

文章编号: 2095-4980(2022)12-1225-06

二氧化钒材料相变的太赫兹光谱与阵列成像

谭智勇^{1,2}, 万文坚¹, 曹俊诚^{1,2}

(1. 中国科学院上海微系统与信息技术研究所 太赫兹固态技术重点实验室, 上海 200050;
2. 中国科学院大学 材料与光电研究中心, 北京 100049)

摘要: 二氧化钒是一种具有绝缘态到金属态可逆相变特性的材料, 在光器件及信息技术中有非常广泛的应用。分别采用太赫兹频段的光谱测量技术和阵列成像技术研究分析了硅基二氧化钒材料的相变过程。采用傅里叶变换光谱测量系统, 获得了整个样品在 2.5~20.0 THz 频段透射谱和反射谱随温度的变化, 分析得到了硅基二氧化钒材料相变的温度范围为 334~341 K, 对应温差为 7 K; 得到了相变前后样品对 4.3 THz 辐射的透过率变化达 40% 以上, 反射率变化接近 30%。随后采用一套 4.3 THz 的阵列成像系统, 测量了整个样品在相变前后的太赫兹图像, 获得了该材料由金属态转变为绝缘态时, 其对 4.3 THz 激光信号的透过率由 6.7% 升至 50.7%, 透过率变化达 44%, 与傅里叶变换光谱在 4.3 THz 处的测量结果相当。上述研究结果为硅基二氧化钒材料用于 2.5 THz 以上电磁辐射的透射调制和反射调制提供了很好的实验数据支撑。

关键词: 太赫兹; 硅基二氧化钒; 相变材料; 傅里叶变换光谱; 阵列成像技术

中图分类号: TN219

文献标志码: A

doi: 10.11805/TKYDA2022098

Terahertz spectroscopy and array imaging of phase transition of vanadium dioxide

TAN Zhiyong^{1,2}, WAN Wenjian¹, CAO Juncheng^{1,2}

(1.Key Laboratory of Terahertz Solid-State Technology, Shanghai Institute of Microsystem and Information Technology, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China; 2.Center of Materials Science and Optoelectronics Engineering, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China)

Abstract: Vanadium dioxide is a kind of material with reversible phase transition from insulating state to metallic state. It is widely used in optical devices and information technology. In this paper, the phase transition process of silicon-based vanadium dioxide is studied and analyzed by terahertz spectroscopy and array imaging technology. Firstly, the transmission spectra and reflection spectra of the whole sample in the 2.5~20.0 THz region are obtained by using the Fourier transform spectrometer. The analysis shows that the temperature range of phase transition of silicon-based vanadium dioxide is from 334 K to 341 K, and the corresponding temperature difference is 7 K. It is obtained that the transmittance of the sample to 4.3 THz radiation changes more than 40% and the reflectivity changes close to 30% after phase transition; then, a set of 4.3 THz array imaging system is utilized to measure the THz images of the whole sample before and after phase transition. When the material changes from metal state to insulating state, the transmittance of 4.3 THz light increases from 6.7% to 50.7%, and the transmittance change is 44%, which is near to the results of Fourier transform spectra at 4.3 THz. The above research results provide good experimental data support for the transmission modulation and reflection modulation of silicon-based vanadium dioxide for electromagnetic radiation above 2.5 THz.

Keywords: terahertz; silicon-based vanadium dioxide; phase transition materials; Fourier transform spectroscopy; array imaging technique

收稿日期: 2022-05-01; 修回日期: 2022-05-10

基金项目: 国家重点研发计划资助项目(2017YFA0701005); 国家自然科学基金资助项目(61927813; U2241227; 62035014); 上海市自然科学基金资助项目(17ZR1448300)

二氧化钒(VO_2)材料是一种具有相变性质的金属氧化物和关联电子材料^[1], 在外界条件如温度、电压或光照的激励下, VO_2 的结构可发生从绝缘态到金属态的可逆变化, 其物理性质也相应发生突变。 VO_2 相变后所具有的导电特性使其在电子装置、光器件以及光电类设备中具有广泛的应用潜力^[2]。研究表明, 相变前后材料结构的变化使得 VO_2 对红外光呈现出由透射向反射的可逆转变^[3]。 VO_2 材料在太赫兹(THz)频段也有类似的独特性能, 2006年, Jepsen等^[4]研究发现, 当 VO_2 材料温度从 70 °C 升高至 85 °C 时, 在 0.1~1.75 THz 频段, 通过 VO_2 材料的 THz 辐射透过率发生了显著变化, 证明了该材料在 THz 频段开关和幅度调制方面的应用潜力。随后, 国内外研究者们开展了 VO_2 材料在 THz 频段的薄膜相变特性研究, 主要包括热致相变^[5-6]、电致相变^[7-8]、光致相变^[9-10]等。 VO_2 薄膜在上述研究过程中表现出来的电学和光学性能, 目前已成为 THz 频段超材料、功能性器件研究的热点, 有望在 THz 开关^[11]、频率选择器^[12]和调制器^[13]等方面获得广泛应用。

VO_2 薄膜的生长大多采用蓝宝石衬底^[14], 这样生长出来的薄膜质量高。随着薄膜应用领域的扩展, 越来越多其他类型的衬底被应用于 VO_2 薄膜材料的生长, 比如云母^[15]和硅衬底^[16-17]。由于蓝宝石和云母衬底在 3.0 THz 以上的透过率很低, 而掺杂硅在该频段又存在较强的自由载流子吸收, 为了研究 3.0~10.0 THz 频段 VO_2 材料的光谱特性进而研发相应的幅度调制器件, 需要采用透过率较高的高阻硅(High Resistivity Silicon, HRSi)或者本征硅衬底来制备高质量的 VO_2 薄膜。在上述对 VO_2 相变特性及其在功能器件方面的应用研究中, 由于研究者们绝大多数采用的都是 THz 时域光谱(TDS)技术, 目前的研究主要集中在 0.1~3.0 THz 频段, 对其与 3.0 THz 以上 THz 辐射的相互作用和特性研究较少。众所周知, VO_2 的相变特性可以在 THz 频段用于幅度调制的功能器件。对于 VO_2 材料, 大多数情况都是研究其薄膜的特性。然而, 当材料作为调制器等功能器件来使用时, 包括衬底、过渡层和薄膜样品在内的整个材料的光谱特性的研究显得更为重要和直观。在 THz 频段, 傅里叶变换光谱测量技术是研究 1.5~20.0 THz 范围内材料光谱最常用的技术手段。傅里叶变换光谱测量技术主要基于迈克尔逊干涉原理而实现, 具有分辨能力高, 扫描速度快, 辐射通量大, 杂散辐射低以及可测光谱范围宽等优点, 在高分辨力光谱、高灵敏度光谱以及微量试样光谱中得到了很好的应用^[18]。与红外光频段的应用相似, THz 频段物质的透过率、反射率、吸收率(吸收系数)以及偏振特性等均可以采用上述傅里叶变换光谱技术来直接测量或间接获得。

本文首先采用傅里叶变换光谱测量技术, 测量分析了硅基 VO_2 材料在 2.5~20.0 THz 频段的透射谱和反射谱。为了体现样品作为调制器的整体特性, 测量了包含硅衬底、过渡层和 VO_2 薄膜在内的整个材料的光谱特性。同时, 为了对比在 4.3 THz 处的光谱测量结果, 采用一套工作频率为 4.3 THz 的阵列成像系统, 测量分析了上述硅基 VO_2 材料相变前后的透过性差异。在透过率方面得出了与光谱测量结果相吻合的结论, 最终获得了硅基 VO_2 材料整体作为调制器时最大最小透过率幅度的变化, 从而为进一步开发 3.0 THz 以上硅基 VO_2 调制器以及调制器性能的研究奠定了很好的基础; 同时借助电驱动 VO_2 相变的手段, 有望在 THz 高速调制技术方面获得重要应用。

1 样品参数

VO_2 薄膜的制备方法有很多, 主要包括分子束外延(Molecular Beam Epitaxy, MBE)^[19]、化学气相沉积(Cheical Vapor Deposition, CVD)^[20]、脉冲激光沉积(Pulsed Laser Deposition, PLD)^[21]以及磁控溅射法(Magnetic Sputtering, MS)^[22-24]等, 本文所用样品具体制备方法为溅射氧化耦合法(Sputtering Oxidation Coupling, SOC)^[23], 即首先将 HRSi 衬底氧化, 在 HRSi 表面形成一层二氧化硅(SiO_2)薄层作为过渡层, 然后采用直流磁控溅射技术在 SiO_2 表面沉积金属钒薄膜, 最后在约 740 K 的空气中对金属钒薄膜进行充分氧化, 使之形成 VO_2 薄膜^[17,23]。其中 HRSi 衬底直径为 15 mm, 电阻率 $>5\ 000\ \Omega\cdot\text{cm}$, HRSi/ SiO_2 / VO_2 的厚度分别为 500 μm /20 nm/1 000 nm。硅基 VO_2 样品的材料结构示意图如图 1 所示。

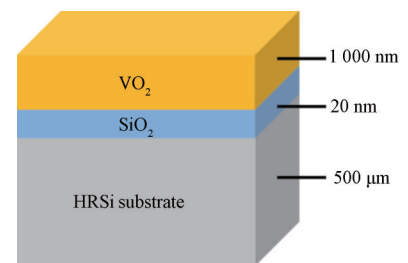


Fig.1 Structural diagram of silicon-based VO_2
图 1 硅基 VO_2 材料结构示意图

2 实验测量系统

2.1 THz 光谱测量系统

傅里叶变换光谱测量系统是 THz 频段非常传统的光谱测量手段, 它是一种基于迈克尔逊干涉仪来实现光谱测量的仪器, 这种仪器利用氦氖激光器的半波长(316.4 nm)作为迈克尔逊干涉仪中动镜移动的基准长度, 通过将宽谱辐射源形成的干涉信号进行离散化处理, 获得辐射能量随动镜位置的变化曲线, 最后采用傅里叶变换, 将上述曲线通过特定的取值函数进行优化, 得到能量随波数(频率)的变化和分布, 即光谱曲线^[18]。在光谱测量过程

中, 为了同时获得 VO_2 样品上某一个点的透射和反射信息, 采用与光谱仪(BRUKER VERTEX 80v)匹配的 11° (入射角)透/反射样品架来实现, 测量时入射光从有 VO_2 薄膜的一侧入射; 样品温度的控制则采用一个变温杜瓦(OXFORD CF-V)来实现。光谱测量过程中样品腔(sample cavity)内部结构及光路示意图如图 2 所示, 其中样品透射和反射谱信息的测量通过旋转反射镜(rotating mirror)来切换。光谱测量时, Globar 光源的光阑孔径设置为 3 mm, 光谱分辨力设置为 2 cm^{-1} ; 被测样品的变温范围为 293~350 K。

2.2 THz 阵列成像系统

上述变温 THz 光谱测量系统揭示的是不同频率处样品相变过程呈现的透过率和反射率变化, 为了揭示整个样品不同区域的相变过程, 本文采用一套 THz 阵列成像系统对 VO_2 相变过程的透过性进行了测量, 测量装置示意图如图 3 所示。成像系统所用的光源为 THz 量子级联激光器(Quantum-Cascade Laser, QCL), 其激光频率为 4.3 THz, THz QCL 发出的激光在经过二维摆镜(2D wobbling mirror)匀束后, 被一个 THz 频段的高密度聚乙烯(High Density Polyethylene, HDPE)透镜(lens)会聚成平行束, 平行束经过样品载板后, 到达带镜头的 THz 阵列探测器(array detector), 经二维摆镜匀束后的成像光斑直径可达 42 mm, 被成像样品放置于样品载片上进行 THz 频段的透射成像, 上述阵列成像系统的单帧成像时间约 0.23 s, 对应成像帧率 8.5 Hz, 阵列的单像元尺寸为 $23.5 \mu\text{m}$, 像素为 320×240 。

3 测量结果与讨论

3.1 光谱测量结果与讨论

为了直接获得样品本身作为相变应用材料的整体性能, 采用图 2 所示的可变温透/反射光谱测量附件, 测量得到了 293~350 K 温度范围内整个硅基 VO_2 材料在 2.5~20.0 THz 频段的透射谱和反射谱, 测量结果如图 4 所示。为了对比, 将硅衬底(Si substrate)的透射谱曲线显示于图 4(a)中。从图中看出, 包含衬底、过渡层和 VO_2 薄膜的样品在由绝缘态相变为金属态时, 材料的透过率和反射率呈现出明显的变化规律。在 293 K, 接近室温的条件下, 整个硅基 VO_2 材料的透过率和反射率呈现出高阻硅的特性, 在整个测量频段的反射率均接近 50%; 当样品温度升高至 350 K(77 °C)时, VO_2 薄膜材料发生充分相变, 其在 2.5~20.0 THz 范围内的反射率约 80%, 即与绝缘态 VO_2 材料相比, 金属态 VO_2 材料的反射率提高了近 30%; 样品在透过率方面的变化也颇为显著, 尤其是在 2.5~5.5 THz 频段, 比如在 4.3 THz 处, 透过率从绝缘态的 47.4% 降至金属态的 5.8%, 降幅超过 40%, 另外在 4.5~20.0 THz 频段, 350 K 下金属态 VO_2 材料的透过率均保持在 5% 以下, 此时 VO_2 材料的金属性得以充分体现。同时, 还观察到 18.3 THz (对应于 75.8 meV)附近, 硅材料中明显的自由载流子吸收峰因温度升高被金属性越来越强的 VO_2 薄膜淹没的现象, 这说明随着温度的升高, VO_2 薄膜的金属性逐渐增强, 成为了整个材料透过率降低的主要因素。

上述光谱测量结果表明, 硅基 VO_2 材料对 THz 辐射既具有透射调制功能, 也具有反射调制功能。值得注意的是, 同一温度下, 材料在 2.5~20.0 THz 范围内的反射率变化率差异不大, 说明硅基 VO_2 材料在制备超宽谱 THz 反射调制器方面具有很好的优势。此外, 由于一定厚度的蓝宝石衬底在 THz 频段的透过率较低, 而掺杂硅衬底在

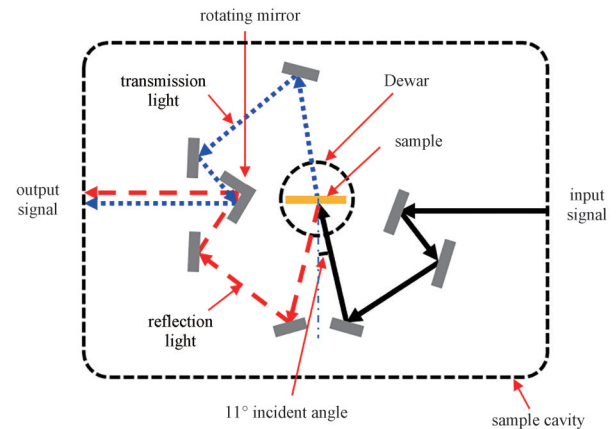


Fig.2 Schematic of internal structure and optical path of the sample cavity of terahertz Fourier transform spectrometer

图2 THz傅里叶变换光谱仪样品腔内部结构及光路示意图

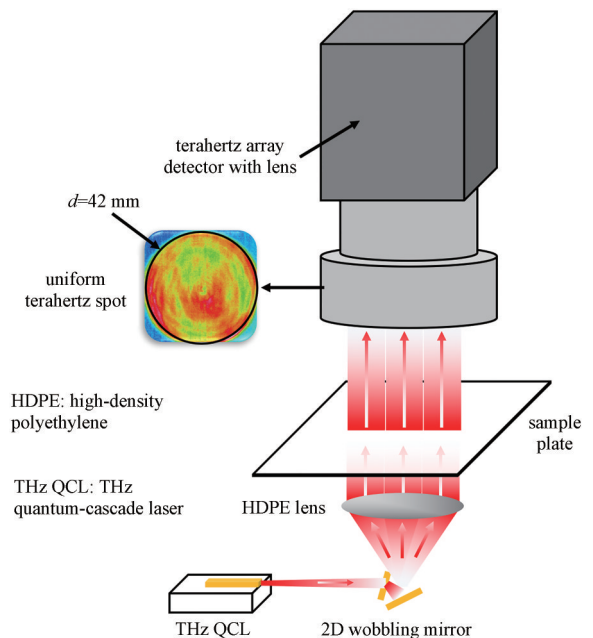


Fig.3 Optical path schematic of a terahertz array imaging system

图3 THz阵列成像系统光路结构示意图

THz 频段存在很强的自由载流子吸收, 也进一步说明了上述基于高阻硅衬底生长的 VO_2 在 THz 频段作为调制器材料的应用潜力和优势。

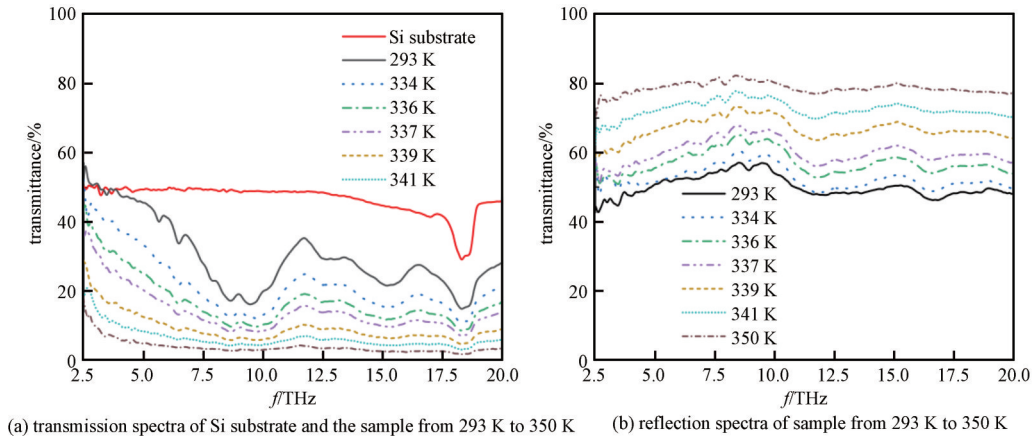


Fig.4 Transmission and reflection spectra of samples

图 4 样品透射谱和反射谱

为了获得某一频率处硅基 VO_2 材料的透过率、反射率和吸收率随相变温度的变化, 从图 4 的光谱中将 4.3 THz 处的随温度变化的光谱信息提取出来, 结果如图 5 所示。图中材料的透过率曲线和反射率曲线以 48% 为对称轴, 随着温度的升高呈对称分布, 当 VO_2 材料还处于绝缘态 ($T=293$ K) 时, 其在 4.3 THz 处的透过率为 47.4%, 反射率为 48.5%, 当材料充分转变成金属态 ($T=350$ K) 时, 其在 4.3 THz 处的透过率降至 5% 左右, 反射率升至接近 80%。由图中吸收率曲线可知, 当温度为 293 K 时, 材料的吸收以高阻硅衬底本身为主, 且吸收率仅为 4%; 当温度升至 339 K 时, 材料的吸收率达到最大, 为 21.4%; 而当温度升至 350 K 时, 吸收率又降低至 16.1%, 充分说明此时的 VO_2 薄膜已完全转变成金属态, 大部分 THz 辐射被材料样品的金属态表面反射掉 (反射率 78%)。此外, 由图 5 还可得出硅基 VO_2 薄膜材料透过率和反射率快速变化的温度范围为 334~341 K (68 °C), 对应温差为 7 K, 这点与传统蓝宝石衬底 VO_2 材料的相变温度范围 (8 K) 相当^[1]。

3.2 阵列成像结果与讨论

为了获得上述硅基 VO_2 材料不同区域的相变情况, 采用一套 4.3 THz 的阵列成像系统获取了该样品材料由金属态变为绝缘态的 THz 图像。由于成像系统中竖直成像光路的设置, 样品加热过程无法直接在光路中进行, 为此先将成像系统调试至最佳状态, 然后用外部加热台将样品充分加热至金属态, 之后迅速将样品放入成像区域 (imaging area) 进行成像和数据获取, 同时观察阵列成像系统中样品的图像变化。当样品的 THz 图像基本无太大变化时, 即样品转变成绝缘态时, 再次进行样品成像和数据获取。上述测量结果如图 6 所示, 其中图 6(a) 为金属态下的 THz 图像, 图 6(b) 为绝缘态下的 THz 图像; 上述 THz 图像的像素均为 320×240 , 其中红色代表信号最强, 蓝色代表信号最弱, 中间强度分别用橙、黄、绿来分色显示。经过成像计时得到, 上述硅基 VO_2 材料由金属态转变为绝缘态的时间约 6 s, 如果不包括金属态和绝缘态的缓变阶段, 整个样品快速相变过程的时间约为 3 s。从图 6(a) 和图 6(b) 可知, 金属态 VO_2 材料的 THz 图像比绝缘态的更为均匀, 这主要是因为整个成像区域光斑能量分布不均匀, 金属态的样品 THz 辐射透过率低, 在透射成像过程中受影响小, 而绝缘态样品因具有一定的透过率, 受影响较大。

为从 THz 图像信号中估算样品的透过率, 取图 6(a) 和图 6(b) 中从顶部开始的第 192 行数据, 分别将金属态和绝缘态样品对应的 THz 图像信号幅值绘制成按水平方向像素分布的曲线, 如图 6(c) 所示。根据图像中成像区域外的蓝色为最低信号, 得到上述成像的背景信号线 (background signal line) 幅值为 5 656, 并从 2 种状态 (metal phase

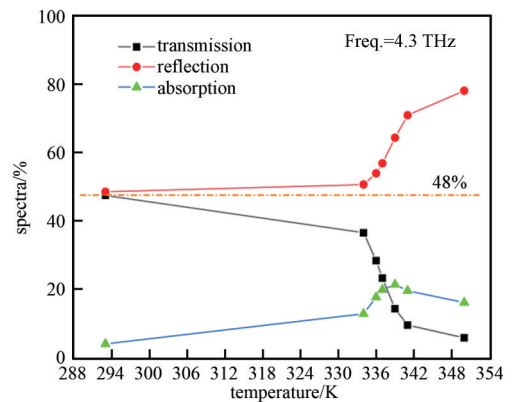


Fig.5 Temperature dependence of transmission, reflection and absorption of silicon-based VO_2 at 4.3 THz

图 5 在 4.3 THz 处, 硅基 VO_2 材料相变时的透过率、反射率和吸收率随温度的变化曲线

和 insulating phase)对应的信号曲线中分别估算得到对应的幅度差, 即 Δ_1 和 Δ_2 。由图 6(c)可知, 金属态样品区域 (sample area)的平均信号水平与背景信号线的幅度差(Δ_1)仅为 5, 绝缘态样品区域的平均信号水平与背景信号线的幅度差(Δ_2)为 38; 将样品区域旁边的信号作为无样品情况下的空载信号幅度, 平均最大幅度差(Δ_0)为 75, 则可计算得到金属态硅基 VO₂材料的透过率为 $t_1=\Delta_1/\Delta_0=6.7\%$, 绝缘态硅基 VO₂材料的透过率 $t_2=\Delta_2/\Delta_0=50.7\%$, 透过率变化为 44%; 这一结果与傅里叶变换光谱测量得到的结果相近, 后者分别为 5.8%和 47.4%。需要注意的是, 由于成像系统暴露于大气环境中且 THz 光斑的二维能量分布不均匀, 在图 6(c)的信号曲线中, 样品区域和非样品区域均出现了突起信号(背景信号较强的区域), 同时由于光斑能量还受环境吸收的影响以及随时间的略微变化, 导致了样品在金属态(黑线)和绝缘态(红线)下不完全一样的信号大小, 因此上述幅度差的上限(信号强)取值为平均值。

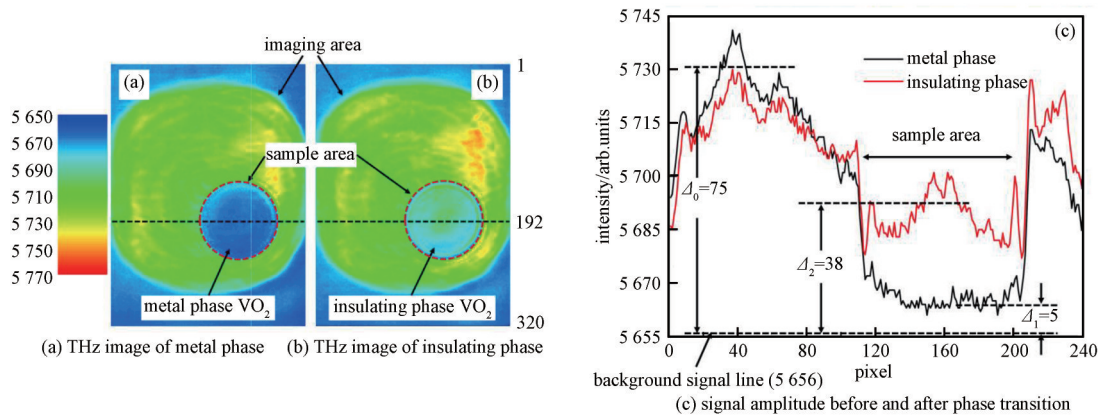


Fig.6 Imaging transmittance analysis of phase transition of silicon-based VO₂

图6 硅基 VO₂材料相变的成像透过率分析

上述 THz 阵列成像过程获得了整个硅基 VO₂ 材料相变时的透过率变化和相变时间, 计算得到样品在金属态和绝缘态下的透过率与傅里叶变换光谱测量得到的结果相近。进一步验证了硅基 VO₂ 材料作为 THz 频段透射调制器的可行性。不过, 由于上述阵列成像系统中 THz 阵列探测器的成像速度并不是很快, 且在图像获取过程中并没有充分发挥 THz 阵列探测器的时间分辨优势, 因此, 未来可采用成像速度更快的高速 THz 成像系统^[25]揭示 VO₂ 材料的快速相变过程。

4 结论

本文采用变温傅里叶变换光谱测量技术, 测量分析了一种磁控溅射氧化耦合法生长的硅基 VO₂ 材料在相变过程的光谱特性, 获得了整个样品在 2.5~20.0 THz 频段透射谱和反射谱随温度的变化。研究表明, 当温度从 293 K 升至 350 K 时, 硅基 VO₂ 材料从绝缘态转变成金属态, 对应材料在 4.3 THz 处的透过率由 47.4% 降至 5.8%, 透过率变化超过 40%, 反射率则从 48.5% 升至 78%, 反射率变化近 30%。为了进一步获得硅基 VO₂ 材料在相变过程中各区域的透射特性, 采用一套 4.3 THz 的阵列成像系统, 测量了该样品整个区域在相变前后的 THz 图像及相应的透射信号, 获得了该材料由金属态转变为绝缘态时, 其对 4.3 THz 激光信号的透过率由 6.7% 升至 50.7%, 透过率变化为 44%, 与傅里叶变换光谱测量结果相当。上述研究结果为硅基 VO₂ 材料用于 2.5 THz 以上电磁辐射的透射调制和反射调制提供了很好的实验数据支撑, 在结合光致相变和电驱动相变等调制手段后, 有望在 2.5 THz 以上频段的快速调制技术中获得应用。

致谢: 特别感谢东华大学理学院徐晓峰教授在硅基 VO₂ 样品制备方面给予的大力帮助。

参考文献:

- [1] MORIN F J. Oxides which show a metal-to-insulator transition at the Neel temperature[J]. Physical Review Letters, 1959,3(1): 34-36.
- [2] LIU K, LEE S, YANG S, et al. Recent progresses on physics and applications of vanadium dioxide[J]. Materials Today, 2018,21(8): 875-896.
- [3] 沙浩, 吴志明, 蒋亚东, 等. 太赫兹波段二氧化钒薄膜的研究进展[J]. 材料导报, 2019,33(8):2513-2523. (SHA Hao, WU Zhiming, JIANG Yadong, et al. Recent progress on vanadium dioxide thin film at terahertz range[J]. Materials Review, 2019,33(8):2513-2523.)

- [4] JEPSEN P U, FISCHER B M, THOMAN A, et al. Metal-insulator phase transition in a VO₂ thin film observed with terahertz spectroscopy[J]. *Physical Review B*, 2006,74(20):205103.
- [5] SHI Q W, HUANG W X, ZHANG Y X, et al. Giant phase transition properties at terahertz range in VO₂ films deposited by Sol-Gel method[J]. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2011,3(9):3523-3527.
- [6] DRISCOLL T, KIM H T, CHAE B G, et al. Memory metamaterials[J]. *Science*, 2009,325(5947):1518-1521.
- [7] KO C, RAMANATHAN S. Observation of electric field-assisted phase transition in thin film vanadium oxide in a metal-oxide-semiconductor device geometry[J]. *Applied Physics Letters*, 2008(93):252101.
- [8] HE X F, XU J, XU X F, et al. Negative capacitance switching via VO₂ band gap engineering driven by electric field[J]. *Applied Physics Letters*, 2015(106):093106.
- [9] NAKAJIMA M, TAKUBO N, HIROI Z, et al. Photoinduced metallic state in VO₂ proved by the terahertz pump-probe spectroscopy[J]. *Applied Physics Letters*, 2008,92(1):011907.
- [10] FAN F, GU W H, CHEN S, et al. State conversion based on terahertz plasmonics with vanadium dioxide coating controlled by optical pumping[J]. *Optics Letters*, 2013,38(9):1582-1584.
- [11] CHOI S B, KYOUNG J S, KIM H S, et al. Nanopattern enabled terahertz all-optical switching on vanadium dioxide thin film[J]. *Applied Physics Letters*, 2011,98(7):071105.
- [12] VEGESNA S, ZHU Y H, ZHAO Y, et al. Terahertz frequency selective surface with reconfigurable polarization characteristics using vanadium dioxide[J]. *Journal of Electromagnetic Waves and Applications*, 2014,28(1):83-90.
- [13] KIM H, CHARIPAR N, BRECKENFELD E, et al. Active terahertz metamaterials based on the phase transition of VO₂ thin films[J]. *Thin Solid Films*, 2015(596):45-50.
- [14] LIU H W, WONG L M, WANG S J, et al. Ultrafast insulator-metal phase transition in vanadium dioxide studied using optical pump-terahertz probe spectroscopy[J]. *Journal of Physics:Condensed Matter*, 2012,24(41):415604.
- [15] 毛茂, 黄婉霞, 张雅鑫, 等. 钨掺杂二氧化钒薄膜的 THz 波段相变性能的研究[J]. *无机材料学报*, 2012,27(8):891-896. (MAO Mao, HUANG Wanxia, ZHANG Yaxin, et al. Study on phase transition property of tungsten-doped vanadium dioxide thin film at terahertz range[J]. *Journal of Inorganic Materials*, 2012,27(8):891-896.)
- [16] ZHANG H F, WU Z M, NIU R H, et al. Metal-insulator transition properties of sputtered silicon-doped and un-doped vanadium dioxide films at terahertz range[J]. *Applied Surface Science*, 2015(331):92-97.
- [17] MENG Y F, SANG J X, LIU Z, et al. Micro-nano scale imaging and the effect of annealing on the perpendicular structure of electrical-induced VO₂ phase transition[J]. *Applied Surface Science*, 2019(470):168-176.
- [18] GRIFFITHS P R, DE HASETH J A. *Fourier transform infrared spectrometry*[M]. 2nd ed. New York: John Wiley & Sons, 2007: 19-93.
- [19] ZHANG H T, ZHANG L, MUKHERJEE D, et al. Wafer-scale growth of VO₂ thin films using a combination approach[J]. *Nature Communications*, 2015(6):8475.
- [20] VERNARDOU D, PEMBLE M E, SHEEL D W. Vanadium oxides prepared by liquid injection MOCVD using vanadyl acetylacetonate[J]. *Surface and Coatings Technology*, 2004(188-189):250-254.
- [21] FAN S J, FAN L L, LI Q, et al. The identification of defect structures for oxygen pressure dependent VO₂ crystal films[J]. *Applied Surface Science*, 2014(321):464-468.
- [22] BRASSARD D, FOURMAUX S, JEAN-JACQUES M, et al. Grain size effect on the semiconductor-metal phase transition characteristics of magnetron-sputtered VO₂ thin films[J]. *Applied Physics Letters*, 2005,87(5):051910.
- [23] XU X F, YIN A Y, DU X L, et al. A novel sputtering oxidation coupling(SOC) method to fabricate VO₂ thin film[J]. *Applied Surface Science*, 2010(256):2750-2753.
- [24] MENG Y F, HUANG K, TANG Z, et al. The effect of argon pressure dependent V thin film on the phase transition process of (020) VO₂ thin film[J]. *Applied Surface Science*, 2018(427):304-311.
- [25] FU Z L, GU L L, GUO X G, et al. Frequency up-conversion photon-type terahertz imager[J]. *Scientific Reports*, 2016(6):25383.

作者简介:

谭智勇(1982-), 男, 博士, 研究员, 主要研究方向为太赫兹光电技术及应用, email:zytan@mail.sim.ac.cn.

曹俊诚(1967-), 男, 博士, 研究员, 主要研究方向为太赫兹物理、器件与应用.

万文坚(1986-), 男, 博士, 副研究员, 主要研究方向为太赫兹半导体器件制备及应用.