

非晶态 InSb 薄膜的光学非线性特性及其超分辨效应

蔡晓林^{1,2} 魏劲松¹ 严 辉^{1,2}

(¹ 中国科学院上海光学精密机械研究所, 上海 201800)
² 中国科学院大学, 北京 100049

摘要 用磁控溅射法制备了 K9 基片/非晶态 InSb/ZnS-SiO₂ 样品。利用椭圆偏振光谱仪对非晶态 InSb 薄膜的光学常数进行了测量,利用傅里叶变换红外光谱仪得到光学带隙为 0.26 eV。采用改进的 Z-扫描装置对 405 nm 波长的非线性吸收和非线性折射进行了测量。结果表明非晶态 InSb 薄膜表现出饱和吸收和自聚焦特性,有效非线性吸收系数为 -3.73×10^{-2} m/W,非线性折射率为 6.64×10^{-9} m²/W。根据非线性吸收系数,计算了非线性吸收截面的面积,与相关文献的报道非常接近。基于对非晶态 InSb 薄膜在 405 nm 波长的变温椭圆偏测试,讨论了热效应对非线性性的贡献。分析表明非线性饱和吸收特性主要来源于纳秒脉冲激光作用下的热效应,而非线性折射特性是电子受激跃迁过程导致的。对饱和吸收特性诱导的超分辨效应进行了模拟,结果表明 InSb 薄膜的非线性吸收特性可以有效减小透射光斑的大小。

关键词 薄膜;光学非线性;Z-扫描;非晶态 InSb;超分辨;光存储

中图分类号 O472 文献标识码 A doi: 10.3788/AOS201333.0931002

Optical Nonlinear Characteristics of Amorphous InSb Thin Film and Its Super-Resolution Effect

Cai Xiaolin^{1,2} Wei Jingsong¹ Yan Hui^{1,2}

(¹ Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 201800, China)
² University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Abstract Samples of amorphous-InSb/ZnS-SiO₂ structure are deposited on K9 glass substrate with magnetron sputtering method in this study. Optical constants of amorphous InSb thin films are measured by a spectroscopic ellipsometer. The optical band gap is determined to be 0.26 eV by Fourier transform infrared spectroscopy. The nonlinear absorption and nonlinear refraction of the amorphous InSb thin films are measured through well-established Z-scan method at the wavelength of 405 nm. Results show that the amorphous InSb thin films show the characteristics of saturable absorption and self-focusing, the nonlinear absorption coefficient is -3.73×10^{-2} m/W, and the nonlinear refractive index is 6.64×10^{-9} m²/W. Based on the nonlinear absorption coefficient, the nonlinear absorption cross section is calculated, which is very close to the reported value of related literature. The thermo-optical effect is investigated by variable temperature ellipsometry method at the wavelength of 405 nm. Analysis indicates that the nonlinear saturable absorption mainly stems from nanosecond laser-induced thermal effect, whereas the self-focusing refraction mainly results from electronic nonlinearity, respectively. The super-resolution effect induced by the saturable absorption characteristic is simulated, and the results show that the nonlinear absorption effect of the amorphous InSb thin films can effectively reduce the size of the transmission spot.

Key words thin films; optical nonlinearity; Z-scan; amorphous InSb; super-resolution; optical data storage

OCIS codes 310.6860; 310.6628; 190.5970; 190.4870

收稿日期: 2013-03-24; 收到修改稿日期: 2013-04-27

基金项目: 国家自然科学基金(51172253,61137002)

作者简介: 蔡晓林(1987—),男,硕士研究生,主要从事半导体薄膜的非线性光学特性及其应用方面的研究。

E-mail: caixiaolin@siom.ac.cn

导师简介: 魏劲松(1974—),男,研究员,博士生导师,主要从事非线性纳米光学与应用方面的研究。

E-mail: weijingsong@siom.ac.cn(通信联系人)

1 引 言

突破光学衍射极限对于超高密度光学数据存储、纳米光刻和超分辨成像等领域十分关键。为了记录和读出高频空间信号, Tominaga 等^[1]于 1998 年提出了基于近场光激发和增强原理的多层薄膜超分辨近场结构(Super-RENS)方法, 用以发展下一代光学信息存储技术。该方法利用非线性掩膜层来减小有效光斑尺寸, 并通过一介电层来控制近场距离, 巧妙地解决了常规近场高速扫描中飞行高度的控制难题。该方案对突破衍射极限实现纳米尺寸信息存储具有重要的指导意义, 并逐渐扩展到纳米光子学研究领域^[2]。随后, 发展了一系列性能优异的非线性超分辨掩膜材料, 比如 Ag-Si, SbTe, GeSbTe, AgInSbTe 和 InSb 等。InSb 半导体薄膜用作超分辨掩膜层具有非常大的应用潜力, 其相应的超分辨光盘单层存储容量可达 50 GB^[3-5]。但是, 激光和 InSb 薄膜的作用机理以及超分辨的原理仍然需要进一步的探究。

Ohkubo 等^[6]测量了 InSb 薄膜的光学常数随温度的变化, 发现从晶态到熔融态光学常数发生了显著的变化, 并认为这是 InSb 掩膜层的超分辨机理。Assafrao 等^[7]认为, 在激光的作用下 InSb 掩膜层中形成了亚波长尺寸的光学散射体, 散射场和下面的记录层发生强耦合作用是超分辨读出的主要原因。

本文用椭圆偏振光谱仪测量了非晶态 InSb(a-InSb)薄膜的光学常数, 并通过傅里叶变换红外光谱仪测量确定了其光学带隙大小。利用改进的 Z-扫描装置, 测量了非晶 InSb 薄膜在波长 405 nm, 脉宽 50 ns 的激光作用下的非线性吸收系数和非线性折射率。通过变温椭圆偏方法分别讨论了热效应对非线性吸收和非线性折射特性的贡献。最后, 对饱和吸收特性诱导的超分辨效应进行了理论模拟。

2 实 验

2.1 薄膜样品的制备

非晶态 InSb 薄膜采用射频磁控溅射方法在室温下制备而成。溅射使用的设备为型号 JGP560 的超高真空磁控溅射镀膜设备, InSb 溅射靶材通过真空熔炼法制备, 原料纯度为 99.999%, 工作气体为 99.999% 的高纯氩气。薄膜基片采用 K9 玻璃作衬底, 实验前衬底依次用 KCr_2O_7/H_2SO_4 溶液、无水乙醇、去离子水分别超声清洗 10 min, 并用高压氮气吹干后立即放入真空腔体。经过一系列的优化实

验, 选取了最佳本底真空 3.0×10^{-4} Pa、溅射气压 0.85 Pa、射频溅射功率 80 W、溅射时间 60 s(溅射速率已事先标定)等工艺参数。另外, 为了防止 InSb 薄膜的氧化和受热蒸发及膨胀, 在 InSb 层表面上镀一层 ZnS-SiO₂ 介电薄膜, 因此样品结构为“K9 基片/InSb/ZnS-SiO₂”。ZnS-SiO₂ 溅射靶材纯度为 99.99%, ZnS 和 SiO₂ 的物质的量之比为 8:2, 溅射气压也是 0.85 Pa, 射频溅射功率 100 W, 溅射时间 200 s。

2.2 样品的测试

薄膜厚度通过表面探针式扫描台阶仪(DektakXT, Bruker Nano)测量, InSb 膜层厚度大约为 30 nm, ZnS-SiO₂ 介电层薄膜厚度为 25 nm。沉积态 InSb 薄膜的 X 射线衍射(XRD)测量结果如图 1 所示。从图 1 可以看到, 沉积态 InSb 薄膜没有明显的衍射峰, 证实了其非晶态特性。非晶态 InSb 薄膜的光学常数通过椭圆偏振光谱仪(GES 5, SOPRA)在室温下测量, 测量光谱范围 300~800 nm, 入射角度为 75°^[8]。对该样品进行变温椭圆偏振光谱测量, 可以得到非晶态 InSb 薄膜折射率和消光系数随温度的变化规律。变温测量入射角度选为 70°, 测量光谱范围仍然为 300~800 nm。为了防止温度升高时氧化等化学反应的发生, 整个测量过程在 Ar 气氛中进行。

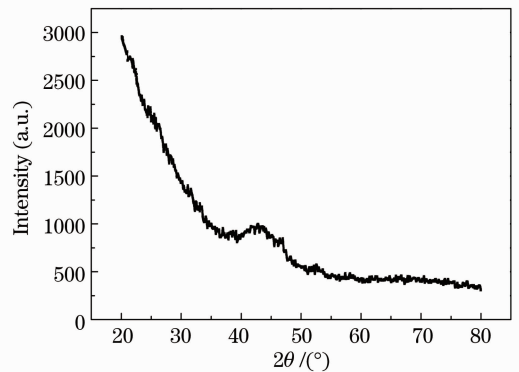


图 1 磁控溅射沉积态 InSb 薄膜的 XRD 图谱
Fig. 1 XRD patterns of as-deposited InSb thin films through magnetron sputtering method

2.3 Z-scan 测量装置

改进型 Z-扫描测量装置如图 2 所示。在装置中, 光源采用 GaN 半导体激光器, 输出波长为 405 nm。信号发生器把激光器输出调制为纳秒脉冲光, 脉冲宽度为 50 ns。入射激光功率可以通过旋转 $\lambda/2$ 波片来改变, 作用在样品上的激光偏振态为圆偏振。偏振分光棱镜(PBS1, PBS2)和 $\lambda/4$ 波片用来隔离样

品反射光对半导体激光器输出稳定性的影响。光电探测器 PD2 和 PD3 分别用来接收透射开孔和透射闭孔信号, PD1 和 PD4 用来分别收集功率监测信号和样品反射光信号。激光束经过聚焦透镜后光强分布接近高斯分布, 并通过光斑扫描仪 (BA3-UV-USB, Duma Optronics) 测得近高斯度为 92%。光束束腰半径 ω_0 通过光斑扫描仪在焦点位置测量, 测量结果为 $10.5 \mu\text{m}$, 通过公式 $z_0 = \pi\omega_0^2/\lambda$ 计算得瑞利衍射距离 $z_0 = 0.855 \text{ mm}$ 。由于样品厚度为

30 nm , 满足薄样品近似条件 $L_{\text{eff}} \ll z_0$ ^[9]。非晶 InSb 薄膜的有效厚度 L_{eff} 可以由下式计算:

$$L_{\text{eff}} = [1 - \exp(-\alpha_0 L)]/\alpha_0, \quad (1)$$

式中 α_0 是非晶 InSb 薄膜线性吸收系数, L 是薄膜厚度。线性吸收系数由椭圆偏振光谱仪测量的消光系数得到, 在常温 405 nm 波长处 $\alpha_0 = 7.08 \times 10^7 \text{ m}^{-1}$, 进而可以计算出有效厚度为 12.44 nm 。

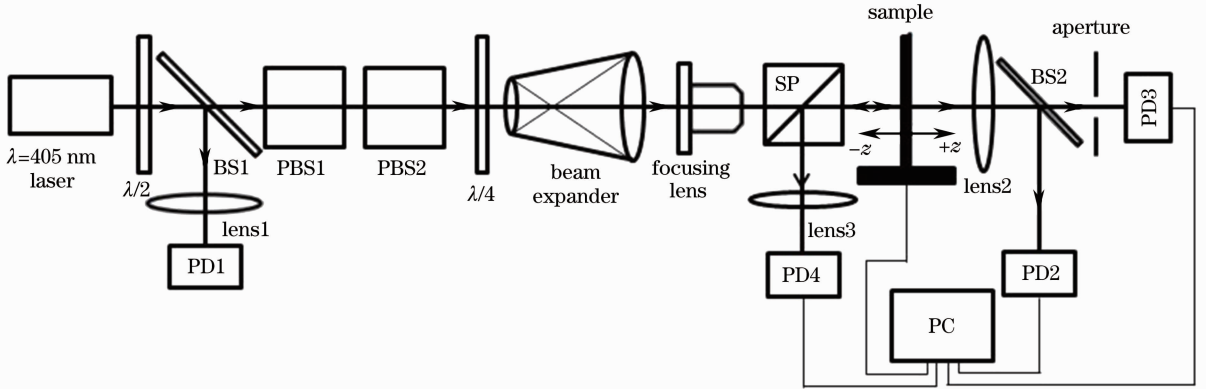


图 2 Z-扫描装置光路图

Fig. 2 Schematics of the Z-scan setup

3 实验结果和讨论

3.1 光学带隙的测量与计算

本征 InSb 是一种 n 型 III-V 族化合物半导体材料, 其晶态体材料为直接跃迁型, 在室温下的禁带宽度约为 0.18 eV 。同时, InSb 薄膜是一种线性吸收很强的化合物半导体。薄膜的光学带隙 E_g 与吸收系数 α 的关系可由下式表示:

$$\alpha(\hbar\omega) = C(\hbar\omega - E_g)^m, \quad (2)$$

式中 C 是与电子跃迁有关的常数, $\hbar\omega$ 是光子能量, 指数 m 是与跃迁类型有关的数值(间接跃迁型半导体取 $m = 2$, 直接跃迁型半导体取 $m = 1/2$)。由于 InSb 体材料是属于直接跃迁型半导体材料, 故取 $m = 1/2$ 来确定非晶态 InSb 薄膜的禁带宽度。

非晶态 InSb 薄膜在常温下的光学常数(n 和 k) 通过椭圆偏振光谱仪测量, 测量光谱范围 $300 \sim 800 \text{ nm}$, 测量步长为 5 nm 。测量数据的拟合模型由柯西色散模型、德鲁特模型和两个洛伦兹峰组成, 拟合相关系数 $R^2 = 0.9965$, 均方误差近似为 2.3×10^{-3} , 拟合结果如图 3(a) 所示。可以看出, 随着波长的增加, 非晶态 InSb 薄膜的折射率逐渐增加, 即 $dn/d\lambda > 0$, 属于反常色散。这与 InSb 体材料在

$1.5 \sim 6.0 \text{ eV}$ 范围内的折射率变化趋势相近^[10]。对于半导体材料, 在本征波长 λ_0 附近, 会产生共振效应, 即当入射光子频率与材料固有频率接近时, 光场与材料体系的能量交换作用很大, 这时就会产生反常色散现象。在实际情况中, 材料往往有不同频率的谐振子, 因而一般会有多个反常色散区。消光系数在近紫外区随着波长的增加而增加, 随后随波长增加而减小, 并在大约 450 nm 处出现极值。从图 3(a) 可以得到非晶 InSb 薄膜在 405 nm 波长处的线性折射率和消光系数分别为 2.71 和 2.28 。根据吸收系数 α 和消光系数 k 之间的转换关系

$$\alpha = \frac{4\pi k}{\lambda}, \quad (3)$$

可以计算出 a-InSb 薄膜在 405 nm 波长的吸收系数为 $7.08 \times 10^7 \text{ m}^{-1}$ 。

采用傅里叶变换红外光谱仪测量 30 nm 的 a-InSb 薄膜在红外波段的吸收光谱, 其结果如图 3(b) 所示。从图 3(b) 中可以近似得到非晶态 InSb 薄膜的光学带隙为 0.26 eV 。可以看出, 薄膜态的 InSb 禁带宽度要比体块材料大, 这是由于量子尺寸效应使得薄膜中的电子被束缚得更紧引起的。而且膜厚越小, 量子束缚效应越明显, 相应的禁带宽度越大。

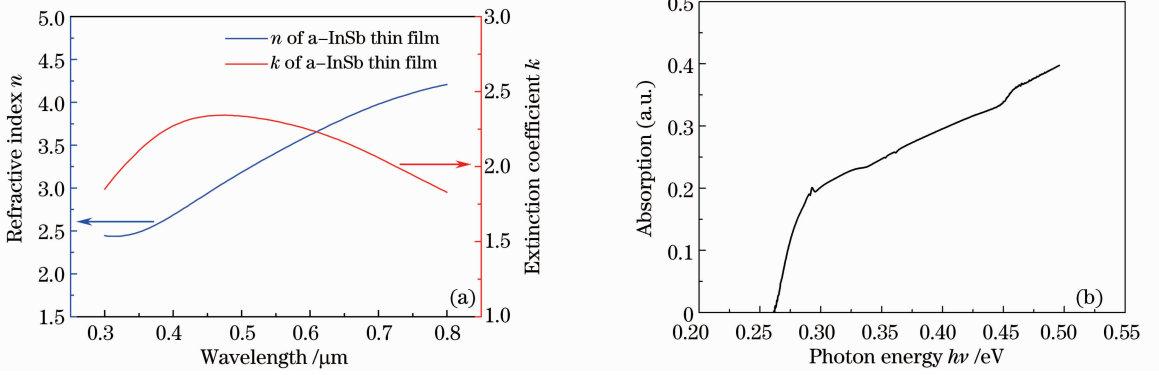


图 3 (a) 光学常数(n , k)与波长的关系, (b) 红外波段吸收与光子能量 $h\omega$ 的关系曲线

Fig. 3 (a) Relation between optical constants (n and k) and wavelength; (b) absorption curve versus photon energy $h\omega$ in near IR region

这与实验测量出的光学禁带宽度随薄膜厚度减小而增大的结果相符^[11-12]。

3.2 非晶态 InSb 薄膜光学非线性测试与分析

半导体材料在激光作用下存在饱和吸收(SA)和反饱和吸收(RSA), SA 一般是由带填充效应或者热效应导致的^[13-14], 而 RSA 一般与双光子吸收(TPA)或者自由载流子吸收(FCA)有关^[15-16]。强度依赖的饱和吸收系数 $\alpha(I)$ 可以表达为^[17]

$$\alpha(I) = \frac{\alpha_0}{1 + I/I_s}, \quad (4)$$

式中 α_0 是线性吸收系数, I_s 是饱和吸收光强。在低光强激发下, 即 $I/I_s \ll 1$, 这时

$$\alpha(I) \approx \alpha_0(1 - I/I_s) = \alpha_0 + \beta I, \quad (5)$$

式中 $\beta = -\alpha_0/I_s$ 是非线性饱和吸收系数。

采用如图 2 所示的 Z-扫描装置测量非晶 InSb 薄膜的光学非线性吸收系数和非线性折射率。样品结构为 K9 基片/a-InSb(30 nm)/ZnS-SiO₂(25 nm), 其中 ZnS-SiO₂ 层可以有效防止 InSb 薄膜在激光作用下发生氧化和热膨胀。ZnS-SiO₂ 薄膜是透明介电层,

在实验前单独测试没有发现其非线性特性。激光波长为 405 nm, 作用在样品上的激光为圆偏振光, 轴上光强为 $8.27 \times 10^7 \text{ W/m}^2$, 脉冲宽度 50 ns。非晶 InSb 样品的 Z-扫描测量结果如图 4 所示。图 4(a) 是测量非线性吸收的开孔曲线, 可以看出非晶 InSb 薄膜表现出饱和吸收特性; 图 4(b) 是非线性折射曲线, 由闭孔数据除以开孔数据得到, 可以看出非晶 InSb 薄膜在 405 nm 波长表现出自聚焦特性。理论拟合给出非线性吸收系数 $\beta_{\text{eff}} = -3.73 \times 10^{-2} \text{ m/W}$, 非线性折射率 $n_2 = 6.64 \times 10^{-9} \text{ m}^2/\text{W}$ 。如此巨大的光学非线性必然对纳米光存储中的超分辨效应有重要贡献, 这在 3.3 节中将会详细讨论。

非线性光学吸收截面 σ 的定义为 $\sigma = -\Delta\alpha/\Delta N$ 。其中, $\Delta\alpha = \beta_{\text{eff}} I_{\text{eff}}$ 是吸收系数的变化, ΔN 是吸收引起的导带载流子浓度, $\Delta N = \alpha_0(h\nu) I_{\text{eff}} \tau_R / h\omega$, I_{eff} 是有效光强, τ_R 是自由载流子寿命。由此可以推导出非线性吸收截面和非线性吸收系数之间的关系为

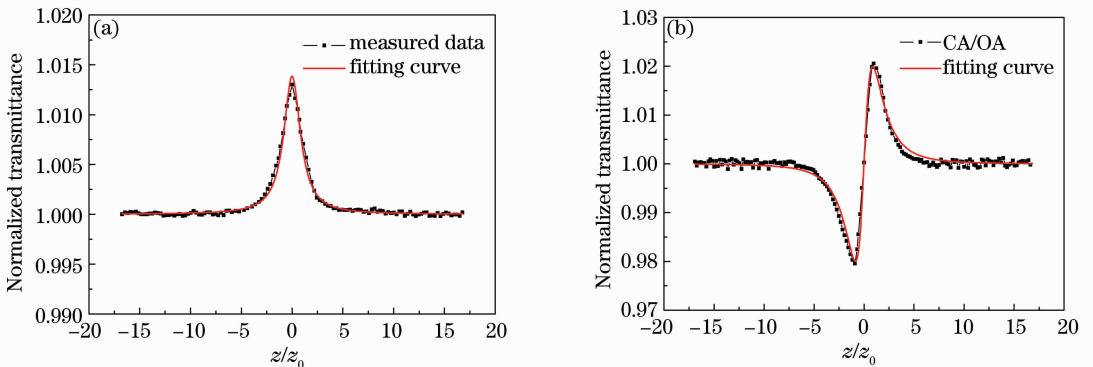


图 4 非晶态 InSb 薄膜非线性 Z-扫描测量结果。(a) 非线性吸收(开孔曲线); (b) 非线性折射(闭孔数据除以开孔数据)

Fig. 4 Nonlinear Z-scan measurement results of amorphous InSb thin film. (a) Optical nonlinear absorption (open mode); (b) nonlinear refraction (division of closed-aperture data by open-aperture data)

$$\sigma = -\frac{\beta_{\text{eff}} \hbar \omega}{\alpha_0 \tau_R} \quad (6)$$

根据表 1 中的物理参数,代入有效非线性吸收系数测量值 β_{eff} ,可以计算出非线性吸收截面等于 $5.45 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$,这与半导体材料 InN 薄膜的相应报道值非常接近^[14]。

实验过程中,在同一样品位置反复进行 Z-扫描测量,发现开孔曲线和闭孔曲线都具有很好的可重复性。说明实验测量的光学非线性来自于激光诱导下材料本身的特性,而不是样品结构变化引起的。把经过 Z-扫描测量的样品放在高倍光学显微镜下观察,没有发现相变或者烧蚀迹象。在 Z-扫描实验中,激光功率很低,再加上聚焦透镜的数值孔径很小,最小束腰半径高达 $10.5 \mu\text{m}$,样品在扫描过程中

表 1 InSb 半导体材料的相关物理参数

Table 1 Physical parameters of InSb semiconductor

n_0	α_0/m^{-1}	τ/ns	t_p/ns	$\rho/(\text{g}/\text{cm}^3)$	$c_p/[\text{J}/(\text{g}\cdot\text{K})]$	E_g/eV	$\Delta T/\text{K}$	T_C/K
2.71	7.08×10^7	$50^{[19-20]}$	50	$5.77^{[19]}$	$0.20^{[19]}$	0.26	127	450

为了研究热致非线性的贡献,对非晶态 InSb 薄膜进行变温椭圆偏测试。数据拟合模型与 3.1 节中常温测量相同,拟合相关系数 $R^2 = 0.992 \sim 0.997$,均方误差等于 $(2.3 \sim 3.4) \times 10^{-3}$ 。取 405 nm 波长的光学常数,其结果如图 5 所示。可以看出,在 $290 \sim 430 \text{ K}$ 温度范围内,消光系数和折射率都随着温度的升高而逐渐减小。在 450 K 附近,消光系数急剧减小,折射率急剧增大,这是因为非晶 InSb 薄膜晶化导致的。当温度大于 450 K 时,随着晶化程度的增加,消光系数继续大幅减小,随后变化趋于稳定;而折射率随温度继续大幅增加,随后随温度的变化也逐渐稳定。在 $300 \sim 420 \text{ K}$ 温度范围内,对消光系数和折射率进行线性拟合,可以得到 $dk/dT = -3.610 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$, $dn/dT = -3.314 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$ 。根据(3)式可以把消光系数随温度的变化率转化为吸

的温度变化很小。根据文献[18],Z-扫描中稳态时间平均温度升高值可通过下式计算:

$$\langle \Delta T \rangle = \frac{\alpha_0 t_p}{2c_p} I_0, \quad (7)$$

式中 t_p 是激光脉冲宽度, I_0 是焦面轴上光强, ρ 是密度, c_p 是材料等压比热容。从文献[19]可以得到 InSb 的密度和比热容,其值列于表 1,代入上式计算出温度升高值为 127 K 。值得注意的是,利用(7)式计算时,忽略了激光脉冲作用时热传导、热辐射和对流等热损耗的影响。所以,样品激光作用区的实际温度升高值低于 127 K ,也就是说样品上的激光作用点的最高温度低于 420 K ,该温度小于 InSb 薄膜的晶化温度 $T_C(450 \text{ K})$ 。

收系数随温度的变化,即 $da/dT = -1.12 \times 10^4 \text{ m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ 。热效应导致的非线性吸收系数和非线性折射率可以按如下两式计算^[13,18,21]:

$$\beta_i = \frac{\alpha_0 t_p}{2c_p} \frac{d\alpha}{dT} = \left(\frac{d\alpha}{dT} \right) \frac{\Delta T}{I_0}, \quad (8)$$

$$n_2^i = \frac{\alpha_0 t_p}{2c_p} \frac{dn}{dT} = \left(\frac{dn}{dT} \right) \frac{\Delta T}{I_0}. \quad (9)$$

代入相关参数值,计算出热致非线性吸收系数 $\beta_i = -1.72 \times 10^{-2} \text{ m/W}$,热致非线性折射率 $n_2^i = -5.08 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{W}$ 。从中看出,热致非线性吸收系数与 Z-扫描测量值符号相同,大小也非常接近,说明非晶态 InSb 薄膜的非线性饱和吸收特性主要起源于纳秒脉冲激光作用下的热效应。而热致非线性折射系数与 Z-扫描测量值符号相反,大小也相差一个数量级,说明非晶态 InSb 薄膜的非线性折射机

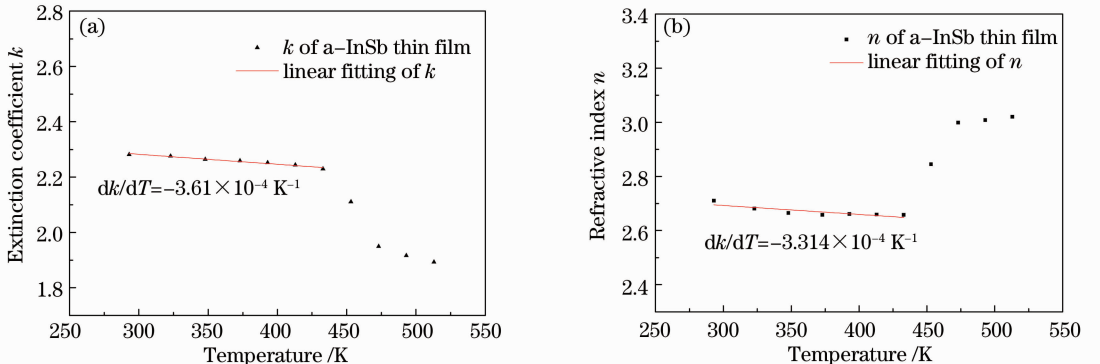

 图 5 (a)消光系数 k 和(b)折射率 n 随温度的变化

Fig. 5 (a) Extinction coefficient and (b) refractive index vary with temperature

理主要不是热效应的贡献。

一般来说,半导体材料的非线性折射主要有两部分的贡献,一个是热效应,一个是电子响应。相应的非线性折射系数可以写为

$$n_2 = n_2^e + n_2^t. \quad (10)$$

电子非线性主要是激光作用下电子在能级上的布居变化引起的。当材料中电子的分布发生变化时,电子极化率也会随着发生变化,从而表现为非线性光学响应。电子在半导体能级中的布居变化机理包括从价带到导带的跃迁、导带中激发态电子的跃迁、激发态电子的弛豫过程等。由于 InSb 薄膜的带隙能量小于光子能量($\hbar\omega = 3.06$ eV)。因此,在 405 nm 脉冲激光的激发下,激发态中的载流子浓度因为电子跃迁而发生显著的变化,导致非线性折射的产生。

对于非共振激发,电子跃迁引起的折射率变化可以表达为^[20]

$$\Delta n^e = -\frac{N_e e^2}{2\varepsilon_0 n_0 \omega^2} \frac{1}{\mu} \frac{E_g^2}{E_g^2 - (\hbar\omega)^2}, \quad (11)$$

式中 $\mu = (m_c m_v)/(m_c + m_v)$ 是导带电子和价带空穴的折合质量, N_e 为导带自由电子的密度, $E_g^2/(E_g^2 - \hbar^2\omega^2)$ 叫增强因子。假设入射光强为 I , 且每吸收一个光子产生一个电子空穴对,采用两能级模型,可以得到电子的速率方程:

$$\frac{dN_e}{dt} = \frac{\alpha I}{\hbar\omega} - \frac{N_e - N_{e0}}{\tau_R}, \quad (12)$$

式中 τ_R 是载流子寿命, N_{e0} 是热平衡时的电子浓度。在稳态情况下,可以得到

$$N_e = N_{e0} + \frac{\alpha I}{\hbar\omega} \tau_R. \quad (13)$$

把(13)式代入(11)式中,并通过 $n_2 = \Delta n/I_{\text{eff}}$ 得到相应的非线性折射率为

$$n_2^e = -\frac{(N_{e0} + \alpha I \tau_R / \hbar\omega) e^2}{2\varepsilon_0 n_0 \omega^2 I_{\text{eff}}} \frac{1}{\mu} \frac{E_g^2}{E_g^2 - (\hbar\omega)^2}. \quad (14)$$

如果忽略导带中热激发电子浓度 N_{e0} , 并且入射光强 $I = I_{\text{eff}}$, (14)式可以简化为

$$n_2^e = -\frac{\alpha e^2 \tau_R}{2\varepsilon_0 n_0 \hbar\omega^3} \frac{1}{\mu} \frac{E_g^2}{E_g^2 - (\hbar\omega)^2}. \quad (15)$$

由(15)式可以看到,在光子能量等于 3.06 eV 时,电子跃迁引起的非线性折射率大于零,与 Z-扫描测量结果一致。代入相关参数值计算出电子非线性折射的大小为 $n_2^e = 6.34 \times 10^{-10}$ m²/W,比 Z-扫描测量值低一个数量级。

3.3 InSb 超分辨效应分析

由于非晶态 InSb 薄膜在 405 nm 波长的线性吸收很强,吸收系数高达 7.08×10^7 m⁻¹,所以在超分

辨结构中,InSb 掩膜层的厚度一般不宜过大,通常选取 20 nm 效果更佳。非线性薄膜材料的超分辨效应主要是来源于非线性吸收特性,而非线性折射引起的相位变化由于膜层很薄而较小,自聚焦效应不是很明显。而且自聚焦效应的等效透镜焦距公式为 $f = A\omega_0^2/4\Delta nL$,可以计算出等效透镜的焦距大小约为 4.5 μm,远远超过了近场的范围和记录层的厚度。

在高密度光学数据存储中,刻录点尺寸小于读出光斑尺寸,存储密度主要受读出技术的限制^[22]。因此,超分辨读出对于超分辨高密度光存储非常关键。根据非晶态 InSb 薄膜非线性吸收系数,对 InSb 薄膜超分辨层的读出光斑进行理论模拟。读出光源激光波长仍然为 405 nm,光学头的数值孔径选择 $NA = 0.65$,由此可计算出束腰半径 $\omega_0 = 0.61\lambda/NA = 380$ nm。读出激光功率为 1.5 mW, InSb 掩膜层厚度为 20 nm。假定激光束为基模 TEM₀₀ 高斯光束,其光电场分布为

$$E(r, z) = E_0 \frac{\omega_0}{\omega(z)} \times \exp\left[-\frac{r^2}{\omega^2(z)} - \frac{ikr^2}{2R(z)} - ikz\right] \exp[-i\phi(z)], \quad (16)$$

其中 $\omega(z) = \omega_0(1 + z^2/z_0^2)^{1/2}$, $R(z) = z(1 + z_0^2/z^2)$ 。由于超分辨结构中非线性掩膜层在读出激光的焦点位置附近,可以认为 $z \ll z_0$ 。结合光强与电场的关系,由(16)式可以得到入射光强分布为

$$I_{\text{in}}(r) = I_{0\text{in}} \exp(-2r^2/\omega_0^2), \quad (17)$$

其中 $I_{0\text{in}}$ 是轴上入射光强, $I_{0\text{in}} = 2P/\pi\omega_0^2$ 。根据 Lambert-Beer 吸收定律,

$$I(r) = I_{\text{in}}(r) \exp(-\alpha L), \quad (18)$$

其中, L 为薄膜厚度, α 为材料吸收系数。考虑到非线性掩膜层的吸收系数与光强有关,

$$\alpha(I) = \alpha_0 + \beta I(r). \quad (19)$$

把(17)、(19)式代入(18)式中,得到透射光强分布为

$$I(r) = I_{0\text{in}} \exp(-2r^2/\omega_0^2) \times \exp\{-[\alpha_0 + \beta I_{0\text{in}} \exp(-2r^2/\omega_0^2)]L\}. \quad (20)$$

由(20)式可以得到归一化透射光强分布:

$$I_{\text{normalized}}(r) = \frac{I(r)}{I(0)} = \frac{\exp(-2r^2/\omega_0^2) \exp[-\beta I_{0\text{in}} L \exp(-2r^2/\omega_0^2)]}{\exp(-\beta I_{0\text{in}} L)}. \quad (21)$$

根据(21)式,对具有饱和吸收特性的 InSb 掩膜超分辨效应进行模拟,结果如图 6 所示。可以看出透射光斑经过 InSb 非线性掩膜层后显著减小,有效光斑尺寸由原来的 760 nm 减小为 337 nm,缩小了一半

以上,仅为激光波长的 0.83 倍。这是因为在 InSb 饱和吸收层中形成了低于衍射极限的光学小孔通道,这个通道可以有效地减小作用在记录层上的光斑尺寸^[23]。在一定的光强范围内,材料的非线性吸收特性是可逆的,因此非线性掩膜层的读出也是可重复的。

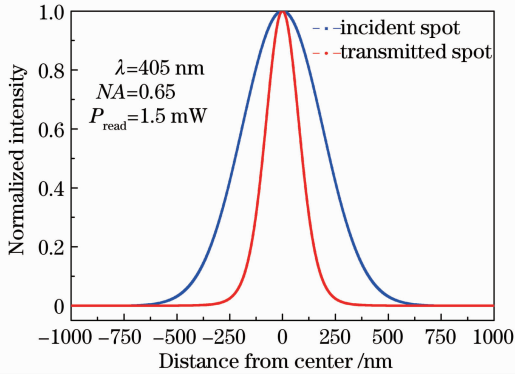


图 6 入射光斑和通过 20 nm 的 InSb 薄膜的透射光斑光强分布对比

Fig. 6 Light intensity distribution of incident and transmitted laser spot going through 20 nm InSb thin film

在超分辨光存储中,超分辨信息点的读出最为关键,对于一定尺寸的信息点和读出光学系统,会有一个读出激光功率的阈值效应。一般取 $I_{\text{normalized}} = 0.80 \sim 0.90$ 对应的 $2r$ 作为超分辨读出的有效光斑尺寸^[24],这里取 $I_{\text{normalized}} = 0.85$ 。从(21)式可以推导出读出阈值功率 P_{th} 与有效光斑直径 d 之间的关系为

$$P_{\text{th}} = \frac{\pi}{2\beta L} \cdot \frac{d^2/2 + \ln(0.85)\omega_0^2}{1 - \exp(d^2/2\omega_0^2)}. \quad (22)$$

根据(22)式画出的读出阈值功率与记录点尺寸之间的理论关系曲线如图 7 所示。可以看出,随着记录点尺寸的减小,需要的超分辨读出功率逐渐增大。当记录点尺寸为 60 nm 时,所需的激光读出功率达到 3.6 mW。值得注意的是,读出激光功率不能过大,否则会给整个读出系统带来困难。

4 结 论

通过 XRD 确定了磁控溅射法制备的 InSb 薄膜样品的非晶态结构。利用椭圆偏振光谱仪对 a-InSb 薄膜在室温下的光学常数进行了测量,得到 405 nm 波长处的折射率和消光系数分别为 2.71 和 2.28。Z-扫描方法测得 a-InSb 薄膜在纳秒脉冲激光作用下表现为饱和吸收和自聚焦特性,有效非线性吸收系数等于 -3.73×10^{-2} m/W,非线性折射率为 $6.64 \times$

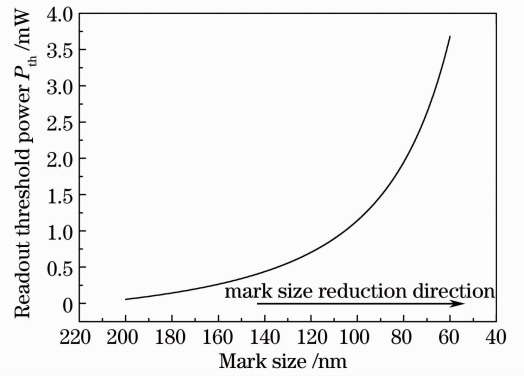


图 7 超分辨激光读出阈值功率与记录点尺寸的关系的理论计算结果

Fig. 7 Dependence of readout threshold power on recorded mark size from theoretical calculation

10^{-9} m²/W,非线性吸收截面为 5.45×10^{-17} cm²。根据变温椭圆偏测试结果,讨论了热效应对非线性的贡献。分析表明非线性饱和吸收特性主要起源于纳秒激光作用下的热效应。而对于非线性折射,电子受激跃迁过程的载流子效应占据主导地位。理论模拟了饱和吸收特性诱导的超分辨读出,结果发现 a-InSb 掩膜层的透射光斑得到了有效压缩,大小仅为入射光斑的 44%,且读出阈值功率随记录点尺寸的减小而增大。这些结果对超分辨纳米光信息存储的机理研究具有一定的参考意义。

参 考 文 献

- 1 J Tominaga, T Nakano, N Atoda. An approach for recording and readout beyond the diffraction limit with an Sb thin film [J]. Appl Phys Lett, 1998, 73(15): 2078-2080.
- 2 Gan Fuxi, Wang Yang. Breaking through the optical diffraction limits, developing the nano-optics and photonics [J]. Acta Optica Sinica, 2011, 31(9): 0900104.
干福熹,王 阳. 突破光学衍射极限,发展纳米光学和光子学 [J]. 光学学报, 2011, 31(9): 0900104.
- 3 K Nakai, M Ohmaki, N Takeshita, et al.. First playback of high-definition video contents from super-resolution near-field structure optical disc [J]. Jpn J Appl Phys, 2010, 49(8): 08KE02.
- 4 B Hyot, S Olivier, M F Armand, et al.. High capacity super RENS-ROM disc with InSb active layer [C]. Proc of E* PCOS09, 2009.
- 5 B Hyot, X Biquard, F Laulagnet. Super-resolution ROM disc with a semi-conductive InSb active layer [C]. Proc of E* PCOS07, 2007.
- 6 S Ohkubo, K Aoki, D Eto. Temperature dependence of optical constants for InSb films including molten phases [J]. Appl Phys Lett, 2008, 92(1): 011919.
- 7 A C Assafrao, A J H Wachters, M Verheijen, et al.. Direct measurement of the near-field super resolved focused spot in InSb [J]. Opt Express, 2012, 20(9): 10426-10437.
- 8 Xinmiao Lu, Yiqun Wu, Yang Wang, et al.. Optical characterization of antimony-based bismuth-doped thin films with different annealing temperatures [J]. Chin Opt Lett, 2011, 9(10): 102101.

- 9 M Sheik-Bahae, A A Said, T H Wei, *et al.*. Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam [J]. IEEE J Quantum Electron, 1990, 26(4): 760–769.
- 10 D E Aspnes, A A Studna. Dielectric functions and optical parameters of Si, Ge, GaP, GaAs, GaSb, InP, InAs, and InSb from 1.5 to 6.0 eV [J]. Phys Rev B, 1983, 27(2): 985–1009.
- 11 Lu Xinmiao, Jiang Laixin, Wu Yiqun, *et al.*. Dependence of optical constants and optical band gap on thickness of antimony-based bismuth-doped film at near-infrared region [J]. Acta Optica Sinica, 2012, 32(11): 1131001.
逯鑫淼, 姜来新, 吴谊群, 等. 近红外波段锑基铋掺杂薄膜厚度对光学常数与光学带隙的影响[J]. 光学学报, 2012, 32(11): 1131001.
- 12 M Yüksek, U Kürüm, H G Yaglıoğlu, *et al.*. Nonlinear and saturable absorption characteristics of amorphous InSe thin films [J]. J Appl Phys, 2010, 107(3): 033115.
- 13 J Liu, S Liu, J C Wei, *et al.*. Origin of the giant optical nonlinearity of Sb₂Te₃ phase change materials [J]. Appl Phys Lett, 2010, 97(26): 261903.
- 14 T R Tsai, T H Wu, J C Liao, *et al.*. Characterization of nonlinear absorption of InN epitaxial films with femtosecond pulsed transmission Z-scan measurements [J]. J Appl Phys, 2009, 105(6): 066101.
- 15 N Venkatram, R Sathyavathi, D N Rao. Size dependent multiphoton absorption and refraction of CdSe nanoparticles [J]. Opt Express, 2007, 15(19): 12258–12263.
- 16 R L Sutherland. Handbook of Nonlinear Optics [M]. New York: Marcel Dekker, 2003.
- 17 E Garmire, A Kost. Nonlinear Optics in Semiconductors II: Semiconductors and Semimetals [M]. San Diego: Academic Press, 1999.
- 18 S Liu, J S Wei, F X Gan. Optical nonlinear absorption characteristics of crystalline Ge₂Sb₂Te₅ thin films [J]. J Appl Phys, 2011, 110(3): 033503.
- 19 M Levenshtein, S Romyantsev, M Shur. Handbook Series on Semiconductor Parameters [M]. London: World Scientific, 1995.
- 20 D N Christodoulides, I C Khoo, G J Salamo, *et al.*. Nonlinear refraction and absorption: mechanisms and magnitudes [J]. Adv Opt Photon, 2010, 2(1): 60–200.
- 21 S Liu, J S Wei, F X Gan. Nonlinear absorption of Sb-based phase change materials due to the weakening of the resonant bond [J]. Appl Phys Lett, 2012, 100(11): 111903.
- 22 F Zhang, Y Wang, W D Xun, *et al.*. High-density read-only memory disc with Ag₁₁In₁₂Sb₅₁Te₂₆ super-resolution mask layer [J]. Chin Phys Lett, 2004, 21(10): 1973–1975.
- 23 X Q Ma, J S Wei. Nanoscale lithography with visible light: optical nonlinear saturable absorption effect induced nanobump pattern structures [J]. Nanoscale, 2011, 3(4): 1489–1492.
- 24 J S Wei. On the dynamic readout characteristic of nonlinear super-resolution optical storage [J]. Opt Commun, 2013, 291: 143–149.

栏目编辑: 韩 峰