

МЕТАМАТЕРИАЛЫ С СЕТЧАТОЙ СТРУКТУРОЙ

© 2012 г. А. А. Жилин*, канд. хим. наук; Д. К. Таганцев**, доктор хим. наук;
 М. П. Шепилов*, канд. физ.-мат. наук; С. С. Запалова*; М. Ю. Алемаскин**;
 М. Е. Сазонов**

* Научно-исследовательский и технологический институт оптического материаловедения
 Всероссийского научного центра “Государственный оптический институт им. С.И. Вавилова”,
 Санкт-Петербург

** Санкт-Петербургский государственный политехнический университет, Санкт-Петербург
 E-mail: tagan@dt1386.spb.edu (Д.К. Таганцев); m.shep@mail.ru (М.П. Шепилов)

Проведен обзор литературных данных по метаматериалам с сетчатой структурой, которые представляются в настоящее время наиболее перспективным типом метаматериалов для получения отрицательного показателя преломления в оптической области спектра. Были реализованы “мономолекулярные” слои метаматериалов этого типа с отрицательным показателем преломления в инфракрасной и видимой областях спектра. Для объемного метаматериала с сетчатой структурой отрицательный показатель преломления в области длин волн 1,54–1,775 мкм был показан непосредственно на основе закона Снеллиуса.

Ключевые слова: метаматериалы, отрицательный показатель преломления, суперлинза, электромагнитные свойства.

Коды OCIS: 230.3205, 160.3918, 160.4760, 160.1190, 230.0230

Поступила в редакцию 19.10.2011

Введение

В последние десять лет в мире ведется интенсивная разработка метаматериалов – искусственных материалов, которые создаются для приложений в области электромагнетизма, в том числе для оптических приложений [1–6]. Метаматериалы komponуются из структурных элементов, вид и взаимное расположение которых можно задавать в процессе изготовления. Если размер структурных элементов метаматериала и характерное расстояние между ними существенно меньше длины волны излучения, то метаматериал можно рассматривать как сплошную среду, характеризующуюся диэлектрической и магнитной проницаемостями. При этом структурный элемент метаматериала является аналогом атома, молекулы или элементарной ячейки обычного материала. Исследования показали, что возможно создание структурных элементов с необычными электрическим и магнитным откликами. В результате были созданы метаматериалы с уникальными электромагнитными свойствами, которые не наблюдаются у природных материалов.

Разработка метаматериалов началась во второй половине 90-х годов прошлого столетия и связана с задачей получения материалов с отрицательным показателем преломления, свойства которых рассматривал В.Г. Веселаго еще в 1967 г. [7]. В результате был создан первый метаматериал с отрицательным показателем преломления, правда, для излучения гигагерцовой частоты (длина волны $\lambda \approx 3$ см) [8]. Последовавшие исследования позволили получить метаматериалы с отрицательным показателем преломления на более высоких частотах, в том числе на оптических (длина волны $\lambda \approx 1,7$ мкм) [9].

Интерес к созданию метаматериалов с отрицательным показателем преломления в значительной степени связан с теоретически предсказанной *J. Pendry* [10] возможностью получения на их основе “совершенной” линзы (суперлинзы), использование которой позволило бы преодолеть дифракционный предел разрешения, обусловленный волновой природой света.

Дополнительные стимулы к исследованиям в области метаматериалов появились в резуль-

тате теоретического предсказания возможности создания “устройств невидимости” на их основе [11, 12] и попытки экспериментальной разработки устройства такого типа [13].

Следует отметить, что развитие метаматериалов неразрывно связано с именем *J. Pendry*, идеи и энтузиазм которого подпитывали эту область знаний на протяжении последних 15 лет. Отметим также, что идеи, развитые при создании электромагнитных метаматериалов, использовались в разработках метаматериалов для акустики.

Электромагнитные свойства структурных элементов метаматериала определяются в значительной степени параметрами их геометрической структуры. Даже если число таких параметров невелико (например, 4–5 в некоторых простых случаях), то и тогда выбор их значений для получения заданных свойств методом подбора представляется нереальным, особенно ввиду сложности технологических процессов изготовления метаматериала. Поэтому в создании метаматериалов ключевую роль играет теория – сначала теоретические соображения используются при выборе типа структур, которые могли бы обеспечить необходимые электромагнитные свойства, затем проводится выбор и оптимизация количественных характеристик структуры на основе моделирования электромагнитного отклика, и уже после этого осуществляется изготовление метаматериала. Использование новых типов геометрических структур для получения метаматериалов с заданными свойствами представляется невозможным без проведения предварительных теоретических расчетов.

Размеры структурных элементов метаматериала и характерное расстояние между ними должны быть существенно меньше длины волны излучения. Поэтому получение оптических метаматериалов требует использования сложных нанотехнологических методов. Эти методы представлены в обзоре [14]. В силу сложности получения оптические метаматериалы, описанные в литературе, являются уникальными.

В работе (см. следующую статью этого номера, с. 69–76) предлагается метод, использование которого позволило бы относительно простое тиражирование метаматериалов после проведения предварительной подготовки. Метод предназначен для получения метаматериалов с так называемой “сетчатой” структурой, для которых к настоящему времени получены наиболее впечатляющие результаты, такие как

непосредственная экспериментальная демонстрация отрицательного показателя преломления в интервале длин волн 1,54–1,775 мкм на основе закона Снеллиуса [9] или изготовление метаматериала с отрицательным показателем преломления в некотором интервале около длины волны 580 нм [15].

Метаматериалы с сетчатой структурой

На основе результатов численного моделирования были предсказаны [16] и получены [17, 18] так называемые сетчатые метаматериалы с отрицательным показателем преломления в инфракрасной области спектра. А именно, рассматривалась плоская трехслойная структура (рис. 1), в которой проделана система отверстий, образующих двумерную решетку (сетчатая структура). Средний слой представляет собой диэлектрик (Al_2O_3), который покрыт золотыми пленками с обеих сторон. Толщина диэлектрического слоя составляла 60 нм [16, 17] и 75 нм [18], а толщина каждого из покрытий – 30 нм. Размеры и период расположения отверстий составляли величины порядка нескольких сотен нанометров.

Расчеты [16], проведенные для четырех структур с прямоугольными отверстиями и характерными размерами $a_x = a_y = 801$ нм, $d_x = 500$ нм и $d_y = 100, 200, 300, 500$ нм (см. рис. 1), показали, что такие структуры харак-

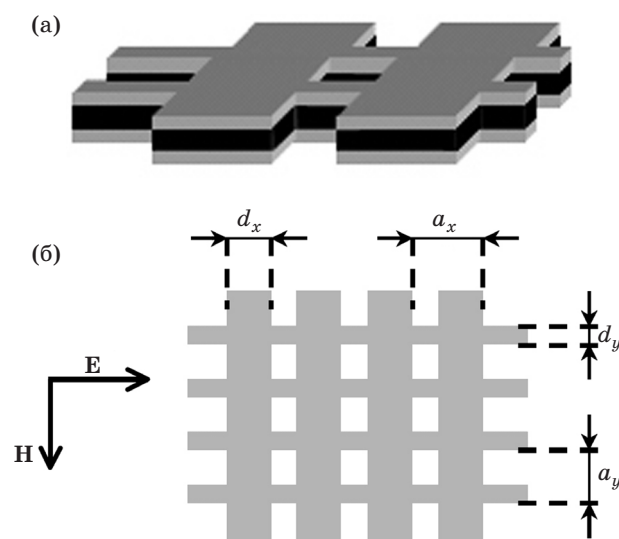


Рис. 1. Схематическое изображение фрагмента трехслойной сетчатой структуры [16]. Пространственное изображение (а), на котором светлые слои представляют слои металла, а темный слой – слой диэлектрика, и вид сверху (б).

теризуются отрицательным показателем преломления для излучения с длиной волны около 2 мкм, которое падает перпендикулярно слою и имеет поляризацию, показанную на рис. 1. Согласно расчетам, критерий качества метаматериала, определяемый как взятое с противоположным знаком отношение действительной (отрицательной) и мнимой частей показателя преломления,

$$\eta = -\text{Re}(n)/\text{Im}(n),$$

может достигать для рассмотренных структур значений 2–6, которые представляются довольно высокими (ср., например, со значением $\eta \approx 0,1$, полученным для структуры, состоящей из пар золотых наностержней [19]). Максимальное значение $\eta \cong 6$ наблюдается на длине волны $\lambda \approx 1,9$ мкм для двух структур с размером $d_y = 100, 200$ нм.

Полученная экспериментально трехслойная сетчатая структура с круглыми отверстиями [17] имеет показатель преломления $n \cong -2,5+i 4$ ($\eta \approx 0,6$) для излучения с длиной волны около 2 мкм, падающего нормально к слою и имеющего определенную поляризацию. Значение критерия качества этой структуры $\eta \approx 0,6$ хотя и значительно уступает лучшим расчетным значениям [16], все же существенно превышает значение $\eta \approx 0,1$ структуры из пар золотых наностержней [19]. Как отмечено в работе [18], структура характеризуется низким пропусканием (<4%) [17] не только из-за значительного поглощения, которое приводит к недостаточно высокому значению η , но и вследствие рассогласования импеданса метаматериала и окружающей среды (стекло и воздух). Изготовление структур с эллиптическими отверстиями одинаковой ориентации [18] позволило уменьшить рассогласование импеданса и повысить пропускание до 40% и более в спектральной области отрицательного показателя преломления ($\lambda \approx 1,6$ – $1,8$ мкм). Тем не менее, уровень потерь остается все же значительным. Отметим, что определение показателя преломления в работе [17] проведено, как и в исследовании [19], непрямым методом [20], тогда как в работе [18] он оценивался путем расчетов.

В работе [21] был описан разработанный метаматериал, геометрическая структура которого аналогична структуре метаматериала, теоретически рассмотренного в работе [16] (см. рис. 1). Средний слой был изготовлен из диэлектрика MgF_2 толщиной $s = 30$ нм, покры-

тая толщиной по $t = 45$ нм были выполнены из серебра, а система отверстий имела размеры $a_x = a_y = 600$ нм, $d_x = 316$ нм и $d_y = 100$ нм. Авторы отметили [21], что для тонких пленок серебра в области длин волн 1,5 мкм затухание в четыре раза меньше, чем для золотых пленок. Полученный сетчатый метаматериал характеризуется отрицательным показателем преломления и низким уровнем потерь в спектральной области 1,35–1,45 мкм, в частности, максимальное значение $\eta \cong 3$ критерия качества достигается для длины волны около 1,4 мкм при значении $\text{Re}(n) \cong -1$. Уменьшение характерных размеров структуры такого типа до значений $s = 17$ нм, $t = 40$ нм, $a_x = a_y = 300$ нм, $d_x = 102$ нм, $d_y = 68$ нм [22] позволило уменьшить рабочую длину волны метаматериала до 780 нм ($\text{Re}(n) \cong -0,6$), однако уровень потерь в этом случае более значителен ($\eta \approx 0,5$).

Позже была изготовлена сетчатая структура с отрицательным показателем преломления в области желтого света [15]. Структура отличалась от изображенной на рис. 1 наличием дополнительных слоев диэлектрика снизу и сверху, т. е. была пятислойной. Она состояла из слоев с толщинами (сверху вниз) 10 нм (Al_2O_3), 43 нм (Ag), 45 нм (Al_2O_3), 43 нм (Ag), 10 нм (Al_2O_3) и располагалась на подложке. Система отверстий характеризовалась размерами $a_x = a_y = 220$ нм, $d_x = d_y = 140$ нм. Перед изготовлением проводилось численное моделирование с целью оптимизации геометрических параметров для использования структуры в области длин волн желтого света. Показатель преломления полученной структуры определялся на основе экспериментальных данных по пропусканию и отражению и данных численного моделирования. В результате авторы пришли к выводу о том, что показатель преломления такого метаматериала отрицателен в спектральной области 567–602 нм. Минимальное значение показателя преломления $-0,25$ достигается на длине волны 580 нм при критерии качества $\eta \approx 0,3$.

Структуры, рассмотренные выше в данном разделе, не являются объемными. Скорее их следует рассматривать как “мономолекулярный” слой метаматериала, причем показатель преломления отрицателен для света, падающего перпендикулярно слою. В связи с этим на таких структурах непосредственное наблюдение преломления света невозможно. Соответственно, показатель преломления в этих слу-

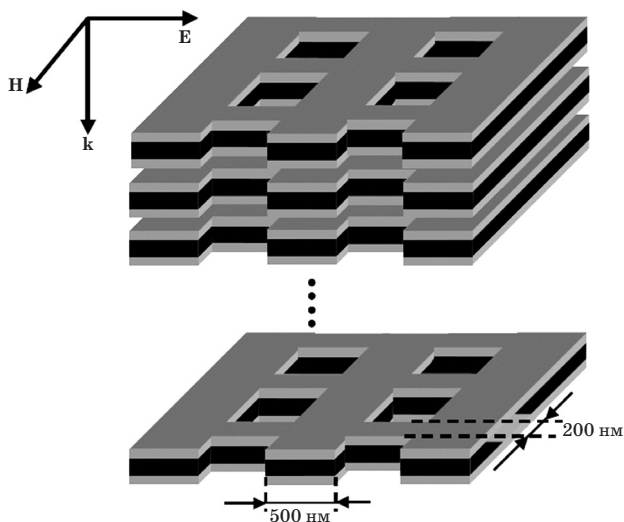


Рис. 2. Схематическое изображение фрагмента метаматериала, представляющего собой пакет из трехслойных сетчатых структур [23].

чаях определяется либо по данным о комплексных показателях отражения и пропускания такой структурой при нормальном падении света на нее, т. е. непрямым методом [20], либо рассчитывается методом численного моделирования. Для непосредственного наблюдения преломления требуется объемный метаматериал.

Объемный материал на основе сетчатых структур теоретически рассмотрен в работе [23]. В ней проведен расчет электромагнитных свойств объемных метаматериалов, представляющих собой пакеты из трехслойных сетчатых структур, по отношению к поляризованному излучению заданной ориентации (рис. 2) с длиной волны в диапазоне 1,5–2,2 мкм. Толщина воздушного промежутка между структурами составляла 5 нм, тогда как параметры трехслойных структур (толщина диэлектрика 60 нм и золотых пленок 30 нм, $a_x = a_y = 801$ нм, $d_x = 500$ нм и $d_y = 200$ нм – см. рис. 1) были выбраны такими же, как в оптимальном варианте трехслойной структуры, рассмотренном в работе [16]. Расчеты [23] были проведены для пакетов, состоящих из 1, 2, 5, 6, 10, 100 и 200 трехслойных сетчатых структур. Размер элементарной ячейки такого метаматериала в направлении распространения излучения (толщина трехмерной структуры плюс толщина воздушного промежутка) составляет 125 нм, т. е. значительно меньше рассматриваемых длин волн излучения, в то

время как толщина пакетов из 100 и 200 структур существенно превосходит длину волны. Расчеты показали, что для одной трехслойной сетчатой структуры действительная часть показателя преломления отрицательна в области длин волн 1,77–2,18 мкм. При переходе к пакету из двух и более структур область отрицательных значений смещается в коротковолновую сторону (1,5–2,0 мкм), причем наблюдается быстрая сходимости результатов расчетов по числу структур в пакете, так что рассчитанные значения действительной и мнимой частей показателя преломления практически не отличаются для пакетов из 5 и 10 структур. Значения мнимой части показателя преломления пакета малы (меньше 0,1 в интервале 1,5–2,0 мкм), в то время как значения действительной части показателя преломления пакета по абсолютной величине заметно превосходят значения, полученные для единичной структуры. В результате критерий качества пакета (т. е. объемного метаматериала) значительно больше, чем для единичной структуры [16], и достигает значений $\eta \cong 25$ в области длин волн около 1,7 мкм. Таким образом, в работе [23] теоретически показано, что пакеты из сетчатых структур являются перспективными метаматериалами для наблюдения отрицательного показателя преломления в инфракрасной области спектра.

Авторы отмечают также [23], что исключение воздушных промежутков между структурами в пакете, изображенном на рис. 2, не приводит к существенному изменению результатов расчетов. В этом случае метаматериал представляет собой слоистую структуру, в которой чередуются металлические и диэлектрические слои и проделана регулярная система отверстий с осями, перпендикулярными плоскостям слоев. Объемный материал такого типа (рис. 3) с отрицательным показателем преломления был представлен в работе [9]. А именно, была изготовлена слоистая структура, в которой чередовались слои серебра толщиной 30 нм и фторида магния толщиной 50 нм. Исходный образец состоял из 21 слоя. Сфокусированное ионное травление было использовано для получения в образце регулярной системы прямоугольных отверстий, характеризуемой периодом $a_x = a_y \equiv p = 860$ нм и размерами $d_x \equiv a = 565$ нм и $d_y \equiv b = 265$ нм. Отметим, что в силу специфики процесса изготовления размер отверстий уменьшался по мере увеличения глубины материала (рис. 3б). Из образца из-

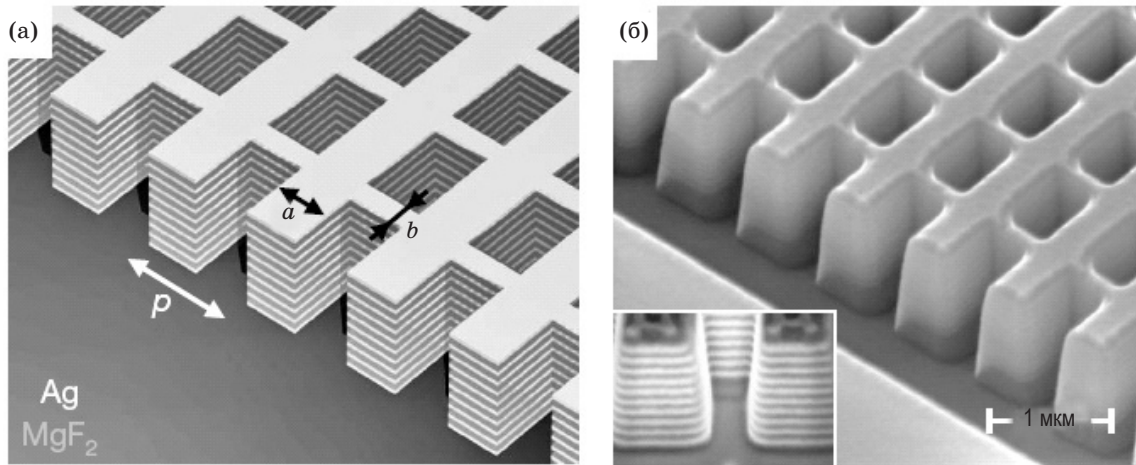


Рис. 3. Метаматериал [9], представляющий собой слоистую структуру, в которой чередуются слои серебра (светлые) и фторида магния (темные), с системой отверстий. Схематическое изображение (а) и изображение реальной структуры, полученное методом сканирующей электронной микроскопии (б).

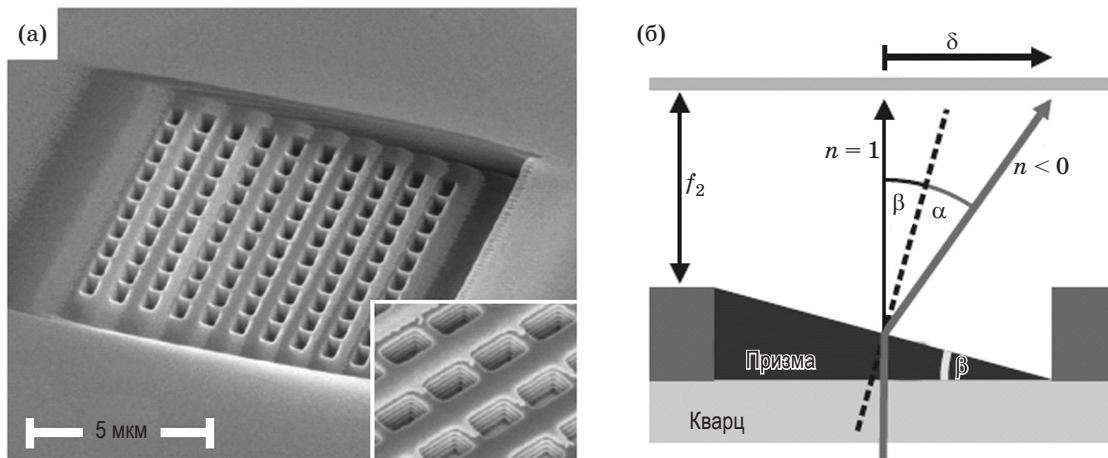


Рис. 4. Призма, изготовленная из слоистого метаматериала (а), и схема экспериментов по исследованию преломления инфракрасного излучения (б) (по работе [9]).

готовливалась призма путем обработки одной из его сторон, причем угол между необработанной и обработанной сторонами (угол при основании призмы) обозначался как β (рис. 4). Были изготовлены две призмы с углами $\beta = 5,0^\circ$ и $4,7^\circ$. Свет направлялся на призму перпендикулярно ее необработанной стороне в соответствии со схемой, изображенной на рис 2, и не менял направления распространения в метаматериале (рис. 4б). При этом угол падения на обработанную сторону призмы внутри метаматериала был равен углу β . Измерение угла преломления α при выходе из метаматериала (рис. 4б) позволяло вычис-

лить показатель преломления метаматериала непосредственно из закона Снеллиуса.¹ Если показатель преломления метаматериала отрицателен, преломленный луч располагается справа от нормали к поверхности, представленной на рис. 4б штриховой линией. Измерения, проведенные в спектральном интервале 1,2–1,775 мкм, показали, что в этом интервале

¹ Для полноты картины отметим, что такая схема измерения показателя преломления пакета из сетчатых структур была использована ранее [24] при экспериментальной демонстрации отрицательного показателя преломления для излучения с частотой около 55 ГГц ($\lambda \approx 5,5$ мм).

вещественная часть показателя преломления монотонно уменьшается с ростом длины волны от значения $n = 0,63 \pm 0,05$ при $\lambda = 1,2$ мкм до $n = -1,23 \pm 0,34$ при $\lambda = 1,775$ мкм, причем $n < 0$ для длин волн от $\cong 1,54$ мкм до $1,775$ мкм (область более длинных волн в работе не исследовалась). При этом, как отмечают авторы, период метаматериала в направлении распространения излучения (сумма толщин слоя серебра и слоя фторида магния) составляет 80 нм, т. е. значительно меньше длины волны излучения. Результаты экспериментального определения вещественной части показателя преломления находятся в удовлетворительном согласии с результатами моделирования. В то же время экспериментальная и теоретическая оценки критерия качества η значительно отличаются. При $\lambda > 1,54$ мкм экспериментально определенные значения η монотонно растут с длиной волны и максимальное значение $\eta \cong 3,5$ достигается для наибольшей исследованной длины волны $\lambda = 1,775$ мкм. Рассчитанная зависимость $\eta(\lambda)$ имеет максимум $\eta \cong 18$ при $\lambda \cong 1,72$ мкм, а для $\lambda = 1,775$ мкм моделирование дает $\eta \cong 17$. Столь значительное расхождение экспериментальных и теоретических значений η авторы объясняют несовершенством изготовленного метаматериала. Тем не менее, они отмечают, что полученное значение $\eta \cong 3,5$ находится в ряду наилучших экспериментально полученных значений, и высказывают надежду, что усовершенствование процедуры изготовления метаматериала позволит приблизиться к теоретическому значению $\eta \approx 20$.

Таким образом, сетчатые серебряно-диэлектрические структуры являются перспективными метаматериалами для наблюдения отрицательного показателя преломления в оптической области спектра. Вместе с тем следует подчеркнуть, что объемные метаматериалы этого типа, полученные к настоящему времени,

являются существенно анизотропными (в лучшем случае – одноосными, например, если пакет составлен из структур, соответствующих рис. 1 при $a_x = a_y$ и $d_x = d_y$) и демонстрируют отрицательный показатель преломления в направлении оси, перпендикулярной плоскости сетчатой структуры.

Заключение

В последние годы проводятся интенсивные исследования в области оптических метаматериалов, в том числе, метаматериалов с отрицательным показателем преломления.

Отрицательный показатель преломления в оптической области получен для метаматериалов, представляющих собой так называемые сетчатые серебряно-диэлектрические структуры. На их основе изготовлены образцы метаматериалов с отрицательным показателем преломления в том или ином интервале длин волн инфракрасной или видимой области спектра. Полученные образцы являются мономолекулярным слоем метаматериала, показатель преломления отрицателен для света, падающего перпендикулярно слою, и оценивался по косвенным данным или расчетным путем.

Наиболее впечатляющим результатом явилось получение объемного образца метаматериала с сетчатой структурой и непосредственная демонстрация отрицательного показателя преломления в области длин волн $1,54$ – $1,775$ мкм на основе закона Снеллиуса.

Изготовление оптических метаматериалов осуществляется с использованием сложных и дорогостоящих нанотехнологических процессов, так что получаемые образцы являются уникальными.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (гранты № 10-03-00458-а и № 10-02-91755) и Минобрнауки (ГК № 02.740.11.0799).

* * * * *

ЛИТЕРАТУРА

1. Ramakrishna S.A. Physics of negative refractive index materials // Reports on Progress in Physics. 2005. V. 68. № 2. P. 449–521.
2. Жилин А.А., Шепилов М.П. Метаматериалы с отрицательным показателем преломления // Оптический журнал. 2008. Т. 75. № 4. С. 57–70.
3. Шепилов М.П., Жилин А.А. Метаматериалы и проблема создания невидимых объектов: 1. Объекты с размерами меньше длины волны // Оптический журнал. 2008. Т. 75. № 12. С. 40–49.

4. *Шенилов М.П., Жилин А.А.* Метаматериалы и проблема создания невидимых объектов: 2. Невидимые оболочки, скрывающие содержащиеся в них объекты от внешнего наблюдателя // *Оптический журнал*. 2009. Т. 76. № 6. С. 40–58.
5. *Cai W., Shalaev V.* Optical metamaterials. Fundamentals and applications. New York, Dordrecht, Heidelberg, London: Springer, 2010. 200 p.
6. *Жилин А.А., Шенилов М.П.* Метаматериалы – новое направление в материаловедении // *Физ. и хим. стекла*. 2010. Т. 36. № 5. С. 657–702.
7. *Веселаго В.Г.* Электродинамика веществ с одновременно отрицательными значениями ϵ и μ // *УФН*. 1967. Т. 92. № 3. С. 517–526.
8. *Shelby R.A., Smith D.R., Schultz S.* Experimental verification of a negative index of refraction // *Science*. 2001. V. 292. № 5514. P. 77–79.
9. *Valentine J., Zhang S., Zentgraf T., Ulin-Avila E., Genov D.A., Bartal G., Zhang X.* Three-dimensional optical metamaterial with a negative refractive index // *Nature*. 2008. V. 455. № 7211. P. 376–379.
10. *Pendry J.B.* Negative refraction makes a perfect lens // *Phys. Rev. Lett.* 2000. V. 85. № 18. P. 3966–3969.
11. *Leonhardt U.* Optical conformal mapping // *Science*. 2006. V. 312. № 5781. P. 1777–1780.
12. *Pendry J.B., Schurig D., Smith D.R.* Controlling electromagnetic fields // *Science*. 2006. V. 312. № 5781. P. 1780–1782.
13. *Schurig D., Mock J.J., Justice B.J., Cummer S.A., Pendry J.B., Starr A.F., Smith D.R.* Metamaterial electromagnetic cloak at microwave frequencies // *Science*. 2006. V. 314. № 5801. P. 977–980.
14. *Boltasseva A., Shalaev V.M.* Fabrication of optical negative-index metamaterials: Recent advances and outlook // *Metamaterials*. 2008. V. 2. № 1. P. 1–17.
15. *Xiao S., Chettiar U.K., Kildishev A.V., Drachev V.P., Shalaev V.M.* Yellow-light negative-index metamaterials // *Opt. Lett.* 2009. V. 34. № 22. P. 3478–3480.
16. *Zhang S., Fan W., Malloy K.J., Brueck S.R.J., Panoiu N.C., Osgood R.M.* Near-infrared double negative metamaterials // *Opt. Exp.* 2005. V. 13. № 13. P. 4922–4930.
17. *Zhang S., Fan W., Panoiu N.C., Malloy K.J., Osgood R.M., Brueck S.R.J.* Experimental demonstration of near-infrared negative-index materials // *Phys. Rev. Lett.* 2005. V. 95. № 13. P. 137404 (4).
18. *Zhang S., Fan W., Malloy K.J., Brueck S.R.J., Panoiu N.C., Osgood R.M.* Demonstration of metal-dielectric negative-index metamaterials with improved performance at optical frequencies // *J. Opt. Soc. Amer. B*. 2006. V. 23. № 3. P. 434–438.
19. *Shalaev V.M., Cai W., Chettiar U.K., Yuan H.K., Sarychev A.K., Drachev V.P., Kildishev A.V.* Negative index of refraction in optical metamaterials // *Opt. Lett.* 2005. V. 30. № 24. P. 3356–3358.
20. *Smith D.R., Schultz S., Markoš P., Soukoulis C.M.* Determination of effective permittivity and permeability of metamaterials from reflection and transmission coefficients // *Phys. Rev. B*. 2002. V. 65. № 19. P. 195104 (5).
21. *Dolling G., Enkrich C., Wegener M., Soukoulis C.M., Linden S.* Low-loss negative-index metamaterial at telecommunication wavelengths // *Opt. Lett.* 2006. V. 31. № 12. P. 1800–1802.
22. *Dolling G., Wegener M., Soukoulis C.M., Linden S.* Negative-index metamaterial at 780 nm wavelength // *Opt. Lett.* 2007. V. 32. № 1. P. 53–55.
23. *Zhang S., Fan W., Panoiu N.C., Malloy K.J., Osgood R.M., Brueck S.R.J.* Optical negative-index bulk metamaterials consisting of 2D perforated metal-dielectric stacks // *Opt. Exp.* 2006. V. 14. № 15. P. 6778–6787.
24. *Navarro-Cía M., Beruete M., Sorolla M., Campillo I.* Negative refraction in a prism made of stacked subwavelength hole arrays // *Opt. Exp.* 2008. V. 16. № 2. P. 560–566.