

以金屬應力自組法製作三維裂環共振器及其特性分析

Characterization of Three Dimensional Split Ring Resonators Fabricated by Stress-Driven Self-Assembly Method

陳哲勤、湯喻翔、蕭銘華、蔡定平

Che-Chin Chen, Yu-Hsiang Tang, Ming-Hua Shiao, Din Ping Tsai

裂環共振器為人造光學超穎材料最重要之基本結構之一，在邁向更高頻應用中，三維化的課題則是現階段所遭遇的最大困難點。本研究提出一項簡單的製程架構，結合微影術與乾式蝕刻技術，利用金屬應力自組法，可輕易地製作紅外波段之三維裂環共振器，並透過光譜量測及數值模擬分析，研究電磁波與元件交互作用所顯現之光學特性。

The split ring resonator is one of the most important meta-atom for constructing the artificial photonic metamaterials. For higher frequency applications, the most difficult part is to fabricate the three-dimensional structures. In this study, we demonstrate a simple strategy by utilizing metal-stress self-assembly method to fabricate infrared three-dimensional split ring resonators. This strategy is simply involved lithography and dry etching processes. The electromagnetic properties are characterized through both spectrum experiments and numerical simulations.

一、前言

1. 背景介紹

由同時具負介電常數及負磁導率之左手介質的負折射係數材料近年來已成為熱門研究課題。俄國物理學家 Victor Veselago 於1968年從馬克斯威爾的電磁學理論公式推論，當一個材料的磁導率(permeability, μ) 以及介電常數(dielectric constant, ϵ) 同時為負時，電磁波進入該材料，其折射方向將會

往「不自然」的方向傳播，亦即該電磁波的傳播方向及其電、磁場將遵循左手定則，且其相速度與群速度將呈現反平行狀態，並稱這種材料為左手材料(left-hand material)⁽¹⁾，然而由於自然界的材料不存在同時具負介電常數與負磁導率，此話題僅停留於理論階段。直至20世紀末，英國帝國大學教授 Pendry 等人發表一項共振器結構，可產生磁共振響應，並具有負磁導率的特性^(2, 3)。該共振器由兩個裂環所組成，並清楚地說明該結構此尺寸參數與

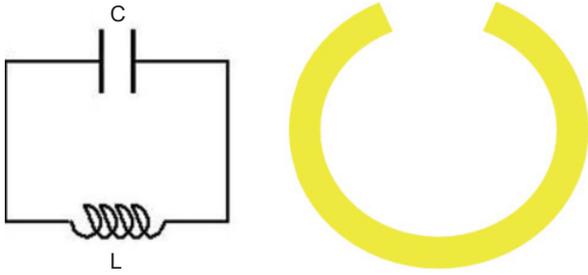


圖 1. 裂環共振器類比 LC 電路，其中裂環間隙類比電容；裂環類比為一單圈電感。

磁導率的關係，結合具負介電常數的金屬線陣列，將可構成複合型負折射係數材料。

而在 2001 年 Shelby 等人於 Science 期刊上發表一篇關鍵性論文，該文利用 Pendry 的模型，實現了 Veselago 的負折射率介質⁽⁴⁾，而開啟了後續對此人造材料的熱門研究。一般物質的原子以週期性有序地排列，其晶格常數約在 1 奈米以下，在光波波長遠大於原子周期的情形下，光無法「看到」此週期性排列，而視其為一均勻介質，材料與光的交互作用即可以介電係數或磁導率描述；而超穎材料即為人工建立具晶格常數之「人工原子」，當入射光波長大於單位位元的大小時，藉由人工調控物質的幾何參數(如結構大小、形狀或陣列週期)，將可使得該材料具有其特殊的光學性質，而此種由人工建立，並具特殊電磁響應的材料，就稱之為超穎材料，其電磁性質是利用有效介電常數 (effective permittivity) 和有效磁導率 (effective permeability) 來描述。超穎材料所顯示的獨特特性，如負折射係數 (negative refractive index)^(5, 6)、場增益 (field enhancement)^(7, 8) 及次波長成像 (subwavelength imaging)^(9, 10) 等，更提供了其未來極具潛力的應用面向。

具有相當強的磁共振響應之裂環共振器 (split ring resonators) 為製作具負磁導率之光學超穎材料最常見之單位位元，共振器的間隙提供了裂環共振器，可於入射光波長遠大於環直徑的條件下產生共振。裂環共振器的類 LC 電路，可將兩個手臂間隙類比成電容 C，環形面類比為電感 L，該電路為一電容串聯一電感，而 LC 電路模型的本徵頻率 $\omega_{LC} = (LC)^{-1/2}$ ，如圖 1 所示。

若要利用外加電磁波激發裂環共振器結構的磁共振響應共有兩種方法：第一種方法是入射電磁波的電場 \vec{E} 有分量垂直於電容，即平行於間隙。當此條件成立時，電場於間隙方向振盪，因而將在間隙兩端上累積電荷密度，進而激發 LC 電路共振，亦稱為電容響應；第二種方法亦稱之為電感響應，則是入射電磁波的磁場 \vec{H} ，具有分量平行於裂環共振器所圍起面積的法線方向。當此條件成立時，由法拉第定律可以知道在裂環共振器上將會產生一環形電流，亦可激發 LC 共振，當外加電磁波頻率略高於本徵頻率時，將造成此時結構的有效磁導率為負值。而其應用電磁波波段與其結構大小有關，從微波至可見光範圍均有相關之研究，但直至目前為止，由於製程的相對複雜，有關三維裂環共振器仍著墨不深。

2. 研究目的

二維形式之裂環共振器主要用來製作 THz 範圍之超穎材料，而若要獲得電感響應的磁共振模態，使得其有效磁導率為負值，則入射光必須與平面法線方向具有夾角才能使得磁場具分量於裂環面方向，如此便降低了其耦合效率。製作三維裂環共振器即可克服此項缺點，三維裂環共振器在早期因製程技術限制僅可製作於電路板上並應用於微波波段⁽⁴⁾，而後亦發展數種製程方式製作直立式裂環共振器，如透過光學微影結合電鍍方式⁽¹¹⁾、多道 MEMS 製程⁽¹²⁾及電子束微影對準技術⁽¹³⁾等，能有效地將應用波段更往短波長推進，甚至到可見光範圍。然而這些製程卻有著相對困難及複雜的缺點，造成三維裂環共振器之發展及特性研究受到製程上的限制。有鑑於上述對於三維裂環共振器之優點及相關製程缺點的敘述，本研究提出一相對簡單之製作方法^(14, 15)，亦即利用金屬應力製作三維裂環共振器，並探究其光學特性。

二、實驗方法

本研究之三維裂環共振器製作概念，係利用金屬應力驅動懸臂進而形成三維結構，相關步驟及說明如下：以微影術，透過舉離製程製作二維金屬圖

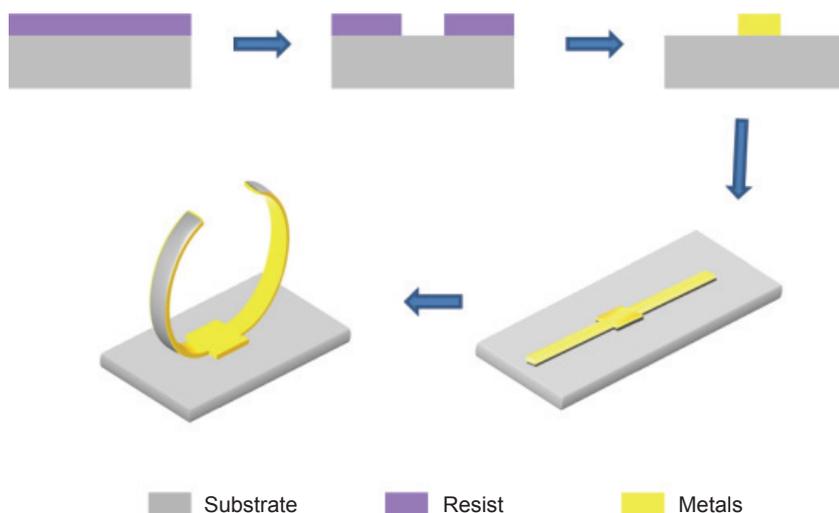


圖 2. 元件製作流程圖：阻劑塗佈、微影、鍍膜舉離、乾式蝕刻、應力拉舉手臂而形成三維結構。

形，包含二臂及一中間區域，此中間區域寬度需大於二臂寬度，以作為最後與基板之黏合點。當進行薄膜沉積時，其 *intrinsic stress* 同時產生於金屬薄膜內，接下來將樣品以感應式耦合電漿蝕刻機進行乾式蝕刻以掏空基板材料 (Si)，當二臂下方之基板材料完全掏空，而使二臂懸空之時，金屬應力將同時拉起二懸臂而形成直立式結構，在此同時由於中間區域寬度大於兩臂寬度，故仍能將元件固定於基板上，元件製作僅需各一道微影、鍍膜及蝕刻製程即可完成，如圖 2 所示⁽¹⁵⁾。

為完成紅外波段三維裂環共振器，在線寬大於一微米以上之共振器，將透過光微影曝光技術製作元件之二維圖形 (遠紅外波段)；而次微米線寬等級之共振器元件，則須利用電子束微影技術製作二維圖形 (中紅外波段)；光學量測則由 FTIR (FT/IR-6300FV, Jasco) 進行穿透光譜分析，量測架構圖如圖 3 所示，並以正向入射下，定義電場分量平行裂環間隙 (磁場分量平行裂環面) 為 $\theta = 0^\circ$ ，其中 θ 為基板旋轉角度，我們製作之三維裂環共振器，可同時由入射電磁波之電場及磁場激發元件；而數值模擬則採用 COMSOL Multiphysics 軟體，求解其三維馬克斯威爾方程式，分析其穿透光譜及其共振模態之電、磁響應。

三、結果與討論

為使金屬手臂在釋放後可向上捲曲，我們採用雙層金屬應力來完成所需之三維結構，雙層金

屬應力配置需使上方金屬層具 *tensile stress* (Au 60 nm)，反之，下方金屬層為 *compressive stress* (Ni 10 nm)⁽¹⁶⁾。首先，我們利用光微影技術製作線寬為 1 微米，線長 25 微米之二維圖形，如圖 4(a) 所示，圖 4(b) 為乾式蝕刻後所形成之三維裂環共振器結構，以 $\theta = 0^\circ$ 量測其穿透光譜圖 (圖 5)，顯示

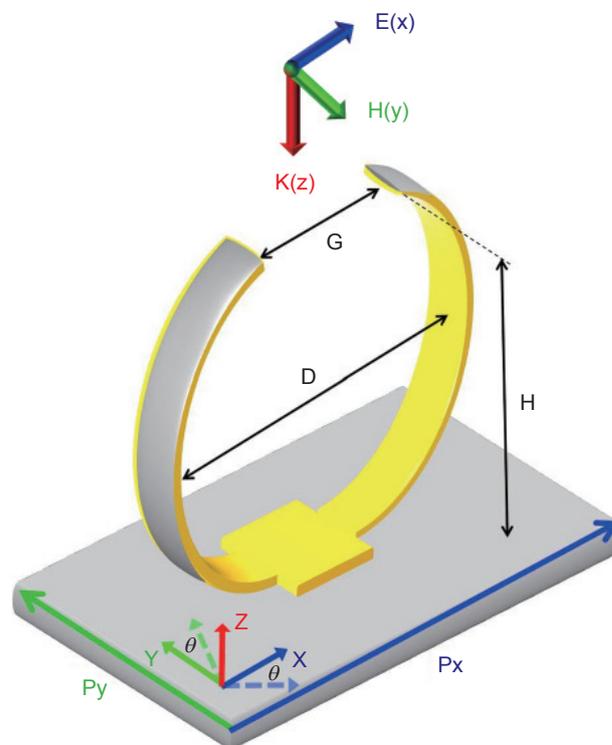


圖 3. 元件量測架構圖：定義電磁波正向入射，電場分量平行裂環間隙時為 $\theta = 0^\circ$ 、D 為直徑、G 為間隙寬度、H 為高度。

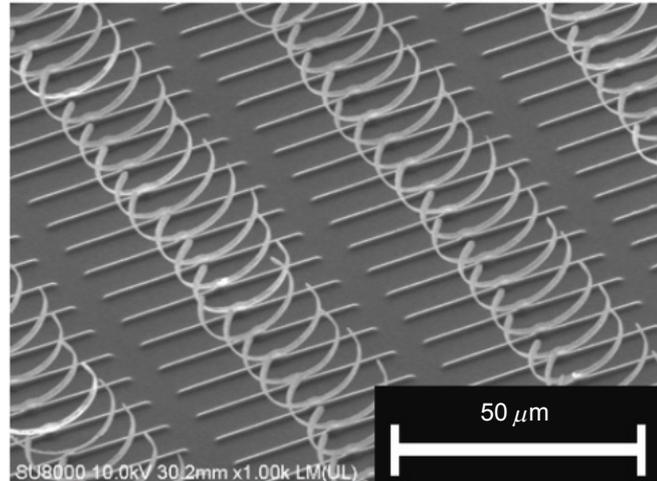
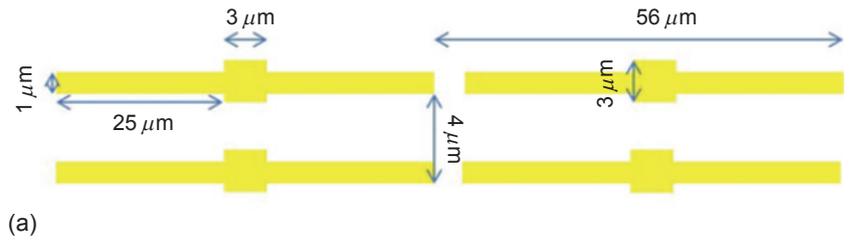


圖 4.
(a) 二維圖形設計，相關尺寸標於圖內 (b) 搭配光微影技術完成之三維裂環共振器 SEM 圖 (傾斜角度 45°)。

在波長約為 100 微米 (遠紅外波段) 處有一主要共振模態，並在短波長處有數個高階共振模態出現。若要提高共振頻率 (更短共振波長)，最直接的方式為縮小元件尺寸，因此，我們使用電子束微影技術製作線寬為 0.2 微米、線長 2.5 微米之二維圖形，如圖 6(a) 所示，圖 6(b) 為乾式蝕刻後所形成之三維裂環共振器結構，以 $\theta = 0^\circ$ 條件下，量測其穿透

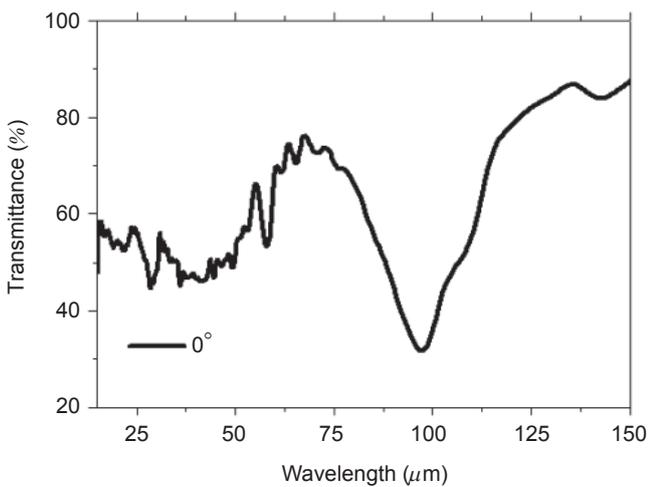


圖 5. 遠紅外波段元件之穿透光譜圖， $\theta = 0^\circ$ 。

光譜圖，如圖 7 所示。在波長約為 11 微米 (中紅外波段) 處有一主要共振模態出現，若將基板旋轉 θ ，造成入射電磁波電場與裂環間隙 (磁場與裂環面) 有一角度 θ ，其穿透率 (transmittance, T) 將隨角度增加而增加，此現象因元件本身結構與陣列僅為鏡像對稱，故對入射電磁波會顯現出非等向性響應 (anisotropic responses)，並在 $\theta = 90^\circ$ 條件下 (此時入射電磁波電場垂直裂環隙、磁場垂直裂環面)，穿透光譜並未顯現明顯的共振現象。

針對電子束微影製作之三維裂環共振器，我們利用 COMSOL multiphysics 來進行數值計算，使用參數設定為 Si : $n = 3.5$; J & C NIR-fitted Drude model w/ Γ 1 times ; $\omega_p = 2.19635e15 \times 2\pi$ rad/s ; $\Gamma = 1.7113434e13 \times 2\pi \times 3$ rad/s ; Au thickness = 60 nm ; $\epsilon_\infty = 1.0$ ，而以實際電子顯微鏡觀察圖 6(b) 之元件形貌參數分別為 $D = 2.2 \mu\text{m}$ 、 $G = 1.5 \mu\text{m}$ 、 $H = 1.8 \mu\text{m}$ (圖 3 定義)，其餘形貌參數如圖 6(a)。分別針對 $\theta = 0^\circ$ 及 90° 進行計算，所獲得的穿透光譜圖如圖 8 所示，當 $\theta = 0^\circ$ 時，可看到一主要共振模態出現於 10 微米； $\theta = 90^\circ$ 時，則並未有明顯共振現象出現，模擬結果與實驗顯現相當吻合之結果。

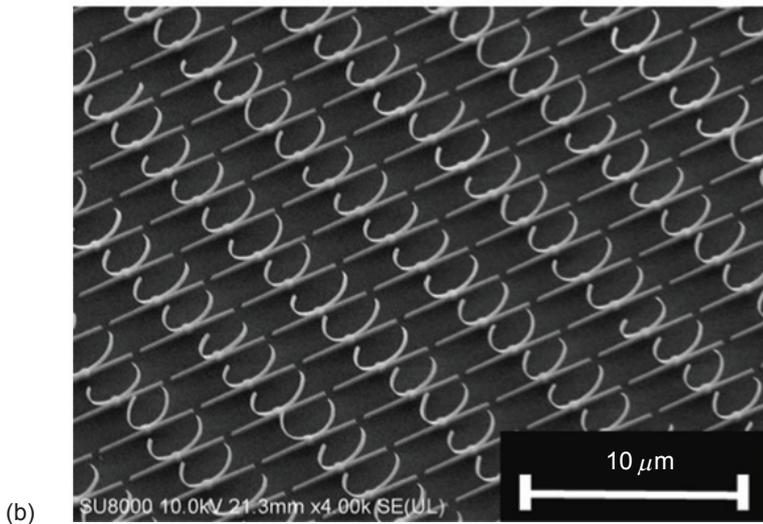
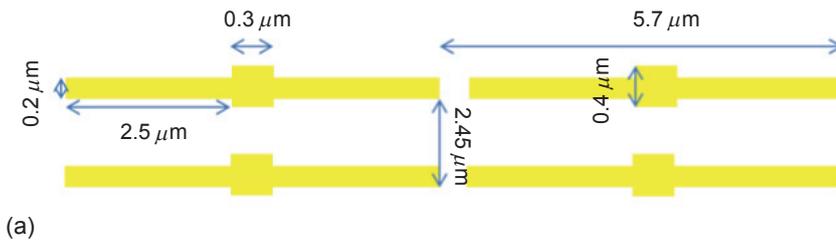


圖 6.

(a) 二維圖形設計，相關尺寸標於圖內 (b) 搭配電子束微影技術完成之三維裂環共振器 SEM 圖(傾斜角度 45°)。

而共振波長的些微不同，推測起因於由電子顯微鏡觀察元件形貌 (D 、 G 、 H 等) 有些許誤差，驗證了我們數值計算的可靠。為釐清此元件之主要共振模態，需深入討論其相關場圖 (field patterns)。圖 9(a)、(b) 分別為主要共振模態發生時，當 $\theta = 0^\circ$ 之

條件下，電流密度 J_x (x 方向) 與磁場強度 H_{xz} (XZ 面) 分布圖，由此圖 9(a)、(b) 可綜合判斷在該共振模態下，元件結構中產生一環形電流，並在環面內有強烈磁共振產生，且有磁場增益現象，在此時將會造成磁導率有大幅變化，故此共振模態則可

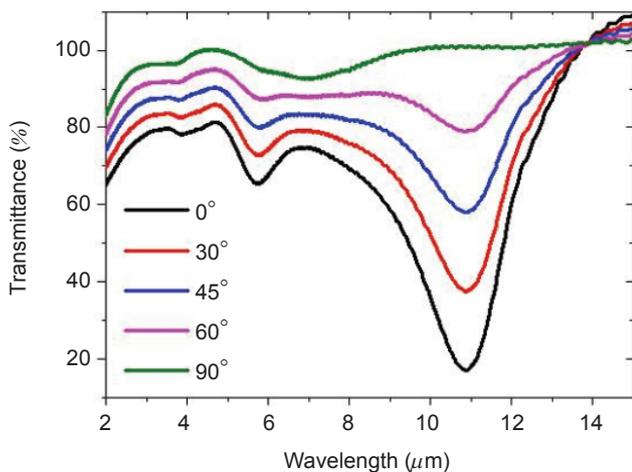


圖 7. 中紅外波段元件之穿透光譜圖， $\theta = 0^\circ - 90^\circ$ 。

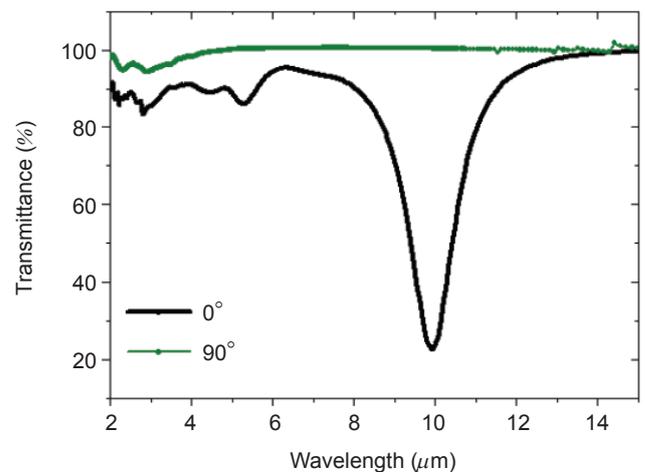


圖 8. 數值模擬之穿透光譜圖， $\theta = 0^\circ$ 或 90° 。

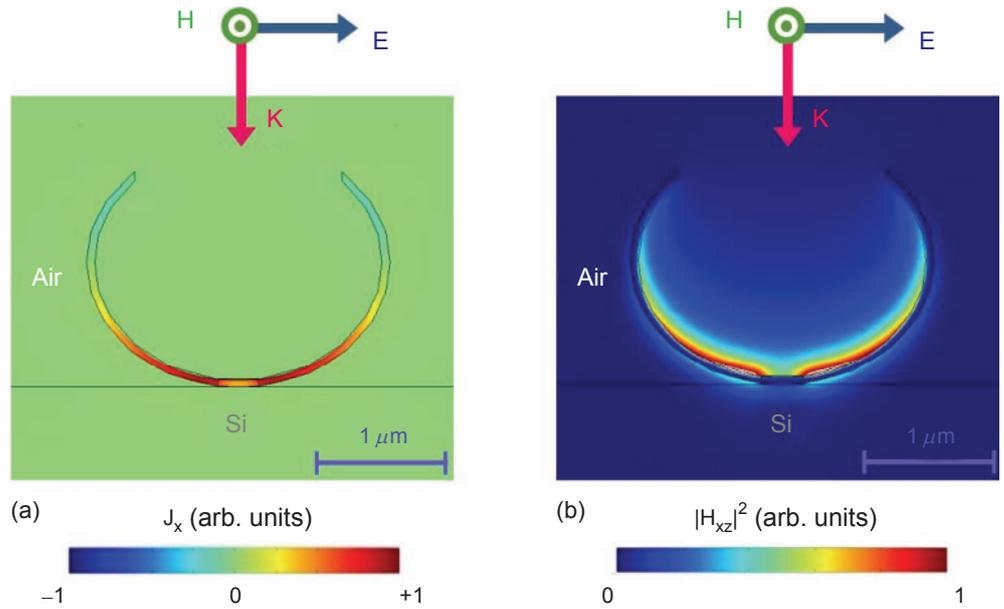


圖 9. 主共振模態下之數值模擬場圖 (a) x 方向之電流密度分布圖 (b) xz 面之磁場強度分布圖。

確立為裂環共振器之 **fundamental mode**；而在圖 9 中，元件與 Si 基板接合處之電流密度與磁場強度較弱，則是因為該處之原始寬度設計大於二臂寬度而有此現象。

圖 6 所呈現之裂環共振器陣列，因結構本身與均為鏡像對稱，故顯現出非等向性之共振響應，亦即元件對特定極化方向之入射電磁波會顯現特定共振響應，這也是一般光學共振器或超穎材料在應用上常面臨的一個問題。目前以裂環共振器為基礎之元件，顯現出等向特性 (**isotropic**) 的，僅在微波波段⁽⁴⁾ 或理論預測^(17, 18)。由理論預測，可簡單闡述等向特性可由兩個方法達成：其一是高對稱立體元件；其二是高對稱性陣列。因此，可利用我們結構

立體的優勢，設計一項 **four fold symmetry** 陣列元件，可使元件具有一些條件下的等向共振響應。

圖 10(a) 為利用電子束微影術製作之陣列示意圖，其中單位元尺度與圖 6(a) 相同；圖 10(b) 為乾式蝕刻後所形成之三維裂環共振器陣列結構，其穿透光譜圖如圖 11 所示，在電磁波正向入射下，當 $\theta = 0^\circ$ 時，可看到波長為 11.3 微米處出現主要共振模態，共振波長與圖 6 結構有些許不同，係因為周期陣列的不同所造成的影響。隨著旋轉基板而改變 θ 的狀況下，各穿透光譜圖幾乎完全重合，而顯現出在此條件下有完全等向性的共振響應，未來若能更增進陣列的對稱性，將可更增加其在不同條件下的等向特性。

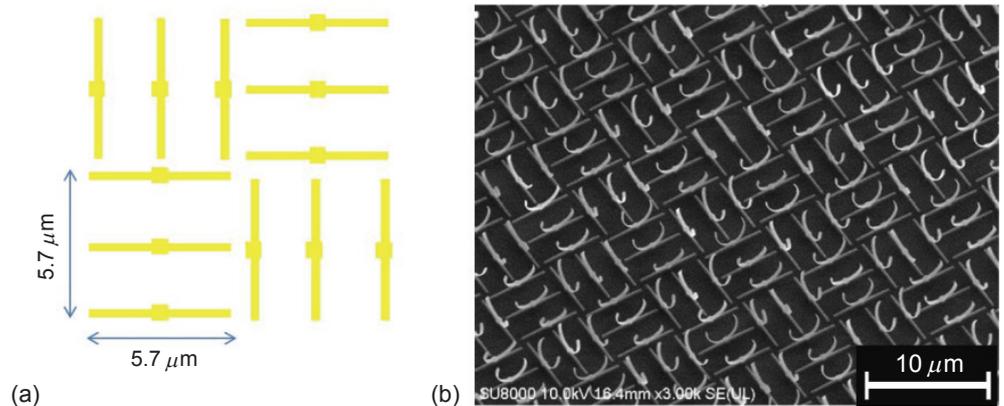


圖 10. (a) **four fold symmetry** 二維陣列設計，相關尺寸標於圖內 (b) 搭配電子束微影技術完成之三維裂環共振器陣列 SEM 圖 (傾斜角度 45°)。

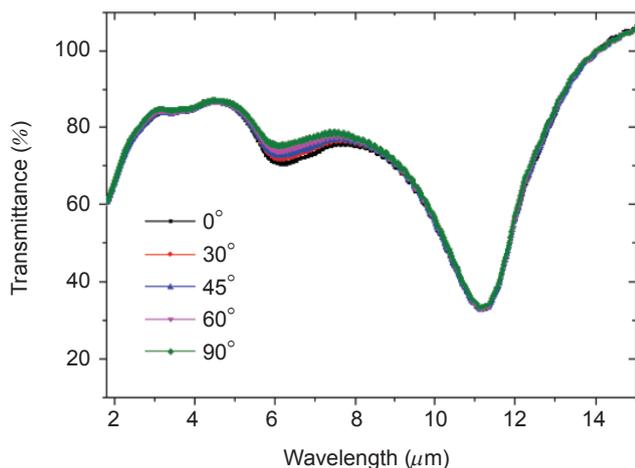


圖 11. 正向入射電磁波條件下，等向性共振響應穿透光譜圖， $\theta = 0^\circ - 90^\circ$ 。

四、結論

本研究提出之製程概念係利用金屬應力製作三維化裂環共振器，製程技術包含微影術、金屬鍍膜及乾式蝕刻技術等，可克服現階段將此光學共振元件三維化及縮小化的製程瓶頸。透過不同的微影技術，我們成功地製作出共振波長約為 100 與 11 微米之三維裂環共振器；數值模擬與實驗結果相當吻合，並指出此共振模態為裂環共振器之 fundamental mode，在此共振態下，電流將環流於金屬線內，並在環面內有最強之磁場增益；此外，亦設計了一項 four-fold symmetry 的裂環共振器陣列，這樣高對稱性的排列，在電磁波正向入射的條件下，可獲得完全等向性的共振響應，對未來發展應用元件將有相當大的幫助。

參考文獻

1. V. G. Veselago, *Sov. Phys. Usp.* **10**, 509 (1968).
2. J. B. Pendry, A. J. Holden, W. J. Stewart, and I. Youngs et al., *Phys. Rev. Lett.*, **76**, 4773 (1996).
3. J. B. Pendry, A. J. Holden, D. J. Robbins, and W. J. Stewart, *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.* **47**, 2075 (1999).
4. R. A. Shelby, D. R. Smith, and S. Schultz, *Science*, **292**, 77 (2001).
5. D. R. Smith, J. B. Pendry, and M. C. K. Wiltshire, *Science*, **305**,

- 788 (2004).
6. V. M. Shalaev, *Nat. Photonics* **1**(1), 41 (2007).
7. R. Merlin, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 1290 (2004)
8. E. Plum, K. Tanaka, W. T. Chen, V. A. Fedotov, D. P. Tsai, and N. I. Zheludev, *J. Opt.* **13**, 055102 (2011).
9. J. B. Pendry, *Phys. Rev. Lett.*, **85**, 3966 (2000).
10. N. Fang, H. Lee, C. Sun, and X. Zhang, *Science*, **308**, 534 (2005).
11. K. Fan, A. C. Strikwerda, H. Tao, X. Zhang, and R. D. Averitt, *Opt. Express*, **19**, 12619 (2011).
12. D. B. Burckel, J. R. Wendt, G. A. Ten Eyck, J. C. Ginn, A. R. Ellis, I. Brener, and M. B. Sinclair, *Adv. Mater.*, **22**, 5053.
13. W. T. Chen, C. J. Chen, P. C. Wu, S. Sun, L. Zhou, G.-Y. Guo, C. T. Hsiao, K.-Y. Yang, N. I. Zheludev, and D. P. Tsai, *Opt. Express*, **19**, 12837 (2011).
14. C. C. Chen, C. T. Hsiao, S. Sun, K.-Y. Yang, P. C. Wu, W. T. Chen, Y. H. Tang, Y.-F. Chau, E. Plum, G.-Y. Guo, N. I. Zheludev, and D. P. Tsai, *Opt. Express*, **20**, 9415 (2012).
15. 蕭至廷, 自組裝法製作三維裂環共振器之研究 (2012).
16. G. P. Nikishkov, *J. Appl. Phys.*, **94**, 5333 (2003)
17. J. D. Baena, L. Jelinek, and R. Marqués, *Phys. Rev. B*, **76**, 245115 (2007).
18. D. Ö. Güneş, T. Koschny, M. Kafesaki, and C. M. Soukoulis, *Opt. Lett.*, **34**, 506 (2009).



陳哲勤先生為國立彰化師範大學物理學博士，現任國家實驗研究院儀器科技研究中心副研究員。

Che-Chin Chen received his Ph.D. in physics from National Changhua University of Education. He is currently an associate researcher at Instrument Technology Research Center, National Applied Research Laboratories.



湯喻翔先生為國立台灣師範大學機電科技碩士，現任國家實驗研究院儀器科技研究中心副研究員。

Yu-Hsiang Tang received his M.S. in mechatronic engineering from National Taiwan Normal University. He is currently an associate researcher at Instrument Technology Research Center, National Applied Research Laboratories.



蕭銘華先生為國立中興大學材料科學與工程博士，現任國家實驗研究院儀器科技研究中心研究員。

Ming-Hua Shiao received his Ph.D. in material science and engineering from National Chung Hsing University. He is currently a researcher at Instrument Technology Research Center, National Applied Research Laboratories.



蔡定平先生為美國辛辛那提大學物理學博士，現任國立台灣大學應用物理研究所特聘教授暨中央研究院應用科學研究中心主任。

Din Ping Tsai received his Ph.D. in physics from University of Cincinnati, USA. He is currently the distinguished professor of Department of Physics at National Taiwan University and the Director of Research Center for Applied Sciences, Academia Sinica.