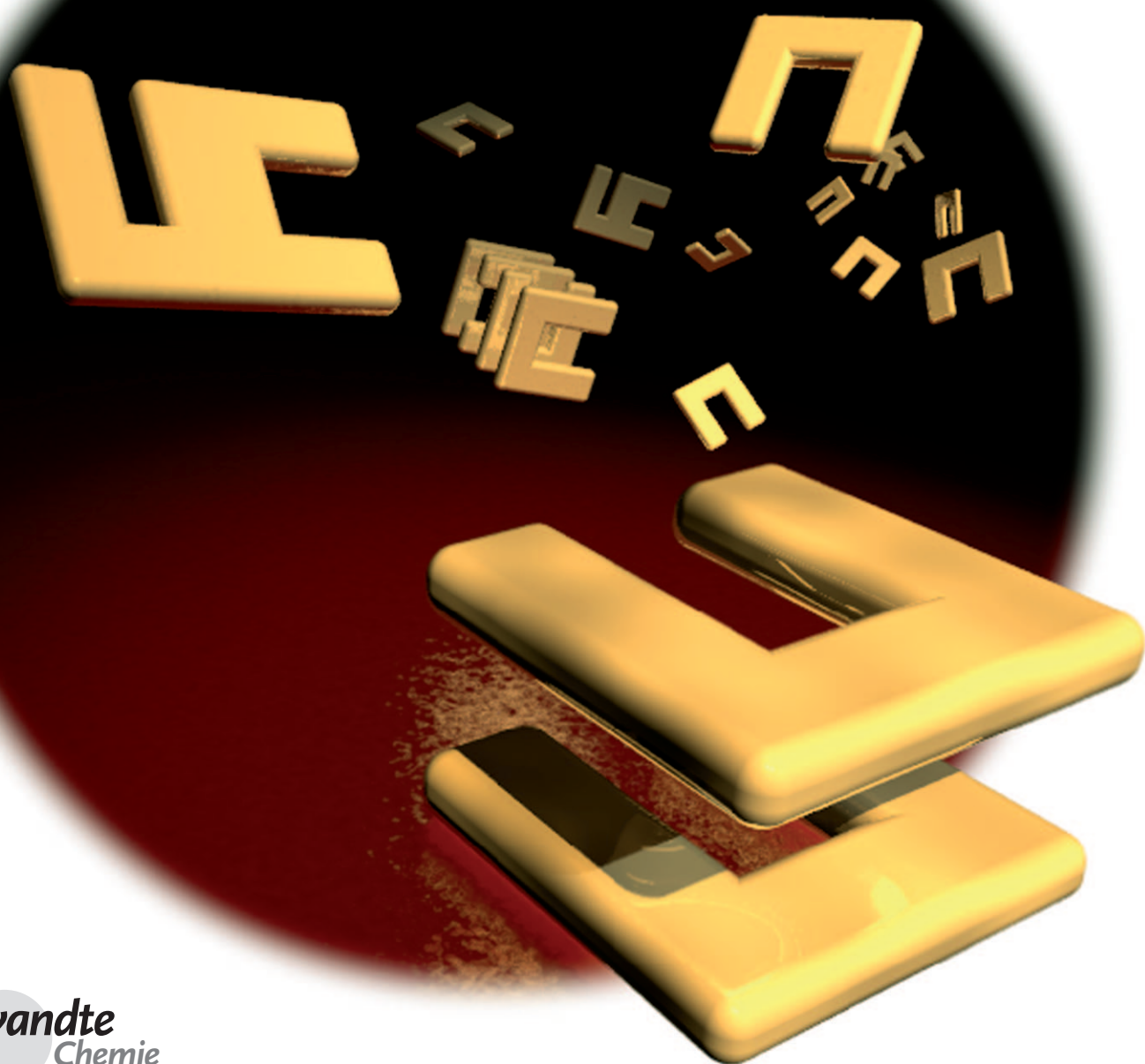


# Kopplungseffekte in optischen Metamaterialien

*Na Liu und Harald Giessen\**

**Stichwörter:**

Metamaterialien · Nanostrukturen ·  
Plasmonik · Wechselwirkungen



**M**etamaterialien haben sich zu einem sehr interessanten Gebiet der Photonik entwickelt, seit John Pendry seine Arbeiten über den negativen Brechungsindex, Tarnkappen und Unsichtbarkeit sowie über perfekte Linsen veröffentlichte. Für jegliche praktischen Anwendungen werden dreidimensionale Metamaterialien benötigt. In diesen Materialien spielen bei den optischen und elektronischen Eigenschaften Kopplungseffekte zwischen individuellen Konstituenten eine Schlüsselrolle. Metamaterialien weisen sowohl elektronische wie auch magnetische Resonanzen bei optischen Frequenzen auf. Deswegen stellen elektrische und magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkungen wie auch Multipole höherer Ordnung den essenziellen Wechselwirkungsmechanismus dar. Je nach strukturellem Aufbau können sowohl longitudinale als auch transversale Kopplungseffekte auftreten. Das detaillierte Zusammenspiel zwischen den verschiedenen Kopplungsmechanismen bei der Plasmonenhybridisierung ist ein nützliches Hilfsmittel, um den Übergang von eher molekulartigen Zuständen bis hin zu festkörperartigen Banden zu verstehen.

## Aus dem Inhalt

1. Einführung	10035
2. Theoretische Grundlagen von Dipol-Dipol-Kopplung	10036
3. Künstliche Metamaterial-„Atome“	10037
4. Laterale Kopplung von Split-Ring-Resonatoren	10038
5. Vertikales Koppeln von Split-Ring-Resonatoren (Stereometamaterialien)	10040
6. Dreidimensionale Metamaterialien	10043

## 1. Einführung

Metamaterialien sind künstliche Materialien, deren elektromagnetische Funktionalität maßgeschneidert und deren Strukturgröße sehr viel kleiner als die verwendete Lichtwellenlänge ist.<sup>[1–4]</sup> Metamaterialien bestehen oft aus metallischen Nanostrukturen, die es ermöglichen, die optischen Eigenschaften maßzuschneidern. Einfallendes Licht kann kohärente Oszillationen freier Leitungsbandelektronen anregen, die in der Metallstruktur mit finiter Größe so genannte lokalisierte Partikelplasmonen bilden.<sup>[5,6]</sup> Ihre Resonanzfrequenzen hängen von der Größe, der Form und der dielektrischen Funktion des Metalls wie auch von der dielektrischen Funktion der Umgebung ab.<sup>[7,8]</sup> Die Form der individuellen Metamaterial-Konstituenten kann sehr stark variieren: angefangen von einfachen Kugeln, Ellipsoiden oder Drähten<sup>[9,10]</sup> über Split-Ring-Resonatoren (SRRs)<sup>[11,12]</sup> und Drahtnetze<sup>[13,14]</sup> bis hin zu Mäandern.<sup>[15,16]</sup> Metamaterialien zeichnen sich durch neuartige Eigenschaften aus, die in der Natur vorkommende Materialien nicht haben. Als ein Beispiel sei negative magnetische Permeabilität genannt, die maßgeschneidert werden kann.<sup>[9–12,17]</sup> Im Zusammenspiel mit einer negativen elektrischen Permittivität<sup>[18]</sup> kann das Metamaterial dann einen negativen Brechungsindex aufweisen.<sup>[19–23]</sup> Diese außergewöhnlichen Eigenschaften sind hervorragend geeignet, um neuartige optische Bausteine wie Superlinsen<sup>[24,25]</sup> oder Hyperlinsen,<sup>[26]</sup> die die Abbesche Beugungsgrenze überwinden können, sowie optische Tarnkappen,<sup>[27–29]</sup> die Gegenstände unsichtbar machen können, herzustellen.

Für praktische Anwendungen von Metamaterialien benötigt man idealerweise dreidimensionale oder Volumenstrukturen. Wegen der geringen Größe der Metamaterial-Konstituenten und der kleinen Elementarzellengröße, die ja viel geringer sein muss als die Lichtwellenlänge, werden die geringen Abstände der Strukturen in vertikaler und lateraler

Richtung zu starker Wechselwirkung untereinander führen.<sup>[30–33]</sup> Als Folge dieser Wechselwirkung können die optischen Eigenschaften des Gesamtsystems von denen eines einzelnen Metamaterial-Elements substantiell abweichen.<sup>[32,33]</sup> Dies ist ganz analog zur Festkörperphysik, wo ebenfalls die elektronischen Eigenschaften eines ausgedehnten Festkörpers sehr verschieden von denen der konstituierenden Atome sein können. Als Beispiel kann Kohlenstoff dienen, bei dem sich die optischen Eigenschaften eines einzelnen Atoms sehr von denen bei Graphit oder Diamant unterscheiden.<sup>[34]</sup> Dieses Beispiel verdeutlicht ebenfalls, dass auch die Anordnung der Elementarzelle im Gitter des Festkörpers wesentlich für die Eigenschaften ist.

Wir möchten unseren Aufsatz über Kopplungseffekte in optischen Metamaterialien in sechs Abschnitte unterteilen: Zuerst werden wir die fundamentalen Prinzipien von Dipol-Dipol-Wechselwirkung im elektrischen Regime erläutern.<sup>[35]</sup> Dann werden wir von sehr einfachen plasmonischen Strukturen wie Gold-Nanodrähten ausgehen und ihr resonantes Verhalten diskutieren. Anschließend werden wir Dimere aus Gold-Nanodrähten untersuchen, die sowohl transversal als auch longitudinal gekoppelt werden können. Insbesondere

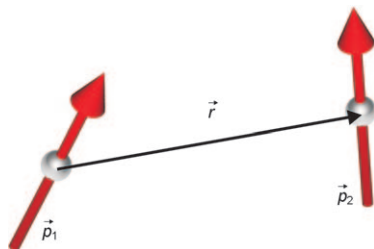
[\*] Prof. Dr. H. Giessen  
4. Physikalisches Institut und Research Center SCOPE  
Universität Stuttgart  
Pfaffenwaldring 57, 70569 Stuttgart (Deutschland)  
Fax: (+49) 711-685-65097  
E-Mail: giessen@physik.uni-stuttgart.de  
Homepage: <http://www.pi4.uniso-stuttgart.de/NeueSeite/index.html>

Dr. N. Liu  
Materials Science Division  
Lawrence Berkeley National Laboratory  
Berkeley, CA 94720 (USA)

werden wir auf die Möglichkeit hinweisen, dieses Design als künstliches „magnetisches Atom“ zu verwenden.<sup>[17]</sup> Danach werden wir ein weiteres magnetisches „Atom“ betrachten: den Split-Ring-Resonator, der uns einen weiteren Freiheitsgrad bei der Kopplung gibt,<sup>[11,12]</sup> nämlich den magnetischen. Bei der Kopplung von mehreren Split-Ring-Resonatoren muss außer der elektrischen auch die magnetische Wechselwirkung betrachtet werden.<sup>[36–39]</sup> Wir werden danach gekoppelte Strukturen aus Split-Ring-Resonatoren mit verschiedenem Komplexitätsgrad untersuchen. Schließlich werden wir verschiedene dreidimensionale Metamaterialien, die aus unterschiedlichen gestapelten Strukturen bestehen, anschauen und ihre Kopplungsmechanismen erläutern.<sup>[40–42]</sup> Wir hoffen, dass das Verständnis grundlegender Kopplungsmechanismen signifikante Einblicke in das Design und die Optimierung von optischen Eigenschaften und von resonantem Verhalten bietet.

## 2. Theoretische Grundlagen von Dipol-Dipol-Kopplung

In einem einfachen quasistatischen Bild, in dem zwei elektrische oder magnetische Dipole zusammenge koppelt werden, ist die Herleitung der Wechselwirkungsenergie unproblematisch. Für einfache Geometrien reicht es aus, longitudinale oder transversale Wechselwirkung zu betrachten. Wir möchten uns in einer ersten Näherung nur auf Dipol-Dipol-Wechselwirkung beschränken, obwohl in Metamaterialien auch Multipole höherer Ordnung eine wesentliche Rolle spielen können.<sup>[38,43,44]</sup>



**Abbildung 1.** Die Wechselwirkung zwischen zwei Dipolen  $\vec{p}_1$  und  $\vec{p}_2$  mit  $\vec{r}$  als zentralem Verbindungsvektor.

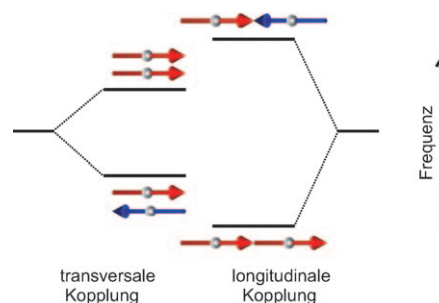
Abbildung 1 zeigt zwei Dipole mit Dipolmomenten  $\vec{p}_1$  und  $\vec{p}_2$  (entweder elektrisch oder magnetisch), die über die Distanz  $r$  miteinander wechselwirken. Die quasistatische Wechselwirkungsenergie  $V$  ist gegeben durch Gleichung (1), mit  $\hat{r}$  als Einheitsvektor von  $\vec{p}_1$  nach  $\vec{p}_2$ . Dieser Ausdruck reduziert sich für rein transversale (seitliche Anordnung) oder rein longitudinale (längs ausgerichtete) Anordnung auf Gleichung (2), mit  $\gamma$  als Wechselwirkungsindex, der +1 für transversale Kopplung und –2 für longitudinale Kopplung beträgt;  $p_1$  und  $p_2$  sind die Beträge der Dipolmomente.

$$V = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left( \frac{\vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2}{r^3} - \frac{3(\vec{p}_1 \cdot \vec{r})(\vec{p}_2 \cdot \vec{r})}{r^5} \right) \quad (1)$$

$$= \frac{\vec{p}_1 \cdot \vec{p}_2 - 3(\vec{p}_1 \cdot \hat{r})(\vec{p}_2 \cdot \hat{r})}{4\pi\epsilon_0 r^3}$$

$$V = \gamma \frac{p_1 \cdot p_2}{4\pi\epsilon_0 r^3} \quad (2)$$

Abbildung 2 zeigt das Niveauschema zweier gekoppelter Dipole im Falle transversaler und longitudinaler Kopplung. Bei transversaler Kopplung (z. B. für zwei elektrische Dipole) ziehen lateral gekoppelte Dipole in antisymmetrischer Anordnung einander an. Sie verringern die Rückstellkraft bei der Oszillation und führen dadurch zu einer Absenkung der Resonanzfrequenz des gekoppelten Systems. Im Unterschied dazu sind zwei symmetrisch angeordnete Dipole repulsiv. Die gleichsinnig angeordneten Ladungen führen zu vergrößerter Rückstellkraft und erhöhen die Resonanzfrequenz des gekoppelten Systems. Genau das Gegenteil geschieht im Falle



**Abbildung 2.** Niveauschema zweier gekoppelter Dipole. Links: transversale Kopplung. Rechts: longitudinale Kopplung. Die vertikale Achse ist die Resonanzfrequenz.



Na Liu wurde 1979 in Shenyang (China) geboren. Sie erhielt 2001 ihren BSc von der Jilin-Universität (China) und 2005 ihren MSc von der Hongkong University of Science and Technology. Sie promovierte 2009 am 4. Physikalischen Institut der Universität Stuttgart. Daraufhin ging sie als Postdoktorandin zum Lawrence Berkeley Labor der University of California at Berkeley. Ihre Forschungsinteressen gelten den Gebieten Design, Fabrikation, Charakterisierung und physikalische Effekte in photonischen und plasmonischen Nanostrukturen.



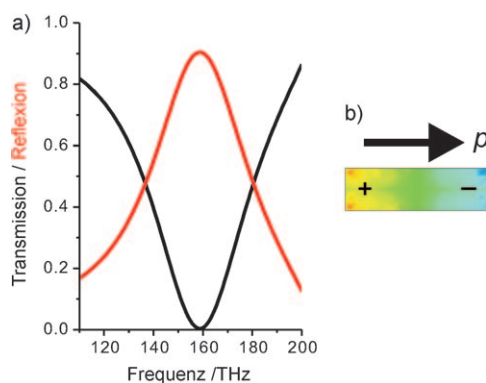
Harald Giessen ist Direktor am 4. Physikalischen Institut der Universität Stuttgart. Er schloss 1992 sein Studium an der Universität Kaiserslautern mit dem Diplom in Physik ab. Den MSc und PhD in Optical Sciences erhielt er 1994 bzw. 1995 als J. W. Fulbright Stipendiat am Optical Sciences Center der University of Arizona. Nach Postdoktoraten am MPI für Festkörperforschung (Stuttgart) und der Universität Marburg war er 2001–2004 C3-Professor an der Universität Bonn. Seit 2005 ist er C4-Professor in Stuttgart. Er befasst sich mit ultraschneller Nano-Optik, insbesondere mit Metamaterialien und Plasmonik sowie Weißlichtlasern.

longitudinal gekoppelter Dipole: dort führt eine symmetrische Anordnung zur Anziehung entgegengesetzter Ladungen und zur Reduktion der Rückstellkraft, was wiederum die Resonanzfrequenz des gekoppelten Systems absenkt. Die höherfrequente Mode wird durch die antisymmetrische longitudinale Anordnung der beiden Dipole repräsentiert, wobei die Abstoßung gleichnamiger Ladungen zu einer erhöhten Rückstellkraft der Oszillatoren führt. Ganz analog führt die Abstoßung und Anziehung der Nord- und Südpole im Falle magnetischer Dipole für transversale und longitudinale Kopplung zu erhöhter und reduzierter magnetischer Wechselwirkung und dadurch zu einer höheren bzw. abgesenkten Resonanzfrequenz des gekoppelten Systems.

### 3. Künstliche Metamaterial-„Atome“

#### 3.1. Einzelne Metall-Nanopartikel

Wir wollen zu Beginn die optischen Eigenschaften eines einzelnen metallischen Nanopartikels betrachten, z.B. eines Gold-Nanodrahts der Größe  $500 \times 150 \times 50 \text{ nm}^3$ . Diese Nanostruktur befindet sich auf einem Glassubstrat und wird mit Licht aus senkrechter Einfallrichtung beleuchtet, das entlang der längeren Achse des Nanodrahts linear polarisiert ist. Wie Abbildung 3a zeigt, kann eine Resonanz im Spektrum um 160 THz herum (ca. 1870 nm oder  $5340 \text{ cm}^{-1}$ ) beobachtet werden. Mit dieser Resonanz verbunden ist die Anregung eines elektrischen Dipolmoments im Nanodraht, das sich von den positiven zu den negativen Ladungen erstreckt (Abbildung 3b).<sup>[5–7]</sup> Die gesamten simulierten Spektren und Feldverteilungen in diesem Aufsatz sind mit dem Software-Paket CST-Microwave-Studio durchgeführt worden.



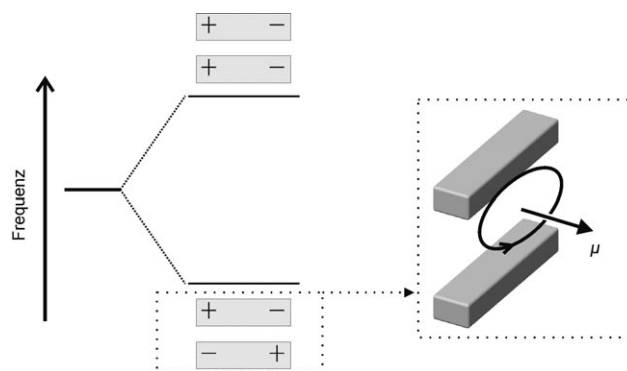
**Abbildung 3.** a) Simulierte Transmissions- und Reflexionsspektren einer Gold-Nanodraht-Struktur. Das senkrecht einfallende Licht ist entlang der längeren Achse des Nanodrahts polarisiert. b) Elektrische Feldverteilung bei der Resonanzfrequenz. Positive (rot) und negative Ladungen (blau) werden an den Enden des Nanodrahts angeregt. Dies entspricht der Anregung eines elektrischen Dipolmoments.

#### 3.2. Gekoppeltes metallisches Nanodrahtpaar als magnetisches „Atom“

Im Weiteren betrachten wir zwei Gold-Nanodrähte mit einem endlichen Abstand.<sup>[9,11,17,45–47]</sup> Wegen des geringen

Abstandes sind die beiden Nanodrähte stark gekoppelt. Die Wechselwirkung kann die Entartung der plasmonischen Moden der einzelnen Nanodrähte aufheben und führt zu zwei neuen Moden aufgrund der Plasmonenhybridisierung.<sup>[48–52]</sup> Eine Mode weist eine symmetrische Ausrichtung der beiden elektrischen Dipole auf, die andere Mode eine antisymmetrische. Dieses Plasmonenhybridisierungsbild, eingeführt von Peter Nordlander, demonstriert überzeugend die Analogie zwischen Plasmonenresonanzen von Metall-Nanopartikeln und Wellenfunktionen von einfachen Atomen und Molekülen.<sup>[48–52]</sup> Die Zuordnung, welche Anordnung der niederfrequenten und welche der höherfrequenten Mode entspricht, hängt empfindlich davon ab, wie die beiden Nanodrähte relativ zueinander angeordnet sind. Dies wird ausführlich im Abschnitt 2 dieses Aufsatzes beschrieben.<sup>[40,53–55]</sup>

Die antisymmetrische Mode wird in der transversalen Anordnung auch „magnetische Resonanz“ genannt.<sup>[17,45–47]</sup> Die Grund für diese Terminologie ist wie folgt: Die antisymmetrischen Ströme in den beiden Drähten, zusammen mit den Verschiebeströmen zwischen den Drähten, können zur resonanten Anregung eines magnetischen Dipolmomentes führen (Abbildung 4), was eine magnetische Antwort des Systems zur Folge hat.



**Abbildung 4.** Transversale Kopplung zweier metallischer Nanodrähte. Ein magnetisches Dipolmoment kann durch die antisymmetrische Mode angeregt werden und wirkt als magnetisches „Atom“.

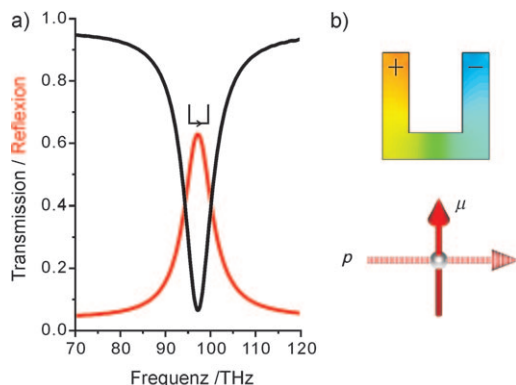
Daher können zwei Nanodrähte in gestapelter Anordnung als magnetisches „Atom“ angesehen werden – ein fundamentaler Baustein von Metamaterialien. Wie wir später zeigen werden, kann man gestapelte Metamaterialien durch die Kombination aus mehreren Lagen dieser „Atome“ herstellen und muss die Kopplungseigenschaften zwischen den „Atomen“ berücksichtigen.<sup>[40]</sup>

#### 3.3. Metallische Split-Ring-Resonatoren als magnetische „Atome“

Die Split-Ring-Resonatorstruktur ist ein weiterer Baustein für Metamaterialien.<sup>[11,12]</sup> Sie wurde in weiten Bereichen genutzt, um Materialien mit negativer Permeabilität oder sogar negativem Brechungsindex herzustellen, wenn sie mit Materialien kombiniert wurde, die ausgedehnte Drähte enthielten.<sup>[19–23]</sup> Fällt linear polarisiertes Licht senkrecht auf die



offene Seite des Split-Rings,<sup>[56]</sup> können elektrische dipolartige Plasmonen im gesamten Split-Ring angeregt werden. Diese haben ein magnetisches Dipolmoment senkrecht zur Split-Ring-Ebene zur Folge (Abbildung 5). Ordnet man nun zwei

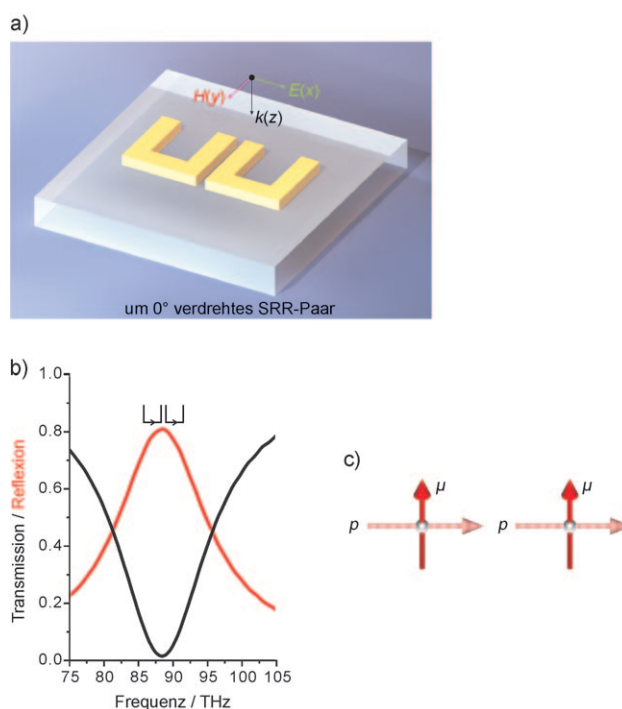


**Abbildung 5.** a) Simulierte Transmissions- und Reflexionsspektren einer Gold-Split-Ring-Struktur auf einem Glassubstrat. Die Größe des Split-Rings beträgt  $400 \times 400 \text{ nm}^2$ . Die Armbreite beträgt  $100 \text{ nm}$ , und das Gold ist  $50 \text{ nm}$  dick. Das senkrecht einfallende Licht ist entlang der Öffnung des Split-Rings linear polarisiert. Das Symbol stellt die Ströme im Split-Ring an der Resonanz dar. b) Die elektrische Feldverteilung an der Resonanz. Elektrische dipolartige Plasmonen werden entlang des gesamten Split-Rings angeregt und haben ein magnetisches Moment senkrecht zur Split-Ring-Ebene zur Folge. Der durchgezogene und gestrichelte Pfeil stellen magnetisches und elektrisches Dipolmoment dar.

solcher Split-Ring-„Atome“ in verschiedenen Konfigurationen an, z. B. Seite an Seite oder übereinander, werden auf die magnetischen Dipole ähnliche Kopplungsregeln wie im Falle der elektrischen Dipole anwendbar. Für Split-Ringe ist das Kopplungsverhalten aber komplexer als bei metallischen Nanopartikeln, da sowohl die elektrische als auch die magnetische Kopplung betrachtet werden müssen. Zudem ist es nicht von vorneherein offensichtlich, welcher Kopplungsmechanismus dominiert. Wie wir später zeigen werden, ist es möglich, die elektrische oder magnetische *dipolare* Kopplung zu reduzieren oder sogar auszuschalten und nur die magnetische Kopplung übrig zu behalten,<sup>[36,38,42]</sup> was wiederum unser Verständnis der Kopplungsmechanismen in den recht komplexen Metamaterialien vereinfacht.

#### 4. Laterale Kopplung von Split-Ring-Resonatoren

In diesem Abschnitt werden wir planare Split-Ring-Dimere untersuchen, die aus lateral gekoppelten Split-Ring-Paaren bestehen und die einen bestimmten Verdrehungswinkel gegeneinander aufweisen.<sup>[36]</sup> Zuerst wollen wir die Konfiguration mit  $0^\circ$  Verdrehung betrachten (Seite-an-Seite; Abbildung 6a). Die Polarisation des senkrecht einfallenden Lichtfeldes ist entlang der Öffnung der Split-Ringe. In diesem Falle kann das Licht einen Strom in den Split-Ringen anwerfen, der die Anregung zweier elektrischer Dipole an den Split-Ring-Enden zur Folge hat. Gleichzeitig entstehen durch den Kreisstrom zwei magnetische Dipole, die senkrecht zur

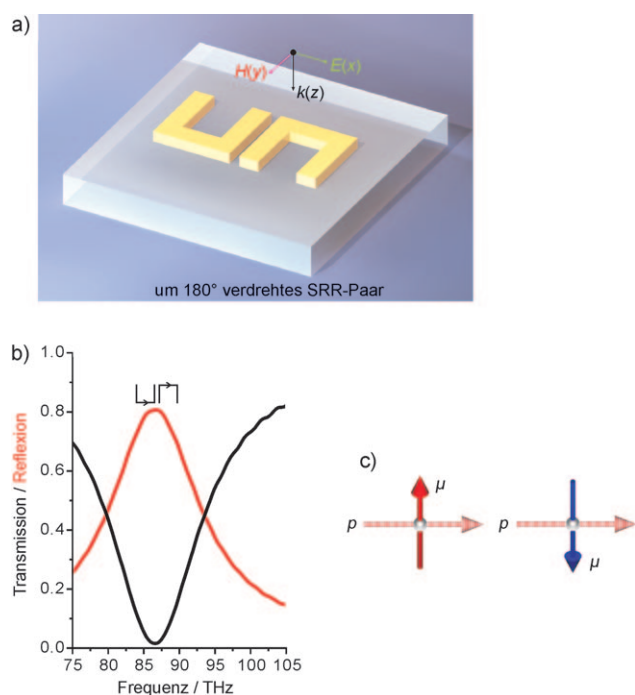


**Abbildung 6.** a) Schemazeichnung der um  $0^\circ$  verdrehten Split-Ring-Paare auf einem Glassubstrat. Die Größe jedes Split-Rings beträgt  $400 \times 400 \text{ nm}^2$ . Die Armbreite ist  $100 \text{ nm}$  und die Goldstärke  $50 \text{ nm}$ . Die Lücke zwischen den Split-Ringen beträgt  $50 \text{ nm}$ . Das senkrecht einfallende Licht ist entlang der x-Richtung polarisiert. b) Simulierte Transmissions- und Reflexionsspektren des um  $0^\circ$  verdrehten Split-Ring-Paares. Die Symbole stellen die Ströme in den Split-Ringen bei der Resonanzfrequenz dar. c) Schemazeichnung der Ausrichtung der magnetischen und elektrischen Dipole in den beiden Split-Ringen auf der Resonanzfrequenz. Durchgezogene und gestrichelte Pfeile stellen magnetische und elektrische Dipolmomente dar. Wiedergabe aus Lit. [36].

Split-Ring-Ebene ausgerichtet sind. In Folge dessen sind die beiden elektrischen Dipole longitudinal gekoppelt, während die beiden magnetischen Dipole transversal gekoppelt sind. Da zwischen den beiden Split-Ringen keine Phasenverzögerung bei der Anregung auftritt (aufgrund des senkrechten Lichteinfalls), bleibt die Anregung symmetrisch. Daher zeigt das Spektrum des um  $0^\circ$  verdrehten Split-Ring-Paares nur eine einzige Resonanz (Abbildung 6b). Bei der Resonanzfrequenz sind die beiden elektrischen wie auch die magnetischen Dipole parallel ausgerichtet (Abbildung 6c). Schräger Lichteinfall würde einen Symmetriebruch bewirken und eine laterale Phasenverschiebung zwischen den Split-Ringen bewirken, was eine schwach erlaubte antisymmetrische Mode beobachtbar machen würde.<sup>[57]</sup>

Ganz ähnlich verhält sich das um  $180^\circ$  verdrehte Split-Ring-Paar aus Abbildung 7a: Wegen der fehlenden Phasenverzögerung beobachten wir nur eine einzige Resonanz im Spektrum (Abbildung 7b). Bei der Resonanzfrequenz sind beide elektrischen Dipole parallel ausgerichtet, wogegen die magnetischen Dipole antiparallel ausgerichtet sind. Dies ist eine direkte Folge der  $180^\circ$ -Drehung des rechten Split-Rings (Abbildung 7c).

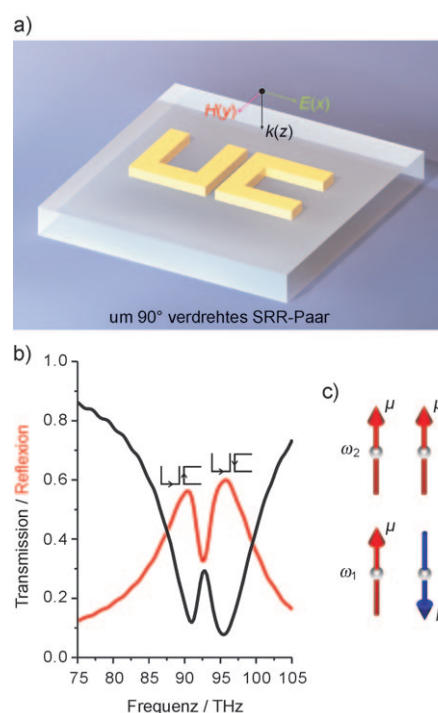
Die Situation wird komplizierter für um  $90^\circ$  verdrehte Split-Ring-Paare<sup>[36,58]</sup> wie das in Abbildung 8a gezeigte.



**Abbildung 7.** a) Schemazeichnung der um  $180^\circ$  verdrehten Split-Ring-Paare auf einem Glassubstrat. Die Größe jedes Split-Rings beträgt  $400 \times 400 \text{ nm}^2$ . Die Armbreite ist  $100 \text{ nm}$  und die Golddicke  $50 \text{ nm}$ . Die Lücke zwischen den Split-Ringen beträgt  $50 \text{ nm}$ . Das senkrecht einfallende Licht ist entlang der  $x$ -Richtung polarisiert. b) Simulierte Transmissions- und Reflexionsspektren des um  $180^\circ$  verdrehten Split-Ring-Paares. Die Symbole stellen die Ströme in den Split-Ringen bei der Resonanzfrequenz dar. c) Schemazeichnung der Ausrichtung der magnetischen und elektrischen Dipole in den beiden Split-Ringen auf der Resonanzfrequenz. Durchgezogene und gestrichelte Pfeile stellen magnetische und elektrische Dipolmomente dar. Wiedergabe aus Lit. [36].

Wegen der Ausrichtung der Split-Ringe in Bezug auf die einfallende Lichtpolarisation können keine Kreisströme auf direktem Wege im rechten Split-Ring angeregt werden. Dadurch entsteht eine Phasenverzögerung zwischen den beiden Split-Ring-Elementen. Das einfallende Lichtfeld koppelt nur direkt an den linken Split-Ring. Bei der Resonanzfrequenz kann Anregungsenergie durch induktive Kopplung vom linken in den rechten Split-Ring transferiert werden.<sup>[59–61]</sup>

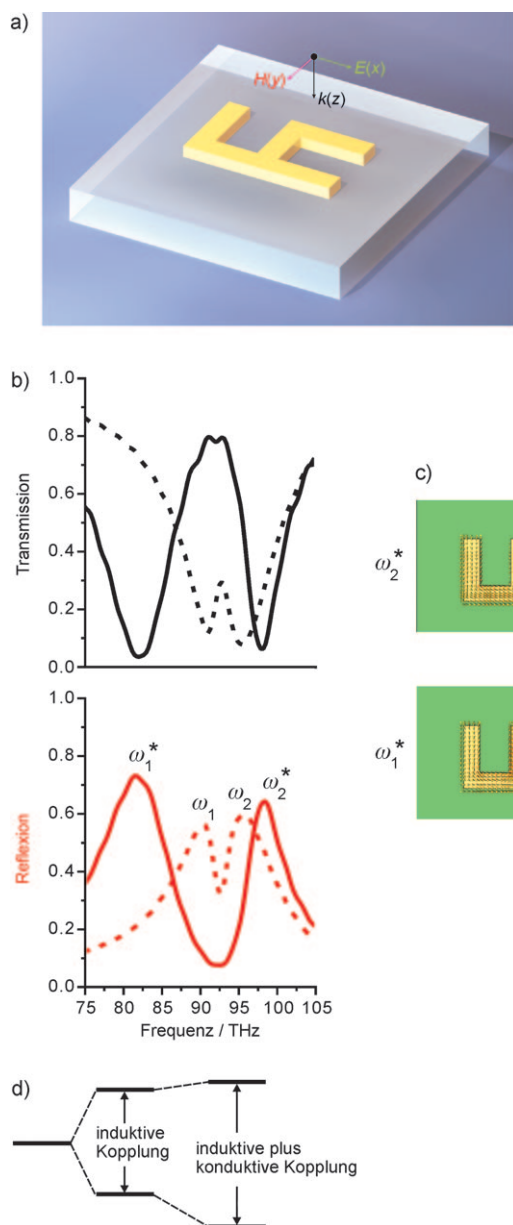
Wegen der Tatsache, dass die elektrischen Dipolmomente in den beiden Split-Ringen senkrecht aufeinander stehen, ist die Dipol-Dipol-Wechselwirkung in erster Näherung null.<sup>[36,38,42]</sup> Als Folge davon spielt die Kopplung zwischen den beiden magnetischen Dipolen die Schlüsselrolle und führt zur spektralen Aufspaltung der Resonanz (Abbildung 8b). In Analogie zu den Zuständen zweier einfacher Atome, die miteinander in Molekülorbitale hybridisieren,<sup>[48–52]</sup> nennen wir das resultierende gekoppelte System ein „Split-Ring-Molekül“, bei dem die beiden „Split-Ring-Atome“ induktiv gekoppelt sind und die strukturelle Asymmetrie nutzen.<sup>[62–64]</sup> Die beiden magnetischen Dipole sind antiparallel bei der niedrigeren Resonanzfrequenz und parallel bei der höheren Resonanzfrequenz ausgerichtet (Abbildung 8c). Dies geht einher mit dem Hybridisierungsbild zweier transversal gekoppelter Dipole. Bei der antisymmetrischen Mode ziehen sich die Nord- und Südpole der benachbarten magnetischen



**Abbildung 8.** a) Schemazeichnung der um  $90^\circ$  verdrehten Split-Ring-Paare auf einem Glassubstrat. Die Größe jedes Split-Rings beträgt  $400 \times 400 \text{ nm}^2$ . Die Armbreite ist  $100 \text{ nm}$  und die Golddicke  $50 \text{ nm}$ . Die Lücke zwischen den Split-Ringen beträgt  $50 \text{ nm}$ . Das senkrecht einfallende Licht ist entlang der  $x$ -Richtung polarisiert. b) Simulierte Transmissions- und Reflexionsspektren des um  $90^\circ$  verdrehten Split-Ring-Paares. Die Symbole stellen die Ströme in den Split-Ringen bei der Resonanzfrequenz dar. c) Schemazeichnung der Ausrichtung der magnetischen und elektrischen Dipole in den beiden Split-Ringen auf der Resonanzfrequenz. Durchgezogene Pfeile stellen magnetische Dipolmomente dar. Wiedergabe aus Lit. [36].

Dipole an und führen daher zu einer Absenkung der Resonanzfrequenz. Bei der symmetrischen Mode stoßen sich die Pole mit gleichem Vorzeichen ab, was zu einer höheren Resonanzfrequenz führt.

Die elektromagnetische Kopplungsstärke zwischen den um  $90^\circ$  verdrehten Split-Ringen kann verändert werden, indem man ihren Abstand verändert. Wegen der horizontalen Seite-an-Seite-Anordnung kann der Abstand zwischen den Mitten der Split-Ringe nicht signifikant verkleinert werden. Eine größere Kopplungsstärke ist für vertikal gestapelte Split-Ringe zu erwarten, die longitudinal gekoppelt sind und einen sehr kleinen Abstand zueinander haben können (siehe Abschnitt 5).<sup>[38,65]</sup> Um die Kopplungsstärke beim planaren Split-Ring-Paar effizient zu erhöhen, kann man die beiden Split-Ringe physikalisch verbinden, wie in Abbildung 9a gezeigt. Dies nennen wir „leitende“ (konduktive) Kopplung, im Unterschied zur vorigen, rein induktiven Kopplung.<sup>[36,37]</sup> Die simulierten Spektren sind in Abbildung 9b dargestellt. Um einen direkten Vergleich zu ermöglichen, ist das Spektrum aus Abbildung 8b noch einmal als gestrichelte Kurve in Abbildung 9b eingefügt. Für die verbundene Struktur ist die spektrale Aufspaltung, die ja mit der elektromagnetischen Kopplungsstärke verbunden ist, substantiell erhöht. Insbesondere zeigt die antisymmetrische Mode (bei der niedrige-



**Abbildung 9.** a) Schemazeichnung der verbundenen Split-Ring-Paare auf einem Glassubstrat. Die Größe jedes Split-Rings beträgt  $400 \times 400 \text{ nm}^2$ . Die Armbreite ist  $100 \text{ nm}$  und die Goldstärke  $50 \text{ nm}$ . Das senkrecht einfallende Licht ist entlang der  $x$ -Richtung polarisiert. b) Simulierte Transmissions- und Reflexionsspektren des um  $180^\circ$  verdrehten Split-Ring-Paares. Die Spektren aus Abbildung 8b wurden noch einmal als gestrichelte Linien zum Vergleich eingezeichnet. c) Stromverteilungen bei den Resonanzfrequenzen. d) Schemazeichnung der asymmetrischen Verschiebung. Wiedergabe aus Lit. [36].

ren Resonanzfrequenz) eine Rotverschiebung, die stärker als die Blauverschiebung der symmetrischen Mode (bei der höheren Resonanzfrequenz) ist. Um die Physik hinter dieser asymmetrischen Verschiebung zu verdeutlichen, sind in Abbildung 9c Stromverteilungen bei den jeweiligen Resonanzfrequenzen dargestellt. Im Falle der antisymmetrischen Mode wirkt der verbindende Teil als Brücke zwischen den beiden Split-Ringen. Dies ermöglicht den Strömen, additiv für beide

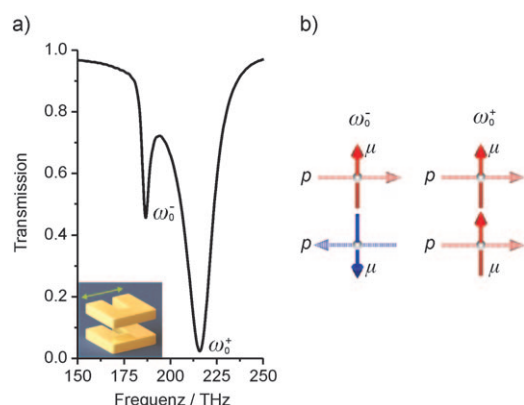
Konstituenten zu wirken. Die Folge ist, dass zusätzlich zum erhöhten induktiven Koppeln aufgrund des verringerten Abstandes auch noch das konduktive Koppeln der gemeinsamen Ströme zur erhöhten Kopplungsstärke beiträgt. Andererseits tragen die beiden Ströme im Falle der symmetrischen Mode subtraktiv zur Kopplung beider Konstituenten bei. Als Folge davon ist die Wechselwirkungsstärke zwischen den Split-Ringen in diesem Fall dominant induktiv. Daher zeigt die symmetrische Mode keine deutliche Verschiebung, wenn man sie mit dem Fall der getrennten, um  $90^\circ$  verdrehten Split-Ringe vergleicht. Eine Schemazeichnung der asymmetrischen Verschiebung ist in Abbildung 9d dargestellt.

## 5. Vertikales Koppeln von Split-Ring-Resonatoren (Stereometamaterialien)

In diesem Abschnitt untersuchen wir eine Reihe von vertikal gekoppelten Split-Ring-Dimeren. Jede Dimer-Elementarzelle besteht aus zwei gestapelten Split-Ringen mit identischer Geometrie, jedoch können die beiden Split-Ringe räumlich mit verschiedenen Verdrehungswinkeln angeordnet sein. Wir geben diesen Strukturen den Namen „Stereometamaterialien“<sup>[38]</sup> in Analogie zum Konzept der Stereoisomere in der Stereochemie,<sup>[66]</sup> wo Atome in Molekülen mit unterschiedlichen dreidimensionalen Konfigurationen angeordnet sind. Wir werden zeigen, dass die optischen Eigenschaften dieser Stereo-Split-Ring-Dimere grundlegend verändert werden können, indem man die Verdrehungswinkel zwischen den beiden Split-Ring-„Atomen“ verändert. Dies rührt von der Variation der Wechselwirkung her,<sup>[38]</sup> insbesondere von der Abhängigkeit der elektrischen und magnetischen Kopplung als Funktion der räumlichen Anordnung der Split-Ring-Elemente.

### 5.1. Spektrale Eigenschaften von Stereometamaterialien

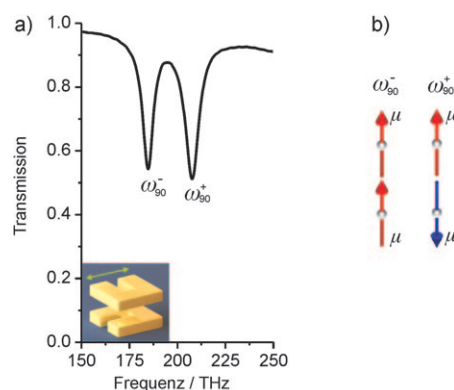
Wir betrachten zuerst um  $0^\circ$  verdrehte Split-Ring-Dimere. Zwei Resonanzen tauchen im simulierten Spektrum auf (wir benennen sie mit  $\omega_0^-$  und  $\omega_0^+$ ; Abbildung 10a). Das senkrecht einfallende Licht ist entlang der Öffnung des oberen Split-Rings polarisiert. Die elektrische Komponente des einfallenden Lichts kann Kreisströme entlang der beiden Split-Ringe anregen und sorgt für induzierte magnetische Dipolmomente. Wie in Abbildung 10b gezeigt wird, oszillieren die beiden elektrischen Dipole in den beiden Split-Ringen gegenphasig bei Resonanz  $\omega_0^-$  und gleichphasig bei Resonanz  $\omega_0^+$ . Die damit assoziierten magnetischen Dipolmomente sind antiparallel und parallel bei den Resonanzen  $\omega_0^-$  bzw.  $\omega_0^+$  ausgerichtet. Im Rahmen des Hybridisierungsmodells<sup>[48–52]</sup> sind die beiden Split-Ring-„Atome“ wegen der starken gegenseitigen Wechselwirkung zu einem Split-Ring-Dimer oder „Molekül“ verbunden. Diese Wechselwirkung führt zur Bildung neuer plasmonischer Moden, die aus der Hybridisierung der individuellen Split-Ring-Moden entstehen. Die beiden angeregten elektrischen Dipole sind transversal gekoppelt, die beiden magnetischen Dipole longitudinal.



**Abbildung 10.** a) Simuliertes Transmissionsspektrum für um 0° verdrehte Split-Ring-Dimere. Die Größe jedes Split-Rings beträgt  $230 \times 230 \text{ nm}^2$ . Die Armbreite ist 90 nm und die Golddicke 50 nm. Der vertikale Abstand zwischen den Split-Ringen ist 50 nm. Die Struktur ist in Luft eingebettet. Das senkrecht einfallende Licht ist entlang der Öffnung des oberen Split-Rings linear polarisiert. b) Schemazeichnung der Ausrichtungen der magnetischen und elektrischen Dipole in den beiden Split-Ringen bei den verschiedenen Resonanzfrequenzen. Durchgezogene und gestrichelte Pfeile stellen magnetische und elektrische Dipolmomente dar. Wiedergabe aus Lit. [38] mit Genehmigung der Nature Publishing Group.

Im Falle der transversalen Dipol-Dipol-Wechselwirkung stellt die antisymmetrische Mode den Zustand bei niedrigerer Frequenz dar, während die symmetrische Mode den höherfrequenten Zustand bildet. Im Unterschied dazu sollte bei der longitudinalen Dipol-Dipol-Kopplung magnetischer Dipole die Ausrichtung parallel bei der niedrigeren und antiparallel bei der höheren Resonanzfrequenz sein. Im Falle der um 0° verdrehten, gestapelten Split-Ringe ist offensichtlich, dass die transversale elektrische Dipolkopplung über die longitudinale magnetische Dipolkopplung dominiert, denn die niederfrequente Mode hat antisymmetrische Ausrichtung, während die höherfrequente symmetrische Ausrichtung aufweist. Die beiden Kopplungsmechanismen – elektrische und magnetische Dipolwechselwirkung – wirken im Prinzip gegeneinander, und die elektrische Wechselwirkung dominiert das ganze System. Wir werden später sehen, dass dieses Gegeneinanderwirken dazu führt, dass die Aufspaltung der beiden Resonanzfrequenzen nicht so groß ist wie z.B. im Falle der um 180° verdrehten Anordnung.

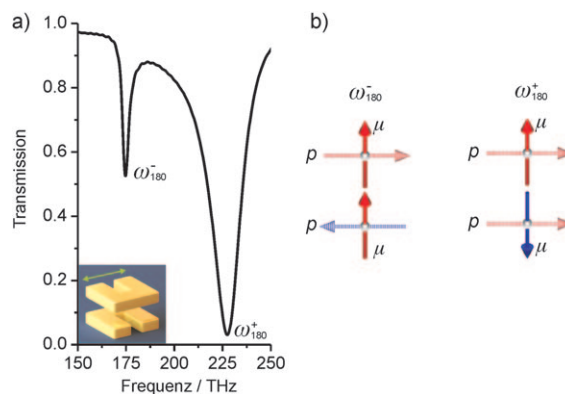
Für die um 90° verdrehten Split-Ring-Dimere können Kreisströme nicht direkt im unteren Split-Ring angeregt werden, da das einfallende Licht nicht entlang der Split-Ring-Öffnung polarisiert ist. Trotzdem kann für das gekoppelte Dimersystem bei der Resonanzfrequenz Anregungsenergie aufgrund induktiver Kopplung vom oberen zum unteren Split-Ring transferiert werden.<sup>[38,65]</sup> Dies führt zur Bildung neuer plasmonischer Moden ( $\omega_{90}^-$  und  $\omega_{90}^+$ ), wie in Abbildung 11a gezeigt. Weil die elektrischen Felder in den Öffnungen der beiden Split-Ringe senkrecht aufeinander stehen, ist die elektrische Dipolwechselwirkung null. Ignoriert man die elektrische Multipolwechselwirkung höherer Ordnung,<sup>[36,38,42]</sup> kann die elektrische Wechselwirkung in den um 90° verdrehten Split-Ring-Dimersystemen fürs Erste ver-



**Abbildung 11.** a) Simuliertes Transmissionsspektrum für um 90° verdrehte Split-Ring-Dimere. Die Größe jedes Split-Rings beträgt  $230 \times 230 \text{ nm}^2$ . Die Armbreite ist 90 nm und die Golddicke 50 nm. Der vertikale Abstand zwischen den Split-Ringen beträgt 50 nm. Die Struktur ist in Luft eingebettet. Das senkrecht einfallende Licht ist entlang der Öffnung des oberen Split-Rings linear polarisiert. b) Schemazeichnung der Ausrichtungen der magnetischen und elektrischen Dipole in den beiden Split-Ringen bei den verschiedenen Resonanzfrequenzen. Durchgezogene Pfeile stellen magnetische Dipolmomente dar. Wiedergabe aus Lit. [38] mit Genehmigung der Nature Publishing Group.

nachlässigt werden. Demzufolge sind die Resonanzfrequenzen durch longitudinale Dipol-Dipol-Kopplung bestimmt. Wie in Abbildung 11b gezeigt wird, sind bei den Resonanzen  $\omega_{90}^-$  und  $\omega_{90}^+$  die magnetischen Dipole parallel bzw. antiparallel ausgerichtet.

Für die um 180° verdrehten Split-Ring-Dimere führt die Wechselwirkung zwischen den einzelnen Split-Ring-Elementen zu den beiden neuen plasmonischen Moden  $\omega_{180}^-$  und  $\omega_{180}^+$  (Abbildung 12a). Wie Abbildung 12b zeigt, sind die Resonanzen  $\omega_{180}^-$  und  $\omega_{180}^+$  mit der Anregung elektrischer



**Abbildung 12.** a) Simuliertes Transmissionsspektrum für um 180° verdrehte Split-Ring-Dimere. Die Größe jedes Split-Rings beträgt  $230 \times 230 \text{ nm}^2$ . Die Armbreite ist 90 nm und die Golddicke 50 nm. Der vertikale Abstand zwischen den Split-Ringen beträgt 50 nm. Die Struktur ist in Luft eingebettet. Das senkrecht einfallende Licht ist entlang der Öffnung des oberen Split-Rings linear polarisiert. b) Schemazeichnung der Ausrichtungen der magnetischen und elektrischen Dipole in den beiden Split-Ringen bei den verschiedenen Resonanzfrequenzen. Durchgezogene und gestrichelte Pfeile stellen magnetische und elektrische Dipolmomente dar. Wiedergabe aus Lit. [38], mit Genehmigung der Nature Publishing Group.

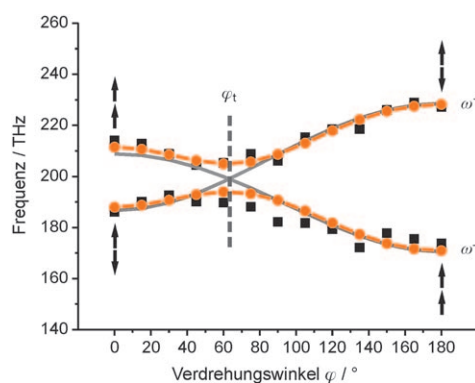


Dipole, die in den beiden Split-Ringe gegenphasig bzw. in Phase oszillieren, assoziiert. Die beiden sich ergebenden magnetischen Dipolmomente sind parallel bzw. antiparallel angeordnet. Die transversale elektrische und die longitudinale magnetische Wechselwirkung verstärken sich also im Prinzip in dem um  $180^\circ$  verdrehten Dimer. Dies führt zur größten spektralen Aufspaltung, was ja ein direktes Maß für die Kopplungsstärke ist. Wir können somit festhalten, dass für um  $0^\circ$  und  $180^\circ$  verdrehte Split-Ringe die elektrische Kopplung eine wesentliche Rolle spielt. In beiden Fällen oszillieren bei den niedrigeren Resonanzfrequenzen ( $\omega_0^-$  und  $\omega_{180}^-$ ) die elektrischen Dipole in den beiden Split-Ring-Elementen gegenphasig. Diese Resonanzen sind nicht sehr einfach durch Dipollicht anzuregen, d.h., sie haben einen subradianten Charakter.<sup>[53]</sup> Auf der anderen Seite oszillieren die beiden elektrischen Dipole bei den höheren Resonanzfrequenzen ( $\omega_0^+$  und  $\omega_{180}^+$ ) gleichphasig. Diese Resonanzen können sehr stark an Dipollicht ankoppeln, haben also superradianten Charakter. Als Folge davon sind die Resonanzen  $\omega_0^-$  und  $\omega_{180}^-$  viel weniger ausgeprägt in Breite und Modulationstiefe als die Resonanzen  $\omega_0^+$  und  $\omega_{180}^+$  (siehe Abbildungen 10a und 12a).

## 5.2. Verdrehungsdispersion von Stereometamaterialien

Um weitere Einblicke in die Kopplungsmechanismen zu gewinnen, sehen wir uns die so genannte Verdrehungsdispersion des Stereo-Split-Ring-Dimersystems näher an. Wir variieren den Verdrehungswinkel zwischen  $0^\circ$  und  $180^\circ$  in Schritten von  $15^\circ$  und untersuchen das damit verbundene resonante Verhalten. Wir werden ebenfalls sehen, wie elektrische und magnetische Wechselwirkung vom Verdrehungswinkel zwischen dem oberen und unteren Split-Ring abhängen.

Abbildung 13 zeigt die simulierten Verdrehungsdispersionskurven (als Quadrate), deren Resonanzpositionen von den Transmissionsspektren der zugehörigen Strukturen ermittelt wurden. Man sieht, dass bei wachsendem Verdrehungswinkel  $\phi$  die beiden Resonanzzweige zuerst aufeinander zulaufen. Genauer gesagt schiebt der höherfrequente Zweig  $\omega^+$  zu niedrigeren Frequenzen, der niederfrequente Zweig  $\omega^-$  zu höheren Frequenzen. Ein Anticrossing (vermeidene Kreuzung) ist beim Winkel  $\phi_t$ , der ungefähr  $60^\circ$  beträgt, erkennbar. Bei höheren Verdrehungswinkeln entfernen sich die beiden Zweige wieder voneinander. Um die hinter den Verdrehungs-Dispersionskurven stehenden physikalischen Mechanismen zu entschlüsseln, führen wir einen Lagrange-Formalismus ein.<sup>[38,65]</sup> Das Split-Ring-Element wird dabei durch einen äquivalenten Induktivitäts/Kapazitäts(LC)-Schwingkreis mit Resonanzfrequenz  $\omega_i = 1/(LC)^{-1/2}$  beschrieben.<sup>[12]</sup> Er besteht aus einer magnetischen Spule (nämlich dem Metallring) mit Induktivität  $L$  und einem Kondensator (der Öffnung im Ring) mit Kapazität  $C$ . Definieren wir die Gesamtladung  $Q$ , die an der Öffnung angesammelt wird, als generalisierte Koordinate, kann die Lagrange-Funktion eines Split-Rings als  $\Gamma = L\dot{Q}^2/2 - Q^2/2C$  geschrieben werden. Dabei ist  $L\dot{Q}^2/2$  die kinetische Energie der Oszillation und  $Q^2/2C$  die elektrostatische Energie, die in



**Abbildung 13.** Verdrehungsdispersion des Stereo-Split-Ring-Dimers. Quadrate stellen numerisch erhaltene Daten, Linien mit runden Punktsymbolen die Anpassungskurven dar, die aus dem Lagrange-Modell unter Einbeziehung der elektrischen Multipolwechselwirkung höherer Ordnung berechnet wurden. Das Anticrossing beim Winkel  $\phi_t$  ist deutlich erkennbar. Die Pfeile zeigen die Anordnung der magnetischen Dipole bei niedrigerer und höherer Resonanzfrequenz bei Verdrehungswinkeln  $\phi = 0^\circ$  und  $180^\circ$ , die durchgezogenen grauen Linien die Anpassungskurven, die aus dem Lagrange-Modell ohne elektrische Multipolwechselwirkung höherer Ordnung entstehen. In diesem Fall tritt kein Anticrossing auf. Wiedergabe aus Lit. [38] mit Genehmigung der Nature Publishing Group.

der Öffnung gespeichert wurde. Daher ist die Lagrange-Funktion des gekoppelten Split-Ring-Dimersystems konsequenterweise eine Kombination aus den beiden einzelnen Split-Ring-Resonatoren, ergänzt um zusätzliche elektrische und magnetische Wechselwirkungsterme [Gl. (3)].

$$\Gamma = \frac{L}{2} (\dot{Q}_1^2 - \omega_f^2 Q_1^2) + \frac{L}{2} (\dot{Q}_2^2 - \omega_f^2 Q_2^2) + M_H \dot{Q}_1 \dot{Q}_2 - M_E \omega_f^2 Q_1 Q_2 \cdot (\cos \varphi - \alpha \cdot (\cos \varphi)^2 + \beta \cdot (\cos \varphi)^3). \quad (3)$$

Dabei stehen  $Q_1$  und  $Q_2$  für die oszillierenden Ladungen in den jeweiligen Split-Ringen;  $M_H$  und  $M_E$  sind die gegenseitigen Induktionen für magnetische und elektrische Wechselwirkungen. Zusätzlich zur elektrischen Dipol-Dipol-Wechselwirkung sind auch Beiträge höherer elektrischer Multipole berücksichtigt.<sup>[43,44]</sup>  $\alpha$  und  $\beta$  sind die Koeffizienten der Quadrupol- und Oktupol-Plasmonenwechselwirkung. Sie wirken als Korrekturterme zur elektrischen Dipolwechselwirkung. Es ist leicht aus Gleichung (3) ableitbar, dass die Hauptwechselwirkungsterme für die Verdrehung um  $0^\circ$  und  $180^\circ$   $M_H \dot{Q}_1 \dot{Q}_2 - M_E \omega_f^2 Q_1 Q_2$  bzw.  $M_H \dot{Q}_1 \dot{Q}_2 + M_E \omega_f^2 Q_1 Q_2$  lauten. Dies verträgt sich mit unseren oben schon erwähnten Simulationsergebnissen, bei denen die elektrische und magnetische Dipolwechselwirkung gegen- oder miteinander arbeiten für den  $0^\circ$ - und  $180^\circ$ -Fall. Im  $90^\circ$ -Verdrehungsfall spielt die magnetische Wechselwirkung die Hauptrolle, wie man leicht am übrig bleibenden Wechselwirkungsterm  $M_H \dot{Q}_1 \dot{Q}_2$  sieht. Die magnetische Wechselwirkung kann in diesem einzigen Term zusammengefasst werden, da sie wegen ihrer Rotationssymmetrie keine Zerlegung in höhere Multipole benötigt. Danach erhält man durch Lösen der Euler-Lagrange-Gleichungen (4) die Eigenfrequenzen der Stereo-Split-Ring-Dimere gemäß Gleichung (5), mit  $\kappa_E = M_E/L$  und  $\kappa_H = M_H/L$  als Koeffizienten der gesamten elektrischen und ma-

gnetischen Wechselwirkungen.

$$M_H \dot{Q}_1 \dot{Q}_2 \frac{d}{dt} \left( \frac{\partial \Gamma}{\partial \dot{Q}_i} \right) - \frac{\partial \Gamma}{\partial Q_i} = 0, \quad (i = 1, 2) \quad (4)$$

$$\omega_{\pm} = \omega_0 \cdot \sqrt{\frac{1 \mp \kappa_E \cdot (\cos \varphi - \alpha \cdot (\cos \varphi)^2 + \beta \cdot (\cos \varphi)^3)}{1 \mp \kappa_H}} \quad (5)$$

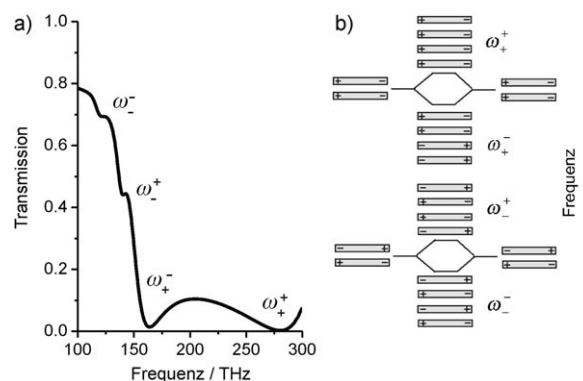
Durch Anpassen an die Verdrehungsdispersionskurven erhält man die entsprechenden Koeffizienten zu  $\kappa_E = 0.14$ ,  $\kappa_H = 0.09$ ,  $\alpha = 0.8$  und  $\beta = -0.4$ . Es ist bemerkenswert, dass die Anpassungskurven (Linien mit runden Punktsymbolen in Abbildung 13) die simulierten Daten sehr gut reproduzieren und das Anticrossing bei  $60^\circ$  sehr gut sichtbar ist. Dies belegt, dass das Lagrange-Modell unsere Simulationsdaten quantitativ beschreiben kann. Die Berücksichtigung der elektrischen Multipolwechselwirkung ist essenziell für das Vorhandensein des Anticrossings. Aufgrund der endlichen Gesamtlänge des Split-Rings sind die elektrischen Plasmonmoden durch verschiedene räumliche Symmetrien charakterisiert.<sup>[67,68]</sup> Um die wichtige Rolle der elektrischen Multipole höherer Ordnung zu belegen, haben wir als durchgezogene graue Linien in Abbildung 13 die Verdrehungsdispersionskurven nur mit Berücksichtigung der dipolaren Kopplungseffekte eingezeichnet, also mit  $\alpha = 0$  und  $\beta = 0$ . Beste Übereinstimmung wurde mit  $\kappa_E = 0.2$  und  $\kappa_H = 0.09$  erzielt. Obwohl diese Linien einen Großteil der numerisch simulierten Dispersionskurven beschreiben können, ist kein Anticrossing zu erkennen. Im Gegenteil, die  $\omega^+$ - und  $\omega^-$ -Zweige konvergieren bei  $\phi_i$ .

Wir halten daher fest, dass elektrische Multipolwechselwirkungen höherer Ordnung sorgfältig berücksichtigt werden müssen, um ein komplettes Verständnis der spektralen Eigenschaften von Stereometamaterialien zu erhalten, obwohl bereits elektrische und magnetische Dipolwechselwirkung das Verhalten annähernd beschreiben können.

## 6. Dreidimensionale Metamaterialien

### 6.1. Gestapelte Nanodraht-Metamaterialien

Nun möchten wir in diesem Abschnitt noch komplexere Metamaterialien untersuchen. Zuerst wenden wir uns einem vierlagigen, gestapelten Nanodraht-Metamaterial zu.<sup>[40]</sup> Abbildung 14a zeigt das simulierte Transmissionsspektrum, wobei vier Resonanzen bei unterschiedlichen Frequenzen sichtbar sind. Das Resonanzverhalten kann anschaulich verstanden werden, wenn man sich das System als zwei gekoppelte Nanodraht-Paare vorstellt.<sup>[40,48]</sup> Ein einzelnes gekoppeltes Drahtpaar hat eine symmetrische und eine antisymmetrische Mode. Wie in Abbildung 14b gezeigt, resultieren die  $\omega_+$ - und  $\omega_-$ -Moden aus der Wechselwirkung der symmetrischen Moden der beiden Nanodraht-Paare. Im Falle der  $\omega_+$ -Mode sind die Ladungssoszillationen in den vier Nanodrähten alle in Phase, daher sind die Rückstellkräfte zwischen benachbarten Nanodrähten allesamt repulsiv. Dies führt dazu, dass die  $\omega_+$ -Mode die höchste Resonanzfrequenz aufweist. Analog zur antisymmetrischen Mode in zwei gekop-

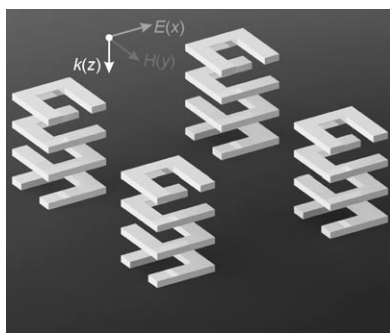


**Abbildung 14.** Simuliertes Transmissionsspektrum für vier gekoppelte Nanodrähte. Die Größe der individuellen Nanodrähte ist  $500 \times 150 \times 20 \text{ nm}^3$ . Die vertikalen Abstände zwischen den Nanodrähten betragen 80 nm. Das Licht fällt entlang der Stapelrichtung senkrecht ein und ist linear entlang der längeren Achse der Nanodrähte polarisiert. b) Die Schemazeichnung der Resonanzpositionen zeigt die Hybridisierung der Moden für die gestapelte Nanodrahtstruktur. Wiedergabe aus Lit. [40].

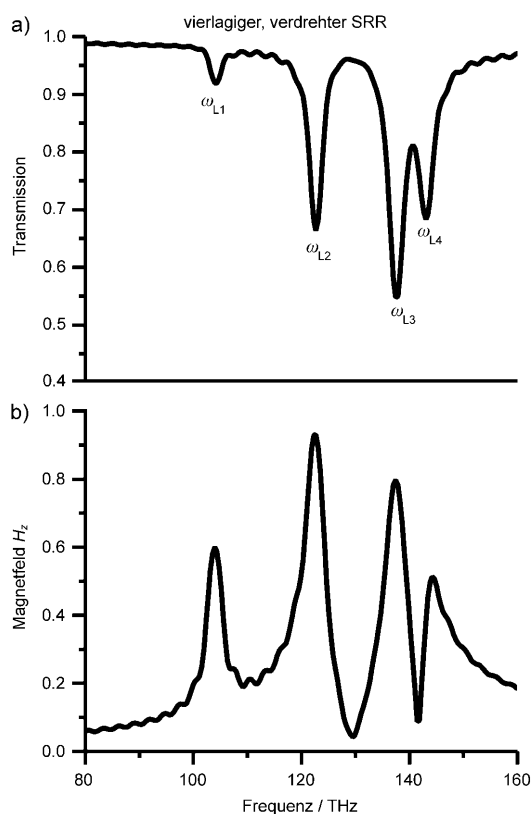
pelten Nanodrähten kann die  $\omega_+$ -Mode als magnetische Resonanz interpretiert werden. Die Entstehung der  $\omega_-$ - und  $\omega_+$ -Moden resultiert aus der Kopplung der antisymmetrischen Moden beider Nanodraht-Paare. Die  $\omega_-$ -Mode hat die niedrigste Resonanzfrequenz, weil die Ladungssoszillation in jedem Nanodraht in diesem Fall außer Phase in Bezug auf den jeweiligen Nachbardraht ist und dadurch die Rückstellkräfte zwischen benachbarten Drähten allesamt anziehend sind. Ganz ähnlich können die Moden  $\omega_-$  und  $\omega_+$ , die im quasistatischen Limit (ohne Retardation) dunkel wären (also nicht von Dipollicht angeregt werden können), wegen der Phasenretardierung des Lichts bei Propagation in  $z$ -Richtung angeregt werden. Im Prinzip gibt es auch noch eine Kopplung zwischen den symmetrischen und antisymmetrischen Moden der beiden Nanodraht-Paare, aber wir ignorieren diese wegen ihrer großen Frequenzverstimmung (und somit geringen Kopplungsstärke).<sup>[48]</sup>

### 6.2. Gestapelte Split-Ringresonator-Metamaterialien

In diesem Abschnitt diskutieren wir die optischen Eigenschaften eines vierlagigen, gestapelten Split-Ring-Metamaterials,<sup>[32,42]</sup> bei dem die Einzelelemente jeweils gegenüber ihrem Nachbarn um  $90^\circ$  verdreht sind (Abbildung 15). Wir regen diese Metamaterialstruktur mit linear polarisiertem Licht entlang der Öffnung des obersten Split-Rings bei senkrechtem Einfall an und untersuchen das Transmissionsspektrum. Vier Resonanzen sind in Abbildung 16a sichtbar. Diese Resonanzen zeigen die Moden, die durch Kopplung der vier Split-Ringe entstehen. Wir werden diese Resonanzen nun mit den weiter oben eingeführten Prinzipien untersuchen. Zuerst stellen wir fest, dass die elektrische Nächste-Nachbar-Dipol-Dipol-Wechselwirkung in einer ersten Näherung null beträgt, da die elektrischen Dipole paarweise senkrecht aufeinander stehen.<sup>[36,38,42]</sup> Dadurch bleibt nur hauptsächlich die magnetische Dipol-Dipol-Wechselwirkung



**Abbildung 15.** Vierlagiges, verdrehtes Split-Ring-Metamaterial. Die Größe eines jeden Split-Rings ist  $400 \times 400 \text{ nm}^2$ . Die Armbreite ist  $100 \text{ nm}$  und die Golddicke ist  $60 \text{ nm}$ . Der vertikale Abstand zwischen den benachbarten Split-Ringen beträgt  $60 \text{ nm}$ . Das senkrecht einfallende Licht ist entlang der Öffnung des obersten Split-Rings polarisiert. Wiedergabe aus Lit. [42] mit Genehmigung der Optical Society of America.

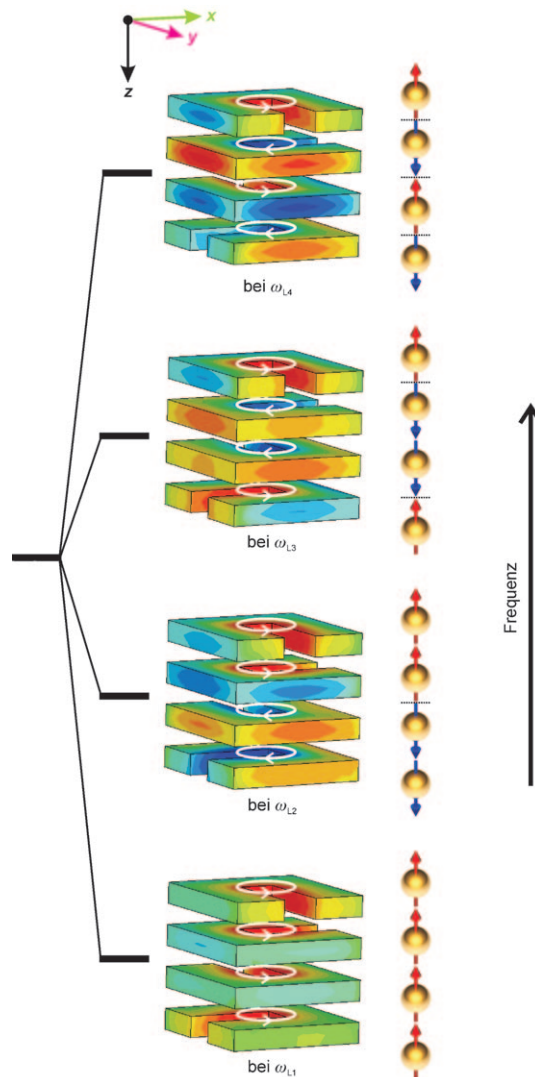


**Abbildung 16.** a) Simuliertes Transmissionsspektrum (L1–L4 = longitudinal gekoppelte Split-Ringe) und b) Feldstärken der  $H_z$ -Komponente des vierlagigen verdrehten Split-Ring-Metamaterials. Die „Sonde“ für die  $H_z$ -Komponente ist im Zentrum des obersten Split-Rings angeordnet. Wiedergabe aus Lit. [42] mit Genehmigung der Optical Society of America.

zwischen den benachbarten Split-Ringen übrig. In diesem Fall stellen wir longitudinale Kopplung fest.

Wie die genaue Untersuchung der  $z$ -Komponente des Magnetfeldes zeigt (Abbildung 16b), sind bei der niedrigsten Frequenz die magnetischen Dipole alle parallel ausgerichtet,

wie wir es auch für eine longitudinale Kopplung erwarten würden (Abbildung 17). In Analogie zur Festkörperphysik könnte man diesen Zustand „ferromagnetisch“ nennen.<sup>[34]</sup> Da wir es mit optischen Frequenzen zu tun haben, könnte man diesen Grundzustand sogar als „optischen Ferromagnetismus“ bezeichnen. Jedoch muss man vorsichtig mit dieser Nomenklatur sein. Wie man aus der Festkörperphysik weiß, ist Ferromagnetismus ein Quantenphänomen, das durch Spin-Austauschwechselwirkung vermittelt wird.<sup>[34]</sup> Für Spins gilt das Pauli-Verbot. Ebenso zeigt Ferromagnetismus eine Hysterese, die mit einem Phasenübergang zusammenhängen kann, ebenso bleibt er nach Abschalten des Magnetfeldes vorhanden. In unserem System jedoch haben wir es mit völlig



**Abbildung 17.** Das Resonanzdiagramm stellt die Hybridisierung der Moden für das vierlagige, verdrehte Split-Ring-Metamaterial dar, ebenso die simulierten magnetischen Feldverteilungen von  $H_z$  bei den jeweiligen Resonanzfrequenzen. Das Licht fällt senkrecht entlang der  $z$ -Richtung ein und ist linear entlang der  $x$ -Richtung polarisiert. Rote Farbe entspricht einem positiven  $H$ -Feld, blaue Farbe einem negativen. Die „Spin“-Symbole (rechts) repräsentieren die magnetischen Dipolmomente für die jeweiligen Moden. Die Zahl der magnetischen Feldknoten steigt für größere Resonanzfrequenzen. Wiedergabe aus Lit. [42] mit Genehmigung der Optical Society of America.

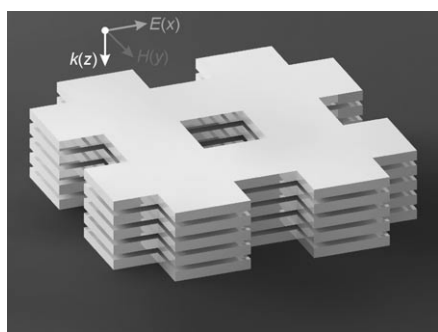
klassischen Feldern (sozusagen „klassischen Spins“) zu tun, die keinem Pauli-Verbot gehorchen. Zudem ist in unseren Split-Ringen wenige Femtosekunden nach Ausschalten des externen Lichtfeldes wegen der strahlenden und nichtstrahlenden Dämpfung kein Magnetfeld mehr vorhanden. Daher sollte man das parallele Ausrichten der magnetischen Momente im Grundzustand eher „optischen Superparamagnetismus“ nennen, was dem Festkörperphysikalischen Pendant wohl näher liegt.<sup>[39,61]</sup>

Die höherfrequenten Moden zeigen eine Anordnung ihrer magnetischen Dipolmomente, die an die Prinzipien erinnert, die man bei Wellenfunktionen in einem harmonischen Oszillatorpotential anwenden kann.<sup>[69]</sup> In diesem Falle ist es möglich, einfach die Knoten in den Wellenfunktionen eines solchen Potentials zu zählen, beginnend mit null Knoten für den Grundzustand und einen Knoten mehr für jeden höheren Zustand. Angewendet auf unseren eben besprochenen Fall bedeutet dies null Knoten (sprich antiparallel angeordnete benachbarte magnetische Momente) für unsere „klassischer Spin“-Wellenfunktion im gestapelten, verdrehten Split-Ring-System bei der niedrigsten Resonanzfrequenz. Die Zahl der Knoten wächst auf einen, zwei und drei für die höherfrequenten Moden. Die höchste Resonanzfrequenz hat drei Moden, die die Gesamt-„Spinfunktion“ total antisymmetrisch machen. Das Diagramm, das die Anordnung der Dipolmomente bei verschiedenen Resonanzfrequenzen zeigt, ist in Abbildung 17 dargestellt.

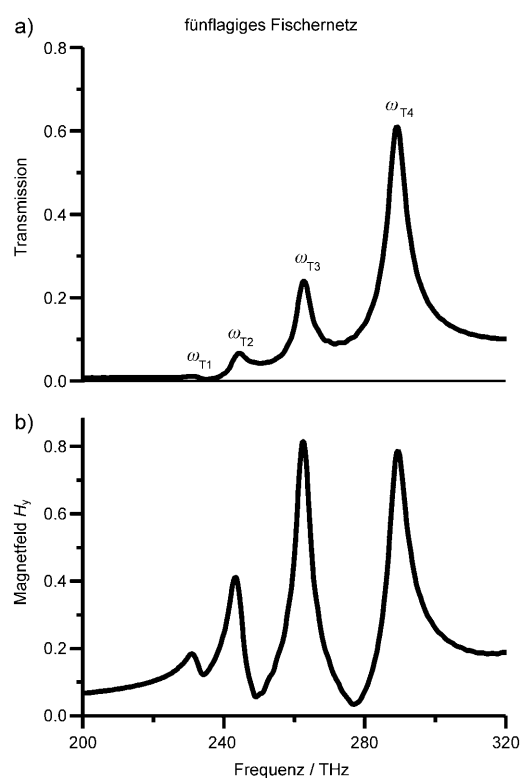
### 6.3. Gestapelte Fischernetz-Metamaterialien

Transversale Kopplung zwischen magnetischen Dipolen kann realisiert werden, indem eine Seite-an-Seite-Anordnung in einem dreidimensionalen gestapelten Fischernetz-Metamaterial gewählt wird.<sup>[14,42,70–72]</sup> Wie in Abbildung 18 gezeigt, sind die Fischernetz-Lagen aus Gold von Luft umgeben. Die Drahtbreiten sind in  $x$ - und  $y$ -Richtung gleich breit gewählt, um Polarisationsunabhängigkeit zu gewährleisten.

Das simulierte Transmissionsspektrum ist in Abbildung 19a dargestellt. Vier Resonanzen sind deutlich ersichtlich. Zusätzlich kann man eine große Verstärkung des lokalisierten Magnetfeldes bei den entsprechenden Resonanz-



**Abbildung 18.** Fünflagige Fischernetz-Metamaterial-Geometrie. Die Breite aller Drähte ist 350 nm. Die Golddicke ist 40 nm, und der vertikale Abstand zwischen den Drähten beträgt 20 nm. Das senkrecht einfallende Licht ist linear in  $x$ -Richtung polarisiert. Wiedergabe aus Lit. [42] mit Genehmigung der Optical Society of America.



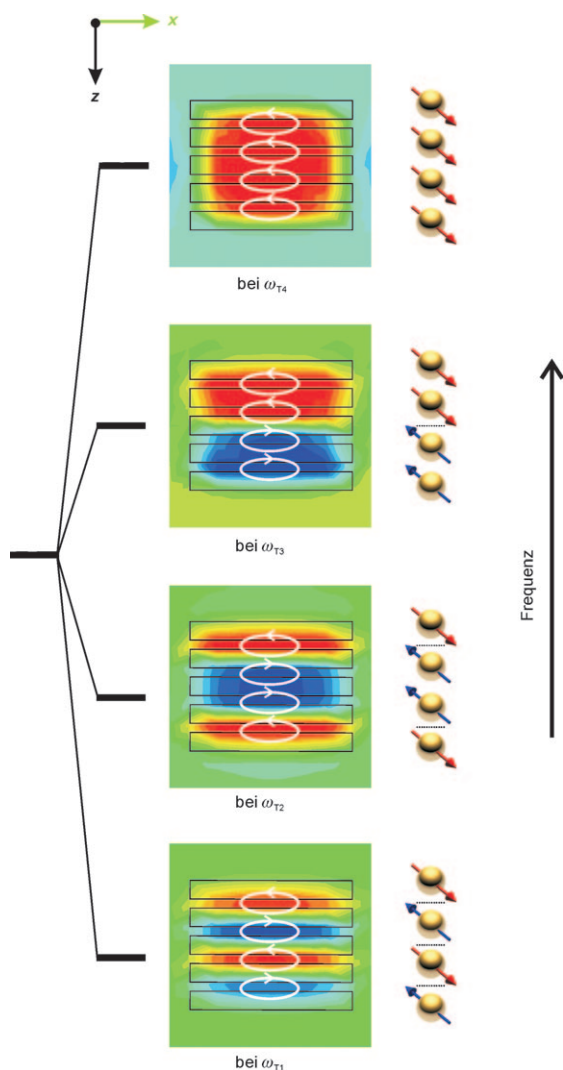
**Abbildung 19.** a) Simuliertes Transmissionsspektrum (T1–T4 = transversal gekoppelte Fischernetze) und b) detektierte  $H_y$ -Amplituden für das fünflagige Fischernetz-Metamaterial. Die  $H_y$ -Sonde ist in der Lücke zwischen den obersten beiden Golddrähten platziert. Wiedergabe aus Lit. [42] mit Genehmigung der Optical Society of America.

frequenzen feststellen, indem die Amplitude der magnetischen Feldkomponente  $H_y$  mithilfe einer Sonde in der Lücke zwischen zwei Golddrähten detektiert wird (Abbildung 19b). Jede Resonanz ist mit der Anregung magnetischer Dipolmomente in den vier Lücken zwischen jeweils zwei Golddrähten assoziiert.

Das Resonanzverhalten der gestapelten Fischernetz-Systeme kann ebenfalls mithilfe der Hybridisierung der magnetischen Eigenschaften beschrieben werden: Das einfallende Licht regt einen Kreisstrom in jedem Drahtpaar an, was ein magnetisches Dipolmoment zur Folge hat.<sup>[13,14,70–74]</sup> Diese magnetischen Dipole sind transversal gekoppelt und führen zur Bildung von vier neuen hybridisierten Moden, die von den verschiedenen Symmetrien bestimmt sind. Bei der niedrigsten Resonanzfrequenz sind die vier magnetischen Dipole komplett antiparallel angeordnet. Die Zwischenzustände ergeben unvollständig antiparallel ausgerichtete magnetische Dipole, wogegen bei der höchsten Resonanzfrequenz die vier magnetischen Dipole komplett parallel ausgerichtet sind. Abbildung 20 zeigt die Wechselwirkung zwischen diesen transversal gekoppelten magnetischen Dipolen und die daraus resultierenden hybridisierten Moden.

Es ist intuitiv klar, dass mehr und mehr solcher Metamaterial-Bausteine zu einem spektralen Band führen,<sup>[41]</sup> das aus den verschiedenen Resonanzfrequenzen besteht, genau wie in der Festkörperphysik im Falle des Tight-Binding-Modells. Die Bandbreite ist dort hauptsächlich durch die Kopp-



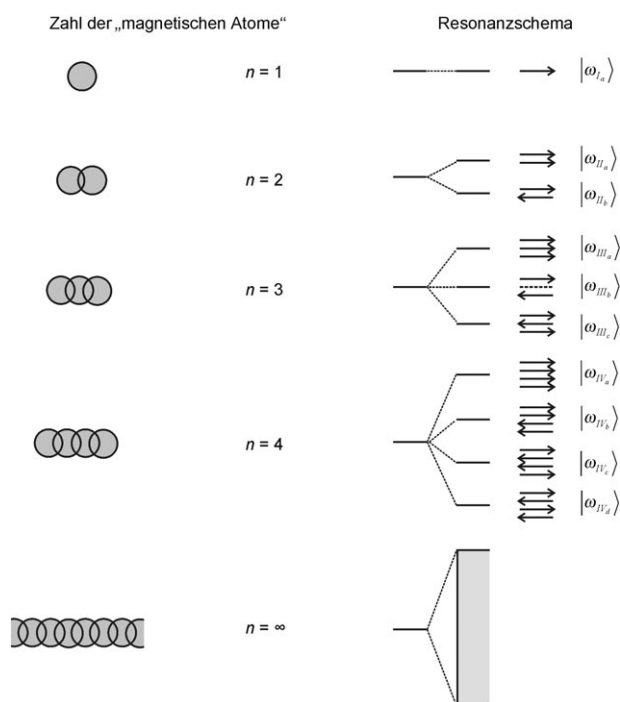


**Abbildung 20.** Das Resonanzdiagramm stellt die Hybridisierung der Moden für das fünfflagige Fischernetz-Metamaterial sowie die simulierten Magnetfeldkomponenten  $H_y$  bei den jeweiligen Resonanzfrequenzen dar. Das Licht fällt senkrecht entlang der z-Richtung ein und ist linear entlang der x-Richtung polarisiert. Rot bedeutet positive H-Feldamplitude, blau bedeutet negative E-Feldamplitude. Die „Spin“-Symbole (rechts) stellen die magnetischen Dipolmomente für die entsprechenden Moden dar. Die Zahl der magnetischen Feldknoten (gepunktete Linien) nimmt mit steigender Resonanzfrequenz ab. Wiedergabe aus Lit. [42] mit Genehmigung der Optical Society of America.

lungsstärke der beiden nächsten Nachbarn bestimmt.<sup>[34]</sup> Das in Abbildung 21 dargestellte schematische Diagramm hierzu zeigt die Bildung des Resonanzbandes.

#### 6.4. Komplexe dreidimensionale Metamaterialien

Es ist nur konsequent, die Konzepte von longitudinale und transversale Koppeln zu verbinden und magnetische Dipole in dreidimensionalen Metamaterialien anzuordnen.<sup>[42]</sup> In unserem hier vorgestellten Design ist die Kombination von longitudinaler und transversaler Kopplung einzigartig, da es Studien an einem Metafestkörper mit rein magnetischer

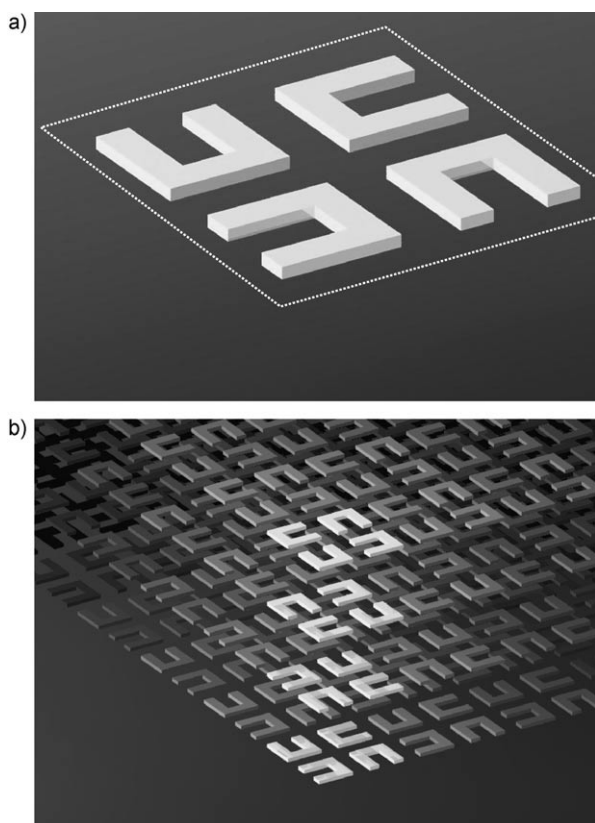


**Abbildung 21.** Die Bildung eines Resonanzbandes aufgrund der Kopplung zwischen magnetischen „Atomen“. Zwei „Atome“ bilden „Moleküle“ durch Hybridisierung, die sich bei Kopplung an weitere „Atome“ zu Bändern verbreitern. Wiedergabe aus Lit. [41].

Dipol-Dipol-Wechselwirkung in lateraler wie auch in vertikaler Richtung ermöglicht, zumindest wenn man nur die Nächste-Nachbar-Wechselwirkung berücksichtigt. Abbildung 22a zeigt eine planare Elementarzelle eines solchen Elements, das aus vier Split-Ringen besteht, die um  $90^\circ$  relativ zu ihren Nachbarn verdreht sind. Longitudinale Kopplung als zusätzliche Komplikation zum zweidimensionalen Prototypen kann hinzugefügt werden, indem man die planaren Bausteine übereinander stapelt, mit der Maßgabe, dass jedes Element pro Lage um  $90^\circ$  verdreht zu seinem vertikalen Nachbarn sein soll. Die Kopplungsstärke der longitudinalen wie auch der transversalen Kopplung kann durch Einstellen der lateralen und vertikalen Split-Ring-Abstände abgestimmt werden. Abbildung 22b illustriert die dreidimensionale Anordnung dieser Split-Ringe, die einen „magnetischen Metafestkörper“ bilden. Wir könnten ihn auch „photonischen Spinkristall“ nennen. In der Zukunft wird die Herausforderung darin liegen, solche magnetischen Systeme und ihre komplexen Spektren zu verstehen, die das Analogon zu Spinwellen und Magnonen in der Festkörperphysik sein können.<sup>[34]</sup>

## 7. Zusammenfassung und Ausblick

In diesem Aufsatz haben wir erläutert, wie Kopplung eine dominante Rolle für die optischen Eigenschaften von Metamaterialien spielen kann. Aufbauend auf der Plasmonenhybridisierung, die als Konzept an die Molekülphysik angelehnt ist, konnten wir verstehen, wie zwei nah benachbarte plas-



**Abbildung 22.** a) Elementarzelle eines zweidimensionalen magnetischen Metamaterials. b) Ein hypothetisches dreidimensionales magnetisches „Spin“-Metamaterial. Jede Lage besteht aus Split-Ringen, die um 90° gegenüber ihrem vertikalen Nachbarn verdreht sind. Wiedergabe aus Lit. [42] mit Genehmigung der Optical Society of America.

monische Nanopartikel zusammenkoppeln und Hybridmoden bilden. Wir haben anschließend die Kopplungs- und Symmetrieregeln unter Berücksichtigung der Kopplungsgeometrie und der Polarisation des einfallenden Lichtes analysiert.

Unser Konzept wurde auf Split-Ringe als fundamentale Bausteine von Metamaterialien, die zusätzlich zu elektrischen Dipolmomenten auch noch magnetische Dipolmomente bei optischen Frequenzen zeigen, ausgedehnt. Wenn man solche Split-Ring-Resonatoren zusammenkoppelt, tritt sowohl elektrische als auch magnetische Kopplung auf. Je nach genauer Strukturgeometrie kann sowohl die eine als auch die andere Kopplung dominieren. Im Spezialfall von um 90° verdrehten Split-Ringen ist in erster Näherung die elektrische Dipol-Dipol-Wechselwirkung abgeschaltet, und die magnetische Wechselwirkung dominiert.

Wir haben weiterhin das bekannte Konzept der Stereochemie auf unsere Stereometamaterialien angewendet. Dies sind Metamaterialien mit den gleichen Bauelementen, aber einer unterschiedlichen räumlichen Anordnung. Wir fanden heraus, dass die Verdrehungsdispersion ganz wesentlich für das Verständnis der optischen Eigenschaften solch komplexer Metamaterialien ist. Genauer gesagt können die elektrischen und magnetischen Kopplungen gegen- oder miteinander arbeiten. Interessanterweise tritt auch ein Anticrossing in der Verdrehungsdispersion auf, das ein direkter Nachweis der

Existenz von Wechselwirkung höherer elektrischer Multipole ist. Die Durchstimbarkeit des Resonanzverhaltens von Metamaterialien durch Änderung der räumlichen Anordnung ihrer Bausteine eröffnet eine große Flexibilität bei der Anwendung nützlicher Metamaterial-Eigenschaften, z. B. Chiralität<sup>[75–79]</sup> und optische Aktivität.<sup>[80–82]</sup>

Wie haben also mehrere dreidimensionale Metamaterialstrukturen betrachtet und unsere Kopplungsregeln auf größere Zahlen von „Meta-Atomen“ angewendet. Das Hinzufügen von noch mehr gekoppelten Elementen kann zur Entstehung von spektralen Bändern führen. Geht man diesen Schritt konsequent weiter, so wird man auch über die Kopplung zwischen Dipolen und Multipolen höherer Ordnung in Metamaterialien nachdenken müssen.<sup>[83–85]</sup> Zum Beispiel kann das Stapeln eines einzelnen Golddrahts über ein Golddrahtpaar Dipol-Quadrupol-Wechselwirkung anschalten und zum klassischen Analogon von elektromagnetisch induzierter Transparenz führen.<sup>[84–90]</sup> Dieser Effekt zeichnet sich durch sehr scharfe und wohlmodulierte Resonanzen innerhalb des plasmonischen Spektrums aus und kann in Zukunft Anwendungen in Form von lokalisierten Oberflächenplasmonresonanz-Sensoren finden.<sup>[85,91,92]</sup>

*Wir möchten uns für theoretische Unterstützung bei Hui Liu und Thomas Weiss bedanken. Wir danken Sven Hein für seine hervorragenden Metamaterial-Illustrationen sowie Hedi Gräbeldinger und Monika Ubl für technische Unterstützung. Diese Arbeiten wurden finanziell von der Deutschen Forschungsgemeinschaft (SPP1391, FOR 557) und dem BMBF (13N10146) unterstützt.*

Eingegangen am 4. November 2009

- [1] D. R. Smith, J. B. Pendry, M. C. K. Wiltshire, *Science* **2004**, *305*, 788–792.
- [2] C. M. Soukoulis, S. Linden, M. Wegener, *Science* **2007**, *315*, 47–49.
- [3] C. M. Soukoulis, M. Kafesaki, E. N. Economou, *Adv. Mater.* **2006**, *18*, 1941–1952.
- [4] V. M. Shalaev, *Nat. Photonics* **2007**, *1*, 41–48.
- [5] U. Kreibig, M. Vollmer, *Optical properties of metal clusters*, Springer, Berlin, **1995**.
- [6] C. F. Bohren, D. R. Huffman, *Absorption and scattering of light by small particles*, Wiley-VCH, New York, **1983**.
- [7] U. Kreibig, P. Zacharias, *Z. Phys.* **1970**, *231*, 128–143.
- [8] M. C. Daniel, D. Astruc, *Chem. Rev.* **2004**, *104*, 293–346.
- [9] V. A. Podolskiy, A. K. Sarychev, V. M. Shalaev, *Opt. Express* **2003**, *11*, 735–745.
- [10] V. A. Podolskiy, A. K. Sarychev, E. E. Narimanov, V. M. Shalaev, *J. Opt. A* **2005**, *7*, S32–S37.
- [11] J. B. Pendry, A. J. Holden, D. J. Robbins, W. J. Stewart, *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.* **1999**, *47*, 2075–2084.
- [12] S. Linden, C. Enkrich, M. Wegener, J. F. Zhou, T. Koschny, C. M. Soukoulis, *Science* **2004**, *306*, 1351–1353.
- [13] S. Zhang, W. J. Fan, K. J. Malloy, S. R. J. Brueck, N. C. Panoiu, R. M. Osgood, *Opt. Express* **2005**, *13*, 4922–4930.
- [14] G. Dolling, C. Enkrich, M. Wegener, C. M. Soukoulis, S. Linden, *Science* **2006**, *312*, 892–894.
- [15] M. S. Rill, C. Plet, M. Thiel, I. Staude, G. von Freymann, S. Linden, M. Wegener, *Nat. Mater.* **2008**, *7*, 543–546.
- [16] H. Schweizer, L. Fu, H. Gräbeldinger, H. Guo, N. Liu, S. Kaiser, H. Giessen, *Phys. Status Solidi A* **2007**, *204*, 3886–3900.

- [17] G. Dolling, C. Enkrich, M. Wegener, J. F. Zhou, C. M. Soukoulis, S. Linden, *Opt. Lett.* **2005**, *30*, 3198–3200.
- [18] J. B. Pendry, A. J. Holden, W. J. Stewart, I. Youngs, *Phys. Rev. Lett.* **1996**, *76*, 4773–4776.
- [19] V. G. Veselago, *Sov. Phys. Usp.* **1968**, *10*, 509–514.
- [20] D. R. Smith, W. J. Padilla, D. C. Vier, S. C. Nemat-Nasser, S. Schultz, *Phys. Rev. Lett.* **2001**, *84*, 4184–4187.
- [21] R. A. Shelby, D. R. Smith, S. Schultz, *Science* **2001**, *292*, 77–79.
- [22] N. Katsarakis, T. Koschny, M. Kafesaki, E. N. Economou, E. Ozbay, C. M. Soukoulis, *Phys. Rev. B* **2004**, *70*, 201101.
- [23] J. F. Zhou, L. Zhang, G. Tuttle, T. Koschny, C. M. Soukoulis, *Phys. Rev. B* **2006**, *73*, 041101.
- [24] J. B. Pendry, *Phys. Rev. Lett.* **2000**, *85*, 3966–3969.
- [25] N. Fang, H. Lee, C. Sun, X. Zhang, *Science* **2005**, *308*, 534–537.
- [26] Z. W. Liu, H. Lee, Y. Xiong, C. Sun, X. Zhang, *Science* **2007**, *315*, 1686.
- [27] J. B. Pendry, D. Schurig, D. R. Smith, *Science* **2006**, *312*, 1780–1782.
- [28] D. Schurig, J. J. Mock, B. J. Justice, S. A. Cummer, J. B. Pendry, A. F. Starr, D. R. Smith, *Science* **2006**, *314*, 977–980.
- [29] J. Valentine, J. Li, T. Zentgraf, G. Bartal, X. Zhang, *Nat. Mater.* **2009**, *8*, 568–571.
- [30] N. Liu, H. Guo, L. Fu, H. Schweizer, S. Kaiser, Harald Giessen, *Phys. Status Solidi B* **2007**, *244*, 1251–1255.
- [31] C. Rockstuhl, T. Zentgraf, H. Guo, N. Liu, C. Etrich, I. Loa, K. Syassen, J. Kuhl, F. Lederer, H. Giessen, *Appl. Phys. B* **2006**, *84*, 219–227.
- [32] N. Liu, H. C. Guo, L. W. Fu, S. Kaiser, H. Schweizer, H. Giessen, *Nat. Mater.* **2008**, *7*, 31–37.
- [33] J. F. Zhou, T. Koschny, M. Kafesaki, C. M. Soukoulis, *Phys. Rev. B* **2009**, *80*, 035109.
- [34] N. W. Ashcroft, N. D. Mermin, *Solid State Physics*, Brooks/Cole Thomson Learning, Singapore, **2003**.
- [35] J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics*, Wiley-VCH, New York, **1975**.
- [36] N. Liu, S. Kaiser, H. Giessen, *Adv. Mater.* **2008**, *20*, 4521–4525.
- [37] H. Liu, D. A. Genov, D. M. Wu, Y. M. Liu, J. M. Steele, C. Sun, S. N. Zhu, X. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **2006**, *97*, 243902.
- [38] N. Liu, H. Liu, S. Zhu, H. Giessen, *Nat. Photonics* **2009**, *3*, 157–162.
- [39] M. Decker, S. Linden, M. Wegener, *Opt. Lett.* **2009**, *34*, 1579–1581.
- [40] N. Liu, H. C. Guo, L. W. Fu, S. Kaiser, H. Schweizer, H. Giessen, *Adv. Mater.* **2007**, *19*, 3628–3632.
- [41] N. Liu, L. W. Fu, S. Kaiser, H. Schweizer, H. Giessen, *Adv. Mater.* **2008**, *20*, 3859–3865.
- [42] N. Liu, H. Giessen, *Opt. Express* **2008**, *16*, 21233–21238.
- [43] J. Petschulat, C. Menzel, A. Chipouline, C. Rockstuhl, A. Tünnermann, F. Lederer, T. Pertsch, *Phys. Rev. A* **2008**, *78*, 043811.
- [44] D. J. Cho, F. Wang, X. Zhang, Y. R. Shen, *Phys. Rev. B* **2008**, *78*, 121101.
- [45] W. S. Cai, U. K. Chettiar, H. K. Yuan, V. C. de Silva, A. V. Kildishev, V. P. Drachev, V. M. Shalae, *Opt. Express* **2007**, *15*, 3333–3341.
- [46] G. Shvets, Y. A. Urzhumov, *J. Opt. A* **2006**, *8*, S122–S130.
- [47] H. K. Yuan, U. K. Chettiar, W. S. Cai, A. V. Kildishev, A. Boltasseva, V. P. Drachev, V. M. Shalae, *Opt. Express* **2007**, *15*, 1076–1083.
- [48] E. Prodan, C. Radloff, N. J. Halas, P. Nordlander, *Science* **2003**, *302*, 419–422.
- [49] H. Wang, D. W. Brandl, F. Le, P. Nordlander, N. J. Halas, *Nano Lett.* **2006**, *6*, 827–832.
- [50] F. Hao, C. L. Nehl, J. H. Hafner, P. Nordlander, *Nano Lett.* **2007**, *7*, 729–732.
- [51] P. Nordlander, C. Oubre, E. Prodan, K. Li, M. I. Stockman, *Nano Lett.* **2004**, *4*, 899–903.
- [52] J. B. Lassiter, J. Aizpurua, L. I. Hernandez, D. W. Brandl, I. Romero, S. Lal, J. H. Hafner, P. Nordlander, N. J. Halas, *Nano Lett.* **2008**, *8*, 1212–1218.
- [53] A. Christ, T. Zentgraf, S. G. Tikhodeev, N. A. Gippius, J. Kuhl, H. Giessen, *Phys. Rev. B* **2006**, *74*, 155435.
- [54] P. K. Jain, S. Eustis, M. A. El-Sayed, *J. Phys. Chem. B* **2006**, *110*, 18243–18253.
- [55] M. Gluodenis, C. A. Foss, Jr., *J. Phys. Chem. B* **2002**, *106*, 9484–9489.
- [56] C. Enkrich, F. P-Willard, D. Gerthsen, J. F. Zhou, T. Koschny, C. M. Soukoulis, M. Wegener, S. Linden, *Adv. Mater.* **2005**, *17*, 2547–2549.
- [57] C. Enkrich, M. Wegener, S. Linden, S. Burger, L. Zschiedrich, F. Schmidt, J. F. Zhou, T. Koschny, C. M. Soukoulis, *Phys. Rev. Lett.* **2005**, *95*, 203901.
- [58] R. Singh, C. Rockstuhl, F. Lederer, W. Zhang, *Phys. Rev. B* **2009**, *79*, 085111.
- [59] E. Shamonina, V. A. Kalinin, K. H. Ringhofer, L. Solymar, *J. Appl. Phys.* **2002**, *92*, 6252–6261.
- [60] E. Shamonina, L. Solymar, *J. Phys. D* **2004**, *37*, 362–367.
- [61] G. Dolling, M. Wegener, A. Schaedle, S. Burger, S. Linden, *Appl. Phys. Lett.* **2006**, *89*, 231118.
- [62] F. Hao, P. Nordlander, M. T. Burnett, S. A. Maier, *Phys. Rev. B* **2007**, *76*, 245417.
- [63] A. Christ, O. J. F. Martin, Y. Ekinici, N. A. Gippius, S. G. Tikhodeev, *Nano Lett.* **2008**, *8*, 2171–2175.
- [64] V. A. Fedotov, M. Rose, S. L. Prosvirnin, N. Papasimakis, N. I. Zheludev, *Phys. Rev. Lett.* **2007**, *99*, 147401.
- [65] H. Liu, D. A. Genov, D. M. Wu, Y. M. Liu, Z. W. Liu, C. Sun, S. N. Zhu, X. Zhang, *Phys. Rev. B* **2007**, *76*, 07310.
- [66] M. J. T. Robinson, *Organic Stereochemistry*, Oxford University Press, Oxford, **2000**.
- [67] C. Rockstuhl, F. Lederer, C. Etrich, T. Zentgraf, J. Kuhl, H. Giessen, *Opt. Express* **2006**, *14*, 8827–8836.
- [68] F. Hao, E. M. Larsson, T. A. Ali, D. S. Sutherland, P. Nordlander, *Chem. Rev. Lett.* **2008**, *458*, 262–266.
- [69] P. Atkins, R. Friedman, *Molecular Quantum Mechanics*, Oxford University Press, Oxford, **2005**.
- [70] J. Valentine, S. Zhang, T. Zentgraf, E. Ulin-Avila, D. A. Genov, G. Bartal, X. Zhang, *Nature* **2008**, *455*, 376–379.
- [71] S. Zhang, W. J. Fan, N. C. Panoui, K. J. Malloy, R. M. Osgood, S. R. J. Brueck, *Opt. Express* **2006**, *14*, 6778–6787.
- [72] G. Dolling, M. Wegener, S. Linden, *Opt. Lett.* **2007**, *32*, 551–553.
- [73] G. Dolling, C. Enkrich, M. Wegener, C. M. Soukoulis, S. Linden, *Opt. Lett.* **2006**, *31*, 1800–1802.
- [74] G. Dolling, M. Wegener, C. M. Soukoulis, S. Linden, *Opt. Lett.* **2007**, *32*, 53–55.
- [75] J. B. Pendry, *Science* **2004**, *306*, 1353–1355.
- [76] A. V. Rogacheva, V. A. Fedotov, A. S. Schwanecke, N. I. Zheludev, *Phys. Rev. Lett.* **2006**, *97*, 177401.
- [77] J. K. Gansel, M. Thiel, M. S. Rill, M. Decker, K. Bade, V. Saile, G. Freymann, S. Linden, M. Wegener, *Science* **2009**, *325*, 1513–1515.
- [78] M. Thiel, M. S. Rill, G. von Freymann, M. Wegener, *Adv. Mater.* **2009**, *21*, 4680–4682.
- [79] S. Zhang, Y. Park, J. Li, X. Lu, W. L. Zhang, X. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **2009**, *102*, 023901.
- [80] E. Plum, X.-X. Liu, V. A. Fedotov, Y. Chen, D. P. Tsai, N. I. Zheludev, *Phys. Rev. Lett.* **2009**, *102*, 113902.
- [81] E. Plum, V. A. Fedotov, N. I. Zheludev, *Appl. Phys. Lett.* **2008**, *93*, 191911.
- [82] M. Decker, M. Ruther, C. E. Kriegler, J. Zhou, C. M. Soukoulis, S. Linden, M. Wegener, *Opt. Lett.* **2009**, *34*, 2501–2503.
- [83] N. Verellen, Y. Sonnefraud, H. Sobhani, F. Hao, V. V. Moshchalkov, P. V. Dorpe, P. Nordlander, S. A. Maier, *Nano Lett.* **2009**, *9*, 1663–1667.

- [84] N. Liu, L. Langguth, T. Weiss, J. Kästel, M. Fleischhauer, T. Pfau, H. Giessen, *Nat. Mater.* **2009**, *8*, 758–762.
- [85] N. Liu, T. Weiss, M. Mesch, L. Langguth, U. Eigenthaler, M. Hirschner, C. Sönnichsen, H. Giessen, *Nano Lett.* **2010**, *10*, 1103–1107.
- [86] C. L. Garrido Alzar, M. A. G. Martinez, P. Nussenzeig, *Am. J. Phys.* **2002**, *70*, 37–41.
- [87] M. Fleischhauer, A. Imamoglu, J. P. Marangos, *Rev. Mod. Phys.* **2005**, *77*, 633–673.
- [88] S. Zhang, D. Genov, Y. Wang, M. Liu, X. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **2008**, *101*, 047401.
- [89] P. Tassin, L. Zhang, T. Koschny, E. N. Economou, C. M. Soukoulis, *Phys. Rev. Lett.* **2009**, *102*, 053901.
- [90] N. Papasimakis, V. A. Fedotov, N. I. Zheludev, *Phys. Rev. Lett.* **2008**, *101*, 253903.
- [91] S. Lal, S. Link, N. J. Halas, *Nat. Photonics* **2007**, *1*, 641–648.
- [92] F. Hao, Y. Sonnefraud, P. V. Dorpe, S. A. Maier, N. J. Halas, P. Nordlander, *Nano Lett.* **2008**, *8*, 3983–3988.
-