

Lichtausbreitung in Metallen?

Andreas Englisch und Uwe Hartmann
Experimentalphysik

Das optische Verhalten von Metallen

Das allgemein bekannte Verhalten von Metallen beim Auftreffen von elektromagnetischer Strahlung ist die Reflexion dieser Strahlung. Diese Eigenschaft wird bei der Herstellung von Spiegeln ausgenutzt. Die Eindringtiefe von Licht liegt, in Abhängigkeit von der Wellenlänge und vom Metall, im Bereich von 50 nm bis 100 nm [1]. Es genügen daher geringe Schichtdicken, um eine optimale Reflexion der Lichtwelle zu erzielen.

Für dieses Verhalten sind die freien Elektronen in den Metallen, das sog. Elektronengas, verantwortlich. Im elektrischen Feld wird auf die Elektronen eine Kraft ausgeübt, durch die sie an die Oberfläche gezogen werden. Dort verteilen sie sich so lange, bis das Innere des Metalls feldfrei ist. Bei niedrigen Frequenzen wird diese Bewegung hauptsächlich durch „Reibungseffekte“ - die Ursache des elektrischen Widerstands - gehemmt. Im optischen Bereich ist die Feldänderung so schnell, dass sich eine Verzögerung der Bewegung durch die Eigenmasse der Elektronen bemerkbar macht: Das Metall besitzt im optischen Frequenzbereich eine negative Dielektrizitätskonstante.

Es ergeben sich daraus einige interessante Effekte. Fällt Licht auf eine Grenz-

Licht in Metallen, ein zunächst paradox erscheinender Sachverhalt, kann unter bestimmten Umständen realisiert werden. Die Eigenschaften und Besonderheiten dieser Art von Lichtausbreitung bieten Möglichkeiten, die sich vom Molekülsensor bis hin zum Tera-Hertz-Prozessor erstrecken. Es ist notwendig, die Lichtausbreitung in Form sogenannter Plasmonen zunächst jedoch zu charakterisieren. Dazu wird in einer Arbeitsgruppe am Lehrstuhl von Professor Hartmann die Rasternahfeldmikroskopie (SNOM, **Scanning Near-Field Optical Microscopy**) eingesetzt. Damit ist es möglich, die Intensität der Plasmonen direkt abzubilden. Durch Strukturierung der Proben wird das Ausbreitungsverhalten beeinflusst, was direkt mit SNOM darstellbar ist. Ziel dabei ist, die Strukturierung so zu optimieren, dass Optik auf kleinstem Raum betrieben werden kann.

fläche bestehend aus einem Metall und einem „normalen“ durchsichtigen Material (Glas, Wasser, Luft...) so werden bei geeigneten Einstrahlbedingungen durch das einfallende Licht Plasmonen angeregt. Je nach Form der Grenzfläche unterscheidet man verschiedene Arten. Genannt seien hier insbesondere Mie- und Oberflächenplasmonen [2,3]. Die Auswirkung der Anregung von Mieplasmonen kann man in kleinen, 20-50 nm großen metallischen Partikeln beobachten, wie in einer kolloidalen Goldstaubsuspension oder in den sog. Goldrubiingläsern. Die Farbe entsteht hier durch die Absorption von Licht im grünen Spektralbereich, womit Resonanzen der Oberflächenladungsdichte der Partikel angeregt werden. Die Energie aus dem einfallenden Licht fließt zu einem Teil in eng an der Oberfläche anliegende quasistatische Felder. Diese

„kleben“ an der Oberfläche und werden durch innere Verluste im Metall gedämpft. Zum anderen Teil wird die Energie auch senkrecht zur Einfallrichtung des Lichts abgestrahlt.

An zweidimensional ausgedehnten Grenzflächen tritt eine solche Resonanzbedingung im Gegensatz zum nulldimensionalen Fall nur unter bestimmten Einstrahlbedingungen auf.

Man spricht in diesem Fall von Oberflächenplasmonen. Ein typischer Aufbau, mit dem es möglich ist, Oberflächenplasmonen anzuregen, ist in Abbildung 1 dargestellt und unter dem Namen 'Kretschmann Anordnung' bekannt [3]. Auf einem Prisma ist eine 50 nm dicke Silberschicht aufgedampft. Sie wird durch das Prisma beleuchtet. Auf diese Weise ist es möglich, entlang

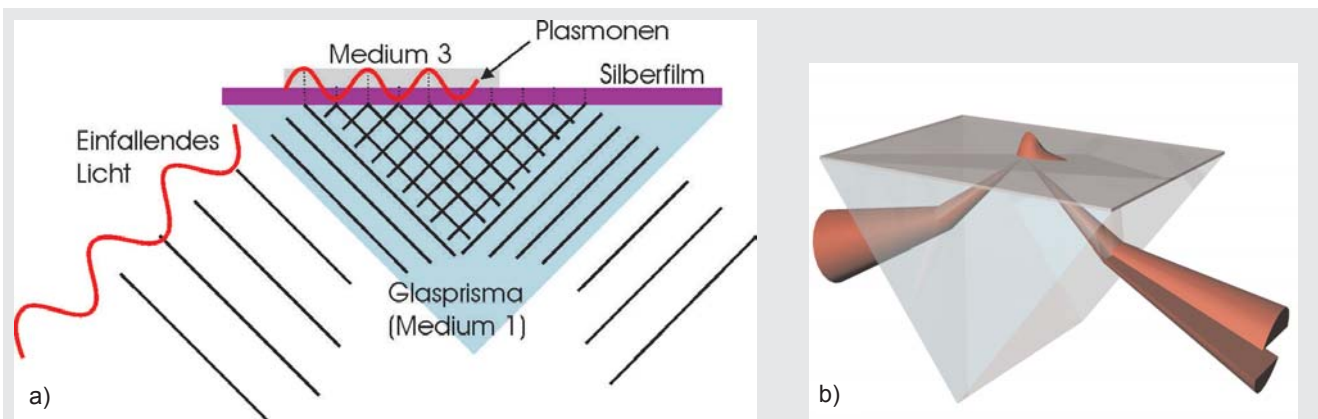


Abb. 1: Anregung von Plasmonen. Prinzip (a), spezielle Realisierung mit fokussiertem Laserstrahl (b).

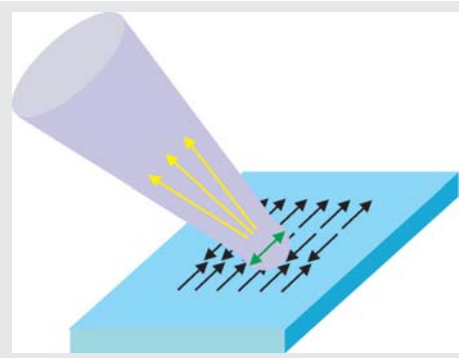


Abb. 2: Prinzip der Detektion sog. evaneszenter Felder (schwarzen Pfeile) mit SNOM. Das Ende der Spitze wird polarisiert (grüner Doppelpfeil) und strahlt in den konischen Teil der Sonde ab.

der Grenzfläche Silber-Luft eine Variation des elektrischen Feldes mit einer Wellenlänge, die der der Plasmonen entspricht, zu erhalten. Bei entsprechenden Werten für Schichtdicke und Einfallswinkel kann erreicht werden, dass die reguläre Reflexion total unterdrückt wird, wobei die Anregung der Plasmonen maximal wird.

Die Wellenlänge der Plasmonen hängt stark von der Dielektrizitätskonstanten des Mediums, welches an das Silber grenzt (Medium 3) ab. Bei Änderung dieser Dielektrizitätskonstanten verschiebt sich der Winkel des Minimums im reflektierten Licht, was zum Nachweis von Adsorbaten von nur wenigen Molekülschichten ausgenutzt werden kann.

Eine abgewandelte Anordnung ist in Abbildung 1 (b) dargestellt. Hier wird ein Laserstrahl durch das Prisma auf den Silberfilm fokussiert. Die Anregung von Plasmonen lässt sich direkt in der Schwächung der Lichtintensität im divergenten, reflektierten Lichtbündel bei dem entsprechenden Winkel erkennen. Dabei wird die Lage des Intensitätsminimums nur durch Eigenschaften des Teils der Grenzfläche bestimmt, auf den fokussiert wird. Es können somit lokale Variationen nachgewiesen werden.

Detektion von Plasmonen mit SNOM

Die entsprechende Anordnung eröffnet eine weitere Möglichkeit, die in unserer Arbeitsgruppe verfolgt wird, nämlich die Plasmonenausbreitung direkt an der Oberfläche abzubilden. Oberflächenplasmonen zeichnen sich dadurch aus,

dass das von ihnen erzeugte elektrische Feld zu beiden Seiten der Grenzfläche exponentiell abfällt (evaneszente Felder) [3]. Man kann sie daher nicht direkt mittels optischer Methoden beobachten, die im Vergleich zur Abklinglänge weit von der Grenzfläche entfernt positioniert sein müssen. Eine Möglichkeit, diese Felder zu detektieren, bietet die Rasternahfeldmikroskopie. Das Prinzip besteht darin, dass ein kleines lichtstreuendes Partikel in die Nähe der Oberfläche ($< 100 \text{ nm}$) gebracht wird. Dieses wird seinerseits durch die auf ihn einwirkenden evaneszenten Felder polarisiert und

strahlt in erster Ordnung proportional zu der Stärke dieser Polarisation und somit proportional zur Feldstärke ab [4]. Die Strahlung kann weit entfernt (im Fernfeld) mit gewöhnlichen Optiken detektiert werden. Eine mögliche Realisation ist in Abbildung 2 dargestellt. Der unterste Teil einer konisch ausgezogenen Glasfaser, dessen Abmessung weniger als 100 nm beträgt, fungiert als Streuzentrum, während der daran anschließende Teil im Großen und Ganzen das Streulicht sammelt und weiterleitet. Das gesammelte Licht tritt am anderen Ende der Glasfaser aus, und kann ohne weitere Optik direkt mit einem empfindlichen Detektor (Photomultiplier) gemessen werden.

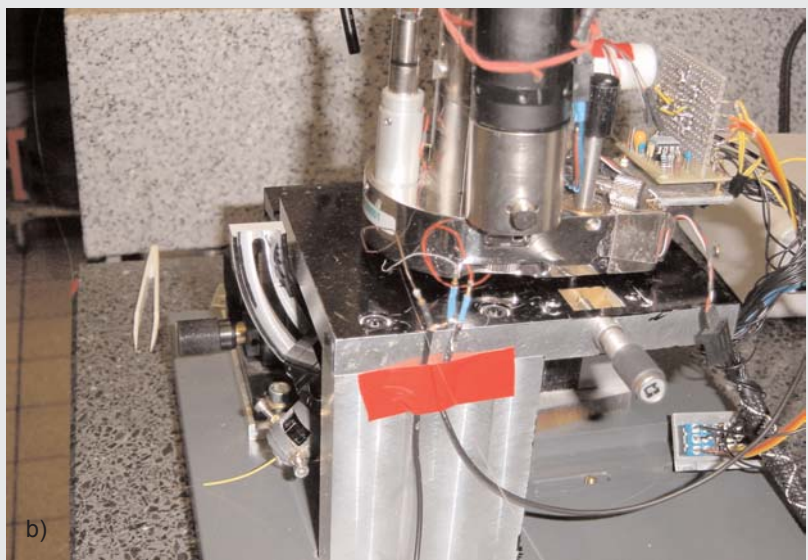
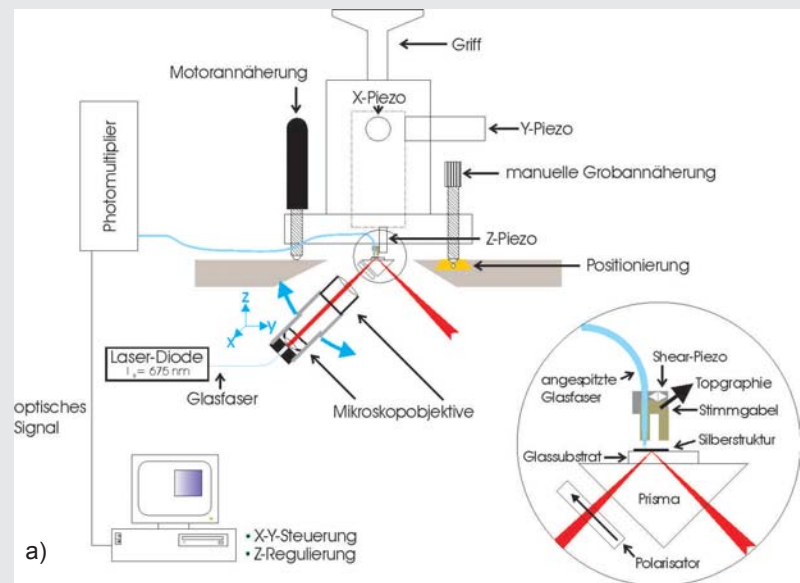


Abb. 3: Aufbau des SNOM zur Aufzeichnung der Plasmonenintensität an Oberflächen und in Strukturen. Schematischer Aufbau (a) mit Vergrößerung zur Verdeutlichung der Konstruktion der Abstandregelung. In (b) ist der reale Aufbau dargestellt.

Die Sonde kann mit Hilfe einer Abstandregelung („Tuning Fork“) [5] in einer Höhe von 10 bis 50 nm über der Probenoberfläche gehalten werden. Die Abstandregelung basiert im wesentlichen darauf, dass oszillierende Bewegungen der Sonde eine Dämpfung erfahren, wenn sich die Spitze in der Nähe der Oberfläche befindet. Wird die Sonde über die Probe gerastert, erhält man simultan ein Bild der Topographie und der dazu gehörigen Intensität der evaneszenten Felder [6].

Der gesamte Messaufbau ist in Abbildung 3 dargestellt. Er besteht aus zwei Einheiten; der unteren - dem Probenstisch mit Prisma und Lasereinkopplung - und der oberen, der Rastereinheit mit der Glasfasersonde. Auf das Prisma wird die Probe, ein auf Glas aufgebracht Silberfilm (strukturiert oder unstrukturiert), mittels Immersionsöl optisch angekoppelt. Mit der Lasereinkopplungseinheit ist es möglich, den Strahl exakt in der Filmebene zu fokussieren und den Fokus beliebig lateral auf den Film zu verschieben. Die Rastereinheit, bestehend aus einem umgebauten kommerziell erhältlichen Rasterkraftmikroskop, lässt sich ihrerseits ebenfalls in Bezug auf Probe und Laserfokus lateral verschieben.

Zwei mit dieser Anordnung aufgezeichnete Intensitätsverteilungen der evaneszenten Felder an einer Probenoberfläche sind in Abbildung 4 dargestellt. Abbildung 4 (a) zeigt die Intensitätsverteilung, wenn der Laser schwach auf eine Glasoberfläche fokussiert ist. Die Form ist elliptisch und ein Schnitt durch die Mitte zeigt ein typisches Gaußprofil mit einer Halbwertsbreite von 10 μm . Wird im Gegensatz dazu der Laserstrahl auf einen Silberfilm fokussiert, ändert sich die Intensitätsverteilung drastisch, was in Abbildung 4 (b) dargestellt ist. In Fortsetzung des eingestrahlichten Lichts [(zum Vergleich Abb. 1 (b))] ist weit entfernt vom Fokuspunkt eine hohe Intensität detektierbar.

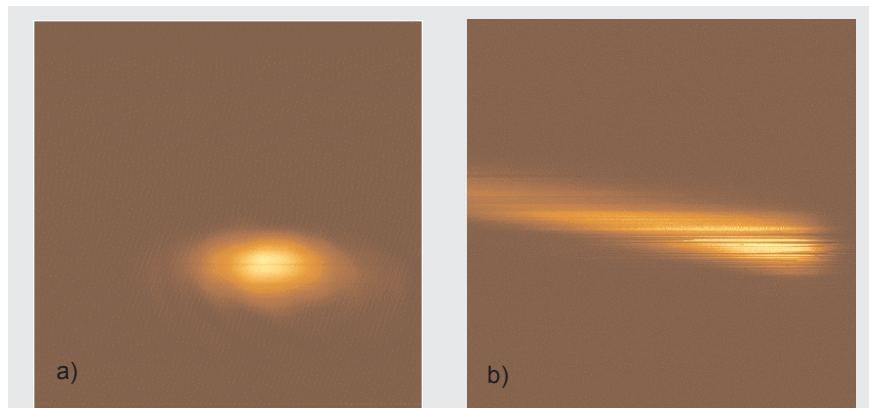


Abb. 4: Intensitätsverteilung oberhalb einer Glasoberfläche (a) und über einem Silberfilm bei Anregung von Oberflächenplasmonen, aufgenommen mit SNOM. Die Bildausschnitte sind jeweils 80 μm x 80 μm groß.

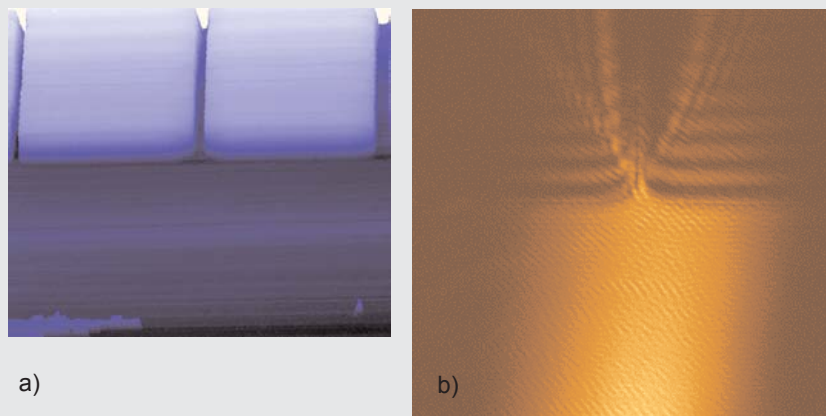


Abb. 5: Verhalten der Plasmonen beim Auftreffen auf Strukturen. Die Topografie (a) zeigt den strukturierten PMMA-Film (helle, erhabene Stellen) auf der Silberoberfläche. Intensität beim Auftreffen der Plasmonen auf den mittleren, 1 μm breiten Graben (b).

Diese Intensität stammt von den Oberflächenplasmonen, die vom Fokuspunkt aus propagieren, was durch das gleichzeitig sichtbare Minimum im reflektierten Strahl bestätigt wird [7]. Die Abklinglänge ist charakteristisch für das System Silber-Luft und beträgt bei der anregenden Laserwellenlänge von 673 nm etwa 80 μm . Licht (zumindest einige Feldkomponenten) kann also in dünnen Metallfilmen tangential zur Filmebene um einen Faktor 1000 weiter propagieren, als es in einen Festkörper

eindringt. Lässt man die Plasmonen in einer Entfernung von mehr als 50 μm vom Fokus auf Strukturen treffen, so trägt dort das die Plasmonen anregende Licht nicht mehr direkt zur Intensitätsverteilung bei. Mit einer solchen Anordnung ist es deshalb möglich, das Verhalten ausschließlich der Plasmonen zu studieren.

Der zur Oberfläche parallele Wellenvektor (Der inverse Wert der Wellenlänge orientiert in Ausbreitungsrichtung) spielt bei der Plasmonenausbreitung eine wesentliche Rolle. Wie schon erwähnt, hängt dessen Betrag von der Dielektrizitätskonstanten des an das Silber angrenzenden Mediums ab, und kann somit leicht durch aufgebraute Schichten geändert werden. Durch Strukturierung dieser Schichten können Gebiete mit unterschiedlichen Ausbreitungsbedingungen für Plasmonen geschaffen werden. Wird eine dünne Schicht eines Polymerfilmes (PMMA),



Prof. Dr. Uwe Hartmann, Studium der Physik und Promotion an der Universität Münster; 1992 Habilitation für Experimentalphysik an der Universität Gießen; seit 1993 Professur für Experimentalphysik an der Universität des Saarlandes.

1998 Gewinner des Philip Morris-Preises. Derzeitige Forschungsschwerpunkte liegen im Bereich der Rastersondenmikroskopie und der Nanotechnologie.



Andreas Englisch, Studium der Physik an der Universität des Saarlandes, 1998 Diplom im Fachbereich Experimentalphysik über Abbilden magnetischer Strukturen mittels Rasternahfeldmikroskopie in AG Professor Dr. Uwe Hartmann.

Anschließend Forschung in einem interdisziplinären Projekt zur Lokalisierung und Extraktion von Genen im Sub-Mikrometer-Bereich. Zur Zeit Promotion zum Thema: Plasmonenausbreitung in Nanostrukturen.

im wesentlichen ein durchsichtiger Kunststoff, aufgebracht, so breiten sich die Plasmonen an der Grenzschicht Silber-PMMA mit kürzeren Wellenlängen gegenüber der Grenzfläche Silber-Luft aus. Durch Elektronenstrahlbelichtung und „Entwicklung“ wird an den Stellen, an denen das PMMA entfernt ist, wieder die ursprüngliche Grenzschicht Silber-Luft hergestellt.

Abbildung 5 zeigt das Verhalten von Plasmonen beim Auftreffen auf einen Übergang eines Gebietes Silber-Luft zu Silber-PMMA [8]. Die Stelle, an denen die Plasmonen angeregt werden, ist außerhalb des Bildes. Der Strahl von Plasmonen trifft, aus dem Gebiet mit der Grenzschicht Silber-Luft kommend, auf das Gebiet mit der Grenzschicht Silber-PMMA. In der simultan aufgenommenen Topographie [Abb. 4 (a)] ist die Anordnung der Gebiete mit und ohne PMMA leicht zu erkennen. In dem Bild der Plasmonenintensität [Abb. 4 (b)] ist im PMMA-freien Gebiet ein zur PMMA-Kante parallel verlaufendes Muster stehender Wellen sichtbar, das auf die Interferenz zwischen einfallendem und von der Kante reflektierten Strahl zurückzuführen ist. Weiterhin zeigt der Graben im PMMA gewisse lichtführende Eigenschaften. Am Grund des Grabens befindet sich die nackte Silberoberfläche. Die langwellige Modulation der Intensität in dem mit PMMA bedeckten Gebiet ist auf Interferenzen zwischen Plasmonen und dem Streulicht von der PMMA-Kante zurückzuführen. Ebenfalls sind Beugungsphänomene von Plasmonen an den Kanten am Anfang des Grabens zu erkennen.

Die zur Zeit bestehenden Bestrebungen zielen darauf ab, entweder die Reflexions- oder die Transmissionseigenschaften eines solchen Übergangs zu optimieren. Optimale Transmissionseigenschaften sind bei Linsen und Prismen nötig, wogegen eine hohe Reflektivität bei Spiegeln und lichtführenden

Elementen Voraussetzung ist. Mit solchen Bausteinen ist es möglich, eine zweidimensionale „Nano-Optik“ aufzubauen.

Anwendungen

Eine sehr nahe liegende anwendungstechnische Bedeutung ist hier im Bereich der Sensorik zu sehen. Die bisher auf SPR (Surface Plasmon Resonanz) basierenden Sensoren messen die durch Anlagerung von Molekülen verursachte Änderung der Wellenlänge der Plasmonen in einem relativ ausgedehnten Gebiet. Die absolute Anzahl von Molekülen, die z.B. zur Bildung einer Monolage notwendig ist, sinkt mit Verkleinerung der Sensorfläche. Werden Plasmonen konzentriert durch kleine Gebiete geleitet, so genügen nur wenige dort angelagerte Moleküle, um das Ausbreitungsverhalten zu ändern.

Die Forschung an plasmonenleitenden Strukturen kann Möglichkeiten bei der Entwicklung neuartiger, wesentlich höher als heute getakteter Prozessoren auf optischer Basis eröffnen. Licht kann mit Frequenzen bis zu einem Tausendstel seiner Eigenfrequenz „ein- und ausgeschaltet“ werden, was eine Erhöhung der Taktfrequenz um einen Faktor Tausend im Vergleich zu den zur Zeit möglichen Frequenzen im Gigahertzbereich bedeutet. Dazu ist es nötig, die Abmessungen des Prozessors wesentlich unter einem Millimeter zu halten, was gerade dem Weg, den die Plasmonen in der Taktzeit zurücklegen, entspricht. Einzelne Strukturen sind daher so klein wie möglich zu konstruieren. Plasmonen können aufgrund ihres longitudinalen Charakters in einzelnen Leiterbahnen aus Silber mit Breiten unter 100 nm propagieren [9]. Bisherige Experimente zeigen aber eine Abklinglänge von unter 10 μm . Die dafür verantwortlichen Verluste insbesondere durch Abstrahlung von Licht und Dämpfung aufgrund des Eindringens des elektrischen Feldes ins Metall

müssen dabei vermindert werden. Spezielle Designs aus aneinander gereihten Metallinseln sowie Doppelstränge können da Auswege bieten [10].

Eine andere Möglichkeit, diese Verluste vollständig zu kompensieren, besteht darin, metallische Strukturen mit „optisch gepumpten“ Medien zu kombinieren. Dabei wird der Effekt der induzierten Emission ausgenutzt, wobei ein Plasmon, während es einen gewissen Weg entlang einer Leiterbahn zurücklegt, ein zusätzliches zweites Plasmon auslöst. Dieses kann die auftretenden Verluste sogar überkompensieren, so dass sich entlang einer Leiterbahn die Intensität der Plasmonen nicht abschwächt, sondern sogar anwächst (Plasmonen-Laser) [11].

Gerade die Entwicklung eines solchen optischen Prozessors zeigt die Notwendigkeit von SNOM-Messungen an Plasmonen in strukturierten Metallfilmen, insbesondere im Hinblick auf einen weiteren Gesichtspunkt. Ein optischer Prozessor beinhaltet neben Leiterbahnen natürlich auch aktive Elemente. Diese in konventionellen Prozessoren aus Transistoren aufgebauten Elemente wie AND- und OR-Gatter bestehen prinzipiell aus Schaltern. Dabei sind das zu schaltende Signal sowie der schaltende Impuls von der selben physikalischen Größe. Zum Beispiel wird in einem gebräuchlichen elektronischen Bauelement mit einer Spannung von einigen Volt eine ebenso große Spannung geschaltet. Dieses Prinzip auf Licht zu übertragen hieße, mit Licht einer bestimmten Frequenz die Intensität von Licht der gleichen Frequenz zu modulieren. Diese Möglichkeit besteht theoretisch mit Plasmonen bei Ausnutzung von nichtlokalen Effekten in den Strukturen. Wie am Anfang beschrieben, ist das Elektronengas mit seinen freien Elektronen Voraussetzung für die Existenz von Plasmonen. Ein Schaltvorgang besteht in einer Änderung der Eigenschaften des Mediums, in dem sich das zu schaltende Signal ausbreitet. Durch diese Änderung wird die Ausbreitung des Signals gestoppt oder weiter unterstützt. Wird nun die Eigenschaft des Elektronengases, z.B. die Elektronendichte, geändert, wird das Ausbreitungsverhalten der Plasmonen beeinflusst.

Nichtlokale Effekte bedeuten, dass durch die Intensität von Feldern, z.B. von Plasmonen, an einer Stelle in der

Struktur die Eigenschaften des Elektrogases an einer anderen Stelle verändert werden. Diese Effekte können daher theoretisch dazu ausgenutzt werden, Plasmonen mit Plasmonen zu schalten. Die Abhängigkeit der lokalen optischen Eigenschaften von der lokalen Ladungsträgerdichte wurde schon an photonischen Kristallen gezeigt [12]. Die Ladungsträgerdichte, in diesem Fall bestehend aus Elektronen und Löchern, wird mit einem zusätzlichen Laser höherer Frequenz moduliert, was sich in einer Änderung der Reflektivität des Kristalls äußert.

Zukünftige Arbeiten

Gerade nicht-lokale Effekte im Allgemeinen sorgen immer wieder für Überraschungen bei der Miniaturisierung bis in den Nanometerbereich. Zum Teil tritt ein völlig neues Verhalten eines Systems auf, das in den miniaturisierten Bausteinen ausgenutzt werden kann. Betrachtet man weiterhin eine Anordnung, die aus vielen Bausteinen zusammengesetzt ist, so können die makroskopischen Materialeigenschaften des Ensembles in weiten Grenzen gestaltet werden. Die Materialeigenschaften des Komposits unterscheiden sich dabei wesentlich von dem Mittel der Materialeigenschaften der Ausgangsstoffe. Dieser Effekt wird schon heute bei der Konstruktion supraleitender Kabel ausgenutzt. Eine Modellierung muss mit einer Entwicklung solcher Systeme einhergehen.

Im Einzelnen sollen zukünftig der dielektrische wie auch der metallische Anteil strukturiert werden. Ein Ziel da-

bei ist erst die Abstrahlungsverluste der Elemente sowie Verluste durch intrinsische Dämpfung im Metall zu minimieren. Es ist dabei an Elemente wie zweidimensionale Linsen, Reflektoren, Interferometer sowie Plasmonenleiter mit Abmessungen unterhalb der Wellenlänge der Plasmonen gedacht. Zur Entwicklung von aktiven Elementen wie Schalter und Plasmonenverstärker bedarf es allerdings einer speziellen Kombination von Materialien sowie modifizierter Untersuchungsmethoden.

Literatur

[1] J. D. Jackson, *Klassische Elektrodynamik*, (de Gruyter, Berlin, 1983)

[2] M. Born und E. Wolf, *Principles of Optics*, (Cambridge University Press, Cambridge, 1999)

[3] H. Raether, *Springer Tracts in Modern Physics*, Vol. 111: *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings*, G. Höhler (Hrsg.), (Springer, Berlin, 1988)

[4] D. Van Labeke und D. Barchiesi, *Theoretical Problems in Scanning Near-Field Optical Microscopy*, in: *Near Field Optics*, D. W. Pohl und D. Courjon (Hrsg.), (Kluwer, Dordrecht, 1993), 157-178

[5] K. Karrai und R. D. Grober, *Piezoelectric tip-sample distance control for near field optical microscopes*, *Appl. Phys. Lett.* 66, 1842 (1995)

[6] E. Betzig, P. L. Finn und J. S. Weiner,

Combined shear force and near-field scanning optical microscopy, *Appl. Phys. Lett.* 60, 2484 (1992)

[7] F. I. Baida, D. Van Labeke und J. Vigoureux, *Near-field plasmon microscopy: A numerical study of plasmon excitation, propagation and edge interaction using a three-dimensional Gaussian beam*, *Phys. Rev. B*, 60, 7812 (1999)

[8] A. Englisch, R. Schön und U. Hartmann, *SNOM Set-up to Study Surface Plasmons on Nanostrukturierten Oberflächen*, in: *Proceedings of the 12th International Conference on Scanning Tunneling Microscopy/Spectroscopy and Related Techniques (STM'03)*, P. M. Koenraad und M. Kemerink (Hrsg.), *AIP Conference Proceedings* 696, (American Institute of Physics, Melville, 2003), 211-216

[9] J. R. Krenn, B. Lamprecht, H. Ditlbacher, G. Schider, M. Salerno, A. Leitner und F. R. Aussenegg, *Non-diffraction-limited light transport by gold nanowires*, *Europhys. Lett.* 60, 663 (2002)

[10] J. R. Krenn und F. R. Aussenegg, *Nanooptik mit metallischen Strukturen*, *Physik Journal* 1, 39 (2002)

[11] A. Tredicucci, C. Gmachl, F. Capasso, A. L. Hutchinson, D. L. Sivco und A. Y. Cho, *Single-mode surface-plasmon laser*, *Appl. Phys. Lett.* 76, 2164 (2000)

[12] A. Forchel, *Photonic Crystals Switching light with light*, *nature materials* 2, 13 (2003)

Anzeige