

# Rational engineering of light-matter interactions: From optical metasurfaces to printing single fluorescent molecules

**Doctoral Thesis**

**Author(s):**

Hail, Claudio U.

**Publication date:**

2020-05

**Permanent link:**

<https://doi.org/10.3929/ethz-b-000413678>

DISS. ETH NO. 26602

**Rational engineering of light-matter interactions:  
From optical metasurfaces to printing single  
fluorescent molecules**

A thesis submitted to attain the degree of  
DOCTOR OF SCIENCES of ETH ZURICH

(Dr. sc. ETH Zurich)

presented by

**Claudio U. Hail**

M.S., Massachusetts Institute of Technology (2015)

born on 10.04.1990

citizen of

Chur, Switzerland

accepted on the recommendation of  
Prof. Dimos Poulikakos  
Prof. Vahid Sandoghdar  
Prof. Lukas Novotny  
Dr. Hadi Eghlidi

2020

---

## Abstract

The peculiar interaction of electromagnetic radiation with the atoms and molecules composing matter lies at the center of many phenomena and processes encountered in nature and modern day advanced technologies. Rationally tailoring this interaction allows for controlling the propagation, spectrum, polarization or even the quantum nature of light. However, due to the wave nature of light, the effective engineering of this interaction requires a structuring of matter at wavelength or subwavelength dimensions, and a precise and hybrid integration of materials at the nanoscale.

This thesis focuses on rationally tailoring the interaction of light and matter through artificially designed nanostructured surfaces, so-called metasurfaces, and novel approaches to nanofabrication, in particular electrohydrodynamic nanoprinting. This includes the manipulation of light and its sources at the nanoscale both in the classical and quantum regime. In this effort, we focus on three specific problems of interest: the extreme manipulation of the propagation of light by a metasurface, the spectral manipulation of light through a materials structure, and the development of a printing technology for scalable and precise placement of single quantum light sources, such as a single fluorescent molecule.

In an optical imaging system, the resolution is determined by the maximum angle of deflection/acceptance that the imaging objective provides and the refractive index of the surrounding medium. While over decades, the processes of lens making have improved to provide high-end refractive optical elements such as conventional bulky microscope objective lenses, implementing the same resolution, and thus the large deflection angles, in flat optical components is not straightforward. Here, we present a method for designing optical metasurfaces, that enables the efficient deflection of light at large angles and thus realizing flat lenses for imaging objects with subwavelength resolution. The experimentally demonstrated flat lenses show diffraction-limited resolution down to one third of the wavelength of light in the visible spectral range. These demonstrated achievements are particularly promising as they set the groundwork for the realization of flat optical components for imaging, beam focusing, beam shaping and holography with high resolution.

Another essential characteristic of light with profound implications for everyday life is the spectral distribution of light intensity, giving rise to the human perception of colors in the visible spectral range. Here, nanophotonics provides a promising pathway to generate long-lasting, vivid structural colors with diffraction-limited resolution. One largely overlooked problem in the nanophotonic generation of colors is the variation of color brightness and color mixing, which is necessary for the photo-accurate representation of images. Here, we propose a plasmonic multi-color pixel that allows for mixing the three primary color components, red,

green and blue, and individually and continuously setting their brightness. With this, we demonstrate the continuous coverage of a color gamut representing up to 39% of the standard sRGB color gamut, and the representation of photo-accurate color and grayscale images. The high achieved level of control over color brightness, chromaticity and mixing enables the realization of countless number of colors and is promising for applications such as anti-counterfeiting security features and miniaturized displays.

Finally, an important problem for controlling light in the quantum regime is tailoring the interaction of a quantum light source with its environment. Optimizing this interaction can lead to a brighter and faster emission, and an efficient collection of light from the source, or it can produce intriguing mixed states of light-matter coupling. The control over this interaction however requires a precise control of the emitter's position and orientation with respect to the environment. While many studies have relied on a stochastic placement of emitters with respect to an ordered environment, more controlled and scalable methods for the precise nanopositioning of quantum emitters are needed. Here, we demonstrate the controlled and high-yield deposition of single fluorescent molecules with  $\pm 100$  nm accuracy and a well-defined orientation using electrohydrodynamic nanoprinting. The quantum emitters, in our case single dye molecules, are deposited with high yield and provide photostable fluorescence emission. Furthermore, our method allows for scalable and controlled coupling of single quantum emitters to a nanophotonic environment, as experimentally demonstrated on the example of coupling to photonic and plasmonic waveguides. Due to several orders of magnitudes higher success rates of nanopositioning, our method enables a new set of fundamental experiments on light-matter interaction and may also enable industrially relevant applications such as the high-yield fabrication of fiber-coupled single photon sources.

---

## Zusammenfassung

Die sonderbare Wechselwirkung von elektromagnetischer Strahlung und den Atomen und Molekülen, aus denen die Materie besteht, steht im Mittelpunkt vieler Phänomene und Prozesse, die in der Natur und in den modernen fortschrittlichen Technologien auftreten. Eine rationale Anpassung dieser Wechselwirkung ermöglicht die Kontrolle über die Ausbreitung, das Spektrum, die Polarisation oder die Quantennatur des Lichts. Aufgrund der Wellennatur des Lichts erfordert eine effektive Anpassung dieser Wechselwirkung eine Strukturierung der Materie mit einer Präzision im Wellenlängen- oder im Subwellenlängenbereich und eine präzise und hybride Integration von Materialien im Nanobereich.

Diese Dissertation beschäftigt sich mit der rationalen Anpassung der Wechselwirkung von Licht und Materie durch künstlich gestaltete, nanostrukturierte Oberflächen, sogenannte Metaoberflächen, und durch neue Ansätze zur Nanofabrikation, insbesondere dem elektrohydrodynamischen Nanodruckverfahren. Dies beinhaltet die Manipulation von Licht und dessen Quellen im Nanobereich sowohl im klassischen als auch im Quantenregime. Dabei konzentrieren wir uns auf drei spezifische interessante Probleme: die extreme Manipulation der Lichtausbreitung durch eine Metaoberfläche, die spektrale Manipulation des Lichts durch die Materialstruktur und die Entwicklung einer Drucktechnologie zur skalierbaren und präzisen Platzierung einzelner Quantenlichtquellen, wie ein einzelnes fluoreszierendes Molekül.

In einem optischen Abbildungssystem ist die Auflösung durch den maximalen Ablenk/Akzeptanzwinkel des Abbildungsobjektivs und den Brechungsindex des umgebenden Mediums bestimmt. Während über Jahrzehnte die Prozesse der Linsenherstellung verbessert wurden, um hochauflösende optische Elemente wie herkömmliche sperrige Mikroskopobjektive herzustellen, ist die Implementierung derselben Auflösung und die damit verbundenen grossen Ablenkwinkel, in neuartigen flachen optischen Komponenten nicht einfach. Hier präsentieren wir eine Methode zur Gestaltung optischer Metaoberflächen, die es ermöglicht, Licht unter grossen Winkeln effizient abzulenken und damit flache Linsen für die Abbildung von Objekten mit einer Auflösung unterhalb der Wellenlänge zu realisieren. Die experimentell realisierten flachen Linsen zeigen eine beugungsbegrenzte Auflösung von bis zu einem Drittel der Wellenlänge im sichtbaren Spektralbereich. Diese Ergebnisse sind besonders vielversprechend, da sie den Grundstein für die Realisierung flacher optischer Komponenten für die optische Bildgebung, Strahlfokussierung, Strahlformung und Holographie mit hoher Auflösung legen.

Ein weiteres wesentliches Merkmal von Licht mit tiefgreifenden Auswirkungen auf den Alltag ist die spektrale Verteilung der Lichtintensität, welche die

menschliche Wahrnehmung von Farben im sichtbaren Spektralbereich hervorruft. Hier bietet die Nanophotonik einen vielversprechenden Weg, um langanhaltende, lebendige Strukturfarben mit beugungsbegrenzter Auflösung zu erzeugen. Ein weitgehend übersehenes Problem bei der nanophotonischen Erzeugung von Farben ist die Variation der Farbhelligkeit und Farbmischung, die für die foto-genaue Darstellung von Bildern notwendig ist. Hier schlagen wir ein plasmonisches Mehrfarbenpixel vor, mit dem die drei Farbkomponenten Rot, Grün und Blau gemischt und ihre Helligkeit individuell und kontinuierlich eingestellt werden kann. Damit demonstrieren wir die kontinuierliche Abdeckung einer Farbpalette, welche bis zu 39% des Standard-sRGB-Farbpalette abdeckt, und die genaue Darstellung von Farb- und Graustufenbildern. Das hohe Mass an Kontrolle über Farbhelligkeit, Farbsättigung und Farbmischung ermöglicht die Realisierung unzähliger Farben und ist vielversprechend für Anwendungen wie fälschungssichere Sicherheitsmerkmale und miniaturisierte Displays.

Ein wesentliches Problem bei der Kontrolle von Licht im Quantenregime ist die Anpassung der Wechselwirkung einer Quantenlichtquelle mit ihrer Umgebung. Eine Optimierung dieser Wechselwirkung kann zu einer helleren und schnelleren Emission und effizienten Kollektion von dem Licht der Quelle führen oder auch faszinierende Mischzustände der Kopplung zwischen Licht und Materie erzeugen. Die Anpassung dieser Wechselwirkung erfordert jedoch eine genaue Kontrolle der Position und Ausrichtung des Quantenemitters in Bezug auf dessen Umgebung. Während sich viele Studien auf die stochastische Platzierung von Quantenemittern in Bezug auf eine geordnete Umgebung verlassen haben, sind kontrollierte und skalierbare Methoden für die präzise Nanopositionierung von Quantenemittern erforderlich. Hier demonstrieren wir die kontrollierte und effektive Abscheidung einzelner fluoreszierender Moleküle mit einer Genauigkeit von  $\pm 100$  nm und einer genau definierten Ausrichtung mithilfe des elektrohydrodynamischen Nanodruckverfahrens. Die Quantenemitter, in unserem Fall einzelne Farbstoffmoleküle, werden in grossem Massstab mit hoher Ausbeute abgeschieden und liefern eine photostabile Fluoreszenzemission. Darüber hinaus ermöglicht unsere Methode die skalierbare und kontrollierte Kopplung von einzelnen Quantenemittern an eine nanophotonische Umgebung, wie im Experiment am Beispiel der Kopplung an photonische und plasmonische Wellenleiter gezeigt. Aufgrund der um mehrere Grössenordnungen höheren Erfolgsraten der Nanopositionierung ermöglicht unsere Methode eine Reihe von grundlegenden Experimenten zur Wechselwirkung zwischen Licht und Materie und ermöglicht möglicherweise auch industriell relevante Anwendungen wie die Herstellung von fasergekoppelten Einzelphotonenquellen mit hoher Ausbeute.