

HERTHA-SPONER-PREIS

Schlanke Multitalente

Zweidimensionale Anordnungen hochbrechender dielektrischer Nanoresonatoren bieten vielfältige neue Möglichkeiten, um Licht mit hoher Effizienz zu kontrollieren.

Isabelle Staudé

Mie-Resonanzen sind für die Lichtstreuung verantwortlich, die Schönwetterwolken ihre weiße Farbe verleiht. Weniger bekannt ist, dass sich maßgeschneiderte Mie-Resonanzen dielektrischer Designer-Nanopartikel einsetzen lassen, um Licht gezielt zu manipulieren. Damit ist es möglich, nanometerdünne Metafilme zu konstruieren, welche künftig die Aufgaben konventioneller optischer Komponenten übernehmen und neue photonische Funktionalitäten bereitstellen könnten.

Das im 17. Jahrhundert von Christiaan Huygens formulierte Prinzip besagt, dass jeder Punkt einer Wellenfront den Ausgangspunkt einer neuen Elementarwelle bildet [1]. Entsprechend lässt sich die Wellenfront einer Lichtwelle durch Aufprägen einer räumlich variierenden Phasenverteilung kontrollieren. Dies ist der Schlüssel zu einer Reihe optischer Funktionalitäten wie Strahlableitung, -formung und Fokussierung. Meist erfüllen diese Aufgaben konventionelle optische Komponenten wie Linsen, welche dem einfallenden Licht eine räumliche Phasenverteilung durch Propagation in einem transparenten Material über makroskopische Distanzen aufprägen.

Die Fortschritte in der Nanotechnologie ermöglichen es, diese Funktionen nun auch durch strukturierte Filme, die nur zehn bis wenige hundert Nanometer dünn sind, bereitzustellen. Dabei handelt es sich um so genannte photonische Metafilme bzw. -oberflächen [2]. Ähnlich wie dreidimensionale photonische Metamaterialien, die andere optische Eigenschaften als natürliche Materialien besitzen können [3], bieten Metafilme zahlreiche Freiheitsgrade, die über diejenigen konventioneller optischer Komponenten hinausgehen. Beispiele sind eine lokal polarisationssensitive optische Antwort oder maßgeschneiderte Dispersion.

Metafilme sind meist aus Nanopartikeln aufgebaut, die auf Subwellenlängenskala in einer Ebene angeordnet sind. Dadurch treten keine höheren Beugungsordnungen auf, sodass sämtliches Licht in der fundamentalen Ordnung verbleibt. Das oszillierende elektrische Feld einer einfallenden Lichtwelle führt je nach Material zur periodischen Verschiebung von freien und/oder gebundenen Ladungsträgern in den Nanopartikeln und damit zu lokalen Strömen, deren Dynamik sich in guter Näherung als getriebener harmonischer Oszillator beschreiben lässt. Die oszillierenden Ströme strah-



len wiederum elektromagnetische Felder ab, die sich mit der einfallenden Welle überlagern. Im einfachsten Fall linearer oszillierender Ströme entsteht elektrische Dipolstrahlung. Dabei ist es möglich, die Resonanzfrequenz durch Größe, Materialkomposition, Form und Anordnung des jeweiligen Nanopartikels gezielt einzustellen. Für zehn bis wenige hundert Nanometer kleine Partikel liegen die Resonanzfrequenzen im sichtbaren und nahinfraroten Spektralbereich.

Der charakteristische Phasenverlauf eines harmonischen Oszillators hilft dabei, die Phase in der Ebene räumlich zu kontrollieren: Für Frequenzen unterhalb der Resonanzfrequenz folgt der im Nanopartikel induzierte Strom der Phase des elektrischen Feldes der treibenden Lichtwelle, nahe der Resonanz hinkt er

Dielektrische Metafilme, hier als farbige Quadrate zu sehen, lassen sich im Labor optisch charakterisieren.

KOMPAKT

- Photonische Metafilme bestehen aus Nanopartikeln, die auf Subwellenlängenskala in der Ebene angeordnet sind.
- Eine einfallende Lichtwelle verschiebt die Ladungsträger in den Nanopartikeln und verursacht oszillierende Ströme, die elektromagnetische Felder abstrahlen.
- Gelingt es, in den Nanopartikeln gekreuzte elektrische und magnetische Dipole mit vergleichbarer Resonanzstärke und -breite anzuregen, lässt sich die transmittierte Phase bei hoher Transmission kontrollieren.
- Damit bieten nanoskopisch dünne Filme grundlegend neue Möglichkeiten, z. B. für multifunktionale, durchstimmbare und nichtlineare optische Komponenten.

Dr. Isabelle Staudé, Abbe Center of Photonics, Friedrich-Schiller-Universität Jena, Albert-Einstein-Str. 6, 07745 Jena – Preisträgerartikel anlässlich der Verleihung des Hertha-Sponer-Preises 2017 auf der Jahrestagung der DPG in Münster

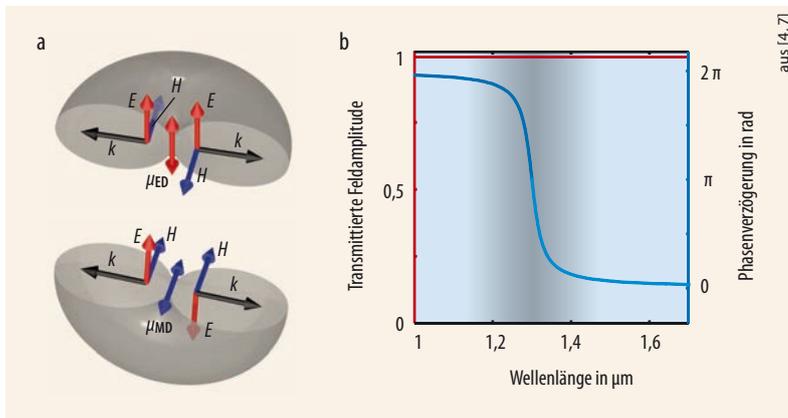


Abb. 1 Die Abstrahlcharakteristik elektrischer und magnetischer Dipole mit Dipolmomenten μ_{ED} bzw. μ_{MD} (a) zeigt, dass für die Überlagerung eines gekreuzten elektrischen und magnetischen Dipolstrahlers Licht in eine Richtung emittiert

wird. Transmittierte elektrische Feldamplitude und Phasenverzögerung für ein Array aus gekoppelten elektrischen und magnetischen Dipolen mit identischen resonanten Polarisierbarkeiten (b). Der Resonanzbereich ist grau schattiert.

ihr um $\pi/2$ hinterher, für höhere Frequenzen wird er gegenphasig. Prinzipiell gilt es also, die Resonanzfrequenz der Nanopartikel als Funktion ihrer Position in der Ebene anzupassen.

Allerdings kann eine einzelne Resonanz nur den Bereich von $\Delta\varphi = \pi$ abdecken. Zudem geht die Resonanz eines Arrays von Nanopartikeln mit einem Minimum in der Transmission einher, da die abgestrahlten Felder in Vorwärtsrichtung destruktiv mit der einfallenden Welle interferieren. Damit ist der Metafilm gerade im relevanten Spektralbereich nahezu lichtundurchlässig. Doch Nanoresonatoren, welche die optische Anregung oszillatorischer Kreisströme ermöglichen, besitzen nach dem Induktionsgesetz neben der elektrischen auch eine magnetische Polarisierbarkeit. Für die Superposition eines gekreuzten elektrischen und magnetischen Dipolstrahlers stellt sich eine einseitige Abstrahlung ein, wie sie auch die (fiktiven) Huygenschen Elementarwellen aufweisen (Abb. 1a).

Um zu überprüfen, wie sich Nanoresonatoren mit einer elektrischen und einer magnetischen Polarisierbarkeit auf die Transmissionseigenschaften des Metafilms für senkrecht einfallende ebene Wellen mit Frequenz ω auswirken, beschreiben wir diesen als ein zweidimensionales Gitter aus gekoppelten elektrischen und magnetischen Dipolen mit resonanten Polarisierbarkeiten (Resonanzfrequenzen $\omega_{e,m}$, Dämpfungskonstanten $\gamma_{e,m}$). Für eine unendliche Ausdehnung des Gitters, starke Resonanzen und Anregung mit einer ebenen Welle nehmen die komplexen Reflexions- und Transmissionskoeffizienten die folgende Form an [4]:

$$t = 1 + \frac{2i\gamma_e\omega}{\omega_e^2 - \omega^2 - 2i\gamma_e\omega} + \frac{2i\gamma_m\omega}{\omega_m^2 - \omega^2 - 2i\gamma_m\omega} \quad (1)$$

$$r = \frac{2i\gamma_e\omega}{\omega_e^2 - \omega^2 - 2i\gamma_e\omega} - \frac{2i\gamma_m\omega}{\omega_m^2 - \omega^2 - 2i\gamma_m\omega} \quad (2)$$

Der letzte Term beschreibt jeweils die magnetische, der vorletzte die elektrische Antwort. Setzen wir $\omega_e = \omega_m$

und $\gamma_e = \gamma_m$, so wird der Metafilm über den gesamten Resonanzbereich transparent (Abb. 1b). Die resonante Antwort des Systems zeigt sich in der Phase des transmittierten Lichtfeldes, die über die spektrale Breite der Resonanzen eine Variation von $\Delta\varphi = 2\pi$ beschreibt. Gelingt es also, in Nanopartikeln, die auf einem 2D-Gitter angeordnet sind, gekreuzte elektrische und magnetische Dipole mit vergleichbarer Resonanzstärke und -breite anzuregen, ist die vollständige Kontrolle über die transmittierte Phase mit voller Phasenabdeckung bei gleichzeitig hoher Transmission möglich.

Metafilme im praktischen Einsatz

Geometrisch komplexe plasmonische Nanoresonatoren wie Split-Ring-Resonatoren besitzen magnetische Polarisierbarkeiten. Sie sind damit im Prinzip als Metafilmbausteine geeignet. Dort treten jedoch intrinsische Absorptionsverluste auf, was die Transparenz und damit die Anwendung plasmonischer Metafilme limitiert. Zudem ist es extrem schwierig, für plasmonische Nanoresonatoren magnetische Dipolresonanzen im sichtbaren Spektralbereich zu erzielen.

Eine Lösung dieser Probleme bieten hochbrechende dielektrische Nanopartikel. Die Streuung an sphärischen Nanopartikeln kann man mittels Mie-Theorie beschreiben [5]. Das Streufeld des Partikels lässt sich in eine Reihe von abstrahlenden sphärischen Wellenfunktionen entwickeln, wobei der 2ⁿ-te Term des gestreuten elektrischen (magnetischen) Feldes proportional zum entsprechenden Entwicklungskoeffizienten a_n (b_n) ist. Obwohl Gustav Mie sich auf die mathematische Beschreibung der Farbeffekte einer Suspension von Goldnanopartikeln konzentrierte, ist seine Theorie

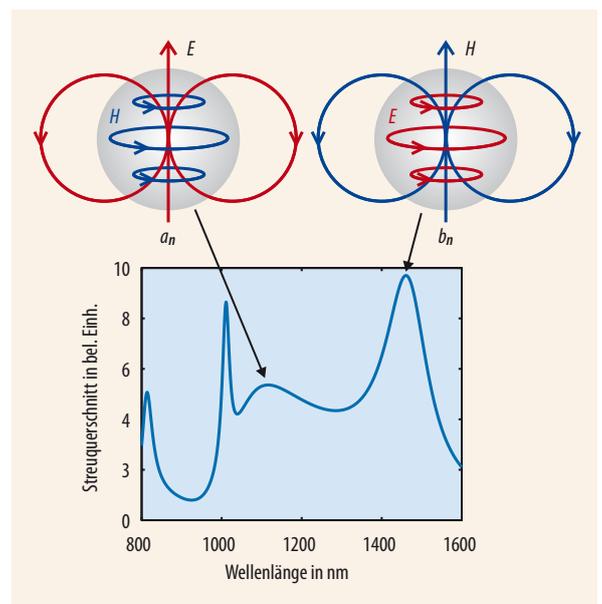


Abb. 2 Mittels Mie-Theorie lässt sich der Streuquerschnitt einer dielektrischen Kugel ($a = 200$ nm) mit Brechungsindex $n = 3,5$ berechnen. Die Maxima niedrigster Ordnung sind der elektrischen (Koeffizient a_n) und magnetischen (Koeffizient b_n) Dipolresonanz zuzuordnen, deren optische Nahfeldcharakteristika schematisch im oberen Teil des Bildes zu sehen sind.

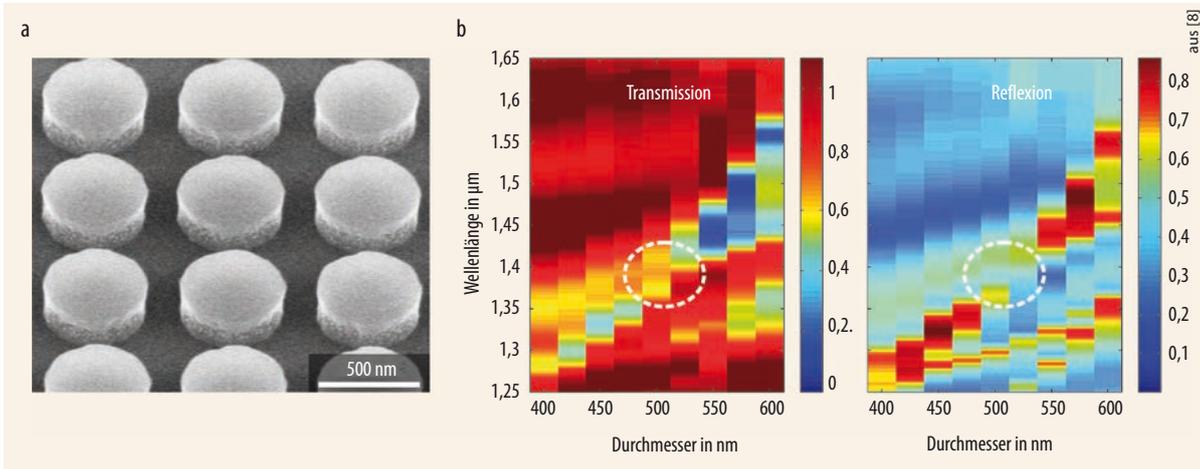


Abb. 3 Die elektronenmikroskopische Aufnahme zeigt einen Metafilm aus Silizium-Nanozylindern (a). Die experimen-

tell gemessene Transmission und Reflexion (b) solcher Metafilme für eine Variation des Zylinderradius bestätigen, dass

der Film für spektral überlappende elektrische und magnetische Dipolmoden transparent wird.

auf dielektrische Partikel anwendbar. Insbesondere ist bei hochbrechenden dielektrischen Nanopartikeln der Streuquerschnitt durch eine Serie von Maxima charakterisiert, die auf verstärkte Streuung bei den Resonanzfrequenzen des Nanopartikels zurückgehen (Abb. 2). Für ein Partikel mit Radius a und Brechungsindex n in Vakuum erscheint die fundamentale Mode etwa bei einer Wellenlänge $\lambda = 2na$. Dabei handelt es sich um die magnetische Dipolmode, die durch den Koeffizienten b_1 beschrieben wird und durch das Auftreten eines oszillierenden zirkulären Verschiebestroms im Innern des Nanopartikels gekennzeichnet ist. Die nächsthöhere Mode ist die elektrische Dipolmode mit dem Koeffizienten a_1 . Für hochbrechende, absorptionsarme Nanopartikel nehmen a_1 und b_1 vergleichbare Werte an. Für kugelförmige Siliziumnanopartikel mit Durchmessern um 100 nm gelang 2012 erstmals der experimentelle Nachweis für den sichtbaren Spektralbereich [6].

Damit sind Mie-resonante dielektrische Nanopartikel vielversprechende Bausteine von transparenten Metafilmen mit simultaner elektrischer und magnetischer Antwort. Doch für kugelförmige Partikel ist die magnetische Dipolmode stets die fundamentale Mode und zudem spektral von der elektrischen Dipolmode getrennt. Um eine größere Zahl geometrischer Parameter und größere Freiheit bei der Einstellung der Resonanzeigenschaften zu erzielen, bieten sich nicht-sphärische dielektrische Nanopartikel an. Wir konzentrieren uns dabei auf zylindrische Nanopartikel, die mittels lithographischer Verfahren (z. B. Elektronenstrahlolithographie) herzustellen sind (Abb. 3a). Obwohl die Mie-Theorie nicht mehr anwendbar ist, besitzen die Partikel Mie-artige Resonanzen. Um die Modenstruktur solcher Partikel zuverlässig vorherzusagen, sind meist numerische Simulationsverfahren nötig. Für zylindrische Silizium-Nanopartikel ist es möglich, die elektrische und magnetische Dipolmode über das Verhältnis aus Höhe und Durchmesser des Zylinders spektral gegeneinander zu verschieben und in spektralen Überlapp zu bringen [7, 8]. Ordnen wir derartige doppelresonante Partikel auf Subwellenlängenskala in einer Ebene an, resultiert

ein nahezu transparenter Film (Abb. 3b). Eine interferometrische Messung bestätigt den charakteristischen Verlauf der Transmissionsphase von Null bis 2π [4].

Um diese doppelresonanten dielektrischen Huygens-Metafilme zur gezielten Wellenfrontkontrolle einzusetzen, muss man die bei einer bestimmten Wellenlänge realisierte Transmissionsphase als Funktion der Position in der Ebene einstellen. Dazu ist es nötig, die Geometrie des Metafilms positionsabhängig so zu verändern, dass sich die Resonanzen auf definierte Weise spektral verschieben und der Modenüberlapp erhalten bleibt. Das ist durch eine positionsabhängige Dichte der Nanopartikel möglich, da die Resonanzfrequenzen sensitiv von der Umgebung des Nanopartikels abhängen. Auf dieser Basis haben wir bereits zwei Elemente zur Wellenfrontkontrolle experimentell demonstriert. Beim ersten handelt es sich um eine Phasenmaske, die einen azimuthalen Phasengradienten von Null bis 2π durch vier Quadranten mit äquidistanten Phasenschritten von $\pi/2$ approximiert und damit einen einfallenden Gaußschen Strahl in einen Vortexstrahl überführt [9], der in der hochauflösenden optischen Mikroskopie zum Einsatz kommen könnte. Das zweite Element ist ein holographischer Huygens-Metafilm, der ein Bild der Buchstaben *hv* erzeugt

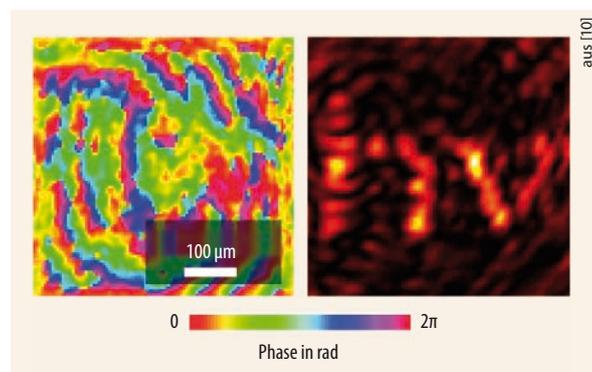


Abb. 4 Ein maßgeschneiderter Silizium-Metafilm prägt der einfallenden Lichtwelle die links abgebildete, interferometrisch gemessene räumliche Phasenverteilung auf, was zur Projektion der Buchstaben *hv* hinter dem Metafilm führt.

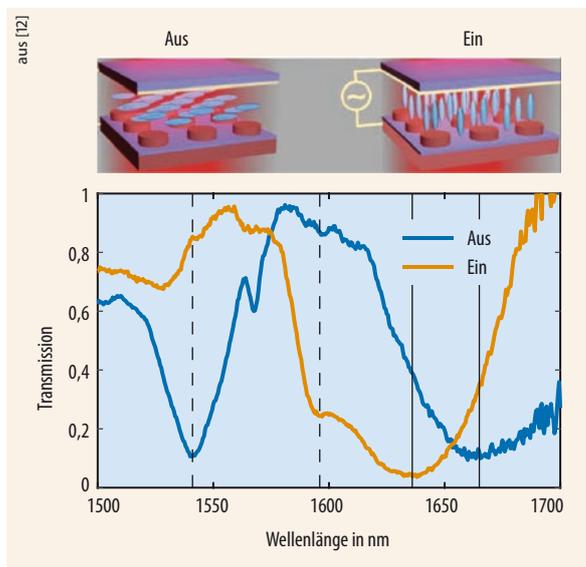


Abb. 5 Ein Silizium-Metafilm lässt sich in eine Flüssigkristallzelle integrieren (oben). Eine äußere Wechselspannung führt zu einer Rotation der Flüssigkristallmoleküle und damit zu einer deutlichen Änderung der Transmission des Metafilmes (unten).

(Abb. 4) [10]. Beide Elemente haben hohe Transmissions-effizienz von bis zu 80 Prozent und funktionieren unabhängig von der Polarisation des einfallenden Lichts.

Nun existieren diverse Methoden, um beliebige Phasenmasken durch nanostrukturierte dielektrische Filme zu implementieren, beispielsweise effektive Medienansätze oder das Aufprägen einer positions-abhängigen geometrische Phase [2, 7]. Warum also sind dielektrische Huygens-Metafilme so interessant? Zum einen kombinieren sie eine hohe Effizienz mit einem sehr flachen Profil und stellen keine fundamentalen Bedingungen an den Polarisationszustand des einfallenden Lichts. Zudem basieren sie auf der Anregung wohldefinierter Mie-artiger Resonanzen. Wie alle resonanten Systeme haben sie damit zwar eine begrenzte Bandbreite, erlauben es aber, die spektrale und räumliche Dispersion gezielt durch das Metafilm-Design einzustellen. Auch erleichtert die spektrale Dispersion die aktive Durchstimmbarkeit und Schaltbarkeit von Metafilmen und eröffnet damit ein hohes Anwendungspotenzial für schaltbare optische Systeme. Mittels Integration eines Mie-resonanten Silizium-Metafilms in eine Flüssigkristallzelle gelang es, die spektrale Durchstimmbarkeit der elektrischen und magnetischen Dipolresonanzen als Funktion von Temperatur [11] und angelegter Spannung [12] experimentell zu demonstrieren (Abb. 5). Dabei haben wir starke Verschiebungen der Resonanzwellenlänge und hohe Schaltkontraste realisieren können.

Zudem sind resonante Metafilme in der Lage, die optischen Nahfelder durch den Antenneneffekt lokal zu verstärken. Dadurch können sie die Licht-Materie-Wechselwirkung beeinflussen und intensivieren [7]. Dieses Konzept haben wir zur Verstärkung und Manipulation nichtlinearer optischer Effekte in Mie-resonanten Metafilmen eingesetzt. So konnten wir in Silizium-Metafilmen, die bei der Wellenlänge der

magnetischen Dipolresonanz optisch angeregt wurden, eine um zwei Größenordnungen stärkere Intensität der dritten Harmonischen detektieren als für einen unstrukturierten Siliziumwafer [13]. Auch nichtlineare optische Prozesse wie die Zweiphotonenabsorption und die Erzeugung freier Ladungsträger lassen sich durch Mie-Resonanzen dramatisch verstärken. Dies ermöglicht ultraschnelle optische Schalter mit Halbleiter-Metafilmen [14]. Eine zukünftige Kombination der Wellenfrontkontrolle durch Mie-resonante Metafilme mit ihren nichtlinearen und ultraschnellen Funktionalitäten könnte viele Anwendungen wie schnellere räumliche Lichtmodulatoren und hintergrundfreie Hologramme ermöglichen.

Der Antenneneffekt der einzelnen Mie-resonanten Nanopartikel lässt sich auch nutzen, um die spontane Emission gezielt zu beeinflussen. Durch Kopplung von Emittlern an bestimmte photonische Resonanzen des Metafilms lassen sich z. B. die spektrale Zusammensetzung der Emission [15], die Polarisation sowie die Richtungsverteilung [8] der Abstrahlung wunschgemäß anpassen. Derlei Fortschritte könnten in der Display-industrie sowie in der Entwicklung von Quellen maßgeschneiderter Lichtfelder Anwendung finden.

Mie-resonante dielektrische Metafilme bieten ein breites Spektrum an Möglichkeiten, um Lichtfelder mit hoher Effizienz zu kontrollieren. Damit haben die nanoskopisch dünnen Filme nicht nur das Potenzial, bestimmte konventionelle optische Komponenten zu ersetzen, sondern eröffnen grundlegend neue Möglichkeiten, beispielsweise für multifunktionale, durchstimmbare und nichtlineare optische Komponenten.

Literatur

- [1] C. Huygens, *Traité de la Lumière* (1690)
- [2] N. Yu und F. Capasso, *Nat. Mater.* **13**, 139 (2014)
- [3] C. M. Soukoulis und M. Wegener, *Nature Photon.* **5**, 523 (2011)
- [4] M. Decker, I. Staude et al., *Adv. Opt. Mater.* **3**, 813 (2015)
- [5] G. Mie, *Ann. Phys.* **25**, 377 (1908)
- [6] A. B. Evlyukhin et al., *Nano Lett.* **12**, 3749 (2012)
- [7] M. Decker und I. Staude, *J. Opt.* **18**, 103001 (2016)
- [8] I. Staude et al., *ACS Nano* **7**, 7824 (2013)
- [9] K. E. Chong, I. Staude et al., *Nano Lett.* **15**, 5369 (2015)
- [10] K. E. Chong et al., *ACS Photonics* **3**, 514 (2016)
- [11] J. Sautter, I. Staude et al., *ACS Nano* **9**, 4308 (2015)
- [12] A. Komar et al., *Appl. Phys. Lett.* **110**, 071109 (2017)
- [13] M. R. Shcherbakov et al., *Nano Lett.* **14**, 6488 (2014)
- [14] M. R. Shcherbakov et al., *Nat. Commun.* **8**, 17 (2017)
- [15] I. Staude et al., *ACS Photonics* **2**, 172 (2015)

DIE AUTORIN

Isabelle Staude hat am Karlsruher Institut für Technologie in Physik promoviert und mehrere Jahre als Research Fellow an der Australian National University in Canberra geforscht. Seit Mitte 2015 leitet sie eine Nachwuchsgruppe zu funktionellen photonischen Nanostrukturen, die seit 2016 im Emmy Noether-Programm der DFG gefördert wird. Privat ist sie passionierte Springreiterin und Tango-Argentino-Tänzerin.



DPG / Greiner