

ULTRAKURZZEIT-PHYSIK

Lichtmanipulation in plasmonischen Kristallen

Die Energie ultrakurzer Lichtimpulse kann für Zeiten im Femtosekundenbereich in metallischen Nanostrukturen gespeichert werden. Forscher am Max-Born-Institut in Berlin und an der Seoul National University in Korea haben gezeigt, dass die Speicherzeit ein Vielfaches der Impulsdauer betragen und gezielt verändert werden kann [1].

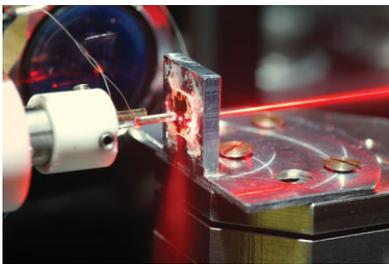


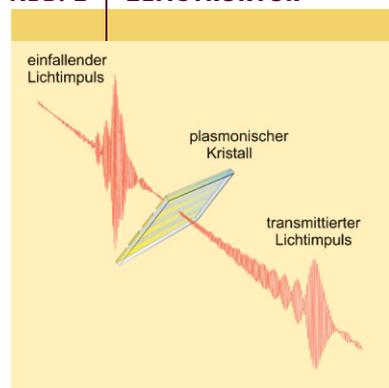
Abb. 1 Plasmonischer Kristall im Nahfeldmikroskop. Der von rechts einfallende Laserstrahl erzeugt Oberflächenplasmonen an der Metalloberfläche (leuchtender Fleck in der Bildmitte), die links mit einer Glasfaser abgebildet werden.

Trifft ein Lichtimpuls auf eine metallische Oberfläche, so kann dieser kollektive Schwingungen der freien Metallelektronen anregen. Die bewegten Elektronen erzeugen ihrerseits oszillierende elektromagnetische Felder an der Metalloberfläche. Dieser Anregungszustand, genannt Oberflächenplasmon, kann entlang der Oberfläche als Welle propagieren.

Interessanterweise kann eine solche plasmonische Welle durch Löcher hindurch auf die andere Seite des Metallfilms wandern, selbst wenn die Öffnungen sehr viel kleiner als die Wellenlänge des erzeugenden Lichts sind [2]. Die Oberflächenwelle regt nun auf der dem Licht abgewandten Seite des Films wiederum eine elektromagnetische Welle an, die an den Löchern ins Fernfeld abgestrahlt wird. Insgesamt führt dies dazu, dass man eine viel höhere Transmission des Lichts durch die Löcher beobachtet als ohne diesen plasmonischen Effekt.

Dieser extrem schnelle Prozess läuft auf einer Femtosekunden-Zeit-

ABB. 2 ZEITSTRUKTUR



Gemessene Zeitstruktur der einfallenden und der durch den plasmonischen Kristall transmittierten Lichtimpulse. Letztere bestehen aus einer schnellen, direkt transmittierten Komponente und einem langsam abklingenden Feld, das die Oberflächenplasmonen abstrahlen.

skala ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) ab. Deshalb war es bisher nicht möglich, seine zeitliche Dynamik direkt zu beobachten. Weiterhin stellte sich die Frage, wovon die Lebensdauer der Oberflächenplasmonen abhängt und ob sie sich gezielt beeinflussen lässt.

Um den zeitlichen Ablauf der Lichttransmission erstmals vermessen zu können, haben wir Lichtimpulse von 11 fs Dauer verwendet, was nur noch vier Oszillationen des elektrischen Feldes entspricht und kürzer als die Lebensdauer der Oberflächenplasmonen ist. Mit diesen Impulsen wurde ein Metallfilm beleuchtet, der eine periodische Anordnung von Schlitzen besaß. In Anlehnung an photonische Kristalle nennt man solche Strukturen plasmonische Kristalle.

Abbildung 2 skizziert den plasmonischen Kristall und die gemessenen

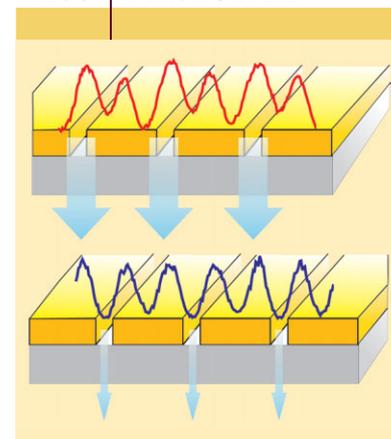
elektrischen Felder des einfallenden (links) und des transmittierten (rechts) Impulses [1]. Der transmittierte Impuls besteht aus zwei Komponenten: einer kurzen Komponente, die eine ähnliche Zeitstruktur wie der Eingangspuls aufweist, sowie einem langen Ausläufer, der auf das langsamere Abklingen des Oberflächenplasmons zurückzuführen ist.

Die Lebensdauer der Oberflächenplasmonen hängt sehr stark vom Einfallswinkel des auftreffenden Lichtimpulses ab und lässt sich experimentell im Bereich von unter 30 fs bis über 200 fs einstellen. Damit ist es möglich, die Anregungsenergie bis zum Zwanzigfachen der Dauer des Eingangspulses zu speichern.

Um die Ursache für diese unerwartet lange Lebensdauer herauszufinden, kann man sich die durch die Elektronen-Oszillationen hervorgerufenen elektromagnetischen Felder an der Metalloberfläche ansehen. Dazu wird in einem Nahfeldmikroskop eine feine Glasfaser an die Oberfläche geführt und damit das Licht am Metall eingesammelt. Rastert man diese Glasfaser über den plasmonischen Kristall und misst an jedem Punkt die Lichtintensität, so erhält man eine Abbildung des Plasmonfeldes (Abbildung 3).

Es stellte sich heraus, dass man bei fast senkrechtem Lichteinfall stehende Oberflächenplasmon-Wellen auf der Oberfläche erzeugt. Abhängig von der Wellenlänge des Lichts ha-

ABB. 3 PLASMONFELD



Mikroskopische Intensitätsverteilungen an der Oberfläche des plasmonischen Kristalls für zwei verschiedene Anregungswellenlängen. Der Abstand der Spalte beträgt etwa 800 nm, was etwa der Wellenlänge des verwendeten Lichts entspricht.

ben diese stehenden Wellen ihre Wellenbäuche an den Orten der Spalte (Abbildung 3 oben) oder gerade dazwischen (unten).

Bei der zweiten Variante oszilliert das Feld, ohne großartig Notiz von den Spalten zu nehmen, an denen es abgestrahlt werden könnte. Dies führt zu einer erheblich längeren Plasmonlebensdauer. Als Analogie stelle man sich eine oszillierende Saite vor, auf die ein Kamm abgesenkt wird. Ist der Kamm so beschaffen, dass seine Zinken genau an den Knoten der stehenden Welle zu liegen kommen, so wird die Saite in ihrer Oszillation wenig behindert, und es kommt nur zu einer geringen Kopp-

lung von Energie in diesen Kamm. Senkt man den Kamm hingegen so ab, dass seine Zinken genau mit den Wellenbäuchen in Berührung kommen, so ist die Dämpfung viel stärker, und die stehende Welle besitzt eine viel kürzere Lebensdauer.

In den beschriebenen Experimenten wurden einige der mikroskopischen Ursachen für die Dynamik von Oberflächenplasmonen in metallischen Nanostrukturen entdeckt. Die Manipulation der Lebensdauer plasmonischer Anregungen könnte einen wichtigen Beitrag für die Entwicklung neuartiger plasmonischer Bauelemente liefern [2], um beispielsweise mikroskopische und ultra-

schnelle optische Schalter oder gar integrierte optische Schaltkreise zu realisieren. Damit wird es in Zukunft möglich sein, Lichtfelder mit bisher unerreichter räumlicher und zeitlicher Genauigkeit zu manipulieren.

Literatur

- [1] C. Ropers et al., Phys. Rev. Lett. **2005**, *94*, 113901.
[2] W. L. Barnes et al., Nature **2003**, *424*, 824.

Eine kleine Computeranimation finden Sie zum Download unter: www.phiu.z.de, unter Zusatzmaterialien zum Heft.

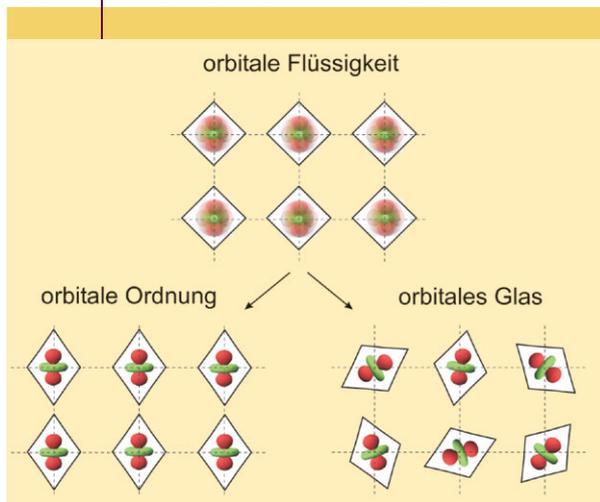
Claus Ropers, Günter Steinmeyer,
Christoph Lienau,
Max-Born-Institut, Berlin

FESTKÖRPERPHYSIK

Orbitale Gläser

Quantenmechanische elektronische Zustände zeigen manchmal wegen einer engen Kopplung an das Gitter alle Signaturen einer glasartigen Erstarrung. Obwohl elektronische Prozesse normalerweise zu den schnellsten Vorgängen in kondensierter Materie gehören, scheint sich die Reorientierungsbewegung elektronischer Orbitale in dem Spinell-Kristall FeCr_2S_4 kontinuierlich über rund 14 Größenordnungen bis in den Zehntelsekunden-Bereich zu verlangsamen. Dies zeigte jüngst unsere Gruppe an der Universität Augsburg [1].

ABB. 1 | ORBITALKONFIGURATIONEN



Schematische Darstellung einer orbitalen Flüssigkeit (oben schnelle Übergänge zwischen verschiedenen Orbital-Konfigurationen), orbitaler Ordnung (links, regelmäßige Ausrichtungen der Orbitale) und eines orbitalen Glases (rechts, statistische Unordnung bezüglich der orbitalen Freiheitsgrade). Die Rauten symbolisieren die Ligandenumgebung, die bei beiden Tieftemperaturzuständen verzerrt ist.

Gläser sind unterkühlte Flüssigkeiten, die beim Abkühlen in einen Zustand ohne langreichweitige Ordnung der Molekülschwerpunkte erstarren. Mit sinkender Temperatur werden dabei alle Diffusions- und Drehbewegungen der Moleküle kontinuierlich langsamer, bis beim Glasübergang der feste Glaszustand erreicht wird. Die Dynamik von Elektronen bleibt dagegen im Allgemeinen unabhängig vom Aggregatzustand der Materie immer sehr schnell, typischerweise im Bereich von Piko- bis Femtosekunden.

Die Aufenthaltswahrscheinlichkeit von Elektronen in der Atomhülle lässt sich bekanntlich quantenmechanisch mit Orbitalen, die Kugel-, Hantel- oder komplexere Formen annehmen können, beschreiben. In dem jüngst von unserer Gruppe untersuchten FeCr_2S_4 , einem Material

mit Spinell-Kristallstruktur, befinden sich die 3d-Orbitale der Fe^{2+} -Ionen im Zentrum eines Tetraeders, umgeben von positiv geladenen Liganden [1]. Bei hohen Temperaturen finden schnelle Übergänge zwischen verschiedenen Orbitalen in der nicht abgeschlossenen 3d-Schale statt. Man spricht von einer orbitalen Flüssigkeit (Abbildung 1, oben).

Beim Absenken der Temperatur beobachtet man nun in vielen Übergangsmetalloxiden einen so genannten Jahn-Teller-Übergang. Hierbei führt eine Verzerrung der Ligandenumgebung zu einer energetischen Bevorzugung gewisser Orbitalorientierungen, und es stellt sich orbitale Ordnung ein. Das heißt unter Aufwendung elastischer Verzerrungsenergie wird die elektronische Energie abgesenkt und die Gesamtenergie erniedrigt (Abbildung 1, unten links).

Durch die Messung von dielektrischem Verlust und spezifischer Wärme konnten wir aber zeigen, dass in FeCr_2S_4 aufgrund starker Frustration (konkurrierender Wechselwirkungen) diese langreichweitige orbitale Ordnung unterdrückt wird. Stattdessen bildet sich ein „orbitales Glas.“

Beim Abkühlen werden in diesem Material die schnellen Fluktuationen zwischen verschiedenen Orbital-Kon-