

ULTRASCHNELLE NANO-OPTIK

ULTRAFAST NANO-OPTICS

PARINDA VASA, CHRISTOPH LIENAU

Seit August 2006 beschäftigt sich eine neue Abteilung am Institut für Physik der Carl von Ossietzky Universität mit experimentellen Forschungsarbeiten auf dem Gebiet der „Ultraschnellen Nano-Optik“. Hierbei handelt es sich um ein hochaktuelles Forschungsfeld, das den meisten Angehörigen der Universität allerdings vermutlich weniger geläufig ist. In diesem Beitrag wird daher erläutert, was „Nano-Optik“ eigentlich ist, wie schnell „ultraschnell“ ist, welche Forschungsfragen auf diesem Gebiet aktuell behandelt werden und wie die Arbeiten in das Oldenburger Forschungsumfeld eingebunden sind.

Since August 2006 a new department at the Institute of Physics of Carl von Ossietzky University has been conducting experimental research in the area of "Ultrafast Nano-Optics". Ultrafast Nano-Optics is a highly topical research area, even though it is probably less known to most of the members of our university. It therefore is the aim of this article to provide some insight into what "Nano-Optics" actually is, what "ultrafast" means, which research topics are of current interest in this field, and how this research fits into the research environment in Oldenburg.

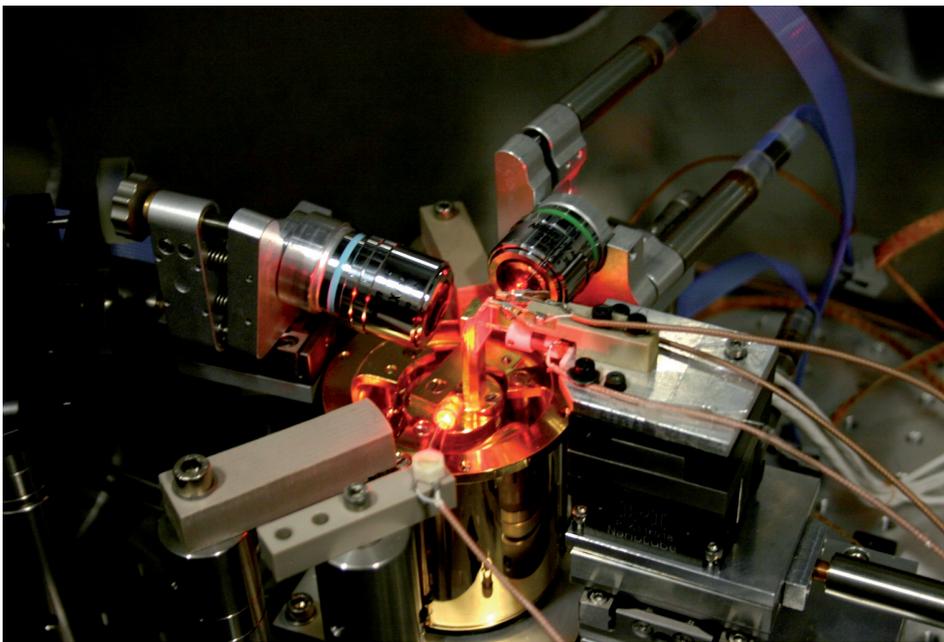


Abb.1: Blick in ein Oldenburger Nahfeld-mikroskop.
Fig 1.: A look into one of the Oldenburg near-field scanning optical microscopes.

Nanostrukturen sind in den letzten Jahren immer wichtiger geworden. Sie haben vielfältigste Anwendungen gefunden, die von Pfannen- oder Fensterbeschichtungen über neuartige Sensoren, neue Computerspeicher, auf Quantenpunkten basierenden Halbleiterlasern bis hin zu neuen Solarzellenstrukturen reichen. Nanostrukturen sind halbleitende, metallische, dielektrische und biologische Materialien mit Abmessungen im Bereich von 1 bis 100 Nanometern. Ein „Nano“-Meter (griech. *vávoς* = Zwerg) ist der Milliardste Teil eines Meters. Damit sind die Abmessungen von Nanostrukturen meist noch kleiner als der Tausendste Teil des Durchmessers eines einzelnen menschlichen Haars. Diese sehr geringen Abmessungen sind ein wesentlicher Grund für die besonderen elektronischen und optischen Eigenschaften von Nanostrukturen: Sperrt man Elektronen in solch kleinen Regionen ein, so verhalten sie sich oft nicht mehr wie klassische Teilchen, sondern vielmehr wie elektronische Wellen. Die Eigenschaften von Nanostrukturen unterliegen damit nicht mehr den Gesetzen der klassischen Physik, sondern oftmals denen

Nanostructures have become increasingly important over the past few years. They have found numerous applications, ranging from frying pans and window coatings to novel sensors, computer memories, quantum-dot-based semiconductor lasers and novel solar cells. Nanostructures are semiconducting, metallic, dielectric and/or biological materials with dimensions in the range from 1 to 100 nanometers. One „nano“-meter (the prefix is derived from the Greek word *vávoς* = dwarf) is one billionth part of a meter. The dimensions of nanostructures are thus typically more than a factor of a thousand smaller than the diameter of a single human hair. These small dimensions play a dominant role for their electrical and optical properties: If electrons are confined to such small regions they often no longer behave as classical particles, but rather like electronic waves. Nanostructure properties are therefore no longer governed by the laws of classical physics, but often by those of quantum mechanics. Chemists and physicists all over the world are therefore striving to reveal the

der Quantenphysik. Besonders Chemiker und Physiker arbeiten daher weltweit fieberhaft daran, die Eigenschaften dieser Materialien nicht nur zu entschlüsseln, sondern sie durch Variation von Größe, Geometrie und Zusammensetzung der Nanostrukturen zu verändern und nach „Maß zu schneiden“, um so Materialien mit neuartiger Funktionalität zu schaffen.

Gerne möchte man einzelne Nanostrukturen „sehen“ können. Der Grund: Gegenwärtig ist es noch sehr kompliziert, viele Nanostrukturen mit exakt identischen Eigenschaften her-

zustellen. Optische Spektroskopiemethoden, die Laser als Werkzeug benutzen, sind hierfür besonders geeignet, da sie eine Vielzahl von sehr detaillierten Informationen über Nanostrukturen liefern können. So gelingt es nur mit Lasern, eine hinreichende Zeitauflösung zu erreichen. Diese ist nötig, um die Bewegung von Elektronen in Nanostrukturen in Echtzeit sichtbar zu machen. Aufgrund der geringen Abmessungen der Nanostrukturen und der hohen Geschwindigkeit, mit der sich Elektronen bewegen, finden solche Elektronenbewegungen meist auf extrem kurzen Zeitskalen von wenigen Femtosekunden statt. Eine Femtosekunde dauert nur 10^{-15} Sekunden, das ist der Milliardstel Teil einer Millionstel Sekunde.

Bei der Nutzung von optischen Messtechniken zum „Sehen“ von Nanostrukturen gibt es jedoch ein fundamentales Problem. Aufgrund von Beugungseffekten ist die räumliche Auflösung, die man mit konventionellen optischen Mikroskopen erreichen kann, auf etwa die Hälfte der Wellenlänge des Lichtes beschränkt. Im sichtbaren Spektralbereich beträgt diese Grenze etwa 500 Nanometer, so dass Objekte mit Abmessungen im Nanometer-Bereich mit „normalen“ Mikroskopen nicht aufgelöst werden können.

Nano-Optik: Hohe Auflösung mit winzigen Lichtflecken

Seit einigen Jahren benutzen Physiker nun elegante Tricks, um diese Auflösungsgrenze zu durchbrechen. Sie versuchen, mit neuen, „nano-optischen“ Techniken extrem kleine Lichtflecken mit Abmessungen von wenigen Nanometern herzustellen und diese zur räumlich hochaufgelösten optischen Spektroskopie einzelner Nanostrukturen zu verwenden. Hierbei werden aktuell zwei unterschiedliche Techniken zur Lichtlokalisierung eingesetzt: Zum einen kann Licht durch kleine Löcher am Ende von hauchdünnen, mit Metall ummantelten Glasfaserspitzen transmittiert werden. Am Ende der Spitze bestimmt dann nicht die Wellenlänge des Lichts, sondern der Durchmesser der Öffnung die Größe des Lichtflecks. Reproduzierbar sind Öffnungen mit etwa 30-50 Nanometer Durchmesser, so dass die maximale Auflösung etwa ein Fünftel der Lichtwellenlänge beträgt. Noch deutlich höhere Auflösungen bis zu etwa 10 Nanometern werden erzielt, wenn ultrafeine Metallspitzen beleuchtet werden. Dabei nutzt man den Umstand, dass das Lichtfeld ganz am Ende der Spitze – ähnlich wie bei einem Blitzableiter – stark überhöht ist.

Um mit solchen Lichtflecken Bilder zu erstellen, werden die Spitzen – ähnlich wie in miniaturisierten Plattenspielern – mit hochpräzisen

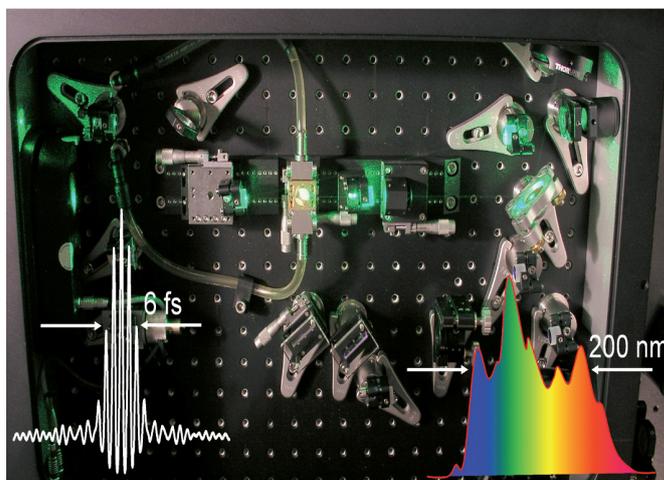


Abb. 2: Aufbau eines modernen Ultrakurzpuls-Lasers. Solch ein Titan-Saphir-Laser erzeugt Lichtblitze mit einer Dauer von weniger als 6 Femtosekunden (links). Das Farbspektrum des Lasers erstreckt sich über mehr als 200 Nanometer (rechts).

Fig. 2. Setup of a modern ultrafast laser. Such a Titanium-Sapphire laser generates flashes of light with duration of less than 6 femtoseconds. The corresponding color spectrum of the laser extends over more than 200 nanometers (right)

properties of such materials and to tailor these properties by varying the size, shape and composition of nanostructures, in an attempt to create materials with novel functionality.

Scientists are very much interested in being able to „see“ individual nanostructures. This is important because it is still challenging to fabricate nanostructures with exactly identical properties. Here, laser-based optical spectroscopy techniques are particularly well suited as they can provide detailed information about nanostructures. Specifically, lasers are the only existing tool which provides sufficient temporal resolution for probing the motion of electrons in real time. Due to the small nanostructure dimensions and the rather large electron speeds, electronic motion occurs on extremely short time scales of just a few femtoseconds. One femtosecond (10^{-15} sec) is one billionth of a millionth part of one second.

A fundamental problem exists, however, in „seeing“ nanostructures by optical means. Due to diffraction, the spatial resolution in conventional optical microscopy is limited to about one half of the wavelength of light. In the visible spectral range this limits the resolution to about 500 nm, making it impossible to resolve nanometer-sized objects using „normal“ microscopy techniques.

Nano-Optics: High resolution with tiny light spots

For the past few years, physicists have been using elegant tricks to break this diffraction barrier. They try, making use of nano-optics techniques, to generate extremely small light spots with dimensions of a few nanometers only, and to apply such spots for high-spatial-resolution optical spectroscopy of individual nanostructures. Specifically, two different approaches are used for localizing light: In one of them, the light is transmitted through a tiny hole at the end of a metal-coated glass taper. At the end of this tip, the size of the generated light spot is no longer given by the wavelength of light, but rather by the aperture diameter itself. Apertures with 30 – 50 nanometers diameter are reproducibly fabricated, allowing one to reach a spatial resolution of about 1/15 of the wavelength of light. Even higher resolution, down to 10 nanometers, is reached by illuminating extremely fine metal tapers. This ultrahigh resolution relies, in some similarity to the lightning rod effect, on the strong enhancement of the optical field at the very end of the taper.

To generate optical images with such nano-localized light spots, the tips are raster-scanned across the surface of the investigated sample.

Stelltechniken mit Sub-Nanometer-Genauigkeit über die Oberfläche der zu untersuchenden Probe gefahren. Punkt für Punkt wird die gewünschte Information aufgezeichnet – zum Beispiel das transmittierte oder reflektierte Licht oder auch die von der Probe abgestrahlte Lumineszenz. Auf diese Weise entsteht in einem optischen Nahfeldmikroskop (Abb. 1) ein räumlich hochaufgelöstes zwei-dimensionales Abbild der optischen Eigenschaften der Probe.

Nano-Optik mit ultrakurzen Lichtimpulsen

Diese nano-optischen Mikroskopieverfahren sind von besonderem Interesse, wenn sie mit ultrakurzen Laserimpulsen verknüpft werden. In modernen Lasern – wie sie in Abb. 2 zu sehen sind – gelingt es inzwischen, Lichtblitze zu erzeugen, deren Impulsdauer nur noch wenige Femtosekunden beträgt. Mit solchen extrem kurzen Lichtimpulsen ist es möglich – zumindest auf indirekte Weise – die Bewegung von Elektronen in Nanomaterialien zu „filmen“. Hierzu wird die Elektronenbewegung durch Beleuchtung der Probe mit einem ersten Laserblitz gestartet. Die Bewegung der Elektronen wird dann nachgewiesen, indem das reflektierte oder transmittierte Licht eines zweiten, um wenige Femtosekunden zeitverzögerten Laserblitzes analysiert wird. Durch Kombination von ultrakurzen Laserimpulsen mit nano-optischen Mikroskopieverfahren gelingt es zur Zeit in ersten Ansätzen, die raumzeitliche Dynamik elektronischer „Wellenpakete“ in Nanostrukturen mit einer zeitlichen Auflösung von wenigen Femtosekunden und einer räumlichen Auflösung von etwa 20 bis 50 Nanometern direkt zu verfolgen. Das hieraus resultierende Forschungsfeld der „ultraschnellen Nano-Optik“ ist noch sehr jung und wird in Deutschland erstmals seit Mitte 2009 im Rahmen eines gleichnamigen nationalen Schwerpunktsprogramms (SPP 1391) von der Deutschen Forschungsgemeinschaft gefördert.

In unserer Arbeitsgruppe arbeiten Wissenschaftler daran, die experimentellen Messmethoden der Nano-Optik weiter zu entwickeln und diese zur Entschlüsselung der Materialeigenschaften und der Funktion neuer Nanomaterialien zu nutzen. Ein aktuelles Beispiel ist in Abb. 3 dargestellt. Durch Kombination von nano-optischen Mikroskopieverfahren mit ultrakurzen Lichtimpulsen kann die Bewegung eines einzelnen Elektrons in einem Halbleiter-Quantenpunkt gezielt gesteuert werden. Dieses Elektron kann sich entweder im energetischen Grundzustand oder in einem angeregten Leitungsband-Zustand befinden. Aufgrund der Welleneigenschaften des Elektrons besteht auch die Möglichkeit, dass sich das Elektron in einem kohärenten quantenmechanischen Überlagerungszustand befindet, z.B. halb im Grund- und halb im angeregten Zustand. Durch den Nachweis von sogenannten Rabi-Oszillationen ist es uns gelungen, zu zeigen, dass man den quantenmechanischen Zustand, in dem sich dieses einzelne Elektron befindet, mit ultrakurzen Lichtimpulsen kontrollieren und somit die Bewegung des Elektrons manipulieren kann. Darüber hinaus konnten wir zeigen, wie dieses einzelne Elektron mit einem Elektron in einem benachbarten Quantenpunkt in Wechsel-

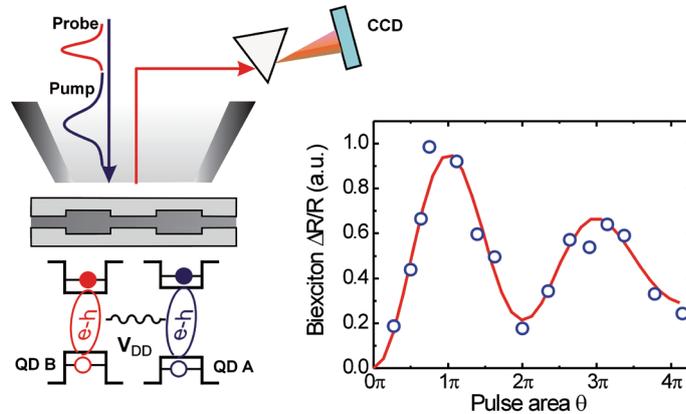


Abb. 3. Optische Nahfeldmikroskopie von zwei gekoppelten Halbleiter-Quantenpunkten. Sogenannte Rabi-Oszillationen (rechts) zeigen, dass es mit ultrakurzen Lichtimpulsen gelingt, die Elektronenbewegung in solchen Quantenstrukturen zu kontrollieren.

Fig. 3. Optical near-field microscopy of two electronically coupled semiconductor quantum dots. So-called Rabi oscillations (right) demonstrate the ability to control the motion of single electrons in such quantum structures by means of ultrashort light pulses.

This works very much in the same way as in miniaturized record players but using positioning techniques with sub-nanometer precision. The desired information, e.g., the transmitted or reflected light or the luminescence emitted by the sample, is recorded point by point. In this manner, highly spatially resolved two-dimensional images of the optical properties of the sample are generated in a near-field scanning optical microscope (Fig. 1).

Nano-optics with ultrafast light pulses

Such nano-optical microscopy techniques are of particular interest when combined with ultrashort light pulses. Modern lasers such as the one shown in Fig. 2 allow one to generate flashes of light of just a few femtoseconds duration. Using such ultrashort light pulses it becomes possible – at least in an indirect fashion – to “film” the electronic motion in nanomaterials. To record such films, the electrons are set into motion by illuminating the sample with a first flash of light. The motion of the electrons is then sensed by analyzing the reflected or transmitted light of a second pulse, time-delayed by a few femtoseconds. Combining ultrafast light pulses and nano-optical microscopy techniques now permits – for the first time – to directly probe the spatio-temporal dynamics of electronic „wavepackets“ in nanostructures with a time resolution of few femtoseconds and a spatial resolution in the 10 nm range. A few months ago, the German Research Foundation (DFG) began funding this emerging new research field of „Ultrafast Nano-Optics“ within a national priority programme (SPP 1391).

In our research group at the Institute of Physics, scientists are working on improving the experimental techniques in nano-optics and on applying such techniques to study the material properties and functionalities of novel nanomaterials. An example of such a study is depicted in Fig. 3. Here, we combine nano-optical microscopy techniques and ultrashort light pulses to control the motion of a single electron in an individual semiconductor quantum dot. This electron can either exist in the electronic ground state or in an excited conduction band state. Due to the wave properties of the electron it can also be prepared in a coherent quantum-mechanical superposition state, existing, e.g., with equal probability in both ground and excited state. By detecting so-called Rabi oscillations we could show that it is possible to control this quantum-mechanical superposition state of a single electron by means of ultrashort light pulses. In these experiments, we could not only manipulate the motion of a single electron but we were also able to probe how this single electron interacts and communicates with another individual electron in a neighbouring quantum dot. Such

wirkung steht. Solche Experimente sind erforderlich, um den Transfer von Energie in Nanostrukturen besser zu verstehen, aber auch um zu lernen, wie quantenmechanische Information von einem „Bit“ eines Festkörper-Quantenspeichers auf ein benachbartes Quanten-Bit übertragen wird.

Aktuell beschäftigen wir uns vor allem mit den optischen Eigenschaften von neuartigen Hybrid-Nanostrukturen, die aus metallischen Nanoteilchen und Halbleiter-Quantenpunkten zusammengesetzt sind. Solche Metall-Halbleiter-Hybridstrukturen sind von ganz besonderem Interesse, da man vermutet, dass sich aus ihnen sehr effiziente neue Nano-Laser bauen lassen. Sie könnten auch genutzt werden, um neuartige Lichtleiter mit Abmessungen zu bauen, die denen elektronischer Leiterbahnen entsprechen, und um Licht in solchen Nano-Leitern sehr schnell zu schalten. Sie könnten daher wichtige Bausteine für künftige optische Computer darstellen, die erheblich schneller arbeiten als klassische Computer. Weiterhin gibt es Hinweise, dass sich aus solchen Hybrid-Nanostrukturen Solarzellen mit sehr hoher Effizienz bauen lassen. Darüber hinaus wenden wir nano-optische Experimentiertechniken an, um neue zeitlich höchst aufgelöste Elektronenmikroskope zu erforschen, die auf der Lichtlokalisierung am Ende von metallischen Spitzen basieren. Zunehmend versuchen wir, nano-optische Techniken zu nutzen, um die Elementarprozesse der Umwandlung von Licht in Strom in organischen und anorganischen Solarzellen zu analysieren.

Die Grundlagenexperimente, mit denen sich die Mitarbeiter unserer Arbeitsgruppe beschäftigen, sind daher nicht nur für die Suche nach experimentellen Realisierungen zukünftiger Quantencomputer relevant, sondern ermöglichen neue und vertiefte Einblicke in die mikroskopischen Mechanismen von Energiewandlungsprozessen in Nanostrukturen. Sie stellen eine thematische Ergänzung und Erweiterung der anwendungsorientierten Oldenburger Energieforschung dar, die z.B. im Forschungsschwerpunkt „Energie- und Halbleiterphysik“, im Studiengang PPRE oder am neuen EWE-Forschungszentrum „NextEnergy“ vorangetrieben wird. Unsere Arbeiten tragen dazu bei, die Zusammenarbeit zwischen grundlagenorientierter Materialforschung (z.B. im Center of Interface Science) und anwendungsorientierter Energieforschung zu stärken und helfen somit, die Energieforschung als zentralen regionalen Forschungsschwerpunkt mit internationaler Sichtbarkeit weiter zu entwickeln.

experiments are important for improving our understanding of energy transfer processes in nanostructures. They also help in learning how quantum-mechanical information is transferred from one „bit“ of a solid-state quantum memory to a neighbouring quantum-bit.

Currently, our group is very much interested in exploring the optical properties of novel hybrid nanostructures composed of metallic nanoparticles and semiconductor quantum dots. Such metal-semiconductor hybrid structures are presently a hot topic. One expects that they are the basis for designing new nano-lasers and that they can be used to guide light in nanometric dimensions as well as for ultrafast switching of nano-localized light pulses. They therefore may turn out to be important building blocks of future optical computers, operating at much higher speed than conventional computers. Moreover, there are some primary indications that such hybrid nanostructures may find applications in future high-efficiency solar cells designs. In addition, our group is employing nano-optical tools for exploring novel concepts

for electron microscopy with ultrahigh time resolution, based on field enhancement at metallic tips (Fig. 1c). We are also increasingly active in using the nano-optical tools developed in our group for elucidating the elementary microscopic processes governing light-to-current-conversion in organic and inorganic photovoltaic devices.

The fundamental research performed in our group is therefore not only of relevance in the development of experimental realizations of future quantum computers: It also provides new and detailed insights into the microscopic mechanisms underlying energy conversion and transfer processes in nanostructures. Hence, it constitutes a fundamental-research extension to the more application-oriented energy research conducted in Oldenburg, e.g., in the university research focus „energy- and semiconductor physics“, the postgraduate programme PPRE or the new EWE research centre „NextEnergy“. We therefore anticipate that our research will contribute to strengthening the interaction and cooperation between the fundamental materials-research carried out at the Center of Interface Science and application-oriented energy research. It will hopefully play a relevant role in the advancement of energy research as a central regional research focus with international visibility.

Die Autoren The authors



Prof. Dr. Christoph Lienau, Hochschullehrer für Experimentalphysik, forscht und lehrt seit 2006 am Institut für Physik. Er promovierte 1992 in Physikalischer Chemie an der Universität Göttingen und arbeitete anschließend als Stipendiat der Deutschen Forschungsgemeinschaft in der Gruppe von Ahmed Zewail am California Institute of Technology in Pasadena. 1995 wechselte er an das neugegründete Max-Born-Institut (Berlin) in den Bereich von Thomas

Elsässer. Hier gründete er eine „Nano-Optik“-Forschungsgruppe und habilitierte sich 2003 an der Humboldt Universität Berlin. Seit 2009 ist er auch Direktor des Instituts für Physik der Universität Oldenburg.

Prof. Dr. Christoph Lienau, Professor for experimental physics, has been working and teaching at the Institute of Physics since autumn 2006. In 1992, he received his Ph.D. in Physical Chemistry in the group of Jürgen Troe in Göttingen and then joined the group of Ahmed Zewail at California Institute of Technology, Pasadena, as a Fellow of the German Research Foundation. In 1995 he moved to Berlin to become a member of the scientific staff of the newly founded Max-Born-Institute in the department of Thomas Elsässer. Here, he initiated a research activity in nano-optics and received his habilitation in 2003 from the Humboldt-University. Since 2009 he is also the Director of the Institute of Physics of the University of Oldenburg.



Dr. Parinda Vasa, Wissenschaftliche Mitarbeiterin, ist seit 2006 am Institut für Physik tätig. Sie promovierte 2006 in Physik am Tata Institute of Fundamental Research in Mumbai, Indien. Sie erhielt Stipendien der Alexander von Humboldt Stiftung und der Schlumberger Foundation, um in der „Ultraschnellen Nano-Optik“ in Oldenburg sowie an der TU Ilmenau (Prof. Erich Runge) zu forschen. Sie untersucht neue plasmonische Metall-Halbleiter-Strukturen

mit Methoden der Nano-Optik und Ultrakurzzeitspektroskopie. 2007 wurde sie mit der Young Scientist Medal der Indian National Science Academy (INSA) ausgezeichnet.

Parinda Vasa joined the Institute of Physics at the University of Oldenburg in autumn 2006. She received a Ph.D. in physics from Tata Institute of Fundamental Research in Mumbai, India, in 2006. In the same year, she received a fellowship from the Alexander von Humboldt Foundation and later in 2008 the 'Faculty for the Future' fellowship from the Schlumberger Foundation to conduct research in the "Ultrafast Nano-Optics" group in Oldenburg and in the theoretical physics group led by Erich Runge at the Technical University of Ilmenau. Here, her research is focused on investigating novel metal - semiconductor plasmonic structures using nano-optics and ultrafast spectroscopy techniques. For her research she was awarded a Young Scientist Medal by the Indian National Science Academy (INSA) in 2007.