

Antennes op nanoschaal

Hoe Abbe, Stokes, Fourier en Fresnel springlevend zijn

In dit artikel bespreken wij een microscoop waarmee we kunnen meten waarheen en met welke polarisatie nano-objecten stralen. Dit is een zeer toepasselijk onderwerp in het Jaar van het Licht: voor het ontwikkelen van zo'n microscoop maken we namelijk gebruik van het gedachtegoed van beroemde natuurkundigen zoals Fourier, Fraunhofer, Fresnel, Kirchhoff, Abbe, Helmholtz en Stokes. Clara Osorio, Marko Kamp en Femius Koenderink

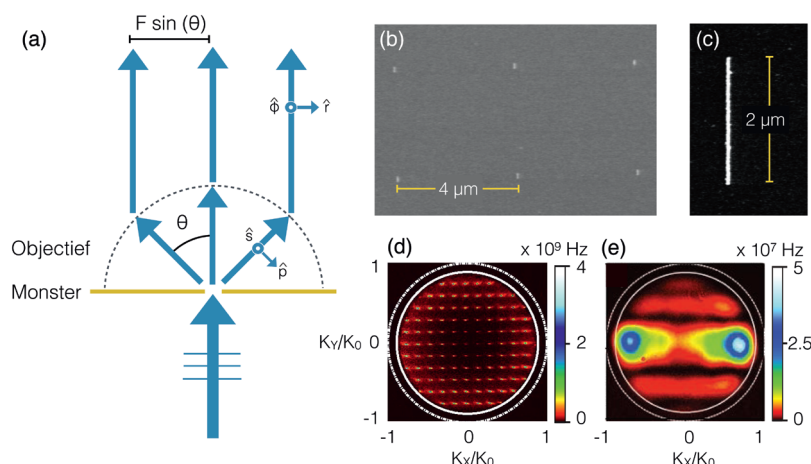
Het gebruik van een goede microscoop om individuele fotonen te kunnen zien die uitgezonden worden door een enkel-quantumsysteem, zoals een atoom of fluorescent molecuul, wordt in verschillende vakgebieden toegepast[1]. Biofysici bijvoorbeeld gebruiken fluorescentiemicroscopie om te meten hoeveel eiwitten zich ergens bevinden, waarheen individuele moleculen getransporteerd worden en hoe snel ze gevormd worden. Naast toepassingen in de microscopie is het manipuleren van fotonen die afkomstig zijn van enkel-quantumsystemen ook een belangrijke bouwsteen voor quantum-

informatie-technologie. Zo kun je informatie veilig verzenden als je de beschikking hebt over een elementaire bron die op afroep steeds precies één foton uitstraalt. Ook wordt er wereldwijd gewerkt aan manieren om wisselwerking te bewerkstelligen tussen quantumbits via fotonen die getransporteerd worden in geïntegreerde optische chips. In al deze toepassingsgebieden is het van belang dat je heel precies kunt controleren waarheen een enkel molecuul zijn foton uitstraalt. Omdat een atoom of molecuul zo'n 1000 keer kleiner is dan de golflengte van het gebruikte licht, is het in feite een puntbron die zonder enige voor-

keursrichting uitstraalt. Een van de uitdagingen van het vakgebied nanofotonica is om structuren op nanoschaal te ontwerpen die je om een puntbron heen kunt plaatsen zodanig dat je daarmee de bron dwingt af te stralen in een willekeurige gewenste bundel, met een gewenste hoekverdeling, polarisatie en fase. Naast de uitdaging om uit te vinden welke structuur een goede antenne is, is het ook een belangrijke vraag hoe je achterhaalt of je succesvol bent geweest of niet.

Fouriermicroscopie

Een eerste probleem is hoe de hoekverdeling van de straling afkomstig van een nanoschaalobject gemeten kan worden. Traditioneel meet je hoekopgelost door een detector op een rotatietafel te plaatsen. Voor een extreem klein object van minder dan $1\text{ }\mu\text{m}^2$ gaat dit niet wegens beperkte mechanische precisie. Ook zullen de verwachte lichtintensiteiten erg laag zijn. Een enkel molecuul bijvoorbeeld straalt typisch maar zo'n 10^6 fotonen uit per seconde en dat verdeeld over alle richtingen. Daarom maken we gebruik van een microscoop-objectief, en een CCD-camera die in elke pixel de invallende fotonen kan tellen. Volgens de diffractietheorie van Kirchhoff, Fresnel en Fraunhofer [2] is dit voldoende: de stralingsverdeling in het verre veld is immers de Fouriertransformatie van het elektrisch veld in het objectvlak. Een hoge-resolutiemeting van het elektrisch veld, met inbegrip van haar vectorcomponenten

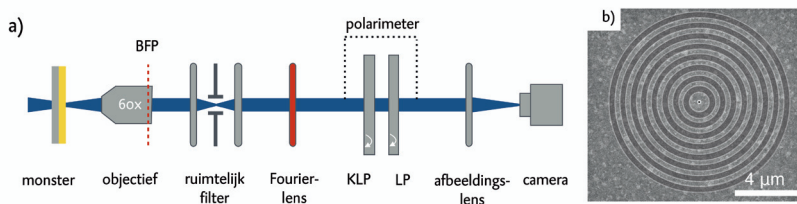


Figuur 1 a) Een microscoopobjectief beeldt de hoekverdeling van licht dat het object uitstraalt precies af: stralen die uittreden onder een hoek θ verschijnen op afstand $f \sin \theta$ van de optische as in het achterbrandvlak. b-c) Elektronenmicroscopiebeelden van een raster van nanostaafjes (200 nm lang, 50 nm breed en 30 nm dik) in een tralie met een roosterafstand van $4\text{ }\mu\text{m}$ en een enkel nanostaafje ($2\text{ }\mu\text{m}$ lang, 50 nm breed en 30 nm dik). d-e) Fourierafbeeldingen van een raster van nanostaafjes (200 nm) en een enkel nanostaafje ($2\text{ }\mu\text{m}$) aangeslagen onder een grote hoek (voorbij de NA van het objectief), met p -gepolariseerd licht. Het midden van het diagram correspondeert met de optische as (loodrecht op het monster) en de buitenring met een $NA = 0,95$ (hoek van 72°).

en de fase-informatie in het vlak direct bij de antenne is dus voldoende om de voortplanting van het veld in de vrije ruimte te berekenen. Er is echter geen eenvoudige manier om gelijktijdig de vectoramplitude en de fase bij de antenne te meten. Zo geeft een (diffractiegelimiteerd) microscoopbeeld van de antenne weliswaar de intensiteit $|E|^2$, maar gaat hierbij alle fase-informatie verloren, waardoor het uitvoeren van een Fouriertransformatie niet mogelijk is. In het geval van een enkel molecuul als bron kun je bovendien niet zomaar een interferometer bouwen om de fase te achterhalen. Immers, waar haal je een coherente referentiebundel vandaan?

Gelukkig is het meten van Fourierbeelden in de optica eenvoudig: een enkele lens voert de Fouriertransformatie al uit. Wanneer een voorwerp wordt geplaatst in één van de brandvlakken van een lens wordt zijn Fouriergetransformeerde beeld gevormd in het tweede brandvlak. In termen van stralenoptica gesteld: elk punt in het achterste brandvlak van een lens correspondeert met een vaste hoek of golfvector aan de voorkant van de lens. De enige beperking aan deze Fouriertransformatie is de diameter van de lens, dat wil zeggen de numerieke apertuur (NA). Deze bepaalt de maximale hoek θ van de lichtstralen afkomstig uit het voorwerp die worden meegenomen in de transformatie. Lesboeken benadrukken het feit dat lenzen Fouriertransformeren met name voor paraxiale optica met dunne lenzen, maar het geldt evenzeer voor microscoopobjectieven, ondanks hun typische openingshoek van meer dan zeventig graden, hun brandpuntsafstand f_{obj} van 2 mm, en hun dikte van typisch meer dan 5 cm glas.

Moderne microscoopobjectieven worden ontworpen om af te beelden 'op oneindig', dus met het voorwerp in het voorste brandvlak. Voor zulke optiek met een enorme NA wordt de lens niet langer als plat vlak beschouwd zoals dat typisch onderwezen wordt voor geometrische constructies met Newtons lenzenformule. Dit zou ook onpraktisch zijn, gezien de straal van de lens dan met de tangens van de openingshoek zou moeten schalen! In plaats hiervan dient een objectief beschouwd te worden als een brekend boloppervlak met straal f_{obj} . Door deze aanpak worden invallende lichtstralen

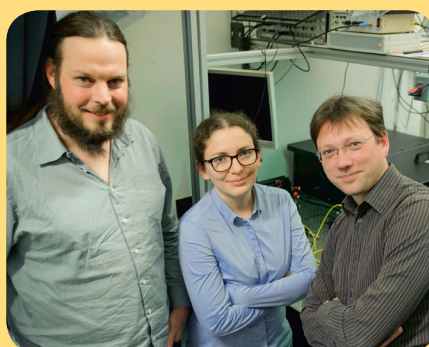


Figuur 2 a) De blauwe stralen tonen de microscopopbouw zonder de Fourierlens. Het achterbrandvlak bevindt zich nabij het schroefdraad van het objectief (rood gestippeld Back Focal Plane) en wordt scherp afgebeeld op de camera door middel van een extra Fourierlens. b) We gebruiken bull's eye-antennes gefabriceerd in goudlaagjes om ons systeem te testen.

die onder een hoek θ uit de bron komen gebundeld in het achterste brandvlak van het objectief op een afstand $f_{\text{obj}} \sin(\theta)$ van de optische as (figuur 1a). Deze geometrische constructie heet daarom de sinusvoorwaarde van Abbe. Deze door Ernst Abbe (en onafhankelijk door Helmholtz) geformuleerde voorwaarde garandeert scherpe afbeeldingen en is daardoor een harde eis voor het ontwerp van microscoopobjectieven [3,4]. Deze eis heeft nog een voordeel. In verstrooiingsproblemen is de parallelle golfvector $2\pi \sin\theta/\lambda$ vaak een veel praktischer parameter dan de hoek θ zelf. Denk hierbij bijvoorbeeld aan verstrooiing aan structuren met een periodiciteit, waarbij golfvectorbehoud modulo een reciproke roostervector van belang is. De sinusvoorwaarde van Abbe betekent dat het achterste brandvlak direct de parallelle golfvector weergeeft. Op basis van dit principe hebben we een microscoop gebouwd voor het maken van Fourierafbeeldingen van verstrooiende en fluorescente nanostructuren (figuur 2a). Een moderne

microscoop beeldt een voorwerp af door na het objectief een enkele lens (tube-lens of afbeeldingslens) te plaatsen die evenwijdige bundels focuseert op de beeldsensor van een camera. Met één slim geplaatste extra lens beeld je niet de bron af, maar het achterste brandvlak van het objectief. Zo ontstaat op de beeldsensor het Fourierbeeld van alles wat zich in het gezichtsveld van de microscoop bevindt. Omdat wij graag een enkel object bestuderen, gebruiken we een ruimtelijk filter door een extra telescoop met pinhole tussen objectief en Fourierlens te plaatsen. Deze bestaat uit twee gelijke lenzen van brandpuntsafstand f , op een afstand $2f$ van elkaar. Doordat er een reële afbeelding van de bron wordt gevormd precies tussen de lenzen kunnen we de Fouriertransformatie beperken tot een deel van de bron door een geschikte pin-hole te kiezen en tussen de lenzen te plaatsen.

Als voorbeeld laat figuur 1d een Fourierafbeelding [5] zien van nanostaafjes, die gerangschikt zijn in een rooster met een periode d van zo'n $4 \mu\text{m}$. Wan-



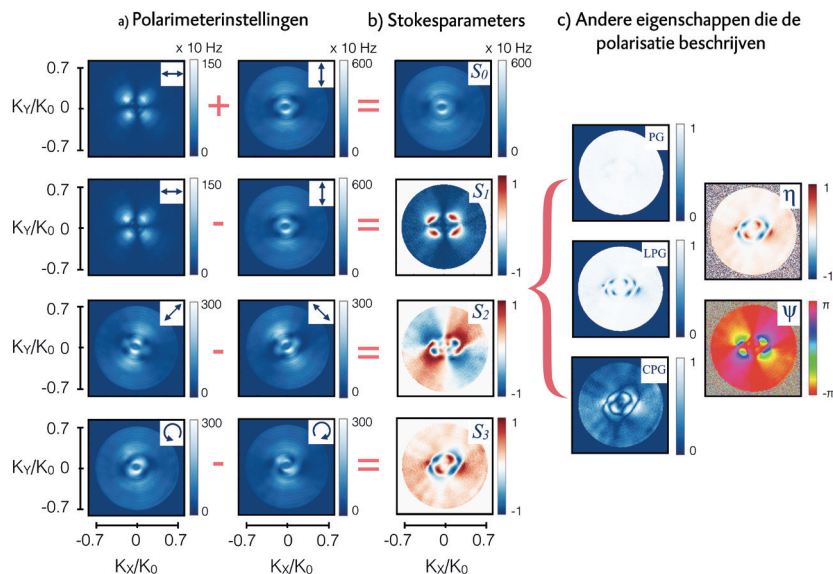
Clara I. Osorio (midden) studeerde natuurkunde aan de Universidad de Antioquia in Colombia. In 2010 behaalde ze haar doktersgraad van de Universitat Politècnica de Catalunya in Barcelona. Daarna was ze postdoc aan de Université de Genève. Sinds 2012 werkt ze als postdoc in het Center for Nanophotonics, bij AMOLF.

Marko Kamp (links) studeerde toegepaste natuurkunde aan de Saxion Hogeschool Enschede. Daarna werkte hij bij het Nijmeegse

Sensor Sense aan de ontwikkeling van gevoelige sporegasdetectoren gebaseerd op foto-akoestische technieken. Sinds 2011 werkt hij bij AMOLF als microscopetechnicus.

Femius Koenderink (rechts) studeerde natuur- en wiskunde aan de Universiteit Utrecht en promoveerde in 2003 aan de UvA, waarna hij aan de ETH Zürich werkte als postdoc. Sinds 2008 leidt hij, ondermeer gesteund door een NWO-Veni, Vidi en Vici-beurs, op AMOLF de groep Resonante Nanofotonica.

F.Koenderink@amolf.nl



Figuur 3 a) Zes Fourierafbeeldingen met de instellingen van de polarimeter die nodig zijn voor het bepalen van de Stokesparameters (b), waarmee alle andere eigenschappen van de polarisatie berekend kunnen worden (c). Als voorbeeld laten deze figuren de totale (PG), lineaire (LPG) en circulaire (CPG) polarisatiegraden zien, alsook de ellipticiteit η , (0 voor lineaire polarisatie, ± 1 voor rechts- en linksdraaiend circulair licht) en oriëntatie (hoek ψ ten opzichte van de x-as) van de polarisatie-ellips. De Stokesparameters S_1 , S_2 en S_3 zijn genormaliseerd naar S_0 .

neer de structuren met een vlakke golf belicht worden in een verstrooiings-experiment verwacht je tralieordes te zien. Deze tralieordes zijn inderdaad duidelijk zichtbaar en vormen door de sinusvoorwaarde van Abbe direct een equidistant rooster op de camerachip. Dit rooster kun je gebruiken om zowel de NA (circa 0,95) van het objectief te calibreren, als de mate waarin het objectief aan Abbe's conditie voldoet. Zodra je het ruimtelijk filter in de $2f$ -telescoop schuift, vangt de camera alleen nog licht op van een enkel nanostaafje en verandert het patroon drastisch van vorm. Het traliepatroon dat ontstaat doordat bijdragen van verschillende staafjes, behalve voor de tralieconditie, destructief interfereren, maakt plaats voor een stralingspatroon dat zich uitstrekt over alle hoeken. Doordat we de staafjes vanuit het substraat onder een grote invalshoek en met uit het vlak (p -)gepolariseerd licht aanslaan, gedraagt elk staafje zich als een dipoolstrooier die langs de optische as wijst. Hierdoor varieert het stralingspatroon met $\sin(\theta)^2$. Dit verklaart de radiële toename in intensiteit in figuur 1e. Doordat de staafjes in verticale richting langer zijn dan in horizontale richting, wordt het stralingspatroon in de verticale richting wat samengeperst, net zoals we bij Fraunhoferdiffractie gewend zijn dat het diffractiepatroon zich vernauwt als dimensies groter worden.

Polarimetrie

Behalve de richting van voortplanting heeft het verstrooide licht ook informatie in andere vrijheidsgraden, zoals polarisatie. Lineaire polarisatoren worden veel gebruikt om op een snelle en eenvoudige manier de polarisatie van een bundel licht te bepalen. Deze aanpak resulteert echter alleen in een complete karakterisatie als het licht volledig en volledig lineair gepolariseerd is. Dit komt echter maar zelden voor. Zelfs in een volledig gepolariseerde bundel is er buiten lineaire polarisatie een veelvoud aan mogelijke polarisatietoestanden, zoals links- of rechtsdraaiend circulair, of elliptisch. In het meest algemene geval, wanneer licht ontstaat uit een incoherent proces zoals bij fluorescentie of bij een zwarte straler, is licht zelfs maar gedeeltelijk gepolariseerd. Denk bijvoorbeeld aan zonlicht dat vrijwel ongepolariseerd is. Een volledige beschrijving van de polarisatietoestand van een willekeurige bundel kan gegeven worden met een minimum van vier parameters, de naar Sir George Stokes vernoemde Stokesparameters [6]: S_0 , S_1 , S_2 en S_3 . Deze kun je meten door met drie sets orthogonaal georiënteerde polarisatoren zes metingen te verrichten: lineair gepolariseerde metingen onder 0, 90, 45 en 135 graden, en links- en rechtsdraaiend circulair. Hiervoor is een roterende-faseplaatpolarimeter die bestaat uit een kwart-lambda-

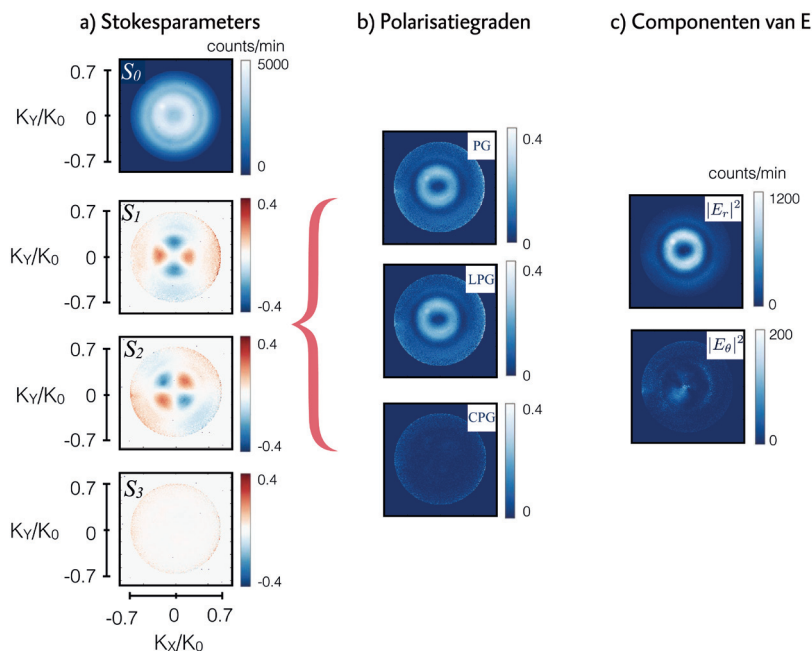
plaatje en een lineaire polarisator het eenvoudigst. Deze twee elementen vormen samen een lineaire polarisator wanneer de polarisatie-assen van de beide elementen parallel zijn, terwijl ze een circulaire polarisator vormen wanneer de assen een hoek van 45° maken. Door bij zes verschillende instellingen doorgelaten intensiteit te meten kunnen we de Stokesparameters uitrekenen. De parameter S_0 is eenvoudigweg de totale intensiteit, terwijl de parameters S_1 , S_2 en S_3 verschilintensiteiten gemeten door orthogonale polarisatoren zijn (horizontaal minus verticaal, 45° minus -45° , respectievelijk rechtsdraaiend minus linksdraaiend circulair). Uit de Stokesparameters kun je niet alleen de polarisatiegraad (PG) bepalen, maar alle karakteristieken van de polarisatie-ellips.

Fourierpolarimetrie

Met de polarimeter in onze Fouriermicroscopie kunnen we voor elke verstrooide golfvector de volledige polarisatietoestand bepalen. Als voorbeeld laten we hier hoekopgeloste Stokesparameters van verstrooid licht en van fluorescentie zien van bull's eye-nano-antennes. Deze structuren bestaan uit een metaalfilm met in het midden een gat en daaromheen concentrische groeven. Ze zijn befaamd [7] omdat ze zeer gericht verstrooien in transmissie, ondanks het feit dat het lichtdoorlatende gat zelf aanzienlijk kleiner is dan de golfenlengte (figuur 2b). De bull's eyes zijn gefabriceerd op microscoopdekglasma's met daarop een optisch niet doorlatend laagje goud van 200 nm dik. Met een gefocuseerde ionenbundel hebben we een gat met een diameter van 200 nm door het goud 'geboord', met daaromheen acht concentrische cirkels; alle 60 nm diep, 300 nm breed en 600 nm verwijderd van elkaar. In het eerste voorbeeld kijken we naar het geval waar het centrale gat door het dekglasje heen wordt belicht met verticaal gepolariseerd laserlicht [8]. Het verstrooide licht aan de andere kant van de film blijkt een behoorlijk nauwe 'donut'-bundel te vormen (figuur 3b – S_0). De groeven zijn hierbij essentieel: alleen een gat geeft een over alle hoeken uniform verdeeld stralingspatroon. Het gat straalt echter ook af in een oppervlaktegolf of 'plasmonpolariton' dat zich precies

op de goud-luchtvergang radieel verspreidt. Bij iedere groef verstrooit een deel van het plasmonpolariton het verre veld in. De resulterende hoekopgeloste intensiteitsverdeling is een interferentiepatroon van licht verstrooid door het centrale gat en de verstrooiing aan de omliggende ringen. Om de hoek- en polarisatieopgeloste verstrooiingspatronen van de bull's eye te meten, maken we zes Fourierafbeeldingen corresponderend met de verschillende instellingen van de polarimeter. Door nu camera-afbeeldingen bij elkaar op te tellen en af te trekken kunnen we de Stokesparameters voor iedere golfvector bepalen en vervolgens alle andere bruikbare eigenschappen, zoals de excentriciteit en oriëntatie van de polarisatie-ellips of de componenten van het elektrische veld berekenen. Zo verifiëren de metingen bijvoorbeeld dat wanneer je met geheel gepolariseerd licht van een laser binnenkomt, al het verstrooide licht ook volledig gepolariseerd is. Dit is logisch omdat bij verstrooiing geen decoherentie komt kijken. Ook zien we dat wanneer je deze cilindrisch-symmetrische antenne met lineair gepolariseerd licht aanslaat, het verstrooide licht met name deze lineaire polarisatie volgt. Toch is er ook een verrassing: voor goed gedefinieerde hoeken draaien de bull's eyes de polarisatie wel negentig graden (tekenwisseling van $S_1 = I_H - I_V$) of zetten de inkomende lineaire polarisatie zelfs volledig om in circulaire polarisatie (hoge waarde van $|S_3|$, $S_3 = I_{RCP} - I_{LCP}$): bij deze hoeken gedragen de bull's eyes zich als kwart-lambda-plaatjes. Deze polarisatieconversie laat zien dat verstrooiing aan kleine structuren fotonspin (polarisatie) aan de fotonbaan koppelt.

Terwijl in verstrooiingsexperimenten al het gemeten licht volledig gepolariseerd is, geldt dit niet wanneer de structuur wordt aangeslagen door een verzameling fluorescente moleculen die incoherent stralen. Als voorbeeld laten we in figuur 4 metingen zien aan dezelfde bull's eye, maar nu aangeslagen door fluorescentie van commercieel verkrijgbare kleurstofmoleculen (Alexa 700) opgelost in water, waarmee we het gat van de antenne vullen. Nadat de moleculen zijn aangeslagen met laserlicht van 650 nm kunnen de moleculen of vervallen door hun fluorescentie direct uit te zenden in het



Figuur 4 Hoek- en polarisatieopgeloste afbeeldingen van de fluorescentie rond 750 nm van Alexa 700-moleculen in het centrale gat van de antenne. De afgeleide Stokesparameters in (a) maken het mogelijk de polarisatiegraad te bepalen (b) en de componenten van het elektrisch veld voor het gepolariseerde deel van het signaal. Het gepolariseerde deel van de fluorescentie is volledig radieel.

verre veld, of door in een oppervlakte-plasmonpolariton te vervallen, die vervolgens uitverstrooid worden. Omdat de moleculen willekeurig georiënteerd zijn en incoherent stralen, verwacht je geen enkele polarisatie in het uitgestraalde licht. In afwezigheid van de groeven meten we inderdaad geen polarisatie. Zodra we een structuur met groeven beschouwen, gebeuren er echter twee dingen: ten eerste is de fluorescentie nu sterk gebundeld, wederom als een donutpatroon. Ten tweede blijkt de fluorescentie gedeeltelijk gepolariseerd. Hieruit blijkt de tussenkomst van de oppervlakteplasmonen. Deze bestaan namelijk alleen voor één polarisatie, die dicteert dat de donutbundel een lineaire, radiale polarisatie vertoont. De polarisatiegraad van het resulterende licht (figuur 4b) is een maat voor de sterkte van de koppeling tussen de moleculen en de oppervlakteplasmonen.

Conclusie

De besproken polarimetrische Fouriermicroscopie is een prachtig aanschouwelijk voorbeeld van Fourieroptica, microscopie en de theorie van partiële polarisatie. Tegelijk is het een nuttig instrument voor nanofotonica waarmee je over een grote ruimtehoek, dat wil zeggen over een openingshoek van ongeveer 75 graden van de optische as, en met één graad resolutie,

stralingspatronen en polarisatie kunt meten van verstrooiing en fluorescentie van enkele nano-antennes, die een werkzame verstrooiingsdoorsnede van maar $1 \mu\text{m}^2$, of zelfs nog minder hebben. De benodigheden hiervoor zijn een uitstekend objectief, een zeer gevoelige beeldsensor die individuele fotonen kan tellen en een voldoende heldere lichtbron om de structuren aan te slaan. Deze techniek is toe te passen op allerlei nano-antennes die ontwikkeld worden om verstrooiing en fluorescentie te manipuleren: zo wordt er gewerkt aan spiraalvormige antennes om bundels van enkele fotonen met spin en baanimpulsmoment te maken, of – meer toegepast – aan substraten om wit licht van leds naar believen gestuurd uit te stralen.

Referenties

- 1 M. Orrit en J. Bernard, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 2716 (1990).
- 2 G. Kirchhoff, *Annalen der Physik* **254**, 663–695 (1883).
- 3 E. Abbe, *Archiv für mikroskopische Anatomie* **9**, 469–480 (1873).
- 4 H. von Helmholtz, *Annalen der Physik. Jubelband*, 557–584 (1874).
- 5 I. Sersic, C. Tuambilangana en A. F. Koenderink, *New J. Phys.* **13**, 083019 (2011).
- 6 G. G. Stokes, *Trans. Cambridge Philos. Soc.* **9**, 399 (1852).
- 7 H. J. Lezec et al., *Science* **297**, 820 – 822 (2002).
- 8 C. I. Osorio, A. Mohtashami en A. F. Koenderink, *Sci. Rep. in druk* (2015).