

UNIVERSITATEA BABEȘ-BOLYAI CLUJ-NAPOCA
FACULTATEA DE FIZICĂ

**Contribuții la modelarea proprietăților optice
ale unor metamateriale plasmonice**

– Rezumatul Tezei de Doctorat –

Mircea Giloan

Coordonator științific
Prof. Dr. Simion Astilean

CLUJ-NAPOCA

2012

Cuprins

Introducere	1
1. Unde electromagnetice plane în medii omogene izotrope	4
1.1 Ecuațiile Maxwell în medii macroscopice	4
1.2 Ecuațiile de material în medii liniare omogene izotrope	5
1.3 Condițiile pe frontieră la interfața dintre două medii	5
1.4 Unde electromagnetice. Indicele de refracție.....	7
1.5 Viteza de fază și viteza de grup.....	9
1.6 Triedrul $(\vec{E}, \vec{H}, \vec{k})$	10
1.7 Impedanța undei. Impedanța mediului.....	12
1.8 Relațiile de legătură dintre componentele câmpurilor electric și magnetic	12
1.9 Vectorul Poynting. Propagarea energiei undei electromagnetice.....	13
1.10 Refracția undelor electromagnetice la interfața plană dintre două medii	14
Bibliografie	15
2. Modelarea proprietăților electromagnetice ale materiei folosind metamateriale.....	17
2.1 Noțiunea de metamaterial	17
2.2 Clasificarea materialelor în funcție de proprietățile dielectrice și magnetice	18
2.3 Omogenizarea metamaterialelor. Parametrii de material efectivi	19
2.4 Metamateriale cu permitivitate electrică negativă.....	23
2.4.1 Proprietățile optice ale metalelor.....	23
2.4.2 Structuri periodice de fire metalice	24
2.5 Metamateriale cu permeabilitate magnetică negativă.....	27
2.6 Metamateriale cu indice de refracție negativ	31
2.7 Propagarea undelor electromagnetice întrun metamaterial cu indice de refracție negativ	32
2.8 Aplicații ale metamaterialelor.....	34
2.8.1 Lentile de înaltă rezoluție	35
2.8.2 Controlul propagării câmpului electromagnetic.....	37
2.9 Tehnici de fabricare a metamaterialelor	38
2.9.1 Metamateriale cu frecvențe de operare în domeniul microundelor	38
2.9.2 Metamateriale cu frecvențe de operare în domeniul optic.....	39

Bibliografie	41
3. Modele și metode de analiză a metamaterialelor plasmonice	44
3.1 Metamateriale plasmonice	44
3.2 Unde plasmonice la interfața dielectric-metal.....	46
3.2.1 Unde plasmonice la interfața plană dielectric-metal	46
3.2.2 Unde plasmonice de suprafață în sisteme multistrat	52
3.2.3 Unde plasmonice de suprafață la interfețe cilindrice dielectric-metal.....	55
3.3 Modele și metode de calcul a metamaterialelor formate din elemente rezonante .	60
3.3.1 Modelul câmpului mediu.....	60
3.3.2 Modelul dispersiei spațiale pentru metamateriale	64
3.3.3 Metoda parametrilor de împrăștiere.....	67
Bibliografie	71
4. Rezultate experimentale și simulări numerice	74
4.1 Rețele de nanocilindri metalici.....	74
4.1.1 Fabricarea nanocilindrilor de argint.....	74
4.1.2 Analiza experimentală a structurii fabricate.....	75
4.1.3 Verificarea rezultatelor experimentale prin simulări numerice.....	77
4.1.4 Analiza zonelor de amplificare a intensității câmpului electric.....	80
4.1.5 Concluzie.....	85
4.2 Structuri de filme metalice depuse peste straturi de particule coloidale	86
4.2.1 Metode de fabricare	86
4.2.2 Analiza proprietatilor optice. Masuratori experimentale și simulări numerice	86
4.2.3 Moduri plasmonice	88
4.2.4 Concluzie.....	90
Bibliografie	91
5. Metamateriale plasmonice rezonante.....	94
5.1. Moduri plasmonice în metamateriale	94
5.1.1 Moduri plasmonice dipolare	94
5.1.2 Moduri plasmonice hibridizate în metamateriale.....	97
5.1.3 Analogie mecanică și electrică a efectului de hibridizare a modurilor plasmonice	99
5.2 Rezultate teoretice.....	100
5.2.1 Determinarea parametrilor de material prin metoda directă.....	100

5.2.2 Metamateriale plasmonice formate din nanoprisme triunghiulare în rețea hexagonală	102
5.2.3 Metamateriale plasmonice formate din două straturi suprapuse de nanoprisme triunghiulare regulate în rețea hexagonală	111
5.2.4 Metamateriale plasmonice formate din două straturi decalate de nanoprisme triunghiulare regulate în rețea hexagonală	121
5.2.5 Concluzie.....	128
5.3 Metamaterial cu indice de refracție negativ independent de polarizare	129
5.3.1 Structura nanoelementelor componente ale metamaterialelor studiate	129
5.3.2 Inversarea modurilor plasmonice hibridizate simetric și antisimetric	130
5.3.3 Parametrii efectivi ai metamaterialelor studiate.....	133
5.3.4 Concluzie.....	135
Bibliografie	136
6. Concluzii generale și perspective	140
Anexa A. Metoda numerică a diferentelor finite în domeniul temporal (FDTD)	144
Anexa B. Descrierea aplicației Lumerical FDTD Solutions	148
B.1 Definirea structurii geometrice și a materialelor.....	148
B.2 Zona de simulare și durata simulării.....	149
B.3 Surse de radiații electromagnetice	150
B.4 Definirea punctelor de înregistrare a componentelor câmpului electromagnetic.....	151
B.5 Utilizarea rețelelor de discretizare auxiliare.....	151
B.6 Limbajul auxiliar: Lumerical Scripting Language	152
Bibliografie	153

Cuvinte cheie: metamateriale, indice de refracție negativ, plasmoni, hibridizare, amplificarea câmpului apropiat, transmisie optică intensificată.

Introducere

Metamaterialele sunt materiale compozite artificiale constituite din micro- și nano-structuri cu o geometrie bine definită dispuse într-o rețea periodică, care prezintă proprietăți electromagnetice extraordinare neîntâlnite în mod obișnuit în natură. Întrucât cuvântul grecesc ‘meta’ se poate traduce prin ‘dincolo de’ termenul de metamateriale extinde termenul clasic de material. Datorită acestei noi clase de materiale capitole clasice ale fizicii precum electromagnetismul și optica s-au îmbogățit cu noi descoperiri. În 1968 Victor Veselago a investigat teoretic un material a cărui permitivitate electrică și permeabilitate magnetică erau simultan negative [1]. În acest studiu au fost prezise un număr de fenomene neobișnuite precum refracția negativă, corespunzătoare unui indice de refracție negativ, sau propagarea inversă a undelor. După o perioadă de mai bine de 30 de ani de stagnare, datorită lipsei verificărilor experimentale materialele cu indice de refracție negativ (NIM) au atras din nou atenția comunității științifice odată cu descoperirea unui material cu permitivitate negativă de către Sir Pendry în 1996 [2], urmată de descoperirea permitivității negative în 1999 de către Sir Pendry et al. [3], și de prima realizare experimentală a unui material cu indice de refracție negativ de către Smith et al. în 2001 [4]. Materialele cu indice de refracție negativ au făcut posibilă realizarea de superlentile care permit obținerea de imagini cu o rezoluție superioare limitei impuse de fenomenul de difracție [5]. Tehnologia metamaterialelor deschide noi posibilități în ceea ce privește controlul propagării undelor electromagnetice prin realizarea de materiale cu un profil spațial predefinit al permitivității electrice și al permeabilității magnetice [6]. Proiectarea unor metamateriale cu indice de refracție dependent de poziție folosind teoria transformărilor optice [7] conduce spre aplicații cum ar fi invizibilitatea optică sau iluzii optice. În acesta teză am analizat proprietățile optice a patru tipuri de metamateriale formate din elemente metalice incluse într-o matrice dielectrică. Două dintre aceste structuri prezintă indice de refracție negativ în domeniul vizibil respectiv infraroșu apropiat.

1. Unde electromagnetice plane în medii omogene izotrope

În acest capitol introductiv sunt prezentate principalele noțiuni legate de propagarea undelor electromagnetice în medii omogene izotrope. Un rol important în descrierea interacțiunii radiației electromagnetice cu materia îl au parametrii de material permitivitatea electrică și permeabilitatea magnetică. Propagarea undelor electromagnetice într-un mediu precum și fenomenul de refracție la interfața dintre două medii sunt descrise în termeni generali luând în

calcul orice valori posibile pentru parametrii de material atât pozitive cât și negative. Indicele de refracție este definit prin relația $n = \sqrt{\epsilon_r} \sqrt{\mu_r}$ astfel n este pozitiv pentru ϵ_r și μ_r pozitivi și negativ pentru ϵ_r and μ_r negativi.

1.6 Triedrul $(\vec{E}, \vec{H}, \vec{k})$

Întrun material cu indice de refracție negativ vectorii \vec{E} , \vec{H} and \vec{k} formeaza un triedru orientat după regula mâinii stângi. (fig. 1.1).

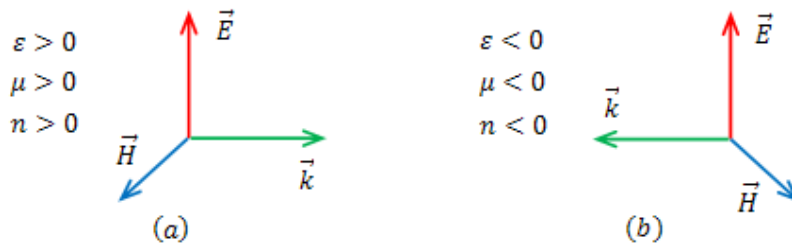


Figura 1.1 (a) Triedrul $(\vec{E}, \vec{H}, \vec{k})$ întrun material cu indice de refracție pozitiv (PIM); (b) triedrul $(\vec{E}, \vec{H}, \vec{k})$ întrun material cu indice de refracție negativ (NIM).

1.10 Refracția undelor electromagnetice la interfața plană dintre două medii

Întrun material cu indice de refracție negativ viteza de fază are sens contrar sensului de propagare a energiei transportate de undă. La interfața dintre două medii cu indice de refracție pozitiv respectiv negativ apare un fenomen de refracție negativă. (fig. 1.2).

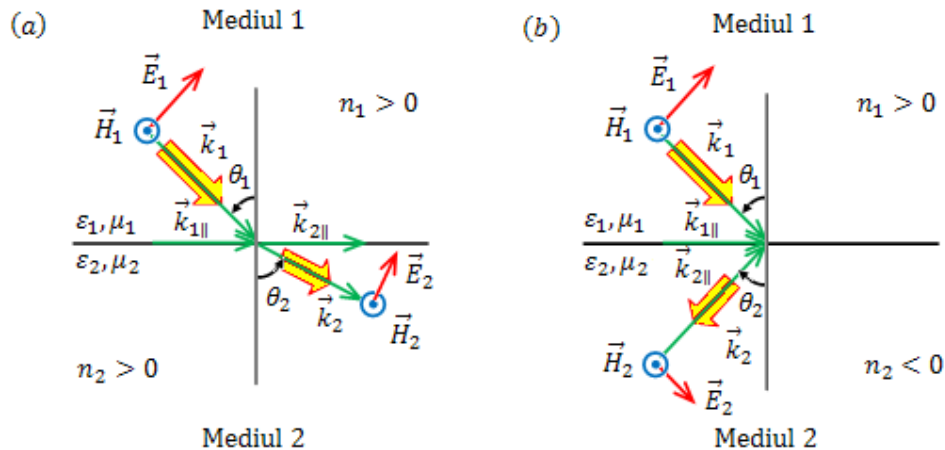


Figura 1.2 Refracția luminii la o interfață PIM – PIM (a) și la o interfață PIM – NIM (b).

2. Modelarea proprietăților electromagnetice ale materiei folosind metamateriale

Proprietățile electromagnetice ale unui material sunt caracterizate prin permitivitatea electrică și permeabilitatea magnetică. Metamaterialele sunt o clasă nouă de materiale artificiale compozite, care permit modelarea răspunsului electric și magnetic al materialului prin modificarea geometriei elementelor constituente. Tehnici avansate de nano-fabricare au făcut posibilă realizarea de materiale cu permeabilitate magnetică negativă și indice de refracție negativ în domeniul optic. Proiectarea de metamateriale pentru care permitivitatea electrică și permeabilitatea magnetică au valori diferite în funcție de poziție conduce la controlul propagării câmpului electromagnetic în respectivul material oferind posibilitatea obținerii unui efect de invizibilitate pentru o regiune fixă din cadrul materialului. Metamaterialele cu indice de refracție negativ pot fi folosite la realizarea unor super-lentile ce permit obținerea unor imagini cu rezoluție superioară limitei impuse de fenomenul de difracție.

3. Modele și metode de analiză a metamaterialelor plasmonice

Metamaterialele se pot împarti în două categorii: metamateriale alcătuite din elemente rezonante [8, 9] și metamateriale bazate pe unde plasmonice de suprafață [10, 11]. Proprietățile electromagnetice ale metamaterialelor formate din ghiduri de undă plasmonice sunt determinate de modurile plasmonice corespunzătoare acestor ghiduri. Modurile plasmonice pentru interfețe dielectric-metal cu diferite geometrii sunt determinate rezolvând ecuațiile Maxwell și impunând condițiile de continuitate la interfață pentru componentele câmpului electromagnetic [12]. Modelul dispersiei spațiale descrie relația dintre răspunsul local, la nivelul celulei elementare, și răspunsul macroscopic al metamaterialului [13]. Metoda parametrilor de împrăștiere permite determinarea parametrilor efectivi ai unui metamaterial când se cunosc coeficienții de transmisie și reflexie [14].

4. Rezultate experimentale și simulări numerice

În acest capitol sunt prezentate rezultatele investigațiilor experimentale și teoretice efectuate asupra a două materiale nanostructurate compuse din elemente dielectrice și metalice.

4.1 Rețele de nanocilindri metalici

Folosind metoda de micro-fabricare bazată pe fenomenul de foto-reducere a ionilor pozitivi de argint prin absorbția a doi fotoni, am fabricat rețele de nano-cilindri de argint. Ca sursă de

fotoni pentru procesul de foto-reducere am folosit un laser Nd-YAG având lungimea de undă a radiației de 1064 nm. Ioni pozitivi de argint au fost obținuți prin dizolvarea unei cantități de azotat de argint (AgNO_3) într-o soluție de poly 4-styrenulfonic acid (PSS) [15, 16]. Nanocilindri de argint fabricați au un diametru aproximativ de 200 nm și o lungime de aproximativ 5 μm și sunt incluși în matricea de polimer PSS, material cu proprietăți dielectrice, având un indice de refracție de 1.4. Cilindrii sunt orientați vertical, paraleli între ei și dispuși într-o rețea periodică pătratică, având constanta rețelei $a=800$ nm.

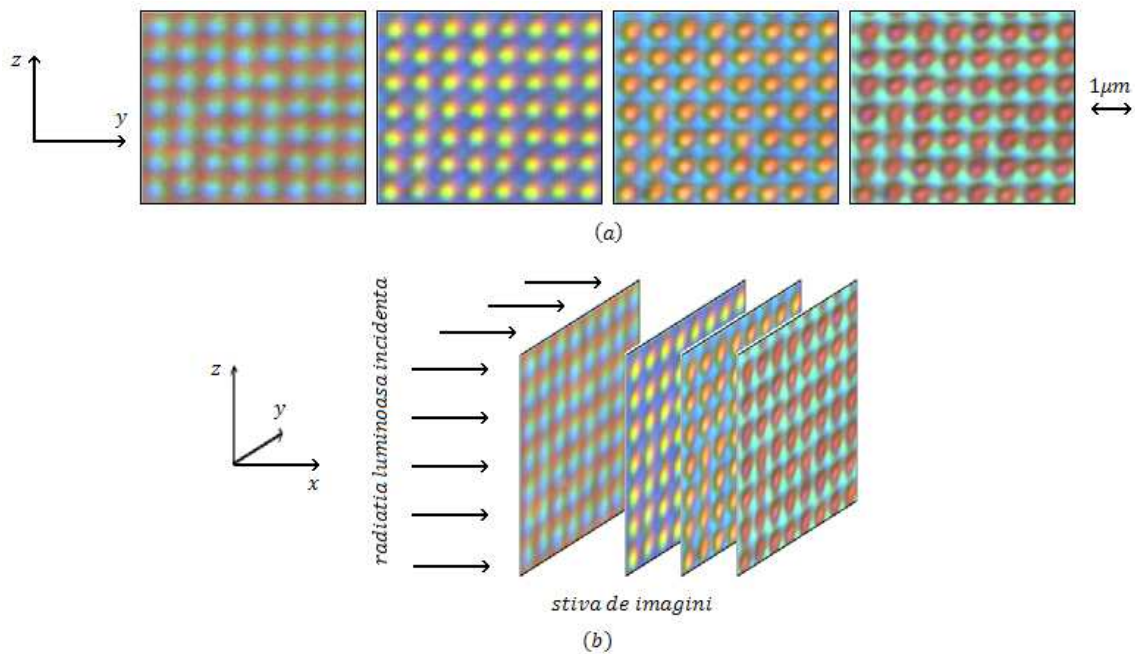


Figura 4.1 (a) Imagini realizate în diferite poziții de-a lungul axelor cilindrilor. (b) Stiva de imagini aranjate în succesiunea corespunzătoare sensului de propagare a luminii incidente.

Propagarea luminii prin structura tridimensională de nano-cilindri de argint a fost caracterizată folosind tehnica microscopiei de transmisie de câmp larg cu un obiectiv având apertură numerică $NA=1.4$. Propagarea luminii prin această structură de-a lungul axelor cilindrilor a fost analizată cu ajutorul unei camere CCD și a unui spectrometru. Imaginile captate în planul YOZ pentru diferite poziții de-a lungul axei OX (fig. 4.1(a)) au fost aranjate, în ordine succesivă corespunzătoare sensului de propagare a luminii, într-o stivă de imagini (fig. 4.1(b)) care ulterior a fost analizată cu ajutorul unor plane de secțiune paralele cu axele cilindrilor. Secțiunile transversale prin stiva de imagini rezultată ne oferă informații cu privire la distribuția intensității luminoase, pentru lungimi de undă din domeniul vizibil, în interiorul structurii în apropierea axei cilindrilor și între cilindri (fig. 4.2).

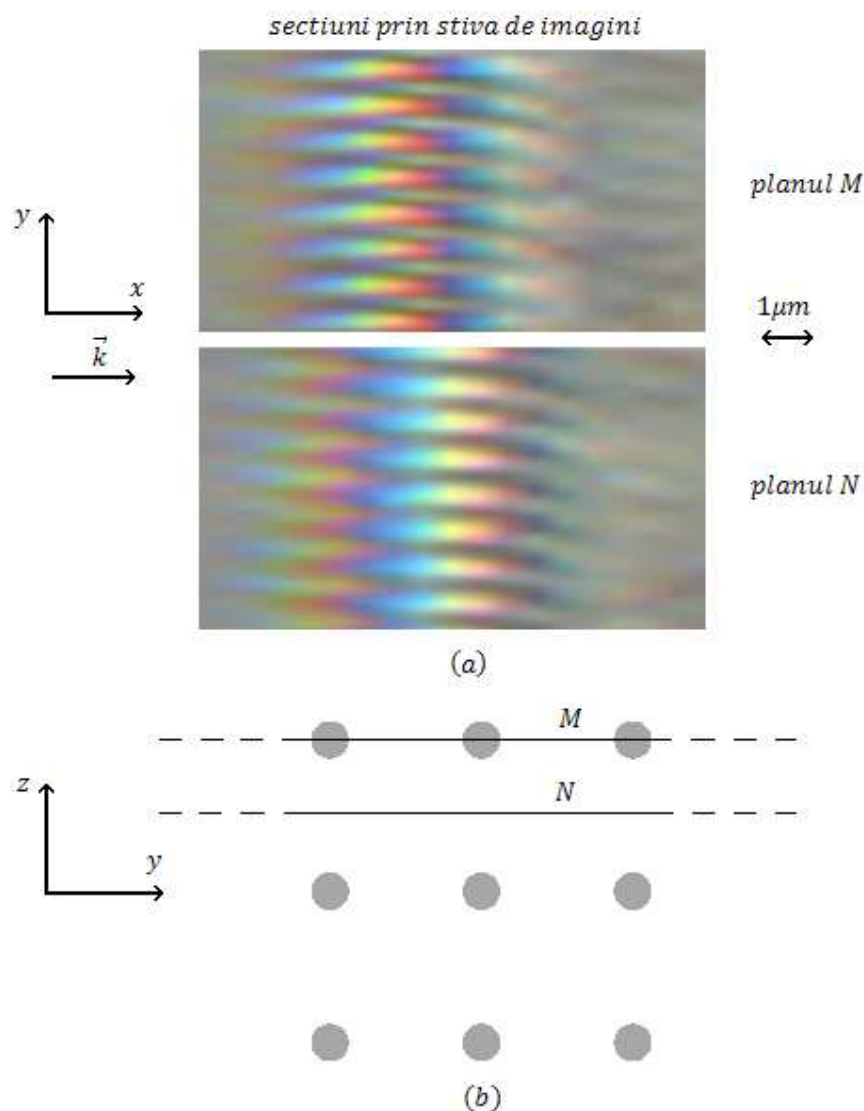


Figura 4.2 (a) Distribuția intensității luminoase în două plane M (sus) și N (jos) care secționează stiva de imagini. **(b)** Poziția relativă a planelor de secțiune M și N față de cilindri din rețeaua pătratică.

Distribuția câmpului electromagnetic în interiorul structurii a fost calculată cu ajutorul unui algoritm de tipul diferențelor finite în domeniul temporal (FDTD). În cazul unei structuri alcătuite din cilindri cu lungimea de $5 \mu\text{m}$ rezultatele obținute din simulări pun în evidență prezența a două zone de amplificare a intensității câmpului electromagnetic în vecinătatea suprafeței cilindrilor pentru lungimi de undă cuprinse în intervalul $600 - 700 \text{ nm}$. În cazul unor cilindri cu lungimea de $3 \mu\text{m}$, pentru aceleași lungimi de undă, avem o singură zonă de amplificare a câmpului electromagnetic în vecinătatea suprafeței cilindrilor. Figura 4.3 prezintă variația volumului (V), din apropierea suprafeței unui cilindru, în funcție de

amplificarea minimă a câmpului din interiorul său ($\Gamma = \mathbf{E} \cdot \mathbf{E}^* / \mathbf{E}_0 \cdot \mathbf{E}_0^*$) pentru o lungime de undă eglă cu 600 nm. Întrucât amplificarea câmpului în prima zonă din cazul cilindrilor cu lungimea de 5 μm este identică cu amplificarea câmpului din cazul cilindrilor cu lungimea de 3 μm putem spune că amplificarea câmpului apropiat nu depinde de lungimea cilindrilor [17].

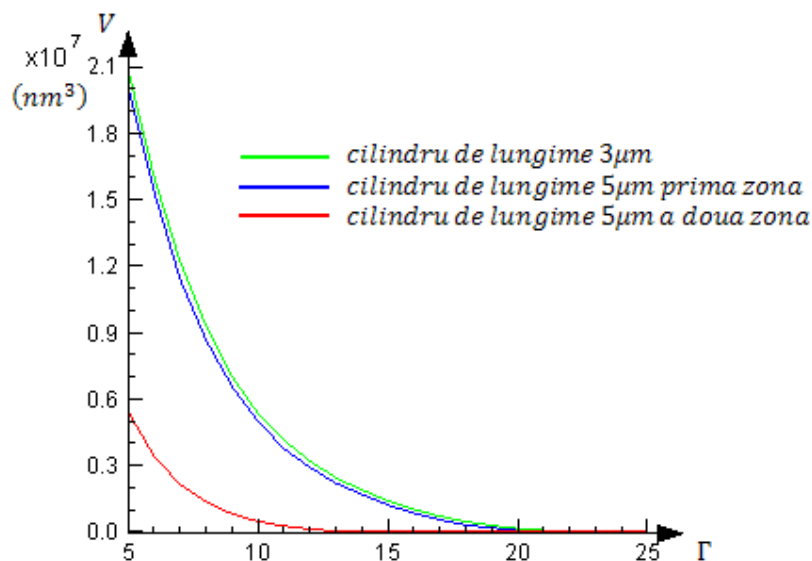


Figura 4.3 Volumul zonei de amplificare în funcție de valoarea minimă a amplificării câmpului electromagnetic pentru lungimea de undă a radiației incidente $\lambda = 600 \text{ nm}$.

4.2 Structuri de filme metalice depuse peste straturi de particule coloidale

Fabricarea structurilor de filme metalice subțiri depuse peste cristale coloidale s-a realizat în două etape. Prima etapă a fabricării constă în realizarea de cristale coloidale bidimensionale formate din sfere de polistiren (Polysciences) cu diametrul de 450 nm. Pentru realizarea cristalului coloidal s-a folosit metoda acoperirii prin picurare (drop-coating), metoda ce se bazează pe autoasamblarea sferelor coloidale de polistiren rezultând o rețea hexagonală împachetată [18]. A doua etapă a fabricării constă în depunerea peste cristalul coloidal a unui film metalic de argint în grosime de aproximativ 50 nm, prin tehnica evaporării termice în vid. Grosimea stratului metalic depus a fost monitorizată cu ajutorul unei microbalanțe.

Pentru caracterizarea proprietăților optice ale structurii rezultate au fost măsurate spectrele de transmisie și reflexie cu ajutorul unui spectrometru Jasco V-530 folosind lumină nepolarizată. Aria zonei iluminate de radiația incidentă a fost limitată la aproximativ 2 mm² folosind o diafragmă circulară. De asemenea am realizat simulări numerice folosind un algoritm tridimensional de tipul diferențelor finite în domeniul temporal (Finite Differences Time

Domain, FDTD) [19]. Figura 4.4 prezintă spectrele experimentale și simulate de transmisie (T), reflexie (R), și absorbție ($A=1-T-R$) pentru structura fabricată la incidență normală. Radiația luminoasă este incidentă dinspre stratul subțire de argint și emergentă prin substratul de sticlă.

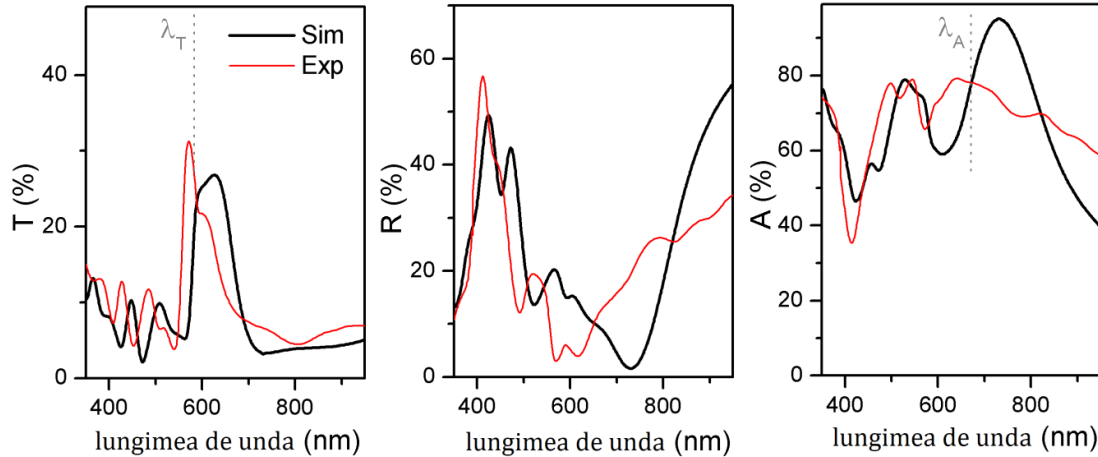


Figura 4.4 Spectrele de transmisie, reflexie și absorbție experimentale (linia roșie subțire) și simulate (linia neagră îngroșată), pentru structura rezultată în urma depunerii unui film subțire de argint peste sfere de polistiren, $\lambda_T = 580 \text{ nm}$, $\lambda_A = 670 \text{ nm}$.

Simulările numerice confirmă măsurătorile experimentale care arată că o absorbție puternică este prezentă la lungimi de undă mai mari decât lungimile de undă corespunzătoare maximului transmisiei, ceea ce diferă față de fenomenul obișnuit de transmisie optică intensificată (Enhanced Optical Transmission, EOT) vizibil în cazul filmelor subțiri cu perforații regulate de dimensiuni nanometrice [20, 21]. Pentru a explica spectrele de transmisie și absorbție am analizat distribuțiile componente câmpului electric paralele cu direcția de propagare a radiației incidente (E_x), în vecinătatea filmului de argint depus peste sfere, pentru lungimile de undă corespunzătoare valorilor maxime ale transmisiei (λ_T) și absorbției (λ_A). Figura 4.5 prezintă partea reală a componente intensității câmpului electric E_x pentru lungimile de undă $\lambda_T = 580 \text{ nm}$ and $\lambda_A = 670 \text{ nm}$. Analizând distribuțiile de câmp putem identifica două moduri plasmonice unul simetric corespunzător lungimii de undă $\lambda_A = 670 \text{ nm}$ și altul anti-simetric corespunzător lungimii de undă $\lambda_T = 580 \text{ nm}$ [22, 23]. Figura 4.6 prezintă distribuțiile sarcinilor electrice pe suprafața stratului de argint depus peste sferele de polistiren pentru cele două moduri plasmonice hibridizate [24].

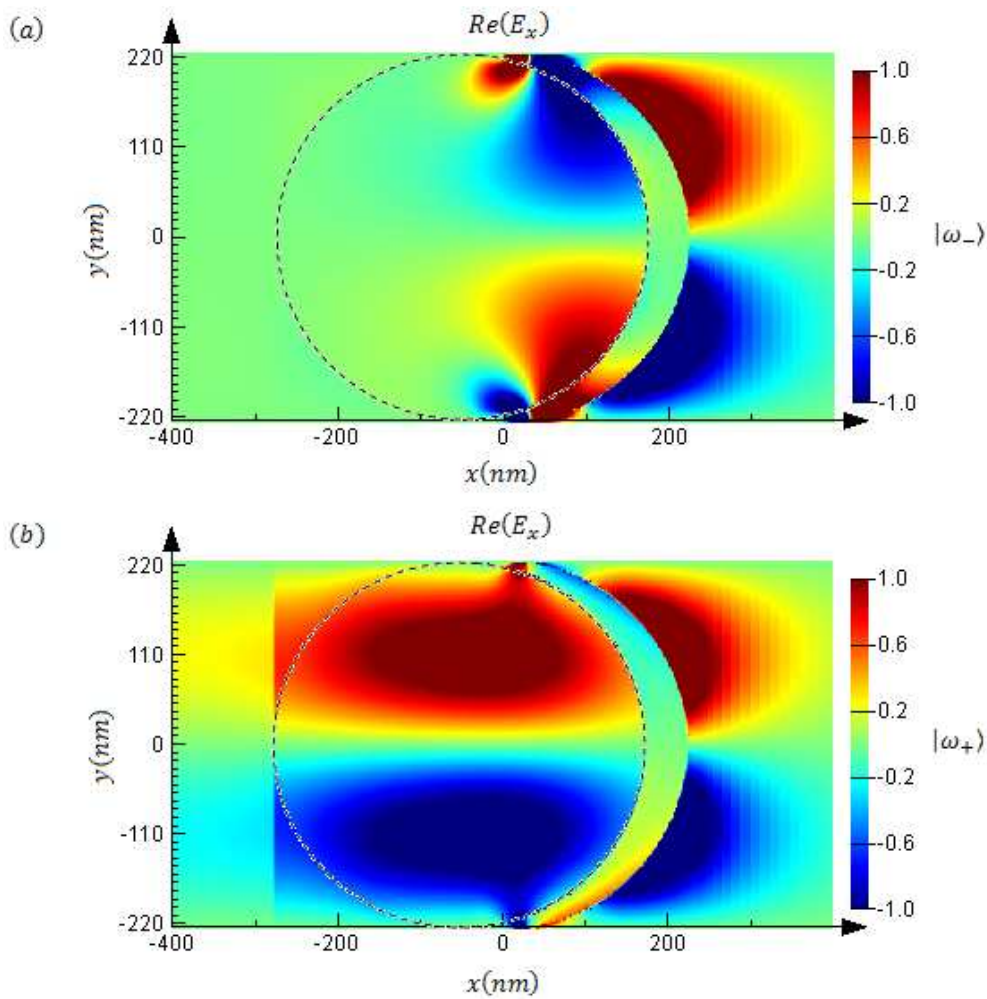


Figura 4.5 Distribuțiile normate ale părții reale a componentei E_x pentru $\lambda_A = 670 \text{ nm}$ (a) și $\lambda_T = 580 \text{ nm}$ (b) corespund modurilor plasmonice simetric $|\omega_{-}\rangle$ respectiv anti-simetric $|\omega_{+}\rangle$. Radiația incidentă este polarizată paralel cu axa OY.

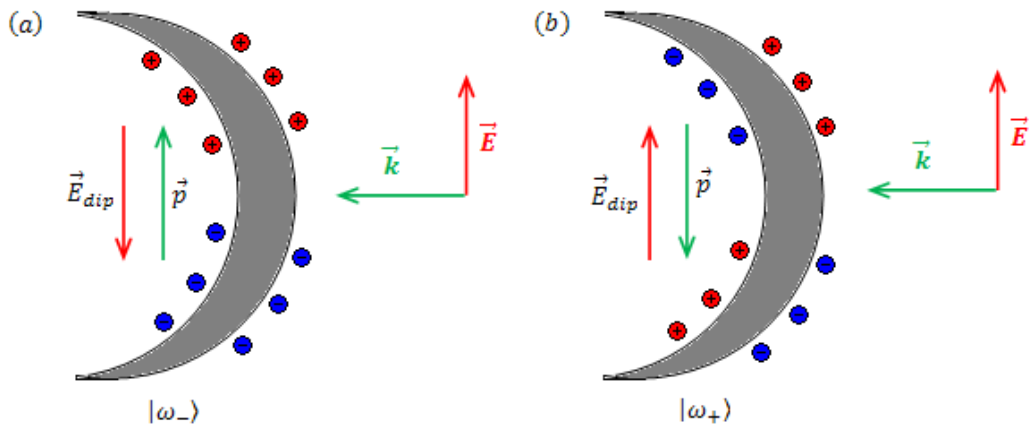


Figura 4.6 Distribuția sarcinilor electrice pe suprafața filmului de argint în cazul modurilor plasmonice simetric $|\omega_{-}\rangle$ (a) și anti-simetric $|\omega_{+}\rangle$ (b).

5. Metamateriale plasmonice rezonante

În acest capitol sunt prezentate rezultatele originale ale unor studii teoretice asupra a două tipuri de metamateriale constituite din nanoelemente plasmonice rezonante care prezintă indice de refracție negativ în domeniul vizibil respectiv infraroșu apropiat.

5.2.2 Metamateriale plasmonice formate din nanoprisme triunghiulare în rețea hexagonală

În această secțiune am prezentat rezultatele studiilor teoretice asupra proprietăților electromagnetice ale unui metamaterial format dintr-un strat de nanoprisme triunghiulare din aur dispuse într-o rețea hexagonală. O astfel de structură poate fi realizată experimental folosind tehnica litografiei cu sfere auto-asamblate (Self-assembly Sphere Lithography, SSL) [25].

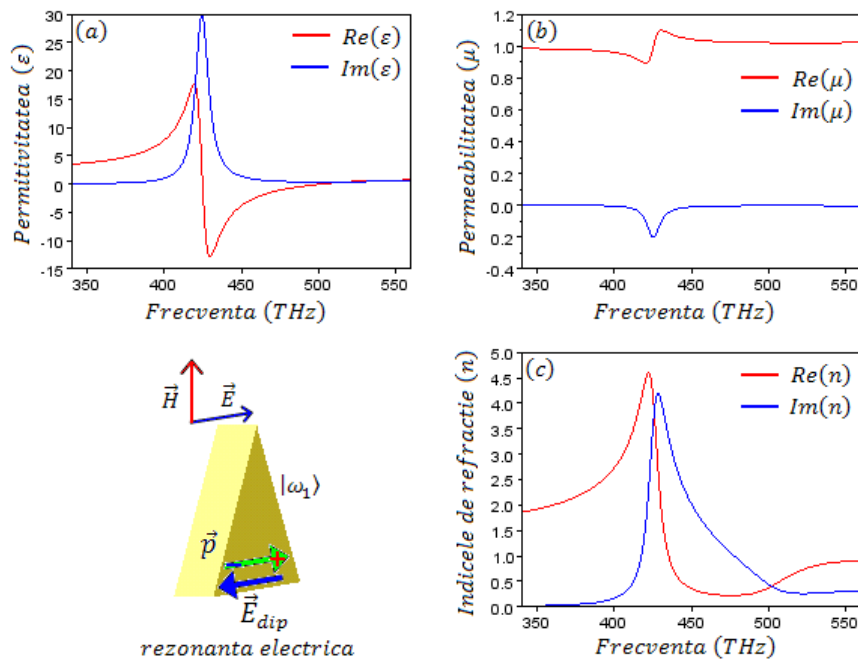


Figura 5.1 Parametrii de material: permitivitatea (a), permeabilitatea (b), și indicele de refracție (c). Polarizarea radiației incidente este paralelă cu una dintre laturile bazelor nanoprismelor.

Pentru dimensiuni ale bazelor nanoprismelor și constantei rețelei hexagonale situate în domeniul sutelor de nanometri reflexia și transmisia acestei structuri prezintă un răspuns în domeniul optic determinat de rezonanțele plasmonice ale nanoparticulelor constituente. Dimensiunile geometrice ale structurilor considerate în simulările numerice au fost următoarele: constanta rețelei hexagonale $a=450$ nm, lungimea laturilor bazelor prismelor

$L=165$ nm și grosimea prismelor $h=30$ nm. Pentru determinarea parametrilor de material am folosit metoda parametrilor de împrăștiere (S-parameter). Partea reală și imaginară a permitivității electrice relative, a permeabilității magnetice relative și a indicelui de refracție sunt prezentate în figura 5.1. Graficul permitivității relative evidențiază prezența unei rezonanțe electrice în jurul frecvenței de 426 THz.

5.2.3 Metamateriale plasmonice formate din două straturi suprapuse de nanoprisme triunghiulare regulate în rețea hexagonală

Pentru a obține un metamaterial magnetic activ, am adăugat un strat de nanoprisme identic cu primul. Distanța dintre cele două straturi ce alcătuiesc metamaterialul este $s=30$ nm.

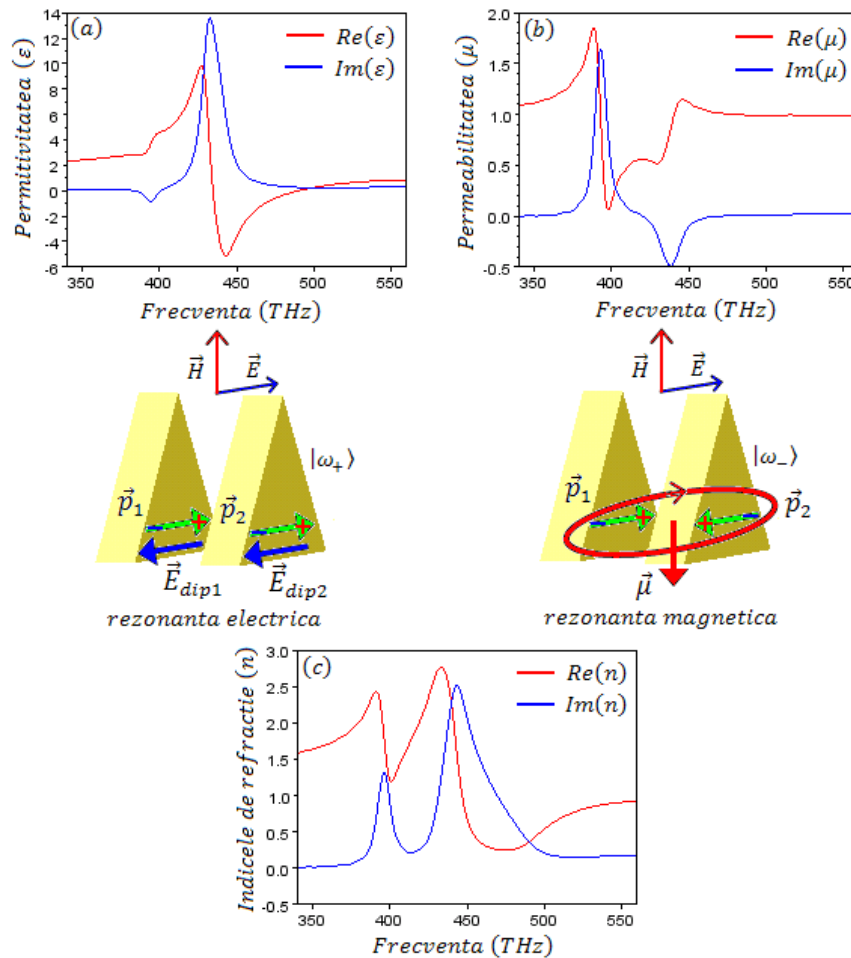


Figura 5.2 Parametrii de material: permitivitatea (a), permeabilitatea (b), și indicele de refracție (c).

Parametrii de material calculați: permitivitatea, permeabilitatea, și indicele de refracție sunt prezentați în figura 5.2. Metamaterialul analizat format din două straturi de prisme

echilaterale perfect suprapuse dispuse într-o rețea hexagonală prezintă atât o rezonanță electrică în jurul frecvenței $f_+=442$ THz cât și o rezonanță magnetică în jurul frecvenței $f_-=397$ THz, frecvențe ce corespund modurilor plasmonice hibridizate simetric respectiv antisimetric. Rezonanța magnetică conduce la valori apropiate de zero ale părții reale a permeabilității magnetice efective în timp ce rezonanța electrică conduce la valori negative ale părții reale a permitivității electrice.

5.2.4 Metamateriale plasmonice formate din două straturi decalate de nanoprisme triunghiulare regulate în rețea hexagonală

Pentru a obține un metamaterial cu indice de refracție negativ am introdus un decalaj între cele două straturi, translatând al doilea strat în raport cu primul pe direcția polarizării câmpului electric.

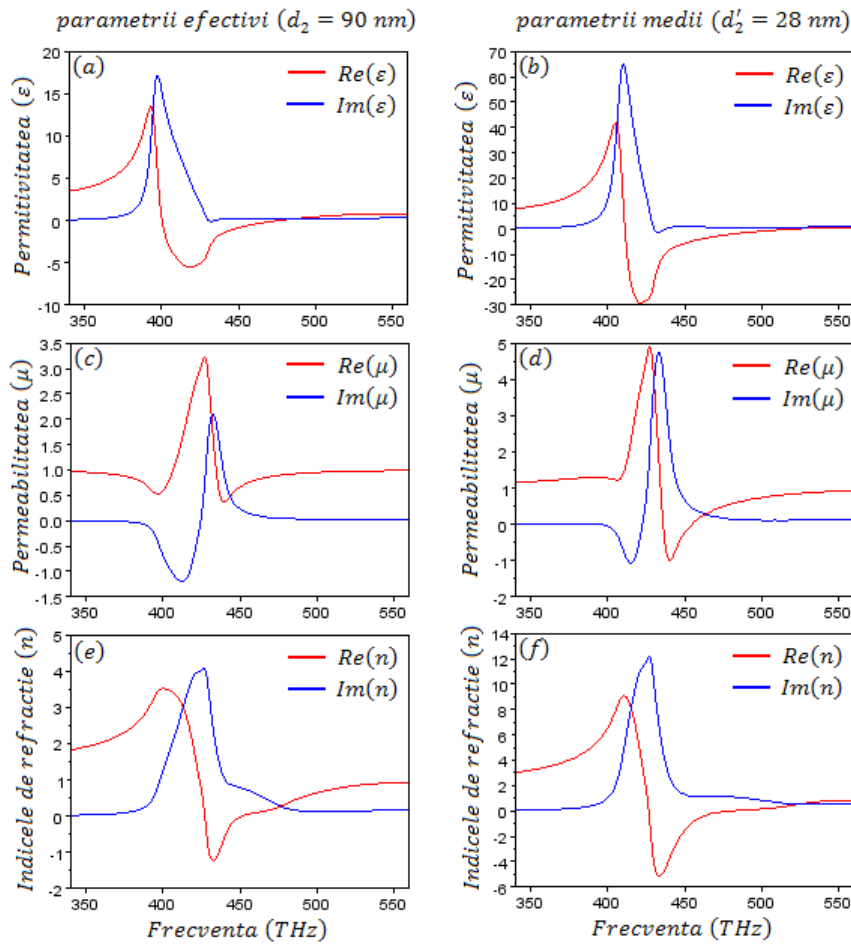


Figura 5.3 Parametrii de material efectivi: permitivitatea (a), permeabilitatea (c), și indicele de refracție (e). Parametrii de material medii: permitivitatea (b), permeabilitatea (d), și indicele de refracție (f).

Pentru o deplasare între straturi suficient de mare $d_y=120$ nm, frecvențele de rezonanță ale celor două moduri plasmonice hibridizate sunt ușor inversate, astfel că modul simetric are o frecvență de rezonanță mai mică față de frecvența de rezonanță a modului antisimetric, ca urmare se obține un indice de refracție negativ în domeniul vizibil al frecvențelor optice între 430 și 450 THz. Figura 5.3 prezintă parametrii de material efectivi pentru un metamaterial cu grosimea $d_2=90$ nm și parametrii de material medii pentru o grosime $d_2'=28$ nm.

5.3 Metamaterial cu indice de refracție negativ independent de polarizare

Pentru a obține un metamaterial cu indice de refracție negativ independent de polarizare am studiat o nouă clasă de metamateriale alcătuite din unu respectiv două straturi de nano-elemente cu simetrie C_3 (simetrie la rotație cu 120°) dispuse într-o rețea hexagonală. Am determinat parametrii de material pentru două polarizări reciproc perpendiculare folosind metoda parametrilor de imprastiere (S-parameter). În timp ce rezonanța plasmonică dipolară, a nano-elementelor constitutive, conduce la valori negative ale permitivității electrice în cazul unui metamaterial format dintr-un singur strat de nano-elemente, inversarea modurilor plasmonice hibridizate, conduce la valori negative ale indicelui de refracție în domeniul infraroșu apropiat (158-172 THz) în cazul unui metamaterial format din două straturi de nano-elemente reciproc asimetrice.

5.3.1 Structura nanoelementelor componente ale metamaterialelor studiate

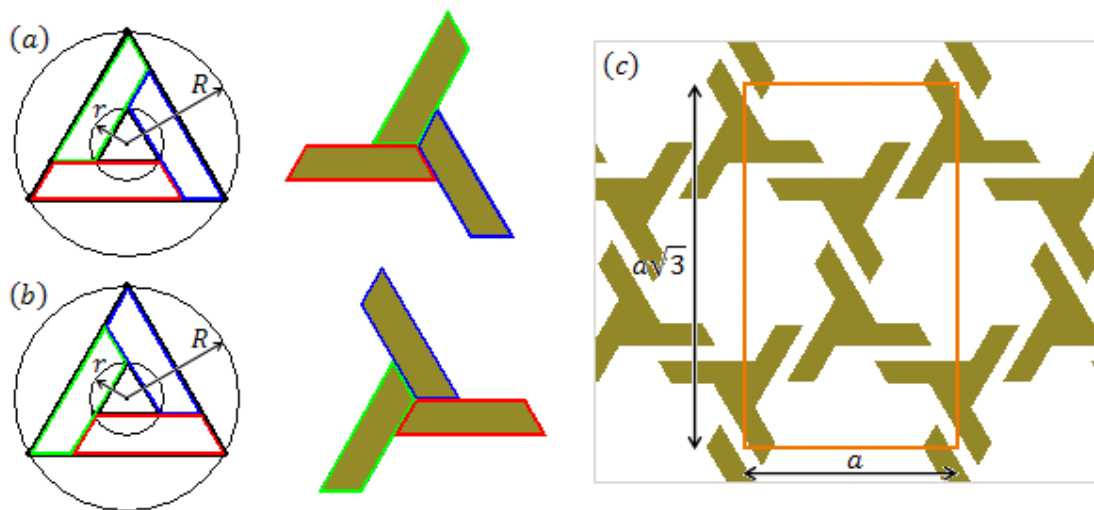


Figura 5.4 Elementele plasmonice rezonante asimetrice (a) și (b). Structura celulei elementare folosită în simulările numerice (c).

Aria dintre laturile a două triunghiuri echilaterale cu laturile respectiv paralele fi descompusă în trei trapeze isoscele, în doua moduri, asa cum se arată în figurile 5.4(a) și (b). Translatand cele trei trapeze astfel încat vârfurile comune trapezelor și triunghiului interior să se suprapună cu punctul central al triunghiurilor, obținem pentru cele două configurații, două structuri asimetrice (fig. 5.4(a) și (b)). Dimensiunile geometrice ale “meta-atomilor” rezultați sunt determinate de dimensiunile razelor cercurilor circumscrise triunghiului exterior și interior, $R=150$ nm respectiv $r=50$ nm.

5.3.2 Inversarea modurilor plasmonice hibridizate simetric și antisimetric

Figura 5.5 prezintă spectrele de transmisie pentru metamaterialul format dintrun singur strat (albastru), metamaterialul format din două straturi de elemente simetrice (verde), și metamaterialul format din două straturi ce conțin elemente asimetrice (roșu). Inversarea modurilor plasmonice hibridizate apare în cazul metamaterialului asimetric.

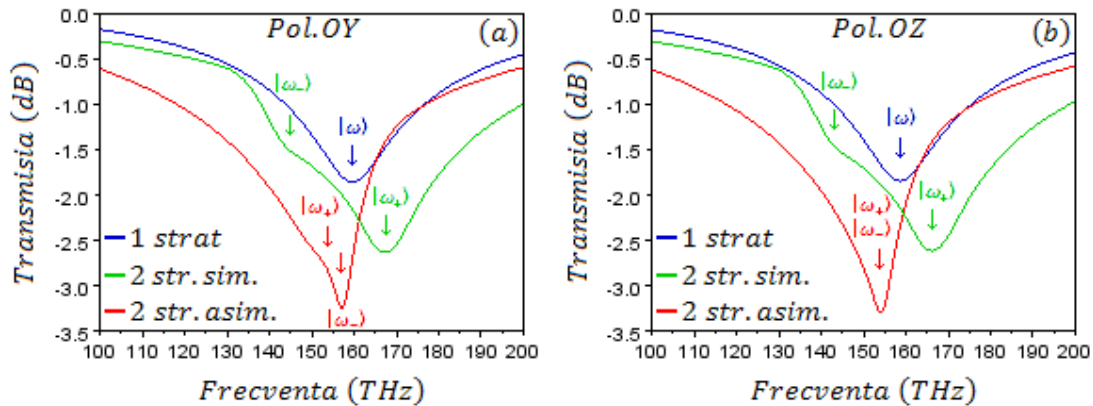


Figura 5.5 Inversarea modurilor plasmonice hibridizate apare în cazul materialul format din două straturi pentru fiecare dintre cele două direcții ale polarizării, OY (a) and OZ (b).

În studiul efectuat am analizat teoretic proprietățile electromagnetice a trei metamateriale: unu compus dintrun singur strat și două compuse din două straturi, în fiecare caz elementele rezonante sunt dispuse într-o rețea hexagonală de constantă $a=450$ nm. “Meta-atomii” constituenți au forma unor prisme drepte din aur cu bazele descrise de structurile geometrice prezentate în secțiunea anterioară. Dimensiunile geometrice ale bazelor sunt determinate de valorile $r=50$ nm and $R=150$ nm, iar înălțimea prismelor este $h=30$ nm. Reflexia și transmisia au fost calculate efectuând simulări FDTD tridimensionale. Pentru mediul care înconjoară nanoelementele rezonante am considerat un indice de refracție $n=1.5$. Pentru a analiza dependența de polarizare a transmisiei și reflexiei am efectuat simulări în cazul a două unde având polarizările reciproc perpendiculare, incidente normal pe suprafața materialului.

5.3.3 Parametrii efectivi ai metamaterialelor studiate

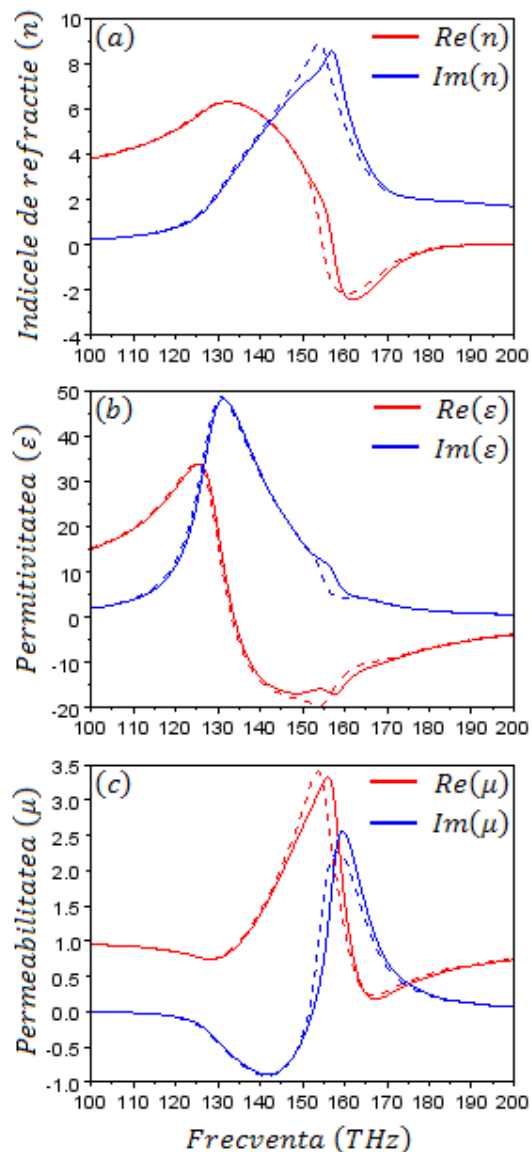


Figura 5.6 Parametrii de material efectivi ai metamaterialului format din două straturi asimetrice. Indicele de refracție (a), permitivitatea (b), permeabilitatea (c).

Datorită asimetriei nanoelementelor din cele două straturi, frecvențele celor două moduri plasmonice hibridizate sunt ușor inversate (fig. 5.5). După cum se observă din graficele permitivității și permeabilității rezonanțele electrică și magnetică apar la aceeași frecvența $f_{3el} = f_{3mag} = 158$ THz (fig. 5.6(b) și (c)). Partea reală a indicelui de refracție (n') are valori negative în intervalul 158 – 172 THz pentru ambele polarizări (fig. 5.6(a)).

6. Concluzii generale și perspective

1.a) Cu ajutorul tehnicii de microfabricare bazate pe fenomenul de fotoreducere a ionilor de argint prin absorbția a doi fotoni, am realizat structuri metalice tri-dimensionale de cilindrii de argint dispuși într-o rețea pătratică incluși într-o matrice de material dielectric. Propagarea tri-dimensională a radiației luminoase vizibile de-a lungul nanocilindrilor a fost caracterizată prin tehnica microscopiei de transmisie de câmp larg. Am constatat că pentru lungimi de undă din domeniul vizibil intensitatea luminoasă ($\vec{E} \cdot \vec{E}^*$) este amplificată de-a lungul cilindrilor în apropierea suprafeței acestora. Simulările numerice au arătat că amplificări de până la 20 de ori ale intensității radiației incidente se obțin într-un volum mare în jurul cilindrilor de argint ceea ce oferă posibilitatea utilizării structurii analizate în aplicații din domeniul senzorilor.

1.b) Depunerea de filme metalice de argint peste cristale coloidale bi-dimensionale este o tehnică de fabricare ce permite realizarea de nanostructuri periodice metal-dielectric. Structura fabricată prezintă proprietăți similare proprietăților filmelor metalice cu perforații circulare periodice de dimensiuni nanometrice care prezintă fenomenul de transmisie optică extraordinară (Extraordinary Optical Transmission, EOT). Analiza distribuției intensității câmpului electric la suprafața filmului metalic evidențiază prezența a două moduri plasmonice hibridizate: simetric și antisimetric care explică structura spectrelor de transmisie și absorbție.

2.a) Studiul asupra metamaterialelor formate din prisme triunghiulare de aur dispuse într-o rețea hexagonală a arătat că metamaterialul format din două straturi de nanoprisme prezintă atât un răspuns electric negativ cât și un răspuns magnetic negativ la radiația electromagnetică incidentă normal la strat. Aceste două răspunsuri negative: electric și magnetic, se datorează rezonanțelor celor două moduri plasmonice hibridizate: simetric și antisimetric, care se manifestă ca urmare a interacțiunilor dintre modurile plasmonice dipolare ale prismelor corespondente din cele două straturi. Am arătat că atunci când între cele două straturi introducem un decalaj, pe o direcție paralelă cu direcția de polarizare a undei incidente, frecvențele de rezonanță ale celor două moduri (simetric și antisimetric) pot fi modificate obținând o egalizare a lor sau chiar o ușoară inversare. Pentru un decalaj suficient de mare între straturi, care duce la o inversare a modurilor plasmonice hibridizate, am obținut un metamaterial cu indice de refracție negativ în domeniul vizibil (430-450 THz).

2.b) În al doilea studiu teoretic am analizat proprietățile electromagnetice a unor metamateriale formate din unu și două straturi de elemente plasmonice rezonante dispuse într-o rețea hexagonală. Ca urmare a inversării frecvențelor de rezonanță ale modurilor plasmonice hibridizate (simetric și antisimetric), metamaterialul compus din două straturi de naoelemente asimetrice prezintă un indice de refracție negativ în intervalul de frecvențe 158 - 172 THz din domeniul infraroșu apropiat. Datorită structurii hexagonale a metamaterialului și a simetriei la rotație cu 120^0 a elementelor constituente proprietățile electromagnetice ale materialului studiat sunt cvasi-independente de direcția polarizării radiației incidente.

Bibliografie selectivă

1. V.G. Veselago, "The Electrodynamics of Substances with Simultaneously Negative Values of ϵ and μ ," Sov. Phys. Uspekhi. 10, 509-514 (1968).
2. J.B. Pendry, A.J. Holden, W.J. Stewart, and I. Youngs, "Extremely Low Frequency Plasmons in Metallic Meso Structures," Phys. Rev. Lett. 76, 4773-4776 (1996).
3. J.B. Pendry, A.J. Holden, D.J. Robbins, and W.J. Stewart, "Magnetism from Conductors, and Enhanced Non-Linear Phenomena," IEEE Trans. Microwave Theory Tech. 47, 2075 (1999).
4. R.A. Shelby, D.R. Smith, and S. Schultz, "Experimental Verification of a Negative Index of Refraction," Science 292, 77-79 (2001).
5. J.B. Pendry, "Negative refraction makes a perfect lens," Phys. Rev. Lett. 85, 3966-3969 (2000).
6. D.R. Smith, J.J. Mock, A.F. Starr, and D. Schurig, "Gradient index metamaterials", Phys. Rev. E 71, 036609 (2005).
7. J.B. Pendry, D. Schurig, and D.R. Smith, "Controlling Electromagnetic Field," Science 312, 1780-1782 (2006).
8. V. M. Shalaev, "Optical negative-index metamaterials," Nature Photon. 1, 41-48 (2007).
9. A. Alu, A. Salandrino, and N. Engheta, "Negative effective permeability and left-handed materials at optical frequencies," Opt. Express 14, 1557-1567 (2006).
10. J.A. Dionne, E. Verhagen, A. Polman, and H.A. Atwater, "Are negative index materials achievable with surface plasmon waveguides? A case study of three plasmonic geometries," Opt. Express, 23, 19001-19017 (2008).
11. E. Verhagen, R. de Waele, L. Kuipers, and A. Polman, "Three-Dimensional Negative Index of Refraction at Optical Frequencies by Coupling Plasmonic Waveguides," Phys. Rev. Lett. 105, 223901 (2010).
12. D. Sarid, and W. Challener, *Modern Introduction to Surface Plasmons: Theory, Mathematica Modeling, and Applications*, Cambridge University Press, 2010.

13. R. Liu, T.J. Cui, D. Huang, B. Zhao, and D.R. Smith, "Description and explanation of electromagnetic behaviors in artificial metamaterials based on effective medium theory," *Phys. Rev. E*, 76, 026606 (2007).
14. D.R. Smith, S. Schultz, P. Markos, and C.M. Soukoulis "Determination of effective permittivity and permeability of metamaterials from reflection and transmission coefficients," *Phys. Rev. B*, Vol. 65, 195104, (2002).
15. I. Wang, M. Bouriau, P.L. Baldeck, C. Martineau and C. Andraud, "Three-dimensional microfabrication by two-photon initiated polymerization using a low-cost microlaser," *Opt. Lett.*, 27, 1348-1350 (2002).
16. L. Vurth, P. Baldeck, O. Stephan and G. Vitrant, "Two-photon induced fabrication of gold microstructures in polystyrene sulfonate thin films using a ruthenium(II) dye as photoinitiator," *Appl. Phys. Lett.*, 92, 171103 (2008).
17. **M. Giloan**, S. Zaiba, G. Vitrant, P. L. Baldeck and S. Astilean "Light transmission and local field enhancement in arrays of silver nanocylinders," *Opt. Comm.*, 284, 3629-3634 (2010).
18. N. D. Denkov, O. D. Velev, P. A. Kralchevsky, I. B. Ivanov, H. Yoshimura, and K. Nagayama, "Two-dimensional crystallization," *Nature* 361, 26 (1993).
19. Lumerical Solutions Inc., "FDTD Solutions Online Help," <http://www.lumerical.com>.
20. T.W. Ebbesen, H.J. Lezec, H.F. Ghaemi, T. Thio, and P.A. Wolff, "Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays", *Nature* 391, 667 (1998).
21. H.F. Ghaemi, T. Thio, D.E. Grupp, T.W. Ebbesen, and H.J. Lezec, "Surface plasmons enhance optical transmission through subwavelength holes", *Phys. Rev. B* 58, 6779 (1998).
22. H. Wang, D.W. Brandl, P. Nordlander and N.J. Halas "Plasmonic Nanostructures: Artificial Molecules," *Acc. Chem. Res.* 40, 53-62, (2007).
23. N.J. Halas, S. Lal, W.-S. Chang, S. Link, and P. Nordlander, "Plasmons in Strongly Coupled Metallic Nanostructures", *Chem. Rev.* 111, 3913–3961, (2011).
24. C. Farcau, **M. Giloan**, E. Vinteler and S. Astilean "Understanding plasmon resonances of metal-coated colloidal crystal monolayers," *Appl. Phys. B*, article in press (2011) DOI 10.1007/s00340-011-4849-9.
25. W.A. Murray, S. Astilean, and W.L. Barnes, "Transition from localized surface plasmon resonance to extended surface plasmon-polariton as metallic nanoparticles merge to form a periodic hole array", *Phys. Rev. B* 69, 165407 (2004).
26. **M. Giloan**, S. Astilean "Visible frequency range negative index metamaterial of hexagonal arrays of gold triangular nanoprisms," *Opt. Comm.*, article in press (2011) DOI: 10.1016/j.optcom.2011.11.093.
27. **M. Giloan**, S. Astilean "Designing polarization insensitive negative index metamaterial for operation in near infrared" *Opt. Comm.*, article in press (2011) DOI: 10.1016/j.optcom.2011.12.096.

Lista articolelor

1. **M. Giloan**, S. Astilean “Designing polarization insensitive negative index metamaterial for operation în near infrared” Opt. Comm., în curs de publicare (2011) DOI: 10.1016/j.optcom.2011.12.096.
2. **M. Giloan**, S. Astilean “Visible frequency range negative index metamaterial of hexagonal arrays of gold triangular nanoprisms,” Opt. Comm., în curs de publicare (2011) DOI: 10.1016/j.optcom.2011.11.093.
3. C. Farcau, **M. Giloan**, E. Vinteler and S. Astilean “Understanding plasmon resonances of metal-coated colloidal crystal monolayers,” Appl. Phys. B, în curs de publicare (2011) DOI 10.1007/s00340-011-4849-9.
4. **M. Giloan**, S. Zaiba, G. Vitrant, P. L. Baldeck and S. Astilean “Light transmission and local field enhancement în arrays of silver nanocylinders,” Opt. Comm., 284, 3629-3634 (2010).

Mulțumiri

Doresc să le mulțumesc tuturor celor care m-au ajutat și care au contribuit la elaborarea acestei teze, dintre care vreau sa menționez pe:

- Prof. univ. dr. Simion Aștilean pentru că mi-a oferit posibilitatea de a aborda acest domeniu fascinant al metamaterialelor optice, pentru îndrumare și pentru discuțiile stimulatoare;
- Dr. Patrice L. Baldeck pentru îndrumara și pentru discuțiile utile purtate pe parcursul stagiului efectuat în Laboratorul de Spectroscopie Fizică, CNRS UMR 5588, Grenoble University;
- Prof. univ dr. Dana Dorohoi, prof. univ. dr. Traian Petrișor si prof. univ dr. Mihai Todica pentru amabilitatea de a refera această teză, precum și pentru observațiile și sugestiile lor;
- Prof. univ. dr. Vasile Chiș pentru suportul tehnic oferit în vederea realizării unor simulări numerice;
- D-l. Gavril Săplăcan și d-l. Mircea Rusu pentru suportul tehnic oferit;
- Tuturor colegilor mei din Centrul de Bionanofonică al Institutului de Cercetări Interdisciplinare în Bio-nano-științe pentru atmosfera caldă de muncă și ajutorul lor amabil;
- Doresc să le mulțumesc părinților mei, tuturor prietenilor și in mod special soției mele, Ligia, pentru încurajarea și sprijinul oferit, fiind alături de mine în tot acest timp.