

在半导体-金属相变温度附近氧化钒薄膜光学性质的异常变动*

杨伟¹⁾ 梁继然²⁾ 刘剑¹⁾ 姬扬^{1)†}

1)(中国科学院半导体研究所半导体超晶格国家重点实验室, 北京 100083)

2)(天津大学电子信息工程学院, 天津 300072)

(2013年12月11日收到; 2014年1月7日收到修改稿)

在可见光—近红外波段的不同波长下, 测量了半导体-金属相变过程中氧化钒薄膜样品的反射率和透射率. 在薄膜相变过程中, 不同波段的反射率曲线和透射率曲线表现出不同的变化趋势. 利用非相干光在薄膜中的多级反射-透射模型, 计算了相变过程中不同波长下氧化钒薄膜的折射率 n 和消光系数 k 随温度的变化. 结果表明, 在相变温度附近氧化钒薄膜光学性质的异常变动, 其原因既有薄膜的折射率和消光系数随波长的变化趋势不同, 也有在吸收性薄膜中存在探测光多次反射和透射的累加效应.

关键词: 氧化钒薄膜, 半导体-金属相变, 多级反射-透射模型

PACS: 71.30.+h, 68.60.-p, 78.20.Ci

DOI: 10.7498/aps.63.107104

1 引言

VO₂ 薄膜是一种典型的热致相变材料, 在 68 °C 附近能够发生半导体相到金属相的可逆突变^[1], VO₂ 的晶体结构从低温时的单斜金红石结构转变为高温时的四方金红石结构, 同时材料的电学性质、光学性质以及固体比热、磁导率等性质也发生可逆性的突变^[2]. 这使得 VO₂ 薄膜成为微测量辐射热计、存储器、智能窗和光开关等电学器件和光学器件的理想功能材料^[3,4], 因而对相变过程中氧化钒薄膜电学性质、光学性质的研究是当前物理学研究热点之一^[5-12].

目前, 对相变前后 VO₂ 薄膜光学性质的研究主要采用傅里叶变换红外光谱技术, 因此所研究的光学波段主要集中在红外—远红外波段^[13-17], 在可见光—近红外波段对 VO₂ 薄膜光学性质的研究还比较少. 虽然可以定性理解在相变前后 VO₂ 薄膜光学性质会发生跃变, 但是对其定量的研究还很

少. 文献^[13, 15]报道了薄膜低温相的透射率大于高温相的透射率, 而文献^[14]的研究结果表明在某些波段上透射率存在相反的变化趋势. 即使对于同一个样品, 不同波长下相变前后透射率的变化趋势也不一样^[14,15], 但是具体的机理并没有得到全面的讨论.

本文在可见光—近红外波段的不同波长下, 测量了在半导体-金属相变过程中氧化钒薄膜样品的反射率和透射率. 结果表明, 相变前后薄膜反射率和透射率的差别不仅依赖于氧化钒薄膜的折射率和消光系数的变化, 还依赖于在吸收性薄膜中探测光多次反射和透射的累加效应. 利用一个多级反射-透射模型, 我们定量地解释了在相变前后薄膜光学性质的跃变.

2 实验装置

本文的实验光路如图 1 所示. 超连续白光光源能够产生波长范围在 450—1800 nm 的复合白光,

* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2013CB922304)、国家自然科学基金青年科学基金(批准号: 61101055)和极化材料与器件教育部重点实验室基金(批准号: KFKT20130002)资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: jiyang@semi.ac.cn

将复合白光通过具有分光作用的三棱镜后再经电控反射振镜反射. 对电控反射振镜施加不同的电压时, 电控反射振镜会产生不同程度的偏转, 再配合狭缝, 能够得到不同波长的激光. 光电探测器1的作用是为了监测激光自身的光强起伏, 以消除在实验结果中光强起伏的影响. 光电探测器2和光电探测器3分别用来探测经样品反射和透射的光强. 使用的氧化钒薄膜样品是通过磁控溅射技术在蓝宝石衬底上制备得到的厚度为100 nm左右的多晶VO₂. 我们对通过分光系统得到的激光的单色性进行了测量, 结果如图1内插图所示, 可以看出, 其峰的半高全宽为2—3 nm左右, 具有比较好的单色性.

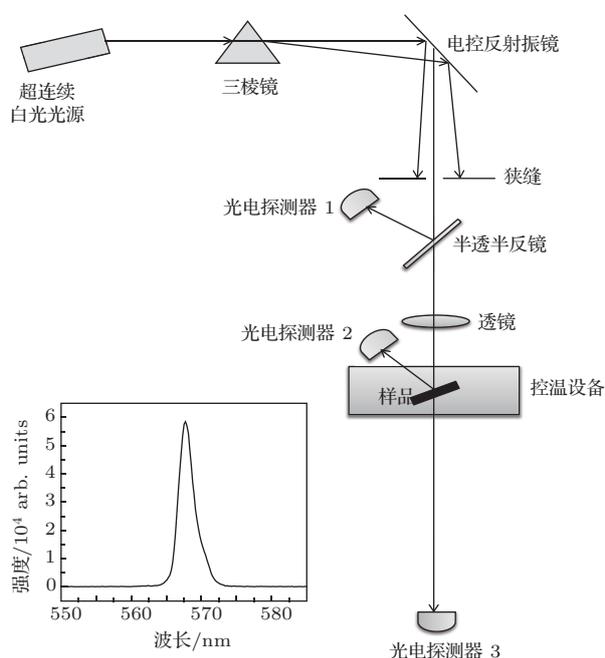


图1 实验光路图 内插图是激光单色性的测量结果

3 实验结果

我们在800—1600 nm之间选取了10个不同的波长, 测量了相变过程中样品的反射率和透射率, 图2给出了三个有代表性的波长下的测量结果.

从图2可以看出, 在相变过程中, 不同波长下薄膜样品的反射率曲线和透射率曲线的变化趋势不同. 在波长较短的800 nm处与相变前的半导体相相比, 相变后的金属相呈现出低反射率、高透射率的性质; 在波长为900 nm处, 金属相仍是低反射率态, 但此时透射率变为低透射率态; 而在波长比较长的1600 nm处, 金属相呈现出高反射率、低透射率的特性. 随着波长的增大, 反射率曲线和透射

率曲线都会发生转变, 并且发生转变的波长区间不同, 透射率曲线先于反射率曲线发生转变. 我们认为这种变化不仅是因为在相变过程中不同波长下氧化钒薄膜的折射率 n 和消光系数 k 的变化趋势不同, 而且是因为在薄膜中探测光发生了多次反射.

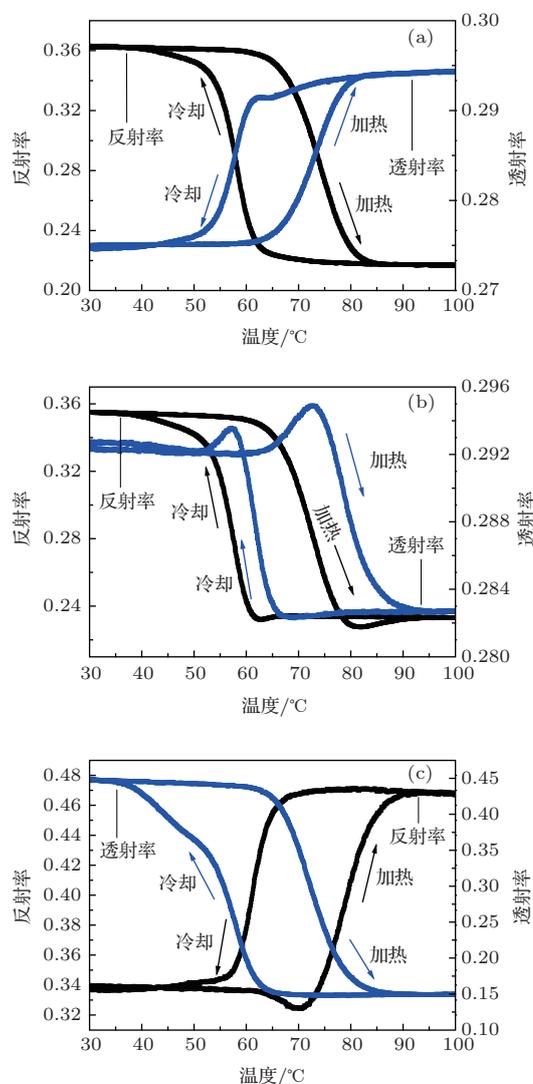


图2 在相变过程中, 不同波长下氧化钒薄膜样品的反射率曲线和透射率曲线 (a) 800 nm; (b) 900 nm; (c) 1600 nm

4 多级反射透射模型

薄膜样品相变过程中, 反射率和透射率的测量是在近似正入射的条件下进行的, 此时激光会在薄膜内发生多次反射和透射^[18-20]. 我们主要考虑在氧化钒薄膜的上下表面发生的反射和透射, 建立了薄膜多级反射-透射模型, 如图3所示, 其中, I 为入射激光; R_1 , R_2 和 R_3 分别为入射激光的一级反射率、二级反射率和三级反射率; T_1 , T_2 和 T_3 分别为

入射激光的一级透射率、二级透射率和三级透射率.

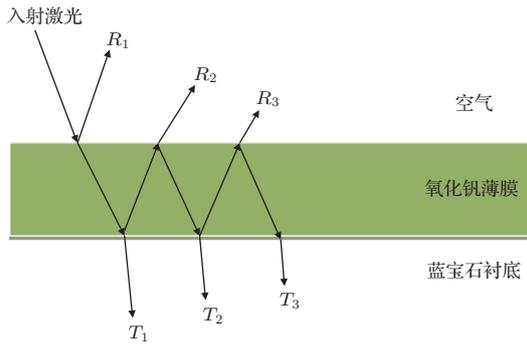


图3 本文建立的薄膜多级反射-透射模型

由于薄膜样品厚度只有 100 nm, 而入射激光的半高全宽为 2—3 nm, 我们将激光当作非相干光处理. 按照上述多级反射-透射模型, 计算得到的反射率 R 为

$$\begin{aligned}
 R &= R_1 + R_2 + R_3 + \dots \\
 &= R_f + T_f e^{-2\alpha d} R_b T_f' \\
 &\quad + T_f e^{-2\alpha d} R_b R_f' e^{-2\alpha d} R_b T_f' + \dots \\
 &= R_f + \frac{T_f T_f' R_b e^{-2\alpha d}}{1 - R_b R_f' e^{-2\alpha d}}.
 \end{aligned} \tag{1}$$

类似地, 得到的透射率 T 为

$$T = \frac{T_f T_b e^{-\alpha d}}{1 - R_b R_f' e^{-2\alpha d}}, \tag{2}$$

其中, α 为薄膜的吸收系数, $\alpha = \frac{4\pi k}{\lambda}$; d 为薄膜厚度; R_f 和 T_f 分别为激光在空气-氧化钒薄膜界面的反射率和透射率; R_f' 和 T_f' 分别为激光在氧化钒薄膜-空气界面的反射率和透射率; R_b 和 T_b 分别为激光在氧化钒薄膜-蓝宝石衬底界面的反射率和透射率. 取空气的折射率为 1, 蓝宝石衬底的折射率为 1.77, 上述参数与氧化钒薄膜的复折射率 $(n + ik)$ 的关系为

$$\begin{aligned}
 R_f &= R_f' = 1 - T_f \\
 &= 1 - T_f' = \left| \frac{n + ik - 1}{n + ik + 1} \right|^2,
 \end{aligned} \tag{3}$$

$$R_b = 1 - T_b = \left| \frac{n + ik - 1.77}{n + ik + 1.77} \right|^2. \tag{4}$$

将上述结果代入反射率 R 和透射率 T 的表达式, 即可求得该条件下薄膜的折射率 n 值和消光系数 k 值.

5 分析及讨论

利用上述公式计算得到了相变过程中在 800, 900 和 1600 nm 的三个波长下, 薄膜的 n 值和 k 值随温度的变化, 结果如图 4 所示. 从图 4 可以看出, 在相变过程中, 不同波长下薄膜的折射率 n 和消光系数 k 的变化趋势不同. 当入射激光波长为 800 nm 时, 相变会导致 n 值减小, k 值变大. 此时, 反射率 R 主要受一级反射率 R_f 的影响, n 值的减小导致反射率 R 减小. 透射率 T 主要受 $T_f T_b$ 的影响, k 值的变化对透射率 T 的影响比较小, 因而 n 值的减小导致相变后透射率 T 变大. 当入射激光波长为 900 nm 时, 相变仍然会导致 n 值变小, 但是其变化幅度开始减小, 而相变后 k 值变大的幅度在

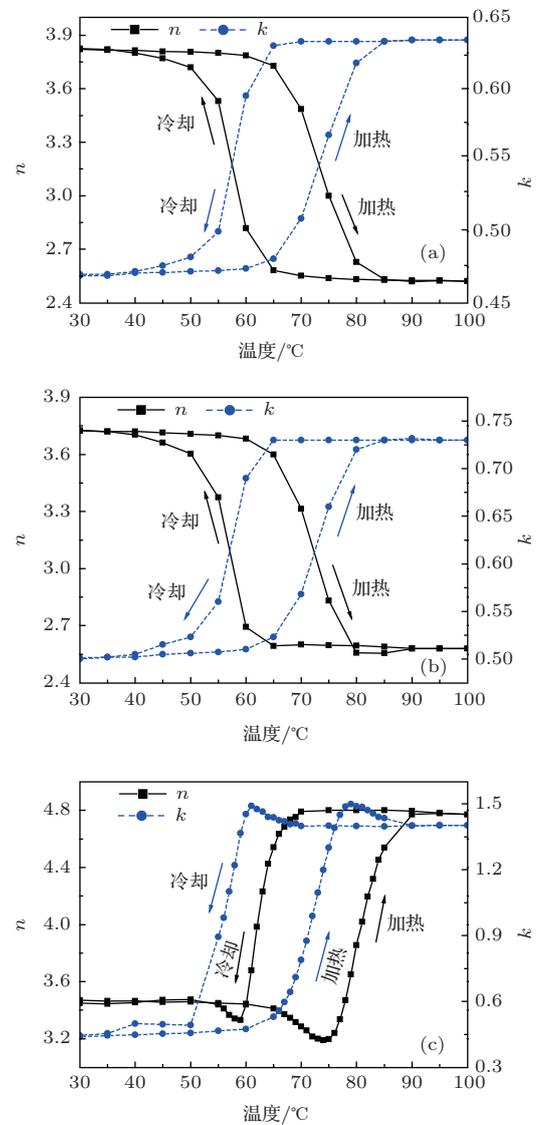


图4 在相变过程中, 不同波长下氧化钒薄膜样品的 n 值和 k 值随温度的变化 (a) 800 nm; (b) 900 nm; (c) 1600 nm

增加. 此时, 反射率 R 仍主要受 R_f 的影响, n 值变小导致反射率 R 减小. 对于透射率 T , 一方面 $T_f T_b$ 增大, 另一方面 $\frac{e^{-\alpha d}}{1 - R_b R_f e^{-2\alpha d}}$ 减小, n 值的变化幅度减小导致 $T_f T_b$ 的影响逐渐减弱, 透射率 T 发生从金属相高透射率态到金属相低透射率态的转变. 当入射激光波长为 1600 nm 时, 相变后 n 值和 k 值都变大, 从而导致反射率 R 变大, 透射率 T 变小.

我们同时计算得到了相变前后薄膜的 n 值和 k 值随波长的变化, 结果如图 5 所示. 从图 5 可以看出, 无论是在短波长的 800 nm 处还是在波长较长的 1600 nm 处, 相变都会使 k 值变大, 随着波长的增大, k 值的变化幅度增加; 对于折射率 n , 在波长较短的区域, 相变使得 n 值变小, 而在波长较长的区域, 相变则会导致 n 值变大. 图 5 所示的结果与 Coath 和 Richardson^[21] 的研究结果类似, 这从侧面证明了本文所建立的多级反射-透射模型是正确的.

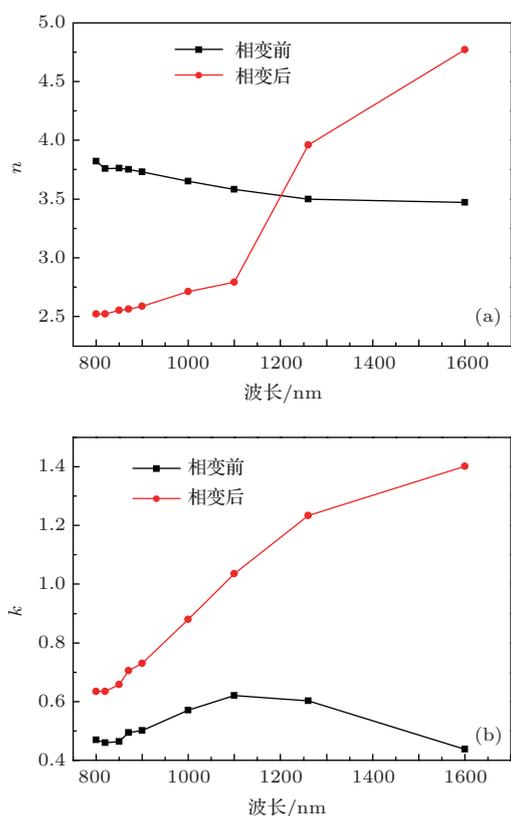


图5 相变前后氧化钒薄膜样品的折射率 n 和消光系数 k 随波长的变化 (a) 折射率 n ; (b) 消光系数 k

综上所述可知, 在半导体-金属相变温度附近氧化钒薄膜光学性质的异常变动, 一方面是由于在相变过程中不同波长下氧化钒薄膜的折射率 n 和消光系数 k 的变化趋势不同, 另一方面是由于吸收性薄膜中存在探测光多次反射和透射的累加效应.

6 结 论

本文测量了半导体-金属相变过程中不同波长下氧化钒薄膜的反射率和透射率. 在相变过程中, 不同波长下透射率曲线和反射率曲线发生了不同的变化. 我们利用薄膜多级反射-透射模型得到了不同波长下相变前后薄膜的折射率 n 值和消光系数 k 值的变化. 结果表明, 在相变温度附近氧化钒薄膜光学性质的异常变动, 一方面是由于在不同波长下薄膜的折射率 n 和消光系数 k 的变化趋势不同, 另外一方面是由于吸收性薄膜中存在探测光发生多次反射和透射的累加效应.

参考文献

- [1] Morin F J 1959 *Phys. Rev. Lett.* **3** 34
- [2] Song T T, He J, Lin L B, Chen J 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 6480 (in Chinese) [宋婷婷, 何捷, 林理彬, 陈军 2010 物理学报 **59** 6480]
- [3] Lysenko S, Rua A J, Vikhnin V 2006 *Appl. Surf. Sci.* **252** 5512
- [4] Chen T 2011 *Ph. D. Dissertation* (Tianjin: Tianjin University) (in Chinese) [陈涛 2011 博士学位论文 (天津: 天津大学)]
- [5] He Q, Xu X D, Wen Y J, Jiang Y D, Ao T H, Fan T J, Huang L, Ma C Q, Sun Z Q 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 056802 (in Chinese) [何琼, 许向东, 温粤江, 蒋亚东, 敖天宏, 樊泰君, 黄龙, 马春前, 孙自强 2013 物理学报 **62** 056802]
- [6] Fang Z, Yu H Y, Chroboczek J A, Ghibaudo G, Buckley J, Salvo B D, Li X, Kwong D L 2012 *IEEE Electr. Device Lett.* **59** 850
- [7] Clima S, Chen Y Y, Degraeve R, Mees M, Sankaran K, Govoreanu B, Jurczak M, Gendt S D, Pourtois G 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 133102
- [8] Qiu D H, Wen Q Y, Yang Q H, Chen Z, Jing Y L, Zhang H W 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 217201 (in Chinese) [邱东鸿, 文岐业, 杨青慧, 陈智, 荆玉兰, 张怀武 2013 物理学报 **62** 217201]
- [9] Sun D D, Chen Z, Wen Q Y, Qiu D H, Lai W E, Dong K, Zhao B H, Zhang H W 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 017202 (in Chinese) [孙丹丹, 陈智, 文岐业, 邱东鸿, 赖伟恩, 董凯, 赵碧辉, 张怀武 2013 物理学报 **62** 017202]
- [10] Wen X Z, Chen X, Wu N J, Ignatiev A 2011 *Chin. Phys. B* **20** 097703
- [11] Meng Y, Zhang P J, Liu Z Y, Liao Z L, Pan X Y, Liang X J, Zhao H W, Chen D M 2010 *Chin. Phys. B* **19** 037304
- [12] Tao Z S, Han T T, Mahanti S D, Duxbury P M, Yuan F, Ruan C Y, Wang K, Wu J Q 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 166406
- [13] Liang J R, Hu M, Wang X D, Kan Q, Li G K, Chen H D 2010 *J. Infrared Millim. Waves* **29** 457 (in Chinese)

- [梁继然, 胡明, 王晓东, 阚强, 李贵柯, 陈宏达 2010 红外与毫米波学报 **29** 457]
- [14] Li W W, Yu Q, Liang J R, Jiang K, Hu Z G, Liu J, Chen H D, Chu J H 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 241903
- [15] Lee K W, Kweon J J, Lee C E, Gedanken A, Ganesan R 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 243111
- [16] Lopez R, Feldman L C, Haglund R F 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 177403
- [17] Wang H F, Li Y, Yu X J, Zhu H Q, Huang Y Z, Zhang H, Zhang W, Zhou S 2010 *Acta Opt. Sin.* **30** 152205 (in Chinese) [王海方, 李毅, 俞晓静, 朱慧群, 黄毅泽, 张虎, 张伟, 周晟 2010 光学学报 **30** 152205]
- [18] Kats M A, Sharma D, Lin J, Genevet P, Blanchard R, Yang Z, Qazilbash M M, Basov D N, Ramanathan S, Capasso F 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 221101
- [19] Kats M A, Blanchard R, Genevet P, Capasso F 2012 *Nat. Mater.* **12** 20
- [20] Born M, Wolf E (translated by Yang J S) 2005 *Principles of Optics* (Vol. 1) (7th ed) (Beijing: Publishing House of Electronics Industry) pp55, 56 (in Chinese) [玻恩 M, 沃耳夫 E 著 (杨葭荪译) 2005 光学原理 (上) (第七版) (北京: 电子工业出版社) 第 55, 56 页]
- [21] Coath J A, Richardson M A 1999 *Conference on Advances in Optical Interference Coatings* (Washington: SPIE) p555

Abnormal variation of optical properties of vanadium oxide thin film at semiconductor-metal transition*

Yang Wei¹⁾ Liang Ji-Ran²⁾ Liu Jian¹⁾ Ji Yang^{1)†}

1) (State Key Laboratory for Superlattices and Microstructures, Institute of Semiconductors, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100083, China)

2) (School of Electronic and Information Engineering, Tianjin University, Tianjin 300072, China)

(Received 11 December 2013; revised manuscript received 7 January 2014)

Abstract

The optical properties of vanadium oxide thin film are measured at semiconductor-metal transition, including reflectance and transmittance results at different wavelengths which show different trends during the phase transition. With a multi-level reflection-transmission model of incoherent light, we calculate the values of refractive index n and extinction coefficient k at different wavelengths, and show that the abnormal optical properties result not only from the dependences of n and k on the wavelength, but also from multiple reflections in the absorbing film.

Keywords: vanadium oxide thin film, semiconductor-metal transition, multi-level reflection-transmission model

PACS: 71.30.+h, 68.60.-p, 78.20.Ci

DOI: 10.7498/aps.63.107104

* Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No. 2013CB922304), the Young Scientists Fund of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61101055), and the Foundation of Key Laboratory of Polar Materials and Devices of Ministry of Education, China (Grant No. KFKT20130002).

† Corresponding author. E-mail: jiyang@semi.ac.cn