

Metamaterialien mit negativem Brechungsindex für die Überwindung der Abbeschen Auflösungsgrenze



Thomas Pertsch ¹



Carsten Rockstuhl ¹



Uwe Hübner ²



Christoph Etrich ¹



Ekatarina Pshenay-Severin ¹

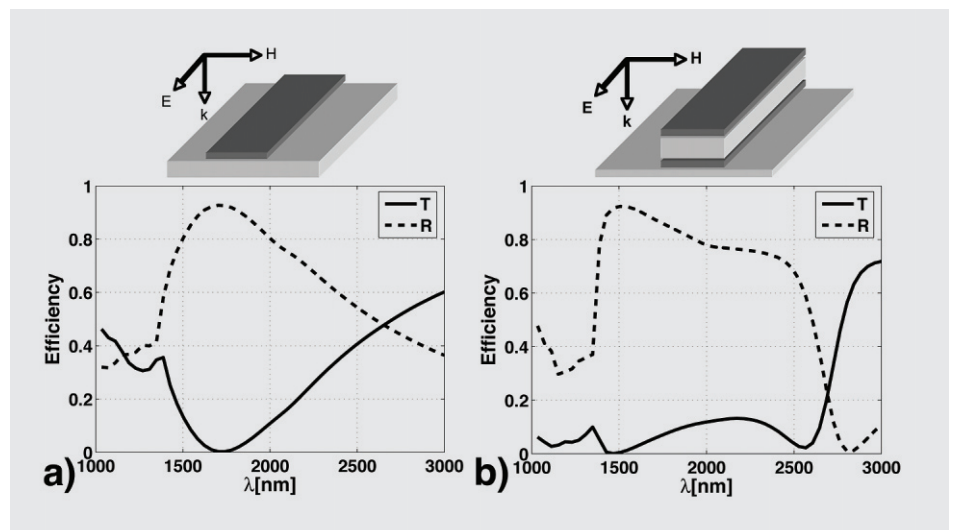
Einleitung

In natürlichen Kristallen sind die Atome periodisch mit Gitterkonstanten von 0,5 nm angeordnet. Diese Abstände sind um Größenordnungen kleiner als die Wellenlänge des sichtbaren Lichtes. Da das einfallende Licht diese räumlichen Details nicht auflöst, kann das Material als ein effektives homogenes Medium beschrieben werden. In natürlichen Materialien sind die molekularen elektrischen Dipole bei Frequenzen des Lichtes aktiv. Sie werden durch die elektrische Feldkomponente angeregt. Magnetische Dipole, die aktiv auf das hochfrequente magnetische Feld des Lichtes reagieren könnten, wurden trotz intensiver Suche in natürlichen Materialien bis jetzt nicht gefunden. Als elektromagnetische Metamaterialien (MM) werden künstlich hergestellte Metall-Dielektrika Kompositstrukturen bezeichnet, die ebenfalls charakteristische Strukturdimensionen besitzen, die wesentlich kleiner als die Wellenlänge

der einfallenden Strahlung sind $\lambda/1-5$. Somit können Metamaterialien auch durch effektive Materialparameter beschrieben werden. Die Materialeigenschaften sind aber durch die Einstellung der Resonanzeigenschaften der einzelnen Metallstrukturen theoretisch viel weiter wählbar, als in natürlichen Materialien. Neben den aus natürlichen Materialien bekannten aktiven elektrischen Dipolen, sind in Metamaterialien auch aktive magnetische Dipole herstellbar. Dies bewirkt neben der Anregung der elektrischen Dipole durch das elektrische Feld und damit einer Beeinflussung der effektiven Permittivität, auch eine Anregung der magnetischen Dipole durch das magnetische Feld und damit eine Änderung der effektiven Permeabilität. Verschiedene Geometrien, welche entweder die elektrische oder die magnetische Resonanz oder beide Resonanzen aufweisen, wurden bereits für unterschiedliche spektrale Bereiche vorgeschlagen. Eine gleichzeitige starke Anregung der elektrischen und magnetischen Resonanz in

Abb. 1: Transmission (T) und Reflexion (R) simuliert mit Rigorous Diffraction Theory a) für einen Nanodraht, b) für ein Nanodrähteppaar mit einer 180 nm PMMA Schicht.

Fig. 1: Transmission (T) und Reflection (R) simulated with rigorous diffraction theory a) for a nanowire, b) for a pair of nanowires with a dielectric PMMA layer of 180 nm between the wires.



- ¹ Friedrich-Schiller-Universität Jena, Institut für Angewandte Physik
- ² Institut für Physikalische Hochtechnologie Jena
- ³ GmBU Halle/S.
- ⁴ Fraunhofer IOF

Metamaterials with negative refraction index for overcoming the Abbe limit

Introduction

Response to the electric and magnetic fields of light waves in a conventional crystal is determined by a collective response of periodically arranged atoms or molecules. In a typical situation of interaction between electro-magnetic waves and a matter, sizes of the atoms or molecules are of an order of magnitude smaller than the wavelength of light. Due to this fact such material can be considered as a homogeneous medium. In this medium phase velocity may depend on the propagation direction and the electrical dipoles can be in resonance with the frequency of incoming light. In contrast, any active natural "magnetic dipoles" which would be induced by an incoming light have not yet been found.

Electromagnetic metamaterials (MM) are often artificial metal-dielectric composite structures with metal-metal distances that are still smaller than the wavelength of light [1-5]. Therefore such materials can also be described by effective material parameters. Properties of such materials are adjustable in a broader way than in conventional materials by controlling the resonances associated with a single metal structure. In metamaterials it becomes possible to fabricate electric dipoles as well as magnetic ones. Therefore it is evident that the excitation of a resonance of the electric field will influence the effective permittivity, whereas a resonance of the magnetic field will alter the effective permeability. Recently, various geometries, which exhibit either electric, magnetic or both resonances in different frequency domains have been proposed. A simultaneous excitation of the electric and magnetic resonances at the same frequency allows for the creation of a medium with a negative refractive index (negative index material (NIM)). In this material

a series of counterintuitive physical effects, like reverse Snell' law, reverse Doppler and Cherenkov effects, and amplification of the evanescent waves have been predicted. Using some of the properties makes it possible to realize imaging systems with sub-wavelength resolution.

Theoretical description

Metal-dielectric composite structures consisting of single or paired gold nanowires, separated by a thin PMMA or SiO₂ film on a glass substrate are shown in Fig. 1. The transmission and reflection in Fig. 1 has been simulated by using a rigorous diffraction theory, and permittivity of gold has been described by a Drude model. A parameter retrieval algorithm has been used in order to determine effective permittivity and permeability – see Fig. 2.

A single plasmonic resonance is produced by illuminating a single gold nanowire structure. The resonance can be spectrally tuned by tailoring the geometrical parameters of the gold nanowire. Double nanowire structures consist of two gold nanowires and a dielectric spacing layer between them. These structures can produce magnetic and electric resonances in different spectral ranges. Spectral position of the magnetic resonance is controllable by increasing of the height of the dielectric layer (Fig. 3).

A 3D FDTD simulation of magnetic field distribution has been performed in order to identify the type of resonances. A current in the nanowires induces circular magnetic fields with opposite flow directions, as shown in Fig. 4c. In the upper wire the magnetic field is directed clockwise whereas it is counterclockwise in the lower one.



Arkadi Chipouline ¹



Ulf Bauerschäfer ³



Frank Garwe ¹



Falk Lederer ¹



Andreas Tünnermann ^{1,4}

einem bestimmten spektralen Bereich an derselben Struktur oder in zwei Strukturen einer Einheitszelle, welche wesentlich kleiner als die Wellenlänge sind, ermöglicht es in diesem engen spektralen Bereich ein Medium mit einem negativen Brechungsindex zu erzeugen (Negativ-Index-Materialien (NIM)). Diese Materialien besitzen eine Reihe interessanter physikalischer Eigenschaften. So zeigen sie einen umgekehrten Snell'schen Brechungswinkel, umgekehrte Doppler- und Cherenkov-Effekte und können evaneszente Wellen verstärken. Einige dieser Eigenschaften würden es ermöglichen, Abbildungssysteme mit sub-Wellenlängen-Auflösung zu realisieren.

Theoretische Beschreibung

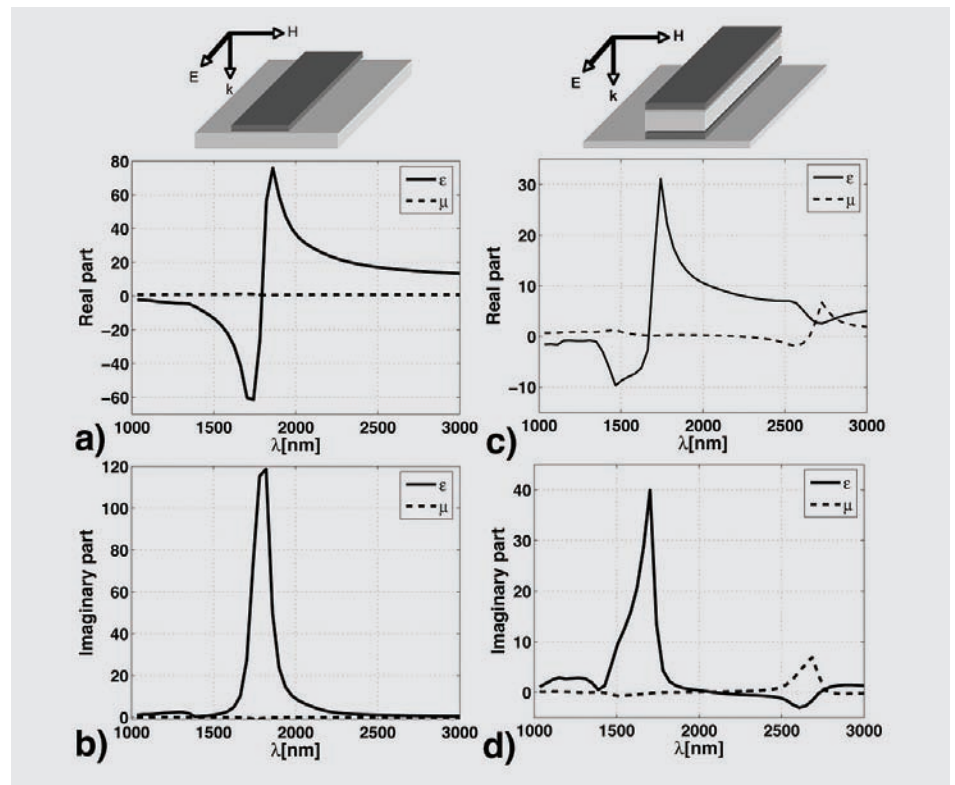
Abbildung 1 oben zeigt schematisch Metall-Dielektrika Kompositstrukturen, welche aus einfachen oder gepaarten Gold-Nanodrähten mit einer zwischenliegenden PMMA oder SiO₂ Schicht auf einem Glassubstrat bestehen. Die Transmissions- und Reflexionseigenschaften in Abb. 1 sind mit Hilfe der Fourier-Modal-Methode simuliert worden. Die Permittivität von Gold ließ sich gut durch das Drude-Modell beschreiben und die effektiven Materialparameter konnten durch Anwendung eines Parameter-Retrieval Algorithmus ermittelt werden (Abb. 2).

Abb. 2:

Für Systeme aus Abb. 1 mit dem Parameter Retrieval Algorithmus berechneter Realteil (a, c) und Imaginärteil (b, d) für die Permittivität und die Permeabilität.

Fig. 2:

Real (a, c) and imaginary parts (b, d) of permittivity and permeability for systems shown in Fig.1 calculated with parameter retrieval algorithm.



These properties of the current are strong evidence that the permeability resonance can be compared with an effective LC oscillator. The flow of the current is effected by an electric field that acts as a driving force for the movement of the electrons.

However, application of the parameter retrieval algorithm to this specific geometry is impossible without ambiguity. The reason is the significantly increased sample thickness, which complicates an identification of the correct order in inverse trigonometric functions. However, the small maxima in the region of minimum transmission in Fig. 5e provide evidence for a negative refraction index in a small spectral range. For another structure with a smaller dielectric layer (Fig. 5c), a negative refraction index can be found (Fig. 5f).

Realization

All nanostructures were realized with the help of layer-by-layer technology. An intrinsic advantage of this technology is the possibility of tailoring cell geometry in each layer independently. Figures 5a and 5b show an AFM scan and a REM image of paired gold nanorods and different thicknesses of dielectric layers between them. The samples demonstrate a high accuracy of the multilayer alignment. The measured and simulated reflection and transmission spectra show two spectrally well-separated resonances (Fig. 5d) for a small spacing. The electric resonance at 1500 nm is associated with plasmonic excitation of currents in both nanowires at equal phase, the magnetic resonance at 2750 nm is associated with currents in both nanowires at a phase delay of π .

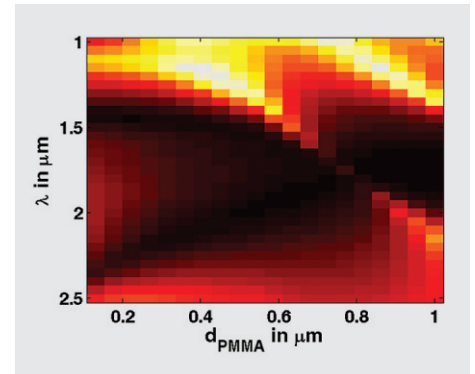
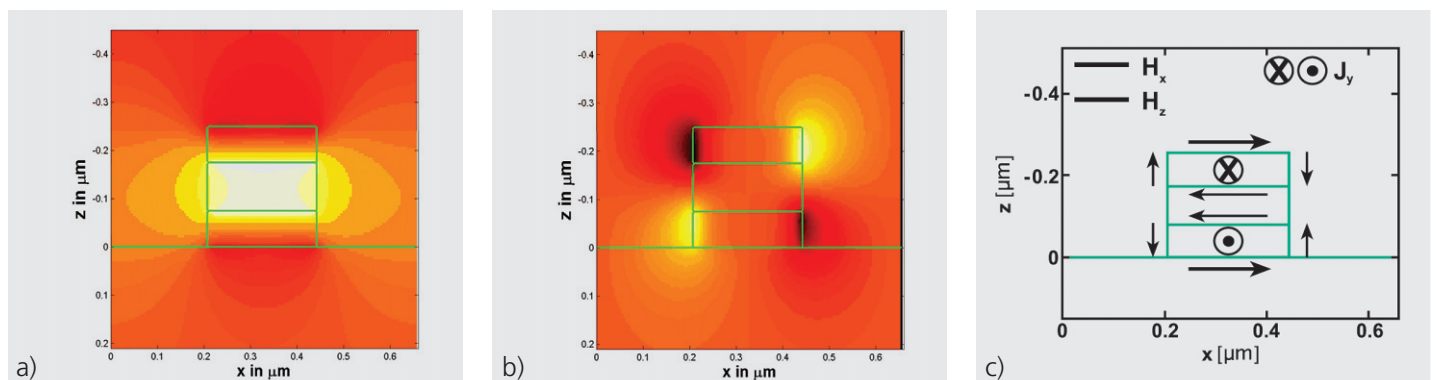


Abb. 3: Transmittierte Amplitude als Funktion der Dicke der PMMA Schicht und der Wellenlänge (schwarz = Resonanz oder Minimum der Transmission).

Fig. 3: Transmitted amplitude as a function of the thickness of spacing layer and the wavelength. (black = resonances or minimum of transmittance).

Abb. 4:
3D FDTD Simulation eines Nanodrahtpaares mit dünner PMMA Schicht bei der Wellenlänge der magnetischen Resonanz.
a) H_x Komponente in einem (x,z) -Schnitt;
b) H_z Komponente in einem (x,z) -Schnitt;
c) schematische Darstellung des oszillierenden Feldes, der induzierte Strom fließt in den Drähten in entgegengesetzte Richtungen.

Fig. 4:
3D FDTD simulation of the magnetic field in a gold nanowire pair with a 100 nm PMMA layer between at the wavelength of magnetic resonance.
a) H_x component in a (x,z) -cut;
b) H_z component in a (x,z) -cut, the illuminating field propagates in positive z -direction and has an x -component of the magnetic field;
c) oscillating field is schematic shown that induces currents that flow in opposite direction within the two wires.



Bei der Einstrahlung von Licht auf eine einfache Gold-Nanodrahtstruktur wird nur eine plasmonische Resonanz erzeugt, welche durch Veränderung der geometrischen Parameter des Gold-Nanodrahtes spektral verschoben werden kann. Doppelstrukturen, welche aus zwei Gold-Nanodrähten und einer in der Mitte liegenden dielektrischen Schicht bestehen, können eine magnetische und eine plasmonische Resonanz in zunächst verschiedenen spektralen Bereichen erzeugen.

Durch Erhöhung der Dicke der dielektrischen Schicht lässt sich die Lage der magnetischen Resonanz kontrollieren (Abb. 3).

Die Art der Resonanzen konnte durch FDTD-Simulation der magnetischen Feldverteilung, welche mit induzierten Strömen verbunden ist, untersucht werden (Abb. 4). Hier sind zirkuläre Magnetfelder mit entgegengesetzten Richtungen in den einzelnen Nanodrähten zu erkennen. Diese oszillierenden Felder induzieren einen Strom, welcher entgegengesetzt in den Nanodrähten fließt. Das lässt darauf schließen, dass die Permeabilitätsresonanz mit einem effektiven LC-Oszillator verglichen werden kann. Der Stromfluss wird durch ein elektrisches Feld bewirkt, welches als eine zusätzliche treibende Kraft für die Elektronen gesehen werden kann.

Aufgrund der dicken dielektrischen Zwischenschicht kann für diese Doppelstrukturen nicht mehr der Parameter-Retrieval-Algorithmus zur Berechnung der Materialparameter angewandt werden. Jedoch lässt die Aufspaltung des Transmissionsminimums auf einen schmalen spektralen Bereich mit negativem Brechungsindex schließen. An anderen Strukturen mit nicht so dicken dielektrischen Schichten (Abb. 5c) lässt sich ein negativer Brechungsindex simulieren.

Realisierung

Die oben beschriebenen Strukturen sind durch eine Layer-by-Layer Herstellung realisiert worden. Der Vorteil dieser Technologie besteht in der Möglichkeit der Herstellung unabhängiger Geometrien in jedem Layer. Abbildungen 5a und 5b zeigen eine AFM und eine Quasi 3D REM Aufnahme von Feldern gepaarter Nanodrahtstrukturen mit verschiedenen dicken dielektrischen Zwischenschichten. Diese Aufnahmen demonstrieren die hohe Genauigkeit der Multi-Layer Anordnungen. Die gemessenen und gerechneten Reflektions- und Transmissionsspektren für die Struktur in Abb. 5a zeigen in Abb. 5d eine elektrische Resonanz bei 1500 nm und eine magnetische Resonanz bei 2750 nm, wobei die elektrische Resonanz mit der phasengleichen plasmonischen Anregung von Strömen in beiden Nanodrähten verbunden ist, während die magnetische Resonanz durch eine phasenverschobene Anregung der Ströme in den beiden Nanodrähten zustande kommt.

Wird die dielektrische Schicht zwischen den Nanodrähten groß genug gewählt, überdecken sich beide Resonanzen im Spektralbereich und es entsteht ein kleines Maximum in der Transmission bei 1900 nm (Abb. 5e und Insert in Abb. 5e).

In einer weiteren Probenserie wurden die Gold-Nanodrahtpaare mit einem gepaarten Gold-Nanogitter in einer Einheitszelle kombiniert. Für die Strukturen wirkt das Gitter als ein verdünntes Metall, welches die effektive Permittivität verändert. In dieser Konfiguration ist die Permittivität für Frequenzen kleiner der Plasmafrequenz negativ und somit wird der Brechungsindex im spektralen Bereich der magnetischen Resonanz negativ (Abb. 5f).

Diese Arbeiten wurden durch das Bundesministerium für Bildung und Forschung (Unternehmen Region) unterstützt.

Literatur:

- /1/ Pendry, J. B.; Holden, A. J.; Robbins, D. J., Stewart, W. J.: Magnetism from conductors and enhanced nonlinear phenomena, *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.* 47, 2075 (1999).
- /2/ Smith, D. R.; Padilla, W. J.; Vier, D. C.; Nemat-Nasser, S. C.; Schultz, S.: Composite medium with simultaneously negative permeability and permittivity, *Phys. Rev. Lett.* 84, 4184 (2000).
- /3/ Shalaev, V. M.; Cai, W.; Chettiar, U. K.; Yuan, H.; Sarychev, A. K.; Drachev, V. P.; Kildishev, A. V.: Negative index of refraction in optical metamaterials *Opt. Lett.* 30, 3356 (2005).
- /4/ Garwe, F.; Rockstuhl, C.; Etrich, C.; Hübner, U.; Bauerschäfer, U.; Setzpfandt, F.; Augustin, M.; Pertsch, T.; Tünnermann, A.; Lederer, F.: Evaluation of gold nanowire pairs as a potential negative index material, *Appl. Phys. B* 84, 139 (2006).
- /5/ Dolling, G.; Enkrich, C.; Wegener, M.; Soukoulis, C. M.; Linden, S.: Simultaneous Negative Phase and Group Velocity of Light in a Metamaterial, *Science*, 312, 892 (2006).

By changing the spacing between the nanowires the higher wavelength resonance is primarily affected, shifted towards the smaller wavelength region. By an appropriate choice of the spacing both resonances may coincide and a small maximum in the transmission minimum arises at 1900 nm (Fig. 5e and insert in Fig. 5e).

In a second series of samples gold nanorod pairs were combined with gold nanograting pairs in the unit cell (Fig.5c). The nanograting acts as a diluted metal to alter an effective permittivity according to a Drude-type dispersion relation. As the effective permittivity in such configuration is negative for frequencies smaller than the plasma frequency, a negative refractive index has been obtained in the vicinity of the magnetic resonance (Fig. 5f).

Support bei the Federal Ministry of Education and Research (Unternehmen Region) is acknowledged.

References:

- /1/ Pendry, J. B.; Holden, A. J.; Robbins, D. J., Stewart, W. J.: Magnetism from conductors and enhanced nonlinear phenomena, IEEE Trans. Microwave Theory Tech. 47, 2075 (1999).
- /2/ Smith, D. R.; Padilla, W. J.; Vier, D. C.; Nemat-Nasser, S. C.; Schultz, S.: Composite medium with simultaneously negative permeability and permittivity, Phys. Rev. Lett. 84, 4184 (2000).
- /3/ Shalaev, V. M.; Cai, W.; Chettiar, U. K.; Yuan, H.; Sarychev, A. K.; Drachev, V. P.; Kildishev, A. V.: Negative index of refraction in optical metamaterials Opt. Lett. 30, 3356 (2005).
- /4/ Garwe, F.; Rockstuhl, C.; Etrich, C.; Hübner, U.; Bauerschäfer, U.; Setzpfandt, F.; Augustin, M.; Pertsch, T.; Tünnermann, A.; Lederer, F.: Evaluation of gold nanowire pairs as a potential negative index material, Appl. Phys. B 84, 139 (2006).
- /5/ Dolling, G.; Enkrich, C.; Wegener, M.; Soukoulis, C. M.; Linden, S.: Simultaneous Negative Phase and Group Velocity of Light in a Metamaterial, Science, 312, 892 (2006).

Abb. 5:

- a) AFM Aufnahme eines Feldes von Gold-Nanodrahtpaaren mit 180 nm SiO₂ Zwischenschicht;
- b) Quasi 3D REM Aufnahme eines Feldes von Gold-Nanodrahtpaaren mit 600 nm SiO₂ Zwischenschicht;
- c) REM Aufnahme eines Feldes von gepaarten Gold-Nanodrähten mit gepaarten Gold-Nanogittern;
- d) Vergleich von Simulation und Experiment für die Transmission und Reflexion der Strukturen in a);
- e) Vergleich von Simulation und Experiment für die Transmission und Reflexion der Strukturen in b);
- f) simulierter Brechungsindexverlauf für Strukturen in c).

Fig. 5:

- a) AFM image of gold nanowires separated by 180 nm SiO₂; b) Quasi 3D REM image of gold nanowires separated by 600 nm of SiO₂; c) REM image of combination of gold nanorod pairs with gold nanograting pairs;
- d) simulated and measured transmission spectra for the structure in a);
- e) simulated and measured transmission and reflection spectra of the structure in b);
- f) simulated effective refractive index for the structure in c).

