

文章编号: 2095-4980(2024)08-0813-10

## 单层铁磁体中的超快太赫兹辐射研究进展

洪晖祥<sup>1a,1b,1c,1d</sup>, 张慧萍<sup>\*1a,1b,1c,1d</sup>, 许涌<sup>2</sup>, 吴少晖<sup>3</sup>, 金钻明<sup>1a,1b,1c,1d</sup>, 彭滢<sup>1a,1b,1c,1d</sup>

(1.上海理工大学 a.太赫兹技术创新研究院; b.上海市现代光学系统重点实验室; c.光学仪器与系统教育部工程中心;  
d.太赫兹光谱与影像技术协同创新中心, 上海 200093; 2.北京航空航天大学国际创新学院 自旋芯片与技术全国重点实验室,  
浙江 杭州 311115; 3.广州美维电子有限公司, 广东 广州 510663)

**摘要:** 宽频带太赫兹辐射源在太赫兹科学与技术中有着迫切的实际应用需求, 是构建波谱和成像为代表的太赫兹应用系统的核心器件。与常用的商用太赫兹源相比, 自旋光电子学太赫兹辐射源具有超宽频谱、固态稳定以及成本低等一系列优点。目前, 基于自旋光电子学太赫兹辐射源的理论、材料和器件技术研究尚处于起步阶段。本文主要总结了近年来单层铁磁层的太赫兹产生机理以及太赫兹辐射信号的极性与激发构型之间的关系。通过改变磁场方向、入射激光方向和样品入射方向可有效区分超快退磁、反常霍尔效应和反常能斯特效应对太赫兹辐射特性的贡献, 为太赫兹自旋光电子学领域的研究提供参考。

**关键词:** 太赫兹辐射源; 铁磁薄膜; 超快退磁; 反常霍尔效应; 反常能斯特效应

中图分类号: TN29

文献标志码: A

doi: 10.11805/TKYDA2024204

## Research progress of ultrafast terahertz radiation in single-layer ferromagnets

HONG Huixiang<sup>1a,1b,1c,1d</sup>, ZHANG Huiping<sup>\*1a,1b,1c,1d</sup>, XU Yong<sup>2</sup>, WU Shaohui<sup>3</sup>,JIN Zuanming<sup>1a,1b,1c,1d</sup>, PENG Yan<sup>1a,1b,1c,1d</sup>

(1a.Terahertz Technology Innovation Research Institute; 1b.Shanghai Key Laboratory of Modern Optical System; 1c.Engineering Research Center of Optical Instrument and System(Ministry of Education); 1d.Terahertz Spectrum and Imaging Cooperative Innovation Center,

University of Shanghai for Science and Technology, Shanghai 200093, China;

2.National Key Laboratory of Spintronics, International Innovation Institute, Beihang University, Hangzhou Zhejiang 311115, China;

3.AKM Meadville Technologies Co., Ltd., Guangzhou Guangdong 510663, China)

**Abstract:** Broadband terahertz radiation sources have an urgent practical application demand in terahertz science and technology, and are the core components for constructing terahertz application systems represented by spectroscopy and imaging. Compared with commonly used commercial terahertz sources, spin-optoelectronics-based terahertz radiation sources have a series of advantages such as ultra-wide frequency spectrum, solid-state stability, and low cost. Currently, the research on the theory, materials, and device technology of spin-optoelectronics-based terahertz radiation sources is still in its infancy. This paper mainly summarizes the terahertz generation mechanism of single-layer ferromagnetic layers in recent years, and the relationship between the polarity of terahertz radiation signals and the excitation configuration. By changing the direction of the magnetic field, the direction of the incident laser, and the direction of sample incidence, the contributions of ultrafast demagnetization, Anomalous Hall Effect(AHE), and Anomalous Nernst Effect (ANE) to the terahertz radiation characteristics can be effectively distinguished, providing a reference for the research in the field of terahertz spin-optoelectronics.

**Keywords:** terahertz radiation source; ferromagnetic film; Ultrafast Demagnetization(UDM); Anomalous Hall Effect; Anomalous Nernst Effect

收稿日期: 2024-04-23; 修回日期: 2024-05-10

基金项目: 国家重点研发计划资助项目(2023YFF0719200); 国家自然科学基金资助项目(61988102; 62322115); 高等学校学科创新引智计划资助项目(D18014); 上海市科技创新行动计划资助项目(22JC1400200; 21S31907400)

\*通信作者: 张慧萍 email:hpzhang@usst.edu.cn

电磁波频谱中的太赫兹(THz)频带位于红外和微波之间, 频率范围覆盖 0.1~10 THz<sup>[1]</sup>。太赫兹辐射在各个科学技术领域的应用越来越受到科学家和工程师的关注<sup>[2-4]</sup>。太赫兹波谱技术具有非破坏性的优势, 广泛用于毒品、爆炸物等的安检; 太赫兹成像技术正在成为癌症诊断筛查的有效工具<sup>[5-6]</sup>; 太赫兹波还可以实现高速的数据传输速率, 有望用于 6G 通信技术<sup>[7]</sup>。从基础研究的角度看, 太赫兹波对应的光子能量和时间尺度非常适合研究凝聚态物质中的电荷、自旋和晶格自由度的元激发及其相互作用<sup>[8-11]</sup>。

高效的太赫兹辐射源、探测与功能器件是推动太赫兹技术走向应用的关键。对于太赫兹波谱、成像、通信、基础研究等应用场景, 高效、可调谐的宽带太赫兹辐射源是太赫兹光学系统中的重要组成部分。常见的高功率、宽带太赫兹脉冲辐射源包括: 光电导天线<sup>[12-14]</sup>、有机和无机非线性晶体<sup>[15-19]</sup>、双色空气等离子体<sup>[20-23]</sup>等。目前, 绝大多数的太赫兹辐射源和功能器件依赖于电子的电荷属性, 存在能耗高、集成度低、响应速度慢等问题, 导致缺乏室温运行的小型化高效宽频源, 制约了太赫兹技术的发展和实际应用。

自旋电子学器件利用电子的自旋自由度实现特有的功能, 具有运算速度高、功耗低、热耗散低等优势。近年来, 基于电子自旋的超快动力学过程, 铁磁性在飞秒激光辐照下产生太赫兹宽频脉冲, 称为自旋光电子学太赫兹辐射源<sup>[24-27]</sup>。该辐射源的发展结合了超快光谱、自旋电子学和太赫兹 3 种新技术<sup>[28-31]</sup>。自旋光电子学太赫兹辐射源采用的材料非常薄, 在超快光激发后直接产生宽带、相干的太赫兹波, 有望集成到小型化的太赫兹光学器件与系统中<sup>[32]</sup>。

1996 年, Beaurepaire 及其合作者通过时间分辨磁光克尔效应实验, 报道了飞秒激光脉冲激发的镍(Ni)薄膜的超快退磁(UDM)效应, 并通过现象学“三温度模型”给予解释<sup>[33]</sup>。该模型考虑了自旋、电子和晶格自由度之间的相互作用。2004 年, Beaurepaire 及其合作者观察到 Ni 薄膜在飞秒激光照射下产生了自由空间传播的太赫兹脉冲, 并认为超快退磁引起的磁偶极辐射是太赫兹脉冲产生的物理起源<sup>[34]</sup>。2013 年, Kampfrath 等在铁磁层(Ferromagnetism, FM)旁边生长了一层非磁性重金属层(Non-Magnetic, NM), 当飞秒激光诱导的自旋流从磁性层注入到相邻的非磁性重金属层中, 通过逆自旋霍尔效应(Inverse Spin Hall Effect, ISHE)<sup>[24]</sup>, 或逆 Rashba Edelstein 效应(Inverse Rashba-Edelstein Effect, IREE)转化为超快电荷流<sup>[35-36]</sup>。在 NM 层中或 Rashba 界面处产生的瞬态电荷流是产生太赫兹电磁辐射的电偶极辐射物理起源, 电偶极太赫兹辐射的强度远高于磁偶极辐射的强度。铁磁/非磁(FM/NM)异质结作为宽带、高功率太赫兹辐射源吸引了科研人员广泛的研究兴趣, 为太赫兹科学和技术开辟了全新的研究领域<sup>[37-47]</sup>。

尽管 UDM 引起的磁偶极辐射已被认为是单层铁磁薄膜辐射太赫兹波的主要物理机理<sup>[34]</sup>, 但近年来的研究表明, 超快光激发单层铁磁薄膜的太赫兹相干辐射并不只源自于 UDM。超快时间尺度上的反常霍尔效应(AHE)<sup>[48-50]</sup>和反常能斯特效应(ANE)<sup>[51-53]</sup>都被发现在单层 FM 薄膜的太赫兹发射中起重要作用。铁磁/非磁性异质结太赫兹辐射源研究得到了国内外多个课题组综述文章的介绍<sup>[54-60]</sup>, 但针对单层铁磁材料的太赫兹辐射特性研究综述较少。本文主要围绕单层铁磁薄膜中基于 UDM 的太赫兹发射特性、基于 AHE 的太赫兹发射特性、基于 ANE 的太赫兹发射特性展开综述。

## 1 UDM 机理产生太赫兹相干辐射

图 1 为飞秒激光激发单层铁磁薄膜产生太赫兹脉冲及其实验光路示意图。Rouzegar 等<sup>[61]</sup>研究表明, 当 800 nm 的抽运光脉冲激发铁磁薄膜后, 产生瞬态自旋电压,  $\frac{\partial \mathbf{M}(t)}{\partial t} \propto j_s \propto \mu^\uparrow - \mu^\downarrow$ , 其中  $\frac{\partial \mathbf{M}(t)}{\partial t}$  是随时间的磁化强度,  $j_s$  是自旋电流,  $\mu^\uparrow$  和  $\mu^\downarrow$  分别为铁磁层中多数和少数电子自旋的化学势。瞬态自旋电压将驱动超快退磁, 产生太赫兹辐射:

$$E_{\text{THz}}^{\text{UDM}}(t) \propto \frac{\partial^2 \mathbf{M}(t)}{\partial t^2} \quad (1)$$

本课题组利用超短飞秒激光脉冲激发铁磁半金属哈斯勒合金  $\text{Co}_2\text{MnSn}$  薄膜, 产生宽带太赫兹辐射<sup>[62]</sup>, 如图 2(a)~(b)所示。研究了外加磁场和激发方向对产生太赫兹脉冲的影响: 改变磁场的施加方向, 太赫兹辐射脉冲的极性发生翻转; 固定磁场方向, 改变激发光的入射方向, 太赫兹辐射脉冲的极性未发生改变。图 2(c)为太赫兹辐射的频谱图, 产生的太赫兹脉冲的振幅随激发光能量密度的增加而线性增加(图 2(d))。实验结果表明, 单层铁磁薄膜  $\text{Co}_2\text{MnSn}$  的太赫兹辐射起源于磁偶极子跃迁, 即光诱导亚皮秒时间尺度的 UDM。

此外, 通过光抽运-太赫兹探测光谱系统(图 1(b))研究了  $\text{Co}_2\text{MnSn}$  的光激发瞬态电导率弛豫过程。与半导体材料光激发后电导率增加的实验现象不同, 光诱导半金属哈斯勒合金薄膜增加了电子的热散射几率, 降低了薄

膜的电导率，电导率的下降与激发光能量密度成线性关系。 $\text{Co}_2\text{MnSn}$  的光发电导率弛豫动力学中快弛豫时间常数( $\tau_1 \sim 1$  ps)对应于电子-声子耦合，当电子温度和晶格温度达到平衡后，整个激发区域开始冷却，随着激发光能量密度增加而增加的时间常数  $\tau_2 \sim 30$  ps~180 ps 被认为是晶格系统的冷却时间。

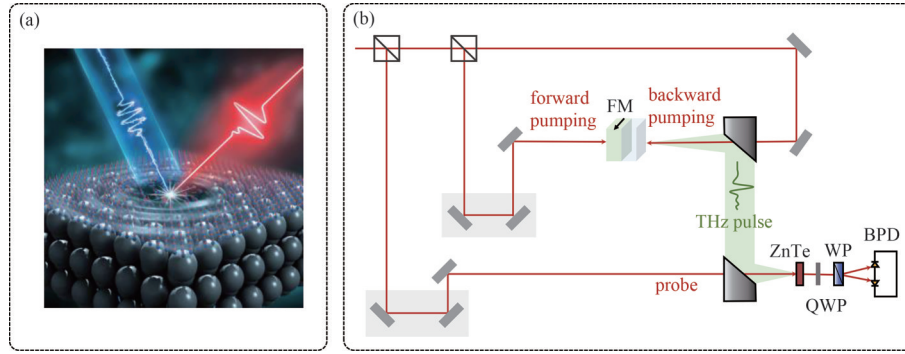


Fig.1 Schematic diagram of femtosecond laser excitation of monolayer ferromagnetic film to generate terahertz pulses and its experimental setup  
图 1 飞秒激光激发单层铁磁薄膜产生太赫兹脉冲及其实验光路示意图

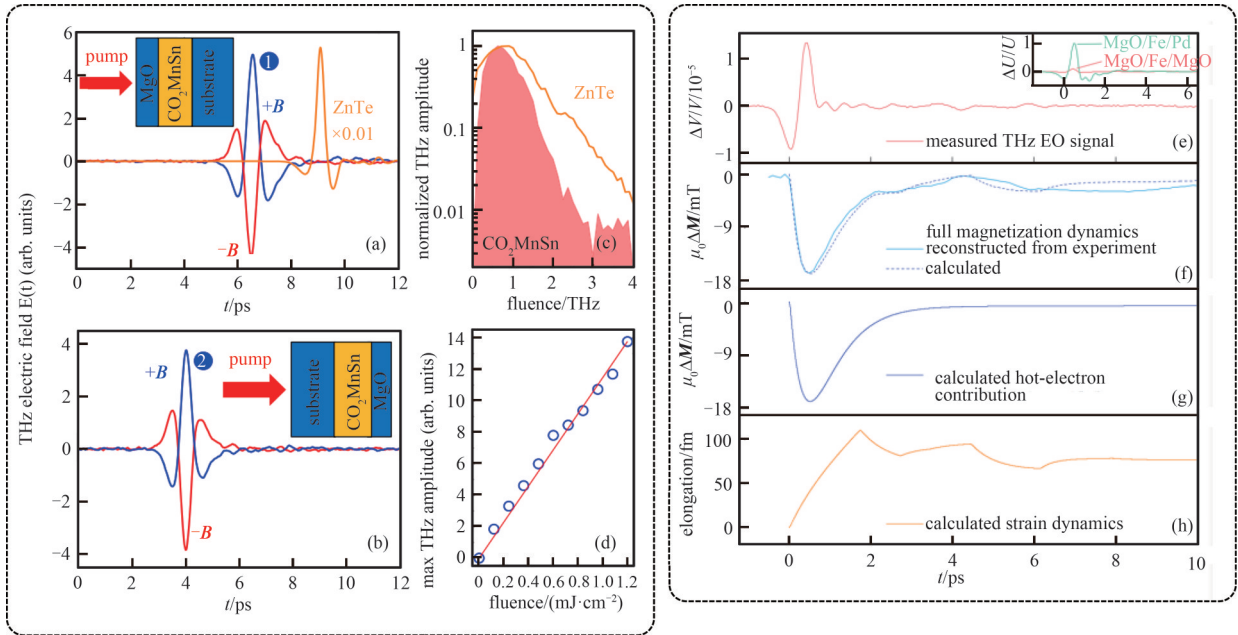


Fig.2 Terahertz pulse radiation based on UDM mechanism in single layer ferromagnetic  $\text{Co}_2\text{MnSn}$  and Fe films  
图 2 单层铁磁  $\text{Co}_2\text{MnSn}$  和 Fe 薄膜中基于 UDM 机制的太赫兹脉冲辐射

由于 UDM 产生的太赫兹辐射依赖于铁磁层材料的块体性质，2020 年，ZHANG 等<sup>[63]</sup>展示了一种超快太赫兹磁强计光谱技术，直接获得了单层 Fe 薄膜中的超快磁化动力学。样品为在绝缘的氧化镁衬底上沉积 10 nm 的 Fe 薄膜，在 Fe 薄膜上覆盖一层 12 nm 的 MgO 绝缘层。该工作直接通过实验获得太赫兹电场的传递函数，将远场测量到的太赫兹光电取样信号  $S_M(\omega)$ ，重构出磁化动力学  $\mathbf{M}(t)$ 。重构方法需在实验中准确建立频域上完整的传递函数，包括：a) 将样品中时间依赖的磁化动力学转换成电磁辐射的函数  $f_{\text{rad},M}(\omega)$ ；b) 实验系统中太赫兹电磁辐射传输到探测晶体的传递函数  $f_{\text{prop}}(\omega)$ ；c) 探测晶体通过光电取样探测太赫兹电磁场的探测函数  $f_d(\omega)$ 。同一个光路中，可以同时测 ZnTe 晶体的电偶极太赫兹发射函数  $f_{\text{rad},P}(\omega)$  和 Fe 薄膜的磁偶极太赫兹发射函数  $f_{\text{rad},M}(\omega)$ 。尽管  $f_{\text{rad},P}(\omega)$  和  $f_{\text{rad},M}(\omega)$  不同，但同一光路中，太赫兹传递函数  $f_{\text{prop}}(\omega)$  和 ZnTe 探测晶体函数  $f_d(\omega)$  相同。磁偶极太赫兹发射 ( $S_M(\omega)$ ) 和电偶极太赫兹发射 ( $S_P(\omega)$ ) 的电光取样信号分别表示为：

$$S_M(\omega) = \mathbf{M}(\omega) f_{\text{rad},M}(\omega) f_{\text{prop}}(\omega) f_d(\omega) \quad (2)$$

$$S_P(\omega) = P(\omega) f_{\text{rad},P}(\omega) f_{\text{prop}}(\omega) f_d(\omega) \quad (3)$$

式中  $\mathbf{M}(\omega)$  和  $P(\omega)$  分别为频率依赖的磁化强度和极化强度, 即  $\mathbf{M}(t)$  和  $P(t)$  的傅里叶变换。

假设一个点源磁偶极辐射产生的远场电场  $\mathbf{E}_M(t)$  为:

$$\mathbf{E}_M(t) = IFT \left\{ -\frac{1}{4\pi} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} k^2 (\mathbf{n} \times \mathbf{M}) \frac{e^{ikr}}{r} \right\} \quad (4)$$

式中:  $IFT$  表示逆傅里叶变换;  $\mu_0$  为真空磁导率;  $\epsilon_0$  为真空介电常数;  $k$  为波矢;  $\mathbf{n}$  为从偶极子指向探测位置的单位矢量;  $\mathbf{M}$  为频率依赖的磁化强度;  $r$  为发射磁偶极子到探测位置的距离。由式(4)得到辐射函数  $f_{\text{rad},M}(\omega) = FT(\mathbf{E}_M(t))$ ,  $FT$  表示傅里叶变换。

通过实验测量的电光取样信号  $S_M(\omega)$  重构得到  $\mathbf{M}(\omega)$ , 由式(2)可得

$$\mathbf{M}(\omega) = \frac{S_M(\omega)}{f_{\text{rad},M}(\omega) f_{\text{prop}}(\omega) f_d(\omega)} \quad (5)$$

实验中, 用 0.5 mm 厚的 <110>ZnTe 晶体作为参考辐射源, 获得实验光谱系统中太赫兹波的传递函数和探测晶体函数的乘积  $f_{\text{prop}}(\omega) f_d(\omega)$ , 通过式(5)的逆傅里叶变换, 如图 2(e)~(f) 所示, 可以从单层铁磁 Fe 薄膜产生的太赫兹电光取样信号  $S_M(t)$  (红色曲线), 重构出样品的磁化动力学过程  $\mathbf{M}(t)$  (蓝色曲线)。实验中, 使用的激光能量密度为 1.1 mJ/cm<sup>2</sup>。飞秒激光诱导超快退磁的同时, 单层铁磁 Fe 纳米薄膜的热膨胀在样品中产生了太赫兹频段的超声波脉冲。当超声波脉冲穿过 Fe 纳米薄膜时, 所产生的压力会使 Fe 原子产生微小的移动, 并进一步减弱材料的磁性。在皮秒时间尺度上, 实验数据和第一性原理计算结果几乎完美吻合, 如图 2(g)~(h) 所示。研究结果表明, 超快太赫兹磁测量实验方法能精确、灵敏地区分来自电子和声波不同物理起源的超快磁信号。

## 2 AHE 机理产生太赫兹相干辐射

与 UMD 产生太赫兹辐射机理不同, 基于 AHE 太赫兹辐射机理涉及从铁磁层/介质层的界面产生净电荷回流, 且随后转换为横向瞬态电荷流<sup>[48-50]</sup>, 需综合考虑材料的块体效应和界面效应。如图 3(a) 所示, 在飞秒激光诱导下, 从 Fe/SiO<sub>2</sub> 界面和 Fe/MgO 衬底界面产生的电荷回流  $\mathbf{j}_{\text{bf1}}$  和  $\mathbf{j}_{\text{bf2}}$  不相等, 无法抵消, 导致沿着薄膜的厚度方向, 产生净的纵向电荷回流  $\mathbf{j}_{\text{bf}} = \mathbf{j}_{\text{bf1}} - \mathbf{j}_{\text{bf2}}$ 。电荷回流  $\mathbf{j}_{\text{bf}}$  依赖于界面的物理特性, 包括粗糙度、晶体结构、界面混合电导率等。根据反常霍尔效应,  $\mathbf{j}_{\text{bf}}$  将转换成横向电荷流:

$$\mathbf{j}_c(t) = \theta_{\text{AHE}} \left( \mathbf{j}_{\text{bf}}(t) \times \frac{\mathbf{M}}{|\mathbf{M}|} \right) \quad (6)$$

式中  $\theta_{\text{AHE}}$  和  $\frac{\mathbf{M}}{|\mathbf{M}|}$  分别为 Fe 薄膜的反常霍尔角和磁化方向。基于 AHE 机理产生的太赫兹辐射为  $\mathbf{E}_{\text{THz}}^{\text{AHE}}(t) \propto \frac{\partial}{\partial t} [\mathbf{j}_c(t)]$ 。

最近, LAN 等<sup>[50]</sup>研究了 4 种实验构型下 ( $\pm \mathbf{H}$ ,  $\pm \mathbf{n}$ ) 单层 Fe 薄膜厚度依赖的太赫兹发射特性。激发光能量密度为 0.8 mJ/cm<sup>2</sup>,  $+\mathbf{H}$  和  $-\mathbf{H}$  磁场下, 从 FM 层侧 ( $+\mathbf{n}$ ) 激发 Fe 薄膜, 产生太赫兹波形  $\mathbf{E}_{\text{EOS}}^{+\mathbf{n}}(t)$ ;  $+\mathbf{H}$  和  $-\mathbf{H}$  磁场下, 从衬底侧 ( $-\mathbf{n}$ ) 激发 Fe 薄膜, 产生太赫兹波形  $\mathbf{E}_{\text{EOS}}^{-\mathbf{n}}(t)$ 。Fe 薄膜的厚度从 2 nm 增加至 30 nm, 当 Fe 层的厚度小于 3 nm 时, 几乎观察不到太赫兹辐射信号; 当 Fe 层的厚度为 5 nm 时, 太赫兹发射振幅达到最大值。此外, 5 nm 和 30 nm 厚的 Fe 薄膜所产生的太赫兹辐射波形发生了极性反转 (如图 4 所示)。实验结果表明, 太赫兹辐射波形的振幅和相位强烈依赖于样品的厚度。

由于磁化动力学与光的激发方向无关, 基于 UDM 太赫兹发射的极性不随样品的翻转而改变。但基于 AHE 效应的太赫兹发射, 太赫兹辐射波形的极性随样品的翻转而翻转, 原因在于铁磁层中净的电荷回流方向发生了翻转, 如图 5(b) 所示。因此, 通过分析单层铁磁薄膜的太赫兹辐射极性和激发构型之间的关系, 可以定性区分 UDM 和 AHE 各自的贡献:

$$\mathbf{E}_{\text{EOS}}^{\text{UDM}}(t) = \frac{\mathbf{E}_{\text{EOS}}^{+\mathbf{n}}(t) + \mathbf{E}_{\text{EOS}}^{-\mathbf{n}}(t)}{2} \quad (7)$$

$$\mathbf{E}_{\text{EOS}}^{\text{AHE}}(t) = \frac{\mathbf{E}_{\text{EOS}}^{+\mathbf{n}}(t) - \mathbf{E}_{\text{EOS}}^{-\mathbf{n}}(t)}{2} \quad (8)$$

图 3(b)~(c) 描述了  $\mathbf{E}_{\text{EOS}}^{\text{UDM}}(t)$  和  $\mathbf{E}_{\text{EOS}}^{\text{AHE}}(t)$  各自的峰值强度随 Fe 薄膜厚度的依赖关系。 $\mathbf{E}_{\text{EOS}}^{\text{UDM}}$  随厚度的增加呈线性的单调递增趋势;  $\mathbf{E}_{\text{EOS}}^{\text{AHE}}$  随 Fe 薄膜厚度的增加先增加, 在 5 nm 时达到极大值, 当厚度进一步增加, 太赫兹辐射强度

单调递减。LIU 等<sup>[49]</sup>分析了 CoFeB 薄膜盖层和衬底侧太赫兹辐射的差异，如图 3(d)所示，区分了 AHE 和 UDM 对太赫兹辐射的贡献，其中蓝线为 UDM 随 CoFeB 厚度的依赖关系，红线为 AHE 随 CoFeB 厚度的依赖关系。图 3(e)中的星号为 W/CoFeB 异质结构的太赫兹发射的强度随 CoFeB 厚度的依赖关系。

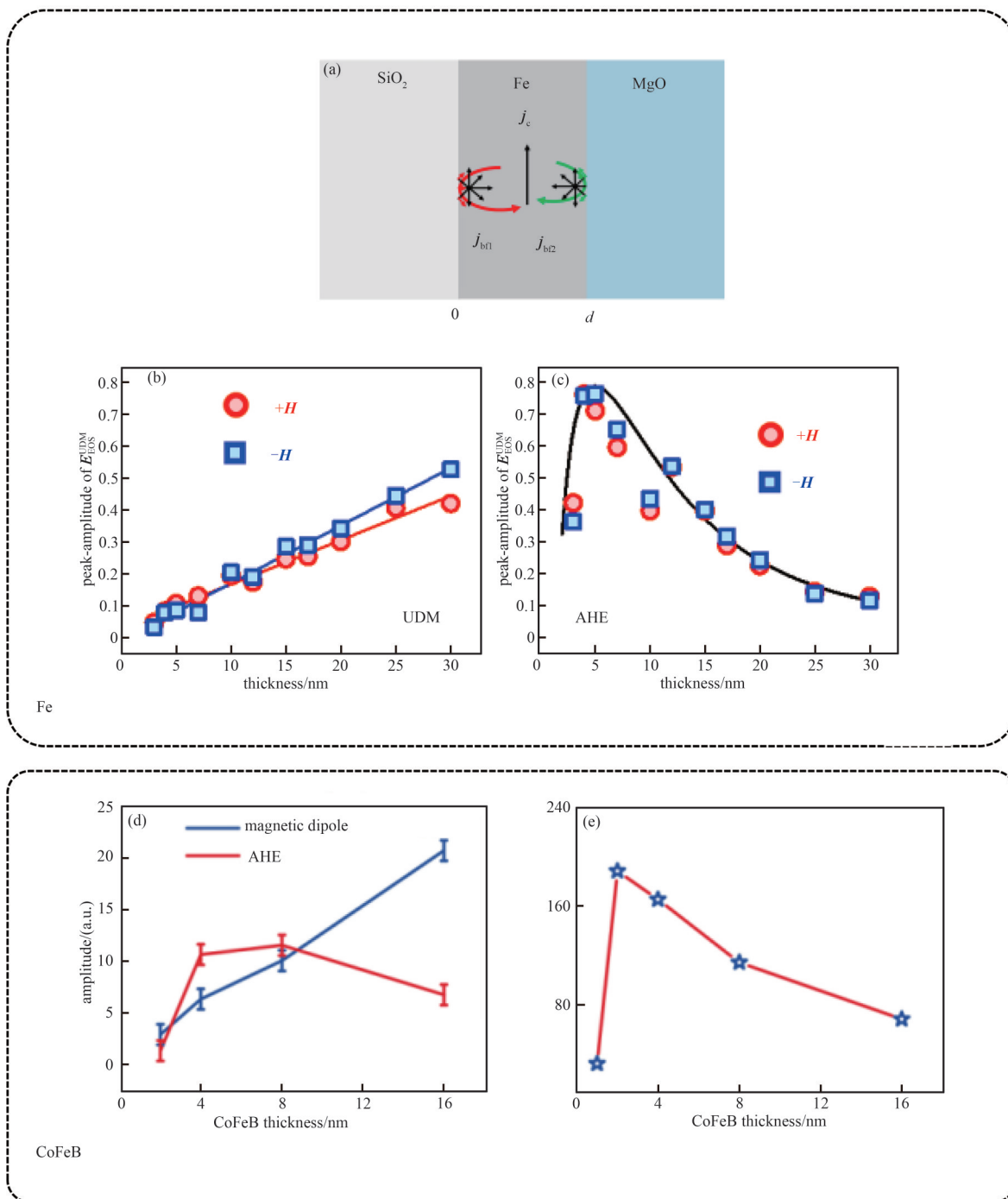


Fig.3 Two different terahertz radiation mechanisms for UDM and AHE in single layer ferromagnetic Fe and CoFeB films  
图3 单层铁磁薄膜Fe和CoFeB中UDM和AHE两种不同的太赫兹辐射机理

### 3 ANE 机理产生太赫兹相干辐射

单层铁磁薄膜太赫兹发射的UDM和AHE机理，都忽略了飞秒激光在铁磁薄膜中产生的热效应。最近，FENG等<sup>[51]</sup>的实验阐明，飞秒激光诱导的亚皮秒尺度的ANE电流可以辐射太赫兹脉冲。ANE效应可认为是AHE效应的“热激发”版本，在单层FM薄膜中，由于飞秒激光诱导的温度梯度产生了自旋极化电流转换成电荷流，并辐射太

赫兹脉冲, 表示为:

$$E_{\text{ANE}}(t) \propto -\frac{\partial}{\partial t} \left[ \sigma_F Q_s 4\pi \mathbf{M}(t) \frac{\mathbf{M}}{|\mathbf{M}|} \times \nabla T(t) \right] \quad (9)$$

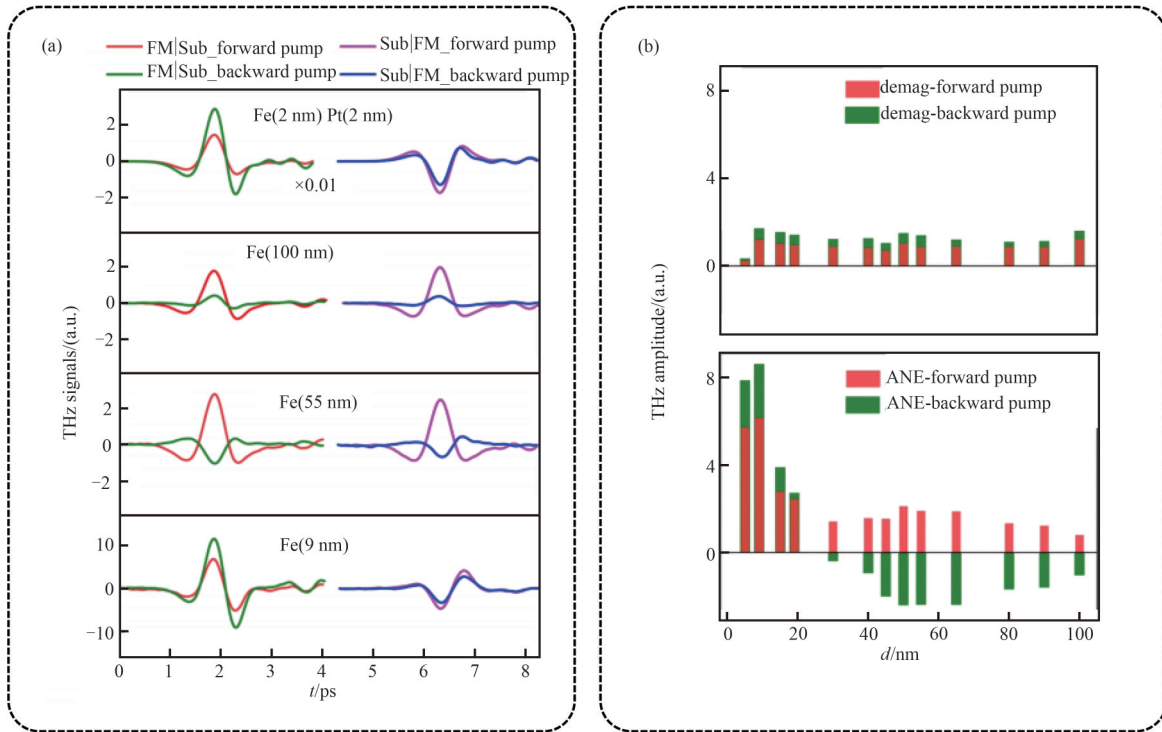


Fig.4 Terahertz pulses based on ANE and UDM radiation in a single layer of ferromagnetic Fe film

图4 单层铁磁Fe薄膜中基于ANE和UDM辐射太赫兹脉冲

式中:  $\sigma_F$  为铁磁薄膜的电导率;  $Q_s$  为铁磁薄膜的 ANE 系数;  $\nabla T(t)$  为温度梯度。从式(9)可以看出, 太赫兹辐射脉冲的极性由  $Q_s$  的符号和温度梯度的方向  $\nabla T(t)$  所决定。

$\nabla T$  强烈依赖于薄膜的厚度, 当铁磁薄膜的厚度大于临界厚度(“厚膜样品”)时,  $\nabla T$  指向激光的激发方向, 与样品翻转无关; 当铁磁薄膜的厚度小于临界厚度(“薄膜样品”), 且衬底具有高导热性、光学透明的氧化镁衬底时,  $\nabla T$  总是指向远离 FM/衬底界面方向, 与激光的激发方向无关。临界厚度与所研究样品的趋肤深度(Fe 在 800 nm 处的趋肤深约为 17.3 nm)和传热性能密切相关。如图 5(c)所示, 对于“厚膜样品”, 翻转样品得到的太赫兹辐射信号的极性不变, 但飞秒激光的激发方向反转会导致产生的太赫兹辐射信号极性发生反转。这被认为是判断 ANE 太赫兹辐射机理的重要实验特征。值得注意的是, ANE 机理产生的太赫兹发射与 UDM 和 AHE 机理产生的太赫兹信号通常混合在一起, 很难区分。FENG 等<sup>[51]</sup>搭建的双向激光抽运太赫兹发射光谱, 如图 1(b)所示, 不仅可以实现样品的翻转, 还增加了激光的空间反演对称性操作, 可实现正向抽运(Forward pumping)和背向抽运(Backward pumping)

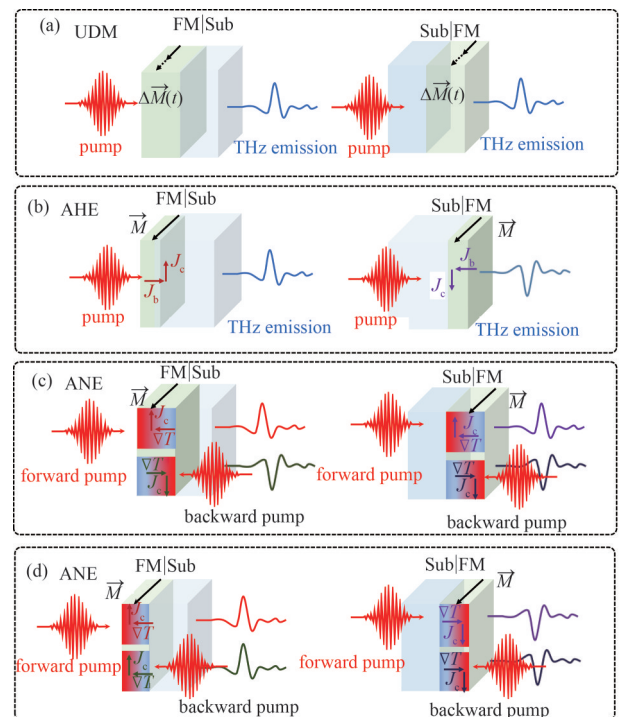


Fig.5 Schematic of the polarity of terahertz emission signals based on different mechanisms

图5 由不同机制引起的太赫兹发射信号的极性示意图

实验。

基于飞秒激光振荡器的双向激光抽运的太赫兹发射光谱(抽运脉冲能量密度为  $0.07 \text{ mJ/cm}^2$ )，研究了厚度依赖的 FM 层太赫兹发射特性。如图 4(a)所示，当厚度在  $90 \text{ nm}$  以上时，太赫兹辐射由 UDM 机理主导，太赫兹辐射信号的极性如图 5(a)所示；当 Fe 薄膜厚度为  $55 \text{ nm}$  时，太赫兹辐射信号的极性在翻转样品后保持不变，而在反转激发方向后发生了反转。该现象存在于  $45\sim 90 \text{ nm}$  厚度的样品中。实验结果表明，太赫兹辐射特性在激光空间反演操作下呈现出 ANE 的对称性特征。通过 Fe( $4 \text{ nm}$ )和 Fe( $5 \text{ nm}$ )的太赫兹极性、直流反常能斯特信号正负以及直流反常霍尔信号正负的对比，发现 Fe( $4 \text{ nm}$ )和 Fe( $5 \text{ nm}$ )薄膜的太赫兹发射信号极性相反，反常能斯特信号也相反(但反常霍尔信号同号)，太赫兹极性与反常能斯特信号正负相对应，说明反常霍尔效应的贡献较小，太赫兹发射信号仍由反常能斯特效应占主导。基于翻转样品、激光空间反演的对称性操作，建立了太赫兹辐射对称性分析方法，用以区分不同厚度样品的 UDM 和 ANE 机理各自对太赫兹产生的贡献，如图 4(b)所示。此外，ZHANG 等<sup>[52]</sup>通过对比有无  $\text{SiO}_2$  缓冲层对太赫兹辐射特性的影响，从另一个角度说明了 ANE 效应的太赫兹辐射。值得一提的是，FENG 等的实验是在飞秒振荡器上进行，飞秒激光激发功率约为  $0.07 \text{ mJ/cm}^2$ ，他们观察到 Fe( $4 \text{ nm}$ )和 Fe( $5 \text{ nm}$ )的太赫兹极性相反，与反常能斯特信号相对应；但 LAN 等在飞秒激光放大器出射的大功率飞秒激光激发下(功率密度  $0.8 \text{ mJ/cm}^2$ )，却发现 Fe( $4 \text{ nm}$ )和 Fe( $5 \text{ nm}$ )的太赫兹同号，与反常霍尔信号相对应，说明在大功率密度下反常霍尔效应机理占主导。

#### 4 结论

本文主要总结了近年来单层铁磁层的太赫兹产生机理、太赫兹辐射信号的极性与激发构型之间的关系。通过改变磁场方向、入射激光方向和样品入射方向可以有效区分超快退磁、反常霍尔效应和反常能斯特效应对太赫兹辐射特性的贡献，为太赫兹自旋光电子学领域提供了新视角和新方法。值得注意的是，不同激发光强度下，单层铁磁薄膜中的超快太赫兹脉冲产生机理还需做进一步的实验和理论研究。

#### 参考文献：

- [1] TONOUCHI M. Cutting-edge terahertz technology[J]. Nature Photonics, 2007,1(2):97–105. doi:10.1038/nphoton.2007.3.
- [2] LEITENSTORFER A, MOSKALENKO A S, KAMPFRATH T, et al. The 2023 terahertz science and technology roadmap[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2023,56(22):223001. doi:10.1088/1361-6463/ache4c.
- [3] DHILLON S S, VITIELLO M S, LINFIELD E H, et al. The 2017 terahertz science and technology roadmap[J]. Journal of Physics D: Applied Physics, 2017,50(4):043001. doi:10.1088/1361-6463/50/4/043001.
- [4] YANG Surui, CHENG Liang, QI Jingbo. Terahertz emission in quantum materials[J]. Ultrafast Science, 2023(3): 47. doi:10.34133/ultrafastscience.0047.
- [5] CHEN Sichao, FENG Zheng, LI Jiang, et al. Ghost spintronic THz-emitter-array microscope[J]. Light-Science & Applications, 2020(9):99. doi:10.1038/s41377-020-0338-4.
- [6] YAMAGUCHI S, FUKUSHI Y, KUBOTA O, et al. Brain tumor imaging of rat fresh tissue using terahertz spectroscopy[J]. Scientific Reports, 2016(6):30124. doi:10.1038/srep30124.
- [7] KUMAR A, GUPTA M, PITCHAPPA P, et al. Terahertz topological photonic integrated circuits for 6G and beyond: a perspective[J]. Journal of Applied Physics, 2022,132(14):140901. doi:10.1063/5.0099423.
- [8] WALOWSKI J, MÜNZENBERG M. Perspective: ultrafast magnetism and THz spintronics[J]. Journal of Applied Physics, 2016, 120(14):4958846. doi:10.1063/1.4958846.
- [9] HWANG H Y, FLEISCHER S, BRANDT N C, et al. A review of non-linear terahertz spectroscopy with ultrashort tabletop-laser pulses[J]. Journal of Modern Optics, 2015(62):1447–1479. doi:10.1080/09500340.2014.918200.
- [10] KUMAR S, SINGH A, NIVEDAN A, et al. Sub-bandgap activated charges transfer in a graphene-MoS<sub>2</sub>-graphene heterostructure[J]. Nano Select, 2021,2(10):2019–2028. doi:10.1002/nano.202000159.
- [11] KUMAR S, SINGH A, KUMAR S, et al. Enhancement in optically induced ultrafast THz response of MoSe<sub>2</sub>-MoS<sub>2</sub> heterobilayer[J]. Optics Express, 2021,29(3):4181–4190. doi:10.1364/OE.412548.
- [12] TAKAZATO A, KAMAKURA M, MATSUI T. Terahertz wave emission and detection using photoconductive antennas made on low-temperature-grown InGaAs with  $1.56 \mu\text{m}$  pulse excitation[J]. Applied Physics Letters, 2007,91(1):011102. doi:10.1063/1.2754370.
- [13] SHEN Y C, UPADHYA P C, LINFIELD E H, et al. Ultrabroadband terahertz radiation from low-temperature-grown GaAs photoconductive emitters[J]. Applied Physics Letters, 2003,83(15):3117–3119. doi:10.1063/1.1619223.

- [14] BURFORD N M, EL-SHENAWEE M O. Review of terahertz photoconductive antenna technology[J]. *Optical Engineering*, 2017, 56(1):010901. doi:10.1117/1.OE.56.1.010901/.
- [15] NAHATA A, WELING A S, HEINZ T F. A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling[J]. *Applied Physics Letters*, 1996, 69(16):2321–2323. doi:10.1063/1.117511.
- [16] AOKI K, SAVOLAINEN J, HAVENITH M. Broadband terahertz pulse generation by optical rectification in GaP crystals[J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 110(20):4983371. doi:10.1063/1.4983371.
- [17] SHALABY M, HAURI C P. Demonstration of a low-frequency three-dimensional terahertz bullet with extreme brightness[J]. *Nature Communications*, 2015(6):5976. doi:10.1038/ncomms6976.
- [18] HIRORI H, DOI A, BLANCHARD F, et al. Single-cycle terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 mV/cm generated by optical rectification in LiNbO<sub>3</sub>[J]. *Applied Physics Letters*, 2011, 98(9):3560062. doi:10.1063/1.3560062.
- [19] VICARIO C, JAZBINSEK M, OVCHINNIKOV A V, et al. High efficiency THz generation in DSTMS, DAST and OH1 pumped by Cr:forsterite laser[J]. *Optics Express*, 2015, 23(4):4573–4580. doi:10.1364/OE.23.004573.
- [20] ROSKOS H G, THOMSON M D, KREß M, et al. Broadband THz emission from gas plasmas induced by femtosecond optical pulses: from fundamentals to applications[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2007, 1(4):349–368. doi:10.1002/lpor.200710025.
- [21] BARTEL T P, GAAL P, REIMANN K, et al. Generation of single-cycle THz transients with high electric-field amplitudes[J]. *Optics Letters*, 2005, 30(20):2805–2807. doi:10.1364/ol.30.002805.
- [22] YU Zhiqiang, SUN Lu, ZHANG Nan, et al. Anti-correlated plasma and THz pulse generation during two-color laser filamentation in air[J]. *Ultrafast Science*, 2022, (6):9853053. doi:10.34133/2022/9853053.
- [23] ZHANG Zhelin, ZHANG Jiayang, CHEN Yanping, et al. Bessel terahertz pulses from superluminal laser plasma filaments[J]. *Ultrafast Science*, 2022(1):9870325. doi:10.34133/2022/9870325.
- [24] KAMPFRATH T, BATTIATO M, MALDONADO P, et al. Terahertz spin current pulses controlled by magnetic heterostructures[J]. *Nature Nanotechnology*, 2013, 8(4):256–260. doi:10.1038/nnano.2013.43.
- [25] SEIFERT T, JAISWAL S, MARTENS U, et al. Efficient metallic spintronic emitters of ultrabroadband terahertz radiation[J]. *Nature Photonics*, 2016, 10(7):483–488. doi:10.1038/nphoton.2016.91.
- [26] HUANG Lin, LEE S H, KIM S D, et al. Universal field-tunable terahertz emission by ultrafast photoinduced demagnetization in Fe, Ni, and Co ferromagnetic films[J]. *Scientific Reports*, 2020, 10(1):15843. doi:10.1038/s41598-020-72855-1.
- [27] 冯正, 谭为, 成彬彬, 等. 基于自旋电子学的太赫兹波产生方法[J]. *太赫兹科学与电子信息学报*, 2016, 14(4):502–507. (FENG Zheng, TAN Wei, CHENG Binbin, et al. THz wave generation methods based on spintronics[J]. *Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology*, 2016, 14(4):502–507.) doi:10.11805/TKYDA201604.0502.
- [28] SEIFERT T, JAISWAL S, SAJADI M, et al. Ultrabroadband single-cycle terahertz pulses with peak fields of 300 kV cm<sup>-1</sup> from a metallic spintronic emitter[J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 110(25):4986755. doi:10.1063/1.4986755.
- [29] TOROSYAN G, KELLER S, SCHEUER L, et al. Optimized spintronic terahertz emitters based on epitaxial grown Fe/Pt layer structures[J]. *Scientific Reports*, 2018, 8(1):1311. doi:10.1038/s41598-018-19432-9.
- [30] WU Yang, ELYASI M, QIU Xuepeng, et al. High-performance THz emitters based on ferromagnetic/nonmagnetic heterostructures[J]. *Advanced Materials*, 2017, 29(4):1603031. doi:10.1002/adma.201603031.
- [31] YANG Dewang, LIANG Jianhui, ZHOU Chao, et al. Powerful and tunable THz emitters based on the Fe/Pt magnetic heterostructure[J]. *Advanced Optical Materials*, 2016, 4(12):1944–1949. doi:10.1002/adom.201600270.
- [32] 陈亚玄, 孔茹茹, 李昭颖, 等. 基于 CMOS 有源超材料的生物分子的自旋太赫兹传感[J]. *太赫兹科学与电子信息学报*, 2024, 22(2):160–167. (CHEN Yaxuan, KONG Ruru, LI Zhaoying, et al. Spintronic terahertz sensing of biological molecules based on CMOS controllable metamaterials[J]. *Journal of Terahertz Science and Electronic Information Technology*, 2024, 22(2):160–167.) doi:10.11805/TKYDA2022249.
- [33] BEAUREPAIRE E, MERLE J C, DAUNOIS A, et al. Ultrafast spin dynamics in ferromagnetic nickel[J]. *Physical Review Letters*, 1996, 76(22):4250–4253. doi:10.1103/PhysRevLett.76.4250.
- [34] BEAUREPAIRE E, TURNER G M, HARREL S M, et al. Coherent terahertz emission from ferromagnetic films excited by femtosecond laser pulses[J]. *Applied Physics Letters*, 2004, 84(18):3465–3467. doi:10.1063/1.1737467.
- [35] ZHOU C, LIU Y P, WANG Z, et al. Broadband terahertz generation via the interface inverse Rashba–Edelstein effect[J]. *Physical Review Letters*, 2018, 121(8):086801. doi:10.1103/PhysRevLett.121.086801.
- [36] JUNGFLEISCH M B, ZHANG Qi, ZHANG Wei, et al. Control of terahertz emission by ultrafast spin-charge current conversion at Rashba interfaces[J]. *Physical Review Letters*, 2018, 120(20):207207. doi:10.1103/PhysRevLett.120.207207.
- [37] KHOLID F N, HAMARA D, HAMDAN A F B, et al. The importance of the interface for picosecond spin pumping in

- antiferromagnet-heavy metal heterostructures[J]. *Nature Communications*, 2023,14(1):538. doi:10.1038/s41467-023-36166-z.
- [38] CONG Kankan, VETTER E, YAN Liang, et al. Coherent control of asymmetric spintronic terahertz emission from two-dimensional hybrid metal halides[J]. *Nature Communications*, 2021,12(1):5744. doi:10.1038/s41467-021-26011-6.
- [39] WANG Yangkai, LI Weiwei, CHENG Hao, et al. Enhancement of spintronic terahertz emission enabled by increasing Hall angle and interfacial skew scattering[J]. *Communications Physics*, 2023,6(1):280. doi:10.1038/s42005-023-01402-x.
- [40] XU Yong, ZHANG Fan, FERT A, et al. Orbitronics: light-induced orbital currents in Ni studied by terahertz emission experiments[J]. *Nature Communications*, 2024,15(1):2043. doi:10.1038/s41467-024-46405-6.
- [41] KUMAR S, KUMAR S. Ultrafast THz probing of nonlocal orbital current in transverse multilayer metallic heterostructures[J]. *Nature Communications*, 2023,14(1):8185. doi:10.1038/s41467-023-43956-y.
- [42] SEIFERT T S, GO D, HAYASHI H, et al. Publisher correction: time-domain observation of ballistic orbital-angular-momentum currents with giant relaxation length in tungsten[J]. *Nature Nanotechnology*, 2023,18(10):1254. doi:10.1038/s41565-023-01504-1.
- [43] ZHANG Shunnong, JIN Zuanming, ZHU Zhendong, et al. Bursts of efficient terahertz radiation with saturation effect from metal-based ferromagnetic heterostructures[J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2018,51(3):034001. doi:10.1088/1361-6463/aa9e43.
- [44] JIN Zuanming, ZHANG Shunnong, ZHU Weihua, et al. Terahertz radiation modulated by confinement of picosecond current based on patterned ferromagnetic heterostructures[J]. *Physica Status Solidi (RRL)—Rapid Research Letters*, 2019,13(9):1900057. doi:10.1002/pssr.201900057.
- [45] NI Yangyang, JIN Zuanming, SONG Bangju, et al. Temperature-dependent terahertz emission from Co/Mn<sub>2</sub>Au spintronic bilayers[J]. *Physica Status Solidi (RRL)—Rapid Research Letters*, 2021,15(10):2100290. doi:10.1002/pssr.202100290.
- [46] JIN Zuanming, PENG Yan, NI Yangyang, et al. Cascaded amplification and manipulation of terahertz emission by flexible spintronic heterostructures[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2022,16(9):2100688. doi:10.1002/lpor.202100688.
- [47] JIN Zuanming, GUO Yingyu, PENG Yan, et al. Terahertz spectral signatures of ultrafast spin transports in ferromagnetic Heusler alloy[J]. *Advanced Physics Research*, 2023,2(2):2200049. doi:10.1002/apxr.202200049.
- [48] ZHANG Qi, LUO Ziyang, LI Hong, et al. Terahertz emission from Anomalous Hall Effect in a single-layer ferromagnet[J]. *Physical Review Applied*, 2019,12(5):054027. doi:10.1103/PhysRevApplied.12.054027.
- [49] LIU Yongshan, CHENG Houyi, XU Yong, et al. Separation of emission mechanisms in spintronic terahertz emitters[J]. *Physical Review B*, 2021,104(6):064419. doi:10.1103/PhysRevB.104.064419.
- [50] LAN Zhiqiang, LI Zhangshun, XU Haoran, et al. Unveiling of terahertz emission from ultrafast demagnetization and Anomalous Hall Effect in a single ferromagnetic film[J]. *Chinese Physics Letters*, 2024,41(4):044203. doi:10.1088/0256-307X/41/4/044203.
- [51] FENG Zheng, TAN Wei, JIN Zuanming, et al. Anomalous Nernst Effect induced terahertz emission in a single ferromagnetic film[J]. *Nano Letters*, 2023,23(17):8171-8179. doi:10.1021/acs.nanolett.3c02320.
- [52] ZHANG Hui, FENG Zheng, LI Guansong, et al. Tuning terahertz emission generated by Anomalous Nernst Effect in ferromagnetic metal[J]. *Applied Physics Reviews*, 2023,10(2):021417. doi:10.1063/5.0139197.
- [53] MOTTAMCHETTY V, RANI P, BRUCAS R, et al. Direct evidence of terahertz emission arising from Anomalous Hall Effect[J]. *Scientific Reports*, 2023,13(1):5988. doi:10.1038/s41598-023-33143-w.
- [54] CHARLOTTE B, SIMMONE M H, RUIDONG J, et al. Spintronic terahertz emitters: status and prospects from a materials perspective[J]. *APL Materials*, 2021,9(9):090701. doi:10.1063/5.0057511.
- [55] LU Wentian, YUAN Zhe. Progress in ultrafast spintronics research[J]. *SCIENTIA SINICA—Physica, Mechanica & Astronomica*, 2022,52(7):270007. doi:10.1360/SSPMA-2021-0350.
- [56] PAPAIOANNOU T E, BEIGANG R. THz spintronic emitters: a review on achievements and future challenges[J]. *Nanophotonics*, 2020(10):1243-1257. doi:10.1515/nanoph-2020-0563.
- [57] ZHENG Feng, QIU Hongsong, WANG Dacheng, et al. Spintronic terahertz emitter[J]. *Journal of Applied Physics*, 2021,129(1):010901. doi:10.1063/5.0037937.
- [58] KUMAR S, KUMAR S. Ultrafast terahertz spin and orbital transport in magnetic/nonmagnetic multilayer heterostructures and a perspective[J]. *Journal of Applied Physics*, 2023,134(17):170901. doi:10.1063/5.0173977.
- [59] FENG Zheng, WANG Dacheng, SUN Song, et al. Spintronic terahertz emitter: performance, manipulation, and applications[J]. *Acta Physica Sinica*, 2020,69(20):208705. doi:10.7498/aps.69.20200757.
- [60] WANG Maorong, ZHANG Yifan, GUO Leilei, et al. Spintronics based terahertz sources[J]. *Crystals*, 2022,12(11):1661. doi:10.3390/cryst12111661.

- [61] ROUZEGAR R, BRANDT L, NADVORNIK L, et al. Laser-induced terahertz spin transport in magnetic nanostructures arises from the same force as ultrafast demagnetization[J]. *Physical Review B*, 2022, 106(14): 144427. doi: 10.1103/PhysRevB.106.144427.
- [62] ZHANG Shunnong, JIN Zuanming, LIU Xiumei, et al. Photoinduced terahertz radiation and negative conductivity dynamics in Heusler alloy  $\text{Co}_2\text{MnSn}$  film[J]. *Optics Letters*, 2017, 42(16): 3080–3083. doi: 10.1364/OL.42.003080.
- [63] ZHANG Wentao, MALDONADO P, JIN Zuanming, et al. Ultrafast terahertz magnetometry[J]. *Nature Communications*, 2020, 11(1): 4247. doi: 10.1038/s41467-020-17935-6.

#### 作者简介:

洪晖祥(1999–), 男, 在读硕士研究生, 主要研究方向为太赫兹自旋电子学. email: honghx815@163.com.

吴少晖(1974–), 男, 硕士, 研发总监, 主要研究方向为自旋电子学.

张慧萍(1987–), 女, 硕士, 实验员, 主要研究方向为光学检测技术.

金钻明(1986–), 男, 博士, 教授, 博士生导师, 主要研究方向为超快激光时域光谱和先进太赫兹光谱、基于超快电子自旋的太赫兹辐射源和调控器件研究.

许 涌(1985–), 男, 博士, 副教授, 博士生导师, 主要研究方向为自旋电子学.

彭 滢(1982–), 女, 博士, 教授, 博士生导师, 主要研究方向为太赫兹波的超快产生和调控研究、太赫兹波在生物医学方面的应用.

(上接第 812 页)

- [20] ZHANG Qi, LUO Ziyang, LI Hong, et al. Terahertz emission from anomalous Hall effect in a single-layer ferromagnet[J]. *Physical Review Applied*, 2019, 12(5): 054027. doi: 10.1103/PhysRevApplied.12.054027.
- [21] COSTA J D, HUISMAN T J, MIKHAYLOVSKIY R V, et al. Terahertz dynamics of spins and charges in  $\text{CoFe}/\text{Al}_2\text{O}_3$  multilayers[J]. *Physical Review B*, 2015, 91(10): 104407. doi: 10.1103/PhysRevB.91.104407.
- [22] ZHANG Shunnong, JIN Zuanming, LIU Xiumei, et al. Photoinduced terahertz radiation and negative conductivity dynamics in Heusler alloy  $\text{Co}_2\text{MnSn}$  film[J]. *Optics Letters*, 2017, 42(16): 3080–3083. doi: 10.1364/OL.42.003080.
- [23] LAN Zhiqing, LI Zhangshun, XU Haoran, et al. Unveiling of terahertz emission from ultrafast demagnetization and the anomalous Hall effect in a single ferromagnetic film[J]. *Chinese Physics Letters*, 2024, 41(4): 044203. doi: 10.1088/0256-307X/41/4/044203.

#### 作者简介:

冯 正(1986–), 男, 博士, 副研究员, 主要研究方向为自旋电子学、太赫兹光谱及其交叉方向. email: fengzheng\_mtrc@caep.cn.

何 康(1996–), 男, 博士, 助理研究员, 主要研究方向为自旋电子学、太赫兹自旋电子学.

孙 松(1987–), 男, 博士, 副研究员, 主要研究方向为电磁学、纳米光子学及其交叉方向.

文 爽(1995–), 女, 博士, 助理研究员, 主要研究方向为有机自旋电子学、太赫兹光谱及其交叉方向.