

Design und Simulation von Nanoantennen

Zur Erlangung des akademischen Grades eines

DOKTOR-INGENIEURS

von der Fakultät für

Elektrotechnik und Informationstechnik
des Karlsruher Instituts für Technologie (KIT)

genehmigte

Dissertation

von

Dipl.-Ing. Carola Nathalie Moosmann

geb. in Stuttgart

Tag der mündlichen Prüfung: 07. Juni 2016

Hauptreferent: Prof. Dr. Uli Lemmer

Korreferent: Prof. Dr. Jan G. Korvink

Publikationsliste

Referierte Artikel in internationalen Zeitschriften

- **C. Moosmann*** & K. Dopf*, S. W. Kettlitz, P. M. Schwab, K. Ilin, M. Siegel, U. Lemmer & H.-J. Eisler “Coupled T-shaped optical antennas with two resonances localized in a common nanogap.” ACS Photon., **2015**, 2, 1644-1651 (* shared first authors)
- P. M. Schwab, **C. Moosmann**, K. Dopf & H.-J. Eisler “Oxide mediated spectral shifting in aluminum resonant optical antennas.” Opt. Express, **2015**, 23, 26533-26543
- S. W. Kettlitz, **C. Moosmann**, S. Valouch & U. Lemmer “Sensitivity improvement in fluorescence-based particle detection.” Cytometry A, **2014**, 85, 746-755
- J. Mescher, S. W. Kettlitz, A. Egel, **C. Moosmann**, N. S. Christ, S. Valouch & U. Lemmer “RC-Constant in organic photodiodes comprising electrodes with a significant sheet resistance.” IEEE Photon. Technol. Lett., **2014**, 26, 579-582
- **C. Moosmann**, G. S. Sigurdsson, M. D. Wissert, K. Dopf, U. Lemmer & H.-J. Eisler “Investigating the influences of the precise manufactured shape of dipole nanoantennas on their optical properties.” Opt. Express, **2013**, 21, 594-604

- P. M. Schwab, **C. Moosmann**, M. D. Wissert, E. W.-G. Schmidt, K. S. Ilin, M. Siegel, U. Lemmer & H.-J. Eisler “Linear and nonlinear optical characterization of aluminum nanoantennas.” *Nano Lett.*, **2013**, 13, 1535
- M. D. Wissert, **C. Moosmann**, K. S. Ilin, M. Siegel, U. Lemmer & H.-J. Eisler “Gold nanoantenna resonance diagnostics via transversal particle plasmon luminescence.” *Opt. Express*, **2011**, 19, 3686-3693
- **C. Geiger** & J. Fick “Surface plasmon-mediated far-field emission of laser dye solutions.” *Opt. Lett.*, **2010**, 35, 2245-7

Artikel in Konferenzbänden

- P. M. Schwab, **C. Moosmann**, K. Dopf, K. S. Ilin, M. Siegel, U. Lemmer & H.-J. Eisler “Degradation in aluminum resonant optical rod antennas.” *MRS Proceedings, Symposium L – Optical Metamaterials and Novel Optical Phenomena Based on Nanofabricated Structures*, **2015**, 1728
- K. Dopf, P. M. Schwab, **C. Moosmann**, A. Habermehl, U. Lemmer & H.-J. Eisler “Complementary microscopy platform for investigations of hybrid nanostructures comprising quantum dots and plasmonic particles.” *MRS Proceedings, Symposium II – Semiconductor Nanocrystals, Plasmonic Metal Nanoparticles, and Metal-Hybrid Structures*, **2015**, 1748
- K. Dopf, S. Heunisch, P. Schwab, **C. Moosmann**, A. Habermehl, U. Lemmer & H.-J. Eisler “Superresolution optical fluctuation imaging (SOFI) aided nanomanipulation using AFM for novel artificial arrangements of chemically functionalized colloidal quantum dots and plasmonic structures.” *Proc. SPIE 9126*, **2014**, 91260N-91260N-9
- S. W. Kettlitz, **C. Moosmann**, S. Valouch & U. Lemmer “Fluorescence particle detection using microfluidics and planar optoelectronic elements.” *Proc. SPIE 9129*, **2014**, 91293W-91293W-8

- S. W. Kettlitz, **C. Moosmann**, S. Valouch & U. Lemmer “Particle detection from spatially modulated fluorescence signals.” Proc. SPIE 9129, **2014**, 91291B-91291B-10

Beiträge auf Konferenzen, Workshops und Sommerschulen (nur persönlich präsentiert)

- **C. Moosmann**, “Investigating the resonances of nanoantennas.” Karlsruhe Days of Optics and Photonics (Poster-Präsentation), **2015**
- **C. Moosmann**, “FEM & FDTD simulation of nanoantennas.” First annual IMT workshop on MEMS and NEMS simulation (Vortrag), Karlsruhe, **2015**
- **C. Moosmann**, G. S. Sigurdsson, M. D. Wissert, K. Dopf, U. Lemmer & H.-J. Eisler “Simulation of realistically shaped nanoantennas using COMSOL Multiphysics.” COMSOL Conference Stuttgart (Poster-Präsentation), **2011**
- **C. Moosmann**, “Optical antennas - simulation.” Karlsruhe Days of Optics and Photonics (Poster-Präsentation), **2011**
- **C. Moosmann**, M. D. Wissert, U. Lemmer & H.-J. Eisler “Resonant optical antennas.” Summer School “47th Course ADVANCES ON NANOPHOTONICS III: Plasmonics and Energy Efficiency”, Erice, Italien (Poster-Präsentation), **2010**

Betreute studentische Arbeiten

- Geirfinnur Smari Sigurdsson, *Numerical simulations of gold and aluminum nano antennas with geometries based on experimental imaging data*, Masterarbeit, 2011
- Johannes Kolb, *Optische und elektrische Charakterisierung von Indiumzinnoxid Schichten für optimierte organische Halbleiterbauelemente*, Bachelorarbeit, 2010
- Tobias Werner, *Herstellung sowie zeit- und orts aufgelöste optische Charakterisierung organischer Leuchtdioden*, Bachelorarbeit, 2010
- Alexandra Graham, *Resonant optical antennas*, KSOP Project Course, 2010

Inhaltsverzeichnis

Publikationsliste	i
Betreute Arbeiten	v
1 Einleitung	1
1.1 Gliederung der Arbeit	2
2 Grundlagen	5
2.1 Elektrodynamik	5
2.1.1 Maxwell-Gleichungen	6
2.1.2 Weitere Beziehungen	6
2.1.3 Weitere grundlegende Größen	7
2.2 Antennen	9
2.2.1 Nah- und Fernfeld von Antennen	11
2.2.2 Impedanz und Impedanzanpassung	12
2.2.3 $\lambda/2$ -Dipolantennen	13
2.2.4 Hertz'scher Dipol	14
2.3 Plasmonik und Nanophotonik	15
2.3.1 Verhalten von Metallen bei optischen Frequenzen	15
2.3.1.1 Das Drude-Sommerfeld-Modell	16
2.3.1.2 Das Lorentz-Modell	16
2.3.1.3 Das Lorentz-Drude-Modell	17
2.3.1.4 Die Eindringtiefe	18
2.3.2 Plasmonen und Oberflächenplasmonen	19
2.3.2.1 Propagierende Oberflächenplasmonen	20

2.3.2.2	Partikelplasmonen	22
2.3.3	Streuung und Absorption	23
2.3.3.1	Streu-, Absorptions- und Extinktionsquerschnitt	23
2.4	Nanoantennen	27
2.4.1	Charakteristische Besonderheiten von Nanoantennen . .	28
2.4.1.1	Blitzableitereffekt	29
2.4.2	Gütefaktor	30
2.4.3	Nanodipolantennen	30
2.4.4	Plasmonenhybridisierung	32
2.4.5	Herstellung und Vermessung von Nanoantennen	34
2.4.6	Nanoantennen und Quantenemitter	37
2.4.7	Weitere Anwendungen von Nanoantennen	38
3	Simulation und Modellbildung	41
3.1	Überblick über Berechnungsmethoden	42
3.2	Verwendete analytische Berechnungsmethoden	44
3.2.1	Mie-Theorie	44
3.2.2	Quasistatische Approximation	45
3.2.2.1	Kugeln	46
3.2.2.2	Ellipsoide	47
3.2.2.3	Erweiterung der quasistatischen Approximati- on durch Berücksichtigung von Phasenverzö- gerung und Strahlungsdämpfung	48
3.3	Verwendete numerische Berechnungsmethoden	49
3.3.1	„Perfectly Matched Layers“ in der FDTD- und der Finite- Elemente-Methode	49
3.3.2	FDTD-Methode	51
3.3.2.1	FDTD-Simulationen in Lumerical	54
3.3.3	Finite-Elemente-Methode	59
3.3.3.1	Finite-Elemente-Simulationen in COMSOL	62
3.4	Geometrie von Antenne und Umgebung	65
3.4.1	Quaderförmige Einarm- und Zweiarmentennen	65

3.4.2	Erstellen von CAD-Modellen	66
3.4.3	Substratschichten	67
3.5	Antennen- und Substratmaterialien	68
3.5.1	Gold	69
3.5.2	Aluminium	69
3.5.3	Substratmaterialien	71
3.6	Untersuchte Eigenschaften von Nanoantennen an einem Beispiel	71
3.6.1	Absorptions-, Streu- und Extinktionsquerschnitt	71
3.6.2	Nahfeldverteilung	73
3.6.3	Stromverteilung	75
4	Skalierungsverhalten von Nanoantennen	77
4.1	Kugeln und einzelne quaderförmige Antennen	79
4.1.1	Stand der Forschung	79
4.1.2	Kugeln und Würfel	81
4.1.2.1	Kugel: Mie-Theorie	82
4.1.2.2	Kugel: Quasistatische Approximation	83
4.1.2.3	Würfel: FDTD-Simulation	84
4.1.3	Längenvariation von Ellipsoiden und Quadern	86
4.1.3.1	Resonanzwellenlänge	86
4.1.3.2	Resonanzstärke und Gütefaktor	90
4.1.4	Breiten- und Höhenvariation von Ellipsoiden und Quadern	95
4.1.4.1	Rotationsellipsen mit variabler kurzer Achse	96
4.1.4.2	Breiten- und Höhenvariation von Quadern	99
4.2	Kopplung / Antennenspalt	104
4.2.1	Stand der Forschung	104
4.2.2	FDTD-Simulationen	104
4.2.3	Einfluss der Kopplung auf die bisher untersuchten Antenneneigenschaften	109
4.3	Substrateinfluss	111
4.3.1	Stand der Forschung	111
4.3.2	Simulationen	112
4.3.3	Gekoppelte Zweiarmentennen auf ITO-Glas Substrat	113

4.4	Erkenntnisse	114
4.5	Queranregung	116
4.5.1	Vergleich mit Experimenten	117
4.6	Zusammenfassung	120
5	Bimodale Antennenstrukturen	123
5.1	Stand der Forschung	124
5.2	Gekoppelte T-Antennen	125
5.2.1	Funktionsweise einer gekoppelten T-Antenne	126
5.2.2	Abhängigkeit der beiden T-Antennenmoden vom Polarisationswinkel	132
5.2.3	Topvariation	134
5.2.4	Basisvariation	136
5.2.5	Vergleich mit Experimenten	138
5.3	Einzelne T-Antennen und L-Antennen	141
5.4	Einfluss der Kopplung von T-Antennen	148
5.4.1	Spaltbreitenvariation bei gekoppelten T-Antennen	149
5.4.2	Gekoppelte bimodale Antennenstrukturen mit konstantem Antennenspalt und verschobener Basisposition	151
5.5	Zusammenfassung	154
6	Reale Nanoantennenstrukturen	157
6.1	Stand der Forschung	158
6.2	Untersuchte Antennenstrukturen	159
6.3	Manuelles und automatisches Erkennen der Antennenkontur	161
6.3.1	Manuelles Verfahren	161
6.3.2	Automatisiertes Verfahren	162
6.4	Erstellen von 3D Modellen	164
6.5	Simulationsergebnisse	166
6.5.1	Vergleich der FEM- und FDTD-Simulationen	166
6.5.2	Nahfeldverteilung	167
6.5.3	Auswirkungen auf Streu- und Absorptionsquerschnitt	169
6.6	Zusammenfassung	172

7	Aluminiumantennen	173
7.1	Stand der Forschung	174
7.2	Längenvariation	174
7.3	Einfluss der Oxidschicht	180
7.4	Vergleich mit Experimenten	182
7.5	Zusammenfassung	185
8	Zusammenfassung und Ausblick	187
A	Anhang	191
A.1	Vergleich der Berechnung einer Kugel nach Mie und der FDTD-Methode	191
A.2	Verwendete dielektrische Funktion für ITO	192
A.3	Extrahierte Parameter für Simulationen mit realistischen Dimensionen	193
	Abkürzungen und Symbole	195
	Literaturverzeichnis	209

1. Einleitung

Sind Nanoantennen einfach sehr, sehr kleine Antennen? Obwohl der Name dies vermuten lässt, lösen Nanoantennen andere Aufgaben als klassische Antennen, haben andere Herausforderungen und andere wichtige Eigenschaften als herkömmliche Antennen. Trotzdem kann die Welt der resonanten Metallnanopartikel viel aus der Welt der klassischen Antennentheorie mit ihrem Jahrhunderte alten Erfahrungsschatz lernen und viele wichtige Konzepte können übertragen werden.

Gemeinsam haben beide zunächst, dass Antennen stets ein möglichst effizientes Koppellement zwischen Nah- und Fernfeld sind. Herkömmliche Antennen haben jedoch die Hauptanwendung Informationen, die über weite Strecken in Form von speziell kodierten elektromagnetischen Wellen übertragen werden, zu senden und zu empfangen. Im Gegensatz dazu gibt es im Bereich der optischen Technologien eine Vielzahl anderer Anwendungen, bei denen resonante Antennen hilfreich sein können. Viele von ihnen hängen mit der begrenzten räumlichen Auflösung in der klassischen Optik zusammen. Das Diffraktionslimit stellt eine von der Wellenlänge abhängige Grenze dar, unterhalb derer es nicht mehr möglich ist Licht mit klassischen optischen Bauelementen (Linsen etc.) zu fokussieren.

Die Forschung im Bereich der Nanoantennen hat erst im letzten Jahrzehnt einen richtigen Aufschwung erlebt. Ursache hierfür ist hauptsächlich, dass die Herstellungsmethoden für nanometerskalige Strukturen zuvor nicht verfügbar oder von zu schlechter Qualität waren. Die Fortschritte hierbei – in Kombination mit immer vielversprechenderen Anwendungen – haben zu einem immensen Anstieg an wissenschaftlichen Veröffentlichungen in diesem Bereich geführt. Eine weitere Entwicklung, die sich vorteilhaft auf die Forschungsaktivitäten im Bereich der

Nanoantennen auswirkte, war die Verbesserung der numerischen Methoden und vor allem der hierfür benötigten Hardware. Die elektromagnetischen Eigenschaften von Nanoantennen können inzwischen viel schneller und präziser berechnet werden ohne auf bestimmte Vereinfachungen zurückgreifen zu müssen. Da die extrem kleinen Strukturen der Nanoantennen und ihr recht komplexes Verhalten es mit sich bringen, dass rein auf Experimenten beruhende Untersuchungen und Interpretationen nicht ausreichen, sind diese Fortschritte essentiell wichtig. Die Forschung an Nanoantennen wurde daher zu jedem Entwicklungsschritt intensiv von numerischen Berechnungen begleitet.

Zwei zentrale Herausforderungen der numerischen Untersuchungen von Nanoantennen sind zum einen, die Simulationen so zu optimieren und zu erweitern, dass die experimentellen Ergebnisse möglichst gut nachvollzogen werden können und zum anderen, trotzdem möglichst verständliche Interpretationsansätze zu liefern. Diese sind Voraussetzung für die Entwicklung neuartiger Antennenstrukturen. Diese Herausforderungen werden in der vorliegenden Arbeit angegangen.

Bei den hier untersuchten Nanostrukturen handelt es sich um optische Antennen, die Resonanzen bei einer oder mehreren Wellenlängen aufweisen. Die genauen Eigenschaften der Resonanzen (Resonanzwellenlänge und Intensität) sind von entscheidender Bedeutung. Sie zu verstehen und zu optimieren steht im Fokus dieser Arbeit.

1.1. Gliederung der Arbeit

Zu Beginn wird in Kapitel 2 ein Überblick über die für diese Arbeit relevanten Grundlagen mit einem Schwerpunkt auf resonanten Metallnanopartikeln gegeben. Im darauf folgenden Kapitel werden die verschiedenen Modellierungsansätze vorgestellt und die Simulationsmodelle mit ihren wichtigsten Parametern gezeigt. Außerdem werden die untersuchten Eigenschaften anhand eines konkreten Beispiels erläutert.

Das erste Ergebniskapitel (Kapitel 4) befasst sich mit dem Skalierungsverhalten der Resonanzen von gekoppelten Dipolnanoantennen – eine der häufigsten Nanoantennenstrukturen – und leitet dieses über einen schrittweisen Aufbau des Simulationsmodells her. Am Ende dieses Kapitel wird auf die in Nanoantennen vorhandene Querresonanz eingegangen. Kapitel 5 beschäftigt sich mit bimodalen Antennenstrukturen und stellt gekoppelte T-Antennen als optimale Struktur vor, um ein solches Verhalten zu erreichen. Als Nächstes wird in Kapitel 6 untersucht, wie sich Abweichungen in der Antennengeometrie auf die optischen Eigenschaften der Nanoantennen auswirken und wie diese in der Simulation berücksichtigt werden können. Im letzten Ergebniskapitel werden Aluminiumantennen mit einer wenige Nanometer dicken Oxidschicht als ideale Kandidaten für den hochfrequenten Anteil des sichtbaren Spektrums vorgestellt. Am Ende werden die Ergebnisse in Kapitel 8 zusammengefasst und ein Ausblick wird gegeben.

2. Grundlagen

Nanoantennen verbinden die Themenbereiche Antennentheorie und Nanotechnologie. Einerseits kann hierbei auf einen immensen, jahrhundertealten Erfahrungsschatz aus beiden Welten zurückgegriffen werden. Andererseits haben diese zwei Themengebiete ihre eigenen Denkweisen, Schwerpunkte, Vereinfachungen und Begriffe. Dies bringt einige Schwierigkeiten beim Austausch dieser Erfahrungen und der Interpretation von Ergebnissen mit sich. In diesem Grundlagenkapitel werden die grundsätzlichen Konzepte aus beiden Bereichen vorgestellt.

Als Ausgangspunkt für beide Gebiete dient die Elektrodynamik, die in Kapitel 2.1 kurz eingeführt wird. Danach wird in Kapitel 2.2 eine kurze Einführung in die klassische Antennentheorie gegeben. Im folgenden Kapitel 2.3 wird dann das Themengebiet der Plasmonik vorgestellt und hierbei insbesondere das Absorptions- und Streuverhalten von Metallnanopartikeln erklärt. Schließlich wird in Kapitel 2.4 auf die Nanoantennen-Grundlagen und Besonderheiten sowie die Gemeinsamkeiten und Unterschiede bezüglich der beiden vorherigen Kapitel eingegangen.

2.1. Elektrodynamik

Eine klassische elektrodynamische Betrachtung bildet die Basis und die gemeinsame Sprache für die Bereiche der Antennentheorie, der Nanotechnologie und

der Plasmonik. Obwohl der Name „Plasmon“ die Partikeleigenschaft in der Plasmonik betont, kann auch ein Großteil der Zusammenhänge in der Plasmonik und somit in Nanoantennen mit dieser, auf den Maxwell-Gleichungen basierenden, klassischen Betrachtung verstanden werden. Ziel dieses Kapitels ist es, einen kurzen Überblick über die für diese Arbeit relevanten Gleichungen zu geben, die verwendeten Notationen vorzustellen und eine knappe Einführung zu geben. Ausführlichst wird die Elektrodynamik beispielsweise in Ref. [1] und Ref. [2] eingeführt.

2.1.1. Maxwell-Gleichungen

Die Maxwell-Gleichungen bilden die Grundlage für die Ausbreitung von elektromagnetischen Feldern und Wellen sowie für ihre Interaktion mit Materie. Die Maxwell-Gleichungen lauten:

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D}(\vec{r}) = \rho(\vec{r}), \quad (2.1.1)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B}(\vec{r}) = 0, \quad (2.1.2)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r}) = -\frac{\partial \vec{B}(\vec{r})}{\partial t}, \quad (2.1.3)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H}(\vec{r}) = \vec{j}(\vec{r}) + \frac{\partial \vec{D}(\vec{r})}{\partial t}. \quad (2.1.4)$$

Hierbei ist \vec{D} die elektrische Flussdichte, ρ die Ladungsträgerdichte, \vec{B} die magnetische Flussdichte, \vec{E} die elektrische Feldstärke, \vec{H} die magnetische Feldstärke und \vec{j} die Leitungsstromdichte, jeweils am Ort \vec{r} .

2.1.2. Weitere Beziehungen

Für eine vollständige Beschreibung der elektrodynamischen Vorgänge in Materie sind außerdem folgende Zusammenhänge nötig. Die Kontinuitätsgleichung lautet:

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{j}(\vec{r}) = -\frac{\partial \rho(\vec{r})}{\partial t}. \quad (2.1.5)$$

Ferner gilt:

$$\vec{D}(\vec{r}) = \epsilon_0 \vec{E}(\vec{r}) + \vec{P}(\vec{r}), \quad (2.1.6)$$

$$\vec{H}(\vec{r}) = \frac{1}{\mu_0} \vec{B}(\vec{r}) - \vec{M}(\vec{r}). \quad (2.1.7)$$

Hier ist ϵ_0 die elektrische Feldkonstante, \vec{P} die elektrische Polarisierung, μ_0 die magnetische Feldkonstante und \vec{M} die Magnetisierung.

Für isotrope, lineare Materialien vereinfachen sich diese beiden Gleichungen zu:

$$\vec{D}(\vec{r}) = \epsilon_0 \epsilon_r'(\vec{r}) \vec{E}(\vec{r}), \quad (2.1.8)$$

$$\vec{H}(\vec{r}) = \frac{1}{\mu_0 \mu_r(\vec{r})} \vec{B}(\vec{r}). \quad (2.1.9)$$

In dieser Darstellung werden die elektrodynamischen Materialeigenschaften in der (reellen) dielektrischen Funktion ϵ_r' und der relativen Permeabilität μ_r ¹ zusammengefasst. Diese sind im Allgemeinen frequenzabhängig.

Leitungsstromdichte und elektrisches Feld hängen über die (reelle) Leitfähigkeit σ' zusammen:

$$\vec{j}(\vec{r}) = \sigma'(\vec{r}) \vec{E}(\vec{r}). \quad (2.1.10)$$

2.1.3. Weitere grundlegende Größen

Zusammenhang zwischen Brechungsindex, dielektrischer Funktion, Leitfähigkeit und Polarisierbarkeit. Betrachtet man die Vorgänge (statt wie bisher im Zeitbereich) nun im Frequenzbereich, so kann man von einigen vereinfachenden Zusammenhängen profitieren. Dabei ist es wichtig, dass hier stets ebene

¹Wie später für die dielektrische Funktion ϵ_r' diskutiert werden wird, kann es unter bestimmten Umständen auch hilfreich sein, eine komplexe relative Permeabilität μ_r zu betrachten. Die magnetischen Eigenschaften der Strukturen und Materialien wurden in dieser Arbeit jedoch nicht untersucht, daher spielt dies hier keine Rolle.

Wellen mit $e^{ikx-i\omega t}$ als Orts- und Zeitabhängigkeit (hier speziell für Propagation in x-Richtung, $\omega = 2\pi f$ ist die Kreisfrequenz, f die Frequenz) angenommen werden. Zeitabhängige Signale können als eine Superposition von ebenen Wellen mit unterschiedlichen Frequenzen zusammengesetzt werden. Mittels Fouriertransformation kann zwischen Zeit- und Frequenzbereich umgerechnet werden. In solchen zeitharmonischen Fällen kommen nun komplexe Größen vor. Hier können die vier Größen komplexer Brechungsindex \tilde{n} , komplexe dielektrische Funktion ϵ_r , komplexe Hochfrequenzleitfähigkeit $\tilde{\sigma}$ und komplexe Polarisierbarkeit α verwendet werden. Sie sind allesamt Materialeigenschaften, die ineinander umgerechnet werden können.

Der komplexe Brechungsindex ist gegeben als $\tilde{n} = n + i\kappa$. Für Materialien mit $\mu_r = 1$ (dies gilt für alle in dieser Arbeit untersuchten Materialien) ist der Zusammenhang zwischen Brechungsindex und dielektrischer Funktion:

$$\tilde{n}^2 = (n + i\kappa)^2 = \epsilon_r = \epsilon_r' + i\epsilon_r'' \quad (2.1.11)$$

Des Weiteren gilt für den Zusammenhang zwischen dielektrischer Funktion und Leitfähigkeit [3]:

$$\tilde{\sigma} = \sigma' + i\sigma'' = -i\omega\epsilon_0\epsilon_r \quad (2.1.12)$$

Da bei Untersuchungen der Leitfähigkeit fast nie die komplexe Leitfähigkeit betrachtet wird, sondern lediglich σ' , wird häufig folgende Beziehung verwendet:

$$\sigma' = \omega\epsilon_0\epsilon_r'' \quad (2.1.13)$$

Die Polarisierbarkeit ist zunächst eine Eigenschaft von kleinsten Partikeln, kann aber für makroskopische Materialien auch mit der dielektrischen Funktion von Materialien in Verbindung gebracht werden. Die Polarisierbarkeit gibt das Dipolmoment an, welches ein elektrisches Feld an einem Ort in einem Molekül, Atom oder sonstigen Partikel erzeugt:

$$\vec{p} = \alpha\vec{E} \quad (2.1.14)$$

Die Polarisierbarkeit von makroskopischen Materialien kann mithilfe der *Clausius-Mossotti-Gleichung* beschrieben werden:

$$\frac{\epsilon_r - 1}{\epsilon_r + 2} = \frac{N}{3\epsilon_0} \alpha, \quad (2.1.15)$$

wobei N die Teilchendichte beschreibt. Die Polarisierbarkeit von Nanopartikeln und Nanoantennen ist jedoch im Allgemeinen ein komplexerer Zusammenhang und wird in Kapitel 3.2.2 genauer beschrieben.

Der Poyntingvektor. Mittels des Poyntingvektors können Aussagen über den Energiefluss getroffen werden. Seine Richtung entspricht der Richtung des Energieflusses und seine Länge (sein Betrag) entspricht der Intensität. Er ist definiert als:

$$\vec{S} = \vec{E} \times \vec{H}. \quad (2.1.16)$$

Für zeitharmonische Signale ist der komplexe Poyntingvektor definiert als:

$$\vec{S} = \frac{1}{2} (\vec{E} \times \vec{H}^*). \quad (2.1.17)$$

Der zeitlich gemittelte Poyntingvektor ist dann:

$$\langle \vec{S} \rangle = \frac{1}{2} \text{Re} (\vec{E} \times \vec{H}^*).$$

2.2. Antennen

In diesem Kapitel wird ein Überblick über die Grundlagen von Antennen gegeben. Eine weiterführende, detailliertere Betrachtung findet sich in den Referenzen [4–6]. Dieses Kapitel wird sich auf diejenigen Grundlagen konzentrieren, die für das Verständnis von optischen Antennen relevant sind.

Eine Antenne ist ein Bauteil, welches elektromagnetische Strahlung empfangen und/oder absenden kann. Sie dient als Koppelement zwischen frei propagie-

render Strahlung und stark lokalisierten Nahfeldern. Herkömmliche Antennen arbeiten in einem Frequenzbereich zwischen 10 kHz und mehreren hundert GHz. Antennen werden klassischerweise in folgende Gruppen unterteilt [6]:

- elektrisch kleine Antennen
- resonante Antennen
- breitbandige Antennen
- Aperturstrahler

Bei den in dieser Arbeit betrachteten Antennen handelt es sich um resonante Antennen.

Zur einfacheren Betrachtung des Verhaltens von Antennen haben sich einige vereinfachte Annahmen etabliert, die im Hochfrequenzbereich (HF-Bereich) auch gut zutreffen:

- Die Metalle, aus denen die Antennen hergestellt sind, werden als perfekter elektrischer Leiter betrachtet.
- Die Eindringtiefe ist gegenüber dem Leiterdurchmesser vernachlässigbar klein. Es kann deshalb von Oberflächenströmen ausgegangen werden.
- Bei vielen Betrachtungen ist der Durchmesser des Leiters gegenüber der Leiterlänge vernachlässigbar.
- Für Antennen mit einem Antennenspalt (weiter unten erläutert) kann angenommen werden, dass dieser Spalt unendlich klein ist und die Antenneneigenschaften nicht weiter beeinflusst, sondern lediglich als Speisepunkt dient.

Aus dem Reziprozitätstheorem [5] folgt, dass ein und dieselbe Antenne als Sendeantenne und Empfangsantenne eingesetzt werden kann und dass die Richtcharakteristiken sowohl im Empfangs- als auch im Sendefall identisch sind.

2.2.1. Nah- und Fernfeld von Antennen

Obwohl der Übergang zwischen dem Nah- und dem Fernfeld einer Antenne fließend ist, ist es trotzdem wichtig zwischen beiden Bereichen zu unterscheiden, da beide ihre eigenen Gesetzmäßigkeiten haben. Es gibt unterschiedliche Definitionen, wo das Nahfeld endet und wo das Fernfeld anfängt, sie hängen aber alle von der Wellenlänge ab. Bei den meisten Definitionen wird zwischen dem Nah- und Fernfeld noch ein Übergangsbereich definiert. Am weitesten verbreitet sind zum einen die Definition für sehr kleine Antennen bzw. Hertz'sche Dipolemitter (siehe Kapitel 2.2.4) und zum anderen die Definition für Antennen, deren Dimension größer als $\lambda/2$ (mit der Wellenlänge λ) ist.

Für Hertz'sche Dipole und kleine Antennen ist das Nahfeld der Bereich in dem gilt: $r < \frac{\lambda}{2\pi}$ (wobei r der Abstand zur Antenne ist). Im Nahfeld liegt hauptsächlich gespeicherte, also imaginäre Energie vor. Daran schließt sich der Übergangsbereich an, der Anfang des Fernfelds ist weniger exakt definiert, wird aber häufig als $r \gg \frac{\lambda}{2\pi}$ angegeben. Im Fernfeld ist der größte Teil der Energie strahlend bzw. reell [5].

Für elektromagnetisch große Antennen wird das Nahfeld in das reaktive Nahfeld und das strahlende Nahfeld (auch Fresnel-Zone genannt) unterteilt. Das reaktive Nahfeld ist der Bereich für den gilt $0,62\sqrt{l^3/\lambda} > r$, wobei l bei den hier untersuchten Antennen die Antennenlänge ist. Der Übergangsbereich, also die Fresnel-Zone, ist begrenzt durch $0,62\sqrt{l^3/\lambda} < r < 2l^2/\lambda$. Jenseits davon, also für $r > 2l^2/\lambda$, beginnt das Fernfeld, auch Fraunhofer-Region genannt [5].

Unabhängig von der genauen Definition ist das Nahfeld der Bereich nahe um die Antennenstruktur, in dem die Felder noch stark an die Antenne gebunden sind. Hier können evaneszente Felder existieren und das elektrische und magnetische Feld können stark voneinander abweichen. Bei elektrischen Dipolen nehmen die Felder im Nahfeld proportional zu $1/r^3$ ab.

Im Fernfeld dagegen können nur nicht evaneszente, propagierende Wellen existieren. Die Felder sind hier nicht mehr an eine Antennenstruktur gebunden. Das

elektrische Feld und das magnetische Feld erzeugen sich stets gegenseitig neu. Im Fernfeld nehmen die Felder proportional zu $1/r$ ab.

Für die vorliegende Arbeit ist die Unterscheidung auch deshalb wichtig, weil vereinfacht gesagt das Nahfeld das ist, was simuliert werden kann und das Fernfeld das ist, was gemessen wurde. Zwischen diesen beiden Bereichen muss deshalb eine Verbindung gefunden werden um sie vergleichen zu können. Aus dem Nahfeld einer Antenne in Luft lässt sich mit Hilfe der Stratton-Chu-Formel das Fernfeld berechnen [7]. Benötigt man jedoch keine winkelaufgelösten Informationen, so genügt es teilweise auch nur die Leistungsbilanz anzuschauen. Leistung die aus dem Fernfeld ins Nahfeld transportiert und nicht wieder abgestrahlt wird, wurde folglich dort absorbiert.

2.2.2. Impedanz und Impedanzanpassung

Eine sehr hilfreiche Denkweise in der Antennentheorie ist die Impedanzbetrachtung. Wie weiter unten erläutert, ist es jedoch nicht ganz einfach diese Denkweise auch auf den Bereich der Nanoantennen zu übertragen. Klassische Antennen können meist als diskrete Bauelemente dargestellt werden. Diese besitzen wohldefinierte Anschlusspunkte, an denen sie mit anderen Bauteilen verbunden werden und an denen ihnen eine konkrete Impedanz zugeordnet werden kann. Vergleicht man beispielsweise die Impedanz der Zuleitung mit der Eingangsimpedanz der Antenne, so kann man ohne weitere Informationen über die genaue Beschaffenheit der Bauteile zu haben, Aussagen darüber treffen, wie viel Leistung aus der Leitung an die Antenne übertragen werden kann und umgekehrt. Bei perfekter Impedanzanpassung wird die maximal mögliche Leistung übertragen. Durch diese Betrachtung lassen sich einfache Ersatzschaltbilder erstellen. Dies ist schematisch in Abb. 2.2.1 gezeigt, wo eine Sendeantenne (Impedanz Z_{Ant}) über eine Übertragungsleitung (mit der Impedanz Z_{Trans}) an einen Generator (Z_{Gen}) angeschlossen ist. Ein typischer Wert für die Wellenimpedanz eines Koaxialkabels ist beispielsweise 50Ω . Auch dem freien Raum kann ein Wellenwiderstand von 377Ω zugeordnet werden.

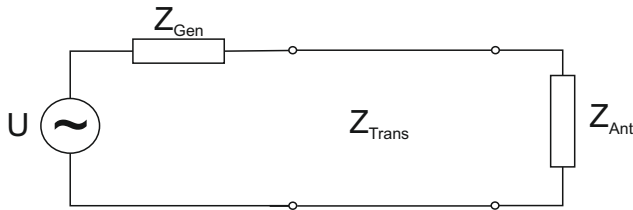


Abbildung 2.2.1.: Ersatzschaltbild einer Sendeantenne mit Generator und Übertragungsleitung.

2.2.3. $\lambda/2$ -Dipolantennen

Die wohl einfachste Antenne ist eine Dipolantenne, ein Stab der Länge $\lambda/2$. Auch dies ist eine hilfreiche Vereinfachung bei klassischen Antennen. Ohne Informationen über die genauen Materialeigenschaften oder den Querschnitt der Antennen kann direkt von der Länge auf die Resonanzwellenlänge geschlossen werden. Oft wird ein $\lambda/2$ -Dipol in zwei $\lambda/4$ -Stücke mit einem kleinen Spalt in der Mitte geteilt. Dieser Spalt wird dann Speisepunkt genannt und hier kann eine Übertragungsleitung angebracht werden. Der Speisepunkt weist eine Impedanz auf, die besser zu typischen Übertragungsleitungen passt als eines der Enden des Stabs. Das „Durchschneiden“ der Antenne in der Mitte ändert ansonsten die weiteren Antenneneigenschaften nicht signifikant. Man kann sich eine Dipolantenne als zwei abgelenkte Enden einer Übertragungsleitung vorstellen [5]. Verlaufen die beiden Leiter der Übertragungsleitung wie in Abb 2.2.2(a) dargestellt parallel, so wird keine Leistung ins Fernfeld abgestrahlt, da sich dort die Felder von beiden Leitern destruktiv überlagern. Wird nun jeweils ein Ende der passenden Länge abgelenkt (Abb 2.2.2(b)), so kann Leistung effizient abgestrahlt werden. Der Speisepunkt ist bei klassischen Antennen nur insofern von Bedeutung, dass er an die Quellenimpedanz angepasst ist und somit die geeignete Impedanz zum Speisen der Antenne hat. Bei Nanoantennen ist der Antennenspalt jedoch, wie weiter unten beschrieben, der wichtigste Bereich der Antenne.

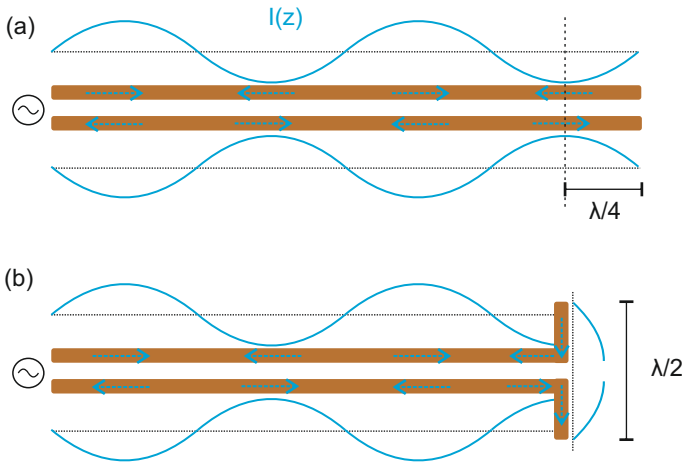


Abbildung 2.2.2.: Eine klassische Hochfrequenzdipolantenne wird über eine Übertragungsleitung (engl. transmission line) gespeist. (a) Im Fernfeld der Übertragungsleitung überlagern sich die Felder der beiden Leitungen destruktiv. (b) Am Ende der Übertragungsleitung sind jeweils Enden der Länge $\lambda/4$ abgeknickt, welche die Dipolantenne bilden, die effizient ins Fernfeld abstrahlen kann (adaptiert aus Ref. [5]).

2.2.4. Hertz'scher Dipol

Ein Hertz'scher Dipol ist eine punktförmige Quelle mit einem Dipolmoment \vec{p} . Die Abstrahlcharakteristik des elektrischen Feldes hat die Form eines Donuts, der senkrecht zur Orientierung des Dipols liegt. Die gesamte ins Fernfeld abgestrahlte Leistung beträgt [1]:

$$P = \frac{\omega^4 |\vec{p}|^2}{12\pi\epsilon_0\epsilon_r c^3}. \quad (2.2.1)$$

Der Hertz'sche Dipol bildet zwar die theoretische Grundlage der Antennen, ist aber keine real herstellbare und verwendete Antennen­geometrie. Für diese Arbeit ist er allerdings von doppelter Bedeutung, da zum einen Quantenemitter (eine der Anwendungen von Nanoantennen ist die Kopplung mit Quantenemittern) näherungsweise sehr gut als Hertz'sche Dipole beschrieben werden können und zum anderen einige Eigenschaften von Nanodipolantennen über den Hertz'schen Dipol verstanden werden können.

2.3. Plasmonik und Nanophotonik

Nanometerskalige Strukturen können Licht und Licht-Materie-Interaktionen in vielfältiger Art und Weise beeinflussen [8]. Hierbei spielen Oberflächenplasmonen eine entscheidende Rolle [9–11]. Plasmonik und Nanophotonik bieten eine Vielzahl von Möglichkeiten für neuartige Anwendungen, wie beispielsweise plasmonische Schaltkreise, die Informationen so schnell wie Licht und auf so kleinem Raum wie Elektronik übertragen können [12], verbesserte photovoltaische Bauteile [13], Sensorik [14] oder nichtlineare optische Anwendungen [15]. Die meisten plasmonischen Anwendungen basieren auf den speziellen Eigenschaften, die bestimmte Metalle bei optischen Frequenzen aufweisen können.

2.3.1. Verhalten von Metallen bei optischen Frequenzen

Im HF-Bereich können Metalle gut als perfekte elektrische Leiter angesehen werden. Die genauen Materialeigenschaften oder auch nur welches Metall verwendet wurde spielt eine untergeordnete Rolle. Für plasmonische Resonanzen sind jedoch die genauen Materialeigenschaften der verwendeten Metalle bei optischen Frequenzen wichtig.

2.3.1.1. Das Drude-Sommerfeld-Modell

Die einfachste Beschreibung eines Metalls stellt das Drude-Modell dar. Hier werden die Elektronen als frei bewegliche Elektronengaswolken vor einem fest sitzenden Gitter aus Atomrümpfen betrachtet. Durch Stöße mit den Atomrümpfen kommt es zu Dämpfung. Das Verhalten der Schwingung der Elektronengaswolke gegenüber den Atomrümpfen kann über einen harmonischen Oszillator genähert werden. Da im Drude-Modell die Elektronen nicht an die Atomrümpfe gebunden sind, gibt es hier jedoch keine Rückstellkraft und auch keine Resonanz. Die anregende Kraft ist hierbei ein externes elektrisches Feld, beispielsweise Licht, das auf die Metalloberfläche fällt. Die frequenzabhängige, dielektrische Funktion ergibt sich dann zu:

$$\epsilon_{\text{Drude}}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} \quad (2.3.1)$$

mit der Dämpfung γ . Die Plasmafrequenz ist:

$$\omega_p = \sqrt{\frac{Ne^2}{m\epsilon_0}} \quad (2.3.2)$$

mit der Elementarladung e , der Elektronendichte N und der Elektronenmasse m . Das Modell wurde von Sommerfeld insoweit erweitert, dass das Elektronengas als Fermi-Gas und nicht als freies Gas betrachtet wird. Hierfür wird die Elektronenmasse m durch die effektive Elektronenmasse m_{eff} ersetzt. Im Drude-Sommerfeld-Modell wird die Interbandabsorption von Materialien vernachlässigt. Diese wird im nachfolgend beschriebenen Lorentz-Drude-Modell berücksichtigt [16].

2.3.1.2. Das Lorentz-Modell

Das Lorentz-Modell wird typischerweise verwendet um Dielektrika zu beschreiben. Hierbei werden die Elektronen als an den Atomkern gebunden angesehen

und das Material kann als gedämpfter harmonischer Oszillator beschrieben werden. Wird eine Resonanz berücksichtigt, so ergibt sich die dielektrische Funktion zu:

$$\epsilon_{\text{Lorentz}}(\omega) = 1 + \frac{\omega_{\text{p,Lorentz}}^2}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega}. \quad (2.3.3)$$

Die Plasmafrequenz $\omega_{\text{p,Lorentz}}$ unterscheidet sich von der im Drude-Modell verwendeten Plasmafrequenz (Gleichung 2.3.2) insofern, dass die Dichte der freien Elektronen N durch die Dichte der gebundenen Elektronen N_{Gebunden} ersetzt wird. In der Realität haben Materialien meist nicht eine sondern viele Resonanzen. Daraus ergibt sich die Gleichung zu:

$$\epsilon_{\text{Lorentz}}(\omega) = 1 + \sum_m \frac{\omega_{\text{p,m}}^2}{\omega_m^2 - \omega^2 - i\gamma_m\omega}. \quad (2.3.4)$$

2.3.1.3. Das Lorentz-Drude-Modell

Das Lorentz-Drude-Modell kombiniert die beiden bisher vorgestellten Modelle. Somit können auch Metalle mit mehreren Interbandabsorptionsübergängen beschrieben werden:

$$\epsilon_{\text{Lorentz-Drude}}(\omega) = 1 - \frac{\omega_{\text{p}}^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} + \sum_m \frac{\omega_{\text{p,m}}^2}{\omega_m^2 - \omega^2 - i\gamma_m\omega}. \quad (2.3.5)$$

So ist es nun möglich das Verhalten von Metallen recht gut mit diesem einfachen Modell zu beschreiben. Dieses Modell kann jedoch trotz allem die tatsächliche dielektrische Funktion nicht perfekt wiedergeben. Gleichzeitig hängt die optische Antwort von plasmonischen Strukturen extrem sensibel von der dielektrischen Funktion des Metalls ab. Da eine gute Übereinstimmung mit Messungen hier im Fokus stand, wurde in dieser Arbeit auf experimentell bestimmte dielektrische Funktionen für Gold [17] und Aluminium [18] zurückgegriffen.

2.3.1.4. Die Eindringtiefe

Die Eindringtiefe δ eines Materials ist definiert als die Tiefe, bei der das Feld der einfallenden Welle auf den Wert $1/e$ seines Anfangswertes abgefallen ist². Sie berechnet sich nach:

$$\delta = \frac{\lambda}{2\pi\kappa}. \quad (2.3.6)$$

Berechnet man κ nach Gleichung 2.1.11 in Abhängigkeit von ϵ_r , erhält man:

$$\kappa = \sqrt{\frac{1}{2} \left(\sqrt{\epsilon_r'^2 + \epsilon_r''^2} - \epsilon_r' \right)}. \quad (2.3.7)$$

Aus dem Verhältnis von ϵ_r' und ϵ_r'' ergeben sich zwei verschiedene Grenzbereiche. Bei verhältnismäßig niedrigen Frequenzen, bei denen Metalle eine hohe Leitfähigkeit haben und $|\epsilon_r''| \gg |\epsilon_r'|$ mit $(\epsilon_r'' = \frac{\sigma'}{\omega\epsilon_0})$ ist, gilt $\kappa \approx \sqrt{\frac{1}{2}\epsilon_r''} = \sqrt{\frac{1}{2}\frac{\sigma'}{\omega\epsilon_0}}$. Die Eindringtiefe ergibt sich dann zur bekannten Formel [2]:

$$\delta_{\text{niedrigeFreq}} \approx \sqrt{\frac{2\epsilon_0 c^2}{\sigma' \omega}}. \quad (2.3.8)$$

Bei den hier betrachteten optischen Frequenzen haben Metalle jedoch einen stark negativen Realteil der dielektrischen Funktion $\epsilon_r' < 0$ und $|\epsilon_r'| \gg |\epsilon_r''|$. Daher ist $\kappa \approx \sqrt{|\epsilon_r'|}$ und die Eindringtiefe:

$$\delta_{\text{optischeFreq}} \approx \frac{\lambda}{2\pi\sqrt{|\epsilon_r'|}}. \quad (2.3.9)$$

Gold hat im betrachteten Wellenlängenbereich zwischen 400 nm und 1000 nm eine Eindringtiefe zwischen 25 nm und 45 nm. Die Eindringtiefe von Aluminium ist etwas geringer und liegt im selben Wellenlängenbereich zwischen 13 nm

²Teilweise wird zwischen der Tiefe unterschieden, bei der die einfallende Intensität auf $1/e$ abgefallen ist (δ_p) und der Tiefe, bei der die einfallende Welle auf $1/e$ und somit die einfallende Intensität auf $1/e^2$ abgefallen ist (δ). Wobei gilt: $2\delta_p = \delta$. Im Englischen wird teilweise δ_p als „penetration depth“ und δ als „skin depth“ bezeichnet. Die hier verwendete Eindringtiefe entspricht daher der englischen „skin depth“ und nicht der direkten Übersetzung „penetration depth“.

und 18 nm. Für Nanoantennen ist die Eindringtiefe insofern von Bedeutung, als dass sie gegenüber dem Antennenquerschnitt nicht mehr vernachlässigt werden kann und keine entsprechenden Näherungen wie in der Hochfrequenztechnik üblich ermöglicht. Es ist allerdings nicht möglich mit Hilfe der Eindringtiefe die Felder in Nanoantennen zu berechnen oder auch nur abzuschätzen. Wie auch die Felder um die Nanoantenne herum hängen die Felder in der Nanoantenne auch stark vom Resonanzverhalten ab und können durchaus die Feldstärke des einfallenden Feldes übersteigen. Die Formeln für die Eindringtiefe können für ausgedehnte Metalloberflächen verwendet werden. Für Nanopartikel gelten aber andere Gesetzmäßigkeiten.

2.3.2. Plasmonen und Oberflächenplasmonen

Der Name „Plasmon“ rührt von der Betrachtungsweise freier Ladungsträger in Festkörpern als freie Ladungsträgerwolke (einem Plasma) her. Hierbei unterscheiden sich Volumenplasmonen und Oberflächenplasmonen.

Volumenplasmonen sind quantisierte, longitudinale Ladungsträgerdichteschwingungen im Volumen eines Festkörpers [19]. Die Energie von Volumenplasmonen beträgt $\hbar\omega_p$. \hbar ist das reduzierte Planck'sche Wirkungsquantum.

Eine viel größere Bedeutung haben jedoch Oberflächenplasmonen. Häufig sind Oberflächenplasmonen als etwas Negatives bekannt: die Effizienz von fluoreszierenden Emittern nahe einer metallischen Struktur (Partikel, Oberfläche) ist signifikant schwächer als ohne diese Struktur. Dieser Effekt wird als „Quenching“ bezeichnet und ist zu einem Großteil auf die Anregung von plasmonischen Zuständen in den Metallstrukturen zurückzuführen, die dann meist nichtstrahlend relaxieren. Mit Hilfe der Plasmonik können aber auch unter Verwendung unterschiedlicher Nanostrukturen elektromagnetische Felder in einer, zwei oder drei Dimensionen lokalisiert werden [20] und somit komplett neuartige Möglichkeiten zur Kontrolle und zum Maßschneidern von Licht-Materie-Interaktionen geschaffen werden.

2.3.2.1. Propagierende Oberflächenplasmonen

Oberflächenplasmonen sind Ladungsträgerdichtoszillationen, die sich an der Oberfläche (von zumeist Metallen) befinden (Abb. 2.3.1(a)). Senkrecht zur Metalloberfläche haben sie in beide Richtungen ein sehr stark exponentiell abklingendes Feld. Daher ist ihre Energie auf einen sehr kleinen Bereich nahe der Metalloberfläche konzentriert und somit sind die entsprechenden Felder stark überhöht. Entlang der Metalloberfläche können Oberflächenplasmonen einige Mikrometer propagieren [21, 22]. Propagierende Oberflächenplasmonen stellen einen gekoppelten Zustand aus dem einfallendem Licht und der Ladungsträgerdichtoszillationen dar. Deshalb werden sie auch Oberflächenplasmonpolaritonen (engl. „surface plasmon polaritons“, SPPs) genannt. Oberflächenplasmonen unterscheiden sich von Licht unter anderem dadurch, dass sie bei gleicher Energie (bzw. Frequenz ω) eine deutlich kürzere Wellenlänge (bzw. eine deutlich größeren Wellenzahl k) haben (Abb. 2.3.1(b)). Dies ist vorteilhaft für die Umgehung des Diffraktionslimits, macht jedoch das Anregen von SPPs schwierig. Generell können propagierende Oberflächenplasmonen nicht ohne Weiteres mit frei propagierendem Licht angeregt werden. Zum Anregen von Oberflächenplasmonen müssen sowohl Energie als auch Wellenlänge übereinstimmen. Dies ist aufgrund der unterschiedlichen Dispersionsrelation nicht möglich (siehe Abb. 2.3.1 (b)). Die Dispersionsrelation von SPPs ist gegeben durch:

$$k_{\text{SPP}} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\left(\frac{\epsilon_{\text{Metall}} \epsilon_{\text{Medium}}}{\epsilon_{\text{Metall}} + \epsilon_{\text{Medium}}} \right)} \quad (2.3.10)$$

Eine Resonanz tritt auf, falls:

$$\epsilon_{\text{Metall}} = -\epsilon_{\text{Medium}}. \quad (2.3.11)$$

Da die dielektrische Funktion von Metallen einen Imaginärteil besitzt, die des umgebenden Mediums aber meist nicht, wird Gleichung 2.3.11 im Allgemeinen für reelle Frequenzen nicht erfüllt. Als Resonanzfrequenz kann man jedoch die Frequenz bezeichnen, bei der $\epsilon_{\text{Metall}} + \epsilon_{\text{Medium}}$ minimal wird. Man sieht, dass der

Realteil der dielektrischen Funktion des Metalls hierfür negativ sein muss, was für einige Metalle im optischen Frequenzbereich der Fall ist.

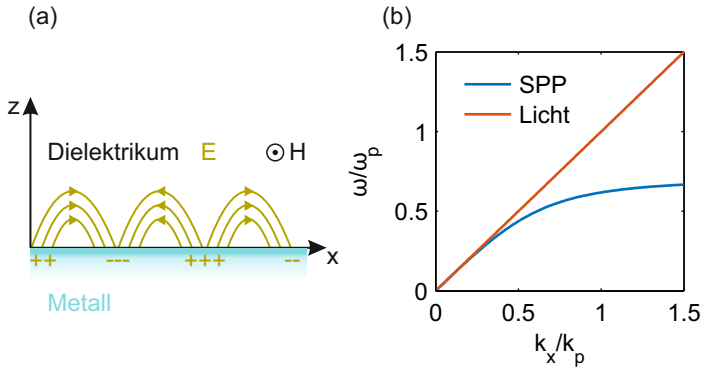


Abbildung 2.3.1.: Propagierende Oberflächenplasmonen: (a) Schematische Skizze der Feldverteilung an einer Metalloberfläche. (b) Dispersionsrelation von Licht und Oberflächenplasmonen. Adaptiert aus Ref. [21].

Es gibt verschiedene Möglichkeiten SPPs trotz des unterschiedlichen Wellenvektors anzuregen. Zunächst kann ein Prisma verwendet werden um Oberflächenplasmonen über evaneszente Wellen anzuregen. Hierbei wird ausgenutzt, dass über die evaneszenten Wellen Oberflächenplasmonen an der Metall-Luft Grenzfläche mit Licht des Wellenvektors aus dem Glassubstrat angeregt werden können. Hierbei ist das Prisma nötig um die passenden Winkel an der Grenzfläche zu realisieren. Es gibt zwei verschiedene Konfigurationen, bei denen entweder der Metallfilm direkt auf das Prisma aufgebracht wird (Kretschmann-Konfiguration) oder ein winziger Spalt zwischen Prisma und Metallfilm besteht (Otto-Konfiguration) [16, 22]. Eine alternative Möglichkeit ist ein Gitter zu benutzen [19]. Ein periodisches Bragg-Gitter besitzt verschiedene Moden, die für unterschiedliche Richtungen Wellenvektoren aufweisen, die deutlich von dem Wellenvektor des einfallenden Lichts abweichen. Auch hierdurch lassen sich Oberflächenplasmonen anregen.

Eine spezielle Klasse von Oberflächenplasmonen stellen die Partikelplasmonen dar. Partikelplasmonen werden im nächsten Abschnitt genauer beschrieben.

2.3.2.2. Partikelplasmonen

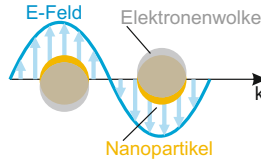


Abbildung 2.3.2.: Bei einem Partikelplasmon verschiebt sich die Elektronenwolke zum Nanopartikel und folgt dabei dem anregenden elektrischen Feld (adaptiert aus Ref. [23]).

Partikelplasmonen, auch lokalisierte Oberflächenplasmonen genannt, sind auf Nanopartikeln lokalisierte Resonanzen, bei denen sich die Elektronenwolke im gesamten Partikel relativ zum Nanopartikel verschiebt (Abb. 2.3.2). Insbesondere Partikelplasmonen können Licht in nanometerskalige Volumina konzentrieren [24]. Von besonderem Interesse sind plasmonische Resonanzen in Metallpartikeln [25]. Die Resonanzbedingung hängt von der genauen Geometrie des Partikels ab und weicht von der in Gl. 2.3.11 ab. Für Kugeln und Ellipsoide, die klein gegenüber der Wellenlänge sind, kann die Resonanzbedingung näherungsweise über die quasistatische Approximation bestimmt werden (eine ausführliche Beschreibung der quasistatischen Approximation ist in Kapitel 3.2.2 zu finden). Beispielsweise ist die Resonanzbedingung für Kugeln in der quasistatischen Approximation $\epsilon_{\text{Partikel}} = -2\epsilon_{\text{Medium}}$ (siehe auch Gl. 3.2.7). Generell erfordert eine bestimmte Nanopartikelgeometrie stets eine bestimmte Kombination aus dielektrischer Funktion des Partikels und des umgebenden Mediums, die zur Resonanz führen. Wie auch bei den propagierenden Oberflächenplasmonen (Gl. 2.3.11) muss hierfür der Realteil der dielektrischen Funktion negativ sein. Wie oben beschrieben wurde, ist eines der Hauptprobleme bei propagierenden Oberflächenplasmonen, dass der Impuls der Tangentialkomponente des einfallenden Lichts an den Impuls

des Oberflächenplasmons angepasst werden muss. Diese Problematik gibt es bei Partikelplasmonen in dieser Form nicht, da Partikelplasmonen lokalisiert sind und keinen Nettoimpuls haben.

2.3.3. Streuung und Absorption

Streuung ist eine der häufigsten und wichtigsten Wechselwirkungen von Licht mit Materie und findet eigentlich immer statt [26, 27]. Wichtige optische Phänomene wie Reflexion, Brechung und Beugung lassen sich auf Streuung zurückführen. Eine elektromagnetische Welle, die auf ein Molekül trifft, regt dieses gleich einem Dipol zu Schwingungen an. Dieser Dipol sendet dann wiederum eine elektromagnetische Welle aus, die sogenannte Sekundärstrahlung. Die Sekundärstrahlung von vielen Dipolen in dem Material sowie die einfallende Strahlung überlagern sich und bilden die tatsächlich vorhandenen elektromagnetischen Wellen. Hierbei ist die Phasenbeziehung zwischen den einzelnen Wellen von entscheidender Bedeutung. Dadurch entsteht auch die Winkelabhängigkeit der abgestrahlten Wellen [27]. Diese Arbeit konzentriert sich auf Streuung und Absorption von kleinen Partikeln. Ein allgemeines Streuproblem wird in Abb. 2.3.3 gezeigt [28]. Hierbei fällt auf einen Partikel eine ebene Welle mit den Feldern E_{Ein} und H_{Ein} . Diese werden an dem Streupartikel gestreut und dieser sendet die gestreuten Felder E_{Streu} und H_{Streu} aus. Die Gesamtfelder ergeben sich zu $E_{\text{Ges}} = E_{\text{Ein}} + E_{\text{Streu}}$ und entsprechend für die magnetischen Felder. So gesehen ist Streuung jegliche Abweichung vom einfallenden Feld.

2.3.3.1. Streu-, Absorptions- und Extinktionsquerschnitt

In den hier untersuchten Simulationen fällt eine ebene Welle mit einer bestimmten Intensität auf die Nanoantenne ein. Im Prinzip kann die einfallende ebene Welle sich (ab einer gewissen räumlichen Ausdehnung) beliebig weit um die Antennenstruktur ausdehnen ohne das physikalische Problem dabei zu beeinflussen. Daher ist es nicht sinnvoll die einfallende Welle durch ihre Leistung zu charakterisieren (zumal dies bei ebenen Wellen mit unendlicher Ausdehnung

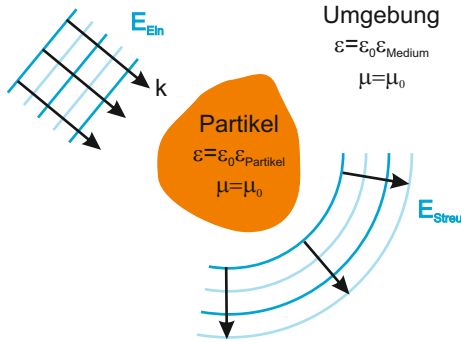


Abbildung 2.3.3.: Eine ebene Welle E_{Ein} fällt auf einen Streupartikel der gestreute Felder (E_{Streu}) aussendet. Die Gesamtfelder ergeben sich zu $E_{\text{Ges}} = E_{\text{Ein}} + E_{\text{Streu}}$ (adaptiert aus Ref. [28]).

sowieso nicht möglich ist). Vielmehr ist die Intensität, also die Leistung pro Fläche, für das beschriebene Problem entscheidend. In Abhängigkeit von der einfallenden Intensität wird von der Antenne eine bestimmte Leistung absorbiert und eine bestimmte Leistung gestreut. Da der Zusammenhang zwischen einfallender Intensität und absorbiert bzw. gestreuter Leistung in weiten Bereichen linear ist, kann man diese Leistungen auf die einfallende Intensität normieren und erhält somit eine Größe, die unabhängig von der einfallenden Intensität die Antennenstruktur charakterisiert. Diese Größe hat die Einheit m^2 und stellt den Absorptions- bzw. Streuquerschnitt dar. Anschaulich kann man sich den Streu- bzw. Absorptionsquerschnitt als die Fläche der einfallenden Welle vorstellen, aus welcher der betrachtete Partikel für den entsprechenden physikalischen Prozess (Streuung oder Absorption) Leistung entnimmt [16, 27]. Diese Fläche kann den geometrischen Querschnitt der Antenne um ein Vielfaches übersteigen. In diesem Fall sind die Feldlinien um die Nanostruktur so abgelenkt, dass Leistung aus einer viel größeren Fläche auf die Antenne einfällt. Dies wird für den Absorptionsquerschnitt anschaulich in Abbildung 2.3.4 gezeigt.

Streu-, Absorptions- und Extinktionsquerschnitt ergeben sich zu:

$$C_{\text{Streu}} = \frac{1}{I_0} \iint (\vec{n} \cdot \vec{S}_{\text{Streu}}) dS, \quad (2.3.12)$$

$$C_{\text{Abs}} = -\frac{1}{I_0} \iint (\vec{n} \cdot \vec{S}_{\text{Ges}}) dS, \quad (2.3.13)$$

$$C_{\text{Ext}} = -\frac{1}{I_0} \iint (\vec{n} \cdot \vec{S}_{\text{Ext}}) dS. \quad (2.3.14)$$

Hierbei ist I_0 die einfallende Intensität, S eine Hüllfläche, welche das streuende Objekt vollständig umschließt, \vec{n} der nach außen zeigende Normalenvektor und $\vec{S}_{\text{Streu,Ges,Ext}}$ sind die zeitlich gemittelten Poyntingvektoren für Streuung, gesamte Felder und Extinktion.

Das optische Theorem besagt, dass Leistung, die der einfallenden Welle entnommen wird (Extinktion), entweder zu Streuung oder Absorption führt:

$$C_{\text{Ext}} = C_{\text{Abs}} + C_{\text{Streu}}. \quad (2.3.15)$$

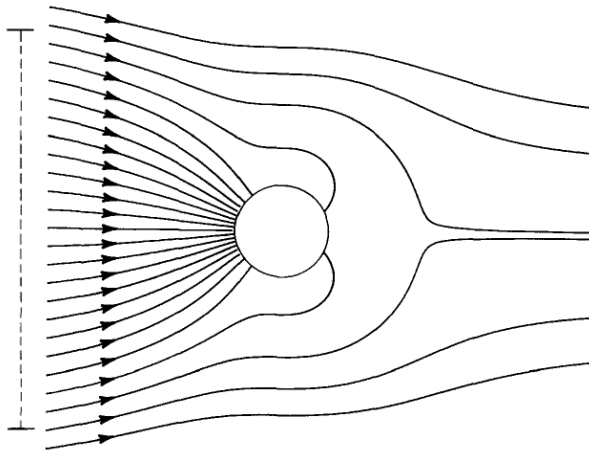


Abbildung 2.3.4.: Schematische Darstellung des Absorptionsquerschnitts eines Partikels in Resonanz. Durch den resonanten Partikel werden die Feldlinien des Poynting-Vektors der einfallenden Welle so beeinflusst, dass sie in Richtung des Partikels abgelenkt sind. Der Partikel absorbiert mehr Leistung als ohne Einfluss auf ihn einfallen würde. Der Absorptionsquerschnitt (am linken Rand skizziert) ist deutlich größer als der geometrische Querschnitt. (Reproduced with permission from Am. J. Phys. 51, 323 (1983). Copyright 1983, American Association of Physics Teachers [29]).

2.4. Nanoantennen

Ein zentrales Problem bei der optischen Untersuchung von diversen Materialien und Strukturen ist der extreme Größenunterschied zwischen der optischen Anregung und den Atomen, Molekülen oder Struktureinheiten, aus denen das entsprechende Material aufgebaut ist. Entscheidend hierbei ist das sogenannte Diffraktionslimit.

Licht kann mit herkömmlichen optischen Bauteilen nicht wesentlich kleiner als auf die halbe Wellenlänge fokussiert werden [16, 30]. Da die zu untersuchenden Strukturen Größen von einigen wenigen Nanometern haben, verteilt sich die zur Verfügung stehende Leistung auf eine Fläche, die die Struktur um mehrere Größenordnungen übersteigt. Außerdem ist auch keine ausreichende Auflösung dieser Strukturen möglich. Optische Antennen sind speziell optimierte Nanopartikel, auf denen sich Partikelplasmonen ausbilden, und stellen eine mögliche Lösung für diese Problematik dar. Da die Oberflächenplasmonen auf diesen Antennen eine völlig andere Wellenlänge besitzen, können eine viel stärkere Fokussierung und somit auch höhere Leistungsdichten und eine höhere Auflösung erreicht werden [31–36].

Auf Nanoantennen bilden sich stehende Wellen senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des einfallenden Lichts, also auch senkrecht zum Wellenvektor und entlang des \vec{E} -Feldvektors aus (siehe Abb. 2.4.1). Diese stehenden Wellen können als zwei Ladungsträgerdichteoszillationen mit entgegengesetzter Richtung und sich daher aufhebenden Impulsen betrachtet werden. Auslöser für die stehende Welle ist das oszillierende elektrische Feld, dessen Frequenz zu Material und Geometrie der Nanoantenne passen muss. Die genaue Geometrie ermöglicht eine diskrete Anzahl an möglichen Resonanzen. Die diskreten Resonanzen sind jedoch durch die starke Dämpfung von Metallen bei optischen Frequenzen stark verbreitert.

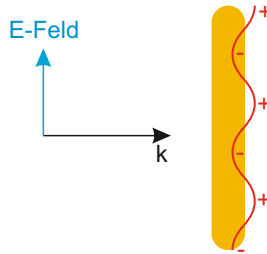


Abbildung 2.4.1.: Ladungsträgerdichteoszillation auf einer Nanoantenne (adaptiert aus Ref. [37]).

2.4.1. Charakteristische Besonderheiten von Nanoantennen

Obwohl viel über Nanoantennen aus der klassischen Antennentheorie gelernt werden kann, so bestehen doch entscheidende Unterschiede zwischen beiden. Viele dieser Unterschiede führen auch zu starken Herausforderungen, die zusammen mit der Schwierigkeit so kleine Strukturen herzustellen dafür verantwortlich sind, dass Nanoantennen erst in der kürzeren Vergangenheit anfangen Verbreitung zu finden.

Anders als im HF-Bereich können Metalle bei optischen Frequenzen nicht mehr als perfekte Leiter angesehen werden. Die Elektronen im Metall können den extrem schnellen optischen Frequenzen des einfallenden Lichts nicht mehr folgen. Die Oberflächenelektronen schirmen das einfallende Feld daher nicht mehr perfekt ab. Die einlaufende Welle kann in das Metall eindringen und dort kommt es zu Verlusten. Dies zeigt sich auch daran, dass die Eindringtiefe von Metallen bei optischen Frequenzen und die Antennenstruktur in derselben Größenordnung liegen (siehe Kapitel 2.3.1.4). Deshalb heizen sich resonante optische Antennen stark auf und es besteht die Gefahr, dass sie schmelzen. Des Weiteren sind optische Antennen im Gegensatz zu HF-Antennen von Verschiebungsströmen und nicht von Leitungsströmen dominiert [36]. Optische Antennen können auch nicht

mehr als unendlich dünne Leiter betrachtet werden. Ihr Verhalten wird maßgeblich durch die bereits beschriebenen plasmonischen Resonanzen dominiert und erschwert eine einfache Interpretation durch klassische Antennenmodelle. Bei optischen Antennen ist es auch nicht mehr ohne Weiteres möglich aus diskreten Bauelementen zusammengesetzte Ersatzschaltkreise zu finden, die ihr Verhalten (wie in Kapitel 2.2.2 beschrieben) einfach vorhersagen. Es gibt jedoch gegenwärtig eine große Anzahl von Arbeiten, die sich damit beschäftigen die Konzepte von Impedanz und Impedanzanpassung trotzdem auf optische Antennen zu übertragen [38–41].

Antennen gleicher Geometrie aber aus unterschiedlichen Metallen besitzen deutlich unterschiedliche Resonanzwellenlängen. Somit können verschiedene Spektralbereiche abgedeckt werden [42–46]. Während Silber und Aluminium gut für den höherfrequenten Anteil des sichtbaren Spektrums geeignet sind, decken Gold und Kupfer besser den niederfrequenten Anteil ab. Das Verhalten der Nanoantennen hängt ebenfalls sehr stark vom umgebenden Material ab.

2.4.1.1. Blitzableitereffekt

Der Blitzableitereffekt spielt eine wichtige Rolle in vielen plasmonischen Bauteilen [47, 48], so auch in Nanoantennen. Generell tritt er an spitzen Metallenden auf. Hierbei werden Oberflächenladungen aufgrund der Kontinuitätsbedingungen für elektrisches und magnetisches Feld in kleinen Metallvolumina lokalisiert. Es treten also wie bei der Anregung von Oberflächenplasmonen Feldüberhöhungen auf. Anders als die Feldverstärkung durch plasmonische Resonanzen tritt der Blitzableitereffekt auch bei statischen Feldern auf. Es handelt sich hierbei um keinen resonanten Effekt. Bei der Untersuchung von Nanoantennen ist es wichtig die beiden Ursachen von Feldüberhöhungen getrennt voneinander zu untersuchen und zu verstehen. Je nach Design kann es aber von Vorteil sein beide miteinander zu kombinieren und somit noch höhere Feldverstärkungen zu erreichen.

2.4.2. Gütefaktor

Der Gütefaktor wird auch Q-Faktor (englisch Q-factor, quality factor) genannt und ist eigentlich ein Maß für die Qualität von Resonatoren:

$$Q = \frac{\omega_{\text{res}} U}{P} = \frac{\omega_{\text{res}} U}{P_{\text{abs}} + P_{\text{rad}}}. \quad (2.4.1)$$

Hierbei ist ω_{res} die Resonanzkreisfrequenz, U die gespeicherte Energie und P der zeitlich gemittelte Leistungsverlust. P_{abs} ist der absorbierte und P_{rad} der abgestrahlte Leistungsverlust [49]. Nanoantennen mit einem hohen Q-Faktor speichern viel Energie im Nahfeld. Ist der Q-Faktor gering, so wird entweder viel Leistung abgestrahlt oder absorbiert.

Der Gütefaktor lässt sich auch als

$$Q = \frac{f_{\text{res}}}{FWHM} \quad (2.4.2)$$

ausdrücken (f_{res} ist die Resonanzfrequenz und $FWHM$ die spektrale Halbwertsbreite (engl. „full width at half maximum“)).

In seiner klassischen Verwendung als Gütemaß für Resonatoren ist ein höherer Q-Faktor stets wünschenswert. Aus dieser Sichtweise sind die Q-Faktoren von Nanoantennen, die in der Größenordnung von 10-50 liegen, sehr schlecht. Bei Nanoantennen ist jedoch nicht zwangsläufig ein höherer Gütefaktor besser, da beispielsweise eine sehr schmale Bandbreite nicht immer wünschenswert ist. Auch ist entscheidend, dass das Modenvolumen bei optischen Antennen viel geringer ist als bei herkömmlichen optischen Kavitäten.

2.4.3. Nanodipolantennen

Die nächstliegende und eine häufig verwendete Nanoantennenstruktur ist die Dipolantenne, wie sie in Kapitel 2.2.3 vorgestellt wurde. Obwohl es einige Ansätze

gibt, die Nanoantennen mit einer elektrischen Zuleitung ähnlich der Hochfrequenzübertragungsleitungen zu verbinden, bestehen die meisten bisher realisierten Nanodipolantennen nur aus der eigentlichen Antennenstruktur. Hierbei gibt es sowohl einzelne Dipolantennen [50, 51] als auch gekoppelte Dipolantennen mit einem wenige Nanometer großen Spalt [31, 52–54]. Diese Strukturen sind auch Ausgangspunkt für die meisten in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen. Nanoantennen lassen sich jedoch nicht so einfach wie HF-Antennen über das Verhältnis von Antennenarmlänge und Wellenlänge charakterisieren. Das qualitative und quantitative Verhalten von Nanodipolantennen ist deutlich komplexer und schwieriger vorherzusagen als das von herkömmlichen HF-Dipolantennen.

Detailliert wird auf die verschiedenen bisherigen Ansätze zur genauen Beschreibung des Skalierungsverhaltens von Nanodipolantennen in Kapitel 4.1.1 eingegangen. Ein Ansatz, der es ermöglicht ein möglichst intuitives Verständnis von Nanodipolantennen trotz ihrer charakteristischen Besonderheiten zu behalten, ist das Skalieren der Wellenlänge auf eine sogenannte effektive Wellenlänge [37]. In diese effektive Wellenlänge (welche deutlich kürzer ist als die ursprüngliche Wellenlänge) gehen alle materialspezifischen Eigenschaften ein. Insbesondere wird auch der Phasensprung an den Antennenenden berücksichtigt, der bei Nanoantennen von entscheidender Bedeutung ist. Die effektive Wellenlänge ergibt sich dann zu:

$$\lambda_{\text{eff}} = n_1 + n_2 \frac{\lambda}{\lambda_p}. \quad (2.4.3)$$

Hier ist λ_p die Plasmawellenlänge und n_1 und n_2 sind Faktoren, die von den Geometrieigenschaften sowie von den dielektrischen Eigenschaften der Antenne abhängen. Die so berechnete effektive Wellenlänge kann nun beispielsweise für die Berechnung der Länge einer $\lambda/2$ -Antenne verwendet werden. Zur Berechnung der Faktoren ist jedoch eine numerische Lösung notwendig.

Alternativ zur Beschreibung von Nanodipolantennen analog zur klassischen Antennentheorie können diese als elongierte Nanopartikel mit plasmonischen Resonanzen betrachtet werden (siehe quasistatische Approximation in Kapitel 3.2.2 sowie das einleitende Kapitel 4.1.1). Eine längere Nanoantenne entspricht hierbei zunächst einem stärker elongierten Nanopartikel. Abhängig von der genauen

Partikelgeometrie verschiebt sich die dielektrische Funktion, für welche die Resonanz auftritt (vgl. Gl. 3.2.10) und somit auch die Resonanzfrequenz. Im Grenzfall können diese beiden Betrachtungsweisen ineinander überführt werden [55].

2.4.4. Plasmonenhybridisierung

In Nanoantennen werden häufig die herausragenden Eigenschaften von gekoppelten Nanostrukturen ausgenutzt. Koppeln zwei Nanopartikel miteinander so kommt es zur Plasmonenhybridisierung und neue Moden entstehen [56]. Bei dieser Betrachtungsweise besteht eine starke Analogie zur Betrachtung von Atomorbitalen. Genau wie dort entstehen bindende und antibindende Zustände [57]. Die beiden Nanopartikel (bzw. Nanoantennenstrukturen) können hierbei als gekoppelte harmonische Oszillatoren betrachtet werden (Abb. 2.4.2(a)) [35]. Abb. 2.4.2(b) zeigt wie durch die Kopplung zwei Hybridzustände entstehen, wobei der bindende Zustand bei niedrigeren Energien/Frequenzen (Rotverschiebung der Wellenlänge) und der antibindende Zustand bei höheren Energien/Frequenzen (Blauverschiebung der Wellenlänge) liegt. Bringt man die beiden Nanopartikel noch näher aneinander, so wird die Aufspaltung stärker und die beiden Moden entfernen sich noch weiter voneinander. Für sehr kleine Abstände spielen höhere Ordnungen (Multipoloszillationen) eine wichtige Rolle und das Verhalten weicht von dem gekoppelter Dipole ab.

Nur der bindende Zustand kann durch eine ebene Welle aus dem Fernfeld angeregt werden. Der antibindende Zustand benötigt eine Asymmetrie um angeregt zu werden. Dies kann beispielsweise durch Nahfeldanregung mit einem Quantenemitter oder durch ein Gauß-förmiges Anregeprofil aus dem Fernfeld, welches bezüglich der Nanoantenne räumlich leicht versetzt ist, erreicht werden [54].

Generell entstehen vor allem im bindenden Zustand starke Feldüberhöhungen zwischen den beiden Nanopartikeln.

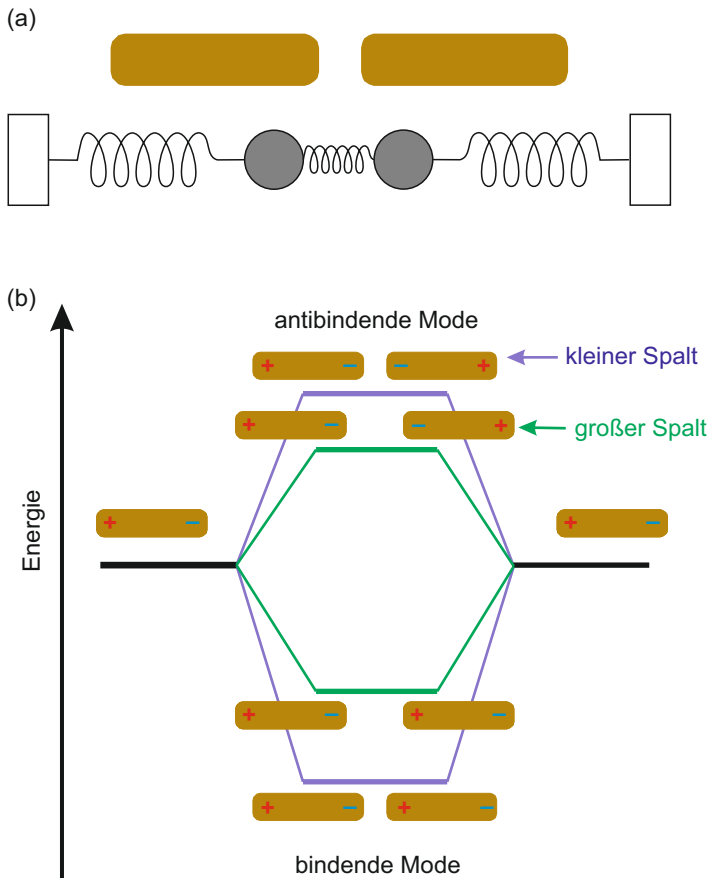


Abbildung 2.4.2.: Schematische Darstellung der Plasmonenhybridisierung in Nanoantennen. (a) die Kopplung zweier Nanopartikel kann als Kopplung zweier harmonischer Oszillatoren dargestellt werden. (b) Durch die Kopplung entstehen zwei Hybridzustände, wobei einer zu höheren (antibindende Mode) und einer zu niedrigeren Energien (bindende Mode) verschoben ist. Die Verschiebung nimmt zu, wenn der Abstand zwischen den beiden Partikeln abnimmt (adaptiert aus Ref. [35]).

2.4.5. Herstellung und Vermessung von Nanoantennen

Die simulativen Ergebnisse in dieser Arbeit werden auch mit experimentellen Daten verglichen und in Kapitel 6 werden die Konturen von real hergestellten Antennen aus Mikroskopiebildern extrahiert. Hier wird daher ein kurzer Überblick über die Grundlagen der Herstellung und der Messtechnik gegeben. Die in dieser Arbeit vorgestellten experimentellen Daten basieren auf von Matthias Wissert, Katja Dopf und Patrick Schwab hergestellten und vermessenen Nanoantennenstrukturen.

Herstellung. Die Herstellung von maßgeschneiderten, reproduzierbaren einzelnen Nanoantennen stellt eine große Herausforderung dar [58]. Insbesondere ein kontrolliertes Herstellen von Nanospalten ist anspruchsvoll. Eine der am häufigsten verwendeten Methoden ist die Elektronenstrahlithographie. Diese wurde auch für die Herstellung aller Strukturen, deren experimentellen Messungen in dieser Arbeit zum Vergleich herangezogen wurden, verwendet (siehe Abb. 2.4.3).

Bei der Elektronenstrahlithographie wird auf ein mit einem leitfähigen Material (hier Indiumzinnoxid (ITO)) beschichtetes Glassubstrat zunächst ein Lithographielack aufgebracht. Danach wird das Substrat mit einem Elektronenstrahlithographiesystem abgerastert und beschrieben. Daraufhin wird die Probe entwickelt, so dass nur an den Stellen, an denen sich später die Nanoantenne befinden soll das ITO-beschichtete Substrat frei liegt und ansonsten der Lithographielack stehen bleibt. Als Nächstes wird die komplette Probe in einer Aufdampfanlage mit Gold bedampft. In einem sogenannten „Lift-Off-Prozess“ wird nun der Lithographielack und somit auch das sich darauf befindliche Gold entfernt. Nur an den beschriebenen Stellen, an denen das Gold direkt auf das Substrat aufgedampft wurde, bleibt dieses stehen. Diese übrige Nanostruktur bildet dann die eigentliche Nanoantenne.

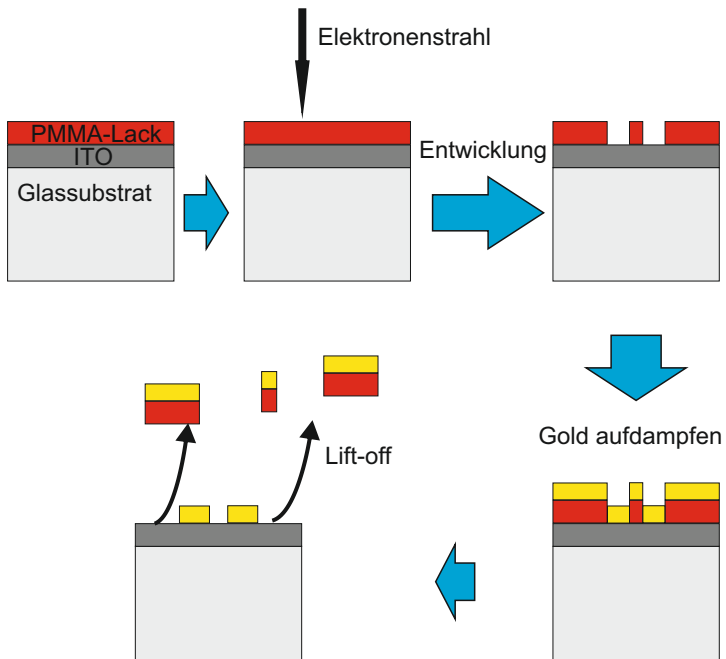


Abbildung 2.4.3.: Herstellungsprozess von Nanoantennen mittels Elektronenstrahlithographie.

Charakterisierung. Es gibt verschiedene Methoden die Antennen­geometrie zu vermessen. Dies kann beispielsweise mit Rasterkraftmikroskopie (engl. atomic force microscopy, kurz AFM) [59] oder Rasterelektronenmikroskopie (kurz REM) geschehen [60].

Bei der Rasterkraftmikroskopie wird die zu vermessende Struktur mit der wenige Nanometer großen Spitze eines Cantilevers abgerastert. Es sind verschiedene Betriebs­modi möglich um Höheninformationen des Profils zu gewinnen. Die Höhen­information kann mittels eines Lasers der Ablenkungen detektiert sehr genau bestimmt werden. Die Auflösung in der Ebene ist jedoch durch die Spitzengröße beschränkt. Es kommt hierbei zu einer Faltung der Spitzengeometrie mit der eigentlichen Struktur.

Für die Rasterelektronenmikroskopie kann dasselbe System verwendet werden wie für die Elektronenstrahl­lithographie. Hierbei wird jedoch kein Lithographie­lack beschrieben, sondern die Elektronen­rückstreuung wird mit Elektronendetektoren detektiert. REM ermöglicht eine sehr hohe Auflösung der Struktur in der Ebene, bietet aber keine Höhen­information.

Neben der reinen Vermessung der Nanoantennengeometrie gibt es verschiedene Möglichkeiten die spektralen Eigenschaften von Nanoantennen zu untersuchen. Ein oft verwendetes lineares Verfahren ist die Dunkelfeldmikroskopie. Hierbei wird inkohärentes Weißlicht an der Struktur gestreut. Der Strahlengang wird so gelenkt, dass der anregende Strahl am Detektor vorbeigeht und nur gestreutes Licht detektiert wird.

Ein nichtlineares Verfahren ist die zweiphotoneninduzierte Photolumineszenz. Hierbei wird die Antennenstruktur durch einen intensiven, gepulsten Laserstrahl angeregt, der nichtlineare optische Prozesse, unter anderem Zweiphotonenabsorption, in der Nanostruktur anregt. Diese Anregung kann dann (neben anderem) über die Anregung eines Partikelplasmons und dessen strahlende Rekombination emittieren. Die emittierte Strahlung enthält die komplette spektrale Information des Partikelplasmons.

2.4.6. Nanoantennen und Quantenemitter

Optische Antennen können mit Quantenemittern im Nahfeld koppeln und ihre Lumineszenz verstärken [36, 51, 61–66]. Dies stellt eine der attraktivsten, aber auch herausforderndsten Anwendungen dar. Die vier häufigsten optischen Emittter können in die Gruppen (i) Atome und Ionen, (ii) organische, fluoreszierende Emittter, (iii) halbleitende Quantenpunkte und (iv) plasmonische Nanokristalle unterteilt werden [67]. Nanoantennen können bei passendem Design die spontanen Emissionsraten von Quantenemittern erhöhen [68]. Generell können optische Antennen helfen, dass Emittter effizienter angeregt werden und/oder effizienter emittieren.

Einzelphotonenquelle. Einzelphotonenquellen werden für Quantencomputer und Quantenkryptographie benötigt. Da in diesem Fall der Quantenemitter zuverlässig genau ein Photon emittieren oder absorbieren soll, ist ein optimiertes Koppellement zu frei propagierendem Licht notwendig. Nanoantennen sind hierfür die idealen Kandidaten. Insbesondere für ihren Einsatz in Einzelphotonenquellen ist es wichtig, dass die Nanoantennen eine gute Richtcharakteristik aufweisen. Hier gibt es eine Vielzahl von Forschungsaktivitäten, die darauf abzielen stark gerichtete Nanoantennen zu realisieren. Dies ist beispielsweise durch Verwenden des aus dem HF-Bereich bekannten Yagi-Uda-Designs möglich [69, 70].

Quenching. Zwar können optische Antennen die Emission von Emitttern signifikant steigern, allerdings ist hierbei der Abstand zwischen Emittter und Antenne extrem wichtig. Zum einen muss der Emittter sehr nahe an der Antenne sein, da die überhöhten Felder nur im Nahfeld der Antenne existieren und sehr schnell exponentiell abklingen. Auf der anderen Seite ist aber ein minimaler Abstand nötig, da es sonst zu sogenanntem Quenching kommt. Quenching ist ein Überbegriff für mehrere nichtstrahlende Rekombinationsmechanismen, die bevorzugt bei extrem kleinen Abständen bis hin zu einem Berühren auftreten. Es ist daher wichtig sich genaue Gedanken über das Design des Nanoantennen-Quantenemittersystems

zu machen um somit zu erreichen, dass die Verstärkung über das Quenching dominiert und es zu einer Nettoerhöhung kommt [67].

Purcell-Faktor und Purcell-Effekt. Der Purcell-Faktor beschreibt die Verstärkung der spontanen Emission eines Emitters in einer bestimmten Umgebung im Vergleich zu einem freistehenden Emitter [71]. Für den Einfluss der Umgebung auf die Emission des Emitters ist vor allem die lokale Zustandsdichte (engl. local density of states; LDOS) ausschlaggebend. Ursprünglich wurde das Konzept des Purcell-Faktors auf Kavitäten mit einer sehr hohen Güte angewendet. Inzwischen wird es aber auch verwendet, um die Fluoreszenzverstärkung in der Nähe von optischen Antennen zu beschreiben [72].

Schwache und starke Kopplung. Bei der Kopplung von Quantenemittern mit Nanoantennen kann man generell zwei Bereiche unterscheiden. Den Bereich der schwachen Kopplung und den Bereich der starken Kopplung. Im Bereich der schwachen Kopplung ändert sich die Frequenz der spontanen Emission des Quantenemitters nur wenig durch die Interaktion mit beispielsweise der optischen Antenne. Der Einfluss der optischen Antenne beschränkt sich auf eine Verstärkung der Effizienz. Anders bei starker Kopplung, die auch erst bei kleineren Abständen auftritt. Hier kommt es zu Hybridzuständen. [36]

2.4.7. Weitere Anwendungen von Nanoantennen

Nanoantennen können in vielen unterschiedlichen Bereichen eingesetzt werden. Beispielsweise können eine Vielzahl von periodisch oder unsystematisch angeordneten Nanoantennen helfen die Effizienzen von Solarzellen zu steigern [73]. Wie auch bei herkömmlichen Antennen können Nanoantennen als Arrays realisiert werden [74]. Darüber hinaus können Nanoantennen optische Sensoren und Photodetektoren verbessern [75] und neuartige Technologien zur Photodetektion ermöglichen [76, 77]. Analog zum Einsatz in lichtabsorbierenden Bauteilen

können Nanoantennen in lichtemittierenden Bauteilen wie herkömmliche Leuchtdioden [78] oder auch organische Leuchtdioden verwendet werden [79].

Durch die hohen Nahfeldverstärkungen, die insbesondere in gekoppelten Nanoantennenstrukturen auftreten, sind sie ideale Kandidaten für nichtlineare optische Anwendungen [15] wie etwa Frequenzverdoppelung [80], Frequenzverdreifung [81] oder zweiphotoneninduzierte Lumineszenz [82, 83].

Ein fundamental neues Konzept stellen plasmonische Schaltkreise dar, in denen Informationen mit der Geschwindigkeit von Licht, aber der räumlichen Ausdehnung von Elektronik, verarbeitet werden können [12, 84]. Für dieses Konzept sind Schnittstellen mit frei propagierendem Licht notwendig, wobei Nanoantennen hier die idealen Kandidaten sind. Hierfür werden Nanoantennen an plasmonische Wellenleiter gekoppelt [41, 85, 86].

Einen großen Anwendungsbereich stellen biologische und chemische Mikroskopie- und Spektroskopieanwendungen dar [87]. Hierbei wird vor allem die deutlich höhere räumliche Auflösung, die mit Nanoantennen erreicht werden kann, ausgenutzt. Die Raman-Spektroskopie, durch die verschiedenste Materialien über charakteristische vibronische Resonanzen eindeutig identifiziert werden können, hat intrinsisch eine sehr schlechte Effizienz. Daher wird fast immer die sogenannte oberflächenverstärkte Ramanstreuung (engl. surface enhanced Raman scattering, SERS) verwendet. Diese Oberflächenverstärkung rührt zu einem Großteil von plasmonischen Effekten. Mit Nanoantennen kann hierbei gleichzeitig eine hohe räumliche Auflösung erreicht werden [88].

Ein viel diskutiertes Konzept ist die Verwendung von Nanoantennen in sogenannten optischen „Rectennas“ [89–91]. Das Wort ist aus den beiden englischen Wörtern „rectifying“ (Gleichrichten) und „antenna“ zusammengesetzt und beschreibt ein Bauteil aus einer Antenne und einer Gleichrichterdiode, bei der elektromagnetische Strahlung direkt und ohne Verwendung eines Halbleiters in Strom umgewandelt werden kann. Rectennas wurden bereits in den 1960ziger Jahren für den HF-Bereich realisiert [92]. Im optischen Wellenlängenbereich ist das Konzept insofern besonders attraktiv, als dass es potentiell hocheffiziente

Solarzellen ermöglicht, die nicht von dem Shockley-Queisser-Limit³ betroffen sind. Es bestehen jedoch extrem hohe Herausforderungen bezüglich der Realisierung von Nanoantennen, aber vor allem auch von Gleichrichterioden, die bei so hohen Frequenzen effizient funktionieren [93]. Bisher wurden lediglich einige „Proof-of-Principle“-Bauteile mit sehr schlechter Effizienz realisiert [90].

Alternativ können optische Antennen auch zur Energiegewinnung eingesetzt werden, indem sie helfen photokatalytisch Solarenergie in chemische, speicherbare Energie umzuwandeln [73].

Eine weitere Anwendung ist die Brechungsindexsensorik („plasmonische Lineale“), bei der die starke Empfindlichkeit von plasmonischen Resonanzen in Nanoantennen gegenüber Änderungen im Brechungsindex des umgebenden Mediums ausgenutzt wird [94–97]. Nanoantennen werden ferner verwendet um Fanoresonanzen zu realisieren, bei denen eine breitbandige Mode (oder ein Kontinuum) mit einer schmalbandigen Mode gekoppelt werden muss [98–100].

³Das Shockley-Queisser-Limit beschreibt das Problem, dass bei halbleiterbasierten Solarzellen stets nur ein Teil der Leistung des einfallenden Spektrums verwendet werden kann. Photonen mit einer Energie kleiner als die Bandlücke können nicht absorbiert werden und Photonen mit einer Energie oberhalb der Bandlücke relaxieren zur Bandlücke und verlieren somit einen Teil ihrer Energie. Für klassische Solarzellen mit nur einer aktiven Schicht können daher maximal 31% der einfallenden Leistung verwendet werden. Durch die Verwendung von mehreren Schichten mit unterschiedlichen Bandlücken kann diese Effizienz gesteigert werden.

3. Simulation und Modellbildung

In diesem Kapitel wird vorgestellt, welche Modelle und mit welchen Methoden in dieser Arbeit simuliert wurden. Des Weiteren werden die Simulationseinstellungen und die untersuchten Parameter genauer erläutert. Das Ganze wird kurz in den Gesamtzusammenhang der am häufigsten verbreiteten Simulationsmethoden eingeordnet. Für den Großteil dieser Arbeit wurden numerische Simulationen mit der FDTD-Methode (Finite-Differenzen-Methode im Zeitbereich) verwendet. Hier wird auch gezeigt, in welchen Fällen und weshalb weitere Methoden hinzugezogen wurden.

In Kapitel 3.1 wird ein kurzer Überblick über mögliche Simulationsmethoden für Nanoantennen gegeben. In Kapitel 3.2 wird auf die verwendeten analytischen Verfahren – die Mie-Theorie und die quasistatische Approximation – eingegangen. Daraufhin werden in Kapitel 3.3 die hier verwendeten numerischen Berechnungsmethoden – die FDTD-Methode und die Finite-Elemente-Methode (FEM) – vorgestellt und die für die jeweilige Simulationsmethode spezifischen Parameter erläutert. Danach wird in Kapitel 3.4 auf die numerisch untersuchten Antennengeometrien eingegangen. Als Nächstes wird in Kapitel 3.5 die Berücksichtigung der verschiedenen Materialparameter der Metallantennen und Substrate gezeigt. Zum Schluss werden in Kapitel 3.6 anhand einer typischen exemplarischen Antennenstruktur die wichtigsten in dieser Arbeit untersuchten Parameter vorgestellt.

3.1. Überblick über Berechnungsmethoden

Für die Modellierung der Interaktionen zwischen elektromagnetischen Wellen und einzelnen Nanostrukturen wird eine Vielzahl von unterschiedlichen numerischen, aber auch analytischen und semianalytischen Methoden verwendet.

Analytische Methoden existieren nur für eine sehr beschränkte Anzahl an einfachen Problemen mit einfachen Geometrien. Die bekannteste analytische Methode ist die Mie-Theorie (Kapitel 3.2). Diese wurde verallgemeinert, um auch Gauß-Strahlen berücksichtigen zu können (generalisierte Lorenz-Mie-Theorie, GLMT).

Von den semianalytischen Methoden ist die Mehrfach-Multipol-Methode (MMP) [101] die am weitesten verbreitete. Die MMP ist insofern semianalytisch, als das der Raum in einzelne Domänen unterteilt wird, wobei in den Domänen analytische Lösungen gefunden werden und lediglich an den Domänengrenzen eine numerische Lösung nötig ist. Daher müssen auch nur die Grenzflächen und nicht das ganze Volumen diskretisiert werden. Domänengrenzen sind meistens (aber nicht zwangsläufig) tatsächliche physikalische Grenzen, also solche, an denen sich das Material ändert [16]. Nichtlineare Materialien sind bei dieser Methode jedoch nicht ohne Weiteres möglich. Ein weiteres semianalytisches Verfahren ist die T-Matrix-Methode (auch Nullfeldmethode genannt) [102, 103]. Ähnlich wie bei der Mie-Theorie werden die Felder (einfallendes Feld und gestreutes Feld) hier als Reihe von Kugelflächenfunktionen dargestellt. Sie kann jedoch auch für nichtsphärische Partikel verwendet werden. Die T-Matrix verbindet hierbei die Koeffizienten des einfallenden und gestreuten Feldes.

Bei den numerischen Methoden kann man zwischen Methoden unterscheiden, welche die Maxwell-Gleichungen (Gl. 2.1.1 - Gl. 2.1.4) in differentieller Form lösen (Differentialgleichungsmethoden) und solchen, die auf der Diskretisierung von Integralgleichungen basieren (Integralgleichungsmethoden) [104]. Ein Vergleich von kommerziellen Softwareprogrammen basierend auf den unterschiedlichen numerischen Methoden für die Simulation von Nanoantennen kann

in Ref. [105] gefunden werden. Die beiden hier verwendeten numerischen Methoden, die FDTD-Methode (Kapitel 3.3.2) und die Finite-Elemente-Methode – in der hier verwendeten Form – (Kapitel 3.3.3), sind Differentialgleichungsmethoden und diskretisieren den gesamten Raum (sowohl den Streupartikel als auch die Umgebung). Häufig verwendete numerische Integralgleichungsmethoden sind die Randlelementmethode (englisch „boundary element method“ (BEM) oder „method of moments“ (MoM)¹), die diskrete Dipolapproximation (DDA) und die Oberflächenintegralmethode (engl. „surface integral equation method“, SIE). Der große Vorteil der auf Green’schen Funktionen basierenden BEM ist, dass nur die Oberfläche diskretisiert werden muss [106]. Hierbei wird nach den äquivalenten Oberflächenströmen gelöst. Die Einschränkung hierbei ist jedoch, dass die Umgebung homogen und isotrop sein muss². Ferner sind die entstehenden Matrizen dicht besetzt, so dass die BEM nicht in allen Fällen weniger Ressourcen benötigt, als Methoden, die das ganze Volumen diskretisieren. In der DDA wird der Streupartikel über ein würfelförmiges Gitter aus Dipolquellen diskretisiert [23]. Hierbei wird für jeden Dipol zunächst die komplexe Polarisierbarkeit α_i berechnet. Das lokale elektrische Feld in einem Würfelement wird als Summe aus allen Dipolbeiträgen berechnet, wobei alle Interaktionen zwischen den einzelnen Dipolen berücksichtigt werden. Aus lokalem elektrischem Feld und Polarisierbarkeit kann dann die Polarisation berechnet werden. Bei der SIE wird zunächst die Oberflächenstromverteilung berechnet und daraus wird dann das gestreute Feld bestimmt.

Wie oben aufgeführt gibt es eine große Vielfalt an unterschiedlichen möglichen Berechnungsmethoden. Für den größten Teil dieser Dissertation wurde die FDTD-Methode gewählt, da es sich hierbei um eine verlässliche, etablierte Methode handelt, die – durch die Berechnung im Zeitbereich – mit nur einer Berechnung den kompletten untersuchten Frequenzbereich abdecken kann. In Kapitel 6 wurde die Finite-Elemente-Methode verwendet, da hier eine feinere Auflösung der

¹In den meisten Fällen können BEM und MoM als Synonyme verwendet werden, wobei in der Elektrotechnik der Begriff MoM geläufiger ist. Es existieren aber auch Implementierungen der MoM, wo eine Volumendiskretisierung vorliegt.

²Es existieren auch Implementierungen der BEM für Partikel auf Substrat und Partikel in Schichtsystemen (z.B. Ref. [107]).

unregelmäßigen Geometrie nötig war. Die hergeleiteten Skalierungszusammenhänge aus Kapitel 4 werden teilweise anhand der quasistatischen Approximation erläutert, die wiederum stellenweise mit der Mie-Theorie verglichen wird.

3.2. Verwendete analytische Berechnungsmethoden

3.2.1. Mie-Theorie

Mit Hilfe der Mie-Theorie (teilweise auch Lorenz-Mie-Theorie genannt) können für Kugeln exakte analytische Werte für den Streu- und Extinktionsquerschnitt berechnet werden. Eine Herleitung dieser Formeln findet sich in Ref. [27]. Bei der Mie-Theorie wird zunächst durch einige mathematische Umformungen das Problem, eine Lösung für die vektorielle Wellengleichung zu finden, auf die Lösung der skalaren Wellengleichung vereinfacht. Die Lösung für eine ebene Welle, die auf eine Kugel fällt, wird in Kugelkoordinaten berechnet. Dafür muss die ebene Welle in eine Darstellung transformiert werden, die in Kugelkoordinaten separabel ist. Dies geschieht, indem sie in eine Reihe aus Kugelflächenfunktionen umgeformt wird. Hiermit können nun die internen und gestreuten Felder exakt berechnet werden. Mit Hilfe von Gleichung 2.3.12 und Gleichung 2.3.14 erhält man nun folgende Gleichungen für den Absorptions- und Extinktionsquerschnitt:

$$C_{\text{Streu}} = \frac{2\pi}{k^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \left(|a_n|^2 + |b_n|^2 \right), \quad (3.2.1)$$

$$C_{\text{Ext}} = \frac{2\pi}{k^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1) \operatorname{Re} \{ a_n + b_n \} \quad (3.2.2)$$

mit der Wellenzahl $k = \frac{2\pi n_{\text{Medium}}}{\lambda}$ im umgebenden Medium, wobei λ die Vakuumwellenlänge der einfallenden ebenen Welle ist. Der Absorptionsquerschnitt ergibt sich nach dem optischen Theorem zu $C_{\text{Abs}} = C_{\text{Ext}} - C_{\text{Streu}}$

Hierbei ist:

$$a_n = \frac{\tilde{m}\psi_n(\tilde{m}x)\psi_n'(x) - \psi_n(x)\psi_n'(\tilde{m}x)}{\tilde{m}\psi_n(\tilde{m}x)\xi_n'(x) - \xi_n(x)\psi_n'(\tilde{m}x)} \quad (3.2.3)$$

und

$$b_n = \frac{\psi(\tilde{m}x)\psi_n'(x) - \tilde{m}\psi_n(x)\psi_n'(\tilde{m}x)}{\psi_n(\tilde{m}x)\xi_n'(x) - \tilde{m}\xi_n(x)\psi_n'(\tilde{m}x)} \quad (3.2.4)$$

mit dem komplexen relativen Brechungsindex $\tilde{m} = \frac{\tilde{n}_{\text{Partikel}}}{n_{\text{Medium}}}$ und dem Größenparameter $x = ka$, wobei a der Radius der Kugel ist. Die Ricatti-Bessel-Funktionen $\psi_n(\rho) = \rho j_n(\rho)$ und $\xi_n(\rho) = \rho h_n^{(1)}(\rho)$ basieren auf den sphärischen Bessel-Funktionen $j_n(\rho)$ und $y_n(\rho)$ sowie den aus diesen abgeleiteten Hankel-Funktionen $h_n^{(1)}$. n ist hierbei die Ordnung und muss somit einen ganzzahligen positiven Wert haben. $\psi_n'(\rho) = \frac{\partial \psi_n(\rho)}{\partial \rho}$ und $\xi_n'(\rho) = \frac{\partial \xi_n(\rho)}{\partial \rho}$ sind die entsprechenden Ableitungen. Mit den komplexen, frequenzabhängigen Brechungsindizes des Partikels und dem Radius der Kugel lassen sich nun mit wenig Aufwand und in kurzer Rechenzeit die entsprechenden Querschnitte für Kugeln beliebig genau bestimmen. Was die Mie-Theorie jedoch nicht liefern kann ist ein direktes, einfaches Verständnis über die physikalischen Vorgänge in einem solchen Partikel.

3.2.2. Quasistatische Approximation

Die quasistatische Approximation enthält Näherungen, die für Partikel gültig sind, die klein im Vergleich zur Wellenlänge sind. Sie basiert auf der Annahme, dass der Partikel so klein ist, dass sich die Phase der elektromagnetischen Welle innerhalb des Partikels nicht ändert und dass somit von homogenen Feldern im Partikel ausgegangen werden kann. Die quasistatische Approximation wird auch Rayleigh-Approximation genannt und beschreibt den Bereich der Rayleigh-Streuung. Diese Näherung ist hilfreich um weitere Erkenntnisse über die grundlegenden Effekte, die zur Resonanz beitragen, zu lernen. Hierbei kann eine elektrostatische Berechnung (ohne magnetische Felder) durchgeführt werden. Die Materialparameter werden hierbei jedoch nicht für den statischen Fall gewählt, sondern

bei den entsprechenden untersuchten Frequenzen ausgewertet. Danach wird mit der zeitlichen Variation $e^{-i\omega t}$ multipliziert. Für das elektrostatische Potential Φ gilt:

$$\vec{E}(r) = -\vec{\nabla}\Phi(r). \quad (3.2.5)$$

Hierfür muss die Laplace-Gleichung gelöst werden:

$$\Delta\Phi = 0. \quad (3.2.6)$$

Gelöst wird zunächst nach dem Potential Φ . Als Randbedingung müssen sowohl Φ auf der Metalloberfläche als auch die Normalkomponente von \vec{D} kontinuierlich sein. Die Rotationssymmetrie wird ausgenutzt und weit weg von der Kugel muss das elektrische Feld dem einfallenden elektrischen Feld ohne Störung gleichen. Als Lösung erhält man, dass sich die Felder außerhalb der Kugel genauso verhalten, wie dies durch eine Überlagerung aus dem einfallenden Feld und einem Dipol exakt in der Mitte der Kugel mit einem bestimmten Dipolmoment \vec{p} der Fall ist. Mittels Gleichung 2.1.14 kann nun die Polarisierbarkeit bestimmt werden. Wie bereits erwähnt ist die Polarisierbarkeit die Größe, die das Verhältnis zwischen anregendem elektrischen Feld und induziertem Dipolmoment angibt. Sie ist somit eine Eigenschaft des Partikels und unabhängig vom konkret vorhandenen einfallenden Feld.

3.2.2.1. Kugeln

Für die Polarisierbarkeit (dipolare Resonanz) einer Kugel erhält man hiermit:

$$\alpha(\omega) = 4\pi\epsilon_0 a^3 \frac{\epsilon_{\text{Partikel}}(\omega) - \epsilon_{\text{Medium}}}{\epsilon_{\text{Partikel}}(\omega) + 2\epsilon_{\text{Medium}}}. \quad (3.2.7)$$

Streu- und Absorptionsquerschnitt ergeben sich zu:

$$C_{\text{Streu}}(\omega) = \frac{k^4}{6\pi\epsilon_0^2} |\alpha(\omega)|^2 \quad (3.2.8)$$

und

$$C_{\text{Abs}}(\omega) = \frac{k}{\epsilon_0} \text{Im}(\alpha(\omega)). \quad (3.2.9)$$

Alternativ zur Herleitung aus dem statischen Fall lassen sich die Gleichungen 3.2.7, 3.2.8 und 3.2.9 auch aus der Mie-Theorie durch Abbruch der Reihenentwicklung nach dem ersten Term herleiten. Hierfür müssen auch die Summen der Bessel-Funktionen entsprechend abgebrochen werden. Das Übereinstimmen der Gleichungen nach unterschiedlichen Herleitungen zeigt, dass in der Tat eine zunächst statische Betrachtung das Verhalten von Kugeln, die im Vergleich zur Wellenlänge klein sind, hinreichend gut beschreibt. Besondere Beachtung braucht jedoch Gleichung 3.2.9. Nur über die Herleitung aus der Mie-Theorie gibt diese Gleichung den Absorptionsquerschnitt C_{Abs} an. Bei der korrekten quasistatischen Herleitung kommt man zur selben Gleichung, jedoch zunächst für den Extinktionsquerschnitt C_{Ext} . Die jeweils andere Größe muss dann über das optische Theorem bestimmt werden (Gl. 2.3.15). Da beide Näherungen nur in einem Bereich, in dem der Streuquerschnitt deutlich kleiner als der Absorptionsquerschnitt ist, gelten, ist der Unterschied zwischen beiden Definitionen gering [27]. Die Herleitung über die statische Approximation ist anschaulicher, aber die Herleitung über die Mie-Theorie entspricht eher dem tatsächlich vorhandenen physikalischen Problem. Daher wird Gleichung 3.2.9 für den Absorptionsquerschnitt verwendet.

3.2.2.2. Ellipsoide

In der quasistatischen Approximation gelingt der Übergang vom Spezialfall einer Kugel (mit Radius a) zu einem allgemeinen Ellipsoid (mit den Halbachsen a_1 , a_2 , a_3) durch die Einführung von Geometriefaktoren $L_{1,2,3}$ in die Polarisierbarkeit α . Die Formeln für die Berechnung von Absorptions- (Gl. 3.2.8) und Streuquerschnitt (Gl. 3.2.9) bleiben ansonsten gleich. Die Polarisierbarkeit ist nun auch

abhängig von der entsprechenden Raumrichtung. Die Indizes 1-3 entsprechen den Raumrichtungen der drei Halbachsen a_1, a_2, a_3 . Die Polarisierbarkeit entlang der längsten Halbachse a_1 ergibt sich nun zu:

$$\alpha_1(\omega) = \frac{4}{3} \pi a_1 a_2 a_3 \epsilon_0 \frac{\epsilon_{\text{Partikel}}(\omega) - \epsilon_{\text{Medium}}}{\epsilon_{\text{Medium}} + L_1 (\epsilon_{\text{Partikel}}(\omega) - \epsilon_{\text{Medium}})} \quad (3.2.10)$$

mit dem Geometriefaktor:

$$L_1 = \frac{a_1 a_2 a_3}{2} \int_0^\infty \frac{dq}{(a_1^2 + q) f(q)} \quad (3.2.11)$$

mit:

$$f(q) = \sqrt{(q + a_1^2)(q + a_2^2)(q + a_3^2)} \quad (3.2.12)$$

Die Gleichungen ergeben sich entsprechend für die beiden anderen Polarisationsrichtungen α_2 und α_3 . Der Spezialfall der Kugel ergibt sich für $L_1 = L_2 = L_3 = \frac{1}{3}$.

3.2.2.3. Erweiterung der quasistatischen Approximation durch Berücksichtigung von Phasenverzögerung und Strahlungsdämpfung

Die quasistatische Näherung gilt, wie oben erwähnt, nur für Partikel, die im Vergleich zur Wellenlänge sehr klein sind. Für etwas größere Partikel kann die Näherung aber angepasst werden, indem Phasenverzögerung und Strahlungsdämpfung³ berücksichtigt werden. Die Polarisierbarkeit ergibt sich dann für Kugeln zu [108, 109]:

$$\alpha(\omega) = \frac{1 - \frac{1}{10} (\epsilon_{\text{Partikel}} + \epsilon_{\text{Medium}}) x^2 + O(x^4)}{\mathfrak{A} + \mathfrak{B} + \mathfrak{C} + O(x^4)} V \quad (3.2.13)$$

³Die Strahlungsdämpfung berücksichtigt den direkten Übergang der Elektronenoszillation in Photonen.

mit

$$\mathfrak{A} = \left(\frac{1}{3} + \frac{\varepsilon_{\text{Medium}}}{\varepsilon_{\text{Partikel}} - \varepsilon_{\text{Medium}}} \right), \quad (3.2.14)$$

$$\mathfrak{B} = -\frac{1}{30} (\varepsilon_{\text{Partikel}} + 10\varepsilon_{\text{Medium}}) x^2, \quad (3.2.15)$$

$$\mathfrak{C} = -i \frac{4\pi^2 \varepsilon_{\text{Medium}}^{3/2}}{3} \frac{V}{\lambda^3}. \quad (3.2.16)$$

Wobei $x = ka$ der bereits in 3.2.1 eingeführte Größenfaktor ist. Der zweite Term (\mathfrak{B}) im Nenner berücksichtigt die Phasenverzögerung und der dritte, imaginäre Term (\mathfrak{C}) die Strahlungsdämpfung.

Für Ellipsoide lässt sich folgende allgemeinere Formel (die allerdings zwei Fitparameter enthält) finden [109]:

$$\alpha(\omega) \approx \frac{V}{\left(L + \frac{\varepsilon_{\text{Medium}}}{\varepsilon_{\text{Partikel}} - \varepsilon_{\text{Medium}}} \right) + A\varepsilon_{\text{Medium}}x^2 + B\varepsilon_{\text{Medium}}^2x^4 - i \frac{4\pi^2 \varepsilon_{\text{Medium}}^{3/2}}{3} \frac{V}{\lambda^3}}. \quad (3.2.17)$$

Hierbei wurden die beiden Fitparameter in [109] empirisch bestimmt zu $A(L) = -0,4865L - 1,046L^2 + 0,8481L^3$ und $B(L) = 0,01909L - 0,1999L^2 + 0,6077L^3$. Der Strahlungsdämpfungsterm ist unabhängig von der Partikelform und somit identisch zu dem Spezialfall einer Kugel.

3.3. Verwendete numerische Berechnungsmethoden

3.3.1. „Perfectly Matched Layers“ in der FDTD- und der Finite-Elemente-Methode

In beiden verwendeten numerischen Simulationen ist das simulierte Volumen von offenen Randbereichen, sogenannte „Perfectly Matched Layers“

(PMLs) umgeben [110]. Da diese in beiden Methoden prinzipiell auf den gleichen Grundlagen basieren, werden PMLs hier kurz allgemein eingeführt, bevor auf die beiden Simulationsmethoden genauer eingegangen wird.

Mittels PMLs wird versucht einen möglichst perfekt absorbierenden künstlichen Randbereich zu schaffen, der den natürlichen, offenen Raum imitiert. Dieser ist nötig, da, mit der beschränkten zur Verfügung stehenden Rechenleistung, nur ein beschränktes Volumen simuliert werden kann. In der Realität kommt es aber natürlich vor, dass Licht in eine bestimmte Richtung abgestrahlt wird und nicht wieder in die Nähe der untersuchten Struktur zurückreflektiert wird. Nimmt man am Rand des Simulationsvolumens real mögliche Randbedingungen an, so kommt es stets zu Reflexionen. Volumina oder gar Randflächen, welche – für alle Frequenzen und alle Winkel – nur absorbieren, aber nichts reflektieren, existieren in der Realität nicht. Daher sind mathematische Tricks nötig um solche für die Simulationen nötigen Bereiche zu realisieren. Grundsätzlich basieren PMLs auf dem Prinzip der Impedananzanpassung. Es handelt sich nicht um Randbedingungen sondern um den Simulationsbereich umgebende Bereiche mit ausgedehntem Volumen. Sie bestehen aus mehreren Schichten mit zunehmender Absorption. So können die Felder hier exponentiell abklingen. Mit Hilfe von PMLs ist es möglich die Reflexion für alle Frequenzen und alle Winkel gleichzeitig auf näherungsweise null zu bringen.

Mathematisch wird eine sogenannte PML-Transformation angewendet, bei der die räumlichen Ableitungen ersetzt werden [111]. Oszillierende Wellen können hierdurch in exponentiell abklingende Wellen umgewandelt werden.

Generell ist darauf zu achten, dass diese perfekt absorbierenden Randbereiche weit genug von der untersuchten Struktur entfernt sind, damit keine real vorhandenen Nahfelder abgeschnitten werden. Ferner muss die Schicht dick genug sein, um auch wirklich die komplette einfallende Leistung zu absorbieren.

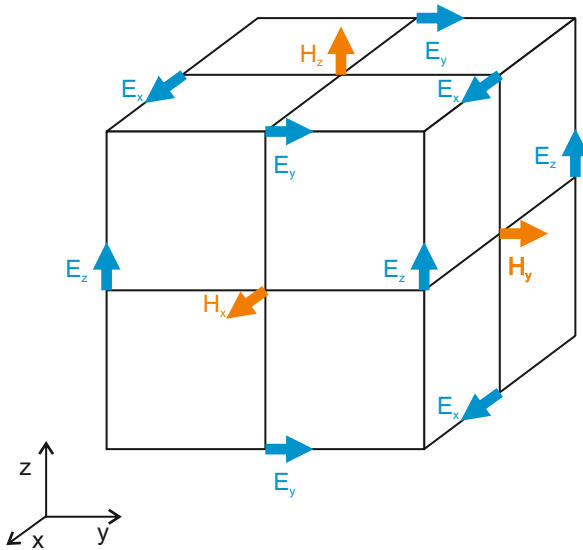


Abbildung 3.3.1.: Das Yee-Gitter, in dem die Gitter für das elektrische und das magnetische Feld räumlich versetzt sind, bildet die Grundlage für die FDTD-Methode. Adaptiert aus Ref. [112].

3.3.2. FDTD-Methode

FDTD steht für *Finite-Difference Time-Domain* (deutsch: Finite-Differenzen-Methode im Zeitbereich). Diese numerische Methode löst die Maxwell-Gleichungen im Zeitbereich. Die optische Antwort auf einen einlaufenden Puls wird so lange berechnet, bis der Zustand sich nicht mehr signifikant ändert („Steady-State“). Dies liefert den Vorteil gegenüber Simulationen im Frequenzbereich, wie beispielsweise der FEM⁴ (Kapitel 3.3.3), dass mit einer Rechnung (mittels Fourier-Transformation) das komplette untersuchte Spektrum berechnet werden kann [112, 113]. Zur Berechnung mit der FDTD-Methode findet eine Diskretisierung der zeitlichen und räumlichen Ableitungen statt. Obwohl in der Realität

⁴Es gibt auch Ansätze bei der die FEM im Zeitbereich realisiert wird.

der Einfluss des magnetischen auf das elektrische Feld und der umgekehrte Prozess zeitgleich stattfinden, wird dies in der FDTD-Methode zur einfacheren Berechenbarkeit nacheinander durchgeführt. Zeitlich werden daher abwechselnd das elektrische und das magnetische Feld aktualisiert („leapfrog scheme“). Die zeitlichen Ableitungen werden hierbei durch finite Differenzen approximiert ($\vec{F}'(t + \Delta/2) = \frac{\vec{F}(t+\Delta) - \vec{F}(t)}{\Delta t}$). Wobei \vec{F} hier eine der beiden Feldgrößen \vec{E} oder \vec{H} ist. Der jeweilige Ableitungswert $\vec{F}'(t + \Delta/2)$ wird dem Zeitpunkt auf der Hälfte zwischen den beiden ausgewerteten Zeitpunkten t und $t + \Delta t$ zugeordnet. Aus Stabilitätsgründen sollen alle in einer Gleichung vorkommenden Größen zum selben Zeitpunkt ausgewertet werden. Um dies zu erreichen, werden die Zeitpunkte, an denen das elektrische und das magnetische Feld aktualisiert werden, um jeweils einen Halbschritt $\Delta t/2$ zueinander verschoben.

Ebenso findet eine räumliche Diskretisierung statt. Hierfür werden die Maxwell-Gleichungen Gl. 2.1.3 und Gl. 2.1.4 mit den Materialgleichungen Gl. 2.1.8 und Gl. 2.1.9 (für $\mu_r = 1$) kombiniert zu:

$$\frac{\partial \vec{E}}{\partial t} = \frac{1}{\epsilon_0 \epsilon'_t} \left(\vec{\nabla} \times \vec{H} - \sigma' \vec{E} \right), \quad (3.3.1)$$

$$\frac{\partial \vec{H}}{\partial t} = -\frac{1}{\mu_0} \left(\vec{\nabla} \times \vec{E} \right). \quad (3.3.2)$$

Die Diskretisierung geschieht auf zwei Gittern – eines für das elektrische und eines für das magnetische Feld –, die so versetzt sind, dass der Mittelpunkt einer Zelle aus dem einen Gitter stets auf die Ecke einer Zelle des andern Gitters trifft. Dieses Gitter wird Yee-Gitter genannt [112]. Wie in Abb. 3.3.1 zu sehen ist, werden alle sechs Komponenten ($E_x, E_y, E_z, H_x, H_y, H_z$) an anderen Punkten im Raum berechnet, die jeweils in den verschiedenen Dimensionen um $\Delta x/2, \Delta y/2$, bzw. $\Delta z/2$ versetzt zueinander sind.

Die Verwendung eines solchen Yee-Gitters bietet mehrere Vorteile. Zunächst wird bei der räumlichen Diskretisierung (in Analogie zur zeitlichen Diskretisierung) erreicht, dass jede Gleichung am selben Punkt im Raum ausgewertet

wird. Des Weiteren ergibt sich die Kontinuität der transversalen Komponenten des elektrischen und magnetischen Felds an Grenzflächen automatisch. Aus Gl. 3.3.1 und Gl. 3.3.2 ergeben sich dann sechs diskretisierte Gleichungen jeweils für die drei Raumrichtungen. Der diskrete Charakter der Felder wird dadurch verdeutlicht, dass von der Notation für die kontinuierlichen Felder ($\vec{F}(t,x,y,z)$) zu einer diskreten Notation übergegangen wird: $\vec{F}|_{i,j,k}^n$ (mit $t = n\Delta t$, $x = i\Delta x$, $y = j\Delta y$, $z = k\Delta z$). Das E-Feld wird immer zu vollen n -Schritten ausgewertet und das H-Feld zu halben n -Schritten. Die diskretisierten Gleichungen für die x -Komponenten lauten:

$$\frac{E_x|_{i+0,5,j,k}^n - E_x|_{i+0,5,j,k}^{n-1}}{\Delta t} = \frac{1}{\epsilon_0 \epsilon_r'|_{i+0,5,j,k}} \left(\frac{H_z|_{i+0,5,j+0,5,k}^{n-0,5} - H_z|_{i+0,5,j-0,5,k}^{n-0,5}}{\Delta y} - \frac{H_y|_{i+0,5,j,k+0,5}^{n-0,5} - H_y|_{i+0,5,j,k-0,5}^{n-0,5}}{\Delta z} - \sigma'|_{i+0,5,j,k} \frac{E_x|_{i+0,5,j,k}^n + E_x|_{i+0,5,j,k}^{n-1}}{2} \right), \quad (3.3.3)$$

$$\frac{H_x|_{i,j+0,5,k+0,5}^{n+0,5} - H_x|_{i,j+0,5,k+0,5}^{n-0,5}}{\Delta t} = \frac{1}{\mu_0} \left(\frac{E_y|_{i,j+0,5,k+1}^n - E_y|_{i,j+0,5,k}^n}{\Delta z} - \frac{E_z|_{i,j+1,k+0,5}^n - E_z|_{i,j,k+0,5}^n}{\Delta y} \right). \quad (3.3.4)$$

Die Gleichungen für die y - und z -Komponenten ergeben sich analog.

Löst man diese sechs Gleichungen nach dem jeweils aktuellen Zeitschritt auf ($\vec{E}|^n$, $\vec{H}|^{n+0,5}$), so erhält man Gleichungen mit Hilfe derer man die jeweiligen

Felder um einen Zeitschritt aktualisieren kann, also $\vec{E}|^{n-1} \Rightarrow \vec{E}|^n$ und $\vec{H}|^{n-0,5} \Rightarrow \vec{H}|^{n+0,5}$ (engl. „Update Equations“).

Ein Nachteil der FDTD-Methode ist, dass zunächst nur ein rechteckiges Netz (Gitter) zur Verfügung steht, was das korrekte Darstellen von komplexeren Geometrien schwierig macht. Es gibt jedoch eine Vielzahl von Ansätzen, eine subgitterzellengenaue Auflösung der Geometrie in der FDTD-Methode zu erreichen [114] oder entsprechende Erweiterungen oder Variationen der Methode mit flexiblerem Gitter zu ermöglichen [115].

3.3.2.1. FDTD-Simulationen in Lumerical

Für die FDTD-Simulationen wurde hier das Simulationsprogramm „FDTD Solutions“ der Firma Lumerical verwendet [116]. Im Folgenden wird dieses Simulationsprogramm kurz Lumerical genannt.

Eine Skizze der in Lumerical realisierten Struktur mit Simulationsumgebung ist in Abb. 3.3.2 gezeigt. Die Simulationsumgebung in Lumerical ist rechteckig wie auch das Simulationsnetz. Das Simulationsnetz (hier nicht dargestellt) durchdringt das ganze simulierte Volumen. Als Quelle für die einfallende ebene Welle wurde eine spezielle „Total-Field Scattered-Field“-Quelle (kurz TFSF-Quelle) verwendet, die es ermöglicht das gesamte und das gestreute Feld getrennt voneinander zu untersuchen (siehe unten). Die Ausbreitungsrichtung der ebenen Welle (Richtung des k -Vektors) war für alle Simulationen stets senkrecht zum Substrat, während die Polarisationsrichtung (Richtung des E-Feld-Vektors) variiert wurde (siehe Abb. 3.3.2(a)). Für die Berechnung der Streu- und Absorptionsquerschnitte wurden entsprechende Leistungsmonitore verwendet. Wurden Simulationen auf einem Substrat durchgeführt, so war das Substrat stets auch über den Randbereich des simulierten Bereichs hinaus ausgedehnt. Die Simulationsumgebung wurde durch einen Randbereich aus offenen Randbedingungen („Perfectly Matched Layers“, PMLs) begrenzt (siehe Kapitel 3.3.1).

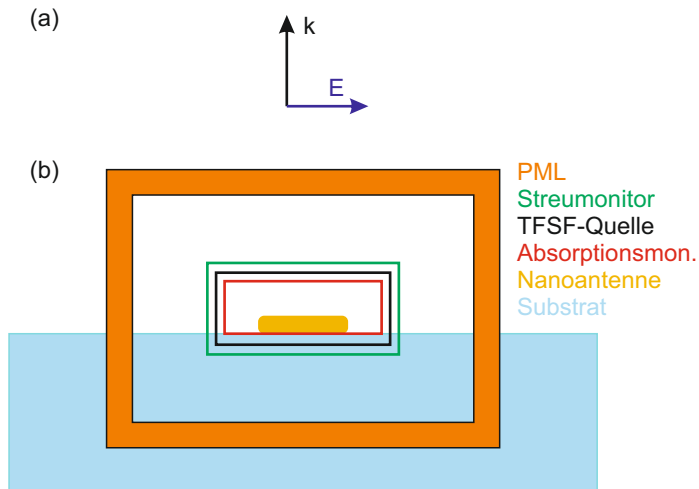


Abbildung 3.3.2.: (a) Ausbreitungsrichtung (\vec{k}) und Polarisationsrichtung (\vec{E}); (b) Skizze der Simulationsumgebung in Lumerical mit Struktur, unterschiedlichen Bereichen des Simulationsnetzes sowie verwendeten Monitoren und Quelle.

Perfectly Matched Layers in Lumerical. In Tabelle 3.3.1 sind die verwendeten Simulationsparameter für die Simulationsumgebung und die Anzahl der PMLs in Lumerical angegeben.

Parameter	Wert/Einstellung
Anzahl der PMLs	24
Größe des Simulationsbereiches ^a	800 nm x 800 nm x 800 nm

Tabelle 3.3.1.: Parameter der Simulationsumgebung für Simulationen mit Lumerical.

^aFür einige Simulationen, insbesondere mit sehr langen Resonanzwellenlängen, wurde eine größere Simulationsumgebung von bis zu 1200 nm x 1200 nm x 1200 nm gewählt.

„Total-Field Scattered-Field“-Quelle in Lumerical. Eine besondere simulationstechnische Herausforderung ist, die gestreuten Felder – und zwar explizit nur die an der Nanostruktur gestreuten Felder – aus den berechneten Gesamtfeldern herauszulesen. Hierfür steht in Lumerical die „Total-Field Scattered-Field“-Quelle zur Verfügung. Hierbei wird in die Simulationsumgebung eine Box eingebracht. Diese stellt keine physikalische Randbedingung dar, es kann aber innerhalb und außerhalb dieser Box auf unterschiedliche Felder zugegriffen werden. Die Anregung ist hier stets eine ebene Welle. Innerhalb der Box hat man Zugriff auf die „gesamten“ Felder, also sowohl von der anregenden Welle als auch von den gestreuten Beiträgen. Außerhalb der Box wird die anregende Welle abgezogen. Die Besonderheit hierbei ist, dass Substratschichten, die durch diese Box komplett durchgehen, ebenfalls mit berücksichtigt werden. Es wird also nicht die Welle in Luft abgezogen, sondern die Welle wie sie durch diesen Schichtstapel propagieren würde. Somit erhält man außerhalb der Box nur die Felder, die an der Nanostruktur gestreut wurden.

Um den Absorptions- und Streuquerschnitt zu berechnen, werden nun zwei weitere Hilfsboxen verwendet (siehe Abb. 3.3.2 „Absorptionsmonitor“ und „Streuemonitor“). Für den Absorptionsquerschnitt wird der Leistungsfluss durch die Oberfläche der Hilfsbox innerhalb der Quellenbox integriert. Alle Leistung, die in diese Box hineinfließt und nicht wieder herauskommt, wird dort absorbiert. Um den Absorptionsquerschnitt zu erhalten, wird diese Größe auf die einfallende Intensität normiert. Um den Streuquerschnitt zu erhalten wird nun der Leistungsfluss durch die Hilfsbox außerhalb der Quellenbox integriert. Da hier nur die gestreuten Felder zur Verfügung stehen, erhält man die gestreute Leistung. Diese wird nun ebenfalls auf die einfallende Intensität normiert.

Simulationsnetz. Das Simulationsnetz bestimmt wie fein die räumliche Diskretisierung ist. Die Parameter des Simulationsnetzes müssen so gewählt werden, dass einerseits die Simulationszeit nicht zu lang ist, aber andererseits stabile, genaue Ergebnisse erzielt werden. Bei der FDTD-Methode ist es nicht möglich, das Netz an beliebigen Stellen feiner zu wählen als an anderen. Allerdings kann man einen graduellen Wachstumsfaktor angeben. Das Netz kann nun so gewählt

werden, dass es in der Mitte der Simulationsumgebung, wo sich die Nanostruktur befindet, viel feiner ist als am Rand der Simulationsumgebung. Der Wachstumsfaktor gibt an, wie schnell das Netz nach außen hin gröber wird. Innerhalb der „Total-Field Scattered-Field“-Quelle wurde das Netz jedoch auf einen konstanten, sehr feinen Wert gezwungen (siehe Tabelle 3.3.2). Der Grund hierfür ist vor allem, dass die Quelle mit einem konstanten Netz deutlich stabiler funktioniert. Wie bereits erwähnt, ist eines der größten Probleme der FDTD-Methode, dass nur ein rechteckiges Netz möglich ist und dieses auch nicht flexibel verfeinert werden kann. In Lumerical ist es prinzipiell möglich durch spezielle Vernetzungsarten Auflösungen der Geometrien zu erreichen, die feiner sind als die Netzauflösung. Es zeigte sich jedoch, dass bei den verwendeten Materialien und den untersuchten Frequenzen für die Verwendung dieser Vernetzungsarten eine so feine Netzauflösung nötig war um stabile Ergebnisse zu erreichen, dass die Rechenzeit effektiv länger wurde, als dies für stabile Ergebnisse ohne diese Vernetzungsarten der Fall war. Daher wurde hier stets die Vernetzungsart „Staircase“ gewählt, bei der pro Netzelementzelle nur ein Material möglich ist. Die verwendeten Parameter sind in Tabelle 3.3.2 gegeben.

Parameter	Wert/Einstellung
Art der Vernetzung	„Staircase“
Maximale Größe eines Netzelements ^a	20 nm
Wachstum der Netzelemente	$\sqrt{2}$
Netzelementgröße nahe Antenne ^b	0,625 nm x 0,625 nm x 0,625 nm

Tabelle 3.3.2.: Simulationsnetz für Simulationen mit Lumerical.

^aFür einige Simulationen wurde eine geringere maximale Größe der Netzelemente von 8 nm gewählt.

^bFür Simulationen, bei denen Geometrieparameter kein Vielfaches von 5 nm waren, wurde eine Netzelementgröße von 0,5 nm x 0,5 nm x 0,5 nm gewählt

Ausnutzen von Symmetrien. Durch geeignete Wahl der Randbedingungen können die Spiegelsymmetrien der vorgestellten Strukturen ausgenutzt werden. Für viele der untersuchten Geometrien genügt es dann ein Viertel der Geometrie

zu simulieren. Entsprechende Randbedingungen können hierbei wie ein Spiegel wirken. Hierfür muss entlang der betrachteten Achse allerdings nicht nur die Antennengeometrie symmetrisch sein, sondern das gesamte numerische Problem. Dies ist entlang der Achse in der das Licht einfällt nicht der Fall. Auch ist dies nur möglich, wenn das einfallende Licht entlang der Länge l der Antenne oder entlang der Breite b der Antenne polarisiert ist. Zum Verwenden dieser spiegelnden Randbedingungen durchschneiden künstliche Simulationsgrenzen den gesamten Simulationsbereich und somit auch die Antennengeometrie mittig in zwei der drei Dimensionen. Entlang der Richtung, in die das elektrische Feld polarisiert ist, werden symmetrische Randbedingungen angenommen, während senkrecht dazu antisymmetrische Randbedingungen verwendet werden.

Weitere Simulationsparameter. In Tabelle 3.3.3 sind weitere Simulationsparameter für die FDTD-Simulationen angegeben.

Parameter	Wert/Einstellung
Aktiv simulierter Bereich ^a	1/4
Automatisches Abbruchkriterium ^b	Felder auf $1e-5$ abgefallen
Anregung	Ebene Welle ggf. aus Substrat
Richtung	senkrechter Lichteinfall

Tabelle 3.3.3.: Weitere Simulationsparameter Lumerical.

^aFür nicht spiegelsymmetrische Strukturen (insbesondere die „T“- und „L“-förmigen Strukturen) wurde die vollständige Struktur simuliert.

^bFür einige Simulationen wurde ein strengeres Kriterium von einem Abfall auf bis zu $1e-7$ angesetzt.

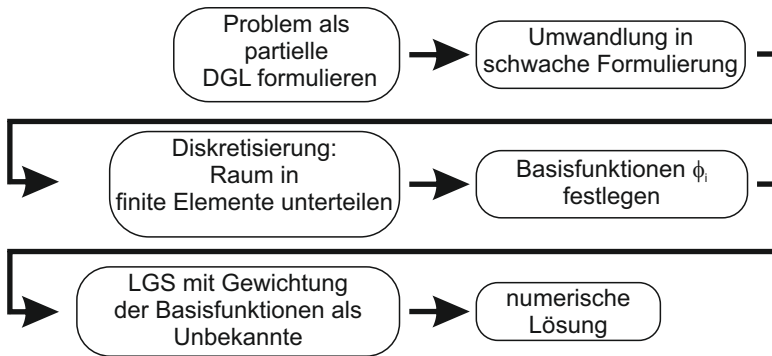


Abbildung 3.3.3.: Schritte einer Simulation nach der Finite-Elemente-Methode (adaptiert aus Ref. [119]).

3.3.3. Finite-Elemente-Methode

Die Finite-Elemente-Methode (FEM) ist eine sehr flexible numerische Methode. Sie kann für die Lösung unterschiedlichster partieller Differentialgleichungen (DGL) eingesetzt werden. Die grundsätzliche Idee der FEM ist es, die Lösungen von partiellen DGLs durch eine Superposition von einer großen Anzahl von Testfunktionen darzustellen. Die Testfunktionen sind einfache Funktionen, die nur für wenige bestimmte Elemente ungleich null sind. Gelöst wird nach der Gewichtung dieser unterschiedlichen Testfunktionen. Am Ende steht ein lineares Gleichungssystem mit einer dünn besetzten Matrix, das gelöst werden muss.

Hier werden die Maxwell-Gleichungen mittels FEM im Frequenzbereich gelöst [117]. Die folgende Herleitung basiert in Teilen auf der Herleitung aus Ref. [118]. Für den Ansatz im Frequenzbereich wird angenommen, dass alle Quellen und Felder dieselbe harmonische Zeitabhängigkeit $e^{-i\omega t}$ aufweisen. Die Maxwell-Gleichungen im Frequenzbereich weisen nur noch Ableitungen bezüglich des Raumes und keine Ableitungen bezüglich der Zeit mehr auf.

Abb. 3.3.3 zeigt die unterschiedlichen Schritte, die für die Durchführung einer FEM-Simulation nötig sind [119]. Im Folgenden werden diese Schritte für den Fall der zeitharmonischen Maxwell-Gleichungen dargestellt.

Problem als partielle DGL formulieren. Aus den Maxwell-Gleichungen wird zunächst die zeitharmonische Wellengleichung gebildet:

$$\vec{\nabla} \times \left(\frac{1}{\mu_0 \mu_r} \vec{\nabla} \times \vec{E} \right) - \omega^2 \epsilon_0 \epsilon_r \vec{E} = i\omega \vec{j}. \quad (3.3.5)$$

Hinzu kommen entsprechende Kontinuitäts- und Randbedingungen [117]. Die Kontinuitätsbedingungen zwischen Bereichen aus unterschiedlichen Materialien sind die Stetigkeit der Tangentialkomponenten von \vec{E} und \vec{H} sowie die Stetigkeit der Normalkomponenten von \vec{j} und \vec{B} [118]. Der Simulationsbereich wird durch „Perfectly Matched Layers“ beschränkt. Der äußere Rand des PML-Bereichs wiederum wird von Randbedingungen abgeschlossen. Diese spielen hier keine so bedeutende Rolle. Beispielsweise können hier streuende Randbedingungen verwendet werden [120].

Umwandlung in schwache Formulierung. Bevor dieses Randwertproblem gelöst wird, wird es jedoch erst in eine Variationsformulierung (schwache Formulierung) umgewandelt. Bei der schwachen Formulierung muss für die Gleichheit zwischen zwei Größen x und y lediglich gelten, dass ihr Skalarprodukt mit beliebigen Testfunktionen ϕ identisch ist: $\langle x, \phi \rangle = \langle y, \phi \rangle$. Nach einigen Umformungen ergibt sich für Gleichung 3.3.5 die schwache Formulierung:

$$\begin{aligned} \int_{\Omega} \vec{\nabla} \times \vec{\phi}^* \cdot \left(\frac{1}{\mu_0 \mu_r} \vec{\nabla} \times \vec{E} \right) dV - \omega^2 \int_{\Omega} \vec{\phi}^* \cdot (\epsilon_0 \epsilon_r \vec{E}) dV \\ = i\omega \int_{\Omega} \vec{\phi}^* \cdot \vec{j} dV - i\omega \int_{\partial\Omega} \vec{\phi}^* \cdot \left(\vec{n} \times \left(\frac{1}{\mu_0 \mu_r} \times \vec{E} \right) \right) dR, \end{aligned} \quad (3.3.6)$$

die für alle Testfunktionen $\vec{\phi}$ aus einem Funktionsraum W gelten muss. Hierbei ist $\vec{\phi}^*$ das komplex Konjugierte von $\vec{\phi}$, Ω ist das Simulationsvolumen mit einem

infinitesimalen Intervall dV und $\partial\Omega$ dessen Rand mit einem infinitesimalen Intervall dR [118]. Ansatzfunktionen sind hier zunächst alle möglichen Lösungen für \vec{E} aus einem Funktionsraum U .

Diskretisierung: Volumen in finite Elemente unterteilen. Im Gegensatz zur FDTD-Methode bestehen bei der FEM die Gitterzellen (hier Elemente genannt) aus Tetraedern und Hexaedern. Die Auflösung kann hierbei über den Simulationsraum hinweg je nach Bedarf unterschiedlich fein sein. Somit ist eine viel genauere Auflösung von auch komplizierteren, unregelmäßigen 3D-Strukturen möglich.

Basisfunktionen $\vec{\phi}_i$ festlegen. Basierend auf der Volumendiskretisierung werden bei der Finite-Elemente-Methode auch die Funktionsräume diskretisiert: $U \rightarrow U_h$ und $W \rightarrow W_h$. $\vec{E} \in U_h$ wird nun als Linearkombination von Basisfunktionen dargestellt:

$$\vec{E}(r) = \sum_i e_i \vec{\phi}_i(r). \quad (3.3.7)$$

Die Basisfunktionen werden so gewählt, dass sie nur in wenigen Volumenelementen ungleich null sind (Formfunktionen). Beliebte sind polynomiale Basisfunktionen, beispielsweise für eindimensionale Probleme einfache Hutfunktionen. Dies führt später zu einem linearen Gleichungssystem (LGS) mit einer dünn besetzten Matrix, die sich numerisch einfacher lösen lässt. Es genügt nun, dass Gleichung 3.3.6 für alle Basisfunktionen $\vec{\phi}_i$ gilt.

LGS mit Gewichtungskoeffizienten e_i der Basisfunktionen als Unbekannte. Für die Koeffizienten e_i ergibt sich nun ein lineares Gleichungssystem, welches gelöst werden muss.

Numerische Lösung. Für die Lösung der diskretisierten Probleme können hierbei unterschiedliche direkte oder iterative Gleichungslöser (engl. „solver“) verwendet werden [121].

Generell benötigen direkte Gleichungslöser mehr Arbeitsspeicher, sind aber robuster. Beispiele für direkte Gleichungslöser sind „MUMPS“ („multifrontal massively parallel sparse direct solver“), „PARADISO“ („parallel direct solver“) oder „SPOOLES“ („sparse object oriented linear equation solver“). Diese Gleichungslöser basieren alle auf einer LU-Zerlegung⁵.

Wie der Name schon sagt nähern sich die iterativen Gleichungslöser der Lösung schrittweise. Gleichzeitig reduziert sich der Fehler schrittweise, bis er unter einen einstellbaren Schwellwert sinkt und die Berechnung abgebrochen werden kann. Häufig werden sogenannte (direkte) Vorkonditionierer verwendet. Iterative Methoden sind beispielsweise das Verfahren der konjugierten Gradienten (englisch: „conjugated gradient method“), „GMRES“ („generalized minimal residual method“) oder „BiCGStab“ („biconjugate gradient stabilized method“) [122].

3.3.3.1. Finite-Elemente-Simulationen in COMSOL

Die in dieser Arbeit vorgestellten FEM-Simulationen wurden mit dem Software-Paket „COMSOL Multiphysics“ (im folgenden COMSOL genannt) durchgeführt [121].

Im Gegensatz zu den FDTD-Simulationen wurde bei den FEM-Simulationen eine kugelförmige Simulationsumgebung gewählt. Dies hat mehrere Gründe. Zunächst ist das Simulationsnetz bei der Finite-Elemente-Methode nicht rechteckig sondern flexibler und gibt somit keine rechteckige Simulationsumgebung vor. Außerdem wurden in dieser Arbeit keine Simulationen mit Substrat mit der Finite-Elemente-Methode durchgeführt (was ebenfalls besser mit einer rechteckigen Simulationsumgebung realisiert werden kann). Ein einzelner Streupartikel in Luft kann in einer kugelförmigen Simulationsumgebung gut berechnet werden. Darüber hinaus ist eine kugelförmige Simulationsumgebung in COMSOL technisch etwas leichter zu realisieren als eine rechteckige. Ferner ergibt sich somit ein geringeres Gesamtvolumen, was auch den Simulationsaufwand reduziert.

⁵Die LU-Zerlegung ist ein Lösungsverfahren für quadratische lineare Gleichungssysteme, bei dem eine Matrix in ein Produkt aus zwei Matrizen (L und U) zerlegt wird. In der L-Matrix ist dann nur das linke untere und in der U-Matrix das rechte obere Dreieck besetzt.

„Perfectly Matched Layers“ in COMSOL. Mathematisch können in der Finite-Elemente-Methode dieselben PMLs eingesetzt werden wie in den FDTD-Simulationen (Kapitel 3.3.1). Technisch wird der perfekt absorbierende Randbereich durch ein Hüllvolumen, welches um den Simulationsbereich gelegt wird, realisiert. Dieser wird ebenso mit einem Simulationsnetz versehen wie der restliche Simulationsbereich. Anders als in den anderen Simulationsbereichen ist das Netz hier jedoch in konzentrischen Schichten aufgebaut, da vor allem in radialer Richtung eine feine Auflösung nötig ist. In Tabelle 3.3.4 sind die Parameter für die in COMSOL verwendeten PMLs und den Simulationsbereich aufgeführt.

Parameter	Wert/Einstellung
Dicke des PML-Bereichs ^a	100 nm oder größer
Anzahl Netzelementschichten im PML-Bereich	5
Durchmesser Simulationsbereich	800 nm

Tabelle 3.3.4.: Simulationsumgebung für Simulationen mit COMSOL.

^aIn COMSOL Version 3.5 wurde die PML mit streuenden Randbedingungen kombiniert. So genügte eine relativ dünne Dicke der PML. Bei neueren Versionen wurde die PML-Dicke deutlich größer (bis zur Hälfte der Wellenlänge) gewählt.

Simulationsnetz. Neben den absorbierenden Randbereichen sind die Einstellungen für das Simulationsnetz am wichtigsten. Auf der einen Seite ist ein feines Simulationsnetz nötig, um die Struktur genau genug aufzulösen. Auf der anderen Seite ist die Auflösung durch die limitierte Simulationszeit und Rechenleistung beschränkt. COMSOL verwendet automatisch an Stellen mit einer komplizierteren, sich schneller ändernden Geometrie eine feinere Netzauflösung als an anderen Stellen. Daher muss dies bei den Einstellungen nicht speziell berücksichtigt werden. Das Erzeugen des Netzes kann schrittweise erfolgen. Zunächst wurde ein sehr feines Netz innerhalb der Antenne erzeugt. Da die exakte Feldverteilung nahe der Antennenstruktur von besonderem Interesse ist, wurde eine fiktive Hüllfläche nahe um die Antennenstruktur erzeugt, in der das Netz ebenfalls sehr fein gewählt wurde. Erst danach wurde der restliche Simulationsbereich

mit einem Netz versehen. Wie auch bei den FDTD-Simulationen war es hierbei möglich ein Netz zu erzeugen, das zum Simulationsrand hin graduell größer wurde. Tabelle 3.3.5 zeigt die für das Simulationsnetz verwendeten Parameter.

Parameter	Wert/Einstellung
Maximale Netzelementgröße in der Antenne	6 nm
Maximale Netzelementgröße nahe der Antenne	10 nm
Maximale Netzelementgröße insgesamt	80 nm

Tabelle 3.3.5.: Netz-Parameter für Simulationen mit COMSOL.

Strefeldformulierung. In COMSOL steht mit der Strefeldformulierung (engl. scattered field formulation) eine Möglichkeit zur Verfügung, um das gestreute Feld getrennt zu untersuchen und für Streuprobleme auch genauer zu berechnen. Bei den vorliegenden Simulationen wurde die Nanostruktur stets mit einer ebenen Welle angeregt. Deren Verlauf ist bekannt und muss daher nicht extra berechnet werden. In COMSOL wird diese einfallende ebene Welle als „Hintergrundfeld“ betrachtet und es wird nur nach der Abweichung von diesem gelöst. Der große Vorteil beispielsweise gegenüber der in Lumerical verwendeten TFSF-Quelle ist, dass das gestreute Feld im kompletten 3D-Simulationsraum zur Verfügung steht. Auch das Gesamtfeld ist überall verfügbar und wird als Summe aus dem einfallenden und dem gestreuten Feld berechnet.

Komplizierter wird es, sobald die Umgebung nicht mehr aus einem Material mit konstantem Brechungsindex sondern beispielsweise einem Substratschichtstapel besteht. Wie bereits erwähnt, wurden für die vorliegende Arbeit in COMSOL nur Simulationen in Luft durchgeführt. Der Vollständigkeit halber wird hier jedoch trotzdem kurz das Vorgehen für Simulationen auf Substrat erläutert. Will man weiterhin mittels der Strefeldformulierung auf die gestreuten Felder zugreifen können, so muss man als Hintergrundfeld den Verlauf der Felder eingeben, wie er in dem Schichtstapel ohne Nanostruktur vorherrschen würde. Dies ist nicht trivial, da es allgemein zwischen den Schichten auch zu Mehrfachreflexionen kommt. Um dies zu berechnen kann man entweder eine eigene COMSOL-Simulation

ohne die Nanostruktur durchführen und die gespeicherte Lösung dann als Hintergrundfeld verwenden oder man kann eine getrennte Rechnung beispielsweise mittels der Transfer-Matrix-Methode [123] durchführen.

3.4. Geometrie von Antenne und Umgebung

Für die analytischen Untersuchungen mittels Mie-Theorie bzw. der quasistatischen Approximation wurden ausschließlich Kugeln bzw. Ellipsoide verwendet, daher werden diese hier nicht weiter besprochen. Auf die numerisch untersuchten Antennenstrukturen soll nun weiter eingegangen werden.

3.4.1. Quaderförmige Einarm- und Zweiarmanntennen

Bei den meisten in dieser Arbeit untersuchten Antennenstrukturen handelt es sich um quaderförmige Antennen. Hierbei wurden sowohl Antennen, die aus einem einzigen Quader bestehen (Einarmantennen), als auch Antennen aus zwei miteinander gekoppelten Antennen (Zweiarmantennen) untersucht (siehe Abb. 3.4.1). Die zwei Arme der Zweiarmantenne sind durch einen schmalen Spalt voneinander getrennt. Dieser Spalt hat einen großen Einfluss auf das Verhalten der Antennen.

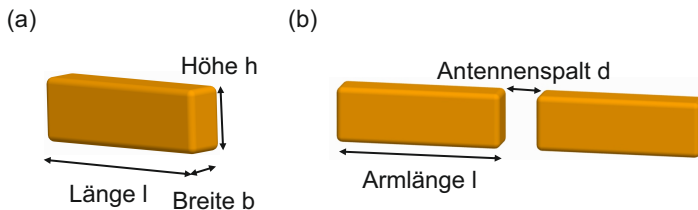


Abbildung 3.4.1.: Schematische Skizze von Einarm- und Zweiarmantennen in Luft; (a) Einarmantenne (b) Zweiarmantenne.

Parameter	Wert/Einstellung
Antennenarmlänge l	65 nm
Antennenbreite w	20 nm
Antennenhöhe h	30 nm
Radius Ecken r	3 nm
Breite Antennenspalt d	20 nm

Tabelle 3.4.1.: Ausgangsparameter der Antennengeometrie für Simulationen mit der FDTD-Methode und der FEM.

Alle Ecken und Kanten der Antennenstrukturen wurden mit einem Radius r abgerundet. Dies verhindert unrealistisch hohe Feldverstärkungen an den Ecken und Kanten und gegebenenfalls numerische Instabilitäten.

In Tabelle 3.4.1 sind nun die Geometriewerte für eine typische, häufig verwendete Nanoantenne angegeben.

3.4.2. Erstellen von CAD-Modellen

Für komplexere Antennengeometrien wurde erst ein CAD-Modell [124] erstellt. COMSOL ermöglicht den Import von diesen CAD-Modellen. Das Abrunden von Innen- und Außenkanten ist somit einfacher als direkt im Simulationsprogramm. Auch die in Kapitel 6 verwendeten, aus REM-Bildern extrahierten Konturen konnten direkt in das CAD-Programm importiert und hier extrudiert und in ein 3D-Modell gewandelt werden. Mit dem zweiten verwendeten Simulationsprogramm Lumerical ist es nicht möglich CAD-Strukturen zu importieren. Da diese numerische Methode jedoch nur rechteckige Simulationsgitter ermöglicht, ist eine genaue Untersuchung von sehr komplizierten Geometrien sowieso schwieriger. Für solche Strukturen wurde daher nur das COMSOL-Simulationsprogramm verwendet.

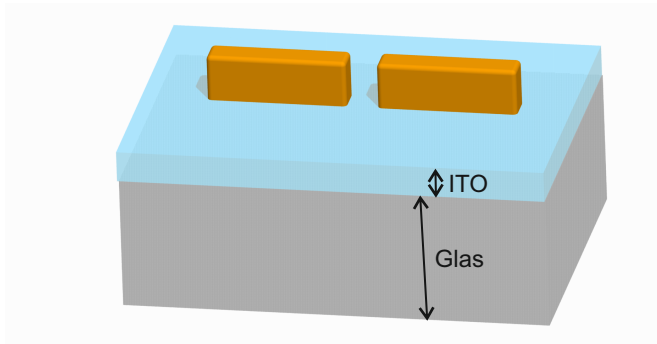


Abbildung 3.4.2.: Skizze einer Zweiarmanne auf einem ITO-beschichteten Glassubstrat.

3.4.3. Substratschichten

Viele der in dieser Arbeit vorgestellten Simulationen wurden für Nanostrukturen in einer Luftumgebung durchgeführt, aber auch der Einfluss der Substratschichten wurde untersucht. Für den Vergleich mit experimentellen Ergebnissen wurden stets ebenfalls Simulationen von Nanostrukturen auf einem Substratstapel verwendet. Die Herausforderung bei der Berechnung von einzelnen Nanopartikeln auf Substrat liegt zum einen darin, dass die Substratschicht aus Sicht der Simulation in der Ebene senkrecht zum Lichteinfall „unendlich“ ausgedehnt ist, zum anderen interessiert lediglich die Streuung an der Nanostruktur, nicht aber die Streuung an den Substratübergängen. Wie diese Unterscheidung in den beiden verwendeten Simulationsprogrammen realisiert wurde, wurde bereits in Kapitel 3.3.2.1 und 3.3.3.1 diskutiert. Bei Simulationen auf dem Substrat wurden die Substratschichten in der Ebene senkrecht zum Lichteinfall stets so groß gewählt, dass sie die komplette Simulationsumgebung inklusive der PML-Schichten durchdrangen. In der Realität hat das Substrat eine Dicke, die im Vergleich zur Antennenstruktur so groß ist (einige Millimeter), dass sie nicht mit simuliert werden kann. Daher startete die einfallende Welle stets im Substratmedium. Für die Vergleiche mit den Experimenten wurden Glassubstrate mit einer dünnen Indiumzinnoxidschicht

simuliert (siehe Abb. 3.4.2). Die Indiumzinnoxidschichtdicke betrug entweder 0 nm, 30 nm oder 50 nm (stets angegeben).

3.5. Antennen- und Substratmaterialien

Einer der Hauptvorteile von plasmonischen Bauteilen und insbesondere Nanoantennen ist ihre hohe Empfindlichkeit bezüglich Materialparameteränderungen. Dies gilt sowohl für das Antennenmaterial als auch das umgebende Medium. Dieser Vorteil stellt jedoch für simulative Betrachtungen insofern eine Herausforderung dar, dass leichte Abweichungen von einer akkuraten Abbildung der Materialparameter sich stark auf das Ergebnis auswirken können und somit auch das Erreichen von stabilen Lösungen schwierig ist. Für die hier durchgeführten elektromagnetischen Berechnungen genügt der komplexe frequenzabhängige Brechungsindex bzw. die komplexe dielektrische Funktion (siehe Gleichung 2.1.11) als Materialparameter.

Es gibt für die hier betrachteten Materialien (Gold, Aluminium und Indiumzinnoxid) verschiedene Quellen, in denen der komplexe Brechungsindex experimentell bestimmt wurde. Die Unterschiede zwischen den verschiedenen berichteten Werten sind bereits in einer Größenordnung, die sich auf die Simulationsergebnisse auswirken können [36]. Auch wurde teilweise diskutiert, inwieweit die an makroskopischen Strukturen gemessenen Materialparameter für die nur wenige Nanometer großen Antennenstrukturen, die auch ein deutlich kleineres Volumen-zu-Oberfläche-Verhältnis haben, noch gelten [125–127]. In COMSOL kann für jede Berechnung bei einer bestimmten Wellenlänge ein konkreter komplexer Brechungsindex angegeben werden. Es ist auch möglich den Brechungsindex für einen gewissen Wellenlängenbereich als Tabelle einzulesen und zwischen den einzelnen Messpunkten zu interpolieren. Im Gegensatz dazu muss für die im Zeitbereich durchgeführte Berechnung in Lumerical stets ein Materialparameterfit erfolgen. Dies ist in Lumerical über ein Multi-Koeffizienten-Modell realisiert.

3.5.1. Gold

Die Goldsimulationen in dieser Arbeit basieren auf den von Johnson und Christy gemessenen Materialparametern für Gold [17]. Der Verlauf des Real- und Imaginärteils der dielektrischen Funktion in Abhängigkeit der Wellenlänge ist in Abb. 3.5.1 dargestellt.

3.5.2. Aluminium

Die dielektrische Funktion von Aluminium wurde nach den in Ref. [18] angegebenen Materialwerten gewählt (siehe Abb. 7.1.1) und sind in Abb. 3.5.2 gezeigt. Die Besonderheit hierbei ist, dass in der angegebenen Referenz im untersuchten Wellenlängenbereich zwei Messreihen mit leicht abweichenden dielektrischen Funktionen angegeben wurden. Für den verwendeten Fit wurde über beide Sets gemittelt. Die gezeigte dielektrische Funktion enthält bereits diese Mittelung. Auch die Materialwerte für die Aluminiumdioxidschicht (Al_2O_3), welche Aluminium bei Luftkontakt ausbildet (siehe Kapitel 7) wurden aus Ref. [18] übernommen.

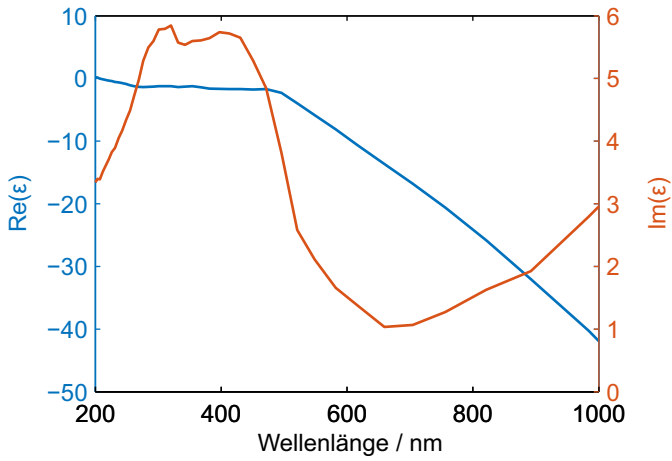


Abbildung 3.5.1.: Dielektrische Funktion von Gold nach Johnson und Christy [17].

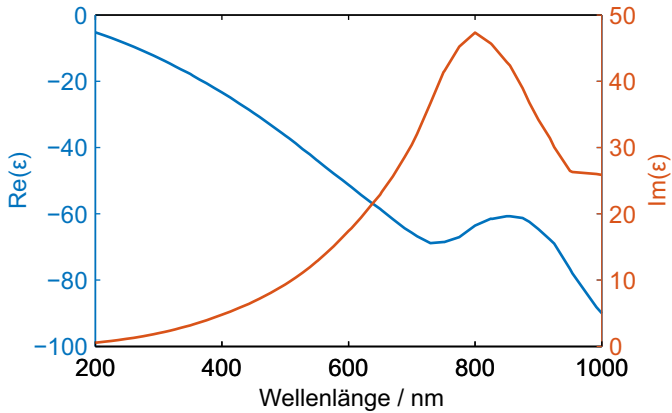


Abbildung 3.5.2.: Dielektrische Funktion von Aluminium nach Palik [18].

3.5.3. Substratmaterialien

Für die Substratmaterialien wurden sowohl Materialien mit einem konstanten Brechungsindex als auch Substrate aus Schichten mit frequenzabhängigem Brechungsindex untersucht. Ein typischer Schichtstapel besteht aus einem Glassubstrat mit einer darauf aufgebracht Schicht Indiumzinnoxid (siehe Abb. 3.4.2). Die dielektrische Funktion von Indiumzinnoxid wurde nach am Lichttechnischen Institut vermessenen Ellipsometriewerten modelliert (siehe Anhang Abb. A.2.1). Das Glassubstrat weist im untersuchten Wellenlängenbereich keinen signifikanten Gradienten im Brechungsindex auf und wurde deshalb mit einem konstanten Brechungsindex von $n = 1,5$ angenommen.

3.6. Untersuchte Eigenschaften von Nanoantennen an einem Beispiel

In diesem Unterkapitel werden alle Ergebnisparameter anhand einer Beispielantenne eingeführt und diskutiert. Die verwendete Beispielantenne besitzt genau die Ausgangsgeometrieparameter aus Tabelle 3.4.1. Die Simulationen für dieses Beispiel wurden für eine Antennenstruktur in Luftumgebung durchgeführt.

3.6.1. Absorptions-, Streu- und Extinktionsquerschnitt

In Kapitel 2.3.3.1 wurde das Konzept der Verwendung von Querschnitten zur Charakterisierung von Absorption, Streuung und Extinktion eingeführt.

Der Absorptions-, Streu- sowie Extinktionsquerschnitt für die hier untersuchte Beispielantenne ist in Abbildung 3.6.1 in Abhängigkeit von der Wellenlänge dargestellt. Der Extinktionsquerschnitt wird hier aus der Summe des Absorptions- und des Streuquerschnitts berechnet. Die Resonanzwellenlänge (aus dem Streuquerschnitt bestimmt) ist $\lambda_{\text{Res, Ff}} = 629$ nm. Bereits aus dieser

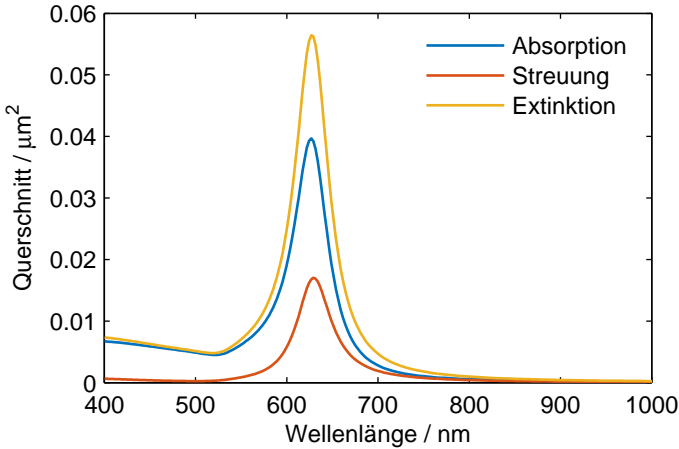


Abbildung 3.6.1.: Absorptions-, Streu- und Extinktionsquerschnitt für eine Zweiarmanntenne mit Länge $l = 65$ nm, Breite $w = 20$ nm, Höhe $h = 30$ nm, Antennenspalt $d = 20$ nm.

Graphik sieht man, dass die Spektren der optischen Antennen sehr breitbandig sind. Die Q-Faktoren sind: $Q_{\text{Abs}} = 13,1$, $Q_{\text{Streu}} = 14$, $Q_{\text{Ext}} = 13,4$. Weitere Größen, die für die folgenden Untersuchungen verwendet werden, sind die jeweiligen Querschnitte in Resonanz. Diese betragen für die hier untersuchte Struktur $C_{\text{max,Abs}} = 0,04 \mu\text{m}^2$, $C_{\text{max,Streu}} = 0,017 \mu\text{m}^2$, $C_{\text{max,Ext}} = 0,0564 \mu\text{m}^2$. Der geometrische Querschnitt der Antenne beträgt (unter Vernachlässigung der Eckenabrundung) $65 \text{ nm} * 20 \text{ nm} * 2 = 2600 \text{ nm}^2 = 0,0026 \mu\text{m}^2$.

Aus Abbildung 3.6.1 sieht man ferner, dass die Absorption (und somit auch die Extinktion) für Wellenlängen kleiner als die Resonanzwellenlänge nicht wieder auf null zurückgeht. Dies liegt an der Interbandabsorption von Gold. Diese drückt sich vor allem in einem höheren Imaginärteil der dielektrischen Funktion aus. Dieser ist in Abbildung 3.5.1 zu sehen.

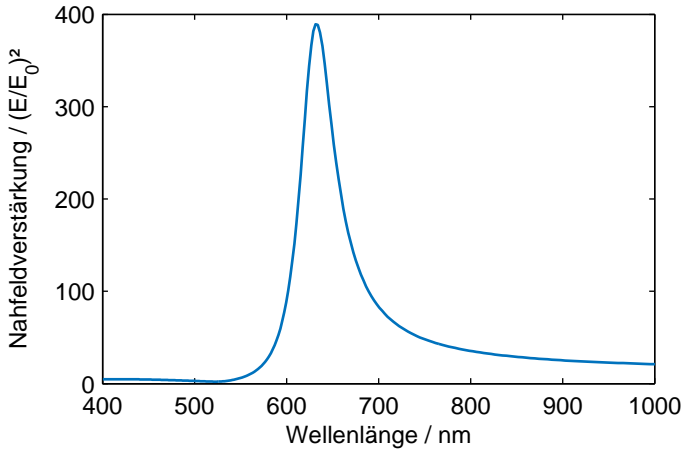


Abbildung 3.6.2.: Nahfeldverstärkung (quadriert) in der Mitte des Antennenspalts für eine Zweiarmannte mit Länge $l = 65$ nm, Breite $w = 20$ nm, Höhe $h = 30$ nm, Antennenspalt $d = 20$ nm.

3.6.2. Nahfeldverteilung

Die bisher vorgestellten Größen geben an, wie stark die Antenne mit dem Fernfeld wechselwirkt und wie viel Leistung sie aus dem Fernfeld „einfängt“. Interessant ist nun, inwieweit diese Leistung im Nahfeld zu einer Feldverstärkung im Antennenspalt führt. Hierfür wird zunächst der Punkt in der Mitte des Antennenspalts (Mitte bezüglich Höhe, Breite und Länge) gewählt und dort die spektrale Nahfeldverstärkung (Abb. 3.6.2) untersucht. Die Resonanzwellenlänge beträgt $\lambda_{\text{Res,Nf}} = 631,6$ nm. Der leichte Unterschied in der Resonanzwellenlänge von Fern- und Nahfeld ist in der Literatur bereits ausführlich bekannt und diskutiert [128–130]. Die maximale quadrierte Nahfeldverstärkung beträgt $\frac{E_{\text{Res}}^2}{E_0^2} = 389$. Der Gütefaktor ist $Q_{\text{Nf}} = 13,3$.

Es fällt auf, dass im Gegensatz zum Absorptionsquerschnitt, die Nahfeldverstärkung bei längeren Wellenlängen langsamer abfällt als bei niedrigeren Wellenlängen. Dies liegt an dem sogenannten quasistatischen Blitzableitereffekt

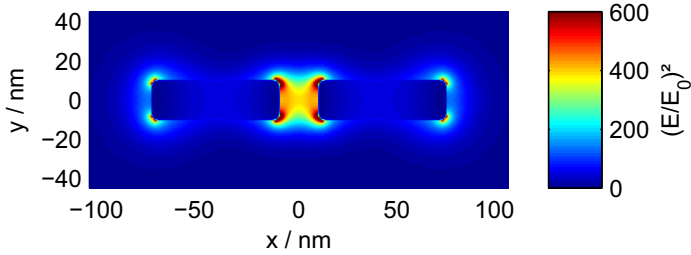


Abbildung 3.6.3.: Räumliche Verteilung der Nahfeldverstärkung $(\frac{E}{E_0})^2$; Schnitt auf halber Höhe einer resonanten Antenne; Wellenlänge $\lambda_{\text{Res,Nf}} = 631,6$ nm, Antennenhöhe $h = 30$ nm.

(Kapitel 2.4.1.1). Bei Frequenzen bzw. Energien oberhalb der Resonanz können die freien Elektronen dem elektrischen Feld nicht mehr folgen. Es gibt daher keine Feldverstärkung.

In Abb. 3.6.3 wird die räumliche Verteilung der Nahfeldverstärkung bei der Resonanzwellenlänge von $\lambda_{\text{Res,Nf}} = 631,6$ nm dargestellt.

Die Feldverstärkung ist sehr stark im Antennenspalt lokalisiert. Auch an den Antennenenden sind die Felder überhöht, jedoch weniger stark.

Bei Simulationen auf dem Substrat ist es wichtig zu berücksichtigen, dass die einfallende Welle im Substrat startet. Daher wird auch das Nahfeld nahe der Nanoantenne auf die Feldstärke im Substrat normiert. In einem Schichtsystem ohne Nanoantenne ist bereits das E-Feld in Luft entsprechend größer als das im Substrat gestartete E-Feld. Daher ist der Nahfeldverstärkungseffekt hier kein reiner Antenneneffekt und es wäre irreführend mit dieser Normierung beispielsweise die Nahfeldverstärkungen von Nanoantennen auf unterschiedlichen Substratmaterialien zu vergleichen. Der Substrateffekt kann aber einfach herausgerechnet werden.

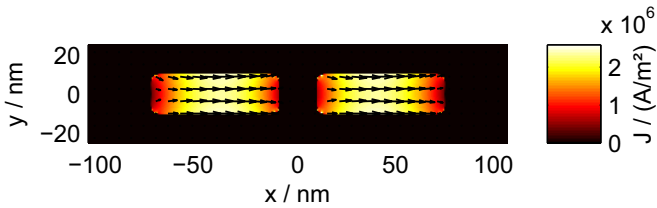


Abbildung 3.6.4.: Räumliche Verteilung der Stromdichte (A/m^2); Schnitt auf halber Höhe einer resonanten Antenne; Wellenlänge $\lambda_{\text{Res,Nf}} = 631,6 \text{ nm}$, Antennenhöhe $h = 30 \text{ nm}$.

3.6.3. Stromverteilung

Abb. 3.6.4 zeigt die Verteilung der Stromdichte in der Antenne. Man sieht hier sehr deutlich, dass die Stromdichte an beiden Enden der Antennenarme ein Minimum hat. Dies ist ein signifikanter Unterschied zu klassischen Hochfrequenzantennen. Bei diesen hat die Stromdichte am infinitesimal kleinen Antennenspalt ein absolutes Maximum. Wie in Ref. [35] beschrieben ist die Ursache hierfür die Fehlanpassung der Impedanz des Antennenspalts an die Antenne. Die Stromdichte hat hier auf beiden Antennen jeweils ein Maximum nahe der Mitte des Antennenarms. Das Maximum ist jedoch leicht in Richtung Antennenspalt verschoben. Die Stromdichte fällt am Antennenspalt auch nicht so stark ab wie am anderen Ende des Antennenarms. Dies zeigt, dass die beiden Antennenarme miteinander wechselwirken und dass Ladungen an der einen Seite des Antennenspalts durch Ladungen auf der anderen Seite des Spalts abgeschirmt werden.

Somit sind alle in dieser Arbeit definierten Simulationsparameter sowie die untersuchten Ausgangsparameter bekannt und es kann im nächsten Kapitel mit einer systematischen Untersuchung des Verhaltens von Nanoantennen begonnen werden.

4. Skalierungsverhalten von Nanoantennen – Wie unterschiedliche Geometriefaktoren die Resonanz beeinflussen

Dieses Kapitel beschäftigt sich mit einer detaillierten Untersuchung der verschiedenen Einflüsse auf das Resonanzverhalten von Nanoantennen. Im Gegensatz zu herkömmlichen Antennen gelten bei Nanoantennen einfache Skalierungsgesetze nicht mehr. Ihr Resonanzverhalten hängt sowohl von den genauen Geometrieparametern als auch von den Materialeigenschaften bei den jeweiligen Wellenlängen ab. Mit numerischen Simulationsmodellen können die optischen Eigenschaften von gekoppelten Dipolantennen auf einem Substrat inzwischen recht gut vorhergesagt werden und Ursachen von Abweichungen zwischen Experiment und Simulation gut zugeordnet werden (siehe Kapitel 6). Hierbei genügen erstaunlich wenige Eingangsparameter um die gewünschten Ergebnisse zu erhalten. Sieht man von den simulationstechnischen Aspekten ab, so genügen die Geometrie sowie die komplexe, frequenzabhängige dielektrische Funktion aller Materialien. Was hierbei jedoch häufig zu kurz kommt, ist ein intuitives Verständnis, wie diese wenigen Eingangsparameter zu den beobachteten Resonanzeigenschaften beitragen. In diesem Kapitel wird sich dem Problem einer gekoppelten Dipolantenne auf Substrat durch mehrere Zwischenschritte genähert und somit ein umfassenderes Verständnis der einzelnen Aspekte ermöglicht.

*Es zeigt sich, dass im ersten Schritt eine vereinfachte, quasistatische Berechnung von Ellipsoiden die Skalierungstrends in quaderförmigen Nanoantennen erstaunlich gut vorhersagen kann. Ausgangspunkt ist die einfachste „optische Antenne“ – eine Kugel in Luft. Streuung und Absorption an Kugeln ist ein gut untersuchter und verstandener Forschungsbereich. Deshalb beschränkt sich dieses Kapitel auf eine kurze Darstellung, in der die wichtigsten für die weiteren Untersuchungen relevanten Aspekte herausgestellt werden (Kapitel 4.1.2). Dem gegenübergestellt wird ein einfacher numerisch simulierter Würfel. Der nächste Schritt ist der Übergang zu einem Ellipsoid. Dieses lässt sich immernoch analytisch berechnen und berücksichtigt bereits den wichtigen Einfluss des Aspektverhältnisses mit (Kapitel 4.1.3). Ab dem nächsten Schritt, dem Übergang von einem Ellipsoid zu einem Quader, werden numerische Simulationen nötig. Es werden einzelne Goldquader untersucht, wobei insbesondere auf den Einfluss der Länge, des Aspektverhältnisses sowie der Höhe und Breite eingegangen wird. Als Nächstes wird die Kopplung zweier solcher Goldnanoquader über einen nanometerskalierten Spalt untersucht und zusammengefasst, wie sich die Resonanzeigenschaften dadurch ändern (Kapitel 4.2). Zum Schluss wird der Einfluss der umgebenden Materialien in Kapitel 4.3 untersucht. Durch diese schrittweise Analyse kann nun das Verhalten von experimentell hergestellten und vermessenen Antennen besser verstanden werden. Dies wird exemplarisch in Kapitel 4.5 für die Queranregung von gekoppelten Antennenstrukturen gezeigt.*¹

Wie oben beschrieben wird für die Untersuchung des Resonanzverhaltens der Nanoantennen die verwendete Struktur schrittweise aufgebaut und untersucht, um bei jedem Zwischenschritt die vorhandenen Einflüsse und Ursachen zu verstehen. Abb. 4.0.1 zeigt schematisch, welche Strukturen in den verschiedenen Abschnitten untersucht werden.

In Kapitel 3.2 wurde erläutert, dass Nanoantennen mehrere Resonanzen aufweisen können. Sie weisen sowohl unterschiedliche Resonanzen entlang der

¹ Teile der hier vorgestellten Ergebnisse wurden in Ref. [83] veröffentlicht.

verschiedenen Geometrieachsen auf als auch – neben den fundamentalen Moden – Moden höherer Ordnung. Falls nicht anders erwähnt, wird hier an allen Stellen, an denen nur von einer Resonanz die Rede ist, von der fundamentalen, longitudinalen Resonanz ausgegangen.

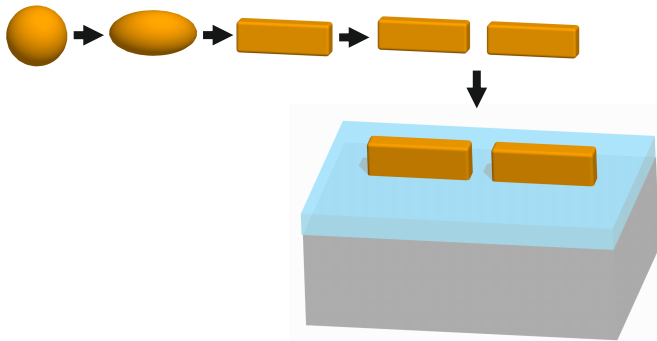


Abbildung 4.0.1.: Schematische Skizze der in den Simulationen verwendeten Geometrien. Um das Resonanzverhalten von Nanoantennen zu verstehen, werden zunächst Kugeln (Kapitel 4.1.2), dann Ellipsoide (Kapitel 4.1.3), dann Quader, daraufhin gekoppelte Antennen (Kapitel 4.2) und zum Schluss gekoppelte Antennen auf Substrat untersucht (Kapitel 4.3).

4.1. Von der analytischen Untersuchung einer Kugel bis zur numerischen Berechnung einer quaderförmigen Antenne

4.1.1. Stand der Forschung

In Kapitel 3.2 wurde gezeigt, wie Metallnanokugeln und -ellipsen analytisch mittels der Mie-Theorie und näherungsweise mittels der quasistatischen Approximation berechnet werden können. Auch neuere Veröffentlichungen untersu-

chen hiermit das Skalierungsverhalten von kugelförmigen und ellipsoidförmigen Nanopartikeln [23, 131–133]. Der Kern dieses Unterkapitels ist es jedoch zu untersuchen, inwieweit die quasistatische Approximation helfen kann vereinfachte Skalierungsgesetze für einzelne quaderförmige Nanopartikel zu finden. Hierbei handelt es sich um einzelne Einarantennen wie sie in Kapitel 2.4.3 eingeführt wurden. Obwohl fast jede etwas ausführlichere Veröffentlichung über Nanoantennen die quasistatische Approximation als Einstieg verwendet, gibt es erstaunlich wenige Arbeiten, die versuchen aus dieser einfachen Betrachtung ein Verständnis für das Resonanzverhalten von Nanoantennen mit unterschiedlicher Geometrie zu finden. Kelly et al. zeigen, dass die quasistatische Approximation für stark elongierte Nanopartikel länger ihre Gültigkeit behält als für sphärische Partikel [23]. Die Grenzen der quasistatischen Approximation werden beispielsweise in Ref. [134] aufgezeigt, wo für konstante kleine Aspektverhältnisse ab einer gewissen Größe eine starke Abhängigkeit von der Breite gezeigt wird. In Ref. [25] wird ebenfalls darauf verwiesen, dass bei konstantem Aspektverhältnis aber unterschiedlichen Größen keineswegs konstante Ergebnisse herauskommen, wie dies bei der quasistatischen Näherung der Fall ist.

Alternativ zur quasistatischen Approximation gibt es andere Ansätze um Nanoantennen mit einem einfach verständlichen Modell zu beschreiben. Am weitesten verbreitet ist hierbei eine Beschreibung durch einen Resonator [36] oder einen harmonischen Oszillator [35]. Ein Vergleich von numerischen Simulationen mit einem einfachen analytischen Ansatz, der ebenfalls auf Fabry-Pérot-Resonanzen beruht, wird in [135] gezeigt. Es ist bekannt, dass insbesondere das Aspektverhältnis (auch bei gleichbleibender Elektronenanzahl und Resonanzfrequenz) einen starken Einfluss auf die spektrale Breite der Resonanz hat [136]. Dies wird an dem Modell eines harmonischen Oszillators mit Berücksichtigung von Phasenverzögerung anschaulich.

Darüber hinaus gibt es eine Vielzahl an Untersuchungen, die direkt aus numerischen Simulationen oder experimentellen Untersuchungen Skalierungsgesetze ableiten. In Ref. [137] wird die Resonanzwellenlänge in Abhängigkeit von Höhe, Achsenlängen und genauer Geometrie untersucht. Hierbei wurde insbesondere auf den Einfluss des Depolarisationsfaktors, der Phasenverzögerung und der Krüm-

mung sowie auf den statischen und dynamischen Einfluss der weiteren Geometrie eingegangen. In Ref. [138] werden analytische Ausdrücke für das Skalierungsverhalten von quaderförmigen Nanoantennen hergeleitet, wobei hierbei nicht nur auf die Resonanzwellenlänge, sondern auch auf den Extinktionsquerschnitt in Resonanz und den Q-Faktor eingegangen wird.

Eine Vielzahl von bisherigen Arbeiten bestätigt, dass eine größere Antennenarmlänge zu größeren Resonanzwellenlängen führt [53, 128, 129] und dass dieser Zusammenhang meist näherungsweise linear ist [50, 139]. Begründungen hierfür sind der größere Abstand der Ladungen und die daraus folgenden geringeren Rückstellkräfte. Eine Abweichung von diesem linearen Verhalten wird für kleine Armlängen bzw. nahe der Interbandabsorption der entsprechenden Materialien gefunden [35, 50]. Die Steigung der Geraden, die den linearen Zusammenhang beschreibt, hängt unter anderem stark vom Radius der Nanoantenne (Aspektverhältnis) ab [50].

Des Weiteren ist bekannt, dass die Resonanz der Nahfeldverstärkung stets bei einer etwas längeren Wellenlänge als die Fernfeldresonanzen liegt [128–130].

Im Gegensatz zur vorliegenden Arbeit wurden in vielen bisherigen Arbeiten zylinderförmige Nanoantennen mit Halbkugeln an den Enden und Luft als umgebendes Material angenommen [37, 128].

Die meisten bisherigen Arbeiten konzentrieren sich auf die Änderung der Resonanzwellenlänge in Abhängigkeit der Antennenarmlänge. Es gibt verhältnismäßig wenige Arbeiten darüber, wie sich die Resonanznahfeldverstärkung, der Resonanzabsorptionsquerschnitt, der Resonanzstreuquerschnitt und andere Größen in Abhängigkeit der Antennenarmlänge verhalten.

4.1.2. Kugeln und Würfel

Um die systematische Untersuchung zu beginnen, werden als Ausgangspunkt nichtelongierte Strukturen betrachtet, also Strukturen bei denen Höhe, Breite und Länge gleich lang gewählt wurden, um Einflüsse durch das Aspektverhältnis

auszuschließen. Kugeln wurden gewählt, da diese analytisch berechnet werden können (Kapitel 3.2) und Würfel, da diese den verwendeten Quaderantennen am nächsten kommen.

4.1.2.1. Kugel: Mie-Theorie

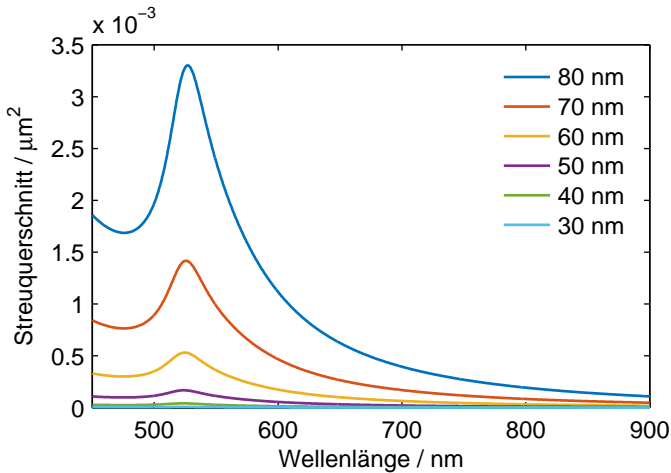


Abbildung 4.1.1.: Streuquerschnitt für Goldkugeln nach Mie mit Durchmessern zwischen 30 nm und 80 nm.

Wie in Kapitel 3.2 beschrieben können Kugeln mittels der Mie-Theorie analytisch berechnet werden. Dies ermöglicht eine schnelle und genaue Bestimmung der unterschiedlichen Parameter. Abb. 4.1.1 zeigt Streuquerschnitte für Goldkugeln mit Durchmessern zwischen 30 nm und 80 nm, berechnet nach Gleichung 3.2.1.

Die Resonanzwellenlänge verschiebt sich mit zunehmendem Durchmesser leicht zu längeren Wellenlängen verschiebt.

4.1.2.2. Kugel: Quasistatische Approximation

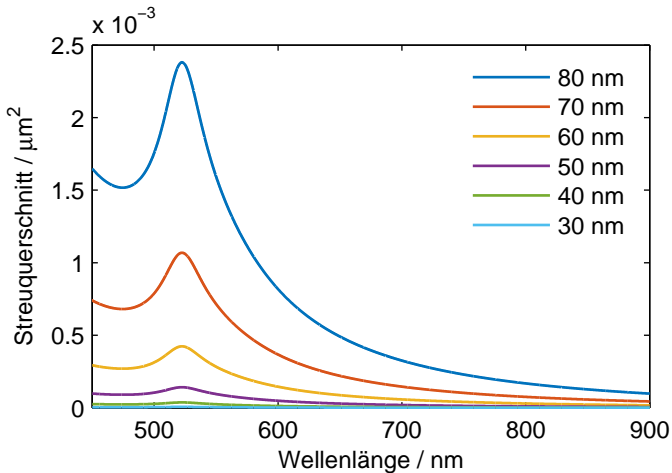


Abbildung 4.1.2.: Streuquerschnitt von Kugeln in der quasistatischen Näherung mit Durchmessern zwischen 30 nm und 80 nm.

Mit Hilfe der Mie-Theorie lassen sich die Resonanzen zwar genau und ohne große Rechenleistung und Simulationszeit bestimmen, ein einfaches Verständnis, warum es in diesen Strukturen zu einem solchen resonanten Verhalten kommt, fehlt jedoch. Daher ist die quasistatische Approximation (Kapitel 3.2.2) auch in Zeiten von hoher Computerleistung noch hilfreich. In Abb. 4.1.2 ist der Streuquerschnitt für Kugeln mit Durchmessern zwischen 30 nm und 80 nm gemäß der quasistatischen Approximation dargestellt. Zunächst ist zu sehen, dass die Ergebnisse aus Abb. 4.1.1 und Abb. 4.1.2 qualitativ denselben Verlauf zeigen und auch die Resonanzwellenlänge recht gut passt. Quantitativ kommt es jedoch zu Abweichungen. Trotzdem lässt sich aus den Ergebnissen Wichtiges lernen. Zunächst ist sofort ersichtlich, dass die Resonanzwellenlänge in der quasistatischen Approximation nicht mehr vom Durchmesser der Kugel abhängt. Betrachtet man nun erneut die Gleichung für die quasistatische Polarisierbarkeit von Kugeln, so

bekommt man ein erstes Verständnis dafür, warum es überhaupt zu Resonanzen in optischen Antennen kommt:

$$\alpha(\omega) = 4\pi\epsilon_0 a^3 \frac{\epsilon_{\text{Partikel}}(\omega) - \epsilon_{\text{Medium}}}{\epsilon_{\text{Partikel}}(\omega) + 2\epsilon_{\text{Medium}}}. \quad (4.1.1)$$

- Die Resonanz kann als Polstelle des Nenners aus Gleichung 4.1.1 interpretiert werden.

Das umgebende Medium wird zunächst als dielektrisches Medium mit frequenzunabhängiger, reeller dielektrischer Funktion ϵ_{Medium} (hier zunächst Luft) angenommen. Dies bedeutet, dass die Frequenz, für die der Nenner von Gl. 4.1.1 null wird, komplex ist. Anders ausgedrückt kann der Nenner für reelle Frequenzen nur minimal, aber nicht null werden. Daher lässt sich auch direkt aus Gleichung 4.1.1 erkennen:

- eine Resonanz tritt bei Wellenlängen auf, bei denen der Realteil der dielektrischen Funktion möglichst genau $-2 \epsilon_{\text{Medium}}$ und der Imaginärteil möglichst klein ist.

In den Vorfaktoren der Polarisierbarkeit steckt das Volumen der Kugel. Da die Polarisierbarkeit in der Formel für den Streuquerschnitt quadriert und in der Formel für den Absorptionsquerschnitt nur der Imaginärteil betrachtet wird, kann man daraus schließen:

- In der quasistatischen Näherung von Kugeln skaliert der Absorptionsquerschnitt linear mit dem Volumen und der Streuquerschnitt quadratisch.
- In der quasistatischen Näherung von Kugeln ist die Resonanzwellenlänge unabhängig vom Durchmesser der Kugel.

4.1.2.3. Würfel: FDTD-Simulation

In der hier vorliegenden Arbeit werden hauptsächlich quaderförmige Strukturen untersucht. Daher ist es wichtig zu wissen, inwieweit sich die Erkenntnisse von Ellipsoiden auf Quader übertragen lassen. Daher werden hier zunächst die

analytisch berechneten Streuquerschnitte für Kugeln mit numerisch berechneten Streuquerschnitten für Würfel verglichen. Es wurde sichergestellt, dass die numerischen Berechnungen von Kugeln gut mit der analytischen Berechnung übereinstimmen. Dies ist im Anhang (Kapitel A.1) zu sehen.

In Abb. 4.1.3 werden nun die Streuquerschnitte in Abhängigkeit der Wellenlänge für Würfel mit verschiedenen Kantenlängen gezeigt.

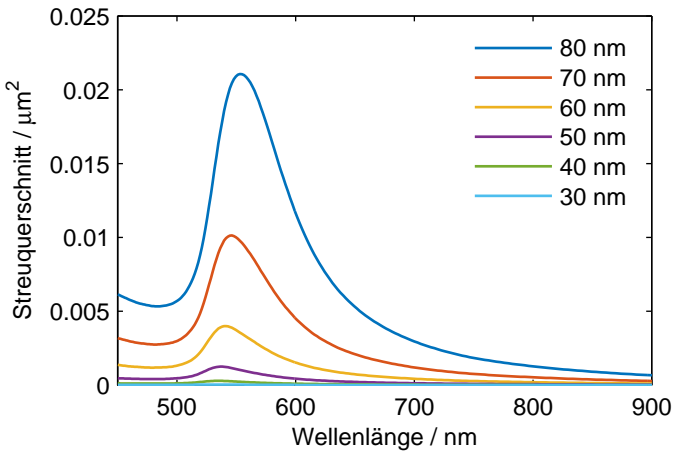


Abbildung 4.1.3.: Streuquerschnitte von Würfeln mit unterschiedlichen Kantenlängen zwischen 30 nm und 80 nm.

Es fällt auf, dass die Streuquerschnitte für Würfel deutlich größer sind als für Kugeln. Das lässt sich vor allem dadurch erklären, dass Würfel ein ca. doppelt so großes Volumen haben wie Kugeln, deren Durchmesser der Kantenlänge des Würfels entspricht. Aus Gleichung 3.2.8 sieht man, dass das Volumen quadratisch in den Streuquerschnitt eingeht. Darüber hinaus ist ein Würfel ein etwas besserer Resonator als eine Kugel. Es zeigt sich aber auch, dass die Resonanzwellenlängen trotzdem sehr gut übereinstimmen. Das stimmt auch mit Erkenntnissen aus der Literatur überein [140].

4.1.3. Längenvariation von Ellipsoiden und Quadern

Um nun das Skalieren der Resonanzeigenschaften in Abhängigkeit von Geometrieparametern näher zu untersuchen, werden als Nächstes elongierte Strukturen mit unterschiedlichen Aspektverhältnissen untersucht. Die häufigste Geometrievariation ist eine Längenvariation. In den meisten Arbeiten wird ausschließlich die Länge variiert, um die Resonanzwellenlänge einzustellen. Hier werden direkt quasistatische Berechnungen von Ellipsoiden und numerische Simulationen von Quadern verglichen.

4.1.3.1. Resonanzwellenlänge

Zunächst wird nochmals die Gleichung für die Polarisierbarkeit von Ellipsoiden in der quasistatischen Approximation betrachtet:

$$\alpha_1(\omega) = \frac{4}{3} \pi a_1 a_2 a_3 \epsilon_0 \frac{\epsilon_{\text{Partikel}}(\omega) - \epsilon_{\text{Medium}}}{\epsilon_{\text{Medium}} + L_1 (\epsilon_{\text{Partikel}}(\omega) - \epsilon_{\text{Medium}})}. \quad (4.1.2)$$

Aus Gleichung 4.1.2 erkennt man, wie in der quasistatischen Approximation die Materialeigenschaften und Geometrieigenschaften gemeinsam die Resonanz beeinflussen. Von entscheidender Bedeutung ist hierbei der Geometriefaktor L_1 (Gleichung 3.2.11), der sich aus dem Aspektverhältnis (Verhältnis aller drei Achsen eines Ellipsoids) bestimmen lässt.

- Der Nenner der Polarisierbarkeit ist weiterhin für die Resonanzwellenlänge verantwortlich. Diese hängt jetzt aber nicht mehr nur vom Material, sondern auch von der genauen Geometrie ab, d.h. hier von dem genauen Aspektverhältnis zwischen den drei Halbachsen² a_1 , a_2 und a_3 .
- Für ein konstantes Aspektverhältnis ist die Resonanzwellenlänge konstant.

²Damit die Gleichungen in ihrer bekannten Form geschrieben werden können werden die Variablen a_1 , a_2 und a_3 weiterhin für die Halbachsen verwendet. Für den Vergleich mit numerischen Simulationen von Quadern wird daher $2a_1$ mit der Länge l , $2a_2$ mit der Breite w und $2a_3$ mit der Höhe h verglichen.

- Absorptions- und Streuquerschnitt sind hier nicht mehr direkt proportional zum Volumen bzw. Volumen², da sich die Resonanzwellenlänge ändert, wenn sich die Geometrie ändert und somit auch der gesamte Wert der Polarisierbarkeit.

Die Resonanzwellenlängen für Rotationsellipsen in der quasistatischen Approximation in Abhängigkeit der langen Achsenlänge wurden in Abb. 4.1.4 untersucht.

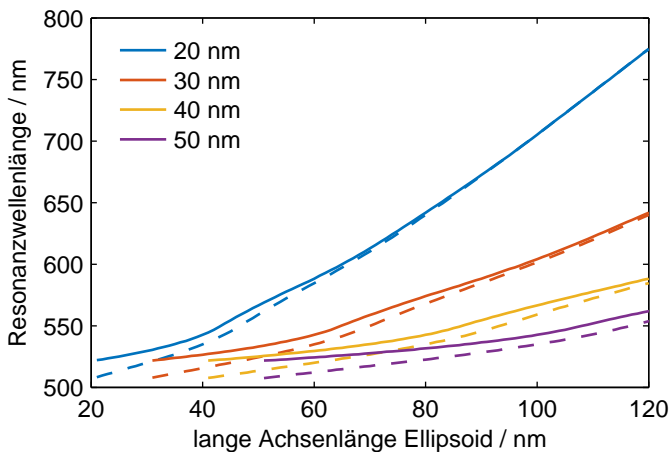


Abbildung 4.1.4.: Resonanzwellenlänge von Rotationsellipsen aus Gold in Abhängigkeit von der Länge der langen Achse $2a_1$ (kurze Achsenlänge $2a_2 = 2a_3$ siehe Legende). Durchgezogen: Streuung; gestrichelt: Absorption.

In Analogie zu den oben betrachteten Ellipsoiden werden nun die Eigenschaften von Nanoquadern (hier Einarmanntennenstruktur genannt) numerisch berechnet, bei denen die Höhe h gleich der Breite w ist. Für unterschiedliche Breiten/ Höhen wurde nun die Armlänge variiert. In Abb. 4.1.5 ist die Resonanzwellenlänge in Abhängigkeit der Antennenarmlänge für unterschiedliche Breiten/ Höhen dargestellt.

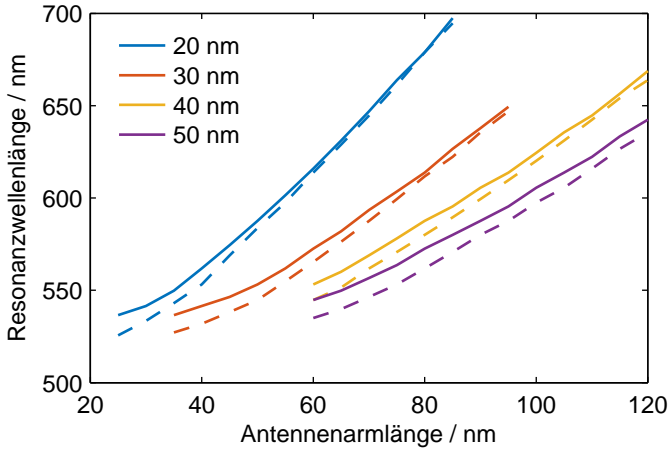


Abbildung 4.1.5.: Resonanzwellenlänge für Streuung (durchgezogen) und Absorption (gestrichelt) von Einarmentennen mit unterschiedlicher Antennenarmlänge und unterschiedlicher Breite/Höhe ($w = h$ siehe Legende).

Vergleicht man Abb. 4.1.4 und Abb. 4.1.5 so können einige interessante Beobachtungen gemacht werden:

- Die Resonanzwellenlänge nimmt mit zunehmender Antennenlänge nahezu linear zu.
- Auch die Höhe/Breite hat einen Einfluss: Bei konstanter Länge nimmt die Resonanzwellenlänge mit zunehmendem Aspektverhältnis zu.
- Die Steigung der Geraden nimmt mit zunehmendem Aspektverhältnis zu.
- Die Resonanzwellenlänge der Streuung ist stets bei etwas größeren Wellenlängen als die der Absorption.
- Der geringe Unterschied nimmt mit zunehmender Antennenlänge noch weiter ab.

All diese Erkenntnisse gelten auch für die numerisch berechneten Einarantennen und können aufgrund der einfachen Berechnung gut anhand der quasistatischen Approximation verstanden werden.

Die lineare Rotverschiebung mit zunehmender Antennenlänge stimmt mit dem Verhalten von klassischen Antennen überein und kann für optische Antennen beispielsweise analog zu [37] bestimmt werden. Das zugrundeliegende Konzept ist bei der klassischen Antennentheorie und der quasistatischen Approximation jedoch grundsätzlich anders. In der klassischen Antennentheorie entsteht eine Resonanz, wenn die elektromagnetische Welle sich wie in einem Resonator nach einem „Rundlauf“ konstruktiv mit sich selbst überlagert, wenn also die gesamte Phasenverschiebung ein Vielfaches von 2π ist. In der quasistatischen Approximation haben aber alle Punkte genau dieselbe Phasenlage. In der quasistatischen Approximation wird die Partikelgeometrie über einen Geometriefaktor L repräsentiert und zu jedem L -Faktor existiert eine optimale dielektrische Funktion (Formel 3.2.10). Es stellt sich stets die Resonanzwellenlänge ein, bei der die dielektrische Funktion und der L -Faktor am besten zueinander passen.

Das Skalieren der Resonanzwellenlänge mit der Antennenlänge hängt daher maßgeblich vom genauen Verlauf der dielektrischen Funktion ab und ist nicht zwangsläufig eine lineare Rotverschiebung. In Ref. [55] wurde der Zusammenhang bzw. der Übergang zwischen diesen beiden doch sehr unterschiedlichen Konzepten erläutert. Entscheidend ist hierfür der Phasensprung an den Enden der Antenne. Dieser Phasensprung ist bei optischen Antennen deutlich komplexer und hängt von Geometrie und Material ab. Somit kann eine optische Antenne in der quasistatischen Approximation als unendlich kurze Antenne betrachtet werden, die die Phasenbedingung für konstruktive Interferenz durch die Phasensprünge an den Enden der Antenne erfüllt.

4.1.3.2. Resonanzstärke und Gütefaktor

In Abb. 4.1.6 sind aus den numerischen Simulationen von Einarmanntennen, die Absorptions- und Streuquerschnitte bei der Resonanzwellenlänge in Abhängigkeit der Antennenlänge dargestellt. Hieraus kann man sehen:

- Für kleine Partikel dominiert die Absorption, für große Partikel dominiert die Streuung.
- Der Streuquerschnitt steigt im Resonanzfall deutlich schneller an als der Absorptionsquerschnitt.

Darüber hinaus sieht es so aus, als wäre der Einfluss der Antennenbreite/ -höhe auf den maximalen Querschnitt in diesem speziellen Fall sehr gering. Das wirkt jedoch nur auf den ersten Blick so, da man berücksichtigen muss, dass die unterschiedlichen Antennenbreiten/ -höhen zu unterschiedlichen Volumina führen und gleichzeitig die Resonanzwellenlängen (vergleiche Abb. 4.1.5) und somit nach Abb. 3.5.1 auch die entsprechende dielektrische Funktionen stark unterschiedlich sind. Daher handelt es sich vielmehr um gegenläufige Trends, die sich hier annähernd ausgleichen.

Vieles am Skalierungsverhalten ist nicht intuitiv verständlich. Dies ist jedoch mit Hilfe der quasistatischen Approximation möglich. Sie zeigt, wie wichtig die genaue dielektrische Funktion bei der Resonanzwellenlänge für die Stärke der Resonanz und somit auch für den maximalen Streu- und Absorptionsquerschnitt ist. Um die Ursachen weiter voneinander zu trennen, wird im Folgenden nicht mehr über die Antennenarmlänge sondern über die Resonanzwellenlänge aufgetragen.

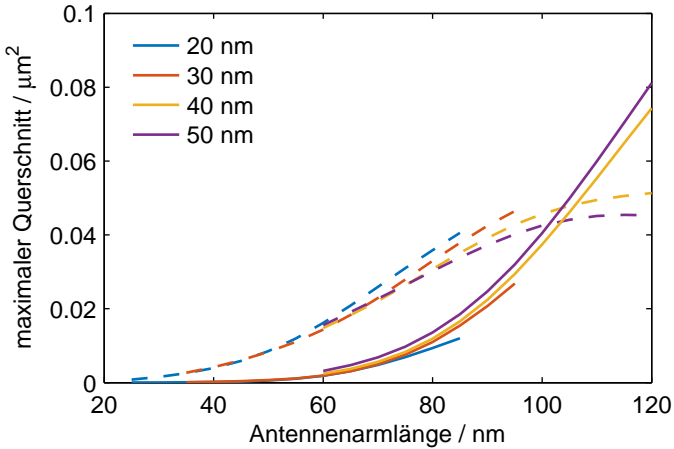


Abbildung 4.1.6.: Maximum von Streuquerschnitt (durchgezogen) und Absorptionsquerschnitt (gestrichelt) in Abhängigkeit der Antennenlänge für verschiedene Breiten/ Höhen ($w = h$ siehe Legende).

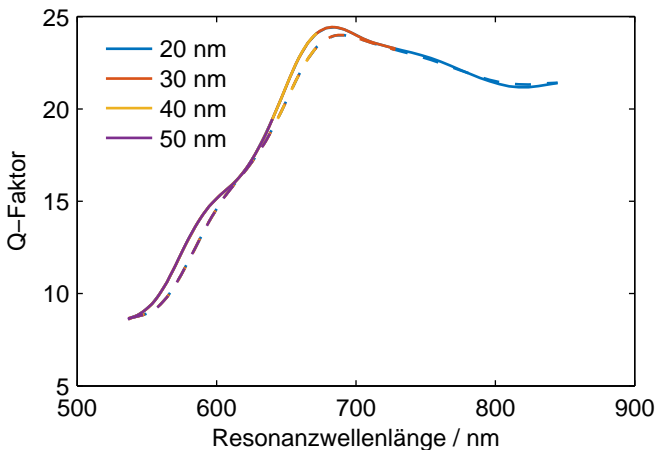


Abbildung 4.1.7.: Q-Faktor (Streuung durchgezogen, Absorption gestrichelt) von Gold-Rotationsellipsen mit unterschiedlichen kurzen ($2a_2 = 2a_3$) Achsenlängen (siehe Legende) sowie unterschiedlichen langen Achsenlängen $2a_1$, die mit zunehmender Länge zu zunehmender Resonanzwellenlänge führen. Die Kurven für die unterschiedlichen kurzen Achsen liegen exakt übereinander.

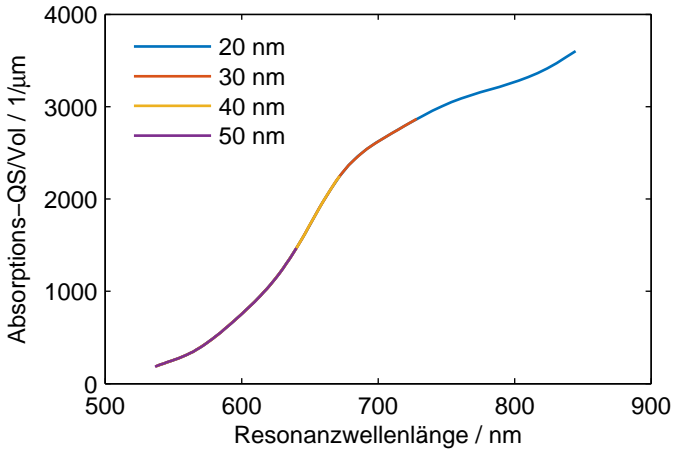
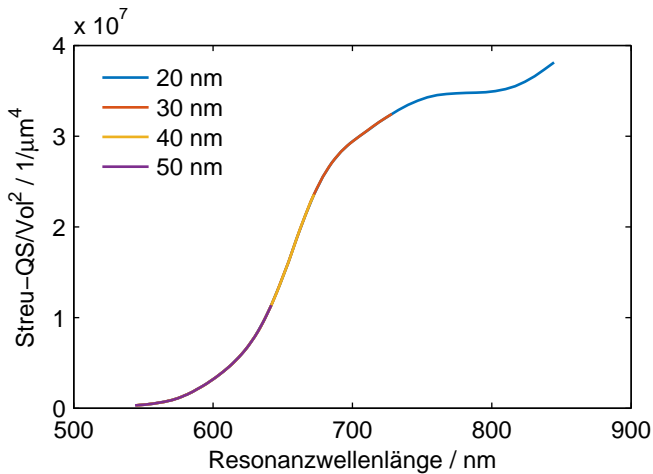
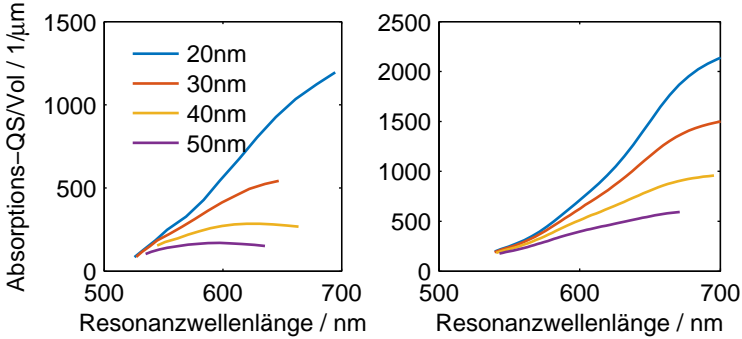
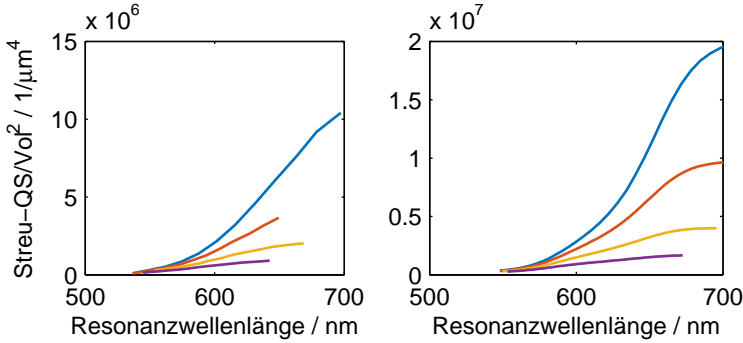
(a) $\text{Absorptions-QS}(\lambda_{\text{res}}) / V$ (b) $\text{Streu-QS}(\lambda_{\text{res}}) / V^2$

Abbildung 4.1.8.: Normierte Absorptions- und Streuquerschnitte von Gold-Rotationsellipsen mit unterschiedlichen kurzen ($2a_2 = 2a_3$) Achsenlängen (siehe Legende) sowie unterschiedlichen langen Achsenlängen $2a_1$, die mit zunehmender Länge zu zunehmender Resonanzwellenlänge führen. Die Kurven für die unterschiedlichen kurzen Achsen liegen exakt übereinander.

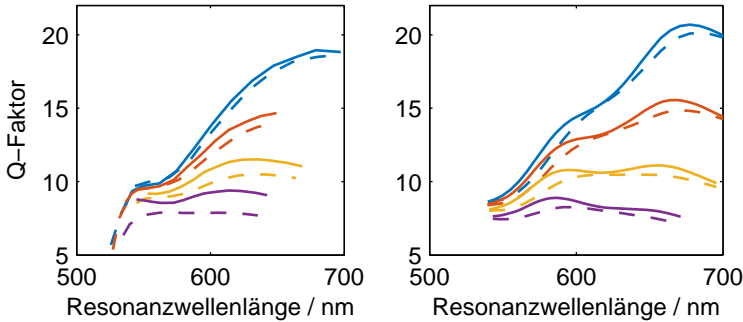
Zunächst gibt es im Bereich der quasistatischen Approximation drei charakteristische Größen, die nur noch von der genauen dielektrischen Funktion der Materialien bei der entsprechenden Resonanzwellenlänge abhängen: der Q-Faktor, sowie die Größen $Absorptions_QS(\lambda_{res})/V$ und $Streu_QS(\lambda_{res})/V^2$. Diese sind in Abb. 4.1.7 und Abb. 4.1.8 für Ellipsoide mit unterschiedlichen kurzen Achsenlängen $2a_2 = 2a_3$ (siehe Legende) und unterschiedlichen langen Achsenlängen $2a_1$, die entsprechend zu anderen Resonanzwellenlängen führen, dargestellt. Man sieht, dass hier die Kurven für unterschiedliche kurze Achsenlängen exakt übereinander liegen und einen materialspezifischen Verlauf zeigen. Die numerischen Simulationen zeigen jedoch, dass hier ein Bereich erreicht ist, in dem die quasistatische Approximation die Trends nicht mehr gut genug wiedergeben kann. Dies ist genau der Bereich, in dem es nötig wird auf die in Kapitel 3.2.2.3 eingeführte Erweiterung der quasistatischen Absorption – basierend auf Phasenverzögerung und Strahlungsdämpfung – zurückzugreifen. In Abb. 4.1.9 werden die mittels FDTD simulierten Streu- und Absorptionsquerschnitte jeweils normiert auf das Volumen² bzw. auf das Volumen sowie der Q-Faktor jeweils über die Resonanzwellenlänge aufgetragen dargestellt und eine entsprechende Berechnung aus der quasistatischen Approximation mit Korrekturtermen (Gl. 3.2.17) für höhere Ordnungen wird gegenüber gestellt.



(a) $Absorptions_QS(\lambda_{res})/V$



(b) $Streu_QS(\lambda_{res})/V^2$



(c) Q-Faktor (Streuung durchgezogen, Absorption gestrichelt)

Abbildung 4.1.9.: Normierte Streu- und Absorptionsquerschnitte sowie Q-Faktoren von Nanoquadraten (FDTD, linke Spalte) und Ellipsoiden in der quasistatischen Approximation mit Korrekturtermen (rechte Spalte) in Abhängigkeit der Resonanzwellenlänge.

Es zeigt sich eine gute Übereinstimmung der Trends. Aus diesen Untersuchungen lassen sich folgende weitere Schlussfolgerungen ziehen:

- Die quasistatische Approximation kann auch helfen den Verlauf von Resonanzstärke und Gütefaktor vorherzusagen und zu verstehen.
- Einen dominierenden Einfluss hat hierbei die dielektrische Funktion bei der Resonanzwellenlänge.
- Darüber hinaus geht das Volumen weiterhin linear in den Absorptions- und quadratisch in den Streuquerschnitt ein.
- Um zu überprüfen, ob man in einem Bereich ist, in dem die quasistatische Approximation ausreichend gültig ist um Trends vorherzusagen, kann man überprüfen, ob der Gütefaktor bei gleicher Resonanzwellenlänge konstant ist.
- In Bereichen, in denen die quasistatische Approximation zur Trendvorhersage nicht mehr ausreicht, kann man eine einfache Erweiterung basierend auf Phasenverzögerung und Strahlungsämpfung verwenden (Kapitel 3.2.2.3).
- In diesem Bereich nehmen dann Q-Faktor, Absorptions- und Streuquerschnitt mit zunehmender Breite zusätzlich ab.

4.1.4. Breiten- und Höhenvariation von Ellipsoiden und Quadern

Bisher wurden nur Strukturen untersucht, bei denen Breite und Höhe stets identisch gewählt wurden. Nun werden Höhe und Breite getrennt voneinander untersucht und die Skalierungseigenschaften der Resonanz in Abhängigkeit dieser beiden Parameter stehen im Fokus. In der Literatur kam diesen Parametern bisher nur wenig Beachtung zu. In den meisten Fällen wurde der Fokus auf die Länge oder auf das Aspektverhältnis, also Länge im Verhältnis zum Durchmesser, gesetzt. Die Höhe und die Breite sind jedoch zwei sehr sensible Parameter. Sie

sind die kleinsten Dimensionen der Struktur und somit am stärksten von herstellungstechnischen Schwankungen betroffen. Außerdem stellen sie einen häufig übersehenen Freiheitsgrad zur Einstellung von optimalen Resonanzeigenschaften dar. Auch ist die Vereinfachung Höhe und Breite gleich groß zu wählen eine unnötige und häufig auch unrealistische Annahme. Beispielsweise beeinflussen bei der Herstellung mittels Elektronenstrahlithographie ganz andere Faktoren diese beiden Parameter und ein quadratischer Querschnitt ist ein seltener Sonderfall. Daher werden beide Größen hier sowohl getrennt voneinander als auch gemeinsam variiert und untersucht.

4.1.4.1. Rotationsellipsen mit variabler kurzer Achse

In Kapitel 3.2.2.2 und Kapitel 4.1.3 wurde bereits erklärt, dass bei Ellipsoiden nicht mehr nur die Materialeigenschaften, sondern die Materialeigenschaften in Kombination mit den Geometrieigenschaften entscheidend sind. Die Geometrieigenschaften werden jeweils für die drei Polarisationsrichtungen entlang der drei Achsen des Ellipsoids in einem einzigen Geometriefaktor L zusammengefasst. Hier wird nun genauer untersucht, wie Geometrie- und Materialeigenschaften die Resonanz beeinflussen. Wie bereits erwähnt, kann man die Resonanz als Polstelle von Gleichung 4.1.2 auffassen. Man erkennt, dass in dem Bereich in dem der Betrag des Imaginärteils von $\epsilon_{\text{Partikel}}$ deutlich kleiner als der Betrag des Realteils ist und außerdem die Steigung des Imaginärteils in Abhängigkeit von der Wellenlänge kleiner als die Steigung des Realteils ist, die Resonanzwellenlänge maßgeblich vom Realteil von $\epsilon_{\text{Partikel}}$ abhängt. Setzt man den Realteil des Nenners von Gleichung 4.1.2 zu null so erhält man in Luft die Resonanzbedingung $\text{Re}(\epsilon_{\text{Partikel}}) = \frac{L-1}{L}$ [131]. Setzt man diese Resonanzbedingung in Gleichung 4.1.2 erhält man:

$$\alpha_{\text{Res}} = \frac{1}{L} + j \frac{1}{L^2 \text{Im}(\epsilon_{\text{Partikel}})}. \quad (4.1.3)$$

Für die Rechnungen aus Abb. 4.1.10 und Abb. 4.1.11 wurden Ellipsoide mit konstanter langer Achsenlänge ($2a_1 = 65 \text{ nm}$) in der quasistatischen Approximation

berechnet. Hierbei wurden einmal beide kürzeren Achsen variiert ($2a_2 = 2a_3$) und einmal eine kurze Achse konstant auf $2a_3 = 20\text{nm}$ gelassen und die andere ($2a_2$) variiert.

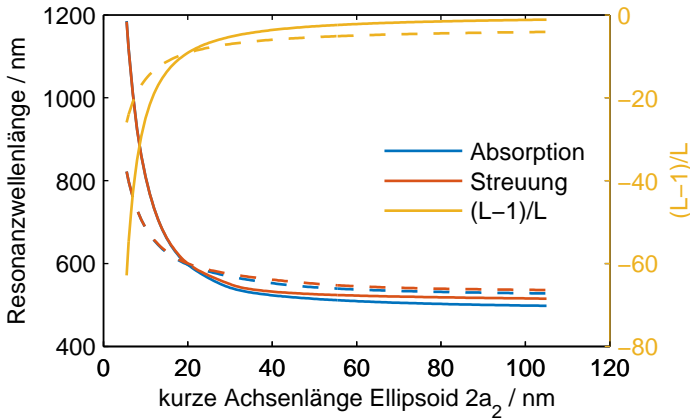


Abbildung 4.1.10.: Resonanzwellenlängen und Geometriefaktoren $\frac{L-1}{L}$ von Rotationsellipsen mit konstanter langer Achse von $2a_1 = 65\text{nm}$ und variabler kurzer Achse $2a_2$. Durchgezogene Linie: $2a_3 = 2a_2$; gestrichelte Linie: $2a_3 = 20\text{nm}$.

Aus diesen Untersuchungen können folgende Erkenntnisse gezogen werden, die auch für die numerische Berechnung von optischen Antennen ihre Gültigkeit behalten:

- Je größer das Aspektverhältnis eines Partikels wird, desto weiter verschiebt sich die Resonanzwellenlänge zu längeren Wellenlängen (Abb. 4.1.10).
- Die Verschiebung wird stärker, je kleiner die kurzen Achsen der Rotationsellipse werden.
- Der Verlauf der Resonanzwellenlänge wird (in weiten Bereichen) durch den Verlauf des Geometriefaktors $\frac{L-1}{L}$ dominiert. Die starke Zunahme

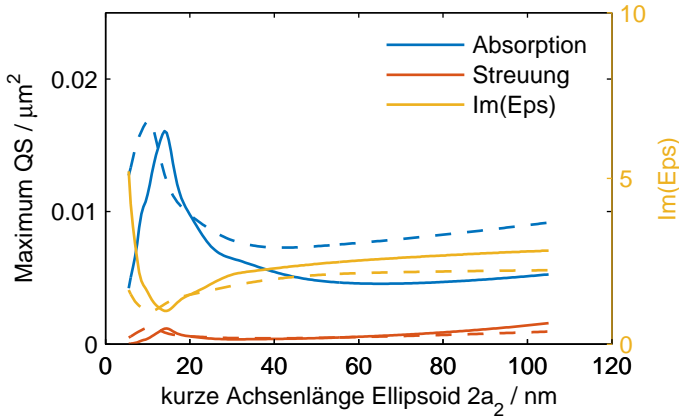


Abbildung 4.1.11.: Maximaler Absorptions- und Streuquerschnitt sowie Imaginärteil der dielektrischen Funktion in Resonanz für Rotationsellipsen mit konstanter langer Achse von $2a_1 = 65$ nm und variabler kurzer Achse $2a_2$. Durchgezogene Linie: $2a_3 = 2a_2$; gestrichelte Linie: $2a_3 = 20$ nm.

der Resonanzwellenlänge bei kurzen Achsenlängen hängt mit der großen Steigung des Geometriefaktors zusammen.

- Für kleinere Aspektverhältnisse laufen die Resonanzwellenlängen für Absorption und Streuung leicht auseinander.
- Der Absorptions- und Streuquerschnitt in Resonanz wird maßgeblich vom Imaginärteil der dielektrischen Funktion beeinflusst (Abb. 4.1.11), allerdings auf eine zunächst unerwartete Weise. Da der Imaginärteil der dielektrischen Funktion normalerweise mit Absorptionsverlusten assoziiert wird, würde man erwarten, dass ein hoher Imaginärteil von Epsilon zu einer hohen Absorption führt und umgekehrt. Der Zusammenhang ist aber genau invers. Aus Gleichung 3.2.9 erkennt man, dass für den Absorptionsquerschnitt der Imaginärteil der Polarisierbarkeit und nicht der dielektrischen Funktion maßgeblich ist. Allerdings stimmt der Zusammenhang insoweit

schon, dass nur eine komplexe Dielektrizitätskonstante zu einer komplexen Polarisierbarkeit und somit zu Absorptionsverlusten führen kann. Der Zusammenhang zwischen beiden ist allerdings komplizierter [131].

- In der quasistatischen Approximation kann man die beiden Dimensionen Höhe und Breite (bzw. a_2 und a_3) vertauschen, ohne die Ergebnisse zu beeinflussen. Dies wird im nächsten Abschnitt zu den Eigenschaften einer vollständigen numerischen Simulation abgegrenzt.

4.1.4.2. Breiten- und Höhenvariation von Quadern (FDTD)

Anders als in der quasistatischen Approximation sind in den numerischen Simulationen Höhe und Breite generell unterschiedliche Parameter, auch bei Simulationen in Luft. Sie sind insofern unterschiedlich, da die Höhe die Dimension in Richtung des k -Vektor der anregenden ebenen Welle ist. Vor allem für Höhen, die größer als die Eindringtiefe sind, wird erwartet, dass eine weitere Zunahme an Höhe an Einfluss verliert, während es bei der Breite der Antenne kein entsprechendes Limit gibt. Abb. 4.1.12 zeigt, wie sich die Resonanzwellenlänge für Einarmantennen und Zweiarmentennen der Längen 55 nm, 60 nm und 65 nm verhält. Wird die Höhe variiert, so ist die Breite konstant bei 20 nm und umgekehrt. Generell sieht man wieder den Trend, dass die Resonanzwellenlänge sich schneller zu längeren Wellenlängen hin verschiebt, je kleiner die entsprechende Dimension wird. Ob die Breite oder die Höhe variiert wird, macht im Rahmen der hier verwendeten Auflösung keinen Unterschied. Mit zunehmender Höhe bzw. Breite tritt wieder der schon zuvor diskutierte Unterschied zwischen Streuung und Absorption auf, der größer wird je größer die entsprechende Dimension wird.

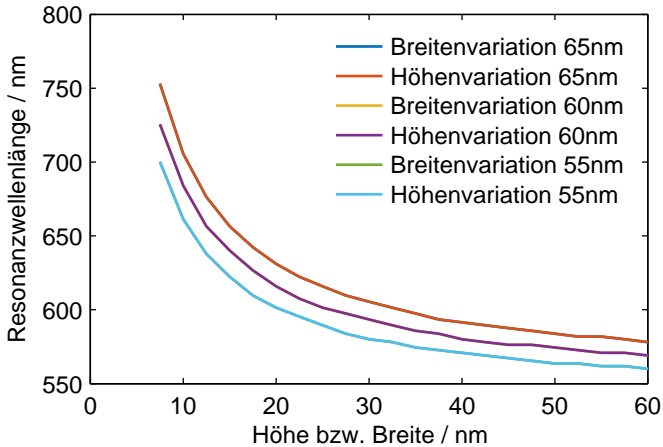
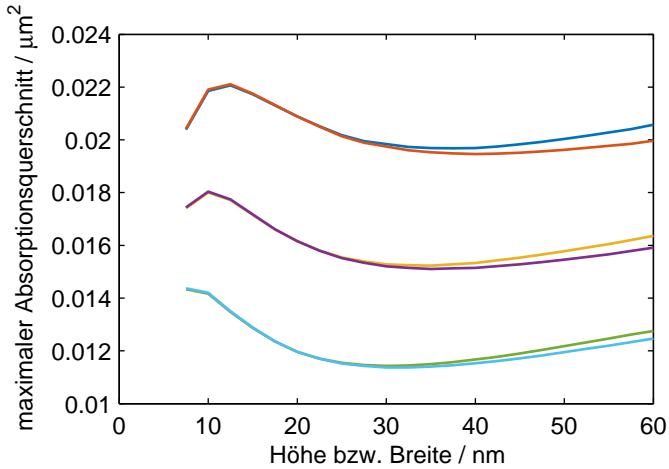
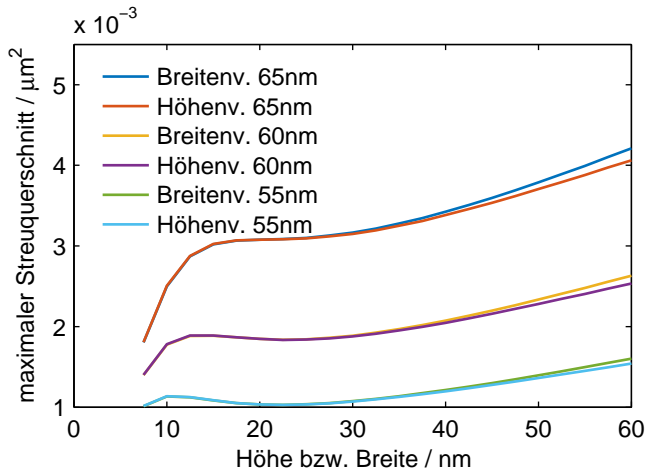


Abbildung 4.1.12.: Resonanzwellenlänge der Streuung für Nanoantennen der Längen 55 nm, 60 nm und 65 nm mit unterschiedlichen Höhen bzw. unterschiedlichen Breiten. Die jeweils andere Größe wurde konstant auf 20 nm gehalten. Die Ergebnisse für die jeweilige Breiten- und Höhenvariation liegen so genau übereinander, dass jeweils nur eine Kurve zu sehen ist.

In Abb. 4.1.13 sind nun sowohl der maximale Streu- als auch Absorptionsquerschnitt für verschiedene Höhen bzw. Breiten für die unterschiedlichen Längen aufgetragen.



(a) Absorption (Legende siehe (b)).



(b) Streuung.

Abbildung 4.1.13.: Maximaler Absorptions- bzw. Streuquerschnitt in Abhängigkeit der Höhe bzw. der Breite für Einarantennen der Längen 55 nm, 60 nm und 65 nm.

Zunächst ist zu sehen, dass auch bei den numerischen Simulationen der charakteristische Verlauf weiterhin maßgeblich von dem Imaginärteil der dielektrischen Funktion des Goldes bei der Resonanzwellenlänge dominiert ist. Hierauf lässt sich beispielsweise das klare Maximum bei einer Breite/Höhe von gut 10 nm zurückführen (Abb. 4.1.13(a)). Außerdem ist hier nun zu sehen, dass, wie zu erwarten, ab einer Breite bzw. Höhe von ca. 30 nm die entsprechenden Streu- bzw. Absorptionsquerschnitte leicht auseinanderlaufen. Hierbei ist stets der Querschnitt für die Breitenvariation höher. In Abb. 4.1.14 ist der Q-Faktor wieder über die Resonanzwellenlänge aufgetragen. Wie auch die Erfahrungen mit der Längenvariation zeigen, hängt der Q-Faktor hauptsächlich von der genauen dielektrischen Funktion bei der Resonanzwellenlänge ab, wird aber bei gleicher Resonanzwellenlänge mit zunehmendem Volumen leicht schwächer.

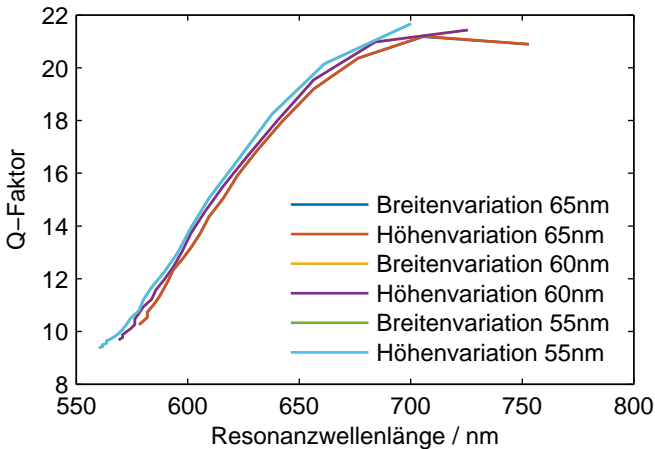


Abbildung 4.1.14.: Q-Faktor in Abhängigkeit der Höhe bzw. der Breite für Einarm- bzw. Zweiarmentennen der Längen 55 nm, 60 nm und 65 nm.

- Die Resonanzwellenlänge verschiebt sich zu längeren Wellenlängen, wenn die Höhe oder die Breite kleiner wird.
- Die Verschiebung wird stärker, je kleiner die Höhe oder die Breite ist.

- Maximaler Streu- und Absorptionsquerschnitt haben einen charakteristischen Verlauf für unterschiedliche Höhen bzw. Breiten für den mehrere Effekte verantwortlich sind. Einen entscheidenden Einfluss hat weiterhin der Imaginärteil der dielektrischen Funktion bei der Resonanzwellenlänge.
- Mit zunehmender Höhe oder Breite nimmt der Q-Faktor leicht ab, hängt aber weiterhin ebenfalls maßgeblich von der dielektrischen Funktion bei der Resonanzwellenlänge ab.
- Solange die Höhe bzw. Breite kleiner ist als die Eindringtiefe, haben sie denselben Einfluss auf den maximalen Streu- und Absorptionsquerschnitt. Danach hat ein Erhöhen der Breite einen etwas stärkeren Einfluss als ein Erhöhen der Höhe.

Unter bestimmten Rahmenbedingungen (quasistatische Approximation und Einschränkungen an die dielektrische Funktion, die für die hier betrachteten Materialien außerhalb der Interbandabsorption gegeben sind) lässt sich das Resonanzverhalten sehr gut verstehen: Das Aspektverhältnis führt zu einem Geometriefaktor, der zusammen mit dem Realteil der dielektrischen Funktion die Resonanzwellenlänge festlegt. Über die Stärke des Absorptions- und Streuquerschnitts in Resonanz für eine gegebene Geometrie entscheidet dann der Imaginärteil der dielektrischen Funktion. Der Zusammenhang zwischen Querschnitt und Imaginärteil der dielektrischen Funktion ist in Resonanz antiproportional. Dieses phänomenologische Verhalten lässt sich auch bei den hier numerisch untersuchten Strukturen wiederfinden.

4.2. Kopplung / Antennenspalt

4.2.1. Stand der Forschung

Es gibt eine große Anzahl an Arbeiten, die sich mit der Kopplung zweier resonanter Nanopartikel beschäftigen [141, 142]. Meist wird die Kopplung im Rahmen des Plasmonenhybridisierungsmodells erklärt [56, 143, 144] (siehe auch Kapitel 2.4.4). In Ref.[145] wird für gekoppelte Spreizdipolantennen mit zunehmender Spaltbreite erst eine Blauverschiebung und danach eine Rotverschiebung der Resonanzwellenlänge gefunden. Auch die Querresonanz in Abhängigkeit der Spaltbreite wurde untersucht. Fischer et al. berechnen in Ref. [52] unter anderem die optische Antwort von quaderförmigen, goldenen Zweiarmentennen auf einem Substrat. Einige Arbeiten beschäftigen sich mit der Nahfeldverstärkung in Abhängigkeit der Spaltbreite [146]. Auch unterschiedliche Anordnungen von zwei oder mehr Nanopartikeln wurden untersucht [147]. Besonders intensiv wurde die Abhängigkeit der Resonanzwellenlänge vom Abstand zweier Nanopartikel im Zusammenhang mit sogenannten plasmonischen Linealen (engl. plasmonic rulers) diskutiert [94, 148]. Hierbei wurde gezeigt, dass die relative Resonanzverschiebung $\Delta\lambda/\lambda$ in Abhängigkeit des Abstandes zwischen Nanopartikeln einem universellen, exponentiellen Zusammenhang folgt [149]. Auch der Übergang zu sich berührenden und verbundenen Nanopartikeln wurde untersucht [150]. In Ref. [151] wurde gezeigt, dass sich auch Nanopartikel über eine größere Entfernung durch Fernfeldkopplung beeinflussen können.

4.2.2. FDTD-Simulationen

Der Grad der Kopplung zwischen den Antennenarmen hängt sehr stark von dem Abstand zwischen den Antennenarmen ab. Auch die erreichbare Feldverstärkung im Antennenspalt wird hiervon sehr stark beeinflusst.

Im Folgenden wurde die Spaltbreite für unterschiedliche Antennenarmlängen variiert. Die Breite und Höhe war jeweils konstant 30 nm.

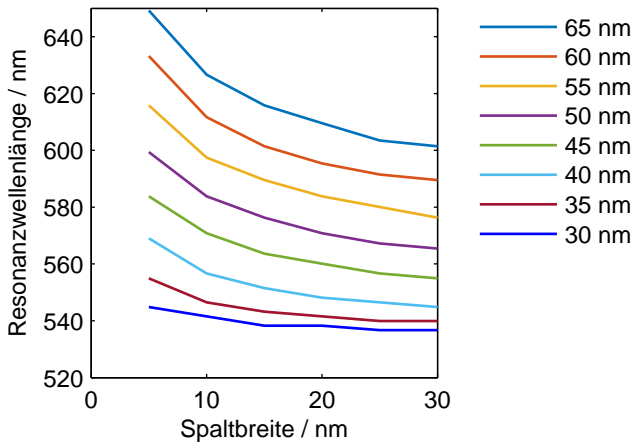
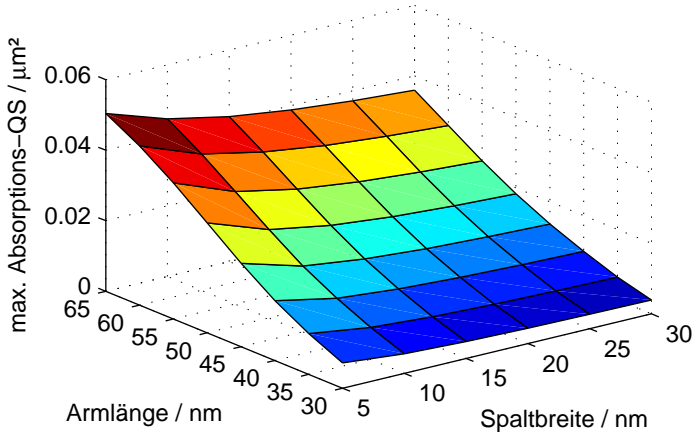


Abbildung 4.2.1.: Resonanzwellenlänge der Streuung in Abhängigkeit der Spaltbreite für verschieden Antennenarmlängen. Die Breite und Höhe der Antenne betragen jeweils 30 nm.

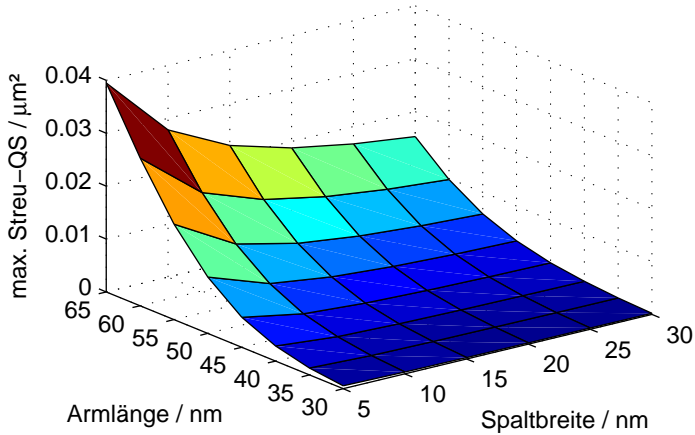
Aus Abb. 4.2.1 - Abb. 4.2.3 können direkt einige generelle Trends erkannt werden. In Abb. 4.2.1 ist die Resonanzwellenlänge für die unterschiedlichen Spaltbreiten geplottet.

- Die Kopplung sorgt für eine Rotverschiebung der Resonanzwellenlänge.
- Die Rotverschiebung ist stärker, je kleiner der Antennenspalt ist.
- Die Rotverschiebung ist stärker, je größer das Verhältnis aus Antennenlänge und Spaltbreite ist.

Nicht nur die Resonanzwellenlänge sondern auch die maximalen Querschnitte und die Feldverstärkung in Resonanz hängen stark von dem Verhältnis aus Antennenlänge und Spaltbreite ab. Dies kann gut aus der 3D-Darstellung in Abb. 4.2.2 und Abb. 4.2.3 erkannt werden.



(a) Absorptionsquerschnitt



(b) Streuquerschnitt

Abbildung 4.2.2.: Streu- und Absorptionsquerschnitt von Zweiarmannten in Resonanz in Abhängigkeit der Spaltbreite und Antennenlänge. Die Breite und Höhe der Antenne betragen jeweils 30 nm.

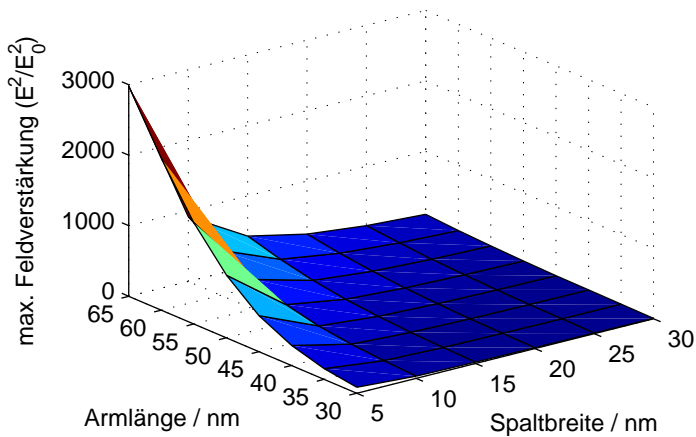


Abbildung 4.2.3.: Nahfeldverstärkung (quadriert) in Resonanz in Abhängigkeit der Spaltbreite und Antennenlänge. Die Breite und Höhe der Antenne betragen jeweils 30 nm.

- Streu- und Absorptionsquerschnitt nehmen zu, wenn der Spalt kleiner wird.
- Die Zunahme ist stärker, je kleiner der Spalt ist.
- Den größten Einfluss hat die Spaltbreitenvariation auf die Nahfeldverstärkung. Sie nimmt sehr stark zu, wenn der Spalt kleiner wird.
- Für die Nahfeldverstärkung ist das Verhältnis aus Armlänge zu Spaltbreite ausschlaggebend, deshalb ist für gleiche Spaltbreite die Nahfeldverstärkung bei längeren Armlängen um ein Vielfaches höher.

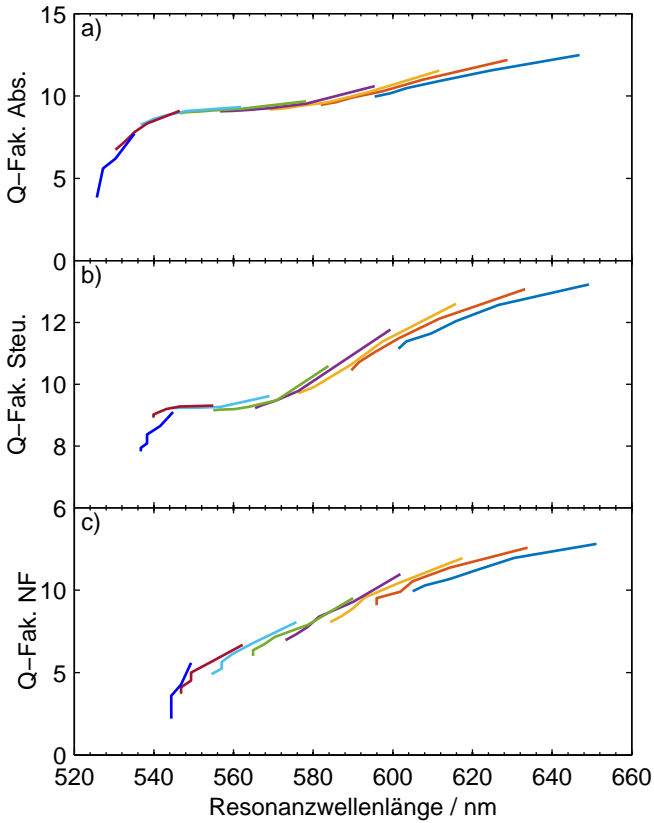


Abbildung 4.2.4.: Q-Faktoren in Abhängigkeit der Spaltbreite (Legende siehe Abb. 4.2.1).

In Abb. 4.2.4 sind nun, wie in den vorangegangenen Kapiteln, wieder die Q-Faktoren über die Resonanzwellenlänge dargestellt.

- Der Q-Faktor wird hauptsächlich durch die Materialparameter bei der entsprechenden Resonanzwellenlänge bestimmt.

- Bei kleineren Spaltbreiten aber gleicher Resonanzwellenlänge ist der Q-Faktor etwas größer.

4.2.3. Einfluss der Kopplung auf die bisher untersuchten Antenneneigenschaften

Die Kopplung von zwei Antennenarmen wurde in Kapitel 4.2.2 ausführlich untersucht. Nun ist die Frage, ob die zuvor gewonnenen Erkenntnisse über das Skalieren der Resonanzeigenschaften in Abhängigkeit von Höhe, Breite und Länge einer Nanodipolantenne auch für gekoppelte Strukturen ihre Gültigkeit behalten. Da die Spaltbreite in derselben Dimension wie die Antennenlänge liegt, ist insbesondere interessant, ob sich hier Einflüsse auf die Längenvariation ergeben.

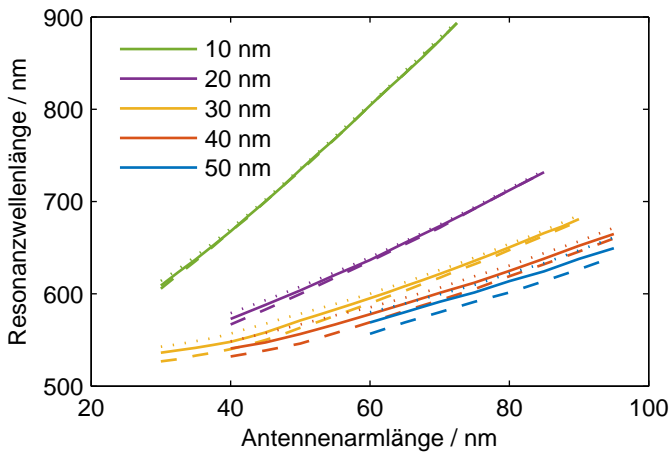


Abbildung 4.2.5.: Resonanzwellenlänge aus Streuspektren (durchgezogen) Absorptionsspektren (gestrichelt) und Nahfeldverstärkungsbildern (gepunktet) von Zweiarmentennen gegenüber Antennenarmlänge aufgetragen. Breite/Höhe $w = h$ siehe Legende; Antennenspalt $d = 20$ nm.

In Abb. 4.2.5 ist nun die Resonanzwellenlänge verschiedener Antennenkonfigurationen (jeweils unterschiedliche Breite/Höhe mit $w = h$) über der Antennenarmlänge dargestellt. Man sieht deutlich, dass weiterhin ein linearer Zusammenhang zwischen Resonanzwellenlänge und Antennenlänge besteht. Dies ist in Übereinstimmung mit den meisten oben erwähnten bisherigen Arbeiten. Die wichtigsten Eigenschaften, die sich aus folgender Darstellung erkennen lassen, sind:

- Resonanzwellenlängen für Nahfeld $\lambda_{\text{Res,Nahfeld}}$, Absorption $\lambda_{\text{Res,Abs}}$ und Streuung $\lambda_{\text{Res,Streu}}$ sind leicht unterschiedlich:
 $\lambda_{\text{Res,Nahfeld}} > \lambda_{\text{Res,Streu}} > \lambda_{\text{Res,Abs}}$.
- Der Abstand nimmt mit zunehmender Antennenarmlänge ab.

Alle weiteren Eigenschaften sind qualitativ identisch mit den an Einarmstrukturen festgestellten Eigenschaften.

4.3. Substrateinfluss

Alle bisherigen Simulationen wurden in Luftumgebung berechnet. Plasmonische Resonanzen hängen jedoch sehr sensibel vom Brechungsindex der Umgebung ab. Dies lässt sich bereits aus den Formeln für die quasistatische Approximation erkennen (Gleichung 3.2.7). Allerdings wird hier von einer konstanten dielektrischen Funktion für die Umgebung ausgegangen. In der Realität sind die Nanoantennen jedoch auf einem Substrat aufgebracht, weshalb sich die dielektrische Funktion der Umgebung aus simulationstechnischer Sicht in zwei Halbräume (Substrat und Luft oder Deckschicht) unterteilt. Im konkreten Fall kann die Umgebung auch aus mehreren Schichten mit unterschiedlichen dielektrischen Funktionen, die auch teilweise absorbierende Eigenschaften haben, bestehen. Daher genügt die einfache Betrachtung eines effektiven, reellen Brechungsindex für die Umgebung nicht.

4.3.1. Stand der Forschung

Zahlreiche Arbeiten untersuchen den Einfluss des Substrates auf die Eigenschaften von Nanoantennen, allen voran auf die Resonanzwellenlänge [23, 103]. In Ref. [152] wird ein vereinfachtes Modell aufgestellt, um den Einfluss des Substrats schneller und intuitiver verstehen zu können als dies mit numerischen Methoden möglich ist.

Der Einfluss des Brechungsindex der Umgebung auf die Resonanz wird in zahlreichen Arbeiten dafür verwendet, von der Resonanzverschiebung auf den Brechungsindex eines bestimmten Materials zu schließen [95]. Hierbei wird allerdings meist nicht der Brechungsindex des Trägersubstrats, sondern von wenigen, teilweise einzelnen Partikeln gesucht.

Um den Einfluss des Substrats, auf dem die Nanoantennen aufgebracht sind, zu berücksichtigen, wird oft vereinfacht eine effektive dielektrische Funktion für die Umgebung angenommen, die zwischen der dielektrischen Funktion des Substrats

und der dielektrischen Funktion von Luft liegt [109]. Somit können auch vereinfachte Betrachtungen wie beispielsweise die quasistatische Approximation weiter verwendet werden. Es ist aber nicht immer einfach diese effektive dielektrische Funktion genau zu bestimmen.

4.3.2. Simulationen

Hier wird der Einfluss des Brechungsindex der Substratschicht untersucht. Es wird zunächst davon ausgegangen, dass das Substrat nur aus einem Material besteht und sich unendlich im Halbraum unterhalb der Antenne ausdehnt. Der Einfall der ebenen Welle geschieht hierbei von der Substratseite. Die Resonanzwellenlänge in Abhängigkeit des Substratbrechungsindex ist für verschiedene Geometrieparameterkombinationen in Abb. 4.3.1 dargestellt.

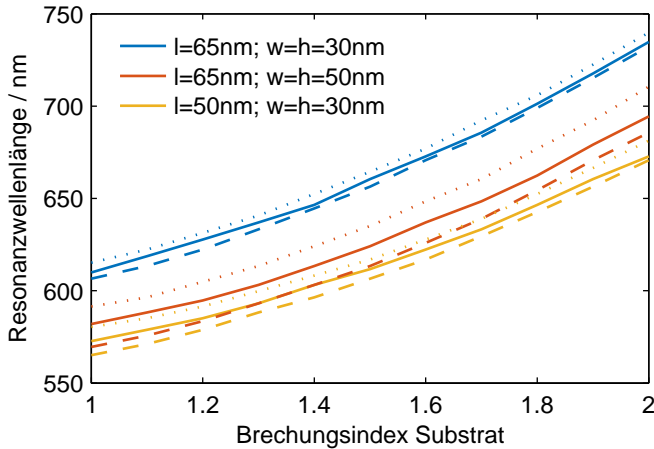


Abbildung 4.3.1.: Resonanzwellenlänge (Vakuumwellenlänge) in Abhängigkeit des Brechungsindex der Umgebung für eine gekoppelte Zweiarmanne mit einem 20 nm Spalt (Streuung: durchgezogen, Absorption gestrichelt, Nahfeld gepunktet). Alle weiteren Geometrieparameter siehe Legende.

Hieraus ergeben sich folgende Schlussfolgerungen:

- Die Resonanzfrequenz ändert sich sehr stark mit dem Brechungsindex des Substrats: je höher der Brechungsindex desto länger die Resonanzwellenlänge.
- Der Zusammenhang ist näherungsweise linear.
- Die Steigung ist auch für unterschiedliche Geometrieconfigurationen näherungsweise gleich.

4.3.3. Gekoppelte Zweiarmentennen auf ITO-Glas Substrat

Abschließend zu den bisherigen schrittweisen Untersuchungen werden hier nun Simulationen von gekoppelten Zweiarmentennen auf einem mit ITO beschichteten Glassubstrat gezeigt (Abb. 4.3.2).

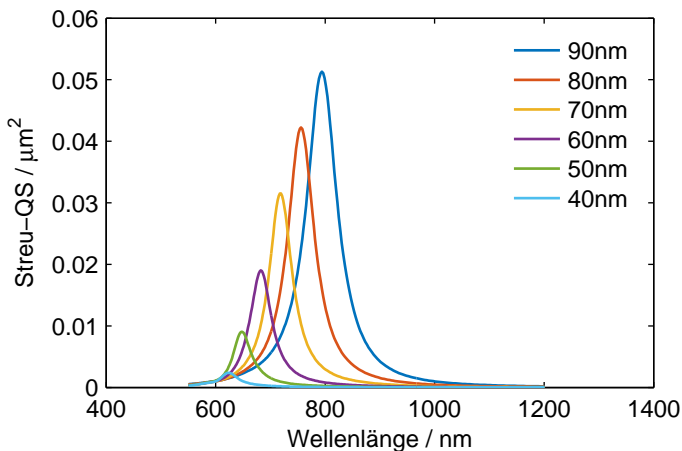


Abbildung 4.3.2.: Streuquerschnitte von gekoppelten Zweiarmentennen auf ITO-Glas Substrat. Breite $w = 20$ nm, Höhe $h = 30$ nm, ITO-Dicke: 30 nm, Armlänge siehe Legende.

Hierbei war die Breite stets $w = 20\text{nm}$, die Höhe $h = 30\text{nm}$ und die ITO-Schichtdicke ebenfalls 30nm . Dies entspricht den experimentell in der Arbeitsgruppe am LTI am häufigsten verwendeten Parametern [153].

4.4. Erkenntnisse

Ausgehend von den einzelnen kugelförmigen Strukturen in Luft können die bisherigen Erkenntnisse nun das Verhalten dieser Nanoantennen erklären:

1. Für eine kleine Kugel (im Bereich in dem die quasistatische Approximation gilt) in Luft ergibt sich eine bestimmte materialspezifische Resonanzwellenlänge (Abb. 4.1.2).
2. Für größere Kugeln kommt es zu einer leichten Rotverschiebung mit zunehmender Resonanzwellenlänge (Abb. 4.1.1).
3. Würfel streuen bei gleichem Durchmesser deutlich mehr als Kugeln, weisen aber eine ähnliche Resonanzwellenlänge auf (Abb. 4.1.3).
4. Das Elongieren der Struktur führt zu einer Rotverschiebung der Resonanzwellenlänge. Die Resonanzwellenlänge ist abhängig vom genauen Aspektverhältnis und vornehmlich dem Realteil der dielektrischen Funktion.
5. Die Stärke der Streuung bzw. Absorption wird maßgeblich vom Volumen und dem Imaginärteil der dielektrischen Funktion dominiert (Kapitel 4.1.4).
6. Die Kopplung von zwei Antennenarmen über einen Nanospalt führt zu einer Rotverschiebung der Resonanzwellenlänge und verstärkt alle untersuchten Größen: Streuquerschnitt, Absorptionsquerschnitt und Nahfeldverstärkung (Kapitel 4.2).
7. Das Aufbringen der Struktur auf ein Substrat führt zu einer weiteren Rotverschiebung der Resonanzwellenlänge. Die Stärke der untersuchten Größen

hängt neben dem Volumen maßgeblich von den dielektrischen Funktionen des Metalls und des Substrats bei der neuen Resonanzwellenlänge ab.

Diese schrittweise Herleitung liefert ein intuitives Verständnis des Verhaltens der in Abb. 4.3.2 untersuchten Strukturen.

4.5. Queranregung

Wird eine Nanoantenne nicht mit dem E-Feldvektor parallel zu ihrer langen Achse sondern parallel zu ihrer kurzen Achse angeregt, so ergeben sich interessante Fragestellungen bezüglich ihrer optischen Antwort. Die bisherigen Erkenntnisse aus diesem Kapitel können helfen diese zu beantworten. In der Näherung, die für klassische Antennen verwendet wird, ist die Antenne „unendlich dünn“, daher wird keine Anregung bei einem elektrischen Feld mit E-Feldvektor senkrecht zur Antenne erwartet. Wie man aber aus den bisherigen Untersuchungen weiß, hat eine Nanoantenne im Allgemeinen drei Resonanzen: entlang ihrer Länge, Höhe und Breite. In Kapitel 4.1.4 wurde der Einfluss der Breite untersucht, aber trotzdem für eine Polarisationsrichtung entlang der Länge (longitudinale Mode). Es wurde gezeigt, dass der Einfluss der Breite bzw. Höhe kleiner wird, je höher/ breiter die Antenne ist. Eine querangeregte Antenne kann man sich auch als extrem kurze und extrem breite Antenne vorstellen. Daher erwartet man, dass eine Änderung der Länge bei Queranregung nur geringe Einflüsse auf die Quermode hat.

Hier wurden nun unterschiedlich lange Einarm- und Zweiarmanntennen in Queranregung untersucht. Wie in Abb. 4.5.1 zu sehen ist wird der Streuquerschnitt der Querresonanz mit zunehmender Länge größer, wie dies durch die Zunahme des Volumens zu erwarten ist. Die Resonanzwellenlänge ändert sich jedoch nicht signifikant. Die Simulationen wurden für Antennenstrukturen auf einem Glassubstrat mit einer 30 nm dicken ITO-Schicht durchgeführt.

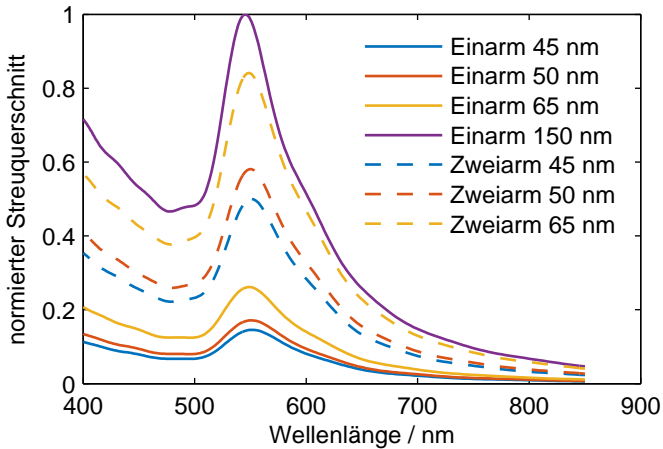
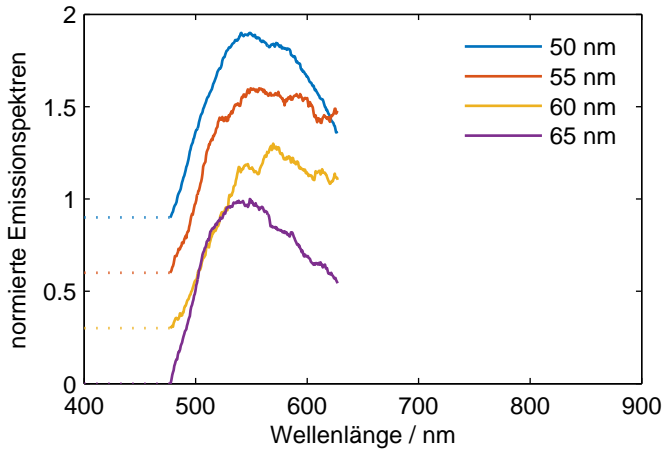


Abbildung 4.5.1.: Normierter Streuquerschnitt bei Queranregung für Einarm- und Zweiarmantennen unterschiedlicher Armlängen (siehe Legende). Breite: $w = 20\text{ nm}$, Spaltbreite bei Zweiarmantennen: $d = 20\text{ nm}$, Höhe $h = 30\text{ nm}$.

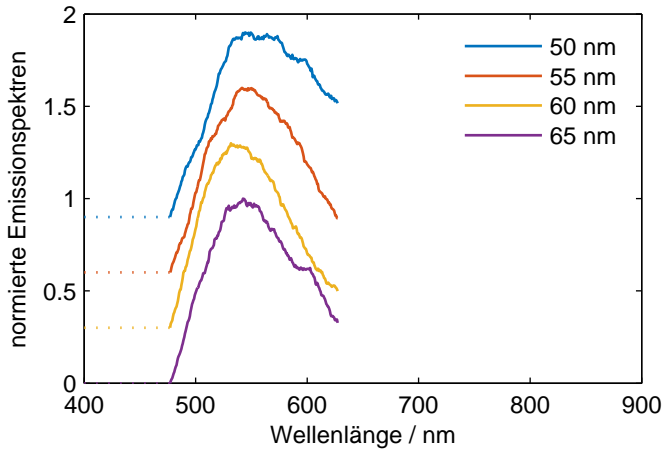
4.5.1. Vergleich mit Experimenten

Die Untersuchung der Querresonanz ist besonders interessant für den Vergleich mit experimentellen zweiphotoneninduzierten Lumineszenzmessungen (siehe hierzu Kapitel 2.4.5). Diese Messmethode ermöglicht eine sensitivere Messung der Antennenresonanzen als dies mit Dunkelfeldmessungen möglich ist [82]. Bei Anregung entlang der langen Antennenachse kann nun bei einer Ausgangspolarisation ebenfalls entlang der langen Antennenachse die longitudinale Antennenmode beobachtet werden. Diese ist in guter Übereinstimmung mit Dunkelfeldmessungen. Bei Anregung entlang der langen Antennenachse aber einer Ausgangspolarisation entlang der kurzen Antennenachse wird eine weitere Antennenmode bei deutlich kürzeren Wellenlängen detektiert. Mit Dunkelfeldmessungen ist es nicht möglich eine transversale Mode bei den hier untersuchten optischen Antennen zu messen, da das Signal-zu-Rausch-Verhältnis zu schlecht ist. Daher gibt es für diese zweiphotoneninduzierte Lumineszenzmessung keine entsprechende

Vergleichsmessung. Um zu überprüfen, ob es sich bei der gemessenen Resonanz tatsächlich um die Querresonanz handelt, können die Messungen mit den oben beschriebenen Simulationen der Streuantwort von Antennen bei Queranregung verglichen werden.



(a) Einarmantennen



(b) Zweiarmantennen

Abbildung 4.5.2.: Gemessene Spektren bei zweiphotoneninduzierter Anregung und Polarisation entlang der kurzen Antennenachse in der Detektion [154]. Gepunktete Linien: für eine bessere Lesbarkeit verschobene Nulllinien der einzelnen Spektren.

Abb. 4.5.2 zeigt die von Matthias Wissert während seiner Doktorarbeit gemessenen Querresonanzspektren [83,154]. Man erkennt eine gute Übereinstimmung mit den Simulationen und hat somit die Bestätigung, dass in der Tat die Querresonanz der Antennen beobachtet wurde.

4.6. Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde ein ausführliches Verständnis des Skalierungsverhaltens von Resonanzen in Nanoantennen geliefert. Um das komplexe Problem zu vereinfachen, wurde es in mehrere Schritte zerlegt. Zunächst wurden Einarmstrukturen untersucht. Diese wurden mit der quasistatischen Approximation verglichen. Es zeigte sich, dass sogar in Fällen, in denen die quasistatische Approximation keine quantitative Gültigkeit mehr hat, trotzdem noch prinzipielle Skalierungsgesetzmäßigkeiten aus eben dieser Näherung gelernt werden können. Der Vorteil dieser Näherung ist, dass sie auf wenigen, intuitiv verständlichen Formeln beruht, die im Gegensatz zur komplexen numerischen 3D-Berechnungen einfache Erklärungen liefern können. Insbesondere wurde die Wichtigkeit des Aspektverhältnisses hervorgehoben und der Einfluss des Real- und Imaginärteils der dielektrischen Funktion untersucht.

Als Nächstes wurde dann der Einfluss der Kopplung auf das bisher beschriebene Resonanzverhalten genauer betrachtet. Hierbei ist insbesondere das Hybridisierungsmodell sehr hilfreich, um das Verschieben der Resonanzwellenlänge durch Kopplung zu erklären. Gekoppelte Nanoantennen weisen gegenüber Einarmantennen einige Vorteile auf. Sie haben beispielsweise eine sehr hohe Feldverstärkung im Antennenspalt. Es wurde ferner untersucht, wie sich der Brechungsindex des umgebenden Materials auf die bisher untersuchten Eigenschaften auswirkt. Hierbei ist vor allem die sehr starke Verschiebung zu größeren Wellenlängen bei höherem Brechungsindex des umgebenden Materials wichtig. Zum Schluss wurde gezeigt, dass Nanoantennen eine Querresonanz aufweisen, die durch Polarisation senkrecht zur langen Antennenachse angeregt werden kann. Diese

Querresonanz ändert sich nicht sehr stark in Abhängigkeit der Antennenlänge oder der Kopplung.

Diese Ergebnisse sind im Einklang mit experimentellen zweiphotoneninduzierten Lumineszenzmessungen und halfen diese zu erklären.

Die vorliegenden Untersuchungen ermöglichen es Nanoantennen jeweils an die unterschiedlichen Anwendungen individuell optimal anzupassen. Durch Ausnutzen der untersuchten Zusammenhänge können Nanoantennen nicht nur bezüglich der Resonanzwellenlänge eingestellt werden, sondern auch daraufhin optimiert werden möglichst viel Licht zu streuen, zu absorbieren oder eine möglichst hohe Nahfeldverstärkung zu liefern. Auch die Breite der Resonanz (der Gütefaktor) kann je nach Bedarf beeinflusst werden.

5. Bimodale Antennenstrukturen

In Kapitel 4 wurde das Verhalten bekannter Nanoantennenstrukturen mit einer Hauptresonanz detailliert untersucht. Eine Vielzahl optischer Anwendungen würde jedoch von mehrfachen Resonanzen profitieren. Als Hauptanwendung sei hierbei die Kopplung mit fluoreszierenden Quantenemittern genannt. Für all diese Anwendungen wird in diesem Kapitel eine neuartige Antennenstruktur vorgestellt, die zwei individuell einstellbare Resonanzwellenlängen aufweist, welche sich außerdem über die Polarisationsrichtung des einfallenden Lichtes voneinander trennen lassen.

Es wird zunächst in Kapitel 5.1 ein Überblick über den momentanen Stand der Forschung an Antennen mit mehreren Resonanzen gegeben. Danach, in Kapitel 5.2, werden gekoppelte T-Antennen vorgestellt und hierbei wird auf die Modentrennung durch unterschiedliche Fernfeldpolarisationen genauer eingegangen. Ferner wird gezeigt, wie man durch einfache Änderung an der Geometrie die beiden Antennenmoden unabhängig voneinander einstellen kann. Der Vergleich mit Experimenten zeigt, dass eine gute Übereinstimmung möglich ist, wenn die herstellungstechnisch bedingt abgeschrägten Innenkanten berücksichtigt werden. Als Nächstes werden einzelne T-Antennen vorgestellt (Kapitel 5.3), die als Ausgangspunkt für die bereits präsentierten gekoppelten T-Antennenstrukturen dienen. Am Schluss wird genau auf den Zusammenhang zwischen Kopplung, Basisposition und Polarisationswinkel von gekoppelten T-Antennen eingegangen (Kapitel 5.4).¹

¹Teile der hier vorgestellten Ergebnisse wurden in Ref. [153] veröffentlicht.

5.1. Stand der Forschung

Viele optische Anwendungen beinhalten zwei oder mehrere Resonanzen und profitieren somit von mehrfachresonanten optischen Antennen.

Es gibt bereits einige Antennendesigns für Nanoantennen mit mehreren Resonanzen. Die einfachste Struktur ist eine klassische Zweiarm-Dipolantenne mit unterschiedlich langen Antennenarmen [80, 155, 156]. Auf der einen Seite ist dies ein einfaches und intuitiv verständliches Design. Man verliert hierbei jedoch die starke resonante Kopplung der zwei Antennenarme, die auftritt, wenn beide Arme bei derselben Frequenz resonant sind. Eine häufig verwendete Struktur ist die gekreuzte Dipolantenne [157–161]. Hierbei werden zwei Zweiarm-Dipolantennen senkrecht zueinander so angeordnet, dass sie ein Kreuz bilden und einen gemeinsamen nanometergroßen Antennenspalt in der Mitte haben. Die Resonanzwellenlängen beider Dipolantennen können unabhängig voneinander eingestellt werden, wobei sie Feldverstärkungen in dem gleichen Nanospaltvolumen aufweisen. Hierbei sind jedoch stärkere design- und herstellungstechnische Einschränkungen für den Antennenspalt vorhanden. Dies führt dazu, dass der Antennenspalt meist deutlich größer und somit weniger effizient gewählt werden muss. Weitere Antennenstrukturen mit Mehrfachresonanzen sind einzelne [162–165] und gekoppelte [166] L- und V-förmige Antennen. Auch einzelne T-Antennen wurden bereits realisiert [99, 162, 164, 167–169]. Deutlich komplexer sind fraktale Antennengeometrien [170–172]. Eine speziell für Frequenzverdoppelung optimierte Struktur koppelt eine V-Antenne über einen Nanospalt mit einem Nanostab [173]. Mit Strukturen aus zwei verschiedenen Metallen ist es ebenfalls möglich doppelresonantes Verhalten zu erzeugen [174]. Die in dieser Arbeit vorgestellte Struktur ähnelt der von Prangma, Kern et al. vorgeschlagenen Geometrie [175, 176]. Diese wurde jedoch nicht im Kontext von bimodalen Frequenzspektren verwendet, sondern wurde als monomodale Antenne mit elektrischen Kontakten genutzt.

Nanoantennen mit mehreren Resonanzen sind in verschiedenen Anwendungen wichtig. Besonders entscheidend ist hierbei die Kopplung mit fluoreszierenden Quantenemittern [177]. Hierbei tritt zwischen Anregung und Emission eine

Frequenzverschiebung (Stokes-Verschiebung) auf. Die Effizienz von fluoreszierenden Prozessen kann gesteigert werden, indem man die Absorptionseffizienz bei der Absorptionswellenlänge und die Emissionseffizienz bei der Emissionswellenlänge steigert. Um dies mit einer Antennenstruktur zu erreichen sind bimodale Antennen ideal [178]. Darüber hinaus ist mit doppelresonanten Antennen auch das maßgeschneiderte Einstellen der Nahfeldpolarisationsrichtung möglich [157,158]. Auch viele nichtlineare optische Anwendungen wie etwa Frequenzverdoppelung (engl. second harmonic generation SHG) [80, 163, 165, 167, 169, 170, 173], aber auch Vierwellenmischung (engl. four wave mixing) und zweiphotoneninduzierte Lumineszenz (engl. two photon induced luminescence, TPL) benötigen zwei Resonanzen. Hierbei tritt häufig eine Grundfrequenz sowie ein Signal bei einem Vielfachen der Grundfrequenz auf. Als weitere mögliche Anwendung wurde ein subwellenlängenkleines $\lambda/4$ -Plättchen demonstriert [166]. Ansteigendes Forschungsinteresse besteht an Fano-Resonanzen [98]. Um diese zu erzeugen müssen eine schmalbandige und eine breitbandige Mode miteinander gekoppelt werden. Auch hierbei helfen bimodale Strukturen [99,100]. Für den Einsatz als sogenannte nanometerskalige „Farbsortierer“, die unterschiedliche Farben (also Frequenzen) in unterschiedliche Richtungen leiten, wie es beispielsweise in der optischen Nachrichtentechnik nötig ist, sind multimodale Strukturen ebenfalls möglich [174, 179].

5.2. Gekoppelte T-Antennen

Im Rahmen dieser Arbeit wurde nach einer optimierten bimodalen Struktur gesucht, an die die folgenden Anforderungen gestellt wurden:

1. Die Struktur soll zwei Resonanzen bei zwei unterschiedlichen Resonanzwellenlängen aufweisen.
2. Beide Resonanzen sollen durch Variation der Polarisation des einfallenden Lichts getrennt voneinander untersucht werden können. Bei der Abstrahlung und anschließender Detektion soll ebenfalls eine Trennung anhand der Polarisation möglich sein.

3. Beide Resonanzen sollen eine hohe Feldverstärkung im selben Nanovolumen („Hot Spot“) aufweisen.
4. Die Polarisationsrichtungen des Nahfelds beider Resonanzen sollen im Hot Spot identisch sein.
5. Die beiden Resonanzwellenlängen sollen einfach und unabhängig durch Geometrievariation einstellbar sein.
6. Die Struktur soll für die Anwendung der Kopplung mit Quantenemittern optimiert werden.
7. Gleichzeitig soll dieselbe Struktur auch ohne großen neuen Entwicklungsaufwand für die anderen oben erwähnten Anwendungen verwendet werden können.

Um all diese Designkriterien gleichzeitig erfüllen zu können, wurde eine gekoppelte T-Antenne entwickelt, die im Folgenden vorgestellt wird.

5.2.1. Funktionsweise einer gekoppelten T-Antenne

Die hier vorgestellte Nanoantennenstruktur besteht aus zwei gekoppelten T-förmigen Antennen. Eine schematische Skizze ist in Abb. 5.2.1 zu sehen.

Ausgangspunkt für diese Struktur ist die gekoppelte Dipolantenne, wie sie auch schon in Kapitel 4 ausführlich untersucht und diskutiert wurde. Wie später gezeigt wird, können die Erkenntnisse über diese gekoppelten Dipolantennen fast uneingeschränkt auf die gekoppelten T-Antennen übertragen werden. Um das bimodale Verhalten zu erreichen, wurde ein weiterer Antennenquader jeweils mittig an die beiden Arme der Dipolantenne angebracht. Die Quader der bisherigen Dipolantenne werden im folgenden Top t genannt und die senkrecht dazu angebrachten Quader werden Basis b genannt. Die Polarisationsrichtung des einfallenden Lichts wird entsprechend des Winkels φ eingestellt.

Um das prinzipielle Verhalten der Struktur zu erläutern, wird zunächst auf die Nahfeldverstärkung im Antennenspalt eingegangen.

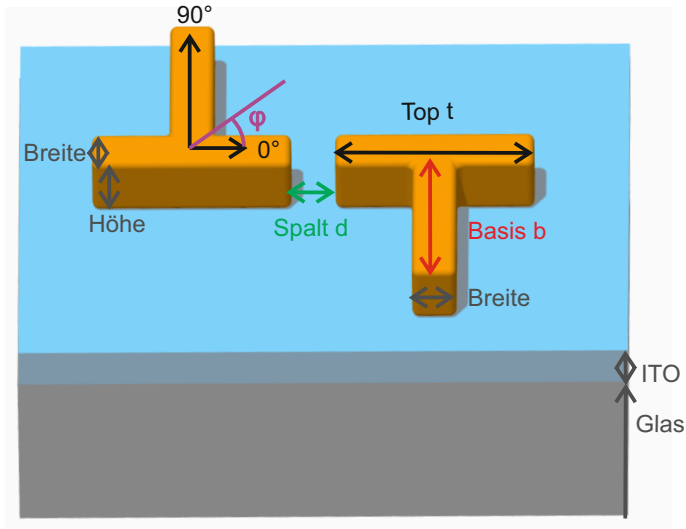


Abbildung 5.2.1.: Schematische Skizze einer gekoppelten T-Antenne mit Toplänge t , Basislänge b , Spaltbreite d , und Polarisationswinkel φ . Die Höhe aller hier vorgestellten Antennen ist konstant 30 nm und die Breite beträgt stets 20 nm. Die Antennen sind auf einem Glassubstrat mit einer 30 nm dicken ITO-Schicht aufgebracht.

Die hier gezeigte Antennenstruktur hat eine Toplänge und eine Basislänge von jeweils $t = b = 70$ nm und einen Antennenspalt von $d = 20$ nm. Abb. 5.2.2(a) zeigt die spektrale Nahfeldverstärkung (E^2/E_0^2) im Antennenspalt, einmal für eine Eingangspolarisation entlang des Tops ($\varphi = 0^\circ$) und einmal entlang der Basis ($\varphi = 90^\circ$). Bereits hier kann man erkennen, dass die gekoppelte T-Antenne eine hohe resonante Feldverstärkung im Antennenspalt bei zwei verschiedenen Resonanzwellenlängen aufweist. In Abb. 5.2.2(b) ist nun die räumliche Feldverteilung (E^2/E_0^2) für die beiden Moden bei den beiden jeweiligen Resonanzwellenlängen und auch wieder für die beiden unterschiedlichen Polarisationsrichtungen zu sehen. Bei Polarisation entlang des Tops ($\varphi = 0^\circ$) ergibt sich die Resonanz für die Nahfeldverstärkung bei einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{Top, Nahfeld}} = 711$ nm. Die Antennenstruktur zeigt dasselbe Verhalten wie einfache gekoppelte Dipolantennen.

Es kommt zu einer hohen Feldverstärkung im Antennenspalt und einer deutlich schwächeren Verstärkung an den gegenüberliegenden Enden des jeweiligen Top-Arms. Entlang der Basis ist bei dieser Polarisationsrichtung überhaupt keine Nahfeldverstärkung zu sehen. Für die Polarisationsrichtung $\varphi = 90^\circ$ ergibt sich eine Resonanzwellenlänge von $\lambda_{\text{Basis,Nahfeld}} = 864 \text{ nm}$. Hier ist wieder eine hohe Feldverstärkung im Antennenspalt zu sehen. Auch an den beiden außen liegenden Enden der Basis sieht man nun eine (im Vergleich zum Antennenspalt) schwächere Feldverstärkung. In dieser Konfiguration ist auch eine nochmals schwächere Feldverstärkung an den äußeren Enden des Tops zu sehen. Weiteren Aufschluss über die beiden angeregten Moden lässt sich aus der Stromdichteverteilung bei den beiden Resonanzwellenlängen und unterschiedlichen Polarisationsrichtungen gewinnen (Abb. 5.2.2(c)). Im Fall der Topmode (links) erkennt man, dass wirklich nur ein Stromfluss entlang des Tops stattfindet. Die Stromdichte entlang der Basis ist sehr gering. Bei der Polarisierung entlang der Basis (rechts) findet ein starker Stromfluss entlang der Basis statt. Im Top spaltet sich dieser Stromfluss auf und fließt in entgegengesetzte Richtungen einmal in Richtung Spalt und einmal nach außen. Durch die Kopplung der Antennenstruktur ist der Stromfluss in Richtung Spalt jedoch stärker. Der Stromfluss nach außen stellt (je nach Anwendung) einen gewissen Verlust dar, da er nicht zur Nahfeldverstärkung im Antennenspalt beiträgt. In Abb. 5.2.2(b, rechts) kann man jedoch sehen, dass die Feldverstärkung vollkommen ausreichend und durch die längere effektive Modenlänge sogar höher als bei Polarisierung entlang des Tops ist.

Abb. 5.2.3 ist eine Vergrößerung von Abb. 5.2.2(b), bei der zusätzlich die Nahfeldpolarisationsrichtung durch Vektorpfeile dargestellt ist.

Wie beabsichtigt besitzen beide Resonanzen im Antennenspalt eine Nahfeldverstärkung mit Polarisationsrichtung entlang des Topquaders, obwohl die Fernfeldpolarisationsrichtungen senkrecht aufeinander stehen. Viele Anwendungen können davon profitieren, beispielsweise die Kopplung mit Quantenemittern. Diese Emmitter haben sehr häufig das Anregungsdipolmoment und Emissionsdipolmoment in derselben Richtung. Daher ist die gleiche Polarisationsrichtung im Antennenspalt, in dem der Emmitter ist, vorteilhaft. Durch die unterschiedlichen

Fernfeldpolarisationsrichtungen können die beiden Moden dann im Fernfeld getrennt voneinander untersucht werden.

Somit erfüllt die untersuchte Struktur bereits einige der geforderten Designkriterien. Sie ist bimodal (1), die beiden Moden haben unterschiedliche Fernfeldpolarisationsrichtungen (2), sie weisen Feldverstärkung am selben nanometerlokalisierten Ort auf (3) und haben dort auch dieselbe Nahfeldpolarisationsrichtung (4).

Als Nächstes wird nun die Abhängigkeit von der Eingangspolarisation genauer untersucht.

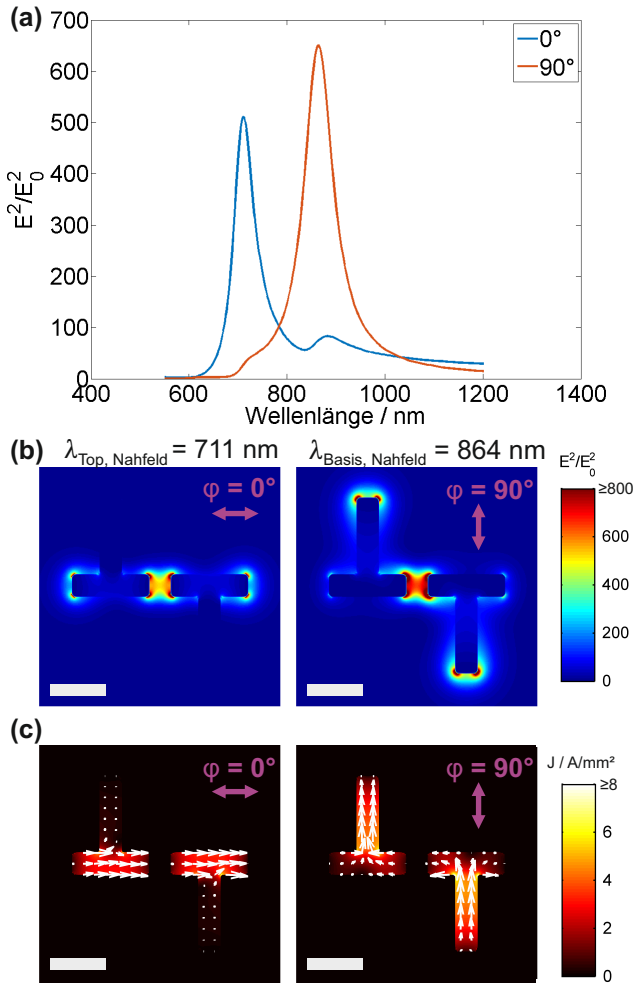


Abbildung 5.2.2.: (a) Spektrale Nahfeldverstärkung (E^2/E_0^2) einer gekoppelten T-Antenne in der Mitte des Antennenspalts. (b) räumliche Nahfeldverteilung (E^2/E_0^2) in Resonanz. (c) Stromdichteverteilung einer gekoppelten T-Antenne in Resonanz. Jeweils für die beiden Polarisationsrichtungen $\varphi = 0^\circ$ (links) und $\varphi = 90^\circ$ (rechts). Top- und Basislänge betragen $t = b = 70 \text{ nm}$, der Antennenspalt $d = 20 \text{ nm}$; Skalierungsbalken: 50 nm .

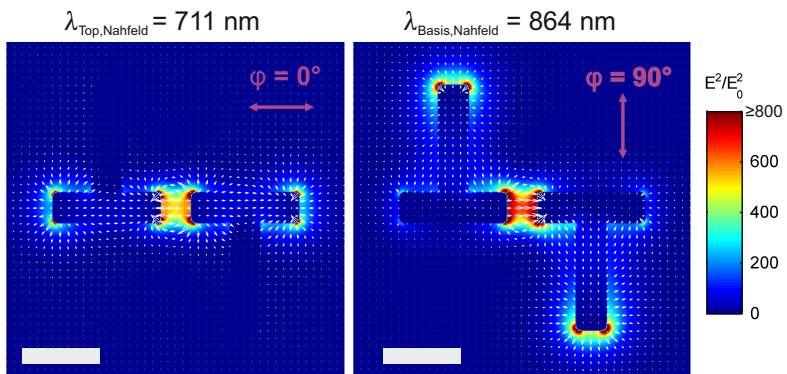


Abbildung 5.2.3.: Räumliche Nahfeldverteilung und Nahfeldpolarisationsrichtung einer gekoppelten T-Antenne in Resonanz für die beiden Polarisationsrichtungen $\varphi = 0^\circ$ (links) und $\varphi = 90^\circ$ (rechts). Top- und Basislänge betragen $t = b = 70 \text{ nm}$, der Antennenspalt $d = 20 \text{ nm}$; Skalierungsbalken: 50 nm.

5.2.2. Abhängigkeit der beiden T-Antennenmoden vom Polarisationswinkel

Es zeigt sich, dass die beiden Moden nicht exakt bei den beiden verwendeten Polarisationswinkeln $\varphi = 0^\circ$ und $\varphi = 90^\circ$ am besten angeregt werden, sondern dass die idealen Polarisationswinkel leicht davon abweichen. Dies wird hier genauer untersucht. Für eine bessere Vergleichbarkeit mit experimentellen Messungen wurde für die folgenden Untersuchungen nun der Streuquerschnitt berechnet. In Abb. 5.2.4 ist dieser in Resonanz bei den beiden Resonanzwellenlängen $\lambda_{\text{Top,Fernfeld}} = 707 \text{ nm}$ und $\lambda_{\text{Basis,Fernfeld}} = 862 \text{ nm}$ gezeigt. Wie auch in Kapitel 4.3 bereits gezeigt wurde, ist die Resonanzwellenlänge der Nahfeldverstärkung bei etwas kürzeren Wellenlängen als die der Fernfeldresonanz. Für die beiden Resonanzwellenlängen wurde jetzt die Polarisationsrichtung variiert.

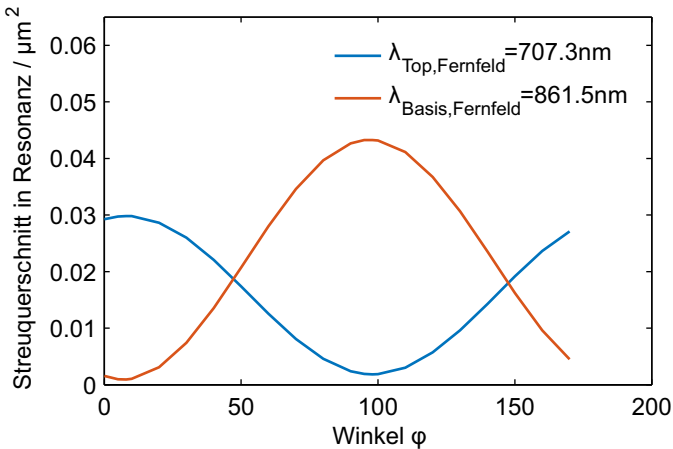


Abbildung 5.2.4.: Winkelabhängigkeit des Streuquerschnitts in Resonanz für eine gekoppelte T-Antenne mit Top- und Basislänge von 70 nm und einer Spaltbreite von 20 nm für die beiden Resonanzwellenlängen $\lambda_{\text{Top,Fernfeld}} = 707 \text{ nm}$ und $\lambda_{\text{Basis,Fernfeld}} = 862 \text{ nm}$. Die optimalen Anregungspolarisationswinkel für die beiden Moden liegen bei 8° und 98° .

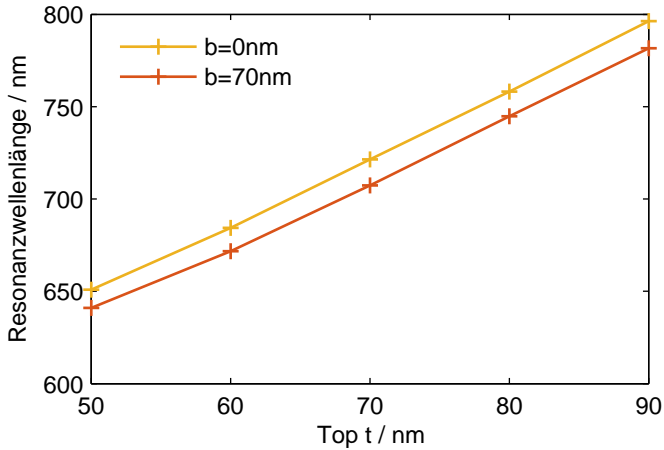
Der Streuquerschnitt bei den jeweiligen Resonanzwellenlängen folgt hierbei sehr gut einer \cos^2 -Abhängigkeit vom Winkel. Dies lässt sich dadurch erklären, dass der Streuquerschnitt als Leistungsgröße vom Quadratischen der elektrischen Feldkomponente parallel zur entsprechenden Modenrichtung abhängt. Die optimalen Polarisationswinkel ergeben sich für die verwendete Struktur zu $\varphi = 8^\circ$ und $\varphi = 98^\circ$. Die leichte Verkippung der Winkel wird durch die Kopplung der beiden einzelnen T-Antennen verursacht und wird in Kapitel 5.4 genauer untersucht. Die berechnete Winkelverkippung stimmt gut mit experimentellen Messungen überein [153]. Der genaue Einfluss der Kopplung auf die Fernfeldpolarisationsrichtung der Moden ist eine interessante Fragestellung. Es stellte sich jedoch heraus, dass dies für die praktische Anwendung mit dem Ziel einer einfach zu verwendenden Antennenstruktur eine eher unwichtige Rolle spielt. Gerade weil die \cos^2 -Funktion nahe ihres Maximums sehr flach ist, macht es beispielsweise für die Nahfeldverstärkungsverteilung in Abb. 5.2.2(b) kaum einen Unterschied, ob mit $\varphi = 0^\circ$ oder $\varphi = 8^\circ$ bzw. mit $\varphi = 90^\circ$ oder $\varphi = 98^\circ$ angeregt wird. Auch das Übersprechen der jeweils anderen Mode ist verschwindend gering. Zusätzlich muss man noch berücksichtigen, dass es bei momentan möglichen Messungen zu Schwankungen, Rauschen und Abweichungen kommt, die deutlich größer als die durch die leichte Winkelverkippung verursachten Abweichungen sind. Für die verwendete Antennenstruktur wurde daher im Folgenden weiterhin mit den beiden Polarisationsrichtungen $\varphi = 0^\circ$ und $\varphi = 90^\circ$ gearbeitet, um ein möglichst einfaches Antennendesign und eine einfache Verwendung zu erhalten.

Als Nächstes wird darauf eingegangen, wie die beiden Moden durch unkompliziertes Verändern einfacher Geometrieparameter auf die gewünschten Resonanzwellenlängen eingestellt werden können.

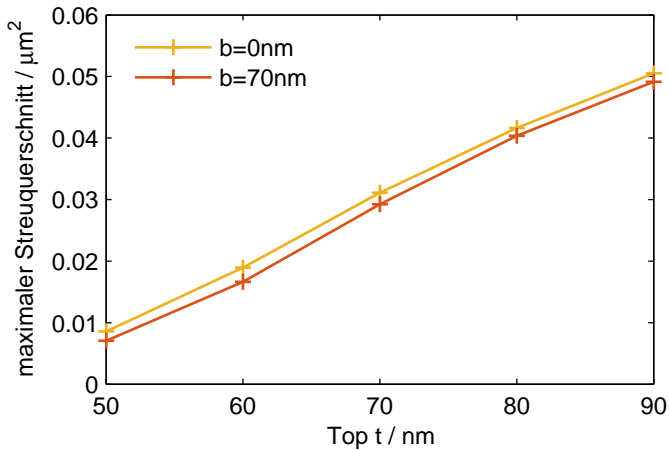
5.2.3. Topvariation

Ein großer Vorteil der hier vorgestellten Struktur ist, dass die beiden Resonanzwellenlängen fast unabhängig durch Variation zweier unterschiedlicher Geometrieparameter eingestellt werden können. Hierzu stellt man zunächst die Topmode – also die Mode, die man bei Polarisation entlang des Tops ($\varphi = 0^\circ$) sieht – ein. Im Prinzip kann die Topmode die kürzere oder die längere Resonanzwellenlänge besitzen. Es wird sich aber später zeigen, dass es günstiger ist für die Topmode die kürzere Resonanzwellenlänge zu wählen. Indem man die Toplänge t variiert, ändert man auch die Resonanzwellenlänge der Topmode. Wie man in Abb. 5.2.5 sieht, ist dieses Skalierungsverhalten analog zu herkömmlichen gekoppelten Nanoantennen. Es wurden vollständige T-Antennen simuliert, deren Basis konstant bei 70 nm war, und verglichen mit gekoppelten Dipolantennen (ohne Basis), deren Länge der Top-Länge der T-Struktur entsprach. Es besteht lediglich ein kleiner Unterschied in der Resonanzwellenlänge (Abb. 5.2.5a). Auch die Streuquerschnitte sind kaum unterschiedlich (Abb. 5.2.5b). Dies stimmt gut mit den Erkenntnissen für das Nahfeld überein (Kapitel 5.2.1): das Anbringen einer Basis beeinflusst die Dipolantenne nur sehr wenig.

Somit können alle Erfahrungen und Erkenntnisse, die man an gekoppelten Dipolantennen gewonnen hat, direkt auf die Topmode der gekoppelten T-Antennen übertragen werden. Mit längerer Toplänge verschiebt sich die Resonanzwellenlänge linear zu längeren Wellenlängen. Der Streuquerschnitt nimmt hierbei kontinuierlich zu. Für die genaue Zunahme des Streuquerschnitts ist weiterhin das Zusammenspiel aus Material und Geometrie verantwortlich.



(a) Resonanzwellenlänge



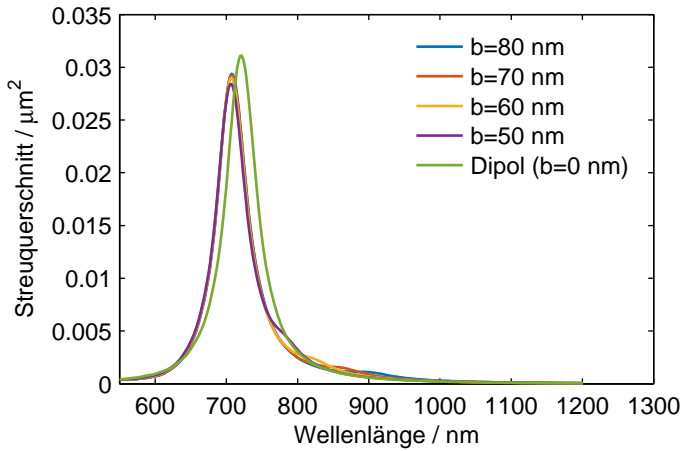
(b) maximaler Streuquerschnitt

Abbildung 5.2.5.: Vergleich der Resonanzwellenlängen und der maximalen Streuquerschnitte für unterschiedliche Topplängen bei Polarisation entlang des Tops ($\varphi = 0^\circ$) für Dipolantennen ohne Basis ($b = 0\text{nm}$) und gekoppelte T-Antennen mit einer Basis der Länge $b = 70\text{nm}$, jeweils mit einem Antennenspalt von 20nm .

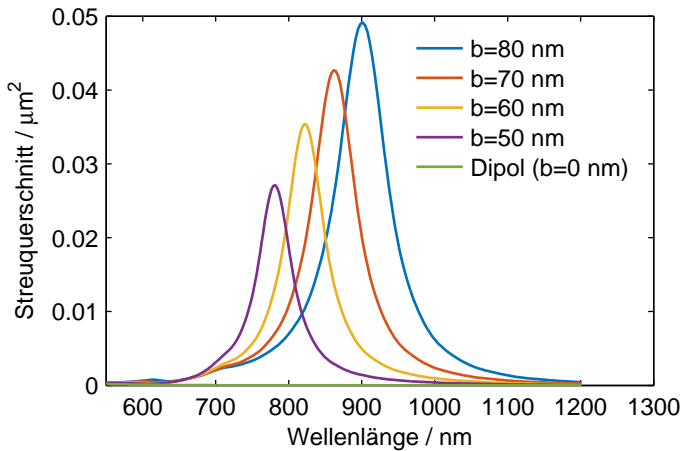
5.2.4. Basisvariation

Hat man eine Resonanzwellenlänge und somit die Toplänge festgelegt, so kann man als Nächstes durch Änderung der Basislänge die zweite Resonanz einstellen. Wie sich zeigen wird beeinflusst das Einstellen der Basismode die vorher gewählte Topmode nicht. Während die Topmode nur von der Länge des Tops t beeinflusst wird, wird die Basismode sowohl von der Länge des Tops als auch von der Länge der Basis b beeinflusst. Daher ist es wichtig zunächst die Topmode und danach die Basismode einzustellen. Für die Untersuchung der Basisvariation wurde nun eine Toplänge von 70 nm gewählt. Zunächst ist in Abb. 5.2.6(a) die Topmode in Abhängigkeit der Basislänge dargestellt. Man sieht weiterhin den bereits im letzten Kapitel bemerkten leichten Unterschied zum Streuspektrum einer gekoppelten Dipolantenne. Für unterschiedliche Basislängen ändert sich das Streuspektrum sogar noch weniger. Die Resonanzwellenlänge der Topmode ist sehr stabil bei $\lambda_{\text{Top, Fernfeld}} = 707$ nm. Abb. 5.2.6(b) zeigt, wie sich die Basismode bei Polarisation entlang der Basis ($\varphi = 90^\circ$) mit der Basislänge ändert. Natürlich kann bei der Basismode nicht mehr von einer einfachen gekoppelten Dipolantenne ausgegangen werden, aber das Verhalten ist trotzdem sehr ähnlich. Wie bei der Variation des Tops und der klassischen Dipolantenne führen längere Basislängen zu einer linearen Rotverschiebung mit zunehmender Intensität. Für die genaue Skalierung der Resonanzen gelten ähnliche Gesetzmäßigkeiten wie in Kapitel 4 gezeigt.

Es wurde gezeigt, dass sich die Struktur einfach auf gewünschte Resonanzwellenlängen adaptieren lässt (Designkriterium 5). Da die gekoppelte T-Antenne starke Feldüberhöhungen mit identischer Nahfeldpolarisationsrichtung in einem nanometerskaligen Volumen zur Verfügung stellt, ist sie ideal geeignet für die Kopplung mit Quantenemittern, die in den Antennenspalt eingebracht werden können (Designkriterium 6). Das einfache Design der Struktur wurde bewusst so gewählt, dass sie auch ohne Weiteres für die anderen in Kapitel 5.1 erwähnten Anwendungen verwendet werden kann (Designkriterium 7). Somit erfüllt die entwickelte Struktur alle anfangs definierten Anforderungen.



(a) Polarisation entlang des Tops ($\varphi = 0^\circ$)



(b) Polarisation entlang der Basis ($\varphi = 90^\circ$)

Abbildung 5.2.6.: Vergleich der Streuspektren für unterschiedliche Basislängen (siehe Legende, Dipol entspricht einer Basislänge von 0 nm) bei Polarisation (a) entlang des Tops ($\varphi = 0^\circ$) und (b) entlang der Basis ($\varphi = 90^\circ$).

5.2.5. Vergleich mit Experimenten

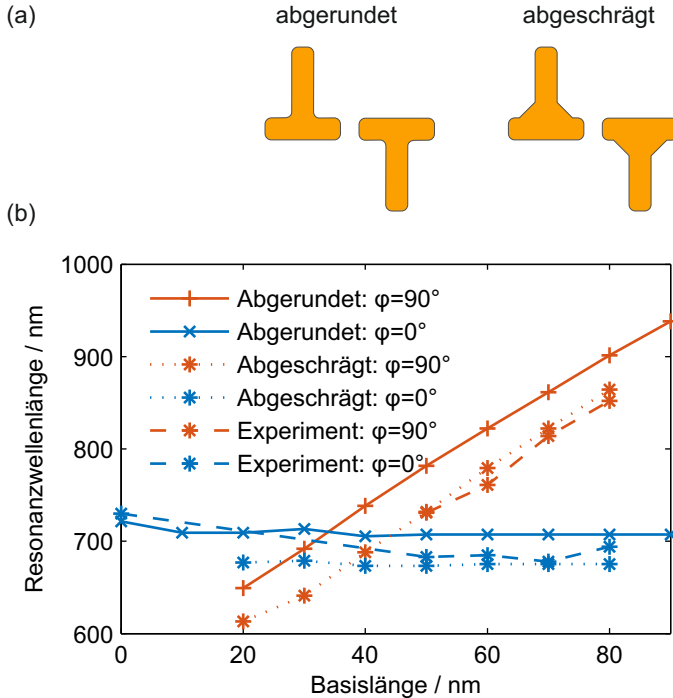


Abbildung 5.2.7.: (a) Skizze der abgerundeten bzw. abgeschrägten Innenkanten (b) Vergleich der Resonanzwellenlängen bei unterschiedlichen Basislängen ($\varphi = 0^\circ$ und $\varphi = 90^\circ$) für Simulationen mit abgerundeten und stark abgeschrägten Innenkanten sowie experimentelle Ergebnisse.

In Abb. 5.2.7(b) sind zunächst nochmals die Erkenntnisse über das Skalieren der Resonanzwellenlänge aus Kapitel 5.2.4 zusammengefasst (durchgezogene Linie). Alle bisherigen Simulationen wurden mit abgerundeten Ecken, Kanten sowie Innenkanten (3 nm Radius) durchgeführt, um unrealistisch hohe Feldverstärkungen an scharfen Ecken und Kanten zu vermeiden. Für gekoppelte T-Antennen zeigten sich nun im Vergleich zu experimentellen Dunkelfeldmessungen gleiche

Trends, aber doch ein nicht zu vernachlässigender Unterschied in der Resonanzwellenlänge (siehe Abb. 5.2.7(b) durchgezogene und gestrichelte Linien). Aus den REM-Aufnahmen der T-Antennen (Abb. 5.2.8) lässt sich erkennen, dass es besonders schwierig ist, die Innenkanten präzise herzustellen und dass diese Innenkanten bei den untersuchten Strukturen stark abgeschrägt sind. Ursache hierfür ist hauptsächlich der sogenannte „Proximity-Effekt“. Um zu untersuchen, ob diese abgeschrägten Innenkanten für die Diskrepanz in der Resonanzwellenlänge verantwortlich sind, wurden weitere T-Antennen mit ebenfalls abgeschrägten Innenkanten simuliert (Skizze in Abb. 5.2.7(a)). In Abb. 5.2.7(b) sieht man, dass diese Simulationen eine deutlich bessere Übereinstimmung mit den Experimenten liefern (gepunktete und gestrichelte Linien).

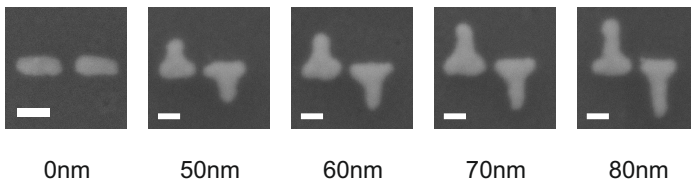


Abbildung 5.2.8.: REM-Aufnahmen einiger T-Antennen mit unterschiedlichen Basislängen und einer festen Topplänge von $t = 70$ nm (hergestellt und vermessen von Katja Dopf); Skalierungsbalken: 50 nm.

Herstellungstechnisch wäre es – mit alternativen, deutlich aufwändigeren Herstellungsverfahren – möglich weniger stark abgeschrägte Innenkanten herzustellen. Es stellt sich jedoch die Frage, ob die abgeschrägten Innenkanten für das gewünschte Verhalten der gekoppelten T-Antennen nachteilig sind, oder ob es lediglich zu einer Verschiebung der Resonanzwellenlänge kommt, die berücksichtigt werden muss.

Daher werden in Abb. 5.2.9 für eine gekoppelte T-Antenne mit abgeschrägten Innenkanten die spektrale Nahfeldverstärkung (E^2/E_0^2) sowie die Nahfeldverteilung in Resonanz untersucht. Im Vergleich zu Abb. 5.2.2 sieht man, dass die Feldverstärkung hier nur leicht reduziert ist, aber noch in derselben Grö-

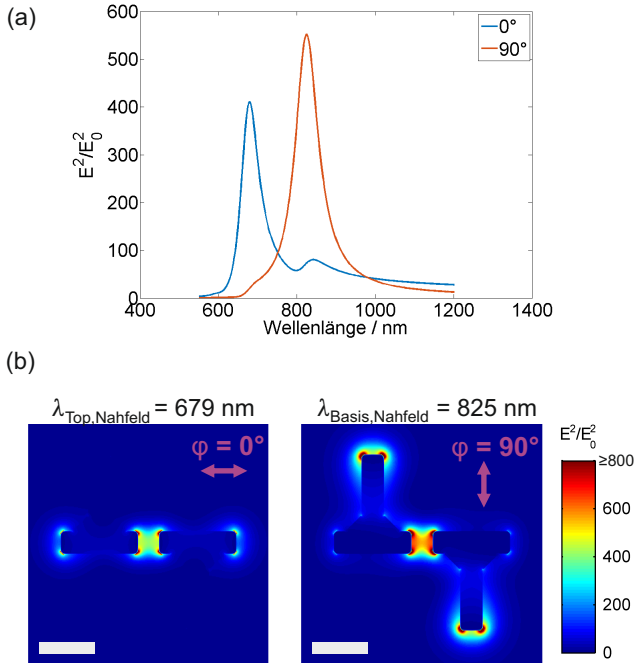
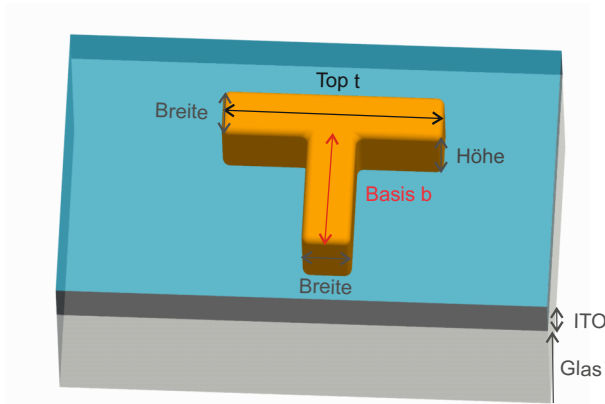


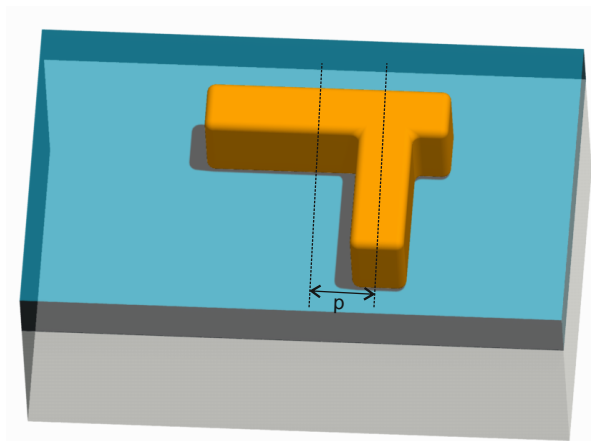
Abbildung 5.2.9.: Nahfeldverstärkungen (E^2/E_0^2) von gekoppelten T-Antennen mit abgeschrägten Innenkanten. Die Basislänge und die Toplänge betragen jeweils 70 nm, der Antennenspalt ist 20 nm groß; (a) Spektrale Nahfeldverteilung in der Mitte des Antennenspalts. (b) räumliche Nahfeldverteilung in Resonanz; Skalierungsbalken: 50 nm.

Benordnung liegt. Analog zur Fernfelduntersuchung (Abb. 5.2.7) ergibt sich auch für die Nahfeldresonanzwellenlängen eine Verschiebung zu kürzeren Wellenlängen. Die Resonanzwellenlängen betragen nun $\lambda_{\text{Top,Nahfeld}} = 679 \text{ nm}$ und $\lambda_{\text{Basis,Nahfeld}} = 825 \text{ nm}$. Da der Einfluss auf die Nahfeldverstärkung eher gering ist, ist der erhöhte experimentelle Aufwand nicht unbedingt nötig. Auch die gekoppelten T-Antennen mit abgerundeten Innenkanten zeigen das gewünschte bimodale Verhalten.

5.3. Einzelne T-Antennen und L-Antennen



(a) Einzelne T-Antenne mit einer Toplänge t und einer Basislänge b . Die Breite (sowohl von Basis als auch von Top) ist konstant bei 20 nm, die Höhe bei 30 nm. Die Höhe der ITO-Schicht ist 30 nm.



(b) Verschiebung der Stelle, an der die Basis am Top angebracht ist, relativ zur Mittenposition: Basisposition p

Abbildung 5.3.1.: Schematische Skizzen für einzelne T-Antennen.

Eine gekoppelte T-Antenne, bestehend aus zwei einzelnen T-Antennen, wie sie in Kapitel 5.2 vorgestellt wird, ist für viele Anwendungen optimal. Aber auch eine einzelne T-Antenne weist bereits ein bimodales Verhalten auf und ist für manche Anwendungen ausreichend oder sogar vorteilhaft, da die präzise, hoch empfindliche Herstellung des Antennenspalts entfällt. In diesem Kapitel werden nun einzelne T-Antennen genau untersucht, um ein besseres Verständnis – auch der gekoppelten Strukturen – zu erlangen.

Abb. 5.3.1(a) zeigt die untersuchte T-Antenne. Die Basisposition p ist als Abweichung von der Mittenposition definiert (Abb. 5.3.1(b)).

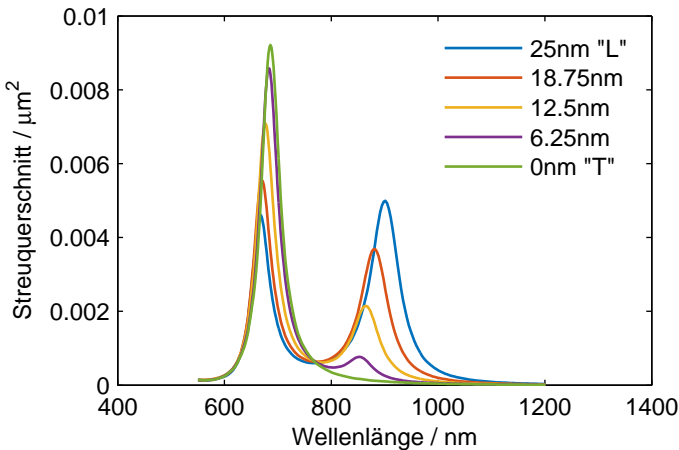


Abbildung 5.3.2.: Streuspektren von einzelnen T-Antennen für unterschiedliche Basispositionen p (siehe Legende). Top und Basislänge betragen $t = b = 70\text{ nm}$. Polarisationsrichtung entlang des Tops ($\varphi = 0^\circ$).

Der Fokus der Untersuchung liegt hierbei auf dem Einfluss der Basisposition. Die Einflüsse von Toplänge und Basislänge sind analog zu den Einflüssen bei gekoppelten Strukturen und werden hier nicht weiter untersucht. Hier wurde eine Antenne mit Top- und Basislänge $t = b = 70\text{ nm}$ gewählt. Abbildung. 5.3.2 zeigt die Streuspektren für unterschiedliche Basispositionen zwischen $p = 0\text{ nm}$

(symmetrische T-Antenne) und $p = 25 \text{ nm}$ (L-förmige Antenne) – jeweils bei Polarisationsrichtung entlang des Tops ($\varphi = 0^\circ$). Bei einer Basisverschiebung von $p = 0 \text{ nm}$ ist nur die Topmode zu sehen. Durch die Verschiebung der Basis werden, wie später noch genauer erläutert, die optimalen Polarisationswinkel der beiden Moden verändert und man regt bei Polarisation entlang des Tops zunehmend auch die zweite Mode bei längeren Wellenlängen an. Es sind aber weiterhin stets genau zwei Moden zu sehen. Dies ist nicht selbstverständlich, da man bei asymmetrischer Basisposition durchaus auch das Erscheinen einer dritten Mode hätte erwarten können.

Um genauer zu verstehen wie sich die beiden Moden entwickeln, wenn die Basis verschoben wird, wird hierfür die Stromdichte in Resonanz betrachtet. Die Stromdichteverteilung für die beiden Moden ist in Abb. 5.3.3 zu sehen. Da nun die beiden Moden nicht mehr hauptsächlich dem Top oder der Basis zugeordnet werden können, werden sie im Folgenden als „kurze Mode“ (Mode mit Resonanz bei kürzeren Wellenlängen) und „lange Mode“ (Mode mit Resonanz bei längeren Wellenlängen) bezeichnet. Wird die Basisposition von der Mitte des Tops in Richtung Rand verschoben, so ändern sich beide Moden entscheidend. Verließ der Stromfluss der Top-Mode bei symmetrischen T-Antennen nur im Top, so kommt es durch die Verschiebung immer stärker auch zu einem Stromfluss in der Basis. Vergleicht man den Stromfluss mit der Darstellung in Abb. 2.4.2, so erkennt man, dass es sich um eine antibindende Mode handelt, die zu höheren Energien, also kürzeren Wellenlängen verschoben ist. Die „lange Mode“, die aus der Basismode entstanden ist, läuft nun hauptsächlich entlang des längeren Abschnitts des Tops. Da sich somit die effektive Antennenlänge für diese Mode verlängert, wird sie zu längeren Wellenlängen hin verschoben. Ein Vergleich mit Abb. 2.4.2 zeigt, dass es sich um eine bindende Mode handelt.

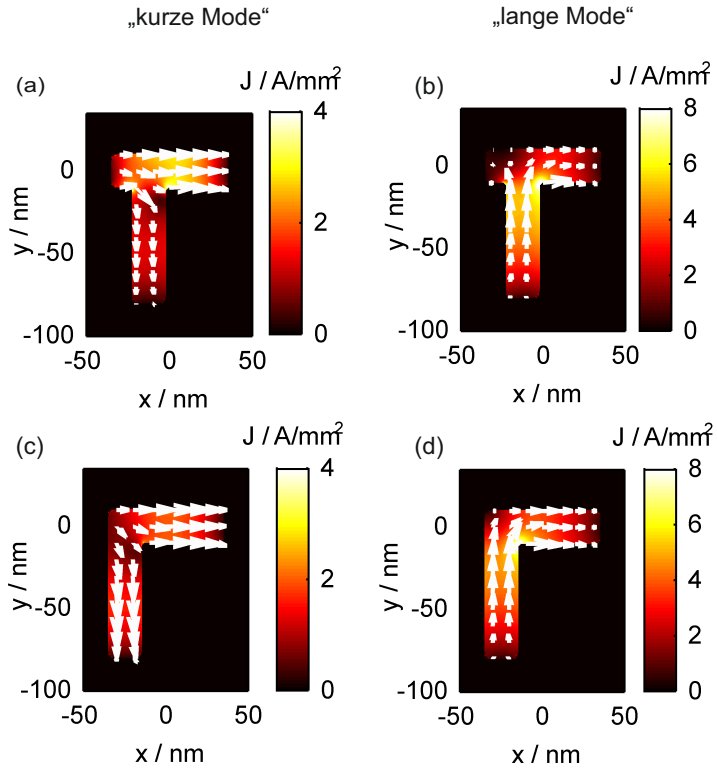


Abbildung 5.3.3.: Stromdichteverteilung bei den beiden Resonanzwellenlängen einer bimodalen Einarmstruktur mit verschobener Basis. (a) und (c) „kurze Mode“: Mode mit der kürzeren Wellenlänge; Polarisationsrichtung der Anregung: $\varphi = 0^\circ$; (b) und (d) „lange Mode“: Mode mit der längeren Wellenlänge; Polarisationsrichtung der Anregung: $\varphi = 70^\circ$. Die Polarisationsrichtung der Anregung wurde für diese Berechnungen relativ willkürlich gewählt, da sie später genauer untersucht wird. Es wurde lediglich darauf geachtet, dass entsprechend die kurze oder die lange Mode dominant angeregt wird. (a) und (b) Basisposition $p = 12,5$ nm. (c) und (d) „L“-Antenne mit Basisposition $p = 25$ nm. (a) Nahfeldresonanzwellenlänge: $\lambda_{\text{kurz,Nahfeld}} = 673$ nm; (b) Nahfeldresonanzwellenlänge: $\lambda_{\text{kurz,Nahfeld}} = 663$ nm; (c) Nahfeldresonanzwellenlänge: $\lambda_{\text{lang,Nahfeld}} = 864$ nm; (d) Nahfeldresonanzwellenlänge: $\lambda_{\text{lang,Nahfeld}} = 898$ nm.

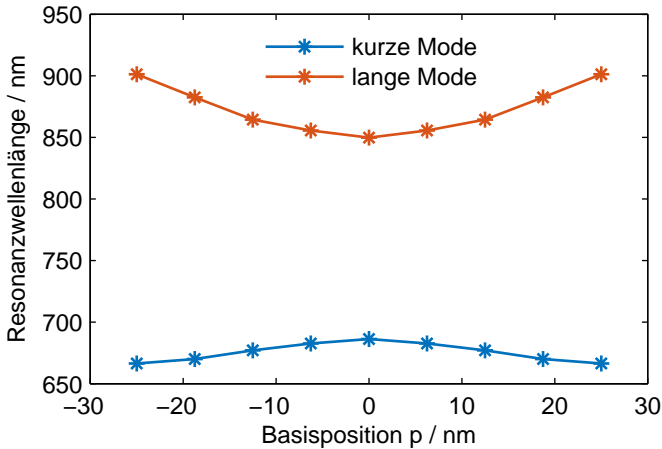


Abbildung 5.3.4.: Resonanzwellenlänge (bestimmt aus Streuquerschnitten) in Abhängigkeit der Basisposition p für eine einzelne T-Antenne mit einer Top- und Basislänge von $t = b = 70$ nm.

In Abb. 5.3.4 ist zusammengefasst, wie sich die Basisposition auf die beiden Resonanzwellenlängen auswirkt. Bei Einarm-T-Strukturen macht es keinen Unterschied ob die Basisposition zum einen oder anderen Ende des Tops verschoben wird. Daher sind die Graphen vollkommen symmetrisch. Es ist direkt zu erkennen, dass bei mittiger Basisposition die beiden Resonanzwellenlängen am nächsten beieinander liegen. Die kürzere Resonanzwellenlänge ist hier am längsten und die längere Resonanzwellenlänge am kürzesten. Symmetrisch zu dieser Position verschieben sich die Resonanzwellenlängen für abweichende Basispositionen leicht auseinander.

In Abb. 5.3.5 wurde der Einfluss der Basisposition auf den optimalen Polarisationswinkel (kurz Resonanzwinkel) untersucht. Dies ist der Winkel, unter dem die jeweilige Mode optimal und ohne Übersprechen der anderen Mode angeregt werden kann. Um diesen Winkel zu bestimmen werden, wie auch bei der gekoppelten Struktur, aus den Streuspektren zunächst die beiden Resonanzwellenlängen bestimmt. Danach wird, analog zu Abb. 5.2.4, für alle Polarisationsrichtungen

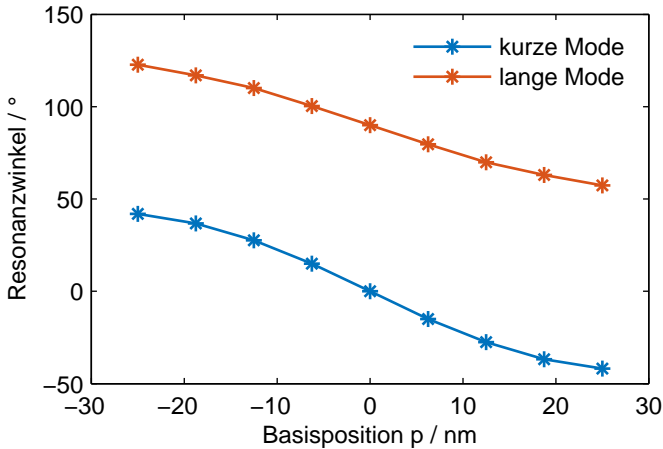


Abbildung 5.3.5.: Resonanzwinkel in Abhängigkeit der Basisposition p für eine einzelne T-Antenne mit einer Top- und Basislänge von je 70 nm.

der Streuquerschnitt bei der jeweiligen Resonanzwellenlänge für die beiden Moden berechnet. Es ist hierfür nicht nötig für alle Polarisationsrichtungen eine vollständige Simulation durchzuführen. Es genügen Simulationen bei drei Polarisationswinkeln und die weiteren Werte können exakt berechnet werden, indem eine \cos^2 -Funktion angefitet wird. Aus diesen \cos^2 -Verläufen lassen sich nun die Resonanzwinkel bestimmen als die Polarisationswinkel, bei denen die eine Mode ein Maximum und die andere ein Minimum besitzt. Es ergeben sich für einzelne T-Antennen, wie zu erwarten, bei einer mittigen Basisposition ($p = 0$ nm) die beiden Winkel $\varphi = 0^\circ$ und $\varphi = 90^\circ$. Abweichungen von der Mittenposition führen zu einer Winkelverkipfung. Da einzelne T-Strukturen absolut symmetrisch sind, sind auch die Winkelverkipfungen symmetrisch. Für den Grenzfall einer L-förmigen Antenne ist gerade das Verhältnis zwischen Toplänge und Basislänge ausschlaggebend für den jeweiligen Winkel. Bei symmetrischen L-Antennen (in der hier verwendeten Notation bei $b + w = t$, wobei w die Breite ist) liegen die beiden Winkel gerade bei $\pm 45^\circ$.

Für einzelne T-Antennen ist die mittige Basisposition also die Position, bei der die Resonanzwinkel genau 0° und 90° betragen und bei der die Resonanzwellenlängen am nächsten beieinander liegen. Die Basisposition mit diesen beiden Eigenschaften wird von nun an optimale Basisposition genannt. Wie bereits in Kapitel 5.2 gesehen wurde, ist bei gekoppelten T-Antennen die mittige Basisposition nicht gleich der optimalen Basisposition. Darauf wird im Folgenden noch weiter eingegangen.

5.4. Einfluss der Kopplung von T-Antennen

In Kapitel 4.2 wurde bereits ausführlich diskutiert, wie die Kopplung von zwei Antennenarmen die Resonanzeigenschaften bei Dipolantennen beeinflusst. Im vorherigen Kapitel 5.3 wurde erläutert, wie sich eine Verschiebung der Basisposition auf die beiden Resonanzen einer Einarm-T-Antenne auswirkt. Hier wird nun gezeigt, dass sich beide Einflüsse bei gekoppelten T-Antennenstrukturen überlagern. Das Zusammenspiel der hier untersuchten Einflüsse ist in Abb. 5.4.1 kurz schematisch zusammengefasst. Natürlich beeinflussen darüber hinaus auch weiterhin alle bisher untersuchten Parameter – wie beispielsweise Basislänge und Toplänge – das Verhalten der gekoppelten T-Antennen.

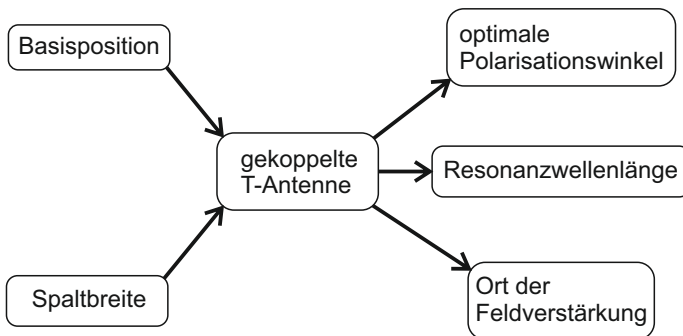


Abbildung 5.4.1.: Schematische Zusammenfassung der hier untersuchten Einflüsse in gekoppelten T-Antennen. Basisposition und Spaltbreite beeinflussen gemeinsam sowohl die optimalen Polarisationswinkel als auch die Resonanzwellenlänge. Der Einfluss auf den Ort der Feldverstärkung wird in dieser Arbeit nicht weiter untersucht.

5.4.1. Spaltbreitenvariation bei gekoppelten T-Antennen (Basisposition $p = 0 \text{ nm}$)

Für die Untersuchung des Einflusses der Spaltbreite wird der Abstand zwischen den beiden einzelnen T-Antennen (Spaltbreite) zwischen 50 nm und 5 nm variiert. Die Basisposition wurde hierbei konstant bei $p = 0 \text{ nm}$ gelassen. Bei einer Spaltbreite von 50 nm findet quasi gar keine Kopplung statt und die Antennenstruktur verhält sich wie zwei einzelne Strukturen. Bringt man die beiden einzelnen T-Antennen näher zueinander, fangen sie an zu koppeln. Die Resonanzwellenlänge verschiebt sich zu längeren Wellenlängen (Abb. 5.4.2a), aber auch die optimalen Polarisationswinkel ändern sich (Abb. 5.4.2b).

Die Verschiebung der Resonanzwellenlänge zu längeren Wellenlängen ist analog zur Rotverschiebung der Resonanzwellenlänge, wie sie bei gekoppelten Dipolen gefunden wurde (Kapitel 4.2). Der Grund für die Veränderung der optimalen Polarisationswinkel ist, dass sich bei gekoppelten Nanoantennen stets entgegengesetzt geladene Ladungsträger zu beiden Seiten des Antennenspalts ansammeln und die jeweiligen Ladungsträger auf der anderen Seite des Spalts teilweise abschirmen. Aus Sicht des jeweiligen Antennenarms wirkt es, als wären weniger Ladungsträger an der Seite des Antennenspalts, oder auch, als wäre der Antennenarm in Richtung des Antennenspalts länger als er in Wirklichkeit ist. Stellt man sich einen so in Richtung Antennenspalt verlängerten Antennenarm vor, wird klar, dass die Basisposition nicht mehr mittig bezüglich dieses effektiven Antennenarms ist. Um dies auszugleichen müsste man die Basis in Richtung des Antennenspalts verschieben. Dies wird im Folgenden untersucht.

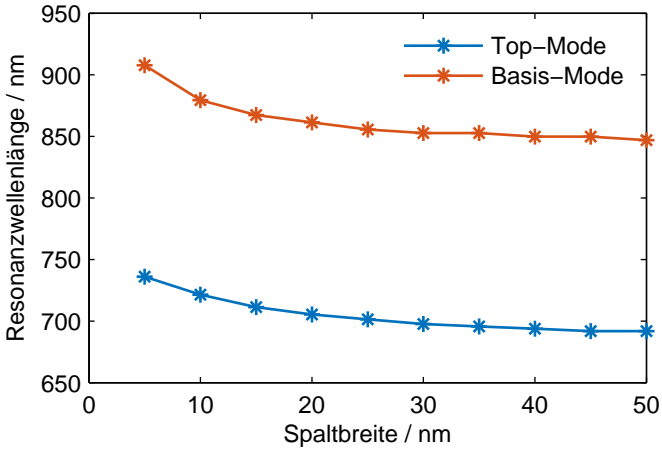
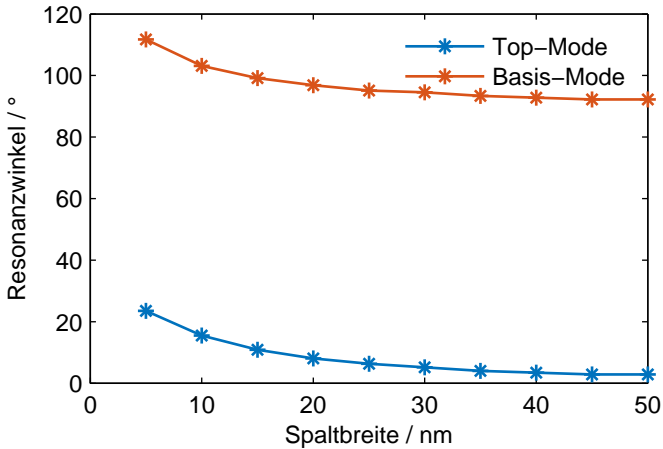
(a) Resonanzwellenlänge in Abhängigkeit der Spaltbreite d .(b) Resonanzwinkel in Abhängigkeit der Spaltbreite d .

Abbildung 5.4.2.: Einfluss der Kopplung von T-Antennen der Top- und Basislänge von 70 nm auf Resonanzwinkel und Resonanzwellenlänge.

5.4.2. Gekoppelte bimodale Antennenstrukturen mit konstantem Antennenspalt und verschobener Basisposition

Als Nächstes wurde für eine gekoppelte T-Antennenstruktur die Basisposition p variiert. Hier werden nun Verschiebungen in Richtung des Antennenspalts mit $p > 0$ und Verschiebungen weg vom Antennenspalt mit $p < 0$ angegeben. In den folgenden Berechnungen betrug der Antennenspalt $d = 20$ nm. Kombiniert man die Erkenntnisse aus Kapitel 5.3 und Kapitel 5.4.1, so ist zu erwarten, dass die „effektive Mittenposition“ des Tops (optimale Basisposition) durch die Kopplung etwas zum Antennenspalt hin verschoben ist. Dies ist auch die Position bei der die beiden optimalen Anregungspolarisationsrichtungen exakt bei $\varphi = 0^\circ$ und $\varphi = 90^\circ$ liegen und, wie aus Kapitel 5.3 gefolgert werden kann, auch die beiden Resonanzwellenlängen am nächsten beieinander liegen.

Eine Methode die optimale Basisposition zu bestimmen ist daher, für jede Basisposition die Polarisationswinkel der beiden Moden zu bestimmen und diejenige Position zu suchen, bei der diese gerade bei $\varphi = 0^\circ$ und $\varphi = 90^\circ$ liegen. Dies ist jedoch sehr rechenintensiv, da für jede Basisposition mehrere Simulationen mit unterschiedlichen Anregungspolarisationsrichtungen durchgeführt werden müssen.

In Abb. 5.4.3 sind die Resonanzwellenlängen der beiden Moden in Abhängigkeit der Basisposition zu sehen. Man erkennt, dass die optimale Basisposition leicht zum Antennenspalt hin verschoben liegt. Allerdings lässt sich hier die optimale Basisposition aufgrund der beschränkten Wellenlängenauflösung nicht genau bestimmen. Daher wird hier alternativ die Position gewählt, bei der die jeweilige Mode den höchsten Streuquerschnitt bei den beiden Anregungspolarisationswinkeln 0° und 90° aufweist². Die Streuquerschnitte in Resonanz in Abhängigkeit

²Diese Methode zur Bestimmung der optimalen Basisposition kann allerdings nur für kleine Abweichungen von dieser verwendet werden. Weicht die Basisposition stark von der optimalen Position ab, so verändert sich auch die „Stärke“ der beiden Resonanzen (also der maximale Streuquerschnitt in Resonanz) bei beiden Moden deutlich. Die beiden Effekte, Änderung des maximalen Streuquerschnitts durch nicht optimale Anregungspolarisationsrichtung und durch Änderung der Modenstärke an sich, überlagern sich.

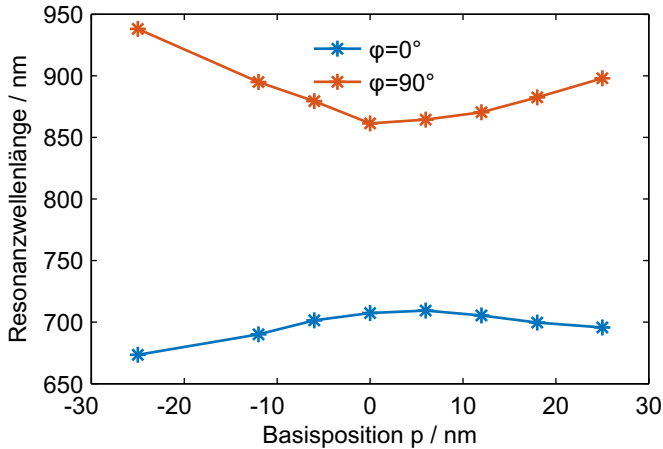


Abbildung 5.4.3.: Resonanzwellenlänge von gekoppelten T-Antennen mit einem Antennenspalt von $d = 20$ nm in Abhängigkeit der Basisposition p .

der Basisposition sind in Abb. 5.4.4 gezeigt. Da die Winkel hier 0° bzw. 90° betragen, weisen beide Moden bei der optimalen Basispositionsverschiebung ein Maximum auf. Aus dieser Darstellung ist klar zu sehen, dass die optimale Position für diese Konfiguration +4 nm Verschiebung beträgt. Dies ist in Einklang mit den Ergebnissen aus Ref. [175], wo ebenfalls eine leichte Verschiebung der Basisposition hin zum Antennenspalt gefunden wurde.

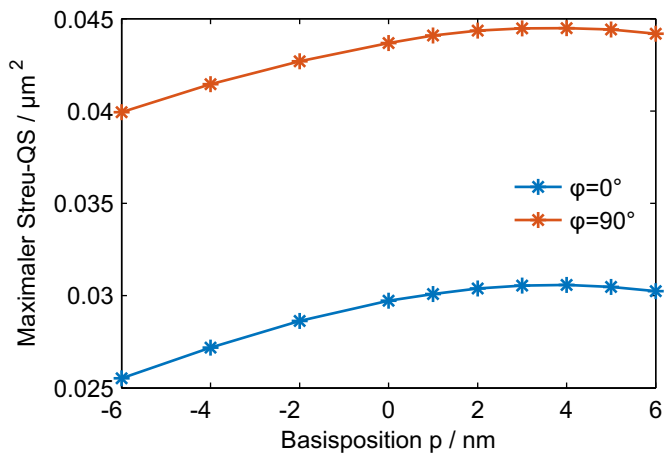


Abbildung 5.4.4.: Maximaler Streuquerschnitt in Abhängigkeit der Basisposition bei gekoppelten T-Antennen.

5.5. Zusammenfassung

Es wurde eine neuartige Antennenstruktur entwickelt, die durch ihr bimodales Verhalten erhebliche Vorteile für diverse Anwendungen bietet. Insbesondere eignen sich gekoppelte T-Antennen für eine Kopplung mit Quantenemittern, die eine Stokes-Verschiebung aufweisen. Die Quantenemitter können im Antennenspalt eingebracht werden, während die Antennenstruktur so gewählt werden kann, dass sowohl bei der Anregungswellenlänge als auch bei der Emissionswellenlänge eine resonante Verstärkung herrscht. Hierfür müssen geschickt einfache Geometrieparameter angepasst werden. Die Moden können unabhängig voneinander gewählt werden. Neben der Eigenschaft, dass zwei Moden bei zwei verschiedenen Wellenlängen Nahfeldverstärkung im Antennenspalt aufweisen, hat die Struktur noch einen weiteren Vorteil. Die Moden können jeweils durch verschieden polarisiertes Licht im Fernfeld angeregt werden, während die Nahfeldverstärkung beider Moden dieselbe Nahfeldpolarisationsrichtung hat. Für Quantenemitter ist dies ein großes Plus, da in den meisten Fällen ihre Dipolorientierung für Absorption und Emission dieselbe ist.

Die simulativen Ergebnisse wurden mit experimentellen Daten verglichen. Hierbei zeigten sich gleiche Trends, aber Abweichungen aufgrund der Schwierigkeit die Innenkanten der T-Struktur exakt herzustellen. Die Abweichungen konnten in den Simulationen durch Berücksichtigung der abgeschrägten Innenkanten nachvollzogen werden. Es wurde auch gezeigt, dass die abgeschrägten Innenkanten sich nicht signifikant nachteilig auf das Verhalten der Antennenstruktur auswirken.

Es wurden außerdem einzelne T-Antennenstrukturen untersucht, die ebenfalls ein bimodales Verhalten aufweisen. Diese lieferten ein wichtiges Verständnis dafür, wie der genaue Ansatzpunkt der Basis am Top der T-Struktur (Basisposition) das Verhalten der T-Antenne beeinflusst. Es wurde genauer untersucht, wie die Basisposition und die Kopplung zwischen zwei einzelnen T-Antennen gemeinsam die Resonanzwellenlänge und Fernfeldpolarisationsrichtung der beiden Moden beeinflussen. Es wurde gezeigt, dass stets eine optimale Basisposition existiert und wie diese gefunden werden kann. Es wurde aber auch gezeigt, dass für viele

praktische Anwendungen eine mittige Basisposition vollkommen ausreichend ist und der Aufwand die optimale Basisposition zu bestimmen nicht unbedingt nötig ist.

6. Reale Nanoantennenstrukturen

In allen bisherigen Simulationen wurden quaderförmige Antennenstrukturen angenommen. Es ist jedoch experimentell eine große Herausforderung die Antennen präzise quaderförmig herzustellen. Des Weiteren ist bekannt, dass lokalisierte Oberflächenplasmonen sehr sensitiv bezüglich der genauen Geometrie der Antenne sind. Diese beiden Gründe sind die Motivation sich genauer mit den Einflüssen der exakten Geometrie auf die Nahfeld- und Fernfeldeigenschaften von optischen Antennen zu beschäftigen. In diesem Kapitel wird untersucht, inwieweit sich Abweichungen von der idealisierten Antennengeometrie, die bei der komplexen Herstellung der Nanoantennen auftreten, auf ihr optisches Verhalten auswirken. Für die Untersuchung des Einflusses von kleinen Geometrieungenauigkeiten ist es wichtig die hergestellten Antennengeometrien möglichst genau in die Simulationsmodelle zu implementieren. Daher ist die FDTD-Methode mit ihrem rechteckigen, eher unflexiblem Simulationsnetz für diese Untersuchungen weniger geeignet. Alle Simulationen in diesem Kapitel werden daher mit der Finite-Elemente-Methode durchgeführt. REM-Aufnahmen liefern ein sehr genaues Abbild des jeweiligen Antennenquerschnitts. Die aus REM-Bildern extrahierten Konturen werden zu einem 3D-Modell erweitert und die optische Antennenantwort wird mittels FEM berechnet. Es zeigt sich, dass gravierende Abweichungen zu den exakt quaderförmigen Geometrien sowohl im Nah- als auch im Fernfeld auftreten.

In Kapitel 6.1 werden bisherige Arbeiten auf diesem Themengebiet vorgestellt. Anschließend werden in Kapitel 6.2 die untersuchten Geometrien erläutert. In Kapitel 6.3 werden manuelle und auf Bildverarbeitungsmethoden basierende

automatisierte Verfahren zum Erkennen und zum Extrahieren der Konturen aus REM-Aufnahmen gezeigt. Das Kapitel 6.4 zeigt, wie aus den extrahierten Konturen 3D-Modelle erstellt werden und welche Strukturen dann simulativ verglichen werden. Die Auswirkungen auf die untersuchten optischen Eigenschaften werden in Kapitel 6.5 genauer untersucht und ausgewertet.¹

6.1. Stand der Forschung

Es wurde bereits gezeigt, dass Oberflächenrauheiten sowohl die Resonanzwellenlänge als auch die spektrale Breite der Resonanzen beeinflussen können [181]. Hierbei wurde jedoch die Oberflächenrauheit nur als kleine Ungenauigkeit angenommen, welche grundsätzliche Geometrieparameter wie Länge, Breite und Höhe nicht signifikant verändert. Im Gegensatz dazu wurde in Ref. [182] nur ein geringer Einfluss aufgrund der Oberflächenrauheit gefunden. Gerade die Abweichungen in den grundsätzlichen Geometrieparametern stehen aber im Fokus dieser Arbeit. In anderen Arbeiten wurden Abweichungen von perfekten Geometrien in allen drei Dimensionen berücksichtigt [183], allerdings ohne dies in quantitativen Bezug zu tatsächlich vermessenen Geometrien zu setzen. Weitere Veröffentlichungen kommen ebenfalls zu dem Schluss, dass die realistische Geometrie von Nanoantennen einen entscheidenden Einfluss hat [184, 185]. Was jedoch bisher fehlt ist eine effektive Methode, um die experimentell hergestellten Geometrien möglichst automatisiert in den Simulationen berücksichtigen zu können, um somit Aussagen über den Einfluss ihrer Abweichungen zu treffen.

¹ Teile der hier vorgestellten Ergebnisse wurden in Ref. [180] veröffentlicht.

6.2. Untersuchte Antennenstrukturen

In dieser Arbeit wurden neun Zweiarmentennen mit Antennenarmlängen zwischen 30 nm und 70 nm untersucht. Die Erkenntnisse über die realen Geometrien basieren auf AFM- und REM-Messungen. In Abb. 6.2.1 (a) ist eine AFM-Aufnahme einer Nanoantenne mit nomineller Armlänge von 55 nm zu sehen. Bei den AFM-Messungen stellte sich heraus, dass hierdurch keine ausreichenden Rückschlüsse auf das genaue Höhenprofil der Antennen gezogen werden können. Die AFM-Messungen sind stets eine Faltung des Höhenprofils der Antenne mit der Geometrie der AFM-Spitze. Der Durchmesser der AFM-Spitze ist mit ca. 10 nm in der gleichen Größenordnung wie die Breite der Antenne und des Antennenspalt. Auch bei Antennen mit einem perfekt senkrechten Höhenprofil sieht man im AFM-Bild eine Steigung. Noch schwieriger ist es Aussagen über das Höhenprofil nahe des Antennenspalt zu treffen. Der Durchmesser der AFM-Spitze ist teilweise zu groß, um überhaupt in den Antennenspalt einzudringen.

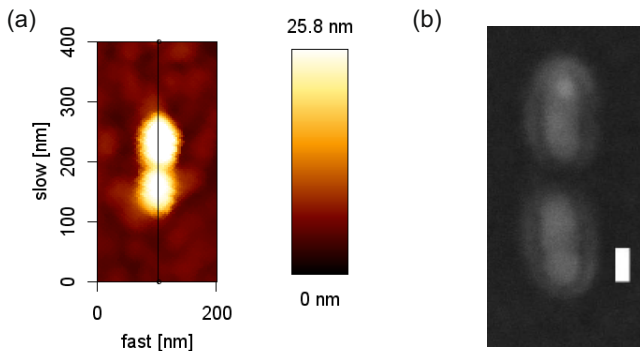


Abbildung 6.2.1.: (a) Repräsentatives AFM-Bild einer Nanoantenne und (b) eine REM-Aufnahme von einer anderen, ebenfalls repräsentativen Nanoantenne; Skalierungsbalken: 20 nm. Die nominelle Antennenarmlänge betrug jeweils 55 nm. Herstellung und Messung wurden von Matthias Wissert durchgeführt [53, 154].

Es ist außerdem schwierig, die Ergebnisse aus den AFM-Messungen so mit den REM-Messungen zu kombinieren, dass man eine realistische 3D-Struktur erhält. Zum einen erschwert das eben erwähnte Problem der Faltung die genaue Zuordnung der AFM-Geometrie mit der REM-Geometrie. Des Weiteren ist es schwierig AFM-Messungen und REM-Messungen an identischen Antennengeometrien durchzuführen. Für die hier durchgeführten Untersuchungen standen keine Messungen an identischen Antennenstrukturen zur Verfügung.

Andere Arbeiten, welche Auswirkungen von realen Antennengeometrien untersuchen, nahmen auch ein entsprechend unregelmäßiges Höhenprofil für die Antenne an [183]. Zumindest für die hier untersuchten Antennengeometrien wäre ein entsprechendes Höhenprofil jedoch rein spekulativ. Obwohl alle Simulationen in diesem Kapitel in Luft durchgeführt wurden, muss doch berücksichtigt werden, dass sich die Antennen in Wirklichkeit auf einem Substrat befindet. Daher ist eine Geometrie ohne ebenen Boden oder mit erst zu- und danach wieder abnehmendem Höhenprofil (wie dies in Ref. [183] angenommen wurde) eher unwahrscheinlich. Generell gibt es keine Hinweise darauf, ob die hier untersuchten Antennen eher einen nach oben hin zu- oder abnehmenden Querschnitt haben. Auf jeden Fall haben die Oberflächenrauheiten sowohl des Substrates als auch der Goldstruktur einen weiteren Einfluss auf die optischen Eigenschaften der Antenne. Diese Oberflächenrauheiten sind schwer simulativ zu berücksichtigen und sind nicht Teil dieser Untersuchung. Aus all diesen Gründen wurden AFM-Messungen für diese Untersuchungen nur insofern berücksichtigt, dass aus ihnen eine durchschnittliche Höhe der Antennenstrukturen von 25 nm bestimmt wurde. Alle Antennen wurden daher mit senkrechten Wänden und einer konstanten Höhe von 25 nm modelliert.

Die Untersuchung von realen Strukturen beschränkte sich daher auf die Modellierung des xy-Profiles, welches aus den REM-Bildern bestimmt wurde.

6.3. Manuelles und automatisches Erkennen der Antennenkontur

6.3.1. Manuelles Verfahren

Abb. 6.2.1 (b) zeigt ein exemplarisches REM-Bild einer Nanoantenne mit nomineller Armlänge von 55 nm. Hierbei ist zu erkennen, dass die tatsächliche Antennengeometrie von einer Art „Heiligenschein“ umgeben ist. Dieser ist nicht Teil der Geometrie, sondern ein sogenannter REM-Kanteneffekt. Solche Effekte entstehen durch Aufladungen oder durch Verunreinigung mit Kohlenwasserstoffverbindungen, die sich besonders deutlich an den Kanten zeigen [186]. Mit bloßem Auge lässt sich trotzdem sehr gut die genaue Geometrie der Antenne erkennen. Für eine automatische Erkennung der Antennengeometrien mittels Bildverarbeitungsmethoden stellt dieser „Heiligenschein“ jedoch eine große Herausforderung dar.

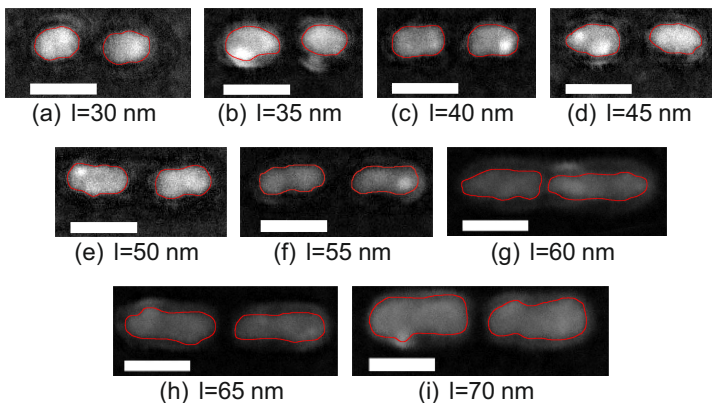


Abbildung 6.3.1.: REM-Bilder mit erhöhtem Kontrast inklusiv manuell extrahierter Kontur für die Antennen mit neun unterschiedlichen nominellen Antennenarmlängen. Skalierungsbalken: 50 nm.

In Abb. 6.3.1 sind für die neun REM-Bilder jeweils die gefundenen Antennengeometrien eingezeichnet. Die Kontur wurde hierbei manuell erfasst. Für eine bessere Erkennbarkeit der Konturen wurde der Kontrast der REM-Aufnahmen stark erhöht, um so die eigentliche Antennenstruktur besser von dem „Heiligenschein“ unterscheiden zu können.

6.3.2. Automatisiertes Verfahren

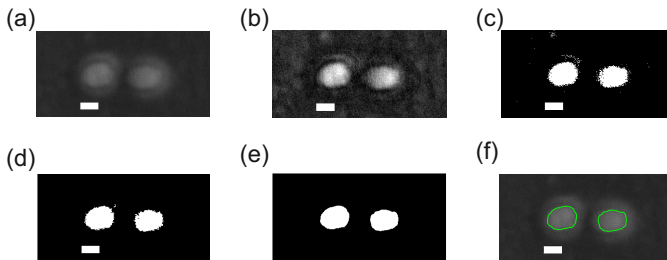


Abbildung 6.3.2.: Schrittweises automatisiertes Extrahieren der realen Kontur aus einer REM-Aufnahme mittels Bildverarbeitungsmethoden am Beispiel einer Nanoantenne mit nomineller Armlänge von 30 nm. (a) unbearbeitetes REM-Bild; (b) erhöhter Kontrast; (c) in Schwarzweißbild konvertiert; (d) nach Erosion und Entfernung von kleinen Objekten; (e) nach Kantenglättung; (f) REM-Bild mit extrahierter Geometrie. Skalierungsbalken: 20 nm.

Es wurde nun untersucht, inwieweit das Erkennen der Antennenkontur auch trotz des „Heiligenscheins“ automatisiert möglich ist. Hierfür werden die REM-Aufnahmen zunächst in Matlab importiert (Abb. 6.3.2(a)). Dort wird der Kontrast erhöht (Abb. 6.3.2(b)) und das Graustufenbild wird in ein Schwarzweißbild gewandelt (Abb. 6.3.2(c)). Hierbei ist es wichtig, den Schwellwert, zwischen einer Wandlung in ein schwarzes oder weißes Pixel, sorgfältig zu wählen. Als Nächstes werden alle zusammenhängenden weißen Elemente unter einer bestimmten Pixelzahl entfernt. Daraufhin wird das Bild erodiert, um den „Heiligenschein“ weiter zu entfernen. Hierbei wird ein Pixel schwarz gewählt, sobald ein Pixel

in seiner nahen Umgebung schwarz ist. Danach werden erneut sehr kleine zusammenhängende weiße Strukturen entfernt. Nun werden kleine, komplett von weißen Bereichen umschlossene schwarze Reste entfernt. Das nach diesen Schritten entstehende Bild zeigt die zu extrahierende Struktur schon recht deutlich (Abb. 6.3.2(d)). In einem letzten Schritt wird die Struktur noch mittels eines Kantenglättungsfilters geglättet (Abb. 6.3.2(e)). In Abb. 6.3.2(f) ist nun die extrahierte Geometrie zusammen mit dem ursprünglichen REM-Bild zu sehen.

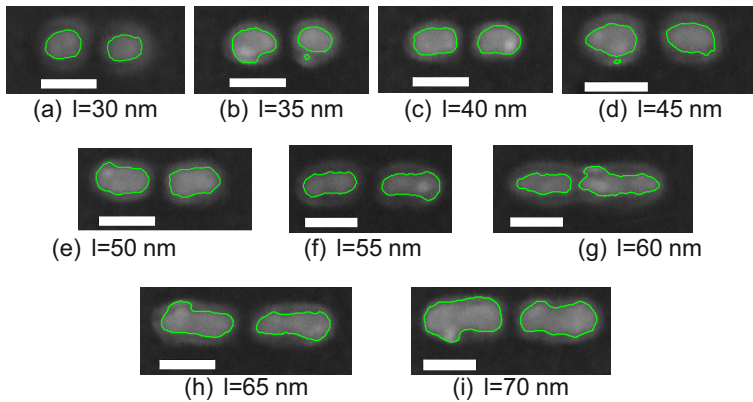


Abbildung 6.3.3.: REM-Bilder inklusiv automatisiert extrahierter Kontur für die Antennen mit neun unterschiedlichen nominellen Antennenarmlängen. Skalierungsbalken: 50 nm.

Nach diesem Verfahren wurden alle neun Antennengeometrien automatisch extrahiert. Die entsprechenden Strukturen sind in Abb. 6.3.3 zu sehen. Es zeigte sich, dass bei entsprechender Einstellung der Parameter ein gutes Extrahieren der Kontur möglich ist. Allerdings ergaben sich hierbei zwei Probleme. Zum einen wurden wie in Abb. 6.3.3(b) und (d) zu erkennen ist kleine, sehr helle Teile des „Heiligenscheins“ als separate Kontur erkannt, die hinterher manuell entfernt werden mussten. Zum anderen wurden alle REM-Aufnahmen mit leicht unterschiedlichen Belichtungseinstellungen aufgenommen. Daher mussten die

entsprechenden Parameter, die für eine automatisierte Extraktion nötig waren, stets manuell eingestellt werden. Dies machte den Aufwand für ein automatisches Erkennen der Antennengeometrie erheblich.

Da die Anzahl an untersuchten Geometrien beschränkt war und die von Hand extrahierten Geometrien tendenziell genauer waren als die automatisch extrahierten wurden hier nur die von Hand extrahierten Geometrien weiter untersucht. Für eine große Anzahl an Strukturen ist jedoch die vorgestellte automatisierte Methode sinnvoll.

6.4. Erstellen von 3D Modellen

Die unterschiedlichen Konturen wurden nun in einem CAD-Programm zu 3D-Strukturen extrudiert [124] und in das FEM-Programm Comsol [121] importiert. Abb. 6.4.1 zeigt ein 3D-Modell einer realen Antennenstruktur mit konstanter Höhe. Wie auch in allen anderen Simulationen wurden auch hier die Ober- und Unterkanten wieder mit einem 3 nm Radius abgerundet.



Abbildung 6.4.1.: 3D-Modell einer realen Antennenstruktur mit xy-Kontur aus REM-Bild extrahiert (vgl. Abb. 6.3.1(h)). Die nominelle Armlänge ist 65 nm; die Höhe wurde konstant auf 25 nm festgelegt.

Solche Antennenmodelle wurden nun für alle neun Antennengeometrien erstellt.

Generell können die Abweichungen der realen Geometrien von den idealen Geometrien in zwei Gruppen unterteilt werden:

1. Es tritt eine Abweichung in der Größe der Geometrieparameter Breite, Länge und Spaltbreite auf.

2. Es kommt zu einer Abweichung von perfekt rechteckigen Strukturen.

Diese beiden Effekte wurden getrennt voneinander untersucht und verglichen. Hierfür wurde eine weitere Gruppe an Antennengeometrien modelliert. Hierbei wurde aus den REM-Bildern jeweils nur die tatsächlich hergestellten Geometrieparameter Breite, Länge und Spaltbreite abgemessen. Diese sind für die neun Strukturen im Anhang (Tabelle A.3.1) zusammengefasst. Es fällt direkt auf, dass die Antenne mit nomineller Armlänge von 60 nm sehr stark von den nominellen Dimensionen abweicht. Normalerweise wäre diese Antenne aufgrund der starken Abweichungen aussortiert worden. Hier wurde sie aber bewusst weiter untersucht. Zunächst ist es interessant zu sehen, wie stark sich tatsächlich auftretende Abweichungen auf das Verhalten der Antennen auswirken können. Außerdem wird nicht vor jeder optischen Vermessung einer Antenne auch eine REM-Aufnahme von genau dieser Struktur gemacht. Das heißt es kommt durchaus vor, dass eine Antenne auch mit solchen Abweichungen nicht vor dem Vermessen erkannt wird.

Es wurden nun Antennenmodelle mit perfekt rechteckiger Struktur, aber eben diesen Parametern erzeugt. Diese beiden Gruppen an Antennengeometrien wurden nun mit den idealen Geometrien ohne jegliche Abweichung verglichen. Abb. 6.4.2 fasst die drei unterschiedlichen Gruppen an Simulationsgeometrien zusammen.

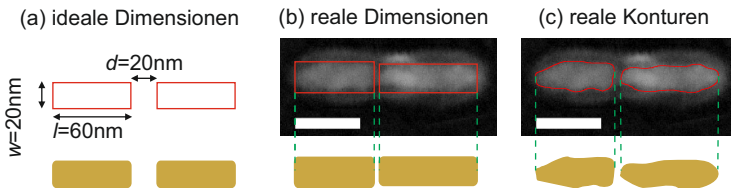


Abbildung 6.4.2.: Übersicht über die drei Gruppen an Simulationen die in dieser Untersuchung verglichen wurden. (a) Ideale Dimensionen: Geometrie und Dimensionen wie nominell angegeben, (b) reale Dimensionen: Länge, Breite und Spaltbreite aus REM-Bildern entnommen, aber Höhe konstant 25 nm und ideal rechteckige Geometrie, (c) reale Konturen: Geometrie aus REM-Bild entnommen, Höhe konstant 25 nm. Skalierungsbalken: 50 nm.

6.5. Simulationsergebnisse

6.5.1. Vergleich der FEM- und FDTD-Simulationen

Um die durchgeführten FEM-Simulationen mit FDTD-Simulationen zu vergleichen, wurden die entsprechenden idealen Geometrien mittels FEM und FDTD berechnet und die Ergebnisse verglichen. In Abb. 6.5.1 sind die entsprechenden Spektren für Streu- und Absorptionsquerschnitte zu sehen.

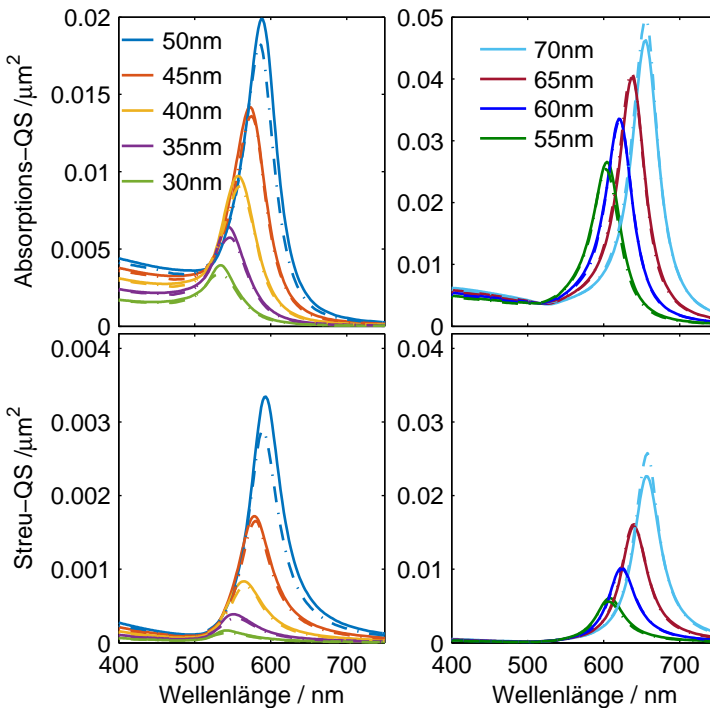
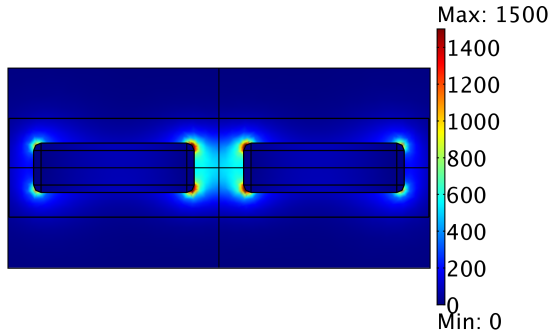


Abbildung 6.5.1.: Streu- und Absorptionsquerschnitte von Nanoantennen mit zunehmender Armlänge mittels FDTD (durchgezogene Linien) und FEM (gestrichelte Linien) berechnet.

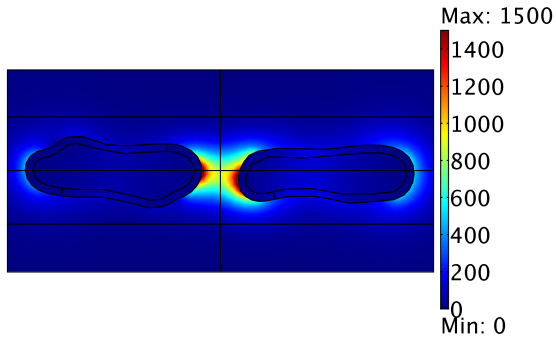
Es zeigt sich eine gute Übereinstimmung. Die Abweichungen zwischen den beiden Simulationsprogrammen kommen hauptsächlich durch das unterschiedliche Simulationsnetz und die unterschiedliche Weise, wie die frequenzabhängige dielektrische Funktion gefittet bzw. interpoliert wurde zustande.

6.5.2. Nahfeldverteilung

Die unterschiedlichen Antennengeometrien wurden nun in COMSOL importiert und die entsprechenden Spektren wurden berechnet. Zunächst sieht man eine deutlich unterschiedliche Nahfeldverteilung für Antennenstrukturen mit idealen Dimensionen (Abb. 6.5.2(a)) und realen Konturen mit nominell identischen Dimensionen (Abb. 6.5.2(b)).



(a) Nahfeldverstärkung $\frac{E^2}{E_0^2}$; ideale Dimensionen; Resonanzwellenlänge 640 nm



(b) Nahfeldverstärkung $\frac{E^2}{E_0^2}$; reale Konturen; Resonanzwellenlänge 637,5 nm

Abbildung 6.5.2.: Nahfeldverteilung $\frac{E^2}{E_0^2}$ einer Antenne mit (nomineller) Armlänge 65 nm.

6.5.3. Auswirkungen auf Streu- und Absorptionsquerschnitt

Aber nicht nur die Nahfeldverstärkung und räumliche Nahfeldverteilung ist deutlich unterschiedlich, sondern auch Absorptions- und Streuquerschnitt werden signifikant von den unterschiedlichen Geometrien beeinflusst. In Abb. 6.5.3 ist zu sehen wie die Resonanzwellenlängen für reale Konturen von den idealen Dimensionen abweichen. Noch gravierender ist der Einfluss für die absoluten Werte der Absorptions- und Streuquerschnitte in Resonanz (Abb. 6.5.4). Betrachtet man zunächst den Verlauf der Resonanzwellenlänge für die idealen Strukturen (gepunktete Linien), so sieht man wieder den näherungsweise linearen Verlauf, sowie den leichten Unterschied zwischen Absorption und Streuung der mit zunehmender Armlänge abnimmt. Auch hier ist die Streuung wieder leicht rotverschoben gegenüber der zur Absorption. Dies alles stimmt mit den Erkenntnissen aus Kapitel 4 überein. Vergleicht man diesen Verlauf jetzt mit den Simulationen für reale Konturen (gestrichelte Linien), so sieht man, dass die Abweichung in der Geometrie sowohl zu Verschiebungen hin zu längeren als auch zu kürzeren Resonanzwellenlängen führen kann. Die stärksten Abweichungen sieht man, wie zu erwarten war, für die Antenne mit nomineller Armlänge von 60 nm. Diese Antenne war schon in Tabelle A.3.1 und Abb. 6.3.1 aufgrund der starken Abweichungen aufgefallen. Betrachtet man nun als letztes den Verlauf der Kurven für Strukturen realer Dimensionen, aber idealer, rechteckiger Geometrie, so erkennt man, dass der qualitative Verlauf deutlich besser nachvollzogen werden kann. Auch die absolute Abweichung zur Kurve der realen Konturen ist für diese Gruppe an Simulationen besser. Die Resonanzwellenlängen von Strukturen mit realen Dimensionen, aber rechteckiger Geometrie liegen stets bei leicht größeren Wellenlängen.

Betrachtet man nun den Verlauf der Streu- und Absorptionsquerschnitte bei der jeweiligen Resonanzwellenlänge, so erkennt man für die Strukturen mit idealen Dimensionen auch eine monotone Zunahme für längere Antennenarme. Die Zunahme ist für die Streuung deutlich stärker als für die Absorption und der Absorptionsquerschnitt ist stets größer als der Streuquerschnitt. Auch diese Er-

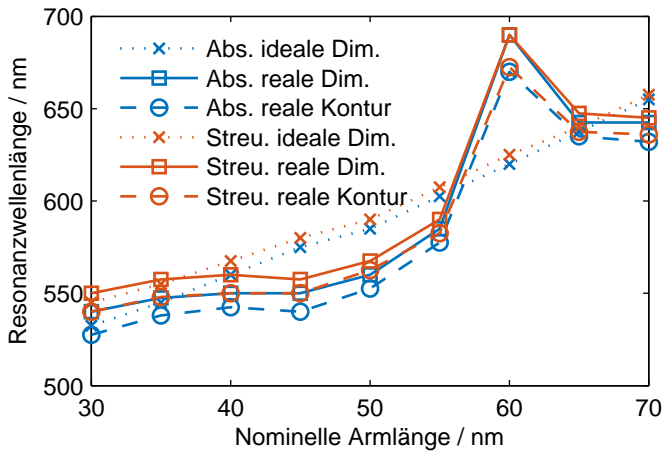


Abbildung 6.5.3.: Resonanzwellenlänge für die neun Antennenstrukturen mit unterschiedlichen nominellen Armlängen. Die Verbindungslinien dienen hierbei lediglich der besseren Anschaulichkeit. Die drei unterschiedlichen Sorten von Simulationen sind für Strukturen mit idealen Dimensionen, Strukturen mit realen Dimensionen, aber idealer Form und Strukturen mit realer Kontur.

kenntnisse stimmen mit den Ergebnissen aus Kapitel 4 überein. Wie auch schon bei der Resonanzwellenlänge gibt es eine starke Abweichung, wenn man die Simulationen mit realen Konturen betrachtet und man kann den qualitativen Verlauf nachvollziehen, wenn man die realen Dimensionen mit perfekt rechteckiger Geometrie simuliert. Auch hier bleibt jedoch eine signifikante Differenz zwischen den Strukturen mit realer Kontur und realer Dimension. Die Simulationen von Strukturen mit realen Dimensionen, aber rechteckiger Geometrie liefern stets größere Streu- und Absorptionsquerschnitte. Dies lässt sich dadurch erklären, dass (wie aus Abb. 6.4.2 zu erkennen) die Struktur mit rechteckiger Geometrie stets auf der maximalen Länge und Breite der aus den REM-Bildern extrahierten Werte beruht. Somit haben die Strukturen mit rechteckiger Geometrie und realen Geometrien stets ein etwas größeres Volumen. Dies führt auch zu der leichten Rotverschiebung, die bei der Resonanzwellenlänge beobachtet wurde.

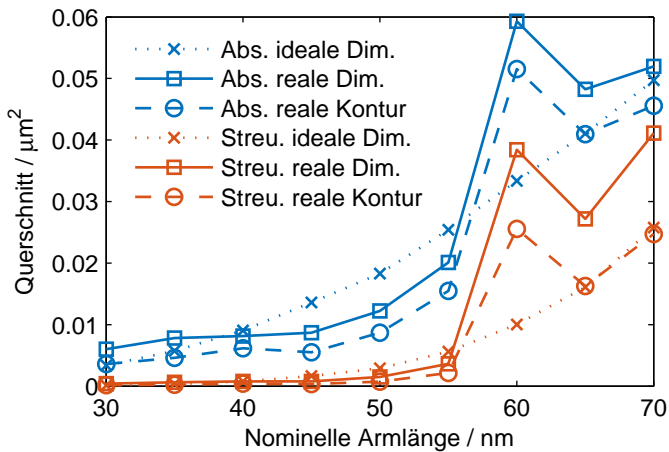


Abbildung 6.5.4.: Streu- und Absorptionsquerschnitte bei der Resonanzwellenlänge für die neun untersuchten Antennenstrukturen mit unterschiedlichen Armlängen. Die Verbindungslinien dienen hierbei lediglich der besseren Anschaulichkeit. Die drei unterschiedlichen Gruppen von Simulationen entsprechen Strukturen mit idealen Dimensionen, Strukturen mit realen Dimensionen, aber idealer Form und Strukturen mit realer Kontur.

6.6. Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde gezeigt, wie stark sich Abweichungen in der realen Geometrie und dabei insbesondere bei der Kontur der Nanoantennen auf deren optisches Verhalten auswirken.

Es wurden zunächst verschiedene Möglichkeiten verglichen, die Antennenkontur aus REM-Aufnahmen zu extrahieren. Hierbei stellten Verunreinigungen, die in den REM-Aufnahmen um die Antennenstruktur herum auftauchen, aber nicht zur wirklichen Antennenstruktur gehören eine große Herausforderung dar. Es konnte gezeigt werden, dass es möglich ist die Konturen automatisiert mittels Bildverarbeitungsmethoden zu extrahieren. Hierfür ist jedoch ein sensibles Einstellen der Parameter nötig und eine Aufnahme aller REM-Bilder mit identischen Belichtungseinstellungen wäre hilfreich. Da in dieser Untersuchung nur eine sehr geringe Anzahl an Antennen untersucht wurde, wurde hier eine manuelle Extraktion der Geometrie gewählt. Aus den extrahierten Konturen wurde ein 3D-CAD-Modell erstellt. Die Höhe wurde auf einen konstanten Wert festgelegt, der aus AFM-Aufnahmen bestimmt wurde.

In den Simulationen wurden drei verschiedene Gruppen von Modellen miteinander verglichen: (i) ideale Geometrien mit idealen Dimensionen, die den Herstellungsspezifikationen entsprechen, (ii) rechteckige Geometrien, aber mit real in REM-Aufnahmen gemessenen Dimensionen und (iii) Strukturen mit aus den REM-Bildern extrahierten Konturen. Es zeigte sich, dass sich die Abweichungen bei der Herstellung in der Tat gravierend auf die Simulationsergebnisse auswirken. Die Abweichungen betreffen sowohl Nahfeldverteilung als auch Fernfeldeigenschaften. Im Fernfeld werden sowohl Resonanzwellenlänge als auch die Streu- und Absorptionsquerschnitte stark beeinflusst. Die Antennenstrukturen mit realen Dimensionen, aber idealer Geometrie konnten das realistische Verhalten der Antennen besser vorhersagen, aber auch hier bestanden noch Unterschiede zu Strukturen mit realer Kontur.

7. Aluminiumantennen

Bisher wurde nur Gold als Metall für die untersuchten Nanostrukturen verwendet. Gold hat jedoch unterhalb von 500 nm eine starke Interbandabsorption, die dazu führt, dass Oberflächenplasmonen nicht mehr effizient angeregt werden können. Ein alternatives Material ist daher Aluminium. Aufgrund der unterschiedlichen dielektrischen Funktion liegen die Resonanzen für Aluminiumantennen mit gleicher Geometrie bei deutlich niedrigeren Wellenlängen als bei Goldantennen. Auch hat Aluminium im Gegensatz zu Gold keinen Interbandabsorptionsübergang im grün/blauen Spektralbereich des sichtbaren Lichts. Allerdings gibt es bei Aluminium einen Interbandabsorptionsübergang bei deutlich längeren Wellenlängen (ca. 800 nm), weshalb sich Aluminium für diesen Bereich wiederum nicht so gut eignet. Ein weiteres Problem bei Aluminiumantennen ist, dass sie an Luft oxidieren und eine ca. 3 nm dicke Oxidschicht bilden. In diesem Kapitel werden Aluminiumantennen simulativ untersucht.

Zunächst wird in Kapitel 7.1 zusammengefasst, welche Arbeiten es in diesem Bereich bereits gibt. In Kapitel 7.2 wird dann untersucht, wie sich die Resonanzwellenlänge sowie entsprechende Resonanzparameter für Einarm- und Zweiarmlstrukturen in Abhängigkeit von der Antennenarmlänge verhalten. Hierbei ist insbesondere ein Unterschied in der Resonanzwellenlänge zwischen Absorption und Streuung für Strukturen mit einer Resonanz nahe der Interbandabsorption interessant. Als Nächstes wird der Einfluss der Oxidschicht gezeigt (Kapitel 7.3). Zum Schluss werden in Kapitel 7.4 die simulierten Ergebnisse mit experimentel-

len Daten verglichen. Es wird gezeigt, dass gemessene Dunkelfeldspektren der Resonanzwellenlänge der Streuung recht gut folgen.¹

7.1. Stand der Forschung

Lange Zeit wurden hauptsächlich Gold und teilweise auch Silber [189] als plasmonische Materialien verwendet. Die optischen Eigenschaften von Aluminium sind allerdings auch bereits seit langem von Interesse [18, 190]. Seit einigen Jahren wird Aluminium nun ebenfalls sehr erfolgreich für plasmonische Anwendungen [191, 192] und insbesondere für Nanopartikel mit Resonanzfrequenzen im blauen und UV-Spektralbereich verwendet. Bisher untersuchte Aluminiumstrukturen beinhalten Nanoscheiben [193], Nanodreiecke [194], Nanokristalle [195], aber auch Nanoantennen [44, 196]. Hierbei wurden auch zweiphotoneninduzierte Lumineszenzmessungen durchgeführt [44]. Ferner beeinflusst insbesondere die Oxidschicht, welche sich an der Aluminiumoberfläche bei Kontakt mit Luft bildet, die optischen Eigenschaften von Aluminiumnanopartikeln sehr stark [188, 197].

7.2. Längenvariation

Für die Simulation wurden weitgehend die in Tabelle 3.3.1 angegebenen Parameter verwendet, die Antennenbreite w betrug jedoch 30 nm. Die Aluantennen befanden sich (wie auch im Experiment [187]) direkt auf einem Glassubstrat ohne eine ITO-Schicht wie sie für die bisherigen Simulationen mit Goldantennen auf Substrat verwendet wurde. Die Antennenarmlänge wurde entsprechend variiert und die Ecken und Kanten wurden an der Grenzfläche zum Substrat nicht abgerundet um später eine realistische Modellierung der Oxidschicht zu ermöglichen.

¹Teile der hier vorgestellten Ergebnisse wurden in Ref. [187] und [188] veröffentlicht.

Vergleicht man den Realteil der dielektrischen Funktion von Gold und Aluminium (Abb. 7.1.1(a)) so sieht man, dass der Realteil bei Aluminium bei gleicher Wellenlänge wesentlich stärker negativ ist. Aus Gleichung 3.2.10 erkennt man, dass sich daher bei gleicher Geometrie eine deutlich kleinere Resonanzwellenlänge einstellt. In Abb. 7.1.1(b) wird der Imaginärteil von Gold und Aluminium verglichen und man sieht deutlich den jeweiligen Interbandabsorptionsübergang. Aluminium ist daher sehr gut für den hochfrequenten Anteil des sichtbaren Spektrums geeignet.

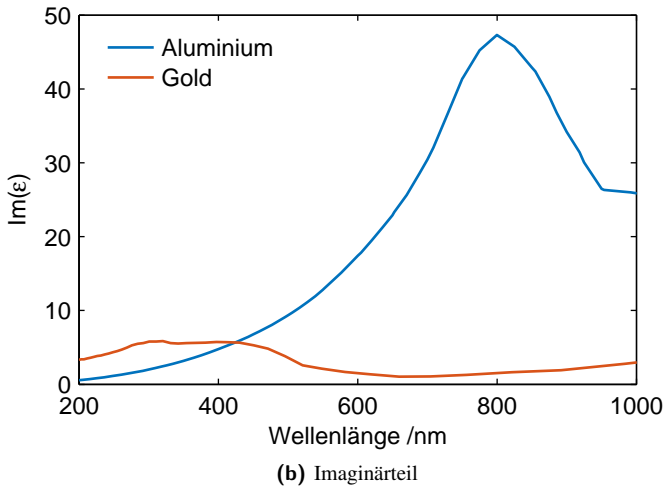
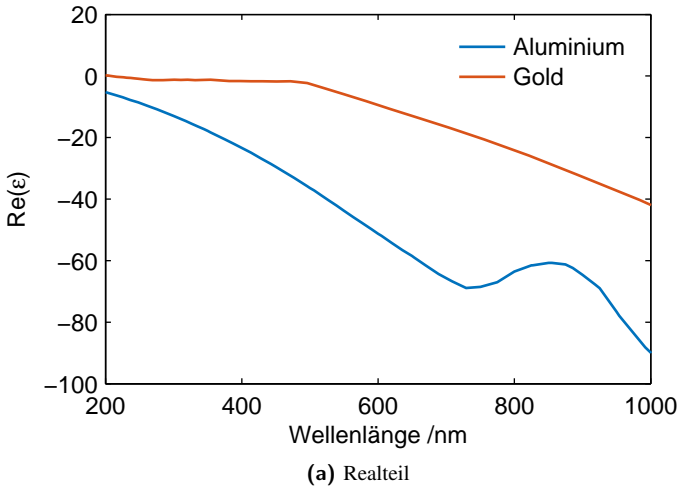


Abbildung 7.1.1.: Vergleich der Dispersionsrelationen von Aluminium [18] und Gold [17].

In Abb. 7.2.1 sind die Resonanzwellenlängen von Einarm- und Zweiarml-Aluminiumantennen dargestellt. Im Vergleich dazu sind die entsprechenden Resonanzwellenlängen für Goldantennen mit gleicher Geometrie deutlich größer.

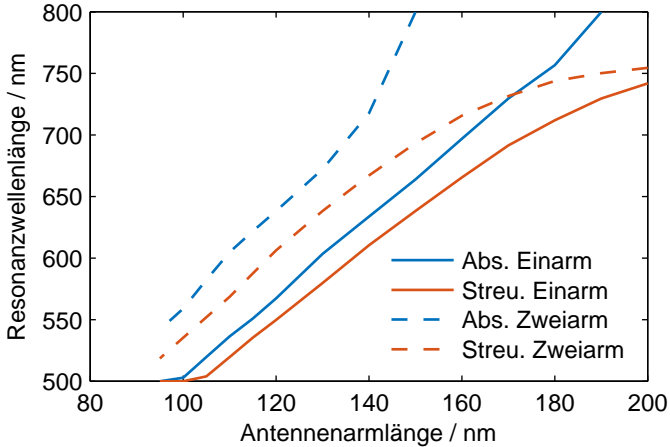


Abbildung 7.2.1.: Resonanzwellenlängen von Einarm- und Zweiarml-Aluminiumantennen.

Für kurze Antennenarme verschiebt sich die Resonanzwellenlänge wie auch bei Goldantennen linear mit der Armlänge zu längeren Wellenlängen. Kommt die Resonanzwellenlänge jedoch in die Nähe der Interbandabsorption, so wird diese Verschiebung deutlich schwächer und der Trend weicht von einem linearen Verhalten stark ab. Dieses Verhalten lässt sich gut an der dielektrischen Funktion von Aluminium erklären. In Kapitel 4.1 wurde die lineare Abhängigkeit der Resonanzwellenlänge von der Antennenarmlänge anhand der quasistatischen Approximation diskutiert. Die Resonanzwellenlänge wurde hierbei als Polstelle von Gleichung 3.2.10 aufgefasst. Daher ergibt sich die Resonanz näherungsweise für Wellenlängen, bei denen der Nenner minimal wird:

$$\min(\epsilon_{\text{Medium}} + L_1(\epsilon_{\text{Partikel}}(\omega) - \epsilon_{\text{Medium}})). \quad (7.2.1)$$

In einem Bereich, in dem der Betrag des Imaginärteils von $\epsilon_{\text{Partikel}}$ deutlich kleiner als der Betrag des Realteils ist und außerdem die Steigung des Imaginärteils in Abhängigkeit von der Wellenlänge kleiner als die Steigung des Realteils ist, kann die Resonanzwellenlänge durch null setzen des Realteils näherungsweise bestimmt werden:

$$\epsilon_{\text{Medium}} + L_1 (\text{Re}(\epsilon_{\text{Partikel}}(\omega)) - \epsilon_{\text{Medium}}) = 0. \quad (7.2.2)$$

Hier führt die lineare Steigung von $\text{Re}(\epsilon_{\text{Partikel}}(\omega))$ direkt zum linearen Skalieren der Resonanzwellenlänge.

In dem hier untersuchten Wellenlängenbereich gelten für Aluminium die oben erwähnten Einschränkungen jedoch nicht mehr. Daher gilt Gleichung 7.2.2 nicht mehr als Resonanzbedingung. Der Imaginärteil der dielektrischen Funktion ist hier so groß, dass er sich auf die Resonanzwellenlänge auswirkt und diese zum Stagnieren bringt. Darüber hinaus ist auch der Realteil der dielektrischen Funktion innerhalb des Interbandabsorptionsübergangs nicht mehr linear. Selbst bei vernachlässigbarem Imaginärteil würde hier keine kontinuierliche Rotverschiebung der Resonanzwellenlänge stattfinden. Diese beiden Ursachen führen zu dem beobachteten Stagnieren der Resonanzwellenlänge.

Neben der Resonanzwellenlänge sind auch das Verhalten der Amplituden und der Gütefaktoren der Spektren interessant. Beides kann man gut beobachten, wenn man sich die kompletten Spektren anschaut. Für Zweiarmanntennen sind die Absorptions- und Streuspektren in Abb. 7.2.2 gezeigt.

Die Resonanz ist bei Aluminiumantennen schwächer und wesentlich breitbandiger als bei Goldantennen entsprechender Volumina. Ursache hierfür ist der Imaginärteil der dielektrischen Funktion von Aluminium, der auch außerhalb des Interbandabsorptionsübergangs deutlich größer als der von Gold ist. Mit zunehmender Armlänge und somit zunehmender Resonanzwellenlänge in Richtung des Interbandabsorptionsmaximums bei ca. 800 nm nimmt vor allem der Streuquerschnitt nur sehr schwach zu. Das liegt daran, dass die starke Zunahme,

die man normalerweise aufgrund des Volumens erwarten würde (vgl. Gl. 3.2.8), durch die gleichzeitige Zunahme des Imaginärteils der dielektrischen Funktion (siehe Abb. 7.1.1) fast vollständig kompensiert wird. Sehr nahe beim Interbandabsorptionsübergangsmaximum nehmen die Maxima der beiden Querschnitte (Streuung und Absorption) im untersuchten Wellenlängenbereich sogar leicht ab. Dies beginnt dort, wo auch die Resonanzwellenlänge anfängt zu stagnieren. Da sich der große Imaginärteil der dielektrischen Funktion stärker negativ auf den Streuquerschnitt als auf den Absorptionsquerschnitt auswirkt, passiert dies hier früher.

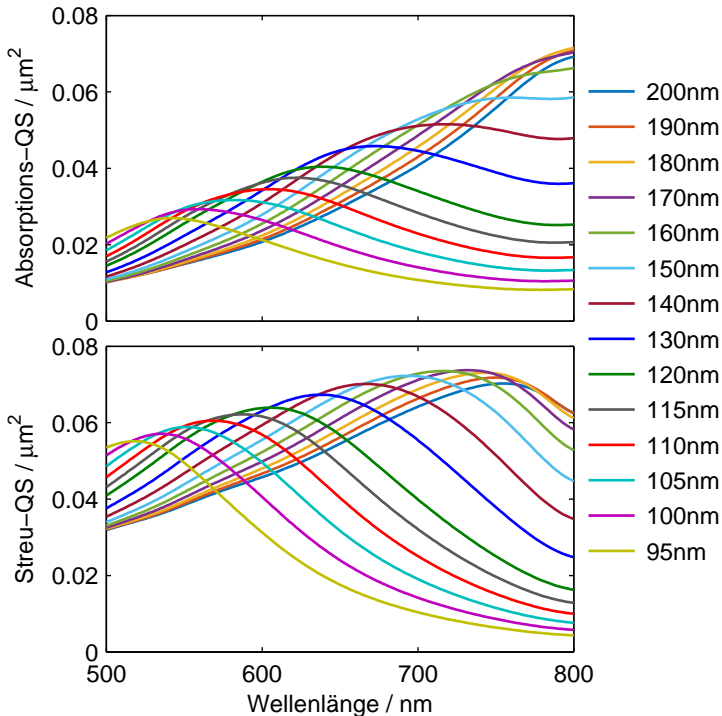


Abbildung 7.2.2.: Absorptions- und Streuquerschnitte von Zweiarm-Aluminiumantennen mit unterschiedlichen Armlängen.

7.3. Einfluss der Oxidschicht

Die oben erwähnte Oxidschicht hat entscheidende Einflüsse auf das Resonanzverhalten von Aluminiumantennen. Es wurden daher Simulationen mit einer Oxidschicht wie in Abb. 7.1.1 dargestellt durchgeführt.

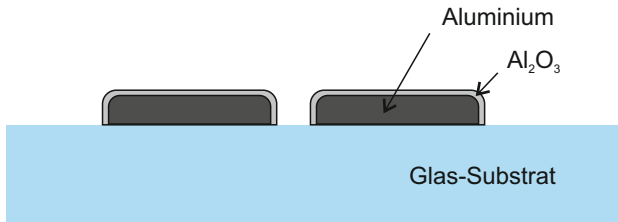


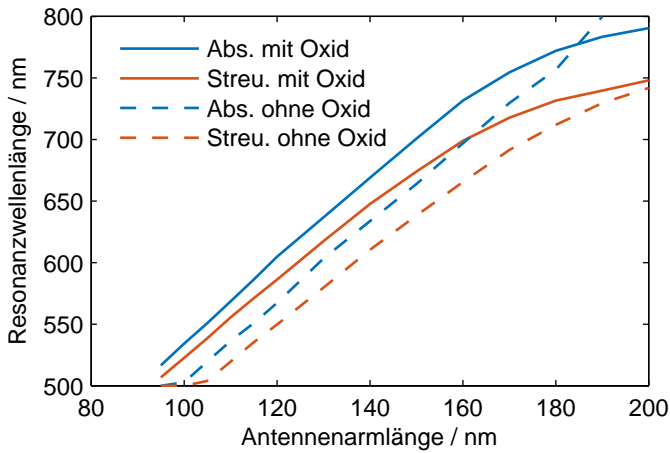
Abbildung 7.3.1.: Skizze von Aluminiumantennen mit Oxid.

Folgende Veränderungen treten aufgrund der Oxidschicht auf:

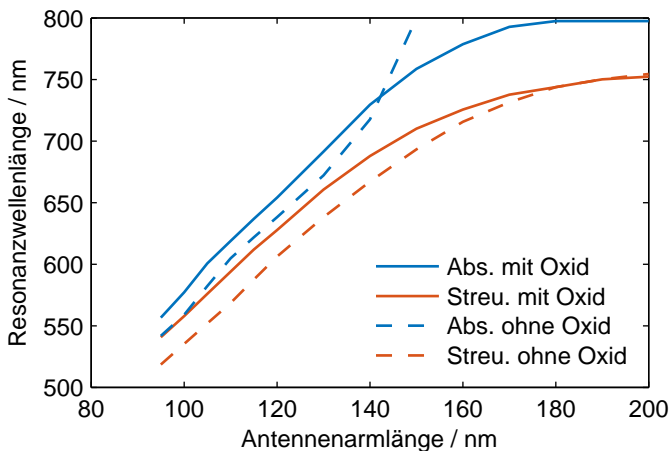
- die dielektrische Funktion der Umgebung ändert sich
- die effektive Antenne wird kürzer, schmaler und flacher
- der Antennenspalt wird größer.

Da all diese Ursachen die Antenneneigenschaften unterschiedlich beeinflussen, sind die Gesamtauswirkungen nicht direkt ersichtlich. In Abb. 7.3.2 sind nun die Resonanzwellenlängen von Aluminiumantennen mit und ohne Oxid verglichen. Man sieht eine deutliche Verschiebung für die Antennen mit Oxid.

Das qualitative Verhalten weicht vor allem nahe des Interbandabsorptionsmaximums stark ab. Abseits der Resonanz führt die Oxidschicht hier zu einer Rotverschiebung. In Ref. [188] wurden die Auswirkungen der einzelnen oben aufgelisteten Faktoren auf das Resonanzverhalten der Aluantennen detaillierter untersucht. Neben der Möglichkeit, den qualitativen Einfluss der Oxidschicht zu untersuchen, sind die Simulationen mit Oxidschicht auch wichtig um eine gute Vergleichbarkeit mit gemessenen Spektren zu erhalten.



(a) Einarmentennen



(b) Zweiarmentennen

Abbildung 7.3.2.: Resonanzwellenlängen von Aluantennen mit und ohne Aluminiumoxidschicht.

7.4. Vergleich mit Experimenten

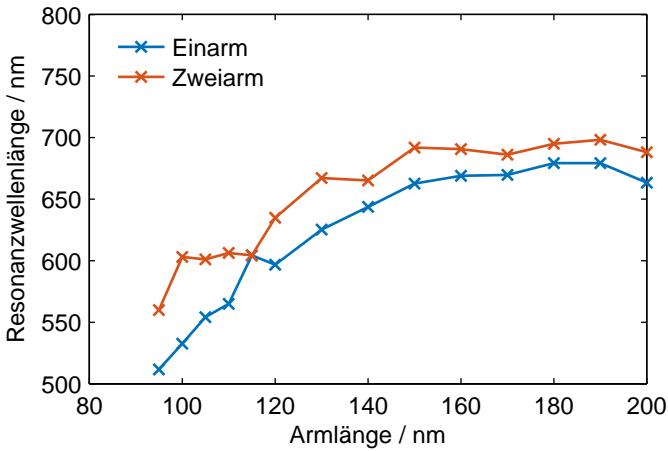
Die Streuspektren von Aluminiumantennen mit Oxid wurden nun mit experimentellen Dunkelfeldstreuungsspektren sowie den Emissionsspektren der zweiphotoneninduzierter Lumineszenz verglichen. Die Herstellung sowie Vermessung aller Aluantennen wurde von Patrick Schwab durchgeführt. Abb. 7.4.1 zeigt die Spektren aus Dunkelfeldmessung und Simulationen mit einer Oxidschicht im Vergleich.

Man sieht sowohl im Experiment als auch in den Simulationen deutlich, wie die Resonanzwellenlänge sich mit zunehmender Armlänge immer weniger zu längeren Wellenlängen verschiebt und schließlich stagniert. Man kann erkennen, dass die experimentellen Kurven für lange Armlängen bei etwas kürzeren Resonanzwellenlängen liegen als dies in den Simulationen der Fall ist. Ursache hierfür ist wahrscheinlich, dass das stagnierende Verhalten sehr empfindlich von der exakten dielektrischen Funktion nahe des Interbandabsorptionsübergangs abhängt. Es ist anzunehmen, dass die genaue dielektrische Funktion des verwendeten Aluminiums leicht von den für die Simulation verwendeten Literaturwerten abweicht.

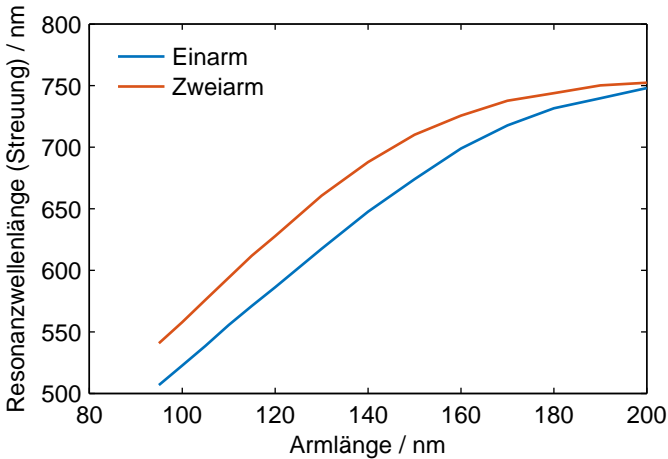
Für zweiphotoneninduzierte Lumineszenzmessungen wurde, im Gegensatz zu den Dunkelfeldmessungen, im vermessenen Wellenlängenbereich kein Stagnieren der Resonanzwellenlänge beobachtet [187]. Eine mögliche Erklärung ist hierbei, dass die Resonanzwellenlänge bei den Dunkelfeldmessungen eher den Resonanzwellenlängen aus den berechneten Streuspektren folgt, während die zweiphotoneninduzierte Lumineszenzmessung zu Resonanzwellenlängen entsprechend den Absorptionsspektren führt. Wie man in Abb. 7.3.2 sieht, setzt das Abweichen vom linearen Verhalten der Resonanzwellenlänge bei der Absorption erst für längere Wellenlängen ein und kann somit außerhalb des experimentell beobachteten Wellenlängenbereich liegen.

Sowohl im Experiment als auch in den Simulationen konnte aber gezeigt werden, dass die Oxidschicht das Verhalten der Nanoantennen zwar stark beeinflusst,

sich aber nicht entscheidend negativ auswirkt. Daher ist Aluminium trotz der Oxidation ein sehr gut geeignetes Material für optische Antennen.



(a) Experimentelle Dunkelfeldmessung



(b) Simulationen mit Oxid

Abbildung 7.4.1.: Vergleich der Resonanzwellenlängen von Aluminiumantennen aus experimentellen Dunkelfeldmessungen (durchgeführt von Patrick Schwab) mit Simulationen mit Oxid.

7.5. Zusammenfassung

Es wurde gezeigt, dass Aluminium ein attraktives Alternativmaterial für Nanoantennen darstellt, mit dem – im Gegensatz zu Gold – auch der Bereich kürzerer Wellenlängen des sichtbaren Spektrums abgedeckt werden kann. Darüber hinaus können, bei identischer Resonanzwellenlänge, die Nanoantennen aus Aluminium deutlich größer gebaut werden als aus Gold, was wiederum die Herstellung etwas vereinfacht. Da Aluminium an Luft eine Oxidschicht ausbildet, wurde diese auch in den Simulationen mit berücksichtigt und ihr Einfluss untersucht. Es zeigte sich, dass diese Oxidschicht einen entscheidenden Einfluss auf das optische Verhalten der Antennen hat. Insbesondere wurde gezeigt, dass die Oxidschicht auch die Resonanzwellenlänge der Nanoantennen signifikant beeinflusst. Die Simulationen halfen auch das Verhalten von Aluminiumantennen im Bereich des Interbandabsorptionsübergangs nahe 800 nm besser zu verstehen. Es konnte erklärt werden, warum die Resonanzwellenlänge bei Dunkelfeldmessungen in diesem Bereich nicht mehr linear mit der Antennenarmlänge zusammenhängt sondern stagniert. Eine gute Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment konnte gezeigt werden.

8. Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurde das Verhalten von Nanoantennen simulativ sowohl untersucht als auch optimiert. Die vorliegende Arbeit leistet nicht nur einen Beitrag dazu, bestehende, weit verbreitete Nanoantennengeometrien besser zu verstehen, sondern ermöglicht auch neuartige Nanoantennenkonzepte sowie ein Verfahren, mittels Simulationen experimentelle Ergebnisse besser nachvollziehen zu können.

Zunächst wurde gezeigt, dass das Verhalten von gekoppelten Nanodipolantennen durch eine schrittweise Analyse intuitiv verstanden werden kann und die Strukturen daher mittels Variation von sehr einfachen Parametern optimal an die unterschiedlichen Herausforderungen verschiedener Anwendungen angepasst werden können. Gekoppelte Dipolantennen wurden zwar in einer sehr großen Anzahl an bisherigen Arbeiten untersucht und verwendet, aber nur selten wurde versucht, ihr Skalierungsverhalten auf möglichst einfache Gesetzmäßigkeiten zurückzuführen. Dies ist im Rahmen dieser Dissertation gelungen. Durch die vorliegende Schritt-für-Schritt-Analyse kann nicht nur das Skalieren der Resonanzwellenlänge, sondern auch die Stärke der Resonanz sowie die spektrale Breite besser verstanden und somit leichter optimiert werden. Abhängig von der jeweiligen Anwendung wird eine Nanoantenne mit möglichst hoher Streuung, möglichst hoher Absorption oder möglichst viel Feldverstärkung benötigt. Mit der vorliegenden Untersuchung ist es nun möglich zu verstehen, welche Parameter für die entsprechende Gewichtung verantwortlich sind und wie diese entsprechend optimal angepasst werden können.

Darüber hinaus wurde eine Antennenstruktur entwickelt, die für Anwendungen mit zwei Resonanzfrequenzen optimiert ist. Sie zeigt ein bimodales Resonanzverhalten und hat optimale Eigenschaften für die Koppelung mit Quantenemittern. Die Koppelung mit Quantenemittern ist eine der häufigsten Anwendungen von Nanoantennen generell. Hierbei treten durch die Stokes-Verschiebung stets unterschiedliche Frequenzen für Absorption und Emission auf. Auch andere Anwendungen profitieren von Antennen mit zwei Resonanzfrequenzen. Durch die „T“-förmige Antennengeometrie können beide Resonanzen unabhängig voneinander eingestellt werden und zusätzlich über den Polarisationswinkel getrennt werden. Die Kopplung von zwei „T“-Strukturen über einen Nanospalt ermöglicht weiterhin die Vorteile von Nanospalt-Antennen vollständig zu nutzen. Die numerischen Simulationen konnten helfen das Verhalten dieser neuartigen Struktur zu verstehen und zu optimieren.

Des Weiteren wurde untersucht, wie herstellungsbedingte Abweichungen der Geometrien das Verhalten der Nanoantennen beeinflussen. Die gefundenen Abweichungen sind so stark, dass sie berücksichtigt werden müssen, um quantitativ genaue Vorhersagen zu treffen. Sie betreffen sowohl die exakte Form (Abweichung von Quadergeometrie) als auch die Abweichung in Geometrieparametern (Höhe, Breite, Länge etc.). Die Auswirkungen auf das Verhalten der Nanoantennen sind so individuell, dass es nicht möglich ist entsprechende effektive Abweichungsparameter einzuführen. Es wurde ein Verfahren vorgestellt, wie die realen Antennengeometrien aus Rasterelektronenmikroskopbildern extrahiert und in die Simulationen integriert werden können. Je nach Anzahl der zu untersuchenden Strukturen ist hierfür ein automatisiertes oder manuelles Verfahren ideal.

Numerische Simulationen sind wichtige Werkzeug, die Nanoantennen auch auf ihrem zukünftigen Weg bis hin zum kommerziellen Einsatz in hoher Stückzahl begleiten werden. Wie auch in dieser Arbeit gezeigt wurde ist der Grund hierfür nicht nur, dass Nanoantennen zu klein sind um sie mit bloßem Auge zu untersuchen. Numerischen Simulationen sind auch wichtig, um das komplexe Zusammenspiel von exakter Geometrie und den genauen dielektrischen Funktionen, das eine simple, intuitive Abschätzung schwierig macht, zu erklären.

Numerische Methoden können helfen, (i) die vielen unterschiedlichen Effekte zu trennen und einzeln zu untersuchen, (ii) gemessene Beobachtungen nachzuvollziehen und zu erklären und (iii) Vorhersagen zu treffen und optimierte Strukturen zu identifizieren. Alle drei Ansätze wurden hier erfolgreich umgesetzt. Der Schlüssel, um das komplette Spektrum der Möglichkeiten, die Nanoantennenstrukturen bieten, auszuschöpfen, liegt darin, sich nicht darauf zu beschränken, die bestehenden Konzepte aus den Bereichen Antennentechnologie und Streupartikel zu übertragen, sondern nach Synergien und neuartigen Ansätzen zu suchen. Geschieht dies, so eröffnen sich neue Möglichkeiten der Kontrolle über Licht-Materie-Interaktionen.

Neben der fundamentalen, durch Simulationen unterstützten Weiterentwicklung von Nanoantennen ist es vor allem wichtig, Herstellungsmethoden für günstige Massenproduktion zu entwickeln und zu optimieren, um Nanoantennen auch über Nischenanwendungen hinaus einsatzfähig zu machen.

Während Nanoantennen bereits erfolgreich für hochauflösende Mikroskopie und Spektroskopieanwendungen eingesetzt werden, wird der nächste Schritt der Einsatz als Koppellement in lichtemittierenden Dioden, optischen Sensoren und Solarzellen sein. Hierbei handelt es sich um bestehende, etablierte Technologien, die von den Vorteilen der Nanoantennen profitieren können. Darüber hinaus spielen Nanoantennen aber auch Schlüsselrollen in der Entwicklung neuartiger Technologien. Zum einen bieten sogenannte „Nano-Rectennas“, in denen Sonnenlicht direkt gleichgerichtet wird, ein hohes Potential als Alternative zu herkömmlichen, halbleiterbasierten Solarzellen. Zum anderen wird das ganze Feld der Quantencomputer sowie der Quantenkryptographie in entscheidendem Maße von einem effizienten Koppellement, welches Nanoantennen darstellen, abhängen. Neben diesen großen Anwendungsbereichen werden Nanoantennen auch in einer Vielzahl von kleineren Anwendungen eingesetzt, nämlich immer dann, wenn Systeme normalerweise durch das Diffraktionslimit beschränkt sind.

Die vielfältigen Einsatzmöglichkeiten von Nanoantennen, die Fortschritte in der Herstellung von Nanostrukturen zusammen mit der immer wichtigeren Rolle, welche optische Technologien in technischen Anwendungen spielen, all dies zeigt,

dass Nanoantennen in Zukunft eine weite Verbreitung finden werden – auch wenn es sich dabei nicht um das nanometerskalige Pendant zu Radioantennen handeln wird.

A. Anhang

A.1. Vergleich der Berechnung einer Kugel nach Mie und der FDTD-Methode

In Abb. A.1.1 ist der Streuquerschnitt einer Goldkugel (Durchmesser: 80 nm) in Abhängigkeit der Wellenlänge gezeigt. Es zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung zwischen numerischer FDTD-Simulation und analytischer Berechnung nach Mie.

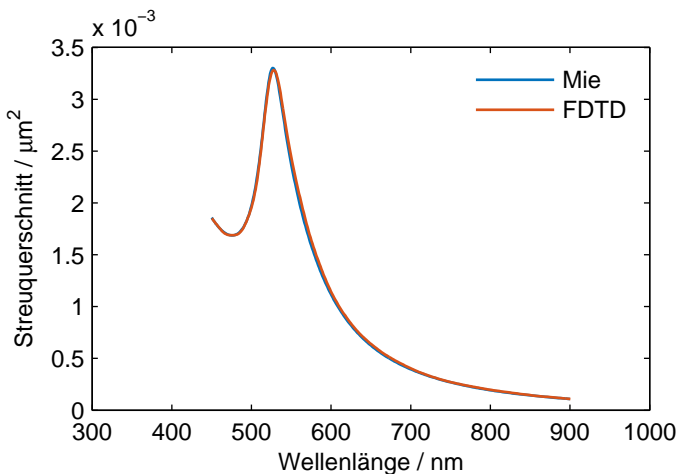


Abbildung A.1.1.: Vergleich des Streuquerschnitts einer Kugel mit 80 nm Durchmesser analytisch nach Mie berechnet und mittels FDTD-Simulationen.

A.2. Verwendete dielektrische Funktion für ITO

In den Simulationen in dieser Arbeit wurde frequenzabhängige Werte für die dielektrische Funktion bzw. den komplexen Brechungsindex von Indiumzinnoxid verwendet. Diese wurden am Lichttechnischen Institut experimentell mittels Ellipsometriemessungen ermittelt. Die entsprechenden Werte für den komplexen Brechungsindex sind in Abb. A.2.1 dargestellt.

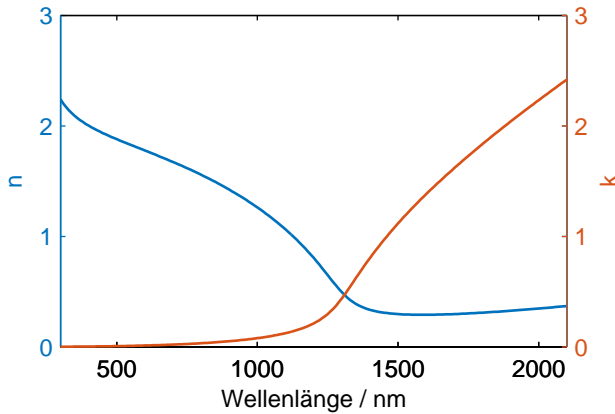


Abbildung A.2.1.: Komplexer Brechungsindex von ITO (aus Ellipsometriemessungen am LTI [198]).

A.3. Parameter der extrahierten Geometrien für Simulationen mit realistischen Dimensionen

In Kapitel 6 wurden real vermessene Nanoantennen verwendet um die Abweichungen der entsprechenden Geometrieparameter auf die optischen Simulationsergebnisse zu bestimmen. Hierbei wurden auch die tatsächlich hergestellten Geometrieparameter Armlänge, Armbreite und Spaltweite gemessen und zu den nominellen Werten in Beziehung gesetzt (siehe Tabelle A.3.1). Aus diesen Werten wurde nun eine weitere Gruppe an Simulationsmodellen erstellt, bei der die vermessenen Geometrieparameter verwendet wurden, die untersuchte Struktur aber weiterhin quaderförmig blieb.

Ideal / nm	1. Arm Real / nm	1. Arm %	2. Arm Real / nm	2. Arm %
30	34,12	113,73%	35,58	118,61%
35	41,08	117,37%	34,06	97,33%
40	40,11	100,28%	38,53	96,33%
45	40,90	90,89%	39,48	87,74%
50	45,80	91,60%	42,31	84,62%
55	50,87	92,49%	51,89	94,34%
60	60,45	100,75%	74,97	124,95%
65	69,20	106,46%	68,93	106,05%
70	74,23	106,04%	74,08	105,83%

(a) Armlänge

Armlänge ideal / nm	1. Arm Breite real / nm	1. Arm Breite %	2. Arm Breite real / nm	2. Arm Breite %
30	25,48	127,40%	25,63	128,15%
35	26,06	130,30%	23,05	115,25%
40	24,83	124,15%	24,56	122,80%
45	24,58	122,90%	23,30	116,50%
50	24,97	124,85%	25,52	127,60%
55	23,46	117,30%	21,77	108,83%
60	23,79	118,95%	22,04	110,21%
65	28,20	141,00%	22,85	114,24%
70	34,53	172,65%	31,58	157,90%

(b) Armbreite (ideal 20 nm)

Armlänge ideal / nm	Spalt real / nm	Spalt %
30	17,67	88,35%
35	16,43	82,14%
40	17,44	87,19%
45	22,32	111,59%
50	20,82	104,10%
55	20,84	104,21%
60	5,19	25,93%
65	14,21	71,04%
70	15,44	77,21%

(c) Spaltweite (ideal 20 nm)

Tabelle A.3.1.: Absolute und relative Abweichungen in den fundamentalen Geometrieparametern der vermessenen Antennenstrukturen.

Abkürzungen und Symbole

Abkürzungen

Abkürzung	vollständiger Name
AFM	Rasterkraftmikroskopie (engl. Atomic Force Microscopy)
BEM	Randelementmethode (engl. Boundary Element Method)
DDA	diskrete Dipolapproximation
DGL	Differentialgleichung
FDTD	Finite-Differenzen-Methode (engl. Finite-Difference Time-Domain Method)
FEM	Finite-Elemente-Methode
FWHM	Halbwertsbreite (engl. Full Width at Half Maximum)
HF	Hochfrequenz
ITO	Indiumzinnoxid (engl. Indium Tin Oxide)
LGS	lineares Gleichungssystem
MMP	Mehrfach-Multipol Methode
PML	perfekt absorbierende Schichten (engl. Pefectly Matched Layers)
Q-Faktor	Gütefaktor (engl. Quality Factor)
QS	Querschnitt
REM	Rasterelektronenmikroskopie
SERS	oberflächenverstärkte Ramanstreuung (engl. Surface Enhanced Raman Scattering)
SPP	propagierendes Oberflächenplasmon (engl. Surface Plasmon Polariton)
TFSF	„Total-Field Scattered-Field“-Quelle (Quelle, die gesamtes und gestreutes Feld trennt)
TPL	zweiphotoneninduzierte Lumineszenz (engl. Two Photon induced Luminescence)

Symbole

Symbol	Bedeutung
a	Kugelradius
b	Basislänge
\vec{B}	magnetische Flussdichte
c	Lichtgeschwindigkeit
C_{Abs}	Absorptionsquerschnitt
C_{Ext}	Extinktionsquerschnitt
C_{Streu}	Streuquerschnitt
d	Breite Antennenspalt
\vec{D}	elektrische Flussdichte
e	Elementarladung
e_i	Koeffizienten der Basisfunktionen (FEM)
\vec{E}	elektrische Feldstärke
f	Frequenz
\vec{F}	Feldstärke (elektrische \vec{E} oder magnetische \vec{H})
$FWHM$	Halbwertsbreite (engl. Full Width at Half Maximum)
h	Antennenhöhe
\hbar	reduziertes Plancksches Wirkungsquantum
\vec{H}	magnetische Feldstärke
i	imaginäre Einheit
I	Intensität
\vec{j}	Stromdichte
\vec{k}	Wellenvektor
k	Betrag des Wellenvektors (Wellenzahl)
l	Antennenarmlänge
$L_{1,2,3}$	Geometriefaktor
m	Elektronenmasse
m_{eff}	effektive Elektronenmasse
\vec{M}	Magnetisierung
\tilde{m}	komplexer relativer Brechungsindex

N	Teilchendichte
n	Realteil des Brechungsindex
$n_{1,2}$	Faktoren
\vec{n}	nach außen zeigender Normalenvektor
\tilde{n}	komplexer Brechungsindex
P	Leistung
\vec{P}	Polarisation
p	Basisposition
\vec{p}	Dipolmoment
Q	Gütefaktor
dR	infin. Intervall des Rand des Simulationsvolumens
r	Entfernung; Ort
S	Hüllfläche
\vec{S}	Poynting-Vektor
t	Toplänge; Zeit
U	gespeicherte Energie; Funktionsraum der Lösungen
dV	infin. Intervall des Simulationsvolumen
W	Funktionsraum der Testfunktionen
w	Antennenbreite
x	Größenparameter, Raumrichtung
y	Raumrichtung
z	Raumrichtung
α	Polarisierbarkeit
ϵ_0	elektrische Feldkonstante
$\epsilon_r = \epsilon_r' + i\epsilon_r''$	komplexe dielektrische Funktion
γ	Dämpfung
κ	Imaginärteil des Brechungsindex
λ	Wellenlänge
λ_p	Plasmawellenlänge
μ_0	magnetische Feldkonstante
μ_r	relative Permeabilität
ρ	Ladungsträgerdichte
$\tilde{\sigma} = \sigma' + i\sigma''$	komplexe elektrische Hochfrequenzleitfähigkeit

σ^*	magnetische Leitfähigkeit
Φ	elektrostatishes Potential
ϕ	Testfunktion
Ω	Simulationsvolumen
ω	Kreisfrequenz
ω_p	Plasmakreisfrequenz

Abbildungsverzeichnis

2.2.1	Ersatzschaltbild einer Antenne	13
2.2.2	Klassische Hochfrequenzdipolantenne mit Übertragungsleitung .	14
2.3.1	Propagierende Oberflächenplasmonen	21
2.3.2	Schematisches Verhalten eines resonanten Partikelplasmons . . .	22
2.3.3	Elektrische und magnetische Felder in einem Streuproblem . . .	24
2.3.4	Schematische Darstellung des Absorptionsquerschnitts	26
2.4.1	Ladungsträgerdichteoszillation auf einer Nanoantenne	28
2.4.2	Schematische Darstellung der Plasmonenhybridisierung	33
2.4.3	Herstellungsprozess von Nanoantennen	35
3.3.1	Yee-Gitter	51
3.3.2	Skizze der Simulationsumgebung in Lumerical	55
3.3.3	Schritte einer Simulation nach der Finite-Elemente-Methode . . .	59
3.4.1	Schematische Skizze von Einarm- und Zweiarmanntennen in Luft	65
3.4.2	Skizze einer Zweiarmanntenne auf einem ITO-beschichteten Glas- substrat	67
3.5.1	Dielektrische Funktion von Gold	70
3.5.2	Dielektrische Funktion von Aluminium	70
3.6.1	Absorptions-, Streu- und Extinktionsquerschnitt einer Zweiarman- antenne	72
3.6.2	Nahfeldverstärkung (quadriert) in der Mitte des Antennenspalts .	73
3.6.3	Räumliche Verteilung der Nahfeldverstärkung	74
3.6.4	Räumliche Verteilung der Stromdichte	75

4.0.1	Schematische Skizze der in den Simulationen verwendeten Geometrien	79
4.1.1	Mie-Streuung an Goldkugeln	82
4.1.2	Streuquerschnitt von Kugeln in der quasistatischen Näherung . .	83
4.1.3	Streuquerschnitte von Würfeln mit unterschiedlichen Kantenlängen	85
4.1.4	Quasistatische Näherung: Resonanzwellenlänge von Rotationsellipsen in Abhängigkeit von der Länge der langen Achse $2a_1$. . .	87
4.1.5	Resonanzwellenlänge von Einarmanten in Abhängigkeit der Länge	88
4.1.6	Streu- und Absorptionsquerschnitt von Nanoquadern in Abhängigkeit der Länge	91
4.1.7	Q-Faktor von Gold-Rotationsellipsen mit unterschiedlichen langen und kurzen Achsenlängen	91
4.1.8	Normierte Absorptions- und Streuquerschnitte von Rotationsellipsen mit unterschiedlichen langen und kurzen Achsenlängen . .	92
4.1.9	Normierte Streu- und Absorptionsquerschnitte und Q-Faktoren von Nanoquadern und Ellipsoiden	94
4.1.10	Quasistatische Näherung: Resonanzwellenlänge von Rotationsellipsen in Abhängigkeit der Länge der kurzen Achse	97
4.1.11	Quasistatische Näherung: Streu- und Absorptionsquerschnitte von Rotationsellipsen in Abhängigkeit der Länge der kurzen Achse .	98
4.1.12	Resonanzwellenlänge von Nanoquadern in Abhängigkeit der Breite und Höhe	100
4.1.13	Streu- und Absorptionsquerschnitt von Nanoquadern in Abhängigkeit der Breite und Höhe	101
4.1.14	Q-Faktor von Nanoquadern in Abhängigkeit der Breite und Höhe	102
4.2.1	Resonanzwellenlänge von Zweiarmentennen in Abhängigkeit der Spaltbreite	105
4.2.2	Streu- und Absorptionsquerschnitt von Zweiarmentennen in Abhängigkeit der Spaltbreite und Antennenlänge	106
4.2.3	Nahfeldverstärkung in Resonanz in Abhängigkeit der Spaltbreite und Antennenlänge	107
4.2.4	Q-Faktoren von Zweiarmentennen in Abhängigkeit der Spaltbreite	108

4.2.5	Resonanzwellenlänge von gekoppelten Nanoantennen in Abhängigkeit der Armlänge	109
4.3.1	Resonanzwellenlänge in Abhängigkeit des Brechungsindex der Umgebung	112
4.3.2	Streuquerschnitte von gekoppelten Zweiarmentennen auf ITO-Glas Substrat	113
4.5.1	Streuquerschnitt bei Queranregung von Nanoantennen	117
4.5.2	Gemessene Spektren bei Queranregung	119
5.2.1	Schematische Skizze einer gekoppelten T-Antenne	127
5.2.2	Nahfeldverstärkung und Stromdichteverteilung einer gekoppelten T-Antenne	130
5.2.3	Nahfeldverstärkung und Nahfeldpolarisationsrichtung einer gekoppelten T-Antenne	131
5.2.4	Winkelabhängigkeit des Streuquerschnitts einer gekoppelten T-Antenne	132
5.2.5	Resonanzwellenlänge und maximaler Streuquerschnitt bei Topvariation	135
5.2.6	Top-Mode und Basismode bei Basislängenvariation	137
5.2.7	Resonanzwellenlängen von Strukturen mit und ohne abgeschrägten Innenkanten im Vergleich zu Messungen	138
5.2.8	REM-Aufnahmen von T-Antennen	139
5.2.9	Nahfeldverstärkung von gekoppelten T-Antennen mit abgeschrägten Innenkanten	140
5.3.1	Schematische Skizzen für einzelne T-Antennen	141
5.3.2	Streuspektren von einzelnen T-Antennen für unterschiedliche Basispositionen	142
5.3.3	Stromdichteverteilung bei den beiden Resonanzen einer bimodalen Einarmstruktur mit verschobener Basis	144
5.3.4	Resonanzwellenlänge in Abhängigkeit der Basisposition bei einzelnen T-Antennen	145
5.3.5	Resonanzwinkel in Abhängigkeit der Basisposition bei einzelnen T-Antennen	146

5.4.1	Schematische Zusammenfassung der hier untersuchten Einflüsse in gekoppelten T-Antennen	148
5.4.2	Resonanzwinkel und -wellenlänge in Abhängigkeit der Kopplung von T-Antennen	150
5.4.3	Resonanzwellenlänge in Abhängigkeit der Basisposition bei gekoppelten T-Antennen	152
5.4.4	Maximaler Streuquerschnitt in Abhängigkeit der Basisposition bei gekoppelten T-Antennen	153
6.2.1	AFM-Bild und REM-Aufnahme einer Nanoantenne	159
6.3.1	REM-Aufnahmen mit manuell extrahierter Kontur	161
6.3.2	Schrittweises automatisiertes extrahieren der Kontur aus REM-Aufnahmen mittels Bildverarbeitungsmethoden	162
6.3.3	REM-Bilder mit automatisiert extrahierter Kontur	163
6.4.1	3D-Modell einer realen Antennenstruktur	164
6.4.2	Übersicht über die drei Gruppen an Simulationen, die in dieser Untersuchung verglichen wurden	165
6.5.1	Vergleich Streu- und Absorptionsquerschnitte: FEM und FDTD .	166
6.5.2	Nahfeldverteilung einer Antenne mit (a) idealen Dimensionen und (b) einer mit realer Kontur	168
6.5.3	Ideale Geometrien, reale Dimensionen und reale Konturen: Resonanzwellenlänge für die neun Antennenstrukturen mit unterschiedlichen nominellen Armlängen	170
6.5.4	Ideale Geometrien, reale Dimensionen und reale Konturen: Streu- und Absorptionsquerschnitt für die neun Antennenstrukturen mit unterschiedlichen nominellen Armlängen.	171
7.1.1	Vergleich der Dispersionsrelationen von Aluminium und Gold. .	176
7.2.1	Resonanzwellenlängen von Einarm- und Zweiarml-Aluminiumantennen	177
7.2.2	Absorptions- und Streuquerschnitte von Zweiarml-Aluminiumantennen	179
7.3.1	Skizze von Aluminiumantennen mit Oxid	180

7.3.2	Resonanzwellenlängen von Aluantennen mit und ohne Aluminiumoxidschicht	181
7.4.1	Vergleich der Resonanzwellenlängen von Aluminiumantennen aus experimentellen Dunkelfeldmessungen mit Simulationen mit Oxid	184
A.1.1	Vergleich des Streuquerschnitts einer Kugel mit 80 nm Durchmesser analytisch nach Mie berechnet und mittels FDTD-Simulationen	191
A.2.1	Komplexer Brechungsindex von ITO	192

Tabellenverzeichnis

3.3.1	Parameter der Simulationsumgebung für Simulationen mit Lumerical	55
3.3.2	Simulationsnetz für Simulationen mit Lumerical	57
3.3.3	Weitere Simulationsparameter Lumerical	58
3.3.4	Simulationsumgebung für Simulationen mit COMSOL	63
3.3.5	Netz-Parameter für Simulationen mit COMSOL	64
3.4.1	Ausgangsparameter der Antennengeometrie für Simulationen mit der FDTD-Methode und der FEM	66
A.3.1	Absolute und relative Abweichungen der vermessenen Antennenstrukturen	194

Literaturverzeichnis

- [1] J. Jackson, *Classical Electrodynamics*. Wiley, 1975.
- [2] R. Feynman, R. Leighton, and M. Sands, *The Feynman Lectures on Physics*, vol. 1. Boston: Addison-Wesley, second ed., 1963.
- [3] M. Dressel and G. Grüner, *Electromagnetics of Solids - Optical Properties of Electrons in Matter*. Cambridge University Press, 2002.
- [4] J. Kraus and R. Marhefka, *Antennas For All Applications*. McGraw-Hill, 2002.
- [5] C. A. Balanis, *Antenna Theory: Analysis and Design*. Wiley-Interscience, 2005.
- [6] W. Stutzman and G. Thiele, *Antenna Theory and Design*. Wiley, 2012.
- [7] J. A. Stratton and L. J. Chu, “Diffraction theory of electromagnetic waves,” *Phys. Rev.*, vol. 56, pp. 99–107, 1939.
- [8] A. F. Koenderink, A. Alù, and A. Polman, “Nanophotonics: Shrinking light-based technology,” *Science*, vol. 348, no. 6234, pp. 516–521, 2015.
- [9] H. A. Atwater, “The promise of plasmonics,” *Sci. Am.*, vol. 296, no. 4, pp. 56–62, 2007.
- [10] M. L. Brongersma and V. M. Shalaev, “The case for plasmonics,” *Science*, vol. 328, no. 5977, pp. 440–441, 2010.
- [11] S. Enoch and N. Bonod, *Plasmonics: From Basics to Advanced Topics*. Springer Series in Optical Sciences, Springer Berlin Heidelberg, 2012.

- [12] E. Ozbay, “Plasmonics: Merging photonics and electronics at nanoscale dimensions,” *Science*, vol. 311, no. 5758, pp. 189–193, 2006.
- [13] H. A. Atwater and A. Polman, “Plasmonics for improved photovoltaic devices,” *Nat. Mater.*, vol. 9, no. 3, pp. 205–213, 2010.
- [14] S. Lal, S. Link, and N. J. Halas, “Nano-optics from sensing to waveguiding,” *Nature Photon.*, vol. 1, no. 11, pp. 641–648, 2007.
- [15] M. Kauranen and A. V. Zayats, “Nonlinear plasmonics,” *Nature Photon.*, vol. 6, no. 11, pp. 737–748, 2012.
- [16] L. Novotny and B. Hecht, *Principles of Nano-Optics*. Cambridge University Press, 2006.
- [17] P. B. Johnson and R. W. Christy, “Optical constants of noble metals,” *Phys. Rev. B*, vol. 6, no. 12, pp. 4370–4379, 1972.
- [18] E. D. Palik, *Handbook of optical constants of solids*, vol. 3. Academic press, 1998.
- [19] H. Raether, *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings*. No. 111 in Springer Tracts in Modern Physics, Springer, 1988.
- [20] S. A. Maier and H. A. Atwater, “Plasmonics: Localization and guiding of electromagnetic energy in metal/dielectric structures,” *J. Appl. Phys.*, vol. 98, no. 1, p. 011101, 2005.
- [21] W. L. Barnes, A. Dereux, and T. W. Ebbesen, “Surface plasmon subwavelength optics,” *Nature*, vol. 424, no. 6950, pp. 824–830, 2003.
- [22] A. V. Zayats, I. I. Smolyaninov, and A. A. Maradudin, “Nano-optics of surface plasmon polaritons,” *Phys. Rep.*, vol. 408, no. 3-4, pp. 131–314, 2005.
- [23] K. L. Kelly, E. Coronado, L. L. Zhao, and G. C. Schatz, “The optical properties of metal nanoparticles: The influence of size, shape, and dielectric environment,” *J. Phys. Chem. B*, vol. 107, no. 3, pp. 668–677, 2003.

- [24] J. A. Schuller, E. S. Barnard, W. Cai, Y. C. Jun, J. S. White, and M. L. Brongersma, “Plasmonics for extreme light concentration and manipulation,” *Nat. Mater.*, vol. 9, no. 3, pp. 193–204, 2010.
- [25] M. Pelton, J. Aizpurua, and G. Bryant, “Metal-nanoparticle plasmonics,” *Laser Photon. Rev.*, vol. 2, no. 3, pp. 136–159, 2008.
- [26] H. Hulst and H. van de Hulst, *Light Scattering by Small Particles*. Dover Books on Physics, Dover Publications, 1957.
- [27] C. F. Bohren and D. Huffman, *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. Wiley, 1983.
- [28] F. Kahnert, “Numerical methods in electromagnetic scattering theory,” *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, vol. 79-80, pp. 775–824, 2003.
- [29] C. F. Bohren, “How can a particle absorb more than the light incident on it?,” *Am. J. Phys.*, vol. 51, no. 4, pp. 323–327, 1983.
- [30] D. K. Gramotnev and S. I. Bozhevolnyi, “Plasmonics beyond the diffraction limit,” *Nat. Photon.*, vol. 4, no. 2, pp. 83–91, 2010.
- [31] P. Mühlischlegel, H.-J. Eisler, O. J. F. Martin, B. Hecht, and D. W. Pohl, “Resonant optical antennas,” *Science*, vol. 308, no. 5728, pp. 1607–1609, 2005.
- [32] P. Bharadwaj, B. Deutsch, and L. Novotny, “Optical antennas,” *Adv. Opt. Photon.*, vol. 1, no. 3, pp. 438–483, 2009.
- [33] L. Novotny and N. van Hulst, “Antennas for light,” *Nature Photon.*, vol. 5, no. 2, pp. 83–90, 2011.
- [34] V. Giannini, A. I. Fernández-Domínguez, S. C. Heck, and S. A. Maier, “Plasmonic nanoantennas: Fundamentals and their use in controlling the radiative properties of nanoemitters,” *Chem. Rev.*, vol. 111, no. 6, pp. 3888–3912, 2011.
- [35] P. Biagioni, J.-S. Huang, and B. Hecht, “Nanoantennas for visible and infrared radiation,” *Rep. Prog. Phys.*, vol. 75, no. 2, p. 024402, 2012.

- [36] M. Agio and A. Alu, *Optical Antennas*. Cambridge University Press, 2013.
- [37] L. Novotny, “Effective wavelength scaling for optical antennas,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 98, no. 26, p. 266802, 2007.
- [38] A. Alu and N. Engheta, “Tuning the scattering response of optical nanoantennas with nanocircuit loads,” *Nat. Photon.*, vol. 2, no. 5, pp. 307–310, 2008.
- [39] M. Schnell, A. J. Garcia-Etxarri, A. Huber, K. Crozier, J. Aizpurua, and R. Hillenbrand, “Controlling the near-field oscillations of loaded plasmonic nanoantennas,” *Nat. Photon.*, vol. 3, no. 5, pp. 287–291, 2009.
- [40] J.-J. Greffet, M. Laroche, and F. Marquier, “Impedance of a nanoantenna and a single quantum emitter,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 105, p. 117701, 2010.
- [41] R. L. Olmon and M. B. Raschke, “Antenna-load interactions at optical frequencies: impedance matching to quantum systems,” *Nanotechnology*, vol. 23, no. 44, p. 444001, 2012.
- [42] W. Murray and W. Barnes, “Plasmonic materials,” *Adv. Mater.*, vol. 19, no. 22, pp. 3771–3782, 2007.
- [43] A. Mohammadi, V. Sandoghdar, and M. Agio, “Gold, copper, silver and aluminum nanoantennas to enhance spontaneous emission,” *J. Comput. Theor. Nanosci.*, vol. 6, no. 9, pp. 2024–2030, 2009.
- [44] M. Castro-Lopez, D. Brinks, R. Sapienza, and N. F. van Hulst, “Aluminum for nonlinear plasmonics: Resonance-driven polarized luminescence of Al, Ag, and Au nanoantennas,” *Nano Lett.*, vol. 11, no. 11, pp. 4674–4678, 2011.
- [45] J. M. McMahon, G. C. Schatz, and S. K. Gray, “Plasmonics in the ultraviolet with the poor metals Al, Ga, In, Sn, Tl, Pb, and Bi,” *Phys. Chem. Chem. Phys.*, vol. 15, pp. 5415–5423, 2013.

- [46] G. V. Naik, V. M. Shalaev, and A. Boltasseva, "Alternative plasmonic materials: Beyond gold and silver," *Adv. Mater.*, vol. 25, no. 24, pp. 3264–3294, 2013.
- [47] P. F. Liao and A. Wokaun, "Lightning rod effect in surface enhanced Raman scattering," *J. Chem. Phys.*, vol. 76, no. 1, pp. 751–752, 1982.
- [48] A. V. Ermushev, B. V. Mchedlishvili, V. A. Oleinikov, and A. V. Petukhov, "Surface enhancement of local optical fields and the lightning-rod effect," *Quant. Electron.*, vol. 23, no. 5, p. 435, 1993.
- [49] C. Y. A. Ni, S. W. Chang, S. L. Chuang, and P. J. Schuck, "Quality factor of a nanobowtie antenna," *J. Lightwave Technol.*, vol. 29, no. 20, pp. 3107–3114, 2011.
- [50] G. W. Bryant, F. J. García de Abajo, and J. Aizpurua, "Mapping the plasmon resonances of metallic nanoantennas," *Nano Lett.*, vol. 8, no. 2, pp. 631–636, 2008.
- [51] T. Taminiau, F. Stefani, F. Segerink, and N. F. van Hulst, "Optical antennas direct single-molecule emission," *Nature Photon.*, vol. 2, no. 4, pp. 234–237, 2008.
- [52] H. Fischer and O. J. F. Martin, "Engineering the optical response of plasmonic nanoantennas," *Opt. Express*, vol. 16, no. 12, pp. 9144–9154, 2008.
- [53] M. D. Wiersma, A. W. Schell, K. S. Ilin, M. Siegel, and H.-J. Eisler, "Nanoengineering and characterization of gold dipole nanoantennas with enhanced integrated scattering properties," *Nanotechnology*, vol. 20, no. 42, p. 425203, 2009.
- [54] J.-S. Huang, J. Kern, P. Geisler, P. Weinmann, M. Kamp, A. Forchel, P. Biagioni, and B. Hecht, "Mode imaging and selection in strongly coupled nanoantennas," *Nano Lett.*, vol. 10, no. 6, pp. 2105–2110, 2010.
- [55] S. B. Hasan, R. Filter, A. Ahmed, R. Vogelgesang, R. Gordon, C. Rockstuhl, and F. Lederer, "Relating localized nanoparticle resonances to an associated antenna problem," *Phys. Rev. B*, vol. 84, p. 195405, 2011.

- [56] P. Nordlander, C. Oubre, E. Prodan, K. Li, and M. I. Stockman, “Plasmon hybridization in nanoparticle dimers,” *Nano Lett.*, vol. 4, no. 5, pp. 899–903, 2004.
- [57] N. Zohar, L. Chuntonov, and G. Haran, “The simplest plasmonic molecules: Metal nanoparticle dimers and trimers,” *J. Photochem. Photobiol. C*, vol. 21, pp. 26 – 39, 2014.
- [58] W. Fahrner, *Nanotechnologie und Nanoprozesse: Einführung, Bewertung*. Springer-Verlag, 2011.
- [59] H.-J. Butt, B. Cappella, and M. Kappl, “Force measurements with the atomic force microscope: Technique, interpretation and applications,” *Surf. Sci. Rep.*, vol. 59, no. 1-6, pp. 1–152, 2005.
- [60] C. Colliex, *Elektronenmikroskopie - Eine anwendungsbezogene Einführung*. Wissenschaftliche Verlagsgesellschaft mbH Stuttgart, 2008.
- [61] J. N. Farahani, D. W. Pohl, H.-J. Eisler, and B. Hecht, “Single quantum dot coupled to a scanning optical antenna: A tunable superemitter,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 95, p. 017402, 2005.
- [62] S. Kühn, U. Håkanson, L. Rogobete, and V. Sandoghdar, “Enhancement of single-molecule fluorescence using a gold nanoparticle as an optical nanoantenna,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 97, p. 017402, 2006.
- [63] H. Mertens, A. F. Koenderink, and A. Polman, “Plasmon-enhanced luminescence near noble-metal nanospheres: Comparison of exact theory and an improved Gersten and Nitzan model,” *Phys. Rev. B*, vol. 76, p. 115123, 2007.
- [64] A. Kinkhabwala, Z. F. Yu, S. H. Fan, Y. Avlasevich, K. Müllen, and W. E. Moerner, “Large single-molecule fluorescence enhancements produced by a bowtie nanoantenna,” *Nature Photon.*, vol. 3, no. 11, pp. 654–657, 2009.
- [65] A. E. Schlather, N. Large, A. S. Urban, P. Nordlander, and N. J. Halas, “Near-field mediated plexcitonic coupling and giant Rabi splitting in individual metallic dimers,” *Nano Lett.*, vol. 13, no. 7, pp. 3281–3286, 2013.

- [66] A. G. Curto, T. H. Taminiau, G. Volpe, M. P. Kreuzer, R. Quidant, and N. F. van Hulst, “Multipolar radiation of quantum emitters with nanowire optical antennas,” *Nat. Commun.*, vol. 4, p. 1750, 2013.
- [67] T. Ming, H. Chen, R. Jiang, Q. Li, and J. Wang, “Plasmon-controlled fluorescence: Beyond the intensity enhancement,” *J. Phys. Chem. Lett.*, vol. 3, no. 2, pp. 191–202, 2012.
- [68] M. Pelton, “Modified spontaneous emission in nanophotonic structures,” *Nature Photon.*, vol. 9, no. 7, pp. 427–435, 2015.
- [69] A. G. Curto, G. Volpe, T. H. Taminiau, M. P. Kreuzer, R. Quidant, and N. F. van Hulst, “Unidirectional emission of a quantum dot coupled to a nanoantenna,” *Science*, vol. 329, no. 5994, pp. 930–933, 2010.
- [70] T. Kosako, Y. Kadoya, and H. F. Hofmann, “Directional control of light by a nano-optical Yagi-Uda antenna,” *Nature Photon.*, vol. 4, no. 5, pp. 312–315, 2010.
- [71] A. E. Krasnok, A. P. Slobozhanyuk, C. R. Simovski, S. A. Tretyakov, A. N. Poddubny, A. E. Miroshnichenko, Y. S. Kivshar, and P. A. Belov, “An antenna model for the Purcell effect,” *Sci. Rep.*, vol. 5, p. 12956, 2015.
- [72] A. F. Koenderink, “On the use of Purcell factors for plasmon antennas,” *Opt. Lett.*, vol. 35, no. 24, pp. 4208–4210, 2010.
- [73] J. G. Smith, J. A. Faucheaux, and P. K. Jain, “Plasmon resonances for solar energy harvesting: A mechanistic outlook,” *Nano Today*, vol. 10, no. 1, pp. 67–80, 2015.
- [74] D. Dregely, R. Taubert, J. Dorfmüller, R. Vogelgesang, K. Kern, and H. Giessen, “3D optical Yagi-Uda nanoantenna array,” *Nat. Commun.*, vol. 2, p. 267, 2011.
- [75] L. Tang, S. E. Kocabas, S. Latif, A. K. Okyay, D.-S. Ly-Gagnon, K. C. Saraswat, and D. A. B. Miller, “Nanometre-scale germanium photodetector enhanced by a near-infrared dipole antenna,” *Nature Photon.*, vol. 2, no. 4, pp. 226–229, 2008.

- [76] M. W. Knight, H. Sobhani, P. Nordlander, and N. J. Halas, "Photodetection with active optical antennas," *Science*, vol. 332, no. 6030, pp. 702–704, 2011.
- [77] F. Wang and N. A. Melosh, "Plasmonic energy collection through hot carrier extraction," *Nano Lett.*, vol. 11, no. 12, pp. 5426–5430, 2011.
- [78] X. Gu, T. Qiu, W. Zhang, and P. K. Chu, "Light-emitting diodes enhanced by localized surface plasmon resonance," *Nanoscale Res. Lett.*, vol. 6, no. 1, pp. 1–12, 2011.
- [79] S. McDaniel and S. Blair, "Increased OLED radiative efficiency using a directive optical antenna," *Opt. Express*, vol. 18, no. 16, pp. 17477–17483, 2010.
- [80] K. Thyagarajan, S. Rivier, A. Lovera, and O. J. Martin, "Enhanced second-harmonic generation from double resonant plasmonic antennae," *Opt. Express*, vol. 20, no. 12, pp. 12860–12865, 2012.
- [81] M. Hentschel, T. Utikal, H. Giessen, and M. Lippitz, "Quantitative modeling of the third harmonic emission spectrum of plasmonic nanoantennas," *Nano Lett.*, vol. 12, no. 7, pp. 3778–3782, 2012.
- [82] M. D. Wissert, K. S. Ilin, M. Siegel, U. Lemmer, and H.-J. Eisler, "Coupled nanoantenna plasmon resonance spectra from two-photon laser excitation," *Nano Lett.*, vol. 10, no. 10, pp. 4161–4165, 2010.
- [83] M. D. Wissert, C. Moosmann, K. S. Ilin, M. Siegel, U. Lemmer, and H.-J. Eisler, "Gold nanoantenna resonance diagnostics via transversal particle plasmon luminescence," *Opt. Express*, vol. 19, no. 4, pp. 3686–3693, 2011.
- [84] N. Engheta, A. Salandrino, and A. Alù, "Circuit elements at optical frequencies: Nanoinductors, nanocapacitors, and nanoresistors," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 95, p. 095504, 2005.
- [85] J.-S. Huang, T. Feichtner, P. Biagioni, and B. Hecht, "Impedance matching and emission properties of nanoantennas in an optical nanocircuit," *Nano Lett.*, vol. 9, no. 5, pp. 1897–1902, 2009.

- [86] A. Alù and N. Engheta, “Wireless at the nanoscale: Optical interconnects using matched nanoantennas,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 104, p. 213902, 2010.
- [87] M. F. Garcia-Parajo, “Optical antennas focus in on biology,” *Nature Photon.*, vol. 2, no. 4, pp. 201–203, 2008.
- [88] C. E. Talley, J. B. Jackson, C. Oubre, N. K. Grady, C. W. Hollars, S. M. Lane, T. R. Huser, P. Nordlander, and N. J. Halas, “Surface-enhanced Raman scattering from individual Au nanoparticles and nanoparticle dimer substrates,” *Nano Lett.*, vol. 5, no. 8, pp. 1569–1574, 2005.
- [89] R. Corkish, M. A. Green, and T. Puzzer, “Solar energy collection by antennas,” *Sol. Energy*, vol. 73, no. 6, pp. 395–401, 2003.
- [90] B. Berland, “Photovoltaic technologies beyond the horizon: Optical rectenna solar cell,” *NREL/SR-520-33263*, 2003.
- [91] G. Moddel and S. Grover, *Rectenna Solar Cells*. Springer, 2013.
- [92] W. C. Brown, “The history of the development of the rectenna,” in *Solar Power Satellite Microwave Power Transmission and Reception*, vol. 2141, p. 271, 1980.
- [93] S. Grover and G. Moddel, “Applicability of metal/insulator/metal (MIM) diodes to solar rectennas,” *IEEE J. Photovolt.*, vol. 1, no. 1, pp. 78–83, 2011.
- [94] C. Tabor, R. Murali, M. Mahmoud, and M. A. El-Sayed, “On the use of plasmonic nanoparticle pairs as a plasmon ruler: The dependence of the near-field dipole plasmon coupling on nanoparticle size and shape,” *J. Phys. Chem. A*, vol. 113, no. 10, pp. 1946–1953, 2009.
- [95] N. Liu, M. L. Tang, M. Hentschel, H. Giessen, and A. P. Alivisatos, “Nanoantenna-enhanced gas sensing in a single tailored nanofocus,” *Nat. Mater.*, vol. 10, no. 8, pp. 631–636, 2011.

- [96] T. J. Davis, M. Hentschel, N. Liu, and H. Giessen, "Analytical model of the three-dimensional plasmonic ruler," *ACS Nano*, vol. 6, no. 2, pp. 1291–1298, 2012.
- [97] J. Butet and O. J. F. Martin, "Nonlinear plasmonic nanorulers," *ACS Nano*, vol. 8, no. 5, pp. 4931–4939, 2014.
- [98] B. Luk'yanchuk, N. I. Zheludev, S. A. Maier, N. J. Halas, P. Nordlander, H. Giessen, and C. T. Chong, "The Fano resonance in plasmonic nanostructures and metamaterials," *Nat. Mater.*, vol. 9, no. 9, pp. 707–715, 2010.
- [99] Y. Binfeng, H. Guohua, C. Jiawei, and C. Yiping, "Fano resonances induced by strong interactions between dipole and multipole plasmons in T-shaped nanorod dimer," *Plasmonics*, vol. 9, no. 3, pp. 691–698, 2014.
- [100] K.-H. Kim, S.-H. Kim, and M.-C. Bae, "Fano resonance by dipole-hexapole coupling in a X-shaped plasmonic nanostructure," *Appl. Opt.*, vol. 54, no. 10, pp. 2710–2714, 2015.
- [101] C. Hafner, "Die MMP-Methode," *Arch. Elektrotechn.*, vol. 69, no. 5, pp. 321–325, 1986.
- [102] P. C. Waterman, "Matrix formulation of electromagnetic scattering," *Proc. IEEE*, vol. 53, no. 8, pp. 805–812, 1965.
- [103] B. N. Khlebtsov and N. G. Khlebtsov, "Multipole plasmons in metal nanorods: Scaling properties and dependence on particle size, shape, orientation, and dielectric environment," *J. Phys. Chem. C*, vol. 111, no. 31, pp. 11516–11527, 2007.
- [104] T. Wriedt, "Light scattering theories and computer codes," *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, vol. 110, no. 11, pp. 833 – 843, 2009.
- [105] J. Hoffmann, C. Hafner, P. Leidenberger, J. Hesselbarth, and S. Burger, "Comparison of electromagnetic field solvers for the 3D analysis of plasmonic nanoantennas," *Proc. SPIE*, vol. 7390, pp. 73900J–73900J–11, 2009.

- [106] Z. Haznadar and Z. Stih, *Electromagnetic Fields, Waves and Numerical Methods*. IOS Press, 2000.
- [107] U. Hohenester and A. Trügler, “MNPBEM - a matlab toolbox for the simulation of plasmonic nanoparticles,” *Comput. Phys. Commun.*, vol. 183, no. 2, pp. 370 – 381, 2012.
- [108] M. Meier and A. Wokaun, “Enhanced fields on large metal particles: Dynamic depolarization,” *Opt. Lett.*, vol. 8, no. 11, pp. 581–583, 1983.
- [109] H. Kuwata, H. Tamaru, K. Esumi, and K. Miyano, “Resonant light scattering from metal nanoparticles: Practical analysis beyond Rayleigh approximation,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 83, no. 22, pp. 4625–4627, 2003.
- [110] J.-P. Berenger, “A perfectly matched layer for the absorption of electromagnetic waves,” *J. Comput. Phys.*, vol. 114, no. 2, pp. 185 – 200, 1994.
- [111] S. G. Johnson, “Notes on perfectly matched layers (PMLs).” <http://math.mit.edu/~stevenj/18.369/pml.pdf>, 2008.
- [112] K. Yee, “Numerical solution of initial boundary value problems involving Maxwell’s equations in isotropic media,” *IEEE Trans. Antennas. Propag.*, vol. 14, no. 3, pp. 302–307, 1966.
- [113] A. Taflove, *Computational Electrodynamics: The Finite-Difference Time-Domain Method*. Artech House, 1995.
- [114] A. Farjadpour, D. Roundy, A. Rodriguez, M. Ibanescu, P. Bermel, J. Joannopoulos, S. G. Johnson, and G. Burr, “Improving accuracy by subpixel smoothing in the finite-difference time domain,” *Opt. Lett.*, vol. 31, no. 20, pp. 2972–2974, 2006.
- [115] J. Niegemann, M. König, K. Stannigel, and K. Busch, “Higher-order time-domain methods for the analysis of nano-photonic systems,” *Phot. Nano. Fund. Appl.*, vol. 7, no. 1, pp. 2–11, 2009.
- [116] “<http://www.lumerical.com>,” 2016.

- [117] P. Monk, *Finite Element Methods for Maxwells Equations*. Numerical mathematics and scientific computation; Oxford science publications, Oxford: Clarendon Press, repr. ed., 2008.
- [118] C. Schwarzbach, “3-D Finite Elemente zur Diskretisierung der Maxwell-Gleichungen.” 21. Kolloquium Elektromagnetische Tiefenforschung (Hrsg.: O. Ritter und H. Brasse), 2005.
- [119] T. Jenni, “Einführung in die Finite-Elemente-Methode.” Mentorierte fachwissenschaftliche Arbeit mit pädagogischem Fokus der ETH Zürich, 2011.
- [120] W. Frei, “Using perfectly matched layers and scattering boundary conditions for wave electromagnetics problems.” <https://www.comsol.com/blogs/using-perfectly-matched-layers-and-scattering-boundary-conditions-for-wave-electromagnetics-problems/>, 2016.
- [121] “<http://www.comsol.com>,” 2016.
- [122] Y. Saad, *Iterative Methods for Sparse Linear Systems*. Society for Industrial and Applied Mathematics, 2003.
- [123] M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics: Electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light*. Cambridge University Press, 2000.
- [124] “<http://de.ptc.com/product/creo/proengineer>,” 2016.
- [125] P. Stoller, V. Jacobsen, and V. Sandoghdar, “Measurement of the complex dielectric constant of a single gold nanoparticle,” *Opt. Lett.*, vol. 31, no. 16, pp. 2474–2476, 2006.
- [126] Z. Liu, A. Boltasseva, R. H. Pedersen, R. Bakker, A. V. Kildishev, V. P. Drachev, and V. M. Shalaev, “Plasmonic nanoantenna arrays for the visible,” *Metamaterials*, vol. 2, no. 1, pp. 45 – 51, 2008.

- [127] K.-P. Chen, V. P. Drachev, J. D. Borneman, A. V. Kildishev, and V. M. Shalaev, "Drude relaxation rate in grained gold nanoantennas," *Nano Lett.*, vol. 10, no. 3, pp. 916–922, 2010.
- [128] J. Aizpurua, G. W. Bryant, L. J. Richter, F. J. García de Abajo, B. K. Kelley, and T. Mallouk, "Optical properties of coupled metallic nanorods for field-enhanced spectroscopy," *Phys. Rev. B*, vol. 71, no. 23, p. 235420, 2005.
- [129] W. Ding, R. Bachelot, R. E. de Lamaestre, D. Macias, A.-L. Baudrion, and P. Royer, "Understanding near/far-field engineering of optical dimer antennas through geometry modification," *Opt. Express*, vol. 17, no. 23, pp. 21228–21239, 2009.
- [130] C. Menzel, E. Hebestreit, S. Mühlig, C. Rockstuhl, S. Burger, F. Lederer, and T. Pertsch, "The spectral shift between near- and far-field resonances of optical nano-antennas," *Opt. Express*, vol. 22, no. 8, pp. 9971–9982, 2014.
- [131] A. A. Oraevsky and A. N. Oraevsky, "On a plasmon resonance in ellipsoidal nanoparticles," *Quant. Electron.*, vol. 32, no. 1, p. 79, 2002.
- [132] J. Zhu, J.-J. Li, J.-W. Zhao, and S.-W. Bai, "Light absorption efficiencies of gold nanoellipsoid at different resonance frequency," *J. Mater. Sci.*, vol. 43, no. 15, pp. 5199–5205, 2008.
- [133] G. Colas des Francs, S. Derom, R. Vincent, A. Bouhelier, and A. Dereux, "Mie plasmons: Modes volumes, quality factors, and coupling strengths (Purcell factor) to a dipolar emitter," *Int. J. Opt.*, vol. 2012, p. 8, 2012.
- [134] L. S. Slaughter, W.-S. Chang, P. Swanglap, A. Tcherniak, B. P. Khanal, E. R. Zubarev, and S. Link, "Single-particle spectroscopy of gold nanorods beyond the quasi-static limit: Varying the width at constant aspect ratio," *J. Phys. Chem. C*, vol. 114, no. 11, pp. 4934–4938, 2010.

- [135] J. Dorfmüller, R. Vogelgesang, W. Khunsin, C. Rockstuhl, C. Etrich, and K. Kern, “Plasmonic nanowire antennas: Experiment, simulation, and theory,” *Nano Lett.*, vol. 10, no. 9, pp. 3596–3603, 2010.
- [136] Y. Li, K. Zhao, H. Sobhani, K. Bao, and P. Nordlander, “Geometric dependence of the line width of localized surface plasmon resonances,” *J. Phys. Chem. Lett.*, vol. 4, no. 8, pp. 1352–1357, 2013.
- [137] R. Giannini, C. V. Hafner, and J. F. Löffler, “Scaling behavior of individual nanoparticle plasmon resonances,” *J. Phys. Chem. C*, vol. 119, no. 11, pp. 6138–6147, 2015.
- [138] E. Massa, S. A. Maier, and V. Giannini, “An analytical approach to light scattering from small cubic and rectangular cuboidal nanoantennas,” *New J. Phys.*, vol. 15, no. 6, p. 063013, 2013.
- [139] O. L. Muskens, V. Giannini, J. A. Sanchez-Gil, and J. G. Rivas, “Optical scattering resonances of single and coupled dimer plasmonic nanoantennas,” *Opt. Express*, vol. 15, no. 26, pp. 17736–17746, 2007.
- [140] E. Ringe, M. R. Langille, K. Sohn, J. Zhang, J. Huang, C. A. Mirkin, R. P. V. Duyne, and L. D. Marks, “Plasmon length: A universal parameter to describe size effects in gold nanoparticles,” *J. Phys. Chem. Lett.*, vol. 3, no. 11, pp. 1479–1483, 2012.
- [141] K.-H. Su, Q.-H. Wei, Z. X., J. J. Mock, D. R. Smith, and S. Schultz, “Interparticle coupling effects on plasmon resonances of nanogold particles,” *Nano Lett.*, vol. 3, no. 8, pp. 1087–1090, 2003.
- [142] N. J. Halas, S. Lal, W.-S. Chang, S. Link, and P. Nordlander, “Plasmons in strongly coupled metallic nanostructures,” *Chem. Rev.*, vol. 111, no. 6, pp. 3913–3961, 2011.
- [143] E. Prodan, C. Radloff, N. J. Halas, and P. Nordlander, “A hybridization model for the plasmon response of complex nanostructures,” *Science*, vol. 302, no. 5644, pp. 419–422, 2003.

- [144] W. Rechberger, A. Hohenau, A. Leitner, J. R. Krenn, B. Lamprecht, and F. R. Aussenegg, "Optical properties of two interacting gold nanoparticles," *Opt. Commun.*, p. 137, 2003.
- [145] D. P. Fromm, A. Sundaramurthy, P. J. Schuck, G. Kino, and W. E. Moerner, "Gap-dependent optical coupling of single "bowtie" nanoantennas resonant in the visible," *Nano Lett.*, vol. 4, no. 5, pp. 957–961, 2004.
- [146] P. J. Schuck, D. P. Fromm, A. Sundaramurthy, G. S. Kino, and W. E. Moerner, "Improving the mismatch between light and nanoscale objects with gold bowtie nanoantennas," *Phys. Rev. Lett.*, vol. 94, no. 1, p. 017402, 2005.
- [147] S. Dutta-Gupta and O. J. F. Martin, "Insight into the eigenmodes of plasmonic nanoclusters based on the Green's tensor method," *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 32, no. 2, pp. 194–200, 2015.
- [148] T. J. Davis, D. E. Gómez, and K. C. Vernon, "Simple model for the hybridization of surface plasmon resonances in metallic nanoparticles," *Nano Lett.*, vol. 10, no. 7, pp. 2618–2625, 2010.
- [149] K. J. Prashant, H. Wenyu, and A. E.-S. Mostafa, "On the universal scaling behavior of the distance decay of plasmon coupling in metal nanoparticle pairs: A plasmon ruler equation," *Nano Lett.*, vol. 7, no. 7, pp. 2080–2088, 2007.
- [150] I. Romero, J. Aizpurua, G. W. Bryant, and F. J. G. de Abajo, "Plasmons in nearly touching metallic nanoparticles: Singular response in the limit of touching dimers," *Opt. Express*, vol. 14, pp. 9988–9999, Oct 2006.
- [151] C. Dahmen, B. Schmidt, and G. von Plessen, "Radiation damping in metal nanoparticle pairs," *Nano Lett.*, vol. 7, no. 2, pp. 318–322, 2007.
- [152] K. C. Vernon, A. M. Funston, C. Novo, D. E. Gómez, P. Mulvaney, and T. J. Davis, "Influence of particle-substrate interaction on localized plasmon resonances," *Nano Lett.*, vol. 10, no. 6, pp. 2080–2086, 2010.

- [153] C. Moosmann, K. Dopf, S. W. Kettlitz, P. M. Schwab, K. Ilin, M. Siegel, U. Lemmer, and H.-J. Eisler, “Coupled T-Shaped optical antennas with two resonances localized in a common nanogap,” *ACS Photon.*, vol. 2, no. 11, pp. 1644–1651, 2015.
- [154] M. D. Wissert, *Optical Antennas - Linear and Nonlinear Excitation and Emission*. PhD thesis, Karlsruhe Institut of Technology, 2011.
- [155] H. Harutyunyan, G. Volpe, R. Quidant, and L. Novotny, “Enhancing the nonlinear optical response using multifrequency gold-nanowire antennas,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 108, p. 217403, 2012.
- [156] G. Lu, J. Liu, T. Zhang, H. Shen, P. Perriat, M. Martini, O. Tillement, Y. Gu, Y. He, Y. Wang, and Q. Gong, “Enhancing molecule fluorescence with asymmetrical plasmonic antennas,” *Nanoscale*, vol. 5, pp. 6545–6551, 2013.
- [157] P. Biagioni, M. Savoini, J.-S. Huang, L. Duò, M. Finazzi, and B. Hecht, “Near-field polarization shaping by a near-resonant plasmonic cross antenna,” *Phys. Rev. B*, vol. 80, p. 153409, 2009.
- [158] P. Biagioni, J. S. Huang, L. Duò, M. Finazzi, and B. Hecht, “Cross resonant optical antenna,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 102, p. 256801, 2009.
- [159] E. Ögüt, G. Kızıldaş, and K. Şendur, “Circularly polarized localized near-field radiation at the nanoscale,” *Appl. Phys. B*, vol. 99, no. 1-2, pp. 67–74, 2010.
- [160] E. S. Ünlü, R. U. Tok, and K. Şendur, “Broadband plasmonic nanoantenna with an adjustable spectral response,” *Opt. Express*, vol. 19, no. 2, pp. 1000–1006, 2011.
- [161] J. L. Stokes, Y. Yu, Z. H. Yuan, J. R. Pugh, M. Lopez-Garcia, N. Ahmad, and M. J. Cryan, “Analysis and design of a cross dipole nanoantenna for fluorescence-sensing applications,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 31, no. 2, pp. 302–310, 2014.

- [162] A. M. Funston, C. Novo, T. J. Davis, and P. Mulvaney, “Plasmon coupling of gold nanorods at short distances and in different geometries,” *Nano Lett.*, vol. 9, no. 4, pp. 1651–1658, 2009.
- [163] H. Husu, R. Siikanen, J. Mäkitalo, J. Lehtolahti, J. Laukkanen, M. Kuitinen, and M. Kauranen, “Metamaterials with tailored nonlinear optical response,” *Nano Lett.*, vol. 12, no. 2, pp. 673–677, 2012.
- [164] S. Panaro, A. Nazir, C. Liberale, G. Das, H. Wang, F. D. Angelis, R. P. Zaccaria, E. D. Fabrizio, and A. Toma, “Dark to bright mode conversion on dipolar nanoantennas: A symmetry-breaking approach,” *ACS Photon.*, vol. 1, no. 4, pp. 310–314, 2014.
- [165] L.-J. Black, P. R. Wiecha, Y. Wang, C. H. de Groot, V. Paillard, C. Girard, O. L. Muskens, and A. Arbouet, “Tailoring second-harmonic generation in single L-Shaped plasmonic nanoantennas from the capacitive to conductive coupling regime,” *ACS Photonics*, 2015.
- [166] J. Yang and J. Zhang, “Subwavelength quarter-waveplate composed of L-Shaped metal nanoparticles,” *Plasmonics*, vol. 6, no. 2, pp. 251–254, 2011.
- [167] M. Kauranen, H. Husu, B. K. Canfield, J. Laukkanen, B. Bai, M. Kuitinen, and J. P. Turunen, “Gap-dependent chiral coupling in T-shaped gold nanodimers,” 2008.
- [168] Z. Xi, Y. Lu, W. Yu, P. Wang, and H. Ming, “Improved sensitivity in a T-shaped nanodimer plasmonic sensor,” *J. Opt.*, vol. 15, no. 2, p. 025004, 2013.
- [169] R. Czaplicki, J. Mäkitalo, R. Siikanen, H. Husu, J. Lehtolahti, M. Kuitinen, and M. Kauranen, “Second-harmonic generation from metal nanoparticles: Resonance enhancement versus particle geometry,” *Nano Lett.*, vol. 15, no. 1, pp. 530–534, 2015.
- [170] H. Aouani, M. Navarro-Cia, M. Rahmani, T. P. H. Sidiropoulos, M. Hong, R. F. Oulton, and S. A. Maier, “Multiresonant broadband optical antennas

- as efficient tunable nanosources of second harmonic light,” *Nano Lett.*, vol. 12, no. 9, pp. 4997–5002, 2012.
- [171] H. Aouani, H. Šípová, M. Rahmani, M. Navarro-Cia, K. Hegnerová, J. Homola, M. Hong, and S. A. Maier, “Ultrasensitive broadband probing of molecular vibrational modes with multifrequency optical antennas,” *ACS Nano*, vol. 7, no. 1, pp. 669–675, 2013.
- [172] J. Yang, F. Kong, K. Li, and S. Sheng, “Analysis of a log periodic nano-antenna for multi-resonant broadband field enhancement and the Purcell factor,” *Opt. Commun.*, vol. 342, pp. 230 – 237, 2015.
- [173] M. Celebrano, X. Wu, M. Baselli, S. Großmann, P. Biagioni, A. Locatelli, C. De Angelis, G. Cerullo, R. Osellame, B. Hecht, L. Duò, F. Ciccacci, and M. Finazzi, “Mode matching in multiresonant plasmonic nanoantennas for enhanced second harmonic generation,” *Nat. Nanot.*, vol. 10, no. 5, pp. 412–417, 2015.
- [174] T. Shegai, S. Chen, V. D. Miljkovic, G. Zengin, P. Johansson, and M. Kall, “A bimetallic nanoantenna for directional colour routing,” *Nat. Commun.*, vol. 2, p. 481, 2011.
- [175] J. C. Prangma, J. Kern, A. G. Knapp, S. Grossmann, M. Emmerling, M. Kamp, and B. Hecht, “Electrically connected resonant optical antennas,” *Nano Lett.*, vol. 12, no. 8, pp. 3915–3919, 2012.
- [176] J. Kern, R. Kulloock, J. Prangma, M. Emmerling, M. Kamp, and B. Hecht, “Electrically driven optical antennas,” *Nature Photon.*, vol. 9, no. 9, pp. 582–586, 2015.
- [177] V. Giannini and J. A. Sánchez-Gil, “Excitation and emission enhancement of single molecule fluorescence through multiple surface-plasmon resonances on metal trimer nanoantennas,” *Opt. Lett.*, vol. 33, no. 9, pp. 899–901, 2008.
- [178] S.-Y. Liu, L. Huang, J.-F. Li, C. Wang, Q. Li, H.-X. Xu, H.-L. Guo, Z.-M. Meng, Z. Shi, and Z.-Y. Li, “Simultaneous excitation and emission

- enhancement of fluorescence assisted by double plasmon modes of gold nanorods,” *J. Phys. Chem. C*, vol. 117, no. 20, pp. 10636–10642, 2013.
- [179] Z. Zhang, A. Weber-Bargioni, S. W. Wu, S. Dhuey, S. Cabrini, and P. J. Schuck, “Manipulating nanoscale light fields with the asymmetric bowtie nano-colorsorter,” *Nano Lett.*, vol. 9, no. 12, pp. 4505–4509, 2009.
- [180] C. Moosmann, G. S. Sigurdsson, M. D. Wissert, K. Dopf, U. Lemmer, and H.-J. Eisler, “Investigating the influences of the precise manufactured shape of dipole nanoantennas on their optical properties,” *Opt. Express*, vol. 21, no. 1, pp. 594–604, 2013.
- [181] A. V. Kildishev, J. D. Borneman, K.-P. Chen, and V. P. Drachev, “Numerical modeling of plasmonic nanoantennas with realistic 3D roughness and distortion,” *Sensors*, vol. 11, no. 7, pp. 7178–7187, 2011.
- [182] A. Trügler, J.-C. Tinguely, J. R. Krenn, A. Hohenau, and U. Hohenester, “Influence of surface roughness on the optical properties of plasmonic nanoparticles,” *Phys. Rev. B*, vol. 83, p. 081412, 2011.
- [183] A. M. Kern and O. J. F. Martin, “Excitation and reemission of molecules near realistic plasmonic nanostructures,” *Nano Lett.*, vol. 11, no. 2, pp. 482–487, 2011.
- [184] J. Butet, K. Thyagarajan, and O. J. F. Martin, “Ultrasensitive optical shape characterization of gold nanoantennas using second harmonic generation,” *Nano Lett.*, vol. 13, no. 4, pp. 1787–1792, 2013.
- [185] A. Portela, T. Yano, C. Santschi, H. Matsui, T. Hayashi, M. Hara, O. J. F. Martin, and H. Tabata, “Spectral tunability of realistic plasmonic nanoantennas,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 105, no. 9, 2014.
- [186] Raith GmbH. personal communication, 2011.
- [187] P. M. Schwab, C. Moosmann, M. D. Wissert, E. W.-G. Schmidt, K. S. Ilin, M. Siegel, U. Lemmer, and H.-J. Eisler, “Linear and nonlinear optical characterization of aluminum nanoantennas,” *Nano Lett.*, vol. 13, no. 4, pp. 1535–1540, 2013.

- [188] P. M. Schwab, C. Moosmann, K. Dopf, and H.-J. Eisler, "Oxide mediated spectral shifting in aluminum resonant optical antennas," *Opt. Express*, vol. 23, no. 20, pp. 26533–26543, 2015.
- [189] E. Hao and G. C. Schatz, "Electromagnetic fields around silver nanoparticles and dimers," *J. Chem. Phys.*, vol. 120, no. 1, pp. 357–366, 2004.
- [190] H. Ehrenreich, H. R. Philipp, and B. Segall, "Optical properties of aluminum," *Phys. Rev.*, vol. 132, pp. 1918–1928, 1963.
- [191] F. Bisio, R. P. Zaccaria, R. Moroni, G. Maidecchi, A. Alabastri, G. Gonella, A. Giglia, L. Andolfi, S. Nannarone, L. Mattera, and M. Canepa, "Pushing the high-energy limit of plasmonics," *ACS Nano*, vol. 8, no. 9, pp. 9239–9247, 2014.
- [192] D. Gérard and S. K. Gray, "Aluminium plasmonics," *J. Phys. D: Appl. Phys.*, vol. 48, no. 18, p. 184001, 2015.
- [193] C. Langhammer, M. Schwind, B. Kasemo, and I. Zorić, "Localized surface plasmon resonances in aluminum nanodisks," *Nano Lett.*, vol. 8, no. 5, pp. 1461–1471, 2008.
- [194] G. H. Chan, J. Zhao, G. C. Schatz, and R. P. V. Duyne, "Localized surface plasmon resonance spectroscopy of triangular aluminum nanoparticles," *J. Phys. Chem. C*, vol. 112, no. 36, pp. 13958–13963, 2008.
- [195] M. J. McClain, A. E. Schlather, E. Ringe, N. S. King, L. Liu, A. Manjavacas, M. W. Knight, I. Kumar, K. H. Whitmire, H. O. Everitt, P. Nordlander, and N. J. Halas, "Aluminum nanocrystals," *Nano Lett.*, vol. 15, no. 4, pp. 2751–2755, 2015.
- [196] M. W. Knight, L. Liu, Y. Wang, L. Brown, S. Mukherjee, N. S. King, H. O. Everitt, P. Nordlander, and N. J. Halas, "Aluminum plasmonic nanoantennas," *Nano Lett.*, vol. 12, no. 11, pp. 6000–6004, 2012.
- [197] M. W. Knight, N. S. King, L. Liu, H. O. Everitt, P. Nordlander, and N. J. Halas, "Aluminum for plasmonics," *ACS Nano*, vol. 8, no. 1, pp. 834–840, 2014.

- [198] J. Mescher, S. W. Kettlitz, N. Christ, M. F. Klein, A. Puetz, A. Mertens, A. Colsmann, and U. Lemmer, “Design rules for semi-transparent organic tandem solar cells for window integration,” *Org. Electron.*, vol. 15, no. 7, pp. 1476 – 1480, 2014.