

基于超快电子自旋动力学的太赫兹辐射研究进展

金钻明^{1,2*}, 宋邦菊¹, 李炬赓¹, 张顺浓¹, 阮舜逸¹, 戴晔¹, 阎晓娜¹, 林贤¹, 马国宏^{1,2**}, 姚建铨³

¹上海大学理学院物理系, 上海 200444;

²上海科技大学-上海光学精密机械研究所超强超快联合实验室, 上海 201210;

³天津大学精密仪器与光电子工程学院, 天津 300110

摘要 回顾了近年来利用超快自旋动力学过程产生太赫兹 (THz) 辐射的研究进展。介绍了基于逆自旋霍尔效应和逆 Rashba-Edelstein 效应的瞬态自旋流-电荷流转换, 指出铁磁/非磁性异质结构已被用于设计低成本、高效率的 THz 辐射源。通过优化膜厚、生长条件、衬底和结构, 可进一步提高基于自旋电子学的 THz 发射器的效率和带宽。简述了 THz 发射光谱在研究超快自旋泽贝克效应形成动力学中的应用。

关键词 非线性光学; 太赫兹辐射; 超快光谱; 自旋流; 逆自旋霍尔效应; 自旋泽贝克效应

中图分类号 O433.4

文献标识码 A

doi: 10.3788/CJL201946.0508005

Research Progress of Terahertz Radiation Based on Ultrafast Electron Spin Dynamics

Jin Zuanming^{1,2*}, Song Bangju¹, Li Jugeng¹, Zhang Shunnong¹, Ruan Shunyi¹,
Dai Ye¹, Yan Xiaona¹, Lin Xian¹, Ma Guohong^{1,2**}, Yao Jianquan³

¹Department of Physics, College of Sciences, Shanghai University, Shanghai 200444, China;

²ShanghaiTech University & SIOM Joint Laboratory for Superintense Lasers and Applications, Shanghai 201210, China;

³School of Precision Instruments and Opto-Electronics Engineering, Tianjin University, Tianjin 300110, China

Abstract Recent research progress of terahertz (THz) radiation generation based on the ultrafast spin dynamics is reviewed. The transient spin-charge conversion based on the inverse spin Hall effect and the Rashba-Edelstein effect is introduced, and it is pointed out that the ferromagnetic/non-magnetic heterostructure has been used to design a low-cost and high-efficiency THz radiation source. The efficiency and bandwidth of a spintronics-based THz emitter can be improved by optimizing layer thickness, growth conditions, substrates, and construction. The applications of the THz emission spectrum are outlined in the study of the ultrafast formation dynamics of the spin Seebeck effect.

Key words nonlinear optics; terahertz radiation; ultrafast spectroscopy; spin current; inverse spin-Hall effect; spin Seebeck effect

OCIS codes 300.6495; 320.7120; 310.4165; 160.3820

1 引 言

利用超短激光脉冲可以在超快时间尺度(与光脉冲宽度相当的尺度)上激发磁动力学^[1-3]。激光诱导磁动力学背后的物理机制包括磁性金属中的退磁、热诱导的自旋翻转和光磁效应等^[4]。Beaurepaire 等^[5]在 1996 年观察到激光诱导的超快退磁过程, 开

启了利用光抽运-探测光谱在飞秒时间尺度上调控磁性的研究, 并发现用一个 60 fs 的强激光脉冲可以导致镍(Ni)薄膜的磁矩在 1 ps 内湮灭。目前对磁化瞬态减小机制的解释主要有 2 种: 1) 电子自旋发生翻转, 从而使净磁矩减小; 2) 具有某一特定自旋取向的电子扩散到样品中的其他区域, 导致局域磁化减小。一般来说, 在经历飞秒退磁后, 磁化强度(M)

收稿日期: 2018-12-18; 修回日期: 2019-01-28; 录用日期: 2019-02-18

基金项目: 国家自然科学基金(11604202, 11674213, 61735010, 11774220)、上海高校青年东方学者(QD2015020)、上海市教育委员会和上海市教育发展基金会“晨光计划”(16CG45)、上海市青年科技启明星计划(18QA1401700)

* E-mail: physics_jzm@shu.edu.cn; ** E-mail: ghma@staff.shu.edu.cn

会在皮秒时间尺度上恢复,如果有外磁场的作用,磁矩会绕着等效磁场发生纳秒尺度的进动^[6-7]。2007年,Stanciu等^[8]利用飞秒激光在亚铁磁金属中超快翻转磁矩 180° ,实现了全光磁记录。这一过程伴随着交换耦合在飞秒时间尺度上的瓦解和重构。在磁矩翻转过程中,亚铁磁金属在短时间内变成了铁磁性金属^[9]。此外,按照是否吸收光子可将光磁相互作用划分为两类^[9-10]。对于光吸收比较强的磁性石榴石晶体,光激发使电荷在三价铁离子与四价铁离子之间转移,导致磁晶各向异性发生变化,从而改变了材料体系的等效磁场,使得磁矩绕新的平衡位置进动。相对而言,圆偏振光诱导的逆法拉第效应和线偏振光诱导的 Cotton-Mouton 效应则不涉及光的吸收,光诱导产生了瞬态等效磁场,从而改变磁矩的平衡位置。

近年来,金属铁磁体超快退磁动力学得到广泛研究。2004年,Beaurepaire等^[11]发现了皮秒时间尺度的太赫兹(THz)脉冲辐射;2013年,Kampfrath等^[12]利用铁磁/非磁金属异质结构实现了超宽带 THz 脉冲的强辐射,研究了自旋流在不同金属层中的转换。这种基于自旋流辐射 THz 波的新机制,引燃了人们对基于自旋的 THz 器件的研究热情。基于新物理机制和新材料的 THz 发射器和探测器的研发至关重要。本文综述了近年来国内外课题组利用 THz 脉冲发射光谱研究超快磁动力学,包括超快退磁、自旋流-电荷流转换和超快自旋霍尔效应等方面的最新成果。

2 超快退磁辐射 THz 脉冲

2004年,Beaurepaire等^[11]利用线偏振飞秒激光脉冲激发 Cr(3 nm)/Ni(4.2 nm)/Cr(7 nm)薄膜产生皮秒量级的电磁辐射,他们认为这种电磁辐射来源于磁有序介质的超快退磁。当飞秒激光脉冲与铁磁性材料相互作用时,铁磁性材料中的 d 轨道电子吸收光子能量,使电子温度升高,导致铁磁性材料的磁化强度减弱(退磁过程)。随着高温电子与晶格的相互作用,电子温度下降,材料的磁化强度随之恢复^[13-14]。磁化强度在亚皮秒时间尺度上的调制,使得磁偶极子在远场辐射 THz 波^[15-16],且 $E_{\text{THz}} \propto \partial^2 \mathbf{M} / \partial t^2$,其中 E_{THz} 为 THz 波辐射电场强度, t 为时间。图 1(a)为 Beaurepaire 等^[11]观测到的飞秒激光与铁磁性薄膜材料相互作用产生的 THz 辐射的电光取样信号。同年,Hilton 等^[17]利用飞秒激光脉冲激发 12 nm 的铁(Fe)薄膜也观测到了 THz 波辐射现象,

图 1(b)为观测到的 Fe 薄膜辐射 THz 波的时域波形信号。2012年,Shen 等^[18]报道了 Ni-Fe 合金薄膜中基于超快退磁的 THz 波辐射。2015年,Kumar 等^[19]发现利用飞秒激光脉冲激发钴(Co)薄膜也可以观察到 THz 波辐射现象。实验发现,当薄膜厚度小于 40 nm 时,磁化方向主要是面内磁化;当薄膜厚度大于 40 nm 时,面外磁化开始形成,从而解释了 Co 薄膜厚度与 THz 辐射强度之间的关系。

尽管基于铁磁性薄膜超快退磁效应辐射 THz 波这一现象已经在 Fe^[17]、Co^[19] 和 Ni^[11,15] 等薄膜中得到广泛研究,但这些材料的自旋极化度相对较低。Fe、Co、Ni 的自旋极化度分别为 0.44, 0.34, 0.45。Seifert 等^[20]发现超快退磁效应辐射 THz 波的电场强度与铁磁薄膜的自旋极化度相关,因此期望有一种自旋极化度较高的材料来提高辐射 THz 波的电场强度。哈斯勒(Heusler)合金是一种半金属铁磁材料,理论上哈斯勒合金的自旋极化度高达 100%^[21]。利用超短飞秒激光脉冲激发铁磁半金属哈斯勒合金 Co₂MnSn 薄膜,可实现宽带 THz 辐射。单晶哈斯勒合金 Co₂MnSn 薄膜由脉冲激光沉积法在氧化镁(MgO) 001 衬底上制得,衬底厚度为 0.5 mm,Co₂MnSn 厚度为 25 nm,并且上面覆盖一层 2 nm 的 MgO 作为保护层,以防止合金在空气中氧化,其自旋极化度高达 0.927。实验中使用 Ti:Sapphire 激光脉冲(中心波长为 800 nm,重复频率为 1 kHz,脉冲宽度为 120 fs)激发产生 THz 脉冲的示意图如图 1(c)所示,沿 y 轴方向的外加磁场强度为 200 mT。图 1(d)为实验得到的 Co₂MnSn 薄膜 THz 辐射的时域信号,抽运光从 Heusler 合金薄膜侧激发样品。通过研究外加磁场、样品对称性和激光功率密度对 THz 辐射的影响,证实 THz 辐射起源于磁偶极子跃迁,即光诱导亚皮秒超快退磁。从应用角度看,Co₂MnSn 薄膜辐射 THz 波的强度与标准样品 1 mm 厚碲化锌(ZnTe)晶体光整流效应辐射 THz 波相比还比较低,如图 1(d)所示。随着抽运功率密度的增加,THz 辐射的强度呈线性增大。假设 THz 辐射的电场正比于激光诱导样品磁化强度的湮灭,则 Co₂MnSn 薄膜磁化强度的改变量也正比于激发光功率密度。因此,THz 发射光谱能够被用来重构光诱导的亚皮秒磁动力学。此外,本课题组还研究了光激发 Co₂MnSn 薄膜的瞬态电导率的弛豫过程^[20],不同于半导体材料光激发后电导率的增加,光诱导半金属哈斯勒合金薄膜增加了电子的散射概率,从而降低了材料的电导率。

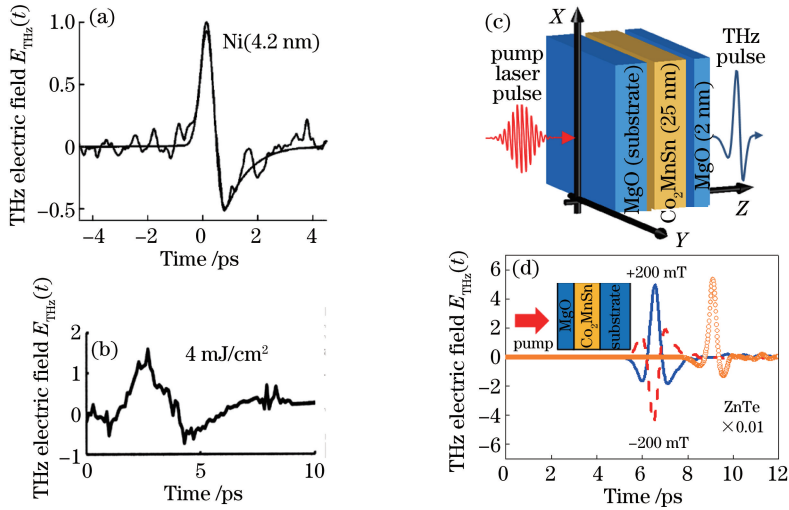


图 1 基于超快退磁效应的铁磁薄膜辐射的 THz 波。(a) Ni 薄膜^[11]和(b) Fe 薄膜辐射的 THz 波的电场强度^[17];

(c) Co₂MnSn 薄膜辐射 THz 波的示意图^[22]; (d) Co₂MnSn 薄膜辐射 THz 波的电场强度^[22]

Fig. 1 THz radiation from ferromagnetic thin film based on ultrafast demagnetization effect. Electric field intensity of THz pulse radiated from (a) Ni thin film^[11] or (b) Fe thin film^[17]; (c) schematic of THz radiation from Co₂MnSn thin film^[22]; (d) electric field intensity of THz radiation from Co₂MnSn thin film^[22]

3 自旋流-电荷流的快速转换

2013 年, Kampfrath 等^[12]通过飞秒激光脉冲(脉宽为 10 fs, 波长为 800 nm, 功率为 2.5 nJ)激发铁磁/重金属异质结构。将异质结构铁磁层中光诱导的自旋流注入非铁磁层, 基于逆自旋霍尔效应(ISHE), 皮秒尺度的自旋流转化为电荷流, 从而辐射 THz 电磁脉冲。如图 2(a)所示, 双层结构由铁磁层(Fe, 10 nm)和非铁磁层[金(Au), 2 nm]或[钌(Ru), 2 nm]组成。当一束飞秒激光脉冲将铁磁层中的电子激发到高于费米能级的能态时, 自旋向上和自旋向下电子的输运特性是不同的。如图 2(a)所示, 箭头表示电子自旋向上和自旋向下。多数载流子的迁移率要比少数载流子的高, 因此铁磁层中会产生净自旋流, 净自旋流由

铁磁层向非磁性金属覆盖层注入^[23-24]。自旋霍尔效应指的是移动的电子受到自旋轨道耦合的影响, 自旋向上和自旋向下的电子向不同的方向偏转, 从而产生自旋流。相反, ISHE 将纵向的自旋流(j_s)转化为横向的电荷流(j_c)。将自旋向上和自旋向下的电子偏转的角度定义为自旋霍尔角(γ), 如图 2(b)所示, 自旋流 j_s 、电荷流 j_c 与自旋霍尔角 γ 三者之间的关系为 $j_c = j_s \times \gamma M / |M|$ 。

图 2(c)比较了 Fe/Ru 和 Fe/Au 在正向、反向磁场下得到的 THz 发射信号。当 M 反向时, 辐射的 THz 脉冲完全翻转, 有力证明了 THz 发射与样品的磁化有着密切的联系。将 THz 辐射信号进行傅里叶变换, $E_x(\omega)$ 表示瞬态 THz 电场的傅里叶变换, 如图 2(d)所示。可以发现, Fe/Ru 的 THz 辐射

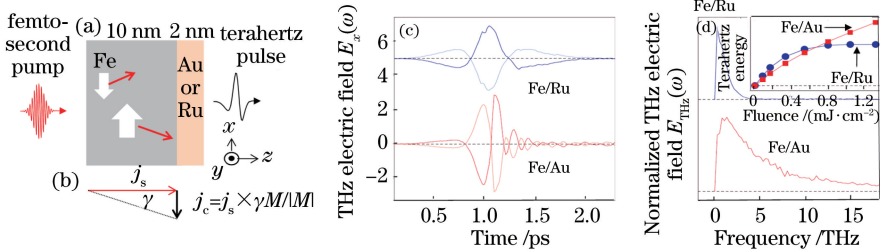


图 2 磁性异质结构的 THz 辐射^[12]。(a)磁性/非磁性金属薄膜异质结构发射 THz 波;(b) ISHE 示意图;

(c)磁化方向相反时 Fe/Ru 和 Fe/Au 的 THz 发射信号;(d) THz 辐射谱

Fig. 2 THz radiation from magnetic heterostructure^[12]. (a) THz wave emitted from ferromagnetic/non-ferromagnetic thin film heterostructure; (b) schematic of ISHE; (c) THz emission signals from Fe/Ru and Fe/Au when magnetization directions are opposite; (d) spectrum of THz radiation

范围为 0.3~4.0 THz, Fe/Au 的 THz 辐射光谱宽度接近 20 THz。图 2(d) 中插图表明, 两个样品的 THz 辐射对抽运脉冲能量的依赖关系明显不同: 在 Fe/Ru 结构中, THz 的辐射强度在激光达到 1 mJ/cm² 时趋于饱和; 而在 Fe/Au 结构中, THz 的辐射强度几乎呈线性增长。将上述现象解释为 Ru 层与 Au 层相比有显著的自旋积累效应。本课题组通过设计不同的非磁层[钯(Pd)或 Ru]和铁磁层[钴铁硼(CoFeB)或 CoFe]异质结构, 对 THz 辐射脉冲进行了优化^[25]。实验发现, CoFeB/Pd 的 THz 辐射的饱和效应小于 CoFeB/Ru。THz 辐射光谱已成为一个快速有效且非破坏性的自旋行为探测器^[26-27], 被用于定性观测异质结构的自旋积累效应。

4 ISHE 辐射 THz 波的优化与调控

2016 年, Kampfrath 课题组通过改变异质结构中磁性层和非磁层材料、样品的总厚度等对辐射的 THz 脉冲进行优化^[28]。实验结果如图 3(a) 所示, 其中 NM 为非磁层。THz 脉冲的振幅依赖于非铁磁层材料的选择, 利用铂(Pt)和 Pd 可以获得相对较大的 THz 发射强度。当选择钨(W)作为非铁磁层材料时, 所获得的 THz 发射强度与 Pd 相当, 然而 THz 脉冲的相位却翻转了 180°。自旋霍尔电导率的计算结果表明, Pd 与 W 的自旋霍尔电导率的符号与 THz 的相位相对应^[29]。实验中, THz 辐射强度随样品总厚度(铁磁层与非铁磁层的厚度大致相等)的变化而发生改变。随着样品总厚度 d 从 25 nm 开始减小, THz 辐射脉冲的振幅逐渐增大, 当 $d=4$ nm 时达到最大值, 之后迅速减小。THz 辐射电场的表达式为

$$E(\omega) = Z(\omega)e \int_0^d dz \gamma \mathbf{j}_s, \quad (1)$$

式中: z 为光诱导自旋流沿薄膜法线方向流过的距离; d 为薄膜厚度; e 为基本电荷; $Z(\omega)$ 为阻抗。根据广义的欧姆定律, 辐射的 THz 等于电荷流 $e \int dz \gamma \mathbf{j}_s$ 乘以阻抗 $Z(\omega)$ 。(1)式量化了电荷流转变为电磁辐射的效率, 可将 $1/Z(\omega)$ 理解为所有金属层与邻近的衬底以及空气并联的有效电导。根据(1)式, 在给定的激光功率密度下, 可以通过优化 $Z(\omega)$ 、 γ 和 \mathbf{j}_s 使 THz 的输出最大化。

2018 年, Torosyan 等^[30]利用生长在 MgO 和蓝宝石上的 Fe/Pt 双层膜, 基于 ISHE, 研究了飞秒激光诱导产生的宽带 THz 脉冲辐射, 从层厚、生长参

数、衬底和几何构置等方面对 THz 辐射进行了优化, 系统地研究了在 0.5 mm 厚的 MgO 衬底上外延生长的 Fe/Pt 的 THz 辐射振幅分别与 Pt 和 Fe 层厚度的依赖关系, 如图 3(b)、(c) 所示。如图 3(b) 所示, 实验设计了 Fe(12 nm)/Pt(x nm) 结构, 保持 Fe 层厚度为 12 nm, Pt 层厚度从 0.25 nm 增加到 12 nm。实验结果表明, 产生 THz 振幅最大时的最佳 Pt 层厚度范围为 2~3 nm。以优化后的 Pt 层厚度来确定最佳的 Fe 层厚度。实验设计了 Fe(x nm)/Pt(3 nm) 结构, Pt 层厚度固定在 3 nm, Fe 层厚度从 1 nm 增加到 12 nm, 如图 3(c) 所示。随着铁层厚度的减小, THz 发射强度逐渐增大。然而, 对于厚度小于 2 nm 的 Fe 层, THz 振幅明显快速降低。该降低过程归因于 Fe 层磁性的逐渐减小, Fe 层的临界厚度 $d_0=0.9$ nm, 得到的最强 THz 发射的最佳异质结构是 Fe(2 nm)/Pt(3 nm)。Fe 和 Pt 层厚度依赖的 THz 发射强度可描述为

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

式中: P_{abs} 为发射器吸收激光的比例; n_{air} 、 n_{MgO} 、 Z_0 分别为空气的折射率、THz 频率下 MgO 的折射率以及真空阻抗; σ_{Fe} 和 σ_{Pt} 分别为 Fe 和 Pt 的电导率; d_{Fe} 和 d_{Pt} 分别为 Fe 和 Pt 的厚度; λ_{pol} 为 Fe 层的厚度超过临界厚度 d_0 时的自旋极化饱和和特征常数; s_{THz} 为两个金属中有效 THz 衰减系数的倒数。这一模型很好地解释了在特定 Fe 层厚度以上 THz 辐射开始产生、在相对小的 Fe 层厚度 THz 辐射达到最大值的实验结果。(2)式中第 1 项为金属层对飞秒激光的吸收, 第 2 项为自旋流的产生以及从 Fe 向 Pt 的扩散。考虑到 Fe 层厚度小于一个特定值时磁性消失, 这里引入了临界厚度。第 3 项和第 4 项为双曲正切函数除以总的阻抗, 表示在 Pt 中的自旋积累依赖于自旋流在 Pt 中有限的扩散长度 λ_{Pt} 。第 5 项是 THz 辐射在金属层中传播时的衰减, 如图 3(b)、(c) 所示, 实线为(2)式的拟合曲线。

在研究 THz 辐射振幅与金属层厚度 d 的依赖关系时, 还需要考虑一个显著的光学效应, 即金属薄膜内的法布里-珀罗谐振腔效应, 如图 4(a) 所示, 该效应将加强抽运激光和 THz 辐射波。当腔长远小于实验所涉及的波长时, 腔内的反射回波将相干相

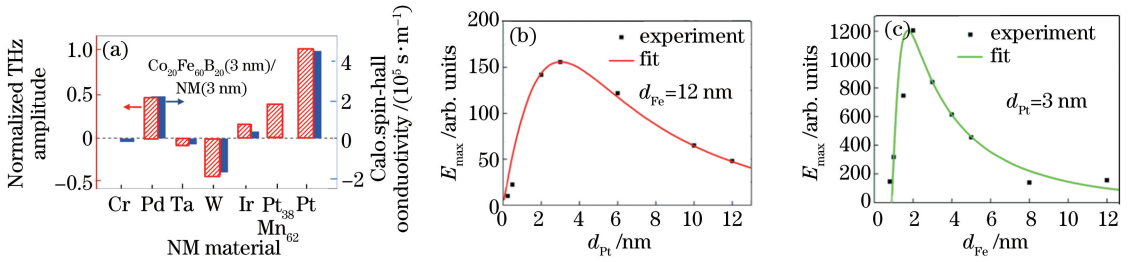


图 3 THz 发射信号强度的影响因素。(a) $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}/\text{NM}$ 辐射 THz 信号的振幅、自旋霍尔电导率与非磁性层材料间的关系^[28]；(b) Fe 层厚度为 12 nm 时, THz 振幅最大值与 Pt 层厚度间的关系^[30]；(c) Pt 层厚度为 3 nm 时, THz 振幅最大值与 Fe 层厚度间的关系^[30]

Fig. 3 Factors influencing signal intensity of THz emission. (a) Amplitude of THz signal radiated from $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}/\text{NM}$ and spin Hall conductivity of $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}/\text{NM}$ versus NM material^[28]；(b) maximum THz amplitude versus thickness of Pt layer when thickness of Fe layer is 12 nm^[30]；(c) maximum THz amplitude versus thickness of Fe layer when thickness of Pt layer is 3 nm^[30]

长。随着腔长逐渐缩短,在光波衰减之前将出现更多的回波,从而增强 THz 辐射。然而,在腔的临界厚度 d_c 以下,腔表面的反射损耗远超过金属块体的吸收。当 $d < d_c$ 时,抽运光和 THz 电场的增强将饱和,不再对发射器体积的缩小进行补偿。因此,得到的 THz 辐射振幅随着 d 的减小先增大,当达到最大值后迅速减小,这与实验观察到的结果一致。

优化铁磁/非磁金属双层膜 THz 发射源后, Kampfrath 课题组利用背向传输的自旋流设计并制备了三层膜 THz 发射结构^[28], 即 $\text{W}/\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}/\text{Pt}$, 如图 4(b) 所示。由图 3(a) 可知, W 和 Pt 的自旋霍尔角相对较大, 且符号相反, 产生相位相反的 THz 信号。相反传播的自旋流在 W 和 Pt 层中将产生相同方向的电荷流, 产生的 THz 相位相同, 这将有效增大 THz 辐射信号的振幅。实验发现, $\text{W}(2\text{ nm})/\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}(1.8\text{ nm})/\text{Pt}(2\text{ nm})$ (总厚度为 5.8 nm) 三层膜结构所辐射 THz 信号的振幅比最优的 CoFeB/Pt 双层结构大 40% (三层膜结构的厚度比双层膜结构大 50%)。从图中也可看出, 通过背向传输自旋流产生的 THz 辐射能够弥补金属厚度对 THz 辐射的吸收。如图 4(c) 所示, 将基于自旋电子学的三层膜 THz 发射器与光整流、光电导开关这两种传统的 THz 发射源进行对比研究。在相同的实验条件下, 所有发射源的 THz 信号振幅随抽运激光功率密度的增大呈线性增大。对于 1 mm 的 $\text{ZnTe}(110)$ 晶体和 0.25 mm 的 $\text{GaP}(110)$ 晶体, THz 电光信号由快、慢两部分振荡信号组成, 分别对应低于和高于晶体的声子能带^[31-32]。损耗区的 THz 强吸收, 导致了 ZnTe 的 THz 振幅谱上的带隙处于 3~10 THz, 而 GaP 的 THz 振幅

谱上的带隙处于 7~13 THz 范围内^[33]。相比之下, 5.8 nm 厚的 $\text{W}/\text{CoFeB}/\text{Pt}$ 三层膜所产生的 THz 信号覆盖了 2.5~14 THz 范围。此外, 如图 4(c) 所示, 光电导天线和自旋电子学 THz 发射器在时域上的 THz 信号振幅大小相近, 更重要的是, 它们的性能在频谱上是互补的。当激光振荡器处于相同的光激发条件时, 自旋电子学 THz 发射器在带宽、振幅、灵活性和成本方面均可与目前广泛应用的 $\text{ZnTe}(110)$ 晶体相媲美。

基于自旋电子学 THz 光源可以开展超宽带 THz 光谱学研究。图 4(d) 所示为 7.5 μm 厚的聚四氟乙烯胶带的 THz 透射谱(振幅和相位), 发现 6, 15, 18 THz 处存在聚四氟乙烯的共振吸收, 这与先前通过空气等离子体产生的 THz 发射光谱相一致^[34]。空气等离子体产生 THz 所需的激光脉冲能量比自旋电子学 THz 发射所用的振荡器激光脉冲高 5 个数量级。自旋电子学 THz 发射源的带宽和无能隙的 THz 谱, 是其他固态 THz 发射器都无法得到的。

2017 年, Kampfrath 课题组利用飞秒激光脉冲(能量为 5.5 mJ, 脉宽为 40 fs, 波长为 800 nm) 激发大尺寸玻璃衬底(直径为 7.5 cm, 厚度为 500 μm) 上三层膜结构 $\text{W}(1.8\text{ nm})/\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}(2\text{ nm})/\text{Pt}(1.8\text{ nm})$ ^[35], 在整个发射器区域, 两个标有 N 和 S 的条形磁铁提供了 10 mT 的磁场, 如图 4(e) 所示, 图中用一个 2 欧元的硬币作为比例参考。实验得到 THz 脉冲的脉宽为 230 fs, 电场峰值达到 300 $\text{kV}\cdot\text{cm}^{-1}$, 能量为 5 nJ。无能隙的频谱覆盖 1~10 THz, 可以在这个频段内的亚皮秒时间尺度上对物质进行非线性操控。用图 4(e) 所示的高强度自

旋电子学 THz 发射器产生 THz 抽运脉冲,诱导经过金刚石的近红外探测脉冲产生瞬态椭圆率。如图 4(f)所示,THz 脉冲所诱导的瞬态椭圆率与 THz 电场的平方类似,样品的响应属于 $\chi^{(3)}$ 型非线性光学效应。为了更好地说明这一现象,Sajadi 等^[36]考虑抽运与探测光束之间的速度失配,模拟了克尔型

抽运-探测信号,发现其与实验测量的数据吻合。实验与理论模型之间微小的差异可能是由测量中紧聚焦的 THz 电场导致的棱镜效应和金刚石在 THz 波段的折射率色散^[37]导致的。观察到的 THz 克尔效应表明,自旋电子学 THz 发射源可以作为 THz 的强场光源。

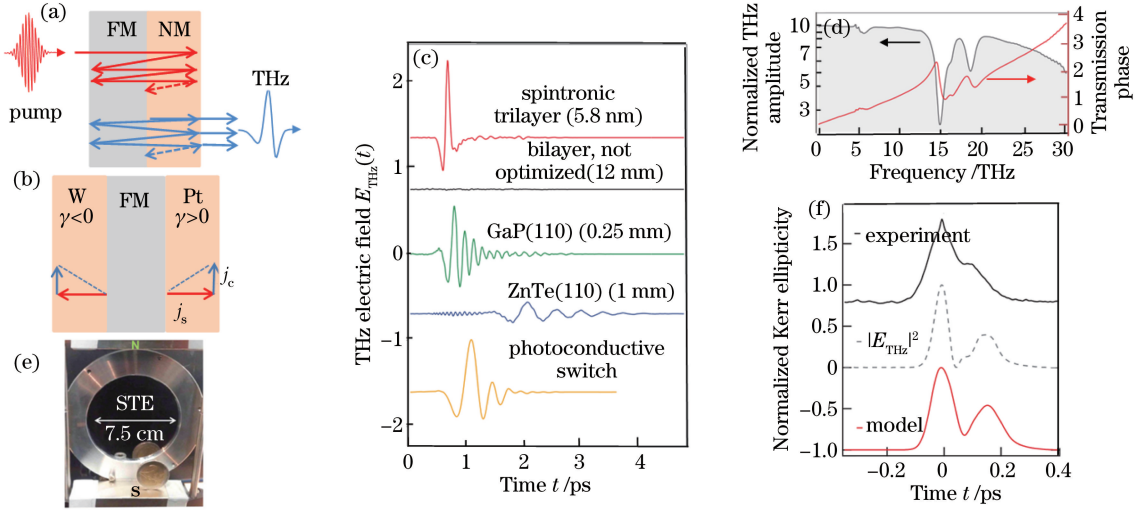


图 4 飞秒激光在金属异质结构中产生强 THz 波。(a) 薄膜法布里-珀罗谐振腔的原理图^[28];(b) 三层膜 THz 发射原理图^[28];(c) 三层膜 THz 发射器与光电导开关、ZnTe 和 GaP 所产生的 THz 信号^[28];(d) 聚四氟乙烯(PTFE)的 THz 透射谱的振幅和相位^[28];(e) 大尺寸自旋电子学 THz 发射器照片^[35];(f) 金刚石的 THz 克尔效应^[35]

Fig. 4 Strong THz wave generated from metallic heterostructure by femtosecond laser. (a) Schematic of thin-film Fabry-Pérot cavity^[28]; (b) schematic of THz emission from tri-layered film^[28]; (c) THz signal generated by tri-layered film THz emitter, photoconductive switch, ZnTe and GaP^[28]; (d) amplitude and phase spectra of polytetrafluoroethylene (PTFE)^[28]; (e) photograph of large spintronic THz emitter^[35]; (f) THz Kerr effect of diamond^[35]

2017 年,Wu 等^[38]在柔性衬底上制作了性能优异的 THz 发射器。Pt/Co 双层结构制备于聚对苯二甲酸乙二醇酯(PET)柔性衬底上,在 4 种弯曲曲率下用 THz 时域光谱仪(TDS)测得 THz 发射信号。在弯曲曲率较大的情况下,器件性能并没有进一步恶化。在柔性衬底上,THz 发射器件的高性能与机械稳定性为未来实现可穿戴设备提供了可能。

近年来,作为 THz 源的铁磁/非铁磁异质结构得到了广泛的研究,THz 发射光谱也在揭示 THz 频率范围内的自旋动力学方面发挥了重要的作用^[39-42]。除了铁磁材料,其他有趣的磁有序材料(如亚铁磁和反铁磁材料)的超快动力学在 THz 范围内也吸引了科研人员的研究兴趣。Chen 等^[41]研究了亚铁磁(FIM)CoGd 合金和反铁磁 IrMn 组成的异质结构的 THz 发射,详细研究了 CoGd/Pt 异质结构的组分和温度依赖的 THz 辐射,发现 THz 辐射取决于激光诱导自旋流的净自旋极化,而不是材料的净磁矩。实验中施加一个约 1000 Oe(1 Oe \approx

79.578 A/m)的外磁场,用波长为 800 nm、能量为 220 μ J 的线偏振抽运激光脉冲激发样品。在玻璃衬底上沉积一层 7 nm 厚的 $\text{Co}_{1-x}\text{Gd}_x$ 亚铁磁层(Gd 的原子数分数 $x=0\sim 50\%$)。非金属层为 6 nm 的 Pt,表面覆盖了 3 nm 的 SiO_2 保护层。利用振动样品磁强计测量样品的饱和磁化强度 M_s ,可见样品的补偿点满足 $x \approx 26\%$ 。当 $x < 26\%$ 时,合金中 Co 的含量占支配地位,此时 Co 晶格的磁矩与外磁场平行,而 Gd 的磁矩与外磁场反平行;当 $x > 26\%$ 时,合金中 Gd 的含量占支配地位,Co 晶格的磁矩与外磁场反平行,而 Gd 的磁矩与外磁场平行。THz 信号的强度随着 Gd 含量的增大而减小,然而饱和磁化强度 M_s 随 Gd 含量的增大先减小,当 $x > 26\%$ 时, M_s 随 Gd 含量的增大而增大。当 $x = 26\%$, M_s 接近于零。然而,THz 信号在 $x = 26\%$ 处发生了符号反向,但 THz 脉冲并没有消失。实验结果表明,样品的净磁化似乎与 THz 辐射信号没有很强的关联性。此外,在反铁磁的 $\text{Ir}_{25}\text{Mn}_{75}/\text{Pt}$ 双层膜中并

没有发现激光诱导的自旋流,因而没有测到 THz 辐射。然而,在净磁化为 0 的 FIM/NM 双层膜中可以实现光诱导的自旋流激发。实验结果表明,亚铁磁体不仅可以用于强 THz 发射,THz 发射光谱也为磁补偿点附近的自旋动力学提供了一种新的研究方法^[42]。

目前基于铁磁/非磁异质结构的 THz 发射器的设计主要通过优化样品材料、厚度、尺寸和结构来增强其 THz 辐射强度^[43]。然而,从飞秒激光脉冲吸收与利用的角度看,现有的设计会使超过 50% 的脉冲能量被浪费,从而限制了 THz 波产生效率的提高。为解决这一问题,Feng 等^[44]构建了一种金属-介质光子晶体结构的 THz 发射器,利用激光在光子晶体结构中的多重散射和干涉,同时抑制磁性金属层对激光的反射和透射,成倍地提升了激光的吸收率,从而提升了 THz 波的产生效率。光子晶体 THz 辐射器的结构如图 5(a) 所示,由周期性的金属-介质薄膜组成 $[\text{SiO}_2/\text{NM}_1/\text{FM}/\text{NM}_2]_n$, n 为周期数,数字下标为 NM 序号。采用 Pt(1.8 nm)/Fe(1.8 nm)/W(1.8 nm) 作为 THz 辐射器。利用转移矩阵模型分别优化光子晶体的周期数 n 和介质层厚度 d ,以提高其对飞秒激光的吸收率,如图 5(b) 实线所示,实心符号为实验结果,

实线为理论计算结果。当 $n=1$ 时,光子晶体对飞秒激光的吸收率随着介质层厚度 d 的增大呈缓慢增大,当 $d=100$ nm 时达到最大值,然而最高吸收率仍低于 50%。当 n 为 2 和 3 时,吸收率随 d 的增大呈急剧增大, n 越大,吸收率的最大值也越大。当 $n=3$ 时,吸收率几乎达到了 90%,是 $n=1$ 时最大值的 2 倍以上。为了验证理论计算结果,通过高成膜质量的磁控溅射法在 MgO 衬底上生长了一系列具有不同 d 和 n 的光子晶体样品。在飞秒激光辐照下,测试了样品的透射率与反射率,从而获得样品对飞秒激光的吸收率。图 5(b) 中的实心符号是光子晶体对飞秒激光吸收率与其 d 和 n 的依赖关系,可见实验结果与理论计算值非常吻合。当 n 为 2 和 3 时,光子晶体的吸收率最大值分别达到了 82% 和 93%,相比于之前报道的自旋电子学 THz 发射器($n=1, d=2$ nm),光子晶体对飞秒激光的吸收率提高了至少 2 倍。实验结果表明,激光吸收效率与 THz 波强度相对应,并与理论计算结果相吻合。如图 5(c) 所示,金属-介质光子晶体($n=3, d=110$ nm) 的 THz 峰值强度比原先的三层膜 THz 辐射器($n=1, d=2$ nm) 大 1.7 倍。光子晶体结构为提高 THz 发射效率提供了一种新的手段。

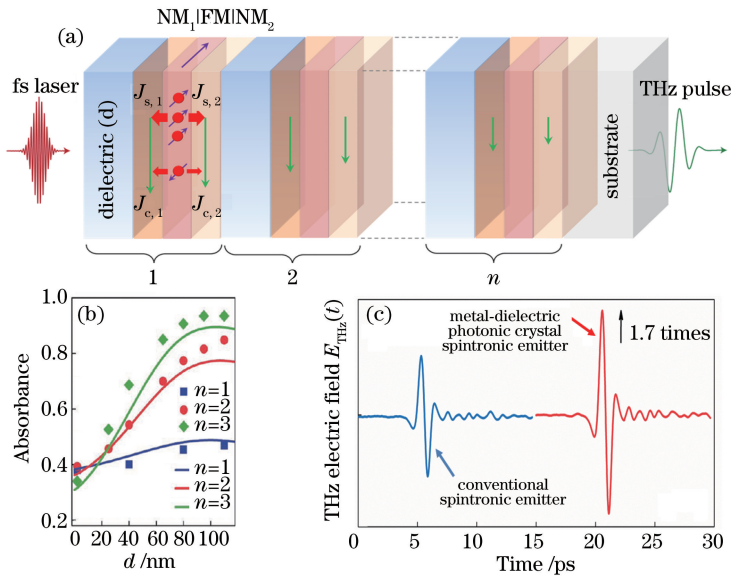


图 5 光子晶体结构的 THz 波辐射。(a) 金属-电介质光子晶体结构的 THz 辐射器示意图^[44]; (b) 光子晶体对飞秒激光的吸收系数随 SiO₂ 层厚度的变化^[44]; (c) 光子晶体($d=110$ nm, $n=3$) 与三层膜结构($d=2$ nm, $n=1$) 的 THz 辐射信号比较^[44]

Fig. 5 THz radiation from photonic crystal structure. (a) Schematic of THz emitter with structure of metal-dielectric photonic crystal^[44]; (b) absorptivity of femtosecond laser by photonic crystal versus thickness of SiO₂ layer^[44]; (c) comparison of THz radiation signals from photonic crystal ($d=110$ nm, $n=3$) and tri-layered film structure ($d=2$ nm, $n=1$)^[44]

除了对 THz 辐射的优化,也可以利用外加磁场、微纳加工和制备光子晶体等手段来调控自旋电子学 THz 发射器所辐射的 THz 波。2016 年, Yang 等^[45]利用微纳加工技术实现 Fe/Pt 样品辐射 THz 波的调制,如图 6(a)、(b)所示。图 6(c)是样品的光学显微镜图,铁磁条纹宽度和间隔宽度皆为 5 μm 。固定外加磁场的方向不变,定义条纹方向与外加磁场方向的夹角为 θ ,当方位角 θ 从 0°增加到 90°时, Fe/Pt 条纹结构样品辐射的 THz 信号逐渐增大,如图 6(d)所示。 $\theta=0^\circ$ 的 THz 脉冲强度比 $\theta=90^\circ$ 时降低了约 40%。在频域上,当 θ 从 0°增加到 90°时,归一化的 THz 信号频谱发生红移,峰值频率从 1.3 THz 减小至 0.6 THz,如图 6(e)所示。实验中

各向异性的 THz 辐射被定性地理解为条纹结构对电流的限制效应。当 $\theta=0^\circ$ 时,外加磁场方向沿着条纹方向, Pt 层中产生的瞬时电荷流方向垂直于条纹方向,这会导致条纹边缘产生电荷积累。电荷的积累会在条纹中产生一个反向的瞬态电磁场,这会减弱和改变最初激光诱导的电荷流。当 $\theta=90^\circ$ 时,外加磁场方向垂直于条纹方向,瞬态电荷流平行于条纹方向,几乎不存在电荷流限制效应。因此,电荷流限制效应导致了观测到的 THz 信号强度改变和频谱移动。从应用角度来看,通过旋转 Fe/Pt 条纹结构可有效调节 THz 辐射的强度与中心频率。微纳加工为制备宽带自旋电子学 THz 调制器提供了一种可行的方案^[46]。

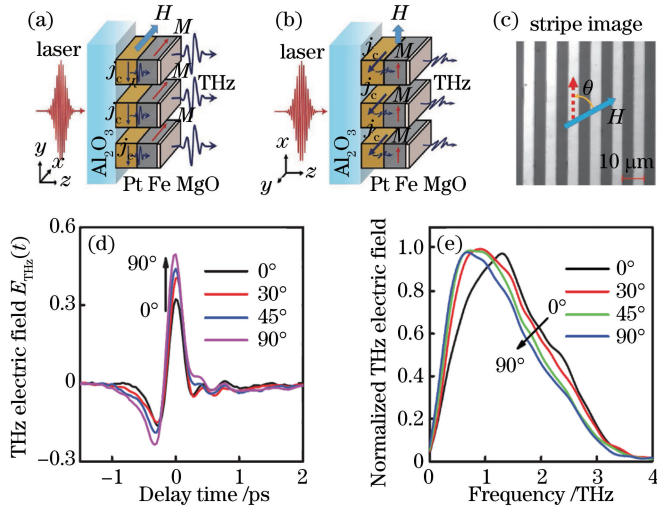


图 6 基于条纹结构的磁性异质辐射 THz 波^[45]。条纹方向(a)平行和(b)垂直于磁场方向时 Fe/Pt 条纹结构辐射的 THz 脉冲的偏振方向;(c)条纹结构的光学显微镜图;不同 θ 下条纹结构辐射的 THz(d)时域和(e)频域信号

Fig. 6 THz wave radiated from magnetic heterostructure with striped pattern^[45]. When stripe orientation is (a) parallel or (b) perpendicular to orientation of magnetic field, polarization direction of THz pulse radiated by Fe/Pt striped structure; (c) optical micrograph of striped structure; THz signals in (d) time-domain and (e) frequency-domain radiated by striped structures with different θ

5 基于逆 Rashba-Edelstein 效应的 THz 辐射

除了自旋霍尔效应外,界面 Rashba 自旋轨道耦合效应同样可以实现自旋流-电荷流转换。Rashba 自旋轨道耦合本质上是电子所处环境的空间反演对称性破缺的相对论表现。无外加磁场情况下,一个在电场中运动的电子会在自己的本征坐标系内感受到一个等效磁场作用,等效磁场的方向与电子的动量方向相关。因此,一定方向的动量对应着一定方向的自旋极化。当有电子流动时,界面上电子的动量将在某个方向产生不平衡现象,因动量方向与自旋极化方向高度相关,动量的不平衡必然

导致自旋极化的不平衡,从而产生自旋积累,这种效应称为 Rashba-Edelstein 效应^[47-48]。与自旋霍尔效应相似,Rashba-Edelstein 效应也存在逆效应,自旋积聚同样会导致电子动量的不平衡,从而产生电流。区别在于,自旋霍尔效应是体效应,而 Rashba-Edelstein 效应发生在界面上。

2013 年, Sánchez 等^[49]在 Ag/Bi 界面中发现了 IREE 效应。实验中利用自旋抽运效应注入自旋流。当 Ni-Fe 合金处于铁磁共振状态时,由于界面的角动量转换, Ni-Fe 合金中不断进动的磁矩使自旋流源源不断地注入 Ag/Bi 界面。Ag/Bi 界面处存在 Rashba 自旋轨道耦合,将自旋和动量锁定在

一起,注入的自旋流使界面发生自旋积累,造成原本关于原点对称的自旋能带结构产生位移,自旋分布不再关于原点对称。自旋分布上的不对称必然在电荷动量的层面上导致不对称,等价于电子的集体运动表现出方向性,于是产生了电流。在 Ag/Bi 界面测量得到的电压信号相比于单独的 Ag 和 Bi 有明显的增强,这正是由于界面 Rashba 自旋轨道耦合所引起的。最初,IREE 的研究只在运输实验和微波至几个吉赫兹的测试中进行,还未涉及 THz 波段。

最近,来自美国阿贡国家实验室^[50]和中国复旦大学/电子科技大学^[51]的两个独立的课题组分别利用飞秒激光实现了 Ag/Bi 界面上基于 IREE 的超快自旋流-电荷流转换,如图 7(a)所示。IREE 效应可以被定性地描述为 $j_c \propto \lambda_{\text{IREE}} j_s Z$, 其中 λ_{IREE} 为 IREE 系数,正比于 Rashba 系数, j_s 为自旋流,而 Z 是电位梯度的方向(垂直于界面)。实验结果表明,IREE

可以在飞秒时间尺度上工作,并辐射 THz 脉冲。研究人员比较了双层参考样品,包括 CoFeB/Bi、CoFeB/Al、CoFeB/Ag/Al、MgO/Ag/Bi 和 CoFeB/Ag/Bi 三层样品 THz 辐射的时域和频域波形。对于 CoFeB/Al 而言,Al 几乎没有 ISHE,覆盖层 Al 只是起到了防止氧化的作用。在没有铁磁层 CoFeB 的 MgO/Ag/Bi 样品中,没有观察到 THz 发射信号,说明参考样品中的 THz 辐射信号都与铁磁层 CoFeB 相关。三层膜所辐射的 THz 波的电场强度超过两层参考样品 2 个数量级,实验结果突显了 Ag/Bi 界面在 THz 产生过程中的重要性。在反转磁场方向,THz 信号有 180°的相移。此外,研究人员比较了 Fe/Ag/Bi 和 Fe/Bi/Ag 的实验结果,发现更换 Ag 层和 Bi 层的顺序将使 THz 辐射信号发生 180°的相移,如图 7(b)所示。上述的磁场依赖和激发层序依赖的 THz 发射实验都是基于 IREE 机制产生 THz 辐射。

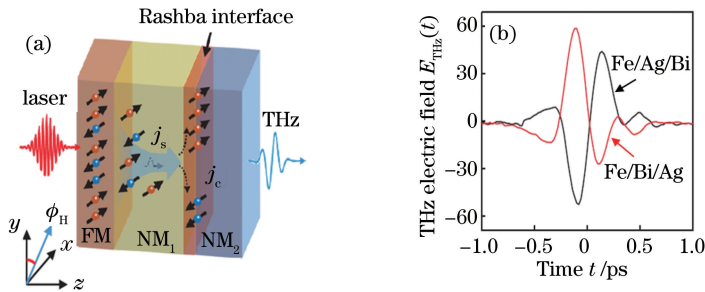


图 7 基于 IREE 效应的 THz 辐射^[51]。(a) THz 辐射示意图;(b) Fe/Ag/Bi 和 Fe/Bi/Ag 结构的时域 THz 信号

Fig. 7 THz radiation based on IREE effect^[51]. (a) Schematic of THz radiation; (b) THz signals in time-domain from Fe/Ag/Bi and Fe/Bi/Ag structures

对光强进行归一化后的 Fe/Ag/Bi 和 Fe/Bi/Ag 三层膜的 THz 峰值信号随 Bi 层厚度 d_{Bi} 的变化关系如下:当 Bi 层厚度大于 0.5 nm 时,Fe/Ag/Bi 的 THz 发射信号几乎与 Bi 层厚度无关,这符合 IREE 产生 THz 发射的预期。然而,对于 Fe/Bi/Ag 的 THz 发射随着 Bi 层厚度的增大而减小(尽管当 $d_{\text{Bi}} > 3$ nm 时,Rashba 界面已经很好地形成了),这一实验结果可解释为自旋流在流经 Bi 层时的衰减。根据 $j_s(d_{\text{Bi}}) \propto \exp(-d_{\text{Bi}}/\lambda_s^{\text{Bi}})$,可以估算出在 Bi 层中自旋的扩散长度 $\lambda_s^{\text{Bi}} \approx 17$ nm。对于这两个三层膜结构, $d_{\text{Bi}} \approx 0.3$ nm 时出现 THz 信号迅速增大和减小现象。这可以解释为:在 Ag 上沉积前几个单层 Bi 时,可能会出现具有强自旋轨道耦合的 AgBi 表面合金。因此,当 $0 < d_{\text{Bi}} < 0.5$ nm 时,所观察到的 THz 信号是 IREE 效应和 ISHE 效应的叠加,这一叠加状态可以通过控制 Ag/Bi 界面的对称性来调

控,这也很好地解释了 Fe/Bi/Ag 中 THz 信号的符号变化。

实验中,Jungfleisch 等^[50]所观察到的 THz 辐射的偏振方向几乎与磁化矢量的方向垂直(记为 E_x)。相比之下,在与磁化平行的方向上观察到 THz 发射信号 E_y 的大小为 E_x 的百分之几。实验还发现:1) E_y 受激发光圆偏振特性的控制,即左旋和右旋圆偏振光激发产生的 E_y 具有 180°相移;2)在 CoFeB/Pt 和其他的参考样品中都没有观察到任何与圆偏振激发光依赖的 E_y 分量;3)参考样品产生的 THz 辐射信号 E_x 都不依赖圆偏振;4)在 CoFeB/Ag(2)/Bi 中,由 IREE 产生的 THz 信号并不依赖于抽运光的偏振。排除了光吸收的圆偏振依赖性,将实验结果解释为逆法拉第效应的贡献。逆法拉第效应可能表现出平行于磁化矢量、圆偏振依赖的 THz 信号:

$$j \propto n \times (M \times \sigma), \quad (3)$$

式中: j 为光电流; n 为垂直于界面的单位矢量; σ 为平行或反平行于光传播方向的轴向单位矢量。实验结果不仅表明 Rashba 界面上自旋流转换的复杂性,而且开启了在界面上自旋输运过程的相干光控制研究。

6 超快自旋泽贝克效应的形成动力学

自旋泽贝克效应(SSE)是指当铁磁材料(包括铁磁绝缘体)与顺磁材料接触且有温差时,会产生横向的电场^[52-53]。产生该效应的原因在于:两者接触时,有自旋流从铁磁体进入顺磁体中,自旋流在顺磁材料中由于 ISHE 产生了横向电场。通过界面抽运产生的自旋流大小与温度差的关系可以描述为^[54]

$$j_s = \kappa \cdot (T_N - T_F), \quad (4)$$

式中: κ 为 SSE 系数; T_N 和 T_F 分别为非磁体和铁磁体的温度。

Seifert 等^[55]利用飞秒激光激发金属层中的热电子,触发 YIG/Pt 这一典型的自旋泽贝克效应系统中的超快自旋流,如图 8(a)所示。实验中,中心频率为 1.6 eV、脉宽为 10 fs 的飞秒激光脉冲入射到 YIG/Pt 双层结构上,Pt 的厚度为 5 nm,YIG 的厚

度为 5 μm ,YIG 为面内磁化,其能带宽度为 2.6 eV。YIG 对于激光脉冲是透明的,Pt 层被均匀地激发,导致其电子温度瞬态增加。如果在 Pt 层中有瞬态自旋流产生,通过 ISHE 将其转换成电荷流,发射 THz 脉冲,再通过光电取样进行探测。实验结果如图 8(b)、(c)所示,YIG(3 μm)/Pt(5.5 nm)样品所辐射的 THz 信号的相位随 YIG 面内磁化方向的改变而反转。根据 ISHE,YIG(3 μm)/Pt(5.5 nm)和 YIG(3 μm)/W(5.5 nm)的 THz 辐射信号相位发生反转。实验结果表明,YIG/Pt 中的超快电流表现出所有 THz-SSE 的特征。利用 250 μm 厚的 GaP(110)电光晶体,基于类 sd 交换耦合的动力学模型,获得了超快自旋流的大小及其动力学过程,通过光电取样信号转换成电场强度的传递函数计算出自旋流。实验中所使用的高斯脉冲的半峰全宽为 27 fs,以说明实验的时间分辨率。通过光诱导的以单指数衰减的样品瞬态反射率,得出电子-声子耦合时间常数 $\tau_{e-ph} = 310$ fs。这一模型清晰地刻画出超快 SSE 电流形成的基本过程:用飞秒激光激发金属 Pt 层产生的电子冲击磁性绝缘体的界面,通过两次连续的相互作用对电子冲击所施加的随机转矩进行整流,从而产生从 YIG 进入金属 Pt 层的净自旋流。

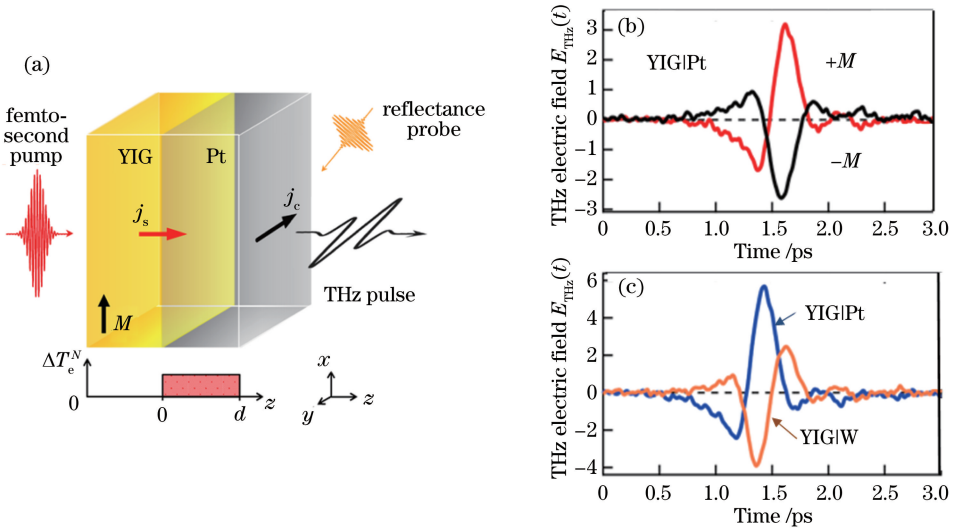


图 8 自旋泽贝克效应的速度极限测试^[55]。(a)金属层中的热电子触发 YIG/Pt 系统中的超快自旋流;(b) YIG(3 μm)/Pt(5.5 nm)样品的 THz 辐射信号;(c) YIG(3 μm)/Pt(5.5 nm)和 YIG(3 μm)/W(5.5 nm)样品的 THz 辐射信号
Fig. 8 Speed limit test of spin Seebeck effect^[55]. (a) Ultrafast spin current in YIG/Pt system triggered by hot electrons in metal layer; (b) THz radiation signals from YIG(3 μm)/Pt(5.5 nm) sample; (c) THz radiation signals from YIG(3 μm)/Pt(5.5 nm) and YIG(3 μm)/W(5.5 nm) samples

SSE 的动力学过程表现出金属层的热化准同步响应。原因在于:YIG/Pt 界面处的 Pt 层总的电子自旋的关联时间小于 4 fs,并且 YIG 的电子自旋对

于这些扰动的响应没有任何惯性。因此,SSE 电流直接反映了亚皮秒时间尺度上光激发电子的热化和冷却的瞬时响应。实验结果强调了载流子的倍增效

应在超快自旋泽贝克效应中的重要作用。

就应用而言,超快 SSE 电流可以通过非相干 THz 自旋抽运的实验产生。因此,金属层的瞬间热化可看作是一个极具潜力的换能器,可以实现超短非相干 THz 磁子脉冲进入磁性绝缘体,这对基于磁子的信息传输、远端磁层施加超快转矩,以及纳米波长的自旋波光谱学有重要的应用价值。需要强调的是,SSE 是一个自旋体系与另一个系统之间的非相干角动量传递模型。这里所述的另一个系统可以是电子轨道自由度、晶格或固体中的第二个自旋亚晶格等。现有的模型可以用作许多光学驱动自旋动力学,例如超快自旋转换和磁有序的湮灭等。

7 结束语

介绍了磁性纳米异质结构在 THz 频段的自旋流-电荷流转换(ISHE 和逆 Rashba-Edelstein 效应)和自旋泽贝克效应。对于自旋流-电荷流转换,着重介绍了利用磁性/非磁性金属纳米异质结构开发 THz 发射器。与现有的 THz 发射器相比,自旋电子学 THz 发射器的辐射效率更高、带宽更大,可以代替 ZnTe 晶体并用于 THz 时域光谱系统中。对于 THz 自旋泽贝克效应,主要介绍了从磁性绝缘体向重金属层注入自旋流的过程。实验发现,自旋泽贝克电流的上升时间仅为 100 fs,这一超快时间尺度源自于重金属层中电子自旋的准瞬态响应,使绝缘体中的磁矩无惯性地偏转。此外,所介绍的 THz 发射光谱已成为一种简单有效的探测手段,可快速地表征界面敏感的 IREE 效应和块体的 ISHE 效应,在无需制备微结构电极的条件下,对材料的自旋轨道耦合等性质进行高通量的检测。这些实验结果表明,THz 光谱学与自旋电子学两个领域的结合,在自旋比特的超快控制和 THz 光子学等领域具有应用前景,这些实验结果也加深了人们对 THz 频段自旋动力学的理解。

参 考 文 献

- [1] Vahaplar K, Kalashnikova A M, Kimel A V, *et al.* Ultrafast path for optical magnetization reversal via a strongly nonequilibrium state[J]. *Physical Review Letters*, 2009, 103(11): 117201.
- [2] Kimel A V, Kirilyuk A, Usachev P A, *et al.* Ultrafast non-thermal control of magnetization by instantaneous photomagnetic pulses[J]. *Nature*, 2005, 435(7042): 655-657.
- [3] Bigot J Y, Vomir M, Beaurepaire E. Coherent ultrafast magnetism induced by femtosecond laser pulses[J]. *Nature Physics*, 2009, 5(7): 515-520.
- [4] Kirilyuk A, Kimel A V, Rasing T. Ultrafast optical manipulation of magnetic order [J]. *Reviews of Modern Physics*, 2010, 82(3): 2731-2784.
- [5] Beaurepaire E, Merle J C, Daunois A, *et al.* Ultrafast spin dynamics in ferromagnetic nickel[J]. *Physical Review Letters*, 1996, 76(22): 4250-4253.
- [6] Koopmans B, Malinowski G, Dalla Longa F, *et al.* Explaining the paradoxical diversity of ultrafast laser-induced demagnetization[J]. *Nature Materials*, 2010, 9(3): 259-265.
- [7] Koopmans B, van Kampen M, Kohlhepp J T, *et al.* Ultrafast magneto-optics in nickel: magnetism or optics?[J]. *Physical Review Letters*, 2000, 85(4): 844-847.
- [8] Stanciu C D, Hansteen F, Kimel A V, *et al.* All-optical magnetic recording with circularly polarized light[J]. *Physical Review Letters*, 2007, 99(4): 047601.
- [9] Radu I, Vahaplar K, Stamm C, *et al.* Transient ferromagnetic-like state mediating ultrafast reversal of antiferromagnetically coupled spins [J]. *Nature*, 2011, 472(7342): 205-208.
- [10] Zhang G P, Hübner W, Lefkidis G, *et al.* Paradigm of the time-resolved magneto-optical Kerr effect for femtosecond magnetism[J]. *Nature Physics*, 2009, 5(7): 499-502.
- [11] 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.
- [12] Kampfrath T, Battiato M, Maldonado P, *et al.* Terahertz spin current pulses controlled by magnetic heterostructures[J]. *Nature Nanotechnology*, 2013, 8(4): 256-260.
- [13] Awari N, Kovalev S, Fowley C, *et al.* Narrow-band tunable terahertz emission from ferrimagnetic Mn_{3-x}Ga thin films [J]. *Applied Physics Letters*, 2016, 109(3): 032403.
- [14] Huisman T J, Mikhaylovskiy R V, Tsukamoto A, *et al.* Simultaneous measurements of terahertz emission and magneto-optical Kerr effect for resolving ultrafast laser-induced demagnetization dynamics[J]. *Physical Review B*, 2015, 92(10): 104419.
- [15] Venkatesh M, Ramakanth S, Chaudhary A K, *et al.* Study of terahertz emission from nickel (Ni) films of different thicknesses using ultrafast laser pulses[J]. *Optical Materials Express*, 2016, 6(7): 2342-2350.
- [16] Kinoshita Y, Kida N, Sotome M, *et al.* Terahertz radiation by subpicosecond magnetization modulation

- in the ferrimagnet LiFe_5O_8 [J]. *ACS Photonics*, 2016, 3(7): 1170-1175.
- [17] Hilton D J, Averitt R D, Meserole C A, *et al.* Terahertz emission via ultrashort-pulse excitation of magnetic metal films [J]. *Optics Letters*, 2004, 29 (15): 1805-1807.
- [18] Shen J, Zhang H W, Li Y X. Terahertz emission of ferromagnetic Ni-Fe thin films excited by ultrafast laser pulses [J]. *Chinese Physics Letters*, 2012, 29 (6): 067502.
- [19] Kumar N, Hendrikx R W A, Adam A J L, *et al.* Thickness dependent terahertz emission from cobalt thin films [J]. *Optics Express*, 2015, 23 (11): 14252-14262.
- [20] Seifert T, Martens U, Günther S, *et al.* Terahertz spin currents and inverse spin hall effect in thin-film heterostructures containing complex magnetic compounds [J]. *SPIN*, 2017, 7(3): 1740010.
- [21] Kämmerer S, Thomas A, Hütten A, *et al.* Co_2MnSi Heusler alloy as magnetic electrodes in magnetic tunnel junctions [J]. *Applied Physics Letters*, 2004, 85(1): 79-81.
- [22] Zhang S N, Jin Z M, Liu X M, *et al.* Photoinduced terahertz radiation and negative conductivity dynamics in Heusler alloy Co_2MnSn film [J]. *Optics Letters*, 2017, 42(16): 3080-3083.
- [23] Battiato M, Carva K, Oppeneer P M. Superdiffusive spin transport as a mechanism of ultrafast demagnetization [J]. *Physical Review Letters*, 2010, 105(2): 027203.
- [24] Eschenlohr A, Battiato M, Maldonado P, *et al.* Ultrafast spin transport as key to femtosecond demagnetization [J]. *Nature Materials*, 2013, 12(4): 332-336.
- [25] Zhang S N, Jin Z M, Zhu Z D, *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.
- [26] Huisman T J, Rasing T. THz emission spectroscopy for THz spintronics [J]. *Journal of the Physical Society of Japan*, 2017, 86(1): 011009.
- [27] Walowski J, Münzenberg M. Perspective: ultrafast magnetism and THz spintronics [J]. *Journal of Applied Physics*, 2016, 120(14): 140901.
- [28] Seifert T, Jaiswal S, Martens U, *et al.* Efficient metallic spintronic emitters of ultrabroadband terahertz radiation [J]. *Nature Photonics*, 2016, 10 (7): 483-488.
- [29] Tanaka T, Kontani H, Naito M, *et al.* Intrinsic spin Hall effect and orbital Hall effect in 4d and 5d transition metals [J]. *Physical Review B*, 2008, 77 (16): 165117.
- [30] 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: 1311.
- [31] Ferguson B, Zhang X C. Materials for terahertz science and technology [J]. *Nature Materials*, 2002, 1(1): 26-33.
- [32] Reimann K. Table-top sources of ultrashort THz pulses [J]. *Reports on Progress in Physics*, 2007, 70 (10): 1597-1632.
- [33] Leitenstorfer A, Hunsche S, Shah J, *et al.* Detectors and sources for ultrabroadband electro-optic sampling: experiment and theory [J]. *Applied Physics Letters*, 1999, 74(11): 1516-1518.
- [34] D'Angelo F, Mics Z, Bonn M, *et al.* Ultrabroadband THz time-domain spectroscopy of common polymers using THz air photonics [J]. *Optics Express*, 2014, 22(10): 12475-12485.
- [35] Seifert T, Jaiswal S, Sajadi M, *et al.* Ultrabroadband single-cycle terahertz pulses with peak fields of $300 \text{ kV} \cdot \text{cm}^{-1}$ from a metallic spintronic emitter [J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 110(25): 252402.
- [36] Sajadi M, Wolf M, Kampfrath T. Terahertz-field-induced optical birefringence in common window and substrate materials [J]. *Optics Express*, 2015, 23 (22): 28985-28992.
- [37] Schneider A. Beam-size effects in electro-optic sampling of terahertz pulses [J]. *Optics Letters*, 2009, 34(7): 1054-1056.
- [38] Wu Y, Elyasi M, Qiu X P, *et al.* High-performance THz emitters based on Ferromagnetic/Nonmagnetic heterostructures [J]. *Advanced Materials*, 2017, 29 (4): 1603031.
- [39] Sasaki Y, Suzuki K Z, Mizukami S. Annealing effect on laser pulse-induced THz wave emission in Ta/CoFeB/MgO films [J]. *Applied Physics Letters*, 2017, 111(10): 102401.
- [40] Papaioannou E T, Torosyan G, Keller S, *et al.* Efficient terahertz generation using Fe/Pt spintronic emitters pumped at different wavelengths [J]. *IEEE Transactions on Magnetics*, 2018, 54: 9100205.
- [41] Chen M, Mishra R, Wu Y, *et al.* Terahertz emission from compensated magnetic heterostructures [J]. *Advanced Optical Materials*, 2018, 6(17): 1800430.
- [42] Schneider R, Fix M, Heming R, *et al.* Magnetic-field-dependent THz emission of spintronic TbFe/Pt layers [J]. *ACS Photonics*, 2018, 5(10): 3936-3942.

- [43] Feng Z, Yu R, Zhou Y, *et al.* Highly efficient spintronic terahertz emitter enabled by metal-dielectric photonic crystal [J]. *Advanced Optical Materials*, 2018, 6(23): 1800965.
- [44] Seifert S, Tran M, Gueckstock O, *et al.* Terahertz spectroscopy for all-optical spintronic characterization of the spin-Hall-effect metals Pt, W and Cu₈₀Ir₂₀ [J]. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 2018, 51(36): 364003.
- [45] Yang D W, Liang J H, Zhou C, *et al.* Powerful and tunable THz emitters based on the Fe/Pt magnetic heterostructure [J]. *Advanced Optical Materials*, 2016, 4(12): 1944-1949.
- [46] Luo L, Chatzakis I, Wang J G, *et al.* Broadband terahertz generation from metamaterials [J]. *Nature Communications*, 2014, 5: 3055.
- [47] Edelstein V M. Spin polarization of conduction electrons induced by electric current in two-dimensional asymmetric electron systems [J]. *Solid State Communications*, 1990, 73(3): 233-235.
- [48] Culcer D, Winkler R. Publisher's note: generation of spin currents and spin densities in systems with reduced symmetry [J]. *Physical Review Letters*, 2007, 99(23): 239902.
- [49] Sánchez J C R, Vila L, Desfonds G, *et al.* Spin-to-charge conversion using Rashba coupling at the interface between non-magnetic materials [J]. *Nature Communications*, 2013, 4: 2944.
- [50] Jungfleisch M B, Zhang Q, Zhang W, *et al.* Control of terahertz emission by ultrafast spin-charge current conversion at Rashba interfaces [J]. *Physical Review Letters*, 2018, 120(20): 207207.
- [51] Zhou C, Liu Y, Wang Z, *et al.* Broadband terahertz generation via the interface inverse rashba-edelstein effect [J]. *Physical Review Letters*, 2018, 121(8): 086801.
- [52] Uchida K, Xiao J, Adachi H, *et al.* Spin Seebeck insulator [J]. *Nature Materials*, 2010, 9(11): 894-897.
- [53] Agrawal M, Vasyuchka V I, Serga A A, *et al.* Role of bulk-magnon transport in the temporal evolution of the longitudinal spin-Seebeck effect [J]. *Physical Review B*, 2014, 89(22): 224414.
- [54] Xiao J, Bauer G E W, Uchida K C, *et al.* Theory of magnon-driven spin Seebeck effect [J]. *Physical Review B*, 2010, 81(21): 214418.
- [55] Seifert T S, Jaiswal S, Barker J, *et al.* Femtosecond formation dynamics of the spin Seebeck effect revealed by terahertz spectroscopy [J]. *Nature Communications*, 2018, 9: 2899.