

激光与光电子学进展

基于超快太赫兹散射型扫描近场光学显微镜的
自旋电子太赫兹发射光谱技术王家琦¹, 代明聪¹, 马一航¹, 王有为¹, 张子建², 才家华¹, 陈鹏³, 万蔡华³, 韩秀峰³, 吴晓君^{1,4*}¹北京航空航天大学电子信息工程学院, 北京 100191;²电子科技大学物理学院, 四川 成都 611731;³中国科学院物理研究所, 北京 100191;⁴张江实验室, 上海 201210

摘要 基于自旋电子材料的太赫兹 (THz) 发射器具有高效率、超宽带、低成本、易集成等许多独特优势, 不仅能够应用在高重复频率激光振荡器驱动的 THz 时域光谱仪上, 而且在高能飞秒激光放大器驱动下能够产生强场 THz 电磁脉冲, 在 THz 谱学成像、强场 THz 物理等方面已展现出重要的应用价值。然而, 以往基于自旋电子产生 THz 电磁波的辐射机理和器件研制方面的工作均基于远场 THz 时域光谱技术, 得到的结果是对泵浦激光光斑作用面积的 THz 发射信息的平均, 无法给出材料在微纳尺度上的超快自旋电流以及 THz 发射性能方面的有用信息。本工作采用光纤飞秒激光器驱动的超快 THz 散射型扫描近场光学显微成像技术, 研究了铁磁异质结材料钨/钴铁硼/铂 (W/CoFeB/Pt) 在纳米空间尺度下的自旋电子太赫兹发射性能, 在横向百纳米尺度上获得了高信噪比的自旋电子 THz 发射, 为纳米空间分辨上实现 THz 频率的超快自旋电流的产生、探测、操控等提供了新方法, 对超快 THz 自旋光电子学的发展有一定的参考价值。

关键词 太赫兹辐射; 自旋电子; 散射型扫描近场光学显微镜; 太赫兹自旋电流

中图分类号 O433.4

文献标志码 A

DOI: 10.3788/LOP232441

Spintronic Terahertz Emission Spectroscopy Based on Ultrafast Terahertz
Scattering Scanning Near-Field Optical MicroscopeWang Jiaqi¹, Dai Mingcong¹, Ma Yihang¹, Wang Youwei¹, Zhang Zijian², Cai Jiahua¹,
Chen Peng³, Wan Caihua³, Han Xiufeng³, Wu Xiaojun^{1,4*}¹School of Electronic and Information Engineering, Beihang University, Beijing 100191, China;²School of Physics, University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu 611731, Sichuan, China;³Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100191, China;⁴Zhangjiang Laboratory, Shanghai 201210, China

Abstract Spintronic terahertz (THz) emitters offer distinct advantages such as high efficiency, ultrabroadband capability, low cost, and easy integration. These emitters find applications not only in THz time-domain spectrometers driven by high-repetition-rate laser oscillators but also in the generation of intense THz electromagnetic pulses powered by high-energy femtosecond laser amplifiers. They have proven valuable in THz spectroscopy imaging and the exploration of strong-field THz physics. However, previous research on spintronic THz radiation mechanisms and device development relies primarily on far-field THz time-domain spectroscopy. The results of this approach present average THz emission information for the laser-pumped spot areas, which does not provide any insights into ultrafast spin currents and THz emission properties for the materials at micro- and nano-scales. In this study, we employ ultrafast THz scattering scanning near-field optical microscopy, driven by a femtosecond fiber laser oscillator, to investigate the spintronic terahertz emission properties of the ferromagnetic heterojunction material W/CoFeB/Pt at nanoscale. The utilization of this technology enables the detection of high signal-to-noise ratio spintronic THz emission at transverse scales as small as hundreds nanometers. This novel approach explores the generation, detection, and manipulation of ultrafast spin currents at THz

收稿日期: 2023-11-06; 修回日期: 2023-11-13; 录用日期: 2023-11-15; 网络首发日期: 2023-12-07

基金项目: 国家重点研发计划 (2022YFA1604402)

通信作者: *xiaojunwu@buaa.edu.cn

frequencies with nano-spatial resolution. This study may inspire innovative ideas for the advancement of ultrafast THz spin optoelectronics.

Key words terahertz radiation; electron spin; scattering scanning near-field optical microscope; terahertz spin current

1 引言

太赫兹(THz)电磁波是电磁波谱上一个还未被人类充分利用的电磁频谱资源,THz技术在航空航天、通信雷达、生物医疗等领域已经展现出了重要的应用价值,是世界科技大国竞争的战略制高点^[1]。虽然经历了近半个世纪的蓬勃发展,THz技术仍处于缺乏高效率辐射源、高灵敏探测器、高性能功能器件及小型化集成系统等阶段,极大阻碍了THz技术从实验室研究阶段向大规模生产和大面积应用的产业化阶段的迈进^[2]。然而,要想利用好THz技术,首先得需要能够产生高质量的THz电磁波。在基于电子学和光子学的众多技术中,利用飞秒激光与物质的相互作用是获得高效率THz辐射的最佳方法之一^[3]。实际上,飞秒激光脉冲与固体、液体、气体、等离子体相互作用都可以产生THz电磁波,但是产生效率的高低、光束质量的好坏、光源是否稳定等更大程度上取决于被飞秒脉冲作用的材料或结构特性,以及它们与飞秒激光作用的物理机制^[4]。

铌酸锂晶体具有“光学硅”的称号,是高效率产生THz辐射的最佳材料候选之一^[5]。从1971年在铌酸锂晶体上获得的第一个THz脉冲开始计算^[6],经过近半个世纪的发展,基于铌酸锂材料的THz光源技术已经将THz辐射的单脉冲能量推向了毫焦耳甚至十毫焦耳量级^[7-12]。基于铌酸锂THz强源的应用已经覆盖电子加速^[13-16]、物态调控^[17-22]、生物医疗^[23-24]等,取得了许多具有重大突破的原创性成果。然而,由于铌酸锂材料在光学频段的折射率为2.3,而在THz频段的折射率约为5,巨大的折射率差异导致飞秒激光与之作用过程中的相位匹配问题成为了阻碍效率进一步提升的关键^[1]。为此,倾斜波前技术的提出极大推动了铌酸锂THz强源技术的发展。然而,倾斜波前技术的光路复杂,优化困难,而且产生的THz脉冲较长,频谱比较窄,峰值频率偏低,对某些需要窄脉冲、超宽带、高频率的应用来说受到一定的限制。

基于砷化镓或镉镓砷等半导体材料的光导天线是最早商用化的THz发射器之一^[4, 25]。由于它可以与光纤飞秒激光器很好耦合,直接带动了小型化THz光谱仪和频谱仪的商用。然而,基于光导天线的THz发射器也存在自身的局限,比如:衬底材料需要价格昂贵、体积庞大的材料生长设备;电极制备过程需要复杂的工艺流程;外加偏置电压容易导致电场击穿进而引发天线失效;产生的THz辐射频谱较窄、能量较低、无法大面积成像等。这些都是限制光导天线进一步应用的关键。

除此之外,近年出现了许多利用新材料和新结构产生THz辐射的新方法,从辐射机理到发射效率等方面出现了大量的创新研究工作,极大推动了下一代新型THz辐射源的快速发展和商用。其中,最具代表性的THz发射器当数基于电子的自旋属性发展起来的自旋电子THz发射器。实际上,飞秒激光作用磁性材料产生THz辐射的现象在20世纪末期就已经被观察到了^[26]。当时产生的THz辐射信号小,其辐射机理被归结为超快磁偶极辐射。随着飞秒磁学的快速发展以及它在超快磁存储方面的重大应用前景,对飞秒退磁物理机理掀起了空前的研究热潮,至今仍是令人着迷的研究方向。

早在2005年左右,德国科学家Tobias Kampfrath等就在实验上采用铁磁材料与重金属制备成异质结,采用飞秒脉冲激发,观察到了THz辐射的产生。由于缺乏合理的机理解释,相关工作未曾发表。直到2010年,一篇发表在*Physical Review Letters*关于超扩散自旋流的形成是超快退磁激发的文章,提供了铁磁/重金属异质结产生THz辐射的合理解释^[27]。从此,这种铁磁材料与重金属的异质结成为飞秒自旋电流产生、探测、操控最热门的研究方案^[28-29]。再后来,他们又对不同种类的铁磁材料和重金属材料以及它们的厚度对THz辐射效率的影响做了更为详细而深入的系统性研究,在10 fs泵浦激光照射下,实现了频率覆盖高达30 THz的超宽带THz辐射^[30]。在10 fs激光脉冲作用的相同实验条件下,自旋电子THz发射器的发射效率超过了商用光导天线和非线性晶体。这些异质结多采用磁控溅射的方法来制备,发射源可以大面积,发射强度与泵浦激光能量基本成正比,辐射的THz偏振态还可以由外界磁场直接调控等,使得基于铁磁和重金属的异质结成了下一代新型THz发射器的最佳候选之一^[11, 31-37]。然而,上述研究工作大多是基于THz远场发射技术的,得到的信息非常宏观。要想进一步提高发射器的效率,深入理解飞秒自旋流在纳米尺度的产生、探测、操控机理,为后续可以工作在THz频段的纳米自旋电子器件的研制奠定基础,亟须在微纳尺度的横向空间分辨下,深入理解飞秒激光脉冲与磁性纳米薄膜的相互作用机理,以及其界面和边界处的影响因素等。

扫描近场光学显微镜(SNOM)有望为上述需求提供可行的解决方案^[38-39]。通过将原子力显微镜与超快激光脉冲耦合,被研究的材料体系的空间分辨率不再受泵浦激光的波长衍射极限的限制,而由针尖粗细决定,可以获得材料在纳米尺度空间分辨率的信息。

为此,各种波段耦合的 SNOM 被应用在各个研究领域,比如微波频段耦合的 SNOM 可以用来诊断芯片结构,近红外和中红外光学频段耦合的 SNOM 是用于观察表面等离激元和声子激化激元的强大工具^[38]。近年来,THz 耦合的 SNOM 也大量出现,通过将不同频段的 THz 电子源或光学源耦合进 SNOM,将 THz 光谱和成像技术推进到了纳米尺度,已经在材料科学^[40]、芯片检测、生物医学^[41]等方面的研究工作中发挥了重要作用。不仅如此,基于超快飞秒激光耦合的 SNOM 除了能获得纳米尺度材料的静态响应信息,还能通过光泵浦-THz 探测技术实现对非平衡态的超快动力学过程进行光谱和成像的观察,在 InAs 纳米线^[42]、黑磷^[43]、二维材料及其异质结方面^[39]已经有许多非常重要的研究工作。基于光泵浦-THz 探测技术,人们也可以利用 THz-SNOM 研究材料的 THz 发射特性,其中对 InAs 和 Si 材料体系已经开展了大量的研究工作^[44-45]。但是,如何将这样一种突破衍射极限的先进超快 THz-SNOM 技术用在超快磁学或者自旋电子学研究上,一直未见相关工作的报道。

本文基于超快 THz 散射型 SNOM (THz s-SNOM),通过飞秒激光太赫兹发射光谱技术,系统地研究了钨/钴铁硼/铂(W/CoFeB/Pt)的异质结的自旋电子太赫兹发射性能,以及泵浦激光与铁磁异质结相互作用的超快动力学过程,实现了纳米尺度下对太赫

兹自旋电流的超快注入、探测、调控,对太赫兹自旋光电子学的交叉研究有一定的借鉴意义。

2 实验装置及工作原理

2.1 实验光路

图 1 为本工作采用的超快 THz s-SNOM (德国 NeaSpec 公司)的整体光路图。硬件部分主要包括一台光纤飞秒激光器,输出激光脉冲的中心波长为 1560 nm,脉冲宽度为 70 fs,重复频率为 100 MHz。从激光器出来的飞秒激光脉冲被分成 3 路:一路自由空间的光路经过倍频器,输出中心波长为 780 nm 的激光脉冲,用于光泵浦-THz 探测技术和 THz 发射光谱技术的泵浦光;另外两路为光纤耦合的 THz 时域光谱仪的激发光和探测光。用于静态近场 THz 时域光谱散射测量的 THz 脉冲由发射光导天线(AT)产生,该 THz 脉冲经过若干反射镜和抛物面镜后聚焦到样品表面上与针尖近场耦合,散射的 THz 信号再经过对称的光学元件进入接收光导天线(AR)进行超快时间分辨探测。当挡住泵浦激光,打开 THz 发射天线和探测天线时,该系统处于静态 THz 时域光谱测量的模式。在此工作模式下,打开泵浦激光,可以实现光泵浦-THz 探测功能。在光泵浦-THz 探测工作模式下,关闭 THz 发射天线,保持 THz 探测天线处于工作状态,即可实现 THz 发射光谱测量功能。

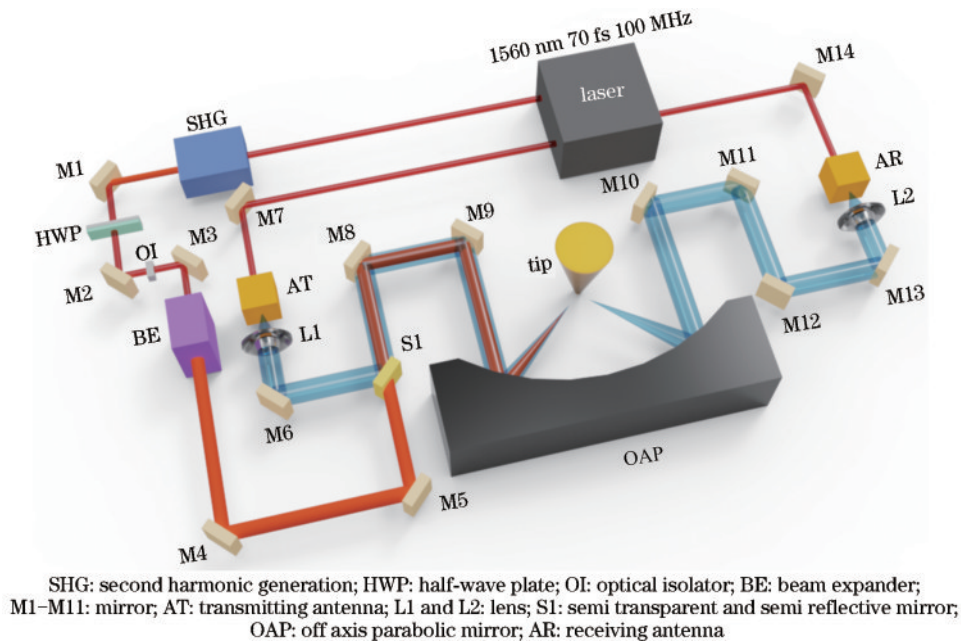


图 1 超快 THz s-SNOM 系统光路图

Fig. 1 Optical path diagram of ultrafast THz s-SNOM system

2.2 工作原理

超快 THz s-SNOM 的主要功能是飞秒泵浦-THz 探测和激光诱导 THz 发射,核心工作原理主要包括 3 方面:针尖近场增强;THz 散射;信号探测。在进行本工作的飞秒泵浦自旋电子 THz 发射光谱研究的过程

中,如图 2 所示,泵浦激光以 36° 入射角斜入射到针尖上,其偏振方向也与针尖呈 36° 。针尖尖端半径很小,基于避雷针效应,针尖可以对泵浦激光作用于样品上的电磁场进行限制并实现场增强,局域增强的激光能量被三层样品中的 CoFeB 层吸收。由于铁磁层中自

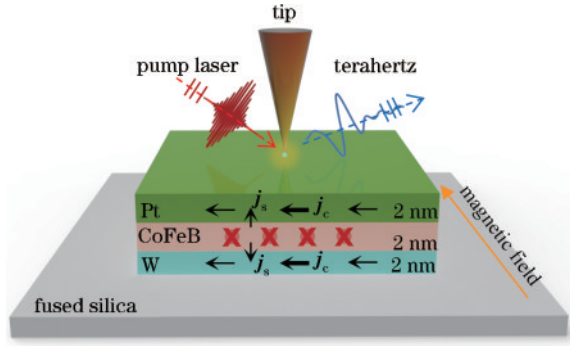


图 2 纳米尺度自旋电子 THz 发射原理示意图

Fig. 2 Schematic of the principle of spintronic THz emission at the nanoscale

旋向上和自旋向下的电子密度和迁移率的不同,在垂直于样品表面的纵向产生自旋极化流 j_s ^[11, 28-37]。当该自旋极化流正向运动到 W 层和反向运动到 Pt 层时,通过自旋-电荷转换效应产生面内电荷流。因为 W 和 Pt 材料局域反向的自旋霍尔角,向两层运动的纵向自旋流也具有相反的运动方向,通过逆自旋霍尔效应在 W 和 Pt 中产生的面内电荷流 j_c 具有相同的方向。由于这些电荷流具有飞秒时间包络,故通过麦克斯韦方程辐射出可以相干叠加的 THz 电磁脉冲。

由于 THz s-SNOM 系统产生的 THz 辐射是通过电偶极辐射方式得到的,因此产生的 THz 辐射在样品上表面和下表面均有分布。当针尖靠近样品上表面时,针尖一方面与产生的 THz 波实现近场增强,另一方面通过针尖散射出被探测的 THz 信号。要想探测到散射的 THz 信号,需要给针尖加一个调制频率,在本实验中,采用的调制频率为 37 kHz。在 THz 探测器上,只有被调制的 THz 发射信号才有可能被检测到,进而实现了从大背景信号中探测微弱信号的检测功能。

下面介绍超快 THz s-SNOM 的数据提取方法。自旋电子纳米薄膜在飞秒激光泵浦下产生的 THz 辐射场照射到针尖上,产生两个散射场:一个是背景散射场 E_b ,包含了整个飞秒激光光斑照射样品产生的所有 THz 辐射信号;另一个是针尖近场散射信号 E_s ,是实验需要探测的纳米尺度的 THz 发射信号。但是针尖最尖端半径在纳米量级,散射截面很小,近场散射信号 E_s 通常较弱,而远场背景散射场 E_b 要远大于针尖近场散射 E_s 。通过镜像偶极子模型,可以将半径尺寸约为几十纳米的针尖尖端等效为偶极子,将样品表面对应针尖尖端的点等效为镜像偶极子。这两个偶极子之间产生的电场会影响散射场信号 E_s 。假设针尖处是一个半径为 r 的球体,振动频率为 Ω ,将球体底部与样品之间的距离记为 z ,将球体中心与样品之间的距离记为 d ,假设 A 为常数系数,则针尖与样品之间的距离 d 可表示为

$$d = z + r + A[1 + \cos(2\pi\Omega t)]. \quad (1)$$

在镜像偶极子模型下,可以得到针尖极化率 α 、样品反射系数 β 、在 p 偏振电磁波作用下针尖与样品之间的有效极化率 α_{eff} ,公式分别为

$$\alpha = 4\pi r^3 / (\epsilon_s - 1)(\epsilon_s + 2), \quad (2)$$

$$\beta = (\epsilon_s - 1) / (\epsilon_s + 1), \quad (3)$$

$$\alpha_{\text{eff}} = \frac{\alpha}{1 - \frac{\alpha\beta}{16\pi d^3}}, \quad (4)$$

式中 ϵ_s 为针尖尖端的介电常数; ϵ_s 为样品的介电常数。通过式(4)可以看出,有效极化率 α_{eff} 与针尖极化率 α 、样品反射系数 β 、针尖振动距离 d 均相关。并且有效极化率 α_{eff} 与针尖振动距离 d 的三次方相关,故可将有效极化率 α_{eff} 按傅里叶级数形式展开,公式为

$$\alpha_{\text{eff}} = F_0 + F_1 \exp(j\Omega t) + F_2 \exp(j2\Omega t) + \dots \\ = \sum_{n=-\infty}^{\infty} F_n \exp(jn\Omega t), \quad (5)$$

$$F_n = |F_n| \exp(j\varphi_n). \quad (6)$$

此时,散射电场强度 E_s 与有效极化率 α_{eff} 成正比,所以散射电场强度 E_s 也可以按傅里叶级数形式展开,具有零阶项、一阶项、二阶项等多阶信号,公式为

$$E_s \propto \alpha_{\text{eff}} E_i = \sum_{n=0}^{\infty} |F_n| E_i \exp(jn\Omega t + j\varphi_n). \quad (7)$$

从图 3 可以更加直观地理解 THz s-SNOM 系统获得有效信号的高阶解调原理。在 THz s-SNOM 系统中,针尖以一定的频率 Ω 振动,飞秒激光打在针尖与样品之间,针尖处散射的电磁波信号被收集。针尖处的散射信号主要有两种,一是远场散射信号,二是近场散射信号。图 3(a)展示了这两种散射信号在系统中的分布情况。针尖到样品之间的距离 d 随时间 t 变化的曲线可以近似成一条正弦曲线,如图 3(b)所示,因此,可以得到图 3(c),即远场散射信号和近场散射信号随针尖与样品之间距离 d 的变化曲线。远场散射信号包含两种散射场:一是来自针尖表面的散射场,它可以随着针尖与样品之间的距离 d 得到线性调制,如图 3(c)上方曲线所示;二是来自样品表面的散射场,是常量,不随 d 的变化而变化,只影响图 3(c)上方曲线的幅值,而不改变其变化规律。图 3(c)下方曲线表示的是近场散射信号,它随 d 非线性变化,含有一阶、二阶、三阶等高次谐波分量,正是想要提取的有效信号。图 3(d)证明远场散射信号主要蕴含在一阶信号中。因此,可以通过高阶解调原理提取出近场散射信号中二阶及以上的高次谐波信号,消除远场散射背景噪声的干扰。

上面介绍了提取信号的原理,具体如何提取信号,还需要结合探测系统确定信号模型。在这里,介绍一些基于 SNOM 的光强探测系统提取高阶信号的方法。最早应用的是自零差探测技术,一个发射器发射信号,一个探测器接收信号,从探测到的复合电场中提取出针尖散射电场 E_s 。在此基础之上,零差探测、外差探

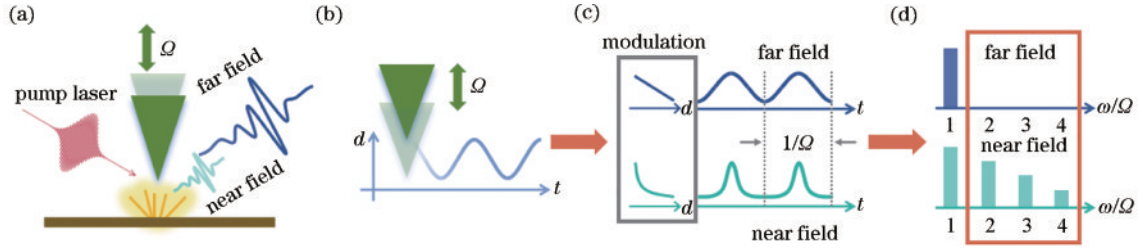


图3 调制与解调实现 THz 发射信号的测量。(a)超快 THz s-SNOM 系统中针尖处散射电场信号分布示意图;(b)针尖到样品之间的距离 d 随时间 t 变化的依赖关系;(c)远场散射信号和近场散射信号随针尖与样品之间距离 d 变化的依赖关系;(d) 远场散射信号和近场散射信号的高阶信号分布

Fig. 3 Modulation and demodulation to achieve THz transmitter signal measurements. (a) Schematic of the scattered electric field signal at the tip of the needle in the ultrafast THz s-SNOM system; (b) dependence of the distance between the tip and the sample (d) on time (t); (c) dependence of the far-field and near-field scattering signals on the distance between the tip and the sample (d); (d) higher-order signal distributions of far-field scattered signals and near-field scattered signals

测、外差探测技术逐渐发展起来。与自零差探测技术相比,零差探测技术通过调控参考反射光路臂中的反射镜位置,记录到正交位置处的两个信号,实现了对信号幅值和相位信息的纪录。外差探测技术是利用频率调制器对参考光的频率进行转换的,而后利用差频效应进行信号解调,实现了几乎全部滤除系统中的背景噪声的效果。外差探测技术将零差探测方案中的参考路反射镜换为振动镜,它以一定的频率进行振动以实现参考光的调制。THz s-SNOM 系统的优势在于直接测量电场强度 E ,而不需要测量光强。近场散射场强 E_s 是可以得到高阶解调的,背景散射场强只有零阶和一阶信号,直接提取二阶及以上的高阶信号即可滤除噪声,得到近场散射信号 E_s ,无须进行干涉测量,也不需要外差探测。因此,THz s-SNOM 其实是一个零差探测系统,不会受到其他耦合项的干扰,具有非常高的信噪比。不仅如此,还给实验系统设计了一个塑料罩,可以将系统内部的湿度降低到 3%,部分排除水蒸气的干扰。

2.3 样品制备

在高真空 AJA 溅射系统中进行样品生长。该溅射系统的真空度可达 133.322×10^{-9} Pa。在沉积之前,利用氩等离子体蚀刻方法对衬底材料进行清洁,以获得无尘表面,衬底材料是具有各向同性的熔融石英,双折射效应可以忽略不计。为了获得最佳质量以及使实验具有可重复性,对沉积条件(即氩气压强和施加功率)进行了仔细优化。W、CoFeB 和 Pt 的生长速率分别为 0.21 \AA/s 、 0.06 \AA/s 和 0.77 \AA/s 。通过旋转样品来确保沉积的均匀性。在实验中,W 和 Pt 的覆盖层以及 CoFeB 的铁磁层的厚度均为 2 nm,因此三层总厚度为 6 nm。

3 实验结果与分析讨论

基于超快 THz s-SNOM 系统和已经制备好的 W/CoFeB/Pt 异质结,图 4 给出了泵浦激光功率为 18.6 mW 时,系统在有无充入氮气情况下的二阶 THz 发射信号

的时域波形及其对应的频谱。从图 4(a)的时域波形信号可以看出,基于自旋电子产生的 THz 辐射经针尖散射测量到的时域波形为单周期脉冲,脉冲宽度约为 0.3 ps。图 4(b)给出了对应的频谱分布,THz 峰值频率为 0.8 THz,频谱宽度为 2.2 THz。在没有充入氮气的测试结果中,可以清楚地看到水蒸气的吸收峰,如图 4(b)下方曲线所示。但是,通过对 THz 产生和传输部分添加一个罩子,可以极大减少水蒸气的干扰,获得比较平滑的 THz 发射谱。实际上,基于自旋电子材料的 THz 发射采用的是逆自旋霍尔效应,公式为

$$E_{\text{th}} \propto \gamma \times J_s \times \frac{M}{M}, \quad (8)$$

式中 E_{th} 是产生的 THz 辐射电场分量; γ 为自旋霍尔角度; J_s 为自旋极化流; M 为外加磁场。根据式(8)可知,在饱和磁化的情况下,THz 辐射强度主要由电荷密度和自旋霍尔角的大小决定。因为 W、CoFeB、Pt 等材料在 THz 频段没有本征的声子、磁子等吸收,THz 辐射脉冲宽度主要由泵浦激光脉冲宽度和探测天线可工作带宽决定。本实验采用的泵浦激光脉冲宽度大约为 70 fs,探测到的频谱宽度覆盖到 ~ 2.2 THz,实现了对超快自旋电流产生 THz 辐射的高效率散射探测。

从图 4 的实验结果可以看出,超快 THz s-SNOM 是在纳米尺度空间分辨上研究自旋电子 THz 辐射的有效工具。为了进一步验证该系统的信噪比,在充入氮气的情况下,测量了 W/CoFeB/Pt 样品的高阶 THz 发射信号,结果如图 5 所示,高达 5 阶的 THz 时域波形信号被成功探测到。从图 5 可以看出,高阶 THz 发射信号也都呈现单周期波形,2 到 5 阶信号的脉冲宽度分别为 0.3 ps、0.29 ps、0.28 ps 和 0.25 ps,辐射强度随着阶数的增加而逐渐衰减。把 THz 波形信号的峰-峰值提取出来,对阶数进行画图,得到图 5(b)的指数衰减方式。图 5(c)为不同阶数对应的 THz 频谱图。随着阶数的增加,散射的 THz 信号强度逐渐变小,频谱分布幅值逐渐降低,覆盖频段范围保持不变。

为了研究泵浦激光参数对 THz 发射效率的依赖

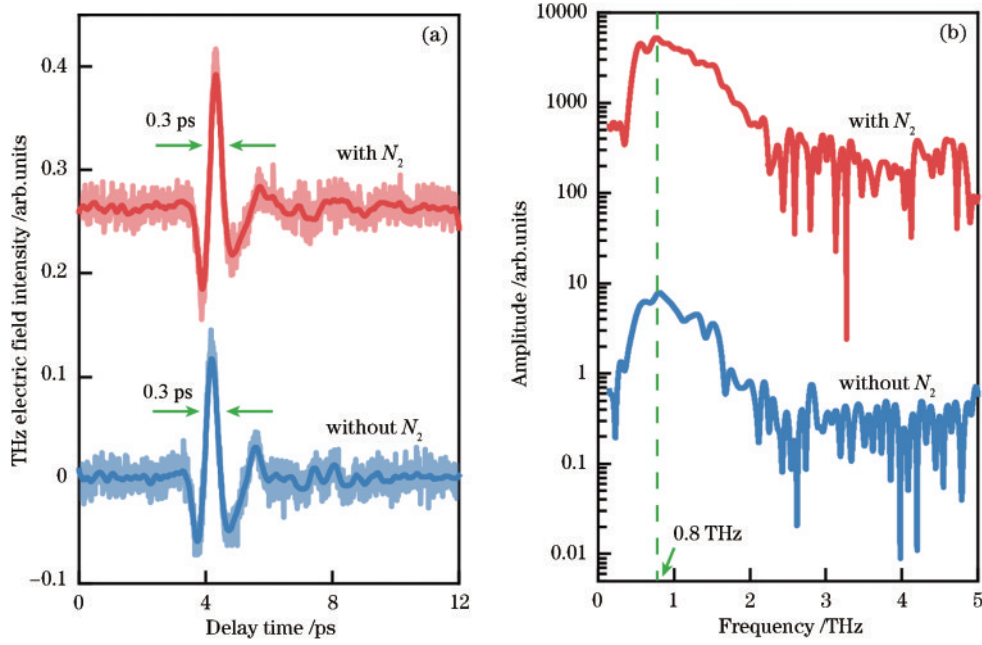


图 4 基于 THz s-SNOM 的自旋电子 THz 发射二阶信号。(a) 有无氮气环境下的 THz 时域波形；(b) 对应的频谱分布
 Fig. 4 Spintronic THz emission second-order signals based on THz s-SNOM. (a) THz time-domain waveforms with and without nitrogen environment; (b) corresponding frequency-spectral distribution

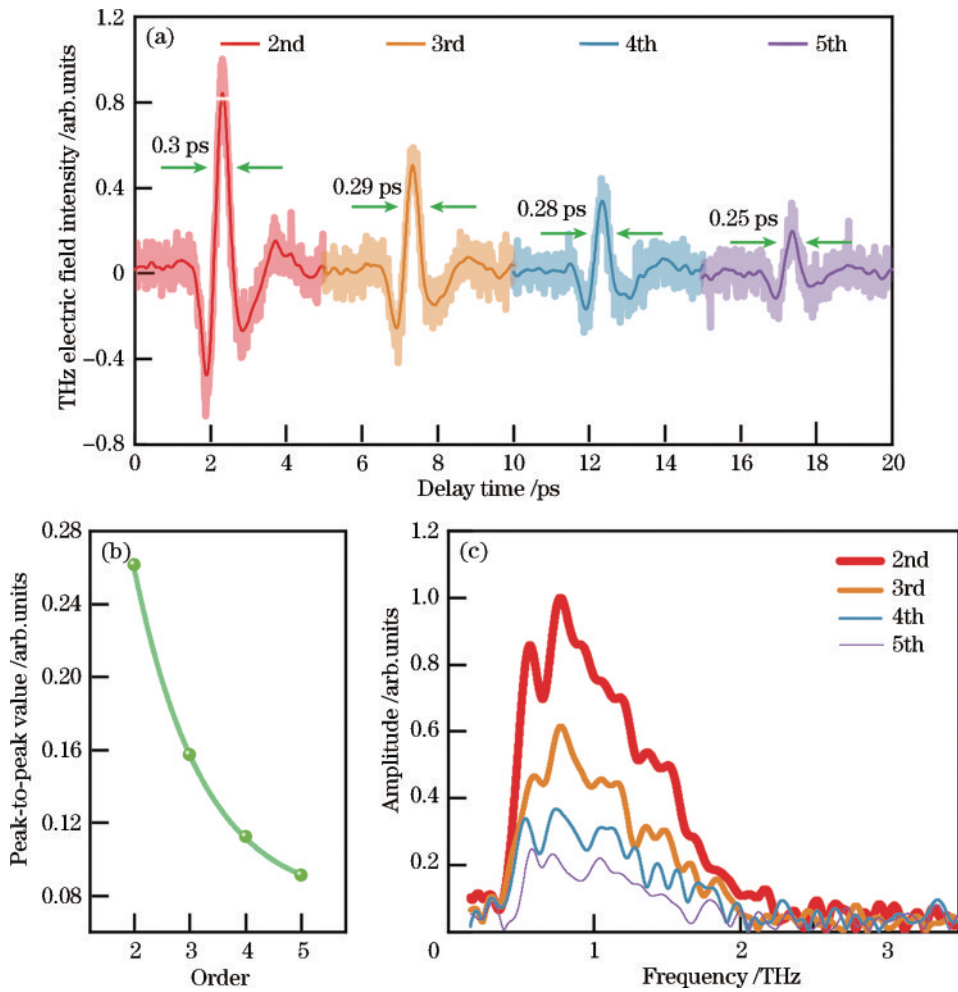


图 5 高阶 THz 发射信号。(a) 2 阶到 5 阶的 THz 时域波形信号；(b) 辐射峰-峰值随阶数变化的依赖关系；(c) 对应的频谱分布
 Fig. 5 Higher-order THz emission signals. (a) THz time-domain waveform signals from 2nd to 5th order; (b) dependence of the peak-to-peak radiation value on the change in order; (c) corresponding frequency-spectral distribution

关系,通过在泵浦激光光路上添加半波片来改变泵浦激光的能量,得到图 6 所示的泵浦功率依赖的 2 阶 THz 发射结果。从图 6(a)可以看出,2 阶 THz 发射信号先随着泵浦功率的升高而逐渐变强,在达到最高值后开始下降。更重要的是,从这幅图中可以看到,在泵

浦功率为 1 mW 时,也能观察到可探测的 THz 发射信号,再次证明了这套系统对纳米尺寸自旋电子太赫兹发射的探测能力。图 6(b)给出了 THz 发射信号峰-峰值随泵浦功率的依赖关系。在泵浦功率超过 20 mW 后,THz 发射信号强度就出现了明显的下降。

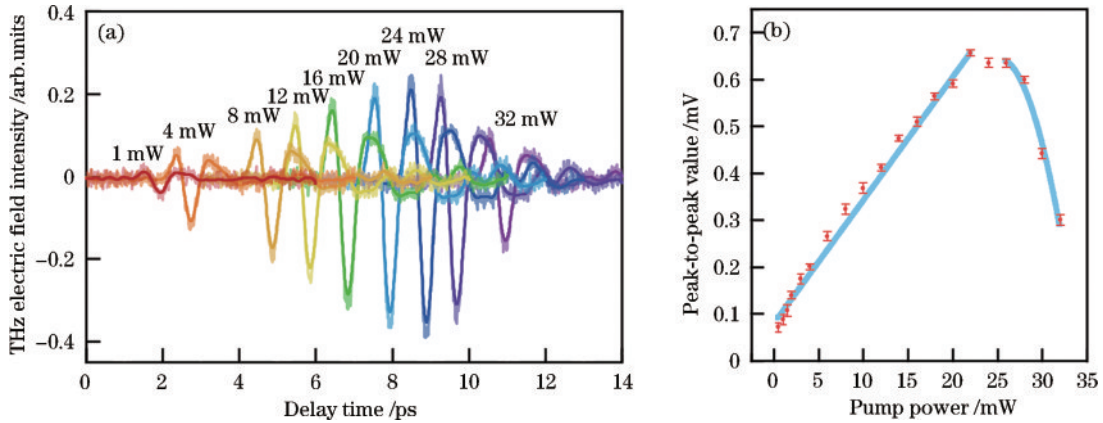


图 6 泵浦功率依赖。(a)不同泵浦功率下的 THz 时域波形;(b)时域波形峰-峰值与功率的依赖关系

Fig. 6 Pump power dependence. (a) THz time-domain waveforms at different pump powers; (b) dependence of time-domain waveform peak-to-peak value on power

为了找出信号下降的原因,对泵浦激光照射后的样品进行了形貌扫描,如图 7 所示。从原子力显微镜的力学照片和静态 THz 时域光谱散射扫描成像图可以看出,图 6 中观察到的高泵浦功率情况下 THz 发射信号的减弱主要是样品表面呈现一定程度的凸起,

样品表面被破坏造成的。为此,在采用超快 THz s-SNOM 系统进行发射光谱测量的过程中,由于针尖对泵浦激光有极大的场增强效应,可以在很低泵浦功率的情况下观察到样品的 THz 发射信号。

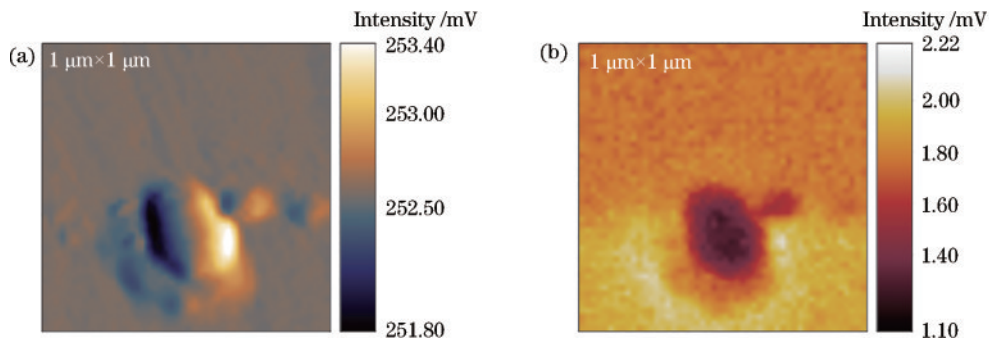


图 7 磁性纳米薄膜表面烧蚀表征。(a)原子力显微镜的力学图;(b)静态 THz 时域光谱散射扫描成像图

Fig. 7 Surface ablation characterisation of magnetic nanofilms. (a) Mechanical diagram of atomic force microscope; (b) static THz time-domain spectral scattering scanning imaging map

为了进一步对比自旋电子 THz 辐射源的产生和探测效率,图 8 给出了泵浦激光功率为 18.6 mW,系统充入氮气情况下的 InAs、GaAs 以及 W/CoFeB/Pt 二阶时域波形信号及其频谱分布的对比。其中,为了在同一坐标范围对比这 3 个信号,将 InAs 信号强度除以 4,结果如图 8(b)所示。从时域信号上看,W/CoFeB/Pt 的发射信号强度约为 InAs 信号强度的 1/4,但却是 GaAs 信号强度的 2 倍。它们对应的频谱分布约为 0.2~2.0 THz。InAs 体材料的 THz 发射机理是光丹倍效应^[39]。InAs 材料吸收泵浦激光产生高密度的载流子,通过载流子的扩散效应在垂直于样品表面的纵

向产生高密度的扩散电流,形成纵向的电偶极辐射。这样的纵向电偶极辐射产生的 THz 电磁波不能穿透具有高载流子密度的 InAs 窄带隙半导体材料,只能通过反射发射的形式耦合出来。因此早期采用反射式 InAs 作为 THz 辐射源,其常用于 THz 时域光谱仪中。但是,这里研究的铁磁异质结纳米薄膜的厚度仅为 5.4 nm,即便是通过斜入射的方式产生 THz 辐射,还有一部分的 THz 能量穿过衬底时未被高效率探测,后续的研究工作可以在此基础上进一步改进材料和结构,以提高纳米尺度 THz 发射效率。

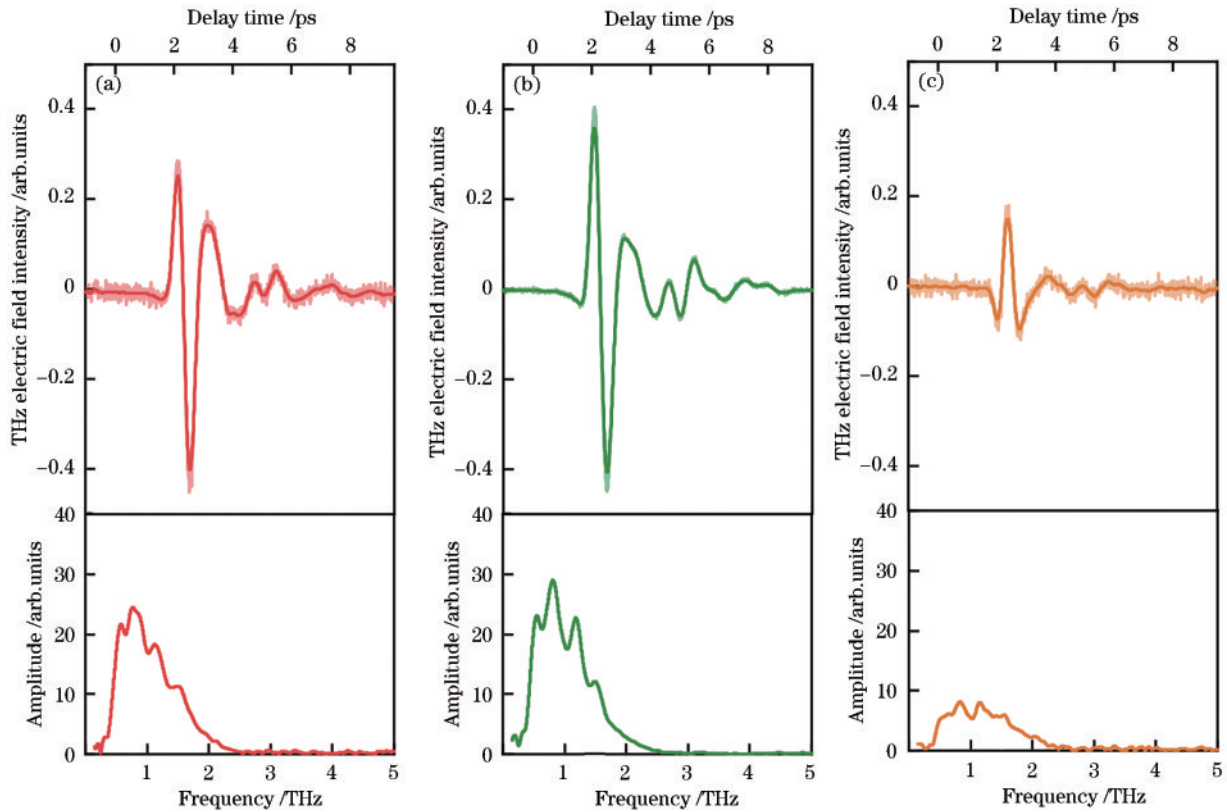


图 8 基于超快 THz s-SNOM 的 THz 发射二阶信号强度和频谱对比。(a) W/CoFeB/Pt; (b) InAs; (c) GaAs

Fig. 8 Comparison of second-order signal amplitude and frequency spectra of THz emission based on ultrafast THz s-SNOM.
(a) W/CoFeB/Pt; (b) InAs; (c) GaAs

4 结 论

针对 THz 光谱技术受限于波长衍射极限的问题,开展了基于超快 THz s-SNOM 的 W/CoFeB/Pt 纳米薄膜的 THz 发射特性的研究,实现了百纳米尺度的散射型 THz 发射信号的探测,获得了高达 5 阶的 THz 发射信号。通过研究 THz 发射信号的峰-峰值与泵浦功率的依赖关系,发现即使在 1 mW 泵浦功率下,仍能探测到可分辨的 THz 发射信号。在超过 20 mW 泵浦功率后,THz 发射信号的减弱是样品表面被烧蚀造成的。通过与 InAs、GaAs 等常用的 THz 发射器对比,基于 W/CoFeB/Pt 纳米薄膜的自旋电子 THz 发射器的效率已经可以达到 InAs 材料相同数量级,但是自旋电子 THz 发射器结构更简单,成本更低,还可以大面积制备等,使得它在纳米自旋电子器件和纳米 THz 发射器方面都展现出了优异的性能。本文研究结果不仅将激光 THz 发射光谱技术推进到了纳米尺度,而且通过激光 THz 发射光谱技术实现了将 SNOM 技术应用到纳米尺度超快磁学和超快太赫兹自旋光电子学的可能,将对自旋电子学、超快光学、THz 技术及其交叉学科产生一定的推动作用。

参 考 文 献

[1] 吴晓君,任泽君,孔德胤,等. 铌酸锂强场太赫兹光源

及其应用[J]. 中国激光, 2022, 49(19): 1914001.

Wu X J, Ren Z J, Kong D Y, et al. Lithium niobate strong-field terahertz source and its applications[J]. Chinese Journal of Lasers, 2022, 49(19): 1914001.

[2] Mittleman D M. Twenty years of terahertz imaging[J]. Optics Express, 2018, 26(8): 9417-9431.

[3] Li P Y, Liu S J, Chen X H, et al. Spintronic terahertz emission with manipulated polarization (STEMP) [J]. Frontiers of Optoelectronics, 2022, 15(1): 12.

[4] Hafez H A, Chai X, Ibrahim A, et al. Intense terahertz radiation and their applications[J]. Journal of Optics, 2016, 18(9): 093004.

[5] Fülöp J A, Tzortzakis S, Kampfrath T. Laser-driven strong-field terahertz sources[J]. Advanced Optical Materials, 2020, 8(3): 1900681.

[6] Yang K H, Richards P L, Shen Y R. Generation of far-infrared radiation by picosecond light pulses in LiNbO₃[J]. Applied Physics Letters, 1971, 19(9): 320-323.

[7] Wu X J, Carbajo S, Ravi K, et al. Terahertz generation in lithium niobate driven by Ti: sapphire laser pulses and its limitations[J]. Optics Letters, 2014, 39(18): 5403-5406.

[8] Wu X J, Ma J L, Zhang B L, et al. Highly efficient generation of 0.2 mJ terahertz pulses in lithium niobate at room temperature with sub-50 fs chirped Ti: sapphire laser pulses[J]. Optics Express, 2018, 26(6): 7107-7116.

[9] 吴晓君,郭丰玮,马景龙,等. 基于倾斜波前技术的高能强场太赫兹辐射脉冲源[J]. 中国激光, 2019, 46(6):

- 0614008.
- Wu X J, Guo F W, Ma J L, et al. High-energy strong-field terahertz pulses based on tilted-pulse-front technique [J]. *Chinese Journal of Lasers*, 2019, 46(6): 0614008.
- [10] Zhang B L, Ma Z Z, Ma J L, et al. 1.4-mJ high energy terahertz radiation from lithium niobates[J]. *Laser & Photonics Reviews*, 2021, 15(3): 2000295.
- [11] Wu X J, Kong D Y, Hao S B, et al. Generation of 13.9-mJ terahertz radiation from lithium niobate materials[J]. *Advanced Materials*, 2023, 35(23): 2208947.
- [12] Guiramand L, Nneck J E, Ropagnol X, et al. Near-optimal intense and powerful terahertz source by optical rectification in lithium niobate crystal[J]. *Photonics Research*, 2022, 10(2): 340-346.
- [13] Tang H, Zhao L R, Zhu P F, et al. Stable and scalable multistage terahertz-driven particle accelerator[J]. *Physical Review Letters*, 2021, 127(7): 074801.
- [14] Zhang D F, Fakhari M, Cankaya H, et al. Cascaded multicycle terahertz-driven ultrafast electron acceleration and manipulation[J]. *Physical Review X*, 2020, 10(1): 011067.
- [15] Zhang D F, Fallahi A, Hemmer M, et al. Segmented terahertz electron accelerator and manipulator (STEAM) [J]. *Nature Photonics*, 2018, 12(6): 336-342.
- [16] Huang W R, Fallahi A, Wu X J, et al. Terahertz-driven, all-optical electron Gun[J]. *Optica*, 2016, 3(11): 1209-1212.
- [17] Salikhov R, Ilyakov I, Körber L, et al. Coupling of terahertz light with nanometre-wavelength magnon modes via spin-orbit torque[J]. *Nature Physics*, 2023, 19(4): 529-535.
- [18] Yang C J, Li J W, Fiebig M, et al. Terahertz control of many-body dynamics in quantum materials[J]. *Nature Reviews Materials*, 2023, 8(8): 518-532.
- [19] Dong T, Zhang S J, Wang N L. Recent development of ultrafast optical characterizations for quantum materials [J]. *Advanced Materials*, 2023, 35(27): 21110068.
- [20] Li Q, Stoica V A, Paściak M, et al. Subterahertz collective dynamics of polar vortices[J]. *Nature*, 2021, 592(7854): 376-380.
- [21] Liu Z, Vaswani C, Yang X, et al. Ultrafast control of excitonic rashba fine structure by phonon coherence in the metal halide perovskite $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ [J]. *Physical Review Letters*, 2020, 124(15): 157401.
- [22] Li X, Qiu T, Zhang J H, et al. Terahertz field-induced ferroelectricity in quantum paraelectric SrTiO_3 [J]. *Science*, 2019, 364(6445): 1079-1082.
- [23] Greschner A A, Ropagnol X, Kort M, et al. Room-temperature and selective triggering of supramolecular DNA assembly/disassembly by nonionizing radiation[J]. *Journal of the American Chemical Society*, 2019, 141(8): 3456-3469.
- [24] Tachizaki T, Sakaguchi R, Terada S, et al. Terahertz pulse-altered gene networks in human induced pluripotent stem cells[J]. *Optics Letters*, 2020, 45(21): 6078-6081.
- [25] Berry C W, Wang N, Hashemi M R, et al. Significant performance enhancement in photoconductive terahertz optoelectronics by incorporating plasmonic contact electrodes[J]. *Nature Communications*, 2013, 4: 1622.
- [26] Beaupaire E, Merle J C, Daunois A, et al. Ultrafast spin dynamics in ferromagnetic nickel[J]. *Physical Review Letters*, 1996, 76(22): 4250-4253.
- [27] Battiato M, Carva K, Oppeneer P M. Superdiffusive spin transport as a mechanism of ultrafast demagnetization [J]. *Physical Review Letters*, 2010, 105(2): 027203.
- [28] Kampfrath T, Battiato M, Maldonado P, et al. Terahertz spin current pulses controlled by magnetic heterostructures[J]. *Nature Nanotechnology*, 2013, 8(4): 256-260.
- [29] 金钻明, 郭颖钰, 季秉煜, 等. 超快太赫兹自旋光电子学研究进展(特邀)[J]. *光子学报*, 2022, 51(7): 0751410.
- Jin Z M, Guo Y Y, Ji B Y, et al. Development of ultrafast spin-based terahertz photonics(invited)[J]. *Acta Photonica Sinica*, 2022, 51(7): 0751410.
- [30] Seifert T, Jaiswal S, Martens U, et al. Efficient metallic spintronic emitters of ultrabroadband terahertz radiation [J]. *Nature Photonics*, 2016, 10(7): 483-488.
- [31] Kong D Y, Wu X J, Wang B, et al. Broadband spintronic terahertz emitter with magnetic-field manipulated polarizations[J]. *Advanced Optical Materials*, 2019, 7(20): 1900487.
- [32] Wang B, Shan S Y, Wu X J, et al. Picosecond nonlinear spintronic dynamics investigated by terahertz emission spectroscopy[J]. *Applied Physics Letters*, 2019, 115(12): 121104.
- [33] Chen X H, Wang H T, Wang C, et al. Efficient generation and arbitrary manipulation of chiral terahertz waves emitted from Bi_2Te_3 -Fe heterostructures[J]. *Advanced Photonics Research*, 2021, 2(4): 2000099.
- [34] Liu S J, Guo F W, Li P Y, et al. Nanoplasmonic-enhanced spintronic terahertz emission[J]. *Advanced Materials Interfaces*, 2022, 9(2): 2101296.
- [35] Chen X H, Wang H T, Liu H J, et al. Generation and control of terahertz spin currents in topology-induced 2D ferromagnetic $\text{Fe}_3\text{GeTe}_2/\text{Bi}_2\text{Te}_3$ heterostructures[J]. *Advanced Materials*, 2022, 34(9): 2106172.
- [36] Liu S J, Lu C H, Fan Z Q, et al. Modulated terahertz generation in femtosecond laser plasma filaments by high-field spintronic terahertz pulses[J]. *Applied Physics Letters*, 2022, 120(17): 172404.
- [37] Li P Y, Liu S J, Liu Z, et al. Laser terahertz emission microscopy of nanostructured spintronic emitters[J]. *Applied Physics Letters*, 2022, 120(20): 201102.
- [38] Cocker T L, Jelic V, Hillenbrand R, et al. Nanoscale terahertz scanning probe microscopy[J]. *Nature Photonics*, 2021, 15(8): 558-569.
- [39] Plankl M, Faria P E, Jr, Mooshammer F, et al. Subcycle contact-free nanoscopy of ultrafast interlayer transport in atomically thin heterostructures[J]. *Nature Photonics*, 2021, 15(8): 594-600.
- [40] 叶鑫林, 游冠军. 单层 MoS_2 和 WS_2 的太赫兹近场显微成像研究[J]. *光学仪器*, 2022, 44(1): 63-69.
- Ye X L, You G J. Terahertz near-field microscopic imaging study of monolayer MoS_2 and WS_2 [J]. *Optical*

- Instruments, 2022, 44(1): 63-69.
- [41] Hu X T, Zhou L, Wu X, et al. Review on near-field detection technology in the biomedical field[J]. *Advanced Photonics Nexus*, 2023, 2(4): 044002.
- [42] Eisele M, Cocker T L, Huber M A, et al. Ultrafast multi-terahertz nano-spectroscopy with sub-cycle temporal resolution[J]. *Nature Photonics*, 2014, 8(11): 841-845.
- [43] Huber M A, Mooshammer F, Plankl M, et al. Femtosecond photo-switching of interface polaritons in black phosphorus heterostructures[J]. *Nature Nanotechnology*, 2017, 12(3): 207-211.
- [44] Klarskov P, Kim H, Colvin V L, et al. Nanoscale laser terahertz emission microscopy[J]. *ACS Photonics*, 2017, 4(11): 2676-2680.
- [45] Pizzuto A, Ma P C, Mittleman D M. Near-field terahertz nonlinear optics with blue light[J]. *Light: Science & Applications*, 2023, 12: 96.