

Nanooptik mit metallischen Strukturen

Über den Umgang mit Licht jenseits des Abbe-Limits

Joachim R. Krenn und Franz R. Aussenegg

Die große praktische Bedeutung der stark miniaturisierten Optik steht außer Frage. Die Mikrooptik hat eine ganze Reihe völlig neuer Technologien ermöglicht – man denke nur an die Glasfaser-Nachrichtentechnik, die Compact Disc (CD), miniaturisierte optoelektronische Bauelemente oder moderne optische Sensoren. Um weitere anwendungsrelevante Innovationen entwickeln zu können, müssen die funktionellen Strukturen der Optotechnik kleiner werden. Das Abbe-Limit verhindert jedoch das einfache Verkleinern von optischen Elementen in den Subwellenlängenbereich – neue Konzepte sind gefordert.

Will man optische Strukturen verkleinern, erhebt sich die prinzipielle Frage, ob die Miniaturisierung der Optik in den Subwellenlängenbereich – und damit die Entwicklung einer *Nanooptik* – überhaupt möglich ist. Eines ist klar: Die Methoden der herkömmlichen Optik, bei der sich Lichtfelder frei im Raum ausbreiten und nur an bestimmten Stellen von Linsen, Spiegeln, Prismen usw. in ihrer Richtung geändert werden, unterliegen dem Abbe-Limit: Wegen der Beugung ist die Ausbreitung von Lichtfeldern in optischen Elementen unmöglich, die kleiner als die halbe Lichtwellenlänge sind (siehe Infokasten „Fernfeld vs. Nahfeld“). Eine auf herkömmlichen optischen Konzepten beruhende Nanooptik ist daher nicht realisierbar.

Lichtfelder mit einer Ausdehnung kleiner als die halbe Lichtwellenlänge können aber sehr wohl existieren, nämlich in Form so genannter optischer Nahfelder, die an materielle Strukturen gebunden sind. Interessanterweise sind es gerade die optischen Nahfelder von Metallen, auf denen ein in den letzten Jahren entwickeltes erfolversprechendes Konzept zur Lichtfeldmanipulation im Subwellenlängenbereich beruht. Betrachten wir zunächst ein konkretes Beispiel, das der Lichtleitung: Theoretische Überlegungen zeigen, dass sich Lichtfelder entlang eines metallischen Drahtes leiten lassen, analog zur Leitung eines Hochfrequenzstromes im MHz-Bereich in einem – bezogen auf die Wellenlänge – dünnen Metalldraht [1]. Für diese Art der Lichtleitung in metallischen Nanodrähten ist das Abbe-Limit bedeutungslos. Jedoch ist die spezifische elektrische Leitfähigkeit von Metallen bei Lichtfrequenzen erheblich kleiner als zum Beispiel bei 100 MHz. Dadurch ist die Reichweite eines Lichtsig-

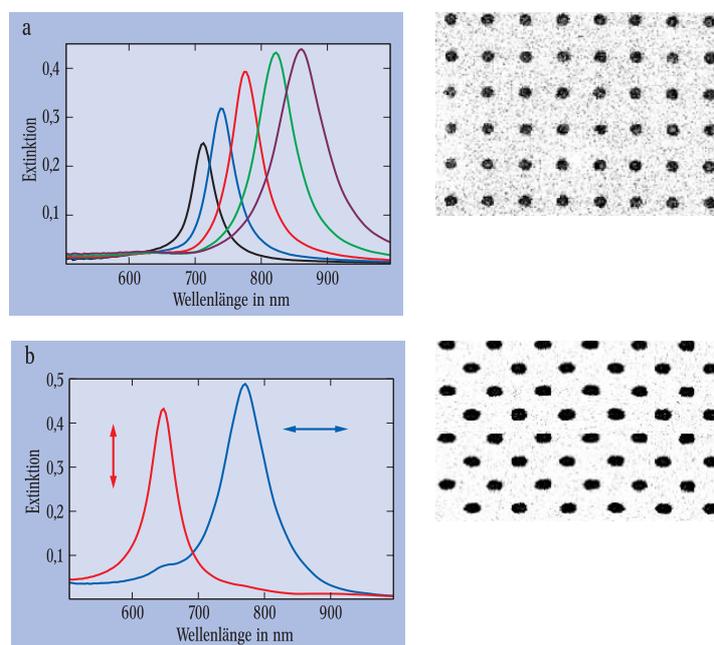


Abb. 1: Bei Nanopartikeln hängt die Extinktion, d. h. die durch Absorption und Streuung verminderte Transmission, von Form und Volumen der Teilchen ab.

► a) Die schwarze Kurve zeigt das Extinktionsspektrum der rechts elektronenmikroskopisch abgebildeten scheibenförmigen Goldpartikel (Durchmesser 100 nm, Höhe 40 nm). Die Extinktionsspektren von Goldpartikeln mit größeren Durchmessern sind durch farbige Kurven

dargestellt: 120 nm Durchmesser (blau), 140 nm (rot), 160 nm (grün) und 180 nm (lila).

► b) Bei länglichen Goldpartikeln ist die Extinktion polarisationsabhängig. Die Pfeile geben die Polarisationsrichtung des anregenden Lichts an, bezogen auf die Orientierung der rechts in der elektronenmikroskopischen Aufnahme gezeigten Partikel (120×80 nm², Höhe 40 nm).

nals in einem Silber-Nanodraht mit einem Durchmesser von 50 nm auf einige μm beschränkt. Dieser Wert ist aber groß genug, um Nanodrähten eine Reihe technologischer Anwendungen zu eröffnen. Denkbar ist ihr Einsatz zum gezielten Lichttransport zwischen Schaltelementen in nanoskopisch dimensionierten optischen Datenverarbeitungssystemen ebenso wie in den Leseköpfen submikroskopischer optischer Datenspeicher.

Verallgemeinert man dieses Konzept, so liegt die Idee nahe, eine Subwellenlängen-Lichttechnologie rein „elektrotechnisch“ mit der aus der UKW-Radio- und Fernsichttechnik bekannten Methodik zu realisieren, wobei die Abmessungen um sechs Größenordnungen – entsprechend der um diesen Faktor kleineren Wellenlänge des Lichtes – herunterskaliert werden müssten.

Ao. Prof. Dr. Joachim R. Krenn, Prof. Dr. Franz R. Aussenegg, Institut für Experimentalphysik der Karl-Franzens-Universität Graz und Erwin Schrödinger Institut für Nanostrukturforschung, Universitätsplatz 5, A-8010 Graz

Dieser im Prinzip richtige Denkansatz ist jedoch in dieser Form zu simpel: Bei Lichtfrequenzen (bzw. im nahen Infrarot) können nämlich an metallischen Grenzflächen Resonanzen kollektiver Elektronenoszillationen auftreten, die durch das lichtelektrische Feld angeregt werden. Dieses als Oberflächenplasmon (OP) bezeichnete Phänomen ist in der herkömmlichen Hochfrequenztechnik völlig unbekannt (siehe Infokasten „Oberflächenplasmonen“). Sowohl die geringere elektrische Leitfähigkeit von Metallen bei Lichtfrequenzen als auch das Auftreten von OP-Resonanzen sind zwar kein grundsätzliches Hindernis, um eine auf metallischen Nanostrukturen beruhenden Nanooptik zu realisieren, sie sind jedoch entsprechend zu berücksichtigen. Wie wir im Folgenden zeigen wollen, lässt sich die Anregung von OP sogar vorteilhaft zur Entwicklung nanooptischer Elemente nutzen.

Dabei ist es zweckmäßig, zwischen OP an ausgedehnten, ebenen Grenzflächen – etwa Metallfilmoberflächen – und OP in Metallpartikeln, deren Abmessungen klein sind verglichen mit der Lichtwellenlänge, zu unterscheiden. Im ersten Fall kann sich der Zustand der Elektronenoszillation wie eine Welle mit einer bestimmten Phasengeschwindigkeit (in der Größenordnung der Vakuumlichtgeschwindigkeit) ausbreiten [2]. Im zweiten Fall hingegen, bei nanoskopischen Metallpartikeln, entsprechen OP einer dipolaren, auf das Teilchen beschränkten Elektronenschwingung [3].

Metallische Nanopartikel als nanooptische Bausteine

Metallische Nanopartikel, deren Abmessungen viel kleiner als die Lichtwellenlänge sind, können für sich alleine natürlich noch nicht zum Lichttransport herangezogen werden. Trotzdem lohnt es sich, die Eigenschaften solcher *Plasmon Dots* zu untersuchen. Einerseits führt die OP-Resonanz in diesen Teilchen zu ungewöhnlichen optischen Eigenschaften, welche metallische Nanopartikel selbst zu interessanten Komponenten der Mikrooptik machen. Andererseits sind solche Partikel ein einfacher Modellfall für komplexere metallische Nanostrukturen, und das Wissen um die kollektive Oszillation ihrer Elektronen bei Lichtfrequenzen ist eine wichtige Grundlage, um metallische nanooptische Elemente zu entwickeln.

In metallischen Nanopartikeln trennt das einfallende lichtelektrische Feld die elektrischen Ladungen im Metall. Die entstehende Aufladung der Oberfläche übt ihrerseits repulsive Kräfte auf die nachströmenden Ladungen aus. Dies führt dazu, dass die gesamte Elektronenwolke des Metallpartikels zu einem schwingungsfähigen System wird, das eine (oder auch mehrere) Eigenfrequenzen besitzt. Infolge dieser resonanten OP-Anregung kommt es zu einer dem Verlauf der Resonanzkurve entsprechenden schmalbandigen Lichtabsorption sowie einer spektral analog verlaufenden Lichtstreuung ins Fernfeld. Des Weiteren tritt ein ver-

Fernfeld vs. Nahfeld

„Vielleicht, dass es in der Zukunft dem menschlichen Geist gelingt, sich noch Prozesse und Kräfte dienstbar zu machen, welche auf ganz anderen Wegen die Schranken der Auflösung überschreiten lassen, welche uns jetzt als unübersteiglich erscheinen ... Nur glaube ich, dass diejenigen Werkzeuge, welche dereinst vielleicht unsere Sinne ... wirksamer als die heutigen Mikroskope unterstützen, mit diesen kaum etwas anderes als den Namen gemeinsam haben werden.“

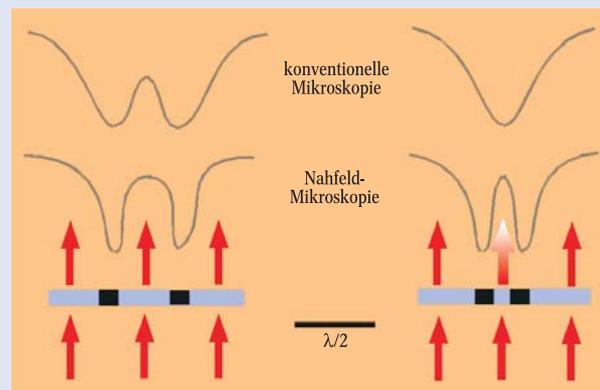
Ernst Abbe, Gesammelte Abhandlungen I, Verlag Gustav Fischer, Jena, 1904, S. 152

Das räumliche Auflösungsvermögen Δx eines optischen Mikroskops wird durch das *Abbe-Limit* beschränkt:

$$\Delta x = 0,61 \frac{\lambda}{N.A.},$$

wobei λ die Lichtwellenlänge und $N.A.$ die numerische Apertur des abbildenden Objektivs bezeichnet. Δx ist somit bestenfalls ca. $\lambda/2$, für sichtbares Licht also rund 200–400 nm. Wo aber liegt die Ursache für das Auftreten des Abbe-Limits? Ein auf eine Probe einfallendes Lichtfeld wird zunächst räumlich

durch die Probenstruktur moduliert, ganz gleich wie klein die Struktur im Vergleich zur Lichtwellenlänge auch sein mag. Ausbreitungsfähig sind jedoch nur jene Lichtfelder, welche die Information über Probenstruktur



ren tragen, die größer als $\lambda/2$ sind. Die Amplituden der Lichtfelder, welche die Information über Probenstrukturen tragen, die kleiner als $\lambda/2$ sind, fallen dagegen exponentiell ab. Die charakteristische Länge dieses Abfalls ist wiederum durch $\lambda/2$ gegeben. Eine aus zwei Teilchen im Abstand l bestehende Struktur lässt sich somit für $l > \lambda/2$ mit einem konventionellen Mikroskop abbilden. Dies ist links oben in der Abbildung

angedeutet, wobei die Kurve die Intensitätsverteilung der mikroskopischen Abbildung darstellt. Im Gegensatz dazu ist für $l < \lambda/2$ (Abb. rechts oben) keine räumlich aufgelöste Abbildung der beiden Teilchen möglich. Das Ob-

im *Nahfeld* der Probe befinden, darf also nicht weiter als $\lambda/2$ von der Probe entfernt sein. In der optischen Rasternahfeld-Mikroskopie werden vor allem auf wenige 10 nm verjüngte Glasfaser Spitzen als Detektoren verwendet. Ein solcher Mikroskoptyp, der eine räumliche Auflösung jenseits des Abbe-Limits erlaubt, lässt die eingangs zitierten Worte prophetisch erscheinen.

Analog dem Auflösungsvermögen eines konventionellen optischen Mikroskops ist auch die Fokussierbarkeit eines Lichtbündels durch das Abbe-Limit begrenzt. Damit eng verknüpft ist wiederum jene minimale laterale Dimension, die ein dielektrischer Wellenleiter aufweisen muss, um ein Lichtsignal auch tatsächlich zu leiten. Auch hier erlauben optische Nahfelder die bestehenden Schranken zu durchbrechen: Die an den Grenzflächen metallischer Wellenleiter auftretenden optischen Moden (siehe Infokasten „Oberflächenplasmonen“) unterliegen keinem Abbe-Limit und erlauben es, die optische Signalleitung zu miniaturisieren.

ektiv eines konventionellen optischen Mikroskops befindet sich in einem gegen $\lambda/2$ sehr großen Abstand von der Probe – im so genannten *Fernfeld*.

Gelingt es dagegen, neben den ausbreitungsfähigen auch die exponentiell abfallenden Lichtfelder – so genannte evaneszente Felder – zu detektieren, lässt sich das Abbe-Limit brechen, wie in der Abbildung angedeutet. Dazu muss sich der Detektor

stärkstes lokales Lichtfeld um das Teilchen auf, dessen spektraler Intensitätsverlauf ebenfalls der OP-Resonanzkurve entspricht [3]. Die räumliche Ausdehnung dieses Nahfelds ist vergleichbar mit der Partikelabmessung, also typischerweise einige 10 nm. Für die Feldverstärkung, die für viele nahfeldoptische Anwendungen wie z. B. die oberflächenverstärkte Raman-Spektroskopie von Bedeutung ist, finden sich in der Literatur Werte von $10\text{--}10^6$ [4]. Die Absorptionsbandbreite und die Feldverstärkung werden durch die Dämpfung der OP im Nanopartikel bestimmt: je größer die Dämpfung, desto größer die Absorptionsbandbreite und umso kleiner die Nahfeldverstärkung.

Die spektrale Lage der Resonanzfrequenz der Partikel-OP hängt von vielen Parametern ab: von den elektronischen Eigenschaften des Metalls (repräsentiert durch die komplexe Dielektrizitätskonstante), der Partikelform, dem Abstand zu eventuellen Nachbarpartikeln und der Dielektrizitätskonstante des umgebenden Mediums. Bei den Edelmetallen Silber und Gold, die wegen ihrer geringen Dämpfung, ihrer chemischen Stabilität und ihrer guten Nanostrukturierbarkeit sehr interessant sind, liegen die Resonanzfrequenzen im sichtbaren bzw. nahen infraroten Spektrum. Die spektrale Lage der Resonanzfrequenzen lässt sich besonders gut durch die Form von Silber- und Goldteilchen einstellen. Das wohl universellste Werkzeug zur kontrollierten Herstellung spezifischer Teilchenformen ist dabei die Elektronenstrahl-Lithographie (ESL). Diese Technik erlaubt es, Metallpartikel definierter Geometrie mit kleinsten Strukturgrößen von etwa 20 nm in praktisch jeder beliebigen zweidimensionalen Anordnung zu erzeugen. Es lassen sich z. B. Nanopartikelfilme mit maßgeschneiderten optischen Eigenschaften herstellen. Abbildung 1 illustriert dies anhand zweier Goldpartikelfilme; zu jeder elektronenmikroskopischen Aufnahme ist das zugehörige Extinktionsspektrum dargestellt.

Betrachten wir zunächst in Abbildung 1a ein Punktgitter aus scheibenförmigen Teilchen mit einem Durchmesser von 100 nm und einer Höhe von 40 nm. Die Extinktion dieses Partikelgitters ist durch das schwarze Spektrum dargestellt, mit einem Maximum der OP-Resonanz bei einer Wellenlänge von etwa 700 nm. Verändert man nun die Teilchenform durch Vergrößern des Durchmessers bei konstant gehaltener Höhe (diese Proben sind nicht abgebildet), so verschiebt sich die OP-Resonanz zu größeren Wellenlängen – die spektrale Lage der OP-Resonanz lässt sich praktisch nach Belieben einstellen [5]. Da die Extinktion proportional dem Volumen der Partikel ist, nimmt sie für flachere Teilchen (gleiche Höhe, größerer Durchmesser) zu. Die länglichen Partikel in Abbildung 1b weisen in der Filmebene zwei Resonanzen entlang ihrer zwei Hauptachsen auf. Dies bedingt eine polarisationsabhängige Absorption (Dichroismus), wie in den Spektren zu sehen ist [6].

Beide Beispiele demonstrieren das Maßschneidern der *linear*-optischen Eigenschaften von metallischen Nanopartikeln. Unabhängig davon lassen sich die *nichtlinear*-optischen Eigenschaften durch geeignete Formgebung der Partikel einstellen. So konnten wir zeigen, dass Teilchen, deren Form keine Zentrosymmetrie aufweist, gegenüber zentrosymmetrischen Partikeln eine um bis zu zwei Größenordnungen höhere Effizienz der Frequenzverdopplung (*Second Harmonic Generation*) besitzen [7].

Die Möglichkeit, Metallpartikel mit maßgeschneiderten Absorptionseigenschaften im sichtbaren Spektrum herstellen zu können, ist bereits für die aktuell existierende optische Technologie von großem Interesse: Nanopartikelfilme lassen sich als ultradünne Absorptions- bzw. Polarisationsfilter verwenden, etwa um einzelne Dioden eines Fotodiodenarrays mit individuellen Filterbelägen zu versehen. Mittels ESL lassen sich aber auch einzelne Metallpartikel auf wenige Nanometer genau positionieren, sodass metallische Nanoteilchen eine spektral-selektive, lokale Lichtfeldverstärkung an einem definierten Ort bewirken. Solche spektral-selektiven „Lichtkonzentratoren“ ließen sich als nanooptische Bauelemente analog einer Linse oder eines Spektralfilters verwenden.

Bereits in greifbare Nähe gerückt ist die Kapazitätserhöhung optischer Datenspeicher mithilfe metallischer Nanopartikel. Liest man gespeicherte Daten fernfeldoptisch aus, wie dies bei den herkömmlichen opti-

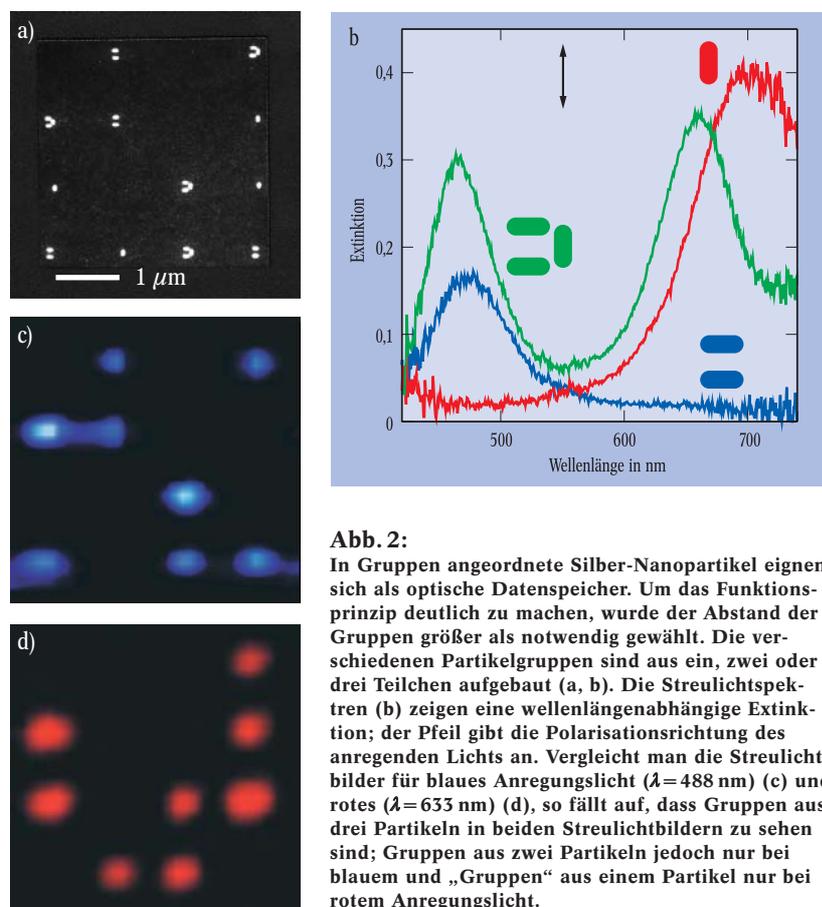


Abb. 2:

In Gruppen angeordnete Silber-Nanopartikel eignen sich als optische Datenspeicher. Um das Funktionsprinzip deutlich zu machen, wurde der Abstand der Gruppen größer als notwendig gewählt. Die verschiedenen Partikelgruppen sind aus ein, zwei oder drei Teilchen aufgebaut (a, b). Die Streulichtspektren (b) zeigen eine wellenlängenabhängige Extinktion; der Pfeil gibt die Polarisationsrichtung des anregenden Lichts an. Vergleicht man die Streulichtbilder für blaues Anregungslicht ($\lambda = 488\text{ nm}$) (c) und rotes ($\lambda = 633\text{ nm}$) (d), so fällt auf, dass Gruppen aus drei Partikeln in beiden Streulichtbildern zu sehen sind; Gruppen aus zwei Partikeln jedoch nur bei blauem und „Gruppen“ aus einem Partikel nur bei rotem Anregungslicht.

schen Datenspeichern – z. B. bei CD oder DVD – geschieht, so ist die Abmessung der kleinstmöglichen Speichereinheit gleich der fernfeldoptisch gegebenen lateralen Auflösung, also etwa gleich der halben Wellenlänge. Innerhalb der Fläche eines herkömmlichen CD-Speicherelements lässt sich jedoch mühelos eine ganze Gruppe individuell geformter metallischer Nanopartikel positionieren. Form und Orientierung der Partikel bestimmen dann das Streulichtspektrum des durch die Gruppe definierten Speicherelements. Diese „spektrale Codierung“ vervielfacht die Speicherkapazität einer konventionellen CD. Durch mehrere Laser bei verschiedenen Wellenlängen lässt sich die Information wieder auslesen. Dies konnten wir am Beispiel von drei verschiedenen Partikelgruppen zeigen, die ein, zwei oder drei Silberteilchen enthalten (Abb. 2). Die

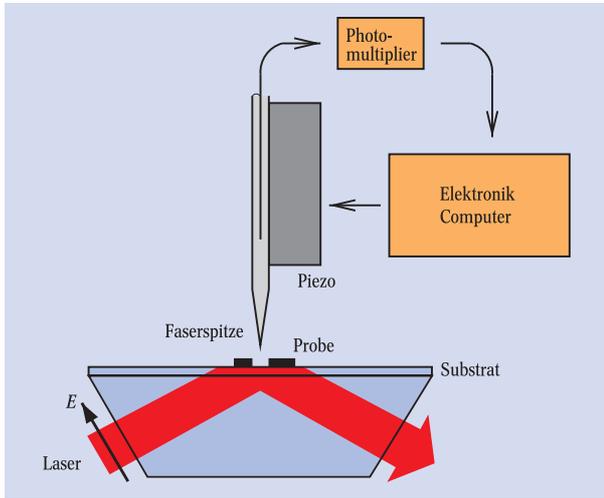


Abb. 3: Das von uns verwendete Optische Rasternahfeld-Mikroskop arbeitet mit einer Totalreflexions-Anregung. Für alle im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Experimente ist das anregende Licht in der Einfallsebene polarisiert (*p*-Polarisation).

Streulichtspektren der drei Partikelgruppen sind in Abbildung 2b zu sehen: Jeweils eine Gruppe streut Licht im blauen bzw. roten Spektralbereich, während die dritte Gruppe Licht beider Spektralbereiche streut. Folgerichtig tragen beim Auslesen der Speicher Oberfläche mit blauem (Abb. 2c) bzw. rotem Licht (Abb. 2d) nur die entsprechenden Partikelgruppen zum Streulichtsignal bei, das auf konventionelle (fernfeldoptische) Art detektiert wird [8]. Die maximal verwendbare Anzahl verschiedener Partikelgruppen ist nur durch die spektrale Breite der OP-Resonanz beschränkt. Verwendet man zusätzlich die Polarisationsabhängigkeit dichroischer Partikel zur Informationskodierung, erscheint eine Steigerung der Speicherdichte gegenüber einer

konventionellen CD um eine Größenordnung realistisch.

Der Realisierung solchermaßen konkreter Anwendungen metallischer Nanopartikel wird des öfteren entgegengehalten, dass die zu ihrer Herstellung notwendige langsame und teure ESL-Technik für die industrielle Massenfertigung nicht geeignet ist. Dies ist zweifellos richtig, doch aktuelle Entwicklungen lassen hoffen, dass schnelle und billige Nanodrucktechniken in absehbarer Zeit zur großflächigen Herstellung nanoskopischer Metallstrukturen zur Verfügung stehen werden [9].

Messmethoden mit hoher Orts- und Zeitauflösung

Mit der Verkleinerung optischer Elemente in den Subwellenlängenbereich wird es unmöglich, diese Strukturen mit herkömmlichen optischen Mikroskopen zu untersuchen, da auch deren räumliches Auflösungsvermögen durch das Abbe-Limit begrenzt ist. Abhilfe schafft hier das Optische Rasternahfeld-Mikroskop (SNOM, *Scanning Near-Field Optical Microscope*): Eine nanoskopische Sonde (oder auch eine nanoskopische Lichtquelle) in unmittelbarer Nähe der Probe – etwa im Abstand von 10–100 nm und somit innerhalb des so genannten Nahfelds – ermöglicht dem SNOM, das für das Fernfeld geltende Abbe-Limit zu durchbrechen (siehe Infokasten „Fernfeld vs. Nahfeld“). Für die im Folgenden beschriebenen Untersuchungen der OP-Felder um nanoskopische Metallstrukturen verwenden wir ein spezielles SNOM (Abb. 3). Bei diesem wird die zu untersuchende Struktur durch das evaneszente Feld eines in einem Prisma totalreflektierten *p*-polarisierten Laserstrahls angeregt. Dies dient in erster Linie dazu, das direkte Anregungslicht von der SNOM-Spitze fernzuhalten, welches die im Allgemeinen schwachen Nahfeldsignale überstrahlen könnte. Die Spitze wird mit-

Oberflächenplasmonen

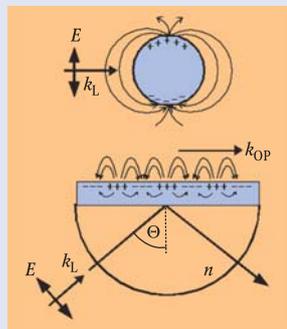
Das freie Elektronengas eines Metalls lässt sich zu einer Vielzahl von resonanten Schwingungsmoden anregen, etwa zu den mit der Plasmafrequenz oszillierenden *Volumenplasmonen* im Inneren eines metallischen Festkörpers. Analog dazu existieren kollektive Schwingungen der freien Leitungselektronen an der Grenzfläche eines Metalls und eines Dielektrikums. Die Stärke der elektromagnetischen Felder dieser *Oberflächenplasmonen* ist an der Grenzfläche maximal und fällt in die beiden Richtungen normal zur Oberfläche exponentiell ab.

Oberflächenplasmonen (OP) zeichnen sich durch eine schmalbandige Absorption und Lichtstreuung um ihre Resonanzfrequenz aus, die von einem gegenüber dem anregenden Lichtfeld resonant verstärktem Nahfeld begleitet ist. All diese Eigenschaften hängen stark von den geometrischen Randbe-

dingungen ab. Betrachten wir etwa eine metallische Kugel, die deutlich kleiner als die anregende Lichtwellenlänge ist, so ergibt sich ihre OP-Resonanzfrequenz einfach aus

$$\varepsilon(\omega) = -2\varepsilon_m,$$

wobei $\varepsilon(\omega)$ die komplexe Dielektrizitätsfunktion des Metalls und ε_m die (reelle) Dielektrizitätsfunktion des umgebenden Mediums ist. Wie in der Abbildung dargestellt, entspricht das in der Kugel angeregte OP einer di-



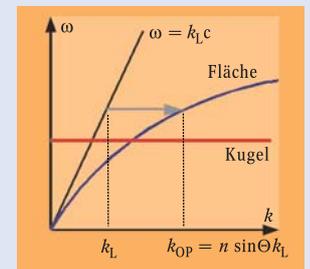
polaren Schwingung. Diese lässt sich durch direkt auf die Kugel auftreffendes Licht passender Frequenz anregen.

Im Gegensatz dazu treten OP an ausgedehnten ebenen Grenzflächen als Elektronenschwingungen auf, die sich gerichtet ausbreiten. Die Dispersionsrelation dieser ausgedehnten OP folgt aus

$$k_{OP} = k_L \sqrt{\frac{\varepsilon(\omega) \varepsilon_m}{\varepsilon(\omega) + \varepsilon_m}}.$$

In diesem Fall ist der Betrag des OP-Wellenvektors k_{OP} für jede Frequenz größer als der von sich frei ausbreitendem Licht k_L . Zur Anregung von sich in Grenzflächen ausbreitenden OP muss daher k_L an k_{OP} angepasst werden, wie dies z. B. mit der *Kretschmann-Methode* möglich ist. Dazu wird das Metall in Form eines Dünnsfilms auf ein Glasprisma aufgebracht (wobei die oben angeführte Dispersionsrelation näherungsweise gültig bleibt, so-

lange eine gewisse Mindestdicke des Filmes verhindert, dass das in der oberen Grenzfläche angeregte OP durch die untere Grenzfläche des Filmes merklich gestört wird). Für eine gegebene Frequenz des anregenden Lichtes ω und eine Brechzahl des



Glasprisma n wird nun k_L durch Variation des Einfallswinkels θ , der über dem Grenzwinkel der Totalreflexion liegen muss, an k_{OP} angepasst. Die OP-Anregung ist optimal, wenn das reflektierte Licht ein Minimum aufweist.

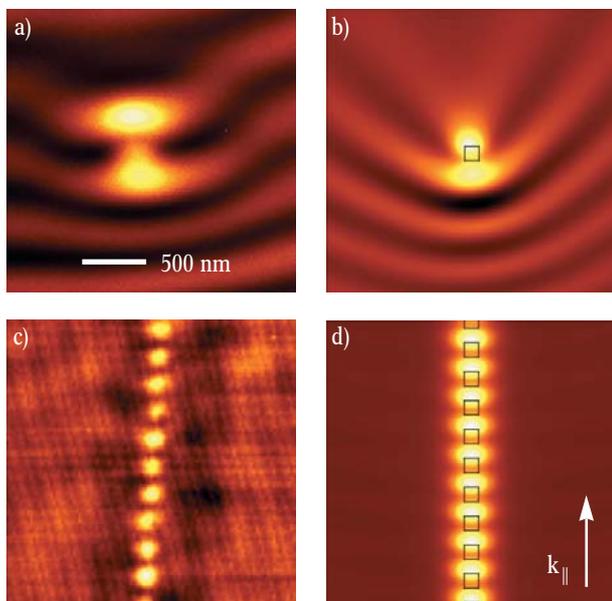


Abb. 4: SNOM-Bild eines einzelnen scheibenförmigen Nanopartikels aus Gold (Durchmesser 100 nm, Höhe 40 nm) (a) sowie die zugehörige numerische Simulation (b). In (c) ist das SNOM-Bild einer Kette von Nanopartikeln dargestellt (Partikelgeometrie wie in (a), Partikelabstand 200 nm); in (d) die zugehörige numerische Simulation. Die schwarzen Quadrate in (b) und (d) markieren die Position der Partikel; Lichtwellenlänge 633 nm, k_{\parallel} definiert die auf der Bildebene projizierte Einfallrichtung des anregenden Lichts.

tels eines piezoelektrischen Aktuators über die Probe gerastert, wobei der Abstand zwischen Spitze und Probe durch die Detektion nanoskopischer Kraftwechselwirkungen auf etwa 10 nm konstant gehalten wird (*shear force*-Methode). Die Intensität des an jedem Punkt von der Spitze gestreuten – und über die Glasfaser dem Detektor zugeführten – Lichtes ist proportional zur lokalen Intensität des elektrischen Felds [10]. Damit eignet sich diese SNOM-Konfiguration optimal zur direkten lokalen Untersuchung des OP-Nahfelds.

Abbildung 4a zeigt das SNOM-Bild eines bei 633 nm resonant angeregten Nanopartikels aus Gold. Man erkennt zwei ausgeprägte Maxima der OP-Intensität um das Partikel, nebst einer stehenden Welle, die durch Interferenz zwischen einfallendem und vom Partikel gestreuten Licht entsteht [10]. Mit einem SNOM lässt sich also die Intensitätsverteilung des OP-Felds messen, die sich stark von der Topographie der Probe unterscheiden kann. Im vorliegenden Fall lassen sich die zwei beobachteten Intensitätsmaxima durch das Nahfeld eines in vertikaler Richtung orientierten Dipols erklären. Eine exakte Bestätigung liefert die numerische Simulation in Abbildung 4b.

Mithilfe von SNOM-Messungen wurde kürzlich auch die Dämpfung der OP-Oszillation bestimmt, die für das Verständnis der optischen Eigenschaften nanoskopischer Metallpartikel von zentraler Bedeutung ist. Grundsätzlich lässt sich die Dämpfung aus der homogenen spektralen Breite des Absorptionsbandes bestimmen. Dieses Band ist jedoch bei aus vielen Partikeln bestehenden Proben aufgrund fluktuierender Teilchengometrien meist inhomogen verbreitert. Eine SNOM-Messung an nur einem Partikel löst dieses Problem auf elegante Weise [11]. Eine weitere Möglichkeit bietet die zeitaufgelöste Messung der OP-Lebensdauer, welche unmittelbar mit der Dämpfung korreliert ist. Ein Titan-Saphir-Laser (Pulsdauer 15 fs) und ein interfero-

metrischer Autokorrelator erlaubt es uns, die einige Femtosekunden lange Lebensdauer der OP zu messen. So konnten wir zeigen, dass die OP-Lebensdauer (je nach Probe 6–9 fs) auch an spektral inhomogen verbreiterten Proben exakt zu bestimmen ist [12]. Zusätzlich können wir durch die zeitaufgelöste Messung das zeitliche OP-Schwingungsverhalten bestimmen – Unterschiede im Abklingverhalten des OP bei resonanter und nicht-resonanter Anregung konnten aufgezeigt werden. Speziell wiesen wir eine Schwebung der OP-Oszillation im Metallpartikel und der anregenden Laserstrahlung bei nicht-resonanter Anregung nach [13].

Lichttransport in Nanodrähten

Die an metallischen Nanopartikeln gewonnenen Einsichten zeigen, dass diese Strukturen die Rolle von lokalen (~ 100 nm) und ultraschnellen (einige Femtosekunden) Bauelementen zur Lichtfeldmanipulation übernehmen können. Somit kehren wir zurück zur Frage nach nanoskopischen Strukturen zur Weiterleitung optischer Signale, etwa im Sinn einer Adressierung einzelner nanoskopischer Bauelemente. Neben dem eingangs erwähnten Nanodraht liegt zunächst, ausgehend von einem einzelnen Nanopartikel, eine lineare Aneinanderreihung von Nanopartikeln nahe. Sind die einzelnen Teilchen einer solchen Kette bei der Wellenlänge des zu transportierenden Lichtes resonant, so ist – wie Modellrechnungen zeigen – ein effektiver Lichttransport über einige μm zu erwarten [14]. Die für den Lichttransport notwendige Wechselwirkung der einzelnen Nanopartikel geht aus dem SNOM-Bild in Abbildung 4c hervor. Durch die Kopplung der individuellen OP-Felder entsteht ein kollektiver OP-Schwingungszustand, dessen Nahfelder im Unterschied zum einzelnen Goldpartikel (Abb. 4a) stark, nämlich auf etwa 80 nm, lokalisiert sind [10]. Wiederum bestätigt die numerische Simulation dieser gekoppelten OP-Felder in Abbildung 4d den experimentellen Befund.

Um die nanoskopische Lichtleitung in der Praxis zu realisieren, benötigt man nicht nur eine lichtleitende Struktur, sondern es muss auch möglich sein, Licht in diese Struktur einzukoppeln. Zunächst haben wir dies mithilfe eines resonant angeregten Nanopartikels als nanoskopische Lichtquelle erreicht. Die folgende Überlegung zeigt, dass sich Licht auch dann gezielt inkoppeln lässt, wenn die gesamte Probenstruktur mit Licht

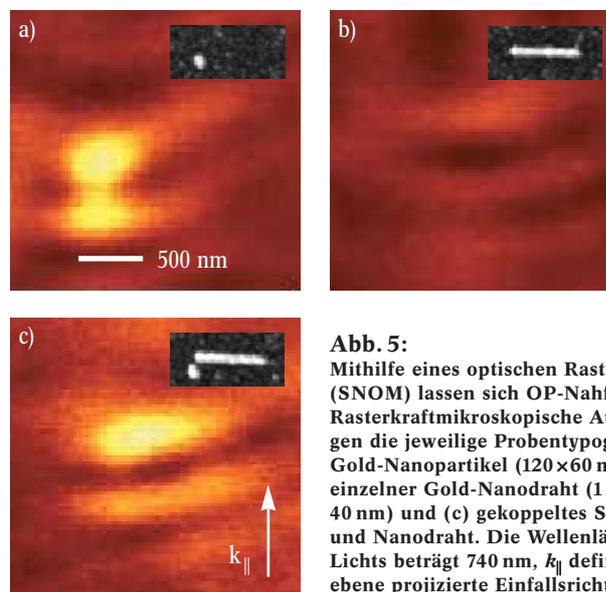


Abb. 5: Mithilfe eines optischen Rasternahfeld-Mikroskops (SNOM) lassen sich OP-Nahfelder untersuchen. Rasterkraftmikroskopische Aufnahmen (Insets) zeigen die jeweilige Probentypographie: (a) einzelner Gold-Nanopartikel ($120 \times 60 \text{ nm}^2$, Höhe 40 nm), (b) einzelner Gold-Nanodraht ($1 \mu\text{m} \times 60 \text{ nm}$, Höhe 40 nm) und (c) gekoppeltes System aus Nanopartikel und Nanodraht. Die Wellenlänge des anregenden Lichts beträgt 740 nm, k_{\parallel} definiert die auf die Bildebene projizierte Einfallrichtung. (siehe Text)

beschieden wird, wie es bei der SNOM-Konfiguration nach Abbildung 3 unumgänglich ist. Zunächst wird der Nanodraht räumlich so positioniert, dass das anregende linear polarisierte Licht keine Komponente entlang der Drahtachse aufweist und somit zu keiner Lichtleitung im Draht führt. Nun wird an einem Ende des Nanodrahtes im Abstand von etwa 10 nm ein vom einfallenden Licht resonant anregbares Nanopartikel positioniert. Das Nahfeld dieses Partikels ist einerseits stark depolarisiert – man denke nur an das Nahfeld eines Dipols – und weist daher Feldkomponenten entlang der Drahtachse auf, welche die Lichtleitung im Nanodraht anregen. Andererseits wirkt die Nahfeldverstärkung der OP-Resonanz im Partikel aber auch wie ein Lichtkonzentrator; man kann also tatsächlich von einer lokalen nanoskopischen Lichtquelle sprechen. Dieses Experiment ist in Abbildung 5 illustriert: Die SNOM-Bilder eines isolierten Goldpartikels und des 1 μm langen Nanodrahtes aus Gold in Abbildung 5a und 5b dienen als Referenz. Wie zu erwarten, beobachten wir ein starkes OP-Nahfeld um das angeregte Partikel. Der Nanodraht dagegen führt nur zu einer schwachen nicht-resonanten Modulation des lichtelektrischen Felds. Für das gekoppelte System dagegen beobachten wir in Abbildung 5c ein verstärktes Nahfeld entlang des Nanodrahtes [15]. Auch hier hat die theoretische Simulation den Effekt der lokalen Anregung und Lichtleitung bestätigt.

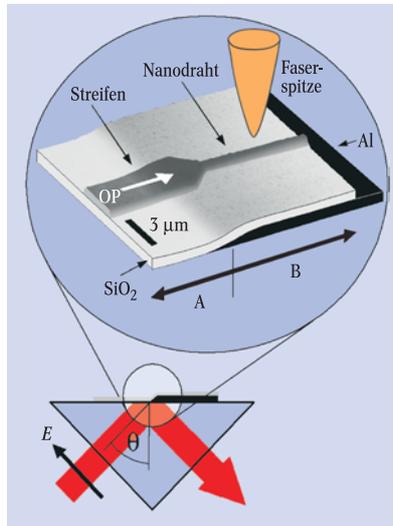


Abb. 6: Ein solches Dünnschichtsystem eignet sich zur lokalen optischen Anregung. Ein etwa 50 nm dicker Aluminiumfilm (Al) schirmt den Nanodraht vom Anregungslicht ab.

Denkt man an integrierte nano-optische Systeme, sind universellere Elemente als das soeben vorgestellte vonnöten. Aus diesem Grund haben wir das in Abbildung 6 dargestellte Dünnschichtsubstrat entwickelt. Ein Teil eines Glaträgers („B“) wird 50 nm dick mit Aluminium bedampft, um das von unten einfallende Licht vom Bereich über dem Film abzuschirmen. Ein seitlich auf einige μm begrenzter und typischerweise 50 nm dicker Goldfilm („Streifen“) erstreckt sich sowohl über die Region B als auch über die von Aluminium nicht bedeckte Region A. Wie in der Abbildung dargestellt, wird der direkte Kontakt des Streifens mit dem Aluminium durch eine 50 nm dicke SiO₂-Schicht vermieden. Von dem mehreren Lichtwellenlängen breiten Streifen ist bekannt, dass sich in ihm nach der klassischen Kretschmann-

Methode [2] OP anregen lassen, die sich ähnlich wie in einem lateral sehr breiten Metallfilm über eine Länge von mehreren 10 μm ausbreiten (siehe Infokasten „Oberflächenplasmonen“) [16]. Somit kann sich ein in der Region A im Streifen angeregtes OP in die Region B fortpflanzen und – in Analogie zu einem dielektrischen Streifenwellenleiter – ein dort positioniertes Element optisch adressieren. Über den Rand des Aluminiumfilms ist eine nahezu ungestörte OP-Ausbreitung möglich, da dieser durch eine spezielle Aufdampftechnik keine scharfe Kante hat, sondern über etwa 2 μm stetig ansteigt. Innerhalb der Region B endet der Streifen in einer dreieckigen Verjüngung. Das SNOM-Bild zeigt, dass diese Geometrie eine effektive „Fokussierung“ des im Streifen angeregten OP bewirkt (Abb. 7) [17]. Die Form eignet sich somit hervorragend zur lokalen optischen Anregung einer Nanostruktur.

Wir nutzen das soeben vorgestellte System, um die Lichtleitung in einem in der Region B positionierten – und daher vom direkt einfallenden Laserlicht völlig abgeschirmten – Gold-Nanodraht zu untersuchen. Er ist 200 nm breit, 50 nm hoch und an einem Ende direkt mit dem dreieckigen Koppellement des Streifens kontaktiert (Abb. 6). Wir beobachten mit dem SNOM, dass sich ein im Streifen angeregtes OP tatsächlich in den Nanodraht fortsetzt und entlang seiner Achse ausbreitet (Abb. 8). Ein Intensitätsmaximum am Ende des 8 μm langen Nanodrahtes zeigt, dass dort ein Teil der OP-Intensität wieder ausgekoppelt wird (S in Abb. 8). Der andere Teil wird reflektiert und führt durch Interferenz zu einer Modulation der OP-Intensität entlang der Drahtachse (Abb. 9a). Für einen 20 μm langen Nanodraht ist die reflektierte OP-Intensität entsprechend der größeren Drahtlänge kleiner und das Interferenzmuster kaum sichtbar (Abb. 9a, Inset). Für beide Nanodrähte ergibt sich – übereinstimmend mit den eingangs erwähnten theoretischen Erwartungen [1] – die $1/e$ -Ausbreitungslänge des OP zu 2,5 μm . Das Intensitätsprofil senkrecht zur Drahtachse in Abbildung 9b zeigt, dass die laterale Halbwertsbreite des OP-Felds nur 115 nm beträgt – ein Siebtel der hier verwendeten Wellenlänge von 800 nm. Dieser Wert illustriert das Phänomen des Lichttransportes jenseits des Abbe-Limits.

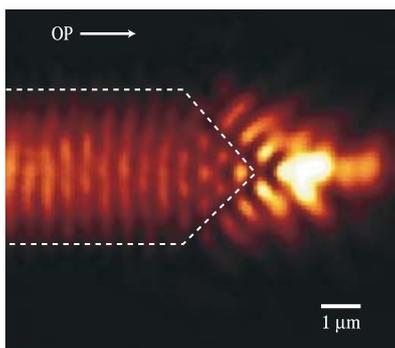


Abb. 7: Dieses SNOM-Bild zeigt die Ausbreitung eines OP (Anregungswellenlänge 633 nm) in einem 3 μm breiten Goldstreifen. Die Ausbreitungsrichtung weist von links nach rechts; die gestrichelte Linie markiert den Umriss des Streifens. Die stehende optische Welle auf dem Streifen entsteht durch Interferenz des einfallenden OP mit an der Streifenbegrenzung reflektierten OP-Komponenten.

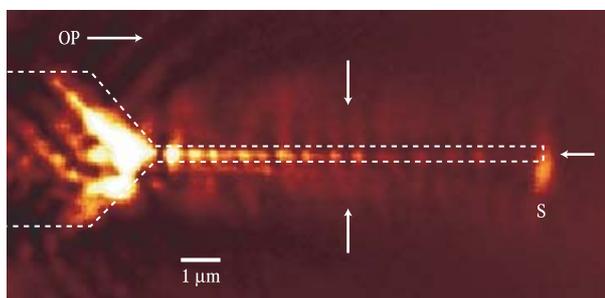


Abb. 8: Im SNOM-Bild lässt sich die Lichtleitung entlang eines 200 nm breiten, 50 nm hohen und 8 μm langen Gold-Nanodrahtes beobachten. Die Anregungswellenlänge beträgt 800 nm, die Ausbreitungsrichtung des OP weist von links nach rechts. S kennzeichnet die OP-Streuung am Ende des Nanodrahtes, die Pfeile markieren die Positionen der Intensitätsprofile, die in Abb. 9 zu sehen sind.

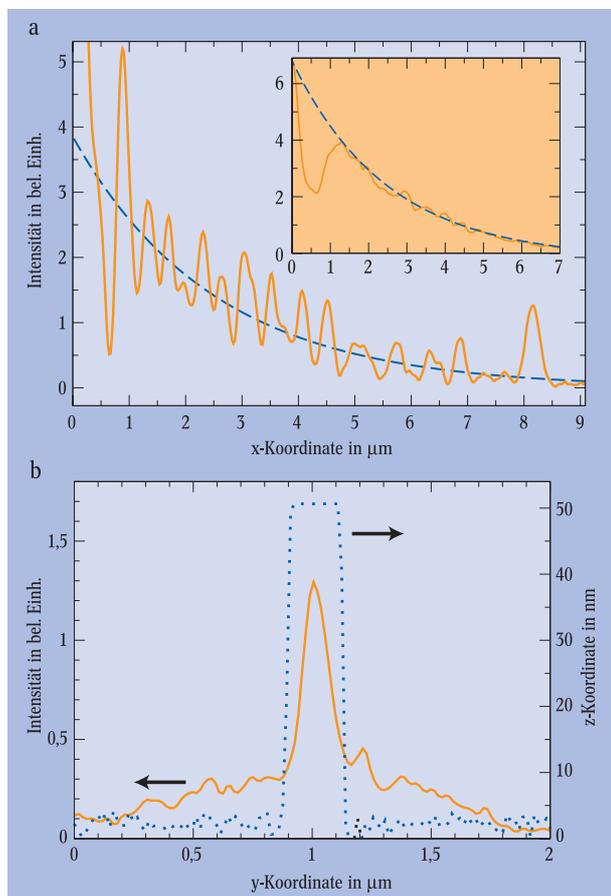


Abb. 9: Intensitätsprofile des optischen Nahfeldes aus Abb. 8. (a) Intensität entlang der Nanodrahtachse: Aus dem exponentiellen Fit der Intensitätsabnahme (gestrichelte Linie) folgt eine $1/e$ -Ausbreitungslänge von $2,5 \mu\text{m}$. Das Inset zeigt Intensitätsverlauf und Fit für einen $20 \mu\text{m}$ langen Nanodraht. (b) Intensität zur Nanodrahtachse: Die punktierte Linie gibt den Verlauf der zugehörigen (elektronenmikroskopisch vermessenen) Drahttopographie an.

Zusammenfassung und Ausblick

Die beschriebenen Experimente zeigen, dass sich OP-Effekte in metallischen Nanostrukturen zur Realisierung einer Nanooptik nutzen lassen. Daran ist besonders reizvoll, dass die weitere Verkleinerung bis zu Strukturgrößen von nur wenigen Nanometern unter Beibehaltung der hier diskutierten Funktionalität – Leitung und Manipulation von Lichtfeldern – prinzipiell möglich ist. Zusammen mit der ultraschnellen zeitlichen Dynamik im Bereich einiger Femtosekunden zeigt dies das Potenzial metallischer Nanostrukturen zum Aufbau einer nicht dem Abbe-Limit unterworfenen Lichttechnologie auf.

Die hohe Dämpfung der OP sollte in den angestrebten hochintegrierten optischen Bauteilen nur eine untergeordnete Rolle spielen. Trotzdem ist es interessant, dass die Dämpfung von OP in Gold und Silber mit steigender Wellenlänge stark abnimmt – besonders im Hinblick auf die in der Telekommunikation verwendeten Wellenlängen im nahen Infrarot. Im mittleren und fernen Infrarot haben OP in Metallstreifen als lichtleitendes Element im Quanten-Kaskaden-Laser bereits bei einem kommerziell erhältlichen Produkt Einzug gehalten [18]. Es ist zu erwarten, dass eine auf OP-Effekten in metallischen Nanostrukturen beruhende Nanooptik (*Metal Structure Based Nano-Optics*) diesem Beispiel folgen kann.

Dank

Wir danken den Mitgliedern unserer Arbeitsgruppe Harald Ditlbacher, Bernhard Lamprecht, Marco Salerno, Gerburg Schider und Alfred Leitner, sowie Jean-Claude Weeber und Alain Dereux von der Université de Bourgogne in Dijon. Die Arbeiten wurden finanziell unterstützt vom Österreichischen Ministerium für Verkehr, Innovation und Technologie, dem Fonds zur Förderung der wissenschaftlichen Forschung sowie der Europäischen Union.

Literatur

- [1] J. Takahara, S. Yamagishi, H. Taki, A. Morimoto, T. Kobayashi, *Opt. Lett.* **22**, 475 (1996)
- [2] H. Raether, *Surface Plasmons*, Springer Tracts in Modern Physics 111, Springer, Berlin, 1988
- [3] U. Kreibig, M. Vollmer, *Optical properties of metal clusters*, Springer Series in Material Science 25, Springer, Berlin, 1995
- [4] A. Otto, I. Mrozek, H. Grabhorn, W. Akemann, *J. Phys.: Condens. Matter* **4**, 1143 (1992)
- [5] W. Gotschy, K. Vonmetz, A. Leitner, F. R. Aussenegg, *Appl. Phys. B* **63**, 381 (1996)
- [6] W. Gotschy, K. Vonmetz, A. Leitner, F. R. Aussenegg, *Opt. Lett.* **21**, 1099 (1996)
- [7] B. Lamprecht, A. Leitner, F. R. Aussenegg, *Appl. Phys. B* **68**, 419 (1999)
- [8] H. Ditlbacher, J. R. Krenn, B. Lamprecht, A. Leitner, F. R. Aussenegg, *Opt. Lett.* **25**, 563 (2000); H. Ditlbacher, J. R. Krenn, B. Lamprecht, A. Leitner, F. R. Aussenegg, *Optics and Photonics News* **11**, 43 (Dezember 2000)
- [9] D.-Y. Khang, H. H. Lee, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 2599 (1999)
- [10] J. R. Krenn, A. Dereux, J. C. Weeber, E. Bourillot, Y. Lacroute, J. P. Goudonnet, B. Schider, W. Gotschy, A. Leitner, F. R. Aussenegg, C. Girard, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2590 (1999)
- [11] G. von Plessen, J. Feldmann, *Phys. Bl.*, Oktober 1998, S. 923
- [12] B. Lamprecht, J. R. Krenn, A. Leitner, F. R. Aussenegg, *Appl. Phys. B* **69**, 223 (1999)
- [13] B. Lamprecht, J. R. Krenn, A. Leitner, F. R. Aussenegg, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4421 (1999)
- [14] M. Quinten, A. Leitner, J. R. Krenn, F. R. Aussenegg, *Opt. Lett.* **76**, 4056 (1998)
- [15] J. R. Krenn, J. C. Weeber, A. Dereux, E. Bourillot, J. P. Goudonnet, B. Schider, A. Leitner, F. R. Aussenegg, C. Girard, *Phys. Rev. B* **60**, 5029 (1999)
- [16] B. Lamprecht, J. R. Krenn, G. Schider, H. Ditlbacher, M. Salerno, N. Felidj, A. Leitner, F. R. Aussenegg, J. C. Weeber, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 51 (2001)
- [17] J. C. Weeber, J. R. Krenn, A. Dereux, B. Lamprecht, Y. Lacroute, J. P. Goudonnet, *Phys. Rev. B* **64**, 045411 (2001)
- [18] F. Capasso, R. Colombelli, R. Paiella, C. Gmachl, A. Tredicucci, D. L. Sivco, A. Y. Cho, *Optics and Photonics News* **12**, Mai 2001, S. 40

Die Autoren

Joachim Krenn ist im Forschungsbereich Nanooptik tätig.

Franz Aussenegg ist stets von unkonventionellen Problemlösungen in einem traditionellen wissenschaftlichen Umfeld fasziniert. Dazu passt, dass er in den frühen 60er Jahren einen der ersten Laser Österreichs konstruiert hat ebenso, wie die von ihm seit über 10 Jahren verfolgte Entwicklung einer submikroskopischen Optik, die mit der herkömmlichen außer dem Namen kaum etwas gemeinsam hat. Völlig konventionell ist dagegen sein liebstes Freizeitvergnügen: Bergwandern zu jeder Jahreszeit.

