拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 中的太赫兹磁光电流探测其拓扑表面态

Chihun In，[1,2,*] Genaro Bierhance，[1,2] Deepti Jain，[3] Tom S. Seifert，[1] Oliver Gueckstock，[1] Roberto Mantovan，[4] Seongshik Oh，[3,5] Tobias Kampfrath[1,2]

[1]物理系及哈雷-柏林-雷根斯堡卓越集群 CCE，柏林自由大学，德国柏林 14195

[2]物理化学系，马克斯·普朗克学会弗里茨·哈伯研究所，德国柏林 14195

[3]物理与天文学系，罗格斯新泽西州立大学，美国新泽西州皮斯卡塔韦 08854

[4]CNR-IMM，阿格拉泰布里安扎分部，意大利阿格拉泰布里安扎 20864

[5]量子材料合成中心，罗格斯新泽西州立大学，美国新泽西州皮斯卡塔韦 08854

*inc@zedat.fu-berlin.de

摘要。 我们研究了三维拓扑绝缘体中的超快磁光电流。为此，我们在外加磁场存在的条件下，用飞秒激光脉冲激发 $(In_rBi_{1-r})_2Se_3$ 薄膜；磁场平行于薄膜平面，强度最高可达 $0.3\ \mathrm{T}$。通过探测发射的太赫兹（THz）电磁脉冲，我们测量了由此产生的面内光电流。该电流与 $\boldsymbol{B}_{\mathrm{ext}}$ 成线性关系，且垂直于 $\boldsymbol{B}_{\mathrm{ext}}$。值得注意的是，当 $r \geq 4\%$ 时，我们观察到光电流骤然减小，这与拓扑表面态的铟诱导的淬灭密切相关。太赫兹磁光电流的上升时间、衰减时间和振幅，都可以用以下情景一致地解释：光激发的自旋极化电子向薄膜表面传播，累积的自旋因自旋-速度锁定而转换为面内电荷电流。我们的研究对于在具有顺磁性而非自发磁有序的系统中无接触探测自旋-电荷转换具有重要意义。

诸如 Bi_2Se_3, 、Bi_2Te_3 和 Sb_2Te_3 等三维拓扑绝缘体（TI），无论在基础研究还是应用方面，都是引人入胜的材料 [1–5]。理想 TI 的体内具有绝缘性，而其表面则存在拓扑保护电子表面态（TSS），具有高电导率和自旋-速度锁定特性。由于 TSS 能够实现高效的自旋到电荷流转换（SCC）[6–11]，，拓扑绝缘体在自旋电子学应用方面备受关注。应用实例包括通过电流切换磁有序 [12–15]，以及由飞秒自旋输运产生太赫兹（THz）电磁脉冲 [16–19]。

然而，在这些研究中的许多项里，[8,12,13,16]，拓扑绝缘体与铁磁体或亚铁磁体接触，而它们对拓扑绝缘体表面态的影响仍未明了 [20]。因此，人们迫切需要无需额外扰动层即可探测拓扑绝缘体中自旋-电荷转换的方法。

在本研究中，我们使用飞秒光ti脉冲驱动模型拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 薄膜中的光电流，并施加外部静ti态面内磁ti场 $\boldsymbol{B}_{\mathrm{ext}}$ [图 1(a)]。通过探ti测产生的太ti赫兹发射，我们发现面内光电流的振幅与 ti成正比$\boldsymbol{B}_{\mathrm{ext}}$，且方向与 ti垂直$\boldsymbol{B}_{\mathrm{ext}}$。值得注意的是，当铋中有 20% 被铟取代且拓扑表面态被淬灭时，磁光电流的振幅下降超过 95%。

我们可以用以下情景一致地解释我们的观测结果：光脉冲激发出面外电流，其自旋极化为 $\sim 0.3\%$，这是由于 Bi_2Se_3 [21,22] 的泡利型顺磁性。当电流到达表面时，它会转换为面内电荷电流。由于 Bi_2Se_3 [16–19] 中的 SCC 较大，观测到的电荷电流也相当显著。我们的结果对于无接触探测具有顺磁性而非自发磁有序材料及样品系统中的 SCC 极具意义。

样品。 我们的 Bi_2Se_3 薄膜（厚度为 $d = 10\text{-}50$ 五层单元，其中 1 五层单元 $= 1$ 五层单元 ≈ 1 nm）通过分子束外延生长在 Al_2O_3 衬底（厚度为 0.5 mm）上，并覆盖一层硒层（20 nm）以提供保护。我们还研究了 $(In_rBi_{1-r})_2Se_3$（30 五层单元）薄膜，其拓扑表面态已知在铟含量为 $r > 7\%$ [23–25] 时会消失。

Identiically grown samples were characterized extensively in previous works [23,26,27]. In parti ticular, 角分辨光电子能谱 (ARPES) [28] revealed that the 费米能 ϵ_{F} is located15 meV above the bott ttom of the 体内 conductition band, corresponding to about 0.4 eV above the 拓扑表面态狄拉克点. Our 太赫兹霍尔测量 (Supplemental Sectition I) are consistent with previous 直流结果 [23,26] and show an impact of r on the conductition-electron density.

太赫兹装置。在我们的装置中，沿着y 轴施加外部磁场tic field $\boldsymbol{B}_{\mathrm{ext}} = B_{\mathrm{ext}}\boldsymbol{u}_y$，其大小最高可达 0.3 T，单位矢量$\boldsymbol{u}_y$ 平行于拓扑绝缘体薄膜平面 [图 1(a)]。样品由从衬底一侧垂直入射的飞秒激光脉冲激发，从而在拓扑绝缘体中产生密度为$\boldsymbol{j}(z,t)$的光电流。该电流会产生电磁脉冲，其频率延伸至太赫兹范围。太赫兹电场通过在 1 -mm -厚的 ZnTe(110)窗口中进行电光采样来表征。沿$\boldsymbol{u}_x$ 和$\boldsymbol{u}_y$ 方向的太赫兹场分量分别产生电光信号$S_x(t, B_{\mathrm{ext}})$和$S_y(t, B_{\mathrm{ext}})$。所有测量（图 1-3，补充材料第tiII-IV 节）均在干燥空气环境下的环境条件中进行。

光电流及其贡献ti。太赫兹信号S_x 可用于反推出在样品内部流动的光电流面密度$J_x(t) = \boldsymbol{J}(t) \cdot \boldsymbol{u}_x\, \boldsymbol{J}(t) = \int \mathrm{d}z\, \boldsymbol{j}(z,t)$[图 1(a)] [29]。

请注意，非零$\boldsymbol{J}$（t）要求样品具有反演不对称性（IA）。在此，我们重点研究由样品本征反演不对称性（SIA）引起的面内磁光电流。为尽量减少光诱导反演不对称性造成的贡献ti，

（LIA），尤其ti是由样品内部的泵浦强度梯度引起的贡献，我们采用厚度小于 50 nm 的薄膜。较厚样品的数据见补充材料第tiIV 节。

为尽量减小来自（i）z 方向光电流和（ii）面内移ft 光电流的信号，我们（i）选择近乎正入射的泵浦光，并（ii）将 Bi_2Se_3(111)面的一个镜面对称轴设置为平行于$\boldsymbol{u}_y$ [图 S3(a)] [30]。

典型的太赫兹发射数据。图 1(b)显示了 Bi$S_x(t,\ B_{\rm ext})$Se$_{23}$(16 个五层单元）在外加磁场方向相反时的典型太赫兹波形ti向ti，磁场强度为$B_{\rm ext} = \pm 0.3$ T。值得注意的是，当ti反向时，信号几乎完全 $B_{\rm ext}$ 反转。

形式上，可以将太赫兹信号 $S_x(t,\ \pm B_{\rm ext}) = S_{x+}(t) \pm S_{x-}(t)$表示为在 $B_{\rm ext}$ 反转下的偶分量（S_{x+}）和奇分量（S_{x-}）。换言之，

$$S_{x\pm}(t) = \frac{S_x(t, +B_{\rm ext}) \pm S_x(t, -B_{\rm ext})}{2}. \qquad (1)$$

下文中，我们关注关于$B_{\rm ext}$ 的奇$S_{x-}(t)$ [图 1(c)]，因为它源于随磁ti场变化的光电流，即磁光电流。

我们发现：(i) S_{x-} 沿 $\boldsymbol{u}_x$ 的信号约比沿 $\boldsymbol{u}_y$ [的太赫兹信号大 50 ti 倍S_{y-}]。因此，相关光电流 $\boldsymbol{J}(t)$ 与外加磁ti场$\boldsymbol{B}_{\rm ext} = B_{\rm ext}\boldsymbol{u}_y$垂直。(ii) 样品旋转 180° 后，$S_{x-}$ 几乎完全反向[7]，因此主要源于结构反演不对称性。此外，(iii) S_{x-} 与 $B_{\rm ext}$ [ti成正比]，也与泵浦功率 [成正比]，；但 (iv) 它不受 Bi_2Se_3 方位角 [或泵浦偏振ti的影响] []。(vi) 硒层的存在仅使 $S_{x-}(t)$ 发生轻微变化（图 S5）。

(vii) 偶于$B_{\rm ext}$ 部分 $S_{x+}(t)$与$B_{\rm ext}$ 无关，因此等于$S_x(t)$，对于$B_{\rm ext} = 0$ T也是如此。换句话说，S_{x-} 和S_{x+} 的起源截然不同。事实上，S_{x+} 主要源于移位ft电流[30]，，其相当大的振幅仍然存在，这是因为 Bi_2Se_3 镜轴并未与$\boldsymbol{u}_y$ (补充材料第tiII-A 节).

(viii) 任意沿z 方向的光电流$J_z(t)$都通过ti旋转ti样品来检测，使得$J_z(t)$部分ti投影到电光学探测器平面ti上ti。[30]由于$J_z(t)$随$B_{\rm ext}$变化非常微弱，因此无法ti与移位ft 电流区分开（补充材料第tiVI 节）。

$\boldsymbol{r}$ 的影响。为深入了解驱动$S_{x-}(t)$的磁光电流$J_{x-}(t)$的起源，我们测量了$S_{x-}(t)$，样品为$(In_rBi_{1-r})_2Se_3$(30 个五层单元)，见[图 2(a)-(e)]，磁场为$B_{\rm ext} = \pm 0.3$ T。在这些薄膜中，以铟取代铋会通过用铟的 s 轨道和 p 轨道（$5s^25p^1$）取代铋的 p 轨道（$6p^3$），并削弱自旋轨道耦合[23]，从而改变拓扑表面态。事实上，对同一批次样品进行的先前 ARPES 测量[25] 证实，拓扑表面态带隙会打开，见$r > 7\%$ [图 2(f)-(j)]。

图 2(a)–(e)显示，对于所有 r[图 S6(c)]，太赫兹发射信号 $S_{x-}(t)$ 的形状大致相同。相比之下，其振幅分别骤降至 71%、42% 和 4%，对应于 r 从 7% 增至 10% 再增至 20%。值得注意的是，$S_{x-}(t)$[图 2(a)–(e)] 中振幅的单调下降，与 ARPES 能谱[图 2(f)–(j)] 中拓扑表面态强度的减弱密切相关。

影响d。最后，我们改变 Bi_2Se_3 的厚度d，使其从 10 个五层单元增加到50 个五层单元。太赫兹信号波形$S_{x-}(t)$的形状随之显著变化d [图 3(a)]。与此同时，太赫兹信号的符号ti也

在样品绕y轴旋转 180° 后反转（图 S7）。图 3(b)显示了完全由样品的结构反演不对称性（SIA）产生的信号振幅（补充材料第tiIV 节）。振幅随厚度增加，直至$d = 30$ 个五层单元，但值得注意的是，在更大厚度下趋于饱和。

从ti中提取电荷电流面密度$J_{x-}(t)$的动态过程$S_{x-}(t)$[图 3(c)] [29]。值得注意的是，随着d 从 10 五层单元增加至30 五层单元和50 五层单元，$J_{x-}(t)$的上升和衰减显著变慢。

解读ti。我们的太赫兹发射数据表明了五项关键发现：（F1）磁光电流$J_{x-}\boldsymbol{u}_x$ 垂直于 $\boldsymbol{B}_{\mathrm{ext}} = B_{\mathrm{ext}}\boldsymbol{u}_y$ ，并随B_{ext} [线性增长]图 1(d)]。（F2）随着（In_rBi_{1-r}）$_2Se_3$ 中的铟含量上升，J_{x-} 骤然下降[图 2(a)-(e)]，且 ARPES 能谱中的拓扑表面态强度被淬灭 [图 2(f)-(j)]。（F3）J_{x-} 与线性泵浦偏振的方向无关titi[图 S3(d)]。（F4）样品旋转 180° 后，太赫兹信号的符号发生变化[图 1(c) 和 S7]。（F5）J_{x-} 的弛豫titi时间随样品厚度增加。

发现（F1）表明，磁光电流源于霍尔效应型物理机制，即沿z 轴的初级电流j_z ，随后转换为沿x 方向的电荷电流j_x[图 4(a)]。发现（F2）表明，这种转换与TSS有关，因而也与SCC有关。这与泵浦条件的改变无关，因为（In_rBi_{1-r}）$_2Se_3$（30 五层单元）的泵浦吸收率在 $r \geq 7\%$至[%之间保持不变]图 S6(a)ft 。发现（F3）表明，ti电流对J_{x-} 的贡献很小。发现（F4）意味着，该信号主要源于未激发样品的SIA，而不是沿z 轴的泵浦强度梯度；后者可能例如诱导温度梯度，从而产生类塞贝克电流[31]。发现（F5）表明，该信号涉及贯穿拓扑绝缘体厚度的电荷载流子。

为解释我们的发现，我们考虑两种情景（A）和（B）。简而言之，情景（A）和（B）都依赖于一股体电子电流 j_z ，该电流由 Bi_2Se_3 薄膜中的面外空间电荷场驱动，见[图 4(a)]。在情景（A）中，j_z 被B_{ext}自旋极化。其在 Bi_2Se_3 表面的自旋-电荷转换（SCC）[32] 产生表面电流 j_x。在情景（B）中，普通霍尔效应（ordHE）将j_z 转换为体内电流 $j_x \propto B_{\mathrm{ext}}$ [33]。尽管两种情景都符合信号 $S_{x-}(t)$ 的对称性特征ti，但情景（A）对我们发现的定量特征ti的解释明显更好ttti。我们首先讨论情景（A），随后探讨机制（B）可能产生的贡献ti。

情景（A）。图 4(a) 概述了这一思路：(A1) 外部磁ti场$\boldsymbol{B}_{\mathrm{ext}}$ 会使 Bi_2Se_3 体电子产生微小但非零的自旋极化ti$P_{\mathrm{s}} \propto B_{\mathrm{ext}}$。(A2) 光激发ti与 Bi_2Se_3 薄膜内建的空间电荷场共同作用，使电子电流 $j_z\boldsymbol{u}_z$ 携带自旋极化ti P_{s} 并朝向 Bi_2Se_3/空气界面。(A3) 伴随产生的自旋流密度$j_{\mathrm{s}} = j_zP_{\mathrm{s}}$会诱导拓扑表面态产生自旋极化占据ti。由于自旋-速度锁定，会产生一个面密度为 J_{x-} 且垂直于 B_{ext} 的电荷电流。事实上，众所周知，拓扑表面态具有较高的 SCC效率[34]。下文将基于一个简单的分析ti模型，讨论步骤 (A1)–(A3) 的合理性。

(A1) 我们假设存在泡利顺磁性ti，其中外部磁ti场使 Bi_2Se_3 体内的自旋向上能带和自旋向下能带发生能量为 $\pm g_{\mathrm{s}}\mu_{\mathrm{B}}B_{\mathrm{ext}}$ 的移动。这里，$g_{\mathrm{s}} \approx 2$ 是自由电子的 g因子，μ_{B} 是玻尔磁子。诱导自旋密度 $N_\uparrow - N_\downarrow = g_{\mathrm{s}}\mu_{\mathrm{B}}B_{\mathrm{ext}}D_{\mathrm{e}}(\epsilon_{\mathrm{F}})$ 与费米能 ϵ_{F}处的电子态密度 D_{e} 成正比。对于我们的样品，已知的能带结构 [35,36]和已知的 $\epsilon_{\mathrm{F}} \sim 15$ meV [26] 意味着，在$B_{\mathrm{ext}} = 0.3$ T 下，自旋极化为 $P_{\mathrm{s}} = (N_\uparrow - N_\downarrow)/(N_\uparrow + N_\downarrow) \approx 0.3\%$。初始的泵浦诱导光激发自旋密度 $\Delta(N_\uparrow - N_\downarrow)_0 \sim 10^{22}$ m^{-3} ，可通过将激发电子密度 $\Delta(N_\uparrow + N_\downarrow)_0$ 乘以 P_{s}来估算。

(A2) Bi_2Se_3 沿z 轴存在内部空间电荷场 $\boldsymbol{E}_{\mathrm{SC}} = E_{\mathrm{SC}}\boldsymbol{u}_z$。它源于 Bi_2Se_3 界面处带正电的硒空位，并可用 $E_{\mathrm{SC}}(z) = -Z_0 ce n_0 z/\varepsilon_{\mathrm{DC}}$ [进行合理建模，见图 4(b) 和图 S10] [26,37,38]。这里，n_0 是空间电荷密度，Z_0 是真空阻抗，c 是真空中的光速，$\varepsilon_{\mathrm{DC}}$ 是静态介电函ti数。E_{SC}将光激发电子加速至局部漂移速度 $v_{\mathrm{e}}(z) = -\mu_{\mathrm{e}}E_{\mathrm{SC}}(z) = z/\tau_{j_z}$，其中$\mu_{\mathrm{e}} > 0$ 是体电子迁移率，并且

$$\tau_{j_z} = \frac{\varepsilon_{\mathrm{DC}}}{Z_0 ce\mu_{\mathrm{e}} n_0}. \tag{2}$$

由此产生的电流密度 $j_z(z,t) = \Delta(N_\uparrow + N_\downarrow)(t)v_{\mathrm{e}}(z)$ 及其动力学由光激发载流子的连续性方程和可能的弛豫过程决定（补充材料第 V 节）。在拓扑绝缘体/空气界面（$z = d$）处，我们得到 $j_z(d,t) = A_{j_z}\Theta(t)\mathrm{e}^{-t/\tau_{j_z}}$，其中 $A_{j_z} = \Delta(N_\uparrow + N_\downarrow)_0 d/\tau_{j_z}$，并且阶跃函数为 $\Theta(t)$。因此，τ_{j_z} 决定了电荷电流 j_z 以及自旋电流 $j_{\mathrm{s}} = j_z P_{\mathrm{s}}$的弛豫时间。同样，它也等于光激发电子向表面漂移所需的时间。

(A3) j_{s} 到达表面$z = d$ 会导致拓扑表面态中产生自旋累ti积；由于自旋-动量锁定，这会产生面内电荷电流，其面密度J_{x-} 正比ti于累积的自旋面密度[图 4(c)]。假设表面电流以拓扑表面态群速度流动v_{TSS}，并以ti时间常数τ_{TSS}衰减，可得

$$J_{x-}^{(\mathrm{A})}(t) = [H_{\mathrm{TSS}} * (j_z P_{\mathrm{s}})](t)|_{z=d}. \tag{3}$$

因此，$J_{x-}^{(\mathrm{A})}(t)$ 等于自旋电流 $j_{\mathrm{s}} = j_z P_{\mathrm{s}}$ 在 $z = d$ 与拓扑表面态弛豫函数 $H_{\mathrm{TSS}}(t) = v_{\mathrm{TSS}}\Theta(t)\mathrm{e}^{-t/\tau_{\mathrm{TSS}}}$ [39] 的卷积（$*$）。从右向左，方程（3）的三项概括了上述三个步骤：(A1) 自旋极化 $P_{\mathrm{s}} \propto B_{\mathrm{ext}}$、(A2) 光激发电子在空间电荷场中的漂移 [$j_z$, 图 4(b)], ，以及 (A3) 拓扑表面态中的自旋-电荷转换 [H_{TSS}, 图 4(c)]。

现在，我们将建模结果 $J_{x-}^{(\mathrm{A})}$ [式（3)] 与实验进行比较。若 $\tau_{\mathrm{TSS}} \ll \tau_{j_z}$, $J_{x-}^{(\mathrm{A})}$ 随时间常数 ti和 τ_{j_z} 分别呈指数上升和衰减。如图 3(c)所示，我们对测得的J_{x-} 波形拟合得非常好，其中 τ_{TSS}, τ_{j_z} 以及整体振幅缩放是相关的拟合参数。提取出的 $\tau_{\mathrm{TSS}} \approx 100$ fs 与先前 THz 电导测量[24,40]推断的数值一致。建模得到的（$v_{\mathrm{TSS}}\tau_{\mathrm{TSS}}A_{j_z}P_{\mathrm{s}} \approx 8$ A/m）与测得的峰值（≈ 5 A/m）面电流密度 J_{x-} 也吻合良好。

磁光电流的弛豫ti时间ti随拓扑绝缘体厚度d [呈线性增加J_{x-} ，如图 3(c)]插图所示。这一行为与 $\tau_{j_z} \propto 1/n_0$ [见公式 (2)] 以及空间电荷密度$n_0 = N_{\mathrm{SC}}/d$ （图 S10）一致，即持续ti时间τ_{j_z} 随d 增加。根据测得的τ_{j_z} 对d的斜率$\tau_{j_z}/d \approx 10$ fs/nm，我们推断$N_{\mathrm{SC}} \approx 1.3 \times 10^{12}$ cm^{-2}。这一估算结果与通过扫描隧道显微镜[27]获得的硒空位密度~ 10^{12} cm^{-2} 一致。

从 $(In_rBi_{1-r})_2Se_3$(30 五层单元) 中提取的衰减 τ_{j_z} of J_{x-} 对 r [Fig. S6(e)] 的依赖很弱。这一观测ti表明，空间电荷场在 r 下仍然持久存在。光电流弛豫tiontime 为 $\tau_{j_z} \leq 0.5$ ps，明显快于 Bi_2Se_3 [41] 的典型电子-空穴复合tion time（≈ 2 ps）。因此，在我们的电流轨迹 [图 3(c)] 中看不到后tt者。有趣的是，对于来自拓扑表面态的超快角分辨光电子能谱信号 [41], ，其延长的上升 time（≈ 0.5 ps）可以被解释为 τ_{j_z} 的特征指纹，因此也可视为光电流 j_z。

总之，我们发现观测到的动力学与模型预测的动力学、time 常数以及磁光电流面密度的大小 J_{x-} 吻合良好。这种一致性表明，情景（A）抓住了内在机制的关键特征。

情景（B）。 在这一两步情景中，泵浦诱导的（B1）面外驱ft 电荷电流 j_z 通过普通霍尔效应（ordHE）（B2）转换为横向电荷电流 [图 4(d)]。这种转换由霍尔角 $\gamma_{\boldsymbol{B}_{\mathrm{ext}}} \sim \mu_{\mathrm{e}} B_{\mathrm{ext}}$ 和体ti内ti电τ_{bulk}子的动量弛豫时间 [33]表征。所得到的ti面电流密度为

$$J_{x-}^{(\mathrm{B})}(t) = \left(H_{\mathrm{ordHE}} * \int \mathrm{d}z\, j_z\right)(t) \qquad (4)$$

其中 $H_{\mathrm{ordHE}}(t) = \left(\gamma_{\boldsymbol{B}_{\mathrm{ext}}}/\tau_{\mathrm{bulk}}\right)\Theta(t)\mathrm{e}^{-t/\tau_{\mathrm{bulk}}}$。该$z$ 积分ti之所以出现，是因为普通霍尔效应贯穿整个 Bi_2Se_3 的厚度。根据公式 (4)，$J_{x-}^{(\mathrm{B})}$ 分别以ti的时间常数指数式上升和衰减，ti和τ_{j_z}。这一形状与[图 3(c)]中的实验结果一致。此外，估ti计的峰值$J_{x-}^{(\mathrm{B})}$ （≈ 3 A/m）与≈ 5 测得的峰值电流（≈ 5 A/m）相当。

讨论。情景（B）与我们的实验数据相符，但对此应持谨慎态度。首先要指出，模型计算的 $J_{x-}^{(\mathrm{B})}$ 被高估了，因为我们的模型忽略了电子和空穴对$J_{x-}^{(\mathrm{B})}$ 的贡献符号相反[42]。其次，Bi_2Se_3 体内的德鲁德弛豫ti时间$\tau_{\mathrm{bulk}} = 37$ fs（表 S1）应决定$J_{x-}^{(\mathrm{B})}$ [式（4）] [33]的上升ti时间。相比之下，我们观察到，对于$r \leq 10\%$ 的 $(In_rBi_{1-r})_2Se_3$ [，J_{x-} 的上升 ti时间仍显著较长，为≈ 100 fs（图 S6(d) 和 S6(e)）]。

第三，也是最重要的一点，情景（A）和情景（B）中的面内电荷电流分别在 BitiSe₂表面₃ 上[式（3）] 和 Bi_2Se_3 体内[式（4）]产生。因此，光电流随样品厚度的变化在这两种情景下有所不同。如图 3(b)所示，情景（A）解释了光电流在 ti 个五层单元时的饱和现象 $d > 30$。相比之下，情景（B）意味着光电流随厚度准线性增长d （补充材料第tiIV 节）。这三点论据表明，情景（B）对观测到的磁光电流贡献较小。ti

情景（A）也与铟取代的影响相符（图 2）：随着 r 增加，太赫兹信号的幅度 S_{x-} [（图 2(a-e)）和角分辨光电子能谱中拓扑表面态强度 [（图 2(f-j)）均单调下降。从定性上看，这种相关性源于拓扑绝缘体表面的拓扑表面态对自旋-电荷转换贡献很大。从定量上看，要将拓扑表面态的角分辨光电子能谱强度转换为自旋-电荷转换强度并非易事。例如，当 $r = 10\%$ 时，狄拉克点已不可见 [（图 2(i)），而 S_{x-} 仍然相当显著 [（图 2(d)）。这一观察表明，即使没有拓扑表面态，也可能因界面反演不对称性和强自旋轨道耦合而存在自旋-速度锁定 [43]。当 $r = 20\%$ 时，自旋轨道耦合进一步减弱，导致太赫兹信号消失 [（图 2(e)）。

总之，我们在三维拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 中观测到了太赫兹磁光电流。它们可以一致地解释为：光激发电子产生的自旋极化面外电流在拓扑绝缘体表面通过自旋-电荷转换转化为面内电荷电流。有趣的是，在磁场 0.3 T 下，磁光电流仅比铁磁体 Co 与拓扑绝缘体 Bi_2Te_3 [34]，组成的叠层中的磁光电流小一个数量级，尽管顺磁性材料产生的面外自旋流显著小于光学加热铁磁体产生的面外自旋流。我们认为，这一相对较大的幅度源于从 Bi_2Se_3 体内向拓扑表面态进行的高效自旋注入。

重要的是，从应用角度来看，太赫兹磁光电流使我们能够表征拓扑表面态的 SCC效率，而无需连接可能强烈扰动拓扑绝缘体的铁磁体薄膜。我们预计，这种方法可以推广到其他三维拓扑绝缘体，以研究其自旋-电荷转换能力。更广泛地说，我们的方法对于测量具有顺磁性而非自发磁有序的材料和样品体系中的自旋-电荷转换很有意义。因此，它大幅拓展了自旋电子学太赫兹发射的应用范围，并可能推动无铁磁体自旋电子学太赫兹发射器 [44] 的发展。

致谢

C.I. 获得韩国国家研究基金会资助（基金编号：2021R1A6A3A14044225）。D.J. 和 S.O. 获得陆军研究办公室项目 W911NF2010108 和多学科大学研究计划项目 W911NF2020166 的资助。G.B.、T.S.S. 和 T.K. 感谢欧洲研究委员会通过 ERC-2023高级资助项目 ORBITERA（基金编号：101142285）、欧盟H2020计划通过 FET项目 SKYTOP（基金编号：824123），以及德国研究联合会（DFG，德国研究基金会）通过协作研究中心 SFB TRR 227“超快自旋动力学”（项目编号：328545488；项目 A05 和 B02）和卓越集群 EXC 3112“手性电子学中心”（EXC 3112/1，项目编号：533767171）提供的资助。

参考文献

[1] *Q. L. He*、*T. L. Hughes*、*N. P. Armitage*、*Y. Tokura* 和 *K. L. Wang*，《拓扑自旋电子学与磁电子学》，《自然·材料》*21*，*15*（*2022*年）。[2] *H. Wang* 等，《拓扑绝缘体诱导二维范德华 Fe_3GeTe_2 中的室温高能效自旋轨道力矩开关》，《自然·通讯》*14*，*5173*（*2023*年）。[3] *D. Chaudhuri*、*M. Salehi*、*S. Dasgupta*、*M. Mondal*、*J. Moon*、*D. Jain*、*S. Oh* 和 *N. P. Armitage*，《超低载流子密度拓扑绝缘体的双极性磁光响应》，《物理评论*B*》*103*，*L081110*（*2021*年）。[4] *R. Fujimura*、*R. Yoshimi*、*M. Mogi*、*A. Tsukazaki*、*M. Kawamura*、*K. S. Takahashi*、*M. Kawasaki* 和 *Y. Tokura*，《拓扑绝缘体 $(Bi,Sb)_2Te_3$ 与范德华铁磁体 Fe_3GeTe_2 之间电荷转移界面处的电流诱导磁化翻转》，《应用物理快报》*119*，*032402*（*2021*年）。[5] *P. He*、*S. S. L. Zhang*、*D. Zhu*、*S. Shi*、*O. G. Heinonen*、*G. Vignale* 和 *H. Yang*，《非线性平面霍尔效应》，《物理评论快报》*123*，*16801*（*2019*年）。[6] *H. Soifer* 等，《拓扑绝缘体中光电流的能带分辨成像》，《物理评论快报》*122*，*167401*（*2019*年）。[7] *K. N. Okada*、*N. Ogawa*、*R. Yoshimi*、*A. Tsukazaki*、*K. S. Takahashi*、*M. Kawasaki* 和 *Y. Tokura*，《通过费米能调控增强拓扑绝缘体中的光生伏打电流》，《物理评论*B*》*93*，*081403(R)*（*2016*年）。[8] *M. Jamali*、*J. S. Lee*、*J. S. Jeong*、*F. Mahfouzi*、*Y. Lv*、*Z. Zhao*、*B. K. Nikolić*、*K. A. Mkhoyan*、*N. Samarth* 和 *J. P. Wang*，《拓扑绝缘体 Bi_2Se_3 中表面与体自旋轨道耦合作用下的巨自旋泵浦和逆自旋霍尔效应》，《纳米快报》*15*，*7126*（*2015*年）。[9] *S. Zhang* 和 *A. Fert*，《利用拓扑绝缘体实现自旋流与电荷流之间的转换》，《物理评论*B*》*94*，*184423*（*2016*年）。[10] *E. Longo*、*L. Locatelli*、*P. Tsipas*、*A. Lintzeris*、*A. Dimoulas*、*M. Fanciulli*、*M. Longo* 和 *R. Mantovan*，《利用 Sb_2Te_3/Bi_2Te_3 拓扑绝缘体异质结构中费米能级向狄拉克点附近的移动实现自旋-电荷转换》，《*ACS*应用材料与界面》*15*，*50237*（*2023*年）。[11] *E. Longo* 等，《在硅上化学生长的外延 Sb_2Te_3 拓扑绝缘体中实现室温高效自旋 - 电荷转换》，《先进功能材料》*32*，*2109361*（*2022*年）。[12] *A. R. Mellnik* 等，《拓扑绝缘体产生的自旋转移力矩》，《自然》*511*，*449*（*2014*年）。[13] *Y. Wang* 等，《通过自旋轨道力矩实现拓扑绝缘体-铁磁体异质结构中的室温磁化翻转》，《自然·通讯》*8*，*1364*（*2017*年）。[14] *H. Wu* 等，《来自拓扑表面态的室温自旋轨道力矩》，《物理评论快报》*123*，*207205*（*2019*年）。[15] *H. Wang*、*J. Kally*、*J. S. Lee*、*T. Liu*、*H. Chang*、*D. R. Hickey*、*K. A. Mkhoyan*、*M. Wu*、*A. Richardella* 和 *N. Samarth*，《拓扑绝缘体-铁磁绝缘体异质结构中由表面态主导的自旋-电荷流转换》，《物理评论快报》*117*，*076601*（*2016*年）。

[16] X. Wang 等，《拓扑绝缘体薄膜表面的超快自旋到电荷转换》，《先进材料》30，1802356（2018年）。[17] E. Rongione 等，《通过太赫兹发射光谱探测 $SnBi_2Te_4/Co$ 拓扑绝缘体界面的超快自旋-电荷转换》，《先进光学材料》10，2102061（2022年）。[18] H. Park 等，《通过自旋电子太赫兹光谱观测到超薄 Bi_2Se_3 中增强的自旋到电荷转换效率》，《ACS应用材料与界面》13，23153（2021年）。[19] X. Chen 等，《拓扑诱导的二维铁磁性 FetiGeTetiBi3Te2|异质结构中太赫兹自旋流的产生与控制》，《先进材料》34，2106172（2022年）。2A. Manchon、J. Železný、I. M. Miron、T. Jungwirth、J. Sinova、A. Thiaville、K. Garello 和 P. Gambardella，《铁磁与反铁磁系统中的电流诱导自旋轨道力矩》，《现代物理评论》91，035004（2019年）。3 A. Wolos 等，《三维拓扑绝缘体 Bi[20] Seti中的导电电子与空穴的 g 因子》，《物理评论B》93，155114（2016年）。tiO. Ly 和 D. M. Basko，《体相拓扑绝缘体 BitiSe[21] 、BitiTe2和 Sb3 Te[22] 中的电子自旋共振理论》，《凝聚态物理杂志》28，155801（2016年）。2M. Brahlek、N. Bansal、N. Koirala、S. Y. Xu、M. Neupane、C. Liu、M. Z. Hasan 和 S. Oh，《(Bi3,In2)3 Se2薄膜中的拓扑金属到带绝缘体转变》，《物理评论快报》109，186403（2012年）。3, L. Wu、M. Brahlek、R. Valdés Aguilar、A. V Sttер、C. M. Morris、Y. Lubashevsky、L. S. Bilbro、N. Bansal、S. Oh 和 N. P. Armitage，《(Bi[23] Inti)1-xSex中跨越拓扑相变的输运寿命骤降》，《自然·物理》9，410（2013年）。2C. Heide 等，《利用高次谐波产生探测拓扑相变》，《自然·光子学》16，620（2022年）。3 N. Bansal、Y. S. Kim、M. Brahlek、E. Edrey 和 S. Oh，《拓扑绝缘体 BittSe[24] 薄膜中与厚度无关的输运通道》，《物理评论快报》109，116804（2012年）。tiN. Koirala 等，《通过界面工程在拓扑绝缘体薄膜中实现创纪录的表面态迁移率和量子霍尔效应》，《纳米快报》15，8245（2015年）。tiY. Cao 等，《绘制三维拓扑绝缘体表面态的轨道波函数》，《自然·物理》9，499（2013年）。tiT. S. Seifert 等，《太赫兹光谱揭示自旋塞贝克效应的飞秒形成动力学》，《自然·通讯》9，2899（2018年）。1-xL. Braun、G. Mussler、A. Hruban、M. Konczykowski、T. Schumann、M. Wolf、M. Münzenberg、L. Perfex和 T. Kampfrath，《三维拓扑绝缘体 Bi_2Se_3, 表面的超快光电流》，《自然·通讯》7，13259（2016年）。[25] K. Takahashi、T. Kanno、A. Sakai、H. Tamaki、H. Kusada 和 Y. Yamada，《通过超快调控热电薄膜中的热电转换产生太赫兹辐射》，《先进光学材料》2，428（2014年）。tiT. Kampfrath 等，《由磁性异质结构控制的太赫兹自旋流脉冲》，《自然·纳米技术》8，256（2013年）。tiJ. Shan、T. F. Heinz、C. Weiss、R. Wallenstein 和 R. Beigang，《半导体表面产生太赫兹辐射时磁场增强的起源》，《光学快报》26，849（2001年）。

[34] G. Bierhance 等，《拓扑绝缘体-铁磁体异质结构中逆埃德尔斯坦效应的太赫兹时域特征》，arXiv:2506.22327（2025年）。|D. Hsieh 等，《在 Bi[35] Teti和 Sb_2Te_3 中观测到受时间反演保护的单狄拉克锥拓扑绝缘体态》，《物理评论快报》103，146401（2009年）。$_2$D. Hsieh 等，《自旋螺旋狄拉克输运区间中的可调谐拓扑绝缘体》，《自然》460，1101（2009年）。$_3$, J. W. McIver、D. Hsieh、S. G. Drapcho、D. H. Torchinsky、D. R. Gardner、Y. S. Lee 和 N. Gedik，《拓扑绝缘体 BittSe[36] 表面二次谐波产生的理论与实验研究》，《物理评论B》86，035327（2012年）。[37] D. Hsieh、J. W. McIver、D. H. Torchinsky、D. R. Gardner、Y. S. Lee 和 N. Gedik，《探测拓扑绝缘体上可调谐表面电子的非线性光学方法》，《物理评论快报》106，057401（2011年）。tiJ. Reimann 等，《在拓扑表面能带中对光波驱动狄拉克电流的亚周期观测》，《自然》562，396（2018年）。tiR. V. Aguilar 等，《拓扑绝缘体 Bi_2Se_3, 表面态的太赫兹响应与巨大克尔旋转》，《物理评论快报》108，087403（2012年）。[38] Y. H. Wang、D. Hsieh、E. J. Sie、H. Steinberg、D. R. Gardner、Y. S. Lee、P. Jarillo-Herrero 和 N. Gedik，《利用时间分辨与角分辨光电子能谱测量拓扑绝缘体 BitiSett表面本征狄拉克费米子的冷却》，《物理评论快报》109，127401（2012年）。[39] L. G. Zhu、B. Kubera、K. Fai Mak 和 J. Shan，《表面态对 BitiSe[40] 表面太赫兹发射的影响》，《科学报告》5，10308（2015年）。tiG. Bihlmayer、P. Noël、D. V. Vyalikh、E. V. Chulkov 和 A. Manchon，《凝聚态中的类拉什巴物理》，《自然评论：物理》4，642（2022年）。$_2$T. S. Seifert、L. Cheng、Z. Wei、T. Kampfrath 和 J. Qi，《超短太赫兹电磁脉冲的自旋电子学源》，《应用物理快报》120，180401（2022年）。

图

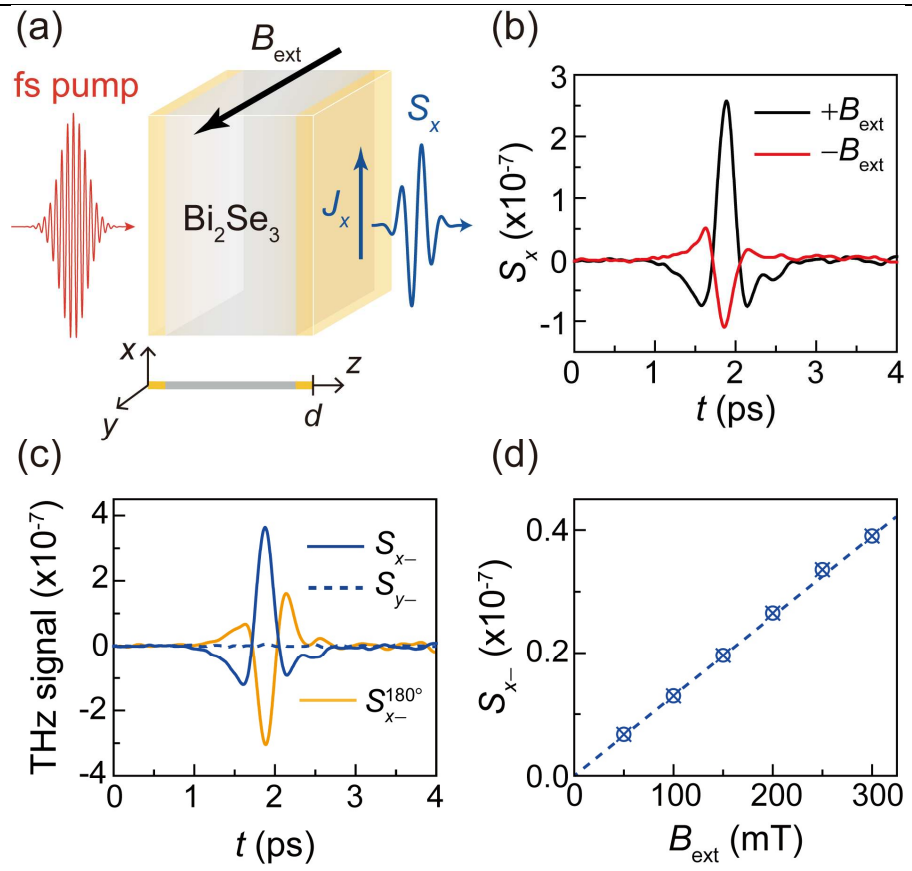

图 1. (a) 实验示意图。飞秒（fs）激光脉冲驱动超快在拓扑绝缘体（TI）Bi_2Se_3（16 个五层单元）薄膜中产生的面密度为 $\boldsymbol{j}(z,\ t)$ 的光电流。通过检测由 $\boldsymbol{j}$ 发出的太赫兹（THz）电场，我们可以获取电流的动力学过程面电流密度 $\boldsymbol{J}(t) = \int \mathrm{d}z\, \boldsymbol{j}(z,\ t)$ 随 ti时间 t 的变化。外加磁场 $\boldsymbol{B}_{\mathrm{ext}} = B_{\mathrm{ext}}\boldsymbol{u}_y$，其幅值为 $B_{\mathrm{ext}} = 0.3\ \mathrm{T}$，方向平行于 y 轴。灰色和黄色区域表示 Bi_2Se_3 体内和拓扑保护表面态（TSS），分别。 (b) 典型的电光太赫兹信号 $S_x(t,\ \pm B_{\mathrm{ext}})$，对应于 x 偏振的太赫兹电场分量 [见图 (a)]。(c) 波形太赫兹电光信号 $S_{x-}(t)$ 和 $S_{y-}(t)$ 关于 B_{ext} [呈奇对称，见式 (1)]。信号 $S_{x-}^{180^\circ}(t)$ 来自180°翻转样品的信号已根据太赫兹透过衬底的传输进行了校正。(d) S_{x-} 的均方根振幅与 B_{ext} 的关系，以及线性拟合。

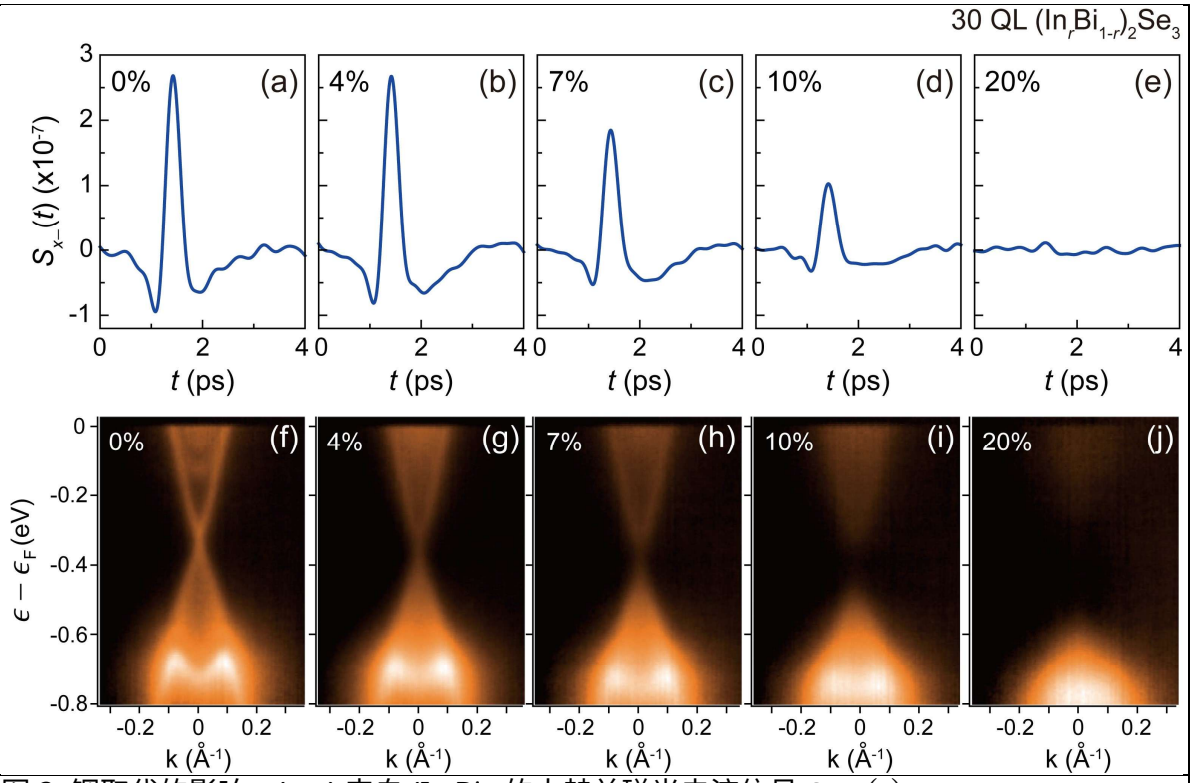

图 2. 铟取代的影响。(a-e) 来自 (In$_r$Bi$_{1-r}$)$_2$Se$_3$(30 个五层单元)，铟含量分别为 (a) $r = 0\%$、(b) 4%、(c) 7%、(d) 10% 和 (e) 20%。外加磁场的大小为 $|B_{\text{ext}}| = 0.3$ T。(f-j) 光电子发射强度随面内电子波矢 k 和能量 $\epsilon - \epsilon_F$ 的变化，来自相同的样品。光谱取自参考文献 [25]，对应 (f) $r = 0\%$、(g) 4%、(h) 7%、(i) 10% 和 (j) 20%，测量时未施加外加磁场。它们显示，TSS 在 $r > 7\%$ [25] 时消失。(f)–(j) 经许可改编自参考文献 [25], Springer Nature。

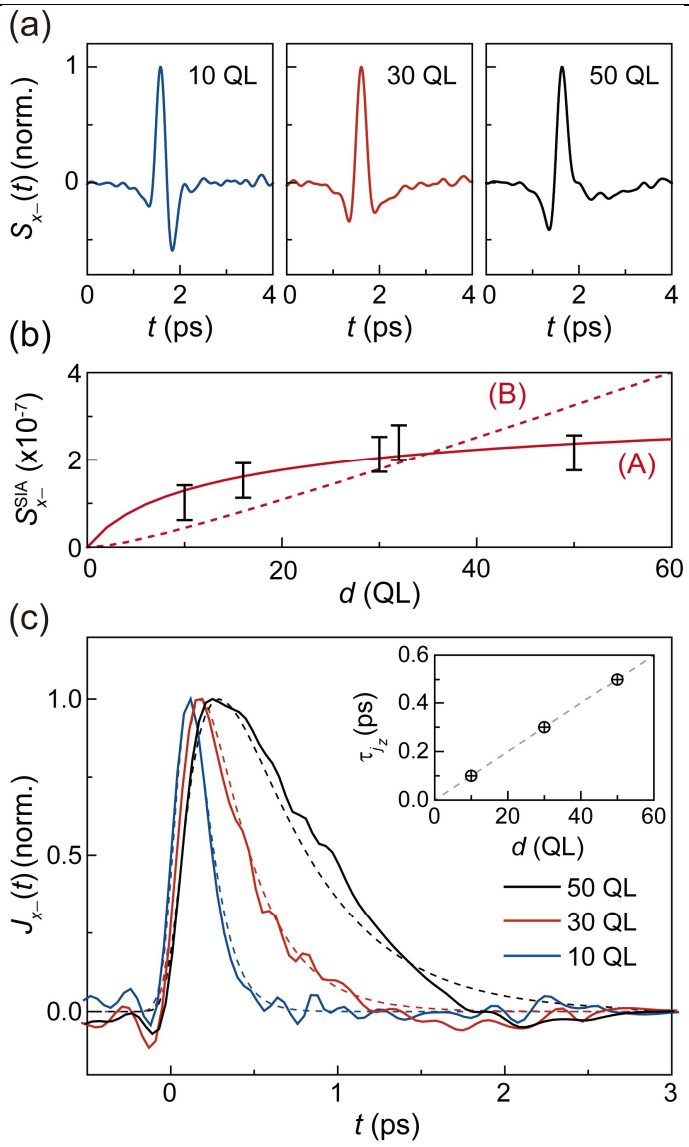

图 3. Bi_2Se_3 厚度变化。(a) $Bi_2Se_3(d)$ 在 $d = 10$、30 和 50 QL 下的太赫兹信号 $S_{x-}(t)$。信号归一化为 1。(b) 太赫兹信号 S^{SIA}_{x-} 的振幅，即 S_{x-} 中由样品结构反演不对称性引起的分量。图中还显示了基于模型情景（A）（红色实线）和情景（B）（红色虚线）的拟合结果。(c) 从 $S_{x-}(t)$ 中提取的太赫兹磁光电流面电流密度 $J_{x-}(t)$。虚线为数据拟合结果（见正文）。插图显示提取的光电流弛豫时间 τ_{j_z} 随 d 的变化。

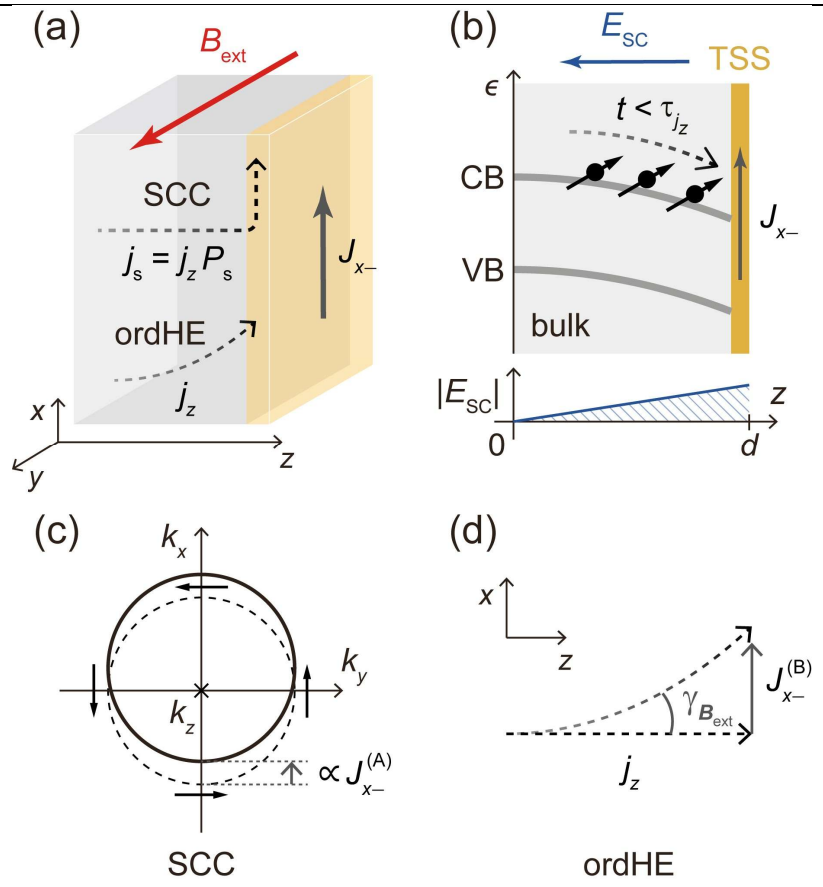

图 4. 超快磁光电流的两种假设情景（A）和（B）。（a）泵浦脉冲会触发密度为 j_z 的体电荷电流，以及密度为 $j_s = j_z P_s$ 和 $P_s \propto$ 的自旋电流 B_{ext}。两者都流向 Bi_2Se_3 表面。在（A）中，拓扑表面态中的自旋-电荷转换（SCC）（TSS）将 j_s 转换为面密度为 $J_{x-}^{(A)}$ 的表面光电流。在（B）中，普通霍尔效应（ordHE）将由 $\boldsymbol{B}_{ext}$ 引起的 j_z 转换为面密度为 $J_{x-}^{(B)} \propto B_{ext}$ 的体电流。（b）体内导带（CB）底部和价带顶部的定性z依赖性ti tt ti Bi_2Se_3的价带（VB）顶部的定性ti依赖关系。内建静电场$\boldsymbol{E}_{SC}$将光激发电子驱向拓扑表面态（TSS）$z = d$（黄色区域），持续时间为tiτ_{j_z}。图中未显示$z = 0$界面处的拓扑表面态（TSS）。$|\boldsymbol{E}_{SC}|$随z增加。（c）j_s注入拓扑表面态（TSS）会使拓扑绝缘体费米轮廓发生ft偏移，这是由于自旋-速度锁定。相对于ti z 轴，上狄拉克锥的自旋纹理呈左手性。光电流 $J_{x-}^{(A)}$ 流动 $\tau_{TSS} < t < \tau_{j_z}$，其中 $\tau_{TSS} \approx 100$ 飞秒 和 τ_{j_z} ≤ 00.5 皮秒。（d）该普通霍尔效应将 j_z 转换为 $J_{x-}^{(B)}$，偏转角为 $\gamma_{\boldsymbol{B}_{ext}}$。光电流 $J_{x-}^{(B)}$ 流动持续 $\tau_{bulk} < t < \tau_{j_z}$。