

Die analytische Beschreibung optischer Metamaterialien mittels der Multipolmethode



Jörg Petschulat¹



Arkadi Chipouline¹



Christian Helgert¹



Ekaterina
Pshenay-Severin¹



Christoph Menzel²



Carsten Rockstuhl²



Falk Lederer²



Thomas Pertsch¹



Andreas Tünnermann^{1, 3}

¹ Institut f. Angewandte Physik, Friedrich-Schiller-Universität Jena

² Institut f. Festkörpertheorie u. -optik, Friedrich-Schiller-Universität Jena

³ Fraunhofer IOF

Die Licht-Materie-Wechselwirkung in der konventionellen Optik lässt sich auf eine Materialwechselwirkung ausschließlich mit dem elektrischen Feld reduzieren. Dabei können sowohl dispersive Materialien (Metalle oder Dielektrika nahe der Materialresonanzen im UV bzw. im IR) als auch nicht-dispersive Materialien (Dielektrika im Transparenzbereich) in Form einer einzigen physikalischen Größe, der dielektrischen Permittivität beschrieben werden. Diese, im Allgemeinen, komplexwertige Funktion ist auf den Wertebereich der in der Natur vorkommenden Materialien beschränkt. Die Materiewechselwirkung für das magnetische Feld kann dabei für natürlich auftretenden Materialien bei optischen Frequenzen als vernachlässigbar klein angesehen werden.

Mit Hilfe der Mikro- und Nanostrukturierung von Metallen kann der Wertebereich für die elektrische Permittivität maßgeschneidert, sowie erstmals eine effektive magnetische Materialwechselwirkung bei optischen Frequenzen erreicht werden. Die mittels Strukturierung und Materialauswahl einstellbaren optischen Eigenschaften solcher Mikro- und Nanostrukturen erfordern intensive theoretische Designanalysen, welche bislang nur durch numerische Verfahren realisiert werden können. Die analytische Beschreibung der Lichtpropagation in metallischen Mikro- und Nanostrukturen stellt dabei die physikalischen Wirkungsweisen der Strukturen in Form vereinfachter Modelle dar, die den Wertebereich für die numerische Simulation sinnvoll einschränken und erweitert damit das physikalische Grundverständnis für die stattfindenden Vorgänge in optischen Metamaterialien.

Optische Metamaterialien stellen im Rahmen effektiver Medien eine völlig neue Materialklasse dar. Realisiert werden diese Metamaterialien durch metallische Subwellenlängenstrukturen mit Ausdehnungen, die kleiner sind als die Wellenlänge der beleuchtenden elektromagnetischen Strahlung. Die optische Antwort eines aus derartigen metallischen Metaatomen zusammengesetzten Ensembles ist durch die plasmonischen Eigenschaften des einzelnen Metaatoms determiniert. Die Kontrolle der Resonanzeigenschaften, z. B. der Resonanzwellenlänge der plasmonischen Anregungen des Metaatoms, ist die Grundlage für das Design von Metamaterialien mit maßgeschneiderten und einzigartigen optischen Eigenschaften.

Die Existenz sowie die optische Anregbarkeit plasmonischer Subwellenlängenstrukturen ist Gegenstand zahlreicher Forschungsarbeiten. Dabei wurden bislang Strukturen untersucht, deren elektromagnetische Wirkung sehr gut mit elektrischen Dipolmoden erklärt werden konnte, wie z. B. Antennenstrukturen oder Kugeln. Im Rahmen der effektiven Medientheorie werden derart lokalisierte plasmonische Anregungen in Resonanzen der entsprechenden effektiven Materialparameter übersetzt. Diese effektiven Materialparameter beschreiben die optische Response eines einfallenden elektromagnetischen Feldes auf ein Ensemble bestehend aus solchen Strukturen. Bei plasmonischen Dipolstrukturen treten diese Resonanzen ausschließlich in der effektiven elektrischen Permittivität auf. Man spricht daher von elektrischen Resonanzen.

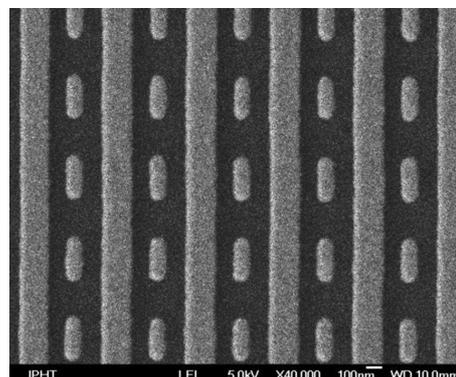


Light-matter interaction within classical optics can be reduced to an electric field-mediated material interaction only. Thus dispersive (dielectrics, metals, etc.) as well as non-dispersive materials (dielectrics within the spectral transparency window) can be described at optical frequencies by one physical parameter, the electric permittivity. This generally complex function for bulk materials is limited to naturally available resources. In contrast to electric interaction the magnetic field interaction at optical frequencies can be neglected, since all effects appear orders of magnitude smaller compared to the electric effects.

This artificial material behavior can be dramatically expanded by applying nano- and micro-structuring techniques. The combined response originating from the material choice and shape of manufactured nanostructures can be used to tailor both the effective permittivity and the effective permeability, which represents a magnetic material response, of the corresponding generated effective media. The design and the theoretical description of such unique optical material properties are restricted to advanced numerical electrodynamic calculations. The analytical investigation and description of the light propagation within such nano- and microfabricated structures projects their complex material dynamics into well known physical models. Thus the analytical description helps to define suitable parameter ranges within the exact numerical treatment from a physical point of view. This combination of numerical and analytical considerations might be a promising approach to expand the understanding and development of the fundamental principles of optical metamaterials.

Optical metamaterials represent a new artificial material class with tailored and unique optical properties. Metamaterials can be realized by subwavelength metal structures with dimensions much smaller than the incident wavelength. The optical response of the respective effective medium consisting of an ensemble of such nanostructures is determined by the plasmonic properties of the single structure, the metaatom. Controlling the resonance features, e.g. the resonance frequency, of the particular metaatom is the fundamental basis for the design of metamaterials with tailored and specific optical behavior.

The existence as well as the excitation conditions of localized plasmonic effects in subwavelength structures has been the content of numerous scientific publications. Geometries characterized by their radiation, absorption and excitation behavior which can be explained in terms of electric dipole modes have particularly been investigated. In the framework of effective media such dipole-like modes describing collective plasmonic excitations in an ensemble of such structures are represented by resonances of the corresponding effective parameters. For the particular case of electric dipole resonances, the associated response is restricted to the effective electric permittivity and consequently they are termed electric resonances.



Beside these electric resonances, more complex plasmonic geometries establish the possibility of additionally altering the effective magnetic material response, represented by resonance features in the effective magnetic permeability. In the special case of a double resonant medium which is characterized by both the electric resonance and the magnetic resonance at the same frequency the effective refractive index as a product of the permittivity and the permeability can even become negative. Such negative index materials provide a completely different optical behavior in comparison to positive index materials and are currently the subject of research.

In analogy to the description of electric resonances by their associated dipole modes, the magnetic material response can again be introduced on the basis of the multipole approach in form of second order multipoles /1/. Within such an approach second order multipoles are induced by a much more complex near field dynamic in the respective metaatoms. This dynamic is mainly governed by the intrinsic carrier transport induced by the excitation of the external electric field. Especially metaatoms supporting also magnetic resonances are assigned by more than a single eigenmode /2/. The cut-wire-structure represents a metaatom supporting two carrier eigenmodes which can be directly translated into second order multipoles (Fig. 1).

Abb. 1:
Rasterelektronenmikroskop-Aufnahme einer Cut-Wire-Geometrie mit zusätzlichen vertikal verlaufenden Metalldrähten.

Fig. 1:
Scanning electron image of the advanced cut-wire-geometry. The dashed sections represent the upper layer of the two layer cut-wire-mataatom from the top while the solid lines represent additional vertical metal wires.

Komplexere plasmonische Strukturen bieten neben der Möglichkeit die elektrischen Materialparameter zu beeinflussen auch die Möglichkeit, eine effektive magnetische Materialresponse zu realisieren. Diese führt zu Resonanzen in der effektiven magnetischen Permeabilität. Sind in einem bestimmten Spektralbereich sowohl elektrische als auch magnetische Resonanzen präsent, kann unter gewissen Voraussetzungen ein negativer Brechungsindex des entsprechenden effektiven Mediums realisiert werden. Dieser Spezialfall stellt einen Schwerpunkt in der Erforschung optischer Metamaterialien dar.

Die Ursache der magnetischen Materialresponse kann analog zum Verständnis der elektrischen Resonanzen im Rahmen einer Multipolentwicklung erklärt werden /1/. In einer solchen Beschreibung repräsentieren höhere Multipolordnungen (als das elektrische Dipolmoment) eine wesentlich kompliziertere Nahfelddynamik der Metaatome. Diese Dynamik kann in Form von kollektiven Ladungsträgerbewegungen verstanden werden. Bei Metaatomen mit einer effektiven magnetischen Materialantwort zeichnet sich diese Ladungsträgerdynamik durch verschiedene Eigenmoden aus /2/. Ein prominentes Beispiel eines solchen Metaatoms ist die Cut-Wire-Geometrie (Abb. 1).

Die Cut-Wire-Struktur setzt sich aus zwei metallischen Drähten zusammen. Jeder einzelne dieser Drähte repräsentiert eine Dipolstruktur und beeinflusst ausschließlich die effektive elektrische Permittivität. Die Kopplung zweier solcher Geometrien in einer Doppellage dagegen führt zu einer Aufspaltung des Dipolmodes der Einzelstruktur in einen symmetrischen und einen antisymmetrischen Mode. Symmetrisch bezeichnet hier eine gleichgerichtete Ladungsträgerbewegung in beiden Metalldrähten, während der antisymmetrische Mode eine entgegengesetzte Ladungsbewegung darstellt. Genau diese letztere Mode führt im Rahmen der Multipolentwicklung zu nichtverschwindenden Multipolen zweiter Ordnung, dem elektrischen Quadrupolmoment sowie dem magnetischen Dipolmoment und damit zu einer Resonanz in der effektiven magnetischen Permeabilität (Abb. 2).

Bislang erforderte die theoretische Modellierung einzelner Metaatome für die gezielte Manipulation der effektiven Parameter eines daraus aufgebauten Metamaterials die Anwendung aufwendiger numerischer Verfahren wie etwa der Finite Difference Time Domain (FDTD) oder der Fourier Modal Method (FMM). Diese numerischen Verfahren sowie experimentelle Untersuchungen an speziellen Metamaterial-Geometrien stellen auch weiterhin unverzichtbare Werkzeuge zur Erforschung optischer Metamaterialien dar.

Die rein analytische Beschreibung liefert jedoch zusätzlich ein plausibles und selbstkonsistentes physikalisches Modell zur Erklärung der im Experiment und in der Simulation beobachtbaren Phänomene und trägt damit wesentlich zum Verständnis der Mechanismen dieser speziellen Materialklasse bei. Dabei liefert die Multipolmethode quantitativ als auch qualitativ eine exzellente Übereinstimmung (Abb. 2) mit allen bislang

verwendeten numerischen Methoden. In Abb. 2d ist der effektive Brechungsindex der Gesamtstruktur dargestellt. Die magnetische Resonanz tritt bei kurzen Frequenzen auf während die elektrische Resonanz bei höheren Frequenzen auftritt. Eine Möglichkeit sowohl die elektrische als auch die magnetische Materialwechselwirkung in einem definierten Frequenzintervall zu konzentrieren ist in Abb. 1 dargestellt. Dabei werden zusätzliche, vertikal verlaufende Metalldrähte in die Einheitszelle eingefügt die, wie experimentell gezeigt werden konnte, zu einem bestimmbar negativen Brechungsindex der Gesamtstruktur führen. Weitere Arbeiten schließen die linearoptische Beschreibung komplexerer Metamaterial-Geometrien sowie die Implementierung der nichtlinearoptischen Materialwechselwirkung ein. Speziell die Berücksichtigung höherer Multipolmomente stellt ein in der Vergangenheit erfolgreiches Konzept dar, optische Nichtlinearitäten qualitativ zu beschreiben. Neben diesen theoretischen Weiterentwicklungen des Multipolmodells sind experimentelle Untersuchungen im Rahmen optischer Nah- und Fernfeldmessungen geplant, um die Aussagekraft des entwickelten Formalismus zu unterstützen.

Literatur:

- /1/ Rockstuhl, C.; Tünnermann, A.; Lederer, F.; and Pertsch, T.: Multipole Approach to Metamaterials, *Physical Review A* 78, 043811 (2008).
- /2/ Rockstuhl, C.; Zentgraf, T.; Pshenay-Severin, E.; Petschulat, J.; Chipouline, A.; Kuhl, J.; Pertsch, T.; Giessen, H. and Lederer, F.: The origin of magnetic polarizability in metamaterials at optical frequencies – an electrodynamic approach, *Optics Express* 15, 8871–8883 (2007).



The cut-wire-structure consists of two metal wires. Each of those wires represents an electric dipole structure and consequently causes no magnetic response. Additionally to the double wire system solid metal rods amplify the effective electric material response over a broad frequency range and are only required to observe a negative effective refractive index. The near field induced coupling between two neighboring wires causes a splitting of this single dipole mode associated with a carrier movement along the wire into a symmetric and an anti-symmetric mode. The symmetric mode represents a parallel carrier oscillation while the anti-symmetric mode is characterized by an opposing carrier oscillation in both wires. The latter mode causes non-vanishing second order multipoles, i.e. the electric quadrupole moment and the magnetic dipole moment, and the respective magnetic material response. The symmetric mode purely influences the electric response (Fig. 2).

The theoretical modeling of the meta-atoms in order to manipulate the effective media parameters has previously been carried out by powerful and complex numerical methods as the Finite Difference Time Domain (FDTD) method or the Fourier Modal Method (FMM). Such rigorous methods still dominate the theoretical description and represent together with experimental verifications the background of the investigation of optical metamaterials. The analytical description in terms of the multipole approach provides a simple and self-consistent physical model to explain the experimentally and numerically observed phenomena and seems to be an appropriate tool to gain further insight into the physical mechanism of the optical metamaterial response.

The observed excellent quantitative and qualitative agreement between the developed approach and all tested numerical predictions (Fig. 2) justifies our model and motivates further developments of the introduced formalism.

Future developments include the verification of our formalism for more complex metaatoms as well as the implementation of nonlinear-optical effects. Especially the consideration

of multipoles beyond the the electric dipole contribution has been a successful concept in describing second order nonlinear effects in bulk materials. Thus the expansion of this method seems to be promising in the framework of optical metamaterials. Besides such improvements of the theoretical description experimental investigations in terms of optical far and near field measurements will be performed to verify our introduced formalism.

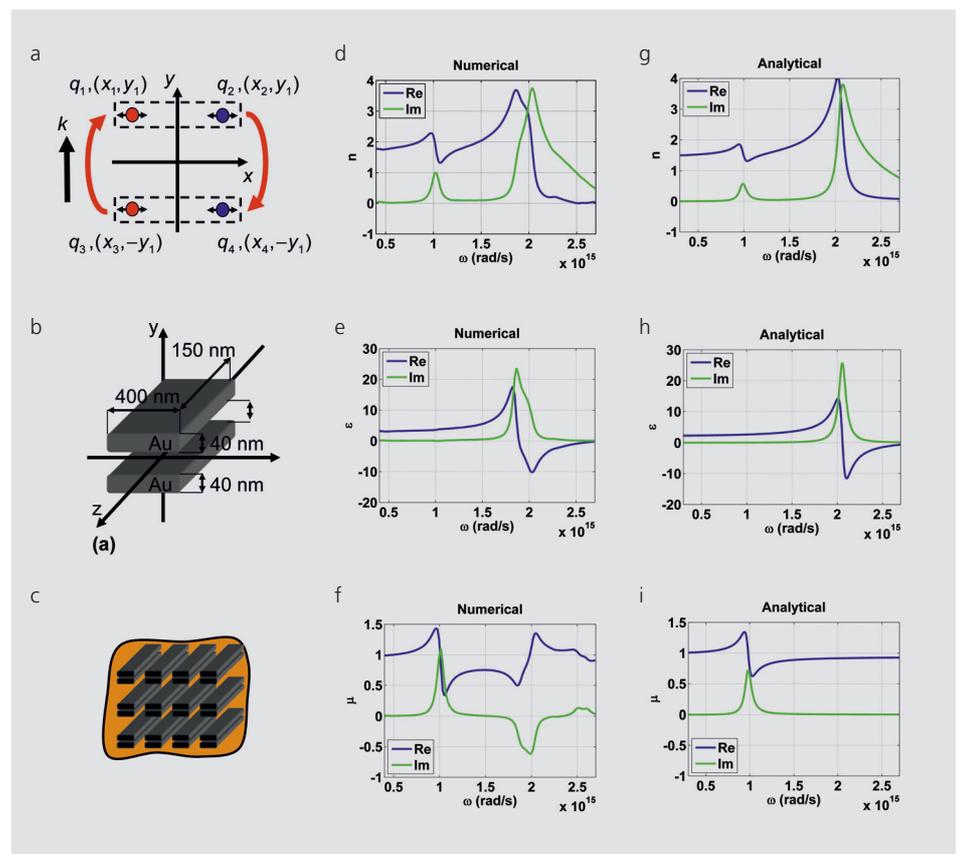


Abb. 2: (a) Ladungsverteilung zur Modellierung einer Cut-Wire-Geometrie mit Hilfe der Multipolentwicklung /1/. (b) Die Dimensionen der dabei untersuchten Einzelstruktur. (c) Schematische Darstellung der Anordnung einer Einzelstruktur zu einem 3D-Metamaterial. (d), (g) Vergleich des numerisch bestimmten Brechungsindex mit dem der analytischen Beschreibung. (e), (h) Der entsprechende Vergleich für die elektrische Permittivität sowie (f), (i) die für die magnetische Permeabilität.

Fig. 2: (a) The introduced carrier distribution to describe the cut-wire-geometry with the multipole expansion technique /1/. (b) The dimensions of the investigated structure. (c) Schematically arrangement of a 3D bulk metamaterial consisting of cut-wire-metaatoms. (d), (g) Comparison between the numerically and analytically obtained refractive indices. (e), (h) The comparison of the corresponding electric permittivity and (f), (i) the magnetic permeability.