



## 飞秒激光泵浦LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub>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 LaAlO<sub>3</sub>/SrTiO<sub>3</sub> 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>

#### Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub>(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 Y<sub>3</sub>Fe<sub>5</sub>O<sub>12</sub>(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Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>/CoFeB双层异质结太赫兹发射

Terahertz emission generated from Bi<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>/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<sup>1)2)</sup> 张慧<sup>3)</sup> 吴晓君<sup>4)†</sup> 张洪瑞<sup>1)</sup> 王春<sup>1)2)</sup>  
王博<sup>1)2)</sup> 汪力<sup>1)</sup> 孙继荣<sup>1)‡</sup>

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  $\text{LaAlO}_3$  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<sup>[1]</sup>, 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<sup>[2]</sup> 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<sup>[3]</sup>, 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<sup>[4]</sup>. 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<sup>[5-7]</sup>与铁磁金属/半导体异质结<sup>[8]</sup>的超扩散自旋输运理论. 在 Au/Fe//MgO(001)<sup>[9]</sup> 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<sup>[10]</sup> 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<sup>[11]</sup>, 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<sup>[12,13]</sup>, 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<sup>[14]</sup> 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<sup>[15]</sup> 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<sup>[16]</sup> 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<sup>[17]</sup> 通过输运测量首先观察到 IREE. Jungfleisch 等<sup>[18]</sup> 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<sup>[19]</sup> 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<sup>[20]</sup> 甚至在半导体二维材料 MoS<sub>2</sub> 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<sup>[21]</sup> 利用自旋泵浦在 NiFe/LaAlO<sub>3</sub> (LAO)//SrTiO<sub>3</sub> (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 ( $\lambda_{\text{IREE}}$ ) 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 TiO<sub>2</sub> 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/cm<sup>2</sup>, 频率为 1 Hz, 衬底温度保持在 700 °C, 氧压为 1 × 10<sup>-5</sup> 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  $5 \times 10^{-7}$  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  $\text{SiO}_2$ , 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.

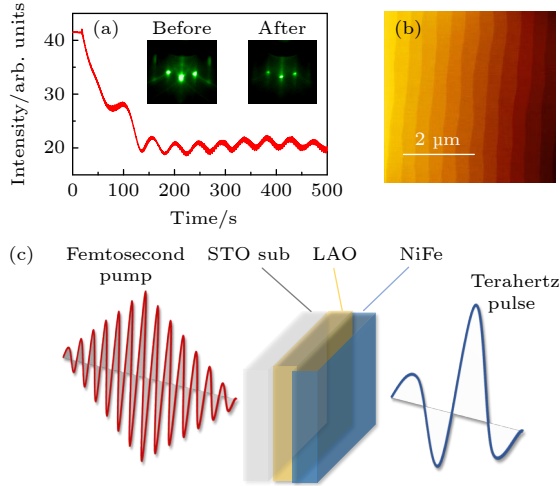


图 1 (a) STO(001) 衬底生长 LAO 薄膜的 RHEED 振荡谱图和衍射图; (b) LAO//STO(001) 薄膜形貌图; (c) 太赫兹发射示意图

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  $90^\circ$  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.

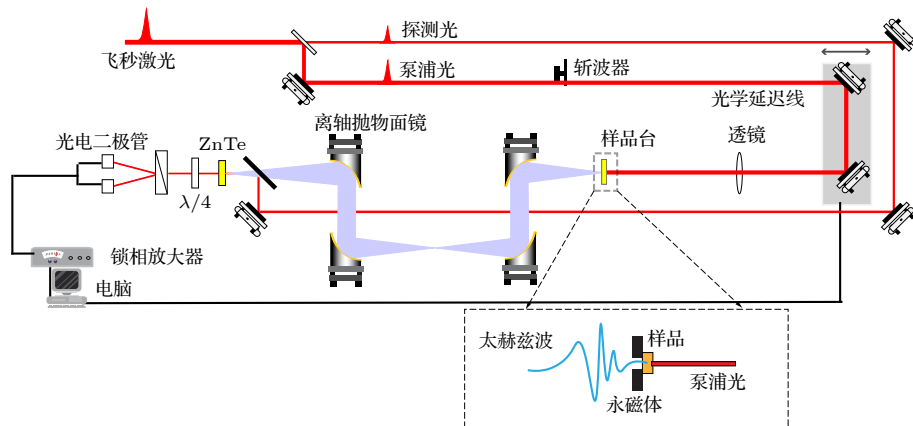


图 2 太赫兹辐射实验装置. 放大的虚线框表示样品与永磁体的关系

Fig. 2. Schematic diagram of terahertz radiation experimental configuration. The zoomed area shows the relations between the sample and magnetic field.



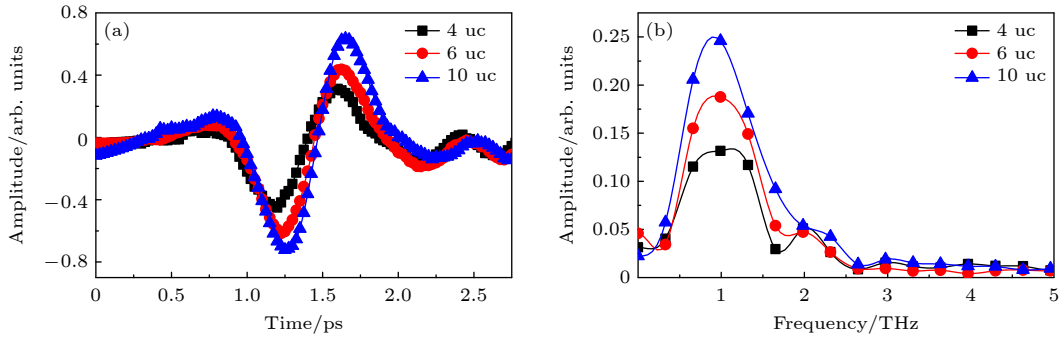


图 3 (a) 不同厚度的 LAO 样品辐射的太赫兹时域波形; (b) 对应的频谱图

Fig. 3. (a) Typical terahertz temporal waveforms for LAO samples with different thicknesses, and (b) the corresponding spectra.

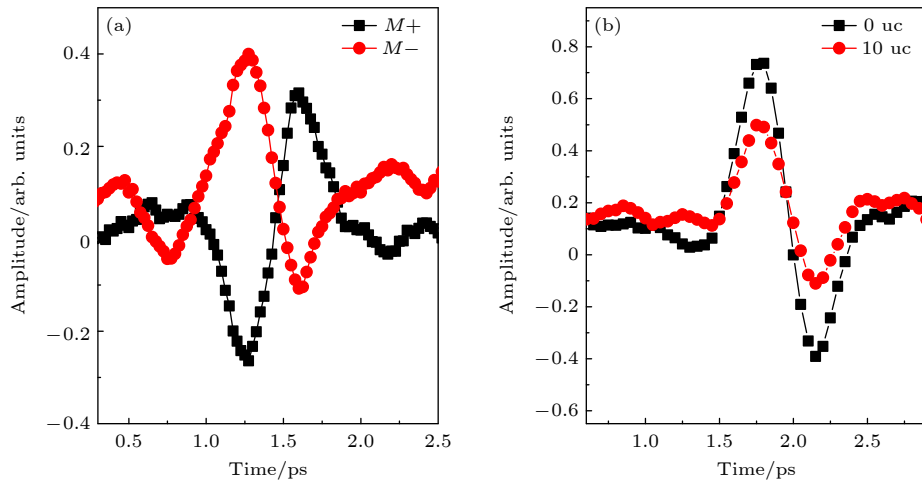


图 4 (a) 太赫兹辐射极性随外加磁场方向的改变而反转; (b) NiFe//STO 与 NiFe/LAO (10 uc)//STO 辐射太赫兹波的大小比较  
Fig. 4. (a) Radiated terahertz polarity reversal when varying the applied magnetic field direction; (b) comparison of the terahertz radiation between NiFe//STO and NiFe/LAO (10 uc)//STO.

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  $180^\circ$ , 观察到了太赫兹电场相位呈现  $180^\circ$  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<sup>[22]</sup>, 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  $180^\circ$ , 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<sup>[23]</sup>. 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<sup>[18]</sup>, 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  $1 \text{ mJ/cm}^2$  量级, 激光单脉冲能量  $0.8 \text{ mJ}$ <sup>[24]</sup>, 而本文实验中通过  $150 \text{ mm}$  焦距的透镜将直径约  $3 \text{ mm}$  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/cm<sup>2</sup>, 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<sup>[25]</sup>, 因此 NiFe//STO 的信号可能来源于 STO 非占据态的 IREE<sup>[26]</sup>, 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.

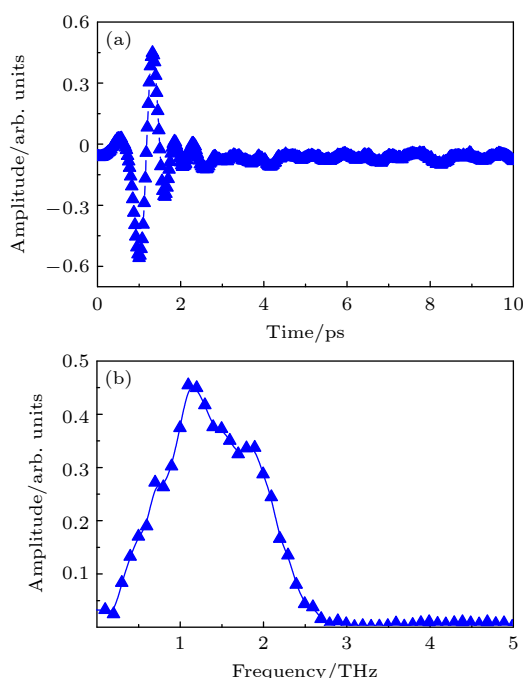


图 5 真空环境下, 10 nm 的 LAO 太赫兹辐射时域波形 (a) 和对应的频谱 (b)

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<sup>[21]</sup>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<sup>[16]</sup>:

$$[\partial_z^2 + \mathbf{k}^2(z, \omega)]E(z, \omega) = -eZ_0\omega \mathbf{j}_c(z, \omega)/(ic), \quad (1)$$

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<sup>[19]</sup>

$$\mathbf{j}_c \propto \lambda_{\text{IREE}} \mathbf{j}_s \times \hat{z}, \quad (2)$$

其中  $\hat{z}$  为界面电场方向, 垂直于 LAO 和 STO 形成的界面;  $\lambda_{\text{IREE}}$  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<sup>[16,27]</sup>, 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<sup>[26]</sup>, 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<sup>[16]</sup>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<sup>[28]</sup>, 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  $180^\circ$  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  $40^\circ$  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<sup>[29]</sup>, 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.

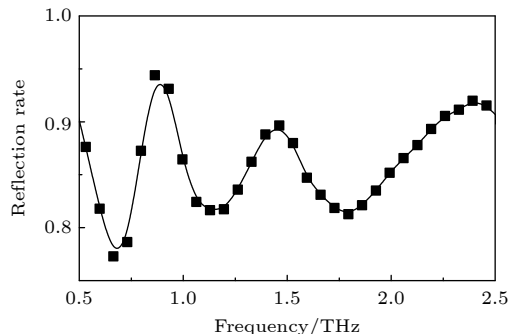


图 6 STO 以铝镜为参考的反射率

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] Beaurepaire E, Turner G M, Harrel S M, Beard M C, Bigot J Y, Schmittenmaier 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 $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ heterostructures pumped with femtosecond laser\*

Wei Gao-Shuai<sup>1)2)</sup> Zhang Hui<sup>3)</sup> Wu Xiao-Jun<sup>4)†</sup> Zhang Hong-Rui<sup>1)</sup>

Wang Chun<sup>1)2)</sup> Wang Bo<sup>1)2)</sup> Wang Li<sup>1)</sup> Sun Ji-Rong<sup>1)‡</sup>

<sup>1)</sup> (Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

<sup>2)</sup> (School of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

<sup>3)</sup> (School of Integrated Circuit Science and Engineering, Beihang University, Beijing 100191, China)

<sup>4)</sup> (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  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  interface is one order of magnitude larger than that of the Ag/Bi interface under equilibrium or quasi-equilibrium condition. Whether the  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  heterostructures can be used to convert spin current to generate terahertz radiation remains to be systemically studied. In this work, we fabricate the  $\text{NiFe}/\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  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  $\text{LaAlO}_3$  to show the applicability of the superdiffusive spin transport model and optical transmission model. We find the multireflections at the  $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$  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](mailto:xiaojunwu@buaa.edu.cn)

‡ Corresponding author. E-mail: [jrsun@iphy.ac.cn](mailto:jrsun@iphy.ac.cn)