheng 等^[36]在实验上证明用超快自旋流可注入半导体材料单层 MoS_2 , 并且通过 MoS_2 的强自旋轨道耦合将超快自旋流转化为太赫兹脉冲.

飞秒激光激励在铁磁层中产生非平衡载流子在扩散时发生能量弛豫. 由于高能电子-电子散射寿命具有强烈的自旋不对称性, 少数自旋电子将很快趋于平衡分布, 而多数自旋电子将在高能量下持续较长时间. 到达铁磁体/半导体界面的电子中, 只有激发能高于半导体带隙电子才能穿过半导体层. 因此, 通过半导体的带隙高能载流子具有极高的自旋极化率. 尽管自旋-电荷转换的机制类似于铁磁金属/非磁金属结构, 但是由于自旋注入半导体机制的不同, Co/MoS_2 发射的太赫兹脉冲强烈地依赖于光子能量. 当光子能量 $E < 0.55 \text{ eV}$ 时, 激发态的电子或空穴都没有足够的能量来克服

Co/MoS₂ 肖特基势垒时, 太赫兹信号与 Co 信号本身是一致的, 主导太赫兹发射是由 Co 层超快退磁; 当光子能量 $0.55 \text{ eV} < E < 1.2 \text{ eV}$ 时, 一部分自旋极化的热电子有足够的能量进入 MoS₂, 并且其比例随光子能量而线性增加; 当光子能量 $E > 1.20 \text{ eV}$ 时, 自旋极化的空穴进入 MoS₂ 的价带顶部, 进一步增加净自旋电流.

5 结论和展望

5.1 自旋电子太赫兹源的性能

基于 ISHE 的自旋电子太赫兹源具有超宽带、低成本、易集成、偏振可调谐等优势, 在应用方面具有广阔的前景. 2016 年, Seifert 等^[9]发现 10 fs 超短脉冲激光抽运磁性薄膜 W/CoFeB/Pt 产生的太赫兹辐射能够覆盖 0.1—30.0 THz, 并且在频带范围以内无带隙. 磁性薄膜产生的太赫兹辐射不受非线性晶体的声子吸收的限制, 且在发射信号强度方面也优于传统的商用太赫兹光导天线, 因此在太赫兹光谱应用方面具有非常大的潜力. 对于超短激光脉冲 ($< 30 \text{ fs}$) 抽运的情况, 非线性晶体无论是光学整流还是光学差频的产生, 都会在一定程度上受到激光脉冲宽度的影响而使得有效作用距离较短, 因此产生太赫兹辐射的本征效率偏低. 对于光导天线, 超短脉冲的超高峰值功率容易引起天线的破坏, 天线结构无法承载高激光抽运能量, 因此产生的太赫兹效率也会偏低. 基于铁磁异质结的太赫兹辐射源恰好可以弥补上面两种源的缺陷, 产生超宽带、超短太赫兹脉冲. 与同样超宽带的等离子体源相比, 铁磁异质结是全固态的太赫兹源, 稳定性更强, 这也为铁磁异质结这种超宽带太赫兹源的应用奠定了很好的基础.

对于基于 ISHE 产生的太赫兹辐射, 其偏振垂直于磁化方向. 因此, 在进行具体的应用实验的时候, 无需旋转整个辐射源来改变偏振方向, 仅需要旋转外部永久磁铁或者改变电磁铁的磁场方向, 就可以获得不同方向的线偏振太赫兹波. 这对一些需要改变线偏振方向的实验非常有用. 不仅如此, FM/NM 异质结所辐射的太赫兹波的偏振态可以通过外加磁场模式直接调节. Hibberd 等^[90]将自旋薄膜置于两个永磁体相同或相反磁极中间. 在永磁体异极相对的情况下, 自旋薄膜产生线性极化的

太赫兹波; 当永磁体同极相对时, 自旋薄膜产生类似于四极子偏振的太赫兹波. 进一步, Kong 等^[91]利用两个永磁铁相同磁极靠近产生的不均匀磁场分布, 实现了具有可调方位角、椭圆度和手性的椭圆极化太赫兹波. Chen 等^[92]巧妙地利用级联自旋电子太赫兹源产生椭圆偏振太赫兹波, 实现了对太赫兹波的手性、方位角和椭圆度等多维度调控. Qiu 等^[93]在 FM/NM 结构的基础上引入了液晶单元, 所发射太赫兹波的偏振状态可通过外电场在线偏振和圆偏振间切换. 这样的圆偏振太赫兹辐射源在研究超快自旋动力学、生物分子手性以及太赫兹无线通信等方面皆有应用的可能.

5.2 自旋电子太赫兹源器件

在发展自旋电子太赫兹源器件方面, 不仅对材料、结构等方面做了深入的研究, Yang 等^[69]还提出利用多周期结构增强太赫兹发射性能. 他们发现 3 个重复周期的 Pt(2 nm)/Fe(1 nm)/MgO(2 nm) 的发射强度明显优于单周期结构. Feng 等^[21]提出使用金属-介电光子晶体结构, 利用光子晶体的多重散射抑制反射和透射, 从而提高金属薄膜的激光吸收效率.

Chen 等^[94]在高阻硅衬底上制备磁性异质结, 并且发现该结构中除了存在 ISHE 主导的自旋太赫兹发射机制外, 超快激光诱导半导体中衬底产生瞬态光电流发射太赫兹. 由于激光脉冲的光子能量大于半导体带隙, 电子空穴对的出现使得电阻率会大幅下降. 半导体衬底上的超快光导效应产生了瞬态太赫兹信号. 超快激光诱导光导产生太赫兹频谱填补了低太赫兹频段.

Jim 等^[95]利用巨磁电阻效应实现了太赫兹强度和频谱的调控. 另外, 自旋多层膜可以方便地进行图形化处理从而调控太赫兹波的强度、极化和频谱. Yang 等^[69]把 Fe/Pt 薄膜加工成条纹状, 通过改变外磁场和条纹的夹角可以观测到太赫兹波的强度变化和峰值频率的偏移, 产生各向异性的太赫兹发射. 矩形块状结构也有类似的调控效应^[96].

以上的这些源器件的研究对改善自旋电子太赫兹辐射源的性能方面做出了极大的贡献, 但是要实现更高效率的辐射、更多功能化和集成化的自旋电子太赫兹源, 还需要进一步深入的研究.

5.3 强场太赫兹产生及其在自旋电子学方面的应用

除了铁磁材料异质结外,反铁磁材料的磁振荡也发射太赫兹波.反铁磁单晶 NiO 经线性极化飞秒激光脉冲辐射产生周期振荡的太赫兹波^[6].Mikhaylovskiy 等^[97,98]利用太赫兹发射谱研究了 FeBO₃, TmFeO₃, ErFeO₃ 等一系列反铁磁性铁氧化物的反铁磁动力学过程.反铁磁材料优点在于无杂散场、抗外磁场干扰和更高的本征频率,因此也具有成为未来自旋电子器件的潜力.但是到目前为止,反铁磁材料发射太赫兹波多用于研究飞秒激光与物质相互作用的机理方面,在反铁磁材料太赫兹源方面相对欠缺.强场超短太赫兹脉冲对研究反铁磁材料中的自旋电子动力学等过程具有非常重要的研究意义.

在利用自旋电子发射强太赫兹波方面,Seifert 等^[19]使用放大激光系统抽运了直径为 7.5 cm 的自旋电子太赫兹发射器,成功产生了高达 0.3 MV/cm 的强太赫兹场.这样的强太赫兹场的频谱覆盖范围在 1—10 THz 之间,导致产生的太赫兹脉冲的宽度在 230 fs 左右.这样具有超短脉冲宽度的强场太赫兹波可以用来研究强太赫兹场诱导的超快退磁、反法拉第效应等,跟双色场等离子体产生的超短太赫兹脉冲相比,具有更加稳定的优势.随着强场太赫兹源技术的不断发展,强场太赫兹波对自旋操控将成为将来的一个重要研究方向.太赫兹波对自旋的操控可能通过太赫兹磁场分量与自旋间耦合、太赫兹电场分量与电子或晶格间耦合以及太赫兹波的热效应等形式实现.未来的工作将集中在超短超强自旋电子太赫兹辐射的产生及其与磁性材料非线性相互作用方面.

参考文献

- [1] Beaupaire E, Merle J C, Daunois A, Bigot J 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 4250
- [2] Carva K, Battiatto M, Oppeneer P M 2011 *Nat. Phys.* **7** 665
- [3] Koopmans B, van Kampen M, Kohlhepp J T, de Jonge W J M 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 844
- [4] Zhang G P, Hübner W, Lefkidis G, Bai Y, George T F 2009 *Nat. Phys.* **5** 499
- [5] Beaupaire E, Turner G M, Harrel S M, Beard M C, Bigot J, Schmuttenmaer C A 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 3465
- [6] Nishitani J, Kozuki K, Nagashima T, Hangyo M 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 221906
- [7] Kampfrath T, Sell A, Klatt G, Pashkin A, Mährlein S, Dekorsy T, Wolf M, Fiebig M, Leitenstorfer A, Huber R 2011 *Nat. Photonics* **5** 31
- [8] Kampfrath T, Battiatto 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
- [9] Seifert T, Jaiswal S, Martens U, Hannegan J, Braun L, Maldonado P, Freimuth F, Kronenberg A, Henrizi J, Radu I, Beaupaire 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
- [10] Wu Y, Elyasi M, Qiu X, Chen M, Liu Y, Ke L, Yang H 2017 *Adv. Mater.* **29** 1603031
- [11] Yang K H, Richards P L, Shen Y R 1971 *Appl. Phys. Lett.* **19** 320
- [12] Mourou G, Stancampiano C V, Blumenthal D 1981 *Appl. Phys. Lett.* **38** 470
- [13] Auston D H, Cheung K P, Valdmanis J A, Kleinman D A 1984 *Phys. Rev. Lett.* **53** 1555
- [14] Wu Q, Zhang X C 1995 *Appl. Phys. Lett.* **67** 3523
- [15] Fattinger Ch, Grischkowsky D 1988 *Appl. Phys. Lett.* **53** 1480
- [16] Shalaby M, Hauri C P 2015 *Nat. Commun.* **6** 5976
- [17] Tomasino A, Parisi A, Stivala S, Livreri P, Cino A C, Busacca A C, Peccianti M, Morandotti R 2013 *Sci. Rep.* **3** 1
- [18] Zhang X C, Ma X F, Jin Y, Lu T M, Boden E P, Phelps P D, Stewart K R, Yakymyshyn C P 1992 *Appl. Phys. Lett.* **61** 3080
- [19] Seifert T, Jaiswal S, Sajadi M, Jakob G, Winnerl S, Wolf M, Kläui M, Kampfrath T 2017 *Appl. Phys. Lett.* **110** 252402
- [20] Ignatyeva D O, Davies C S, Sylgacheva D A, Tsukamoto A, Yoshikawa H, Kapralov P O, Kirilyuk A, Belotelov V I, Kimel A V 2019 *Nat. Commun.* **10** 4786
- [21] 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
- [22] Wang B, Shan S, Wu X, Wang C, Pandey C, Nie T, Zhao W, Li Y, Miao J, Wang L 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 121104
- [23] Koopmans B, Malinowski G, Longa F D, Steiauf D, Fähnle M, Roth T, Cinchetti M, Aeschlimann M 2010 *Nat. Mater.* **9** 259
- [24] Malinowski G, Dalla Longa F, Rietjens J H H, Paluskar P V, Huijink R, Swagten H J M, Koopmans B 2008 *Nat. Phys.* **4** 855
- [25] Choi G M, Min B C, Lee K J, Cahill D G 2014 *Nat. Commun.* **5** 4334
- [26] Bergeard N, Hehn M, Mangin S, Lengaigne G, Moutaigne F, Lalieu M L M, Koopmans B, Malinowski G 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 147203
- [27] Xu Y, Deb M, Malinowski G, Hehn M, Zhao W, Mangin S 2017 *Adv. Mater.* **29** 1703474
- [28] Battiatto M, Carva K, Oppeneer P M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 027203
- [29] Battiatto M, Carva K, Oppeneer P M 2012 *Phys. Rev. B* **86** 024404
- [30] Nenno D M, Rethfeld B, Schneider H C 2018 *Phys. Rev. B* **98** 224416
- [31] Choi G M, Moon C H, Min B C, Lee K J, Cahill D G 2015 *Nat. Phys.* **11** 576
- [32] Seifert T S, Jaiswal S, Barker J, Weber S T, Razdolski I, Cramer J, Gueckstock O, Mährlein S F, Nadvornik L, Watanabe S, Ciccirelli 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

- [33] Beigang R, Papaioannou E T, Scheuer L, Keller S, Torosyan G, Rahm M, Sokoluk D, Talara M, Oda Y, Kitahara H, Afalla J, Mag-usara V K, Tani M 2019 *Terahertz RF Millim. Submillimeter-Wave Technol. Appl. XII* San Francisco, California, United States, February 2–7, 2019 p1091700
- [34] 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
- [35] Papaioannou E Th, Torosyan G, Keller S, Scheuer L, Battiatto M, Mag-Usara V K, L'huillier J, Tani M, Beigang R 2018 *IEEE Trans. Magn.* **54** 1
- [36] 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, Battiatto M, Yang H, Chia E E M 2019 *Nat. Phys.* **15** 347
- [37] Mangin S, Gottwald M, Lambert C H, Steil D, Uhlir V, Pang L, Hehn M, Alebrand S, Cinchetti M, Malinowski G, Fainman Y, Aeschlimann M, Fullerton E E 2014 *Nat. Mater.* **13** 286
- [38] Stanciu C D, Hansteen F, Kimel A V, Kirilyuk A, Tsukamoto A, Itoh A, Rasing Th 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 047601
- [39] Němec P, Rozkotová E, Tesařová N, Trojánek F, De Ranieri E, Olejník K, Zemen J, Novák V, Cukr M, Malý P, Jungwirth T 2012 *Nat. Phys.* **8** 411
- [40] Ramsay A J, Roy P E, Haigh J A, Otxoa R M, Irvine A C, Janda T, Campion R P, Gallagher B L, Wunderlich J 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 067202
- [41] Freimuth F, Blügel S, Mokrousov Y 2016 *Phys. Rev. B* **94** 144432
- [42] Choi G M, Schleife A, Cahill D G 2017 *Nat. Commun.* **8** 15085
- [43] Huisman T J, Mikhaylovskiy R V, Costa J D, Freimuth F, Paz E, Ventura J, Freitas P P, Blügel S, Mokrousov Y, Rasing T, Kimel A V 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 455
- [44] Li G, Medapalli R, Mikhaylovskiy R V, Spada F E, Rasing Th, Fullerton E E, Kimel A V 2019 *Phys. Rev. Mater.* **3** 084415
- [45] Jungfleisch M B, Zhang Q, Zhang W, Pearson J E, Schaller R D, Wen H, Hoffmann A 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 207207
- [46] Hirsch J E 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 1834
- [47] Hoffmann A 2013 *IEEE Trans. Magn.* **49** 5172
- [48] Sinova J, Valenzuela S O, Wunderlich J, Back C H, Jungwirth T 2015 *Rev. Mod. Phys.* **87** 1213
- [49] Kato Y K, Myers R C, Gossard A C, Awschalom D D 2004 *Science* **306** 1910
- [50] Wunderlich J, Kaestner B, Sinova J, Jungwirth T 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 047204
- [51] Liu L, Pai C F, Li Y, Tseng H W, Ralph D C, Buhrman R A 2012 *Science* **336** 555
- [52] Miron I M, Garello K, Gaudin G, Zermatten P J, Costache M V, Auffret S, Bandiera S, Rodmacq B, Schuhl A, Gambardella P 2011 *Nature* **476** 189
- [53] Saitoh E, Ueda M, Miyajima H, Tatara G 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 182509
- [54] Uchida K, Takahashi S, Harii K, Ieda J, Koshibae W, Ando K, Maekawa S, Saitoh E 2008 *Nature* **455** 778
- [55] Shen K, Vignale G, Raimondi R 2014 *Phys. Rev. Lett.* **112** 096601
- [56] Deorani P, Son J, Banerjee K, Koirala N, Brahlek M, Oh S, Yang H 2014 *Phys. Rev. B* **90** 094403
- [57] Rojas-Sánchez J C, Oyarzún S, Fu Y, Marty A, Vergnaud C, Gambarelli S, Vila L, Jamet M, Ohtsubo Y, Taleb-Ibrahimi A, Le Fèvre P, Bertran F, Reyren N, George J M, Fert A 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 096602
- [58] Shiomi Y, Nomura K, Kajiwara Y, Eto K, Novak M, Segawa K, Ando Y, Saitoh E 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 196601
- [59] Sun R, Yang S, Yang X, Vetter E, Sun D, Li N, Su L, Li Y, Li Y, Gong Z, Xie Z, Hou K, Gul Q, He W, Zhang X, Cheng Z 2019 *Nano Lett.* **19** 4420
- [60] Gambardella P, Miron I M 2011 *Philos. Trans. R. Soc. Math. Phys. Eng. Sci.* **369** 3175
- [61] Manchon A, Koo H C, Nitta J, Frolov S M, Duine R A 2015 *Nat. Mater.* **14** 871
- [62] Rojas-Sánchez J C, Vila L, Desfonds G, Gambarelli S, Attané J P, de Teresa J M, Magén C, Fert A 2013 *Nat. Commun.* **4** 2944
- [63] Huang L, Kim J W, Lee S H, Kim S D, Tien V M, Shinde K P, Shim J H, Shin Y, Shin H J, Kim S, Park J, Park S Y, Choi Y S, Kim H J, Hong J I, Kim D E, Kim D H 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 142404
- [64] Huisman T J, Mikhaylovskiy R V, Tsukamoto A, Rasing Th, Kimel A V 2015 *Phys. Rev. B* **92** 104419
- [65] Huisman T J, Rasing T 2016 *J. Phys. Soc. Jpn.* **86** 011009
- [66] Nenno D M, Binder R, Schneider H C 2019 *Phys. Rev. Appl.* **11** 054083
- [67] Zhang S, Jin Z, Zhu Z, Zhu W, Zhang Z, Ma G, Yao J 2017 *J. Phys. Appl. Phys.* **51** 034001
- [68] Chen M, Mishra R, Wu Y, Lee K, Yang H 2018 *Adv. Opt. Mater.* **6** 1800430
- [69] Yang D, Liang J, Zhou C, Sun L, Zheng R, Luo S, Wu Y, Qi J 2016 *Adv. Opt. Mater.* **4** 1944
- [70] Qiu H S, Kato K, Hirota K, Sarukura N, Yoshimura M, Nakajima M 2018 *Opt. Express* **26** 15247
- [71] Torosyan G, Keller S, Scheuer L, Beigang R, Papaioannou E T 2018 *Sci. Rep.* **8** 1311
- [72] Nenno D M, Scheuer L, Sokoluk D, Keller S, Torosyan G, Brodyanski A, Lösche J, Battiatto M, Rahm M, Binder R H, Schneider H C, Beigang R, Papaioannou E T 2019 *Sci. Rep.* **9** 1
- [73] Sasaki Y, Suzuki K Z, Mizukami S 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 102401
- [74] Huisman T J, Ciccirelli C, Tsukamoto A, Mikhaylovskiy R V, Rasing Th, Kimel A V 2017 *Appl. Phys. Lett.* **110** 072402
- [75] Seifert T, Martens U, Günther S, Schoen M A W, Radu F, Chen X Z, Lucas I, Ramos R, Aguirre M H, Algarabel P A, Anadón A, Körner H S, Walowski J, Back C, Ibarra M R, Morellón L, Saitoh E, Wolf M, Song C, Uchida K, Münzenberg M, Radu I, Kampfrath T 2017 *SPIN* **07** 1740010
- [76] Schneider R, Fix M, Heming R, Michaelis de Vasconcellos S, Albrecht M, Bratschitsch R 2018 *ACS Photonics* **5** 3936
- [77] Schneider R, Fix M, Bensmann J, Michaelis de Vasconcellos S, Albrecht M, Bratschitsch R 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 152401
- [78] Cramer J, Seifert T, Kronenberg A, Fuhrmann F, Jakob G, Jourdan M, Kampfrath T, Kläui M 2018 *Nano Lett.* **18** 1064
- [79] Khang N H D, Ueda Y, Hai P N 2018 *Nat. Mater.* **17** 808
- [80] Wang X, Cheng L, Zhu D, Wu Y, Chen M, Wang Y, Zhao D, Boothroyd C B, Lam Y M, Zhu J X, Battiatto M, Song J C W, Yang H, Chia E E M 2018 *Adv. Mater.* **30** 1802356
- [81] McIver J W, Hsieh D, Steinberg H, Jarillo-Herrero P, Gedik N 2012 *Nat. Nanotechnol.* **7** 96
- [82] Braun L, Mussler G, Hruban A, Konczykowski M, Schumann T, Wolf M, Münzenberg M, Perfetti L, Kampfrath T 2016 *Nat. Commun.* **7** 13259
- [83] Seifert P, Vaklinova K, Kern K, Burghard M, Holleitner A 2017 *Nano Lett.* **17** 973

- [84] Fang Z, Wang H, Wu X, Shan S, Wang C, Zhao H, Xia C, Nie T, Miao J, Zhang C, Zhao W, Wang L 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 191102
- [85] 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
- [86] Zhang Q, Hong D, Liu C, Schaller R, Fong D, Bhattacharya A, Wen H 2019 *Conf. Lasers Electro-Opt. San Jose, California, May 5–10, 2019* pFM4D.7
- [87] Husain S, Kumar A, Kumar P, Kumar A, Barwal V, Behera N, Choudhary S, Svedlindh P, Chaudhary S 2018 *Phys. Rev. B* **98** 180404
- [88] Shao Q, Yu G, Lan Y W, Shi Y, Li M Y, Zheng C, Zhu X, Li L J, Amiri P K, Wang K L 2016 *Nano Lett.* **16** 7514
- [89] Battiato M, Held K 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 196601
- [90] Hibberd M T, Lake D S, Johansson N A B, Thomson T, Jamison S P, Graham D M 2019 *Appl. Phys. Lett.* **114** 031101
- [91] 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
- [92] Chen X, Wu X, Shan S, Guo F, Kong D, Wang C, Nie T, Pandey C, Wen L, Zhao W, Ruan C, Miao J, Li Y, Wang L 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 221104
- [93] Qiu H, Wang L, Shen Z, Kato K, Sarukura N, Yoshimura M, Hu W, Lu Y, Nakajima M 2018 *Appl. Phys. Express* **11** 092101
- [94] Chen M, Wu Y, Liu Y, Lee K, Qiu X, He P, Yu J, Yang H 2019 *Adv. Opt. Mater.* **7** 1801608
- [95] Jin Z, Tkach A, Casper F, Spetter V, Grimm H, Thomas A, Kampftrath T, Bonn M, Kläui M, Turchinovich D 2015 *Nat. Phys.* **11** 761
- [96] Zhang S, Li Q, Dai Y, Lin X, Ma G, Jin Z, Zhu W, Zhang Z, Yao J 2018 *2018 43rd Int. Conf. Infrared Millim. Terahertz Waves IRMMW-THz* Nagoya, Japan, September 9–14, 2018 p1
- [97] Mikhaylovskiy R V, Hendry E, Kruglyak V V, Pisarev R V, Rasing Th, Kimel A V 2014 *Phys. Rev. B* **90** 184405
- [98] Mikhaylovskiy R V, Hendry E, Secchi A, Mentink J H, Eckstein M, Wu A, Pisarev R V, Kruglyak V V, Katsnelson M I, Rasing T, Kimel A V 2015 *Nat. Commun.* **6** 8190

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

Research advances in spintronic terahertz sources*

Xu Yong^{1)2)#} Zhang Fan^{1)2)#} Zhang Xiao-Qiang²⁾ Du Yin-Chang²⁾
 Zhao Hai-Hui¹⁾ Nie Tian-Xiao¹⁾ Wu Xiao-Jun^{3)†} Zhao Wei-Sheng^{1)2)‡}

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

2) (*Hefei Innovation Research Institute, Beihang University, Hefei 230012, China*)

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

(Received 27 April 2020; revised manuscript received 23 May 2020)

Abstract

The terahertz frequency band is located between infrared and microwave in the electromagnetic spectrum. The interesting properties such as broadband, low energy, high permeability, fingerprint, etc. make terahertz wave important for applications in the fields of aerospace, wireless communications, security, materials science, biomedicine, etc. The development and application of terahertz science and technology are largely limited by the terahertz sources, therefore it is crucial to develop new terahertz radiation sources. Recently, it was shown that terahertz spintronic not only provides the possibility of physically controlling the femtosecond spin current, but also expects to be the next-generation ultra-wideband, low-cost, high-efficiency terahertz sources. In this paper we systematically review the historical development, experimental devices, emission mechanisms, material selections, and future prospects of the spintronic terahertz sources. We present the research advances in the physical mechanisms of ultrafast spin current induced by femtosecond laser, the spin charge conversion at ferromagnetic and non-magnetic interfaces, and the terahertz emission triggered by ultrafast pulses. This review also introduces spintronic terahertz sources based on heavy metals, topological insulators, Rashba interfaces, and semiconductor systems.

Keywords: terahertz source, ferromagnetic/non-magnetic heterostructure, ultrafast demagnetization, spin-charge conversion

PACS: 07.57.Hm, 65.80.-g, 64.70.Nd, 85.75.-d

DOI: 10.7498/aps.69.20200623

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11904016, 61905007, 61627813), the Beihang Hefei Innovation Research Institute Project, China (Grant Nos. BHKX-19-01, BHKX-19-02), and the Beijing Natural Science Foundation, China (Grant No. 4194083).

These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: xiaojunwu@buaa.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: weisheng.zhao@buaa.edu.cn

高性能太赫兹发射：从拓扑绝缘体到拓扑自旋电子

王航天 赵海慧 温良恭 吴晓君 聂天晓 赵巍胜

High-performance THz emission: From topological insulator to topological spintronics

Wang Hang-Tian Zhao Hai-Hui Wen Liang-Gong Wu Xiao-Jun Nie Tian-Xiao Zhao Wei-Sheng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 200704 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200680

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200680>

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

拓扑绝缘体中的超快电荷自旋动力学

Ultrafast charge and spin dynamics on topological insulators

物理学报. 2019, 68(22): 227202 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191433>

强三维拓扑绝缘体与磁性拓扑绝缘体的角分辨光电子能谱学研究进展

Angle resolved photoemission spectroscopy studies on three dimensional strong topological insulators and magnetic topological insulators

物理学报. 2019, 68(22): 227901 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191450>

基于蜂窝晶格声子晶体的双频带声拓扑绝缘体

Dual-band acoustic topological insulator based on honeycomb lattice sonic crystal

物理学报. 2019, 68(22): 224301 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190951>

三维拓扑绝缘体antidot阵列结构中的磁致输运研究

Magnetotransport in antidot arrays of three-dimensional topological insulators

物理学报. 2018, 67(4): 047301 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20172346>

拓扑材料中的超导

Superconductivity in topological materials

物理学报. 2020, 69(2): 020301 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191627>

二维有机拓扑绝缘体的研究进展

Research progress of two-dimensional organic topological insulators

物理学报. 2018, 67(23): 238101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181711>

专题：太赫兹自旋光电子

高性能太赫兹发射：从拓扑绝缘体
到拓扑自旋电子*王航天¹⁾²⁾ 赵海慧¹⁾ 温良恭¹⁾²⁾ 吴晓君³⁾ 聂天晓^{1)2)†} 赵巍胜¹⁾²⁾

1) (北京航空航天大学微电子学院, 费尔北京研究院, 北京 100191)

2) (北京航空航天大学青岛研究院, 青岛 266000)

3) (北京航空航天大学电子信息工程学院, 北京 100191)

(2020 年 5 月 8 日收到; 2020 年 6 月 4 日收到修改稿)

利用飞秒激光脉冲激发铁磁/非磁异质结构有望实现高效太赫兹辐射, 从而打破制约太赫兹技术快速发展的瓶颈. 拓扑绝缘体是一种新型二维材料, 其自旋霍尔角远大于重金属材料, 可以与铁磁层结合构成自旋太赫兹发射器. 为了研究拓扑绝缘体/非磁异质结中的太赫兹产生和调控机理, 本综述从飞秒激光激发的超快光电流响应入手, 结合拓扑绝缘体的晶体结构与电子结构, 分析了拓扑绝缘体薄膜中的太赫兹发射机理, 揭示了不同非线性效应产生的超快光电流随外界条件的依赖关系, 证实了使用多种手段调控拓扑绝缘体出射非线性太赫兹辐射的可能性; 以铁磁/重金属异质结为例, 探究了自旋太赫兹发射器的优势与调控方法. 结合这两种发射机理, 通过非线性太赫兹与自旋太赫兹的合成作用, 可以实现在拓扑绝缘体/铁磁异质结中偏振可调谐的太赫兹发射.

关键词：太赫兹源, 拓扑绝缘体, 超快光电流, 自旋太赫兹**PACS:** 07.57.Hm, 85.75.-d, 64.70.Nd, 73.50.Pz**DOI:** 10.7498/aps.69.20200680

1 引言

太赫兹波指的是频率介于 0.1—10.0 THz 之间的电磁波, 其频段在电磁波谱中位于微波和远红外之间, 在无损检测、保密通讯、凝聚态物理等领域都有广泛的应用前景^[1–5], 而缺乏低功耗、高效的辐射源是目前制约太赫兹技术发展的主要因素. 当前, 实验室中主要通过基于铌酸锂晶体倾斜波前技术的光整流技术来获得强场太赫兹辐射^[6,7]. 然而, 这种技术不仅对相位匹配的精确度要求高, 光路搭建复杂, 而且铌酸锂晶体对太赫兹辐射有强烈的吸收作用, 致使产生的高频太赫兹辐射不能得到

有效的利用. 其他光子学方法, 如基于有机晶体的光学整流方法^[8,9]、基于非线性晶体的差频效应^[10]、基于表面等离子体增强的大孔径光导天线等^[11,12], 都有各自的缺陷. 基于非线性晶体的差频效应得到的太赫兹频率过高, 很难推广到 15 THz 以下, 阻碍了光差频太赫兹辐射源在凝聚态领域的应用; 基于有机晶体的光学整流和光电导天线太赫兹辐射源受制于系统的复杂度, 无法获得稳定可靠的强场太赫兹输出. 因此, 寻找新的材料体系与物理结构设计的辐射源是太赫兹领域重要的研究方向.

最近, 一系列利用飞秒激光脉冲诱导磁性材料产生太赫兹辐射的实验引起了广泛关注^[13–15]. 在飞秒激光的激发下, 磁有序材料的超快退磁过程可

* 国家重点研发计划 (批准号: 2018YFB0407602)、国家自然科学基金 (批准号: 61774013, 11644004) 和国家科技重大专项 (批准号: 2017ZX01032101) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: nietianxiao@buaa.edu.cn

产生太赫兹辐射^[16–18]. 进一步, 2013 年, Kamprath 等^[19]首次利用飞秒激光脉冲激发铁磁/非磁金属异质结 Fe/Au, 应用逆自旋霍尔效应 (inverse spin-Hall effect, ISHE) 得到了太赫兹辐射, 开创了一种结合超快动力学与自旋电子学的新型自旋太赫兹发射器. 该发射方法具有制备简单、破坏阈值高、频带覆盖范围宽等优点. 然而, Au 的自旋霍尔系数较小, 降低了 ISHE 中自旋-电荷转换效率, 限制了辐射太赫兹的强度, 其太赫兹发射强度只有非线性晶体 ZnTe 的 1%. 近年来, 随着对异质结材料与结构的不断优化探索, 目前已能够在 W/CoFeB/Pt 的三层异质结中实现强度相当于 ZnTe 晶体的太赫兹发射^[20]. 然而, 自旋太赫兹发射器在单一脉冲的激发下仅能实现线偏振太赫兹辐射, 虽然可以通过双抽运^[21]或级联激光器^[22]激发任意偏振的太赫兹波, 但是这些系统设计较为复杂, 难以集成与小型化, 亟待突破性的进展.

三维拓扑绝缘体材料, 如 Bi_2Se_3 , Bi_2Te_3 , Sb_2Te_3 及其合金 $(\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x})_2\text{Se}_3$, $(\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x})_2\text{Te}_3$ 等最初仅作为热电材料而被广泛研究. 2008 年, 斯坦福大学张首晟研究组^[23]在理论层面预言了二维拓扑绝缘体的存在, 由于其特殊的拓扑非平庸特性, 拓扑绝缘体再次引起人们的关注并迅速成为凝聚态物理方向的热门研究领域. 拓扑绝缘体还可以进一步地推广到三维体系^[24–26], 在三维拓扑绝缘体的体能带隙中存在无能隙的二维拓扑表面态. Fu 和 Kane^[27]通过理论计算提出了甄别三维拓扑绝缘体的简便方法, 并且得益于角分辨光电子能谱 (angular resolution photoelectron spectroscopy, ARPES) 的发展, 在实验上也已经证实了可以通过观测某种材料的表面态在两个时间反演不变点之间穿越费米能级的次数是否为奇数次来确定其是否具有拓扑性^[28]. 这种受时间反演对称保护的表面态赋予拓扑绝缘体很多特殊的性质, 如无质量的狄拉克费米子、自旋-动量锁定^[29]和无耗散螺旋性边缘态^[30]等. 通过在三维拓扑绝缘体中引入垂直的铁磁性, 会使上下表面态在狄拉克点打开能隙, 进而拥有不同的拓扑性质, 此时薄膜侧面作为两个不同拓扑相的边界, 会呈现手性的边缘态. 于是, 在三维拓扑绝缘体可以实现许多新奇的量子效应, 如量子反常霍尔效应^[31]、马约拉纳费米子等^[32]. 因此, 拓扑绝缘体被认为是实现未来超低功耗自旋电子器件和量子计算的重要材料^[33]. 更重要的是, 由于拓扑绝

缘体具有强自旋轨道耦合效应, 其自旋霍尔角超过已知重金属 1 个数量级以上^[34,35], 可以实现高效的自旋电荷转换, 所以, 将拓扑绝缘体与铁磁性材料结合构成异质结构有望实现高效可控自旋太赫兹源; 除了自旋太赫兹辐射外, 异质结中的拓扑绝缘体存在非线性瞬态光电流引起的太赫兹辐射^[36,37], 有望通过改变入射光偏振态等手段实现对两种太赫兹辐射的分别调制, 进而实现出射太赫兹波的任意调谐.

本综述从拓扑绝缘体的光电流分析入手, 首先介绍拓扑绝缘体中光电流引入的非线性太赫兹发射机理; 接下来, 通过分析铁磁/非磁异质结表面的自旋注入和自旋-电荷转换机制等超快磁学现象, 深入讨论了自旋太赫兹发射的理论机制; 进一步, 通过介绍拓扑绝缘体/铁磁异质结中太赫兹发射的研究进展, 讨论了拓扑自旋太赫兹的优势和未来的发展方向.

2 拓扑绝缘体中的太赫兹发射

2.1 拓扑绝缘体的基本结构

拓扑绝缘体是一种 V-VI 族半导体, 常见的辉砷矿单晶拓扑绝缘体 (Bi_2Se_3 族, 例如 Bi_2Te_3 , Sb_2Te_3) 呈六方晶系, 空间点群为 $D_{3d}^5 (R\bar{3}m)$. 图 1 以 Bi_2Se_3 为例描述了拓扑绝缘体的晶格结构^[38]. 拓扑绝缘体可描述为由五层原子周期性排列而成的超晶格结构, 每五层原子为一个 QL (quintuple layer) 层, 厚度为 0.955 nm. 相邻两 QL 层之间由弱范德瓦耳斯力相连, 并不存在任何化学键, 因此使用机械剥离^[39]或湿法转移^[40]等方法可以从块材中轻易剥离出纳米级厚度的薄膜, 所以拓扑绝缘体也被认为是一种经典的二维材料. 除了从块材中剥离之外, 目前常用的制备拓扑绝缘体薄膜的方法是使用分子束外延技术 (molecular beam epitaxy), 通过对生长动力学的控制, 实现原子级别精度的薄膜生长, 并且可大幅减少材料的缺陷. 由于范德瓦耳斯作用可以一定程度上释放在生长过程中因薄膜-衬底晶格不匹配产生的应力, 所以拓扑绝缘体可以在失配度较高的衬底材料上生长^[41]. 在太赫兹发射实验中, 为了保证样品对飞秒激光的透射率, 常常使用蓝宝石 (Al_2O_3 0001) 作为生长拓扑绝缘体的衬底材料^[42].

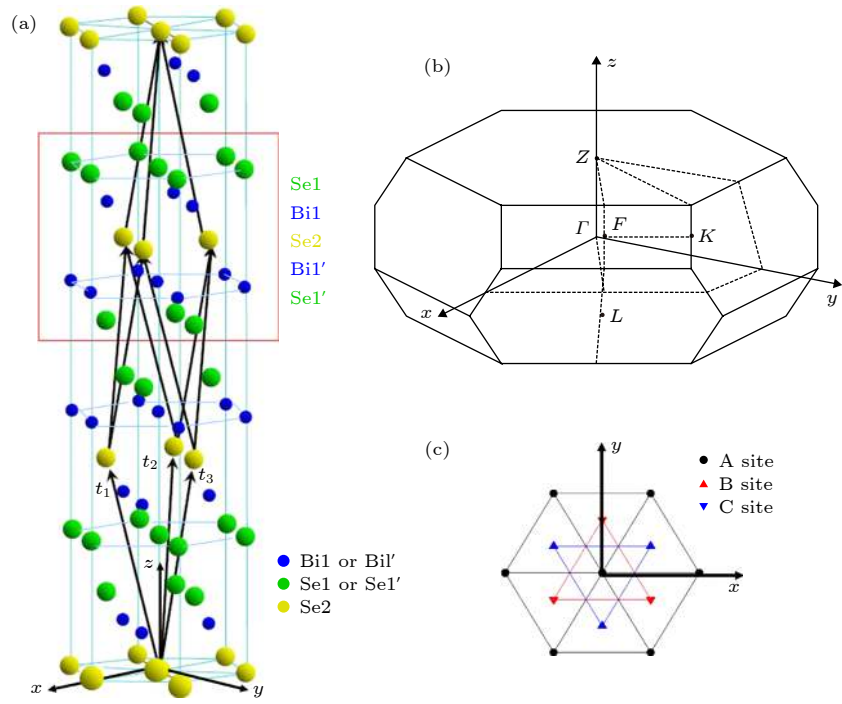


图 1 Bi_2Se_3 的晶体结构 (a) 三维晶体结构, $t_{1,2,3}$ 代表晶胞的基矢, 红色框标注的是 Bi_2Se_3 的 QL 层; (b) Bi_2Se_3 的布里渊区; (c) 在 xy 平面内, 三角形的晶格结构有 A, B, C 三种可能的结构^[38]

Fig. 1. The crystal structure of Bi_2Se_3 : (a) 3D schematic of the structure, where $t_{1,2,3}$ present the primitive lattice vector; (b) Brillouin zone of Bi_2Se_3 ; (c) the xy -plane triangle lattice has three possible positions A, B and C^[38].

在 Bi_2Se_3 的每个 QL 层内, 相邻原子之间由共价键相连, 原子按照 ABCAB 的晶体结构堆垛排列 (图 1(c)). 选择六方晶系的 a , b 和 c 作为晶系的 x , y 和 z 轴, 由图 1(a) 可知, Bi_2Se_3 沿 z 轴呈三重螺旋对称, 而沿 x 轴呈两重螺旋对称, 并且在原点呈空间反演对称. 图 1(c) 展示的是 Bi_2Se_3 晶格在 xy 平面的投影 (即晶体的 0001 面), 显然可以看出, 在晶体的表面空间反演对称性被破坏, 晶格的空间群也从 D_{3d}^5 变为 C_{3v} . 拓扑绝缘体这种中心对称破缺的晶体结构是纯拓扑绝缘体能够激发超快光电流的重要条件.

为了确认拓扑绝缘体的表面电子态, 常常使用 ARPES 来观测生长薄膜的表面和体能带结构. 由于拓扑绝缘体表面电子态具有导体的特性, 而体态绝缘, 所以可以通过 ARPES 观察到清晰的量子阱态, 如图 2 所示, 仍以 Bi_2Se_3 为例^[43]. 由于 Bi_2Se_3 主拓扑数为 1, 属于强拓扑绝缘体, 所以其表面态只包含一个狄拉克锥^[44]. 在 E - k 能带图中, 自旋轨道耦合导致体能带反转构成拓扑表面态, 表面态贯穿体能带隙形成狄拉克锥. 不同于自旋简并的体能带, 这里的两条表面态是高度自旋极化的, 不同表面态上的电子自旋垂直于 E - k 面且极化方向相反.

由于时间反演对称保护, 在电子动量由 k 变为 $-k$ 时, 其自旋方向也会相应改变. 正是强自旋轨道耦合效应赋予了拓扑绝缘体表面的自旋-动量锁定特性, 同时此效应也使拓扑绝缘体能够通过 ISHE 实现高效自旋-电荷转换. 在实验上通常使用自旋霍尔角 (spin Hall angle, θ_{SHE}) 来描述某种材料的电荷-自旋相互转换能力^[45,46], 拓扑绝缘体的自旋霍尔角比普通重金属大得多, 因此可以用于实现高效自旋流利用, 进而实现高效自旋太赫兹发射, 这将在第 4 节详细讨论.

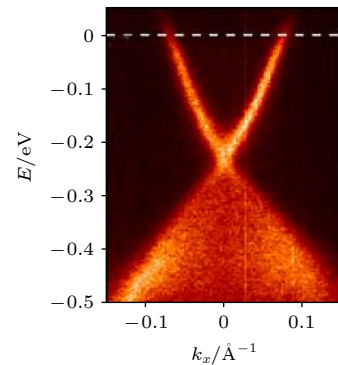


图 2 ARPES 能谱测量的 Bi_2Se_3 的表面能带结构^[43]

Fig. 2. ARPES measurements of surface electronic band of Bi_2Se_3 ^[43].

2.2 拓扑绝缘体中的超快光电流

飞秒激光是指时域脉冲宽度在飞秒量级的激光脉冲, 常用的飞秒激光中心波长为 800 nm, 激光能量为 1.5 eV. 拓扑绝缘体在受到飞秒激光脉冲激发时, 激光能量远大于其带隙宽度 (约为 400 meV), 使得低能电子吸收能量向上跃迁^[47,48], 激发超快光电流 J , 产生太赫兹辐射, 其强度正比于 $\partial J/\partial t$. Fang 等^[49] 使用线偏振飞秒激光脉冲激发 Bi_2Te_3 , 并使用太赫兹时域光谱系统测量其出射的太赫兹信号, 进而得到拓扑绝缘体的超快光电响应. 他们将线偏振激光激发超快光电流的物理机理分为线性和非线性效应, 其中线性效应包括载流子的漂移和扩散运动^[50], 而非线性效应包括光生伏打效应 (photogalvanic effect, PGE)、光子牵引效应 (photo-drag effect, PDE) 以及光整流效应 (optical rectification, OR) 等二阶效应^[51–54]. 如图 3 所示,

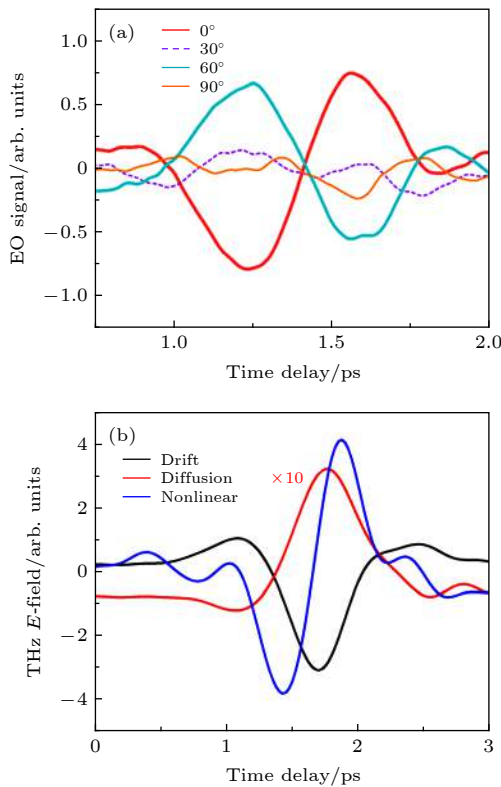


图 3 线偏振激光激发下拓扑绝缘体中的超快光电流效应 (a) 分离出的非线性效应产生的太赫兹电场随方位角的变化; (b) 不同效应产生的太赫兹分量在合成太赫兹辐射中的占比^[49]

Fig. 3. Separation of the photo-currents in topological insulator excited by linear femtosecond laser pulse: (a) The derived terahertz signals due to nonlinear currents as a function of azimuthal angle; (b) the extracted terahertz electric field generated by different effects^[49].

Fang 等通过对出射太赫兹的时域分解, 证明了拓扑绝缘体的非线性效应在超快光电流响应中占主导地位. 这种非线性效应引入的太赫兹辐射被称为非线性太赫兹辐射.

为了研究圆偏振光对拓扑绝缘体的激发作用, Hamh 等^[48] 在飞秒激光器后面添加一个 1/4 波片, 并转动波片的角度产生不同偏振态的激光激发 Bi_2Se_3 样品, 通过对出射太赫兹信号的分析得到光电流随激光偏振态的变化关系. 实验结果显示拓扑绝缘体中产生的超快光电流与入射光的手性有关 (图 4). 随后, Braun 等^[55] 证明了在圆偏振光的激发下, 拓扑绝缘体中存在一个与抽运光手性无关的转移电流和手性依赖的注入电流, 且左旋和右旋圆极化光激发的注入电流极性相反. 这两种电流都来自于拓扑绝缘体表面的 PGE 效应^[56].

在 1980 年, Belinicher 和 Sturman^[57] 曾经预言对称破缺晶体中存在 PGE 效应. 由 2.1 节可知,

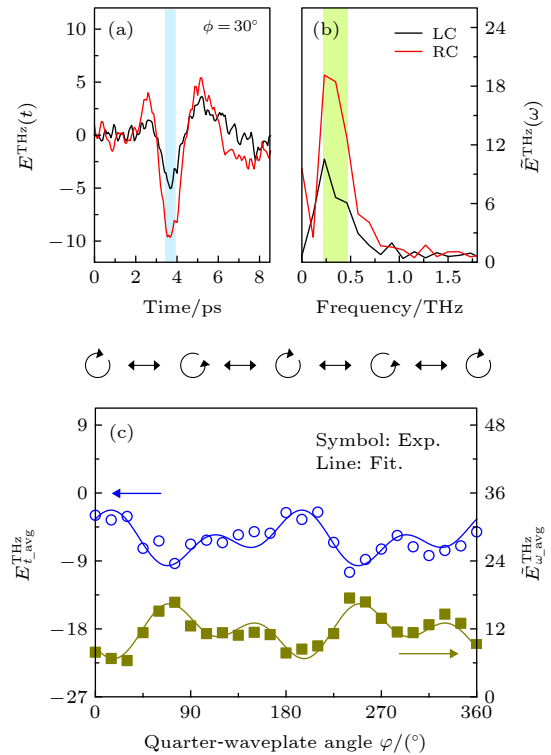


图 4 (a), (b) 样品方位角 $\phi = 30^\circ$, 在左旋和右旋圆极化光激发下, 时域和频域下 Bi_2Se_3 产生的太赫兹信号; (c) 太赫兹幅值随激光偏振态的变化关系, 其中蓝色曲线代表时域信号, 黄色曲线代表频域信号^[48]

Fig. 4. (a), (b) THz signals emitted from Bi_2Se_3 in time and frequency domains under illumination of left- and right-handed circularly polarized light where the azimuth $\phi = 30^\circ$; (c) THz-wave amplitudes as a function of the polarity of pump laser in time (blue curves) and frequency domains (yellow curves)^[48].

拓扑绝缘体在表面具有中心对称破缺的结构, 由于系统的不对称性激发和弛豫过程, 飞秒激光的照射可以使样品中产生由 PGE 效应引入的光电流, 并且根据激光的偏振态会产生两种不同的光电效应: 圆光生伏打效应 (circular photogalvanic effect, CPGE) 和线光生伏打效应 (linear photogalvanic effect, LPGE). 为了讨论不同偏振光对这两种光伏打效应的作用, 使用非线性响应理论来唯象地描述拓扑绝缘体材料中 PGE 效应引起的电磁辐射响应^[37,58]:

$$j_{\text{PGE}} = \sigma_{\lambda\mu\nu} E_{\mu}(\omega) E_{\nu}^*(\omega), \quad (1)$$

这里, j_{PGE} 代表 PGE 效应产生的二阶电流; $\sigma_{\lambda\mu\nu}$ 代表系统的三阶光电导张量; $E(\omega)$ 表示电场振幅为 E , 频率为 ω . 对于任意系统来说, 描述其物理性质的张量不随任何对称操作而改变. 然而, 由 (1) 式可知, 空间反演对称会使电流反向, 而 $E_{\mu}(\omega) E_{\nu}^*(\omega)$ 保持不变, 则其三阶张量变号, 即 $\sigma_{\lambda\mu\nu} \rightarrow -\sigma_{\lambda\mu\nu}$, 于是可以得到 $j_{\text{PGE}} = \sigma_{\lambda\mu\nu} E_{\mu}(\omega) E_{\nu}^*(\omega) = -\sigma_{\lambda\mu\nu} E_{\mu}(\omega) E_{\nu}^*(\omega) = 0$, 因此 PGE 效应只可能发生在非中心对称晶体中发生^[59,60]. 由图 5 可知, 拓扑绝缘体材料具有中心对称的体和非中心对称的表面, 所以可以推断出, PGE 效应只存在于拓扑绝缘体的表面. 进一步地可以将 (1) 式改写为^[61,62]

$$j_{\text{PGE}} = \gamma_{\lambda\mu} \mathbf{i}(\mathbf{E} \times \mathbf{E}^*)_{\mu} + \chi_{\lambda\mu\nu} (E_{\mu} E_{\nu}^* + E_{\nu} E_{\mu}^*), \quad (2)$$

其中, 第一项代表 CPGE 对于超快光电流的贡献, 第二项代表 LPGE 的贡献. 由 (2) 式可知, 在线偏振光激发时, $\mathbf{E} \times \mathbf{E}^* = 0$, 即拓扑绝缘体表面产生的超快光电流没有 CPGE 的分量; 而在圆偏振光激发时, 其表面产生一个额外的 CPGE 光电流分量, 并且这个分量在左旋和右旋光激发时的极性相反. 也就是说, 在飞秒激光脉冲激发拓扑绝缘体的实验中, 如果使用 1/4 波片改变抽运光的极化状态, 由于 CPGE 只对圆偏振光有响应, 可以通过计算筛选出与波片转角呈 180° 周期的太赫兹信号, 即可以得到 CPGE 的贡献, 这与 Braun 等^[55] 的实验结果是一致的. 事实上, CPGE 效应与拓扑绝缘体的表面态有关, 其产生的光电流来源于两个跃迁过程: 体价带电子向表面态的跃迁和表面态电子向体导带的跃迁. 因此, 可以通过计算 CPGE 产生的太赫兹辐射, 分析样品的表面态性质, 如表面能带结构、表面载流子迁移率、不对称散射率等^[47,63,64].

在拓扑绝缘体的非线性效应中, 除了 LPGE 与 CPGE 之外, 还存在着 PDE 和二阶非线性 OR, 即飞秒激光脉冲激发拓扑绝缘体时的非线性光电流响应可以表示为

$$j_{\lambda} = j_{\text{PGE}} + T_{\lambda\delta\mu\nu} q_{\delta} E_{\mu} E_{\nu}^* + j_{\text{OR}}, \quad (3)$$

其中, 第二项描述了 PDE 对非线性电流的贡献.

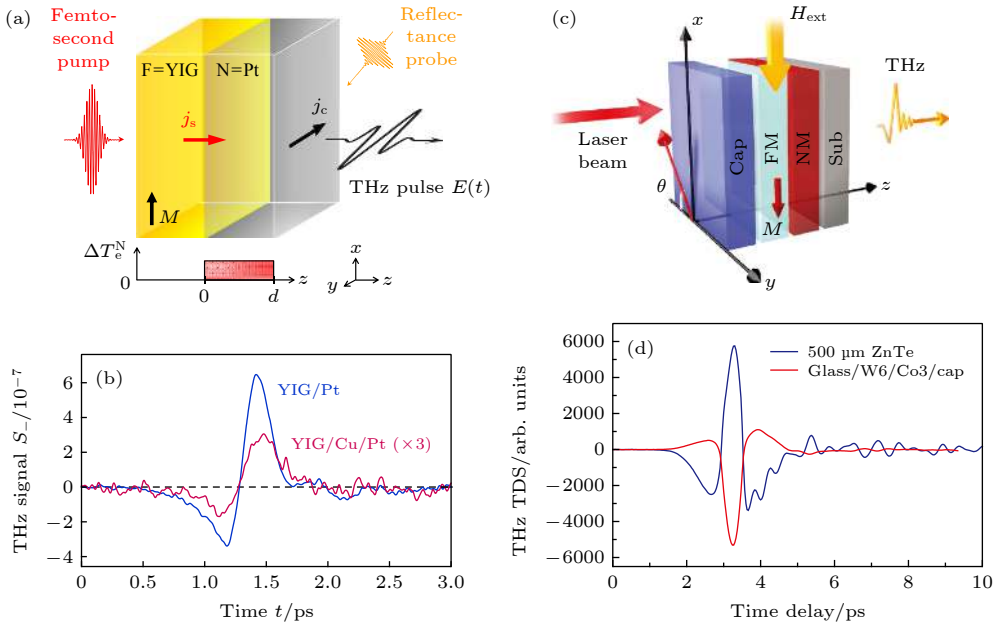


图 5 (a) Seifert 等^[74] 使用的 YIG/Pt 异质结构; (b) 在 YIG/Pt 中插入 1.9 nm 的铜, 由于自旋注入被阻隔, 太赫兹信号减弱^[74]; (c) Wu 等^[82] 使用的 W/Co 异质结构; (d) W/Co 异质结构的太赫兹发射强度接近于 500 μm 的 ZnTe 晶体^[82]

Fig. 5. (a) The YIG/Pt heterostructure used by Seifert. et al.^[74]; (b) after 1.9 nm Cu insertion, the THz field intensity deteriorates because the spin injection is impaired^[74]; (c) the Co/W heterostructure used by Wu et al.^[82]; (d) the THz waves emitted from Co/W have a peak intensity exceeding that of ZnTe crystals^[82].

当被激光照射时, 拓扑绝缘体中电子吸收光子动量跃迁, 产生 PDE 电流, 大小正比于光子动量 $\mathbf{q}$, 其张量可以表示为 $\sigma_{\lambda\mu\nu}(\mathbf{q}) = \mathbf{T}_{\lambda\delta\mu\nu}q_\delta$ [37,65]. 由于 $\mathbf{T}_{\lambda\delta\mu\nu}q_\delta$ 为四阶张量, 具有反对称性, 所以 PDE 效应不只存在于拓扑绝缘体的表面, 体中的 PDE 效应也会对整体的非线性电流有所贡献. (3) 式中第三项代表了 OR 的贡献, 当一个超短的激光脉冲入射到拓扑绝缘体上时, 晶体内部会形成极化场, 进而向外辐射电磁波. 当入射激光脉冲脉宽在亚皮秒量级时, 辐射的电磁波为太赫兹波. OR 可以使用三阶非线性张量 $\chi^{(2)}$ 描述, 其非线性极化 P^{OR} 可以表示为 [56]

$$P^{\text{OR}} = \varepsilon_0 \chi^{(2)} |E|^2, \quad (4)$$

其中为 ε_0 为自由空间的电导率.

2.3 拓扑绝缘体中的太赫兹辐射调控

由 (2) 式可知, 左旋和右旋的极化光会在拓扑绝缘体表面激发极性相反的 CPGE 分量, 即抽运光的极化状态会影响拓扑绝缘体中的太赫兹发射. 事实上, 单层拓扑绝缘体中的太赫兹发射还受到很多因素影响, 如样品方位角 (晶体取向) ϕ , 飞秒激光的入射角 θ 等. 由 (4) 式可知, OR 产生的超快光电流只依赖于晶体取向, 即 OR 产生的太赫兹分量只与样品方位角有关, 改变入射角不会导致太赫兹波的变化. 在 PDE 中, 由于四阶张量 $\mathbf{T}_{\lambda\delta\mu\nu}q_\delta$ 的存在, PDE 表现出相同的方位角依赖特性, 然而, 由于 PDE 依赖于吸收光子的动量, 在改变激光入射角时, 出射的太赫兹极性会发生反转. 在 PGE 中, 无论是 CPGE 还是 LPGE 效应的产生, 都依赖于沿拓扑绝缘体表面分布的电场分量 [37,66], 所以在入射角翻转时, PGE 效应引起的太赫兹辐射极性也会随之反向. 特别地, 由于 CPGE 来源于拓扑绝缘体的表面态, 满足狄拉克锥的旋转对称性 [65], 所以 CPGE 引入的太赫兹分量不随样品方位角变化. 表 1 展示了不同非线性效应产生的超快光电流随各种因素的依赖关系 [56], 这里使用 1/4 波片的转角 α 代表激光偏振态的变化. 证实了使用多种手段控制拓扑绝缘体中产生的超快光电流, 进而对出射太赫兹进行调控的可能性.

值得注意的是, Tu 等 [56] 认为 LPGE 与方位角无关, 他们将出射太赫兹波中随方位角变化的分量归因于 PDE 和 OR 的贡献. 然而, 最近针对外

尔半金属的研究证明 LPGE 来源于不同元素原子之间电荷分离产生的转移电流, 这种转移电流沿原子间的化学键流动 [67]. 在 Bi_2Se_3 中, 由于 Bi—Se 键在 z 轴上的对称性 (图 5), LPGE 产生的光电流一定与样品方位角呈 120° 周期性变化. 这与 Braun 等 [55] 和 Fang 等 [49] 的结论是一致的.

表 1 拓扑绝缘体中的超快光电流与晶体取向 ϕ , 入射角 θ , 激光偏振态的依赖关系 [56]

Table 1. The details of the dependences of CPGE, LPGE, PDE, and OR on ϕ , θ , and α [56].

非线性效应	晶体方向 ϕ	入射角 ($\theta \rightarrow -\theta$)	1/4波片转角 α
CPGE	来源于表面态	极性反转	2α -周期
	与 ϕ 无关		$\sin(2\alpha)$
LPGE	来源于表面态	极性反转	4α -周期
	ϕ 依赖		$\sin(4\alpha)$
PDE	ϕ 依赖	极性反转	4α -周期
			$\cos 4\alpha$
OR	ϕ 依赖	极性不反转	4α -周期
			$\cos(4\alpha)$

3 铁磁/非磁异质结中的自旋太赫兹发射

第 2 节主要介绍了拓扑绝缘体单层薄膜中的超快光电流引起的太赫兹辐射, 这种方式发射的太赫兹波的偏振方向依赖于光电流的方向, 即晶体的方向. 然而, 最近的研究发现, 将拓扑绝缘体与铁磁材料组成异质结构, 由于超快自旋注入, 也可以产生太赫兹辐射 [68]. 其机理与铁磁/非磁异质结中的太赫兹发射相同, 在飞秒激光的照射下, 自旋塞贝克效应 [69,70] 或自旋超扩散现象 [71] 等自旋动力学效应使得自旋流从铁磁层注入到非磁层, 再由 ISHE 将自旋流转换成横向电荷电流 [72], 进而产生太赫兹脉冲, 其偏振方向垂直于外磁场方向. 为了更好地说明拓扑绝缘体/铁磁异质结作为自旋太赫兹发射器的优越性, 首先介绍铁磁/非磁异质结中的自旋太赫兹发射机理.

3.1 异质结中的超快自旋注入

对铁磁/非磁异质结施加一个面内的磁场, 在异质结受到飞秒激光照射时, 可以在非磁层检测到一个超快电流, 它来源于铁磁层中产生的自旋流. Uchida 等 [73] 认为这种自旋流来源于铁磁材料中

的自旋塞贝克效应. Seifert 等^[74]在 YIG/Pt 异质结中观察到了自旋塞贝克效应导致的超快自旋注入. 当飞秒激光照射时, 金属层的电子被激发撞击磁性层, 使其产生一个随机的转矩, 进而产生净自旋流 J_s , 其中 J_s 的极化矢量 σ 平行于铁磁层的磁矩 M . 由于自旋流的产生与光激发电子的热化与冷却过程有关, 其频率恰好处在亚皮秒量级, 因此自旋塞贝克效应引入的自旋流, 其动态频率在太赫兹频段. 进一步地, 由于非磁层的 ISHE, 自旋流被转变为横向电荷流, 这将在下一小节详细讨论.

然而, 并非所有的自旋注入现象都能单一地用自旋塞贝克效应解释. 当飞秒激光激发异质结时, 会在铁磁层激发超扩散的瞬态自旋流^[75,76], 进而导致自旋流注入. Kampfath 等^[19]利用飞秒激光脉冲激发 Fe/Au 异质结, 观察到了太赫兹辐射, 并将异质结中的超快自旋注入归因于超扩散自旋传输 (superdiffusive spin transport). 在电子吸收能量跃迁后, 自旋向上的电子表现为 sp 轨道特性, 而自旋向下的电子表现为类 d 轨道特性. 由于上下自旋电子寿命与迁移率的不同, 两种电子的自旋取向也处于非平衡状态, 因此在铁磁层界面形成了自旋流的积累, 实现了自旋流向非磁层注入. 这种激光导致的超扩散自旋流, 其动态频率恰好处在亚皮秒量级, 因此也可以实现太赫兹量级的动态自旋注入^[77]. 与自旋塞贝克效应一致, 这种自旋流的极化方向与铁磁层磁化方向也是相同的.

除以上两种自旋注入机制之外, 磁性材料中超快退磁现象也会产生自旋流, 这种自旋注入机理被称为自旋抽运效应 (spin pumping effect). 由飞秒激光诱导的超快退磁现象在太赫兹领域已经被广泛地报道^[18,78], 在超快退磁的过程中, 铁磁层的自旋角动量转移到重金属层, 进而产生自旋注入. 由于自旋抽运的特征时间与自旋轨道相互作用有关, 其时间尺度为皮秒量级^[79], 因此同样可以产生太赫兹辐射. 然而, 由于飞秒激光引入的磁性变化很小, 所以自旋抽运效应导致的自旋注入很弱. Kampfath 等^[19]计算了 Fe/Au 异质结中自旋抽运效应注入的自旋流比超扩散导致的超快自旋流小两个数量级以上.

值得注意的是, 目前尚缺乏统一的理论来描述异质结中的超快自旋注入过程, 特别是对于自旋塞贝克效应和超扩散效应这两种自旋注入机制, 现有的光学和电学手段无法将两种效应注入的自旋流

区分开来. 因此, 现在无法确切地指出哪种自旋注入机制的贡献对异质结中的太赫兹辐射占主导作用.

3.2 异质结中的自旋-电荷转化及太赫兹发射

在自旋流从铁磁层注入相邻非磁层中后, 由于非磁层材料的自旋轨道耦合作用, 不同自旋取向的电子朝不同的方向偏转, 转化为电荷的积累, 这就是 ISHE. 在自旋流 J_s 注入重金属层中后, 由于 ISHE, 自旋电子受到横向力矩的作用, 在重金属层的两端造成电荷积累, 进而产生横向电流 J_c , 其表达式为

$$J_c = D_{\text{ISHE}} J_s \times \sigma, \quad (5)$$

其中 D_{ISHE} 为自旋霍尔系数. 由于 J_c 处在亚皮秒的时间尺度上, 其辐射的电磁波频段恰好覆盖太赫兹范围, 因此, 在异质结中可以实现太赫兹发射, 其表达式为^[80,81]

$$E_{\text{THz}}(\omega) = J_c(\omega) \frac{eZ_0}{n_1 + n_2 + Z_0 \int_0^d dz \rho(\omega, z)}, \quad (6)$$

其中, n_1 和 n_2 为衬底和空气的折射率, e 为电子电荷, Z_0 为真空阻抗, ρ 为垂直方向的金属电导率. 由公式 (5) 和 (6) 可知, ISHE 产生的瞬态横向电流 J_c 方向垂直于自旋流的极化矢量 σ , 即异质结中的自旋太赫兹辐射偏振方向垂直于磁场方向. 这与 Kampfath 等^[19]的研究结果一致. Seifert 等^[74]也在 YIG/Pt 异质结中实现了自旋太赫兹发射, 证实了飞秒激光引入的自旋塞贝克效应也是实现超快自旋注入的重要手段. 他们使用动态模型分离出注入的自旋流密度, 证明了自旋塞贝克效应起源于非磁层的界面.

经过对铁磁/非磁异质结的材料筛选与结构优化, 现在已经能够实现兼顾辐射强度、带宽与功耗的自旋太赫兹发射源. Wu 等^[82]研究了不同厚度下的铁磁与非磁层对出射太赫兹强度的影响, 发现 W(6 nm)/Co(3 nm) 双层异质结所辐射的太赫兹强度接近 ZnTe 晶体发射源. 并且, 这种结构的自旋太赫兹发射源还具有低功耗的特性, 即使激光能量密度降至 $0.6 \mu\text{J}/\text{cm}^2$, 仍能在异质结中实现稳定的太赫兹发射. Seifert 等^[20]使用 W/CoFeB/Pt 构成三层异质结构代替传统的双层结构, 由于 W 和 Pt 具有相反的自旋霍尔角, 两层界面中产生的太赫兹辐射可以相互叠加, 进而产生 1—30 THz

的相干增强太赫兹脉冲, 其能量转换效率甚至优于商用光电导天线和 GaP(110) 太赫兹发射源.

最近, Zhou 等^[83]首次利用反铁磁外尔金属 Mn_3Sn 与重金属 Pt 构成的异质结实现了太赫兹发射. 由于 Mn_3Sn 具有反三角的自旋结构, 不同晶相的 Mn_3Sn 产生的纵向自旋流大小不同, 因而在制备过程中可以通过选择 Mn_3Sn 层的晶相来控制异质结出射太赫兹波的强度. 另外, 由于 Mn_3Sn 同时具有较大的自旋霍尔角, 这种外尔半金属也可以代替重金属层提供 ISHE. Zhou 等的研究不但证

明了太赫兹可以作为研究外尔半金属自旋结构的一种简便方法, 更证明了 Mn_3Sn 具有实现自旋太赫兹发射与调控的重要潜力.

3.3 铁磁/非磁异质结中的自旋太赫兹调制

由公式 (5) 可知, 异质结中发射的自旋太赫兹偏振方向垂直于磁化方向, 然而与拓扑绝缘体中发射的太赫兹不同, 自旋太赫兹不依赖于入射光的偏振状态. 也即, 自旋太赫兹源的抗干扰能力极强, 改变铁磁层磁化方向, 可以任意调控其偏振方向.

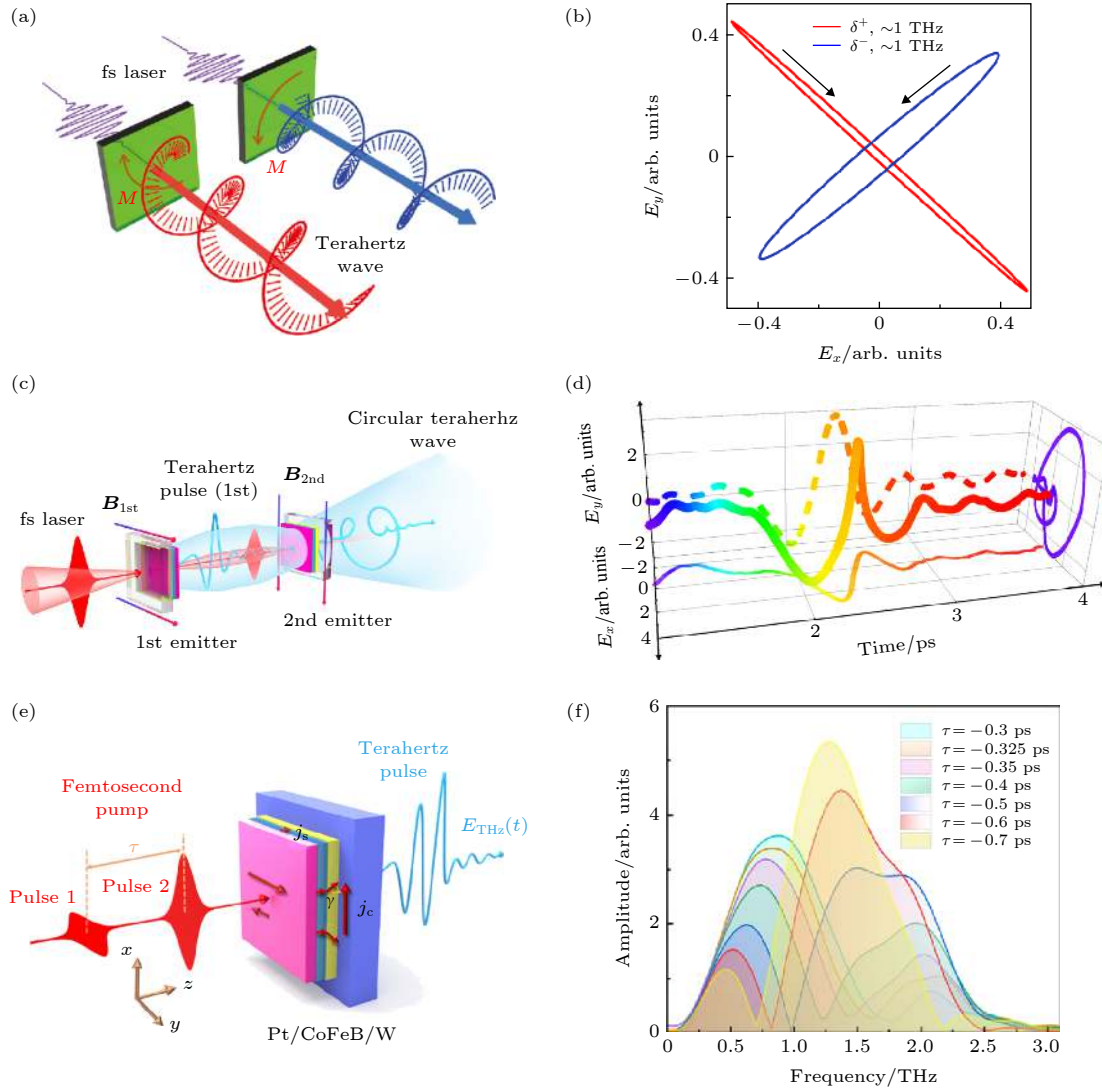


图 6 (a) 在异质结上施加手性相反的螺旋外磁场可以改变出射太赫兹波的手性; (b) 图 (a) 的利萨如曲线, 其中 σ^+ 与 σ^- 分别代表左旋与右旋极化的太赫兹信号^[85]; (c), (d) Chen 等^[22]设计的级联太赫兹发射器, 两级发射器铁磁层的磁化方向与入射光方向两两正交, 通过控制出射太赫兹的相位差和振幅, 可以在时域获得合成的圆偏振信号; (e), (f) Wang 等^[21]使用的双抽运自旋太赫兹发射器, 通过改变脉冲时延可以调控出射太赫兹的时域信号

Fig. 6. (a) Manipulation of the terahertz chirality by changing the twisted magnetic field distribution; (b) the Lissajous curves of the THz signals of (a), where σ^+ and σ^- present the signals with left-hand and right-hand polarity^[85]; (c), (d) the cascade spintronic terahertz emitter designed by Chen et al.^[22], a circularly polarized terahertz waves could be obtained by controlling the phase difference between two stage terahertz and their amplitude; (e), (f) dual-pulses induced terahertz emitter reported by Wang et al.^[21], the frequency could be manipulated by changing the delay time between two pump laser pulses.

然而,在均匀磁性的异质结中,发射的自旋太赫兹一定是线偏振的,这大大限制了自旋太赫兹源的应用途径.为了突破性这一局限,Hibberd等^[84]通过改变外磁场的方向,控制铁磁层磁矩分布,实现了对出射太赫兹偏振态的调控.他们使用两个极性相反的永磁铁作为磁场源,NiFe/Pt异质结作为太赫兹发射源,在调换永磁体极性时,异质结中出射的太赫兹极性反转.Kong等^[85]则从理论上证明了异质结中不均匀的磁性分布可以产生椭圆偏振的自旋太赫兹辐射.特别地,在不同磁性区域的有效面积相等且磁矩方向相互垂直时,还可以产生圆偏振极化的太赫兹辐射.他们讨论了出射太赫兹椭圆率与磁场极化状态的依赖关系并用实验加以证实.如图6(a),(b)所示,将样品置于螺旋的磁场中,在磁场的手性变化时,太赫兹波的极化方式由左旋变为右旋.然而,由于很难精准控制单级铁磁薄膜中的磁性分布,所以通过改变外磁场获得偏振可调谐的太赫兹辐射难度很大.Chen等^[22]报道了使用级联发射的方法可以产生可控椭圆偏振太赫兹波.他们在第一级样品上施加了水平方向的磁场,使其产生竖直偏振的太赫兹辐射,在第二级上施加了竖直方向上的磁场产生水平偏振的太赫兹辐射;通过改变两级薄膜之间的距离控制出射太赫兹波的相位差,实现了椭圆偏振太赫兹波的合成(图6(c)).进一步,当抽运光经过第一级的发射损耗与第二级铁磁薄膜本身对第一级辐射的太赫兹波的损耗相等时,可以实现圆偏振太赫兹波辐射(图6(d)).

除了实现时域调制之外,自旋太赫兹发射源在频域调制方面也具有无可比拟的优势.2019年,Wang等^[21]报道了双抽运效应对自旋太赫兹频谱的调节作用,如图6(e)—(f)所示,当使用两束飞秒激光同时抽运铁磁/非磁性金属异质结时,可以通过操控两束脉冲激光之间的偏振夹角和时延来实现对出射太赫兹频域信号的调制.

4 铁磁/拓扑绝缘体异质结中的自旋太赫兹发射

4.1 拓扑绝缘体的自旋霍尔角计算

第3节主要介绍了铁磁/非磁异质结中的自旋太赫兹发射,公式(5)和(6)表明在异质结中自旋太赫兹的发射效率取决于非磁层的自旋霍尔系数,而自旋霍尔系数正比于自旋霍尔角 θ_{SH} ,即异质结

非磁层的 θ_{SH} 越大,发射太赫兹的效率越高,这与Wu等^[82]的研究结果是一致的.他们测试了使用Co作为铁磁层,不同的重金属材料作为非磁层时,异质结的太赫兹发射强度,结果显示,当W作为非磁层时($\theta_{\text{SH}} = 0.4$ ^[86]),异质结出射的太赫兹峰值是Ta($\theta_{\text{SH}} = 0.15$ ^[87])作为非磁层时的10倍.而拓扑绝缘体具有特殊的自旋-动量锁定的拓扑表面态,强自旋轨道耦合作用赋予这种材料极大的自旋-电荷转换效率,其自旋霍尔角比普通重金属大得多,因此可以替代重金属材料构成自旋太赫兹发射器并实现高效太赫兹发射.

自旋-电荷转换效率指的是在自旋注入时,拓扑绝缘体利用ISHE将其转化成电荷流的能力.为了能够定量地计算拓扑绝缘体的自旋-电荷转换效率,Wang等^[88]使用自旋力矩铁磁共振(spin torque ferromagnetic resonance, ST-FMR)的方法测量了 Bi_2Se_3 的自旋霍尔角.如图7(a)所示,他们在 $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ (CFB)两端施加一个射频电流,通过外部整流电路测得输出的电压信号.在射频电流流经 Bi_2Se_3 层后,由于自旋霍尔效应在 y 方向发生极化,产生纯自旋流并注入到相邻的CFB中,改变CFB磁矩的阻尼矩引发磁矩进动,并且射频电流会在系统中产生一个 y 方向的有效场,也会使CFB受到力矩的作用.由于ST-FMR电压信号中对称线形分量来源于自旋流产生的阻尼矩,而反对

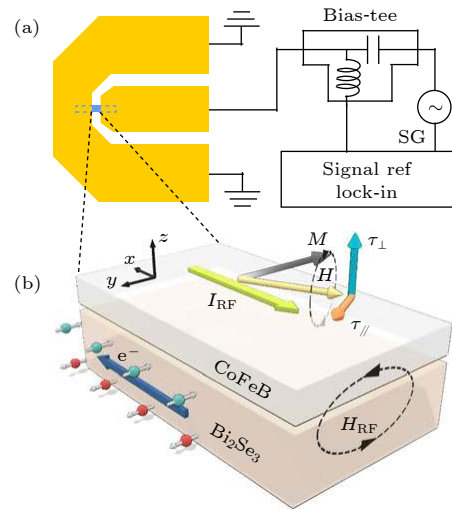


图7 (a) ST-FMR测试示意图,使用信号发生器(SG)给样品施加一个射频电流,通过测试样品的电压信号计算拓扑绝缘体的自旋霍尔角;(b)异质结中的磁矩进动过程^[88]

Fig. 7. (a) The schematic diagram of the ST-FMR measurement setup, an RF current from a signal generator (SG) is injected into the devices; (b) magnetization movements in the ST-FMR measurements^[88].

称线型分量来源于射频磁场的贡献^[89,90], 因此可以通过线形与非线形部分的比值来确定自旋流与电荷流的比值, 即自旋霍尔角 θ_{SH} . Wang 等通过计算得出 Bi_2Se_3 的自旋霍尔角为 1.75, 与过去的报道 ($\theta_{\text{SH}} = 2.0$ ^[91]) 接近. 表 2 展示了拓扑绝缘体与几种重金属自旋霍尔角的对比^[35], 从表 2 可以看出拓扑绝缘体的自旋-电荷转换效率是重金属的 10 倍以上. 因此, 除自旋太赫兹发射器之外, 拓扑绝缘体也被视为实现超低功耗磁随机存储器 (magnetic random access memory, MRAM) 等新型自旋电子器件的重要材料^[92].

表 2 拓扑绝缘体与几种重金属材料的自旋霍尔角^[35]

Table 2. Spin Hall angles of several topological insulators and common heavy metals^[35].

Material	θ_{SH}
Ta	0.15
W	0.40
Pt	0.08
Bi_2Se_3	2.00—3.50
$\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x}$	18.80
$\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x}$	52.00

4.2 绝缘体/铁磁异质结中的自旋太赫兹发射

由于拓扑绝缘体极大的自旋-电荷转换率, 在铁磁/拓扑绝缘体异质结中可以实现高效的自旋太赫兹发射. 2018 年, Wang 等^[68] 首次利用 $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{Co}$ 异质结实现了自旋太赫兹发射. 如图 8(a) 所示, 他们使用波长为 800 nm 功率为 60 mW 的飞秒激光垂直入射异质结, 激光激发使 Co 层产生超快自旋流并注入相邻的 Bi_2Se_3 中, 再由 ISHE 将飞秒激光诱导的自旋流转换成亚皮秒尺度上的横向电荷流, 进而产生太赫兹辐射. 为了排除单层拓扑绝缘体中非线性电流和铁磁层的超快退磁对出射太赫兹的贡献, 分别测量了飞秒激光激发下 Bi_2Se_3 和 Co 的太赫兹辐射, 如图 8(b) 所示, 显然异质结中自旋-电荷转换引入的自旋太赫兹发射在总太赫兹辐射中占据主导地位. 当抽运光从前入射变为后入射时, 太赫兹信号的极性发生 180° 的反转, 改变面外磁场的方向后, 也能观察到同样的极性反转现象 (图 8(c)). 这是因为入射方向与样品磁化强度的方向分别对应 ISHE 中的自旋流 $\mathbf{J}_s$ 和自旋极化矢量 $\boldsymbol{\sigma}$ 的方向, 由公式 (5) 可知, 当激光的入射方向

或样品磁化方向改变时, ISHE 产生的电荷流反向, 即异质结产生的太赫兹辐射反向.

为了验证 $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{Co}$ 异质结的发射效率, Wang 等^[68] 使用与 Bi_2Se_3 表面相同厚度 (2 nm) 的 Pt 作为对照组, 对比他们产生自旋太赫兹幅度的差异.

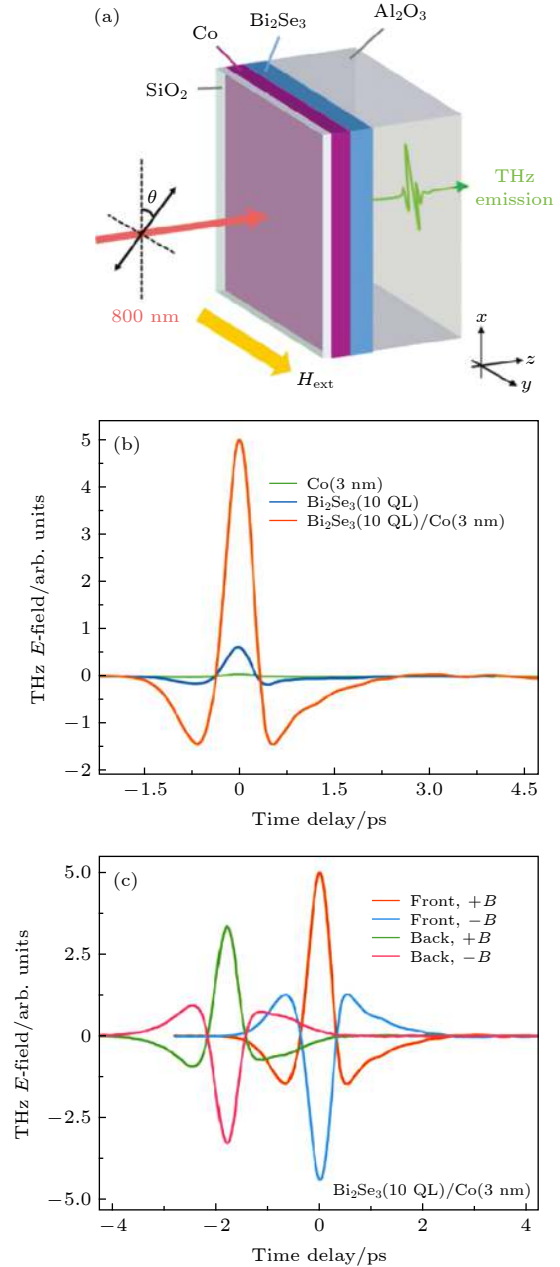


图 8 (a) $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{Co}$ 异质结构示意图; (b) 用飞秒激光分别激发 $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{Co}$, Co, Bi_2Se_3 产生的太赫兹信号; (c) 改变入射方向与面内磁场方向后, 异质结发射的太赫兹极性反转^[68]

Fig. 8. (a) The schematic diagram of the $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{Co}$ heterostructure; (b) THz waveforms generated from $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{Co}$, Co and Bi_2Se_3 ; (c) THz waveforms emitted from the heterostructure measured with front and back sample excitation and reversed magnetic field^[68].

实验结果显示, 在相同的有效厚度下, Bi_2Se_3 的发射效率是 Pt 的 1.7 倍, 其中 Bi_2Se_3 (10 nm)/Co (3 nm) 的发射效率更是可以与商用的 ZnTe 晶体相媲美. 更重要的是, 他们证明了拓扑绝缘体中的自旋-电荷转换对温度的变化不敏感. 这些优点充分说明了拓扑绝缘体/铁磁异质结对实现高效、稳定、廉价的太赫兹发射器的重要意义. 并且, 由于拓扑绝缘体特殊的拓扑表面态, 其本身就可以发射太赫兹信号, 因此对拓扑绝缘体/铁磁异质结的研究有望实现任意调谐的拓扑自旋太赫兹发射器.

4.3 拓扑自旋太赫兹发射器的前景

拓扑绝缘体在与铁磁层材料组合构成自旋太赫兹发射器时, 可以产生较大强度的自旋太赫兹辐射, 出射的自旋太赫兹波为线偏振且偏振方向只依赖于铁磁层的磁化方向. 然而, 由前面的讨论可知, 拓扑绝缘体单层薄膜即可辐射太赫兹, 其产生机理为材料内部的非线性效应. 如表 1 所示, 可以通过改变抽运光入射角、抽运光的极化状态和样品方位角对单层拓扑绝缘体出射太赫兹波进行调控. 因此, 可以通过控制外磁场方向与样品方位角, 调控单层拓扑绝缘体中非线性太赫兹的偏振方向. 由于自旋太赫兹发射不依赖于非线性效应, 即非线性太赫兹和自旋太赫兹的偏振方向会有一个夹角, 且超快电流的响应速度远大于自旋注入, 即两束太赫兹波之间一定存在一个相位差. 因此在飞秒激光激发时, 异质结中出射的两束太赫兹波可以在空间上合成椭圆极化的太赫兹波. 进一步地, 通过控制单层拓扑绝缘体中的超快光电流响应, 可以实现对出射太赫兹手性的调控.

在 2.2 节中讨论了拓扑绝缘体的各种非线性光电流效应, 可以看出拓扑绝缘体薄膜中的太赫兹发射与其狄拉克表面态有关, 然而, 在飞秒激光激发时, 由于体载流子对激光的吸收作用, 拓扑绝缘体产生的超快光电响应可能会被抑制 [93]. 因此, 可以改变拓扑绝缘体的费米能级, 使其落在体能隙上, 降低体载流子密度, 进而增强发射的太赫兹强度. 在实验上通常使用施加栅极电压 [94,95] 或掺杂金属元素 [96,97] 的方法调控拓扑绝缘体的费米能级. Pan 等 [98] 制备了带有顶电极的 $(\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x})_2\text{Se}_3$ 单层薄膜样品 (图 9(a)), 研究了飞秒激光激发下拓扑绝缘体内部超快光电流与栅极电压的关系. 如图 9(b) 所示, 当栅极电压为 0 V 时, 样品的纵向电阻 R_{xx}

最大, 此时样品费米能级处在体带隙中, 并且光电流的绝对值 $|C|$ 最大, 这与假设是一致的. Luo 等 [99] 也报道了相同的现象, 他们通过不同的方式生长了不同载流子浓度的 Bi_2Se_3 , 分别测量了不同样品出射的太赫兹幅度. 如表 3 所示, 在纯拓扑绝缘体中, 出射太赫兹波的强度随载流子浓度的减少而增加. 特别地, 当使用 Cu 掺杂降低 Bi_2Se_3 的载流子浓度后, 其出射太赫兹峰值强度增加 50 倍. Pan 等和 Luo 等的实验结果证明了使用光学之外的方法调控非线性太赫兹幅度的可能性.

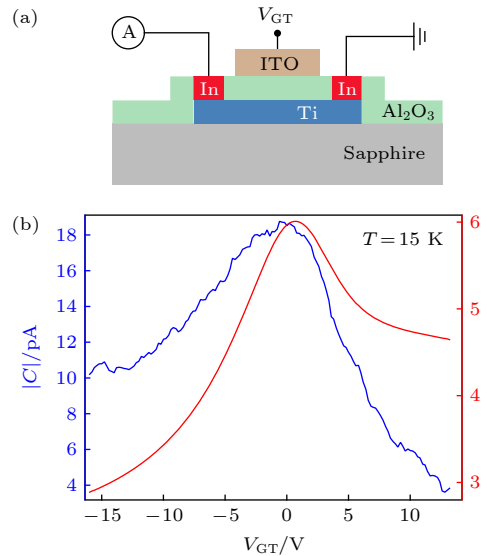


图 9 (a) Pan 等人制备的顶电极器件, 其中 Al_2O_3 作为介电层, ITO 作为电极材料; (b) $(\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x})_2\text{Se}_3$ 薄膜的光电流与纵向电阻随电压的变化情况 [98]

Fig. 9. (a) The Schematic diagram of the top-gate device prepared by Pan et al, where the Al_2O_3 is dielectric layer while the ITO serves as top gate material; (b) the gate-dependent longitudinal resistance and nonlinear current in $(\text{Bi}_x\text{Sb}_{1-x})_2\text{Se}_3$ film [98].

表 3 不同载流子浓度下 Bi_2Se_3 辐射的太赫兹峰值强度 [99]

Table 3. Carrier concentration and THz peak amplitude for Bi_2Se_3 films [99].

编号	材料	载流子浓度/ 10^{18} cm^{-3}	太赫兹峰值/ $\text{mV} \cdot \text{cm}^{-1}$
1	Bi_2Se_3	-75.5	1.24
2	Bi_2Se_3	-34.6	7.75
3	Bi_2Se_3	-31	5.27
4	Bi_2Se_3	-15.6	11.10
5	$\text{Cu}_{0.02}\text{Bi}_2\text{Se}_3$	-3.66	54.39
6	$\text{Cu}_{0.08}\text{Bi}_2\text{Se}_3$	-4.23	55.77
7	$\text{Cu}_{0.1}\text{Bi}_2\text{Se}_3$	-1.96	39.37
8	$\text{Cu}_{0.125}\text{Bi}_2\text{Se}_3$	-1.17	52.32

综上所述, 拓扑绝缘体/铁磁异质结可以发射手性可调的椭圆太赫兹波, 并且可以通过施加栅极电压控制出射非线性太赫兹的幅值, 如果能够结合这两个优势, 即通过改变晶格和磁场方向调控出射太赫兹的偏振态, 施加栅极电压改变非线性太赫兹分量的幅值, 就可以通过拓扑绝缘体/铁磁异质结实现任意调谐的太赫兹波发射。

5 结 论

针对拓扑绝缘体的研究成果, 不仅可以应用于低功耗自旋电子器件和量子计算器件, 而且对于研发低功耗可控太赫兹发射器也具有重要意义。

在这篇综述中, 首先, 从拓扑绝缘体的基本结构入手, 以 Bi_2Se_3 为例讨论了拓扑绝缘体的非中心对称表面, 结合 ARPES 分析了其拓扑保护的非平庸表面态. 这种特殊的能带结构是拓扑绝缘体实现高效自旋太赫兹发射的根本原因. 通过对拓扑绝缘体内部的几种非线性效应的分析, 说明了拓扑绝缘体薄膜出射太赫兹波对晶体方向 ϕ , 入射角 θ 或入射光偏振态的依赖关系, 即可以通过改变这些外界条件, 实现对出射非线性太赫兹辐射的调控。

接下来, 为了证明拓扑绝缘体/铁磁异质结作为自旋太赫兹发射器的优越性, 首先分析了基于铁磁/非磁异质结中的自旋太赫兹发射. 在飞秒激光的激发下, 由于自旋塞贝克效应等超快动力学效应, 在铁磁层中激发一个纯自旋流并被注入非磁层. 由于 ISHE, 注入的自旋流被转换成亚皮秒时间尺度上的横向电荷流, 进而产生太赫兹辐射. 自旋太赫兹具有稳定、廉价、低功耗、易于调控等优点, 比如可以通过级联两组异质结实现圆偏振的太赫兹发射, 或者通过双抽运激发异质结实现对太赫兹频谱的调控. 由于自旋太赫兹的偏振方向只依赖于铁磁层的磁化方向, 因此可以通过改变磁场分布实现手性可控太赫兹发射。

由于拓扑绝缘体有强自旋轨道耦合特性, 可以实现高效的自旋-电荷转化, 因此可以使用拓扑绝缘体材料代替非磁层构成拓扑自旋发射器. 在相同的有效厚度下, 拓扑绝缘体的自旋太赫兹发射效率是重金属的 1.7 倍, 经厚度优化后, 其发射效率可以与商用的 ZnTe 晶体相媲美. 拓扑自旋太赫兹发射器在保留自旋太赫兹优势的前提下, 可以通过改变晶体方向单独调控拓扑绝缘体中非线性效应产

生的太赫兹辐射, 其出射的非线性太赫兹波与异质结中出射的自旋太赫兹波可以在空间中合成椭圆太赫兹波. 并且, 可以通过施加栅极电压或掺杂调控拓扑绝缘体的费米能级, 进而改变出射非线性太赫兹的幅值. 将两个优点结合起来, 可以实现圆偏振的太赫兹发射. 目前国内外的研究表明, 基于拓扑绝缘体/铁磁异质结构的拓扑自旋太赫兹发射器可以成为实现偏振任意可调谐太赫兹脉冲辐射的一种有效方案。

参考文献

- [1] Jin Z, Mics Z, Ma G, Cheng Z, Bonn M, Turchinovich D 2013 *Phys. Rev. B* **87** 094422
- [2] Tonouchi M 2007 *Nat. Photonics* **1** 97
- [3] Nagatsuma T, Ducournau G, Renaud C C 2016 *Nat. Photonics* **10** 371
- [4] Sirtori C 2002 *Nature* **417** 132
- [5] Zhang B, He T, Shen J, Hou Y, Hu Y, Zang M, Chen T, Feng S, Teng F, Qin L 2014 *Opt. Lett.* **39** 6110
- [6] Kawase K, Sato M, Taniuchi T, Ito H 1996 *Appl. Phys. Lett.* **68** 2483
- [7] Winnewisser C, Jepsen P U, Schall M, Schyja V, Helm H 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 3069
- [8] Han P Y, Tani M, Pan F, Zhang X C 2000 *Opt. Lett.* **25** 675
- [9] Kawase K, Hatanaka T, Takahashi H, Nakamura K, Taniuchi T, Ito H 2000 *Opt. Lett.* **25** 1714
- [10] Nahata A, Welting A S, Heinz T F 1996 *Appl. Phys. Lett.* **69** 2321
- [11] Matsuura S, Tani M, Sakai K 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 559
- [12] Shi W, Yan Z J 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 228702 (in Chinese) [施卫, 闫志巾 2015 物理学报 **64** 228702]
- [13] Kumar N, Hendrikx R W A, Adam A J L, Planken P C M 2015 *Opt. Express* **23** 14252
- [14] Gorelov S, Mashkovich E, Tsarev M, Bakunov M 2013 *Phys. Rev. B* **88** 220411
- [15] Mikhaylovskiy R, Hendry E, Kruglyak V, Pisarev R, Rasing T, Kimel A 2014 *Phys. Rev. B* **90** 184405
- [16] Beaurepaire E, Turner G M, Harrel S M, Beard M C, Bigot J Y, Schmittenmaer C A 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 3465
- [17] Hilton D J, Averitt R D, Meserole C A, Fisher G L, Funk D J, Thompson J D, Taylor A J 2004 *Opt. Lett.* **29** 1805
- [18] Shen J, Fan X, Chen Z, DeCamp M F, Zhang H, Xiao J Q 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 072401
- [19] 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
- [20] Seifert T, Jaiswal S, Martens U, Hannegan J, Braun L, Maldonado P, Freimuth F, Kronenberg A, Henrzi 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
- [21] Wang B, Shan S, Wu X, Wang C, Pandey C, Nie T, Zhao W, Li Y, Miao J, Wang L 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 121104
- [22] Chen X, Wu X, Shan S, Guo F, Kong D, Wang C, Nie T, Pandey C, Wen L, Zhao W, Ruan C, Miao J, Li Y, Wang L 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 221104

- [23] Bernevig B A, Hughes T L, Zhang S C 2006 *Science* **314** 1757
- [24] Fu L, Kane C L, Mele E J 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 106803
- [25] Moore J E, Balents L 2007 *Phys. Rev. B* **75** 121306
- [26] Roy R 2009 *Phys. Rev. B* **79** 195322
- [27] Fu L, Kane C L 2007 *Phys. Rev. B* **76** 045302
- [28] Xia Y, Qian D, Hsieh D, Wray L, Pal A, Lin H, Bansil A, Grauer D, Hor Y S, Cava R J 2009 *Nat. Phys.* **5** 398
- [29] Hsieh D, Xia Y, Qian D, Wray L, Dil J H, Meier F, Osterwalder J, Patthey L, Checkelsky J G, Ong N P, Fedorov A V, Lin H, Bansil A, Grauer D, Hor Y S, Cava R J, Hasan M Z 2009 *Nature* **460** 1101
- [30] König M, Wiedmann S, Brüne C, Roth A, Buhmann H, Molenkamp L W, Qi X L, Zhang S C 2007 *Science* **318** 766
- [31] Chang C Z, Zhang J, Feng X, Shen J, Zhang Z, Guo M, Li K, Ou Y, Wei P, Wang L L, Ji Z Q, Feng Y, Ji S, Chen X, Jia J, Dai X, Fang Z, Zhang S C, He K, Wang Y, Lu L, Ma X C, Xue Q K 2013 *Science* **340** 167
- [32] He Q L, Pan L, Stern A L, Burks E C, Che X, Yin G, Wang J, Lian B, Zhou Q, Choi E S, Murata K, Kou X, Chen Z, Nie T, Shao Q, Fan Y, Zhang S C, Liu K, Xia J, Wang K L 2017 *Science* **357** 294
- [33] Hsieh D, Qian D, Wray L, Xia Y, Hor Y S, Cava R J, Hasan M Z 2008 *Nature* **452** 970
- [34] Li Y, Edmonds K W, Liu X, Zheng H, Wang K 2019 *Adv. Quantum Technol.* **2** 1800052
- [35] Khang N H D, Ueda Y, Hai P N 2018 *Nat. Mater.* **17** 808
- [36] Ganichev S D, Ketterl H, Prettl W, Ivchenko E L, Vorobjev L E 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 3146
- [37] Ganichev S D, Prettl W 2003 *J. Phys.: Condens. Matter* **15** R935
- [38] Liu C X, Qi X L, Zhang H, Dai X, Fang Z, Zhang S C 2010 *Phys. Rev. B* **82** 045122
- [39] Kane C L, Mele E J 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 226801
- [40] Che X, Murata K, Pan L, He Q L, Yu G, Shao Q, Yin G, Deng P, Fan Y, Ma B, Liang X, Zhang B, Han X, Bi L, Yang Q H, Zhang H, Wang K L 2018 *ACS Nano* **12** 5042
- [41] He L, Kou X, Wang K L 2013 *Phys. Status Solidi RRL* **7** 50
- [42] Hamh S Y, Park S H, Han J, Jeon J H, Kahng S J, Kim S, Choi S H, Bansal N, Oh S, Park J, Kim J S, Kim J M, Noh D Y, Lee J S 2015 *Nanoscale Res. Lett.* **10** 1
- [43] Pan Z H, Fedorov A, Gardner D, Lee Y S, Chu S, Valla T 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 187001
- [44] Kane C L, Mele E J 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 146802
- [45] Wu H, Xu Y, Deng P, Pan Q, Razavi S A, Wong K, Huang L, Dai B, Shao Q, Yu G, Han X, Rojas-Sánchez J C, Mangin S, Wang K L 2019 *Adv. Mater* **31** 1901681
- [46] Wang Y, Deorani P, Banerjee K, Koirala N, Brahlek M, Oh S, Yang H 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 257202
- [47] Zhu L G, Kubera B, Mak K F, Shan J 2015 *Sci. Rep.* **5** 10308
- [48] Hamh S Y, Park S H, Jerng S K, Jeon J H, Chun S H, Lee J S 2016 *Phys. Rev. B* **94** 161405
- [49] Fang Z, Wang H, Wu X, Shan S, Wang C, Zhao H, Xia C, Nie T, Miao J, Zhang C, Zhao W, Wang L 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 191102
- [50] Liu K, Xu J, Yuan T, Zhang X C 2006 *Phys. Rev. B* **73** 155330
- [51] Seifert P, Vaklinova K, Kern K, Burghard M, Holleitner A 2017 *Nano Lett.* **17** 973
- [52] Duan J, Tang N, He X, Yan Y, Zhang S, Qin X, Wang X, Yang X, Xu F, Chen Y 2014 *Sci. Rep.* **4** 4889
- [53] Kastl C, Karnetzky C, Karl H, Holleitner A W 2015 *Nat. Commun.* **6** 6617
- [54] McIver J W, Hsieh D, Steinberg H, Jarillo-Herrero P, Gedik N 2011 *Nat. Nanotechnol.* **7** 96
- [55] Braun L, Mussler G, Hruban A, Konczykowski M, Schumann T, Wolf M, Münzenberg M, Perfetti L, Kampfrath T 2016 *Nat. Commun.* **7** 13259
- [56] Tu C M, Chen Y C, Huang P, Chuang P Y, Lin M Y, Cheng C M, Lin J Y, Juang J Y, Wu K H, Huang J C A, Pong W F, Kobayashi T, Luo C W 2017 *Phys. Rev. B* **96** 195407
- [57] Belinicher V I, Sturman B I 1980 *Phys.-Usp.* **23** 199
- [58] Junck A, Refael G, von Oppen F 2013 *Phys. Rev. B* **88** 075144
- [59] Maysonave J, Huppert S, Wang F, Maero S, Berger C, de Heer W, Norris T B, de Vaulchier L A, Dhillon S, Tignon J, Ferreira R, Mangeney J 2014 *Nano Lett.* **14** 5797
- [60] Obratsov P A, Kaplas T, Garnov S V, Kuwata-Gonokami M, Obratsov A N, Svirko Y P 2014 *Sci. Rep.* **4** 4007
- [61] Karch J, Olbrich P, Schmalzbauer M, et al. 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 227402
- [62] Bahk Y M, Ramakrishnan G, Choi J, Song H, Choi G, Kim Y H, Ahn K J, Kim D S, Planken P C M 2014 *ACS Nano* **8** 9089
- [63] Hamh S Y, Park S H, Han J, Jeon J H, Kahng S J, Kim S, Choi S H, Bansal N, Oh S, Park J 2015 *Nanoscale Res. Lett.* **10** 489
- [64] Tu C M, Yeh T T, Tzeng W Y, Chen Y R, Chen H J, Ku S A, Luo C W, Lin J Y, Wu K H, Juang J Y 2015 *Sci. Rep.* **5** 14128
- [65] Hosur P 2011 *Phys. Rev. B* **83** 035309
- [66] Olbrich P, Golub L, Herrmann T, et al. 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 096601
- [67] Gao Y, Kaushik S, Philip E, Li Z, Qin Y, Liu Y, Zhang W, Su Y, Chen X, Weng H 2020 *Nat. Commun.* **11** 720
- [68] Wang X, Cheng L, Zhu D, Wu Y, Chen M, Wang Y, Zhao D, Boothroyd C B, Lam Y M, Zhu J X, Battiatto M, Song J C W, Yang H, Chia E E M 2018 *Adv. Mater* **30** 1802356
- [69] Bosu S, Sakuraba Y, Uchida KI, Saito K, Ota T, Saitoh E, Takanashi K 2011 *Phys. Rev. B* **83** 224401
- [70] Jaworski C M, Yang J, Mack S, Awschalom D D, Heremans J P, Myers R C 2010 *Nat. Mater.* **9** 898
- [71] Battiatto M, Carva K, Oppeneer P M 2012 *Phys. Rev. B* **86** 024404
- [72] Kimura T, Otani Y, Sato T, Takahashi S, Maekawa S 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 156601
- [73] Uchida K, Takahashi S, Harii K, Ieda J, Koshibae W, Ando K, Maekawa S, Saitoh E 2008 *Nature* **455** 778
- [74] Seifert T S, Jaiswal S, Barker J, Weber S T, Razdolski I, Cramer J, Gueckstock O, Maehrlein S F, Nadvornik L, Watanabe S 2018 *Nat. Commun.* **9** 1
- [75] Rudolf D, La-O-Vorakiat C, Battiatto M, et al. 2012 *Nat. Commun.* **3** 1037
- [76] Eschenlohr A, Battiatto M, Maldonado P, Pontius N, Kachel T, Holldack K, Mitzner R, Föhlisch A, Oppeneer P M, Stamm C 2013 *Nat. Mater.* **12** 332
- [77] Battiatto M, Carva K, Oppeneer P M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 027203
- [78] Bennemann K H 2004 *J. Phys.: Condens. Matter* **16** R995
- [79] Kirilyuk A, Kimel A V, Rasing T 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 2731
- [80] Sasaki Y, Suzuki K Z, Mizukami S 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 102401
- [81] Torosyan G, Keller S, Scheuer L, Beigang R, Papaioannou E T 2018 *Sci. Rep.* **8** 1311
- [82] Wu Y, Elyasi M, Qiu X, Chen M, Liu Y, Ke L, Yang H 2017 *Adv. Mater* **29** 1603031

- [83] Zhou X, Song B, Chen X, You Y, Ruan S, Bai H, Zhang W, Ma G, Yao J, Pan F 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 182402
- [84] Hibberd M, Lake D, Johansson N, Thomson T, Jamison S, Graham D 2019 *Appl. Phys. Lett.* **114** 031101
- [85] 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
- [86] Pai C F, Liu L, Li Y, Tseng H W, Ralph D C, Buhrman R A 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 122404
- [87] Liu L, Pai C F, Li Y, Tseng H W, Ralph D C, Buhrman R A 2012 *Science* **336** 555
- [88] Wang Y, Zhu D, Wu Y, Yang Y, Yu J, Ramaswamy R, Mishra R, Shi S, Elyasi M, Teo K L 2017 *Nat. Commun.* **8** 1
- [89] Kubota H, Fukushima A, Yakushiji K, Nagahama T, Yuasa S, Ando K, Maehara H, Nagamine Y, Tsunekawa K, Djayaprawira D D 2008 *Nat. Phys.* **4** 37
- [90] Liu L, Moriyama T, Ralph D, Buhrman R 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 036601
- [91] Mellnik A R, Lee J S, Richardella A, Grab J L, Mintun P J, Fischer M H, Vaezi A, Manchon A, Kim E A, Samarth N, Ralph D C 2014 *Nature* **511** 449
- [92] Fan Y, Upadhyaya P, Kou X, Lang M, Takei S, Wang Z, Tang J, He L, Chang L T, Montazeri M 2014 *Nat. Mater.* **13** 699
- [93] Kekatpure R D, Brongersma M L 2008 *Nano Lett.* **8** 3787
- [94] Chen J, Qin H J, Yang F, Liu J, Guan T, Qu F M, Zhang G H, Shi J R, Xie X C, Yang C L, Wu K H, Li Y Q, Lu L 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 176602
- [95] Jauregui L A, Pettes M T, Rokhinson L P, Shi L, Chen Y P 2015 *Sci. Rep.* **5** 8452
- [96] Souma S, Eto K, Nomura M, Nakayama K, Sato T, Takahashi T, Segawa K, Ando Y 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 116801
- [97] Wang Z, Lin T, Wei P, Liu X, Dumas R, Liu K, Shi J 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 159903
- [98] Pan Y, Wang Q Z, Yeats A L, Pillsbury T, Flanagan T C, Richardella A, Zhang H, Awschalom D D, Liu C X, Samarth N 2017 *Nat. Commun.* **8** 1037
- [99] Luo C W, Chen H J, Tu C M, Lee C C, Ku S A, Tzeng W Y, Yeh T T, Chiang M C, Wang H J, Chu W C 2013 *Adv. Opt. Mater.* **1** 804

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

High-performance THz emission: From topological insulator to topological spintronics^{*}

Wang Hang-Tian¹⁾²⁾ Zhao Hai-Hui¹⁾ Wen Liang-Gong¹⁾²⁾
Wu Xiao-Jun³⁾ Nie Tian-Xiao^{1)2)†} Zhao Wei-Sheng¹⁾²⁾

1) (*Fert Beijing Institute, School of Microelectronics, Beihang University, Beijing 100191, China*)

2) (*Qingdao Research Institute, Beihang University, Qingdao 266000, China*)

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

(Received 8 May 2020; revised manuscript received 4 June 2020)

Abstract

Ferromagnet/nonmagnet (FM/NM) heterostructure under the excitation of femtosecond laser has proved to be a potential candidate for high-efficiency terahertz (THz) emission. Topological insulator (TI) is a novel two-dimensional (2D) material with a strong spin-orbital coupling, which endows this material with an extremely large spin-Hall angle. Thus, TI appears to be an attractive alternative to achieving higher-performance spintronic THz emitter when integrated with ferromagnetic material. In this paper, we discuss the ultrafast photocurrent response mechanism in TI film on the basis of the analysis of its crystal and band structures. The discussion of the mechanism reveals a relationship between THz radiation and external conditions, such as crystal orientation, polarized direction and chirality of the laser. Furthermore, we review the spintronic THz emission and manipulation in FM/NM heterostructure. The disclosed relationship between THz radiation and magnetization directions enables an effective control of the THz polarization by optimizing the system, such as by applying twisted magnetic field or fabricating cascade emitters. After integration, the FM/TI heterostructure presents a high efficiency and easy operation in THz radiation. This high-performance topological spintronic THz emitter presents a potential for the achievement of arbitrary polarization-shaping terahertz radiation.

Keywords: terahertz source, topological insulator, ultrafast photocurrent, spintronic terahertz

PACS: 07.57.Hm, 85.75.-d, 64.70.Nd, 73.50.Pz

DOI: 10.7498/aps.69.20200680

^{*} Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2018YFB0407602), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61774013, 11644004), and the National Key Technology Program of China (Grant No. 2017ZX01032101).

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

磁控溅射法生长 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 双层异质结太赫兹发射

张帆 许涌 柳洋 程厚义 张晓强 杜寅昌 吴晓君 赵巍胜

Terahertz emission generated from $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ heterostructures grown by magnetron sputtering

Zhang Fan Xu Yong Liu Yang Cheng Hou-Yi Zhang Xiao-Qiang Du Yin-Chang Wu Xiao-Jun Zhao Wei-Sheng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 200705 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200634

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200634>

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>

激光等离子体光丝中太赫兹频谱的调控

Control of the terahertz spectra generated from laser induced plasma

物理学报. 2020, 69(2): 024205 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191200>

飞秒激光脉冲能量累积优化对黑硅表面形貌的影响

Femtosecond laser pulse energy accumulation optimization effect on surface morphology of black silicon

物理学报. 2017, 66(6): 067902 <https://doi.org/10.7498/aps.66.067902>

用于飞秒激光纳米加工的 TiO_2 粒子阵列诱导多种基底表面近场增强

Near field enhancement of TiO_2 nanoparticle array on different substrates for femtosecond laser processing

物理学报. 2017, 66(14): 144203 <https://doi.org/10.7498/aps.66.144203>

激光在大气中驱动的强大太赫兹辐射的理论和实验研究

Theoretical and experimental studies on terahertz radiation from laser-driven air plasma

物理学报. 2018, 67(12): 124202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180564>

基于光纤中超短脉冲非线性传输机理与特定光谱选择技术的多波长飞秒激光的产生

Generation of multi-wavelength femtosecond laser pulse based on nonlinear propagation of high peak power ultrashort laser pulse in single-mode fiber and spectral selectivity technology

物理学报. 2018, 67(18): 184205 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20181026>

专题：太赫兹自旋光电子

磁控溅射法生长 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 双层
异质结太赫兹发射*张帆^{1)2)#} 许涌^{1)2)#} 柳洋^{1)#} 程厚义¹⁾ 张晓强²⁾
杜寅昌²⁾ 吴晓君^{3)†} 赵巍胜^{1)2)‡}

1) (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)

2) (北京航空航天大学, 北航合肥创新研究院, 合肥 230012)

3) (北京航空航天大学电子信息工程学院, 北京 100191)

(2020 年 4 月 29 日收到; 2020 年 6 月 6 日收到修改稿)

自旋太赫兹源作为一种新型太赫兹辐射源, 以其高效率、超宽带、低成本、易集成等优点已成为太赫兹科学与应用领域的研究热点. 本实验报道了晶圆级磁控溅射生长的多晶拓扑绝缘体 Bi_2Te_3 和铁磁体 CoFeB 双层异质结纳米薄膜发射太赫兹电磁波, 并对太赫兹辐射特性进行了深入而系统的实验研究. 在飞秒激光放大级脉冲作用下, 该异质结呈现出高效率的太赫兹发射, 且辐射偏振可通过外加磁场方向控制. 通过与 Pt/CoFeB 对比, 研究发现 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 的发射性能与 Pt/CoFeB 双层异质结相当. 实验还对生长在不同衬底上的 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 的发射性能进行了对比研究, 发现 MgO 衬底上制备的样品具有相对较好的太赫兹辐射性能. 本实验研究不仅对自旋太赫兹发射机理有更加深入的认识, 而且通过样品和结构的优化, 有望获得更高的发射效率, 且该发射器具有大尺寸批量生长、成本较低的优势, 具备商业化应用的潜力.

关键词: 太赫兹辐射, 拓扑绝缘体/铁磁异质结, 飞秒激光

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

DOI: 10.7498/aps.69.20200634

1 引言

高性能的太赫兹辐射源对太赫兹波谱、成像及通讯等应用领域的发展起重要推动作用. 近年来, 研究人员利用铁磁/非磁异质结中的自旋-电荷转换效应发展了一系列的自旋太赫兹辐射源. 基于飞秒激光抽运的自旋太赫兹源由于具有高效率、超宽带、低成本、易集成等优点而成为太赫兹科学与应用领域的研究热点^[1–10]. 在铁磁/非磁异质结中,

非磁层的材料选择决定了异质结界面的自旋-电荷转换效率, 从而影响太赫兹发射性能. 目前, 自旋太赫兹源研究较为广泛的体系是铁磁/重金属结构. 重金属材料中的逆自旋霍尔效应实现了超快时间尺度上了自旋-电荷转换, 因此重金属的自旋霍尔角的大小对太赫兹发射性能有非常重要的影响^[2].

近年来, 拓扑绝缘体由于其独特的物理性质而引起研究人员的关注^[11–14]. 拓扑绝缘体的体相是绝缘的, 表面却具有金属性质, 形成拓扑保护, 具有强自旋-轨道耦合作用, 拥有优越的自旋-电荷转

* 国家自然科学基金 (批准号: 61905007, 61627813, 11904016)、北航合肥创新研究院项目 (批准号: BHKX-19-01, BHKX-19-02) 和北京市自然科学基金 (批准号: 4194083) 资助的课题.

同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: xiaojunwu@buaa.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: weisheng.zhao@buaa.edu.cn

换特性^[15]. Wang 等^[16]将拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 作为非铁磁层与铁磁体 Co 结合, 发现 $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{Co}$ 可产生较强的太赫兹发射, 并区分了拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 自身的贡献和自旋-电荷转换的贡献, 其中自旋-电荷转换为主要贡献. 而在自旋-电荷转换中, 表面的逆 Edelstein 效应起主要作用, 但未能完全排除体相的逆自旋霍尔效应的存在. 除此之外, 拓扑绝缘体自身受飞秒激光抽运也可以发射太赫兹波. Braun 等^[17]用飞秒激光抽运拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 单晶, 在其表面观察到转移电流, 这是由于电子密度沿 Se—Bi 键的瞬时位移引起的, 此行为主导了表面电流响应, 可向外辐射太赫兹波. Fang 等^[18]采用分子束外延方法制备了拓扑绝缘体 Bi_2Te_3 薄膜, 并研究了飞秒激光抽运 Bi_2Te_3 薄膜产生的太赫兹辐射, 他们发现 Bi_2Te_3 的漂移电流的贡献要比扩散电流的贡献大一个量级, 而非线性电流的贡献则超过了漂移电流和扩散电流的贡献, 证明了拓扑绝缘体表面对光有超快非线性响应, 揭示了非线性电流沿 Bi—Te 键流动.

目前, 拓扑绝缘体材料大多采用分子束外延方法制备. 从应用潜力看, 分子束外延方法虽然能够制备出高品质的单晶薄膜, 但是制备尺寸受限, 且制造成本较高. 如果用磁控溅射方法制备拓扑绝缘体/铁磁异质结, 将能够批量生长直径达 4 in (1 in = 2.54 cm) 的晶圆级大尺寸样品, 降低制造成本, 有望推广到商业化应用. 但是用磁控溅射方法制备的拓扑绝缘体/铁磁异质结的太赫兹发射性能未见报道. 本文采用磁控溅射方法制备了拓扑绝缘体 Bi_2Te_3 /铁磁 CoFeB 双层异质结, 利用太赫兹时域光谱系统对 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 的太赫兹发射性能进行了深入研究, 发现在飞秒激光放大级脉冲作用下, $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 呈现高效率的太赫兹发射. 通过

样品和结构的进一步优化, $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 将有望获得更高的发射效率, 具备商业化应用潜力.

2 实验部分

2.1 样品制备

本文实验所用的样品包括 $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$, $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)$, $\text{CoFeB}(2)$, $\text{W}(4)/\text{CoFeB}(2.2)$ 和 $\text{Pt}(4)/\text{CoFeB}(2.2)$, 括号中的数字表示厚度, 单位是纳米. 在单抛的 MgO 衬底上制备 $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$, $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)$, $\text{CoFeB}(2)$ 这三种样品. MgO 衬底厚度为 0.5 mm. 为了比较不同衬底的影响, 分别在玻璃和高阻硅衬底上制备 $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ 样品, 玻璃衬底和高阻硅衬底厚度均为 0.5 mm. $\text{W}(4)/\text{CoFeB}(2.2)$ 和 $\text{Pt}(4)/\text{CoFeB}(2.2)$ 样品的衬底材料是玻璃. 利用高真空 AJA 溅射系统制备这些样品, 溅射系统的本底真空为 2.0×10^{-8} Torr (1 Torr = 133.322 Pa), 所有样品都在低于 2 mTorr 的氩气压力下沉积. $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$, $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)$ 和 $\text{CoFeB}(2)$ 样品上均覆盖一层 3 nm 厚的 SiO_2 作为保护层. Bi_2Te_3 , CoFeB, SiO_2 , W 和 Pt 的生长速率分别为 0.067, 0.006, 0.008, 0.021 nm/s 和 0.077 nm/s.

2.2 样品的太赫兹发射性能测试

利用太赫兹时域光谱系统进行样品的太赫兹发射性能测试, 实验装置如图 1(a) 所示. 实验中使用的激光器是钛: 蓝宝石再生放大器 (中心波长 800 nm, 脉冲宽度 35 fs, 重复频率为 1 kHz). 超快飞秒激光被分束镜分成抽运光和探测光两部分. 功率为 18 mW、光斑大小为 3 mm (0.255 mJ/cm^2) 的抽运光从样品一侧以正入射的方式照射样品. 产生的太赫兹脉冲最后由离轴抛物面镜聚焦到



图 1 (a) 实验装置示意图; (b) $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ 异质结的结构示意图

Fig. 1. (a) Schematic diagram of experimental setup; (b) schematic illustration of BiTe/CoFeB heterostructure structure information.

2 mm 厚的 $\langle 100 \rangle$ ZnTe 晶体上进行自由空间电光采样. 实验在室温下进行, 太赫兹系统没有抽真空和充入干燥氮气排除水蒸气影响. 施加于样品的磁场大小约为 1000 Oe ($1 \text{ Oe} = 1.0 \times 10^{-4} \text{ T}$), 方向平行于薄膜表面, 如图 1(b) 所示.

3 结果与讨论

为了研究 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 异质结制备中衬底的影响, 利用磁控溅射分别在 MgO, 高阻硅和玻璃这三种衬底上生长了 $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$, 并利用太赫兹时域光谱系统对这三个样品进行了太赫兹发射性能测试, 结果如图 2 所示. 从图 2 中可以明显看出, 生长在 MgO 衬底上的 $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ 发射的太赫兹波信号最强, 具有相对较好的太赫兹辐射性能, 与文献 [19] 中报道的结果一致. 这是由于玻璃材料与 MgO 相比, 吸收较多的太赫兹波, 导致最终探测到的玻璃衬底上的 $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ 发射的太赫兹波信号稍弱于 MgO 衬底上的 $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$. 高阻硅虽然对太赫兹波的吸收系数很小 [20], 但是透过薄膜的剩余抽运光照射到高阻硅上, 激发高阻硅产生光生载流子, 改变了高阻硅的电导率, 减低了太赫兹波的透过率, 因此探测到的太赫兹波信号较小.

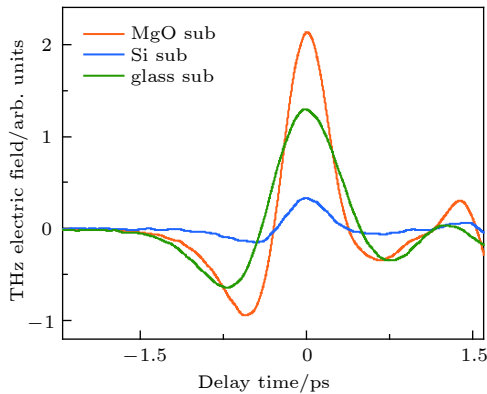


图 2 生长在 MgO、高阻硅和玻璃衬底上的 $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ 异质结的太赫兹发射性能比较

Fig. 2. Comparison of the terahertz waveforms generated from the $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ heterostructure grown on MgO, high resistivity silicon, and glass substrates.

为了排除 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 异质结太赫兹发射过程中 Bi_2Te_3 层和 CoFeB 层贡献, 分别对纯 Bi_2Te_3 薄膜、 CoFeB 薄膜和 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 异质结进行了相同的条件下太赫兹发射光谱的测试. 唯一不同

的是在测试 Bi_2Te_3 薄膜时没有施加磁场, 而对 CoFeB 薄膜和 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 异质结进行测试时外加了一个面内的磁场对 CoFeB 的磁化进行定向, 测试结果如图 3 所示. 纯 Bi_2Te_3 薄膜和 CoFeB 薄膜均未测到太赫兹辐射, 而 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 异质结则发射较强的太赫兹波. 对于纯 Bi_2Te_3 薄膜和 CoFeB 薄膜的测试结果与文献 [16] 报道不一致. 文献中是采用分子束外延方法制备拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 单晶薄膜, 纯 Bi_2Se_3 薄膜发射的太赫兹波主要是由于 Se—Bi 键上的瞬态电荷转移引起的转移电流而产生的. 本工作是采用磁控溅射法制备的 Bi_2Te_3 薄膜, 为多晶, 相对于单晶薄膜而言, 多晶薄膜中 Bi—Te 键角度是随机的, 不像单晶薄膜中键的方向一致, 因此在多晶 Bi_2Te_3 薄膜中净电流较小或为 0, 以致无法探测到太赫兹辐射. 对于 CoFeB 薄膜, 厚度只有 2 nm, 可能由于厚度太薄, 导致由于退磁效应产生的太赫兹辐射很弱, 难以探测到. 这说明对于磁控溅射方法制备的 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 异

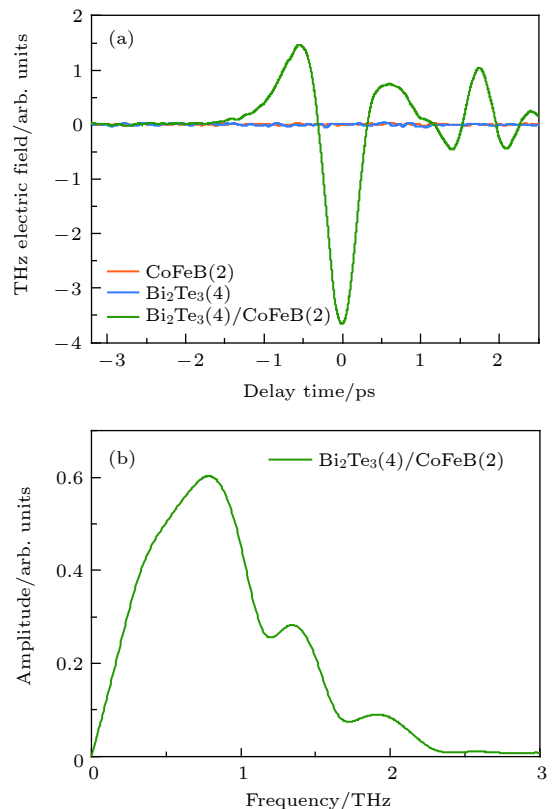


图 3 (a) $\text{CoFeB}(2)$, $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)$ 和 $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ 辐射的太赫兹波形; (b) $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ 辐射的太赫兹频域谱

Fig. 3. (a) Terahertz waveforms generated from $\text{CoFeB}(2)$, $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)$, and $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$, respectively; (b) terahertz spectra obtained from $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$.

质结的太赫兹发射与其异质界面有关,而纯 Bi_2Te_3 薄膜自身和铁磁层 CoFeB 的退磁效应对 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 异质结的太赫兹发射的影响可忽略. 在飞秒激光脉冲抽运下, CoFeB 层中的电子被激发至费米能级以上,由于自旋向上和自旋向下的电子迁移率不同,在 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 异质结的界面上形成了自旋极化电流^[1,21]. 由于 Bi_2Te_3 中存在强自旋轨道耦合作用,超快自旋极化电流可以转换为超快电荷电流^[16],从而向外辐射太赫兹波. 从图 3(b) 中可以看出, $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ 辐射的太赫兹带宽约为 2.4 THz.

为了进一步研究 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 异质结的太赫兹发射中抽运光入射方向的影响,分别让抽运光从样品的正面、背面入射,即抽运光分别从薄膜一侧和衬底一侧入射,并且反转外加磁场的方向,结果如图 4(a) 所示. 这里需要指出的是,由于 MgO 衬底是单抛的,样品背面激光的透射率较低,因此当抽运光从样品背面即衬底一侧入射时,透过衬底照射到薄膜的抽运光强度下降,因此样品发射的太赫兹波的振幅小于抽运光从样品正面入射时样品发射的太赫兹波的振幅. 从图 4(a) 中可以看出,当外加磁场方向一致,抽运光分别从样品的正面和背面入射时,样品发射的太赫兹波形相反;当抽运光入射方向一致,外加磁场反向时,样品发射的太赫兹波形相反. 这一结果与文献^[16]报道一致,进一步说明 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 异质结的太赫兹发射与自旋-电荷转换相关.

$\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 异质结中,超快自旋流可能通过逆 Edelstein 效应或逆自旋霍尔效应转化为超快电荷流. 根据文献^[16],通过逆 Edelstein 效应产生的电荷流 $j_c \propto \hat{z} \times \sigma$,通过逆自旋霍尔效应产生的电荷流 $j_c \propto j_s \times \sigma$,其中, j_c 是电荷流, j_s 是自旋流, σ 是自旋极化方向, $\hat{z}$ 是拓扑绝缘体/铁磁异质结界面的法向单位矢量,平行于 j_s . 当抽运光从样品的背面入射时, $\hat{z}$ 和 j_s 的方向与抽运光从样品的背面入射时的 $\hat{z}$ 和 j_s 的方向相反,因此,通过逆 Edelstein 效应和逆自旋霍尔效应产生的 j_c 均反向,从而发射的太赫兹波形相反. 当外加磁场反向时,由于 σ 决定于外加磁场的方向,因此 σ 也反向,从而 j_c 反向,导致发射的太赫兹波形相反. 还研究了 $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ 异质结发射的太赫兹脉冲的偏振. 利用太赫兹偏振片,在外置磁铁为水平方向的时候,测量得到的太赫兹辐射为竖直偏振. 从图 4(b)

中可以看出从 0° 到 360° 旋转外加磁场时, $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ 异质结发射的太赫兹脉冲的峰值振幅呈正弦曲线变化. 外加磁场方向改变时,由于 σ 决定于外加磁场的方向,所以 σ 随着外加磁场方向的变化而改变, j_c 随之变化,因此发射的太赫兹波的偏振可以由外加磁场方向控制. 在本实验中,探测晶体 $\langle 110 \rangle$ ZnTe 的最优探测方向固定在 y 轴方向. 所以,太赫兹峰值振幅随外加磁场方向 (与 x 轴的夹角为 θ) 呈正弦函数关系.

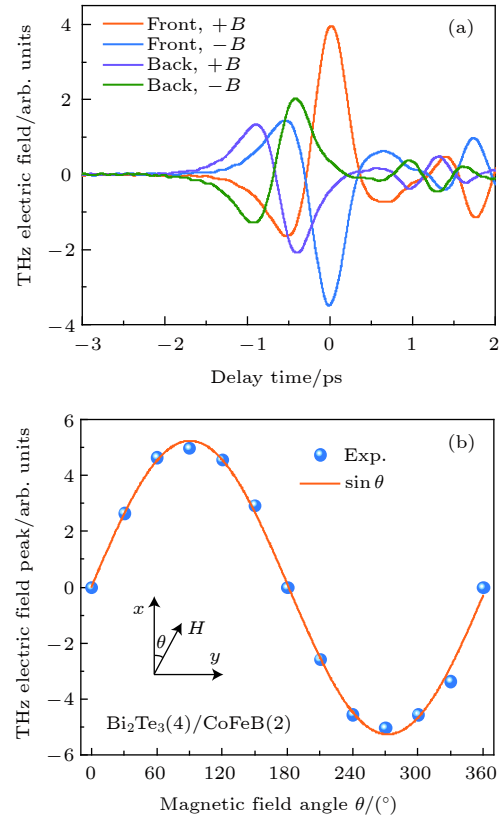


图 4 $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ 异质结的太赫兹辐射 (a) 抽运光从 $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ 样品正面和背面入射以及磁场反向时 $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ 辐射的太赫兹波形; (b) $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ 异质结发射的太赫兹脉冲的峰值振幅与施加的外磁场方向的关系

Fig. 4. Terahertz emission from $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ heterostructure: (a) Terahertz waveforms emitted from the $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ heterostructure measured with front and back sample excitation and reversed magnetic field; (b) the peak amplitude of the terahertz signal emitted from the $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ heterostructure as a function of magnetic field angle θ , with respect to the x -axis.

将 $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ 与 $\text{W}(4)/\text{CoFeB}(2.2)$ 、 $\text{Pt}(4)/\text{CoFeB}(2.2)$ 的太赫兹发射性能进行比较,对衬底进行归一化处理,结果如图 5 所示. $\text{W}(4)/\text{CoFeB}(2.2)$ 、 $\text{Pt}(4)/\text{CoFeB}(2.2)$ 均是通过逆

自旋霍尔效应实现自旋-电荷的转换,从而发射太赫兹. Pt 与 W 的自旋霍尔角符号相反,因此, W(4)/CoFeB(2.2)、Pt(4)/CoFeB(2.2) 发射的太赫兹波形相反. Pt 的自旋霍尔角较大,由于电荷流 j_c 的大小与非铁磁层自旋霍尔角成正比^[2],因此 Pt(4)/CoFeB(2.2) 能够发射较强的太赫兹辐射. 从图 5 可以看出,多晶 $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$ 的太赫兹发射性能低于 Pt(4)/CoFeB(2.2). 但是,多晶拓扑绝缘体与铁磁异质结的太赫兹发射的研究才开始,不仅辐射机理不是非常清楚,值得深入研究,而且后续对改进这种异质结实现功能化的太赫兹辐射源要比铁磁-重金属异质结更加有希望. 因此,这样的体系对深入研究超快自旋流的辐射机理,以及后续太赫兹应用有一定的价值.

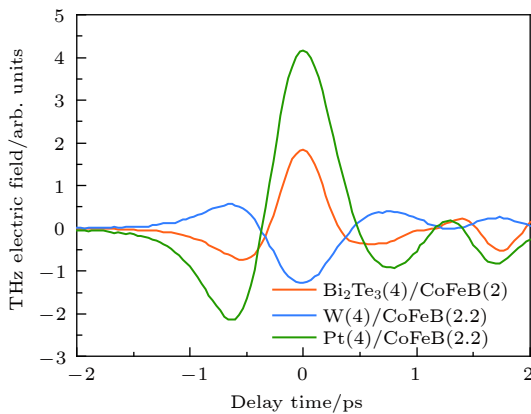


图 5 $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$, $\text{W}(4)/\text{CoFeB}(2.2)$, $\text{Pt}(4)/\text{CoFeB}(2.2)$ 的太赫兹发射性能比较

Fig. 5. Comparison of the terahertz waveforms generated from the $\text{Bi}_2\text{Te}_3(4)/\text{CoFeB}(2)$, $\text{W}(4)/\text{CoFeB}(2.2)$, and $\text{Pt}(4)/\text{CoFeB}(2.2)$.

4 结 论

本文采用磁控溅射方法制备了多晶拓扑绝缘体 Bi_2Te_3 /铁磁 CoFeB 双层异质结,并利用太赫兹时域光谱系统对 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 的太赫兹发射性能进行了深入研究. 通过比较分别生长在 MgO、玻璃和高阻硅衬底上的 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 的太赫兹发射性能,发现 MgO 衬底上生长的样品具有较好的太赫兹辐射性能. $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 异质结的太赫兹发射是通过自旋-电荷转换过程实现的,辐射偏振可通过外加磁场方向控制,太赫兹发射性能接近于 Pt/CoFeB. 下一步工作可以对 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 异质结的太赫兹发射进行更深入的研究,明确 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 的太赫兹发射机理,通过样品和结

构的进一步优化,获得更高的发射效率. 本文中采用的磁控溅射方法能够大尺寸批量生长 $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ 样品,成本较低,进一步优化后的样品将有望走向商业化应用.

参考文献

- [1] Kampfrath T, Battiato M, Maldonado P, Eilers G, Notzold J, Mahrlein S, Zbarsky V, Freimuth F, Mokrousov Y, Blugel S, Wolf M, Radu I, Oppeneer P M, Munzenberg M 2013 *Nat. Nanotechnol.* **8** 256
- [2] Seifert T, Jaiswal S, Martens U, Hannegan J, Braun L, Maldonado P, Freimuth F, Kronenberg A, Henrzi 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. Photon.* **10** 483
- [3] Yang D, Liang J, Zhou C, Sun L, Zheng R, Luo S, Wu Y, Qi J 2016 *Adv. Opt. Mater.* **4** 1944
- [4] Wu Y, Elyasi M, Qiu X, Chen M, Liu Y, Ke L, Yang H 2017 *Adv. Mater.* **29** 1603031
- [5] Seifert T, Jaiswal S, Sajadi M, Jakob G, Winnerl S, Wolf M, Kläui M, Kampfrath T 2017 *Appl. Phys. Lett.* **110** 252402
- [6] 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
- [7] Qiu H S, Kato K, Hirota K, Sarukura N, Yoshimura M, Nakajima M 2018 *Opt. Express* **26** 15247
- [8] 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
- [9] Li G, Medapalli R, Mikhaylovskiy R V, Spada F E, Rasing T, Fullerton E E, Kimel A V 2019 *Phys. Rev. Mater.* **3** 084415
- [10] 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
- [11] Kondou K, Yoshimi R, Tsukazaki A, Fukuma Y, Matsuno J, Takahashi K S, Kawasaki M, Tokura Y, Otani Y 2016 *Nat. Phys.* **12** 1027
- [12] Wang Y, Deorani P, Banerjee K, Koirala N, Brahlek M, Oh S, Yang H 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 257202
- [13] Jamali M, Lee J S, Jeong J S, Mahfouzi F, Lv Y, Zhao Z, Nikolic B K, Mkhoyan K A, Samarth N, Wang J P 2015 *Nano Lett.* **15** 7126
- [14] Pesin D, MacDonald A H 2012 *Nat. Mater.* **11** 409
- [15] Soumyanarayanan A, Reyren N, Fert A, Panagopoulos C 2016 *Nature* **539** 509
- [16] Wang X, Cheng L, Zhu D, Wu Y, Chen M, Wang Y, Zhao D, Boothroyd C B, Lam Y M, Zhu J X, Battiato M, Song J C W, Yang H, Chia E E M 2018 *Adv. Mater.* **30** 1802356
- [17] Braun L, Mussler G, Hruban A, Konczykowski M, Schumann T, Wolf M, Munzenberg M, Perfetti L, Kampfrath T 2016 *Nat. Commun.* **7** 13259
- [18] Fang Z, Wang H, Wu X, Shan S, Wang C, Zhao H, Xia C, Nie T, Miao J, Zhang C, Zhao W, Wang L 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 191102
- [19] Torosyan G, Keller S, Scheuer L, Beigang R, Papaioannou E T 2018 *Sci. Rep.* **8** 1311
- [20] van Exter M, Grischkowsky D 1990 *Appl. Phys. Lett.* **56** 1694
- [21] Battiato M, Carva K, Oppeneer P M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 027203

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronicss

Terahertz emission generated from $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ heterostructures grown by magnetron sputtering*

Zhang Fan ^{1)2)#} Xu Yong ^{1)2)#} Liu Yang ^{1)#} Cheng Hou-Yi ¹⁾
 Zhang Xiao-Qiang ²⁾ Du Yin-Chang ²⁾ Wu Xiao-Jun ^{3)†}
 Zhao Wei-Sheng ^{1)2)‡}

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

2) (*Hefei Innovation Research Institute, Beihang University, Hefei 230012, China*)

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

(Received 29 April 2020; revised manuscript received 6 June 2020)

Abstract

High-performance terahertz emitters, which convert the femtosecond laser pulses into terahertz pulses, are essential for terahertz spectroscopy technology and terahertz wireless communication. Spintronic terahertz emitters based on ferromagnet/nonmagnet bilayers have attracted tremendous attention due to their high efficiency, ultra-broadband, low cost and high flexibility. Here, we systematically investigate the terahertz emission from polycrystalline topological insulator Bi_2Te_3 /ferromagnetic CoFeB heterostructure grown by magnetron sputtering. The $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ heterostructure exhibits high efficiency of terahertz emission, and the polarization of terahertz waves can be controlled by the external magnetic field direction. The performance of $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ heterostructure is almost comparable to that of the Pt/CoFeB bilayer. In contrast, no terahertz emission is observed in the pure Bi_2Te_3 or CoFeB film driven by femtosecond laser pulses, probably because the Bi_2Te_3 prepared by sputtering is polycrystalline and the thickness of CoFeB is too thin. We also compare the performances of $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ grown on MgO , glass and high-resistivity silicon substrates, and find that the samples grown on MgO substrates exhibit the best emission performances. The glass substrate absorbs more terahertz waves than MgO substrate, resulting in a slightly weaker terahertz signal emitted from the $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$ grown on the glass substrate. Although the absorption coefficient of high-resistivity silicon to terahertz waves is very small, the residual pump light excites the high-resistivity silicon to generate the photo-generated carriers, which change the conductivity of the high-resistivity silicon and reduce the transmittance of terahertz wave. We attribute the mechanism of the terahertz emission to the spin-charge conversion at the interface of $\text{Bi}_2\text{Te}_3/\text{CoFeB}$. The terahertz emission efficiency of our sample is expected to be able to be further improved by optimizing the samples. Moreover, with the sputtering method, it is possible to fabricate large area samples at low cost, which is critical for commercial applications.

Keywords: terahertz emission, topological insulator/ferromagnetic heterostructures, femtosecond laser

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

DOI: 10.7498/aps.69.20200634

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61905007, 61627813, 11904016), the Beihang Hefei Innovation Research Institute Project, China (Grant Nos. BHKX-19-01, BHKX-19-02), and the Beijing Natural Science Foundation, China (Grant No. 4194083).

These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: xiaojunwu@buaa.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: weisheng.zhao@buaa.edu.cn



基于超快自旋-电荷转换的太赫兹辐射源

苏玉伦 尉正行 程亮 齐静波

Terahertz emitters based on ultrafast spin-to-charge conversion

Su Yu-Lun Wei Zheng-Xing Cheng Liang Qi Jing-Bo

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 204202 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200715

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200715>

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>

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>

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>

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>

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>

专题：太赫兹自旋光电子

基于超快自旋-电荷转换的太赫兹辐射源*

苏玉伦¹⁾ 尉正行¹⁾²⁾ 程亮¹⁾ 齐静波^{1)2)†}

1) (电子科技大学, 电子薄膜与集成器件国家重点实验室, 成都 611731)

2) (电子科技大学广东电子信息工程研究院, 东莞 523808)

(2020 年 5 月 12 日收到; 2020 年 5 月 26 日收到修改稿)

太赫兹技术在成像、传感和安全等方面展现出了巨大的应用潜力和价值. 传统的固态宽带太赫兹源主要依赖于非线性光学晶体和光电导天线, 而下一代太赫兹技术的一个主要挑战是开发高效、超宽带和低成本的太赫兹源. 最近几年, 基于自旋电子学的金属磁性异质结太赫兹源获得了很大关注. 本文首先对该类太赫兹源涉及的物理机理进行讨论, 主要包括超快退磁和自旋-电荷转换. 然后对该类源的效率提升做了探讨, 具体的优化方向体现在三个方面: 薄膜材料选择 (含生长过程控制)、薄膜厚度和薄膜结构设计. 文章最后给出简单总结和该领域的展望.

关键词: 太赫兹, 超快退磁, 超扩散自旋输运, 逆自旋霍尔效应, 逆Rashba-Edelstein效应, 磁性异质结

PACS: 42.65.Re, 78.47.J-, 72.25.Rb

DOI: 10.7498/aps.69.20200715

1 引言

在电磁波谱中, 太赫兹 (THz) 频段的电磁辐射是介于微波和红外光波之间的电磁波, 覆盖了固态体系许多低能量的激发态, 可以作为探测材料物性的电磁探针, 另外在成像、传感和安全应用方面也有着巨大前景^[1-3]. 而目前制约太赫兹技术发展的一个重要原因就是太赫兹源尚不完善. 传统的宽带太赫兹源绝大部分基于飞秒激光泵浦, 普遍商用化太赫兹脉冲源主要有非线性电光晶体 (ZnTe, GaP, LiNO₃ 和各种有机晶体等) 和光导天线 (基于 GaAs, InGaAs 等). 但是这类太赫兹源都或多或少存在带宽不足、只能适用于特定的泵浦激光、对波长有严格要求等问题. 因此研发高效、超宽带、低成本、不依赖激光波长的太赫兹脉冲源是下一代太赫兹技术的一个主要挑战. 近年来, 超快自旋电子学的发展为太赫兹源研发开辟了一条新的道路, 可以利用超快退磁和自旋-电荷的转换来实

现太赫兹发射^[4]. 这一基于物质磁学 (自旋) 性质的太赫兹波产生技术明显不同于已有的基于电学、光学或光电特性的产生技术, 因此具有传统相干太赫兹脉冲产生方法所不具备的优点. 这种太赫兹源很大范围内不受驱动波长限制, 并且实现了超宽带的特性. 本文首先介绍时域太赫兹发射谱技术^[5], 然后着重介绍金属磁性异质结自旋电子学太赫兹源背后的物理机理, 包括超快退磁和自旋-电荷转换. 前者主要讨论超扩散自旋输运机制, 后者讨论包括逆自旋霍尔效应^[6]和逆 Rashba-Edelstein 效应^[7]. 文章进一步探讨了该类太赫兹发射源的优化, 包括材料、厚度和结构的选择和设计. 最后对目前的研究做出总结和展望.

2 时域太赫兹发射光谱

基于飞秒激光泵浦的宽带太赫兹源, 由于其辐射的太赫兹功率或电场强度太小, 所以无法直接通过非相干光电器件直接有效探测, 而是需要依

* 国家自然科学基金 (批准号: 11974070, 11734006) 和广东东莞市核心技术攻关前沿项目 (批准号: 2019622101004) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: jbqi@uestc.edu.cn

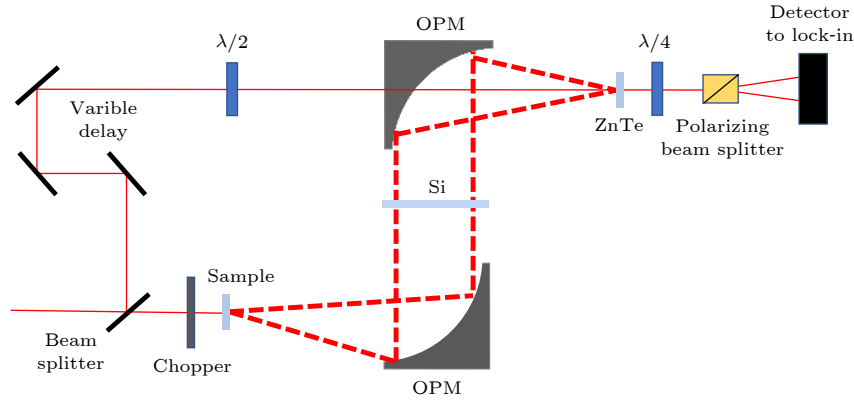


图 1 透射型太赫兹时域光谱系统的光路示意图. 主要包含分束镜 (beam splitter)、光学斩波器 (optical chopper)、光线延迟位移台 (variable delay)、离轴抛物镜 (OPM)、探测晶体 (ZnTe)、分光棱镜 (polarizing beam splitter)、光电探测器 (optical detector) 和锁相放大器 (lock-in amplifier)

Fig. 1. Typical experimental setup for the time-domain THz emission spectroscopy which generally includes optical elements such as beam splitter, optical chopper, optical delay stage (variable delay), parabolic mirror (OPM), detection crystal (ZnTe), polarizing beam splitter, optical detector, and lock-in amplifier.

靠非线性晶体 (GaP, ZnTe 等) 和超快泵浦 (pump)-探测 (probe) 技术^[8]来间接进行相干探测.

典型的透射式时域太赫兹发射谱实验装置如图 1 所示. 激光脉冲从激光器射出, 经过分光镜后分成泵浦光和探测光, 泵浦光聚焦到太赫兹发射源上产生太赫兹脉冲, 因为产生的太赫兹辐射具有发散角, 所以采用镀金的抛物镜组进行光束校准, 最终把太赫兹辐射和探测光都聚焦到探测晶体的同一点上, 当太赫兹光聚焦到探测晶体上时, 探测晶体的二向色性比率 (dichroism ratio) 将发生改变, 变化幅度正比于太赫兹电场的强度, 因此可以间接测量太赫兹电场. 需要注意的是, 太赫兹辐射容易被水吸收, 所以太赫兹传输区域需要放置在干燥或者真空环境中.

3 磁性异质结的超快退磁及太赫兹辐射机制

根据经典电磁理论, 太赫兹的发射或产生可以用基于麦克斯韦方程组推导的电场 $\mathbf{E}$ 的波动方程描述:

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t}, \quad (1)$$

其中有效电荷电流密度 $\mathbf{J}$ 为

$$\mathbf{J} = \mathbf{J}_f + \nabla \times \mathbf{M} + \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t}, \quad (2)$$

这里 $\mathbf{J}_f$ 为自由电荷密度, $\mathbf{M}$ 为磁化强度, $\mathbf{P}$ 为电极化强度. 从上面的波动方程可以看出, 有三种机制

可以贡献太赫兹辐射. (2) 式等号右边的第一项是随时间变化的电荷电流 $\mathbf{J}_f$. 典型的例子是光导天线和电子加速器^[9,10], 电子在飞秒到皮秒时间尺度上的变速运动过程可以释放太赫兹辐射. (2) 式等号右边第二项表示与磁化有关的太赫兹发射, 例如超快退磁 ($\partial \mathbf{M} / \partial t$) 造成的太赫兹发射^[11]. (2) 式等号右边的第三项为极化变化引起的太赫兹发射, 常见的光学整流属于这一类, 它解释了非线性光学晶体的太赫兹发射^[12].

本文主要讨论金属磁性异质结复合纳米薄膜中的太赫兹发射. 其中, 激光诱导的超快退磁效应起了关键性作用. 该效应可以用 Battiato 等^[13]提出的超扩散自旋传输 (superdiffusive spin transport) 模型来很好地解释, 核心为垂直于异质结界面方向上产生了超快自旋流 (ultrafast spin current). 实验上为了探测这种超快自旋流, 利用不同量子效应来实现自旋-电荷转换, 该转换产生了方程 (1) 和 (2) 中的 $\partial \mathbf{J}_f / \partial t$ 这一项, 最终导致了相干宽带太赫兹辐射.

3.1 磁性异质结中的超快退磁效应

飞秒激光在磁性材料上引起的超快退磁现象自从发现以来就受到了众多研究者的极大关注^[14–18], 其中背后的物理机制到目前为止还未完全澄清. 很多微观理论都是基于超快自旋翻转散射过程 (spin-flip scattering), 包含了 Elliott-Yafet 电子-声子自旋翻转散射^[19,20]、电子-磁振子自旋翻转散射^[21]、库

仑交换自旋翻转散射^[21]、以及相对论电磁辐射诱导的自旋翻转散射^[22]. 这些机制都跟飞秒激光在磁性材料内的直接吸收有关系. 然而对于磁性异质结或复合磁性薄膜来说, 研究发现另外一种微观机制对超快退磁起到了重要的作用, 即超扩散自旋输运^[13]. 该机制也从理论上阐明了飞秒激光可以实现超快自旋流的激发与注入过程. 下面对该理论模型做介绍.

在超扩散自旋输运模型中, 当飞秒激光入射到磁性异质结中 (如图 2 中 Ni/Al), 在 3d 过渡铁金属薄膜内, 光吸收一般会导致电子从 d 带 (d bands) 到费米面上类 sp 带 (sp-like bands) 的激发. 因而在 d 带 (或价带) 上产生空穴, 整个体系处于非平衡态. 由于类 sp 带中的电子迁移率远远大于 d 带电子的, 这样可以认为 d 带电子/空穴为准静态的, 在超快动力学考虑中只聚焦于类 sp 带的电子输运就行了. 另外, 由于光子携带的线性动量很小, 可以认为被激发的电子在第一次散射之前的运动是各向同性的 (图 2(b)). 在整个输运过程中, 忽略了界面处的反射和外场效应, 电子的运动速度主要由电子能量和材料的性质决定. 在电子的输运过程中会发生散射, 其中和声子或晶格杂质发生的碰撞是完全弹性碰撞, 电子本身不损失能量. 而电子和电子之间发生的散射则是非弹性碰撞, 这个过程中电子损失能量并激发出更多自旋方向随机的电子. 在铁磁薄膜层内磁场作用下, 激发的自旋向上 (majority spin) 和自旋向下 (minority spin) 电子寿命和运动速度都不相同. 比如激光激发的 sp 带电子具有很高的带速度. 不同自旋电子具有不同能量依赖的寿命和自旋动力学构成了有效的超快自旋流. 由于不同自旋方向的电子其寿命不一样, 传输过程中某一自旋方向 (majority spin) 长寿命的电子被散射的概率小, 最终会有相当一部分注入到非铁磁层中, 并产生较强的自旋极化电流. 同时, 相反方向的自旋 (minority spin) 电子寿命更短, 绝大多数都会在产生之后就被迅速俘获在铁磁层中. 我们知道, 材料中的自旋角动量是守恒的, 当某一自旋方向的电子大量扩散到外部时, 铁磁层材料就会发生较强的退磁化过程. 上述的物理过程, Battiatto 等^[13,23] 最后给出了具体的求解非平衡态电子的动力学方程:

$$\frac{\partial n}{\partial t} + \frac{n}{\tau} = \left(-\frac{\partial}{\partial z} \hat{\phi} + \hat{I} \right) (\hat{S}_n + S^{\text{ext}}), \quad (3)$$

式中, n 为总的非平衡态电子密度, τ 为电子寿命, $\hat{\phi}$ 为通量算符, $\hat{I}$ 为单位算符, $\hat{S}_n$ 为电子源算符, S^{ext} 为外部有源项. 该方程能进行数值求解.

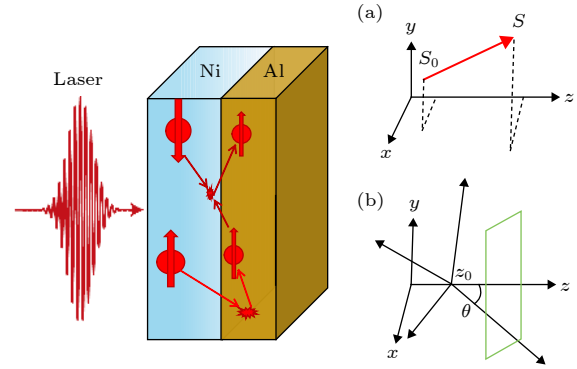


图 2 磁性异质结 Ni/Al 中, 激光诱导的飞秒尺度的电子超扩散过程示意图^[13] (a) 电子在发生第一次散射前, 沿直线运动, S_0 是电子原来位置, S 是电子直线运动后位置; (b) 电子在 z_0 处被激发, 发射方向的概率是各项同性的
Fig. 2. Schematic of femtosecond laser-induced superdiffusion process^[13]: (a) The electron moves along a straight line before first scattering, S_0 is the original position of the electron, and S is the position after the straight line movement; (b) the electron is excited at z_0 , and the probability of the emitting direction is isotropic.

值得指出的是, 这里飞秒尺度内 (百飞秒量级) 的超扩散输运过程跟标准的布朗运动 (Brownian motion) 和弹道输运 (ballistic transport) 是有很区别的. 在布朗运动决定的扩散过程中, 粒子位移分布 σ^2 随时间是线性增长的: $\sigma^2 \propto \tau^\gamma (\gamma = 1)$; 在弹道输运过程中有 $\sigma^2 \propto \tau^\gamma (\gamma = 2)$. 然而超扩散过程中, $\gamma (> 1)$ 是一个时间的函数 $\gamma(t)$, 表征了电子受激发后, 其运动逐渐从开始短时间尺度内满足弹道输运 ($\gamma = 2$), 过渡到长时间尺度内满足标准的输运过程 ($\gamma = 1$).

超扩散自旋输运机制不仅非常好地解释了在时间分辨的 X 射线磁二项色性 (XMCD) 实验中观察到超快退磁强度^[13], 而且也为理解磁性金属和磁性绝缘体中退磁效应的巨大差距提供了依据^[23]. 然而直接探测扩散到非铁磁层中具有自旋极化属性的超快电子 (时间尺度约为 100 fs) 是非常困难的. 因此, Kampfrath 等^[4] 在 2013 年首次提出可以利用非磁性重金属中的强自旋轨道耦合, 将超快自旋流转换为超快电荷流, 进而产生相应的太赫兹辐射, 来间接探测超快自旋流. 自旋-电荷转换具体的可以由不同的量子效应来实现. 下面对它们进行比较详细的阐述.

3.2 自旋-电荷相互转化

3.2.1 自旋霍尔效应和逆自旋霍尔效应

电子同时具有电荷和自旋属性. 对于自旋而言, 电子有两种量子化状态: 自旋向上或向下. 随着自旋电子学的研究深入, 人们对自旋霍尔效应 (spin Hall effect, SHE) 产生了很大的兴趣. 自旋霍尔效应是指在外加电场中, 由于材料中存在的与自旋方向相关的相互作用, 自旋向上和向下的电子受到相反的等效作用力, 从而获得相反的横向速度, 从而产生横向的自旋流, 如图 3 所示. 其微观机制可分为两类^[24], 一类被称为本征自旋霍尔效应 (intrinsic SHE), 另一类与杂质造成散射有关, 被称为非本征自旋霍尔效应 (extrinsic SHE). 本征 SHE 一般发生在具有较强自旋-轨道耦合的材料中, 存在贝利相位 (Berry phase) 相关的响应. 而贝利曲率可以被当作方向与电子自旋相关的磁场, 导致自旋向上和向下的电子受到相反的等效洛伦兹力, 从而产生自旋流. 而在非本征 SHE 中, 存在依赖于电子自旋方向的杂质散射过程, 从而造成了不同自旋电子的运动分离. 在典型的器件中, 由于自旋流的存在, 将会造成样品两侧的自旋的不平衡, 在横向开路的条件下, 横向的自旋流在到达边界处会衰减, 最终形成稳定的自旋极化的积累.

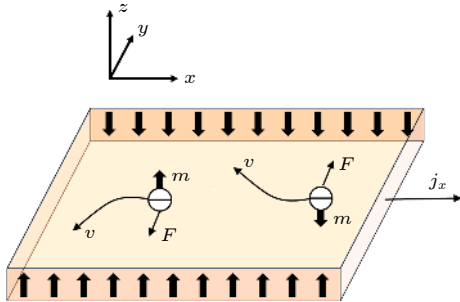


图 3 在自旋霍尔效应中, 运动磁矩的非对称散射会在垂直于电流的方向上引起自旋不平衡

Fig. 3. In the spin Hall effect, asymmetric scattering of the moving spin (magnetic) moment causes spin imbalance in the direction perpendicular to the current.

基于相同的原因, 与 SHE 相反的物理过程也可以实现, 从而将自旋转化成电流, 该过程也被称为逆自旋霍尔效应 (inverse spin Hall effect, ISHE). SHE 和 ISHE 可以通过如下的公式定量描述^[24,25]:

$$\mathbf{J}_c = -\frac{\hbar}{2e} \gamma_{\text{SH}} \mathbf{J}_s, \quad (4)$$

$$\mathbf{J}_c = -\frac{2e}{\hbar} \gamma_{\text{SH}} \mathbf{J}_s, \quad (5)$$

其中, γ_{SH} , $\mathbf{J}_c$ 和 $\mathbf{J}_s$ 分别代表材料的自旋霍尔角、电荷流和自旋流. 这种自旋-电荷转换既可以发生在具有光学各向异性的同一半导体中^[26], 也可以发生在半导体与具有强自旋-轨道耦合的金属 (如 Pt^[27,28]) 所组成的异质结中. 在圆偏振光激发下, 半导体中可以产生基于光学选择定则的自旋流, 它们位于半导体表面, 而半导体中的 ISHE 可以将该自旋流转换为电荷流, 并由电学测量所测得^[29]. 在第二种情况下, 由于强自旋-轨道耦合金属材料中自旋霍尔角 γ_{SH} 的值十分巨大, 从而人们可以利用它作为对纯自旋电流敏感的非磁性电极, 能够比直接在半导体中测量的自旋电流提供更大的信号^[30–32].

稳态的电荷流可以用电学方法测量, 但飞秒或皮秒尺度的超快电流, 电学方法就无能为力了, 所以借助太赫兹发射谱与光电探测结合的方法就被提出来^[11,23]. 也就是从物理上考虑, 方程 (1) 和 (2) 中的 $\mathbf{J}_f(t)$ 随时间的变化产生太赫兹辐射, 并可以利用第 2 节中介绍的时域太赫兹发射谱技术探测到这种辐射. 其为相干的超宽带太赫兹辐射 (带宽接近 30 THz)^[4,33], 自从被报道后, 全世界不同研究组 2016 年开始也陆续开展相关方面的工作^[34–36].

3.2.2 Rashba-Edelstein 效应和逆 Rashba-Edelstein 效应

除了上文提到的 SHE 外, 利用 Rashba-Edelstein 效应 (REE) 也可以在反演对称性被破坏的界面上实现电荷-自旋的转换^[37–39]. REE 也是一种基于自旋-轨道耦合 (spin-orbit coupling, SOC) 的效应, 它存在于材料表面或界面量子阱中的二维电子气体 (two dimensional electron gas, 2DEG) 上^[40–42]. 一般认为, 重金属元素具有更强的 SOC 作用, 如 Bi, Pb, W 等. 这种相互作用导致了如图 4(a), (b) 所示的能量色散曲线和费米面, 以及自旋-动量锁定特性. 其基本物理过程可以理解为: 在外加电场的作用下费米面发生偏移, 动量朝向某一方向的电子分布更多, 由于自旋-动量锁定, 其携带的特定自旋的分布也会更多, 从而产生自旋极化. 这与 SHE 是体材料中的电流引起的自旋流有所不同, REE 是在界面或表面上发生的由电流产生自旋极化, 进而可以产生自旋流. 迄今为止, 在 BiAg(111) 合金表面覆盖的 Ag(111) 薄膜中发现了最大的 Rashba

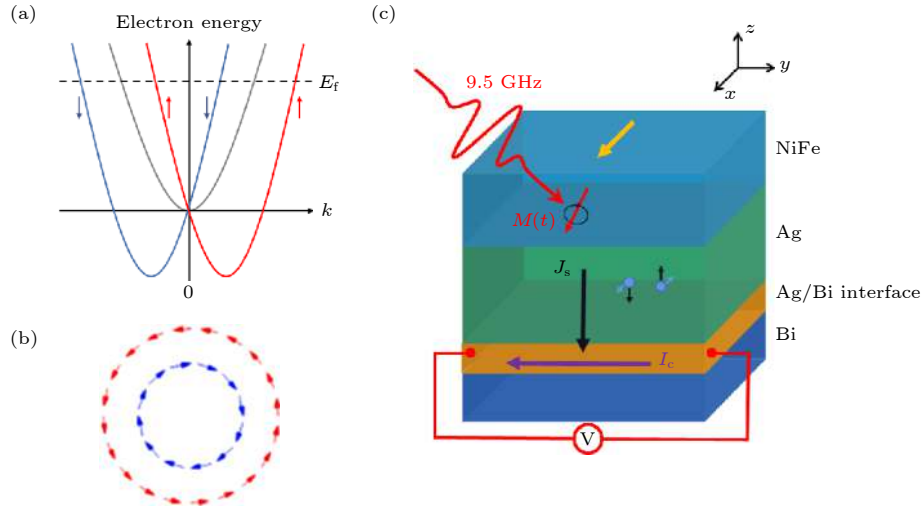


图 4 Rashba 效应对应的能带结构及 IREE 的实验原理^[45] (a) 典型的 Rashba 二维电子气自旋劈裂色散曲线; (b) 典型的费米轮廓, 电子流 (沿流动方向的费米等高线偏移) 导致非零的自旋密度, 相反, 自旋注入产生的非零自旋密度诱导了电子流 (IREE); (c) 共振下的 NiFe/Ag/Bi 样品结构 J_s 为直流自旋电流, I_c 为 IREE 导致的电荷流

Fig. 4. Schematic of Rashba bands and the experimental setup for confirming the IREE^[45]: (a) Typical Rashba spin splitting bands; (b) typical Fermi surface contour, where the electron flow (a Fermi contour offset along the flowing direction) results in a non-zero spin density. In contrast, the non-zero spin density generated by the spin injection induces an electron flow (IREE); (c) NiFe/Ag/Bi sample structure under resonance. J_s is the DC spin current, and I_c is the charge current arising from the IREE.

系数, 不仅如此, 在许多 Bi 与非磁性材料 (如 Ag, Cu, Si^[38,43,44]) 的界面上也可以观察到非常大的 Rashba 系数.

与 ISHE 类似, REE 也存在相应的逆效应, 被称为逆 Rashba-Edelstein 效应 (inverse Rashba-Edelstein effect, IREE). 在 IREE 中, 电流密度与自旋流密度的关系是^[45,46]:

$$J_c = \lambda_{\text{IREE}} J_s, \quad (6)$$

其中, J_c 是单位为 A/m 的电荷流密度, J_s 是以 A/m² 为单位的表面注入的自旋流密度. λ_{IREE} 是 IREE 系数并满足 $\lambda_{\text{IREE}} = \alpha_R \tau_s / \hbar = \nu_F \tau_s$, 其中 α_R 被称为 Rashba 系数, τ_s 为电子非平衡分布的弛豫时间, ν_F 为费米速度. 可以看出, IREE 系数与 Rashba 系数有不同的量纲 (长度和速度), 它们之间通过弛豫时间联系了起来. 通过 IREE 的自旋-电荷电流转化可能发生在非磁性材料的界面, 比如 Ag/Bi, LaAlO₃/SrTiO₃^[47–49]. 因此, IREE 为非铁磁体自旋电子学奠定了基础, 并为基于自旋电流产生和检测的自旋电子器件发展开辟了新道路. 为了解释 2DEG 界面上电荷电流和非零自旋密度的关系, Rojas-Sanchez 等^[45] 在铁磁 NiFe 层利用铁磁共振通过实现自旋泵浦, 将自旋流注入 Ag, 并通过其进入到 Ag/Bi 的 Rashba 界面中, 检测到了电荷流的产生. Zhang 等^[43] 对 Ag/Bi 和 Ag/Sb 界面也进行了

自旋泵浦和逆 Rashba-Edelstein 效应的实验, 进一步证实了 IREE 可在 Ag/Bi 和 Ag/Sb 的界面中起作用.

因此, 原则上我们也可以利用 IREE 机制探测金属磁性异质结中 ultrafast demagnetization 关联的 ultrafast spin current, 测量的物理量为时域内的太赫兹发射谱. 但是与前面 ISHE 最大的区别在于由 IREE 导致的自旋-电荷转换只发生在二维的 Rashba 界面. 2018 年 Jungfleisch 等^[50] 与 Zhou 等^[51] 分别报道了基于该机制的宽带太赫兹辐射结果. 而且, 研究表明由 IREE 和 ISHE 产生的太赫兹辐射可以相互叠加^[51]. 因此, 可以在同一辐射源中可以使用两种机制进一步提高发射效率, 这也是实现 ultrafast spin-charge THz source 应用的一个新方案.

3.3 金属磁性异质结中的太赫兹辐射过程总结

从上述讨论可知, 金属磁性异质结中的 ultrafast demagnetization 现象与太赫兹辐射通过 ultrafast spin current 可以紧密关联. 其背后的微观物理机制来源于超扩散自旋输运. 所以, 在这类体系中基于 ultrafast spin-charge conversion 的太赫兹发射可概括为以下 4 个物理过程: 激发、注入、转换和发射 (见图 5). 1) 光学激发过程: 飞秒激光激发合适厚度的铁磁层 (FM) 中杂化劈裂能

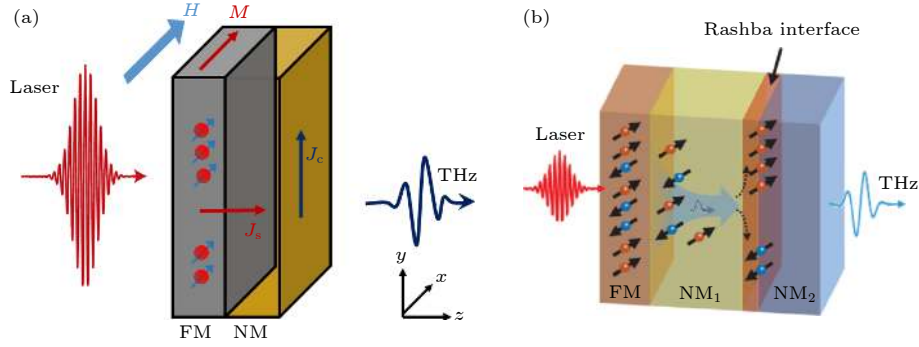


图5 超快激光脉冲激励下通过 (a) ISHE 在金属磁性异质结铁磁 (FM)/非磁性 (NM) 纳米复合薄膜, 或 (b) IREE 在金属磁性异质结 FM/NM₁/NM₂ 纳米复合薄膜上实现太赫兹发射的示意图^[51]. H 为外加磁场, 磁化方向与 x 轴平行, J_s 是飞秒激光注入铁磁层所产生的纵向自旋流, 注入到非铁磁层 (或界面) 后通过 ISHE (或 IREE) 转换成横向电荷电流 J_c , 进而产生太赫兹辐射

Fig. 5. Schematic of coherent broadband THz wave emission via (a) ISHE on metallic magnetic heterostructure Ferromagnetic (FM)/Non-magnetic (NM), or (b) IREE on metallic magnetic heterostructure FM/NM₁/NM₂ under excitation of the femtosecond laser pulse^[51]. H is the external magnetic field, and the magnetization direction is parallel to the x -axis. J_s is the longitudinal spin current along z generated by the femtosecond laser. After being injected into the NM layer (or Rashba interface), it is converted into a lateral charge current J_c by ISHE (or IREE), and finally produces terahertz radiation.

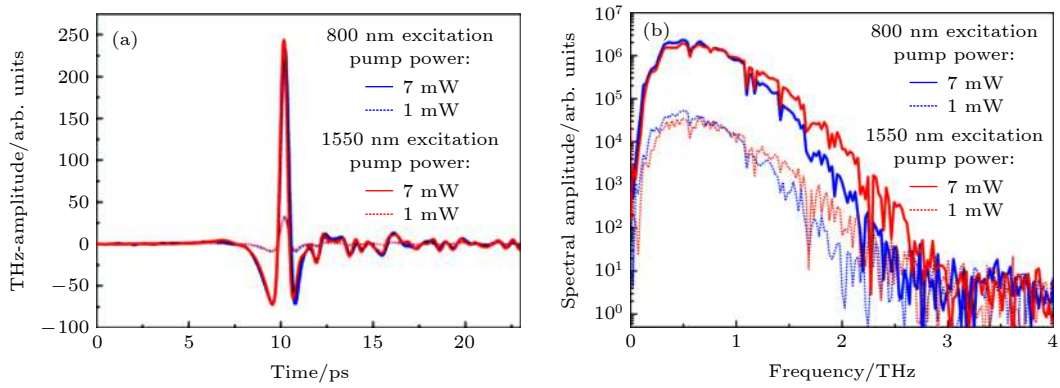


图6 在不同波长 (800 nm 和 1550 nm) 及泵浦功率 (1 mW 和 7 mW) 下的太赫兹发射波形图以及频谱图^[54]

Fig. 6. Time-domain and frequency-domain THz signals for different wavelengths (800 nm and 1550 nm) and different pump powers (1 mW and 7 mW)^[54].

带结构上的电子. 这些电子被自旋极化^[52], 并在运动过程中携带这一自旋极化, 从而形成有效的自旋流脉冲. 但是对于自旋向上和自旋向下的电子, 两者的弛豫时间不同, 自旋向下的电子会在几十个飞秒内回到准平衡状态; 而自旋向上的电子仍会处于较高能量的非平衡态. 2) 自旋流注入: 被激发的自旋电子从铁磁层扩散到非铁磁层 (NM), 相当于形成了从铁磁层到非铁磁层的自旋流. 3) 自旋-电荷转换: 注入到非铁磁层中的自旋流在自旋-电荷转换的机制下 (ISHE 或 IREE) 由内禀横向电场^[53]转换成面内电流. 注意, 这里的 Rashba 界面一般为两个非铁磁 (NM₁ 和 NM₂) 薄膜组成的界面, 或某非铁磁材料的表面. 4) 太赫兹发射: 面内的电流持续时间在百飞秒量级, 因此发射的电磁波在太赫

兹频段. 显然, 金属磁性异质结通过飞秒激光泵浦并利用超快自旋-电荷转换效应, 可以作为很好的超宽带太赫兹源. 这种源我们目前通常称它们为自旋电子学太赫兹源.

另外, 由于金属薄膜在近红外和中红外附近吸收变化不大, 因此这种太赫兹源对波长依赖较小^[54,55]. 如图6所示, 在 800 nm 和 1550 nm 的泵浦激发条件下, 太赫兹波形基本接近重合. 要做到高强度或高效的太赫兹源, 还需要对磁性异质结做各种优化, 主要涉及材料选择、厚度控制和结构设计这三方面, 后面将对这些内容进行相关的讨论.

值得指出的是, 超快自旋-电荷转换过程发生飞秒激光激发后的百飞秒时间尺度内, 这与平衡态电输运发生的过程有非常大的不同. 前者可以发生

在非平衡态激发电子从远离费米面弛豫到费米面的整个动态过程中,而后者只发生在费米面附近.所以精确的计算,得要考虑磁性异质结中时间依赖的电子态,这在目前第一性原理计算中很难实现.由此,通过测量太赫兹信号而反推得到的自旋霍尔系数或霍尔角与电输运测量中得到的结果有差异也是可以理解的.

4 自旋电子学太赫兹源的优化

4.1 异质结薄膜材料的选择

依照前文所述,这种新的自旋电子学太赫兹辐射源依赖自旋-电荷转换,包含了 ISHE 和 IREE 两种机制.因此,在制作高效辐射源的时候,要根据这两种机制的特性来选择合适的材料.

在以 ISHE 为基础的太赫兹发射器中,铁磁层比较常见的材料主要有 Fe, Co, Ni 及其二元合金^[33,56].之前的工作表明, Pt 或 W 是制备非铁磁材料^[57]的最佳选择,如图 7 所示.在这些 FM/NM 异质结中, Fe/Pt, W/Pt 异质结是几种性能相对优良的组合.在对合金磁性材料的研究中, Seifert 等^[58]系统地比较了含有复杂磁性化合物的薄膜异质结构的性能.他们分别以 Pt 为非铁磁材料, CoFeB, DyCo₅, Gd₂₄Fe₇₆, Fe₃O₄ 为铁磁材料进行了实验.他们的工作表明,在这些材料中, CoFeB/Pt 具有最佳的性能,如图 8 所示.他们引入了一个品质因数 (FOM) 来比较流过 X/Pt 双层膜 (X 为不同 FM 材料) 的自旋电流和 CoFeB/Pt 参考样品的自旋电流,公式为

$$\text{FOM}_X = \frac{\|j_{s,X}^0\|}{\|j_{s,\text{ref}}^0\|} = \frac{\|S_X\|/C_X}{\|S_{\text{ref}}\|/C_{\text{ref}}},$$

$$C = \frac{A/d}{(n_1 + n_2)/Z_0 + \int_0^d dz \sigma(z)}, \quad (7)$$

$\|S_j\|$ 是太赫兹信号的最大值, C_j 是与自旋无关的参量 ($j = X, \text{ref}$). A 是泵浦能量在厚度为 d 的薄膜中吸收系数, n_1 和 n_2 分别是空气和衬底的折射率, $Z_0 = 377 \Omega$, σ 是太赫兹频率下的电导率.参考量是采用 CoFeB/Pt 的测量数据.从而可以直观地比较相邻层不同磁性材料自旋流的注入效率,进而筛选出注入效率最高的磁性材料,这种评估方法可以推广至所有涉及超快自旋流注入的研究.

此外,一些研究小组还尝试了其他材料. Cramer

等^[59]在较宽的 Ir 浓度范围内 ($0.05 \leq x \leq 0.70$) 测量了钇铁石榴石上 $\text{Cu}_{1-x}\text{Ir}_x$ 薄膜的 ISHE, Bratschitsch 等^[60]测量了 $\text{Tb}_x\text{Fe}_{1-x}/\text{Pt}$ ($0 < x < 1$) 异质结的太赫兹发射强度, Yang 等^[61]研究亚铁磁材料 $\text{Co}_{1-x}\text{Gd}_x$ 和 Pt 组成异质结结构的太赫兹发射.这表明不同配比的合金材料也可以作为太赫兹辐射源的一种选择.

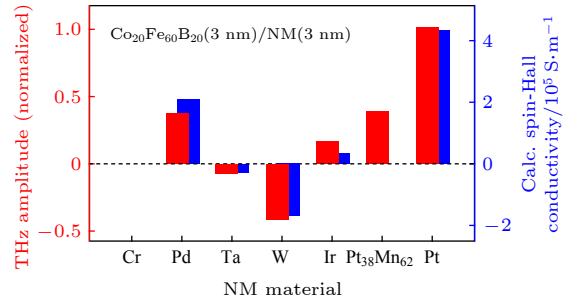


图 7 不同非铁磁材料中测得的太赫兹发射强度与 ISHE 电导率的比较^[57]

Fig. 7. Comparison between the measured THz amplitude and the ISHE conductivity for different NM materials^[57].

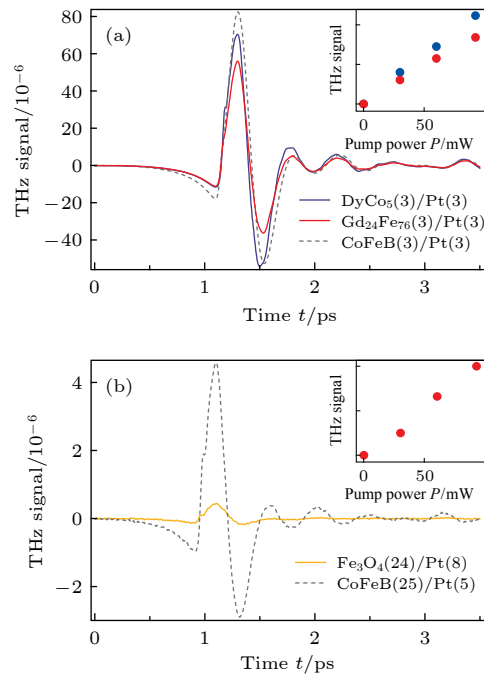


图 8 不同磁异质结的太赫兹发射信号强度比较^[58]

Fig. 8. Comparison of the emitted THz signals of different magnetic heterostructures^[58].

除了材料本身的特性外,不同的生长工艺也会影响工作特性. Sasaki 等^[62,63]研究了不同退火温度下 Ta/CoFeB/MgO 薄膜中的激光诱导太赫兹辐射.其结果表明,在 CoFeB 层的厚度约为 1.0 nm,经过 300 °C 退火后,太赫兹发射强度达到最优值,

如图 9 所示. 他们认为退火后 CoFeB 的结晶化增加了 CoFeB 层中自旋多子的平均自由程, 从而导致了太赫兹发射强度的变化. Gao 等 [64] 将退火效应增强太赫兹发射作用推广至 W/CoFeB 体系中, 实现了比退火之前高出 3 倍的太赫兹发射强度. 荷兰 Li 小组 [65] 通过研究减小界面的粗糙度和界面混杂, 从而使得自旋流在界面的注入以及转换效率都得以提升, 最终实现太赫兹发射强度的增强.

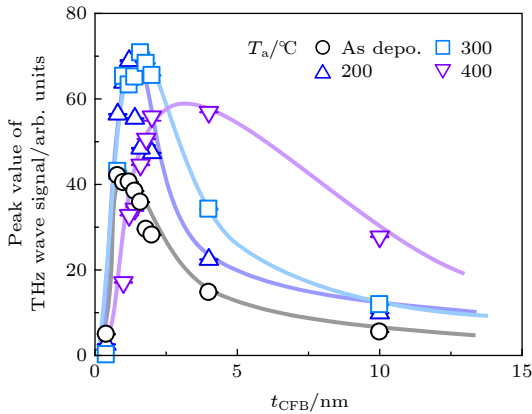


图 9 CoFeB 在不同退火温度下产生太赫兹信号峰 [62]
Fig. 9. Peak THz signals for CoFeB annealed at different temperatures [62].

基于 IREE 的太赫兹辐射是另外一种不同于 ISHE 的机制. 最近的研究表明 [50,51], 使用 Ag/Bi 双层作为自旋-电荷转换材料, 在飞秒自旋脉激发下, 可以在 Ag 和 Bi 两个非磁性材料之间的 Rashba 界面产生超快光电流, 进而辐射太赫兹脉冲. 此外还发现, 在 Rashba 界面的太赫兹场振幅可以通过光的螺旋度 (helicity) 来控制, 虽然相关的物理机制还不清楚. 之后, 该研究组尝试使用 Ag/Sb 双层, 发现在 Rashba 界面上也可以实现自旋电荷电流的转换 [43]. 因此, 这种双层材料的界面也可以作为一种通过 IREE 产生宽带太赫兹辐射的新材料. Zhou 等利用 Fe/Ag/Bi [51] 异质结作为太赫兹辐射的发射源, 飞秒激光激发 Fe 产生超快自旋流, 然后扩散到 Ag/Bi 界面处, 通过 IREE 实现自旋-电荷转换, 进而产生带宽达约 5 THz 的太赫兹辐射. 这个发现给我们提供了通过界面态实现太赫兹发射的新思路. 同时他们的实验还证明了由 ISHE 和 IREE 产生的太赫兹辐射可以进行叠加, 因此如何选取合适的材料构造复合型太赫兹发射器可以成为一个新的研究方向.

上面介绍的都是传统的非铁磁材料, 而随着对

拓扑材料的研究深入, 研究者发现拓扑材料中强自旋-轨道耦合会导致拓扑表面态 [66], 这无疑给我们设计自旋-电荷太赫兹发射源提供了新的材料选择. 新加坡 Yang 和 Chia 联合团队 [34] 就利用 Bi₂Se₃/Co 异质结实现了太赫兹波发射. 对于这种新型量子材料, Bi₂Se₃ 的层数不同, 产生太赫兹的强度也随之发生变化. 之后他们团队继续深入这项工作, 又实现了二维材料 MoS₂ 和铁磁层结合形成的异质结的太赫兹发射 [67], 为超快自旋-电荷太赫兹源的集成化提供了一个很好的方向. 除了上述的拓扑绝缘体和二维半导体外, 拓扑半金属材料应该会是更好的选择, 因为在其体材料内已经发现了高强度的手性太赫兹发射 [68].

4.2 薄膜厚度控制

许多研究发现, FM/NM 异质结中, 可以通过改变各层的厚度来改变出射的太赫兹强度 [33,35]. 例如在 Fe/Pt 中, 有文章指出 Pt 的厚度约为 3 nm 比较合适, Fe 的厚度约为 0.6 nm 比较合适 [35]; 也有文章认为 Pt 的厚度约为 3 nm 比较合适, Fe 的厚度约为 2 nm 比较合适 [69]. 这些结论都是基于实验得出的. Seifert 等 [33] 首先通过分析 NM 层中自旋电流的输运建立了理论模型. 他们给出了太赫兹电场强度和厚度的定量描述:

$$E(\omega) = Z(\omega) e \int_0^d dz \gamma(z) j_s(z, \omega), \quad (8)$$

其中 d 是薄膜厚度, e 是基元电荷. 根据这一广义欧姆定律, 发射场 $E(\omega)$ 等于总电荷电流 $-e \int dz \gamma j_s$ 乘以一个量化电流转化为电磁辐射效率的阻抗 $-Z(\omega)$,

$$A_{\text{unit}} \propto \frac{1}{n_1 + n_2 + Z_0 \int_0^{d_{\text{NM}}} \sigma(z) dz}, \quad (9)$$

式中, A_{unit} 是单位电流源的电磁辐射, $n_1 = 1$ 和 $n_2 = 1.98$ 分别是空气和熔融石英的折射率, $Z_0 = 377 \Omega$ 是真空电阻. 电导率 $\sigma(z)$ 对厚度 d_{NM} 的积分表示非磁性层的电导. 如图 10 所示, 该模型与实验结果吻合较好.

然而有研究指出, 虽然该模型很好地解释了随着薄膜厚度变大太赫兹强度下降的原因, 但所得到的数值与实验数据仍有偏差. 根据他们的实验数据, 在优化薄膜样品的太赫兹发射时, 有两个因素非常重要: 1) 薄膜厚度对磁性性质影响较大, 从而

影响自旋极化电流; 2) 当 NM 层厚度超过自旋扩散长度时, 瞬态电荷电流只存在于 NM 层^[35]. Torosyan 等^[69] 改进了该模型, 描述了太赫兹发射信号与各层厚度的关系:

$$E_{\text{THz}} \propto \frac{P_{\text{abs}}}{d_{\text{Fe}} + d_{\text{Pt}}} \tanh\left(\frac{d_{\text{Fe}} - d_0}{2\lambda_{\text{Pol}}}\right) \times \frac{1}{n_{\text{air}} + n_{\text{MgO}} + Z_0(\sigma_{\text{Fe}}d_{\text{Fe}} + \sigma_{\text{Pt}}d_{\text{Pt}})} \times \tanh\left(\frac{d_{\text{Pt}}}{2\lambda_{\text{Pt}}}\right) \exp\left[-\frac{d_{\text{Fe}} + d_{\text{Pt}}}{S_{\text{THz}}}\right], \quad (10)$$

其中 n_{air} , n_{MgO} 和 Z_0 分别是太赫兹频率下的空气折射率、MgO 折射率和真空阻抗, d_0 为临界厚度, λ_{Pol} 为特征常量.

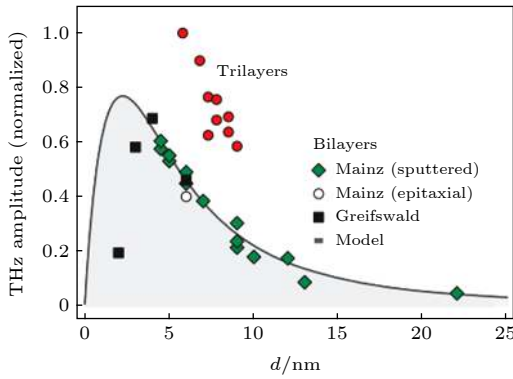


图 10 太赫兹信号幅度与金属叠层厚度 d 的关系^[33], 实线是拟合结果

Fig. 10. Terahertz amplitude as a function of thickness d of the metallic heterostructure^[33]. The solid line is a numerical fit.

该模型综合了金属层的光吸收、热载流子的产生、铁磁层的扩散和分流效应、非铁磁层的自旋积累和太赫兹吸收^[69], 其结果如图 11 所示.

同年, Zhou 等^[51] 也详细研究了太赫兹发射中的厚度依赖问题, 他们首先通过传输矩阵理论进行详细的数值计算, 然后给出了两个拟合公式. 第一个是在 Pt/Co 异质结中 Pt 厚度依赖公式:

$$\Delta V \propto \frac{1}{\sigma_{\text{Pt}}d_{\text{Pt}} + \sigma_{\text{Co}}d_{\text{Co}}} \tanh\left(\frac{d_{\text{Pt}}}{2\lambda_{\text{s}}^{\text{Pt}}}\right) e^{(-d_{\text{Pt}}/\lambda_0^{\text{Pt}})}, \quad (11)$$

式中, σ_{Pt} 和 σ_{Co} 分别是 Pt 和 Co 的电导率, $\lambda_{\text{s}}^{\text{Pt}}$ 是自旋扩散长度. 右边的第一项描述了欧姆定律中的分流效应 (shunting effect), 第二项代表了 Pt 的自旋扩散过程, 第三项描述了由法布里-佩罗 (Fabry-Pérot) 干涉效应引起的泵浦激光强度的指数衰减. 其拟合如图 12(a) 所示.

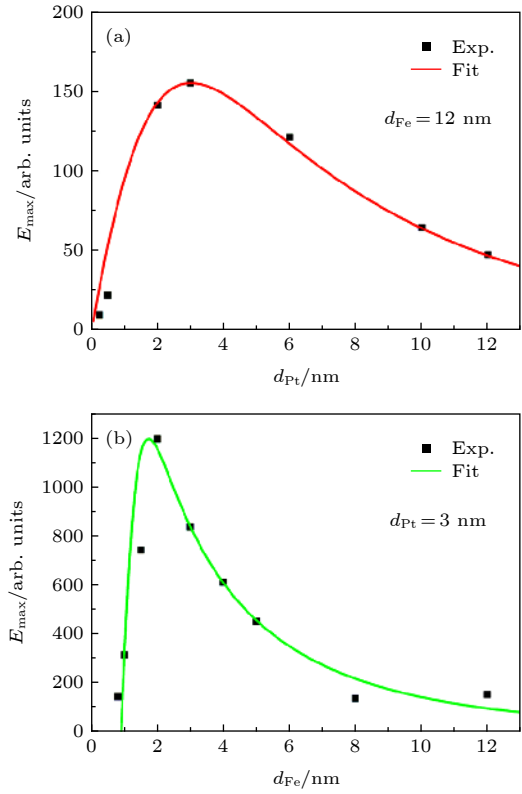


图 11 太赫兹信号幅度与金属叠层厚度 d 的关系^[69]

Fig. 11. Terahertz amplitude as a function of thickness d of the metallic heterostructure^[69].

第二个是在 Pt/Co 异质结中 Co 厚度依赖公式:

$$\Delta V \propto \frac{1}{\sigma_{\text{Pt}}d_{\text{Pt}} + \sigma_{\text{Co}}d_{\text{Co}}} \tanh\left(\frac{d_{\text{Co}}}{2\lambda_{\text{s}}^{\text{Co}}}\right) e^{(-d_{\text{Co}}/\lambda_0^{\text{Co}})}, \quad (12)$$

其中, 第二项描述了自旋电流的 Co 厚度依赖关系, 第三项描述了由法布里-珀罗 (Fabry-Pérot) 干涉效应引起的泵浦激光强度的指数衰减, 其拟合如图 12(b) 所示. 而且与图 12(a) 中 Pt 厚度相关信号相比, 图 12(b) 中太赫兹信号在 1.5 nm 之下增长速率要大很多. 这是由于 Co 的自旋存在自旋取向转变 (spin reorientation transition, SRT), 由于 Co/Pt 界面的垂直磁各向异性, 随着 Co 厚度增大, 易磁化轴逐渐从面外方向向面内方向转变, SRT 临界厚度约为 2 nm. 比较 (10) 式、(11) 式、(12) 式可以看出, 对于 FM/NM 异质结太赫兹发射的厚度依赖问题, 主要考虑到飞秒激光在金属层的吸收, 也就是说自旋流的激发会有一个效率问题. 之后要考虑自旋流的注入以及分流问题, 这里很重要的一个参数就是自旋扩散长度; 对于不同材料而言, 从以上公式都可以看出, 薄膜厚度应该小于自旋扩散长度. 最后考虑太赫兹在金属层传播的

衰减情况. 当然在考虑太赫兹辐射和金属层厚度依赖问题时, 必须要提到一个法布里-佩罗 (Fabry-Pérot) 谐振腔效应^[33]. 当腔长远小于实验中出现的波长时, 腔内的反射回波会增强太赫兹发射强度. 随着腔长的减小, 太赫兹发射强度变强; 但是一旦腔长小于临界长度, 腔表面的反射损耗会远大于金属层吸收, 造成太赫兹发射强度的急剧减小, 这与实验结果是一致的. 值得提出的是, 对于铁磁薄膜厚度很小的情况下, 还需要考虑铁磁长程有序相和面内易轴的建立情况, 上述 (11) 式拟合与实验数据误差就是来自于此.

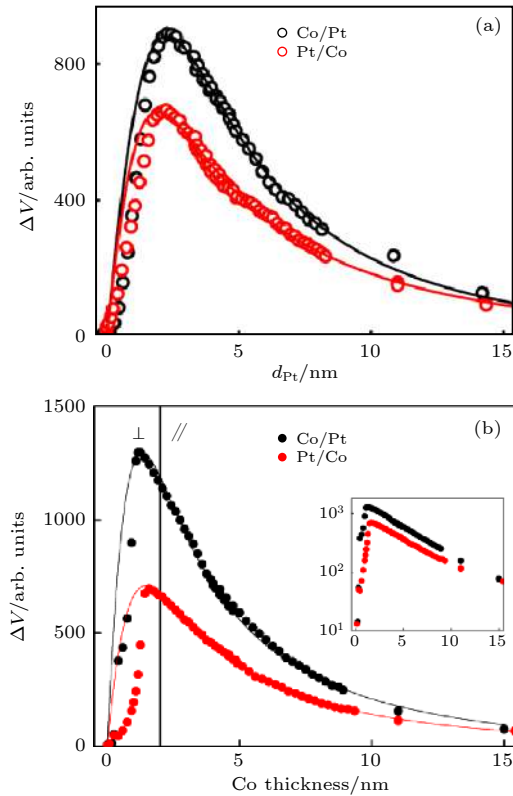


图 12 太赫兹信号幅度与金属层厚度 d 的关系^[51] (a) Pt 厚度与太赫兹发射强度 ΔV 的关系, 点为实验数据, 线是基于 (11) 式拟合; (b) Co 层厚度与太赫兹发射强度 ΔV 的关系, 点为实验数据, 线是基于 (12) 式拟合, 垂直实线表示自旋取向转变的临界厚度约为 2 nm, 插图是以对振幅取对数作为厚度 d_{Co} 的函数

Fig. 12. Terahertz amplitude as a function of thickness d of the metallic layer^[51]. (a) Pt thickness dependence of ΔV . The dots represent the experimental data, and the solid curves represent the fitting based on Eq. (11). (b) Amplitude ΔV as a function of Co-thickness. The dots represent the experimental data, and the solid curves represent the fitting based on Eq. (12). The vertical solid line at 2 nm denotes the critical thickness for spin reorientation transition. The inset shows the amplitude as a function of d_{Co} in logarithm scale.

然而, 这些模型对自旋输运的分析仍然不完善. Qiu 等^[70] 报道了几项关于自旋输运的工作. 他们在模型中定义了描述界面自旋损失系数描述了界面上自旋流的注入效率. 其公式为

$$E_{\text{THz}}(d_{\text{NM}}) \propto \eta(d_{\text{NM}}) \times \frac{A_{\text{FM}}(d_{\text{NM}}) \int_{d_{\text{FM}}+d_0}^{d_{\text{FM}}+d_{\text{NM}}} \gamma_{\text{NM}} \sinh(z - d_{\text{NM}}) / \lambda_{\text{NM}} dz}{n_1 + n_2 + Z_0 \int_0^{d_{\text{NM}}} \sigma(z) dz}, \quad (13)$$

其中, $\eta(d_{\text{NM}})$ 为自旋注入效率, $A_{\text{FM}}(d_{\text{NM}})$ 是泵浦能量吸收率, γ_{NM} 是 NM 的自旋霍尔角. 结果如图 13 所示. 从上述模型可以看出, 太赫兹发射强度和薄膜厚度的关系比较复杂, 不仅要考虑到超自旋输运, 也要注意界面效应的影响. 自旋流在界面处的损耗在设计高效自旋太赫兹器件时不能被忽略.

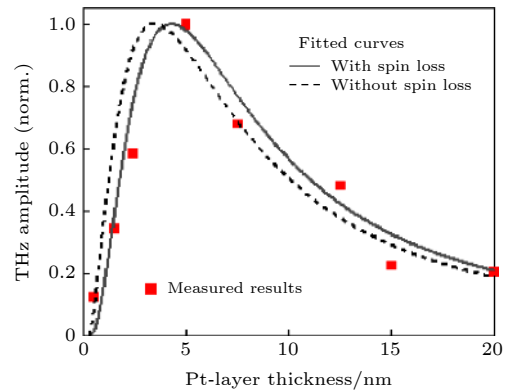


图 13 红色方块表示太赫兹振幅与 Pt 层厚度之间关系的实验数据^[70]. 实线是根据 (13) 式的实验结果的拟合, 其中考虑了界面自旋损失. 作为比较, 虚线是在不考虑界面自旋损失的情况下获得的拟合结果

Fig. 13. The red squares denote the experimental THz amplitude as a function of the Pt-layer thickness^[70]. The solid curve is a fit to the experimental data according to Eq. (13), which takes into account the interfacial spin loss. As a comparison, the dotted curve is obtained without taking into account the interfacial spin loss.

4.3 薄膜结构设计

太赫兹脉冲的发射除了与材料和层厚有关外, 还与所构造的结构有关. 常见的异质结结构是由 FM/NM 异质结构成, 但这种结构仍然存在可优化的空间. 如图 14 所示, 以 NM/FM/NM 三层膜结构为基础的太赫兹发射器, 其中左右两层 NM 材料的自旋霍尔角符号相反^[33,71]. 在飞秒激光激发下,

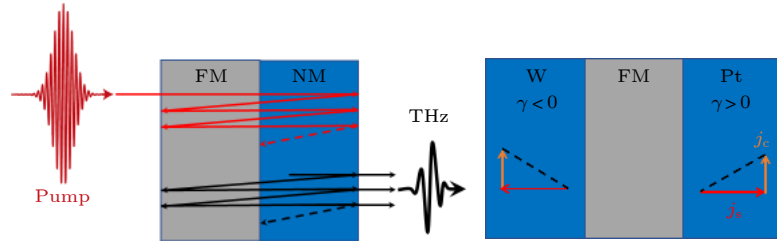


图 14 法布里-珀罗薄膜腔的示意图^[33], 该腔增强了入射泵浦和发射的太赫兹辐射. 三层发射器的示意图, 该发射器以近似相等的效率将后向和前向自旋电流 j_s 转换为单向充电电流 j_c .

Fig. 14. Schematic of the thin-film Fabry-Pérot cavity that enhances both the incident pump and emitted terahertz radiation^[33]. Schematic of the trilayer emitter that converts the backward- and forward-flowing spin current j_s into a unidirectional charge current j_c with approximately equal efficiency.

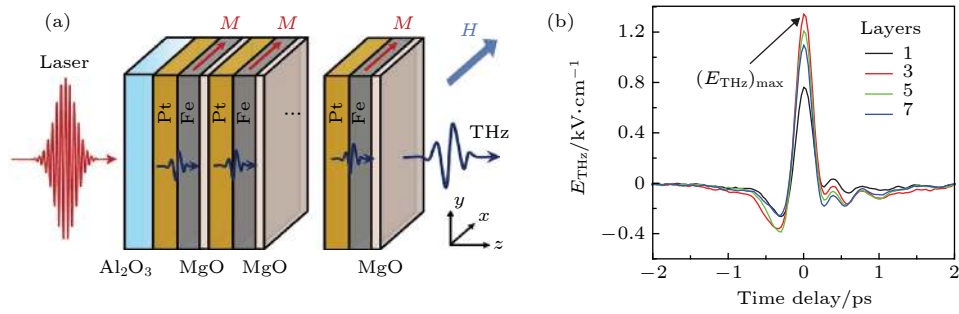


图 15 (a) 由多层磁性材料制成的太赫兹发射器示意图^[35]; (b) 多层结构 $[\text{Pt}(2 \text{ nm})/\text{Fe}(1 \text{ nm})/\text{MgO}(2 \text{ nm})]_n$ 上的时域太赫兹信号 ($n = 1, 3, 5, 7$)^[35]

Fig. 15. (a) Schematic of a THz emitter made of magnetic multilayers^[35]; (b) the time-domain THz signals on multilayer structure $[\text{Pt}(2 \text{ nm})/\text{Fe}(1 \text{ nm})/\text{MgO}(2 \text{ nm})]_n$ ($n = 1, 3, 5, 7$)^[35].

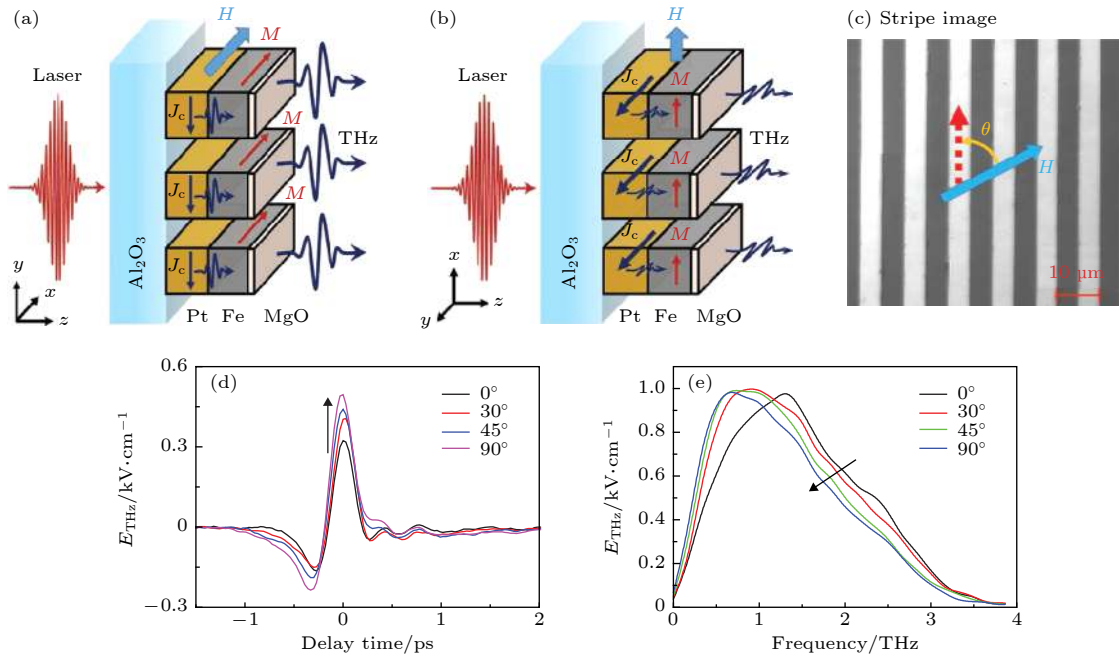


图 16 图案化的磁性异质结构的示意图^[35] (a) 平行于磁场; (b) 垂直于磁场; (c) 图案化的 Fe/Pt 样品的照片 (顶视图); (d), (e) 在不同方向上的时域和频域太赫兹信号, 磁场 H 在实验室坐标系中沿 $+x$ 方向固定. 在 (c) 中定义了表征图案化的异质结构的旋转的取向角 θ . (d) 和 (e) 中的黑色箭头表示角度 θ 从 0° 增大到 90° .

Fig. 16. Schematic of a patterned magnetic heterostructure with the stripes^[35]: (a) parallel and (b) perpendicular to the magnetic field; (c) top view of the patterned Fe/Pt sample; (d) and (e) the time-domain and frequency-domain THz signals at different stripe orientations, respectively. The magnetic field H is fixed along $+x$ direction in the laboratory coordinate system. The orientation angle θ characterizing the rotation of patterned heterostructure is defined in (c). The black arrows in (d) and (e) represent the angle θ increasing from 0° to 90° .

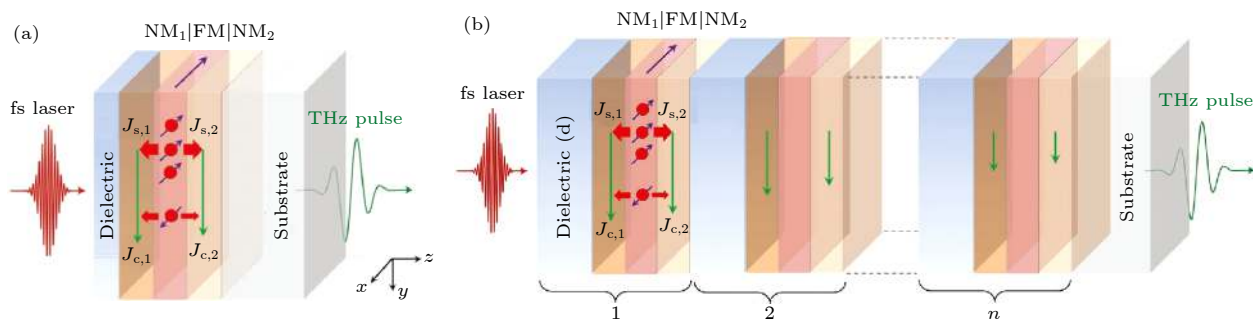


图 17 (a) 单重复自旋电子太赫兹发射器的示意图^[74]; (b) 金属电介质光子晶体型 (photonic-crystal-like) 自旋电子太赫兹发射器的示意图^[74]

Fig. 17. (a) Schematic of single-repeat spintronic THz emitter^[74]; (b) schematic of the metal-dielectric photonic-crystal-like spintronic THz emitter^[74].

自旋流可以从前后两个方向分别注入到两层 NM 材料中, 因此注入到这两层材料的自旋流方向相反, 但是由于他们的自旋霍尔角符号相反, 最终产生的超快电流方向相同, 产生的太赫兹辐射相干增强, 从而增强了器件的效率.

此外, 基于太赫兹信号叠加的思想, 又有两种结构被提出. 一是 $[\text{NM}/\text{FM}/\text{MgO}]_n$ 的结构, 如图 15 所示. MgO 层是绝缘的, 因此每个自旋电流都流入相邻的 NM 层, 并转换成横向电荷电流, 形成太赫兹信号, 而来源于不同层的太赫兹信号在传播过程中相互叠加, 从而加强了总体太赫兹发射强度. 然而, 考虑到激光穿过各层的衰减, 并器件的层数不能无限地增加. Yang 等^[35]报道了 $[\text{Pt}(2\text{ nm})/\text{Fe}(1\text{ nm})/\text{MgO}(2\text{ nm})]_n$ 结构, 当 $n = 3$ 时, 信号达到最强. 他们首次设计了一个作为太赫兹发射器的多层结构.

另一种结构是将异质结构制成类似于超材料的特定图样^[35,72,73], 通过旋转施加的电场, 可控制过渡充电电流的方向与条带平行或垂直, 如图 16(a) 所示. 这种结构表明, 由有图案的磁异质结构构成的太赫兹发射器可以方便地控制发射的太赫兹波的强度、偏振、带宽和中心频谱. 因此, 这些发现可能有助于进一步研究基于 Fe/Pt 或其他类似异质结构的更复杂图案太赫兹发射器.

最近, Feng 等^[74]研究了介电层/NM₁/FM/NM₂的结构单元, 并重复该单元, 形成了 $[\text{介电层}/\text{NM}_1/\text{FM}/\text{NM}_2]_n$ 的多重结构, 以及其太赫兹发射过程, 如图 17 所示. 介电层可以有效地抑制激光的反射和透射, 从而增加其在金属薄膜中的吸收率, 有效地提升器件的太赫兹发射效率. Herapath 等^[55]也报道了类似的结果. 此外, 德国 Preu 团队^[75]

将天线和自旋太赫兹源进行耦合, 使得出射强度增至原来的两倍多.

5 总结与展望

本文介绍了基于超快自旋-电荷转换的自旋电子学太赫兹发射源现状. 通过金属磁性异质结中的超快退磁效应可以实现飞秒激光诱导的自旋流的产生和注入, 接着利用逆自旋霍尔效应或逆 Rashba 效应进行超快自旋流与电荷流的转换, 通过时域太赫兹发射光谱可以观测到这种超快电荷流产生的相干超宽谱太赫兹辐射. 此外对于此类太赫兹源的优化, 我们基于“材料、厚度、结构”三个方面进行了相关讨论. 上述讨论也涉及了一些太赫兹调控的内容, 关于其中的核心问题-偏振调控研究, 近期已有很多优秀的结果报道^[76–78], 本文这里不做具体展开. 因为本文主要从机理角度阐述, 其他内容可以参见本专题的相关综述文章. 在接下来的工作中, 我们可以更加深入地探索自旋输运和注入效应, 特别是新材料和新结构对自旋电子学太赫兹源调控和效率增强方面还有很多问题需要解决或提升. 同时, 我们还可以利用时域太赫兹发射谱来研究各种磁性或非磁性体系内部的超快自旋动力学过程, 目前这一方向也是物理学、材料学和自旋电子学器件研究的热点之一.

参考文献

- [1] Zhu Y 2012 *Mod. Sci. Instrum* **6** 13 (in Chinese) [朱亦鸣 2012 现代科学仪器 **6** 13]
- [2] Huo Y, Zhang C L 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 144204 (in Chinese) [霍雁, 张存林 2012 物理学报 **61** 144204]
- [3] Liu S G 2006 *China Basic Science* **8** 7 (in Chinese) [刘盛纲

- 2006 中国基础科学 8 7]
- [4] Kampfrath T, Battiatto M, Maldonado P, Eilers G, Nötzold J, Mährlein S, Zbarsky V, Freimuth F, Mokrousov Y, Blügel S, Wolf M, Radu I, Oppeneer P M 2013 *Nat. Nanotech.* **8** 256
- [5] Han P Y, Tani M, Usami M, Kono S, Kersting R, Zhang X C 2001 *J. Appl. Phys.* **89** 2357
- [6] Saitoh E, Ueda M, Miyajima H, Tatara G 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 182509
- [7] Shao Q, Yu G, Lan Y W, Shi Y, Li M Y, Zheng C, Zhu X, Li L J, Amiri P K, Wang K L 2016 *Nano Lett.* **16** 7514
- [8] Xiang T, Cheng L, Qi J B 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 227202 (in Chinese) [向天, 程亮, 齐静波 2019 物理学报 **68** 227202]
- [9] Auston D H, Cheung K P, Smith P R 1984 *Appl. Phys. Lett.* **45** 284
- [10] Deacon D A G, Elias L R, Madey J M J, Ramian G J, Schwetman H A, Smith T I 1977 *Phys. Rev. Lett.* **38** 892
- [11] Beaupaire E, Turner G M, Harrel S M, Beard M C, Bigot J Y, Schmuttenmaer C A 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 3465
- [12] Huang S W, Granados E, Huang W R, Hong K H, Zapata L E, Kärtner F X 2013 *Opt. Lett.* **38** 796
- [13] Battiatto M, Carva K, Oppeneer P M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 027203
- [14] Beaupaire E, Merle J C, Daunois A, Bigot J Y 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 4250
- [15] Hohlfield J, Matthias E, Knorren R, Bannemann K H 1997 *Phys. Rev. Lett.* **78** 4861
- [16] Gudde J, Conrad U, Jahnke V, Hohlfield J, Matthias E 1999 *Phys. Rev. B* **59** 6608
- [17] Scholl A, Baumgarten L, Jacquemin R, Eberhardt W 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 5146
- [18] Eschenlohr A, Battiatto M, Maldonado P, Pontius N, Kachel T, Holldack K, Mitzner R, Föhlich A, Oppeneer P M, Stamm C 2013 *Nat. Mater.* **12** 332
- [19] Koopmans B, Ruigrok J J M, Dalla Longa F, De Jonge W J M 2005 *Phys. Rev. Lett.* **95** 267207
- [20] Koopmans B, Malinowski G, Dalla Longa F, Steiauf D, Fähnle M, Roth T, Cinchetti M, Aeschlimann M 2010 *Nat. Mater.* **9** 259
- [21] Krauß M, Roth T, Alebrand S, Steil D, Cinchetti M, Aeschlimann M, Schneider H C 2009 *Phys. Rev. B* **80** 180407
- [22] Bigot J Y, Vomir M, Beaupaire E 2009 *Nat. Phys.* **5** 515
- [23] Battiatto M, Carva K, Oppeneer P M 2012 *Phys. Rev. B* **86** 024404
- [24] Sinova J, Valenzuela S O, Wunderlich J, Back C H, Jungwirth T 2015 *Rev. Mod. Phys.* **87** 1213
- [25] Althammer M 2018 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51** 313001
- [26] Ando K, Saitoh E 2012 *Nat. Commun.* **3** 1
- [27] Bottegoni F, Zucchetti C, Isella G, Bollani M, Finazzi M, Ciccacci F 2020 *Rivista del Nuovo Cimento* **43** 45
- [28] Bottegoni F, Ferrari A, Isella G, Cecchi S, Finazzi M, Ciccacci F 2013 *Spintronics VI* **8813** 88131C
- [29] Jungwirth T, Wunderlich J, Olejník K 2012 *Nat. Mater.* **11** 382
- [30] Isella G, Bottegoni F, Ferrari A, Finazzi M, Ciccacci F 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 232402
- [31] Ando K, Morikawa M, Trypiniotis T, Fujikawa Y, Barnes C H W, Saitoh E 2010 *J. Appl. Phys.* **107** 113902
- [32] Uchida K, Takahashi S, Harii K, Ieda J, Koshibae W, Ando K, Maekawa S, Saitoh E 2008 *Nature* **455** 778
- [33] Seifert T, Jaiswal S, Martens U, Hannegan J, Braun L, Maldonado P, Freimuth F, Kronenberg A, Henrizi J, Radu I, Beaupaire 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
- [34] Wang X, Cheng Liang, Zhu D, Wu Y, Chen M, Wang Y, Zhao D, Boothroyd C B, Lam Y M, Zhu J X, Battiatto M, Song J C W, Yang H, Chia E E M 2018 *Adv. Mater.* **30** 1802356
- [35] Yang D, Liang J, Zhou C, Sun L, Zheng R, Luo S, Wu Y, Qi J 2016 *Adv. Optical Mater.* **4** 1944
- [36] Huisman T J, Mikhaylovskiy R V, Costa J D, Freimuth F, Paz E, Ventura J, Freitas P P, Blügel S, Mokrousov Y, Rasing T, Kimel A V 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 455
- [37] Edelstein V M 1990 *Solid State Commun.* **73** 233
- [38] Isasa M, Martínez-Velarte M C, Villamor E, Magén C, Morellón L, De Teresa J M, Ibarra M R, Vignale G, Chulkov E V, Krasovskii E E, Hueso L E, Casanova F 2016 *Phys. Rev. B* **93** 014420
- [39] Nakayama H, Kanno Y, An H, Tashiro T, Haku S, Nomura A, Ando K 2016 *Phys. Rev. Lett.* **117** 116602
- [40] Manchon A, Zhang S 2008 *Phys. Rev. B* **78** 212405
- [41] Bychkov Y A, Rashba E I 1984 *JETP Lett.* **39** 78
- [42] Khvalkovskiy A V, Cros V, Apalkov D, Nikitin V, Kroumbi M, Zvezdin K A, Anane A, Grollier J, Fert A 2013 *Phys. Rev. B* **87** 020402
- [43] Zhang W, Jungfleisch M B, Jiang W, Pearson J E, Hoffmann A 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 17C727
- [44] Hirahara T, Miyamoto K, Kimura A, Niinuma Y, Bihlmayer G, Chulkov E V, Nagao T, Matsuda I, Qiao S, Shimada K, Namatame H, Taniguchi M, Hasegawa S 2008 *New J. Phys.* **10** 111
- [45] Rojas-Sanchez J C, Vila L, Desfonds G, Gambarelli S, Attané J P, De Teresa J M, Magén C, Fert A 2013 *Nat. Commun.* **4** 2944
- [46] Rojas-Sanchez J C, Oyarzun S, Fu Y, Marty A, Vergnaud C, Gambarelli S, Vila L, Jamet M, Ohtsubo Y, Taleb-Ibrahimi A, Le Fevre P, Bertran F, Reyren N, George J M, Fert A 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 096602
- [47] Jungfleisch M B, Zhang W, Sklenar J, Jiang W, Pearson J E, Ketterson J B, Hoffmann A 2016 *Phys. Rev. B* **93** 224419
- [48] Zhang H J, Yamamoto S, Gu B, Li H, Maekawa M, Fukaya Y, Kawasuso A 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 166602
- [49] Lesne E, Fu Y, Oyarzun S, Rojas-Sánchez J C, Vaz D C, Naganuma H, Sicoli G, Attané J P, Jamet M, Jacquet E, George J M, Barthélémy A, Jaffrès H, Fert A, Bibes M, Vila L 2016 *Nat. Mater.* **15** 1261
- [50] Jungfleisch M B, Zhang Q, Zhang W, Pearson J E, Schaller R D, Wen H, Hoffmann A 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 207207
- [51] 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
- [52] Melnikov A, Razdolski I, Wehling T O, Papaioannou E T, Roddatis V, Fumagalli P, Aktsipetrov O, Lichtenstein A I, Bovensiepen B 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 076601
- [53] Hirsch J E 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 1834
- [54] Papaioannou E T, Torosyan G, Keller S, Scheuer L, Battiatto M, Mag-Usara V K, L'Huillier J, Tani M, Beigang R 2018 *IEEE Tran. Magn.* **54** 1
- [55] Herath R I, Horne S M, Seifert T S, Jakob G, Kläui M, Bertolotti J, Kampfrath T, Hendry E 2019 *Appl. Phys. Lett.* **114** 041107
- [56] Wu Y, Elyasi M, Qiu X, Chen M, Liu Y, Ke L, Yang H 2016 *Adv. Mater.* **29** 1603031
- [57] Huisman T J, Rasing T 2017 *J. Phys. Soc. Japan* **86** 011009
- [58] Seifert T, Martens U, Günther S, Schoen M A W, Radu I, Chen X Z, Lucas I, Ramos R, Aguirre M H, Algarabel P A,

- Anadón A, Körner H S, Walowski J, Back C, Ibarra M R, Morellón L, Saitoh E, Wolf M, Song C, Uchida K, Mützenberg M, Radu I, Kampfrath T 2017 *Spin* **7** 1740010
- [59] Cramer J, Seifert T, Kronenberg A, Fuhrmann F, Jakob G, Jourdan M, Kampfrath T, Kläui M 2017 *Nano. Lett.* **18** 1064
- [60] Schneider R, Fix M, Heming R, Michaelis De Vascencellos S, Albrecht M, Bratschitsch R 2018 *ACS Photonics* **5** 3936
- [61] Chen M, Mishra R, Wu Y, Lee K, Yang H 2018 *Adv. Optical Mater.* **6** 1800430
- [62] Sasaki Y, Suzuki K Z, Mizukami S 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 102401
- [63] Sasaki Y, Kota Y, Iihama S, Suzuki K Z, Sakuma A, Mizukami S 2019 *Phys. Rev. B* **100** 140406
- [64] Gao Y, He Y, Pandey C, Nie T, Wang C, Kong D, Wang B, Wen L, Ruan C, Miao J, Wang L, Li Y, Zhao W, Wu X 2019 *44th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz)* 2019, September 1-3
- [65] Li G, Medapalli R, Mikhaylovskiy R V, Spada F E, Rasing T, Fullerton E E, Kimel A 2019 *Phys. Rev. Mater.* **3** 084415
- [66] Hasan M Z, Kane C L 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 3045
- [67] 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, Battiatto M, Yang H, Chia E E M 2019 *Nat. Phys.* **15** 347
- [68] Gao Y, Kaushik S, Philip E J, Li Z, Qin Y, Liu Y P, Su Y L, Chen X, Zhang W L, Weng H, Kharzeev D E, Liu M K, Qi J 2020 *Nat. Commun.* **11** 720
- [69] Torosyan G, Keller S, Scheuer L, Beigang R, Papaioannou E T 2018 *Sci. Rep.* **8** 1311
- [70] Qiu H S, Kato K, Hirota K, Sarukura N, Yoshimura M, Nakajima M 2018 *Opt. Express* **26** 15247
- [71] Seifert T, Jaiswal S, Sajadi M, Jakob G, Winnerl S, Wolf M, Kläui M, Kampfrath T 2017 *Appl. Phys. Lett.* **110** 252402
- [72] Jin Z, Zhang S, Zhu W, Li Q, Zhang W, Zhang Z, Lou S, Dai Y, Lin X, Ma G, Yao J 2019 *Phys. Status Solidi (RRL)* **13** 1
- [73] Song B, Song Y, Zhang S, Jin K, Zhu W, Li Q, Zhang Z, Lin X, Dai Y, Yan X, Ma G, Jin Z, Yao J 2019 *Appl. Phys. Exp.* **12** 122003
- [74] 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. Optical Mater.* **6** 1800965
- [75] 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
- [76] Chen X, Wu X, Shan S, Guo F, Kong D, Wang C, Nie T, Pandey C, Wen L, Zhao W, Ruan C, Miao J, Li Y, Wang L 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 221104
- [77] Qiu H, Wang L, Shen Z, Kato K, Sarukura N, Yoshimura M, Hu W, Lu Y, Nakajima M 2018 *Appl. Phys. Exp.* **11** 092101
- [78] 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. Optical Mater.* **7** 1900487

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

**Terahertz emitters based on ultrafast
spin-to-charge conversion***Su Yu-Lun¹⁾ Wei Zheng-Xing¹⁾²⁾ Cheng Liang¹⁾ Qi Jing-Bo^{1)2)†}¹⁾ (*State Key Laboratory of Electronic Thin Films and Integrated Devices, University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu 611731, China*)²⁾ (*Guangdong Institute of Electronic Information Engineering, University of Electronic Science and Technology, Dongguan 523808, China*)

(Received 12 May 2020; revised manuscript received 26 May 2020)

Abstract

Terahertz technology shows great potential applications in imaging, sensing and security. As is well known, the conventional solid-state broadband terahertz sources rely primarily on the nonlinear optical crystals and photoconductive antennas. Therefore, one major challenge for the next generation of terahertz technology is to develop the high-efficient, ultra-broadband and low-cost terahertz sources. In recent years, much attention has been paid to the spintronic terahertz emitters made of the metallic magnetic heterostructures on a nanometer scale. In this paper, the underlying physical mechanisms associated with this type of terahertz emitter is discussed. They mainly include the ultrafast demagnetization and the spin-charge interconversion processes. In order to further improve the terahertz emission efficiency, three main aspects are considered: appropriate choice of the materials (including conditions of the sample growing), film thickness, and new structure design. In the end, a short conclusion and future perspective for this research direction are given briefly.

Keywords: terahertz, ultrafast demagnetization, superdiffusive spin transport, inverse spin Hall effect, inverse Rashba-Edelstein effect, magnetic heterostructure

PACS: 42.65.Re, 78.47.J-, 72.25.Rb**DOI:** 10.7498/aps.69.20200715

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11974070, 11734006) and the Frontier Science Project of Dongguan, China (Grant No. 2019622101004).

† Corresponding author. E-mail: jbqi@uestc.edu.cn



利用连续激光抽运-太赫兹探测技术研究单晶和多晶二氧化钒纳米薄膜的相变

杨培棣 欧阳琛 洪天舒 张伟豪 苗俊刚 吴晓君

Study of phase transition of single crystal and polycrystalline vanadium dioxide nanofilms by using continuous laser pump-terahertz probe technique

Yang Pei-Di Ouyang Chen Hong Tian-Shu Zhang Wei-Hao Miao Jun-Gang Wu Xiao-Jun

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 204205 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20201188

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201188>

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

缺陷组合嵌入VO₂薄膜结构的可调太赫兹吸收器

Tunable terahertz absorber with multi-defect combination embedded VO₂ thin film structure

物理学报. 2020, 69(2): 027801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191511>

电触发二氧化钒纳米线发生金属-绝缘体转变的机理

Mechanism of electrically driven metal-insulator phase transition in vanadium dioxide nanowires

物理学报. 2018, 67(17): 177201 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180835>

电场诱导二氧化钒绝缘-金属相变的研究进展

Research progress of metal-insulator phase transition in VO₂ induced by electric field

物理学报. 2019, 68(10): 107201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190136>

氧空穴导致二氧化钒低温相带隙变窄

Oxygen vacancy induced band gap narrowing of the low-temperature vanadium dioxide phase

物理学报. 2017, 66(16): 163102 <https://doi.org/10.7498/aps.66.163102>

时空非均匀等离子体鞘套中太赫兹波的传播特性

Propagation characteristics of terahertz waves in temporally and spatially inhomogeneous plasma sheath

物理学报. 2017, 66(8): 084102 <https://doi.org/10.7498/aps.66.084102>

基于多重查找表的太赫兹波段卷云微物理参数的反演方法

Retrieval method of cirrus microphysical parameters at terahertz wave based on multiple lookup tables

物理学报. 2017, 66(5): 054102 <https://doi.org/10.7498/aps.66.054102>

专题：太赫兹自旋光电子

利用连续激光抽运-太赫兹探测技术研究单晶和多晶二氧化钒纳米薄膜的相变*

杨培棣¹⁾ 欧阳琛²⁾ 洪天舒¹⁾ 张伟豪¹⁾ 苗俊刚¹⁾ 吴晓君^{1)†}¹⁾ (北京航空航天大学电子信息工程学院, 北京 100191)²⁾ (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家研究中心, 北京 100190)

(2020 年 7 月 24 日收到; 2020 年 9 月 8 日收到修改稿)

作为典型的相变材料, 二氧化钒因为其接近室温的相变温度一直在金属-绝缘体的转变行为研究中备受关注. 各种不同种类的调制实验研究结果对二氧化钒相变机理的研究都提供了重要的线索. 这些实验不仅能够加深对各种过渡金属氧化物中的不同自旋的电子之间强关联作用的理解, 同时也为潜在应用拓展新的机会. 尽管二氧化钒的相变机制仍存在争议, 但在过去的几十年中, 人们为理解金属-绝缘相变机制付出了巨大的努力, 这都来源于各类二氧化钒调制实验的激励. 本工作在单晶和多晶二氧化钒中, 利用连续激光抽运-太赫兹探测技术对它们的调制机理进行了研究, 发现其在相同抽运通量下对太赫兹脉冲的吸收行为有明显的不同. 在系统地探讨了极具代表性的相变机理之后, 将单晶二氧化钒的相变机理归结为以电子结构为主导的 Mott 型相变, 将多晶二氧化钒的相变机理归结为以晶格畸变为主导的 Peierls 型相变. 以往的光学调制大多都是在飞秒激光抽运条件下进行的, 作为一种新的光学调制手段, 该工作是对以往全光调制实验的补充, 相信对二氧化钒相变机理的理解有新的帮助.

关键词: 太赫兹波, 光学调制, 二氧化钒, 相变**PACS:** 42.55.-f, 42.62.-b, 74.78.-w, 78.66.-w, 78.66.Li**DOI:** 10.7498/aps.69.20201188

1 引言

在过去的几十年中, 阐明强关联系统的物理性质一直是凝聚态物理中最具挑战性的主题之一, 高温超导体^[1,2]、多激子^[3,4]、Mott 绝缘体^[5]等众多新奇的物态极大的丰富了凝聚态物理的体系, 其中金属绝缘相变一直是研究的热门话题, 并且持续引起有争议理论和实验问题^[6]. V-O 系统可能是最具吸引力的材料之一, 它有很多种化合物 (例如 VO, V₂O₃, V₃O₅, V₄O₇, V₅O₉, V₆O₁₁, V₇O₁₃, V₈O₁₅, VO₂, V₂O₅ 等)^[7]. 它们中的许多都表现出典型的金

属到绝缘体的相变行为, 并且在光学、电学、热学和磁学性质方面都有急剧的变化^[8-10]. 二氧化钒在该体系中是最有趣材料之一, 因为它具有接近室温的相变临界点. 尽管相关机理还具有争议^[11-15], 但是近年来强关联体系的理论研究也取得了巨大的进展^[6].

自从 1959 年二氧化钒的相变开关特性被发现以来^[16], 其一直作为典型的金属-绝缘体转变系统, 被人们广泛而深入的研究. 其优异的相变特性和相变机理研究也一直是经久不衰的研究课题. 近年来, 利用超材料的场增强, 可以实现二氧化钒的超快相变进而实现皮秒量级的光学超快开关^[17]. 通

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

† 通信作者. E-mail: xiaojunwu@buaa.edu.cn

过掺杂的方式来优化二氧化钒在太赫兹频段的相变调制特性^[18], 甚至可以精确控制晶格形变将二氧化钒的相变温度调至室温^[19]. 共同发生的电子关联作用和晶体畸变使得相应的机理研究变得异常困难, 在一定的应力和温度条件下还会出现许多其他绝缘相^[20]. 基于这些现象和观察, 结构驱动的 Peierls 机制^[21] 或自旋极化相关的 Mott 电子关联机制^[22] 可能是带隙变窄和晶格对称性破缺的原因. 为了弄清楚这两个模型中的哪一个可以正确地描述二氧化钒, 已经进行了许多理论和实验研究^[11–15]. 在强关联领域, 对电子、轨道和晶格结构之间相互作用的研究一直是二氧化钒相变研究的焦点, 这也可以为相变特性的调控提供建设性指导. 为了调制二氧化钒中的相变, 传统方法包括掺杂^[23,24] 或使用外部激励 (电流, 应变等)^[25–27], 这可以归因于内部因素的调节. 事实证明, 这些基于交互的调制是有效且可操作的. 但是, 人们仍然面临一系列问题, 例如不可逆性、不连续性、热触发等. 新的调制方式有望实现对相变的动态控制, 与之前的被动控制方式不同. 例如, 过去基于焦耳加热的电流调制很难操作, 但是现在, 基于控制内部缺陷的静电门控可以很好地控制相变, 甚至可以稳定金属相^[28]. 如果能人为地控制这种相互作用, 甚至是可逆的连续控制相变特性, 那将大大提高二氧化钒的价值, 也有助于理解其他过渡金属氧化物的相变行为.

本文对比研究了单晶二氧化钒和多晶二氧化钒在连续激光作用下对太赫兹波的调控现象及机理. 发现单晶二氧化钒纳米薄膜在连续激光作用下, 能实现对太赫兹波的透射和反射信号的调制, 保持其吸收不变. 而多晶二氧化钒在连续激光作用下的透射信号减少, 吸收增加, 反射信号没有变化,

呈现出典型的光学吸收非线性, 并且观察到很明显的秒到分钟量级的相变潜热过程. 本文对实验现象可能的机理进行了讨论, 总结出单晶二氧化钒在连续激光作用下的机理为电子结构主导的 Mott 型相变, 而多晶二氧化钒主要为晶格畸变主导的 Peierls 相变. 除此以外, 该工作中的单晶二氧化钒纳米薄膜可以实现小于秒级别的连续可逆相变操控, 并且连续激光的全光调制也可降低调制器件的成本, 相信在充分理解了其调制机理的基础上, 作为未来的太赫兹调制器件有很大的应用潜力.

2 材料及实验装置

本文中单晶二氧化钒纳米薄膜的薄膜尺寸为 $10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$, 厚度为 200 nm , 晶向为 $\langle 001 \rangle$. 样品的衬底是单晶二氧化钛, 尺寸为 $10\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 0.5\text{ mm}$, 双面抛光, 晶向也为 $\langle 001 \rangle$. 多晶二氧化钒薄膜尺寸为 $10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$, 厚度为 200 nm , 衬底是双面抛光蓝宝石衬底, 衬底尺寸为 $10\text{ mm} \times 10\text{ mm} \times 0.5\text{ mm}$.

光学调制太赫兹波的实验采用一套自行搭建的角分辨太赫兹时域光谱仪来实现. 一台 60 fs 的光纤飞秒激光器 (型号: FemtoFERb FD 6.5, 功率为 80 mW , 波长为 1550 nm , Toptica 公司) 抽运一个低温生长砷化镓光导天线产生水平偏振的太赫兹脉冲, 先经过透镜 1 (焦距 $f_1 = 50\text{ mm}$) 后变为准直光, 再经过透镜 2 (焦距 $f_2 = 100\text{ mm}$) 聚焦到样品上. 在对二氧化钒单晶薄膜进行全光抽运的研究过程中, 本文经过样品之后的太赫兹脉冲, 再通过透镜 3 (焦距 $f_3 = 100\text{ mm}$) 变成平行光后经由透镜 4 (焦距 $f_4 = 50\text{ mm}$) 准直到接收天线上. 接

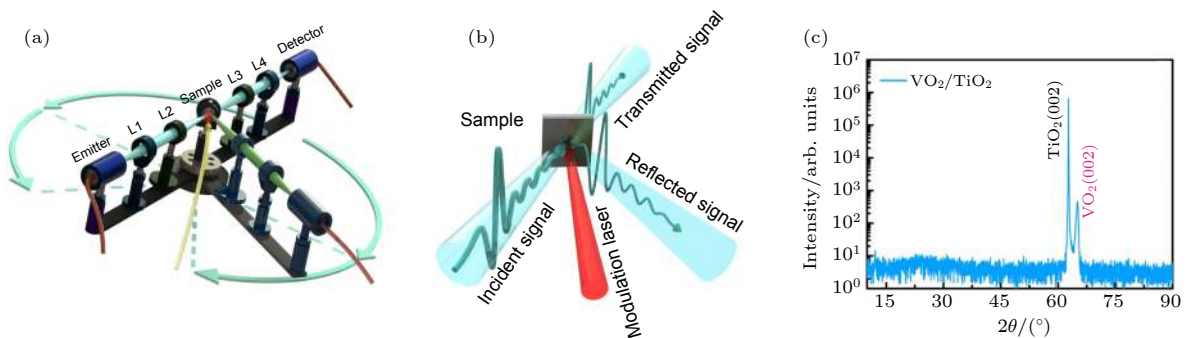


图 1 (a) 光调制角分辨太赫兹时域光谱系统装置图; (b) 原理示意图; (c) X 射线衍射光谱

Fig. 1. (a) Experimental setup of optical modulation angle resolved terahertz time-domain spectroscopy; (b) schematic diagram; (c) X-ray diffraction spectrum of single crystal VO_2 .

收天线将太赫兹脉冲信号转换为电流信号, 通过扫描延迟线, 利用锁相放大技术, 实现对太赫兹电场矢量的探测.

用于本实验的调制激光来源于一台半导体激光器, 工作波长为 780 nm, 最大输出功率 10 W, 通过一个光纤头将其直接照射到样品上. 调制光斑直径约为 5 mm, 通过控制激光器的电流来调节激光的功率. 本实验过程中, 太赫兹光路并未抽真空或充入氮气, 相关数据是在有水蒸汽的情况下测量得到. 单晶二氧化钒的 X 射线衍射表征如图 1(c) 所示.

3 实验结果与讨论

3.1 单晶二氧化钒透射和反射调制

首先, 本文将连续激光照射到单晶二氧化钒样品上, 为了避免样品架对太赫兹信号的影响, 太赫兹波的入射角选为 30° , 调制光垂直照射到样品表面. 当调制光功率从 0 W 增大到 5.4 W, 间隔约 0.5 W 的过程中, 图 2(a) 给出了不同抽运通量下的太赫兹时域透射信号, 为了更明显地显示信号的变化趋

势, 图 2(b) 展示了时域波形峰值的局部放大图. 可以清晰地看到随着调制激光功率的增大, 太赫兹透射信号单调减小. 当调制通量为 0 W/cm^2 时, 太赫兹透射信号峰值为 1.53 nA. 当调制光通量增加到 7 W/cm^2 时, 太赫兹透射信号减小到 1.19 nA. 本文定义一个调制深度的参数来表征对太赫兹波的调制能力, 调制深度定义为

$$M = \Delta T / T_0 = (T_0 - T_1) / T_0, \quad (1)$$

其中, T_0 为没有外加调制光的太赫兹时域波形的峰值信号大小, T_1 为加调制光的峰值信号大小. 图 2(c) 给出了不同抽运通量下的调制深度, 在太赫兹波 30° 斜入射情况下, 透射的最大调制深度为 21.9%. 为了进一步增大调制深度, 本文继续增大连续激光功率, 样品出现了被局部打穿的现象.

本文同时也测量了太赫兹波入射角为 30° 时的反射信号随调制光强度的变化关系. 太赫兹时域信号整体波形如图 2(d) 所示, 与图 2(b) 相对应的反射时域信号峰值局部放大图如图 2(e) 所示. 随着调制光通量的逐渐增大, 反射信号的强度单调递增, 反射信号的峰值从 4.19 nA 逐渐增大到了 4.54 nA. 本文定义反射信号的调制深度为 M_R ,

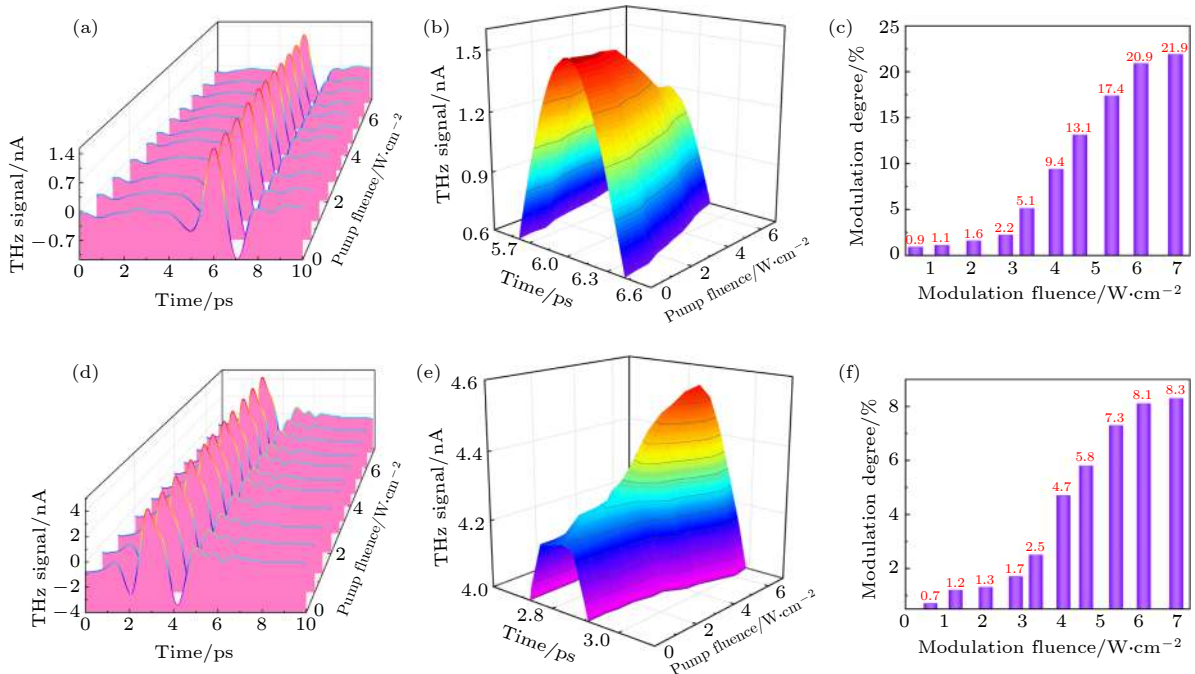


图 2 太赫兹波入射角为 30° (a) 透射时域波形信号; (b) 局部放大的透射峰值时域信号; (c) 不同调制激光通量下的调制深度; (d)—(f) 与透射光谱相对应的反射光谱信号

Fig. 2. When the incidence angle of the terahertz pulses was fixed at 30° , the variations for (a) the transmitted terahertz temporal waveforms; (b) the zoomed in temporal transmission waveforms; (c) modulation depth under different optical modulation fluences; (d)—(f) the corresponding reflection spectra.

由如下公式计算得到:

$$M_R = \Delta R/R_0 = (R_0 - R_1)/R_0, \quad (2)$$

式中, R_0 为未加调制光的反射信号, R_1 为加上调制光后的反射信号. 在不损坏样品的情况下, 得到的最大反射调制深度为 8.3%, 不同抽运通量下的反射调制深度如图 2(f) 所示.

3.2 单晶二氧化钒实验数据分析

综合图 2(a)–(f) 的实验现象可以发现, 在外加调制光作用的情况下, 太赫兹波透过单晶二氧化钒样品的透射信号随着调制光功率的增大单调递减, 而反射信号则随调制光功率的增大单调递增. 将透射和反射的两组实验数据进行综合分析, 发现随着调制光功率的逐渐增大, 反射信号和透射信号的总和基本不变. 在忽略散射的情况下, 被单晶二氧化钒样品吸收的太赫兹信号 (即入射信号减去反

射信号和透射信号的总和) 也基本保持不变, 如图 3(b) 所示. 随后根据垂直入射的太赫兹透射谱提取了在不同抽运通量下的折射率和消光系数 (图 3(d),(e)), 并基于它们计算了单晶二氧化钒在太赫兹频段电导率的虚部 (图 3(f)). 沿着图 3(f) 两条虚线截取两个频率点 (0.79 和 1.09 THz), 观测其电导率随抽运功率的变化, 发现了其线性增长的趋势, 如图 3(c) 所示. 根据金属型光发电导率的计算公式 $\sigma_i = \sigma_0 \omega \tau / [1 + (\omega \tau)^2]$, $\sigma_0 \propto N$, 其中 ω 是圆频率, τ 是光生载流子的弛豫时间, N 是光生载流子的浓度 [29]. 可看出, 抽运通量的增大只是单纯地改变了单晶二氧化钒中光生载流子的浓度, 并且直到击穿为止, 在所加抽运功率的范围内, 并没有出现电导率和材料介电性质的突变. 因为晶格的畸变对于材料的介电性质会有非常大的影响, 所以这对于排除晶体畸变的 Peierls 型相变是强有力的证据.

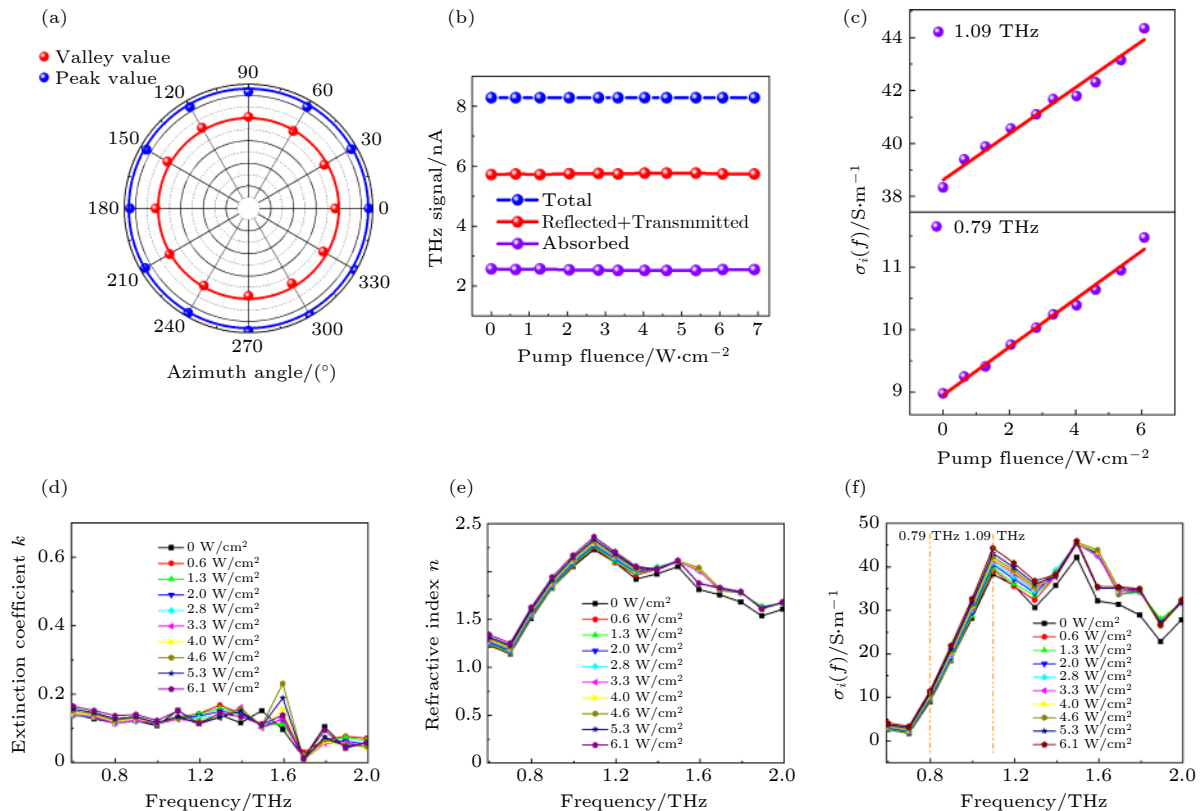


图 3 (a) 旋转样品方位角对透射信号的影响; (b) 随着调制通量的增大, 反射信号、透射信号和样品吸收的太赫兹信号的峰值变化; (c) 0.79 和 1.09 THz 频率时, 随抽运通量线性增长的材料电导率; 不同调制通量作用下, 单晶二氧化钒在太赫兹频段的 (d) 消光系数; (e) 折射率; (f) 电导率

Fig. 3. (a) The effect of the rotating sample azimuth on the transmission signal; (b) with the increase of the fluence, the variation of peak value of the reflected signal, the transmitted signal, and the terahertz absorbed by the sample; (c) the linear increasing conductivity with respect to the pump fluence under two exemplified frequencies 0.79 and 1.09 THz; (d) the wide-spectrum extinction coefficient, (e) refractive index, (f) conductivity of single crystal vanadium dioxide in terahertz region under the different pump fluences.

下面为进一步探索单晶二氧化钒机理进行了持续抽运实验. 在本文的实验过程中, 调制激光的通量比较高, 在持续维持连续激光抽运功率的情况下, 样品温度的升高有可能引起热致相变. 为此, 本文进行了如下两个实验: 1) 将调制激光功率控制在 3 W, 连续地测量太赫兹波的透射信号, 观察激光加热过程引起的太赫兹波信号的变化; 2) 被 3 W 激光照射 15 min 后, 立刻关闭激光, 再持续测量太赫兹波的透射信号在样品冷却过程中的变化情况. 该实验是在太赫兹波垂直入射到样品表面进行的. 当外加 3 W 调制激光的时候, 单晶样品的太赫兹透射峰值信号从 4.55 nA 迅速降低到 4.05 nA (<1 s). 保持调制激光持续加热 15 min, 但太赫兹透射信号并未发生明显变化, 说明没有产生相变潜热. 对于样品冷却的过程, 当调制激光关闭之后, 太赫兹透射信号从 4.05 nA 迅速上升 (<1 s) 并回到 4.55 nA. 再持续冷却样品, 并未观察到太赫兹信号的进一步提升. 从该实验结果可以看出, 单晶二氧化钒的在连续激光抽运下的电导率变化过程是一种快速调制的过程.

下面本文还排除了二氧化钛衬底对光调太赫兹信号的影响. 在太赫兹波入射角为 30° 的情况下, 对只有单晶二氧化钛衬底材料的太赫兹波透射和反射信号随调制激光功率变化进行了系统的测量. 太赫兹透射信号和反射信号随着抽运光功率的变化皆无明显变化, 由此表明光调制太赫兹现象完全来源于单晶二氧化钒纳米薄膜. 本文还通过旋转二氧化钒样品的方位角来排除光学调控太赫兹波对样品方位角的依赖关系. 证实了光调太赫兹波信号与样品方位角无关, 如图 3(a) 所示.

3.3 多晶二氧化钒调制对比

以往的超快光致相变均是在多晶二氧化钒样品中观察到. 本文在相同实验条件下, 也测量得到了多晶二氧化钒的实验结果, 如图 4 所示. 当逐渐增大调制激光的功率到 4.6 W/cm^2 的时候, 观察到了多晶二氧化钒对透射太赫兹波的调制现象. 在将连续抽运激光通量从 0 W/cm^2 逐渐增大到 4.0 W/cm^2 时, 没有明显的单调变化规律, 说明还未达到调制阈值.

在调制实验过程中, 将信号固定在太赫兹时域波形的峰值处. 进一步提高调制通量, 增大到 4.6 W/cm^2 的时候, 调制现象开始出现. 进一步增加抽运通量可以看到, 在不同通量的调制光作用于样品时, 多晶二氧化钒对太赫兹波的调制速率、调制深度和回复速率均不相同. 如图 4(a) 所示, 图中黄线为加热时间和冷却时间的分界线, 在黄线左侧加热过程中, 随着调制光通量的增大, 太赫兹波的透射信号减小, 调制速率、调制深度逐渐增大. 在黄线右侧冷却过程中, 回复速率随通量增大逐渐减小. 随着调制通量的进一步增大, 太赫兹波的调制速率和调制深度趋于饱和. 在调制通量为 6.7 W/cm^2 时达到 86% 的最大调制深度, 但是反射并未观察到明显的调制现象.

3.4 机理讨论

综上所述, 单晶二氧化钒在上述所做的降温和升温实验时间精度内没有发生明显的相变潜热过程, 所以不能简单归属为热致相变. 到目前为止, 二氧化钒的相变类型可分为 Mott 型、Peierls 型和 Mott-Peierls 混合型. 其不同相的晶体结构如

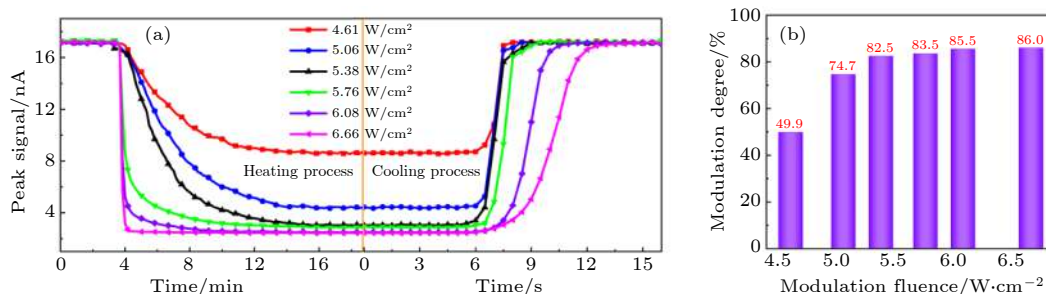


图 4 连续激光照射多晶二氧化钒对太赫兹波的调制实验结果 (a) 不同调制光通量下, 太赫兹透射信号峰值随外加调制激光照射时间和撤去激光的变化过程; (b) 透射调制深度随着调制光通量的变化关系

Fig. 4. Experimental results for terahertz modulation in polycrystalline vanadium dioxide illuminated by various modulation fluences: (a) The transmitted THz signal peak values as a function of the illumination time and crystal cooling time under various modulation fluences, respectively; (b) modulation fluence dependent on THz modulation depth.

图 5 所示^[6], 首先就二氧化钒本身而言, 在晶体场中 $3d$ 轨道会形成 $3d_{||}$ 和 $3d_{\pi}$ 两条子带 (如图 5 中 R 相的能带图所示), 元胞中钒离子的 $3d$ 轨道形成能带时只有 $3d^1$ 一个电子填充, 属于未填满的状态. 由于过度金属氧化物中的 d, f 轨道填充时自旋向上和自旋向下的电子需要考虑 Hubbard 关联作用^[30] 和泡利原理, 新填充的电子自旋必须和原本填充的电子自旋相反并且呈现出排斥作用, 最终呈现出单个能带的自旋极化, 所以 $3d_{||}$ 又进一步劈裂成上下两条子带, 在 $3d_{||}$ 和 $3d_{||}^*$ 之间打开约 0.7 eV 的带隙, 如图 5 中 M 相能带所示. 本身依靠无相互作用的能带理论应该在低温条件下判定它为金属态. 但是有了电子关联作用, 在低温情况下仍然为绝缘体.

热诱导的相变过程中只涉及电子的热激发 (25 meV), 主要是由热激发的声学支声子超过其相变的临界密度所致. 当声子在晶体局部超过其临界密度时, 会出现成核现象, 即局域的声子会形成“转变声子触发机制”^[32]. 由于二氧化钒的结构相变属于一级相变, 只要外界一直提供相变潜热, 该触发机制就能一直以成核点为中心, 向四周扩散声子, 从而完成从绝缘的单斜晶系到金属的金红石晶系的结构相变, 如图 6(b) 所示. 图中已成核的金红石 R 相继续向四周扩散声子破坏原有的 M 相结构. 将该类相变称之为 Peierls 型, 见图 6 所示.

可以很明显地觉察到, 上述 Peierls 型相变并没有直接破坏电子之间的强关联作用, 而是直接以声子模式作为触发源的. 但是很多研究二氧化钒相

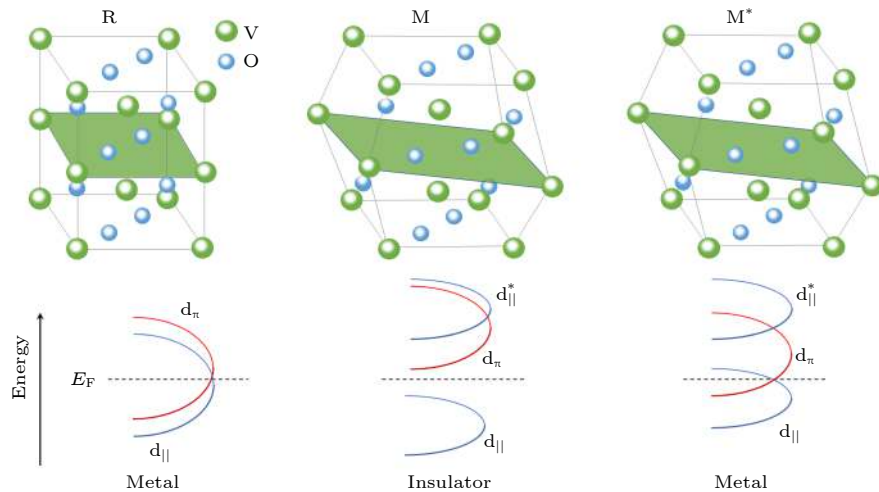


图 5 二氧化钒不同相的晶体结构和其对应的能带结构

Fig. 5. The crystal structures of different phases of vanadium dioxide and the corresponding band structures.

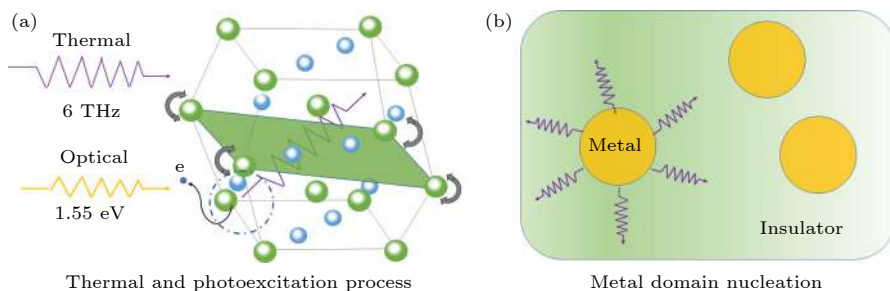


图 6 Peierls 型相变原理示意图 (a) 热激发直接导致声子的激发或 800 nm (1.55 eV) 抽运脉冲的光激发导致自由电子的激发, 并间接导致声子的激发, 这都将导致绝缘晶格到金属晶格的转变; (b) 如果外界一直提供相变潜热, 则激发的声子从成核中心向四周扩散, 直到周围超过临界密度破坏单斜结构完成绝缘金属转变, 实现金属区域的扩大

Fig. 6. Schematic diagram of Peierls-type phase transition. (a) Thermal excitation directly leads to the excitation of phonons or photoexcitation with 800 nm (1.55 eV) pump pulse results in the excitation of free electrons and indirectly results in excitation of phonons, which map the insulating lattice onto the metallic lattice. (b) If the external environment always provided the latent heat, the phonons would diffuse from the nucleation center to the surroundings until the phonon density exceeded the critical density and destroyed the monoclinic structure to complete the insulating metal transition and realized the expansion of the metal domain.

变超快动力学的实验组发现, 在超快激光抽运太赫兹探测, 环境温度较低的情况下 ($<200\text{ K}$), 考虑全部吸收的光能转换成样品中的热能进而激发声子模式的情况, 发现和 Peierls 型预言的相图相去甚远^[31]. 因此, 除了属于 Peierls 型的热致相变外, 必然有新的机理主导着二氧化钒的相变过程, 并将其称为 Mott 型相变, 示意图见图 6 中 M^* 相. 其中被激发的自由电子和空穴的屏蔽作用会破坏 Hubbard 关联能, 进而破坏电子的能带结构, 使得带隙关闭, 成为金属相, 但仍然保持单斜晶系^[6]. 如果外界除了能使电子达到电子临界密度外, 不能进一步提供相变潜热来激发声子振动模式达到其临界密度, 则系统为纯粹的 Mott 型相变.

对比单晶和多晶二氧化钒的实验结果的不同, 可以明确多晶二氧化钒在连续激光作用下的相变有很明显的随着时间变化的太赫兹吸收非线性变化过程^[4], 如果考虑这是在吸热过程中 (相变潜热过程) 发生了声子成核扩散现象, 即持续的结构相变, 必然会改变材料的介电环境进而影响材料的吸收特性, 因此把该现象归属于 Peierls 型相变. 而在单晶二氧化钒的结果中, 增大抽运通量并没有改变太赫兹的吸收, 只是单纯地增大光生载流子的浓度. 不过该图像对应了两种情况, 第一种是光的抽运功率还不足以触发 Peierls 相变, 从加上抽运光到局部击穿为止, 由于激发了 $3d_{||}$ 能带中的电子, 使得 Hubbard 关联作用消失, 从而关闭了带隙, 使系统处于 M^* 金属相, 则二氧化钒经过的是 Mott 型主导的相变. 第二种情况是在刚加上低通量抽运光时就已经在所测的时间尺度内完成 Peierls 型的相变过程, 而之后的每一个通量下都是 R 相的金属态激发的带内自由载流子的屏蔽行为. 但是和多晶二氧化钒的相变阈值相比, 不应该在 0.6 W/cm^2 的抽运功率下就已经达到了相变阈值, 所以单晶二氧化钒的相变应归属于第一种 Mott 型主导的吸收率不变的过程.

4 总 结

本文系统研究了连续激光作用于单晶二氧化钒和多晶二氧化钒纳米薄膜对太赫兹波透射和反射信号的调制现象. 实验发现对于单晶二氧化钒, 在垂直和斜入射的情况下, 随着调制激光功率的增大, 太赫兹波的透射信号减小而反射信号增大, 吸

收保持不变. 通过排除样品衬底和方位角的依赖关系, 以及激光加热和样品冷却实验, 对可能的机理进行了讨论. 从太赫兹电导率在整个光抽运通量范围内线性变化, 而没有发生突变的实验数据来看, 应当将单晶二氧化钒的相变归结于 Mott 型电子结构主导的相变. 多晶二氧化钒在连续激光作用下的透射信号随着激光功率的升高减小, 吸收增大, 出现了明显的分钟量级的相变潜热过程, 对应的相变机理归结为 Peierls 型相变. 该工作中的单晶二氧化钒纳米薄膜可以实现小于秒级别的连续可逆相变操控, 并且利用连续激光的全光调制也可大大降低调制器件的成本, 相信在深刻地理解了其调制机理的基础上, 作为未来的太赫兹功能器件有很大的应用潜力.

参考文献

- [1] Hahn S Y, Kim K L, Kim K M, et al. 2019 *Nature* **570** 496
- [2] Chen C, Jiang K, Zhang Y, Liu C F, Wang Z Q, Wang J 2020 *Nat. Phys.* **16** 536
- [3] Gogoi P K, Hu Z L, Wang Q X, et al. 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 077402
- [4] Li Z P, Wang T M, Lu Z G, et al. 2018 *Nat. Commun.* **9** 1
- [5] Chen G, Jiang L L, Wu S, et al. 2019 *Nat. Phys.* **15** 237
- [6] Shao Z W, Cao X, Luo H J, Jin P 2018 *NPG Asia Mater.* **10** 581
- [7] Inada, Masatoshi, Fujimori, Atsushi, Tokura, Yoshinori 1998 *Rev. Mod. Phys.* **70** 1039
- [8] Schwingschlogl U, Eyert V 2004 *Ann. Phys. Berlin.* **13** 475
- [9] Kasirga T S, Sun D, Park J, Coy J, Fei Z Y, Xu X D, Cobden D 2012 *Nat. Nanotechnol.* **7** 723
- [10] Liu K, Cheng C, Cheng Z T, Wang K, Ramesh R, Wu J Q 2012 *Nano Lett.* **12** 6302
- [11] Laad M S, Craco L, Muller-Hartmann E 2006 *Phys. Rev. B.* **73** 195120
- [12] Vikhniin V S, Lysenko S, Rua A, Fernandez F, Liu H 2006 *Solid State Commun.* **137** 615
- [13] Woodley M S 2008 *Chem. Phys. Lett.* **453** 167
- [14] Lazarovits B, Kim K, Haule K, Kotliar G 2010 *Phys. Rev. B* **81** 115117
- [15] Eyert V 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 016401
- [16] Morin F J 1959 *Phys. Rev. Lett.* **3** 34
- [17] Mengkun L, Harold Y H, Hu T, et al. 2012 *Nature* **487** 345
- [18] Ji C H, Wu Z M, Wu X F, et al. 2018 *J. Mater. Chem. C* **6** 1722
- [19] Tiegui L, Langping W, Xiaofeng W, Yufen Z, Yonghao Y 2016 *Appl. Surf. Sci.* **379** 179
- [20] Tselev S, Luk'yanchuk I A, Lvanov I N, et al. 2010 *Nano Lett.* **10** 4409
- [21] Peierls R E 1991 *More Surprises in Theoretical Physics* (Princeton: Princeton University Press) Vol.19
- [22] Mott N F 1949 *Proc. Phys. Soc.* **62** 416
- [23] Tan X G, Yao T, Long R, et al. 2012 *Sci. Rep.* **2** 1
- [24] Li X Y, Gloter A, Zobelli A, Gu H, Cao X, Jin P, Colliex C 2014 *Acta Mater.* **80** 16
- [25] Becker M F, Buckman A B, Walser R M, Lepine T, Georges

- P, Brun A 1994 *Appl. Phys. Lett.* **65** 1507
 [26] He X F, Xu J, Xu X F, et al. 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 093106
 [27] Hyun-Tak K, Byung-Gyu C, Doo-Hyeon Y, et al. 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 242101
 [28] Nakano M, Shibuya K, Okuyama D, Hatano T, Ono S, Kawasaki M, Iwasa Y, Tokura Y 2012 *Nature*. **487** 459
 [29] Jeon T, Grischkowsky D 1998 *Appl. Phys. Lett.* **72** 3032
 [30] Hubbard J 1964 *Proc. Roy. Soc (London)* **276** 238
 [31] Cocker T L, Titova L V, Fourmaux S, et al. 2012 *Phys. Rev. B* **85** 155120

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

Study of phase transition of single crystal and polycrystalline vanadium dioxide nanofilms by using continuous laser pump-terahertz probe technique*

Yang Pei-Di¹⁾ Ouyang Chen²⁾ Hong Tian-Shu¹⁾ Zhang Wei-Hao¹⁾
 Miao Jun-Gang¹⁾ Wu Xiao-Jun^{1)†}

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

²⁾ (Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics,
 Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

(Received 24 July 2020; revised manuscript received 8 September 2020)

Abstract

As a typical phase transition material, vanadium dioxide has attracted much attention in the study of metal-insulator transition behavior since its phase transition temperature is close to room temperature. The experimental results of various modulation provide important clues to studying the vanadium dioxide phase transition mechanism. These experiments not only deepen the understanding of the strong correlation between electrons with different spins in various transition metal oxides, but also make an opportunity for exploring their potential practical applications. Although the phase transition mechanism of vanadium dioxide is still controversial, one has already made tremendous efforts to understand the mechanism of metal-insulation phase transition in the past few decades, which is stimulated from various experiments on vanadium dioxide modulation. Here in this work, the single crystal and polycrystalline vanadium dioxide are investigated. Their modulation mechanisms are studied by using the continuous laser pumping-terahertz probe technique, and it is found that the absorption behaviors of terahertz pulses at the same pump fluence are obviously different. After systematically discussing the representative phase transition mechanism, it is found that the phase transition of single crystal vanadium dioxide is attributed to the Mott-type phase transition dominated by the electronic structure, and that the polycrystalline vanadium dioxide originates from the Peierls-type phase transition occurring during the lattice distortion. In the past, most of the optical modulation was implemented under the condition of femtosecond laser pumping. The new optical modulation method given in this work, is a supplement to previous all-optical modulation experiment and more likely to be conducive to a more in-depth understanding of the modulation mechanism of vanadium dioxides.

Keywords: terahertz wave, optical modulation, vanadium dioxide, phase transition

PACS: 42.55.-f, 42.62.-b, 74.78.-w, 78.66.-w, 78.66.Li

DOI: 10.7498/aps.69.20201188

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grants Nos. 61905007, 11827807), the Natural Science Foundation of Beijing, China (Grant No. 4194083), and the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2019YFB2203102).

† Corresponding author. E-mail: xiaojunwu@buaa.edu.cn

极性反铁磁体 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的太赫兹发射谱

时立宇 吴东 王子潇 林桐 张思捷 刘巧梅 胡天晨 董涛 王楠林

Terahertz emission spectrum of polar antiferromagnet $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$

Shi Li-Yu Wu Dong Wang Zi-Xiao Lin Tong Zhang Si-Jie Liu Qiao-Mei Hu Tian-Chen Dong Tao
Wang Nan-Lin

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 204206 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20201545

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201545>

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

层状铁磁体 $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ 的Andreev反射谱

Andreev reflection spectroscopy of ferromagnetic $\text{Fe}_{0.26}\text{TaS}_2$ with layered structure

物理学报. 2019, 68(24): 247201 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191221>

$\text{Al}^{3+}/\text{Mo}^{6+}$ 双离子取代 ZrV_2O_7 中 $\text{Zr}^{4+}/\text{V}^{5+}$ 实现近零膨胀

Substitutions of dual-ion $\text{Al}^{3+}/\text{Mo}^{6+}$ for $\text{Zr}^{4+}/\text{V}^{5+}$ in ZrV_2O_7 for realizing near-zero thermal expansion

物理学报. 2017, 66(7): 076501 <https://doi.org/10.7498/aps.66.076501>

核 $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ -壳 $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$ 型磁体反磁化的微磁学模拟

Micromagnetic simulations of reversal magnetization in core $(\text{Nd}_{0.7}, \text{Ce}_{0.3})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ -shell $(\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B})$ type

物理学报. 2020, 69(14): 147501 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200435>

Mn掺杂 $\text{Pb}(\text{In}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$ - $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - PbTiO_3 单晶微米尺度压电阵列的制备与铁电畴结构研究

Preparation and ferroelectric domain structure of micro-scale piezoelectric array fabricated by Mn doped $\text{Pb}(\text{In}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$ - $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - PbTiO_3 single crystal

物理学报. 2020, 69(18): 187701 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200544>

专题：太赫兹自旋光电子

极性反铁磁体 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的太赫兹发射谱*

时立宇 吴东 王子潇 林桐 张思捷

刘巧梅 胡天晨 董涛 王楠林†

(北京大学物理学院, 量子材料科学中心, 北京 100871)

(2020 年 6 月 12 日收到; 2020 年 7 月 3 日收到修改稿)

极性材料中, 电子受激发跃迁会改变材料的电极化矢量, 受到飞秒脉冲激光的激发时, 瞬态变化的电极化矢量会向外辐射电磁波, 产生太赫兹波段的发射谱. 在磁有序体系中, 受到相干激发的自旋波在进动弛豫的过程中, 会辐射相同频率的电磁波. 研究这些材料的太赫兹发射谱, 不仅有助于理解材料的铁电有序和磁有序的动力学过程, 也为寻找新的太赫兹源提供参考. 我们对极性反铁磁体 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的太赫兹发射谱进行了研究, 在 800 nm 飞秒激光的泵浦下, 材料中的电子发生跨越能隙的激发, 对电极化矢量产生超快调制, 观察到 0.1—3.5 THz 的宽带太赫兹激发谱, 太赫兹电场方向沿材料的固有电极化方向. 在进入磁有序后, 观测到两个新的单频太赫兹震荡, 分别位于 1.25 和 2.70 THz, 分别对应 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的两个反铁磁自旋波.

关键词: $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$, 极性反铁磁体, 太赫兹发射谱

PACS: 42.65.Re, 77.84.-s, 75.78.Jp

DOI: 10.7498/aps.69.20201545

1 引言

光谱学是测量物质性质的重要实验技术. 光谱实验中在红外与微波之间, 名为太赫兹的区域曾经长期存在着一段空白区, 其主要原因是受限于太赫兹的产生和探测技术上的困难. 而这一频率范围的研究在物理学中具有重要的意义, 物质中分子的振动, 晶格和自旋的集体激发, 甚至超导能隙等都涉及这一能量尺度. 近 30 年来, 人们发现许多材料在飞秒激光的激发下能够辐射相当强度的太赫兹区域电磁波. 这些基于飞秒激光的相干太赫兹源以及对应的探测技术得到蓬勃发展, 引起基础科学工作者的关注, 展现出应用前景. 而在寻找太赫兹源的过程中, 太赫兹发射谱也逐渐成为一种探测物质性质的新实验技术, 它直接反映材料的低能动力学过程, 能够为研究晶格对称性, 光生载流子运动,

磁振子运动等诸多物理问题提供关键信息 [1–3].

多铁性材料是指同时具有电极化有序和磁有序的材料, 有些多铁性材料中, 磁与电之间存在强烈的耦合效应. 这些磁电耦合材料具有神奇的性质, 例如受电场调控的磁化强度以及受磁场调控的电极化强度等. 磁电耦合材料在制作新型信息器件方面具有备受期待的应用前景, 对于其中电极化与自旋的超快动力学研究, 是凝聚态物理的前沿课题之一. 其中尤为引人注目的是研究光与磁电有序之间的动力学耦合作用, 尤其是应用飞秒脉冲激光及强场太赫兹脉冲对磁电耦合材料进行超快调控 [4]. 本文的工作中, 我们使用飞秒激光泵浦极性反铁磁体 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$, 测量到频率范围为 0.1—3.5 THz 发射谱, 太赫兹辐射的电场方向沿样品的电极化方向, 并分析发射太赫兹的起源. 在磁相变温度以下, 材料的电磁振子与磁振子也被相干激发, 在太赫兹时域谱线上表现出周期性振荡信号.

* 国家自然科学基金 (批准号: 11888101) 和国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2017YFA0302904, 2016YFA0300902) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: nlwang@pku.edu.cn

2 样品与实验系统介绍

极性磁体 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的晶格结构具有极性对称群 $P6_3mc$, 破缺中心反演对称, 自发电极化方向沿 c 方向. 降温至 $T_N = 60$ K 以下时, 形成长程磁有序, 如图 1 所示, 磁矩方向均沿 c 方向排列, 位于氧四面体中的铁与氧八面体中的铁具有不同大小的磁矩, 因此每个铁氧层具有亚铁磁性, 而相邻层间磁矩相反, 整体表现为反铁磁性. $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 近年来因具有显著的磁电效应而受到广泛关注 [5–7], 尤其是在太赫兹光谱中表现出多种奇异的性质, 如电磁振子 [8]、双折射 [9]、二向色性 [10]、磁振子极化激元 [11] 等.

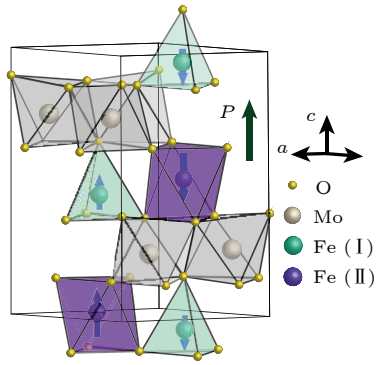


图 1 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 晶体的晶格结构与磁结构

Fig. 1. Crystal structure and magnetic structure of $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$.

我们采用气相输运方法生长高质量 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 单晶 [12,13], 从中挑选 ab 面和 ac 切面的 1—2 mm 大小的样品, 通过磁化率测量表征了样品的反铁磁相变温度 [11]. 为确定材料对 800 nm 光的吸收, 使用布鲁克公司的 80 V 傅里叶变换红外光谱仪测量了样品 ab 面的 80—22000 cm^{-1} 的反射谱, 通过 Kramers-Kronig 变换关系得到样品的光电导率等光学常数.

测量 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 太赫兹发射谱的实验光路图如图 2(a) 所示, 图中绿色区域充入氮气, 以避免空气中水汽吸收对太赫兹谱的干扰. 所用飞秒激光来自于光谱物理公司生产的钛蓝宝石激光放大器系统, 中心频率为 800 nm, 脉冲宽度 100 fs, 重复频率 1 kHz. 用分束片将激光分为两束, 功率较高的一束作为泵浦光, 由透镜 L2 聚焦在样品上激发出太赫兹辐射. 样品发射的太赫兹波由离轴抛物面镜收集并聚焦在 ZnTe 电光晶体上. 另一束较弱的激光作为采样光, 经过时间延迟线后通过透镜 L1 同

样聚焦在电光晶体上, 并与太赫兹波在晶体中重合, 对太赫兹进行电光采样. 受到太赫兹电场的影响, 电光晶体的折射率椭球发生改变, 进而改变穿过样品的采样光的偏振方向. 利用平衡探测测量采样光的偏振变化量, 正比于太赫兹的电场强度. 光路中的硅片用于阻挡穿过样品的泵浦光, 对太赫兹波则有很高的透射率. 本实验中, $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 对 800 nm 的泵浦光不透明, 也可以不放置硅片. 进行太赫兹发射谱测量时样品放置在牛津仪器生产的低温恒温器中, 测量温度为 10—300 K. 泵浦光垂直入射样品, 如图 2(b) 所示. 测量 ac 面的样品时, 设置 a 轴方向为水平方向, c 轴方向为竖直方向. 泵浦光的偏振方向则可以通过 $1/2$ 波片调节.

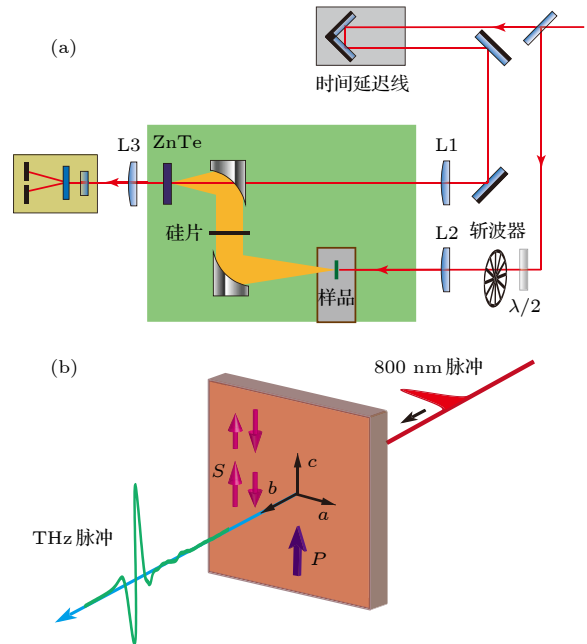


图 2 太赫兹发射谱测量实验示意图 (a) 实验光路图; (b) 泵浦光激发太赫兹的示意图

Fig. 2. schematic diagram of the measurement of the THz emission spectrum: (a) optical path of the experiment system; (b) schematic diagram of the THz emission from optical pump.

3 实验结果

图 3 所示为 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 太赫兹发射谱的测量结果. 首先测量泵浦光入射 ac 面的情况, $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 属于第一类多铁性材料, 在磁相变温度 T_N 以上已经破缺中心反演对称性, 在各个温度都可以观测到较强的太赫兹信号. 图 3(a) 为 60 K 时产生的太赫兹电场的时域谱线, 对时域谱线进行傅里叶变换可

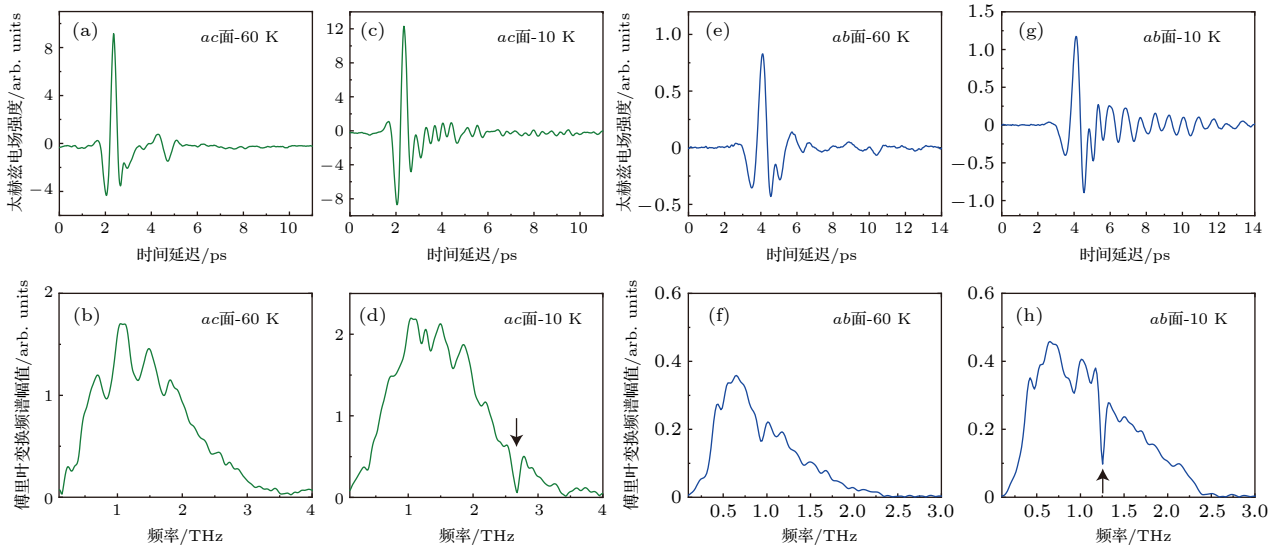


图3 太赫兹发射谱测量结果 (a) *ac* 面样品 60 K 的太赫兹发射谱的时域谱线; (b) (a) 图中时域谱线的傅里叶变换; (c) *ac* 面样品 10 K 的太赫兹发射谱的时域谱线; (d) (c) 图中时域谱线的傅里叶变换; (e) *ab* 面样品 60 K 的太赫兹发射谱的时域谱线; (f) (e) 图中时域谱线的傅里叶变换; (g) *ab* 面样品 10 K 的太赫兹发射谱的时域谱线; (h) (g) 图中时域谱线的傅里叶变换;

Fig. 3. THz emission spectra : (a) Time domain spectrum of *ac* plane at 60 K; (b) Fourier transform spectrum of (a); (c) time domain spectrum of *ac* plane at 10 K; (d) Fourier transform spectrum of (c); (e) time domain spectrum of *ab* plane at 60 K; (f) Fourier transform spectrum of (e); (g) time domain spectrum of *ab* plane at 10 K; (h) Fourier transform spectrum of (g).

以得到太赫兹的频谱, 图 3(b) 所示为 0.1—3.5 THz 的宽带辐射. 从时域谱线上可以看到, 在主信号峰之后 2 ps 的位置出现一个小信号峰, 另外在两个峰之间的谱线也不是单调光滑的曲线. 由于这些额外信号的存在, 图 3(b) 中得到的频域谱线不是一条光滑的曲线, 而是具有若干个起伏. 继续降温到相变温度以下的 10 K, 如图 3(c) 所示, 时域信号主峰值有所增强, 而杂项信号反而减弱. 最为明显的是, 在主信号峰之后可以看到一系列周期性振荡信号, 表明出现了孤立频率的电磁波辐射. 振荡的主要频率为 2.7 THz. 根据之前太赫兹时域光谱的报道 [8], $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 中的反铁磁自旋波激发在太赫兹区间有两支, 分别为 1.25 THz 和 2.7 THz, 其中 1.25 THz 的自旋波只有当太赫兹电场偏振方向垂直于 *c* 方向时才能观测到, 而与太赫兹磁场方向无关, 属于电场响应的特殊磁振子, 即电磁振子 (electromagnon). 而 2.7 THz 的自旋波只有当太赫兹磁场偏振方向垂直 *c* 方向时才能观测到, 而与太赫兹电场方向无关, 属于对磁场响应的普通磁振子 (magnon). 2.7 THz 与材料的磁振子能量对应, 表明自旋波受到了相干激发. 相干激发自旋波的方式可能有两种, 首先泵浦光激发的宽带太赫兹辐射包含 2.7 THz 的成分, 这部分太赫兹辐射可以相干激发自旋波 [14]. 另一方面, 飞秒激光直接泵浦自旋

也有多种方式可以激发自旋波, 例如光激发导致的自旋重排以及超快退磁效应等. 图 3(d) 中显示了傅里叶变换得到的频谱, 可以看到在 2.7 THz 处主要表现为吸收导致的低谷, 因此可以认为是自旋吸收了太赫兹导致的自旋波激发.

与 2.7 THz 处的明显吸收谷不同, 1.25 THz 的信号非常微弱. 但是由于 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 存在很强的磁电耦合效应, 电磁振子与电磁波的耦合强度应当强于磁振子与电磁波的耦合, 因此 1.25 THz 处应该观测到更强的振荡. 我们理解这一现象应当与产生的太赫兹波的偏振方向有关. 电磁振子是对电场响应的自旋波激发, 电磁波能有效激发电磁振子的条件是电磁波的电场方向垂直于 *c* 方向 [8]. 而普通磁振子是对磁场响应的自旋波, 它被电磁波激发的条件是, 电磁波的磁场方向垂直于自旋方向. 由此可知, 在 *ac* 面泵浦光激发的太赫兹电场的偏振方向主要沿晶体 *c* 轴方向, 因此电场与自旋方向重合, 而磁场与自旋方向垂直, 因此与电磁振子的耦合极弱, 而与磁振子耦合较强. 对 *ab* 面的太赫兹发射谱测量可以进一步验证这一结论.

图 3(e)—(h) 显示 *ab* 面的太赫兹发射谱测量结果. 在 60 K 测到的太赫兹信号十分微弱, 如图 3(e) 所示, 时域信号的峰值比 *ac* 面小了一个量级. *ab* 面信号微弱的现象与前面的分析一致, 因为在 *ab*

面偏振为 c 方向的太赫兹沿样品表面传播, 而系统只能测量到波矢方向沿 c 方向, 偏振方向在 ab 面内的太赫兹波. ab 面测到的频谱如图 3(f) 所示, 强度和频域范围都远小于 ac 面. 降温到 10 K, 信号强度有所增加, 同时观测到显著的 1.25 THz 周期性振荡信号, 对应 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 中的电磁振子, 如图 3(g) 所示. 图 3(h) 是其对应的傅里叶变换频域谱, 在 1.25 THz 出现很强吸收. 而由于频谱范围较窄, 在 2.7 THz 处已经没有谱重, 因此无法观测到磁振子的太赫兹信号.

为了分析宽带太赫兹的产生机制, 改变泵浦光的功率, 观测不同通量下太赫兹时域谱线的峰值大小, ac 面的时域信号峰值随泵浦光功率的变化如图 4(a) 所示. 太赫兹电场峰值强度与泵浦光通量表现出很好的线性关系, 表明样品在光泵浦下辐射太赫兹的过程属于二阶非线性过程, 我们随后基于二阶过程对太赫兹辐射的产生机理进行分析.

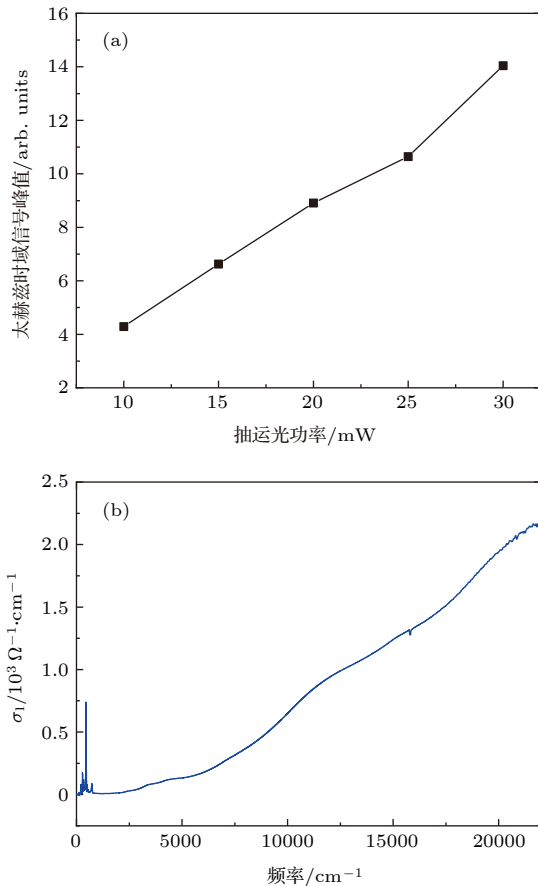


图 4 (a) 太赫兹时域信号峰值随泵浦光功率的变化; (b) 傅里叶变换光谱仪测得的 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的电导率谱

Fig. 4. (a) Fluence dependence of the THz intensity; (b) Optical conductivity of $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ measured by Fourier transform spectrometer.

4 分析与讨论

根据以上实验结果, 可以对 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 辐射太赫兹的机理进行分析. 许多材料在受到飞秒激光照射时能够激发出太赫兹辐射, 其中存在多种机制, 用公式表示为

$$\mathbf{E}_{\text{THz}} \propto \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} + \frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial t}(\nabla \times \mathbf{M}), \quad (1)$$

右边三项对应不同的太赫兹产生机制, 其中 $\mathbf{P}$, $\mathbf{J}$, $\mathbf{M}$ 分别为非线性极化, 光生电流和磁化强度.

非线性极化产生太赫兹电场的一种常见方法是通过二阶非线性光学过程中的光整流效应^[15], 这是一种差频过程, 表示为

$$P_i^{(2)}(\Omega) \propto \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)}(\Omega, \omega + \Omega, -\omega) E_j(\omega + \Omega) E_k^*(\omega), \quad (2)$$

其中 $\chi_{ijk}^{(2)}$ 为二阶极化率张量, ω 为基频光频率, Ω 在差频过程中是两束光的频率差, 在光整流过程中则是同一束光不同成分之间的频率差, 由激光脉宽决定. 当激光脉宽为百飞秒时, 产生的差频信号就在太赫兹范围. 从 (2) 式中可以看到, 二阶电极化信号的强度正比于二阶极化率张量, 而二阶极化率张量需要遵守样品结构的对称性. $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的晶格对称群为 $P6_3mc$, 相应的二阶极化率张量非零分量为: $\chi_{ccc}^{(2)}$, $\chi_{caa}^{(2)} = \chi_{aca}^{(2)}$, 其中 $\chi_{caa}^{(2)}$ 和 $\chi_{aca}^{(2)}$ 具有相同的值. 而在我们的测量中, 无论泵浦光的偏振方向沿哪个方向, 产生太赫兹电场的主要分量都沿 c 轴方向, 且观测到相似的太赫兹时域谱线, 因此判断产生太赫兹的机制不是光整流效应. 另外, 光整流效应通常是在较大能隙的绝缘体材料中, 泵浦光能量低于材料能隙. 为确定 800 nm 的光子是否激发电子跨越能隙跃迁, 我们利用傅里叶变换红外光谱仪测量了样品在很宽能量范围的反射率谱, 通过 Kramers-Kronig 变换关系得到光电导率. 如图 4(b) 所示为光电导率实部 σ_1 的频谱, 可以看到 800 nm 的激光光子能量大于 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的能隙, 会产生跨越能隙的电子激发.

在砷化镓等半导体材料中, 脉冲激光的跨能隙激发会产生光生载流子, 如果外加偏压电场驱动这些载流子运动直至弛豫, 这些瞬态变化的光电流也会产生太赫兹辐射 $\mathbf{E}_{\text{THz}} \propto \partial \mathbf{J} / \partial t$, 太赫兹电场的偏振方向与外加电场的方向一致^[16]. 这种光生电

流产生太赫兹辐射的方法, 需要外加电场以驱动光生载流子运动. 但是近年来, 也发现在中心反演对称破缺的材料中, 不需要外加电场也能够产生光电流, 例如移位电流 (shift current)^[17]. 目前 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 并没有关于光电流的实验报道, 要验证是否有来自于光电流贡献的太赫兹辐射, 需要在光泵浦下直接测量电流, 以及进行外置偏压依赖的实验测量. 更为可能的起源是来自于电子受激跃迁对材料中固有的自发电极化强度的超快调控^[18–20]. 在非中心反演对称的极性材料中, 由于正负离子在空间上的分离, 导致形成一个个电偶极矩 $\boldsymbol{p}$, 并累积成宏观的自发电极化 $\boldsymbol{P}_s = n\boldsymbol{p}$ (n 为单位体积内电偶极矩数目). 在受到脉冲激光激发时, 一部分电子被从价带激发到导带, 这部分电子不再贡献电偶极矩, 由此导致电极化强度的瞬间下降 $\boldsymbol{P}_s = (n - m)\boldsymbol{p}$. 类似于铁磁体中的自旋重排效应, 这一过程为非热过程, 具有超快的时间尺度, 从而产生太赫兹电场 $\boldsymbol{E}_{\text{THz}} \propto \partial^2 \boldsymbol{P} / \partial t^2$.

在 T_N 以下, 观测到的周期性振荡信号则是来自于相干激发的自旋波. 前面对电极化矢量调制产生的太赫兹波的电磁场能够相干地激发自旋波, 这些自旋按照一致的相位进动, 并不断向外辐射与自己频率相同的太赫兹波, 即表现为主信号峰之后, 电场强度的周期性振荡信号^[14].

实验中使用的样品为片状单晶, 厚度在 0.5 mm 以上. 但是根据红外光谱的测量结果, 可以估算出 800 nm 的光在 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 的穿透深度只有 150 nm. 也就是说, 激光只激发了样品的表层, 也只有这一薄层在发射太赫兹, 其余部分反而是在吸收太赫兹, 幸好 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 对于太赫兹具有较好的透射率. 但是要想获得理想的太赫兹发射样品, 还需要寻找方法将样品制作成薄片乃至高质量的薄膜.

5 结 论

由 800 nm 飞秒激光对极性磁体 $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ 进行泵浦, 测量其太赫兹发射谱. 测量到频率范围为 0.1–3.5 THz 的太赫兹脉冲. 激发出的太赫兹强度不明显依赖于泵浦光的偏振方向, 而太赫兹的电场

方向沿样品 c 轴方向. 太赫兹辐射的可能来源为飞秒激光对样品电极化强度的超快调制. 在低温进入磁有序后, 时域谱线上观测到周期性振荡的单频太赫兹信号, 这些信号来自于被相干激发的反铁磁自旋波. 这些实验结果有助于理解多铁性材料的超快动力学性质, 以及寻找用脉冲激光对多铁性材料进行超快控制的方法, 也为寻找新的有效太赫兹源提供参考.

参考文献

- [1] Kawayama I, Zhang C H, Wang H B, Tonouchi M 2013 *Supercond Sci. Tech.* **26** 093002
- [2] Turner G M, Harrel S M, Beard M C 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 3465
- [3] Klatt G, Hilser F, Qiao W, Beck M, Gebis R, Bartels A, Huska K, Lemmer U, Bastian G, Johnston M B, Fischer M, Faist J, Dekorsy T 2010 *Opt. Express* **18** 4939
- [4] Fiebig M, Lottermoser T, Meier D, Trassin M 2016 *Nat. Rev. Mater.* **1** 16046
- [5] Wang Y Z, Pascut G L, Gao B, Tyson T A, Haule K, Kiryukhin V, Cheong S W 2015 *Sci. Rep.-UK* **5** 12268
- [6] Kurumaji T, Ishiwata S, Tokura Y 2015 *Phys. Rev. X* **5** 031034
- [7] Li Y, Gao G, Yao K L 2017 *EPL (Europhysics Letters)* **118** 37001
- [8] Kurumaji T, Takahashi Y, Fujioka J, Masuda R, Shishikura H, Ishiwata S, Tokura Y 2017 *Phys. Rev. B* **95** 020405
- [9] Kurumaji T, Takahashi Y, Fujioka J, Masuda R, Shishikura H, Ishiwata S, Tokura Y 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 077206
- [10] Yu S K, Gao B, Kim J W, Cheong S W, Man M K L, Madéo J, Dani K M, Talbayev D 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 037601
- [11] Shi L Y, Wu D, Wang Z X, Lin T, Hu C M, Wang N L 2020 *arXiv* 2004.05823
- [12] Strobel P, Page Y L 1983 *J. Cryst. Growth* **61** 329
- [13] Strobel P, Page Y L, McAlister S P 1982 *J. Solid State Chem.* **42** 242
- [14] Zhou R Z, Jin Z M, Li G F, Ma G H, Cheng Z X, Wang X L 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 061102
- [15] Xu L, Zhang X C, Auston D H 1992 *Appl. Phys. Lett.* **61** 1784
- [16] Liu T A, Tani M, Nakajima M, Hangyo M, Sakai K, Nakashima S I, Pan C L 2004 *Opt. Express* **12** 2954
- [17] Sotome M, Nakamura M, Fujioka J, Ogino M, Kaneko Y, Morimoto T, Zhang Y, Kawasaki M, Nagaosa N, Tokura Y, Ogawa N 2019 *P. Natl. Acad. Sci. USA* **116** 1929
- [18] Takahashi K, Kida N, Tonouchi M 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 117402
- [19] Takahashi K, Tonouchi M 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 052908
- [20] Rana D S, Kawayama I, Mavani K, Takahashi K, Murakami H, Tonouchi M 2009 *Adv. Mater.* **21** 2881

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

**Terahertz emission spectrum of polar
antiferromagnet $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$ ^{*}**

Shi Li-Yu Wu Dong Wang Zi-Xiao Lin Tong Zhang Si-Jie
Liu Qiao-Mei Hu Tian-Chen Dong Tao Wang Nan-Lin[†]

(*International Center for Quantum Materials, School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China*)

(Received 12 June 2020; revised manuscript received 3 July 2020)

Abstract

In polar materials, the transition of electrons in momentum space will change the spontaneous polarization. When excited by femtosecond pulse laser, the transient modulation of the electric polarization will radiate electromagnetic wave at terahertz frequency. In a magnetic ordered system, the coherent excited spin wave radiates electromagnetic waves of the same frequency in the process of precession and relaxation. The investigation of the terahertz emission spectra of these materials not only helps us to understand the ferroelectric and magnetic ordered dynamic processes of materials, but also provides a reference for searching for new terahertz sources. We study the terahertz emission spectrum of the polar antiferromagnet $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$. Under the pumping of 800 nm laser, electrons in the material are excited across the band gap leading the electric polarization to be ultra-fast modulated. The broadband terahertz excitation spectrum from 0.1 to 3.5 THz is observed, and the direction of the terahertz electric field is along the inherent electric polarization direction of the material. After entering into the magnetic order state, two new single-frequency terahertz oscillations are observed, located at 1.25 THz and 2.7 THz respectively, which correspond to the excitation of the two antiferromagnetic spin waves of $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$.

Keywords: $\text{Fe}_2\text{Mo}_3\text{O}_8$, polar antiferromagnet, THz emission spectrum

PACS: 42.65.Re, 77.84.-s, 75.78.Jp

DOI: [10.7498/aps.69.20201545](https://doi.org/10.7498/aps.69.20201545)

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11888101) and the National Key Research and Development Program of China (Grant Nos. 2017YFA0302904, 2016YFA0300902).

[†] Corresponding author. E-mail: nlwang@pku.edu.cn



准二维范德瓦耳斯磁性半导体 CrSiTe_3 的THz光谱

索鹏 夏威 张文杰 朱晓青 国家嘉 傅吉波 林贤 郭艳峰 马国宏

Quasi-two-dimensional van der Waals semiconducting magnet CrSiTe_3 studied by using THz spectroscopy

Suo Peng Xia Wei Zhang Wen-Jie Zhu Xiao-Qing Guo Jia-Jia Fu Ji-Bo Lin Xian Guo Yan-Feng
Ma Guo-Hong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 207302 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200682

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200682>

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

飞秒激光引导高压放电下的 SF_6 等离子体时间分辨光谱特性

Time-resolved spectral characteristics of SF_6 plasma under femtosecond laser-guided high-voltage discharge

物理学报. 2020, 69(18): 185201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200636>

电场对graphene/InSe范德瓦耳斯异质结肖特基势垒的调控

Tuning Schottky barrier in graphene/InSe van der Waals heterostructures by electric field

物理学报. 2020, 69(15): 157302 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191987>

表面预处理对石墨烯上范德瓦耳斯外延生长GaN材料的影响

Effect of surface pretreatment on GaN van der Waals epitaxy growth on graphene

物理学报. 2017, 66(24): 248101 <https://doi.org/10.7498/aps.66.248101>

2-甲基吡嗪分子激发态系间交叉过程的飞秒时间分辨光电子影像研究

Intersystem crossing of 2-Methylpyrazine studied by femtosecond photoelectron imaging

物理学报. 2020, 69(10): 103301 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200092>

全反式-胡萝卜素太赫兹光谱的实验及理论研究

Experimental and theoretical study on terahertz spectra of all-trans-carotene

物理学报. 2017, 66(3): 037801 <https://doi.org/10.7498/aps.66.037801>

有机电光晶体4-(4-二甲基氨基苯乙烯基)甲基吡啶对甲基苯磺酸盐的太赫兹光谱研究

Terahertz spectrum study of organic electro-optic crystal 4-N, N-dimethylamino-4'-N'-methyl-stilbazolium tosylate

物理学报. 2017, 66(24): 244211 <https://doi.org/10.7498/aps.66.244211>

专题：太赫兹自旋光电子

准二维范德瓦耳斯磁性半导体 CrSiTe_3 的 THz 光谱

索鹏¹⁾ 夏威²⁾ 张文杰¹⁾ 朱晓青¹⁾ 国家嘉¹⁾
傅吉波¹⁾ 林贤¹⁾ 郭艳峰²⁾³⁾ 马国宏^{1)3)†}

¹⁾ (上海大学物理系, 上海 200444)

²⁾ (上海科技大学物质科学与技术学院, 上海 201210)

³⁾ (上海科技大学-上海光机所超强超快联合实验室, 上海 201210)

(2020 年 5 月 8 日收到; 2020 年 5 月 25 日收到修改稿)

准二维范德瓦耳斯磁性材料 CrSiTe_3 同时具有本征磁性与半导体能带结构, 在光电子学和纳米自旋电子学领域中具有广泛的应用, 近年来吸引了广大科研工作者的兴趣. 利用超快太赫兹光谱技术, 本文对准二维范德瓦耳斯铁磁半导体 CrSiTe_3 进行了系统的研究, 包括太赫兹时域光谱, 光抽运-太赫兹探测光谱及太赫兹发射光谱. 实验结果表明, 样品的太赫兹电导率随温度的变化表现得十分稳定, 且样品 ab 面对太赫兹波的响应呈现为各向同性; 800 nm 光抽运后的光生载流子表现为一种双指数形式的弛豫变化, 复光电导率可以用 Drude-Smith 模型很好地拟合, 光载流子的弛豫过程由电子-空穴对的复合所主导; 飞秒脉冲入射到样品表面后可以产生太赫兹辐射, 且具有 0—2 THz 的带宽. 本文给出了 CrSiTe_3 在光学及太赫兹波段的光谱, 为在电子及光电子器件方面的设计和优化提供了借鉴与参考.

关键词: 范德瓦耳斯铁磁半导体, 太赫兹光谱, 时间分辨光谱

PACS: 73.90.+f, 33.20.Ea, 78.47.+p

DOI: 10.7498/aps.69.20200682

1 引言

自石墨烯发现以来, 二维材料由于其材料科学及光电子学等领域的巨大应用价值一直是学术界的研究热点^[1–3]. 根据各向同性海森伯模型, 在二维材料体系中由于热涨落抑制了自发对称性破缺, 因此不能实现长程磁有序^[4,5]. 然而, 近年来, 科研人员发现具有二维层状结构的磁性材料 (如 CrSiTe_3 , Fe_3GeTe_2 , CrI_3 等) 低温下其剥离到单层或少数层情况下依然保持着长程磁有序, 从而引发了人们极大的关注^[6–9]. 2017 年, Huang 等^[7] 利用磁光克尔效应显微镜证明了单层的 CrI_3 是一种具

有面外自旋取向的伊辛铁磁体, 表明铁磁性能够持续到单层极限. 2018 年, Zhang 等^[10] 在原子层厚度的 Fe_3GeTe_2 中发现了二维巡游铁磁性, 更重要的是, 他们通过锂离子插层调控, 在 Fe_3GeTe_2 薄层中获得了室温以上的铁磁有序温度, 为未来研发室温可用的磁电子学器件提供了可能. 2019 年, Gao 等^[11] 运用自旋极化扫描隧道显微镜技术, 探索并阐明了双层二维磁性 CrBr_3 的层间堆叠和磁耦合间的关联, 为二维自旋器件的研制提供了思路. 二维磁性半导体为理解二维磁体的基态、激发态和磁动力学提供了理想的研究模型^[6], 也为对二维磁性的控制及对单原子层的磁阻、磁光和磁电器件的设计提供了机遇, 展现了巨大的应用前景.

† 通信作者. E-mail: ghma@staff.shu.edu.cn

作为一种准二维范德瓦耳斯磁性半导体材料, CrSiTe₃(CST) 可以被剥离至少数层甚至单层, 且同时保留着本征磁性与半导体带结构^[12–15], 是光电子学和纳米自旋技术应用的理想材料, 近年来引发了人们极大的兴趣. CST 由 $R\bar{3}$ 空间群和 C_{3i} 点群所描述, 在常温下为顺磁, 而在居里温度约 33 K 时发生铁磁相变^[14,16]. 2014 年, Li 等^[12] 通过第一性原理计算发现, 当块体 CST 厚度降低至单层时, 其铁磁性和半导体性可以共存, 更有意思的是, 单层的居里温度比块体更高. 2015 年, Casto 等^[14] 结合光学测量和第一性原理电子结构计算表明, CST 是一种间接带隙半导体, 其间接带隙和直接带隙分别为 0.4 eV 和 1.2 eV; 热导率测量显示了很强的磁子-声子散射效应. 2016 年, Lin 等^[13] 实现了在 Si/SiO₂ 衬底上将块体 CST 剥离至单层和少数层, 为二维 CST 磁体的存在提供了直接证据. 而最近, Zhang 等^[17] 结合多体相互作用的理论计算及角分辨的光电发射光谱 (ARPES), 探究了 CST 中的强电子关联以及铁磁超交换机理. 目前, 研究人员把大量的兴趣和注意力放在了 CST 的磁性方面, 而在光学甚至是 THz 波段的研究却鲜有报道.

THz 波是频率位于 0.1—10.0 THz 的电磁波, 由于其在成像、通信及医学等领域的巨大应用价值已成为近年来科研领域的研究热点. THz 光子能量覆盖了激子结合能、半导体量子点带内跃迁和声子共振等能量范围, 及对载流子极其敏感的特性, 结合 THz 脉冲具有亚皮秒的时间分辨特征, THz 光谱技术, 如 THz 时域光谱, 光抽运-THz 探测光谱和 THz 发射光谱, 在表征材料基本参数, 提取频率分辨的复电导率和介电响应, 以及探究材料的载流子动力学、反铁磁共振及瞬态光电流等方面已成为一种强有力的工具^[18–21]. 用 THz 光谱对二维半导体材料的研究已经屡见不鲜, 如少层 WS₂ 中电子-空穴对的复合^[22], 单层 MoS₂ 中带电激子的形成^[23] 等, 但对二维磁性半导体的研究未见报道.

本文以时间分辨的 THz 光谱为手段, 系统研究了准二维磁性半导体材料 CST 的 THz 时域光谱及光载流子动力学特性. 结果表明, 透射的 THz 波对温度几乎没有依赖性; 光激发后的载流子动力学表现为双指数弛豫过程, 几个皮秒的快过程和十几皮秒的慢过程, 当温度高于 100 K 时, 载流子弛豫寿命均随温度的增加而显著增加; 光激发 CST 后可以产生 THz 辐射, 提供了一种新型 THz 发射

器候选者. 对 CST 的超快 THz 光谱研究将为超快、超紧凑的光电子器件的设计与调控提供重要的实验依据和参考.

2 实验

实验中用到的 c 切的 CST 单晶样品是通过自助熔剂法制备的. 首先将高纯度的 Cr, Si 及 Te 粉末原料按 1:2:6 的摩尔比完全混合, 放入氧化铝坩埚中. 然后将坩埚密封在真空的石英管中, 在 15 h 内加热至 1150 °C. 在这个温度下保持 20 h, 然后以 1.5 °C/h 的速度冷却到 800 °C. 在此温度下维持 5 h, 期间将多余的 Si 和 Te 用离心机中去除, 最终生长出尺寸约 8 mm 的表面有光泽的黑色 CST 晶体.

实验中采用如图 1(c) 所示的系统对样品进行 THz 波段的光谱研究. 所用的光源是钛蓝宝石激光放大系统, 其输出激光中心波长为 800 nm, 脉冲宽度为 120 fs, 重复频率为 1 kHz. 激光被分成三束: 一束是超快抽运光, 用来激发样品; 一束是 THz 产生光, 入射到 1 mm 厚、(110) 取向的 ZnTe 产生 THz 脉冲; 最后一束为取样光, 通过电光取样的方法获得 THz 波前信号. 实验中, 入射到样品上的 THz 波光斑直径约为 2 mm, 而样品表面用于超快抽运的激发光光斑直径约为 6.5 mm, 较大的激发光光斑以确保 THz 探测到的是均匀的光激发区域. 为了避免水蒸汽的影响, 所有的测量均是在干燥的氮气氛围中进行的. 进行变温实验时, 样品被放置在低温恒温器中, 可实现温度从 5—300 K 的连续调节. 在进行 THz-TDS 实验时, 将抽运光路挡住; 当进行 THz 发射实验时, 挡住抽运光束, 将 CST 样品替代发射 ZnTe.

为了解 CST 电子结构性质, 我们采用基于密度泛函理论 (DFT) 第一性原理的 Vienna *ab initio* simulation package (VASP)^[24] 计算 CST 能带结构. 采用投影缀加平面波 (projector-augmented-wave, PAW) 赝势来描述电子-离子之间的相互作用, 并使用基于 Perdew-Burke-Ernzerhof (PBE) 参数的广义梯度近似方法 (generalized-gradient-approximation, GGA)^[25] 来处理交换关联相互作用. 同时用 $4 \times 4 \times 1$ 的 Monkhorst-Pack 网格对布里渊区进行 k 点抽样. 在计算过程中截断能设为 450 eV, 所有的晶格常数和原子位置都被弛豫, 能量和力收敛精度分别为 10^{-6} eV 和 0.01 eV/Å.

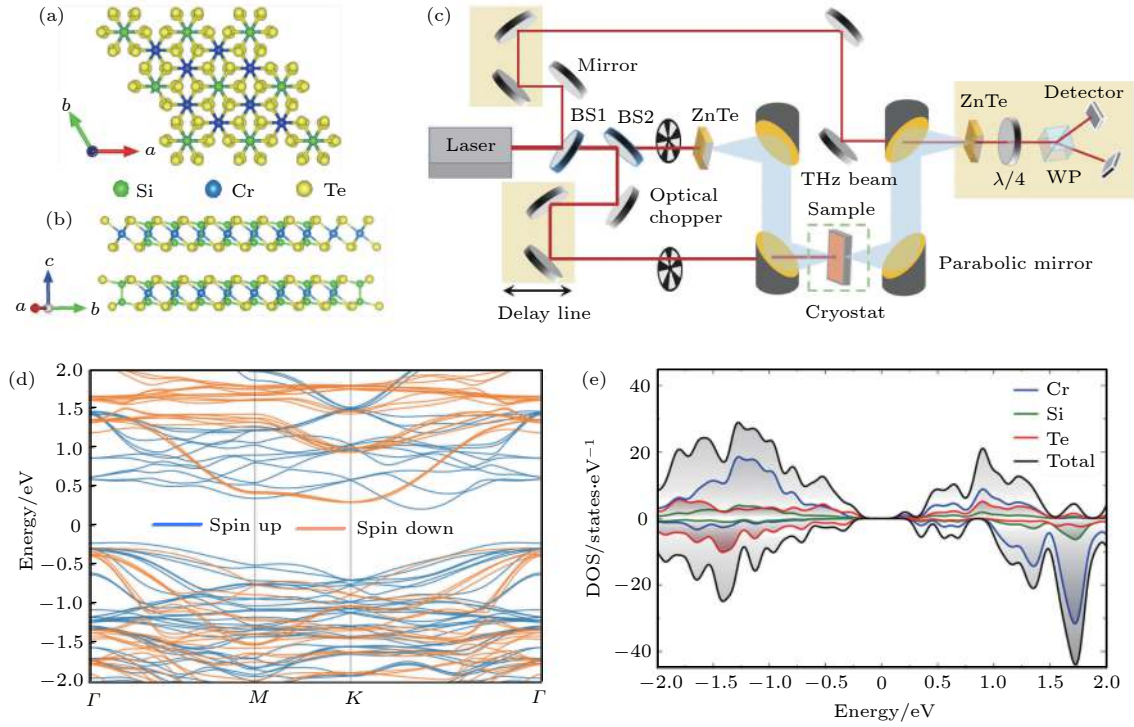


图1 CST原子结构的 (a) 俯视图和 (b) 侧视图; (c) 时间分辨的超快光抽运-THz 探测实验光路示意图; (d) 基于第一性原理计算的 CST 的能带图及 (e) 对应的态密度

Fig. 1. Schematic illustration of the crystal structure of CST seen from (a) the top view and (b) the side view; (c) experimental setup for time-resolved ultrafast optical pump-THz probe spectroscopy; (d) the calculated band structure and (e) density of states of CST single crystal by means of the first-principle with the Vienna *ab Initio* Simulation Package.

3 结果与讨论

如图 1(a),(b) 所示分别为 CST 原子结构的俯视图和侧视图. 每个单胞由 3 层以 ABC 顺序堆叠的 CST 原子层构成, 层间距为 3.3 Å. 每个 Cr 原子位于由 6 个 Te 原子组成的稍微扭曲的八面体的中心^[13,14], 计算得到的晶格参数分别为 $a = b = 6.837$ Å, $c = 20.599$ Å. 如图 1(c) 与 1(d) 所示分别为通过第一性原理计算得到的能带图和态密度图, 计算结果显示, 价带顶位于 Γ 点, 导带底位于 Γ 点和 K 点之间, 其直接带隙 1.2 eV, 间接带隙 0.43 eV, 这与 Casto 等^[14] 实验和计算的结果十分接近.

THz-TDS 可以对材料频率分辨的性质进行表征. 由于 THz 波与材料的相互作用, 透射后的 THz 波的振幅和相位会发生变化, 再结合参考信号便可以获得样品的光学参数如复折射率、复电导率和复介电常数等.

图 2(a) 所示为测得的透过样品后的 THz 时域信号与没有放置样品时的参考信号, 根据这两个信

号结合样品厚度便可得到样品在 THz 波段的折射率. 先将这两条时域谱分别做傅里叶变换, 得到它们的振幅与相位, 然后便可得到在频域上的复透射率:

$$\tilde{T}(\omega) = \frac{E_{\text{sample}}(\omega)}{E_{\text{ref}}(\omega)} = Ae^{i\phi}, \quad (1)$$

式中, A 为样品的透射信号与参考信号在频谱上的振幅之比, ϕ 为相位之差. 实验中样品的厚度 d 为 0.43 mm, 再根据提取光学参数的物理模型^[26,27] 便可得到样品在 THz 波段的折射率:

$$n(\omega) = \phi(\omega) \cdot \frac{c}{\omega d} + 1, \quad (2)$$

其中, c 为真空中的光速. 如图 2(b) 所示为求得的 CST 在 THz 波段的折射率, 可看到 0.2—1.6 THz 内其平均折射率约为 3.17.

由于 THz 电场对自由载流子有着敏感响应, 透射 THz 波振幅的衰减主要与自由载流子的吸收有关, 因此透射的 THz 信号可以直观地反映样品的电导率信息. 如果对提取的复电导率进行如 Drude 或 Drude-Smith 模型等的拟合和分析还可以获取样品自由载流子浓度、迁移率以及载流子的局域

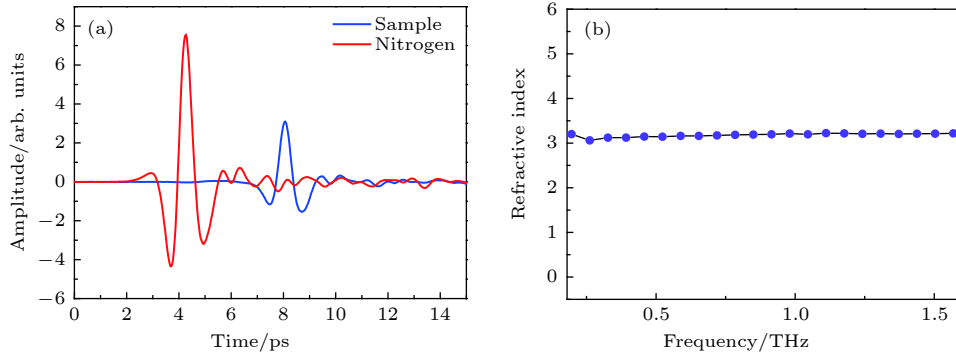


图 2 (a) 透过 CST 样品后的 THz 时域信号 (蓝色) 与没有样品时的参考信号 (红色); (b) 计算的 CST 在 THz 波段的折射率
Fig. 2. (a) The THz-TDS signal through the sample (blue) and the reference signal (red) without placing sample; (b) the calculated refractive index of CST in THz frequency range.

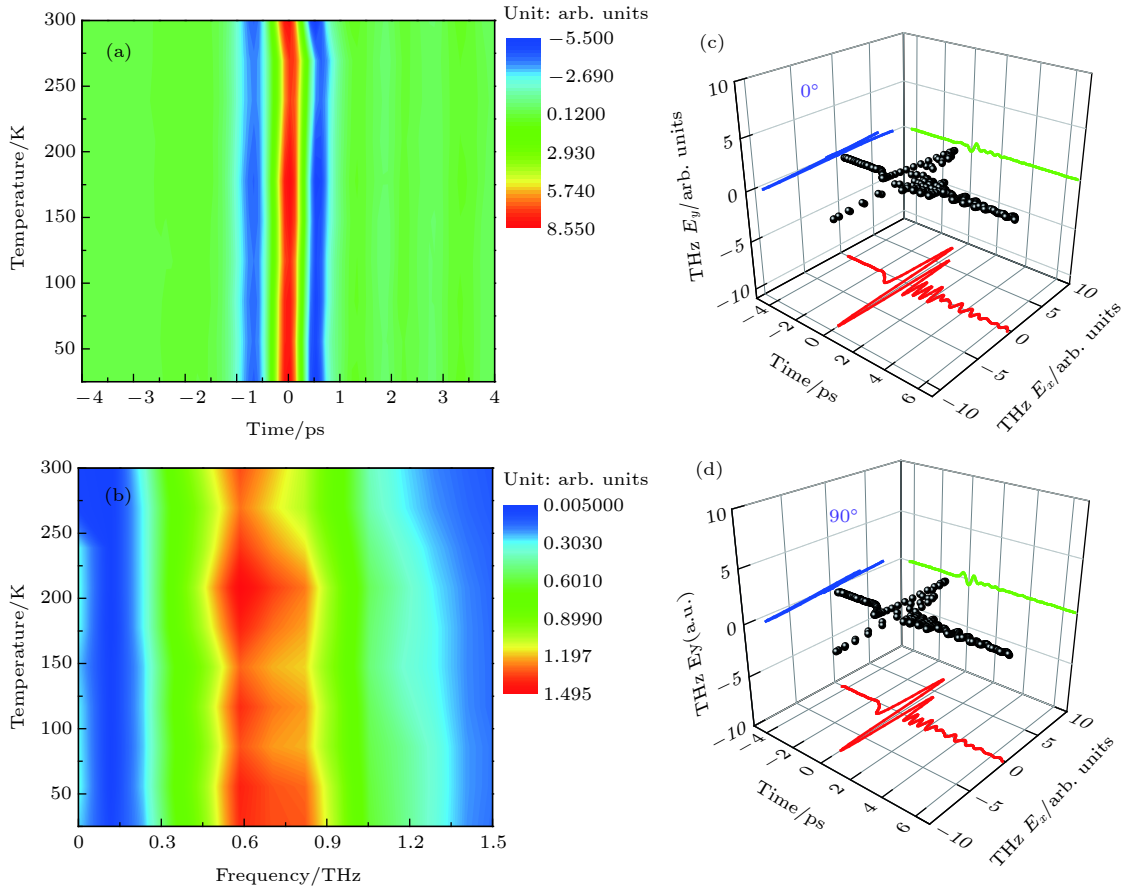


图 3 (a) CST 温度依赖的 THz-TDS 及 (b) 经过傅里叶变换后的频谱; 室温下 CST 晶体方位角 0° (c) 和 90° (d) 下的 3D 透射光谱
Fig. 3. (a) Temperature dependent THz transmission in time domain and (b) in frequency domain via Fourier transformation; 3D plot of THz transmission of CST crystal at the azimuthal angle 0° (c) and 90° (d) at room temperature.

程度等信息. 为了观测温度对 THz 透射信号的影响, 进而探究温度对样品电导率的影响, 我们进行了变温的 THz-TDS 实验.

图 3(a) 是 CST 温度依赖的 THz 时域谱, 图 3(b) 则是与之对应的经过傅里叶变换的频谱, 不同的颜色表示振幅的强度. 在实验仪器的灵敏度范围内, 从图 3(a) 可以看到, 透射 THz 信号的振幅几乎不

随温度变化, 图 3(b) 中频谱随温度也没有显著的变化, 稍微有随温度的升高而变窄的趋势, 这可能是由于随着温度的升高, 热激发导致导带中的电子增多, 从而对 THz 波吸收略有增强所致, 但总体上反映出电导率随温度变化的稳定性.

为研究 CST 的 (001) 晶面上不同取向对 THz 波的调制, 室温下我们进行了转样品方位角的 THz-

TDS 实验. 以样品的 c 轴为旋转轴、以 30° 为测量间隔将样品转动了 180° , 实验结果显示, 不同方位角下透射的 THz 信号的偏振与振幅几乎没有变化, 这表明样品的 ab 面对透射 THz 波是各向同性的. 图 3(c), (d) 分别展示了样品方位角处于 0° 和 90° 时测得的 THz 空间时域信号.

时间分辨的超快 OPTP 系统可以探测非平衡态下费米面以上的载流子超快动力学以及材料的光电导响应, 利用图 1(e) 中的 OPTP 系统我们对 CST 光激发后的载流子动力学进行了研究. 图 4 为 CST 样品时间分辨的光激发载流子的超快动力学演化.

图 4(a) 为温度 5 K 时、不同抽运功率下归一化了的 THz 透射响应 $\Delta T/T_0 = (T - T_0)/T_0$, 这里的 T 表示光激发后透射的 THz 峰值信号, 而 T_0 表示没有激发时的 THz 参考信号. 可以看到光激

发后样品先是表现出对 THz 吸收的突然增强, 然后逐渐弛豫回到平衡态. 插图所示为抽运-探测延迟时间为 0 时刻的调制深度, 可看出, 随着抽运功率的增大调制深度线性增大. 根据文献 [14] 的吸收光谱可以计算样品在 800 nm 处的趋肤深度约为 67 nm. 应该指出的是 THz 透射变化与光电导响应成反比关系 [28]: $\Delta T/T_0 \propto -\Delta\sigma$, 这里 $\Delta\sigma$ 指的是 THz 光电导率. 根据公式 $\sigma = Ne\mu$, 其中 e 为电子电荷, N 与 μ 分别为载流子的浓度和迁移率, 可以得知材料的电导率由载流子的浓度和迁移率决定. 忽略光激发产生的热效应, 抽运光激发后, 光电导率的突然增加来源于载流子浓度的增加, 光激发使电子从价带跃迁到导带, 而空穴留在价带. 抽运功率越大, 光生载流子数量越多, 电导率的变化越大, 调制深度越大, 这与图 4(a) 插图中的实验结果是一致的.

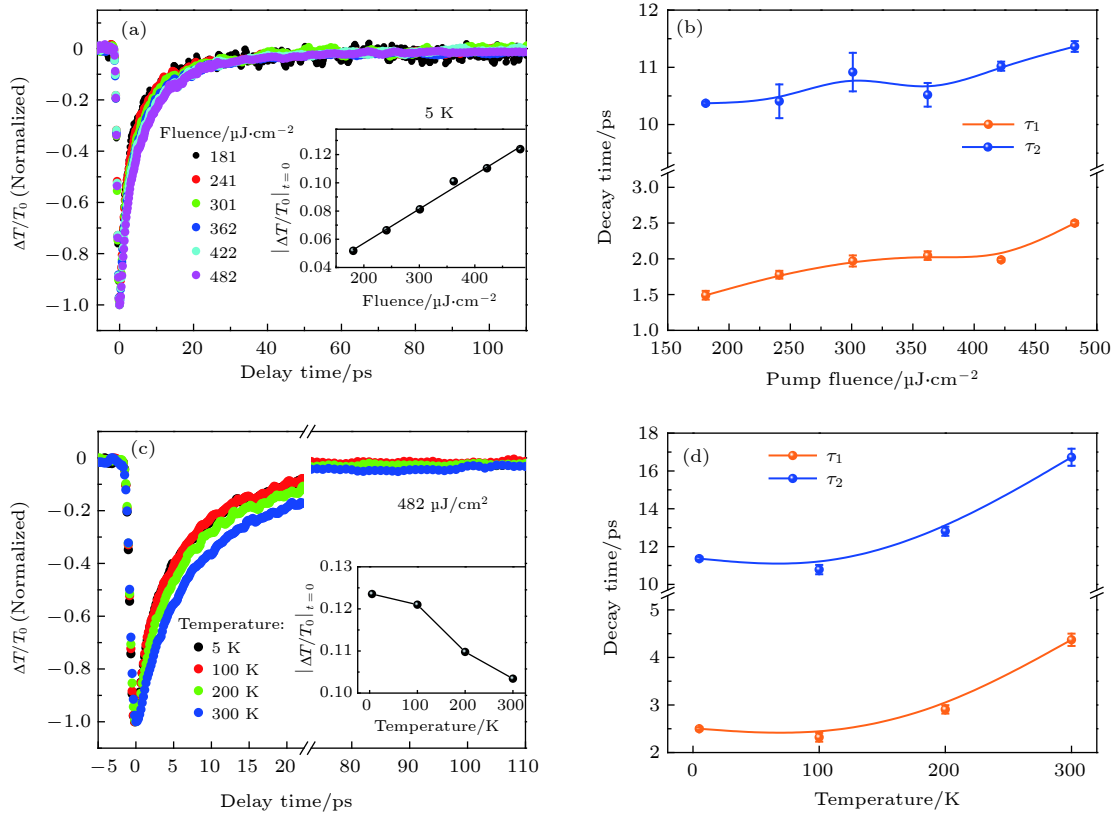


图 4 (a) 温度 5 K、不同抽运功率下的瞬态动力学演化 $\Delta T/T_0$, 插图为抽运-探测零时间延迟时抽运功率依赖的调制深度, 实线是线性拟合的结果; (b) 通过双指数函数拟合得到的不同抽运功率下的弛豫时间常数; (c) 抽运功率 $482 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 、不同温度下的 THz 透射响应, 插图为抽运-探测零时间延迟时温度依赖的调制深度; (d) 通过双指数函数拟合得到的不同温度下的弛豫时间常数

Fig. 4. (a) The transient dynamics evolution $\Delta T/T_0$ under various pump fluence at 5 K, inset gives the fluence dependent modulation depth at the delay time of zero, and the solid line is linear fitting; (b) the decay time constants obtained from biexponential function fitting with respect to pump fluence; (c) the THz transmission response at different temperature under pump fluence of $482 \mu\text{J}/\text{cm}^2$, inset gives the temperature dependent modulation depth at the delay time of zero; (d) the decay time constants obtained from biexponential function fitting at different temperature, the solid lines are guide to the eyes.

为了对光载流子的弛豫时间进行定量分析,我们用双指数衰减函数对其动力学过程进行了拟合,表达式为

$$\Delta T/T_0 = A \cdot e^{-t/\tau_1} + B \cdot e^{-t/\tau_2} + C, \quad (3)$$

式中, t 是抽运-探测延迟时间, τ_1 与 τ_2 是弛豫过程的寿命, A , B 和 C 是振幅. 图 4(b) 为拟合得到的弛豫寿命, 可以看到, 快的寿命 τ_1 约为 2 ps, 慢的寿命 τ_2 约为 11 ps, 它们都随着抽运功率的增加轻微增大. 将快的过程归因于电子-声子耦合, 即激发态电子被晶格散射回导带底; 考虑到 CST 是间接带隙半导体, 将慢过程归因于声子或表面缺陷辅助的电子-空穴对的复合. 抽运功率越大, 产生的载流子数目越多, 由非平衡态弛豫回平衡态所需的时间则越长, 这与图 4(b) 中的实验结果是一致的.

为了进一步证实我们的推断, 进行了变温的 OPTP 测量. 图 4(c) 为同一抽运功率 ($482 \mu\text{J}/\text{cm}^2$)、不同温度下的载流子动力学响应. 可以看到温度处于 5 K 和 100 K 时载流子弛豫快慢相当; 有趣的是, 当温度处于 200 K 和 300 K 时, 弛豫过程明显变缓. 插图 4(d) 为不同温度下用双指数函数拟合得到的载流子弛豫寿命, 可以看出从 10 K 到 100 K 弛豫时间轻微减少, 而当温度大于 100 K 时, 随着温度的升高时间常数 τ_1 与 τ_2 都明显增大, 弛豫寿命显著变长. Casto 等^[14] 在 CST 中观测到三个很强的红外声子模 A_u , 1E_u 和 2E_u , 当温度从 10 K 升高到 300 K, A_u 与 1E_u 声子表现出了软化, 而 2E_u 声子随温度升高则先硬化, 当温度高于 100 K 再出现软化. 这与我们的实验结果是一致的, 随着温度的升高声子频率减小, 声子能量减小, 导致电子通过电子-声子相互作用弛豫回导带底所需的时间变长. τ_1 从 10 K 到 100 K 弛豫时间的轻微减少可能与 2E_u 有关; 而 τ_2 也随温度升高而增加, 这可以排除表面缺陷辅助的自由电子-空穴复合这种可能性, 因为缺陷与温度没有依赖关系. 因此变温的 OPTP 实验证实了我们的推断, 即 τ_1 由电子-声子耦合主导, τ_2 来源于声子辅助的电子-空穴复合.

为进一步分析光激发后的载流子弛豫及电导率动态响应, 通过公式^[29]:

$$\Delta\sigma_r = \left(\frac{\cos\phi}{A} - 1 \right) \frac{1 + n_{\text{sub}}}{Z_0}, \quad (4)$$

$$\Delta\sigma_i = -\frac{(1 + n_{\text{sub}}) \sin\phi}{AZ_0}, \quad (5)$$

对室温下的光诱导复面电导率进行了计算. 式中 n_{sub} 为样品在 THz 波段的折射率, $Z_0 = 377 \Omega$ 为自由空间阻抗. 图 5(a) 所示为同一抽运功率 ($603 \mu\text{J}/\text{cm}^2$)、不同延迟时间下的频率分辨的复光电导率, 图 5(b) 所示为同一抽运-探测延迟时间 ($\Delta t = 2 \text{ ps}$)、不同功率下的复光电导率. 可以看出, 电导率的实部总体上随着频率的增加而减小, 虚部随着频率的增加而增加, 且复电导率的实部和虚部都是正的. 根据复电导率的特点, 我们采用 Drude-Smith 模型对复光电导率进行了拟合, 其表达式为

$$\Delta\tilde{\sigma}(\omega) = \frac{\omega_p^2 \varepsilon_0 \tau}{1 - i\tau\omega} \cdot \left(1 + \frac{c}{1 - i\tau\omega} \right), \quad (6)$$

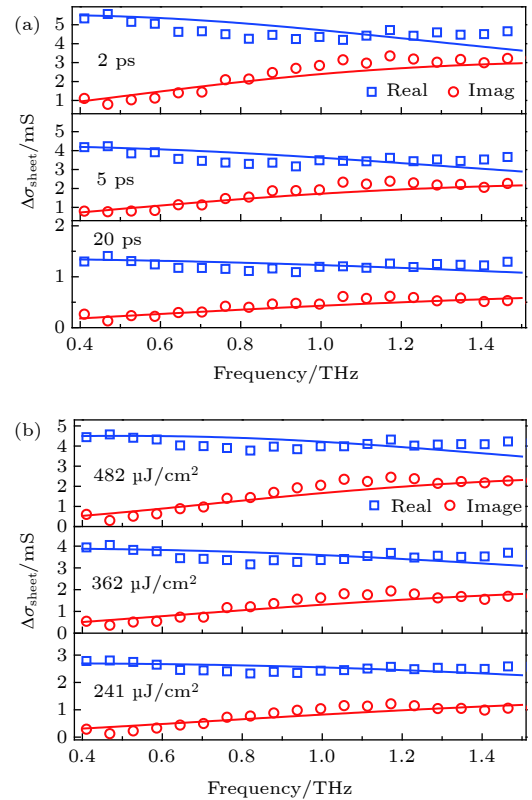


图 5 (a) 抽运功率 $603 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 、不同抽运-探测延迟时间下的频率分辨的复面电导率 (蓝色和红色的空心点), 实线为 Drude-Smith 模型拟合的结果; (b) 抽运-探测延迟时间 2 ps、不同抽运功率下的复面电导率

Fig. 5. (a) The complex frequency-resolved sheet photoconductivity (blue and red circle spots) with a fixed pump fluence of $603 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ measured at various pump-probe time delays. The solid lines are the Drude-Smith model fitting; (b) the complex frequency-resolved sheet photoconductivity with a fixed pump-probe time delay of $\Delta t = 2 \text{ ps}$ measured at various pump fluence.

式中, ϵ_0 为真空介电常数, $\omega_p \propto \sqrt{N}$ 是与载流子浓度 N 有关的等离子体频率, τ 为载流子动量散射时间, c 为背散射常数, 它的取值为 -1 到 0 , 当 c 为 0 时, 则为标准的 Drude 模型, 表示载流子的散射事件完全随机; 而当 c 为 -1 时, 则表示载流子完全的背散射或完全局域. 图 5(a), (b) 中的实线则是拟合的结果, 可以看出与实验数据有着很好的拟合, 拟合参数则如表 1 和表 2 所示.

表 1 抽运功率 $603 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ 、不同抽运-探测延迟时间下, 基于 Drude-Smith 模型拟合的参数

Table 1. The fitting parameters based on the Drude-Smith model at different pump-probe delay time with a excitation fluence of $603 \mu\text{J}/\text{cm}^2$.

Delay time/ps	$\omega_p/10^{10} \text{ Hz}$	τ/fs	c
2	8.62	127	-0.3338
5	7.82	109	-0.2768
20	5.12	76	-0.2294

表 2 抽运-探测延迟时间 $\Delta t = 2 \text{ ps}$ 、不同抽运功率下, 基于 Drude-Smith 模型拟合的参数

Table 2. The fitting parameters based on the Drude-Smith model under different pump fluence at delay time $\Delta t = 2 \text{ ps}$.

Fluence/ $\mu\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$	$\omega_p/10^{10} \text{ Hz}$	τ/fs	c
241	7.30	85	-0.3212
362	8.36	91	-0.3076
482	8.50	114	-0.3929

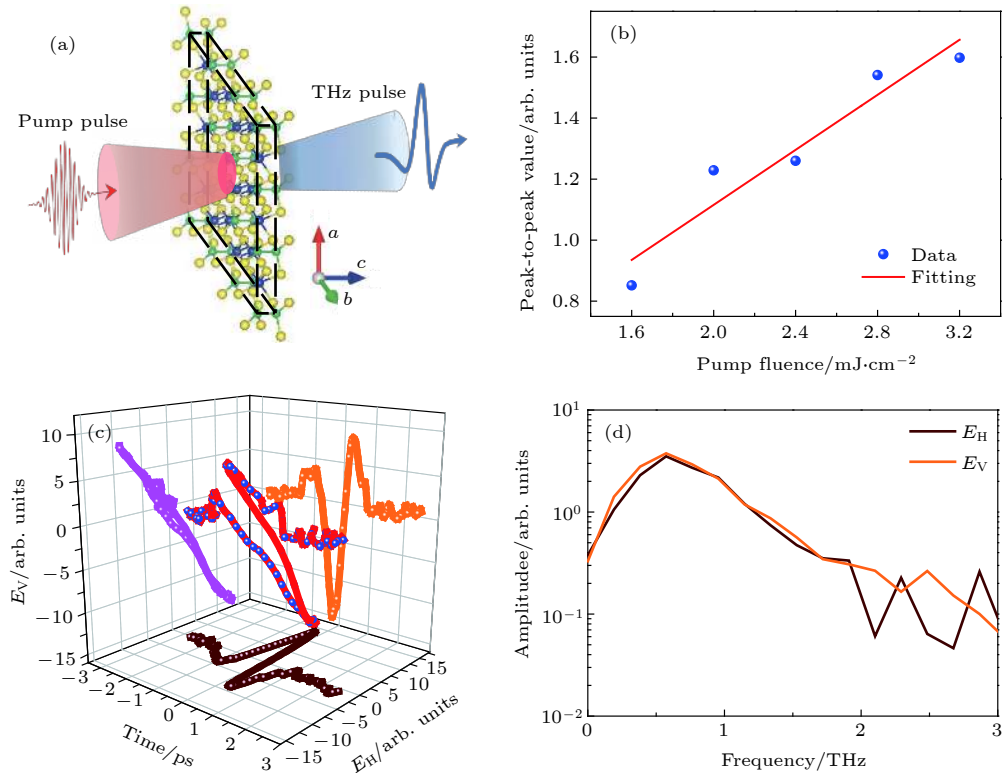


图 6 (a) 透射式 THz 发射光谱示意图, 入射面为样品的 ab 面; (b) 功率依赖的 THz 辐射的峰峰值, 实线为线性拟合的结果; (c) 典型的 THz 辐射的 3D 图像, 紫色的线为 THz 波在时间上的投影, 表明发射的 THz 波为线偏振的; (d) 图 (c) 中水平和竖直面上的 THz 波经傅里叶变换后的频谱

Fig. 6. (a) Illustration for THz emission spectroscopy with transmission configuration, and the fs pulse is incident on ab -plane of the sample; (b) the peak-to-peak value of THz radiation with respect to the pump fluence, and the solid line represents linear fitting; (c) a typical 3D plot of THz radiation. The purple line shows the projection of the THz wave on time, which indicates the radiant THz wave is linearly polarized; (d) the Fourier transformation spectrum of THz waves corresponding to the horizontal and vertical directions in figure (c).

当超快飞秒脉冲辐照到材料上时,产生的 THz 时域发射光谱可以反映材料的线性和非线性光学性质,提供样品的表面耗散场^[30]、光致丹倍场^[31]、光整流^[32]及光伏效应^[33]等信息. 这里,室温下将 800 nm 线偏振光脉冲入射到 *c* 切的 CST 表面上,探测到了强的 THz 辐射信号. 图 5(a) 为透射式 THz 发射示意图,入射面为 *ab* 面. 图 5(b) 为 THz 发射信号的峰-峰值与激发功率的依赖关系,可以看到发射信号的大小随激发功率的增大而线性增大. 为了观测发射的 THz 信号的空间偏振,与水平方向成 $\pm 45^\circ$ 的线栅偏振片放置于实验光路中. 图 5(c) 是典型的时域波形,可以看出发射的 THz 信号是线偏振的. 而图 5(d) 则是与之对应的水平和垂直方向的经过傅里叶变换后的频谱,可以看到 THz 辐射具有 0—2 THz 较宽的带宽,中心频率在 0.6 THz 左右. 由于 CST 具有中心对称结构,800 nm 的激发光的光子能量远高于其直接和间接带隙,THz 发射机制来源于表面数个原子层的瞬态光电流效应. 由于我们采用的是正入射透射式 THz 发射光谱,可以容易排除光致丹倍效应 (photo-Dember effect) 诱导的扩散光电流 (diffusion current) 和表面耗尽场 (surface depletion field) 产生的漂移电流 (drift current) 对 THz 辐射的贡献. 从图 4 还可以看到,光激发后其表面载流子的最快弛豫时间为数 ps,不可能辐射中心频率为 0.6 THz 的 THz 波,可以排除激发态载流子弛豫对 THz 辐射的贡献. 基于所产生的 THz 辐射峰值强度与激光光强间的线性关系 (图 6(b)), THz 辐射应与二阶非线性光电导相关,具体的模型分析表明该宽带强 THz 辐射来自表面位移光电流 (shift current) 的贡献^[34].

4 结 论

本文利用 THz 光谱,包括 THz 时域光谱、激发态载流子超快动力学光谱及 THz 发射光谱,对准二维铁磁半导体 CST 进行了系统研究. 实验结果表明, CST 在 THz 波段的折射率约为 3.17,透射的 THz 波几乎对样品温度和 *ab* 面内的方位角没有依赖性;光抽运后的载流子具有两个特征寿命,复光电导率色散关系可以很好地用 Drude-Smith 模型描述;光激发后基于非线性光电流效应产生宽频强 THz 辐射. 本文所展示的 CST 的超快 THz 光谱信息,为该材料在未来电子、光子及自旋

等器件的应用提供了重要参考信息.

参考文献

- [1] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Zhang Y, Dubonos S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 *Science* **306** 666
- [2] Bhimanapati G R, Lin Z, Meunier V, Jung Y, Cha J, Das S, Xiao D, Son Y, Strano M S, Cooper V R, Liang L, Louie S G, Ringe E, Zhou W, Kim S S, Naik R R, Sumpter B G, Terrones H, Xia F, Wang Y, Zhu J, Akinwande D, Alem N, Schuller J A, Schaak R E, Terrones M, Robinson J A 2015 *ACS Nano* **9** 11509
- [3] Fiori G, Bonaccorso F, Iannaccone G, Palacios T, Neumaier D, Seabaugh A, Banerjee S K, Colombo L 2014 *Nat. Nanotech.* **9** 768
- [4] Mermin N D, Wagner H 1966 *Phys. Rev. Lett.* **17** 1133
- [5] Liu B, Zou Y, Zhang L, Zhou S, Wang Z, Wang W, Qu Z, Zhang Y 2016 *Sci. Rep.* **6** 33873
- [6] Gong C, Zhang X 2019 *Science* **363** 706
- [7] Huang B, Clark G, Navarro-Moratalla E, Klein D R, Cheng R, Seyler K L, Zhong D, Schmidgall E, McGuire M A, Cobden D H, Yao W, Xiao D, Jarillo-Herrero P, Xu X 2017 *Nature* **546** 270
- [8] Li H, Ruan S, Zeng Y J 2019 *Adv. Mater.* **31** e1900065
- [9] Thiel L, Wang Z, Tschudin M A, Rohner D, Gutiérrez-Lezama I, Ubrig N, Gibertini M, Giannini E, Morpurgo A F, Maletinsky P 2019 *Science* **364** 973
- [10] Deng Y, Yu Y, Song Y, Zhang J, Wang N Z, Sun Z, Yi Y, Wu Y Z, Wu S, Zhu J, Wang J, Chen X H, Zhang Y 2018 *Nature* **563** 94
- [11] Chen W, Sun Z, Wang Z, Gu L, Xu X, Wu S, Gao C 2019 *Science* **366** 983
- [12] Li X, Yang J 2014 *J. Mater. Chem. C* **2** 7071
- [13] Lin M-W, Zhuang H L, Yan J, Ward T Z, Puzos A A, Rouleau C M, Gai Z, Liang L, Meunier V, Sumpter B G, Ganesh P, Kent P R C, Geoegehan D B, Mandrus D G, Xiao K 2016 *J. Mater. Chem. C* **4** 315
- [14] Casto L D, Clune A. J, Yokosuk M O, Musfeldt J L, Williams T J, Zhuang H L, Lin M-W, Xiao K, Hennig R G, Sales B C, Yan J-Q, Mandrus D 2015 *APL Mater.* **3** 041515
- [15] Xie Q, Liu Y, Wu M, Lu H, Wang W, He L, Wu X 2019 *Mater. Lett.* **246** 60
- [16] Milosavljević A, Šolajić A, Pešić J, Liu Y, Petrović C, Lazarević N, Popović Z V 2018 *Phys. Rev. B* **98** 104306
- [17] Zhang J, Cai X, Xia W, Liang A, Huang J, Wang C, Yang L, Yuan H, Chen Y, Zhang S, Guo Y, Liu Z, Li G 2019 *Phys. Rev. Lett.* **123** 047203
- [18] Han P, Wang X, Zhang Y 2019 *Adv. Opt. Mater.* **8** 1900533
- [19] Guo J, Cheng L, Ren Z, Zhang W, Lin X, Jin Z, Cao S, Sheng Z, Ma G 2020 *J. Phys. Condens. Matter* **32** 185401
- [20] Huang Y, Yao Z, He C, Zhu L, Zhang L, Bai J, Xu X 2019 *J. Phys. Condens. Matter* **31** 153001
- [21] Gao Y, Kaushik S, Philip E J, Li Z, Qin Y, Liu Y P, Zhang W L, Su Y L, Chen X, Weng H, Kharzeev D E, Liu M K, Qi J 2020 *Nat. Commun.* **11** 720
- [22] Xing X, Zhao L, Zhang Z, Liu X, Zhang K, Yu Y, Lin X, Chen H Y, Chen J Q, Jin Z, Xu J, Ma Guo 2017 *J. Phys. Chem. C* **121** 20451
- [23] Lui C H, Frenzel A J, Pilon D V, Lee Y-H, Ling X, Akselrod G M, Kong J, Gedik N 2014 *Phys. Rev. Lett.* **113** 166801
- [24] Kresse G, Hafner J 1993 *Phys. Rev. B* **47** 558

- [25] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M 1996 *Phys. Rev. Lett.* **77** 3865
- [26] Guo H C, Liu W M, Tang S H 2007 *J. Appl. Phys.* **102** 033105
- [27] Dorney T D, Baraniuk R G, Mittleman D M 2001 *J. Opt. Soc. Am. A* **18** 1562
- [28] Tielrooij K J, Song J C W, Jensen S A, Centeno A, Pesquera A, Elorza A Z, Bonn M, Levitov L S, Koppens F H L 2013 *Nat. Phys.* **9** 248
- [29] Zhang W, Yang Y, Suo P, Zhao W, Guo J, Lu Q, Lin X, Jin Z, Wang L, Chen G, Xiu F, Liu W, Zhang C, Ma G 2019 *Appl. Phys. Lett.* **114** 221102
- [30] Heyman J N, Coates N, Reinhardt A, Strasser G 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 5476
- [31] Barnes M E, Berry S A, Gow P, McBryde D, Daniell G J, Beere H E, Ritchie D A, Apostolopoulos V 2013 *Opt. Express* **21** 16263
- [32] Rice A, Jin Y, Ma X F, Zhang X C, Bliss D, Larkin J, Alexander M 1994 *Appl. Phys. Lett.* **64** 1324
- [33] Braun L, Mussler G, Hruban A, Konczykowski M, Schumann T, Wolf M, Munzenberg M, Perfetti L, Kampfrath T 2016 *Nat. Commun.* **7** 13259
- [34] Suo P, Xia W, Zhang W, Zhu X, Fu J, Lin X, Jin Z, Liu W, Guo Y, Ma G 2020 *Laser Photonics Rev.* **14** 2000025

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

Quasi-two-dimensional van der Waals semiconducting magnet CrSiTe₃ studied by using THz spectroscopy

Suo Peng¹⁾ Xia Wei²⁾ Zhang Wen-Jie¹⁾ Zhu Xiao-Qing¹⁾ Guo Jia-Jia¹⁾
Fu Ji-Bo¹⁾ Lin Xian¹⁾ Guo Yan-Feng²⁾³⁾ Ma Guo-Hong^{1)3)†}

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

²⁾ (School of Physical Science and Technology, Shanghai Tech University, Shanghai 201210, China)

³⁾ (STU & SIOM Joint Laboratory for Superintense Lasers and Applications, Shanghai 201210, China)

(Received 8 May 2020; revised manuscript received 25 May 2020)

Abstract

Quasi-two-dimensional van der Waals ferromagnetic semiconductor CrSiTe₃ with wide potential applications in optoelectronics and nanospintronics has aroused the immense interest of researchers due to the coexistence of intrinsic magnetism and semiconductivity. By combining ultrafast femtosecond laser and terahertz spectroscopy, including terahertz time-domain spectroscopy, optical pump-terahertz probe spectroscopy and terahertz emission spectroscopy, we carry out systematic investigation into the van der Waals ferromagnetic semiconductor CrSiTe₃ crystal. The experimental results indicate that the conductivity of the sample is robust against the temperature change and isotropic terahertz transmission in the *ab*-plane. Moreover, it is also observed that the photocarriers induced by 800 nm optical pump exhibit a relaxation in the biexponential form and the complex photoconductivity can be well reproduced by the Drude-Smith model. The main relaxation channel of photocarriers is the recombination of electron-hole pairs. With femtosecond pulse illuminating the surface of sample, a strong terahertz radiation signal with a broad band of 0–2 THz is observed. The present study provides the responses of CrSiTe₃ to optical and terahertz frequency and offers crucial information for the future design of CrSiTe₃-based electronic and optoelectronic devices.

Keywords: van der Waals ferromagnetic semiconductor, terahertz spectrum, time-resolved spectroscopy

PACS: 73.90.+f, 33.20.Ea, 78.47.+p

DOI: 10.7498/aps.69.20200682

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

强磁场在 ZnCr_2Se_4 中诱导的各向异性太赫兹共振吸收

张朋 刘政 戴建明 杨昭荣 苏付海

Anisotropic resonance absorptions induced by high magnetic field in ZnCr_2Se_4

Zhang Peng Liu Zheng Dai Jian-Ming Yang Zhao-Rong Su Fu-Hai

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 207501 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20201507

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201507>

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

双磁性中心内嵌富勒烯 $\text{Y}_2\text{C}_2@\text{C}_{82}-\text{C}_{2(1)}$ 中的超快自旋动力学行为

Ultrafast spin dynamics in double-magnetic-center endohedral fullerene $\text{Y}_2\text{C}_2@\text{C}_{82}-\text{C}_{2(1)}$

物理学报. 2019, 68(2): 023101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181887>

拓扑绝缘体中的超快电荷自旋动力学

Ultrafast charge and spin dynamics on topological insulators

物理学报. 2019, 68(22): 227202 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191433>

强磁场下Sm-Fe薄膜不同晶态组织演化及磁性能调控

Evolutions of different crystalline textures in Sm-Fe film fabricated under high magnetic field and subsequent tuning magnetic properties

物理学报. 2018, 67(9): 097501 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180212>

微米气室铯原子自旋噪声谱

Spin noise spectroscopy of cesium vapor in micron-scale cell

物理学报. 2020, 69(3): 037201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191623>

钛圆盘阵列增强微测辐射热计太赫兹波吸收特性

Absorption enhancement of terahertz wave in microbolometers by titanium disk array

物理学报. 2019, 68(20): 208501 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190902>

InAs/GaSb量子阱中太赫兹光电导特性

Terahertz photoconductivity in InAs/GaSb based quantum well system

物理学报. 2018, 67(18): 187301 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180769>

专题：太赫兹自旋光电子

强磁场在 ZnCr_2Se_4 中诱导的各向异性太赫兹共振吸收*张朋¹⁾ 刘政²⁾ 戴建明²⁾ 杨昭荣³⁾ 苏付海^{2)†}

1) (阜阳师范大学, 信息功能材料结构与器件安徽省高校重点实验室, 阜阳 236037)

2) (中国科学院合肥物质科学研究院, 固体物理研究所, 中国科学院材料物理重点实验室, 合肥 230031)

3) (中国科学院合肥物质科学研究院, 强磁场科学中心, 极端条件凝聚态物理安徽省重点实验室, 合肥 230031)

(2020 年 9 月 9 日收到; 2020 年 9 月 16 日收到修改稿)

作为典型的具有螺旋磁结构的材料, ZnCr_2Se_4 承载着诸如磁电耦合、磁致伸缩和负热膨胀等有趣特性, 并可能具备多种不同的量子基态. 本文利用太赫兹时域光谱技术研究了 ZnCr_2Se_4 在低温强磁场 ($T = 4\text{--}60\text{ K}$, $H = 0\text{--}10\text{ T}$) 下的自旋动力学行为. 当外加磁场高于 4 T 时, 可以观察到亚太赫兹频率范围的磁共振吸收, 并呈现出随磁场增加蓝移特征. 当磁场 ($\mathbf{H}$) 方向垂直于太赫兹波矢 ($\mathbf{k}$) 方向时, 仅观察到单个共振吸收, 且其磁场行为符合线性拉莫尔进动关系. 这种磁场依赖性对应传统的铁磁共振, 意味着螺旋自旋态在高磁场下演化为线性铁磁态. 然而, 在 $\mathbf{H}$ 和 $\mathbf{k}$ 同时平行于样品的 $\langle 111 \rangle$ 晶向配置下, 当磁场强度高于 7 T 时, 其太赫兹共振明显劈裂为高频和低频两个吸收峰, 并且其高频吸收表现出非线性磁场依赖关系. 这种奈尔温度以下特有的各向异性太赫兹自旋动力学效应可能与最近发现的量子临界区域有关.

关键词: ZnCr_2Se_4 , 自旋动力学, 强磁场, 太赫兹

PACS: 75.50.-y, 76.70.Hb, 07.55.Db, 87.50.U-

DOI: 10.7498/aps.69.20201507

1 引言

以 ACr_2X_4 形式为代表的铬基尖晶石结构化合物是一类典型的强关联电子体系材料, 其中 Cr^{3+} 阳离子具有自旋 $3/2$ 的 $3d^3$ 构型, 随着非磁性离子 A 和 X 类型的变化, Cr^{3+} 磁性离子间距会有所不同, 进而调控 Cr-Cr 离子交换相互作用强度和模式, 形成丰富的自旋排列方式. 该体系材料具有很强的阻挫效应, 在一定温度和磁场条件下可形成自旋冰^[1]、自旋-轨道液体^[2] 和量子临界等复杂基态^[3]. 其中 ZnCr_2Se_4 化合物是该体系的代表性材料. 近二十年来, 随着在 ZnCr_2Se_4 材料中不断发现磁电耦合、负膨胀、磁致伸缩等效应及可能浮现的自旋

液晶等复杂量子基态, 该材料重新受到广泛关注. 在 ZnCr_2Se_4 中, 磁性 Cr^{3+} 离子位于八面体 B 格点, 形成四面体构型 (图 1(a)). Cr^{3+} 离子在八面体晶体场作用下, 其 d 电子态劈裂成更低的 t_{2g} 三重简并态, 呈现出球形电荷分布, 自旋-轨道耦合很弱. ZnCr_2Se_4 磁结构主要由超交换相互作用主导, 表征铁磁 (ferromagnetism, FM) 序的居里-外斯温度为 90 K , 反铁磁 (antiferromagnetism, AFM) 序的奈尔温度为 21 K . 铁磁相互作用由 90° Cr-Se-Cr 交换相互作用控制, 更远相邻的 Cr-Se-Zn-Se-Cr 或 Cr-Se-Se-Cr 交换相互作用主导反铁磁相互作用. 在奈尔温度以下, 由于自旋驱动的 Young-Tyler 效应, ZnCr_2Se_4 会发生自旋-声子耦合^[4], 产生一定的晶格畸变, 由立方相转变为四角相^[5] 或正交相^[6],

* 国家自然科学基金 (批准号: 11774354, 51727806) 和阜阳市应急科技攻关 (批准号: FK20202829) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: fhsu@issp.ac.cn

进而诱导负膨胀、磁致伸缩等效应. 相应地, 其自旋结构呈现出沿 [001] 方向传播的非公度的平面螺旋结构, 在 [001] 面内自旋以铁磁耦合方式排列, 相邻面排列相对角度为 42° [7]. 如图 1(b) 所示, 在外磁场作用下, 其平面螺旋磁结构可以演化为线性铁磁态.

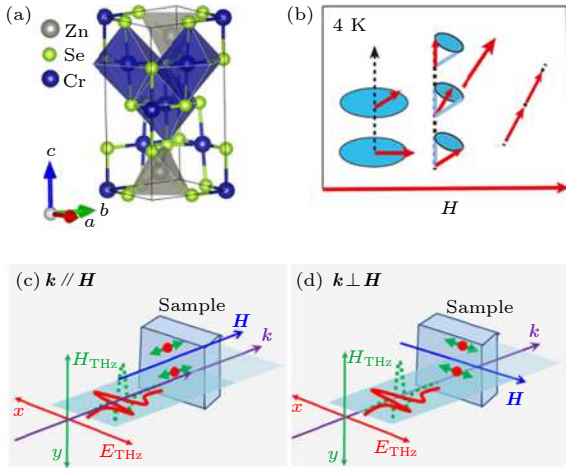


图 1 (a) ZnCr_2Se_4 晶体结构; (b) 外磁场下 ZnCr_2Se_4 磁结构演化; (c) 外磁场下太赫兹透射测量配置示意图, 太赫兹波矢 ($\mathbf{k}$) 平行于外磁场 ($\mathbf{H}$) 方向; (d) $\mathbf{k}$ 垂直于 $\mathbf{H}$ 配置, 对于两种测量配置, 太赫兹电场分量始终保持 p 型偏振, 从而确保太赫兹磁场分量和应用的稳态外部磁场保持正交

Fig. 1. (a) ZnCr_2Se_4 crystal structure; (b) the evolution of magnetic structure of ZnCr_2Se_4 under external magnetic field; (c) configuration of THz transmission measurements under external magnetic field, the THz wave vector ($\mathbf{k}$) is parallel with external magnetic field ($\mathbf{H}$); (d) the $\mathbf{k}$ is vertical with $\mathbf{H}$. In both cases, the THz electric field (E_{THz}) is set as p polarization, and therefore the magnetic field component of THz waveform (H_{THz}) is perpendicular with steady external magnetic field.

最近几年有关 ZnCr_2Se_4 的低能磁激发和强磁场下的自旋动力学也开始受到进一步关注. Tymoshenko 等[8]利用非弹性中子谱在 ZnCr_2Se_4 中观察到 (0 0 qh) 波矢方向的 Goldstone 磁激发模式, 并发现了和量子涨落有关的 0.17 meV 大小的磁子能隙. Felea 等[9]通过强磁场下声速测量获得自旋声子耦合信息及相图, 并发现在低温和 7—10 T 强磁场范围内出现未知的新型磁结构. Gu 等[3]系统研究了强磁场下的比热容、热导率等, 并观察到高磁场引起的量子临界相变. 在一定温度或强磁场条件下, 磁性材料中的铁磁共振、亚铁磁共振、反铁磁共振等特征能量处于太赫兹频谱范围内[4,10–12]. 太赫兹波段自旋动力学的研究是理解材料中电荷、轨道、晶格和自旋相互关联、耦合等复杂物理图像的

重要途径, 并桥接了微波和光学波段自旋光电子学[13–16]. 对于 ZnCr_2Se_4 而言, 早期微波波段的自旋共振实验揭示了其螺旋自旋态在 3 T 磁场以下的磁共振行为[17]. 最近几年, 我们研究了强磁场下该材料的太赫兹时域光谱, 观察到了高磁场下铁磁共振相关的磁共振模式及其法拉第旋转效应[18]. 本文进一步研究了不同外磁场方向下的 ZnCr_2Se_4 单晶的太赫兹时域光谱. 研究发现, 在奈尔温度以下, 在磁场方向平行于太赫兹波矢配置下, 其太赫兹透射谱在高于 7 T 磁场下开始出现两个共振吸收, 其间距在 10 T 磁场下可达 0.15 THz. 当磁场方向垂直于太赫兹波矢方向, 始终保持单个磁共振模式. 这种各向异性太赫兹共振吸收发生的磁场-温度区间和最近发现的量子临界区域一致, 这种异常太赫兹自旋动力学现象可能为量子临界的特征行为.

2 实验

ZnCr_2Se_4 单晶样品采用化学气相输运法生长, 所用的输运剂是 CrCl_3 . 首先在手套箱中将高纯度的原料粉末 Zn (99.9%), Cr (99.9%) 和 Se (99.9%) 按摩尔比 1:2:4 的名义组分配比混合均匀后封装在内直径 2 cm, 长度 10 cm 的真空石英管中, 将抽好真空的样品放入 850 °C 高温炉中烧结一周后随炉冷却制备出 ZnCr_2Se_4 多晶样品. 然后将多晶粉末材料与输运剂 CrCl_3 均匀混合后一起密封石英管中后抽高真空放入双温区温度梯度炉中, 冷端和热端的设定温度分别为 850 °C 和 950 °C, 三周后随炉冷至室温制备出所需的单晶样品. X 射线衍射图证明该样品为纯的尖晶石立方相, 其晶格常数 $a = 1.0498$ nm. 经抛光后, 获得大小 2 mm × 2 mm、厚度 1 mm 的单晶样品, $\langle 111 \rangle$ 晶向沿厚度方向.

我们利用强磁场下太赫兹时域光谱 (或太赫兹磁光) 系统研究其太赫兹透射谱. 借助低温超导磁体 (Spectromag SM4000, Oxford) 产生低温和稳态强磁场条件, 温度范围为 4—60 K, 磁场范围为 0—10 T. 通过中心波长为 800 nm、脉宽为 150 fs、重复频率为 76 MHz 的飞秒激光振荡器 (Mira F900, Coherent) 输出飞秒激光脉冲序列, 激发 GaAs 光电导天线产生宽带太赫兹脉冲. 利用镀金抛物面镜将太赫兹光束聚焦在磁体低温腔内的样品上, 聚焦光斑直径约 1.5 mm. 透过样品的太赫兹脉冲经过

另外两个镀金抛物面镜引导并聚焦到 ZnTe 探测晶体上, 结合自由空间电光采样方式对太赫兹脉冲的电场分量进行相干探测, 获得太赫兹时域脉冲波形. 实验中, 以无样品的空样品架的透射太赫兹信号作为参考信号, 并通过快速傅里叶变换解析出频率域的吸收谱. 如图 1 所示, 在太赫兹磁光光谱实验中, 我们以太赫兹波矢平行 (图 1(c), $\mathbf{k} \parallel \mathbf{H}$) 和垂直于 (图 1(d), $\mathbf{k} \perp \mathbf{H}$) 外部磁场方向两种光路配置进行太赫兹透射测量. 太赫兹电场 (E_{THz}) 和磁场分量 (H_{THz}) 分别沿 x 和 y 方向, 并且 H_{THz} 始终与外磁场方向垂直. 整个太赫兹光谱实验在密闭的有机玻璃罩中开展, 通过不断充入氮气确保环境湿度低于 1%.

3 结果与讨论

图 2(a) 为低温 4 K 条件下, 在不同外磁场强度下测量的 ZnCr_2Se_4 样品太赫兹透射时域波形, 其中测量配置为 $\mathbf{k} \parallel \mathbf{H}$. 红色曲线代表不经过样品的参考太赫兹波形, 为了直观比较, 其尺度缩小了 1/5. 随磁场强度增大, 透射太赫兹波幅度减小, 更高磁场下在 16—30 ps 区间出现微弱振荡, 暗含着共振吸收动力学行为. 进一步对不同磁场下的透射太赫兹波形进行傅里叶变化, 其相应的太赫兹频谱如图 2(b) 所示. 相对于 0 磁场, 5 T 以上磁场可以看出其太赫兹频谱包含着低频吸收谷, 特别是 8 T 以上磁场, 其频谱发生明显劈裂.

为进一步证明该共振吸收是磁场诱导的. 我们以零磁场下透过的太赫兹波形的傅里叶变换 $\tilde{E}_0(\omega)$ 为参考信号, 进而提取出低温 ($T = 4$ K) 不同磁场下相对透射率, 即 $\tilde{t}_H(\omega) = \frac{\tilde{E}_H(\omega)}{\tilde{E}_0(\omega)}$. 图 3 为这种相对零磁场下的归一化太赫兹透射幅度 $|\tilde{t}_H(\omega)|$. 如图 3(a) 所示, 在 $\mathbf{k} \parallel \mathbf{H}$ 配置情况下, 当外磁场高于 4 T 时候, 在 0.18 THz 附近开始出现共振吸收, 并随磁场增加呈现出明显蓝移. 特别是, 当磁场高于 7 T 时, 可以观察到两个吸收边, 低能和高能吸收谷都随磁场增大向高能端移动, 但其能量间隔随磁场增大. 作为对比, 我们也在 $\mathbf{k} \perp \mathbf{H}$ 配置下测量了太赫兹透射谱. 可以看出, 尽管其共振峰随磁场增强朝高能方向移动, 但在整个应用的外磁场区间, 太赫兹吸收始终保持单一共振峰. 这种相对零磁场的透射频谱变化, 并结合蓝移效应, 可以确定共振吸收来源于外磁场驱动的磁子激发.

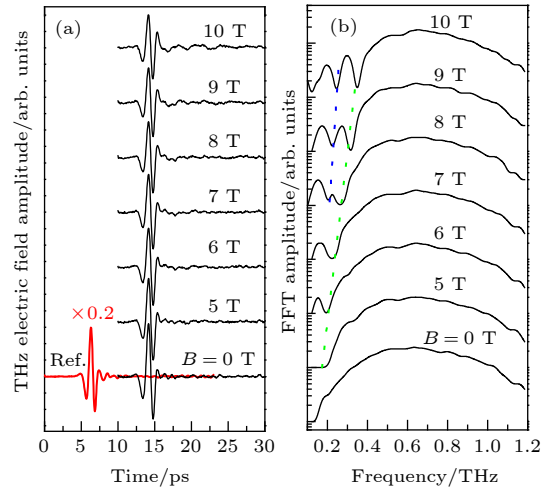


图 2 (a) $\mathbf{k} \parallel \mathbf{H}$ 配置下, 不同外磁场下透过 ZnCr_2Se_4 单晶样品的 THz 时域波形图, 红色为不加样品时的时域信号, 幅度缩小 5 倍; (b) 这些时域波形图对应的快速傅里叶变换 (FFT), 虚线为表征吸收位置变化的引导线

Fig. 2. (a) In the configuration of $\mathbf{k} \parallel \mathbf{H}$, THz waveforms transmitted through ZnCr_2Se_4 single crystal measured under different magnetic fields at 4 K temperature. The red trace with the 0.2 scale factor is the reference waveform through empty sample holder; (b) corresponding FFT amplitude spectra in frequency domain. The y axis is logarithmic scale. The dotted lines are guides for the eye.

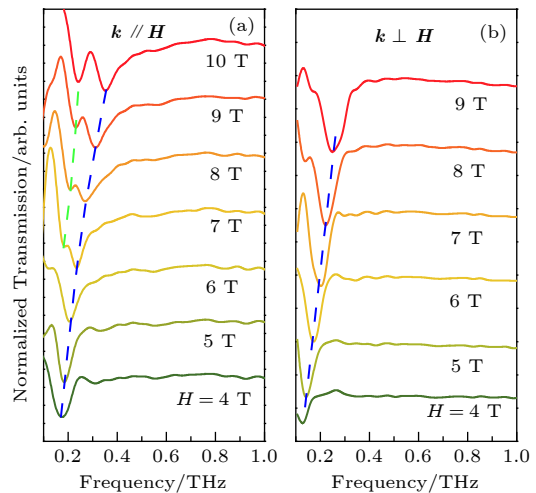


图 3 相对零磁场归一化的太赫兹透射谱 (a) 太赫兹波矢平行磁场配置; (b) 太赫兹波矢垂直磁场配置. 测量温度为 4 K

Fig. 3. Normalized THz transmission spectra with respect to the spectrum without the application of external magnetic field: (a) THz wave vector is parallel with the external magnetic field; (b) THz wave vector is vertical with the external magnetic field. The measurement temperature is 4 K.

为了进一步理解平行配置模式下的共振劈裂现象, 选取 4, 20, 45 和 60 K 四个温度点, 开展不同磁场下的太赫兹吸收光谱测量. 首先由样品透射

和参考波形进行傅里叶变换, 获得复数透射率, 即 $\tilde{t}(\omega) = \frac{\tilde{E}_t(\omega)}{\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)}$. 其中, $\tilde{E}_t(\omega)$ 和 $\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)$ 分别代表透射和参考信号. 并利用菲涅耳公式计算出复数折射率 $\tilde{n}(\omega)$, 进而获得吸收系数, 即 $\alpha(\omega) = \frac{2\pi\omega}{c} \text{Im}(\tilde{n}(\omega))$. 如图 4 所示, 在 4 个温度点, 太赫兹吸收谱都表现出共振吸收, 其吸收频率随磁场增加而增加. 在 20 K 温度以下, 高磁场范围可以观察到两个共振峰, 然而对于高于反铁磁转变温度的 45 和 60 K, 没有明显的低频吸收. 需要指出, 不同于图 3(a) 中的相对透射率, 吸收谱难以甄别出 $H = 7$ T 时的共振劈裂. 原因是吸收系数的提取过程是以空样品为参考信号, 信噪比稍低. 另外, 在零磁场条件下, 温度 20 K 以上的吸收曲线于 0.2 THz 附近有一定的吸收, 该吸收在 4 K 低温下得以抑制. 由于测量环境的湿度浮动可能会在低频区引起一些噪声, 并且该吸收频率未呈现出磁场依赖性. 因而, 难以断定为新的磁激发模式, 在本文中將不进行详细讨论.

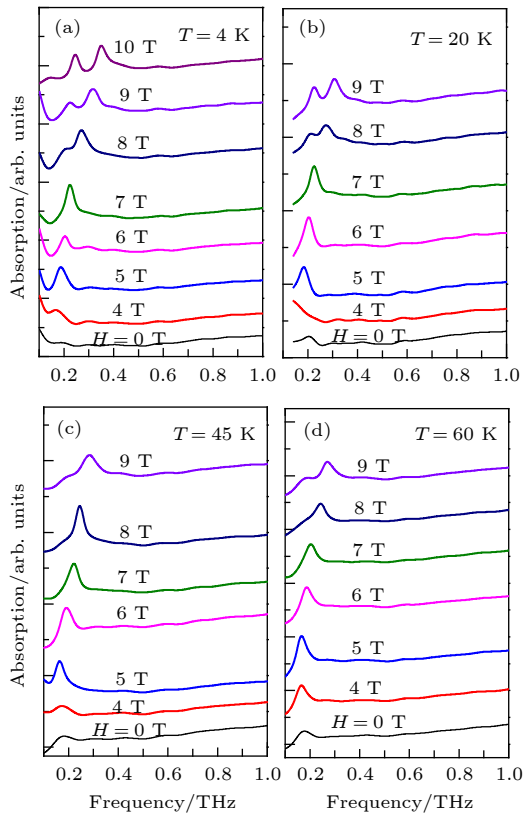


图 4 不同磁场下在如下温度中太赫兹吸收光谱曲线 (a) 4 K; (b) 20 K; (c) 45 K; (d) 60 K

Fig. 4. The THz absorption spectra obtained under different external magnetic fields at temperatures: (a) 4 K; (b) 20 K; (c) 45 K; (d) 60 K.

接下来, 磁共振频率和外磁场的关系示于图 5 中, 其主要磁场行为可归纳如下: 1) 在 $k \perp H$ 配置下, 其共振频率和磁场依赖关系和我们早期工作一致 [18], 该磁共振行为的典型特征是在高磁场下符合拉莫尔进动关系, 并如图 5(a) 所示, 可线性外推至原点. 这种磁共振行为可以通过铁磁共振获得较好的解释. 随着外加磁场增强, ZnCr_2Se_4 中螺旋自旋结构会被抑制, 最终演化为线性铁磁结构, 其磁共振落入太赫兹频段; 2) 在 $k // H$ 配置下, 同等磁场强度, 其共振能量明显高于垂直磁场配置测量值,

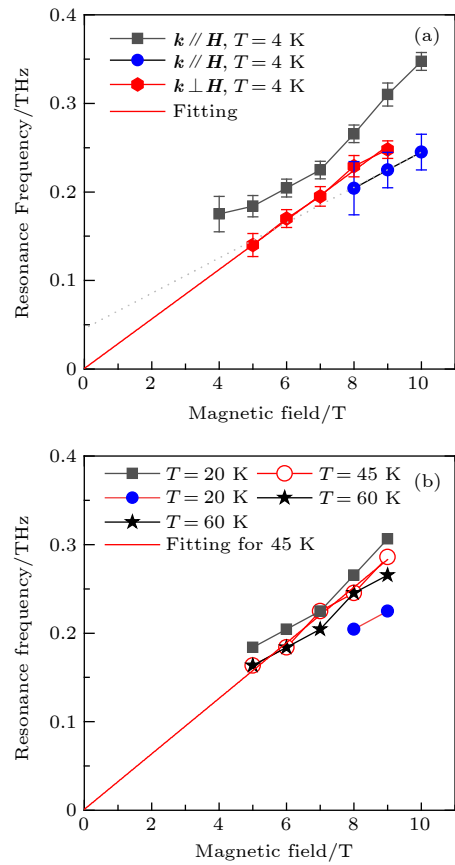


图 5 不同温度下共振频率随磁场的变化示意图 (a) 代表 4 K 温度下 $k // H$ 和 $k \perp H$ 两种配置下测量结果, 红色实线表示根据关系式 $\hbar\omega = g\mu_B H$, 对 $k \perp H$ 配置测量数据的线性拟合, 灰色虚线代表对 $k // H$ 配置下的共振频率的线性外推; (b) $k // H$ 配置下, 20, 45 和 60 K 不同温度的测量结果, 红色实线代表根据关系式 $\hbar\omega = g\mu_B H$, 对 $T = 45$ K 数据的拟合

Fig. 5. The frequencies at the maxima of the absorption spectra as a function of applied magnetic field at temperatures of 4 K (a), and 20, 45 and 60 K (b). In Fig. 5 (a), the red solid line represents the fitting according to the equation $\hbar\omega = g\mu_B H$. The grey dash line denotes the linear extrapolation for the low-frequency absorption. In Fig. 5 (b), the red solid line is obtained from the fitting to the data taken at $T = 45$ K using the equation, $\hbar\omega = g\mu_B H$.

并且其磁场行为具有非线性特征. 在 7 T 以上磁场, 开始出现低频吸收, 其共振频率低于垂直磁场配置; 3) 在 $\mathbf{k} \parallel \mathbf{H}$ 配置测量下, 4 和 20 K 共振吸收能量几乎相等. 对于高于奈尔温度的高温区域, 不再出现低频共振吸收, 而共振吸收频率接近同等磁场下 4 K 的测量结果, 但其磁场关系接近线性, 并且可线性外推至原点.

早期微波波段的自旋共振实验揭示了 ZnCr_2Se_4 中螺旋自旋态在磁场低于 3 T 的磁共振行为^[17], 其中, 螺旋自旋共振与外加磁场和磁化强度关系为

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \frac{AK(K_0)}{2}M^2 + \frac{A[A-2K(K_0)]}{4}\chi_{[001]}^2H^2, \quad (1)$$

式中, γ 为旋磁比; A 和 $K(K_0)$ 分别代表各向同性和各向异性自旋相互作用常数; $\chi_{[001]}$ 为沿着螺旋磁结构方向易磁化轴. 对于 ZnCr_2Se_4 样品, 结合实验数据, (1) 式可简化为 $(\omega/\gamma)^2 = 1.86 + 0.94H^2$. 随着外磁场进一步增加, 螺旋自旋结构的圆锥角会进一步在磁场诱导下关闭, 在 6 T 磁场以上形成线性排列铁磁自旋态^[19,20]. 因此, 可以预测高磁场下其磁共振会表现为传统的铁磁共振, 并符合简单的拉莫尔进动关系, 即 $\hbar\omega = g\mu_B H$, 其中 μ_B 为玻尔磁子. 事实上, 我们在 $\mathbf{k} \perp \mathbf{H}$ 配置下的测量结果符合这种关系, 根据线性拟合估算出 $g = 2.0$, 与 Cr^{3+} 自由离子 g 因子接近. 对于高温区 ($\mathbf{k} \parallel \mathbf{H}$) 的磁共振行为, 同样可以利用拉莫尔关系进行简单拟合. 然而, 其拟合得到斜率要高于低温区 ($\mathbf{k} \perp \mathbf{H}$), 估算得到 $g = 2.24$, 明显大于低温区参数. 这种 g 因子的变化很可能与自旋-声子耦合有关. 在奈尔温度以下, ZnCr_2Se_4 中自旋驱动 Young-Tyler 效应会导致发生自旋-声子耦合^[4], 产生一定的晶格畸变, 从而改变晶体场及交换相互作用.

需要指出, 最近一些研究组在 TmFeO_3 , ErFeO_3 和 YFeO_3 等磁性体系中观察到太赫兹波段的各向异性磁共振吸收和磁场诱导的新型磁子激发模式, 这类自旋动力学行为来源于晶体各向异性交换作用、Dicke 协同相互作用和自旋重定向等物理效应^[21–23]. 对于低温下 $\mathbf{k} \parallel \mathbf{H}$ 配置下的 ZnCr_2Se_4 的磁共振劈裂行为, 可能存在多种复杂机制. 首先, ZnCr_2Se_4 单晶存在多铁效应, 原则上可能具有太赫兹电场分量耦合引起的电磁振子共振吸收, 并且会强烈依赖于晶向. 然而, 由于磁场大于 7 T 以上, 螺旋自旋结构的张角倾向于关闭, 从而磁电耦合效应消失,

进而高磁场会压制磁电耦合^[20]. 因此, 我们观察到的共振吸收和电磁振子无关. 其次, 对于铁磁共振而言, 晶体内在各向异性场也可能增加共振吸收复杂性, 产生不同吸收模式. 然而, 在奈尔温度之上的 45 和 60 K 温度条件下并无明显共振吸收劈裂效应, 说明纯粹依靠铁磁交换作用难以解释. 另外, 在低磁场下, ZnCr_2Se_4 中螺旋磁结构相关的磁共振在磁场沿 (100) 和 (111) 两个方向产生大约不到 25 GHz 的共振差异^[17]. 该频率差远小于我们观察到的共振劈裂数值, 并且随磁场增加引起的螺旋磁结构压制, 这种劈裂会进一步减小. 而我们观察到磁场越强, 高频模和低频模能量差距越大. 因此, 我们观察到的高磁场下的共振劈裂不能通过各向异性交换相互作用进行解释. 值得提及的是, Laurita 等^[10] 在 FeSe_2S_4 材料观察到类似的波矢方向依赖的各向异性太赫兹共振吸收, 并认为这种磁激发来源于自旋-轨道耦合相关的单态-三态激发. 这种纯自旋体系禁戒的磁子跃迁在某些量子临界点 (例如, 自旋轨道液态和长程有序磁结构相的相边界区域) 会出现, 和长程自旋-轨道纠缠有关. 最近, Gu 等^[3] 通过磁化率、比热、热导率测量, 完成了 ZnCr_2Se_4 的低温磁场相图, 特别确立了螺旋态和完全自旋极化态之间的量子临界区域. 而我们观察到共振吸收劈裂区域位于该工作报道的量子临界区间内. 如果我们检查低频吸收 ($\mathbf{k} \parallel \mathbf{H}$), 对其进行线性外推 (图 5), 可以发现其对应零磁场的能量大约在 0.04 THz, 和文献^[8] 报道的 ZnCr_2Se_4 中的 Goldstone 模式自旋波能量接近. 考虑到太赫兹在小于 0.1 THz 频谱范围的灵敏度大幅度下降, 很可能在小于 7 T 磁场下依然存在低频吸收, 只是当前系统难以测到. 我们推测, 随外磁场增加, 当进入量子临界区域后, 一些自旋纠缠会导致长程 Goldstone 自旋波和近程 (Cr-Se-Cr 相互作用) 铁磁自旋模式的相互耦合, 导致两个自旋模式磁场依赖性的反转及共振频率间距增加. 然而, 为进一步理解其各向异性以及磁激发选择定则, 还需进一步深入的理论分析.

4 结 论

通过低温强磁场下的太赫兹时域谱方法, 比较了 ZnCr_2Se_4 在太赫兹传播方向平行和垂直磁场配置下的太赫兹频段共振吸收. 观察到了外磁场引起

的磁共振效应. 特别是在低温高磁场区域, 其共振吸收呈现出各向异性效应. 在太赫兹波矢垂直于磁场方向情况下, 太赫兹磁共振表现出线性磁场依赖性, 并符合拉莫尔关系. 然而, 当太赫兹波矢、磁场方向共同平行于晶体的 $\langle 111 \rangle$ 方向时, 相比同等磁场强度, 其共振能量显著增加. 特别在高于 7 T 磁场情况下, 出现高频和低频两个共振模式, 其中高频磁激发在测量范围内表现出非线性磁场行为. 这种共振劈裂的磁场和温度范围在量子临界区域内, 我们推测量子临界区域存在自旋纠缠, 导致具有带隙的 Goldstone 自旋波和铁磁进动模式耦合, 引起低频和高频磁共振模式的进一步分离. 该各向异性太赫兹自旋动力学的深入认识亟待进一步的理论分析.

参考文献

- [1] Harris M J, Bramwell S T, McMorrow D F, Zeiske T, Godfrey K W 1988 *Phys. Rev. Lett.* **79** 2554
- [2] Chen G, Balents L, Schnyder A P 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 096406
- [3] Gu C C, Zhao Z Y, Chen X L, Lee M, Choi E S, Han Y Y, Ling L S, Pi L, Zhang Y H, Chen G, Yang Z R, Zhou H D, Sun X F 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 147204
- [4] Rudolf T, Kant Ch, Mayr F, Hemberger J, Tsurkan V, Loidl A 2007 *Phys. Rev. B* **75** 052410
- [5] Akimitsu J, Siratori K, Shirane G, Iizumi M, Watanabe T 1978 *J. Phys. Soc. Jpn.* **44** 172
- [6] Hidaka M, Tokiwa N, Fujii M, Watanabe S, Akimitsu J 2003 *Phys. Status Solidi B* **236** 9
- [7] Plumier R J 1966 *J. Appl. Phys.* **37** 964
- [8] Tymoshenko Y V, Onykienko Y A, Müller T, Thomale R, Rachel S, Cameron A S, Portnichenko P Y, Efremov D V, Tsurkan V, Abernathy D L, Ollivier J, Schneidewind A, Piovano A, Felea V, Loidl A, Inosov D S 2017 *Phys. Rev. X* **7** 041049
- [9] Felea V, Yasin S, Gunther A, Deisenhofer J, Krug von Nidda H A, Zherlitsyn S, Tsurkan V, Lemmens P, Wosnitza J, Loidl A 2012 *Phys. Rev. B* **86** 104420
- [10] Laurita N J, Deisenhofer J, Pan LiDong, Morris C M, Schmidt M, Johnsson M, Tsurkan V, Loidl A, Armitage N P 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 207201
- [11] Shuvaev A M, Travkin V D, Ivanov V Yu, Mukhin A A, Pimenov A 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 097202
- [12] Jin Z M, Yuan S Y, Li J G, Lin X, Ren W, Cao S X, Ma G H, Yao J S 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 167501 (in Chinese) [金钻明, 阮舜逸, 李炬庚, 林贤, 任伟, 曹世勋, 马国宏, 姚建铨 2019 *物理学报* **68** 167501]
- [13] van Mechelen J L M, van der Marel D, Crassee I, and Kolodiazhnyi T 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 217601
- [14] Kampfrath T, Sell A, Klatt G, Pashkin A, Mährlein S, Dekorsy T, Wolf M, Fiebig M, Leitenstorfer A, Huber R 2011 *Nat. Photonics* **5** 31
- [15] Zhou R Z, Jin Z M, Li G F, Li G F, Ma G H, Cheng Z X, Wang X L, 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 061102
- [16] Liu X M, Xie T, Guo J J, Yang S M, Song Y, Xian Lin, S X Cao, Cheng Z X, Jin Z M, Wu A H, Ma G H, Yao J S 2018 *Appl. Phys. Lett.* **113** 022401
- [17] Siratori K 1971 *J. Phys. Soc. Jpn.* **30** 709
- [18] Zhang P, Su F H, Chen X L, Zhang S L, Mei H Y, Yang Z R, Dai J M, Pi L 2016 *Appl. Phys. Express* **9** 10
- [19] Hemberger J, Krug von Nidda H A, Tsurkan V, Loidl A 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 147203
- [20] Murakawa H, Onose Y, Ohgushi K, Ishiwata S, Tokura Y 2008 *J. Phys. Soc. Jpn.* **77** 043709
- [21] Guo J J, Cheng L, Zhuang R, Zhang W J, Lin X, Jin Z M, Cao S X, Sheng Z G, Ma G H 2020 *J. Phys. Condens. Matter.* **32** 185401
- [22] Li X W, Bamba M, Yuan N, Zhang Q, Zhao Y G, Xiang M L, Xu K, Jin Z M, Wei R, Ma G H, Cao S X, Turchinovich D, Kono J 2018 *Science* **361** 794
- [23] Lin X, Jiang J J, Jin Z M, Wang D Y, Tian Z, Han J G, Cheng Z X, Ma G H 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 092403

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

Anisotropic resonance absorptions induced by high magnetic field in ZnCr_2Se_4 *

Zhang Peng¹⁾ Liu Zheng²⁾ Dai Jian-Ming²⁾

Yang Zhao-Rong³⁾ Su Fu-Hai^{2)†}

1) (*Anhui Key Laboratory of Information Function Materials Structure and Devices, Fuyang Normal University, Fuyang 236037, China*)

2) (*Key Laboratory of Materials Physics, Institute of Solid State Physics, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China*)

3) (*Anhui Province Key Laboratory of Condensed Matter Physics at Extreme Conditions, High Magnetic Field Laboratory, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China*)

(Received 9 September 2020; revised manuscript received 16 September 2020)

Abstract

As a typical helimagnet, ZnCr_2Se_4 possesses fascinating effects including magnetoelectric coupling, magnetostriction, negative thermal expansion, as well as possible diversity in quantum ground states. Here in this work, we investigate magnetic excitation arising from spiral spin structure in ZnCr_2Se_4 single crystal by using terahertz (THz) time domain spectroscopy (THz-TDS) under magnetic fields up to 10 T and at low temperatures. The magnetic resonance absorption is observed in a sub-THz region as the applied magnetic field is above 4 T, featuring the blue shift with magnetic field increasing. As the THz wave vector ($\mathbf{k}$) is vertical to the external magnetic field (H), the single resonance frequency conforms well with the linear Larmor relation, corresponding to a spin structure transformation from helical to ferromagnetic state with magnetic field increasing in ZnCr_2Se_4 . However, in the geometry in which both $\mathbf{k}$ and $\mathbf{H}$ are along the $\langle 111 \rangle$ direction of crystal, a well-defined resonance splitting emerges when $H > 7$ T. Especially, the high-frequency absorption shows pronouncedly nonlinear magnetic field dependence. It is suggested that such anisotropic spin dynamics below Néel temperature be linked with the field-driven quantum criticality unveiled in recent work.

Keywords: ZnCr_2Se_4 , spin dynamics, high magnetic field, terahertz

PACS: 75.50.-y, 76.70.Hb, 07.55.Db, 87.50.U-

DOI: 10.7498/aps.69.20201507

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11774354, 51727806) and the Fuyang Key Emergency Science and Technology Project, China (Grant No. FK20202829).

† Corresponding author. E-mail: fhsu@issp.ac.cn

三重简并拓扑半金属MoP中超快圆偏振光产生和调控光生热电流

加孜拉·哈赛恩 朱恪嘉 孙飞 吴艳玲 石友国 赵继民

Generation and control of photo-excited thermal currents in triple degenerate topological semimetal MoP with circularly polarized ultrafast light pulses

Jiazila Hasaien Zhu Ke-Jia Sun Fei Wu Yan-Ling Shi You-Guo Zhao Ji-Min

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 207801 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200031

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200031>

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

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>

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>

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>

磁性硅烯超晶格中电场调制的谷极化和自旋极化

Valley and spin polarization manipulated by electric field in magnetic silicene superlattice

物理学报. 2018, 67(8): 086801 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180080>

Fe₃GeTe₂纳米带的结构稳定性、磁电子性质及调控效应

Structure stability, magneto-electronic properties, and modulation effects of Fe₃GeTe₂ nanoribbons

物理学报. 2019, 68(20): 208502 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191103>

拓扑绝缘体中的超快电荷自旋动力学

Ultrafast charge and spin dynamics on topological insulators

物理学报. 2019, 68(22): 227202 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191433>

专题：太赫兹自旋光电子

三重简并拓扑半金属 MoP 中超快圆偏振光产生和调控光生热电流*

加孜拉·哈赛恩^{1)2)#} 朱恪嘉^{1)2)#} 孙飞¹⁾²⁾吴艳玲¹⁾ 石友国¹⁾³⁾ 赵继民^{1)2)3)†}

1) (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家研究中心, 北京 100190)

2) (中国科学院大学物理科学学院, 北京 100049)

3) (松山湖材料实验室, 东莞 523808)

(2020 年 1 月 6 日收到; 2020 年 4 月 6 日收到修改稿)

超快激光可以用来产生和调控拓扑量子材料中的拓扑相变和自旋极化电流, 这些光诱导产生的新奇物性源于材料中受到体系对称性保护的线性色散能带结构的简并节点. 作为一种同时具有两重和三重简并节点的拓扑半金属, 磷化钼 (MoP) 是一类非常独特的拓扑半金属体系. 本文初步探索了三重简并拓扑半金属晶体 MoP 中产生自旋极化电流和奇异光学响应的机理, 设计并搭建了以圆偏振光产生并调控光电流的实验装置. 首先采用该装置成功在拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 中产生了光电流, 与国际上已报道的实验结果对比效果很好, 证明了实验装置的可行性和可靠性; 进而对 MoP 进行了同样的光电流产生与调控实验. 采用 400 nm 的圆偏振超快激光脉冲, 在样品不同位置成功观测到了电流信号, 分析认为其为热电流, 不是与三重简并特性相关的光电流. 这为未来进一步产生和调控光电流提供了重要的研究基础, 对于研究普遍的拓扑量子材料的光电流效应具有可借鉴的意义.

关键词: 光电流, 三重简并拓扑材料, 超快光谱, 自旋极化

PACS: 78.47.J-, 03.65.Vf, 78.20.Ek, 78.20.nb

DOI: 10.7498/aps.69.20200031

1 引言

外尔半金属是凝聚态物质中一种独特的拓扑物相, 它具有非平庸的拓扑能带结构, 在动量空间中具有手性相反的两重简并节点, 并且不同手性的节点总是成对存在, 在基础物性研究中具有重要意义, 为“手征电子学”和信息器件的发展提供了新的契机^[1]. 自从理论预测和实验证实了具有两重简并

的外尔半金属存在后^[2,3], 科学家们致力于寻找简并度更为丰富的准粒子, 更预言了三重、六重以及八重简并态的可能存在^[4]. 随后实验上在 MoP 中同时观测到三重简并点^[5-7]和两重简并的外尔点, 并发现他们受到体系的旋转以及镜像对称性保护. 三重简并点的发现大大促进了人们对拓扑量子态的理解, 对探索新奇物理现象及发展新型电子器件提供了一个新的发展前景.

超快激光与物质的相互作用, 可以激发固体内

* 国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2017YFA0303603, 2016YFA0300303, 2017YFA0302901)、国家自然科学基金 (批准号: 11574383, 11774408, 11774399)、中国科学院战略重点研究计划先导专项 B (批准号: XDB30000000)、中国科学院国际合作项目 (批准号: GJHZ1826)、北京市自然科学基金 (批准号: 4191003) 和中国科学院创新交叉团队项目资助的课题.

同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: jmzhao@iphy.ac.cn

部的准粒子产生新奇的光学或电学效应. 例如, 时间分辨抽运-探测方法研究激发态准粒子的超快动力学, 包括非常规高温超导体^[8–11]、强关联体系^[12–14]、拓扑量子态^[15–17]、半导体材料^[18,19]等以及激光诱导及调控的电子相干性^[20–24]、晶格相干性^[15,16]、声波相干性^[25]、自旋波量子压缩态^[26,27]等. 激发光的偏振可用于产生和控制表面源自拓扑特性的自旋极化光电流^[28–34](通常只有 pA—nA^[32–34]). 2012 年, Mclver 等^[32]利用 795 nm 的激光对拓扑绝缘体 Bi₂Se₃ 进行探测, 成功观察到了源于拓扑绝缘体表面态贡献的光电流, 并发现改变光的偏振方向会逆转光电流的方向. 2017 年, 他们还使用中红外激光 (10.6 μm) 成功探测了拓扑半金属 TaAs^[33] 中的光电流, 并分辨了外尔费米子的手性. 2019 年, Ma 等^[34]在二类外尔半金属 TaIrTe₄ 中采用中红外激光 (4 μm) 观测到了较强的圆偏振光调控的光电流响应. 拓扑半金属 MoP 内部具有三重简并费米子的自旋状态, 光电流可以在其拓扑表面产生或控制自旋极化电流.

本文设计并搭建了激光产生并调控电流的实验装置, 在 Bi₂Se₃ 中成功探测到了对激光偏振依赖的光电流的变化. 采用上述装置, 用 400 nm 圆偏振激发光对 MoP 进行了光电流的探索, 以期激发及表征其三重简并费米子的手性特征或奇异表面态性质. 观测到了不同空间位置不随激发光偏振变化的电流信号, 判断其并非光电流而是热电流, 分析总结了 MoP 中没有产生光电流的原因. 本文的实验探索为研究更多的拓扑半金属和拓扑绝缘体材料的光电流响应提供了有益的借鉴, 为拓扑材料的光生热电流等的潜在应用提供了重要的物性基础.

2 实验

2.1 光电流的实验测量

采用中心波长为 800 nm, 重复频率为 250 kHz, 脉宽为 70 fs 的掺 Ti-蓝宝石飞秒激光光源以及倍频后的 400 nm 光源进行光电流实验. 实验装置如

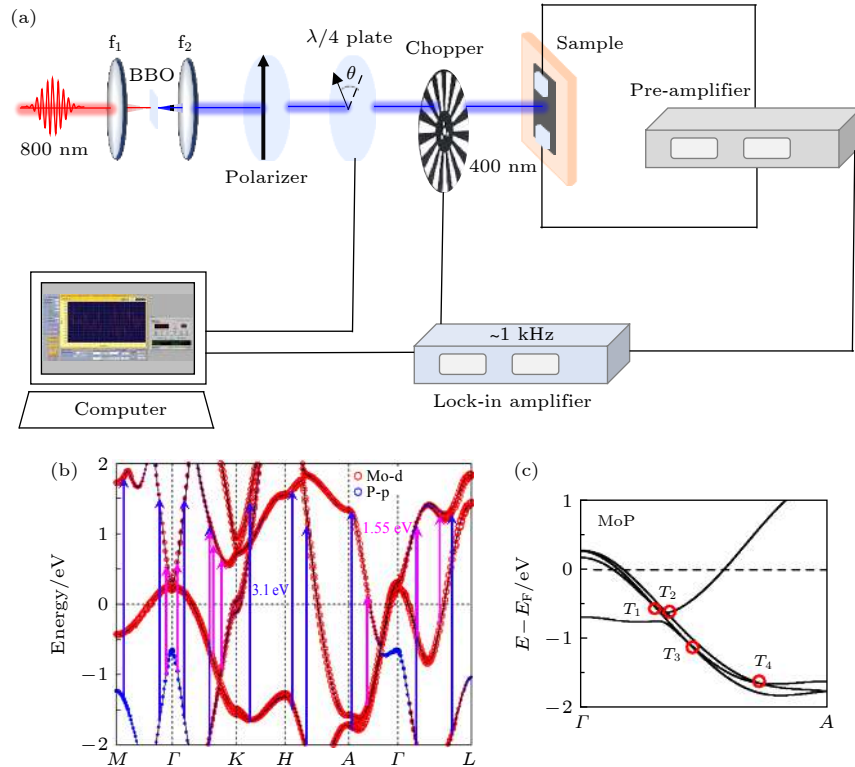


图 1 (a) 光电流产生和探测实验装置, f_1 和 f_2 为透镜, BBO 为倍频非线性晶体; (b) 800 nm (1.55 eV, 粉红色箭头) 和 400 nm (3.1 eV, 蓝紫色箭头) 脉冲激光可能激发的动量区域, 其中能带结构引自文献^[35] 计算结果; (c) MoP 中的 4 个三重简并点局域放大 (红色圆圈)^[35]

Fig. 1. (a) Schematic photocurrent experimental setup. f_1 and f_2 are focusing lenses. BBO is the doubling frequency nonlinear crystal; (b) the allowed excitation areas by 800 nm (1.55 eV, pink arrows) and 400 nm (3.1 eV, purple arrows) pulsed lasers, respectively. The band structure is adapted from Ref. [35]; (c) the four triple points are highlighted by the red circles^[35].

图 1(a) 所示, 800 nm (或经过 BBO 晶体倍频后的 400 nm) 超快激光脉冲经过偏振片后, 再通过旋转后面的 $\lambda/4$ 波片的角度周期性地改变出射光的偏振类型 (左旋光-线偏振光-右旋光). 最后入射光经过采样频率为 1 kHz 的斩波器调制后由焦距为 10 cm 的凸透镜聚焦到样品表面, 光斑直径大小为 60 μm . 由于光激发的电流信号非常小, 通常在 pA 至 nA 量级 [32–34], 需要在样品上制备两个电极接至前置放大器上将电流放大, 最终再通过锁相放大器按照斩波器的采样频率进行采集记录, 获得光电流的信号. 采用电动旋转装置精确调节 $\lambda/4$ 波片旋转的角度 θ , 由自行编制的 LabVIEW 软件对其进行控制. 图 1(b) 为引文 [35] 报道的 MoP 的能

带结构, 用粉红色和蓝紫色箭头分别表示 800 nm (1.55 eV) 和 400 nm (3.1 eV) 激光脉冲激发电子可能产生光电流的区域. 图 1(c) 为引文 [35] 报道的三重简并点, 是图 1(b) 的局域放大图. 红色圆圈为 4 个三重简并点.

2.2 样品的表征

MoP 的单晶通过固相反应合成, 样品制备详情见文献 [5]. 用扫描电子显微镜 (scanning electron microscopy, SEM) 观察样品表面, 图 2(a) 展示了样品整体的 SEM 扫描图像, 图 2(e), (f) 分别展示了样品在 5 和 20 μm 分辨率下的 SEM 扫描图像, 大小约为 1 mm $\times$ 1 mm, 样品厚度为 162 μm ,

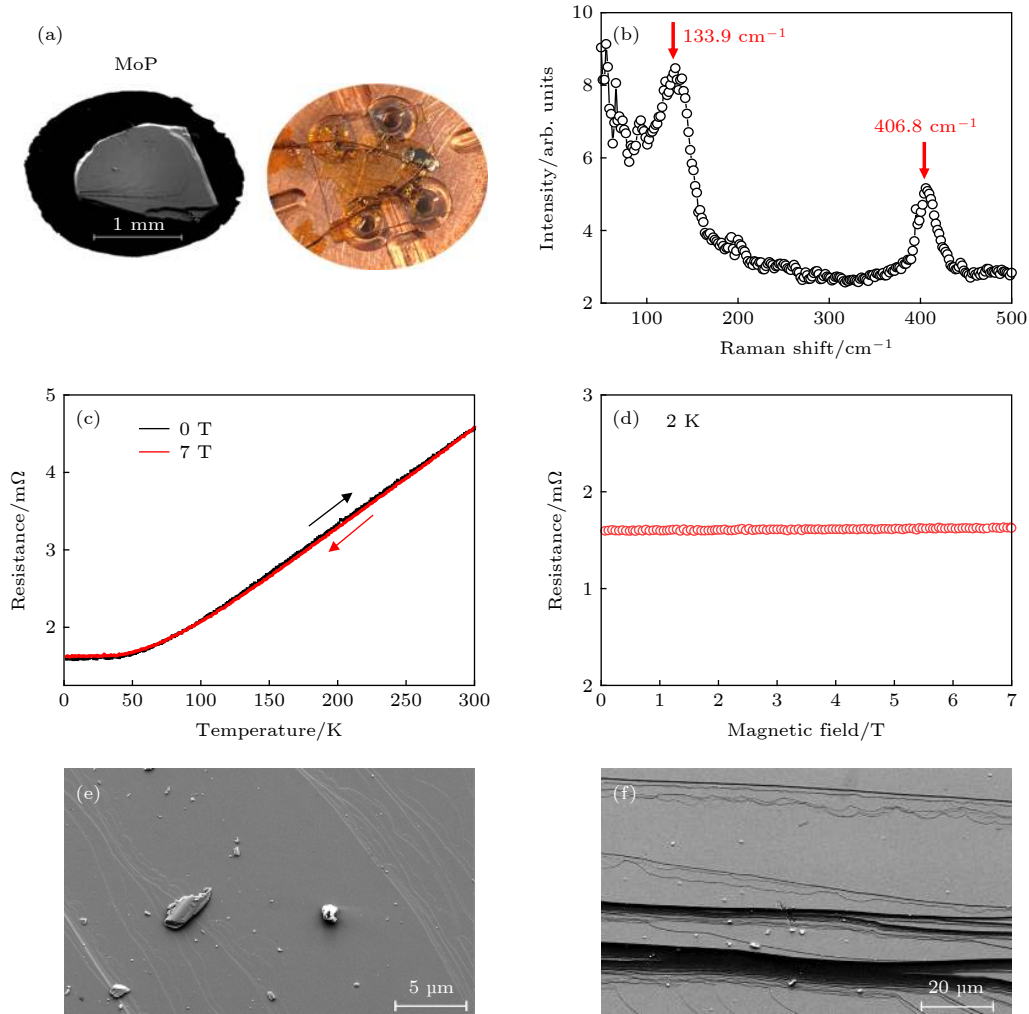


图 2 MoP 样品的表征 (a) 光电流实验所使用的 MoP 样品, 左图为 SEM 图像, 右图为加电极后粘到铜托上的样品实物图; (b) 常温下的 Raman 光谱, 红色箭头标出两个拉曼峰; (c) 0 和 7 T 下的电输运测量; (d) 2 K 温度下的电阻随磁场的变化; (e) 5 μm 分辨率样品局部放大 SEM 图; (f) 20 μm 分辨率样品局部放大 SEM 图

Fig. 2. Characterizations of the MoP sample in the photocurrent experiment: (a) SEM image (left panel) and the sample after adding the electrodes (right panel); (b) Raman spectroscopy at room temperature, two red arrows mark the Raman peaks; (c) temperature dependence of the resistance at 0 and 7 T external magnetic field; (d) magnetic field dependence of resistance at 2 K; (e) SEM image with a resolution of 5 μm ; (f) SEM image with a resolution of 20 μm .

其表面非常平整, 适合用于光电流实验及其他表征. 图 2(a) 右图展示了样品加上两个电极后底部通过低温胶粘在铜托上的实物图, 两根直径为 $20\ \mu\text{m}$ 的 Pt 丝的一端通过银胶粘在样品两侧的表面上, 另一端连接到外电路上.

对样品进行了 Raman 和输运表征. 图 2(b) 为 MoP 样品的 Raman 散射光谱, 采用 $532\ \text{nm}$ 波长、 $0.9\ \text{mW}$ 功率的线性偏振连续激光作为光源进行了近场共聚焦拉曼光谱测量, 透过一个 $50\times$ 的物镜汇聚到样品表面, Raman 光谱的分辨率为 $2\ \text{cm}^{-1}$. 从获得的 Raman 光谱中可以看到, 在 133.9 和 $406.8\ \text{cm}^{-1}$ 处各出现了一个 Raman 峰, 尚未发现有关 MoP 的详细的 Raman 研究工作被报道. 图 2(c) 为 MoP 在 0 和 $7\ \text{T}$ 磁场下进行的电输运测量, 其中黑色曲线为不加磁场时的数据 (黑色箭头表示升温过程), 红色曲线为 $7\ \text{T}$ 磁场下的测量数据 (红色箭头表示降温过程). 由图 2(c) 中曲线可以看出, 在有无磁场条件下, 电阻率随温度的变化曲线基本重合, 均在大约 $50\ \text{K}$ 附近出现转折.

说明磁场不会对 MoP 的输运特性产生影响. 在 $0\ \text{K}$ 时电阻率不为 0 , 经计算剩余电阻率 (residual resistance ratio, RRR) 大约为 $\text{RRR} = R_{300\ \text{K}}/R_{2\ \text{K}} = 2.87$; 与文献 [35] 的结果趋势相似, 仅 RRR 有些差异, 可能与样品生长条件不同、掺杂浓度不同、电极接触电阻、或样品表面有氧化等有关. 图 2(d) 所示为 MoP 在 $2\ \text{K}$ 温度下测得的电阻随磁感应强度的变化曲线, 图 2(d) 中显示其电阻随磁场基本不变; 这也与文献 [35] 报道的数值有较大出入, 可能是同样原因造成, 或者系不同样品三重简并点离费米面距离不一样所致.

3 实验结果和讨论

为了验证实验装置的可靠性, 首先利用上述实验装置对拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 进行光电流探测实验, 成功观测到了对偏振依赖的光电流信号 (图 3). 图 3(a) 为光电流实验的示意图, α 为激光入射方向与样品表面法线的夹角, θ 为 $\lambda/4$ 波片旋转的角度,

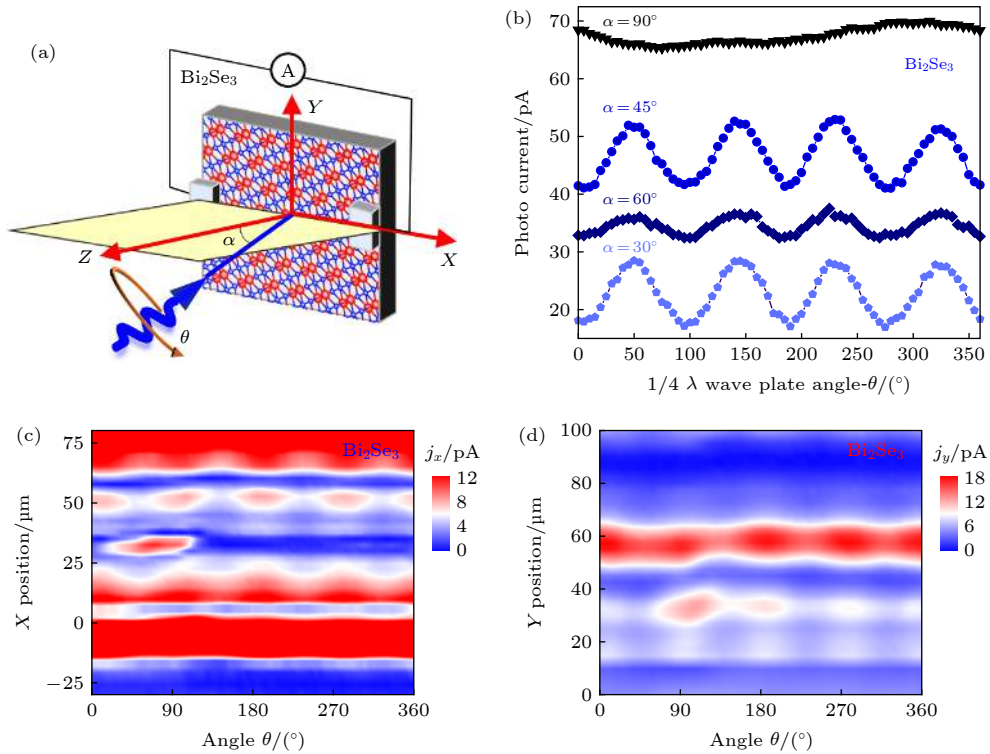


图 3 (a) 光电流实验示意图; (b) 不同入射角情形下 Bi_2Se_3 样品的光电流强度对激发光圆偏振度的依赖关系 (有 offset); (c) 光 45° 入射 Bi_2Se_3 样品情形下, 扫描 X 方向位置, 光电流强度对偏振的依赖关系图; (d) 光 45° 入射 Bi_2Se_3 样品情形下, 扫描 Y 方向位置, 光电流强度对偏振的依赖关系图

Fig. 3. (a) Schematic of the experimental geometry; (b) photocurrent intensity depending on the polarization of the laser beam under different incident angles, which is offset for clarity; (c) photocurrent intensity depending on the sample position along the X axis, where the incident angle of ultrafast pulses is 45° ; (d) photocurrent intensity depending on the sample position along the Y axis, with 45° incidence angle.

样品表面标记为 XY 平面. 图 3(b) 为不同 α 角度下光电流随 $\lambda/4$ 波片旋转角度的变化, 采用中心波长为 800 nm 的激光脉冲, 入射光斑相对于样品的位置 (对应图 3(a) 坐标) 为 (0 μm , 30 μm). 从图 3 可以看到, 其光电流随 θ 改变呈周期性变化, 说明光电流的强度受到了激发光偏振类型的周期性调制. 图 3(c), (d) 为激发光在 45° 入射下, 激光在 X 和 Y 方向的不同位置的光电流变化的彩图, 此图清楚地显示了不同位置下光电流受圆偏振周期性调制的特点, 从图 3(c), (d) 中可以看出, 在实验中探测到的电流由两部分组成, 一部分是与激光偏振类型无关, 仅与光斑位置有关的热电流; 另一部分是与激光偏振类型紧密相关的光电流. 本研究组的实验范式与国际上已经发表的工作相符, 观测到所测信号受到 $\lambda/4$ 波片调控 [32], 说明了实验方法的有效性. 本研究组实验报道了一种实验构型, 与文献 [32] 的图 2(b) 实验构型相符, 实验结果接近 (注: 文献 [32] 是 15 K 的实验结果, 本研究组的是室温结果), 与图 2(a),(c) 构型不同, 结果没有可比性. 在进行光电流实验及其所需样品与器件制备方面, 本研究组也积累了比较成熟的经验和技巧, 这为 MoP 的光电流实验探测提供了光学输运实验和样品器件制备两方面的基础.

接下来分别采用 800 和 400 nm 的激发光对 MoP 样品进行了类似的光电流实验. MoP 的晶体结构如图 4(a) 所示, 其空间群为 $P\bar{6}m2$, 具有 C_{3z} 旋转对称性和 M_y, M_z 两种镜像对称性 [5]. 图 4(a) 中, 紫色实心球为 P 原子, 位于 (0, 0, 0) 的顶点位置; 棕色实心球为 Mo 原子, 位于 (1/3, 2/3, 1/2) 的体内位置. 图 4(b) 为光激发样品时的空间位置示意图. 采用 800 nm 波长 (能量 1.55 eV) 和 400 nm 波长 (能量 3.1 eV) 的激光分别进行了光电流的实验, 其中入射角 $\alpha = 45^\circ$. 实验表明, 在 800 nm 激发下, 没有观察到光电流或热电流的信号; 在 400 nm 激发下, 观测到微弱的电流信号. 图 4(c) 中展示了该电流信号, 其中红色和蓝色小球分别代表在两个对称位置 P_1 和 P_2 处 (图 4(b)) 测得的电流强度, 作为对比同时展示了没有激光照射时的测量结果 (灰色小球). 在整个对比实验过程中, 实验室灯光是关闭的, 以剔除其他光源引起的电流效应. 图 4(c) 实验数据显示, 在没有激光照射下, 测量的均值为 0; 在有激光脉冲照射时, 在 P_1 和 P_2 两处测量到非零的电流信号 (红色和蓝色区域的中间深色横条为测量值的均值). 该电流信号是激光照射造成的样品电流, 我们认为是光照下样品表面形成了温度梯度, 进而引起的热电流, 理由有两点. 第一, 图 4(c) 的实验结果没有表现出电

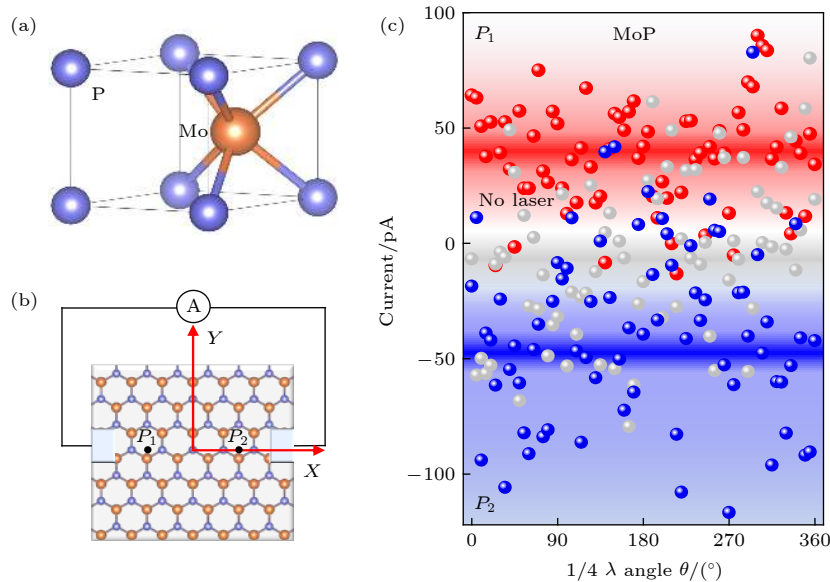


图 4 (a) MoP 样品的晶格结构示意图; (b) 光激发样品的光斑位置示意图; (c) 400 nm 超快激光照射 MoP 样品的 P_1 和 P_2 两个对称位置时, 分别测得的电流随偏振的依赖关系. 红色和蓝色代表 P_1 和 P_2 两个位置, 灰色为不加光照射时测得的电流

Fig. 4. (a) Schematic lattice structure of MoP, purple and brown spheres represent P and Mo atoms, respectively; (b) schematic diagram of the experiment illustrating the two photoexcitation positions on the sample; (c) polarization dependence of the current intensity at P_1 and P_2 under 400 nm light excitation. Solid dots in red and blue are current intensity data obtained at P_1 and P_2 , respectively. Gray dots donate the situation without any light excitation.

流信号对角度的依赖. 对图 4(c) 的数据进行傅里叶变换, 结果完全为噪声, 没有峰值迹象, 在目前实验噪声水平上可以确认没有角度依赖. 这与图 3(b) 的周期性实验结果不同, 说明没有观测到光电流的典型特征. 第二, 在 P_1 和 P_2 两处对称位置测得的电流信号绝对值相同, 方向相反, 这是热电流的典型特征.

分析在实验中未能在 MoP 单晶中观测到偏振依赖类型的光电流可能的原因有: 1) 虽然能量匹配, 但是其中只有很小一部分是直接或间接激发了三重简并点附近的电子, 在这一小部分电子中可能有一部分在室温下失去了拓扑特性, 剩余的部分自旋还受扩散等因素影响使得自旋寿命为有限, 最终的效果是使得探测光电流很具挑战性; 2) 电极制作技术不够精密, 接触电阻太大, 使得信号被淹没在背景之中, 但从较为成功的 Bi_2Se_3 对比实验看来, 这方面的影响并不是决定性的; 3) MoP 的表面存在杂质或者已经氧化; 4) 在该体系中, 外尔锥或三重简并锥不够倾斜, 不同的外尔锥附近的光激发载流子产生的电流相互抵消, 总的净电流为 0. 针对以上可能的原因, 为了进一步探测该体系中的光电流响应, 对于实验的方案进行了改进, 包括: 1) 选取更为合适的激发波长, 例如中远红外、THz 波段等, 但此方法面临拓扑量子态深埋于费米面以下等挑战; 2) 对样品电极制备进行更为精密的微加工处理, 进一步减小接触电阻; 3) 对样品表面进行抛光处理, 必要情况下尝试进行原位生长测量; 4) 增加对样品的外场调控, 诸如磁场、应力场等.

4 结 论

本研究组设计并搭建了超快圆偏振激光调控光电流的实验装置, 并成功在拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 中观测到了随 $\lambda/4$ 波片角度依赖的周期性变化的光电流信号, 说明实验装置的有效性和可靠性. 进一步对拓扑半金属 MoP 进行了光电流实验的初步探索, 在 400 nm 激光照射下明确地探测到了热电流信号, 为下一步在 MoP 中产生和调制光电流信号提供了重要的实验基础, 也为研究普遍的拓扑量子材料的光电流效应提供了更为广阔的空间.

参考文献

- [1] Armitage N P, Mele E J, Vishwanath A 2018 *Rev. Mod. Phys.* **90** 015001
- [2] Wan X G, Turner A M, Vishwanath A, Savrasov S Y 2011 *Phys. Rev. B* **83** 205101
- [3] Huang X C, Zhao L X, Long Y J, Wang P P, Chen D, Yang Z H, Liang H, Xue M Q, Weng H M, Fang Z, Dai X, Chen G F 2015 *Phys. Rev. X* **5** 031023
- [4] Bradlyn B, Cano J, Wang Z J, Vergniory M G, Felser C, Cava R J, Bernevig B A 2016 *Science* **353** 6299
- [5] Lü B Q, Feng Z L, Xu Q N, Gao X, Ma J Z, Kong L Y, Richard P, Huang Y B, Strocov V N, Fang C, Weng H M, Shi Y G, Qian T, Ding H 2017 *Nature* **546** 627
- [6] Chi Z H, Chen X L, An C, et al. 2018 *npj. Quantum. Materials* **3** 28
- [7] Zhu Z M, Winkler G W, Wu Q S, Li J, Soluyanov A A 2016 *Phys. Rev. X* **6** 031003
- [8] Tian Y C, Zhang W H, Li F S, Wu Y L, Wu Q, Sun F, Zhou G Y, Wang L L, Ma X C, Xue Q K, Zhao J M 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 107001
- [9] Wu Q, Zhou H X, Wu Y L, Hu L L, Ni S L, Tian Y C, Sun F, Zhou F, Dong X L, Zhao Z X, Zhao J M 2020 *Chin. Phys. Lett. (Express Letter)* **37** 097802
- [10] Toda Y, Kawanokami F, Kurosawa T, et al. 2014 *Phys. Rev. B* **90** 094513
- [11] Cao N, Long Y B, Zhang Z G, Gao L J, Yuan J, Zhao B R, Zhao S P, Yang Q S, Zhao J M, Fu P M 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 2543 (in Chinese) [曹宁, 龙拥兵, 张治国, 高丽娟, 袁洁, 赵伯儒, 赵士平, 杨乾生, 赵继民, 傅盘铭 2008 物理学报 **57** 2543]
- [12] Wu Y L, Yin X, Hasaien J, Ding Y, Zhao J M 2020 *Chin. Phys. Lett. (Express Letter)* **37** 047801
- [13] Hu L L, Yang M, Wu Y L, Wu Q, Zhao H, Sun F, Wang W, He R, He S L, Zhang H, Huang R J, Li L F, Shi Y G, Zhao J M 2019 *Phys. Rev. B* **99** 094307
- [14] Hsieh D, Mahmood F, Torchinsky D H, Cao G, Gedik N 2012 *Phys. Rev. B* **86** 035128
- [15] Sun F, Yang M, Yang M W, Wu Q, Zhao H, Ye X, Shi Y G, Zhao J M 2018 *Chin. Phys. Lett.* **35** 116301
- [16] Sun F, Wu Q, Wu Y L, Zhao H, Yi C J, Tian Y C, Liu H W, Shi Y G, Ding H, Dai X, Richard P, Zhao J M 2017 *Phys. Rev. B* **95** 235108
- [17] Wang M C, Qiao S, Jiang Z, Luo S N, Qi J 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 036601
- [18] Aku-Leh C, Zhao J M, Merlin R, Menéndez J, Cardona M 2005 *Phys. Rev. B* **71** 205211
- [19] Bragas A V, Aku-Leh C, Costantino S, Ingale A, Zhao J M, Merlin R 2004 *Phys. Rev. B* **69** 205306
- [20] Wu Y L, Wu Q, Sun F, Cheng C, Meng S, Zhao J M 2015 *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **112** 11800
- [21] Wu R, Zhang Y L, Yan S C, Bian F, Wang W L, Bai X D, Lu X H, Zhao J M 2011 *Nano Lett.* **11** 5159
- [22] Hu L L, Sun F, Zhao H, Zhao J M 2019 *Opt. Lett.* **44** 5214
- [23] Wu Y L, Zhu L L, Wu Q, et al. 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 241110
- [24] Wang W H, Wu Y L, Wu Q, Hua J J, Zhao J M 2016 *Sci. Rep.* **6** 107001
- [25] Tian Y C, Tian H, Wu Y L, Zhu L L, Tao L Q, Zhang W, Shu Y, Xie D, Yang Y, Wei Z Y, Lu X H, Ren T L, Shih C K, Zhao J M 2015 *Sci. Rep.* **5** 10582
- [26] Zhao J M, Bragas A V, Lockwood D J, Merlin R 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 107203
- [27] Zhao J M, Bragas A V, Merlin R, Lockwood D J 2006 *Phys. Rev. B* **73** 184434
- [28] Chan C K, Lindner N H, Refael G, Lee P A 2017 *Phys. Rev. B* **95** 041104

- [29] Morimoto T, Zhong S D, Orenstein J, Moore J E 2016 *Phys. Rev. B* **94** 245121
- [30] Juan F D, Grushin A G, Morimoto T, Moore J E 2017 *Nat. Commun.* **8** 15995
- [31] Morimoto T, Nagaosa N 2016 *Sci. Adv.* **2** e1501524
- [32] McIver J W, Hsieh D, Steinberg H, Herrero P J, Gedik N 2012 *Nat. Nanotech.* **7** 96
- [33] Ma Q, Xu S Y, Chan C K, Zhang C L, Chang G Q, Lin Y X, Xie W W, Palacios T, Lin H, Jia S, Lee P A, Herrero P J, Gedik N 2017 *Nat. Phys.* **13** 842
- [34] Ma J C, Gu Q Q, Liu Y N, Lai J W, Yu P, Zhuo X, Liu Z, Chen J H, Feng J, Sun D 2019 *Nat. Mater.* **18** 476
- [35] Kumar N, Sun Y, Nicklas M, et al. 2019 *Nat. Commun.* **10** 2475

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

Generation and control of photo-excited thermal currents in triple degenerate topological semimetal MoP with circularly polarized ultrafast light pulses*

Jiazila Hasaien^{1)2)#} Zhu Ke-Jia^{1)2)#} Sun Fei¹⁾²⁾ Wu Yan-Ling¹⁾
Shi You-Guo¹⁾³⁾ Zhao Ji-Min^{1)2)3)†}

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

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

3) (*Songshan Lake Materials Laboratory, Dongguan 523808, China*)

(Received 6 January 2020; revised manuscript received 6 April 2020)

Abstract

Ultrafast spectroscopy is a powerful method to generate and control topological phase transitions and spin-polarized electrical currents in topological quantum materials. These light-induced novel physical properties originate from the topologically nontrivial states of Dirac and Weyl fermions. The topological semimetal molybdenum phosphide (MoP) exhibits double and triple degenerate points in the momentum space. We present the preliminary results of spin-polarized electrical currents and optical response investigations of MoP. We design and construct an experimental setup to perform the photocurrent generation and control by circularly polarized light in topological insulator Bi₂Se₃. The results compare well with those reported, which confirms the validity and reliability of our experimental setup. Further, we conduct the photocurrent experiment on MoP by using 400 nm laser pulses for excitation and successfully detect the current signals at different sample positions. We attribute the observed currents to photo-induced thermal currents (not the photo current associated with the triple degenerate topological properties), which facilitates generating and controlling photocurrents in MoP in the future investigation. Our thermal current investigations are of essence for further exploring the photocurrents in various types of topological quantum materials.

Keywords: photocurrent, triple degenerate topological material, ultrafast spectroscopy, spin polarization

PACS: 78.47.J-, 03.65.Vf, 78.20.Ek, 78.20.nb

DOI: 10.7498/aps.69.20200031

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant Nos. 2017YFA0303603, 2016YFA0300303, 2017YFA0302901), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11574383, 11774408, 11774399), the Strategic Priority Research Program of Chinese Academy of Sciences, China (Grant No. XDB30000000), the International Partnership Program of CAS (Grant No. GJHZ1826), the Beijing Natural Science Foundation, China (Grant No. 4191003), and the CAS Interdisciplinary Innovation Team.

These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: jmzhao@iphy.ac.cn

$\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶自旋重取向的掺杂效应与磁控效应的太赫兹光谱

任壮 成龙 谢尔盖·固瑞特斯基 那泽亚·柳博奇科 李江涛 尚加敏 谢尔盖·巴里洛 武安华 亚历山大·卡拉什尼科娃 马宗伟 周春 盛志高

Terahertz spectroscopy study of doping and magnetic field induced effects on spin reorientation in $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ single crystals

Ren Zhuang Cheng Long Sergei Guretskii Nadzeya Liubochko Li Jiang-Tao Shang Jia-Min Sergei Barilo Wu An-Hua Alexandra Kalashnikova Ma Zong-Wei Zhou Chun Sheng Zhi-Gao

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 207802 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20201518

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201518>

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

稀土正铁氧体中THz自旋波的相干调控与强耦合研究进展

Research progress of coherent control of terahertz spin waves and strong coupling in rare-earth orthoferrites

物理学报. 2019, 68(16): 167501 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190706>

太赫兹雷达散射截面的仿真与时域光谱测量

Simulations and time-domain spectroscopy measurements for terahertz radar-cross section

物理学报. 2019, 68(16): 168701 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190552>

专题：太赫兹自旋光电子

Ho_{1-x}Y_xFeO₃ 单晶自旋重取向的掺杂效应与磁控效应的太赫兹光谱*

任壮¹⁾²⁾ 成龙¹⁾²⁾ 谢尔盖·固瑞特斯基³⁾ 那泽亚·柳博奇科³⁾ 李江涛⁴⁾
尚加敏⁴⁾ 谢尔盖·巴里洛³⁾ 武安华⁴⁾ 亚历山大·卡拉什尼科娃⁵⁾
马宗伟¹⁾ 周春¹⁾ 盛志高^{1)†}

1) (中国科学院合肥物质科学研究院, 强磁场科学中心, 合肥 230031)

2) (中国科学技术大学, 合肥 230026)

3) (白俄罗斯国家航空航天局, 科学实用材料研究中心, 明斯克 220072)

4) (中国科学院上海硅酸盐研究所, 上海 200050)

5) (俄罗斯约飞技术研究所, 圣·彼得堡 194021)

(2020 年 9 月 11 日收到; 2020 年 9 月 24 日收到修改稿)

利用自研的磁场下太赫兹时域光谱 (terahertz time-domain spectroscopy, THz-TDS), 系统研究了磁场与非磁性 Y³⁺ 离子掺杂对 HoFeO₃ 单晶中自旋态以及自旋重取向的影响. 结果表明 Y³⁺ 掺杂可以在不改变自旋重取向类型情况下, 有效降低自旋重取向温区, 而且还能降低 Ho_{1-x}Y_xFeO₃ 单晶中低温区准铁磁模式 (q-FM, quasi-ferromagnetic mode) 自旋共振频率以及提升高温区的准反铁磁模式 (q-AFM, quasi-antiferromagnetic mode) 自旋共振频率. 在沿 (110) 方向施加外加磁场 (H_{DC}) 的情况下, 一方面, 发现磁场不仅能有效调控 Ho_{1-x}Y_xFeO₃ 单晶中的 q-FM 共振频率, 而且还能诱导出自旋重取向; 另一方面, 发现温度越接近自旋重取向温区时, 磁诱导自旋重取向的发生越容易, 而且磁诱导效应的临界磁场强度随 Y³⁺ 离子掺杂浓度而增加. 研究表明, THz 光谱数据可以用于检测 HoFeO₃ 中 Y³⁺ 离子的掺杂浓度, 而且 Y³⁺ 掺杂可以使 HoFeO₃ 晶体中的自旋态更加稳定, 不容易受外界磁场的影响. 这一自旋重取向的掺杂效应、磁控效应的研究将有助于理解稀土正铁氧体中的自旋交换作用及其外场调控机制.

关键词: 太赫兹时域光谱, 稀土正铁氧体, 自旋重取向, 自旋共振**PACS:** 78.47.J-, 76.30.Kg, 75.30.Kz, 76.50.+g**DOI:** 10.7498/aps.69.20201518

1 引言

因具有磁光效应、超快磁翻转、多铁性和自旋重取向相变等新奇的物理特性, 稀土正铁氧体 RFeO₃ (R 表示 Y 或稀土元素) 已经成为凝聚态物

理的热点研究对象之一^[1-8]. RFeO₃ 材料中有两种磁性离子: R³⁺ 和 Fe³⁺ 离子. 它们之间存在三种磁相互作用, 分别存在于 Fe³⁺-Fe³⁺, R³⁺-Fe³⁺ 以及 R³⁺-R³⁺ 之间^[9-13]. 这三种作用相互竞争, 产生了丰富的磁相变. 其中一种常见而又有趣的磁相变就是自旋重取向, 也就是 RFeO₃ 材料中的自旋矢量会随

* 国家重点研发计划 (批准号: 2016YFA0401803, 2017YFA0303603)、中国科学院前沿科学重点研究项目 (批准号: QYZDB-SSW-SLH011)、国家自然科学基金 (批准号: 11574316, 51872309, 61805256, 11904367, U1832106, 52011530018)、中国科学院俄乌白特别交流计划、上海市科委科技基金 (批准号: 19520710900) 和白俄罗斯-中国研究框架中的白俄罗斯基础研究基金 (批准号: F20CN-021) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhigaosheng@hmfl.ac.cn

着温度等外场变化而出现重新排布的现象^[8,14–20]. 这一现象一般认为是铁离子 (Fe^{3+}) 和稀土离子 (R^{3+}) 之间的弱相互作用, 以及它们各自子格子磁性行为的 inconsistency 造成的^[8,17]. 自旋重取向代表着自旋态的转变, 不仅可以作为自旋电子学器件中信息的载体, 而且其衍生效应可以为深入挖掘磁性物理机制提供基础. 为此, 自旋重取向相变成为了 $R\text{FeO}_3$ 研究中的重要内容, 吸引了广泛的关注^[1,3,14,21–23].

一方面, 人们不断探索不同 $R\text{FeO}_3$ 体系中自旋重取向相变的不同特征; 另一方面, 人们希望通过各种手段实现对自旋重取向相变的调控, 比如元素掺杂、外场调控等, 以期获取调控规律与潜在应用基础. 已有研究表明, R 位的元素掺杂能有效改变 R^{3+} - Fe^{3+} 交换作用能量, 从而可以调控 $R\text{FeO}_3$ 的自旋重取向温区^[9,19,21,24–26]. 元素掺杂一般分为磁性离子掺杂和非磁性离子掺杂. $R\text{FeO}_3$ 体系的磁性离子掺杂中最为典型是 Sm^{3+} 离子. SmFeO_3 本身也在 $R\text{FeO}_3$ 体系中具有最高的自旋重取向温度 (T_{SR} 约为 480 K). 目前, 人们认为 $\text{Sm}_x\text{R}_{1-x}\text{FeO}_3$ 是实现室温的自旋重取向的最佳材料^[9,11,24,26]. 例如, Wang 等^[11] 生长了高质量的 $\text{Sm}_{0.7}\text{Tb}_{0.3}\text{FeO}_3$ 单晶, 自旋重取向的温区为 330–360 K. 随后, Liu 等^[24] 发现在 Sm^{3+} 离子掺杂的 DyFeO_3 单晶样品中, 样品的自旋重取向温区随着 Sm^{3+} 离子掺杂浓度上升而线性上升. 对于非磁性离子掺杂, 新掺入的离子不会与 Fe^{3+} 产生新的交换作用. 因此在非磁性离子掺杂的 $R\text{FeO}_3$ 中, 能更方便地分析 Fe^{3+} - R^{3+} 交换作用对于自旋重取向相变的影响. 在掺杂的非磁性离子中, Y^{3+} 是常见的一种^[13,25]. 例如 2018 年, Li 等^[25] 系统研究了不同浓度 Y^{3+} 掺杂的 ErFeO_3 单晶样品中不同温度磁场下的太赫兹 (terahertz, THz) 吸收谱, 证明了样品中存在着迪克协作耦合效应.

除了掺杂 (化学压力), 磁场是另一种常见的、用于调控 $R\text{FeO}_3$ 中自旋重取向相变的手段^[27–30]. 例如, Jiang 等^[28] 利用太赫兹光谱发现, 外加磁场诱导下的 NdFeO_3 单晶中的自旋重取向转变具有强烈的各向异性, 这取决于外加磁场的方向. Guo 等^[27] 研究了 TmFeO_3 单晶中外加磁场分别沿 a 或 c 轴施加时, 准铁磁模式 (q-FM, quasi-ferromagnetic mode) 的共振频率上升或下降, 而准反铁磁模式 (q-AFM, quasi-antiferromagnetic mode) 的共振频率几乎不变. Amelin 等^[23] 研究了 YFeO_3 单晶

中低温磁场下的太赫兹吸收谱, 在 3 K 的温度下沿 a 轴施加到 6.2 T 的磁场可以诱导自旋重取向转变发生. 值得注意的是由于 Y^{3+} 是非磁性离子, YFeO_3 中没有产生温度诱导的 Fe^{3+} 离子的自旋重取向过程.

既然元素掺杂与外加磁场都能有效地调控 $R\text{FeO}_3$ 体系中的自旋重取向相变, 那么探索两种方法的差异与其共同作用效果是非常有意义的. 据我们所知, 这一思路还未有人提出. 本文采用太赫兹光谱, 系统研究了变温条件下磁场、非磁性 Y^{3+} 离子掺杂对 HoFeO_3 单晶中 q-FM 和 q-AFM 的共振频率以及自旋重取向的影响. 研究表明非磁性 Y^{3+} 离子的掺入不仅能改变 q-FM 和 q-AFM 的共振频率, 而且能移动自旋重取向发生的温区. 另外, 我们还发现外加磁场不仅能有效地调控 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶中的 q-FM 共振频率, 而且还能诱导出自旋重取向.

2 实验方法

实验中用到的单晶 HoFeO_3 , $\text{Ho}_{0.8}\text{Y}_{0.2}\text{FeO}_3$ 和 $\text{Ho}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{FeO}_3$ 采用助溶剂法^[31] 生长获得. 为了有效地获得这些单晶样品中自旋波及其自旋重取向过程, 本文选择了太赫兹时域光谱 (terahertz time-domain spectroscopy, THz-TDS) 技术. 该技术是研究磁性材料的自旋共振和自旋重取向最有效的方法之一, 并且由于 THz 脉冲具有非常小的光子能量 (1 THz, 约为 4.1 meV), 其热效应可以被忽略^[14,32–35].

本文的 THz-TDS 光谱实验是在中国科学院强磁场科学中心自主研制的变温磁场下 THz-TDS 测试系统中完成的. 该系统的温度变化范围为 5–350 K; 磁场变化范围为 0–8 T. 系统所用的光源是 Menlo Systems 公司的飞秒光纤激光器, 输出的中心波长为 780 nm, 脉冲宽度为 120 fs, 重复频率为 80 MHz. 激光被分为两束, 一束作为 THz 脉冲产生光, 聚焦到光电导天线上产生宽谱 THz 脉冲. 透射的 THz 光通过离轴抛物镜改变方向和第二束激光同时聚焦到厚度为 2 mm, (110) 取向的 ZnTe 晶体上, 利用电光取样技术探测 THz 信号. 有效的光谱范围为 0.1–1.5 THz. 在测量过程中, THz 脉冲垂直入射到样品上, 并且所有的样品都固定到一个直径为 2.5 mm 的金属孔上.

选取了 (110) 取向的 HoFeO_3 , $\text{Ho}_{0.8}\text{Y}_{0.2}\text{FeO}_3$ 和 $\text{Ho}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{FeO}_3$ 单晶用于 THz-TDS 光谱测量, 厚度分别为 0.5, 0.8 和 0.8 mm, 所有的样品都进行了双面抛光.

3 结果与讨论

HoFeO_3 具有扭曲的钙钛矿结构, 可以用空间群 $D_{2h}^{16}\text{-Pbnm}$ 来描述^[16]. 其中 Fe^{3+} 自旋在奈尔温度 ($T_N = 647 \text{ K}$) 以下反铁磁有序, 由于 Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用导致两套磁亚晶格的磁化 $\mathbf{S}_1$ 和 $\mathbf{S}_2$ 具有约 0.5° 的相对倾斜角度, 并且晶体中具有两种自旋共振模式: 准反铁磁模式 (q-AFM, quasi-antiferromagnetic mode) 和准铁磁模式 (q-FM, quasi-ferromagnetic mode)^[36]. 这两种共振模式的频率都在 THz 范围内, 因此采用 THz 吸收谱可以有效地探测出 q-FM 和 q-AFM 的共振频率及其变化规律, 从而分析出样品中的自旋状态.

HoFeO_3 中倾斜的反铁磁结构导致了非零的铁磁净磁矩 $\mathbf{M} = \mathbf{S}_1 + \mathbf{S}_2$ 和 G 型反铁磁磁矩 $\mathbf{L} = \mathbf{S}_1 - \mathbf{S}_2$. 在自旋重取向转变的温度范围内, HoFeO_3 单晶具有多个磁相变, 其中 T_3 , T_2 和 T_1 ($T_3 < T_2 < T_1$) 分别对应 $\Gamma_2 \rightarrow \Gamma_{12}$, $\Gamma_{12} \rightarrow \Gamma_{24}$, 和 $\Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_4$ 磁相变的特征温度点^[16,20,36]. 当温度 $T < T_3$ 时, 晶体处于 Γ_2 相, $\mathbf{L}$ 平行于晶体的 c 轴, $\mathbf{M}$ 平行于 a 轴. 当 THz 脉冲的磁场分量与 c 轴平行 ($\mathbf{H}_{\text{THz}} // c$), 晶体中的 Γ_2 相对应 q-FM 共振模将被太赫兹谱观察到 (见图 1(a) 中的红色虚线). 从变温的结果可以看到, 该 q-FM 共振模的频率随着温度的上升而下降. 当样品温度上升到 $T_3 < T < T_2$ 温区时, $\mathbf{L}$ 向 (100) 面逐渐旋转, 最终与 c 轴夹角 θ 约为 30° , 此时晶体处于 Γ_{12} 相. 当 $T = T_2$ 时, 晶体发生一阶相变, 反铁磁磁矩矢量突然转向 (010) 面并且保持与 c 轴的夹角 θ , 这种转变导致 $\mathbf{M}$ 从 a 轴转向 c 轴, 沿 c 轴方向出现了非零的净磁矩^[20,36]. 由于在 $\Gamma_2 \rightarrow \Gamma_{12}$ 相变过程中, q-FM 共振频率一直随着温度上升而下降, 并没有明显转变点. 因此, 我们无法确定 $\Gamma_2 \rightarrow \Gamma_{12}$ 相变的转变点^[16,20]. 随着样品温度继续上升至 $T_2 < T < T_1$ 时, $\mathbf{L}$ 从 (010) 面逐渐转向 a 轴, 此时晶体处于 Γ_{24} 相. 当温度 $T_1 < T < T_N$ 时, 晶体处于 Γ_4 相, $\mathbf{L}$ 平行于晶体的 a 轴, $\mathbf{M}$ 平行于 c 轴. 当 $\mathbf{H}_{\text{THz}} // c$ 轴, 样品中 Γ_4 相对应 q-AFM 共振模将被太赫兹谱观察到 (见图 1(a)

中的蓝色虚线). 从变温的结果可以看到, 该 q-AFM 共振模的频率随着温度的上升而上升. 这一结果充分表明, THz 光谱能有效的探测 RFeO_3 体系中的自旋共振与自旋重取向行为.

伴随着 Y^{3+} 的掺入, HoFeO_3 晶体中自旋态的行为略有变化. 由于 Y^{3+} 具有满壳层的电子而不显示磁性, Y^{3+} 的掺杂可以在不引入新的磁结构的情况下降低 $\text{Ho}^{3+}\text{-Fe}^{3+}$ 交换作用的整体强度, 从而会降低自旋重取向转变的温区^[13,23,29]. 我们采用 THz-TDS 透射谱详细研究了不同 Y^{3+} 掺杂浓度下的 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 中的 q-AFM 和 q-FM 共振峰随温度的变化关系 (图 1). 与未掺杂样品的测试条件一致, 太赫兹脉冲的磁场分量与 c 轴平行 ($\mathbf{H}_{\text{THz}} // c$ 轴), 在 Γ_2 和 Γ_{12} 相中激发和探测的是 q-FM 共振峰, 而在 Γ_4 相中激发和探测的是 q-AFM 共振峰. 为了方便, 在这里定义 q-FM 共振峰频率的最低点为 $\Gamma_{12} \rightarrow \Gamma_{24}$ 相变的转变点 T_2 , q-AFM 共振峰频率的最低点为 $\Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_4$ 相变的转变点 T_1 .

通过三个样品的太赫兹光谱测量, 观察到了 Y^{3+} 掺杂对 HoFeO_3 晶体中自旋共振频率与自旋重取向温区的影响. 为了更好地呈现出不同掺杂浓度样品的自旋共振、自旋重取向随温度变化规律, 需要提取样品中自旋波吸收谱. 由于样品在不同温度下的吸收率可以通过 THz 波穿过样品的 THz 幅值 E_S 与自由空间的 THz 幅值 E_R 得出, $(E_S/E_R)^2 = (1-R)^2 \exp(-\alpha d)$ ^[23], 其中 R 为反射系数, α 为吸收系数, d 为样品厚度. 因此样品的吸收率 $A_S = \alpha d = -2 \ln\{E_S/[E_R(1-R)]\}$. 若样品在不同温度下的反射率不变, 可以计算出自旋波的共振吸收谱 $A_{\text{SW}} = A_S - A_0 \propto 1 - (E_S/E_0)$, 其中 E_0 为基线. 在 Y^{3+} 掺杂为 0, 0.2, 0.4 的样品中分别在 60, 45 和 40 K 时, 自旋共振吸收消失, 因此选择这些数据作为基线. 最后基线的吸收率 A_0 可以通过去除 $(E_S/E_0) - 1$ 中的负数值来得出. 样品中自旋波共振吸收峰随温度变化关系详见图 1(d)–(f). 从图 1(d)–(f) 中可以清晰看到低温区 (Γ_2 相) 的 q-FM 共振峰频率随着温度的上升而下降; 高温区 (Γ_4 相) 的 q-AFM 共振峰频率随着温度的上升而上升. 这一特征对于不同掺杂浓度的样品都是适用的.

通过进一步观察, 发现 Y^{3+} 掺杂对 HoFeO_3 晶体中自旋态的影响体现在两个方面. 第一个方面是对共振频率的影响. 在 10 K 时, Y^{3+} 掺杂浓度为 0, 0.2 和 0.4 的共振峰分别出现在 0.63, 0.61 和 0.50 THz,

对应激发的是 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 中 q-FM 模. 这表明 Γ_2 相 q-FM 的自旋共振频率随着 Y^{3+} 掺杂浓度上升而下降. 当温度上升到 80 K 时, Y^{3+} 掺杂浓度为 0, 0.2 和 0.4 的共振峰分别出现在 0.34, 0.37 和 0.42 THz, 对应激发的是 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 中的 q-AFM 模. 这表明 Γ_4 相 q-AFM 的自旋共振频率随着 Y^{3+} 掺杂浓度上升而上升. 当温度 80 K 上升至 300 K 时, q-AFM 共振峰频率分别从 0.34, 0.37 和 0.42 THz 上升至 0.56, 0.57 和 0.56 THz, 并且吸收率上升, 所有单晶都稳定在 Γ_4 相, 且它们的共振频率基本相同.

第二个方面是对自旋重取向温区的影响. 当温度从 10 K 上升至 30 K 时, q-FM 共振峰频率下降, 吸收率基本保持不变, 样品处于 Γ_2 相. 对于

Y^{3+} 掺杂浓度为 0, 0.2 和 0.4 的单晶, q-FM 共振峰分别在温度大于 50, 40 和 30 K 时消失, 对应单晶中发生了 $\Gamma_{12} \rightarrow \Gamma_{24}$ 相转变. 当温度继续上升至 80, 55 和 45 K 时, Y^{3+} 掺杂浓度为 0, 0.2 和 0.4 的 q-AFM 共振峰出现, 对应单晶中发生了 $\Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_4$ 相转变. 这一结果表明, 0, 0.2 和 0.4 的 Y^{3+} 掺杂浓度分别可以使单晶的自旋重取向温区从 50—80 K 下降至 40—55 K 再下降至 30—45 K. 为了进一步对比 Y^{3+} 掺杂对样品自旋态的影响, 提取了 HoFeO_3 , $\text{Ho}_{0.8}\text{Y}_{0.2}\text{FeO}_3$ 和 $\text{Ho}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{FeO}_3$ 中 q-AFM 和 q-FM 共振频率随温度的变化关系, 如图 2 所示. 可以清晰地看到, Y^{3+} 掺杂不仅可以降低低温下 q-FM 共振峰频率以及提升高温下 q-AFM 共振峰频率, 而且可以使得自旋重取向温区向低温移动.

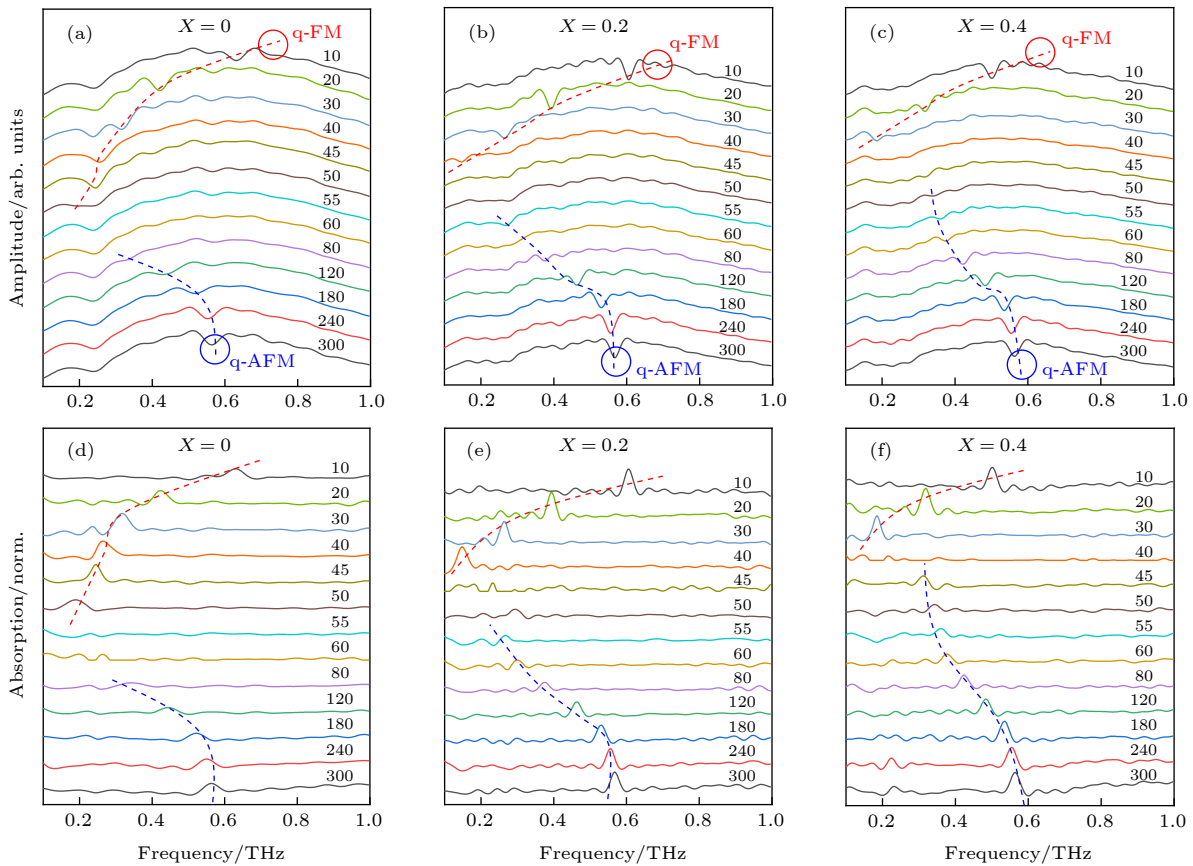


图 1 (a)–(c) 不同温度下 (110) 取向的 HoFeO_3 , $\text{Ho}_{0.8}\text{Y}_{0.2}\text{FeO}_3$ 和 $\text{Ho}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{FeO}_3$ 单晶的 THz 透射谱, 入射的太赫兹磁场分量 ($\mathbf{H}_{\text{THz}}$) 平行于晶体的 c 轴, 图中红色和蓝色虚线分别帮助识别准铁磁模式 (q-FM) 共振峰和准反铁磁模式 (q-AFM) 共振峰; (d)–(f) 不同 Y^{3+} 掺杂浓度单晶中的自旋波共振吸收谱随温度的关系. 图中的红色和蓝色的虚线分别代表低温下 q-FM 共振峰和高温下 q-AFM 共振峰随温度的变化

Fig. 1. (a)–(c) THz transmission spectra of the (110) HoFeO_3 , $\text{Ho}_{0.8}\text{Y}_{0.2}\text{FeO}_3$, and $\text{Ho}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{FeO}_3$ single crystals measured at different temperatures, the incident THz magnetic component ($\mathbf{H}_{\text{THz}}$) is aligned along c -axis of the crystal. The dashed red and blue lines are guides to the eye for identifying the quasi-ferromagnetic mode (q-FM) and quasi-antiferromagnetic mode (q-AFM) resonant peaks, respectively; (d)–(f) temperature dependence of THz spin wave resonance absorption spectra of single crystals with different Y^{3+} doping levels. The red dotted lines in the figures represent q-FM resonant absorption peaks change with temperature at low temperature, and the blue dotted lines represent q-AFM resonant absorption peaks change with temperature at high temperature.

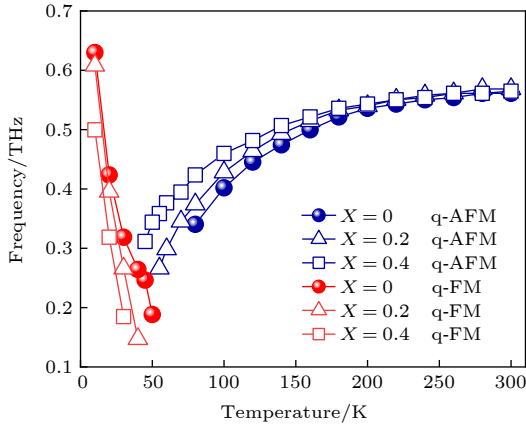


图2 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 中 q-AFM 和 q-FM 共振频率随温度的变化关系, 圆圈、三角和正方形标记分别代表 Y^{3+} 离子掺杂浓度为 0, 0.2 和 0.4 的 (110) 取向的单晶中的共振频率

Fig. 2. The temperature dependence of q-AFM and q-FM resonant frequencies in $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$. Circle, triangle and square markers show resonant frequencies in single crystals with Y^{3+} dopant concentration of 0, 0.2 and 0.4.

q-AFM 和 q-FM 共振频率随温度的变化趋势可以用各向异性性能机制解释^[16]:

$$\Gamma_4 : \begin{cases} \omega_{\text{FM}} = \frac{\gamma}{2\pi}(2H_E K_{ac}/M_0)^{1/2}, \\ \omega_{\text{AFM}} = \frac{\gamma}{2\pi}(2H_E K_{ab}/M_0)^{1/2}, \end{cases} \quad (1)$$

$$\Gamma_2 : \begin{cases} \omega_{\text{FM}} = \frac{\gamma}{2\pi}(2H_E K_{ca}/M_0)^{1/2}, \\ \omega_{\text{AFM}} = \frac{\gamma}{2\pi}(2H_E K_{cb}/M_0)^{1/2}, \end{cases} \quad (2)$$

其中 γ 为旋磁比; H_E 为交换场; M_0 为饱和磁矩; K_{ac} , K_{ab} , K_{ca} 和 K_{cb} 为各向异性常数. 当温度从 $T_2 > T > 10$ K 时, K_{ca} 逐渐下降, q-FM 频率逐渐软化. 当 $T > T_2$ 时, K_{ca} 接近 0, q-FM 模式共振峰消失, 单晶发生 $\Gamma_{12} \rightarrow \Gamma_{24}$ 转变. 当温度 $T = T_1$ 时, q-AFM 共振峰出现, 单晶发生 $\Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_4$ 转变, 当样品温度继续上升 $300 \text{ K} > T > T_1$ 时, K_{ab} 增加, q-AFM 频率硬化, 样品稳定在 Γ_4 相. 由于 Y^{3+} 是无磁性的, 与 Fe^{3+} 间无交换作用, Y^{3+} 掺杂只会降低 Ho^{3+} - Fe^{3+} 交换作用能而不会改变 HoFeO_3 中自旋重取向类型. 因此在升温过程中, Y^{3+} 掺杂浓度越高的单晶中的 Ho^{3+} - Fe^{3+} 交换作用能会在越低温度就降低到与 Fe^{3+} - Fe^{3+} 各向异性性能相近从而发生自旋重取向. 如果采用其他离子掺杂也可能有效改变自旋重取向温区, 例如稀土离子 Sm^{3+} 掺杂, 由于在高温下 Sm^{3+} - Fe^{3+} 交换作用能远高于 Ho^{3+} - Fe^{3+} 交换作用能^[9,26], 因此可能会提升 HoFeO_3 中自旋重取向温区; 如果采用稀土离子 Dy^{3+} 掺杂, 可能会

改变 HoFeO_3 的自旋重取向类型, 如 $\text{Dy}_{0.5}\text{Pr}_{0.5}\text{FeO}_3$ 发生了 $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_1 \rightarrow \Gamma_2$ 转变, 而 DyFeO_3 或 PrFeO_3 只能分别发生 $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_1$ 转变或 $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_2$ 转变^[10]. 而当 Y^{3+} 掺杂后, HoFeO_3 的自旋重取向温区下降而自旋重取向类型不变, 这种现象与 $\text{Er}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 中一致^[13]. 而且在温度小于 30 K 时, Ho^{3+} - Fe^{3+} 的交换作用能与 Fe^{3+} - Fe^{3+} 各向异性性能间的差值会随着 Y^{3+} 掺杂浓度上升而减小, 从而导致了 K_{ca} 的降低, 此时 Y^{3+} 掺杂浓度越大, q-FM 共振频率越低; 但是在温度大于 80 K 后, 由于 Ho^{3+} - Fe^{3+} 的交换作用能大于 Fe^{3+} - Fe^{3+} 各向异性性能, Ho^{3+} - Fe^{3+} 的交换作用能与 Fe^{3+} - Fe^{3+} 各向异性性能间的差值会增加, 从而导致了 K_{ab} 的增加, 因此相同温度下, Y^{3+} 掺杂浓度越大, q-AFM 共振频率越高; 但是随着温度的继续上升至远高于自旋重取向温区 ($T = 300$ K) 时, Ho^{3+} - Fe^{3+} 的交换作用能降低至接近零, K_{ab} 完全取决于 Fe^{3+} - Fe^{3+} 各向异性性能, 由于 Fe^{3+} - Fe^{3+} 各向异性性能几乎不随掺杂浓度变化导致 300 K 时, 不同 Y^{3+} 掺杂浓度的 q-AFM 共振频率几乎相等. Y^{3+} 掺杂有效降低了 Ho^{3+} - Fe^{3+} 的交换作用能导致高温下 K_{ab} 降低和低温下 K_{ca} 增加, 从而不仅使 HoFeO_3 的自旋重取向温区下降, 而且使低温 ($T \leq 30$ K) 下 q-FM 共振频率降低以及高温 ($80 \text{ K} \leq T < 300$ K) 下 q-AFM 共振频率提升.

在讨论了 Y^{3+} 掺杂浓度对 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶中自旋共振模式、自旋重取向的影响之后, 接下来探索磁场对该体系自旋态的作用. 我们关注的重点是利用磁场诱导 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶发生自旋重取向, 以及发生自旋重取向过程中磁场强度对不同 Y^{3+} 掺杂浓度单晶中的 q-AFM 模式和 q-FM 模式共振峰的影响. 在 RFeO_3 单晶中, 沿反铁磁矢量 $\mathbf{L}$ 方向施加磁场通常会诱导自旋重取向的发生^[23,27]. 在低温 Γ_2 相时 ($\mathbf{L} // \mathbf{c}$), 沿 $\mathbf{c}$ 轴施加一定大小的磁场会抵消沿 $\mathbf{c}$ 轴方向的各向异性性能, 从而在 K_{ca} 和 K_{cb} 不为 0 的情况下诱导样品发生 $\Gamma_2 \rightarrow \Gamma_4$ 转变, 此时 q-FM 频率降至最低点后消失, q-AFM 出现; 沿 $\mathbf{b}$ 轴施加磁场对样品几乎无影响; 在高温 Γ_4 相时 ($\mathbf{L} // \mathbf{a}$); 沿 $\mathbf{a}$ 轴施加一定磁场同样会在 K_{ac} 和 K_{ab} 不为 0 的情况下诱导样品发生 $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_2$ 转变, 此时 q-AFM 消失, q-FM 出现并且频率上升. 由于临近自旋重取向温区时, q-AFM 共振峰吸收率较弱, 而 q-FM 具有较强的吸收峰, 因此在 Γ_4 相沿 $\mathbf{c}$ 轴施加磁场, 发生自旋重取向后

Γ_2 相的 q-FM 模式比较容易观察到, 因此选择沿 a 轴有投影分量的 (110) 方向施加磁场.

如图 3(a), (e), (i) 所示, 当温度 $T = 20$ K 时, 不同 Y^{3+} 掺杂浓度的 $Ho_{1-x}Y_xFeO_3$ 单晶均处于 Γ_2 相, q-FM 共振峰频率随着磁场增强而线性上升, 铁磁矢量 $\mathbf{M}/a$ 且不发生翻转. 这一特征与相关文献中 $TmFeO_3$ 和 $YFeO_3$ 随磁场的变化一致^[23,27]. 当样品处于高温下 (约 100 K), $Ho_{1-x}Y_xFeO_3$ 单晶均处于 Γ_4 相, 0—2.5 T 的磁场范围内, 虽然 q-AFM 的共振强度略有下降, 但其共振频率基本保持不变 (如图 3(d), (h), (l) 所示). 这是 $Ho_{1-x}Y_xFeO_3$ 分别处于稳定的 Γ_2 相和 Γ_4 相的情况. 当 $Ho_{1-x}Y_xFeO_3$ 单晶处于或接近自旋重取向温区时, 磁场的作用则更为有趣. 我们发现在这一温区磁场不仅能有效调

控自旋共振频率, 还能诱导自旋重取向. 如图 3(b) 所示, 当未掺杂的 $HoFeO_3$ 单晶在 45 K 时, 随着磁场强度增加, Γ_{12} 相对应的 q-FM 共振频率缓慢减小. 当磁场增加到 1 T 时, 发生磁场诱导的自旋重取向 ($\Gamma_{12} \rightarrow \Gamma_2$) 相变. 伴随着磁场强度的进一步增加, Γ_2 对应的 q-FM 共振频率增加, 这与低温 (20 K) 下 Γ_2 相的行为一致. 对于 Y^{3+} 掺杂的 $Ho_{1-x}Y_xFeO_3$ 单晶, 在小磁场和 45 K 条件下的 THz 谱测量不到自旋共振模 (图 3(f), (j)). 当磁场增加到 1 T 时, Γ_2 相对应的 q-FM 共振模开始出现. 这一现象表明, 1 T 的磁场诱导出了自旋重取向. 随着磁场进一步增加, Γ_2 对应的 q-FM 共振频率增加. 从以上实验结果可以看出温度越接近自旋重取向温区, 磁场越容易诱导自旋重取向的发生.

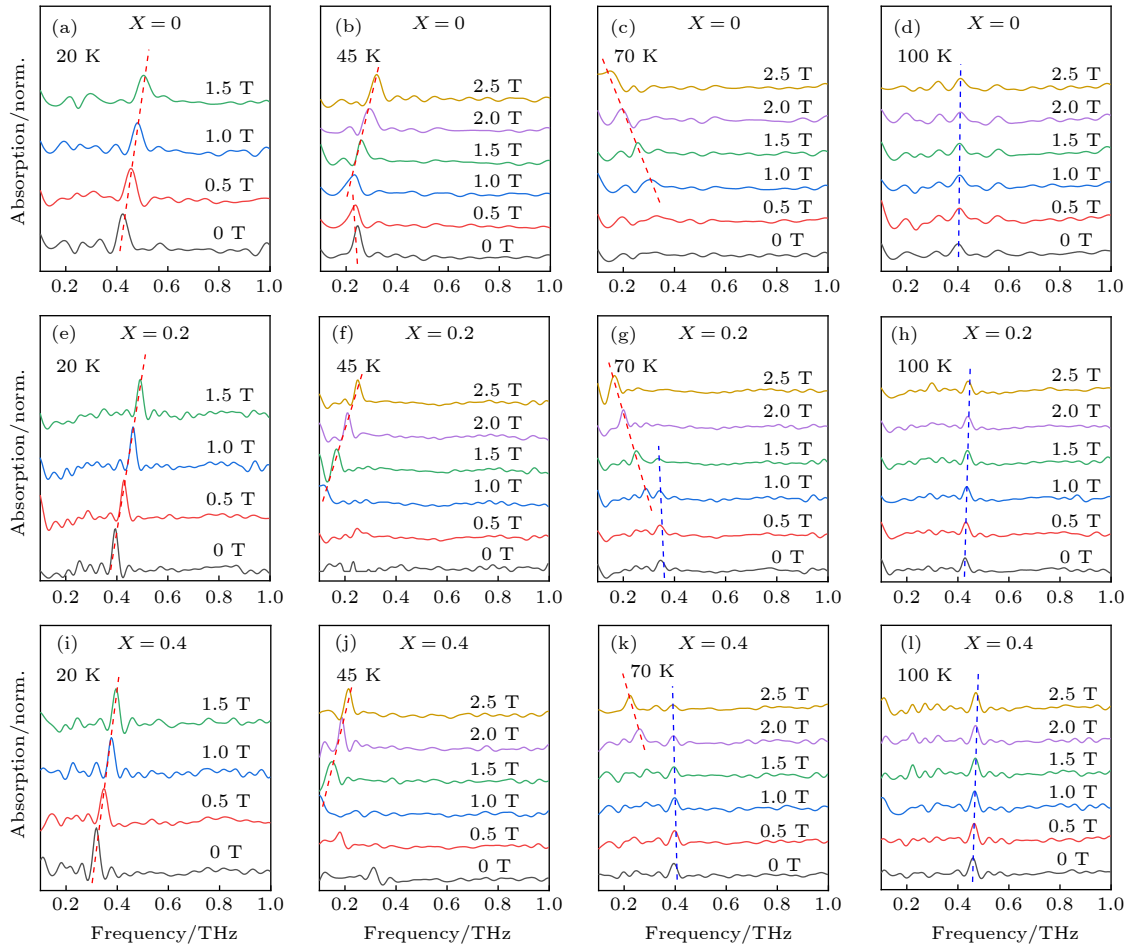


图 3 (a)–(l) $Ho_{1-x}Y_xFeO_3$ 单晶中在不同温度下随磁场变化的自旋波共振吸收谱, 入射的太赫兹磁场分量 ($\mathbf{H}_{THz}$) 平行于晶体的 c 轴, 外加磁场 $\mathbf{H}_{DC}$ 沿晶体的 [110] 方向, 蓝色和红色的虚线分别表示 q-AFM 共振峰和 q-FM 共振峰随磁场的变化

Fig. 3. (a)–(l) Magnetic field dependence of THz spin wave resonance absorption spectra of $Ho_{1-x}Y_xFeO_3$ single crystals measured at different temperatures. The incident THz magnetic component ($\mathbf{H}_{THz}$) is aligned along c -axis of crystals, and the external magnetic field $\mathbf{H}_{DC}$ is applied along [110] axis of crystals. The blue and red dotted lines are q-AFM and q-FM resonant absorption peaks change with the applied magnetic field, respectively.

这是由于温度越接近自旋重取向温区, Ho^{3+} - Fe^{3+} 交换作用能就越接近 Fe^{3+} - Fe^{3+} 各向异性, 导致各项异性常数 K_{ac} 和 K_{ab} 更接近 0, 因此只需要很小的磁场就能诱导自旋重取向的发生.

在讨论完低温相变区 ($T = 45 \text{ K}$) 附近的磁场效应之后, 接下来让我们探索 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶在高温相变区的磁控现象. 在 70 K 这一特征温度下, 未掺杂的 HoFeO_3 单晶处于自旋重取向 ($\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{24}$) 相变的临界状态附近. 虽然自旋基态为 Γ_4 相, 但其对应的 q-AFM 自旋波强度很弱. 如图 3(c) 所示, HoFeO_3 单晶在小磁场 THz 谱中不能观察到明显的自旋共振模. 当磁场增加到 1 T 时, Γ_{24} 相对应的 q-FM 共振模开始出现. 这表明, 1 T 的磁场诱导出了自旋重取向 ($\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{24}$) 相变. 随着磁场强度进一步增加, Γ_{24} 对应的 q-FM 共振频率线性降低. 对于 Y^{3+} 掺杂的 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶, 情况略有不同. 如图 2 所示, 在 Y^{3+} 掺杂浓度为 0.2 和 0.4 的 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶中, 相变温度 $T_1(\Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_4)$ 分别为 $55, 45 \text{ K}$. 因此, 70 K 温度 ($> T_1$) 下的 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶的自旋基态为稳定的 Γ_4 相. 如图 3(g), (k) 所示, 零场和小磁场条件下的 THz 谱可以探测到的明显的 Γ_4 相对应的 q-AFM 共振模. 随着磁场增加, 该 q-AFM 共振模的频率基本不变. 这与 100 K 条件下的磁控行为一致. 当磁场强度增加到 1 T 时, $\text{Ho}_{0.8}\text{Y}_{0.2}\text{FeO}_3$ 单晶的 THz 频谱中出现了 Γ_{24} 对应的 q-FM 共振. 这表明, 磁场诱导出了自旋重取向 ($\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{24}$) 相变. 此时铁磁矢量由 $\mathbf{M}/c$ 轴旋转至 $\mathbf{M}$ 与 c 轴和 a 轴成一定夹角. 更为有趣的是, 在 $1.0\text{--}1.5 \text{ T}$ 磁场范围内, Γ_4 相对应的 q-AFM 共振模和 Γ_{24} 相对应的 q-FM 共振模共存 (图 3(g)). 这表明磁场诱导的相变是一个渐进过程, 在 $1.0\text{--}1.5 \text{ T}$ 磁场范围内, 并不是所有自旋都发生了转向. 随着磁场进一步增加 ($> 2 \text{ T}$), 磁场诱导的自旋重取向相变完成, 体系自旋完全处于 Γ_{24} 相. 这一过程中, 磁场诱导出的 Γ_{24} 相所对应的 q-FM 共振模的频率随磁场强度增加而降低. 当 Y^{3+} 掺杂浓度从 0.2 提升至 0.4 , 磁场效应的趋势基本一致. 不同之处在于 Y^{3+} 掺杂浓度为 0.4 的单晶中发生自旋重取向 ($\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{24}$) 的临界磁场强度 (2 T) 比掺杂浓度为 0.2 的情况 (1 T) 要大. 这是由于 Y^{3+} 离子掺杂浓度越大, 单晶中的 Ho^{3+} - Fe^{3+} 交换能越小, 各项异性常数 K_{ac} 和 K_{ab} 也越大, 这导致了单晶越难发生自旋重取向.

4 结 论

本文利用变温变场下的 THz-TDS, 系统研究了非磁性 Y^{3+} 离子掺杂与外加磁场对 HoFeO_3 单晶中自旋态以及自旋重取向的影响. 变温 THz 谱表明 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶中低温区 q-FM 共振频率随着温度的上升而下降; 而高温区的 q-AFM 共振频率随着温度的上升而上升. 随着非磁性 Y^{3+} 离子的掺入, 一方面低温 q-FM 共振频率降低而高温 q-AFM 共振频率得到提升; 另一方面自旋重取向的温区整体向低温移动. 另外, 实验表明磁场不仅能够有效地调控 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶中的 q-FM 共振频率, 而且还能诱导出自旋重取向. 这一磁场诱导的自旋重取向效应在晶体的本征自旋重取向温区最为明显, 其磁诱导效应的临界磁场强度随 Y^{3+} 离子掺杂浓度而增加. 这一掺杂效应、磁控效应的研究将有助于理解稀土正铁氧体中的自旋交换作用机制, 并为场控器件的研发提供了相关实验基础.

参考文献

- [1] Kimel A V, Kirilyuk A, Tsvetkov A, Pisarev R V, Rasing T 2004 *Nature* **429** 850
- [2] Kimel A V, Kirilyuk A, Usachev P A, Pisarev R V, Balbashov A M, Rasing T 2005 *Nature* **435** 655
- [3] Kimel A V, Ivanov B A, Pisarev R V, Usachev P A, Kirilyuk A, Rasing T 2009 *Nat. Phys.* **5** 727
- [4] Kirilyuk A, Kimel A V, Rasing T 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 2731
- [5] Wu A H, Wang B, Zhao X Y, Man P W, Xie T, Xu X D, Su L B 2017 *Sci. Sin. Technol.* **47** 1177 (in Chinese) [武安华, 王博, 赵向阳, 满沛文, 谢涛, 徐晓东, 苏良碧 2017 *中国科学: 技术科学* **47** 1177]
- [6] Jiang G C, Shen H, Xu J Y, Wu A H 2020 *J. Synth. Cryst.* **49** 990 (in Chinese) [蒋国超, 申慧, 徐家跃, 武安华 2020 *人工晶体学报* **49** 990]
- [7] Qin Y, Chen X M 2013 *Prog. Phys.* **33** 353 (in Chinese) [覃莹, 陈湘明 2013 *物理学进展* **33** 353]
- [8] Jin Z M, Ruan S Y, Li J G, Lin X, Ren W, Cao S X, Ma G H, Yao J Q 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 167501 (in Chinese) [金钻明, 阮舜逸, 李炬赓, 林贤, 任伟, 曹世勋, 马国宏, 姚建铨 2019 *物理学报* **68** 167501]
- [9] Zhao W Y, Cao S X, Huang R X, Cao Y M, Xu K, Kang B J, Zhang J C, Ren W 2015 *Phys. Rev. B* **91** 104425
- [10] Wu H L, Cao S X, Liu M, Cao Y M, Kang B J, Zhang J C, Ren W 2014 *Phys. Rev. B* **90** 144415
- [11] Wang B, Zhao X Y, Wu A H, Cao S X, Xu J, Kalashnikova A M, Pisarev R V 2015 *J. Magn. Magn. Mater.* **379** 192
- [12] Wu A H, Wang B, Zhao X Y, Xie T, Man P W, Su L B, Kalashnikova A M, Pisarev R V 2017 *J. Magn. Magn. Mater.* **426** 721
- [13] Yuan N, Li R B, Yu Y S, Feng Z J, Kang B J, Zhuo S Y, Ge

- J Y, Zhang J C, Cao S X 2019 *Front. Phys.* **14** 13502
- [14] Yamaguchi K, Kurihara T, Minami Y, Nakajima M, Suemoto T 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 137204
- [15] Jiang J J, Jin Z M, Song G B, Lin X, Ma G H, Cao S X 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 062403
- [16] Zeng X X, Fu X J, Wang D Y, Xi X Q, Zhou J, Li B 2015 *Opt. Express* **23** 31956
- [17] Yuan N, Cao S X 2019 *Chin. J. Nat.* **41** 0253 (in Chinese) [袁宁, 曹世勋 2019 自然杂志 **41** 0253]
- [18] White R L 1969 *J. Appl. Phys.* **40** 1061
- [19] Suemoto T, Nakamura K, Kurihara T, Watanabe H 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 042404
- [20] Balbashov A M, Kozlov G V, Lebedev S P, Mukhin A A, Pronin A Y, Prokhorov A S 1989 *Sov. Phys. JETP* **68** 629
- [21] Liu M, Cao S X, Yuan S J, Kang B J, Lu B, Zhang J C 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 147601 (in Chinese) [刘明, 曹世勋, 袁淑娟, 康保娟, 鲁波, 张金仓 2013 物理学报 **62** 147601]
- [22] Afanasiev D, Ivanov B A, Kirilyuk A, Rasing T, Pisarev R V, Kimel A V 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 097401
- [23] Amelin K, Nagel U, Fishman R S, Yoshida Y, Sim H, Park K, Park J G, Room T 2018 *Phys. Rev. B* **98** 174417
- [24] Liu X M, Jin Z M, Zhang S N, Zhang K L, Zhao W Y, Xu K, Lin X, Cheng Z X, Cao S X, Ma G H 2018 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51** 024001
- [25] Li X W, Bamba M, Yuan N, Zhang Q, Zhao Y G, Xiang M L, Xu K, Jin Z M, Ren W, Ma G H, Cao S X, Turchinovich D, Kono J 2018 *Science* **361** 794
- [26] Wu A H, Zhao X Y, Man P W, Su L B, Kalashnikova A M, Pisarev R V 2018 *J. Cryst. Growth* **486** 169
- [27] Guo J J, Cheng L, Ren Z, Zhang W J, Lin X, Jin Z M, Cao S X, Sheng Z G, Ma G H 2020 *J. Phys. Condens. Matter* **32** 185401
- [28] Jiang J J, Song G B, Wang D Y, Jin Z M, Tian Z, Lin X, Han J G, Ma G H, Cao S X, Cheng Z X 2016 *J. Phys. Condens. Matter* **28** 116002
- [29] Lin X, Jiang J J, Jin Z M, Wang D Y, Tian Z, Han J G, Cheng Z X, Ma G H 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 092403
- [30] Nikitin S E, Wu L S, Sefat A S, Shaykhutdinov K A, Lu Z, Meng S, Pomjakushina E V, Conder K, Ehlers G, Lumsden M D, Kolesnikov A I, Barilo S, Guretskii S A, Inosov D S, Podlesnyak A 2018 *Phys. Rev. B* **98** 064424
- [31] Barilo S N, Ges A P, Guretskii S A, Zhigunov D I, Ignatenko A A, Luginets A M, Shapovalova E F 1991 *J. Cryst. Growth* **108** 309
- [32] Kampfrath T, Sell A, Klatt G, Pashkin A, Mahrlein S, Dekorsy T, Wolf M, Fiebig M, Leitenstorfer A, Huber R 2011 *Nat. Photonics* **5** 31
- [33] Yamaguchi K, Nakajima M, Suemoto T 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 237201
- [34] Kampfrath T, Tanaka K, Nelson K A 2013 *Nat. Photonics* **7** 680
- [35] Grishunin K, Huisman T, Li G Q, Mishina E, Rasing T, Kimel A V, Zhang K L, Jin Z M, Cao S X, Ren W, Ma G H, Mikhaylovskiy R V 2018 *ACS Photonics* **5** 1375
- [36] Afanasiev D, Ivanov B A, Pisarev R V, Kirilyuk A, Rasing T, Kimel A V 2017 *J. Phys. Condens. Matter* **29** 224003

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

Terahertz spectroscopy study of doping and magnetic field induced effects on spin reorientation in $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ single crystals^{*}

Ren Zhuang¹⁾²⁾ Cheng Long¹⁾²⁾ Sergei Guretskii³⁾ Nadzeya Liubochko³⁾Li Jiang-Tao⁴⁾ Shang Jia-Min⁴⁾ Sergei Barilo³⁾ Wu An-Hua⁴⁾Alexandra Kalashnikova⁵⁾ Ma Zong-Wei¹⁾ Zhou Chun¹⁾ Sheng Zhi-Gao^{1)†}1) (*High Magnetic Field Laboratory, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China*)2) (*University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*)3) (*Scientific-Practical Materials Research Centre of NAS of Belarus, Minsk 220072, Belarus*)4) (*Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China*)5) (*Ioffe Technologies Institute, St. Petersburg 194021, Russia*)

(Received 11 September 2020; revised manuscript received 24 September 2020)

Abstract

In this paper, the effects of magnetic field and nonmagnetic Y^{3+} doping on spin state and spin reorientation in HoFeO_3 single crystal are systematically studied by the self-developed terahertz time-domain spectroscopy (THz-TDS) under magnetic field. By doping nonmagnetic Y^{3+} , we find that the spin reorientation temperature range decreases. Meanwhile, we also find the type of spin reorientation of HoFeO_3 does not change with Y^{3+} doping, indicating that the Y^{3+} doping can exchange the interaction energy of $\text{Ho}^{3+}\text{-Fe}^{3+}$ without introducing any new magnetic structure. Moreover, the resonance frequency of quasi-ferromagnetic mode (q-FM) decreases with temperature increasing in the low temperature range, while the resonance frequency of quasi-antiferromagnetic mode (q-AFM) increases with temperature increasing in the high temperature range in $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ single crystals. With the external magnetic field ($\mathbf{H}_{\text{DC}}$) applied along the (110) axis, on the one hand the magnetic field can not only tune the resonant frequency of q-FM but also induce the spin reorientation in $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ single crystals, and on the other hand this magnetic field induced spin reorientation phenomenon can happen more easily if the temperature approaches to the intrinsic spin reorientation temperature range of the single crystals. Besides, the critical magnetic field induced spin reorientation increases with the doping of Y^{3+} increasing. Our research shows that THz spectroscopy data can be used to detect the doping concentration of Y^{3+} ions in HoFeO_3 ; in addition, Y^{3+} doping can make the spin state in HoFeO_3 crystal more stable and not easily affected by external magnetic fields. We anticipate that the role of doping and magnetic field in spin reorientation transition will trigger great interest in understanding the mechanism of the spin exchange interaction and the mechanism of external field tuning effect in the vast family of rare earth orthoferrites.

Keywords: terahertz time-domain spectroscopy, rare earth orthoferrites, spin reorientation, spin resonance**PACS:** 78.47.J-, 76.30.Kg, 75.30.Kz, 76.50.+g**DOI:** 10.7498/aps.69.20201518

^{*} Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant Nos. 2016YFA0401803, 2017YFA0303603), the Key Research Program of Frontier Sciences, Chinese Academy of Sciences (Grant No. QYZDB-SSW-SLH011), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11574316, 51872309, 61805256, 11904367, U1832106, 52011530018), the Special Exchange Program for Russia-Ukraine-Belarus, Chinese Academy of Sciences, the Shanghai Committee of Science and Technology, China (Grant No. 19520710900), and the Basic Research Funds of Belarus in Frame of Belarus-China Research (Grant No. F20CN-021).

[†] Corresponding author. E-mail: zhigaosheng@hmfl.ac.cn

自旋发光二极管研究进展

梁世恒 陆沅 韩秀峰

Research progress of spin light emitting diode

Liang Shi-Heng Lu Yuan Han Xiu-Feng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 208501 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20200866

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200866>

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

高效绿光钙钛矿发光二极管研究进展

Research progress of efficient green perovskite light emitting diodes

物理学报. 2019, 68(15): 158504 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190647>

磁性硅烯超晶格中电场调制的谷极化和自旋极化

Valley and spin polarization manipulated by electric field in magnetic silicene superlattice

物理学报. 2018, 67(8): 086801 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180080>

半导体黄光发光二极管新材料新器件新设备

Semiconductor yellow light-emitting diodes

物理学报. 2019, 68(16): 168503 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191044>

基于离子注入隔离的微缩化发光二极管阵列性能

Ion implantation isolation based micro-light-emitting diode device array properties

物理学报. 2020, 69(2): 027802 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191418>

蓝紫光发光二极管中的低频产生-复合噪声行为研究

Low-frequency generation-recombination noise behaviors of blue/violet-light-emitting diode

物理学报. 2019, 68(12): 128104 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190189>

基于N型纳米晶硅氧电子注入层的钙钛矿发光二极管

Perovskite light-emitting diodes based on n-type nanocrystalline silicon oxide electron injection layer

物理学报. 2019, 68(12): 128103 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190258>

专题：太赫兹自旋光电子

自旋发光二极管研究进展*

梁世恒¹⁾²⁾ 陆沅^{3)†} 韩秀峰^{1)4)‡}

1) (中国科学院物理研究所, 北京 100190)

2) (湖北大学物理与电子科学学院, 武汉 430062)

3) (法国国家科学研究中心 Jean Lamour 研究所, 南希 54011)

4) (中国科学院大学材料科学与光电技术学院, 北京 100049)

(2020 年 6 月 7 日收到; 2020 年 7 月 17 日收到修改稿)

半导体自旋电子学是凝聚态物理研究中重要的研究领域之一, 在 20 多年的发展历程中交叉了多学科领域, 其中结合了磁性材料和半导体材料复合结构而开展的关于自旋注入、操纵及光学探测研究的自旋发光二极管展现出丰富的物理性质. 自旋发光二极管的研究涉及自旋注入端和激活区的材料、结构和物理. 本文将从自旋注入、自旋输运和自旋探测三个方面概述自旋发光二极管中所涉及的自旋相关物理, 并进一步介绍自旋发光二极管的研究历程及其最新结果进展, 最后进一步对未来研究趋势进行展望.

关键词: 半导体自旋电子学, 自旋发光二极管, 自旋极化, 自旋注入

PACS: 85.75.-d, 75.70.-I, 72.25.Dc, 72.25.Hg, 78.60.Fi

DOI: 10.7498/aps.69.20200866

1 引言

伴随着自旋电子学发展历程中一系列丰富物理效应的不断发现、以及材料结构和器件制备工艺的优化进步, 自旋电子器件应用取得了显著的进步. 例如, 以磁性隧道结 (magnetic tunnel junction, MTJ) 为核心结构的各类磁性传感器、磁性随机存储器 (MRAM) 已经在高科技产品应用中大放异彩. 同时, 关于半导体材料中自旋极化电子的注入和输运机制研究及半导体自旋电子器件的应用开发, 吸引了大量研究者的广泛关注. 自旋发光二极管 (spin light emitting diode, spin LED)^[1] 正是这一类重要的半导体自旋电子器件, 其将电子自

旋极化信息转换为圆偏振光信息予以表达. 虽然 spin LED 在光信息传输^[2]、量子密码通信^[3]和三维显示^[4]等融合了自旋电子和半导体技术中具有较大的应用潜力, 但相比 MTJ 和磁性金属多层膜等体系, 基于半导体自旋电子的 spin LED 中的物理材料研究和器件应用还有待进一步发展和探索.

在 1999 年 spin LED 概念已被提出^[5,6], 在 GaAs 基半导体异质结中利用顺磁半导体^[5]或者磁性半导体^[6]作为自旋注入端, 低温下通过自旋极化的载流子注入到半导体中, 自旋极化载流子在半导体激活区与空穴 (或电子) 复合产生左旋或右旋的圆偏振光, 以偏振光信息表达自旋量子信息. Spin LED 为读取半导体和量子阱 (点) 中自旋相干态的信息提供了可能. 但由于自旋注入效率及工作温度

* 国家重研发计划 (纳米计划) (批准号: 2017YFA0206200)、国家自然科学基金重点项目 (批准号: 51831012)、国家自然科学基金中法重点国际合作项目 (批准号: 51620105004)、中科院战略先导项目 (B 类) (批准号: XDB33000000)、中科院前沿科学重点研究计划 (批准号: QYZDJ-SSW-SLH016)、北京市自然科学基金 (批准号: Z201100004220006) 和法国科研署 (ANR) 与国家自然科学基金 SISTER 合作项目 (批准号: ANR-11-IS10-0001, NNSFC 61161130527) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: yuan.lu@univ-lorraine.fr

‡ 通信作者. E-mail: xfhan@iphy.ac.cn

等问题, 在较长时间内困扰着 spin LED 的进一步发展. 为此, 半导体自旋电子学领域针对 spin LED 的研究历程也主要围绕自旋注入端而开展, 以达到在零磁场下和室温条件下能够有效进行自旋注入来实现较大圆偏振光极化率. 为此, 本文将回顾 spin LED 的研究历程, 总结 spin LED 中自旋、电学和光学性质及其之间的物理关系; 介绍 spin LED 研究过程中所涉及的自旋注入端材料、结构和物理; 最后进一步对未来研究趋势进行展望.

2 自旋发光二极管

Spin LED 核心结构由两部分构成: 载流子复合发光区 (有源区, active region) 和自旋注入端 (spin-injector) 组成, 如图 1 所示. 通过自旋注入端将自旋极化的电子 (或空穴) 注入到半导体 LED 有源区, 根据光学选择定则与空穴 (电子) 复合产生左旋或者右旋的圆偏振光, 所发射的圆偏振光的极化率与注入的电子 (空穴) 的自旋极化率相关.

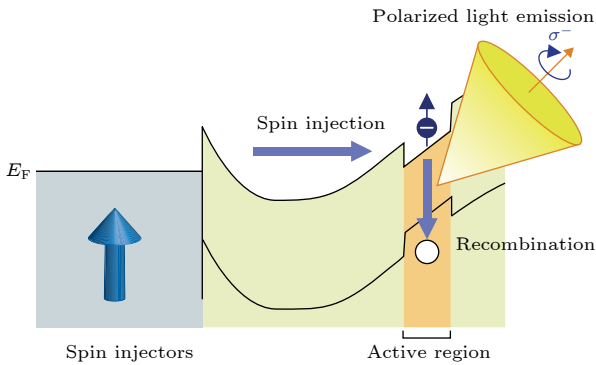


图 1 Spin LED 能带结构示意图 [7]

Fig. 1. Schematic of band diagram of spin LED [7].

Spin LED 中圆偏振光可以通过电学注入以电致发光方式进行检测, 其测量系统如图 2 所示, 自旋极化电子注入所产生的圆偏振光通过聚焦准直后经过 1/4 玻片, 经线偏振片后进入单色仪, 然后在 CCD 上进行成像. 通过测量产生的左旋及右旋圆偏振发光强度 ($I(\sigma^+)$ 及 $I(\sigma^-)$), 即可得到电致发光圆偏振光极化率 P_c [8]:

$$P_c = \frac{I(\sigma^+) - I(\sigma^-)}{I(\sigma^+) + I(\sigma^-)}. \quad (1)$$

LED 中的载流子复合寿命和自旋弛豫时间则可通过偏振的时间分辨光致发光光谱进行检测. 在时间分辨光致发光光谱测量中, 通过将左旋 (右

旋) 圆偏振激光照射到样品上, 根据光学选择定则可将电子和空穴分别激发到导带和价带, 形成激发态的自旋极化电子. 切断激发光源后, 激发态的极化电子会与空穴复合产生圆偏振光, 其测量系统如图 3 所示, 与电致发光测量系统不同在于, 其利用一超快激光通过偏振片后进行极化电子的激发. 利用该光致发光方法, 可以测量半导体中载流子寿命 τ 、自旋弛豫时间 τ_s , 关系式如下 [8]:

$$I_{PL} = a \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) + b, \quad (2)$$

$$P_c = c \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau_s}\right) + d, \quad (3)$$

其中, $I_{PL} = I_{PL}^{\sigma^+} + I_{PL}^{\sigma^-}$; $P_c = \frac{I_{PL}^{\sigma^+} - I_{PL}^{\sigma^-}}{I_{PL}^{\sigma^+} + I_{PL}^{\sigma^-}}$. 这里的 $I_{PL}^{\sigma^+}$ ($I_{PL}^{\sigma^-}$) 为左旋 (右旋) 圆偏振光致发光强度. 根据 (2) 式, (3) 式可得到半导体中 τ 及 τ_s .

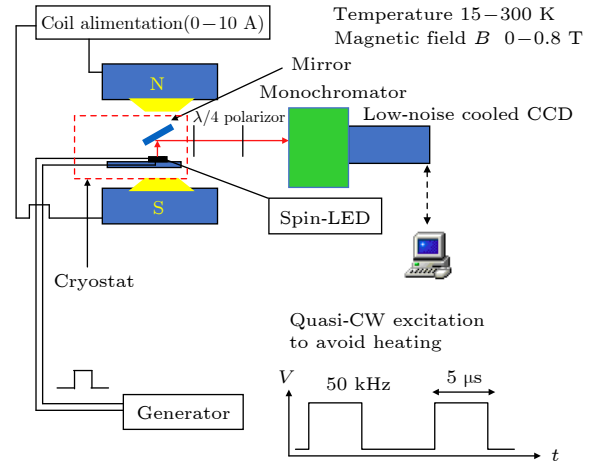


图 2 自旋发光二极管的电致发光中偏振光测量系统原理示意图

Fig. 2. Schematic diagram of electroluminescence measurement system for spin LED.

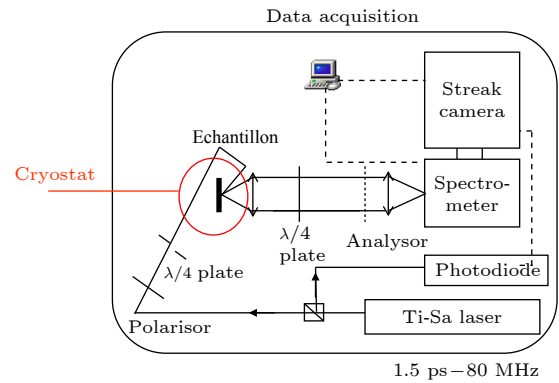


图 3 Spin LED 中时间分辨光致发光系统原理示意图

Fig. 3. Schematic diagram of time-resolved photoluminescence system.

3 自旋发光二极管中自旋相关物理

Spin LED 自旋相关物理主要涉及自旋注入、自旋输运和自旋探测, 理解这 3 个方面的物理机制和过程对于 Spin LED 的结构优化和器件设计至关重要.

3.1 自旋注入

自旋注入是指将自旋极化电流注入到非磁性金属或者半导体中. 首先要考虑怎样产生自旋极化电流, 目前主要有电学注入、光学注入及自旋霍尔效应等方法. 对于 spin LED 中的电致发光研究用到的是电学注入. 利用铁磁材料层作为自旋注入端, 电子在铁磁层内会进行自旋极化, 利用电学方法将自旋极化的电子从铁磁层注入到半导体中. 其次, 自旋注入中主要考虑的问题是自旋注入的效率, 自旋注入效率定义为注入的电子极化率与铁磁体自旋极化率的比值. 自旋注入层/半导体的界面质量、缺陷杂质和能带结构等因素都会对自旋进行散射从而影响到自旋的注入效率. 另外, 铁磁体与半导体的电导不匹配也会影响到自旋的注入效率.

最早研究的自旋发光二极管是基于“磁性半导体/半导体”结构, 如以 GaMnAs 和 ZnMnSe 等磁性半导体作为自旋注入端^[5,6], 该结构的优点是能够避免电导不匹配的问题, 但是由于磁性半导体的居里温度较低, 其在室温下不能进行有效的自旋注入. 后来人们用到居里温度较高的铁磁体作为自旋注入端, 如“铁磁体/半导体”结构, 但由于存在严重的电导不匹配而不能实现较高的自旋注入效率. 为此 Rashba 提出^[9]用隧穿势垒层的方法, 即在铁磁体及半导体间插入势垒层构成“铁磁体/势垒层/半导体”结构, 从而解决了电导不匹配的问题, 因此在后续研究中自旋的注入效率得以显著提高.

3.2 自旋输运

自旋输运过程主要涉及电子在输运过程自旋弛豫等物理问题. 在 spin LED 中, 影响自旋输运过程的自旋弛豫机制主要有三种: Elliott-Yafet (EY) 机制、Dyakonov-Perel (DP) 机制和 Bir-Aronov-Pikus (BAP) 机制.

1954 年 Elliott^[10]研究表明, 材料中自旋轨道耦合可以将电子的波函数分为空间和时间反演对

称的两个简并态: 一个为自旋向上态, 另一个为自旋向下态. 这种混合态会导致电子在动量散射过程中发生自旋翻转, 如电子-杂质散射和电子-声子散射等, 如图 4(a) 所示. EY 机制中对于 III-V 半导体 Γ 点附近的自旋弛豫 $(\tau_s^{\text{EY}})^{-1}$ 可以表述为^[1]

$$\frac{1}{\tau_s^{\text{EY}}(E)} = A \left(\frac{k_B T}{E_g} \right)^2 \left(\frac{\Delta}{E_g + \Delta} \right)^2 \frac{1}{\tau_p(E)}, \quad (4)$$

其中, A 为散射常数, Δ 为材料中自旋轨道耦合的分裂能, E_g 为带隙, $\tau_p(E)$ 是能量 E 上的电子动量散射时间. 在 EY 自旋弛豫机制中, 自旋弛豫率与电子的动能平方成正比, 与能隙平方成反比. 电子在 Γ 点时, 当其波矢 K 越大、价带和导带间的耦合越强时, 自旋翻转的几率越大. 所以对于能隙较大的半导体 (如 GaN, GaAs), EY 机制则不是自旋弛豫的主导机制.

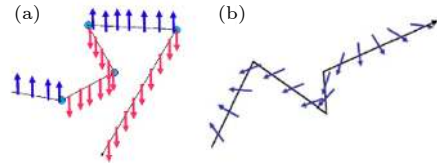


图 4 (a) EY 和 (b) DP 自旋弛豫机制示意图^[11]

Fig. 4. Spin relaxation by scattering in (a) EY and (b) DP mechanisms^[11].

DP 机制主要来源于半导体材料晶格结构的非对称中心反演特性, 它在 III-V 族半导体 (如 GaAs) 及 II-VI 族半导体中的自旋弛豫过程起主导作用^[1]. 在非对称中心反演半导体材料中的电子会受到一个有效磁场的作用, 从而绕着该有效场进行 Larmor 进动. 该有效场的强度和方向依赖于电子的波矢 K , 具有较强的各向异性. 当电子发生动量散射时, 电子的进动频率及有效磁场也会发生改变, 从而导致电子自旋相位退相干, 如图 4(b) 所示. DP 机制的自旋弛豫率可以表述为^[1]

$$\frac{1}{\tau_s^{\text{DP}}(E)} = Q \alpha^2 \frac{(k_B T)^3}{\hbar^2 E_g} \tau_p(E), \quad (5)$$

其中, Q 是散射因子, α 是依赖于自旋轨道相互作用强度的系数.

Soldat 等^[12]研究了室温下电子在 spin LED 中的自旋弛豫长度, 通过 FeTb/MgO 自旋注入端将自旋极化电子注入到 GaAs 有源区, 他们发现圆偏振光极化率随自旋注入层到有源发光区之间长度的增加而呈指数衰减. 为此可以通过拟合得到自旋弛豫长度 (如图 5 所示). 通过该实验得到的室温

下 GaAs 中电子自旋弛豫长度为 26 nm, 这与 Saikin 等^[13] 基于 DP 自旋弛豫机制计算得到的 GaAs 中 25—50 nm 的自旋弛豫长度理论值一致。

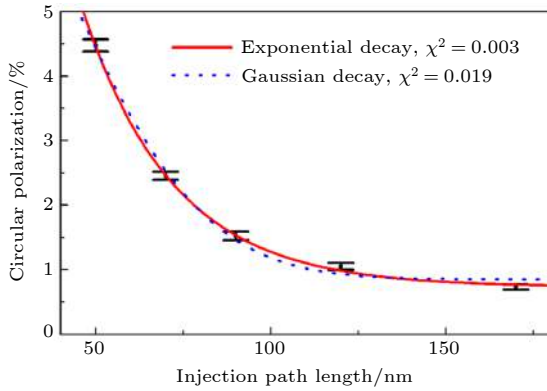


图 5 圆偏振光极化率随自旋注入层到有源发光区之间长度关系^[12]

Fig. 5. Calculated circular polarization for fully perpendicular magnetization in remanence over injection path length^[12].

此外, 比较 (4) 式和 (5) 式, 可以发现 DP 机制中自旋弛豫率 $1/\tau_s^{\text{DP}}(E)$ 正比于电子动量散射时间 $\tau_p(E)$, 而 EY 机制中 $1/\tau_s^{\text{EY}}(E)$ 反比于 $\tau_p(E)$. 因此, EY 机制中电子散射次数越多, 自旋弛豫率就越大; 而 DP 机制中, 电子散射不会导致自旋弛豫率的增大, 但散射会导致随波矢 K 相关的进动频率更加随机化, 而发生在碰撞间隙的自旋退相位相干性会随着频繁的碰撞而减弱。

BAP 机制来源于电子空穴的相互作用, 该机制在 p 型半导体中对于电子自旋的弛豫占主导作用. 当电子与空穴即将进行复合时, 电子和空穴间的散射会形成自旋交换作用, 因此当电子把自旋转移给空穴时, 会引起电子的自旋弛豫。

3.3 自旋探测

关于自旋探测有一系列方法, 包括磁电阻方法、自旋霍尔效应和 Hanle 效应的电探测方法、光致发光及电致发光的光探测等方法. Spin LED 正是利用了光探测以表达自旋信息. 根据光学选择定则, 当电子与空穴复合后所产生圆偏振光的极化率与电子 (空穴) 的自旋极化率直接相关, 如图 6 所示. 如对于 GaAs 半导体体材料, 由于重空穴是三重简并态, 轻空穴是单态, 所以电子与重空穴的复合几率是其与轻空穴复合几率的 3 倍, 电子空穴复合发光的圆偏振极化率为^[1]

$$P_c = \frac{I(\sigma^+) - I(\sigma^-)}{I(\sigma^+) + I(\sigma^-)} = \frac{(3n_{\downarrow} + n_{\uparrow}) - (3n_{\uparrow} + n_{\downarrow})}{(3n_{\downarrow} + n_{\uparrow}) + (3n_{\uparrow} + n_{\downarrow})} = \frac{n_{\downarrow} - n_{\uparrow}}{2(n_{\uparrow} + n_{\downarrow})} = -\frac{P_E}{2}, \quad (6)$$

其中, $I(\sigma^+)$ 和 $I(\sigma^-)$ 分别是圆偏振光 σ^+ 与 σ^- 的强度; $n_{\uparrow}$ 以及 $n_{\downarrow}$ 为注入电子的自旋向上及自旋向下的态密度; $P_E = \frac{n_{\uparrow} - n_{\downarrow}}{(n_{\uparrow} + n_{\downarrow})}$ 为注入电子的自旋极化率。

对于量子阱结构如 $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}/\text{GaAs}$ 量子阱, 由于结构限制及应变等约束作用, 其轻空穴能级下移与重空穴能级解除简并, 所以电子与轻空穴的复合被大大抑制. 此时, 电子空穴复合发光的圆偏振极化率为^[1]

$$P_c = \frac{I(\sigma^+) - I(\sigma^-)}{I(\sigma^+) + I(\sigma^-)} = \frac{3n_{\downarrow} - 3n_{\uparrow}}{3n_{\downarrow} + 3n_{\uparrow}} = \frac{n_{\downarrow} - n_{\uparrow}}{n_{\uparrow} + n_{\downarrow}} = -P_E. \quad (7)$$

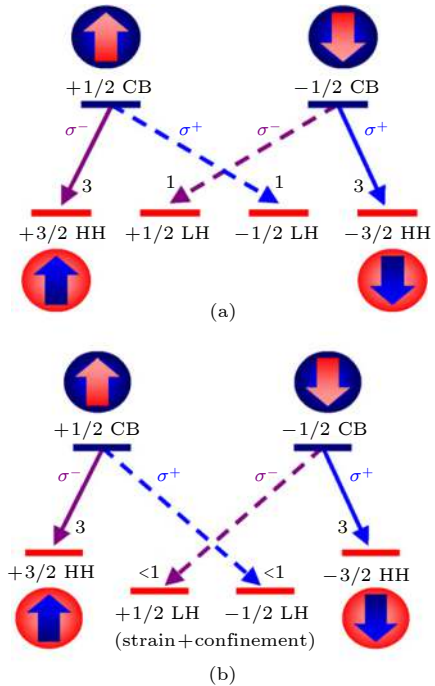


图 6 在闪锌矿 GaAs 直接带隙能带中的光选择定则 (a) 体材料及 (b) 量子阱中的电子空穴复合选择定则. 上边蓝色球代表电子, 下边的红色球代表空穴, 箭头代表自旋方向. 其中 CB 代表导带, HH 代表重空穴带, LH 代表轻空穴带, HH 是三重简并态, LH 是单态. σ^- 和 σ^+ 分别代表左旋光与右旋光. 在量子阱结构中由于晶格应变和结构限制, 电子与 LH 态空穴的复合几率被大大抑制^[1]

Fig. 6. Electric dipole allowed radiative inter-band transitions and corresponding optical polarization for the cases of (a) bulk material with degenerate heavy- and light-hole bands and (b) a quantum well in which epitaxial strain and quantum confinement have lifted the heavy- and light-hole band degeneracy^[1].

因此在基于 $\text{In}_{1-x}\text{Ga}_x\text{As}/\text{GaAs}$ 量子阱结构的 Spin LED 中, 理论上如果注入 100% 自旋极化电子, 将可以得到 100% 的圆偏光极化率.

上述 (6) 式和 (7) 式中考虑到的是理想情况, 实际电致发光的极化率 P_c 并不直接等于注入电子的极化率 P_E , P_E 与 P_c 之间的关系为 [8]

$$P_c = F \times P_E, \quad (8)$$

其中, F 因子反映了半导体对注入到其中的电子自旋的影响, 它可由半导体中载流子寿命 τ 和电子自旋弛豫时间 τ_s 表示为 [8]

$$F = 1/(1 + \tau/\tau_s). \quad (9)$$

这里以基于 GaAs 量子阱的自旋发光二极管 [8] 为例来进一步介绍自旋探测中圆偏振光极化率 P_c 与电学注入自旋极化率 P_E 的关系. 图 7(a) 显示了以 CoFeB/MgO 为自旋注入端制备的两个 spin LED 器件 P_c 随温度的变化关系. 它们有一共同的显著特征: 在 10 K 到 60 K 温度区间, 随着温度升高 P_c 先下降, 在 60 K P_c 达到最小值; 在 60 K 到 110 K 温度区间, 随着温度升高 P_c 增加. 通过时间分辨光致发光 (TRPL) 测量可以得到 τ_s 和 τ , 如图 7(b) 中插图所示. 根据 (9) 式可以得到 F 因子. 进一步通过比较温度依赖的 F 因子和温度依赖的 P_c 特性,

发现在 GaAs 量子阱 spin LED 中, P_E 在 10—100 K 区间并不随温度发生变化. 因此通过自旋探测 P_c 随温度依赖特性, 可以研究半导体有源区对自旋弛豫的影响.

4 自旋注入端研究概况

4.1 面内磁各向异性自旋注入端

Spin LED 中自旋注入端有磁性半导体、铁磁性材料及磁性半金属等类型. 在较早的 spin LED 研究中, 主要使用的是磁性半导体 (如 GaMnAs, ZnMnSe, CdCr₂Se₄ 等) [5,6,14], 磁性半导体能够避免自旋注入层与发光区层的电导失配问题, 但由于磁性半导体的居里温度较低, 室温下则不能进行有效的自旋注入. 为此, 居里温度较高的铁磁金属被研究用于自旋注入端, 但是由于金属与半导体之间的电导失配, 自旋注入效率也较低. 在此之后, 人们发现在铁磁金属和半导体间插入势垒层构成“铁磁体/势垒层/半导体”结构, 可以解决电导不匹配的问题, 从而大大提高自旋注入效率. 目前在 CoFe/MgO/GaAs 半导体量子阱结构中, 在室温下已经观测到了 32% 的圆偏振光极化率 [15]. 这里, 我们将重点介绍以铁磁金属材料为自旋注入端的 spin LED 研究进展.

2001 年, Zhu 等 [16] 在以 Fe 为自旋注入端、In-GaAs 量子阱为发光区的结构中, 在室温 300 K 下观测到 2% 的电致发光极化率. 2005 年, Jiang 等 [15] 在基于 CoFe/MgO 为自旋注入端, 通过利用 MgO 势垒及 CoFe 的高自旋极化率实现较高自旋极化率的电子注入, 他们在以 GaAs 量子阱为发光区的结构中低温下观测到高达 52% 的电致发光极化率. 2008 年 Ikeda 等 [17] 于室温在 CoFeB/MgO/CoFeB 磁性隧道结中观测到高达 600% 的 TMR, 这说明 CoFeB/MgO 可以提供具有更高的隧穿电子自旋极化率, 同年 Lu 等 [8] 在基于面内磁各向异性 CoFeB/MgO 自旋注入端、以 GaAs 量子阱为发光区的结构中, 低温下观测到了 32% 的电致发光极化率. 此后, Barate 等 [18] 通过对比磁控溅射和分子束外延制备的不同界面质量自旋注入端, 证明了 CoFeB/MgO 界面对于自旋电子注入起到关键的影响作用. 表 1 给出了基于面内磁各向异性自旋注入端的 spin LED 研究的主要历程中自旋注入端材料结构及对应的圆偏振光极化率结果.

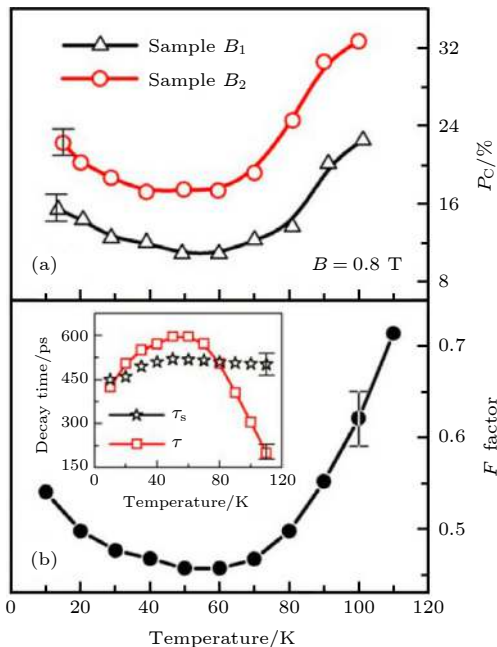


图 7 GaAs 量子阱自旋发光二极管中 (a) 温度依赖的 P_c 特性和 (b) 温度依赖的 τ_s , τ 及 F 因子特性 [8]

Fig. 7. (a) Temperature dependence of P_c , (b) temperature dependence of τ_s , τ , and the F factor in GaAs quantum well spin LED [8].

表 1 基于面内磁各向异性自旋注入端的自旋发光二极管
Table 1. Spin LED based on spin injector with in-plane magnetic anisotropic.

自旋注入端	LED结构	P_C/T	文献	时间
Fe	InGaAs QW	2%/300 K	Zhu等 ^[16]	2001
Fe/(Al)GaAs	GaAs QW	32%/4.5 K	Hanbicki等 ^[19]	2002
CoFe/Al ₂ O ₃	GaAs bulk	21%/80 K	Motsnyi等 ^[20]	2002
CoFe/MgO	GaAs QW	52%/100 K	Jiang等 ^[15]	2005
Co/Al ₂ O ₃	InAs QD	15%/1.7 K	Lombez等 ^[21]	2007
CoFeB/MgO	GaAs QW	32%/100 K	Lu等 ^[8]	2008
Fe/AlO _x	GaAs QW	18%/80 K	Wu等 ^[22]	2010
CoFeB/MgO	GaAs QW	25%/25 K	Barate等 ^[18]	2014
CoFeB/MgO	GaAs QW	23%(Sputtering), 18%(MBE)/25 K	Barate等 ^[23]	2017

4.2 垂直磁各向异性自旋注入端

如果自旋注入端磁矩位于面内方向, 根据光选择定则, 需要在沿薄膜法线方向施加磁场使自旋注入端的磁矩位于垂直膜面方向, 才可以在法向方向测量所产生光的圆偏振极化率, 如图 8 所示.

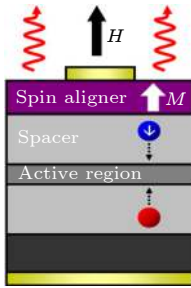


图 8 自旋发光二极管的 Faraday 测试方法示意图^[1]
Fig. 8. Schematic representation of a spin LED under the Faraday geometries^[1].

由于需要外加磁场设备提供垂直膜面方向的磁场, 这在实际应用中十分不便. 为此更加突显具有垂直磁各向异性的自旋注入端的优势, 即在不施加垂直磁场的情况下, 自旋注入端的磁矩就垂直于薄膜膜面. 2005 年, Gerhardt 等^[24]利用具有垂直磁各向异性的 FeTb 作为自旋注入端, 他们在零磁场 90 K 下得到了 0.7% 的圆偏振光极化率, 如图 9 所示. 此后 Adelmann 等^[25]、Hövel 等^[26]、Grenet 等^[27]及 Zarpellon 等^[28]等分别利用具有垂直磁各向异性的 MnGa, FeTb, CoPt 等作为自旋注入端, 成功制备了具有垂直磁各向异性自旋特性的 spin LED (圆偏振光极化率见表 2).

虽然上述报道实现了基于垂直磁各向异性自旋注入端的自旋极化电子注入, 但是自旋注入效率较低 (圆偏振率小于 3%). 研究人员思考和设计更

加优化的垂直磁各向异性自旋注入端: 自旋极化率越高越好、厚度越薄越好. 自旋极化率高可以使得注入到二极管半导体中的电子自旋极化率较高; 薄膜自身厚度越薄其对发出光的吸收就越少, 这样 spin LED 发出光的强度就越强, 同时由于铁磁金属引起的磁圆二色性也会越小. 2014 年, Liang 等^[29]

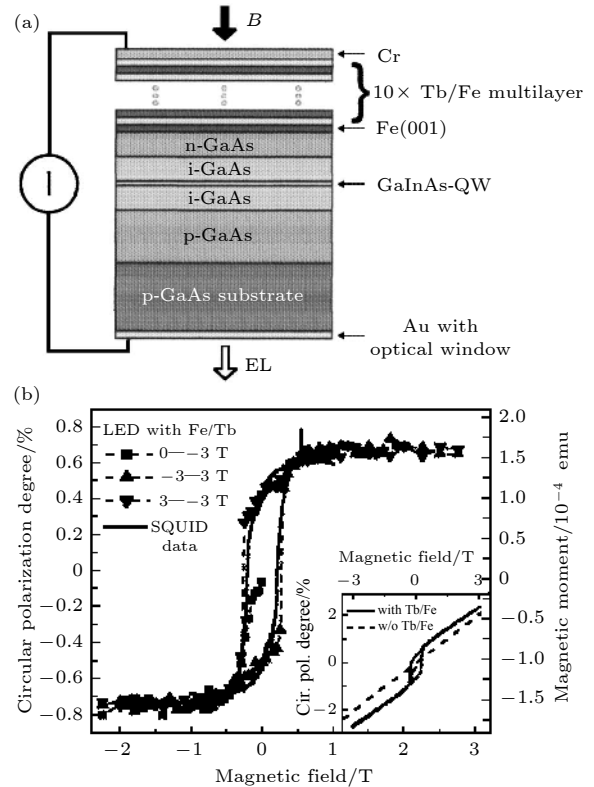


图 9 Gerhardt 等^[24]利用具有垂直磁各向异性的 FeTb 作为自旋注入端的自旋发光二极管 (a) 结构示意图; (b) 电致发光与磁场的关系, 他们在未加磁场剩余磁态下, 在 90 K 下得到了 0.7% 的圆偏振光极化率

Fig. 9. Schematic Spin LED device structure of the LED with Tb/Fe multilayer (a) reported by Gerhardt et al.^[24], Circular polarization as a function of the applied magnetic field at 90 K (b), they observed P_C of 0.7%.

表 2 基于垂直磁各向异性的自旋注入端的自旋发光二极管
Table 2. Spin LED based on spin injector with out-plane magnetic anisotropic.

自旋注入端	LED结构	P_C/T	文献	时间
FeTb	InGaAs QW	0.75%/90 K	Gerhardt等 ^[24]	2005
MnGa	AlGaAs QW	~3%/20 K	Adelmann等 ^[25]	2006
FeTb	AlGaAs QW	~3%/300 K	Hövel等 ^[26]	2008
CoPt	SiGe QW	~3%/5 K	Grenet等 ^[27]	2009
CoPt	GaAs QW	~2.5%/20 K	Zarpellon等 ^[28]	2012
Ta/CoFeB/MgO	GaAs QW	~20%/25 K, ~8%/RT	Liang等 ^[29]	2014
MgO/CoFeB/Ta/CoFeB/MgO	GaAs QW	~10%/10 K	Tao等 ^[30]	2016
Mo/CoFeB/MgO	GaAs QW	~9.5%/10 K	Tao等 ^[31]	2018
Ta/CoFeB/MgO	GaAs QD	35%/9 K	Cadiz等 ^[32]	2018

报道了采用界面诱导的垂直磁各向异性 Ta/CoFeB/MgO 自旋注入端的自旋发光二极管 (如图 10 所示). 相比于先前的结果, 由于 CoFeB 具有较高的自旋极化率, 并且所用到的 CoFeB 厚度也较薄 (约 1.2 nm), 在零磁场下测量到低温 (10 K) 13% 和室温下 8% 的圆偏振光极化率. 他们同时研究了温度依赖 P_C 特性, 发现在温度小于 100 K 时, P_C 随着温度的增加而显著降低, 而当温度大于 100 K 后, P_C 基本趋于稳定. 通过利用时间分辨的光致发光测量得到的 GaAs 半导体量子阱中载流

子寿命 τ_s 以及电子自旋弛豫时间 τ , 如图 10 (c) 所示, 发现 F 因子与电致发光极化率 P_C 随温度变化的趋势较为一致. 由 $P_E = P_C/F$ 计算的零磁场下注入电子的自旋极化率 P_E 与温度 T 的关系, 从图 10 (b) 可以看到, 注入电子的 P_E 随着温度变化基本保持稳定, 其自旋极化率约为 16%. 这说明 P_C 随温度的变化主要是来自于 GaAs 半导体量子阱性质随温度的变化, 而自旋注入端在低温 25 K 到室温范围内注入到 GaAs 半导体量子阱的电子自旋极化率基本不变.

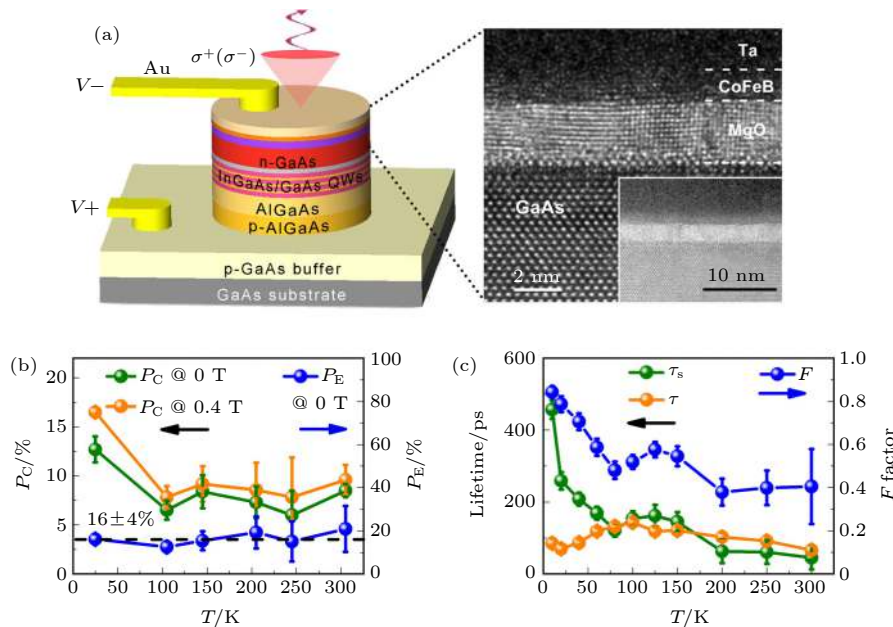


图 10 (a) 基于垂直磁各向异性 Ta/CoFeB/MgO 为自旋注入端的自旋发光二极管结构示意图, 虚线选定区对应的 TEM 照片, 其中插图是缩小后的 TEM 照片; (b) 温度依赖的圆偏振极化率及注入电子极化率; (c) 温度依赖的 F 因子及载流子寿命 τ 、电子自旋弛豫时间 τ_s

Fig. 10. (a) Schematic device structure of Spin LED and HR-TEM image of CoFeB/MgO PMA injector; (b) temperature dependence of P_C without magnetic field and with 0.4 T field. Temperature dependence of P_E is calculated by $P_E = P_C/F$ from the data without field; (c) temperature dependence of τ_s , τ , and F factor deduced from the TRPL measurements.

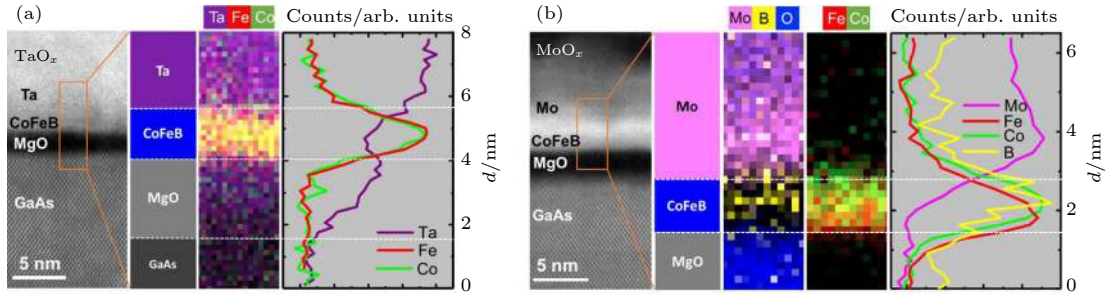


图 11 退火 400 °C 后, 具有垂直磁各向异性的 Ta/CoFeB/MgO (a) 和 Mo/CoFeB/MgO (b) 自旋注入端中由 HR-STEM-EELS 测量的空间元素分布^[31]

Fig. 11. Chemical characterization of spin-injectors annealed at 400 °C. Dark field HR-STEM images and corresponding EELS mappings and profiles for (a) Ta and (b) Mo injectors annealed at 400 °C^[31].

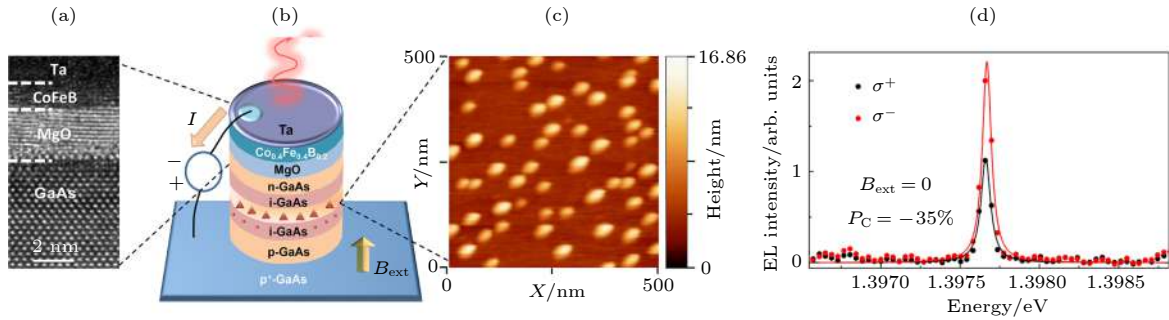


图 12 (a), (b) 基于垂直各向异性的 Ta/CoFeB/MgO 作为自旋注入端 InGaAs/GaAs 量子点 spin LED 的 TEM 及其结构示意图; (c) InGaAs/GaAs 量子点 AFM 图; (d) 零磁场下 9 K 观测到了约 35% 电致发光圆偏振光极化率^[32]

Fig. 12. Spin LED device with p-doped InGaAs/GaAs quantum dots and polarization resolved electroluminescence of an ensemble of quantum dots: (a) High resolution-transmission electron microscope image of the injector Ta/CoFeB/MgO/GaAs; (b) schematic structure of the spin LED device. A single layer of InGaAs QDs is embedded in the intrinsic region of the p-i-n junction of the LED; (c) AFM image of InGaAs QDs; (d) strongly polarized single dot emission at zero applied field^[32].

2018 年, Tao 等^[31] 利用具有垂直各向异性的 Mo/CoFeB/MgO 作为自旋注入端, 通过利用高分辨扫描透射电镜 (HR-STEM) 及电子能量损失谱 (EELS), 从原子尺度分析了利用 Ta 和 Mo 作为覆盖层的垂直磁各向异性自旋注入层的结构和化学性质. 相比较 Ta/CoFeB/MgO 自旋注入端, Mo/CoFeB/MgO 中 CoFeB 层元素与 Mo 元素不会相互扩散 (如图 11 所示), 因此其磁学性能具有耐高温退火稳定性 (400 °C 以内), 并且注入的电子可以保持较高的自旋极化状态. 2018 年, Cadiz 等^[32] 利用具有垂直磁各向异性的 Ta/CoFeB/MgO 作为自旋注入端, 同时优化了 spin LED 有源区的结构设计, 采用 p 型 InGaAs 量子点, 在零磁场下观测到单量子点 ~35% 圆偏振光极化率 (如图 12 所示), 这是迄今为止采用垂直各向异性自旋二极管观测到的最好的结果. 表 2 给出了基于垂直磁各向异性自旋注入端的 spin LED 研究历程中主要的自旋注入端材料、结构及对应的圆偏振光极化率结果.

5 总结及展望

自旋电子注入效率的提高使得 spin LED 的圆偏振光极化率得到了提升, 这对于 spin LED 的器件未来应用至关重要. Spin LED 的未来研究仍将包括物理、材料和器件结构等几个方面. 实现室温零磁场下自旋注入仍将是 spin LED 重点研究内容之一. 在基于垂直磁各向异性的自旋注入端研究中, 未来探索在保证较高自旋注入效率和圆偏振光极化率的基础上, 若在 spin LED 自旋注入端中能够利用自旋轨道转矩驱动垂直磁各向异性磁化强度 (磁矩) 的翻转, 则有望进一步提升 spin LED 的工作性能. 另外采用新材料 (如: 具有丰富半导体性质的低维材料及其异质结构) 应用到 spin LED 有源区, 则可以调制发光频率区间以进一步拓展 spin LED 的应用范围.

伴随着自旋电子学发展的同时, spin LED 的研究范围也不断地在拓展, 尤其是第三代半导体材

料和低维半导体材料可以在其中发挥重要作用. 其中 GaN 不但具有较大的能隙 (室温下约 3.4 eV), 而且具有较弱的自旋轨道耦合 ($\Delta_{\text{so}} \approx 15 \text{ meV}$)^[33], 因此 GaN 中的自旋弛豫时间 (5 K 温度下约 20 ns; 室温下约几百 ns)^[34] 比 GaAs 中的自旋弛豫时间大 3 个数量级 (10 K 温度下约 500 ps)^[8,35]. 较长的自旋相干时间也为 GaN 在半导体自旋电子器件中的应用提供了优势. 最近基于 GaN 基的可见光 spin LED 和自旋激光器 (spin lasers) 已被研究报道^[36–42]. 在该类 spin LED 和自旋激光器中, 室温下已分别实现 6%^[40] 及 25%^[41] 圆偏振光极化率. 此外, 二维材料由于新奇的物理性质也受到了广泛关注, 2016 年 Ye 等^[43] 利用电学注入方式实现了从具有垂直磁各向异性的 GaMnAs 中将自旋极化的空穴注入到 WS₂ 中, 实现了基于二维材料的 spin LED, 如图 13 所示. 同年 Sanchez 等^[44] 实现了基于 MoS₂/WeS₂ 异质结构为有源区的 spin LED.

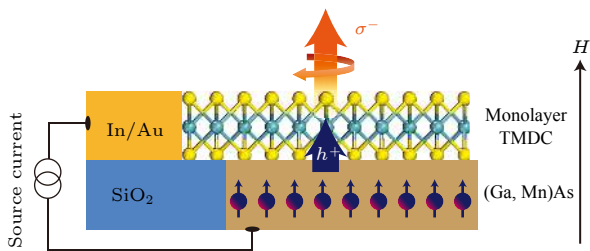


图 13 基于 (Ga, Mn)As 自旋注入端、MoS₂/WeS₂ 有源区的自旋发光二极管结构示意图^[43]

Fig. 13. Schematic of the monolayer TMDC/(Ga, Mn)As heterojunction for electrical valley polarization devices. (Ga, Mn)As was used as a spin aligner under an external magnetic field^[43].

综上所述, 未来通过对 spin LED 器件自旋注入端及其有源区的进一步深入系统研究和优化, 自旋发光二极管的器件功能特性将在自旋-光信息传输与显示方面展现出巨大的应用价值和发展前景.

参考文献

- [1] Holub M, Bhattacharya P 2007 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **40** R179
- [2] Farshchi R, Ramsteiner M, Herfort J, Tahraoui A, Grahn H T 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 162508
- [3] Asshoff P, Merz A, Kalt H, Hetterich M 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 112106
- [4] Kim D Y 2006 *J. Korean Phys. Soc.* **49** S505
- [5] Fiederling R, Keim M, Reuscher G, Ossau W, Schmidt G, Waag A, Molenkamp L W 1999 *Nature* **402** 787
- [6] Ohno Y, Young D K, Beschoten B, Matsukura F, Ohno H, Awschalom D D 1999 *Nature* **402** 790
- [7] Taniyama T, Wada E, Itoh M, Yamaguchi M 2011 *NPG Asia Mater.* **3** 65
- [8] Lu Y, Truong V G, Renucci P, Tran M, Jaffrès H, Deranlot C, George J M, Lemaître A, Zheng Y, Demaille D, Binh P H, Amand T, Marie X 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 152102
- [9] Rashba E I 2000 *Phys. Rev. B* **62** R16267
- [10] Elliott R J 1954 *Phys. Rev.* **96** 266
- [11] Zhao F 2010 *Ph. D Thesis* (France: University of Toulouse)
- [12] Soldat H, Li M, Gerhardt N C, Hofmann M R, Ludwig A, Ebbing A, Reuter D, Wieck A D, Stromberg F, Keune W, Wende H 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 051102
- [13] Saikin S, Shen M, Cheng M C 2006 *J. Phys. Condens. Matter* **18** 1535
- [14] Young D K, Johnston-Halperin E, Awschalom D D, Ohno Y, Ohno H 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 1598
- [15] Jiang X, Wang R, Shelby R M, Macfarlane R M, Bank S R, Harris J S, Parkin S S P 2005 *Phys. Rev. Lett.* **94** 056601
- [16] Zhu H J, Ramsteiner M, Kostial H, Wassermeier M, Schönherr H P, Ploog K H 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 016601
- [17] Ikeda S, Hayakawa J, Ashizawa Y, Lee Y M, Miura K, Hasegawa H, Tsunoda M, Matsukura F, Ohno H 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 082508
- [18] Barate P, Liang S, Zhang T T, Frougier J, Vidal M, Renucci P, Devaux X, Xu B, Jaffrès H, George J M, Marie X, Hehn M, Mangin S, Zheng Y, Amand T, Tao B, Han X F, Wang Z, Lu Y 2014 *Appl. Phys. Lett.* **105** 012404
- [19] Hanbicki A T, Jonker B T, Itskos G, Kioseoglou G, Petrou A 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 1240
- [20] Motsnyi V F, De Boeck J, Das J, Van Roy W, Borghs G, Goovaerts E, Safarov V I 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 265
- [21] Lombez L, Braun P F, Renucci P, Gallo P, Carrère H, Binh P H, Marie X, Amand T, Gauffier J L, Urbaszek B, Arnoult A, Fontaine C, Deranlot C, Mattana R, Jaffrès H 2007 *Phys. Status Solidi C* **4** 567
- [22] Wu H, Zheng H, Liu J, Li G, Xu P, Zhu H, Zhang H, Zhao J 2010 *Sci. China Phys. Mech.* **53** 649
- [23] Barate P, Liang S H, Zhang T T, Frougier J, Xu B, Schieffer P, Vidal M, Jaffrès H, Lépine B, Tricot S, Cadiz F, Garandel T, George J M, Amand T, Devaux X, Hehn M, Mangin S, Tao B, Han X F, Wang Z G, Marie X, Lu Y, Renucci P 2017 *Phys. Rev. Appl.* **8** 054027
- [24] Gerhardt N C, Hövel S, Brenner C, Hofmann M R, Lo F Y, Reuter D, Wieck A D, Schuster E, Keune W, Westerholt K 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 032502
- [25] Adelmann C, Hilton J L, Schultz B D, McKernan S, Palmström C J, Lou X, Chiang H S, Crowell P A 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 112511
- [26] Hövel S, Gerhardt N C, Hofmann M R, Lo F Y, Ludwig A, Reuter D, Wieck A D, Schuster E, Wende H, Keune W, Petravic O, Westerholt K 2008 *Appl. Phys. Lett.* **93** 021117
- [27] Grenet L, Jamet M, Noé P, Calvo V, Hartmann J M, Nistor L E, Rodmacq B, Auffret S, Warin P, Samson Y 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 032502
- [28] Zarpellon J, Jaffrès H, Frougier J, Deranlot C, George J M, Mosca D H, Lemaître A, Freimuth F, Duong Q H, Renucci P, Marie X 2012 *Phys. Rev. B* **86** 205314
- [29] Liang S H, Zhang T T, Barate P, Frougier J, Vidal M, Renucci P, Xu B, Jaffrès H, George J M, Devaux X, Hehn M, Marie X, Mangin S, Yang H X, Hallal A, Chshiev M, Amand T, Liu H F, Liu D P, Han X F, Wang Z G, Lu Y 2014 *Phys. Rev. B* **90** 085310
- [30] Tao B S, Barate P, Frougier J, Renucci P, Xu B, Djéffal A,

- Jaffrès H, George J M, Marie X, Petit-Watelot S, Mangin S, Han X F, Wang Z G, Lu Y 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 152404
- [31] Tao B, Barate P, Devaux X, Renucci P, Frougier J, Djéffal A, Liang S, Xu B, Hehn M, Jaffrès H, George J M, Marie X, Mangin S, Han X, Wang Z, Lu Y 2018 *Nanoscale* **10** 10213
- [32] Cadiz F, Djéffal A, Lagarde D, Balocchi A, Tao B, Xu B, Liang S, Stoffel M, Devaux X, Jaffrès H, George J M, Hehn M, Mangin S, Carrere H, Marie X, Amand T, Han X, Wang Z, Urbaszek B, Lu Y, Renucci P 2018 *Nano Lett.* **18** 2381
- [33] Kyrychenko F V, Stanton C J, Abernathy C R, Pearton S J, Ren F, Thaler G, Frazier R, Buyanova I, Bergman J P, Chen W M 2005 *AIP Conf. Proc.* **772** 1319
- [34] Beschoten B, Johnston-Halperin E, Young D K, Poggio M, Grimaldi J E, Keller S, DenBaars S P, Mishra U K, Hu E L, Awschalom D D 2001 *Phys. Rev. B* **63** 121202
- [35] Krishnamurthy S, van Schilfgaarde M, Newman N 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 1761
- [36] Buyanova I A, Izadifard M, Chen W M, Kim J, Ren F, Thaler G, Abernathy C R, Pearton S J, Pan C C, Chen G T, Chyi J I, Zavada J M 2005 *AIP Conf. Proc.* **772** 1399
- [37] Ham M H, Yoon S, Park Y, Bian L, Ramsteiner M, Myoung J M 2006 *J. Phys. Condens. Matter* **18** 7703
- [38] Banerjee D, Adari R, Sankaranarayanan S, Kumar A, Ganguly S, Aldhaheri R W, Hussain M A, Balamesh A S, Saha D 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 242408
- [39] Chen J Y, Ho C Y, Lu M L, Chu L J, Chen K C, Chu S W, Chen W, Mou C Y, Chen Y F 2014 *Nano Lett.* **14** 3130
- [40] Bhattacharya A, Baten Z, Frost T, Bhattacharya P 2017 *IEEE Photon. Technol. Lett.* **29** 338
- [41] Bhattacharya A, Baten M Z, Iorsh I, Frost T, Kavokin A, Bhattacharya P 2017 *Phys. Rev. Lett.* **119** 067701
- [42] Chen J Y, Wong T M, Chang C W, Dong C Y, Chen Y F 2014 *Nat. Nanotechnol.* **9** 845
- [43] Ye Y, Xiao J, Wang H, Ye Z, Zhu H, Zhao M, Wang Y, Zhao J, Yin X, Zhang X 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 598
- [44] Sanchez O L, Ovchinnikov D, Misra S, Allain A, Kis A 2016 *Nano Lett.* **16** 5792

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

Research progress of spin light emitting diode^{*}

Liang Shi-Heng¹⁾²⁾ Lu Yuan^{3)†} Han Xiu-Feng^{1)4)‡}

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

2) (*Faculty of Physics and Electronic Science, Hubei University, Wuhan 430062, China*)

3) (*Institute Jean Lamour, Centre National de la Recherche Scientifique, Nancy 54011, France*)

4) (*Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China*)

(Received 7 June 2020; revised manuscript received 17 July 2020)

Abstract

After more than 20 years of development, semiconductor spintronics has become an important and interdisciplinary research field of spin-based physics, materials and phenomenon. Spin light emitting diode (spin LED) is one of the fascinating topics in semiconductor spintronic, and it is also one of devices in which the radiative recombination of spin-polarized carriers results in luminescence exhibiting a net circular polarization. The research of spin LED involves the studies of materials, structures, and spin based physics in spin injector and active region. The spin injection, spin transport, and spin detection are key factors for understanding the spin based physics in spin LED. Here in this paper, we comprehensively review the current research status and the latest results. Finally, we also discuss the future research trend.

Keywords: semiconductor spintronics, spin LED, spin polarization, spin injection

PACS: 85.75.-d, 75.70.-I, 72.25.Dc, 72.25.Hg, 78.60.Fi

DOI: 10.7498/aps.69.20200866

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2017YFA0206200), the Key Program of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 51831012), the Key Joint Program of China-France of the National Natural Science Foundation (Grant No. 51620105004), the Strategic Priority Research Program (B) of Chinese Academy of Sciences (Grant No. XDB33000000), the Key Research Program of Frontier Sciences and the International Partnership Program of Chinese Academy of Sciences (Grant No. QYZDJ-SSW-SLH016), the Beijing Natural Science Foundation of China (Grant No. Z201100004220006), and the Joint ANR-NSFC SISTER Project (Grant Nos. ANR-11-IS10-0001, NNSFC61161130527).

† Corresponding author. E-mail: yuan.lu@univ-lorraine.fr

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

$\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (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 $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (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 SrTiO_3 中的逆自旋霍尔效应

Inverse spin Hall effect in Nb doped SrTiO_3

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

$\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}(\text{YIG})/\text{Pt}$ 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($\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$, 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 $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ (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 $\text{LaY}_2\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ^[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, 我们在钇镓石榴石 ($\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$, 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, 在钇镓石榴石 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

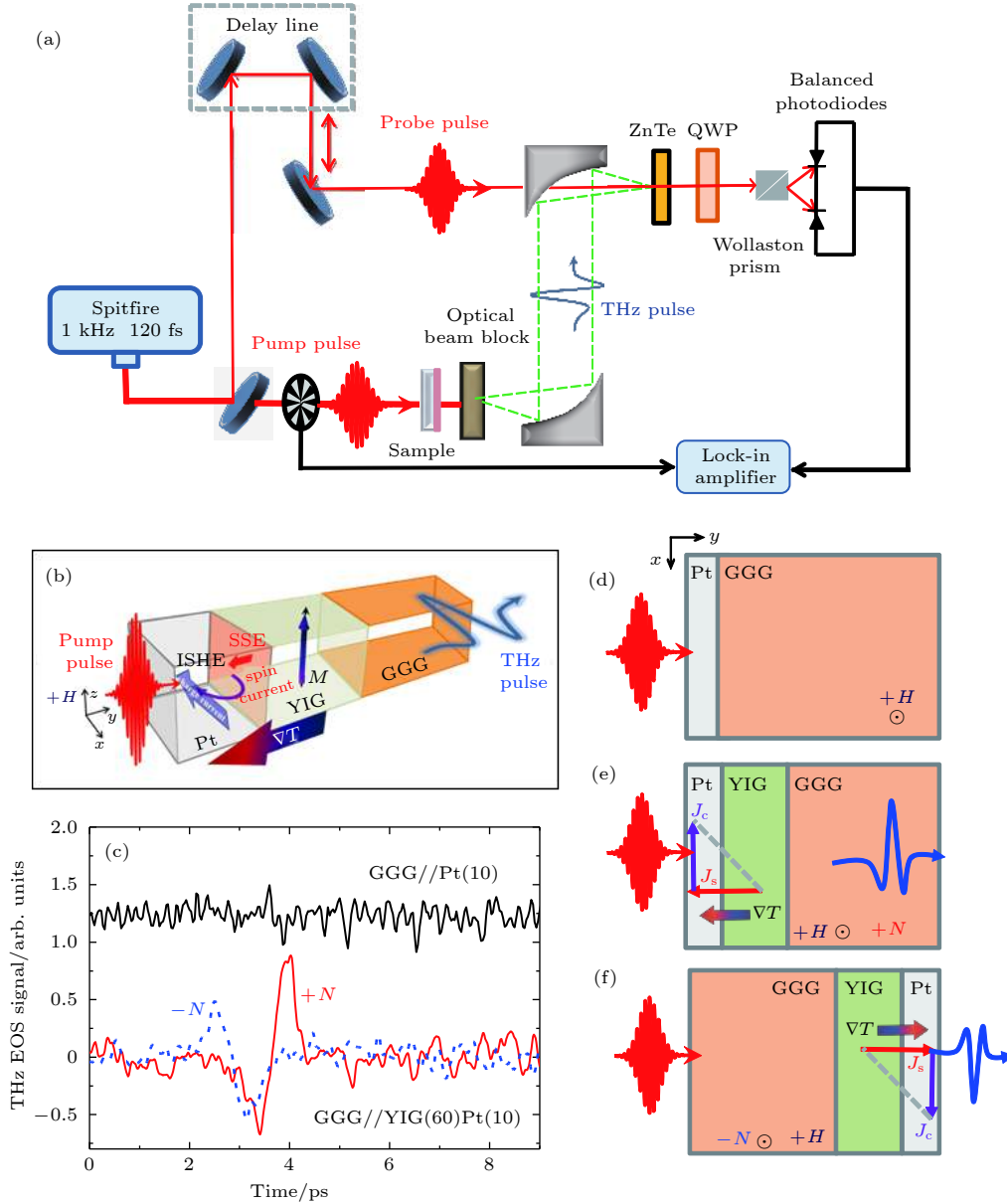


图 1 (a) THz 发射光谱实验装置图; (b) 在 YIG/Pt 双层膜结构中, 沿 z 轴方向外加面内磁场 $H = \pm 200$ mT, 飞秒激光诱导铁磁绝缘体和非磁性金属界面产生瞬态温度梯度 ∇T (沿着 $-y$ 轴; 红色表示高温, 蓝色表示低温), 超快 SSE 产生一个从 YIG 进入 Pt 层的自旋流 (沿着 $-y$ 轴), 基于 ISHE, 在 $-x$ 轴方向上产生瞬态电荷流; (c) 样品 GGG//Pt(10) 和 GGG//YIG(60)/Pt(10) 双层膜的 THz 辐射信号, $+N$ 和 $-N$ 分别表示激光脉冲从 Pt 膜一侧和 GGG 衬底一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

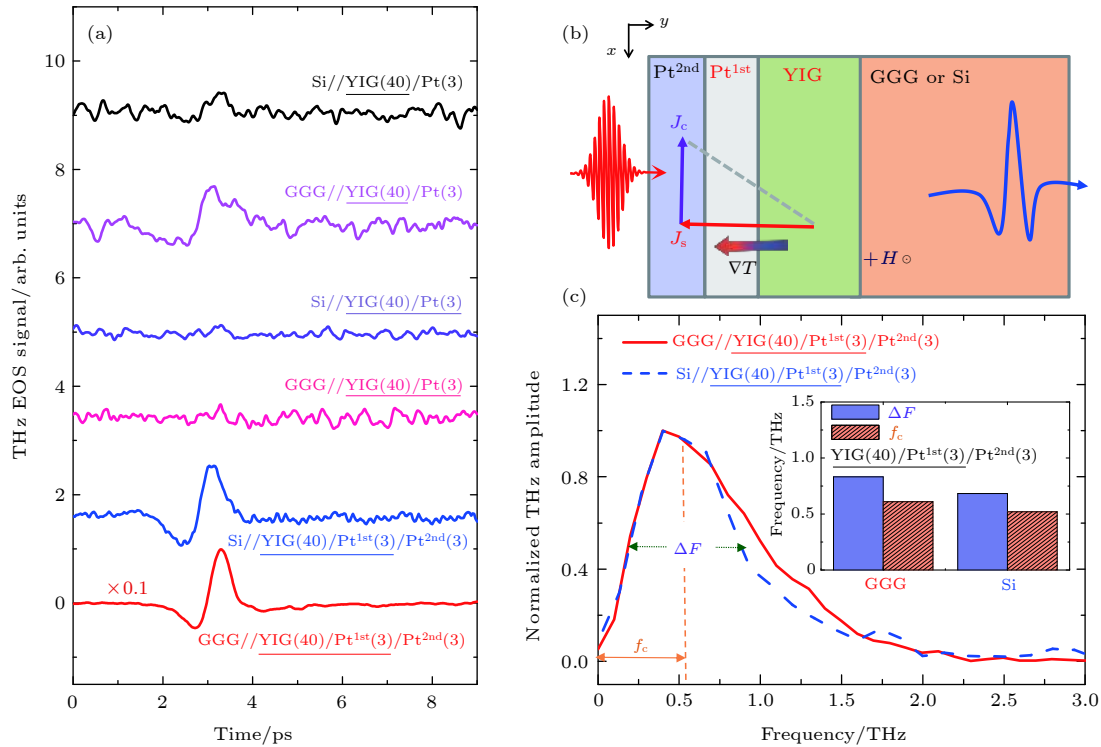


图 2 (a) GGG//YIG(40)/Pt(3), Si//YIG(40)/Pt(3), GGG//YIG(40)/Pt(3), Si//YIG(40)/Pt(3), GGG//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 和 Si//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 不同结构样品所产生的 THz 辐射脉冲; (b) 飞秒激光脉冲激发 YIG/Pt^{1st}/Pt^{2nd} 结构辐射 THz 信号示意图; (c) 将图 (a) 中 GGG//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 和 Si//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 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构置的关系. 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

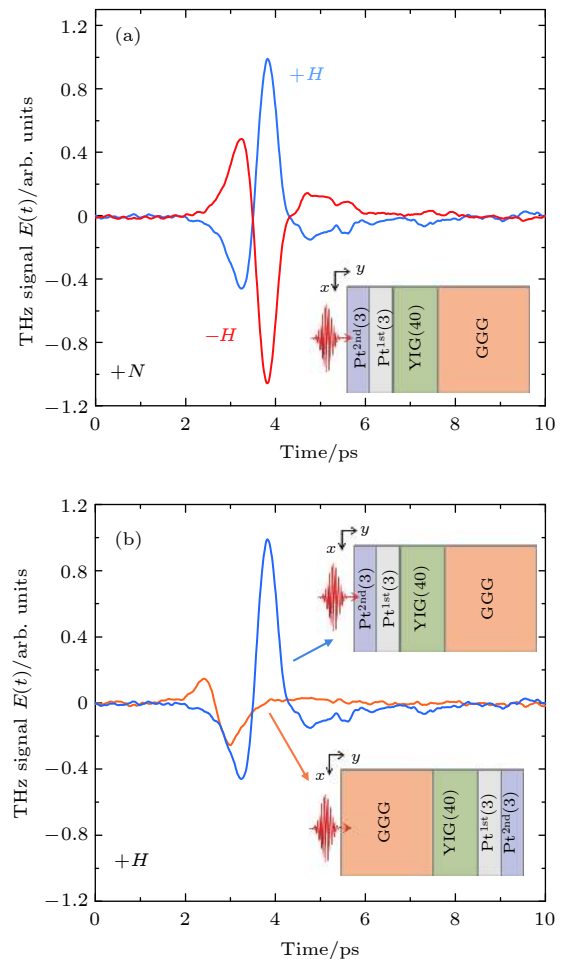


图 3 (a) 外加磁场 $+H$ (蓝线) 和 $-H$ (红线) 时, GGG//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 结构辐射的 THz 脉冲; (b) GGG//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 结构在不同激光激发构置下产生的 THz 脉冲, 此时外加磁场固定为 $+H$, 插图为飞秒脉冲激发样品的方向

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 为激发光脉冲的能量密度, 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 $(1.369 \pm 0.047) \text{ mJ/cm}^2$. 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.

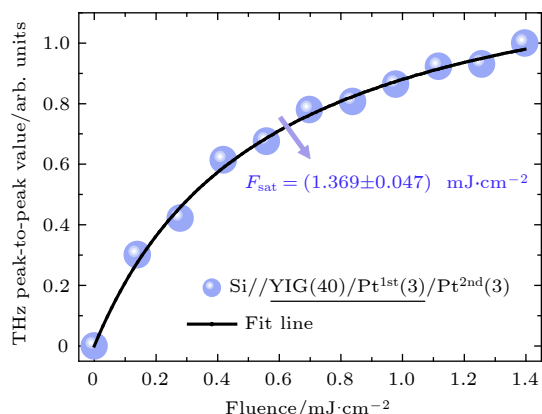


图 4 Si//YIG(40)/Pt^{1st}(3)/Pt^{2nd}(3) 异质结构所产生的 THz 脉冲峰峰值与入射光能量密度的依赖关系. 图中紫色圆圈为实验数据点, 黑色曲线为拟合结果

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, Tatara 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

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——超快自旋输运、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, 超快自旋输运, 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@mtirc.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: tanwei@mtirc.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.

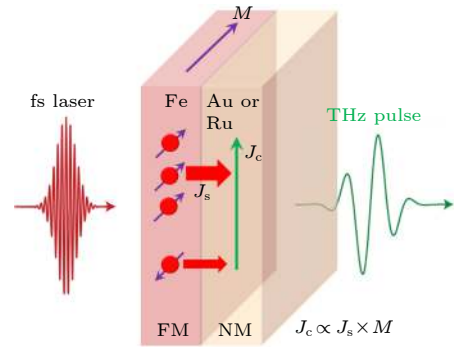


图 1 自旋太赫兹源原理

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输运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

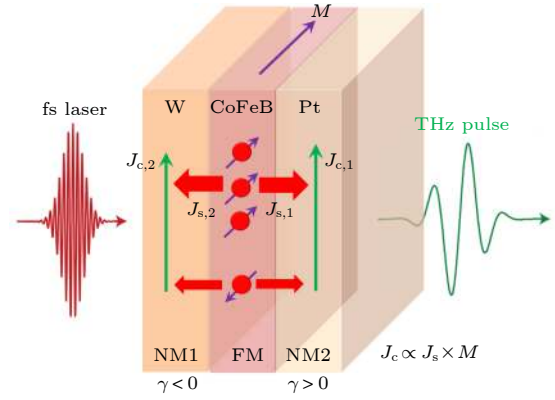


图 2 三层结构自旋太赫兹源

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

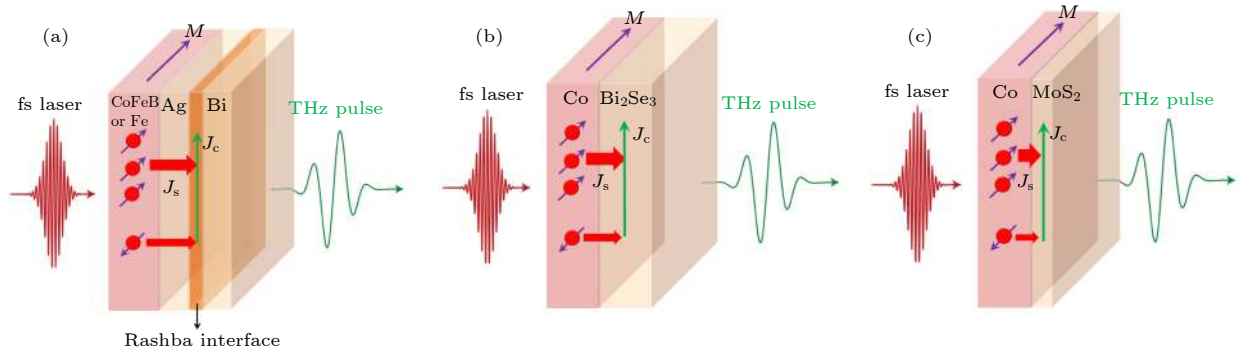


图 3 基于逆 Rashba-Edelstein 效应的太赫兹发射 (a) Ag/Bi 界面; (b) 拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 表面态; (c) 二维半导体材料 MoS_2

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].

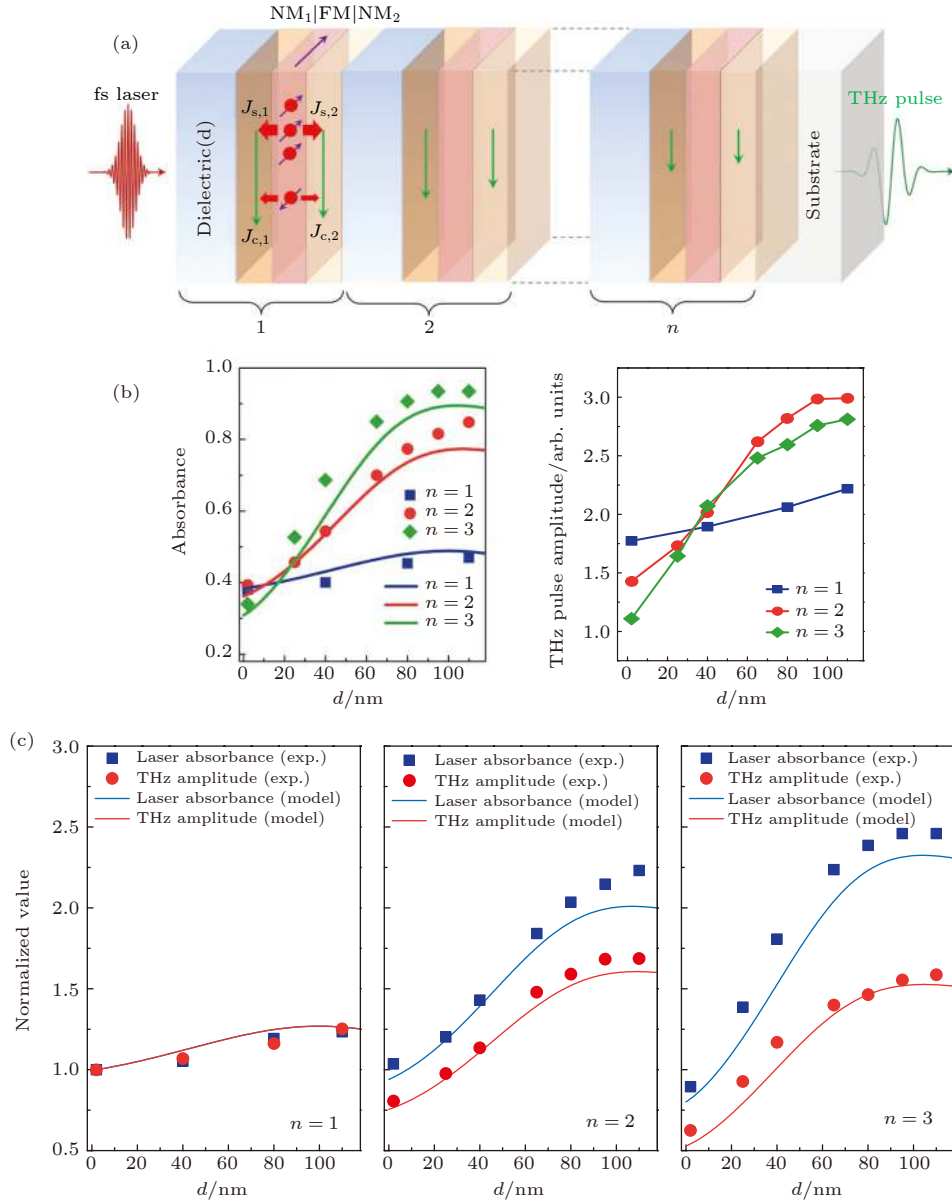


图 4 金属-介质光子晶体自旋太赫兹源^[34] (a) 结构示意图; (b) 不同周期样品的飞秒激光吸收率与太赫兹强度随介质层 SiO₂ 厚度 d 的变化; (c) 归一化的激光吸收率与太赫兹强度

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

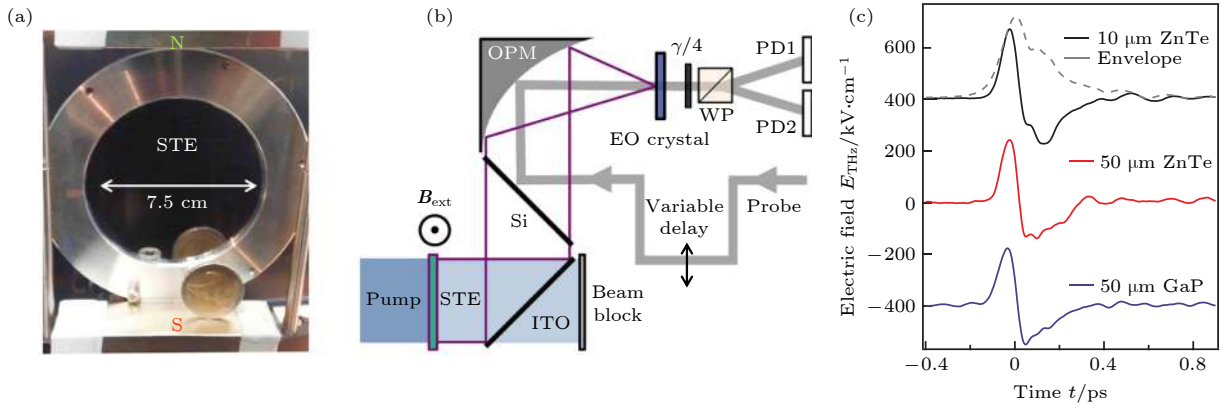


图 5 高场强自旋太赫兹源^[37] (a) 大面积自旋太赫兹源照片; (b) 实验装置示意图; (c) 太赫兹电场强度

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.

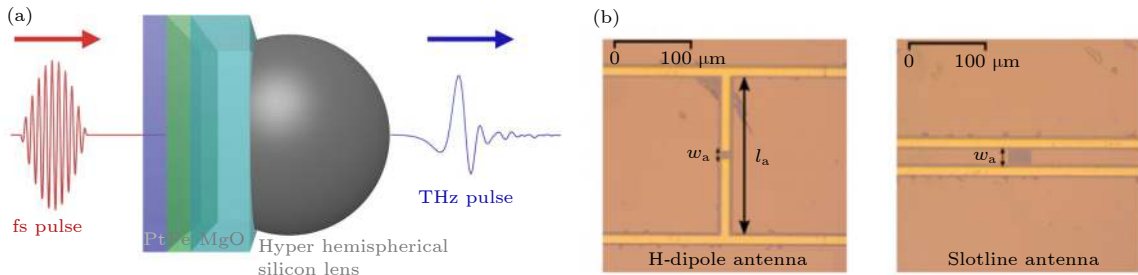


图 6 (a) 自旋太赫兹源与超半球硅透镜组合器件^[22]; (b) 自旋太赫兹源与天线结构耦合器件^[39]

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 $10\ \mu\text{m}$ 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

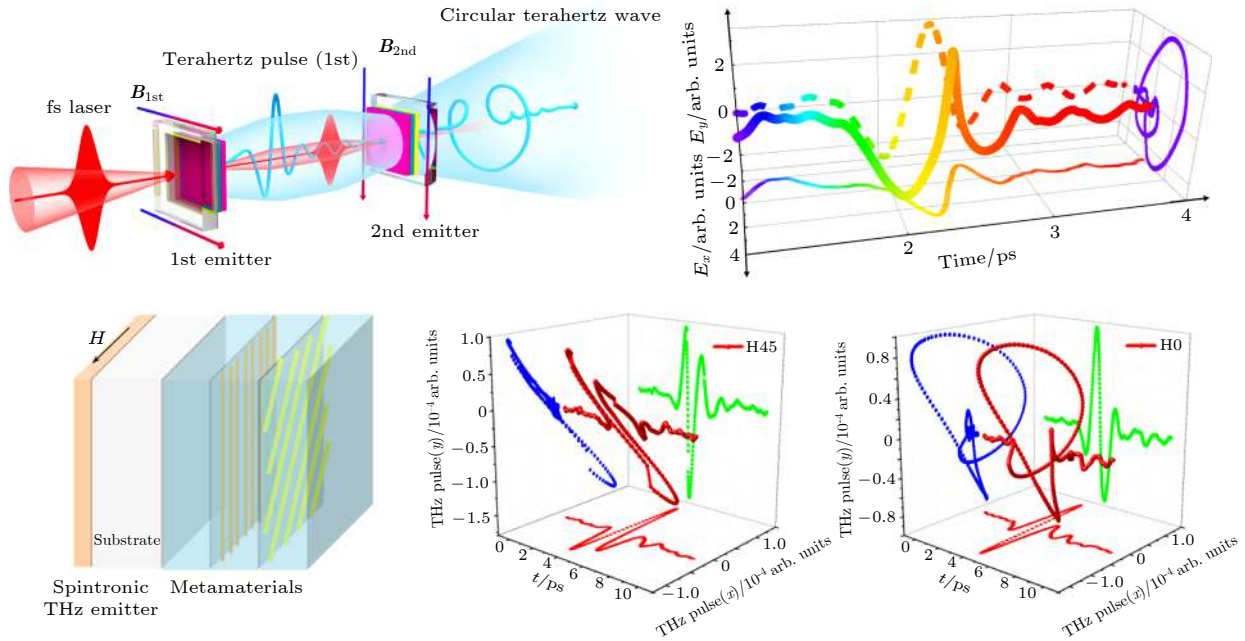


图 7 偏振可调自旋太赫兹源 (a) 级联自旋太赫兹源^[42]; (b) 超材料集成自旋太赫兹源^[44]

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

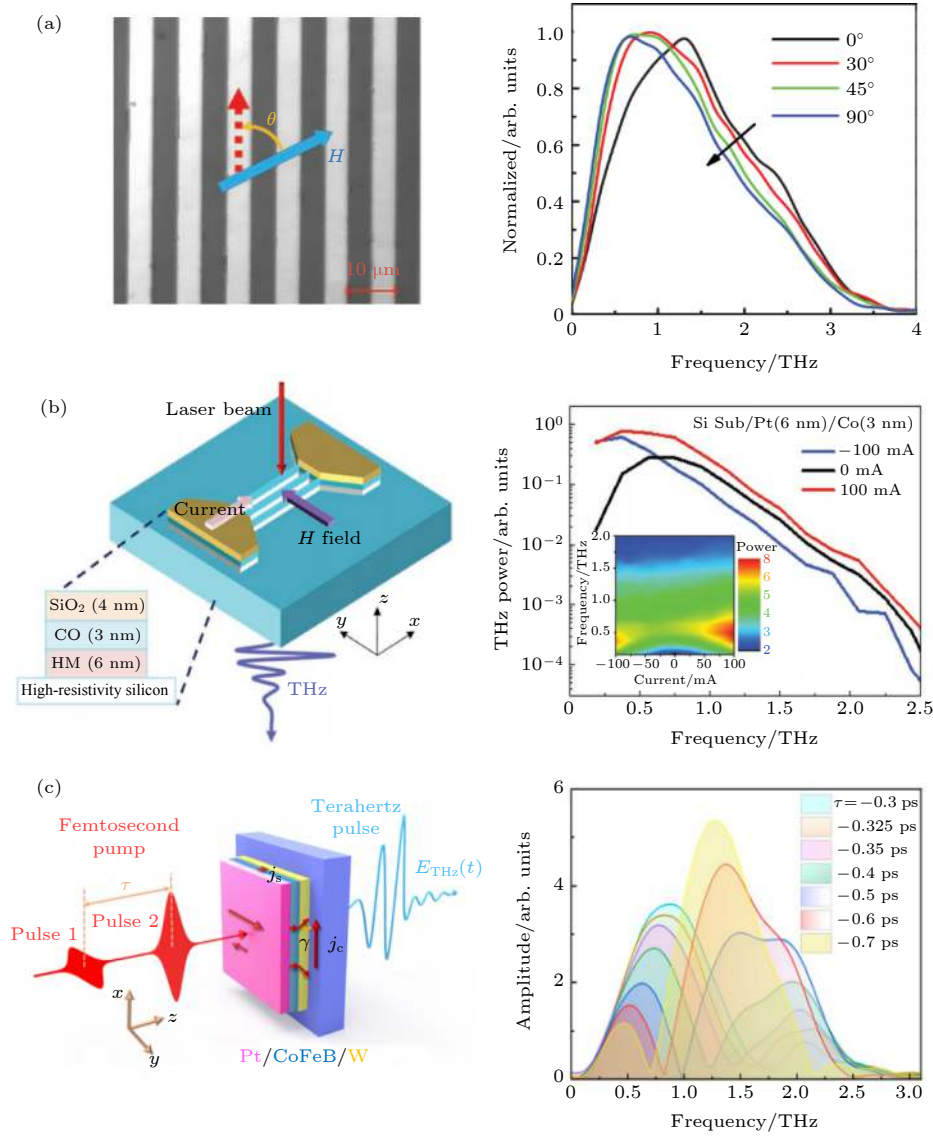


图 8 频谱可调自旋太赫兹源 (a) 条带图形自旋太赫兹源^[20]; (b) 电流增强复合自旋太赫兹源^[46]; (c) 飞秒激光脉冲对激发自旋太赫兹源^[47]

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.

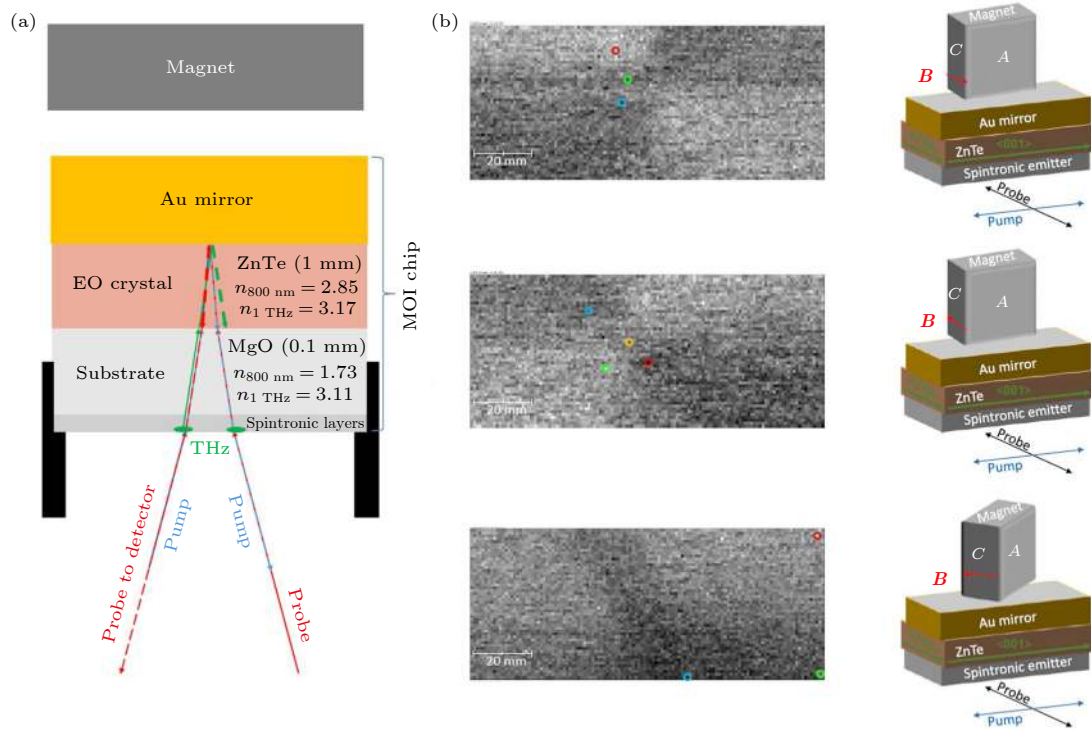

 图 9 基于自旋太赫兹源的磁检测/成像芯片^[48] (a) 示意图; (b) 不同永磁铁取向下的磁分布成像图

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

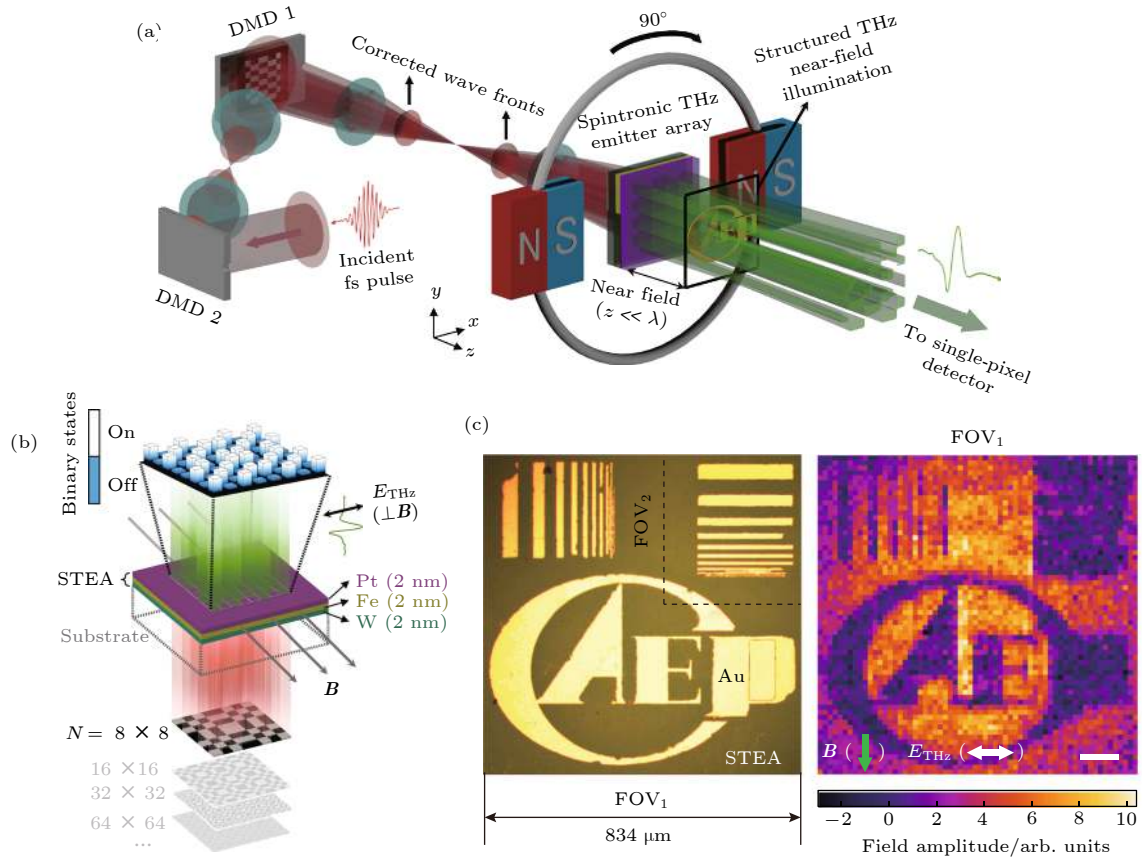

 图 10 自旋太赫兹源阵列鬼成像显微术^[49] (a) 示意图; (b) 自旋太赫兹源阵列; (c) 成像物体的光学照片和太赫兹鬼成像图

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 $6.5\text{ }\mu\text{m}$ (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 LiNbO₃ 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] Withayachumnankul 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] Beauprepaire 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, Beaupaire 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] Gückstock 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, Battiatto 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, Battiatto 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, Tzortzakakis 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

^{*} 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@mttc.ac.cn

[‡] Corresponding author. E-mail: tanwei@mttc.ac.cn



专题：太赫兹自旋光电子

高通量制备的 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ 晶体中反铁磁自旋模式和晶体场跃迁的太赫兹光谱*方雨青¹⁾ 金钻明^{1)2)4)†} 陈海洋²⁾ 阮舜逸²⁾ 李炬赓²⁾
曹世勋²⁾ 彭滢¹⁾ 马国宏^{2)3)‡} 朱亦鸣^{1)4)††}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⁾ (上海大学理学院, 上海 200444)³⁾ (上海科技大学-上海光机所超强超快联合实验室, 上海 201210)⁴⁾ (同济大学上海智能科学与技术研究院, 上海 200092)

(2020 年 5 月 15 日收到; 2020 年 6 月 13 日收到修改稿)

太赫兹辐射已经成为研究稀土铁氧化物 (RFeO_3) 的远红外响应和电子自旋特性的有效手段. 本文研究了高通量制备的稀土共掺杂 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ 单晶在零磁场下的反铁磁自旋模式 (qAFM) 和稀土离子的晶体场跃迁. 利用透射型太赫兹时域光谱, 实验测得 $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 和 $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ 单晶的 qAFM 共振频率位于 PrFeO_3 单晶和 SmFeO_3 单晶的 qAFM 共振频率 (分别为 0.57 和 0.42 THz) 的连线上. $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ 的 qAFM 模式频率随 Sm^{3+} 离子掺杂浓度的增大而增大. 实验结果表明, $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ 在 160 K 左右发生温度诱导的自旋重取向相变. 当晶体温度低于 80 K, 晶体场效应导致 $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 的吸收谱在 0.5 THz 附近出现宽带吸收峰. 目前的研究结果表明, 太赫兹光谱数据有助于检测高通量制备稀土铁氧体的晶体质量和稀土元素含量, 并将提高稀土掺杂对材料物性调控的分析能力.

关键词: 太赫兹时域光谱, 反铁磁, 稀土铁氧体, 自旋共振**PACS:** 95.85.Gn, 78.47.J, 75.50.Ee, 76.50.+g**DOI:** 10.7498/aps.69.20200732

1 引言

在磁有序材料中, 反铁磁材料具有抗外磁场干扰、无杂散磁场、本征频率高等特点^[1,2]. 稀土正铁氧体是指含有稀土元素的铁氧化物, 其分子式为

RFeO_3 (其中 R 为稀土离子或 Y 离子), 是一种具有独特磁性、磁光和磁电相互作用的反铁磁绝缘体. RFeO_3 具有扭曲的钙钛矿结构, 可以用空间群 $D_{2h}^{16}-pbnm$ 描述. RFeO_3 表现出丰富的自旋动力学和磁子输运特性, 成为凝聚态物理重要的研究对象^[3-6]. 一般来讲, RFeO_3 中的三价铁离子形成两

* 国家自然科学基金 (批准号: 61975110, 11674213, 61735010, 11604202)、111 项目 (批准号: D18014)、上海市科委国际联合实验室项目 (批准号: 17590750300)、上海市科委重点项目 (批准号: YDZX20193100004960)、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: ghma@staff.shu.edu.cn

†† 通信作者. E-mail: ymzhu@usst.edu.cn

个 G 型反铁磁耦合的亚晶格, 其磁矩分别表示成 $\mathbf{S}_1$ 与 $\mathbf{S}_2$. 由于 Dzyaloshinskii-Moriya(DM) 相互作用导致 $\mathbf{S}_1$ 和 $\mathbf{S}_2$ 之间轻微倾斜, 从而产生宏观铁磁矩 $\mathbf{M} = \mathbf{S}_1 + \mathbf{S}_2$, G 型反铁磁矩 $\mathbf{L} = \mathbf{S}_1 - \mathbf{S}_2$, 且 $|\mathbf{L}| \gg |\mathbf{M}|$ 在奈尔温度以下, 当反铁磁矩 $\mathbf{L}$ 沿着晶体 a 轴, 铁磁矩 $\mathbf{M}$ 沿着晶体 c 轴时, 定义此时 RFeO_3 的磁结构为 Γ_4 相. RFeO_3 中的两种磁性离子提供了 Fe^{3+} - Fe^{3+} , Fe^{3+} - R^{3+} 以及 R^{3+} - R^{3+} 三种磁性交换相互作用. 其中 Fe^{3+} - Fe^{3+} 相互作用最强, 决定了在约 650 K 的奈尔温度 (材料的反铁磁性变成顺磁性的温度, 即热能大到足以破坏材料内部的微观反铁磁有序) 以下, Fe^{3+} 离子的自旋为反铁磁有序, 且磁矩的共振频率延伸到了 THz 波段. 另外, Fe^{3+} - R^{3+} 的交换相互作用会导致磁各向异性, 从而产生由温度、磁场引起的自旋重取向现象 [7-9]. 值得注意的是, 发生于 10 K 以下的 R^{3+} - R^{3+} 相互作用对稀土离子的长程有序起作用.

稀土元素掺杂可以有效改变 RFeO_3 的物理特性, Sm^{3+} 离子的浓度可以连续调控 $\text{Sm}_x\text{Dy}_{1-x}\text{FeO}_3$ 单晶中的本征自旋模式和自旋重取向 (spin reorientation transition, SRT) 温区 [10]. 通过 Y^{3+} 离子掺杂的 ErFeO_3 单晶系列样品证实 Fe^{3+} 离子和 Er^{3+} 离子耦合率与稀土离子 Er^{3+} 浓度的依赖关系满足迪克模型 [11]. 一般而言, 系统研究稀土掺杂对 RFeO_3 单晶的影响, 需要制备若干不同组分的单晶样品, 这不仅耗时, 且成本高. 高通量实验是指在短时间周期内, 通过一次实验合成完整的多组分材料体系, 即将传统材料研究中顺序迭代方法改为并行处理, 通过量变使材料研究效率发生质变, 从而全面获得材料的数据. 相对于薄膜材料的生长, 由于高通量制备块体单晶生长过程中精准控制实验条件难度大, 相关的报道还相对较少 [12]. 高通量制备 RFeO_3 样品的磁学性能研究处于起步阶段, 还没有合适的研究手段对高通量制备反铁磁单晶的自旋共振、稀土离子的电子跃迁和 Fe^{3+} - R^{3+} 相互作用等进行原位检测.

太赫兹 (terahertz, THz) 电磁辐射, 一般指 0.1—10.0 THz, 波长范围在 30—3000 μm 范围内的电磁波. THz 脉冲具有 meV 量级的光子能量, 可用于探测甚至控制许多半导体材料中的低能元激发, 如声子、激子等 [13,14]. 最近, 太赫兹光谱也广泛应用于磁有序材料的研究 [15-18]. THz 辐射提供了一种全新的方式诱导铁磁金属中的超快退磁 [19,20]. 不同

于红外飞秒激光诱导退磁所产生的电子温度高于 1000 K, THz 驱动的超快退磁过程主要取决于特有的电子散射过程 [21]. 最新报道表明, 强 THz 磁场脉冲可以在铁磁金属中诱导相干进动 (coherent precession) 并实现自旋弹道反转 (ballistic spin switching) [22]. 除了能实现超快退磁, THz 脉冲的磁场分量与磁有序介质的磁化矢量相互作用产生的 Zeeman 转矩可以激发特定的自旋波模式和电磁振子 [23,24]. THz 脉冲的磁场分量 ($\mathbf{H}_{\text{THz}}$) 能有效激发 RFeO_3 的准铁磁模式 (qFM) ($\mathbf{H}_{\text{THz}} \perp \mathbf{M}$) 和准反铁磁模式 (qAFM) ($\mathbf{H}_{\text{THz}} \parallel \mathbf{M}$) 自旋波, qFM 模式表现为宏观磁化强度 $\mathbf{M}$ 的进动, 而 qAFM 模式对应 $\mathbf{M}$ 的伸缩振动 [25-30]. 强 THz 脉冲的电场分量可以突然改变电子的轨道状态, 导致磁各向异性的突变, 从而以较大幅度触发磁振子振荡 [31]. THz 时域光谱 (THz-TDS) 已经成为研究 RFeO_3 磁化子动力学的有效手段.

在之前对高通量制备的 $\text{Sm}_{0.7}\text{Pr}_{0.3}\text{FeO}_3$ 单晶样品各向异性磁学性能的研究基础上, 本文通过太赫兹时域光谱研究了高通量制备的 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ 单晶样品的 qAFM 模式共振频率与 Sm 元素掺杂含量的关系. 通过研究不同 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}$ 掺杂晶体在低温下的 THz 透射光谱数据, 实验发现 $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ 晶体发生了自旋重取向跃迁, 重取向温区在 160 K 附近. 当样品温度低于 80 K 时, 在 $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 单晶中发现, 0.5 THz 附近出现明显的 Pr^{3+} 离子吸收光谱特征. 改变 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}$ 的比例, 在 $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ 晶体中未发现 Pr^{3+} 离子的吸收光谱特征. 实验结果表明, 利用 THz 光谱技术可以原位检测高通量方法制备的 RFeO_3 晶体棒中稀土掺杂浓度调控的自旋共振、稀土离子电子跃迁等物理过程.

2 高通量单晶制备与 THz 时域光谱

考虑到晶体生长过程中结构的连续性, 设计了一种可以一次实验过程中生长具有多种成分 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ 单晶的方法 [12]. 首先以高纯度 Sm_2O_3 (99.99%), Pr_2O_3 (99.9%) 和 Fe_2O_3 (99.99%) 粉末为原料, 通过固相反应法 (在 1350 $^{\circ}\text{C}$ 下烧结 1000 min) 得到目标化合物 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$. 可以先确定一种成分的质量, 再按照其化学比例配制其他成分的质量. 将三种原料粉末混合均匀后放入箱式炉中烧结. 随后将烧结物重新研磨成多晶粉末, 并用 XRD

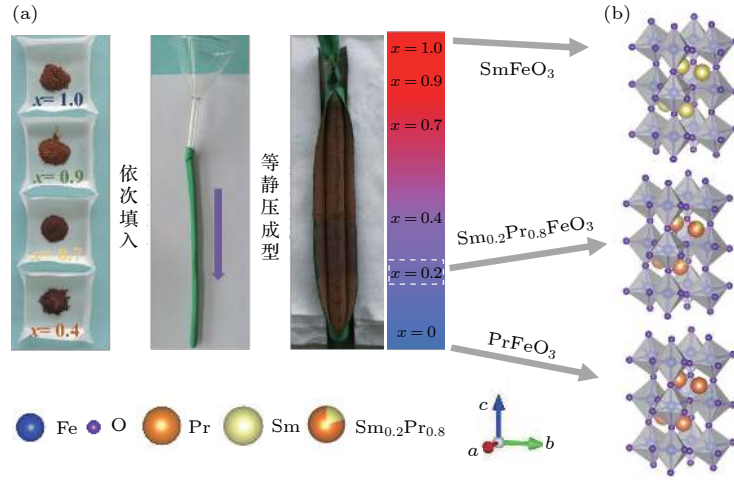


图 1 (a) 高通量制备准连续成分单晶 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ 示意图; (b) SmFeO_3 , PrFeO_3 和 $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 单晶的晶体结构图

Fig. 1. (a) Experimental schematic of quasi-continuous phase formation in the high-throughput grown $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ ($x = 0, 0.4, 0.7, 0.9, 1.0$); (b) the crystallography structure of the single crystal SmFeO_3 , PrFeO_3 , and $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$.

衍射谱确定该多晶粉末的成分. 依次将 $x = 0.4, 0.7, 0.9, 1.0$ 的粉末填入圆柱形球囊中, 每一组分长度约 15 mm. 在 1350 °C 下烧结 1000 min 制成多晶料棒. 然后使用四镜光学浮区炉, 在流动的空气 (3—4 L/min) 中以约 2 mm/h 的速度生长单晶. 最后以 PrFeO_3 单晶作为籽晶, 通过光学浮区法, 生长具有准连续成分的 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ 单晶. 在生长的始末, 由于晶格结构的相似性, 晶体保持与籽晶 PrFeO_3 相同的晶向排列. 熔区内不同组分在上下棒反向旋转下会均匀混合, 使得连接处成分连续变化, 相邻成分之间的边界变得模糊, 晶体成分逐渐从 PrFeO_3 变成 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$, 最终为 SmFeO_3 单晶. 图 1(a) 所示为 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ 单晶棒. 沿着生长方向不同位置的 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ 单晶均具有良好的结晶质量, 各相邻成分之间的晶格失配小, 生长得到的单晶通过 X 射线衍射光谱和能谱仪确定其成分 [12,32–35]. 图 1(b) 为 SmFeO_3 , PrFeO_3 和 $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 单晶的晶体结构. 选取 b 切 $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 和 $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ 晶体薄片 (前后表面平行) 用于 THz 光谱测试, 样品厚度分别是 1.859 mm 和 1.425 mm. 目前切割得到的晶体形状并不十分规则, $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 和 $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ 单晶的横向尺寸最大处分别为 5.038 mm 和 4.170 mm.

图 2(a) 为透射式太赫兹时域光谱 (THz-TDS) 示意图, 使用的激光脉冲来自于锁模钛宝石激光器 (Mai Tai HP-1020, Spectra-Physics). 脉冲持续时间为 100 fs, 中心波长 800 nm, 重复频率为

80 MHz 的飞秒激光脉冲用于产生和探测 THz 脉冲. 其中, THz 辐射源和探测器都为偶极型低温生长的 GaAs 光电导天线. THz 辐射为垂直于光电导天线方向的线偏振脉冲, 有效频率范围约为 0.1—2.0 THz. THz 波垂直入射到样品, 样品置于液氮低温恒温器 (温度范围为 40—300 K) 中, 在测量过程中样品未施加任何静磁场. 在 THz-TDS 实验装置内冲入氮气以减少空气中水汽对 THz 传播光束的影响, 实验环境湿度约为 8%. 实验中, 样品的晶轴 a, b, c 与实验室笛卡尔坐标系 x, y, z 相对应, THz 脉冲的波矢量沿 b 轴传播.

3 实验结果与分析

首先测量了室温下 THz 波透过 b 切 $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 单晶和 $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ 单晶后的 THz 时域波形图, 如图 2(b),(c) 所示. THz 时域波形由两个部分组成, THz 波的主脉冲和指数衰减的振荡部分. THz 波的主脉冲信号在时域谱上的位置不同主要是由于样品的厚度不同造成的. 已有的研究表明振荡部分为磁共振模式的自由感应衰减 (free induction decay, FID) 信号, 其振幅正比于 THz 波段内磁偶极跃迁的强度. 图 2(b),(c) 的插图分别为振荡部分对应的频谱, 共振峰分别出现在 0.45 和 0.48 THz. 实验中, 入射 THz 脉冲的磁场分量 $\mathbf{H}_{\text{THz}}$ 与样品的宏观磁化强度 $\mathbf{M}$ (c 轴) 平行. 因此, 这两个共振峰分别对应激发了高通量制备的 $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 和 $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ 单晶的 qAFM ($\mathbf{L}_a, \mathbf{L}_b$ 和 $\mathbf{M}_c$

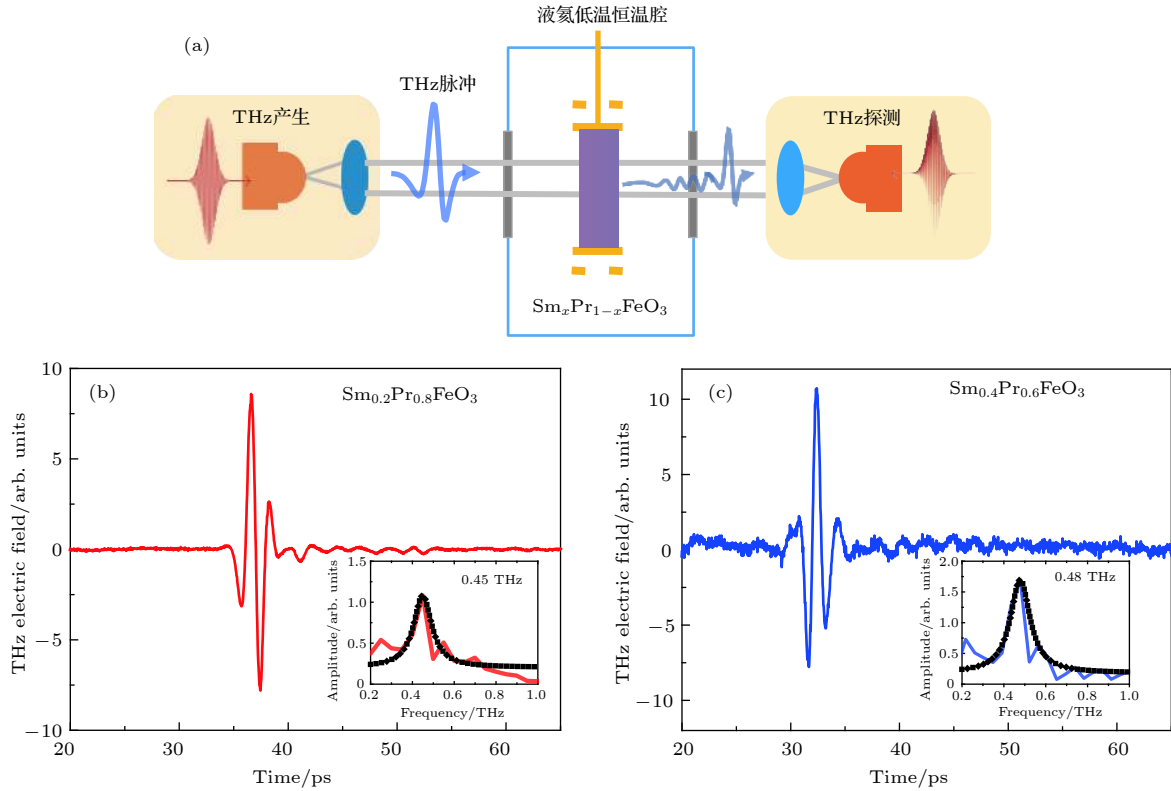


图 2 (a) THz-TDS 实验装置示意图; (b) b 切 $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 单晶 (红色); (c) $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ 单晶 (蓝色) 300 K 时的太赫兹时域透射谱, 此时 H_{THz}/c ; 插图分别表示振荡部分 (40—60 ps) 的傅里叶变换光谱及其洛伦兹拟合 (虚线)

Fig. 2. (a) Experimental setup diagram of THz-TDS. The THz time-domain waveforms transmitted through the b -cut (b) $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ and (c) $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ crystal at 300 K and the insets indicate the spectrum of oscillating parts obtained by Fourier transform of the waveform, which is fitted with a Lorentzian contour (dotted line).

振荡) 模式, 如图 3 插图所示. 实验结果表明, 随着 Sm^{3+} 离子比例的增大, 高通量制备的 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ 单晶的 qAFM 共振频率增大. 这与先前用常规光学浮区法制备的 SmDyFeO_3 单晶的实验结果一致 [36].

如图 3 所示, 实验测得的 $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 和 $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ 单晶的 qAFM 共振频率位于 PrFeO_3 (0.57 THz) 和 SmFeO_3 (0.42 THz) qAFM 共振频率的连线上. 表明 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ 单晶的 qAFM 自旋共振频率依赖于 $\text{Sm}^{3+}/\text{Pr}^{3+}$ 离子的掺杂比例. 简化的两能级量子跃迁模型可用来描述 RFeO_3 中自旋共振的吸收与辐射. 由于强交换场诱导的精细结构, 产生了基态和激发态 [37]. 基态与激发态之间的能级差 ($\hbar\omega$) 和 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ 单晶中的 Sm^{3+} 离子组分 (x) 之间的关联性, 可以表示为一个单调连续函数, $\hbar\omega_{\text{qAFM}}^{\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3} = x\hbar\omega_{\text{qAFM}}^{\text{SmFeO}_3} + (1-x)\hbar\omega_{\text{qAFM}}^{\text{PrFeO}_3}$. 可以通过已知 Sm^{3+} 离子组分得到 qAFM 自旋共振频率. 反之, 可以根据掺杂比例未知的 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ 单晶 qAFM 的共振频率估算该样品

中 Sm^{3+} 离子的组分. 相比于扫描电子显微镜结合 X 射线能量色散光谱共同分析样品的组分, THz 时域光谱将有效提高样品组分原位检测与分析效率.

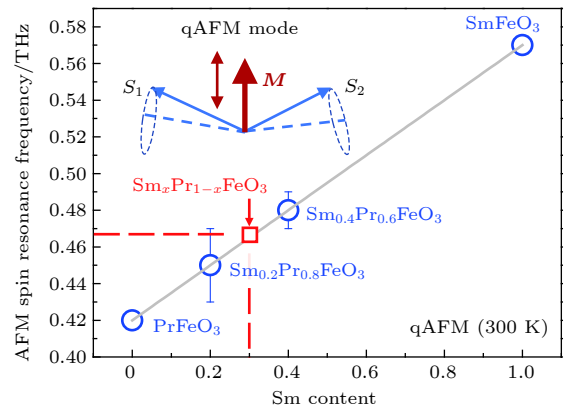


图 3 室温下 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ 单晶的 qAFM 自旋共振频率与 Sm^{3+} 离子含量的关系, 其中插图表示 qAFM 模式的振动
Fig. 3. Summarized frequencies of the qAFM resonances at several Sm^{3+} ion contents at room temperature and the insets indicate the vibration of the qAFM.

THz-TDS 不仅能够探测共振频率, 而且可以通过 FID 信号的振幅和频率随温度的依赖关系探测 $R\text{FeO}_3$ 中磁矢量的动态变化^[38,39]. 温度诱导 $R\text{FeO}_3$ 的 SRT 主要来源于温度依赖的 $R^{3+}\text{-Fe}^{3+}(4f\text{-}3d\text{ 电子})$ 相互作用产生的磁晶各向异性. 探测原理基于 $\mathbf{M}$ 和 $\mathbf{H}_{\text{THz}}$ 之间角度的变化. 图 4 为 b 切 $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ 单晶 qAFM 共振频率及其振幅 (A_{qAFM}) 随温度的变化关系. 实验结果表明, qAFM 共振频率随着温度的降低而降低, 从 300 K 的 0.48 THz 下降到 160 K 的 0.4 THz. 同时, A_{qAFM} 随着温度的降低而减小. 如图 4 中插图所示, 室温下 $R\text{FeO}_3$ 中的 Fe^{3+} 子晶格处于 Γ_4 磁性构型 ($\mathbf{M}$ 沿着 c 轴, $\mathbf{L}$ 沿着 a 轴). 当温度低于 160 K, 高温相 Γ_4 经过中间相 Γ_{24} 变化到低温相 Γ_2 ($\mathbf{L}$ 沿着 c 轴, $\mathbf{M}$ 沿着 a 轴) 发生自旋重取向转变 (宏观磁化矢量 $\mathbf{M}$ 旋转 90°). 由于 $\mathbf{H}_{\text{THz}}$ 在 $\mathbf{M}$ 上的投影分量减小, 因此无法观测到 qAFM 自旋共振. 在本实验中, 并没有在低温下观察到准铁磁 (qFM) 模式. SRT 过程中, 利用电子轨道态和自旋态之间的强耦合, 圆偏振的飞秒激光等非外加磁场实验手段实现磁化取向的调控^[4,40].

除了研究 $R\text{FeO}_3$ 中的 Fe^{3+} 离子系统, THz 光谱技术也可以应用于 R^{3+} 离子在晶体场中的能级劈裂所导致的磁偶极和电偶极跃迁研究^[41]. 图 5(a)

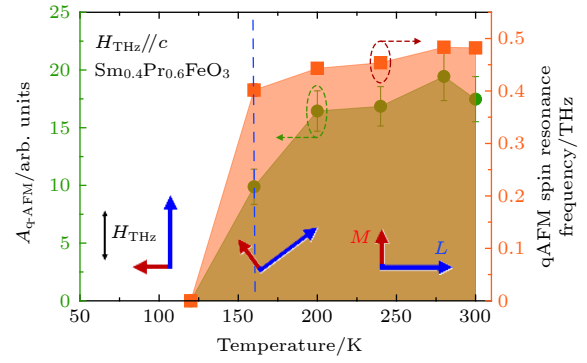


图 4 b 切 $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ 单晶 qAFM 模式的共振频率和振幅随温度的关系; 插图表示 Fe^{3+} 离子亚晶格的磁结构: 低温相 (Γ_2), 中间相 (Γ_4), 高温相 (Γ_{24})

Fig. 4. The frequencies and amplitudes of the qAFM resonances of b -cut $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ crystal. Inset shows the magnetic structure of $R\text{FeO}_3$ in the low-temperature (Γ_2), intermediate (Γ_4), and high temperature (Γ_{24}) phases.

给出不同温度下 THz 波透过 $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 单晶 (样品信号, E_{sample}) 和室温下未经过样品直接在空气中传播 (参考信号, $E_{\text{reference}}$) 的时域信号. 相比于 300 K 的 THz 透射时域波形, 40 K 的 THz 时域波形不仅振幅发生变化, 且随着温度降低可以发现 THz 脉冲出现相移. 对时域信号进行傅里叶变换, 利用透射的 THz 振幅谱和相位谱, 获得了 $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 单晶不同温度下的折射率 (图 5(b)) 和

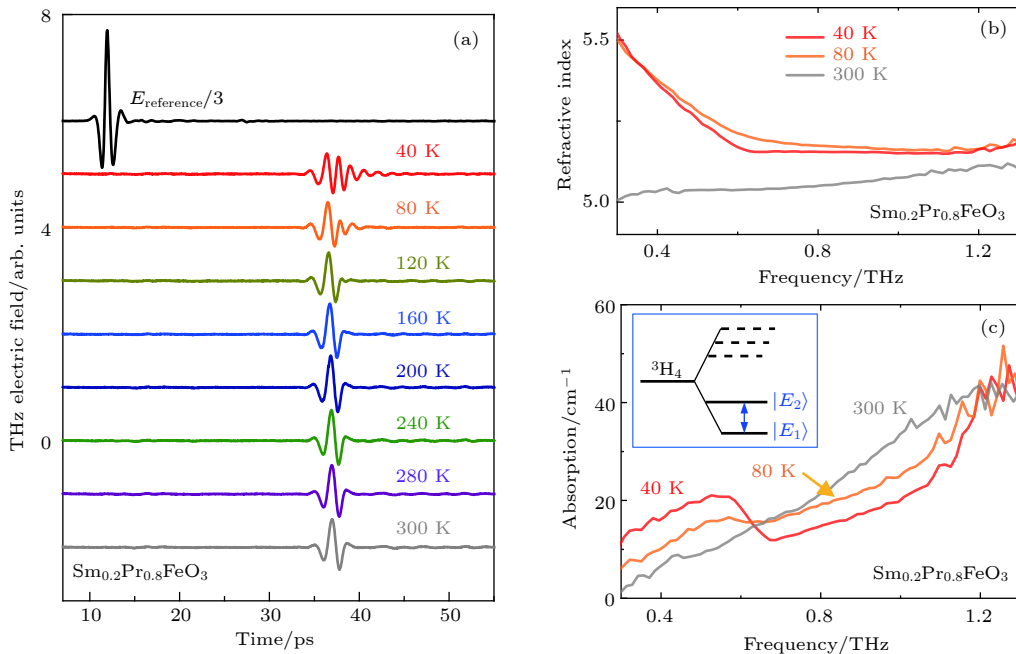


图 5 (a) $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 单晶温度依赖的太赫兹时域谱, 为了表达更为清楚, 不同温度的时域光谱在纵轴方向做了等间距的平移; 40, 80 和 300 K 时 $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 单晶的 (b) 折射率和 (c) 吸收系数, 插图为 Pr^{3+} 离子基态在晶体场中能级劈裂示意图

Fig. 5. (a) The temperature dependent THz waveforms transmitted through the $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ single crystal; (b) refractive indices and (c) absorption spectra of $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ at 40, 80, and 300 K. The inset in (c) shows the energy level splitting of Pr^{3+} ion in the ground state crystal field.

吸收系数(图 5(c)). 室温下, $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 单晶在 0.3—1.3 THz 波段内平均折射率为 5.06 ± 0.03 , 小于 PrFeO_3 的 5.46. 实验发现, SmPrFeO_3 晶体的平均折射率随着 Sm^{3+} 离子组分的增大而降低. 如图 5(c) 所示, 当样品温度低于 80 K, 吸收光谱上 0.5 THz 左右出现一个宽带吸收峰. 当温度为 40 K 时, 光谱中的宽带吸收现象更为明显, 此时 THz 脉冲的磁场分量平行于样品的 a 轴. 参考之前的研究结果, 在 ErFeO_3 [11], TmFeO_3 [28] 和 PrFeO_3 [36] 等晶体中发现此类宽带吸收峰来自于稀土离子的晶体场效应. 可以理解为稀土离子和其周围的点电荷分布存在静电相互作用, 晶体场效应打开了磁量子数 m 的能量简并, 晶体场的劈裂能级间跃迁的重叠导致了宽带吸收现象[28,36]. Pr^{3+} 离子的光谱符号为 $^3\text{H}_4$, 自旋量子数 S 为 1, 轨道量子数为 3, 总角动量量子数 J 为 4. 由于总角动量量子数是整数, Pr^{3+} 离子为非 Kramers 离子. 图 5(c) 的插图为 $^3\text{H}_4$ 的基态多重态能级图, Pr^{3+} 离子在 $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 单晶的低对称性晶体场中分裂成了一系列单重态. 因此, 可以将 0.5 THz 附近的吸收峰归因于两个最低单重态 E_1 和 E_2 之间的电子跃迁. 值得注意的是, 随着 Pr^{3+} 离子浓度的降低, $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ 单晶就没有发现由晶体场劈裂引起的 Pr^{3+} 离子基态跃迁现象.

4 结 论

本文利用变温的太赫兹时域光谱, 研究了高通量制备的 $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ 单晶样品的 qAFM 模式共振频率与 Sm^{3+} 离子掺杂量成正比. 实验观察到 $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ 晶体在 160 K 附近发生了自旋重取向跃迁现象, 而 $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ 晶体在温度 80 K 附近出现 Pr^{3+} 离子吸收现象. 本工作表明, 太赫兹光谱技术有望实现高通量制备的单晶的原位质量检测与稀土离子浓度分析, 且将大幅提高研究连续成分分布单晶样品物性的效率.

参考文献

- [1] Baltz V, Manchon A, Tsoi M, Moriyama T, Ono T, Tserkovnyak Y 2018 *Rev. Mod. Phys.* **90** 015005
- [2] Jungwirth T, Marti X, Wadley P, Wunderlich J 2016 *Nat. Nanotech.* **11** 231
- [3] Mikhaylovskiy R V, Hendry E, Secchi A, et al. 2015 *Nat. Commun.* **6** 8190
- [4] Kurihara T, Watanabe H, Nakajima M, Karube S, Oto K, Otani Y, Suemoto T 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 107202

- [5] Baierl S, Hohenleutner M, Kampfrath T, Zvezdin A K, Kimel A V, Huber R, Mikhaylovskiy R V 2016 *Nat. Photon.* **10** 715
- [6] Nova T F, Cartella A, Cantaluppi A, et al. 2017 *Nat. Phys.* **13** 132
- [7] Pierce R D, Wolfe R, Van Uitert L G 1969 *J. Appl. Phys.* **40** 1241
- [8] Jiang J, Song G, Wang D, Jin Z, Tian Z, Lin X, Han J, Ma G, Cao S, Cheng Z 2016 *J. Phys.: Condens. Matter* **28** 116002
- [9] Yamaguchi K, Kurihara T, Minami Y, Nakajima M, Suemoto T 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 137204
- [10] Liu X, Jin Z, Zhang S, et al. 2018 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51** 024001
- [11] Li X, Bamba M, Yuan N, et al. 2018 *Science* **361** 794
- [12] Li R, Yuan N, Hu T, Feng Z, Ge J, Wang Y, Zheng H, Xing J, Gu H, Kang B, Zhang J, Ren W, Cao S 2018 *AIP Adv.* **8** 115328
- [13] Tonouchi M 2007 *Nat. Photonics* **1** 97
- [14] Ferguson B, Zhang X C 2002 *Nat. Mater.* **1** 26
- [15] Walowski J, Münzenberg M 2016 *J. Appl. Phys.* **120** 140901
- [16] Kampfrath T, Tanaka K, Nelson K A 2013 *Nat. Photonics* **7** 680
- [17] Seifert T, Jaiswal S, Martens U, et al. 2016 *Nat. Photonics* **10** 483
- [18] Huisman T J, Mikhaylovskiy R V, Costa J D, et al. 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 455
- [19] Vicario C, Ruchert C, Ardana-Lamas F, Derlet P M, Tudub B, Luning J, Hauri C P 2013 *Nat. Photonics* **7** 720
- [20] Shalaby M, Vicario C, Hauri C P 2016 *New J. Phys.* **1** 18
- [21] Bonetti S, Hoffmann M, Sher M, Chen Z, Yang S, Samant M G, Parkin S S P, Durr H A 2016 *Phys. Rev. Lett.* **8** 117
- [22] Schlauderer S, Lange C, Baierl S, et al. 2019 *Nature* **569** 7756
- [23] Kampfrath T, Sell A, Klatt G, et al. 2011 *Nat. Photon.* **5** 31
- [24] Jin Z M, Ruan S Y, Li J G, Lin X, Ren W, Cao S X, Ma G H, Yao J Q 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 167501 (in Chinese) [金钻明, 阮舜逸, 李炬康, 林贤, 任伟, 曹世勋, 马国宏, 姚建铨 2019 物理学报 **68** 167501]
- [25] Yamaguchi K, Nakajima M, Suemoto T 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 237201
- [26] Zhou R, Jin Z, Li G, Ma G, Cheng Z, Wang X 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 061102
- [27] Jin Z, Mics Z, Ma G, Cheng Z, Bonn M, Turchinovich D 2013 *Phys. Rev. B* **87** 094422
- [28] Zhang K, Xu K, Liu X, Zhang Z, Jin Z, Lin X, Li B, Cao S, Ma G 2016 *Sci. Rep.* **6** 23648
- [29] Song G, Jiang J, Wang X, Jin Z, Lin X, Ma G, Cao S 2013 *J. Appl. Phys.* **114** 243104
- [30] Song G, Jin Z, Lin X, Jiang J, Wang X, Wu H, Ma G, Cao S 2014 *J. Appl. Phys.* **115** 163108
- [31] Kubacka T, Johnson J A, Hoffmann M, et al. 2014 *Science* **343** 6177
- [32] Shao M, Cao S, Wang Y, Yuan S, Kang B, Zhang J, Wu A, Xu J 2011 *J. Cryst. Growth* **318** 947
- [33] Wang X, Cao S, Wang Y, Yuan S, Kang B, Wu A, Zhang J 2013 *J. Cryst. Growth* **362** 216
- [34] Cao Y, Yang Y, Xiang M, Feng Z, Kang B, Zhang J, Ren W, Cao S 2015 *J. Cryst. Growth* **420** 90
- [35] Zhao W, Cao S, Huang R, Cao Y, Xu K, Kang B, Zhang J, Ren W 2015 *Phys. Rev. B* **91** 104425
- [36] Liu X, Xie T, Guo J, et al. 2018 *Appl. Phys. Lett.* **113** 022401
- [37] Fu X, Xi X, Bi K, Zhou J 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 211108
- [38] Jiang J, Jin Z, Song G, Lin X, Ma G, Cao S 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 062403
- [39] Zeng X, Wu L, Xi X, Li B, Zhou J, 2018 *Ceram. Int.* **44** 19054
- [40] Kimel A V, Kirilyuk A, Tsvetkov A, Pisarev R V, Rasing T, 2004 *Nature* **429** 850
- [41] Mikhaylovskiy R V, Huisman T J, Pisarev R V, Rasing T, Kimel A V 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 017205

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

Terahertz spectroscopic characterization of spin mode and crystal-field transition in high-throughput grown $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ crystals*

Fang Yu-Qing¹⁾ Jin Zuan-Ming^{1)2)4)†} Chen Hai-Yang²⁾

Ruan Shun-Yi²⁾ Li Ju-Geng²⁾ Cao Shi-Xun²⁾

Peng Yan¹⁾ Ma Guo-Hong^{2)3)‡} Zhu Yi-Ming^{1)4)††}

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

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

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

(Received 15 May 2020; revised manuscript received 13 June 2020)

Abstract

Terahertz (THz) transient has become an effective method to study the optical and electronic spin characteristics of the rare earth orthoferrites $R\text{FeO}_3$. High-throughput grown crystal sample is sliced at different locations, then the continuously tunable rare earth elements co-doped single crystal $\text{Sm}_x\text{Pr}_{1-x}\text{FeO}_3$ is studied with antiferromagnetic spin mode (qAFM) and crystal field transitions of rare earth ions under zero magnetic fields. Using THz time-domain spectroscopy, the qAFM resonance frequencies of $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ and $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ single crystals are located on the connection line of the qAFM frequencies of PrFeO_3 (0.57 THz) and SmFeO_3 (0.42 THz), therefore the frequency of qAFM increases linearly with doping concentration of Sm^{3+} ion increasing. The $\text{Sm}_{0.4}\text{Pr}_{0.6}\text{FeO}_3$ crystal undergoes a temperature-induced spin reorientation phase transition at about 160 K. When the crystal temperature is lower than 80 K, a wide band absorption peak of about 0.5 THz appears in the absorption spectrum of $\text{Sm}_{0.2}\text{Pr}_{0.8}\text{FeO}_3$ due to the crystal field effect. Our results show that THz spectral data not only allow us to monitor the quality of rare earth orthoferrite crystals prepared by high throughput and analyze the rare earth elements of the sample, but also improve the ability to analyze the physical properties of the co-doped $R\text{FeO}_3$.

Keywords: terahertz time domain spectroscopy, antiferromagnet, rare earth orthoferrites, spin resonance

PACS: 95.85.Gn, 78.47.J, 75.50.Ee, 76.50.+g

DOI: 10.7498/aps.69.20200732

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61975110, 11674213, 61735010, 11604202), the 111 Project (Grant No. D18014), the International Joint Lab Program of the Science and Technology Commission Shanghai Municipality, China (Grant No. 17590750300), the Key Project of the Science and Technology Commission Shanghai Municipality, China (Grant No. YDZX20193100004960), the Shanghai Rising-Star Program of the Science and Technology Commission of Shanghai Municipality, China (Grant No. 18QA1401700), the Chenguang 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: ghma@staff.shu.edu.cn

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



飞秒激光泵浦LaAlO₃/SrTiO₃异质结产生太赫兹波辐射

魏高帅 张慧 吴晓君 张洪瑞 王春 王博 汪力 孙继荣

Terahertz emission from LaAlO₃/SrTiO₃ heterostructures pumped with femtosecond laser

Wei Gao-Shuai Zhang Hui Wu Xiao-Jun Zhang Hong-Rui Wang Chun Wang Bo Wang Li Sun Ji-Rong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 090702 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20201139

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20201139>

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>

Y₃Fe₅O₁₂(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

Terahertz emission from Y₃Fe₅O₁₂(YIG)/Pt heterostructures via ultrafast spin Seebeck effect

物理学报. 2020, 69(20): 208704 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200733>

自旋太赫兹源：性能、调控及其应用

Spintronic terahertz emitter: Performance, manipulation, and applications

物理学报. 2020, 69(20): 208705 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200757>

磁控溅射法生长Bi₂Te₃/CoFeB双层异质结太赫兹发射

Terahertz emission generated from Bi₂Te₃/CoFeB heterostructures grown by magnetron sputtering

物理学报. 2020, 69(20): 200705 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200634>

激光在大气中驱动的强大太赫兹辐射的理论和实验研究

Theoretical and experimental studies on terahertz radiation from laser-driven air plasma

物理学报. 2018, 67(12): 124202 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180564>

激光等离子体光丝中太赫兹频谱的调控

Control of the terahertz spectra generated from laser induced plasma

物理学报. 2020, 69(2): 024205 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191200>

专题: 太赫兹自旋光电子

飞秒激光泵浦 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ 异质结产生太赫兹波辐射*魏高帅¹⁾²⁾ 张慧³⁾ 吴晓君^{4)†} 张洪瑞¹⁾ 王春¹⁾²⁾
王博¹⁾²⁾ 汪力¹⁾ 孙继荣^{1)‡}

1) (中国科学院物理研究所, 北京凝聚态物理国家研究中心, 北京 100190)

2) (中国科学院大学物理科学学院, 北京 100049)

3) (北京航空航天大学集成电路科学与工程学院, 北京 100191)

4) (北京航空航天大学电子信息工程学院, 北京 100191)

(2020 年 7 月 16 日收到; 2022 年 3 月 14 日收到修改稿)

自铁磁金属在飞秒激光泵浦下的超快退磁效应发现以来, 电子的自旋属性逐渐被应用于太赫兹电磁波的产生. 利用逆 Rashba-Edelstein 效应产生太赫兹辐射首先在 Ag/Bi 界面得到证实, 而 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ 界面通过该效应产生直流的自旋-电荷转换效率要高于 Ag/Bi 界面约一个数量级, 但利用该结构转化自旋流来产生太赫兹的有效性尚待系统的研究. 本文制备了 $\text{NiFe}/\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3(001)$ 系列样品, 在飞秒激光泵浦下观察到了太赫兹辐射的产生及其对磁场方向的依赖效应, 并通过改变 LaAlO_3 层的厚度验证了超扩散模型与光学传输模型的有效性, 观察到了在 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ 界面由于多次反射导致太赫兹波的减弱, 为进一步优化太赫兹波的产生提供了实验和理论支持.

关键词: 太赫兹辐射, 自旋流, 逆 Rashba-Edelstein 效应, 氧化物异质结**PACS:** 07.57.Hm, 42.72.Ai, 78.20.-e, 85.75.-d**DOI:** 10.7498/aps.71.20201139

1 引言

20 世纪 80 年代以来^[1], 介于远红外与微波之间的太赫兹波段受到人们的关注, 太赫兹科学与技术得到快速的发展. 阻碍太赫兹科学与技术发展的关键在于缺乏高效率太赫兹辐射源、高灵敏度太赫兹探测器以及各种功能器件. 其中, 太赫兹源的缺乏尤为重要. 随着飞秒激光技术的快速发展, 利用其泵浦低温生长 GaAs 产生亚皮秒量级寿命的光生载流子的光导天线与光整流效应产生宽带太赫

兹辐射, 在实验室得到广泛的应用. 由于半导体的声子吸收, 太赫兹的谱宽与强度受到一定限制. 自 1996 年 Beaurepaire 等^[2]利用飞秒激光在 Ni 中观察到超快退磁现象以来, 通过对超快退磁机制的研究^[3], 与电子自旋属性相关的超快电流被利用来产生太赫兹辐射.

利用超快自旋流产生太赫兹电磁波的一般过程为: 在铁磁金属或半导体中用飞秒激光泵浦引起自旋流的产生, 由相邻介质通过逆自旋霍尔效应 (inverse spin-Hall effect, ISHE) 或逆 Rashba-Edelstein 效应 (IREE) 实现自旋流到电荷电流的

* 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, 11827807, 61775233) 和国家重点研发计划 (批准号: 2019YFB2203102) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xiaojunwu@buaa.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: jrsun@iphy.ac.cn

转换. 在超快自旋流注入方面, 主要有两类: 1) 通过线偏振光激发, 需要磁化的铁磁材料以提供自旋极化的电子; 2) 通过圆偏振光激发, 在非磁性材料中通过跃迁选择定则在导带中产生自旋极化的电子^[4]. 线偏振光直接泵浦铁磁金属, 亚皮秒量级的自旋流可以由超扩散方程描述, Battiato 等提出了适用于铁磁金属/金属异质结^[5-7]与铁磁金属/半导体异质结^[8]的超扩散自旋输运理论. 在 Au/Fe//MgO(001)^[9] 结构中通过泵浦 Fe, 利用二次谐波的磁光克尔效应在 Au 层观察到了自旋极化的载流子. 在 Al/Ni/Ru/Fe^[10] 结构中通过控制 Ni, Fe 层初始磁化方向相同或相反, 用飞秒激光泵浦 Ni 层后, 用极紫外高次谐波观察到了 Fe 层对应的磁化强度的增强和减弱. 在铁磁绝缘体金属异质结 YIG/Pt 中, 通过产生的太赫兹信号来研究自旋动力学过程^[11], 通过扩展自旋塞贝克效应到动态尺度并结合自旋泵浦的线性响应方法来描述其自旋流的物理图像. 在 GaAs//Pt 结构中^[12,13], 当圆偏振光斜入射到 GaAs 表面时, 可以激发横向自旋的电子, 进而在 Pt 层测到与光的圆偏振态对应的电压. 在超快自旋流-电荷流转化方面, 可以利用重金属的较强的 ISHE 或由空间对称性破缺导致的 IREE 来实现.

基于 ISHE 产生太赫兹电磁辐射最早是由 Kampfrath 等^[14]实现的. 他们利用重金属迁移率的不同, 在 Fe/Au 和 Fe/Ru 异质结中实现了太赫兹辐射的脉宽的调控. 迁移率高的金属动力学过程越快, 产生的太赫兹频谱越宽. Huisman 等^[15]在 Co/Pt, Co/Ru 等结构中发现了泵浦激光的偏振态对太赫兹波的偏振态有调制效应. Seifert 等^[16]设计实现了 W/CoFeB/Pt 三层的优化结构, 在 10 fs 激光脉冲的泵浦下, 所得到的太赫兹辐射频谱宽度和产生效率, 均优于相同实验条件下的 ZnTe 和 GaP 辐射源.

利用 IREE 实现自旋流-电荷流转化一定程度上克服了 ISHE 对材料的依赖性. Sánchez 等^[17]通过输运测量首先观察到 IREE. Jungfleisch 等^[18]利用 Ag-Bi 界面在放大级激光器泵浦下, 率先在亚皮秒尺度内利用 IREE 产生了太赫兹波. Zhou 等^[19]利用同样的金属界面在振荡级激光器作用下实现了宽带太赫兹辐射的产生. Cheng 等^[20]甚至在半导体二维材料 MoS₂ 中观察到了 IREE. 但是, 关于氧化物异质结在太赫兹波段的 IREE 的实验

相对较少.

Lesne 等^[21]利用自旋泵浦在 NiFe/LaAlO₃ (LAO)//SrTiO₃ (STO) 氧化物异质结体系中, 观察到了自旋流转化的电荷流, 得到的转化效率, 即逆 Rashba-Edelstein 长度 (λ_{IREE}) 为 6.4 nm, 比 Ag/Bi 界面的 0.1—0.4 nm 和 W 体材料的 0.43 nm 高一个数量级, 故这种体系具有较高的直流自旋流-电荷流转化效率, 但其能否用于有效产生太赫兹波有待研究. 本文制备了不同 LAO 厚度的 NiFe/LAO//STO 材料, 在飞秒激光振荡器泵浦下, 观察到了太赫兹辐射的产生. 通过分析电子的动力学过程, 利用超扩散模型解释了太赫兹信号随 LAO 层厚度的变化规律, 验证了太赫兹辐射对外加磁场方向的依赖现象. 通过分析太赫兹波在样品中的传播特性, 研究了太赫兹频谱包含的 STO 衬底材料信息. 通过对该材料的深入研究, 初步验证了 LAO/STO 界面在太赫兹波段将自旋流转换为电荷流的有效性, 对于太赫兹波在该结构的传播的分析有利于进一步优化太赫兹波产生性能.

2 样品制备

采用脉冲激光沉积技术 (PLD) 在以 TiO₂ 为终止层 (001) 取向的 STO 单晶衬底 (5 mm × 5 mm × 0.5 mm) 上外延生长 LAO 薄膜, 所用衬底为双面抛光. 溅射过程中, 激光的能量为 2 J/cm², 频率为 1 Hz, 衬底温度保持在 700 °C, 氧压为 1 × 10⁻⁵ mbar (1 mbar = 100 Pa), 靶材与衬底之间的距离为 5 cm. 在制备薄膜的过程中, 利用反射高能电子衍射 (RHEED) 进行实时监测, 生长过程中 RHEED 强度随时间变化曲线如图 1(a) 所示, 该振荡曲线表明 LAO 为层状生长, 每一个振荡周期代表一个单胞层的生长, 通过 RHEED 振荡可精确控制薄膜的厚度. 图 1(a) 中的插图显示为 STO 衬底生长 LAO 薄膜前后的 [100] 方向的 RHEED 衍射斑点图. 可以看到在薄膜生长前后, 衍射斑点均清晰明亮, 表明生长的 LAO 薄膜表面平滑, 接近理想晶体.

图 1(b) 为 5 μm × 5 μm 的 LAO 薄膜形貌图. 薄膜呈台阶状, 阶高约 3.9 Å, 进一步表明薄膜为层状生长, 且表面有单胞级平整度. 在得到高质量外延 LAO 薄膜后, 利用磁控溅射技术在室温下沉积厚度为 6 nm 的 NiFe 铁磁层. 溅射时本底真空

优于 5×10^{-7} mbar, 溅射的工作气体为 5N 的高纯氩气, 工作气压为 0.35 Pa. 在金属薄膜制备完成后, 为防止薄膜被氧化, 在薄膜表面溅射一层厚度为 3 nm 的 SiO_2 , 起到保护作用. 制备完样品后即可通过飞秒激光入射到样品表面, 探测另一面出射的太赫兹信号, 如图 1(c) 所示.

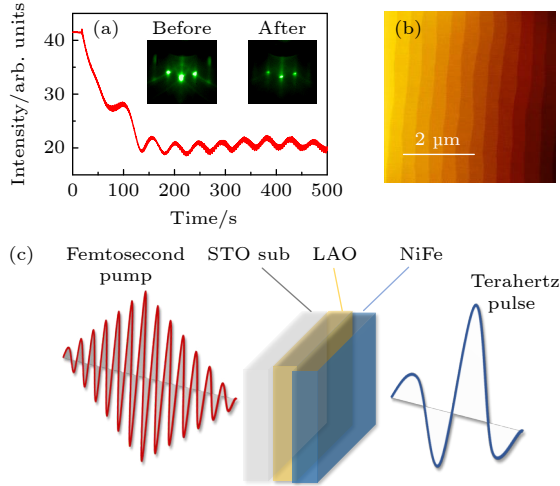


图 1 (a) STO(001) 衬底生长 LAO 薄膜的 RHEED 振荡谱图和衍射图; (b) LAO//STO(001) 薄膜形貌图; (c) 太赫兹发射示意图

Fig. 1. (a) The RHEED spectrum for the growth process of LAO on STO substrate (001), and the RHEED patterns before and after the growth of the LAO films; (b) the surface morphology of LAO//STO films; (c) the schematic diagram of the terahertz emission.

3 实验装置

在太赫兹辐射的产生实验中, 钛宝石飞秒激光源的中心波长为 800 nm, 脉宽为 70 fs, 重复频率

为 80 MHz, 作用到样品上的最大功率为 360 mW, 实验装置如图 2 所示.

激光脉冲入射到分束镜后被分成泵浦光 (约 90%) 和探测光 (约 10%). 泵浦光通过斩波器后再经过步进电机平移台上的反射镜, 最后聚焦到经过抛光的 STO 衬底表面. 在平行于样品表面方向加上永磁体 (磁场强度约为 50 mT), 磁场方向为水平方向. 产生的太赫兹波利用电光取样技术对其进行相干时间分辨探测. 样品产生的太赫兹波通过 90° 离轴抛物面镜准直和聚焦到 ZnTe 探测晶体上. 最后把探测光通过 $1/4$ 波长波片和沃拉斯顿棱镜分成水平和竖直偏振光, 再由两个光电二极管收集后利用锁相放大器测量两种光的强度差. 利用太赫兹电场对探测光产生的双折射效应的大小, 可以测量某时刻太赫兹电场的振幅, 通过平移台控制泵浦光的光程, 即可得到产生太赫兹的时域波形. 相关实验在室温下进行.

4 实验结果

由于 STO 声子在太赫兹波段的吸收, 在泵浦激光从 LAO 薄膜面照射的情况下, 未能观察到可探测的太赫兹信号. 而从 STO 衬底入射泵浦光时, 则观察到了太赫兹辐射信号, 如图 3 所示. 对于 4 unit cells (uc), 6 uc 和 10 uc 厚度 LAO 的样品, 图 3(a) 给出了对应的太赫兹时域波形. 图 3(b) 为其相应的傅里叶变换频域谱图. 从图 3 可以看出, 随着 LAO 厚度的增加, 辐射的太赫兹信号强度依次递增, 而中心频率基本保持不变.

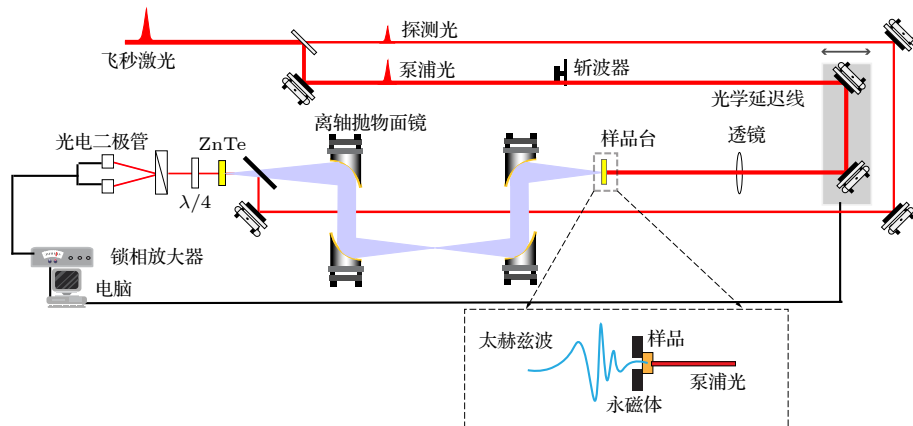


图 2 太赫兹辐射实验装置. 放大的虚线框表示样品与永磁体的关系

Fig. 2. Schematic diagram of terahertz radiation experimental configuration. The zoomed area shows the relations between the sample and magnetic field.

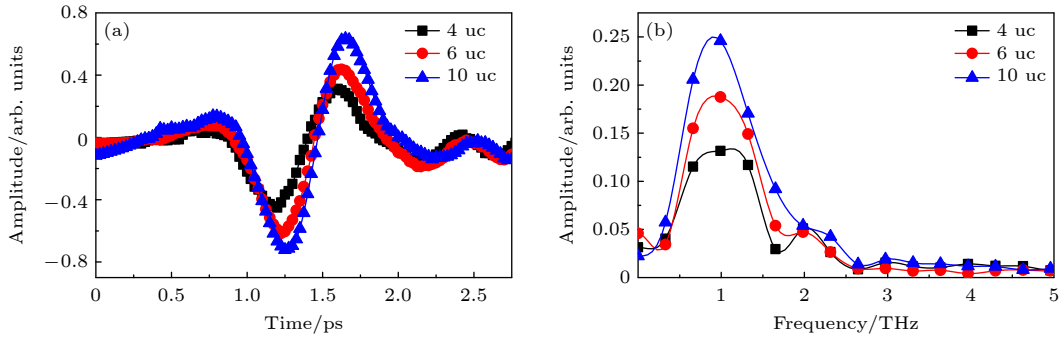


图3 (a) 不同厚度的 LAO 样品辐射的太赫兹时域波形; (b) 对应的频谱图

Fig. 3. (a) Typical terahertz temporal waveforms for LAO samples with different thicknesses, and (b) the corresponding spectra.

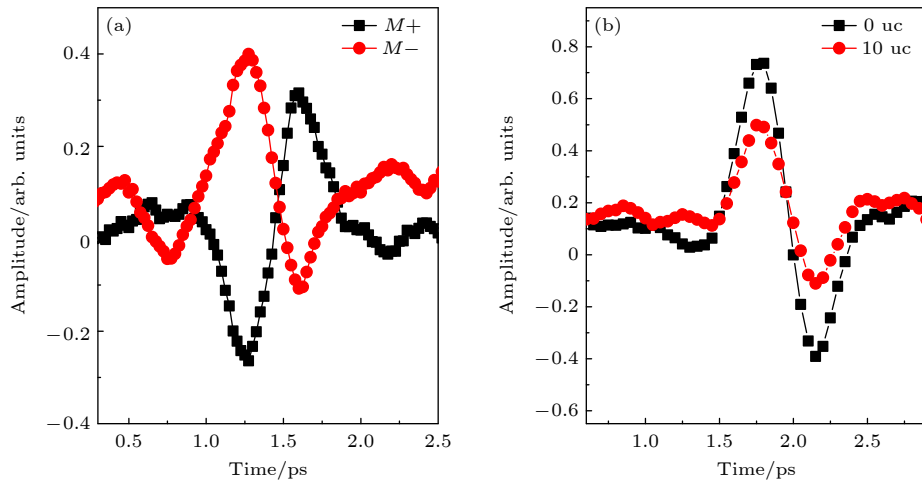


图4 (a) 太赫兹辐射极性随外加磁场方向的改变而反转; (b) NiFe//STO 与 NiFe/LAO (10 uc)//STO 辐射太赫兹波的大小比较
Fig. 4. (a) Radiated terahertz polarity reversal when varying the applied magnetic field direction; (b) comparison of the terahertz radiation between NiFe//STO and NiFe/LAO (10 uc)//STO.

为进一步验证太赫兹辐射的产生和电子自旋的相关性, 在实验上测量了 LAO 厚度为 10 uc 的样品, 通过将外加磁场方向在垂直激光传播方向的平面内旋转 180° , 观察到了太赫兹电场相位呈现 180° 改变, 实验结果如图 4(a) 所示. 红色和黑色曲线分别对应两种相反的外加磁场下测得的太赫兹时域谱. 由图 4(a) 可知, 太赫兹电场反转后的幅值基本相等, 因此虽然样品界面或表面中心反演对称性破缺不能排除光整流效应, 但该效应对太赫兹辐射的贡献较小. 图 4(a) 中太赫兹电场反转后的对称位置偏上, 应当是实验中泵浦光在经过斩波器后在光路中有散射, 该散射光的斩波频率与太赫兹电场对探测光的调制频率一致, 但其 p 波和 s 波强度不同, 入射到两个光电二极管被差分后形成了太赫兹的直流信号.

为研究铁磁层超快退磁的贡献, 可以在对太赫兹波吸收小的衬底上外延生长 STO 薄膜, 进而利

用样品正反面反转来确认超快退磁^[22], 但这样生长的晶体不如 STO 衬底质量高, 界面比较复杂, 容易引入氧空位. 因此, 本文制备了相同厚度的 NiFe 在 STO 衬底上, 将泵浦光从衬底面入射, 比较了 NiFe//STO 与 NiFe/LAO(10 uc)//STO 太赫兹辐射的大小. 实验结果如图 4(b) 所示, 0 uc 代表 NiFe//STO. 从相位上分析, 若相位相差 180° , 则可以将 NiFe//STO 的太赫兹波信号产生机制归于超快退磁, 而具有 LAO 层的样品归于 IREE^[23]. 因为实验测得的两者太赫兹波相位一致, 故无法将具有 LAO 层的样品排除铁磁层的超快退磁. 从太赫兹信号辐射强度上分析, 超快退磁的信号一般远小于 IREE^[18], 实验结果显示两者强度相差不大, 因此信号产生机制应当相同. 超快退磁实验的泵浦激光能量密度在 1 mJ/cm^2 量级, 激光单脉冲能量 0.8 mJ ^[24], 而本文实验中通过 150 mm 焦距的透镜将直径约 3 mm 的光斑聚焦, 泵浦光的单脉冲能量

约 4 nJ, 能量密度约 0.2 mJ/cm², 故退磁信号比较小, 系统可能探测不到. 由于 STO 表面的晶格中心反演对称性破缺, 且在氩离子轰击的 STO 衬底上生长 NiFe 薄膜的样品中已经观察到电荷流-自旋流的转化^[25], 因此 NiFe//STO 的信号可能来源于 STO 非占据态的 IREE^[26], 同样 NiFe/LAO//STO 的太赫兹波信号也应当来源于 IREE.

为了便于分析 STO 折射率的色散对样品辐射信号频谱的影响, 实验测量了真空环境下的太赫兹辐射信号波形. 由图 5 可见, 在抽真空情况下, 太赫兹信号的信噪比有了较明显的改善, 从频谱上能够看到 1—2 THz 之间有不平坦的信号. 下文将根据产生太赫兹波的原理来详细分析频谱包含的信息.

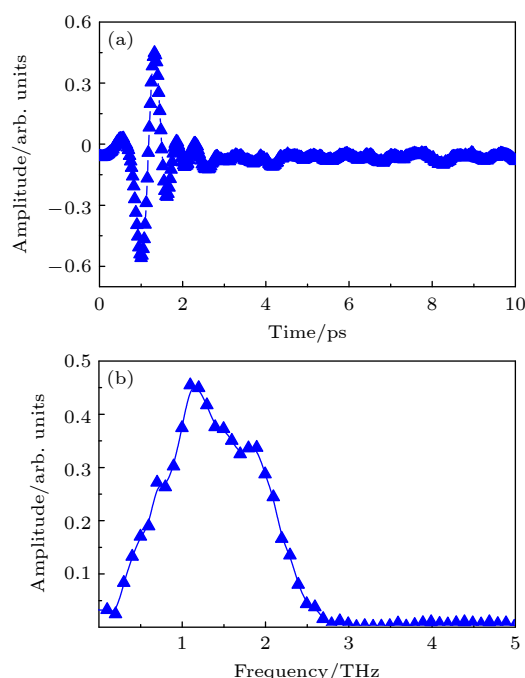


图 5 真空环境下, 10 nm 的 LAO 太赫兹辐射时域波形 (a) 和对应的频谱 (b)

Fig. 5. (a) Emitted terahertz temporal waveform from the LAO (10 nm)//STO, and (b) its corresponding spectrum under vacuum environment.

5 机理讨论

为进一步增强该体系辐射的太赫兹波, 讨论 LAO 厚度对太赫兹辐射的影响, 首先需要研究太赫兹辐射的影响因素. 在文献^[21]中, 注入到 LAO/STO 界面的自旋流的大小由自旋泵浦中的材料特性和所激发的有效磁场有关, 而在飞秒激光泵浦的

条件下, 采用平面波近似, 忽略较薄层 LAO 对太赫兹传播的影响, 频域下太赫兹电场由波动方程来描述^[16]:

$$[\partial_z^2 + \mathbf{k}^2(z, \omega)]E(z, \omega) = -eZ_0\omega \mathbf{j}_c(z, \omega)/(ic), \quad (1)$$

其中 Z_0 为真空阻抗, $\mathbf{k}(z, \omega)$ 为太赫兹波矢, $E(z, \omega)$ 为太赫兹电场强度, c 为真空中光速. 超快电流 $\mathbf{j}_c(z, \omega)$ 与自旋流 $\mathbf{j}_s$ 的关系在 IREE 效应中的关系为^[19]

$$\mathbf{j}_c \propto \lambda_{\text{IREE}} \mathbf{j}_s \times \hat{z}, \quad (2)$$

其中 $\hat{z}$ 为界面电场方向, 垂直于 LAO 和 STO 形成的界面; λ_{IREE} 是 IREE 系数. 故对太赫兹信号的影响主要有两方面: 一是超快电流的大小, 二是太赫兹的传播效应.

考虑 LAO 厚度对太赫兹信号的影响, 需研究厚度对超快电流大小与太赫兹传播的影响. 由于 NiFe 费米面与 STO 导带间存在 LAO 层的势垒, 包括隧穿效应的超扩散模型还没有完全建立, 因此无法直接研究厚度对超快电流大小的影响. 但从载流子扩散的角度, 自旋流应当随 LAO 厚度增加而指数衰减^[16,27], 因此与实验中太赫兹信号的增强不符. 而逆 Rashba-Edelstein 长度与泵浦后电子所处的激发态有关^[26], 涉及到厚度对能带结构与电子态的影响, 有待进一步研究. 太赫兹波在多层异质结中的传播效应可能是引起信号增强的主要原因, 对方程 (1) 的求解可得到太赫兹强度与样品厚度的关系. 由文献^[16]的 (1) 式和 (5) 式可知太赫兹强度正比于薄膜厚度, 与实验结果相符, 但因为采用了薄膜极限近似, 太赫兹强度并不是随样品厚度单调递增. 太赫兹频谱与载流子电导率有关, 实验中只改变了 LAO 层厚度, 因此对发射太赫兹的频谱特性没有太大影响. 由于 LAO 厚度增加时, LAO/STO 界面二维电子气厚度不超过 10 nm^[28], 只有在此厚度内能有效地将自旋流转化为电荷流, 而界面厚度远小于太赫兹波长 0.3 mm, 故不需要考虑相位匹配问题. 综上, 当 LAO 厚度增加时, 考虑 LAO 声子吸收太赫兹辐射最终呈下降趋势, 若自旋流转换为电荷流的效率随厚度增加占主导则可能使太赫兹辐射随厚度的变化出现第二个极大值.

图 5 中由于电荷电流存在于 LAO/STO 界面, 太赫兹波在 NiFe/LAO 薄膜中经历了多次反射, 因此必然包含 STO 折射率信息. 而由 (1) 式计算的结果表明电场强度的大小也随衬底折射率的增

加而减小. 其物理机制可理解为界面处的电荷电流直接向 NiFe 面方向的辐射和经 STO 衬底反射后的辐射叠加形成总的辐射, 故所得太赫兹电场频谱与衬底折射率色散有关. 在实验过程中, 磁场沿水平方向, 可知辐射太赫兹波方向为竖直方向, 故为 s 波, 因此反射波以任意方向入射均有 180° 相位差, 会造成辐射太赫兹波的减弱. 而以 p 波入射的情况下, 在经过布儒斯特角后则同相, 因此可以通过调整 p 波的入射角来优化太赫兹源的辐射. 为了验证反相的 s 波对发射太赫兹信号的减弱, 实验测量了 STO 样品对太赫兹波反射的频谱, 在 40° 入射的情况下以铝镜为参考, 计算 STO 的反射率, 如图 6 所示. 图 6 中太赫兹波的反射率的极大值间隔频率约为 0.5 THz, 若将 STO 衬底等效为法布里-珀罗干涉仪, 折射率取 19.2^[29], 可得干涉极大的频率间隔为 0.016 THz, 因此反射率的波动不是来源于多光束干涉效应, 应当来源于 STO 衬底本身. 可以发现, 图 6 在 1—1.5 THz 和 1.5—2.2 THz 的波谷与图 5 相应频段的波峰一致, 即在该异质结中, 反射部分的太赫兹波越弱, NiFe 面出射的太赫兹波越强.

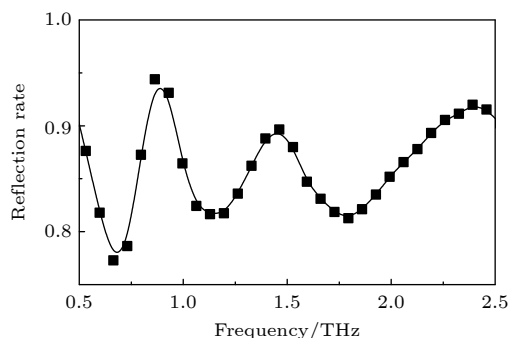


图 6 STO 以铝镜为参考的反射率

Fig. 6. Reflectivity of STO referenced an aluminum mirror.

6 总结展望

本文制备了 NiFe/LAO//STO(001) 氧化物异质结, 在飞秒激光振荡器泵浦下观察到了太赫兹辐射的产生, 验证了氧化物异质结 IREE 效应在产生太赫兹辐射上的主导作用. 初步观察到了辐射太赫兹信号随 LAO 厚度的增加而增大. STO 对太赫兹辐射的反射实验与样品发射的太赫兹信号具有相关性, 为进一步优化高折射率衬底的太赫兹源提供了实验和理论支持. 关于隧穿效应的超扩散理论与

在 NiFe/LAO//STO 中的光学传输模型需要进一步优化来指导提高太赫兹辐射效率.

参考文献

- [1] Smith P R, Auston D H, Nuss M C 1988 *IEEE J. Quantum Electron.* **24** 255
- [2] Beaurepaire E, Merle J C, Daunois A, Bigot J Y 1996 *Phys. Rev. Lett.* **76** 4250
- [3] Dornes C, Acremann Y, Savoini M, et al. 2019 *Nature* **565** 209
- [4] Pierce D T, Meier F 1976 *Phys. Rev. B* **13** 5484
- [5] Battiatto M, Carva K, Oppeneer P M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 027203
- [6] Battiatto M, Carva K, Oppeneer P M 2012 *Phys. Rev. B* **86** 024404
- [7] Battiatto M, Maldonado P, Oppeneer P M 2014 *J. Appl. Phys.* **115** 172611
- [8] Battiatto M, Held K 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 196601
- [9] Melnikov A, Razdolski I, Wehling T O, Papaioannou E T, Roddatis V, Fumagalli P, Aktsipetrov O, Lichtenstein A I, Bovensiepen U 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 076601
- [10] Rudolf D, La-O-Vorakiat C, Battiatto 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
- [11] Seifert T S, Jaiswal S, Barker J, et al. 2018 *Nat. Commun.* **9** 2899
- [12] Ando K, Morikawa M, Trypiniotis T, Fujikawa Y, Barnes C H W, Saitoh E 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 082502
- [13] Isella G, Bottegoni F, Ferrari A, Finazzi M, Ciccacci F 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 232402
- [14] Kampfrath T, Battiatto 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
- [15] Huisman T J, Mikhaylovskiy R V, Costa J D, Freimuth F, Paz E, Ventura J, Freitas P P, Blügel S, Mokrousov Y, Rasing T, Kimel A V 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 455
- [16] Seifert T, Jaiswal S, Martens U, et al. 2016 *Nat. Photonics* **10** 483
- [17] Sánchez J, Vila L, Desfonds G, Gambarelli S, Attané J P, Teresa J, Magén C, Fert A 2013 *Nat. Commun.* **4** 2944
- [18] Jungfleisch M B, Zhang Q, Zhang W, Pearson J E, Schaller R D, Wen H, Axel Hoffmann 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 207207
- [19] 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
- [20] Cheng L, Wang X, Yang W, Chai J, Yang M, Chen M, Wu Y, Chen X, Chi D, Johnson K E, Zhu J X, Sun H, Wang S, Song C W J, Battiatto M, Yang H, Chia E E M 2019 *Nat. Phys.* **15** 347
- [21] Lesne E, Fu Y, Oyarzun S, Rojas-Sánchez J C, Vaz D C, Naganuma H, Sicoli G, Attané J P, Jamet M, Jacquet E, George J M, Barthélémy A, Jaffrès H, Fert A, Bibes M, Vila L 2016 *Nat. Mater.* **15** 1261
- [22] Huisman T J, Mikhaylovskiy R V, Tsukamoto A, Rasing T, Kimel A V 2015 *Phys. Rev. B* **92** 104419
- [23] Huang L, Kim J W, Lee S H, Kim S D, Tien V M, Shinde K P, Shim J H, Shin Y, Shin H J, Kim S, Park J, Park S Y, Choi Y S, Kim H J, Hong J I, Kim D E, Kim D H 2019 *Appl.*

- Phys. Lett.* **115** 142404
- [24] Beauprepaire E, Turner G M, Harrel S M, Beard M C, Bigot J Y, Schmuttenmaer C A 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 3465
- [25] Yang H, Zhang B, Zhang X, Yan X, Cai W, Zhao Y, Sun J, Wang K L, Zhu D, Zhao W 2019 *Phys. Rev. Appl.* **12** 034004
- [26] Puebla J, Auvray F, Yamaguchi N, Xu M R, Bisri S Z, Iwasa Y, Ishii F, Otani Y 2019 *Phys. Rev. Lett.* **122** 256401
- [27] Song Q, Zhang H R, Su T, Yuan W, Chen Y Y, Xing W Y, Shi J, Sun J R, Han W 2017 *Sci. Adv.* **3** e1602312
- [28] Sing M, Berner G, Goß K, Müller A, Ruff A, Wetscherek A, Thiel S, Mannhart J, Pauli S A, Schneider C W, Willmott P R, Gorgoi M, Schäfers F, Claessen R 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 176805
- [29] Han J, Wan F, Zhu Z, Zhang W 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 031104

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

Terahertz emission from LaAlO₃/SrTiO₃ heterostructures pumped with femtosecond laser*

Wei Gao-Shuai¹⁾²⁾ Zhang Hui³⁾ Wu Xiao-Jun^{4)†} Zhang Hong-Rui¹⁾

Wang Chun¹⁾²⁾ Wang Bo¹⁾²⁾ Wang Li¹⁾ Sun Ji-Rong^{1)‡}

¹⁾ (Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

²⁾ (School of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

³⁾ (School of Integrated Circuit Science and Engineering, Beihang University, Beijing 100191, China)

⁴⁾ (School of Electronic and Information Engineering, Beihang University, Beijing 100191, China)

(Received 16 July 2020; revised manuscript received 14 March 2022)

Abstract

Since the discovery of the ultrafast demagnetization of the ferromagnetic metal, the spin degree of electrons is gradually used to generate terahertz radiation. The terahertz radiation generated by the inverse Rashba-Edelstein effect was confirmed first at the interface of Ag/Bi. However, the spin-to-charge conversion efficiency of the LaAlO₃/SrTiO₃ interface is one order of magnitude larger than that of the Ag/Bi interface under equilibrium or quasi-equilibrium condition. Whether the LaAlO₃/SrTiO₃ heterostructures can be used to convert spin current to generate terahertz radiation remains to be systemically studied. In this work, we fabricate the NiFe/LaAlO₃/SrTiO₃ heterostructures and investigate the generation of terahertz radiation by femtosecond laser pumping and its dependence of the magnetic field direction. We change the thickness of the LaAlO₃ to show the applicability of the superdiffusive spin transport model and optical transmission model. We find the multireflections at the LaAlO₃/SrTiO₃ interface weaken the terahertz radiation intensity. This work provides experimental and theoretical support for further optimizing the generation of terahertz electromagnetic waves.

Keywords: terahertz radiation, spin current, inverse Rashba-Edelstein effect, oxide heterostructures

PACS: 07.57.Hm, 42.72.Ai, 78.20.-e, 85.75.-d

DOI: 10.7498/aps.71.20201139

* Project supported by the Natural Science Foundation of Beijing, China (Grant No. 4194083), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61905007, 11827807, 61775233), and the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2019YFB2203102).

† Corresponding author. E-mail: xiaojunwu@buaa.edu.cn

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