

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

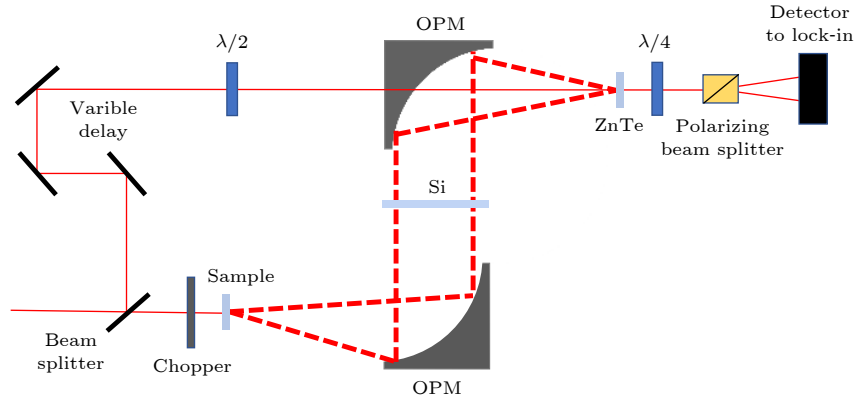


图 1 透射型太赫兹时域光谱系统的光路示意图. 主要包含分束镜 (beam splitter)、光学斩波器 (optical chopper)、光线延迟位移台 (variable delay)、离轴抛物镜 (OPM)、探测晶体 (ZnTe)、分光棱镜 (polarizing beam splitter)、光电探测器 (optical detector) 和锁相放大器 (lock-in amplifier)

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:

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

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.

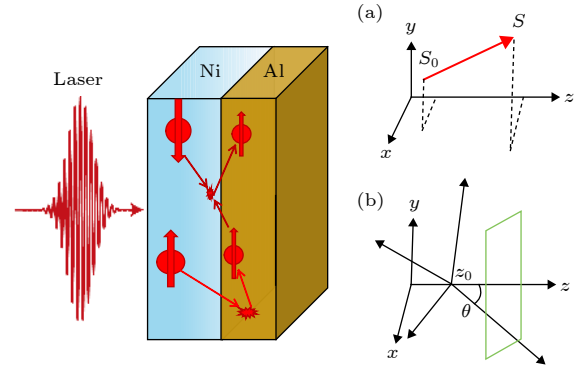


图 2 磁性异质结 Ni/Al 中, 激光诱导的飞秒尺度的电子超扩散过程示意图^[13] (a) 电子在发生第一次散射前, 沿直线运动, S_0 是电子原来位置, S 是电子直线运动后位置; (b) 电子在 z_0 处被激发, 发射方向的概率是各项同性的
Fig. 2. Schematic of femtosecond laser-induced superdiffusion process^[13]: (a) The electron moves along a straight line before first scattering, S_0 is the original position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

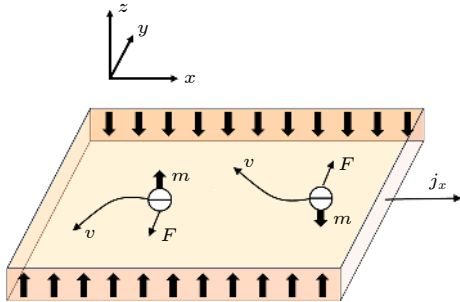


图 3 在自旋霍尔效应中, 运动磁矩的非对称散射会在垂直于电流的方向上引起自旋不平衡

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, SHE). 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

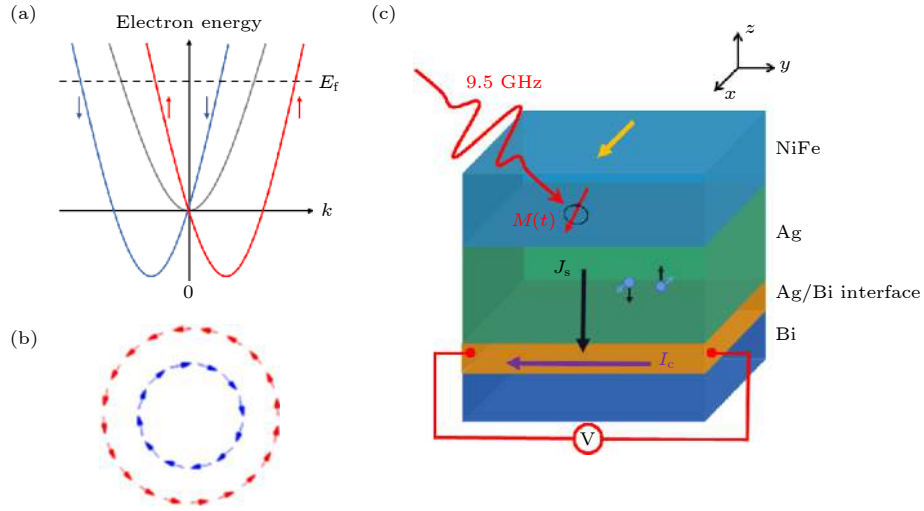


图 4 Rashba 效应对应的能带结构及 IREE 的实验原理^[45] (a) 典型的 Rashba 二维电子气自旋劈裂色散曲线; (b) 典型的费米轮廓, 电子流 (沿流动方向的费米等高线偏移) 导致非零的自旋密度, 相反, 自旋注入产生的非零自旋密度诱导了电子流 (IREE); (c) 共振下的 NiFe/Ag/Bi 样品结构 J_s 为直流自旋电流, I_c 为 IREE 导致的电荷流

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

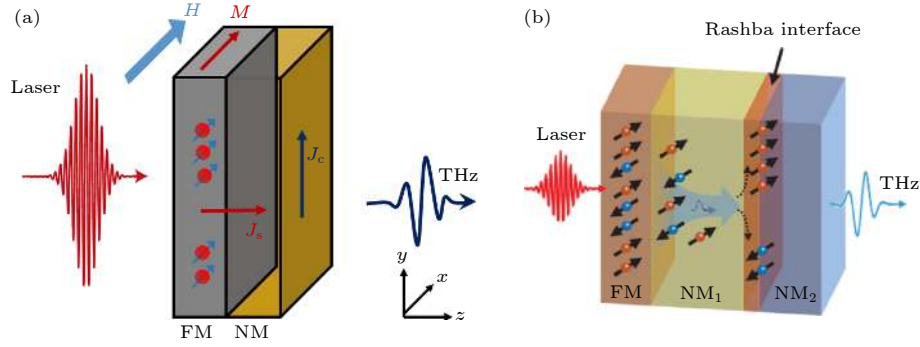


图5 超快激光脉冲激励下通过 (a) ISHE 在金属磁性异质结铁磁 (FM)/非磁性 (NM) 纳米复合薄膜, 或 (b) IREE 在金属磁性异质结 FM/NM₁/NM₂ 纳米复合薄膜上实现太赫兹发射的示意图^[51]. H 为外加磁场, 磁化方向与 x 轴平行, J_s 是飞秒激光注入铁磁层所产生的纵向自旋流, 注入到非铁磁层 (或界面) 后通过 ISHE (或 IREE) 转换成横向电荷电流 J_c , 进而产生太赫兹辐射

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.

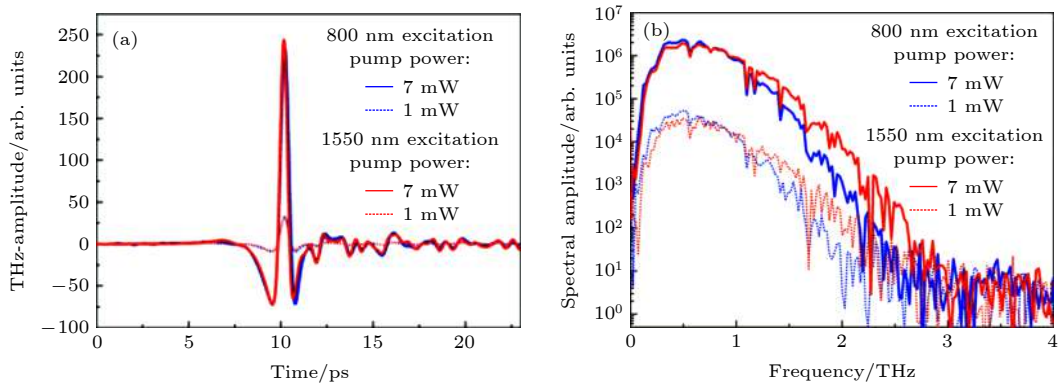


图6 在不同波长 (800 nm 和 1550 nm) 及泵浦功率 (1 mW 和 7 mW) 下的太赫兹发射波形图以及频谱图^[54]

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.

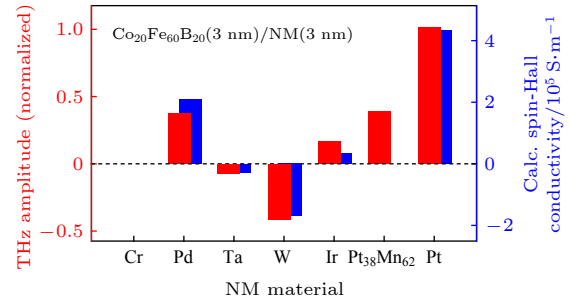


图 7 不同非铁磁材料中测得的太赫兹发射强度与 ISHE 电导率的比较^[57]

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

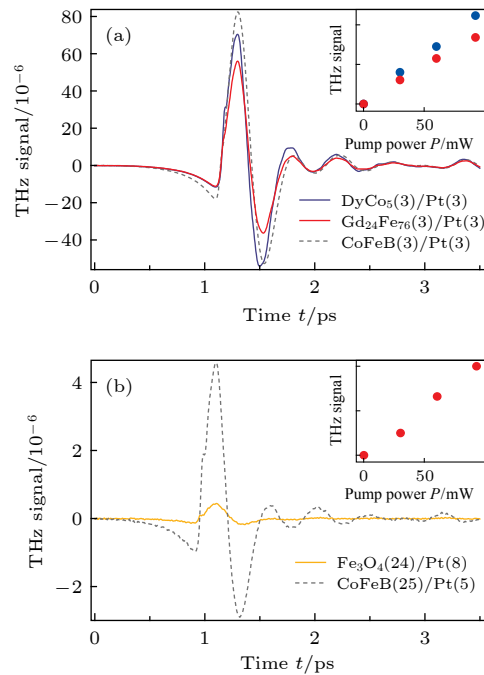


图 8 不同磁异质结的太赫兹发射信号强度比较^[58]

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.

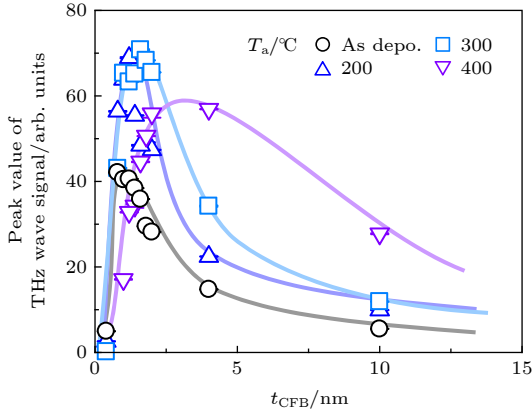


图 9 CoFeB 在不同退火温度下产生太赫兹信号峰 [62]
Fig. 9. Peak THz signals for CoFeB annealed at different temperatures [62].

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.

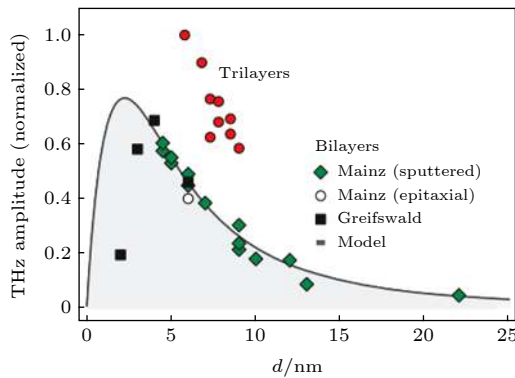


图 10 太赫兹信号幅度与金属叠层厚度 d 的关系^[33], 实线是拟合结果

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.

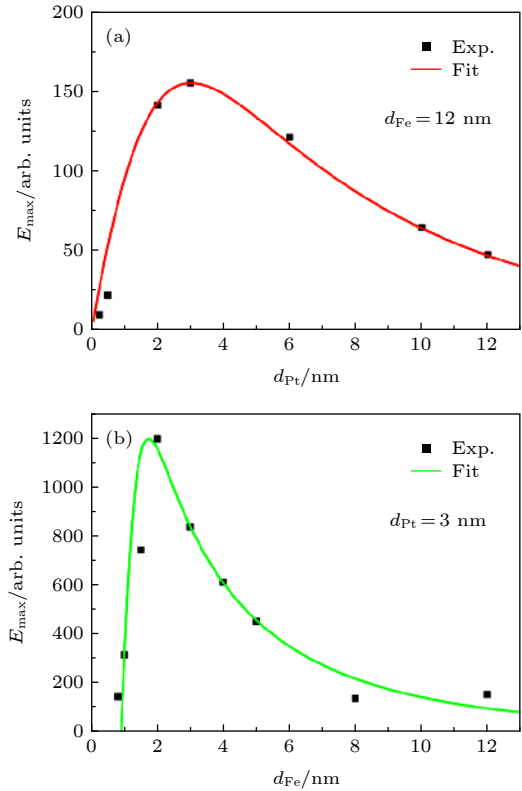


图 11 太赫兹信号幅度与金属叠层厚度 d 的关系^[69]

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.

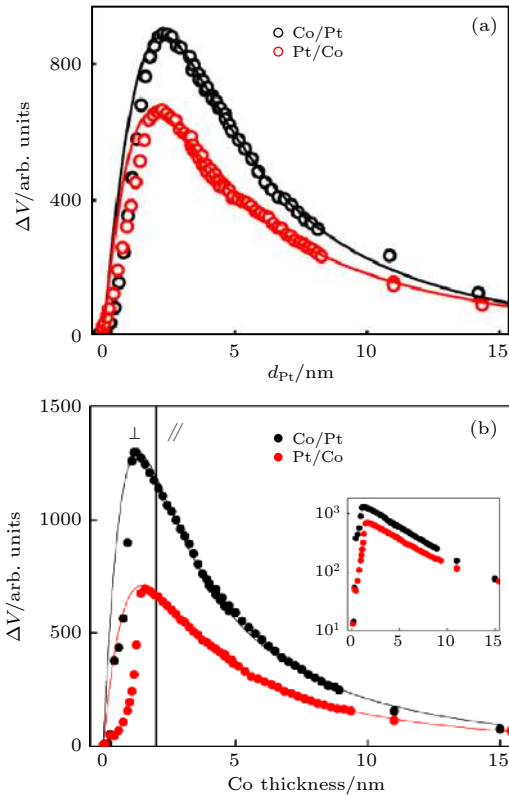


图 12 太赫兹信号幅度与金属层厚度 d 的关系^[51] (a) Pt 厚度与太赫兹发射强度 ΔV 的关系, 点为实验数据, 线是基于 (11) 式拟合; (b) Co 层厚度与太赫兹发射强度 ΔV 的关系, 点为实验数据, 线是基于 (12) 式拟合, 垂直实线表示自旋取向转变的临界厚度约为 2 nm, 插图是以对振幅取对数作为厚度 d_{Co} 的函数

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.

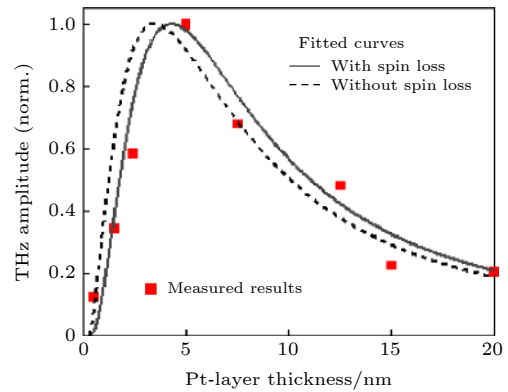


图 13 红色方块表示太赫兹振幅与 Pt 层厚度之间关系的实验数据^[70]. 实线是根据 (13) 式的实验结果的拟合, 其中考虑了界面自旋损失. 作为比较, 虚线是在不考虑界面自旋损失的情况下获得的拟合结果

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,

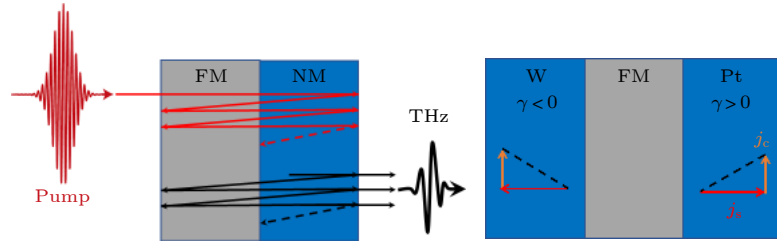


图 14 法布里-珀罗薄膜腔的示意图^[33], 该腔增强了入射泵浦和发射的太赫兹辐射. 三层发射器的示意图, 该发射器以近似相等的效率将后向和前向自旋电流 j_s 转换为单向充电电流 j_c .

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.

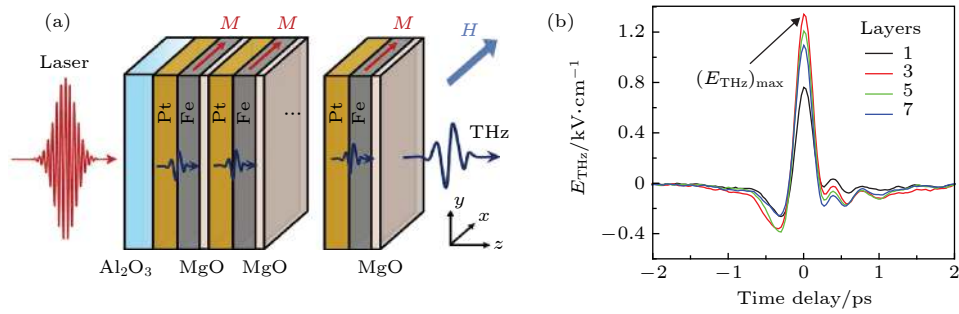


图 15 (a) 由多层磁性材料制成的太赫兹发射器示意图^[35]; (b) 多层结构 $[\text{Pt}(2 \text{ nm})/\text{Fe}(1 \text{ nm})/\text{MgO}(2 \text{ nm})]_n$ 上的时域太赫兹信号 ($n = 1, 3, 5, 7$)^[35].

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].

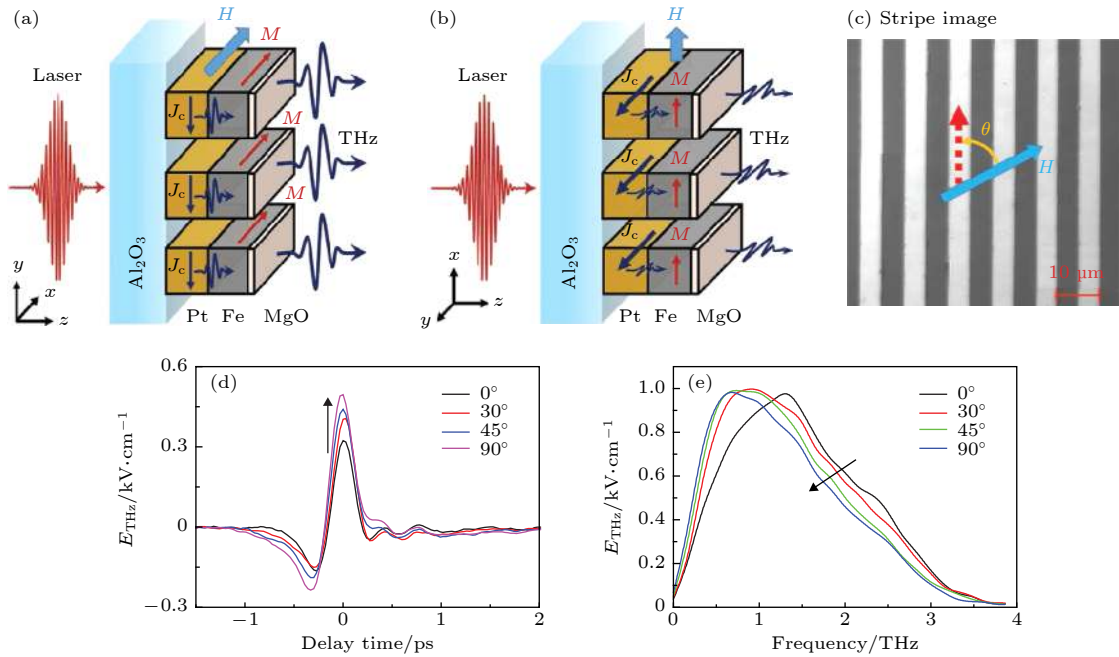


图 16 图案化的磁性异质结构的示意图^[35] (a) 平行于磁场; (b) 垂直于磁场; (c) 图案化的 Fe/Pt 样品的照片 (顶视图); (d), (e) 在不同方向上的时域和频域太赫兹信号, 磁场 H 在实验室坐标系中沿 $+x$ 方向固定. 在 (c) 中定义了表征图案化的异质结构的旋转的取向角 θ . (d) 和 (e) 中的黑色箭头表示角度 θ 从 0° 增大到 90° .

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° .

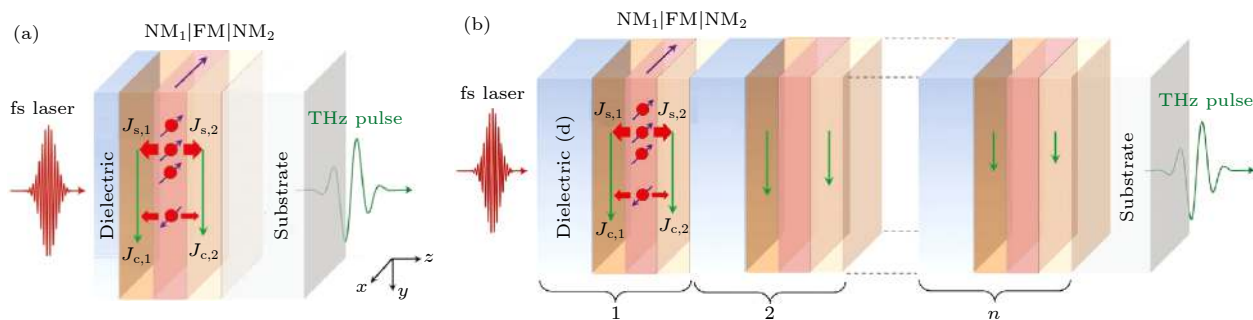


图 17 (a) 单重复自旋电子太赫兹发射器的示意图^[74]; (b) 金属电介质光子晶体型 (photonic-crystal-like) 自旋电子太赫兹发射器的示意图^[74]

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, Turchinovitch 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, Mützenber 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