

基于 VO₂ 薄膜相变原理的温控太赫兹超材料调制器*刘志强 常胜江[†] 王晓雷 范飞 李伟

(南开大学现代光学研究所, 光电信息技术科学教育部重点实验室, 天津 300071)

(2013年2月9日收到; 2013年3月6日收到修改稿)

利用二氧化钒薄膜绝缘相—金属相的相变特性, 提出了一种基于超材料的温控太赫兹调制器, 研究了相变超材料在太赫兹波段的传输特性和温控可调谐特性. 当入射太赫兹波为水平偏振或垂直偏振状态时, 器件的透过率谱线在 1 THz 附近呈现出两个独立的、中心频率分别为 1.3 THz 和 1.7 THz、带宽分别为 0.2 THz 和 0.35 THz 的透射宽带. 当温度从 40 °C 至 80 °C 变化时, 两宽带的透过率发生明显的降低, 在二氧化钒的相变温度 (68 °C) 时尤其灵敏, 对入射光的二种偏振状态, 调制深度均达到 60% 以上, 实现了良好的调制效果.

关键词: 太赫兹超材料, VO₂ 薄膜, 调制器, 相变

PACS: 07.57.Pt, 81.05.Xj, 71.30.+h

DOI: 10.7498/aps.62.130702

1 引言

太赫兹波 (THz wave) 是指频率范围在 0.1—10 THz 之间的电磁波, 位于电磁波谱中的微波与可见光波之间. 过去由于 THz 波的产生和探测较为困难, 人们对这一波段的特性知之甚少^[1]. 近年来, 由于 THz 辐射源和探测技术的飞速发展, THz 波的应用得到迅猛发展, 在无线通信^[2]、生物样本光谱检测^[3]、雷达成像^[4]以及传感^[5]等方面均得到实际应用, 其独特的优越性也已经被普遍认可. 然而, 作为 THz 应用系统中必不可少的组成部分, 太赫兹功能器件如 THz 开关、滤波、调制、偏振等功能器件的研究还相对落后, 其主要原因是缺乏与 THz 波发生电磁响应的天然材料^[6], 这直接制约着 THz 技术的进一步发展. 人工结构电磁材料的出现解决了这一问题, 其中超材料有望实现对太赫兹波的高效调控. 超材料是指一些具有人造结构的周期性结构材料, 它呈现出自然材料所不具备的超常物理性质^[7], 可以对太赫兹波产生强烈响应, 从而能够对 THz 波进行调控, 为该波段的器件研究提供了一种可行的方法.

为了实现对 THz 波的调控, 常用的方法是在超材料的金属阵列中加入半导体材料, 通过控制半导体内部的载流子浓度实现对 THz 波谐振响应的控制, 通常使用的半导体材料有 Si, GaAs 等^[8,9]. 近几年, 相变材料如二氧化钒 (VO₂) 薄膜被广泛应用于 THz 超材料的结构当中, 用于实现超材料的调谐功能. 二氧化钒 (VO₂) 薄膜是一种具有绝缘体—金属相变特性的金属氧化物, 在光、热或者应力的作用下可由绝缘体态转变为金属态^[10]. 伴随着相的转变, VO₂ 薄膜物理性质也会发生可逆性突变^[11].

目前, 结合 VO₂ 相变原理制成的超材料结构已经被应用在智能窗^[12]、微测辐射热计^[13]、光调制器^[14]等器件上. 例如, 电子科技大学文歧业等^[15]利用 VO₂ 薄膜光刻成电磁超材料的单元结构, 通过热激发薄膜产生相变, 可以获得高达 65% 的太赫兹透射调制. Choi 等^[16]采用纳米共振腔结构实现了太赫兹辐射的全光开关, 该结构在二氧化钒薄膜上生长金属薄膜并形成亚微米量级的天线结构, 在其共振频率处显现出理想的透射特性, 并且结合 VO₂ 薄膜的相变特性实现了对透射 THz 波的超快控制. 然而, 至今为止, 能够对两个正交偏振方向入射的 THz 波实现高效调制的超材料器件还少见报道, 而

* 国家自然科学基金 (批准号: 61171027)、国家高技术研究发展计划 (批准号: 2011AA010205)、天津市自然科学基金重点项目 (批准号: 10JCZDJC15200) 和教育部博士点基金 (批准号: 20090031110033) 资助的课题.

[†] 通讯作者. E-mail: sjchang@nankai.edu.cn

这种偏振独立的调制功能可以显著地增强对太赫兹波的控制,在太赫兹宽带通信中有着重要的应用.本文提出了一种能对水平偏振(p偏振)和垂直偏振(s偏振)实现独立调制的超材料调制器,调制深度分别达到65%和70%.

2 VO₂ 材料相变的理论分析

2.1 VO₂ 材料的结构

在热激发条件下,VO₂薄膜的相变温度约为68 °C.在从低温到高温的过程中,VO₂分子的结构发生了轻微的畸变,从处于绝缘体相的单斜晶格结构变为金属相的四方晶格结构.在这个过程中VO₂原子并没有发生广泛的重新排列.VO₂的相变在百飞秒量级时间内完成,相变前后VO₂的光、电、磁等性质均发生可逆性突变^[17].对于热激发相变,在升温和降温过程中的相变曲线并不完全相同,而是出现了类似磁滞的热滞现象.根据相关研究,该现象与VO₂颗粒的分布及尺寸有关^[18].

2.2 VO₂ 的相变理论分析

在热相变过程中,当外界温度达到相变临界温度时,VO₂薄膜内的某些分子颗粒率先发生相变,并且随着温度的升高而连续扩散,形成大片的相变金属结构,因此在薄膜的相变不完全时,VO₂薄膜内部即存在绝缘相的组分,也存在金属相的组分,这种空间分布的不均匀性对VO₂薄膜的宏观电磁特性有显著的影响.描述处在不完全相变的VO₂薄膜的性质,需要用有效介质理论(EMT)来描述.目前,最为常用的是Maxwell-Garnett EMT和Bruggeman EMT,由于复合介质中的金属相颗粒是非均匀分布且相变时候其金属组分的体积分数大于20%,所以Maxwell-Garnett EMT并不适合在此条件下使用^[19].目前在太赫兹波段使用最为广泛的是Bruggeman EMT.

假设在介电常数为ε_D的无限大介质基底中,随机地存在着若干介电常数为ε_M的金属颗粒组成的复合体系,当金属颗粒的体积分数*f*较大时(一般大于20%),颗粒间的距离较小,因此需要考虑颗粒之间的相互作用,在这种情况下,复合体系的介电函数ε_C可以表示为^[20]

$$\epsilon_C = \frac{1}{4} \left\{ \epsilon_D(2-3f) + \epsilon_M(3f-1) \right\}$$

$$+ \sqrt{[\epsilon_D(2-3f) + \epsilon_M(3f-1)]^2 + 8\epsilon_D\epsilon_M}, \quad (1)$$

其中,*f*为金属组分的体积分数,ε_D与ε_M分别为VO₂薄膜中绝缘相组分与金属相组分的介电函数.

对于VO₂薄膜中的绝缘体组分,可视其为介电常数ε_D=9的电介质,对于VO₂薄膜中的金属组分,其介电函数ε_M可以用Drude模型来描述:

$$\epsilon_M(\omega) = \epsilon_\infty - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega/\tau}, \quad (2)$$

其中ω为THz波的圆频率;ε_∞为VO₂材料的高频极限介电常数;τ=2.2 fs为载流子碰撞时间;ω_p为等离子频率,表示为

$$\omega_p = \sqrt{Ne^2/\epsilon_0 m^*}. \quad (3)$$

它取决于介质内部的载流子浓度*N*,有效质量*m*^{*}以及真空介电常数ε₀,对于VO₂薄膜^[21],ε_∞=ε_D=9,载流子浓度*N*=1.3×10²² cm⁻³,有效质量*m*^{*}=2*m*_e.

另外,VO₂金属组分的体积分数*f*与温度的对应关系可用Boltzmann函数来描述:

$$f(T) = f_{\max} \left(1 - \frac{1}{1 + \exp[(T - T_0)/\Delta T]} \right), \quad (4)$$

其中升温相变点临界温度为*T*₀=68 °C,过渡温度为Δ*T*=2 °C,*f*_{max}为最高温度下VO₂薄膜中金属组分能够达到的体积分数的最大值,已有的实验结果表明*f*_{max}=0.95^[22].

利用Bruggeman有效介质理论的(1)式,Drude模型(2),(3)式以及Boltzmann函数(4)式,并结合材料介电函数与电导率的关系^[23]σ=-iε₀ω(ε_C-1)可以计算得到相变过程中不同温度所对应的VO₂薄膜的电导率,其中σ为复合体系的电导率.将该电导率与温度变化的对应关系计算并绘制在图1中,并选取其中一些温度下的对应数据置于表1中.

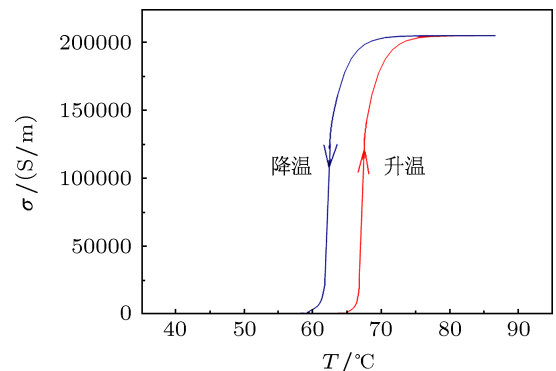


图1 VO₂薄膜的电导率与温度的关系(升温过程*T*₀=68 °C,降温过程*T*₀=63 °C)

表1 升温过程中 σ 与 T 的对应关系

温度/ $^{\circ}\text{C}$	金属组分体积分数/%	电导率/(S/m)
40	0.000079	130
60	1.7	820
67	17.3	2.17e4
69	69.5	1.58e5
80	94.3	2.12e5

3 模拟结果及分析

本文提出的超材料器件是一个包括三层介质的结构,如图 2(a) 所示是一个结构单元的示意

图: 中间作为基底部分的材料是石英玻璃, 折射率 $n = 1.96$, 在基底前表面镀一层金箔, 并在金箔上刻蚀如图 2(b) 所示的类十字沟槽, 在基底另一侧生长一层厚度 $h = 200 \text{ nm}$ 的 VO_2 薄膜, 相比于传统的将金属薄膜镀在 VO_2 同侧的方法, 这种两侧镀膜的方法的优势在于避免了直接在 VO_2 薄膜上制备周期性金属阵列结构, 降低了器件实现难度, 为今后的器件设计提供了思路. 基底的边长分别为 $a = 70 \mu\text{m}$, $b = 60 \mu\text{m}$, 厚度 $H = 500 \mu\text{m}$, 空气槽宽度 $x = 2.5 \mu\text{m}$, 其他参数: $m = 24 \mu\text{m}$; $n = 16.5 \mu\text{m}$; $d = 14 \mu\text{m}$. THz 波从器件前方正入射, 图 2(c) 为超材料器件示意图.

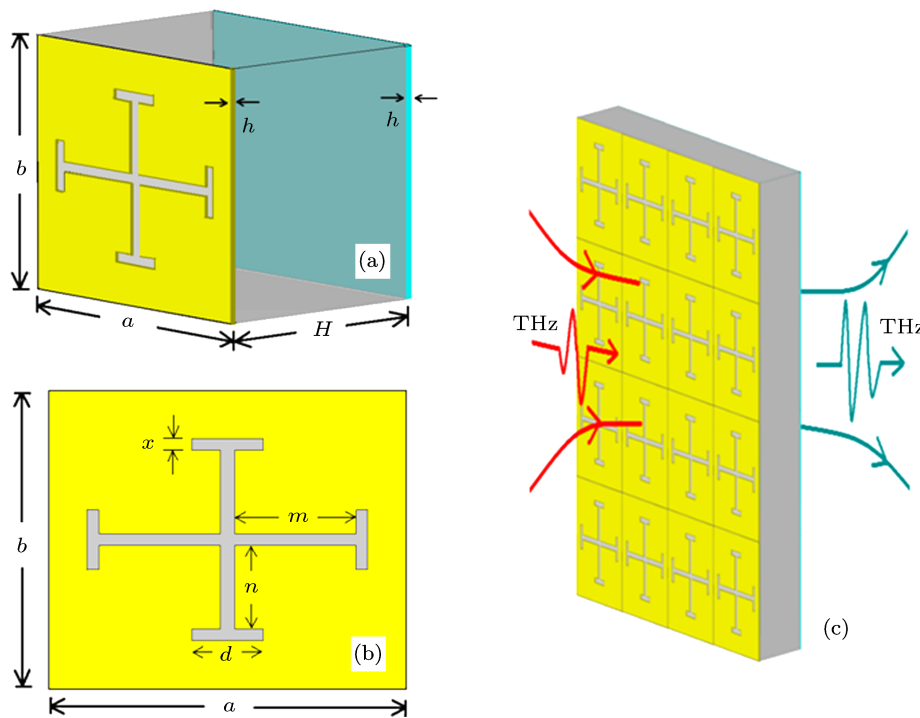


图2 超材料单元结构及器件结构 (a) 单元晶胞结构; (b) 单元晶胞正面结构; (c) 超材料器件示意图

图 3 所示的是用 FDTD 方法计算出的不同温度下的超材料器件的透射谱, 可以看出: 当入射 THz 波为 4(a) 所示的水平偏振 (p 偏振) 时, 在 40°C 时, 1.7 THz 附近出现一个透射峰, 透过率接近 80%, 带宽约为 0.2 THz . 当外界温度升高时, 透射率逐渐降低, 温度达到相变前的 67°C 时, 峰值透过率为 55%, 而当温度超过相变温度达到 69°C 时, 峰值透过率降为 16%. 此后, 随着温度的升高, 峰值透过率变化较小, 外界温度达到 80°C 或以上的温度时, 谱线的透过率稳定在 10% 并几乎不发生变化. 同样在 40°C 时, 当入射 THz 波为图 4(b) 所示的垂直偏振

(s 偏振) 时, 在 1.3 THz 频率附近出现了一个峰值透过率为 82% 的通带, 带宽约为 0.35 THz ; 随着温度的逐渐升高, THz 波的透过率逐渐减小, 相变前的 67°C 时, 透过率为 56%; 而相变后的 69°C , 透过率降到 18%; 而到 80°C 或者更高时, 透过率基本稳定在 11% 不发生变化, 在两种偏振状态下均实现了良好的强度调制功能.

由于 VO_2 薄膜的相变温度为 68°C , 而且相变发生的时间非常短, 所以当外界温度在 $40\text{—}60^{\circ}\text{C}$ 和 $70\text{—}80^{\circ}\text{C}$ 范围内变化时, 透过率的变化幅度非常小, 而当温度在相变温度 (68°C) 附近变化时, 透

过率的变化幅度则很大, 本文正是利用了 VO₂ 薄膜的这一特性设计了较为灵敏的 THz 宽带调制器, 较之电、光、磁场等方式的控制, 温度调控无疑更加方便, 易于实现.

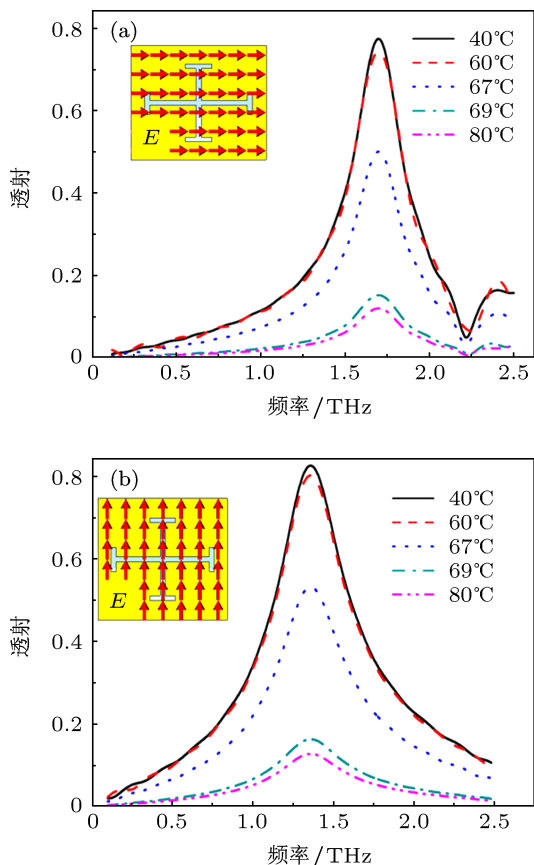


图3 在不同温度下两种偏振入射 THz 波的透射谱线 (a) p 偏振; (b) s 偏振

另外, 本文对两种偏振状态下超材料的反射谱线及吸收谱线做了分析, 如图 4 所示: 从反射谱线图 4(a) 中可以看出, 当温度升高导致 VO₂ 薄膜相变、载流子浓度增加时, 两种偏振入射太赫兹波的反射谱线并未发生太大变化, 这是因为器件对太赫兹波的反射主要是由前侧的金属材料引起的, 而在 VO₂ 材料相变过程中, 金属材料的结构和性质并未发生变化. 而从吸收谱线 4(b) 和 (c) 可以看出, 随着 VO₂ 薄膜的相变过程, 器件对 THz 波的吸收逐渐增加, 由 40 °C 的 20% 左右增加到 80 °C 的 80% 以上. 由此分析, 两种偏振入射波在特定频率波段透过率的减少是由于器件吸收增强而引起的, 而根本的原因是 VO₂ 薄膜在变为金属相后对太赫兹波的反射极大的增强, 从而增加了太赫兹波在基底介质内的吸收损耗.

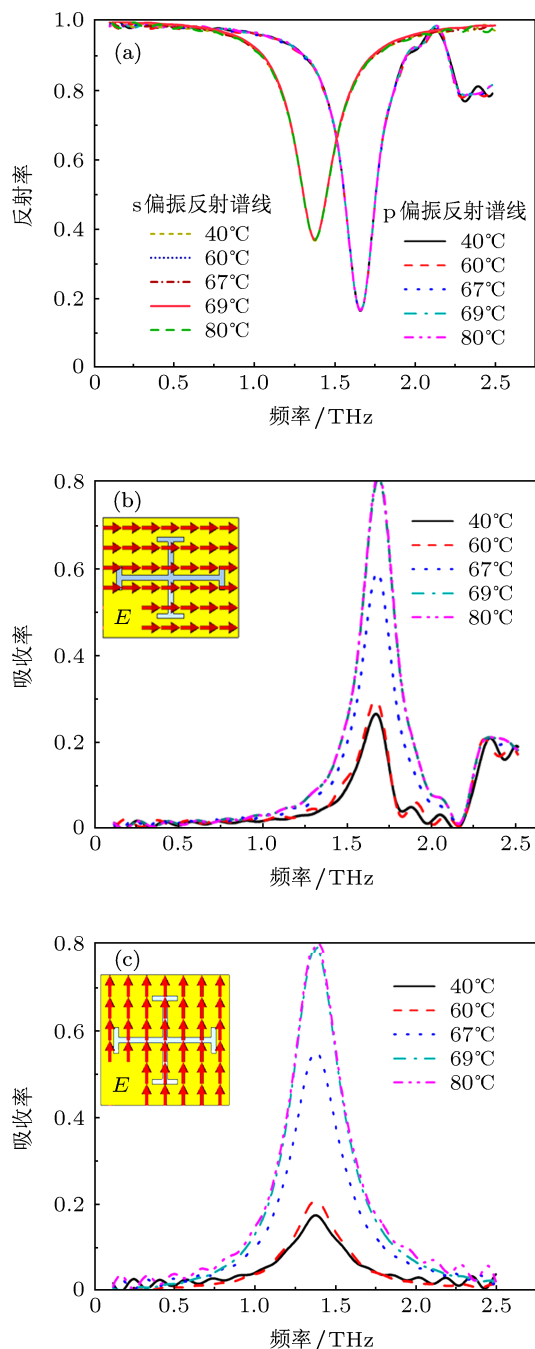


图4 在不同温度下两种偏振入射 THz 波的反射谱线和吸收谱线 (a) 吸收谱线; (b) p 偏振的吸收谱线; (c) s 偏振的吸收谱线

最后, 还对两种偏振状态下超材料器件表面的电场分布进行了分析, 如图 5 所示: 图 5(a) 表示 p 偏振下的电场分布, 谐振的位置主要在垂直的空气缝隙附近, 最大可以达到 6.2×10^6 V/m, 而沿水平方向的空气缝隙附近的谐振则较弱, 只有 1.3×10^5 V/m; 而图 5(b) 所示的 s 偏振状态下的电场分布则与 p 偏振恰好相反, 其谐振位置主要发生在水平空气缝隙的附近, 且谐振强度稍大于 p 偏振

状态下的谐振强度, 大约为 6.5×10^6 V/m. 通过表面电场分布可以很明显的分析出两个偏振状态下

透过率峰值位置不同以及峰值透过率大小差异的原因.

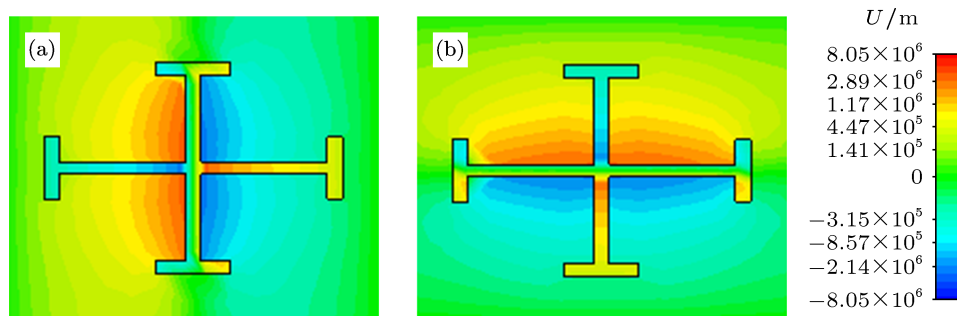


图5 40 °C 时超材料结构表面的电场分布 (a) p 偏振; (b) s 偏振

4 结论

本文提出了一种包含三层介质的超材料结构器件, 当入射太赫兹波为水平偏振和垂直偏振两种状态时, 透过率谱线在 1 THz 附近呈现出两个独立的透射宽带, 中心频率为 1.3 THz 和 1.7 THz. 同时,

利用 VO_2 的相变原理, 通过温控的方式可以分别实现两个偏振状态下的透过率调制, 调制深度均达到 60% 以上, 实现了比较好的调制效果. 随着 THz 技术在通信领域的不断发展, 该器件在将来的太赫兹宽带通信中有着巨大的应用前景.

- [1] Fan F, Guo Z, Bai J J, Wang X H, Chang S J 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 084219 (in Chinese) [范飞, 郭展, 白晋军, 王湘晖, 常胜江 2011 物理学报 **60** 084219]
- [2] Jansen C, Priebe S, Moller C 2011 *IEEE Trans Terahertz Sci. Technol.* **54** 462
- [3] Liu H B, Plopper G, Earley S, Chen Y Q, Ferguson B, Zhang X C 2007 *Biosens. Bioelectron.* **22** 1075
- [4] Chan W L, Moravec M L, Baraniuk R G, Mittleman D M 2008 *Opt. Lett.* **33** 974
- [5] Brucherseifer M, Nagel M, Bolivar P H, Kurz H 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 4049
- [6] Smith D R, Padilla W J, Vier D C, Nemat-Nasser S C, Schultz S 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 4184
- [7] Withayachumnankul W, Abbott D 2009 *IEEE Photonics J.* **1** 99
- [8] Chen H T, O'Hara J F, Azad A K, Taylor A J, Averitt R D, Shrekenhamer D B, Padilla W J 2008 *Nat Photonics* **2** 295
- [9] Padilla W J, Taylor A J, Highstrete C, Lee M, Averitt R D 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 107401
- [10] 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]
- [11] Cavaleri A, Toth Cs, Siders C W, Squier J A, Raksi F, Forget P, Kieffer J C 2001 *Phys. Rev. Lett.* **87** 237401
- [12] Manning T D, Parkin I P, Pemble M E, Sheel D, Vernardou D 2004 *Chem. Mater.* **16** 744
- [13] Hu M, Wu M, Lv Y Q, Dou Y W, Cui M 2007 *Surf. Coat Technol.* **201** 4858
- [14] Wen Q Y, Zhang H W, Yang Q H, Xie Y S, Chen K, Liu Y L 2010 *Appl. Phys. Lett.* **97** 021111
- [15] Wen Q Y, Zhang H W, Yang Q H, Chen Z, Long Y, Jing Y L, Lin Y, Zhang P X 2012 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **45** 235106
- [16] Choi S B, Kyoung J S, Kim H S, Park H R, Park D J, Kim B J, Ahn Y H, Rotermund F, Kim H T, Ahn K J, Kim D S 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 071105
- [17] Michael F B, Bruee A B, Rodger M W, Thierry L, Patrick G, Alain B 1994 *Appl. Phys. Lett.* **65** 1507
- [18] Nyberg G A, Buhrman R A 1987 *Thin Solid Films* **147** 111
- [19] Hendry E, Koeberg M, O'Regan B, Bonn M 2006 *Nano Lett.* **6** 755
- [20] Fan F, Hou Y, Jiang Z W, Wang X H, Chang S J 2012 *Appl. Opt.* **51** 4589
- [21] Choi H S, Ahn J S, Jung J H, Noh T W, Kim D H 1996 *Phys. Rev. B* **54** 4621
- [22] Jepsen P U, Fischer B M, Thoman A, Helm H 2006 *Phys. Rev. B* **74** 205103
- [23] Walther M, Cooke D G, Sherstan C, Hajar M, Freeman M R, Hegmann F A 2007 *Phys. Rev. B* **76** 125408

Thermally controlled terahertz metamaterial modulator based on phase transition of VO₂ thin film*

Liu Zhi-Qiang Chang Sheng-Jiang[†] Wang Xiao-Lei Fan Fei Li Wei

(Institute of Modern Optics, Nankai University, Key Laboratory of Optical Information Science and Technology, Ministry of Education, Tianjin 300071, China)

(Received 9 February 2013; revised manuscript received 6 March 2013)

Abstract

Utilizing insulator-metal phase transition of vanadium dioxide thin film, we propose a thermally controlled terahertz modulator based on metamaterial, and research the transmission characteristics and temperature tunable characteristics of phase transition in metamaterials in THz wave band. While the incident THz wave is of horizontal polarization or vertical polarization, two independent pass bands are generated near 1 THz. The center frequencies of the two pass bands are 1.3 THz and 1.7 THz, the bandwidths of them are 0.2 THz and 0.35 THz. In addition, when temperature rises from 40 °C to 80 °C, the transmissions of the two pass bands drop apparently, especially at phase transition temperature of 68 °C. For the two polarization states, the modulation depths achieve 60% or more, which is the great function of a modulator.

Keywords: terahertz metamaterial, VO₂ thin film, modulator, phase transition

PACS: 07.57.Pt, 81.05.Xj, 71.30.+h

DOI: 10.7498/aps.62.130702

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61171027), the National High Technology Research and Development Program of China (Grant No. 2011AA010205), the Natural Science Foundation of Tianjin, China (Grant No. 10JCZDJC15200), and the Doctoral Fund of Ministry of Education of China (Grant No. 20090031110033).

[†] Corresponding author. E-mail: sjchang@nankai.edu.cn