

# 以直立式裂環共振器建構之單軸對稱式等向性超穎材料

## Uniaxial-Isotropic Metamaterials Constructed by Vertical-Type Split Ring Resonators

陳哲勤、石川篤、湯喻翔、蕭銘華、蔡定平、田中拓男

Che-Chin Chen, Atsushi Ishikawa, Yu-Hsiang Tang, Ming-Hua Shiao, Din-Ping Tsai, Takuo Tanaka

超穎材料在光科學開啟了嶄新的一頁，透過適當的設計，人們可隨意地操控其光學特性。為了能更全方位地操控電磁波，實現立體化的等向性超穎材料是必須克服的難題。本文利用直立式裂環共振器組成一等向性超穎材料，光譜研究顯示其在任何的平面旋轉、電磁波極化方向與電磁波入射角小於 30 度的條件下，均顯示出其等向性之光學特性。

Metamaterials have led to a fresh prospect in optical science. One can engineer their optical properties arbitrary through a particular design. In order to control the electromagnetic waves completely, the realization of three dimensional isotropic metamaterials is an arduous problem to overcome. In this paper, we utilized the vertical-type split ring resonators to construct an isotropic metamaterials. The transmittance spectra reveal the isotropic responses for any lateral rotation, polarization and incident angle up to 40 degree.

### 一、前言

傳統光學材料的電磁特性，係由該材料之原子或分子的排列而決定，當電磁波波長遠大於該原子或分子尺度時，材料可視為一均勻介質；而超穎材料則衍伸這樣的概念，以周期性人造結構取代傳統材料的原子或分子組成，在電磁波波長遠大於此人造結構的條件下，材料的電磁特性則可以有效介電係數 ( $\epsilon_{\text{eff}}$ ) 及有效磁導率 ( $\mu_{\text{eff}}$ ) 來描述，而其顯現的特殊光學特性則主要與結構本身的形貌、大小及周期等參數有關<sup>(1-4)</sup>，類比於傳統材料，超

穎材料的人造基本單元亦可稱為超穎原子 (metatoms)。其中最廣為人知的一個例子則是負折射係數特性，第一個微波波段負折射係數超穎材料為一複合式材料，其係利用裂環共振器作為磁響應超穎原子與金屬導線作為電響應超穎原子，分別來達成材料的負磁導率與負介電係數，進而顯現出負折射係數特性<sup>(5, 6)</sup>；這些開創性的研究工作使得超穎材料從原先的紙上概念得以實際地實現，也激勵研究人員發展出更多特殊的超穎原子如金屬棒對 (rod pairs)、漁網結構 (fishnet structures) 與封閉奈米環 (closed nanorings) 等<sup>(7-10)</sup>。光學超穎材料初期主要

著重在探索負折射係數 (同時具有負介電係數及負磁導率) 材料研究, 而後更廣泛推廣至一透過不同大小及形貌設計的結構位元, 獲得所需要的介電係數及磁導率, 科學家已提出可利用超穎材料製作完美透鏡、超透鏡、天線應用及隱形斗篷等。

這些具磁響應的超穎原子可簡單視為一天線元件, 而其與電磁波之間的交互作用則可由天線理論解釋, 然而現實上並未存在完美天線元件, 因此其耦合特性無可避免地顯示出非等向性特性, 亦即吾人所預期的特定光學特性, 僅限於某電磁波極化方向或元件方向, 因而限制了其發展實際應用的道路。自然界材料通常展現出等向性特性, 以一杯水為例, 光通過這杯水所顯現出的光學特性, 並無方向性或極化性的限制, 亦即水是為一個等向性材料; 然而, 單一水分子並不是一個完美對稱與等向性結構, 但整體仍顯現出等向性性質, 其原因就在於整體水分子在一杯水中呈現隨機且對稱性排列, 因而使一杯水成為等向介質材料。若將這樣的邏輯套用在超穎材料上, 我們可以採用三維化的超穎原子做一高對稱性的排列, 來達成製作等向性超穎材料的目標。時至今日, 以此概念所製作出的等向性超穎材料僅限於微波波段而無法進入更高頻波段, 其原因在於三維化微奈米級超穎原子的製程瓶頸<sup>(11-14)</sup>, 目前僅有數個技術用以製作高頻波段之直立式裂環共振器, 但製程技術卻相對困難許多<sup>(15-23)</sup>, 因而高頻波段之等向性超穎材料僅停留在理論預測階段<sup>(11-14)</sup>。

本文以直立式裂環共振器為三維超穎原子, 透過單軸對稱排列, 成功製作出紅外波段等向性超穎材料, 我們所發展的金屬應力自組法可大量製作立體化金屬結構, 利用簡單的半導體製程技術包含微影舉離 (lithography and lift-off) 及乾式蝕刻技術 (dry etching), 以金屬應力使結構捲曲成為直立式裂環共振器; 本技術最大的優勢在於三維結構係由二維圖形設計來達成, 而二維圖形則係採用現今已發展成熟的微影技術達成, 故結構位元的大小、形貌及排列位置可輕易地控制, 更適用於製作各類三維超穎材料<sup>(24)</sup>。

## 二、實驗方法

本研究係以直立式裂環共振器為基本之超穎原子, 而製程技術則是結合微影及蝕刻技術, 三維化金屬結構則是由二維圖形經金屬應力驅動自組而成。本文使用電子束微影系統 (Elionix ELS-7700H) 並透過舉離製程, 沉積 Ni/Au = 10/60 nm 以製作二維金屬圖形包含二長直線與一中間區域於矽 (Si) 基板上, 而中間區域寬度需大於二長直線; 再以感應式耦合電漿蝕刻機 (RIE-200P, Samco) 進行乾式蝕刻以蝕刻矽基板, 當兩長直線下方矽基板掏空之時, 金屬膜內之殘留金屬應力將同時釋放並拉舉長直線向上, 而中間區域則仍連接於基板之上並完成為直立式裂環共振器<sup>(24)</sup>; 光學特性則係使用 FTIR(FT/IR-6300FV, Jasco) 進行透光譜分析, 量測座可進行旋轉與傾角並置於真空腔體之中以避免 CO<sub>2</sub> 與 H<sub>2</sub>O 的吸收; 直立式裂環共振器之電磁響應則以有線元素法軟體套件 COMSOL 進行數值計算並參照文獻進行參數設定<sup>(26)</sup>。

## 三、結果與討論

我們首先探討所製作的直立式裂環共振器的光學特性, 而為使後續數值模擬計算簡便, 我們設計一鏡像對稱排列陣列進行光學量測與數值計算。二維圖形參數與元件完成圖如圖 1(a) 與 (b) 所示, 圖 1(b) 插圖為基板座標系統原點位置 ( $\theta = 0^\circ$ ), 在光學量測部分, 在固定入射光正向入射方向與電場平行座標 X 軸、磁場平行座標 Y 軸之極化方向的條件下, 以旋轉基板來探討其非等向性光學性質如圖 2 所示, 在  $\theta = 0^\circ$  條件下可清楚看到透光譜圖具有兩個明顯的共振分別發生在波長為 10.4 微米與 5.7 微米處, 而主共振態 (10.4 微米處) 之穿透率 (transmittance, T) 在  $0^\circ - 90^\circ$  間將隨著  $\theta$  角度變大而增加, 並有著  $T(\theta) = 1 - (1 - T_{\theta=0}) \times |\cos^2\theta|$  關係, 而當  $\theta = 90^\circ$  時, 該共振態完全消失, 此因入射電磁波磁場與電場已完全無分量於共振器之裂環面與間隙方向上震盪, 而當基板旋轉至  $\theta = 120^\circ$ , 此共振態之穿透率則與  $\theta = 60^\circ$  相同, 完全顯現出鏡像排列的非等向性特性。接下來我們以數值

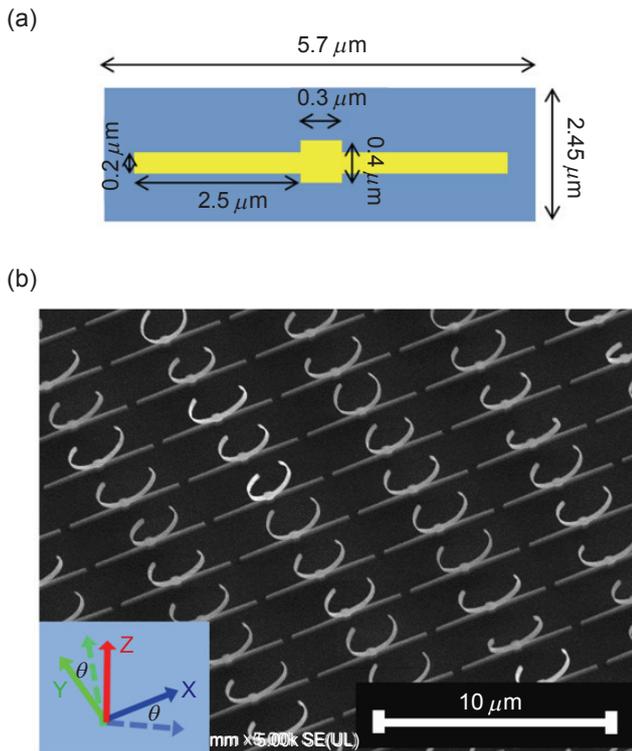


圖 1. (a) 鏡像對稱陣列元件設計圖，各相關尺寸已標於圖內。(b) 元件完成之 SEM 圖 (45 度傾斜角拍攝)。

計算來模擬驗證光譜數據，並據此探討超穎原子之其他光學特性，我們使用參數設定<sup>(26)</sup> 為 Si:  $n = 3.5$ ; J & C NIR-fitted Drude model w/ $\Gamma$  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;  $\epsilon_\infty = 1.0$ ，邊界條件參數如圖 1(a) 所示，並以實際電子顯微鏡觀察圖 1(b) 之元件，其形貌參數分別為直徑 =  $2.2 \mu\text{m}$ ，間隙寬

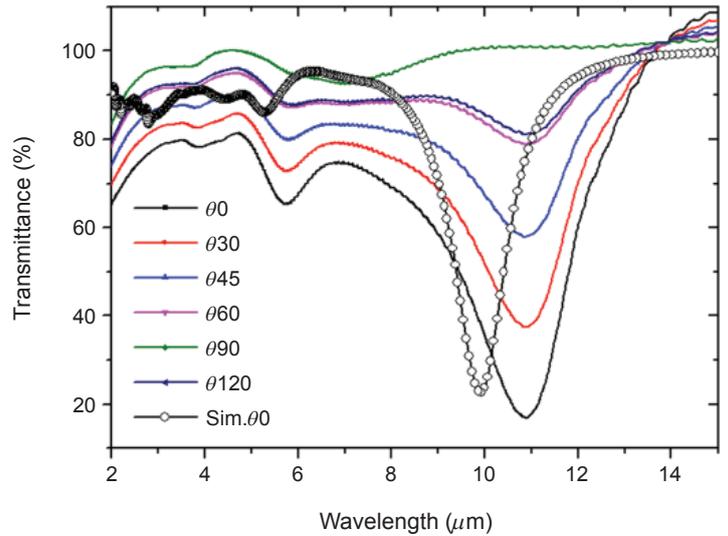


圖 2. 鏡像對稱陣列元件穿透光譜圖 ( $\theta = 0^\circ - 120^\circ$ ) 與模擬光譜圖 ( $\theta = 0^\circ$ )。

度 =  $1.5 \mu\text{m}$ ，高度 =  $1.8 \mu\text{m}$ 。針對  $\theta = 0^\circ$  進行計算，獲得的穿透光譜圖如圖 2 所示，可觀察到一主要共振模態出現約於 10 微米，模擬結果與實驗顯現相當吻合之結果，而共振波長的些微不同，推測起因於由元件形貌之觀察誤差，並驗證了此數值計算的可靠。而元件之主要共振態則如圖 3 所示，在主共振態發生時元件附近之磁場強度 ( $H_y$ ) 在金屬環內具有最強分佈如圖 3(a)；而在金屬線內則有一電流分佈產生如圖 3(b) 與 (c) 所示，顯示此共振態發生時，金屬線內將產生一環型電流，並在環內有磁場增益現象，故可確立此為共振器之 fundamental mode。我們再以此數值計算基礎探討該共振器之其他光學性質，我們的直立式裂環共振器僅有一間

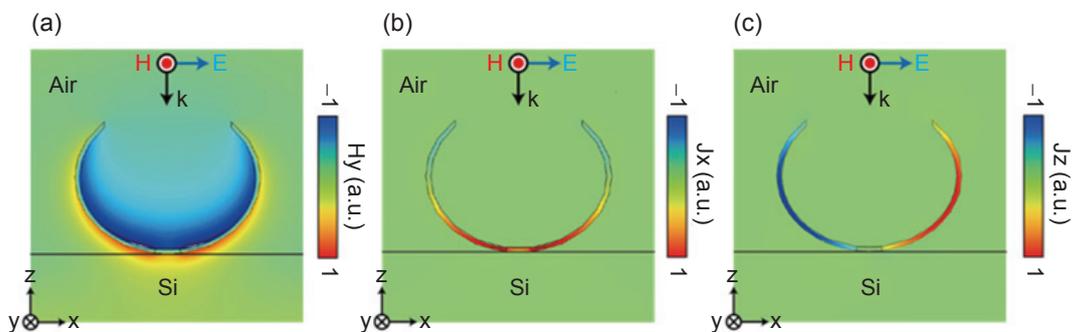


圖 3. 數值模擬之主共振態場圖 (a) 磁場強度分佈。(b) x 方向電流密度分佈圖 (c) z 方向電流密度分佈圖。

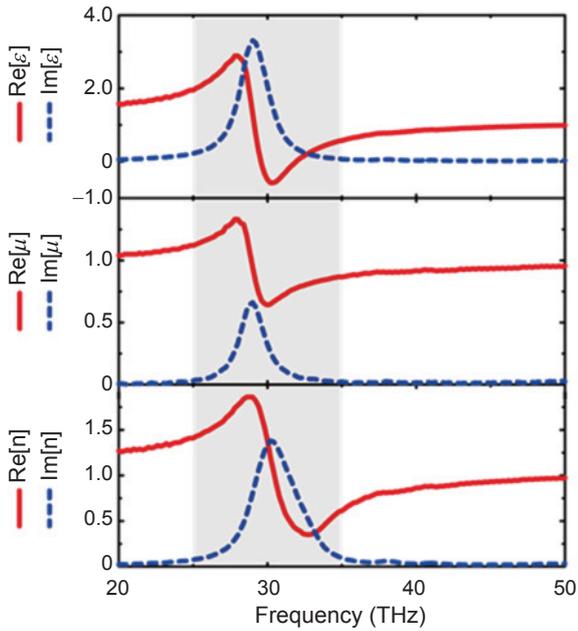


圖 4.  $\theta = 0^\circ$  條件下，主共振發生時之數值模擬  $\epsilon$ 、 $\mu$  與  $n$ 。

隙 (single gap)，故對電磁波傳播方向而言並無反轉對稱，因此為一 bi-anisotropic 超穎原子，亦即該結構內產生之電偶極 (electric dipole) 係由入射電磁波之磁場與電場同時激發；而結構內產生之磁偶極 (magnetic dipole) 係由入射電磁波之電場與磁場同時激發<sup>(27-28)</sup>。當  $\theta = 0^\circ$  時，描述元件相關電磁場之

馬克士威爾方程式可由下式 (Equation 1) 表示：

$$\begin{pmatrix} D \\ B \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \epsilon_0 \epsilon & -i\xi/c_0 \\ i\xi/c_0 & \mu_0 \mu \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E \\ H \end{pmatrix} \quad (1)$$

其中  $\epsilon_0$  為真空中之介電係數、 $\mu_0$  為真空中之磁導率、 $\epsilon$  為有效介電係數、 $\mu$  為有效磁導率、 $c_0$  為光速、 $\xi$  為 bi-anisotropy parameter 用以描述電 (磁) 偶極被磁 (電) 場激發之關係，而折射率  $n$  將滿足  $n^2 = \epsilon\mu - \xi^2$  之關係，並可利用模擬之穿透與反射光譜，推得元件的  $\epsilon$ 、 $\mu$  與  $n$  等參數如圖 4 所示，數據顯示當共振發生時 (圖 4 灰色區塊)，元件的實部有效介電係數可顯現出負值，而折射率可在 0.35 至 1.86 間變動。

為實現等向性超穎材料目標，我們使用前述製作之直立式裂環共振器為基本單元，並以單軸對稱形式進行排列，其設計與製作流程如圖 5 所示，我們成功製作一  $4 \text{ mm} \times 4 \text{ mm}$  之均勻陣列，完成之 SEM 圖如圖 6 所示，並利用 FT-IR 量測其光學性質，量測架構如圖 7(a) 所示，圖中藍色區塊為超穎材料所在位置，此量測架構中共定義三個變數以探討其等向性性質，分別為  $\Psi$  (電磁波入射角度)、 $\theta$  (基板旋轉角度) 與  $\phi$  (極化方向角度) 等，圖 7(b) 為本研究等向性超穎材料之超穎分子 (meta-

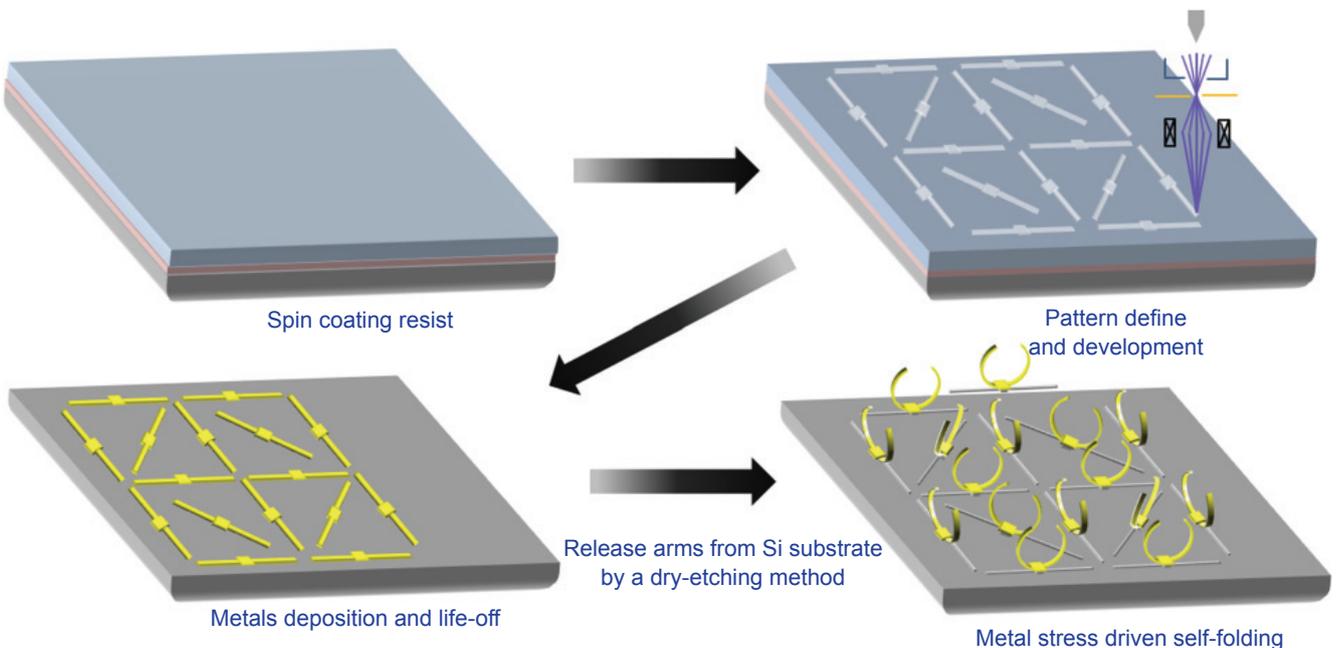


圖 5. 單軸對稱排列直立式裂環共振器製作流程。

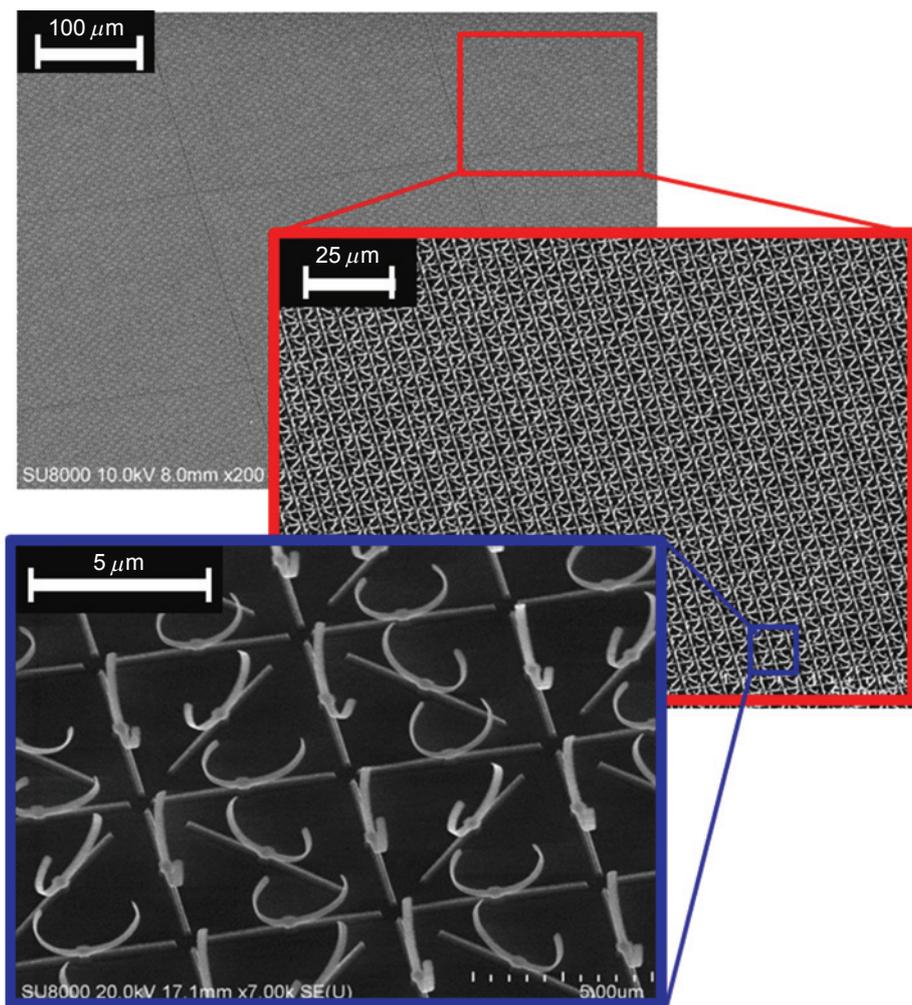


圖 6. 單軸對稱排列直立式裂環共振器完成之 SEM 圖 (45 度傾斜角拍攝)。

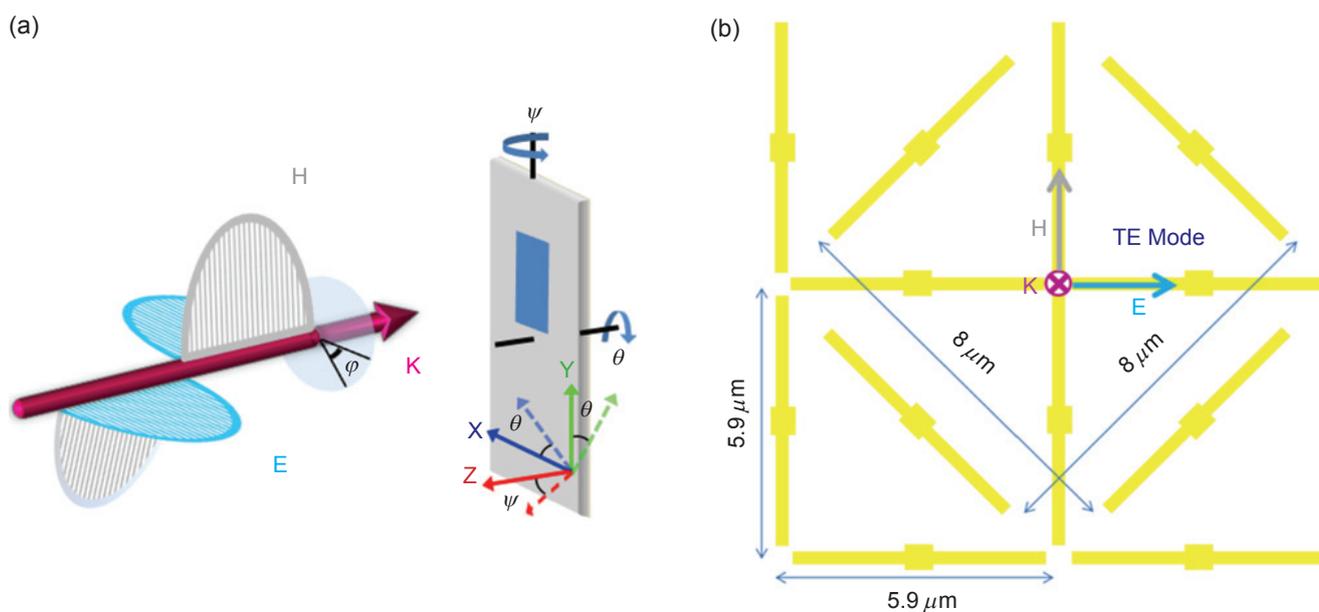


圖 7. (a) 量測架構圖，定義三變數  $\Psi$ 、 $\theta$ 、 $\phi$  分別為入射角度、基板旋轉角度、極化角度。(b) 單軸對稱排列相對位置，插圖另定義 TE mode 極化方向。

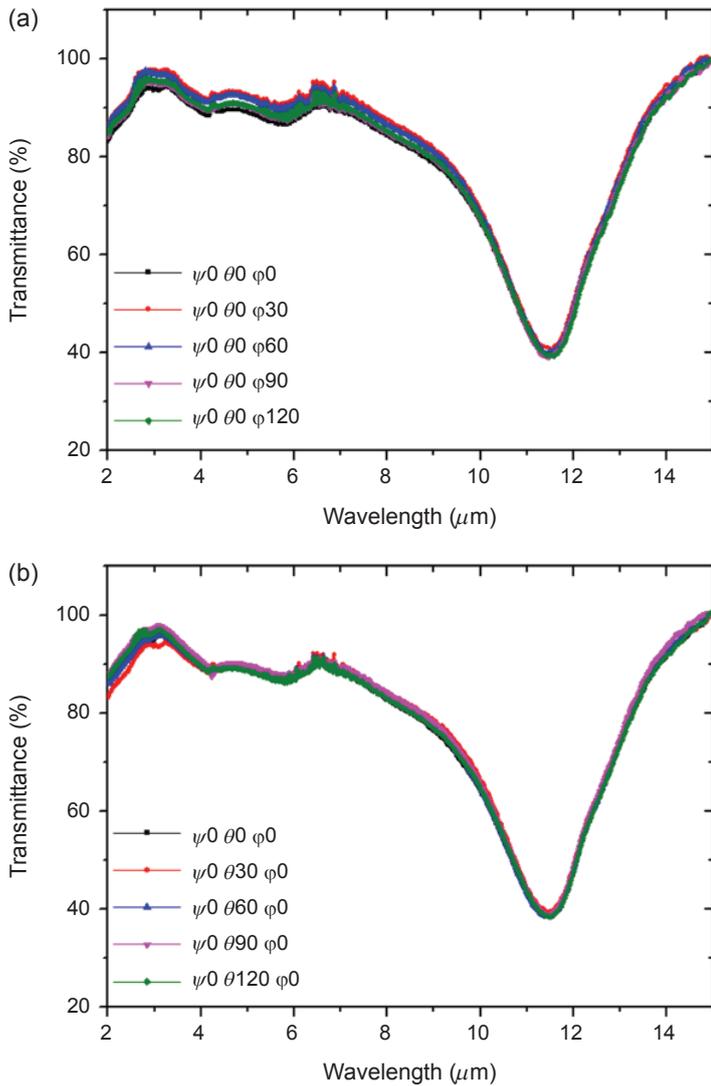


圖 8. 單軸對稱排列直立式裂環共振器透光譜量測：(a)  $\Psi = 0^\circ$ 、 $\theta = 0^\circ$  條件下，變化極化角度。(b)  $\Psi = 0^\circ$ 、 $\phi = 0^\circ$  條件下，變化基板旋轉角度。

molecule) 及相對位置關係，其中共包含 12 個直立式裂環共振器，而插圖表示入射光極化角度  $\phi = 0^\circ$  (TE mode)。首先探討正向入射下 ( $\Psi = 0^\circ$ )，極化角度變換 ( $0^\circ - 120^\circ$ ) 或基板旋轉 ( $0^\circ - 120^\circ$ ) 透光譜圖，圖 8(a) 為  $\Psi = 0^\circ$ 、 $\theta = 0^\circ$  可發現透光譜完全不隨極化角度變化而改變；圖 8(b) 為  $\Psi = 0^\circ$ 、 $\phi = 0^\circ$  亦可發現透光譜完全不隨基板旋轉而改變，綜合圖 8 結果，在入射光正向入射條件下，本超穎材料顯現出完全等向性特性，而主共振態之共振波長約在 11.5 微米處，與鏡像排列元件有些許差異，這是因為周期陣列的不同所造成的影響。圖

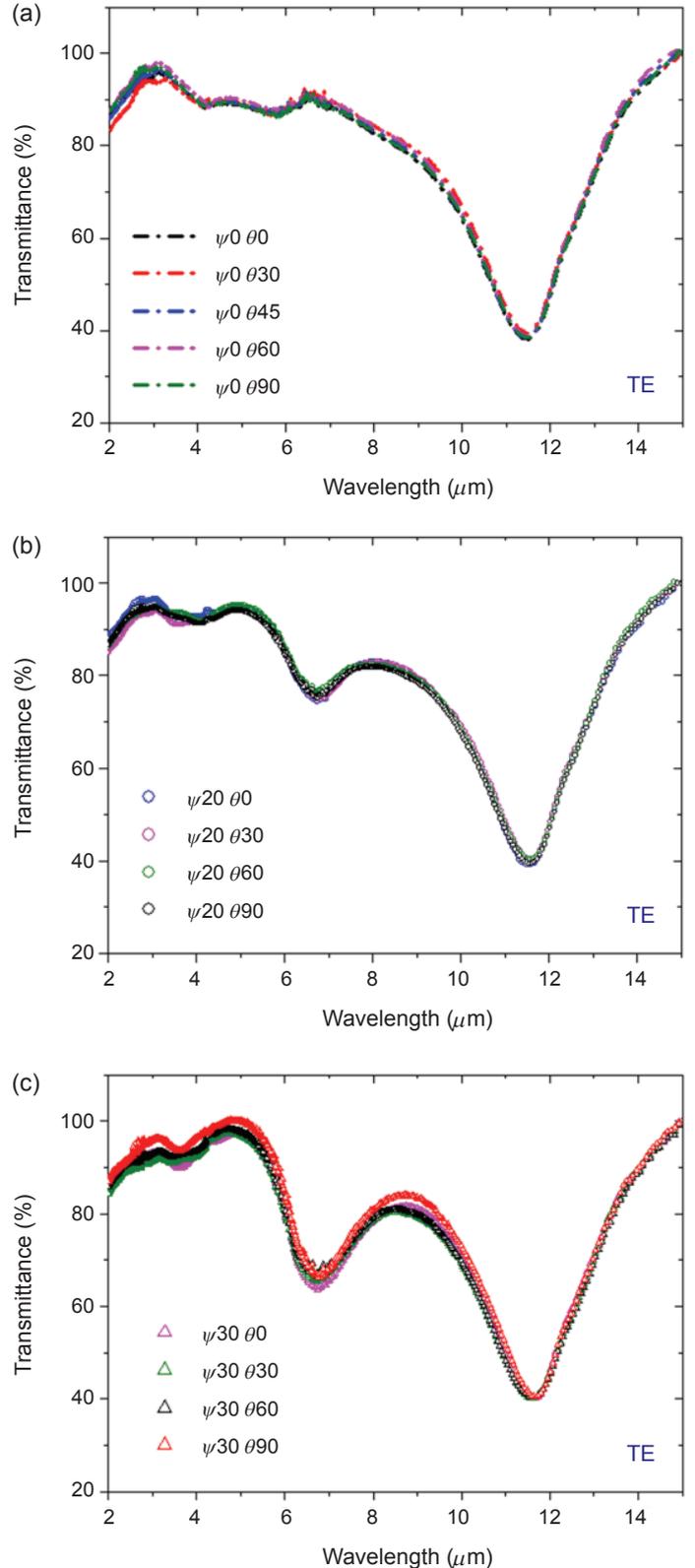


圖 9. 單軸對稱排列直立式裂環共振器透光譜量測：(a)  $\Psi = 0^\circ$ 、TE mode 條件下，變化基板旋轉角度。(b)  $\Psi = 20^\circ$ 、TE mode 條件下，變化基板旋轉角度。(c)  $\Psi = 30^\circ$ 、TE mode 條件下，變化基板旋轉角度。

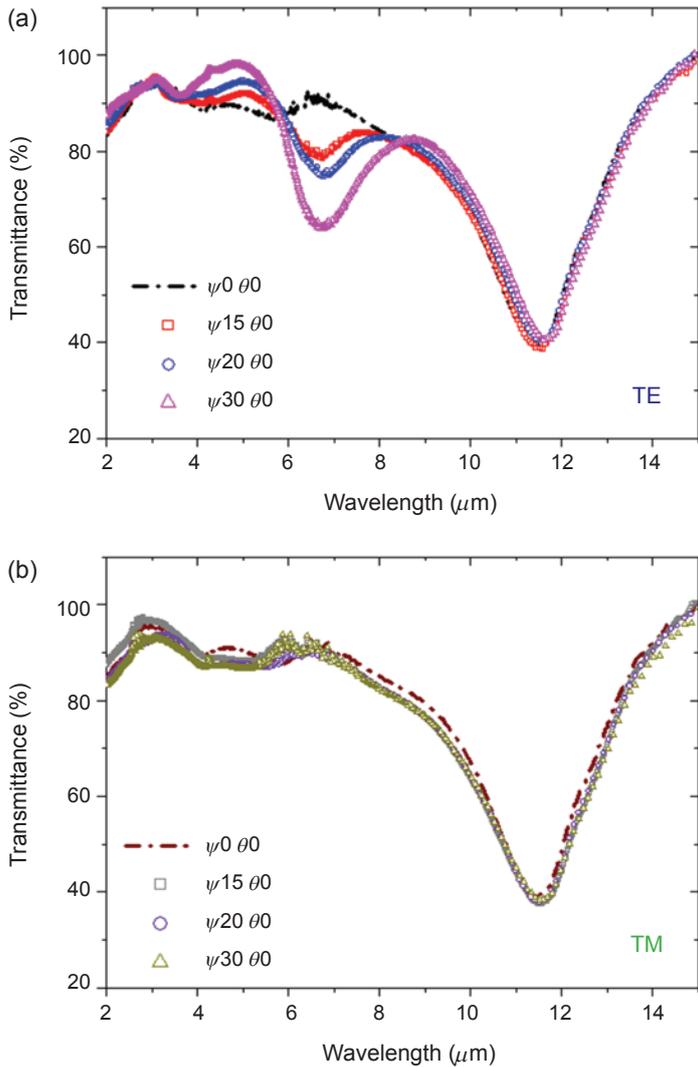


圖 10. 單軸對稱排列直立式裂環共振器穿透光譜量測：(a)  $\theta = 0^\circ$ 、TE mode 條件下，變化入射角度。(b)  $\theta = 0^\circ$ 、TM mode 條件下，變化入射角度。

9(a)、(b)、(c) 為固定極化角度 (TE mode)，分別針對入射角  $\Psi = 0^\circ$ 、 $20^\circ$ 、 $30^\circ$  的條件下，變化基板旋轉角所得之穿透光譜圖，可發現主共振態在此條件下亦展現出等向性性質，而不同的是，在入射角度不為 0 度下，高階共振態 (約 5.8 微米處) 消失，並出現一新共振態於 6.3 微米處。圖 10(a) 為固定基板角度  $\theta = 0^\circ$  與極化角度為 TE mode 時，變換入射角所得之穿透光譜圖，可發現此條件下主共振態亦為等向性，而新共振態將隨入射角改變而不同；圖 10(b) 為固定基板角度  $\theta = 0^\circ$  與極化角度為 TM mode 時，變換入射角所得之穿透光譜圖，可發現此條件下主共振態與高階共振態則為等向性。總結而言，此等向性超穎材料在入射角小於 30 度情形下，主共振態展現出完全地等向性性質，而高階共振態在 TM mode 亦展現完全地等向性，但在 TE mode 則隨入射角度改變而有變化，此現象起因於入射光在 TE mode 下，電場的波前到達兩臂有一延遲情形造成新共振態的產生，且入射角越大其共振越強，圖 11 為數值計算結果，在入射角度為 40 度情形下金屬線內電流分佈如圖 11(b) 與 (c)，金屬線內以下方中間區域為界，存在著兩不同向之電流，而產生之磁場強度分佈則如圖 11(a) 所示，此現象則不見於 TM mode。

#### 四、結論

本研究成果展現一中紅外波段等向性超穎材料，該材料係利用直立式裂環共振器為基本單元，透過單軸對稱排列組成，而在技術上則金屬應力驅

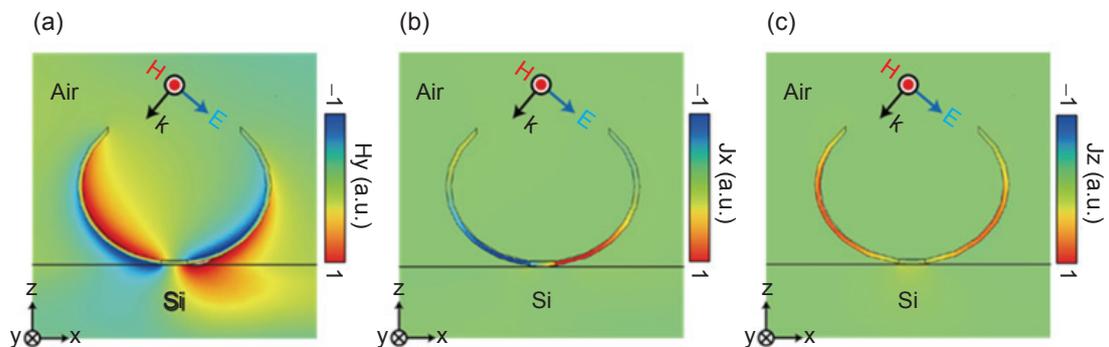


圖 11. 數值模擬之新共振態場圖 (a) 磁場強度分佈。(b) x 方向電流密度分佈圖 (c) z 方向電流密度分佈圖。

動自組法以半導體製程中常見的微影技術與乾式蝕刻技術完成。在入射電磁波為正向入射條件下，元件顯示完全地等向性性質；在入射角度小於 30 度且 TM mode 條件下，元件亦顯示完全地等向性性質；在入射角度小於 30 度，主共振態為完全地等向性性質。本研究技術可輕易透過微影技術製作適合各波段應用之立體元件，並可大量產出，未來更可以此延伸，製作更複雜、更多功能之三維超穎材料。

## 參考文獻

1. D. R. Smith, J. B. Pendry, and M. C. K. Wiltshire, *Science*, **305**, 788 (2004).
2. V. M. Shalaev, *Nat. Photon.*, **1**, 41 (2007).
3. N. Engheta, *Science*, **317**, 1698 (2007).
4. B. Luk'yanchuk, N. I. Zheludev, S. A. Maier, N. J. Halas, P. Nordlander, H. Giessen, and C. T. Chong, *Nat. Mater.*, **9**, 707 (2010).
5. D. R. Smith, W. J. Padilla, D. C. Vier, S. C. Nemat-Nasser, and S. Schultz, *Phys. Rev. Lett.*, **84**, 4184 (2000).
6. R. A. Shelby, D. R. Smith, and S. Schultz, *Science*, **292**, 77 (2001).
7. V. M. Shalaev, W. Cai, U. K. Chettiar, H. K. Yuan, A. K. Sarychev, V. P. Drachev, and A. V. Kildishev, *Opt. Lett.*, **30**, 3356 (2005).
8. G. Dolling, M. Wegener, C. M. Soukoulis, and S. Linden, *Opt. Lett.*, **32**, 53 (2007).
9. J. Valentine, S. Zhang, T. Zentgraf, E. Ulin-Avila, D. A. Genov, G. Bartal, and X. Zhang, *Nature*, **455**, 376 (2008).
10. B. Kanté, Y. S. Park, K. O'Brien, D. Shuldman, N. D. Lanzillotti-Kimura, Z. J. Wong, and X. Yin, X. Zhang, *Nature Communications*, **3**, 1180 (2012).
11. T. Koschny, L. Zhang, and C. M. Soukoulis, *Phys. Rev. B*, **71**, 121103 (2007).
12. J. D. Baena, L. Jelinek, and R. Marqués, *Phys. Rev. B*, **76**, 245115 (2007).
13. D. Ö. Güney, T. Koschny, M. Kafesaki, and C. M. Soukoulis, *Opt. Lett.*, **34**, 506 (2009).
14. D. Ö. Güney, T. Koschny, M. Kafesaki, C. M. Soukoulis, *Opt. Express*, **18**, 12348 (2010).
15. S. Zhang, W. Fan, B. K. Minhas, A. Frauenglass, K. J. Malloy, S. R. J. Brueck, *Phys. Rev. Lett.*, **94**, 037402 (2005).
16. T. Tanaka, A. Ishikawa, and S. Kawata, *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 081107 (2006).
17. M. S. Rill, C. Plet, M. Thiel, I. Staude, G. V. Freymann, S. Linden, and M. Wegener, *Nat. Mater.*, **7**, 543(2008).
18. J. K. Gansel, M. Thiel, M. S. Rill, M. Decker, K. Bade, V. Saile, G. V. Freymann, S. Linden, and M. Wegener, *Science*, **325**, 1513 (2009).
19. D. B. Burckel, J. R. Wendt, G. A. T. Eyck, J. C. Ginn, A. R. Ellis, I. Brener, and M. B. Sinclair, *Adv. Mater.*, **22**, 5053 (2010).
20. K. Fan, A. C. Strikwerda, H. Tao, X. Zhang, and R. D. Averitt, *Opt. Express*, **19**, 12619 (2011).
21. 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).
22. C. M. Soukoulis, M. Wegener, *Nat. Photon.*, **5**, 523 (2011).
23. André Radke, Timo Gissibl, Thomas Klotzbücher, Paul V. Braun, and Harald Giessen, *Adv. Mater.*, **23**, 3018 (2011).
24. Che Chin 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, D. P. Tsai, *Opt. Express*, **20**, 9415(2012).
25. Che-Chin Chen, Atsushi Ishikawa, Yu-Hsiang Tang, Ming-Hua Shiao, Din Ping Tsai, and Takuo Tanaka, *Adv. Opt. Mater.*, **3**, 44 (2015).
26. P. B. Johnson, R. W. Christy, *Phys. Rev. B* **1972**, 6, 4370.
27. R. Marqués, F. Medina, and R. Rafii-El-Idrissi, *Phys. Rev. B*, **65**, 144440 (2002).
28. C. É. Kriegler, M.S. Rill, S. Linden, and M. Wegener, *IEEE J. Sel. Topics Quantum Electron.*, **16**, 367 (2010).
29. C. Enkrich, M. Wegener, S. Linden, S. Burger, L. Zschiedrich, F. Schmidt, J. F. Zhou, Th. Koschny, and C. M. Soukoulis, *Phys. Rev. Lett.*, **95**, 203901 (2005).



陳哲勤博士為國立彰化師範大學物理系博士，現任國家實驗研究院儀器科技研究中心副研究員。



石川篤教授為大阪大學工程學博士，現任日本岡山大學電機系助理教授、日本理化學研究所訪問學者。

Atsushi Ishikawa received his Ph.D degree in Engineering from Osaka University, Japan. He currently serves as an Assistant Professor of Dept. of Electrical and Electronic Engineering at Okayama University and a Visiting Scientist at RIKEN, Japan.



湯喻翔先生為國立台灣師範大學機電科技所碩士，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 currently serves as an associate researcher at Instrument Technology Research Center, National Applied Research Laboratories.



蕭銘華博士為國立中興大學材料科學與工程學系博士，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 currently serves as a researcher at Instrument Technology Research Center, National Applied Research Laboratories.



蔡定平教授為辛辛那提大學物理學博士，現任台灣大學物理系應用物理研究所特聘教授、中研院應用科學研究中心特聘研究員及主任。

Din Ping Tsai received his Ph.D degree in Physics from University of Cincinnati. He currently serves as the Distinguished Professor of Dept. of Physics at National Taiwan University, the Director and Distinguished Research Fellow of Research Center for Applied Sciences, Academia Sinica.



田中拓男博士為大阪大學應用物理學博士，現任日本理化學研究所超穎材料實驗室主持人；東京工業大學、北海道大學與埼玉大學訪問教授。

Takuo Tanaka obtained his PhD degree in Applied Physics from Osaka University in 1996. He is working as heads of the Metamaterials laboratory and Innovative photon manipulation research team in RIKEN. He serves as a visiting professor at Tokyo Institute of Technology, Hokkaido University, and Saitama University. He is also serving as a member of international council at the Optical Society (OSA).