



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.

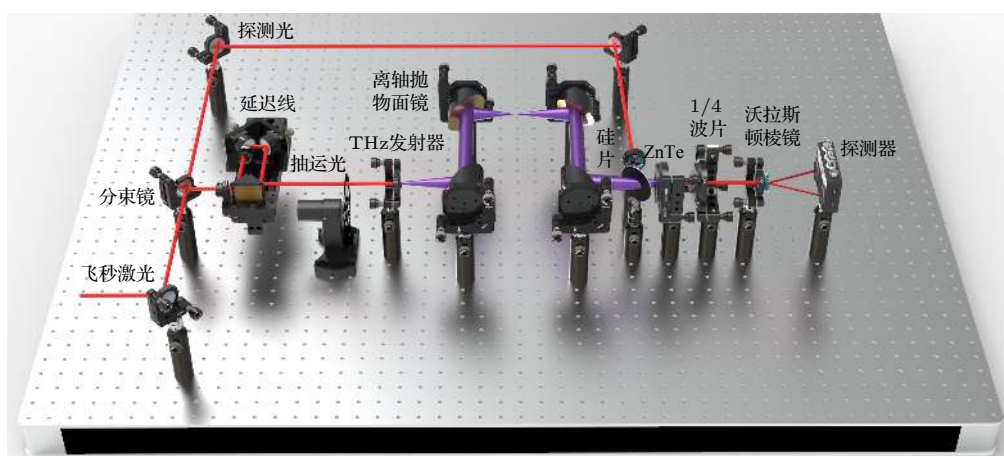


图 1 透射式太赫兹发射谱仪的光路示意图

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.

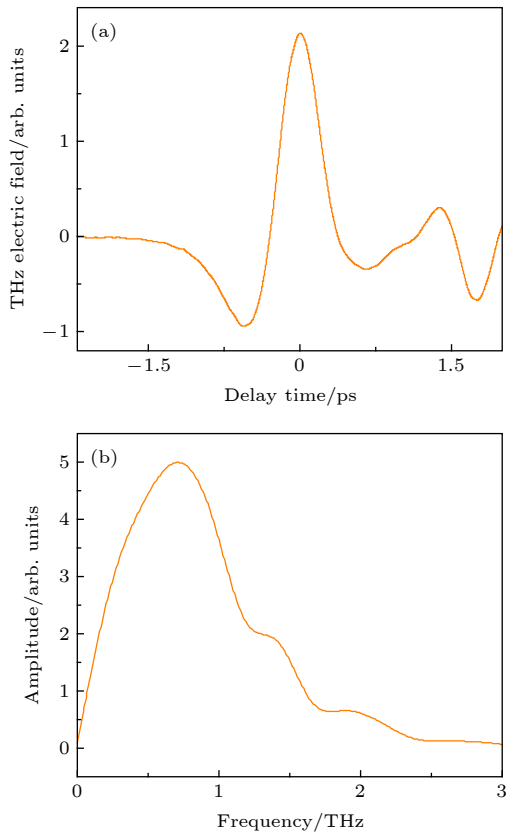


图 2 铁磁/非磁异质结太赫兹发射 (a) 时域波形; (b) 频谱

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).

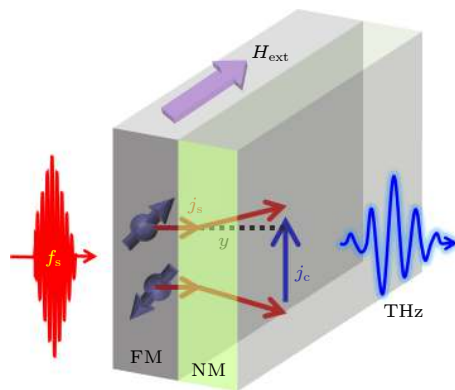


图 3 面内磁化的铁磁薄膜 FM 被飞秒激光激发, 自旋极化的非平衡热电子注入非磁层. 根据逆自旋霍尔效应, 多数电子和少数电子在不同方向偏转, 从而将纵向自旋流转换为横向的电荷流, 产生了太赫兹发射

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.

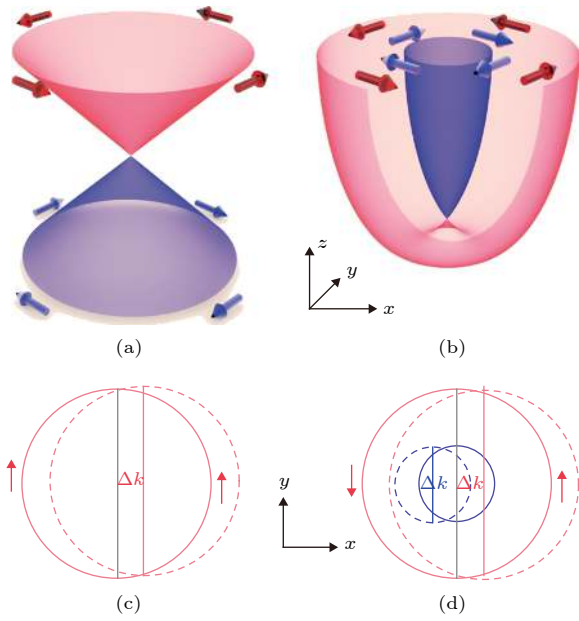


图4 (a) 拓扑绝缘体表面的能量色散关系图; (b) Rashba 界面的能量色散关系图, Rashba 界面态和拓扑绝缘体表面态中形成了强烈的自旋-动量锁定; (c) 拓扑绝缘体表面的逆 Edelstein 效应; (d) Rashba 界面的逆 Edelstein 效应, 注入 y 极化的自旋流密度诱导出 x 方向的电荷流^[57]

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 J , 超快脉冲电流发射太赫兹的解满足 $\nabla^2 E + \omega^2 \mu_0 \varepsilon E = \mu_0 i \omega J$, 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.

Jin 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, Kampfrath 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