

Плазмонное усиление линейного двулучепреломления и линейного дихроизма в анизотропных оптических метаматериалах

М. Р. Щербаков¹⁾, П. П. Вабищевич, М. И. Добындэ, Т. В. Долгова, А. С. Сигов[†], Ч. М. Ванг^{* 2)}, Д. П. Тсай^{* 2)},
А. А. Федянин¹⁾

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

[†]Московский государственный институт радиотехники, электроники и автоматики, 117454 Москва, Россия

*Department of Physics, National Taiwan University, 10617 Taipei, Taiwan, R.O.C.

Поступила в редакцию 31 июля 2009 г.

Обнаружено резонансное поведение спектральных зависимостей линейного двулучепреломления и линейного дихроизма в анизотропных оптических метаматериалах, представляющих собой тонкие пленки благородных металлов с полосами или прямоугольными отверстиями, образующими одномерные и двумерные субдлинноволновые решетки. Для собственных линейно поляризованных состояний при нормальном падении разница в эффективном показателе преломления и коэффициенте экстинкции возрастает в спектральной области резонансов локальных и бегущих поверхностных плазмон-поляритонов и достигает значений $\Delta n \simeq 2.5$ и $\Delta \kappa \simeq 2.75$, соответственно.

PACS: 67.70.Qs, 73.20.Mf, 77.22.Ej

Развитие технологий изготовления наноструктур привело к быстрому развитию ряда задач, связанных с исследованием эффектов в оптических метаматериалах. Оптические метаматериалы изготавливаются из объемных сред или тонких пленок с использованием литографических методик путем пространственного структурирования (как правило, периодического) на масштабах десятков нанометров. Это обуславливает появление оптических свойств, новых по сравнению с исходным материалом. Среди явлений, наблюдаемых в оптических метаматериалах, – отрицательный эффективный показатель преломления [1, 2], пространственная локализация в сложных планарных волноводах на основе плазмонных кристаллов [3], а также оптическое разрешение, превышающее дифракционный предел [4, 5]. В качестве основы для метаматериалов обычно используют благородные металлы, а появление новых оптических свойств связывают с возбуждением поверхностных плазмон-поляритонов на границе раздела металла с окружением. Изготовление образцов планарных метаматериалов на основе тонких металлических пленок существенно проще изготовления трехмерных метаматериалов, и в них также обнаружены эффекты, наведенные наноструктурированием. При создании периодического массива суб-

длинноволновых отверстий в металлических пленках толщиной в несколько скин-слоев, которые исходно являются оптически почти полностью непрозрачными, наблюдается эффект “гигантского” оптического пропускания, то есть появление прошедшей электромагнитной волны, обусловленной резонансом коллективных плазмон-поляритонных возбуждений в пленке [6]. Интенсивность такой волны может достигать десятков процентов интенсивности падающей волны.

Наличие анизотропного наноструктурирования – массивов прямоугольных nanoотверстий [7], отверстий в виде эллипса [8] или более сложной формы [9], существенно меняет состояние поляризации излучения, прошедшего или отраженного от таких метаматериалов. Например, обнаружено сильное влияние формы nanoотверстия на спектр пропускания линейно поляризованного света [7, 10]. Значения параметров Стокса прошедшего через анизотропный метаматериал излучения указывают на высокую фазовую задержку, вносимую метаматериалом в одну из линейных собственных поляризационных мод такой структуры [11]. Однако роль локальных и бегущих плазмон-поляритонов в механизме оптической анизотропии метаматериалов до сих пор не была установлена, поскольку для этого необходимы исследования поляризационных преобразований в широком спектральном диапазоне.

В данной работе систематически изучены механизмы резонансного усиления поляризационных эффектов – линейного двулучепреломления и линейно-

¹⁾e-mail: shcherbakov@nanolab.phys.msu.ru,
fedyanin@nanolab.phys.msu.ru

²⁾С. М. Wang, D. P. Tsai.

го дихроизма в видимом оптическом диапазоне – в анизотропных планарных оптических метаматериалах различной геометрии, изготовленных из субмикронных пленок благородных металлов. Определена роль плазмон-поляритонов в поляризационных преобразованиях в анизотропных метаматериалах.

Образцы анизотропных метаматериалов были изготовлены из тонких пленок серебра и золота, термически напыленных на подложку из плавленного кварца. Образец 1 представляет собой серебряную пленку толщиной 150 нм, в которой методом литографии сфокусированным ионным пучком был создан массив сквозных отверстий прямоугольной формы, образующий квадратную решетку с периодом 400 нм (рис.1а). Размеры отверстий в плоскости образца составили

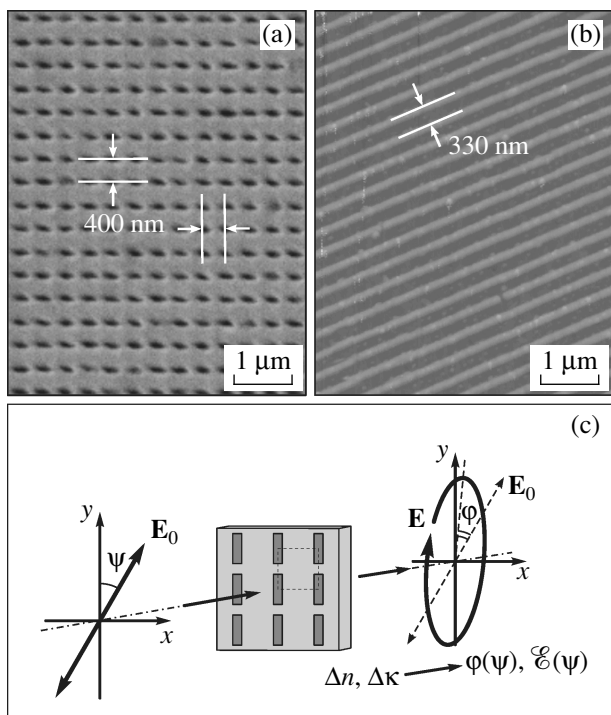


Рис.1. (а) Изображение поверхности серебряного анизотропного метаматериала с прямоугольными отверстиями (образец 1), полученное с помощью растрового электронного микроскопа. Отверстия размером 100×300 нм образуют квадратный массив с периодом 400 нм. (б) Изображение поверхности полоскового метаматериала (образец 2) в атомно-силовом микроскопе. Период – 330 нм, ширина золотых полос – 130 нм. (с) Иллюстрация поляризационных преобразований в анизотропных оптических метаматериалах

100×300 нм, размер области наноструктурирования – 100×100 мкм. Образец 2 представляет собой золотые полосы шириной 130 нм и толщиной 30 нм, изготовленные методом электронно-лучевой литографии

(рис.1б). Период структуры составил 330 нм, ширина полос – 130 нм, размер области наноструктурирования – 30×30 мкм. Оба образца обладают осью симметрии 2-го порядка, перпендикулярной плоскости образца. При прохождении через анизотропный метаматериал линейно поляризованное излучение становится эллиптически поляризованным с отношением полуосей \mathcal{E} . Большая полуось эллипса поворачивается на угол φ относительно направления поляризации падающего света (рис.1с). Подобное преобразование поляризации соответствует анизотропной поглощающей среде с комплексным двулучепреломлением с $\Delta n + i\Delta\kappa$, где Δn и $\Delta\kappa$ – разница показателей преломления и коэффициентов экстинкции для обыкновенной и необыкновенной волн.

Измерение параметров состояния поляризации света проводилось на установке по микроспектроскопии коэффициента пропускания в поляризованном белом свете, обеспечивающей регистрацию сигнала с области размером 30×30 мкм с контролем поворота выходной поляризации и эллиптичности в диапазоне длин волн от 400 до 750 нм с точностью 0.5° .

На рис.2 представлены спектры пропускания образцов анизотропных метаматериалов для различных

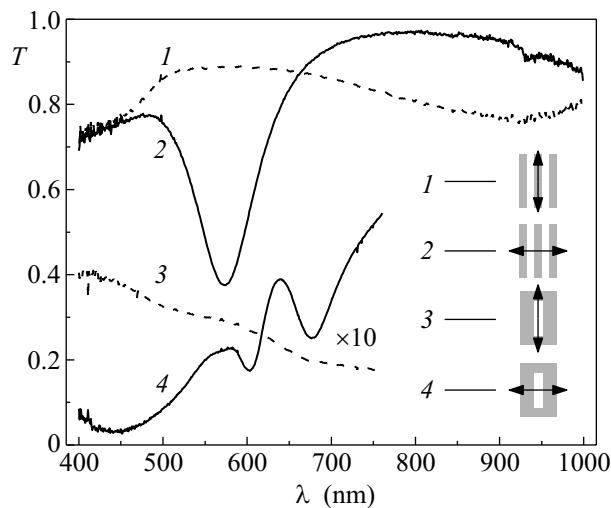


Рис.2. Спектры пропускания линейно поляризованного света образцами анизотропных метаматериалов при нормальном падении. Вставка: иллюстрация геометрии эксперимента. Стрелками указана поляризация падающего излучения

ориентаций поляризации падающего излучения, полученные без анализатора. Спектры 1 и 3, соответствующие поляризации падающего света вдоль полосок и вдоль большой стороны прямоугольных отверстий, соответственно, не содержат резонансных особенностей в видимом и ближнем ИК-диапазонах. В

спектре 2, полученном для поляризации, ортогональной полоскам, наблюдается резонанс: длина волны $\lambda \simeq 585$ нм соответствует минимуму пропускания, ширина резонанса – 80 нм. Отношение коэффициентов пропускания для ортогональных линейных поляризаций на этой длине волны равно 2.4. Спектры 1 и 2 пересекаются при $\lambda \simeq 670$ нм, что указывает на отсутствие линейного дихроизма на этой длине волны. Спектр 4, полученный для ориентации поляризации параллельно меньшей стороне прямоугольных нанотверстий, демонстрирует растущий характер с двумя локальными максимумами пропускания на длинах волн 580 нм и 640 нм. Спектры 3 и 4 пересекаются при $\lambda \simeq 620$ нм, где линейный дихроизм отсутствует.

Оптический отклик образца 2 может быть рассмотрен как зависящий от поляризации света отклик длинных нанотверстий эллиптического сечения. Поляризуемость одиночного цилиндра субдлинноволнового сечения для поляризации, ориентированной вдоль большой оси сечения цилиндра, $\alpha \propto (L(\varepsilon(\lambda) - \varepsilon_0) + \varepsilon_0)^{-1}$, где $\varepsilon(\lambda)$ – диэлектрическая проницаемость материала цилиндра, ε_0 – диэлектрическая проницаемость окружающей цилиндр среды, а L – формфактор, зависящий от геометрических параметров сечения цилиндра [12]. При соотношении осей сечения 30 нм:130 нм $L \simeq 0.19$ и $\alpha \propto (\varepsilon(\lambda) + 4.3 \varepsilon_0)^{-1}$. При $\varepsilon(\lambda) \simeq -4.3 \varepsilon_0$ наблюдается аномальный отклик среды и усиление экстинкции света, связанные с резонансом локальных плазмон-поляритонов. При изменении ε_0 от 1 (воздух) до 2.4 (плавленый кварц подложки) резонансная длина волны изменяется в диапазоне от 520 нм до 660 нм, поэтому кривая 2 на рис.2 обладает максимумом экстинкции в этом диапазоне. При ортогональной поляризации подобный резонанс не наблюдается, поскольку размеры полосы в этом направлении много больше длины волны света и локальные плазмон-поляритоны не возбуждаются.

Обнаруженные особенности в спектре пропускания образца 1 обусловлены возбуждением на его поверхности плазмон-поляритонных мод различной природы. На поверхности металлической пленки, перфорированной субдлинноволновыми отверстиями, возможно возбуждение бегущих плазмон-поляритонов вследствие распространения вдоль поверхности решетки дифрагированного на ней излучения [6]. Длина волны резонансного возбуждения таких мод записывается как

$$\lambda_{(i,j)} = \frac{2\pi}{a_0} \frac{1}{\sqrt{i^2 + j^2}} \sqrt{\frac{\varepsilon \varepsilon_0}{\varepsilon + \varepsilon_0}}, \quad (1)$$

где ε и ε_0 – диэлектрические проницаемости металла и диэлектрического окружения, соответственно, i и j – целые числа, а a_0 – период наноструктурирования [6]. Для серебряной пленки на кварцевой подложке с $a_0 = 400$ нм резонансы с низкими индексами i и j существуют в видимом и УФ-диапазонах при $\lambda_{(1,0)}^q = 525$ нм, $\lambda_{(1,0)}^a = 440$ нм, $\lambda_{(1,1)}^q = 415$ нм и $\lambda_{(1,1)}^a = 365$ нм (индексы q и a соответствуют границам раздела серебро-кварц и серебро-воздух, соответственно). Положения этих резонансов зависят от формы отверстий – при увеличении соотношения сторон они смещаются в длинноволновую область [13]. Связано это с тем, что, помимо мод в плоскости пленки, существуют также плазмон-поляритонные моды, возбуждаемые внутри каждого отверстия, – так называемые локализованные плазмонные моды [14]. При рассеянии плазмон-поляритона на отверстии часть энергии передается таким локализованным плазмонным колебаниям. Существует длина волны отсечки λ_c , выше которой амплитуда основной локализованной плазмон-поляритонной моды экспоненциально спадает в глубь пленки. При увеличении одного из размеров отверстия λ_c смещается в красную область [15]. Для исследованных образцов анизотропных метаматериалов длина волны отсечки для поляризации излучения перпендикулярно большей стороне отверстий лежит в ближней ИК-области и составляет $\lambda_c \simeq 890$ нм. Комбинация эффектов возбуждения бегущих и локализованных плазмон-поляритонов дает следующую картину пропускания: $(1,0)q$ -максимум смещается в ближний ИК-диапазон (не изображен на приведенных спектрах), а остальные максимумы перемещаются в видимую область, формируя полученный спектр. Для ортогональной поляризации излучения $\lambda_c \simeq 390$ нм, что объясняет монотонно спадающий характер спектра коэффициента пропускания.

Для одновременного определения величин двулучепреломления и дихроизма были измерены параметры эллипса поляризации прошедшего излучения в зависимости от азимутального угла ψ : степень эллиптичности поляризации $\mathcal{E}(\psi)$ и угол поворота $\varphi(\psi)$. Характерные зависимости $\varphi(\psi)$ и $\mathcal{E}(\psi)$ для образцов 1 и 2 приведены на рис.3 для длин волн 640 нм и 585 нм, являющихся центральными длинами волн резонансных особенностей в спектрах пропускания для образцов 1 и 2, соответственно.

Степень деполяризации прошедшего излучения была определена для образца 1 при $\lambda = 625$ нм. Перед анализатором была установлена четвертьволновая пластина. Ее положение выбиралось таким образом, чтобы перепад интенсивности света I , выходя-

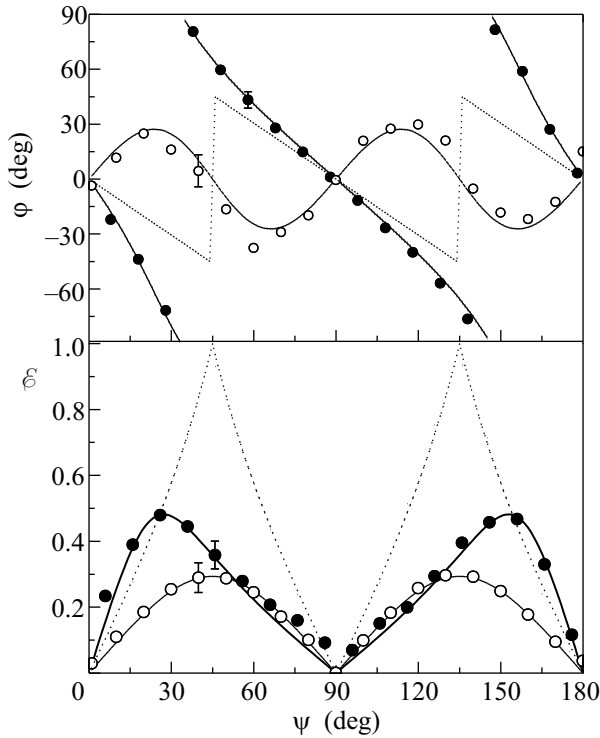


Рис.3. Угол поворота φ большой полуоси эллипса поляризации (вверху) и степень эллиптичности \mathcal{E} (внизу) света, прошедшего через образцы анизотропных оптических метаматериалов, как функции азимутального угла ψ . Результаты приведены для образца 1 для $\lambda = 640$ нм (черные кружки) и образца 2 для $\lambda = 585$ нм (белые кружки). Сплошные линии – аппроксимация экспериментальных данных уравнениями (6) с $\Delta n + i\Delta\kappa = 1.3 + 0.6i$ (соответствуют черным кружкам) и $\Delta n + i\Delta\kappa = 1.4 + 2.7i$ (соответствуют белым кружкам). Пунктирной линией показаны для сравнения модельные графики функций $\varphi(\psi)$ и $\mathcal{E}(\psi)$ для четверть-волновой пластины

щего из анализатора, был максимальным при полном повороте анализатора. Отношение I_{\min}/I_{\max} составило около 0.2 от величины \mathcal{E}^2 для любого ψ . Деполяризация, скорее всего, вызвана высоким значением числовой апертуры освещающей оптической системы, что приводит к наличию в падающем пучке различных пространственных фурье-гармоник, отклик образца на каждую из которых может иметь собственную поляризацию [16].

Зависимости $\mathcal{E}(\psi)$ и $\varphi(\psi)$ показывают, что существуют углы $\psi = 0^\circ, 90^\circ, 180^\circ$, при которых преобразование поляризации отсутствует. Эти направления являются направлениями параллельно и перпендикулярно оптической оси метаматериала. Если ось y совпадает с оптической осью (рис.1с), то нормированный вектор начального состояния поляризации может быть записан как

$$\mathbf{P}_0 = \begin{pmatrix} \sin \psi \\ \cos \psi \end{pmatrix}. \quad (2)$$

Наличие двулучепреломления в среде приводит к фазовой задержке $\Delta\phi$ между компонентами E_x и E_y вектора напряженности электрического поля \mathbf{E} , пропорциональной разнице показателей преломления $n_y - n_x$. Наличие дихроизма в среде приводит к изменению отношения E_x/E_y и характеризуется величиной $\Delta\chi$, пропорциональной разнице коэффициентов экстинкции. Вектор конечного состояния поляризации запишется в виде

$$\mathbf{P} = K \begin{pmatrix} \sin \psi e^{i\Delta\phi - \Delta\chi} \\ \cos \psi \end{pmatrix}, \quad (3)$$

где

$$\Delta\phi = \frac{2\pi d}{\lambda} \Delta n, \quad \Delta\chi = \frac{2\pi d}{\lambda} \Delta\kappa, \quad (4)$$

K – постоянная, которая возникает в связи с поглощением и отражением образцов и не влияет на состояние поляризации, d – толщина метаматериала. На выходе из среды конец вектора \mathbf{E} описывает эллипс, а его модуль подчиняется закону:

$$|E(t)| = \sqrt{E_x^2(t) + E_y^2(t)} = \sqrt{e^{-2\Delta\chi} \sin^2 \psi \cos^2(\Delta\phi + t) + \cos^2 \psi \cos^2 t}. \quad (5)$$

Эллиптичность излучения и поворот плоскости поляризации при этом равны

$$\begin{aligned} \mathcal{E}(\psi) &= \frac{|E_{\min}|}{|E_{\max}|}, \\ \varphi(\psi) &= \arctg \frac{\operatorname{Re} E_x(t_{\max})}{\operatorname{Re} E_y(t_{\max})} - \psi = \\ &= \arctg \left(e^{-\Delta\chi t_{\max}} \frac{\cos(\Delta\phi + t_{\max})}{\cos t_{\max}} \right) - \psi, \end{aligned} \quad (6)$$

где $|E_{\min}|$ и $|E_{\max}|$ – точки минимума и максимума функции (5), а t_{\max} – время, при котором модуль напряженности достигает максимума. Аппроксимация экспериментальных зависимостей $\mathcal{E}(\psi)$ и $\varphi(\psi)$ уравнениями (6) представлена на рис.3 сплошными линиями и позволяет определить величины двулучепреломления и дихроизма на резонансных длинах волн, составившие $\Delta n + i\Delta\kappa = 1.3 + 0.6i$ при $\lambda = 640$ нм для образца 1 и $\Delta n + i\Delta\kappa = 1.4 + 2.7i$ при $\lambda = 585$ нм для образца 2.

На рис.4 показаны полученные зависимости $\Delta n(\lambda)$ и $\Delta\kappa(\lambda)$ для обоих образцов анизотропных метаматериалов. Для образца 2 в области плазмон-поляритонного резонанса при $\lambda \simeq 585$ нм спектр

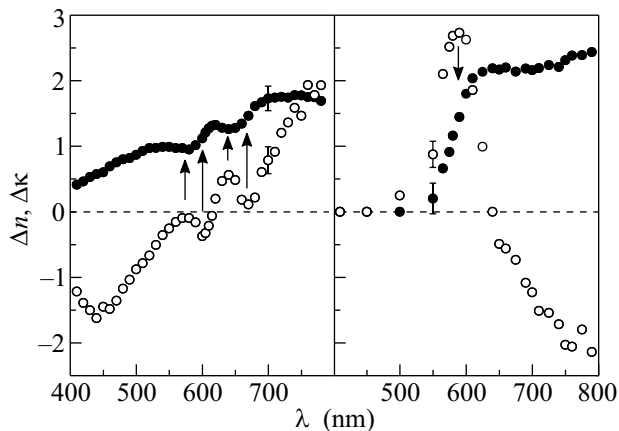


Рис.4. Спектры комплексного линейного двулучепреломления с $\Delta n(\lambda)$ (черные кружки) и $\Delta \kappa(\lambda)$ (белые кружки) для образца 1 (слева) и образца 2 (справа). Стрелками обозначены положения точек максимума и минимума зависимостей $\Delta \kappa(\lambda)$ и соответствующие им положения точек перегиба зависимости $\Delta n(\lambda)$

$\Delta \kappa(\lambda)$ указывает на усиление дихроизма, а график $\Delta n(\lambda)$ – на рост двулучепреломления в области этого резонанса. Максимум зависимости $\Delta \kappa(\lambda)$ приходится на точку перегиба зависимости $\Delta n(\lambda)$. На длине волны $\lambda \simeq 640$ нм, соответствующей пересечению спектров пропускания для образца 2, $\Delta \kappa$ обращается в нуль, а Δn выходит на насыщение и при дальнейшем увеличении длины волны почти не изменяется. При $\lambda \lesssim 520$ нм, где длина пробега плазмон-поляритона меньше длины волны возбуждающего его света, двулучепреломление отсутствует, что указывает на определяющую роль поверхностных плазмон-поляритонов на величину эффекта. Для образца 1 наблюдается аналогичное поведение этих зависимостей – максимумы зависимости $\Delta \kappa(\lambda)$ совпадают с положениями точек перегиба зависимости $\Delta n(\lambda)$.

Значение разницы эффективных показателей преломления достигает величины $\Delta n \simeq 2.5$ в образце 2, что на порядок больше, чем для типичных двулучепреломляющих кристаллов (для кристалла ВВО $\Delta n \simeq 0.12$ в видимом диапазоне). Фазовая задержка, создаваемая метаматериалом с прямоугольными отверстиями, достигает значения 0.7π при $\lambda \simeq 700$ нм, что при толщине пленки 150 нм соответствует величине $\Delta n \simeq 1.65$. Большая фазовая задержка обусловлена малой групповой скоростью поверхностных плазмон-поляритонов в одной из поляризационных мод [17]. Величины фазовых задержек, полученные в серебряном метаматериале, превышают недавно полученные значения в массивах анизотропных наночастиц в 4 раза [18].

В заключение отметим, что обнаружено плазмонное усиление линейного двулучепреломления и линейного дихроизма в анизотропных оптических метаматериалах, изготовленных на основе наноструктурированных пленок серебра и золота. Спектры разниц показателя преломления и коэффициента экстинкции для обыкновенной и необыкновенной волн демонстрируют усиление линейного двулучепреломления и дихроизма в области резонансного возбуждения локальных и бегущих поверхностных плазмон-поляритонов до величин $\Delta n \simeq 2.5$ и $\Delta \kappa \simeq 2.75$, соответственно. Обеспечивая высокие фазовые задержки и разницу в пропускании ортогональных поляризаций на субмикронных толщинах, анизотропные плазмонные метаматериалы являются средами, позволяющими эффективно управлять поляризацией оптического излучения на субдлинноволновых масштабах.

Работа поддержана грантами Российского фонда фундаментальных исследований и Федерального агентства по образованию.

1. В. Г. Веселаго, УФН **10**, 509 (1968).
2. R. A. Shelby, D. R. Smith, and S. Schultz, *Science* **292**, 77 (2001).
3. I. Bozhevolnyi, J. Erland, K. Leosson et al., *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3008 (2001).
4. F. M. Huang and N. I. Zheludev, *Nano Lett.* **9**, 1249 (2009).
5. J. B. Pendry, *Phys. Rev. Lett.* **85** 3966, (2000).
6. T. W. Ebbesen, H. J. Lezec, H. F. Ghaemi et al., *Nature* **391**, 667 (1998).
7. K. J. Klein Koerkamp, S. Enoch, F. B. Segerink et al., *Phys. Rev. Lett.* **92**, 183901 (2004).
8. J. Elliott, I. I. Smolyaninov, N. I. Zheludev et al., *Opt. Lett.* **29**, 1414 (2004).
9. T. Li, H. Liu, S. Wang et al., *Appl. Phys. Lett.* **93**, 021110 (2008).
10. R. Gordon, A. G. Brolo, A. McKinnon et al., *Phys. Rev. Lett.* **92**, 037401 (2004).
11. X.-F. Ren, P. Zhang, G.-P. Guo et al., *Appl. Phys. B* **91**, 601 (2008).
12. H. C. van de Hulst, *Light Scattering by Small Particles* (1981), Dover Publications, Inc.
13. K. L. van der Molen, K. J. Klein Koerkamp, and S. Enoch, *Phys. Rev. B* **72**, 045421 (2005).
14. A. Degiron and T. W. Ebbesen, *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* **7**, S90 (2005).
15. R. Gordon and A. G. Brolo, *Opt. Express* **13**, 1933 (2005).
16. E. Altewischer, C. Genet, M. P. Van Exter et al., *Opt. Lett.* **30**, 90 (2005).
17. V. V. Temnov, U. Woggon, J. Dintinger et al., *Opt. Lett.* **32**, 1235 (2007).
18. J. Sung, M. Sukharev, E. M. Hicks et al., *J. Phys. Chem. C* **112**, 3252 (2008).