

國立臺灣大學理學院物理所

博士論文

Department of Physics

College of Science

National Taiwan University

Doctoral Dissertation



裂環共振器超穎介面之光操控與應用

Split-ring resonator based metasurface: Light
Manipulation and Applications

許維綸

Wei-Lun Hsu

指導教授：蔡定平 博士

Advisor: Din Ping Tsai, Ph.D.

中華民國 104 年 10 月

October 2015

國立臺灣大學博士學位論文
口試委員會審定書

裂環共振器超穎介面之光操控與應用
Split-ring resonator based metasurface: Light Manipulation
and Applications

本論文係許維綸君 (D01222023) 在國立臺灣大學物理學系物理
研究所完成之博士學位論文，於民國 104 年 10 月 15 日承下列考試委
員審查通過及口試及格，特此證明

口試委員：

蔡定平

(簽名)

任貽均 (指導教授)

陳瑞琳

王智明

沈海都

致謝

感恩大家的幫忙，讓我順利完成三年的博士學業。由衷的感謝蔡定平老師在三年來的指導，不僅指導我知識更提供我一個良好的學習環境，蔡老師不遺餘力的送維綸出國開會，接觸各個頂尖國際研究團隊，讓自己的研究能有更多的創新與應用性，感恩老師賜與機會讓維綸能在英國學習半年，開啟更大的眼界。感恩蔡老師時常叮嚀我們與人相處的道理，並指導維綸在處事上的應對。蔡老師不論在學術研究或待人處事上都讓我獲益良多。感恩師母無時無刻都在關心學生的生活，並給學生許多鼓勵。維綸非常感恩能在台大遇到蔡老師並完成我的學業。

感恩我的家人，在念博士班的時候總是大力支持我，讓我能夠無後顧之憂地完成學業，感恩你們無時無刻的替我打氣讓我能繼續完成學業。感恩實驗室的威廷、品韻、銘綸、育霖與柏翰學長，教導維綸使用儀器，製作樣品，模擬計算與撰寫文章。感恩實驗室的同學耀緯、佑哲與光宇，能跟韋綸一起做實驗與討論數據。感恩實驗室的學弟妹俊諺、瑋義、沐谷、家雯、亭予、奕豪、宜達、義騰與姍茹協助維綸處理很多實驗室瑣碎的事務。感恩實驗室的助理林小姐 Amy 與宏毅，在行政事務上給予很多幫助，讓維綸能專心於課業。感恩王老師與歐博在英國時不論生活或是研究皆給予維綸很大的幫助。感恩 Andre、Natalie、Svitlana 與子龍在英國時能互相照顧與討論研究。感恩楊凱閔在博士資格考時給予很多指導。感恩英國南安普敦的 Nikolay 教授、德國耶拿光電中心的 Worlfgune 教授美國波士頓大學的孫剛教授在研究上給予很多指導與協助。感恩 Ondra 與 David 在德國時提供維綸舒適的環境做研究。

最後感恩 妙禪師父的妙轉，讓維綸在遇到困難時能心安心定的面對，感恩佛教如來宗的老師與同修，一職在維綸身邊護持維綸，讓維綸未忘初衷。

祝福各位曾經幫助過維綸的貴人們，因為有你們，才有現在的維綸，祝福你們身體健康，凡事順心。

光電及奈米科學與技術實驗室 許維綸 中華民國一百零四年十月

目 錄



目錄	I
圖目錄.....	III
中文摘.....	VI
Abstract.....	VII
 第一章、緒論.....	 1
1-1 前言.....	1
1-2 局域性表面電漿子共振介紹.....	2
1-3 電漿子超穎物質介紹.....	6
1-3.1 超穎物質介紹.....	6
1-3.2 裂環共振器介紹.....	7
1-3.3 巴比內原理.....	11
1-3.4 電子混和模型與法諾共振.....	13
1-4 電漿子超穎介面介紹.....	16
1-4.1 簡介.....	16
1-4.2 超廣義斯乃爾定律.....	19
1-5 參考資料.....	22
 第二章、實驗製程與數值模擬計算	 28
2-1 前言.....	28
2-2 聚焦離子束蝕刻技術.....	28
2-3 光學量測系統.....	32
2-4 數值模擬計算.....	34
2-4.1 杜德-羅倫茲模型.....	34
2-4.2 有限元素法.....	36
2-4.3 有限積分法.....	37
2-5 參考資料.....	38
 第三章、直立式電漿子超穎介面	 39

3-1 前言.....	39
3-2 研究動機.....	40
3-3 結構設計.....	41
3-4 數值計算與分析.....	43
3-5 本章結論.....	51
3-6 參考資料.....	52
 第四章、非對稱裂環共振器超穎介面.....	 55
4-1 前言.....	55
4-2 研究動機.....	56
4-3 結構設計.....	56
4-4 數值計算與分析.....	58
4-5 本章結論.....	65
4-6 參考資料.....	65
 附錄.....	 69

圖目錄

圖 1-1: (a)英國索爾斯伯里大教堂(Salisbury Cathedral)的彩色玻璃，(b)古羅馬時期的盧奇格斯酒杯	2
圖 1-2: (a)局域性表面電漿子共振示意圖，(b)金屬奈米球的局域性表面電漿子共振之電場分佈圖	3
圖 1-4: (a)雙圓盤結構在不同偏振光下的散射圖。(b)超穎全相片在不同偏振光下產生不同散射圖案。	4
圖 1-5: 擁有不同形狀與不同尺寸的金屬顆粒之散射訊號	5
圖 1-6: (a)表面電漿子共振的電場強度分佈圖。(b)電漿子共振波段隨著不同環境折射率而位移	5
圖 1-7: (a)一般物質，(b)人造超穎物質	6
圖 1-8: 超穎物質未來的走向示意圖	7
圖 1-9: (a)入射光電場方向平行於裂環共振器的手臂之示意圖。(b)裂環共振器陣列之 SEM 影像圖。入射電場(c)平行與(d)垂直裂環共振器手臂的光譜圖	8
圖 1-10: (a)入射光磁場方向穿越裂環共振器手臂間之示意圖。(b)斜向入射示意圖	9
圖 1-11: 非對稱裂環共振器之(a)是意圖、(b)反射光譜圖與(c)不同頻率下的表面電流振盪	10
圖 1-12: (a)平面是與(d)直立式裂環共振器示意圖，其中 $L = 195 \text{ nm}$ ，介電質基板為玻璃。(b)、(c)平面式裂環共振器之磁場能量密度圖，(e)、(f)直立式裂環共振器之磁場能量密度圖	11
圖 1-13: 裂環共振器(a)正結構與(b)負結構之示意圖	12
圖 1-14: 裂環共振器正結構在(a)x 偏振與(d)y 偏振下的量測光譜圖；負結構在(b)y 偏振與(c)x 偏振下的量測光譜圖。	13
圖 1-15: 描述金屬球殼上的表面電漿子交互作用所產生的能階分裂示意圖	14
圖 1-16: 兩個不同尺寸的直立式裂環共振器之(a)穿透光譜與(b)電流密度圖	15
圖 1-17: 寬帶與窄帶共振耦合成法諾共振示意圖	16
圖 1-18: 超穎材料的光波前調製示意圖	17
圖 1-19: (a)超穎介面的單一結構示意圖，(b)超穎介面的光學影像圖	19
圖 1-20: (a)斯奈爾定律的折射式意圖，(b)當介面有額外提供相位的超穎介面時的廣義斯奈爾定律示意圖	20

圖 1-21: (a)L 型結構超穎表面 SEM 圖，(b)不同偏振下超穎表面的折射角度[4]， (c) L 型結構超穎表面示意圖，(d) L 型結構超穎表面在不同入射光波段下的折 射角與折射強度圖	21
圖 2-1: 聚焦離子束蝕刻系統(a)外觀與(b)腔體內部示意圖	29
圖 2-2: 離子/電子柱示意圖	30
圖 2-3: 不同劑量(doses)下的柱狀結構 SEM 圖，藍色比例尺為 1 μ m	32
圖 2-4: 亮場穿透光譜量測系統示意圖	33
圖 2-5: 暗場反射量測系統示意圖	34
圖 2-6: (a)任意四面體進行網格切割，(b)部分區域進行網格加密切割	37
圖 3-1: (a)超穎介面的 SEM 圖。超穎介面在(b)y 偏振光與(c)x 偏振光下的遠場折 射圖	39
圖 3-2: (a)銀金屬棒超穎介面的示意圖。(b)超穎介面在不同波長下的遠場反射圖	40
圖 3-3: (a)直立式裂環共振器在不同 L1 下的模擬穿透光譜圖，(b) 直立式裂環共 振器在不同手臂長度下的模擬穿透光譜圖，(c)直立式裂環共振器示意圖，其中 $W_1=W_2=40$ nm、 $L_1=110$ nm、 $H_1=30$ nm、 $H_2=30$ nm，(d)直立式裂環共振器陣列之 SEM 圖	41
圖 3-4: 直立式裂環共振器超穎介面示意圖	42
圖 3-5: 單一直立式裂環共振器示意圖，其中 $W=60$ nm、 $L=170$ nm、 $H_1=30$ nm、 $P_x=120$ nm、 $P_y=250$ nm	43
圖 3-6: 單一裂環共振器在 y 偏振光下改變介電質(SiO_2)厚度與手臂長度(H_2)的反 射強度及反射光相位圖	44
圖 3-7: 入射光為 1548 nm 下不同手臂長度之反射與相位圖，紅色星星是挑選後 的手臂長度	45
圖 3-8: 手臂長度 $H_2 = 60$ nm 的直立式裂環共振器在入射光為 1548 nm 下(a)電流密 度與(b)x 分量的磁場分布圖	46
圖 3-9: 直立式裂環共振器超穎介面之單位結構	47
圖 3-10: (a)18 個與(b)6 個直立式裂環共振器組成的單位結構之相位分佈示意圖 ..	48
圖 3-11: (a)超穎表面在不同入射光角度下的遠場散射圖，插圖為入射角與出射角 之示意圖，(b)數值模擬分析與廣義斯乃爾定律的計算結果比較圖	49
圖 3-12: 在入射角為(a) 0° 與(b) 20° 時的 y 方向偏振電場場型圖	49
圖 3-13: (a)金屬棒超穎介面之單一結構示意圖，其中 $W = 60$ nm、 $H_1 = 30$ nm、 G $= 70$ nm、 $P_x = 120$ nm、 $P_y = 480$ nm，(b)不同長度的奈米棒在 1548 nm 入射光下	

之相位圖，(c)直立式裂環共振器超穎介面與金屬棒超穎介面之尺寸比較圖	50
圖 4-1: 不同形狀與尺寸的金屬微結構在暗場下的散射訊號	55
圖 4-2: (a)環形矩雷射、(b)超解析透鏡、(c)光學天線、(d) 完美吸收體、(e) 超平透鏡與(f)超穎全相片之示意圖	56
圖 4-3: 裂環共振器超穎介面示意圖	57
圖 4-4: (a)單一非對稱裂環共振器示意圖，其中 $W = 50 \text{ nm}$ 、 $L = 200 \text{ nm}$ 、 $H = 100 \text{ nm}$ 、 $G = 50 \text{ nm}$ 、 $D = 50 \text{ nm}$ 、 P 為週期尺寸。(b) $P = 300 \text{ nm}$ 的非對稱裂環共振器電子顯微鏡影像圖(SEM)其中，圖中的藍色比例尺為 500 nm	58
圖 4-5: (a)正向入射光下的量測與模擬光譜，(b) $P = 300 \text{ nm}$ 裂環共振器 z 分量之磁場分佈圖，激發波長為 660 nm	59
圖 4-6: 週期為(a) $P = 500 \text{ nm}$ 與(b) $P = 300 \text{ nm}$ 在 y 偏振下的模擬光譜，此時的入射角為 61° ，偏振模態為 TE 模態。(c)週期 $P = 500 \text{ nm}$ 的裂環共振器在激發波長為 870 nm 時的 z 分量之磁場分佈圖。(d)週期 $P = 300 \text{ nm}$ 的裂環共振器在激發波長為 760 nm 時的 z 分量之磁場分佈圖	60
圖 4-7:週期為(a) $P = 500 \text{ nm}$ 與(b) $P = 300 \text{ nm}$ 在 y 偏振下的模擬光譜，此時的入射角為 61° ，偏振模態為 TM 模態	61
圖 4-8: 週期為(a) 500 nm 與(b) 300 nm 的暗場影像圖，內插圖為樣品的 SEM 影像圖，比例尺為 500 nm	61
圖 4-9: (a),(b)週期為 500 nm 的裂環共振器矩陣之暗場影像。(c)為(a)中紅框 y 方向在不同波長下的散射光強度。(d)為(b)中紅框 x 方向在不同波長下的散射光強度	62
圖 4-10: (a),(b)週期為 300 的裂環共振器矩陣之暗場影像。(c)為(a)中紅框 y 方向在不同波長下的散射光強度。(d)為(b)中紅框 x 方向在不同波長下的散射光強度	63
圖 4-11: (a) ”回” 形結構矩陣的 SEM 圖與其(b)暗場影像圖。(c)隨機缺陷的結構矩陣的 SEM 圖與其(d)暗場影像圖。比例尺為 1000 nm 。以上兩個矩陣是由週期 300 nm 的裂環共振器所組成	64

中文摘要



超穎介面是由一種經妥善排列後的人造次波長金屬結構所構成，並具有自然界中不存在且特殊的光操控能力。超穎介面的光操控能力是由組成的奈米結構之幾何參數與週期排列方式所決定，本論文利用此特性設計兩種不同形式的裂環共振器超穎介面，並分析其光操控能力與暗場之應用。

第一種是由直立式裂環共振器構成的超穎介面，比傳統的平面奈米柱超穎介面多了一個維度可以進行操控。直立式裂環共振器超穎介面具有將光通訊波段的入射光異常反射到特定角度的能力，藉由模擬分析，此超穎介面具有很高的指向性與訊雜比。比起傳統奈米柱超穎介面，直立式裂環共振器超穎介面能解省將近百分之五十的佔據表面積，提升超穎介面之積體光學元件的密度。

第二種超穎介面是由非對稱裂環共振器陣列所構成，此超穎介面在暗場下擁有陣列邊界發光的特性，藉由增加非對稱裂環共振器的週期，邊界發光特性會變成全陣列的發光。此非對稱裂環共振器超穎介面是第一個設計在暗場下工作的超穎介面，在未來能應用在暗場下的細胞捕獲器或暗場下的光陷阱。

關鍵字：電漿子超穎物質，超穎介面，直立式裂環共振器，非對稱裂環共振器。

Abstract

Metasurface is a kind of artificial material constructed by metal nanostructure with well-designed patterned on its surfaces has shown to possess unusual abilities to manipulate light. In this dissertation, two types of split-ring resonators based metasurface have been designed and investigated.

Recently, we have designed the 3D nanostructures, namely vertical split-ring resonators (VSRRs), which opens up another degree of freedom in the metasurface design. VSRR-based metasurface is able to anomalous steering reflection of a wide range of angles can be accomplished with high extinction ratio using the finite-difference-time-domain simulation. On the other hand, VSRR-based metasurface can be made with roughly half of the footprint compared to that of rods-based metasurface, enabling high density integration of metal nanostructures.

At present, proposed functions of metasurface-based devices are mostly oriented to bright-field but not dark-field. We first propose and analyze an asymmetric split-ring-based metasurface with ability of edge-emission at visible region under dark-field environment. By changing periodic distance between two adjacent split-ring elements, the mode with edge-emission can be controlled. It can be observed under dark-field measurement with property of spectral-dependent spatial variation. The feasibility of proposed design has been demonstrated by the electromagnetic numerical simulation and dark-field measurement. The broadband phenomena of edge emission have been observed from 650 to 900 nm.

Key words: Plasmonic Metamaterials, Metasurface, Vertical Split-Ring Resonators, Asymmetric Split-Ring Resonators

第一章、緒論



1-1 前言

人們一直以來都對於微小尺度下的光學現象感到興趣，在過去幾年中，拜製程技術進步所賜，小尺寸結構能被實現。電漿子超穎物質(plasmonic metamaterials)因此也成為熱門的研究題材，不同於一般自然界的物質其特性是由組成中的本質特性所決定；超穎物質是由人造的次波長結構所組合而成，其光學特性也是由次波長結構的幾何形狀、尺寸與排列所決定。藉由有組織的排列這些次波長結構，超穎物質能產生一般自然界物質所沒有的特殊光學特性。

本論文主要是設計兩種不同形式的裂環共振器超穎物質，並探討其表面電漿子共振模態，進一步利用結構間的耦合來設計具有功能性的超穎介面。本文的架構分別是；第一章主要介紹局域性表面電漿子共振超穎介面的特性，接著再介紹電漿子間的耦合效應與廣義斯乃爾定律。第二章介紹本論文所使用的儀器與模擬軟體。第三章介紹第一種超穎介面，介紹如何利用直立式裂環共振器設計具有高指向性、高訊雜比與高密度的奈米光學天線。第四章是介紹第二種超穎介面，介紹如何利用不同週期大小的非對稱的裂環共振器負結構來調控暗場下的散射圖案，此超穎介面在未來能在暗場下應用於細胞捕獲器。

1-2 局域性表面電漿子共振介紹

藉由局域表面電漿子共振所產生的奇特光學現象在很早期時已經被人類所利用，早期的工匠將金屬顆粒參雜進玻璃中，並製造出色彩鮮艷的玻璃，這些玻璃至今仍用在許多教堂的裝飾中(如圖 1-1 (a))[1]，另一個有名的例子是 1600 年前的羅馬時期，工匠將金屬顆粒加在盧奇格斯酒杯(Lycurgus Cup)的裝飾上(請參考圖 1-1 (b))[2]，自然光從酒杯表面反射出綠光，而穿過酒杯的自然光澤是呈現紅色。在 20 世紀初，有科學家開始進一步探討這些神奇的光學特性，但礙於分析與製程技術的不足，直到 1980 年後奈米技術漸趨成熟才開啟局域性表面電漿子的研究與應用。

(a)



(b)



圖 1-1: (a)英國索爾斯伯里大教堂(Salisbury Cathedral)的彩色玻璃，(b)古羅馬時期的盧奇格斯酒杯。[1,2]

當一道光照射在金屬粒子上(金屬粒子的尺寸遠小於波長)，此時粒子與電磁波之間的交互作用可以用簡單的準靜態近似來進行分析，入射的電磁場位於粒子內的震盪相位為定值(因為金屬顆粒遠小於入射光波長)，可以進一步假設粒子處於靜電場中，隨著時間的不同，入射電磁波的相位也隨之改變，此時位於金屬表面的自由電子將隨著時變得”靜電場”改變分佈的濃度，因此金屬表面的自由電子會產生具有同調性的集體震盪，此行為被稱作局域性表面電漿子共振(Localized surface plasmon resonance)，如圖 1-2(a)所示。圖 1-2(b)是局域性表面電漿子共振在金屬顆粒球表面產生的電場分佈圖[3]，如圖所示，在入射光的激發下，金屬顆粒球產生電偶極共振。

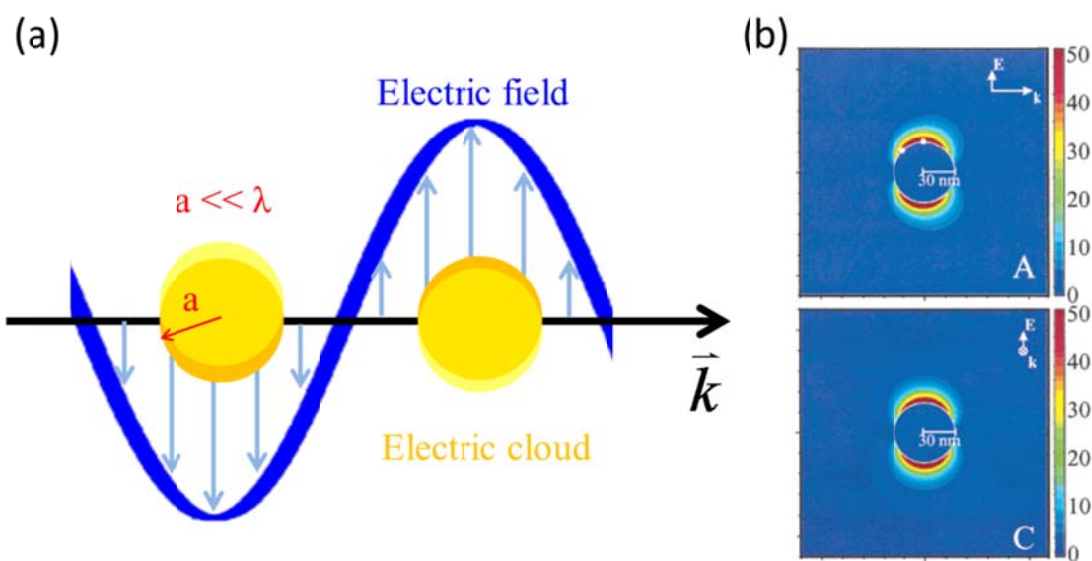


圖 1-2: (a)局域性表面電漿子共振示意圖，(b)金屬奈米球的局域性表面電漿子共振之電場分佈圖，其中金屬球半徑為 30nm，入射光波長為 358nm。[3]

局域性表面電漿子共振有四個特點。此電漿共振的第一個特點是，位於金屬表面特定的區域將會大幅增強電磁場強度，如圖 1-3 所示，隨著遠離金屬表面，電場強度將會迅速減弱，Kim 團隊利用此特性來進行非線性效應的研究[4]。

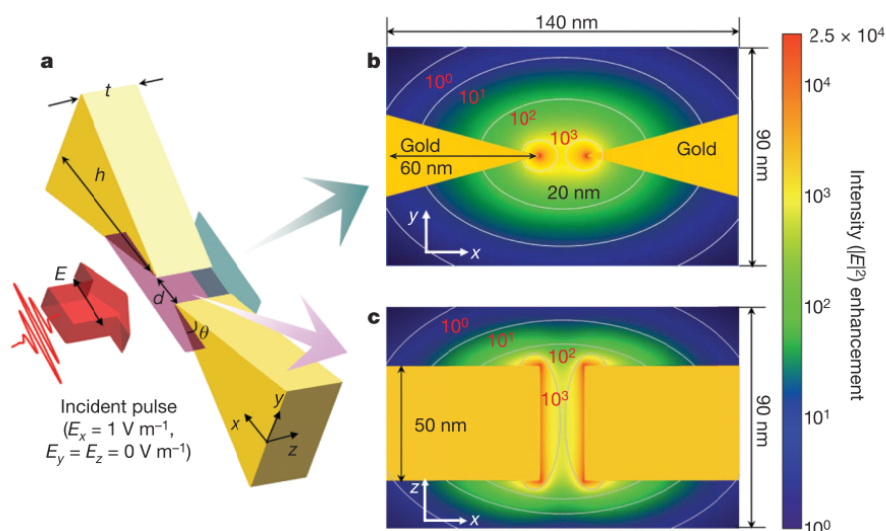


圖 1-3: 不同尺寸與形狀的金屬奈米粒子之散射光。[4]

第二個特點是，能產生局域性表面電漿子共振的結構對於入射光電場偏振方向非常敏感，如 1-4(a)[5]所示，在不同的入射電磁波偏振下，金屬粒子擁有截然不同的共振模態。模式只要妥善利用此特性，我們便能調控電漿子共振的光學特性，圖 1-4(b)[6]是利用不同偏振光來激發不同區域的金屬粒子，進一步調控金屬粒子的遠場散射光，讓遠場散射光產生產生不同的圖案。

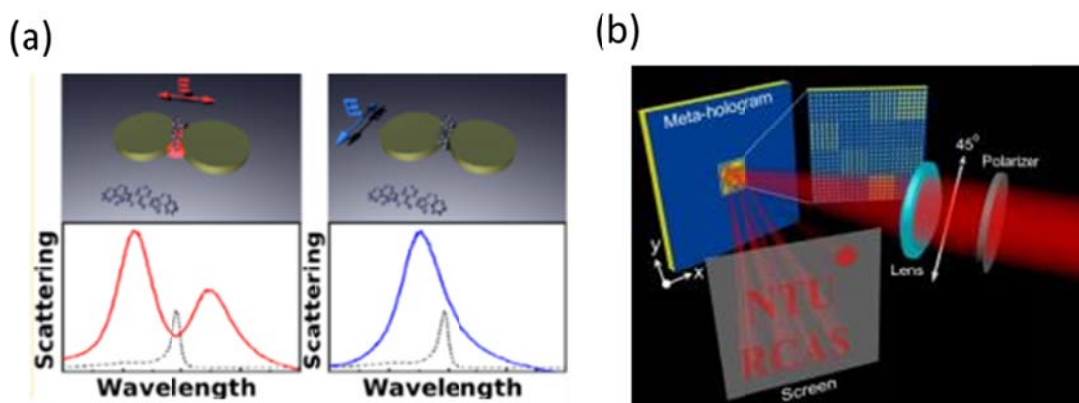


圖 1-4: (a)雙圓盤結構在不同偏振光下的散射圖。(b)超穎全相片在不同偏振光下產生不同散射圖案。[5,6]

第三個特點是，局域性表面電漿共振對於金屬粒子的幾何形狀非常敏感，圖

1-5[7]是不同形狀與不同尺寸的金屬粒子在暗場顯微鏡下所觀察到的散射訊號，由這圖可以看出只要稍微調整金屬顆粒的尺寸或形狀，便能調控局域性表面電漿子共振的共振波段。

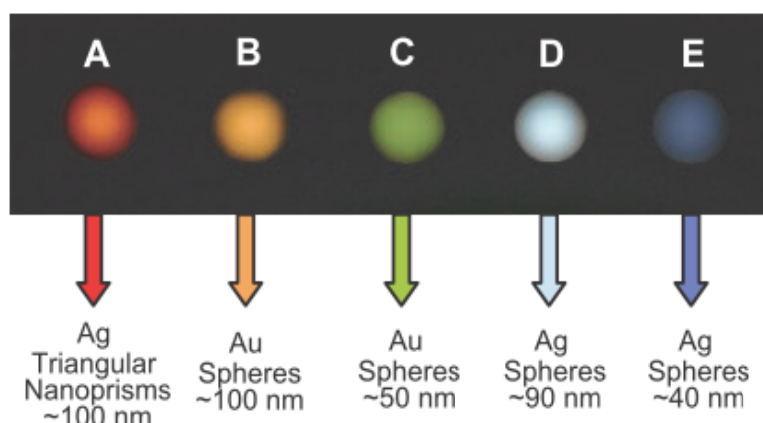


圖 1-5: 擁有不同形狀與不同尺寸的金屬顆粒之散射訊號。[7]

最後一個特點是局域性表面電漿子共振的電場集中於結構周圍，如圖 1-6(a)[8]所示，而此電場對於周圍環境非常敏感，如圖 1-6(b)[8]所示，當周圍環境的折射率改變時，表面電漿子共振位的波段也會隨之改變，此特性有助於將表面電漿子共振發展成生物感測器(Bio-sensor)。

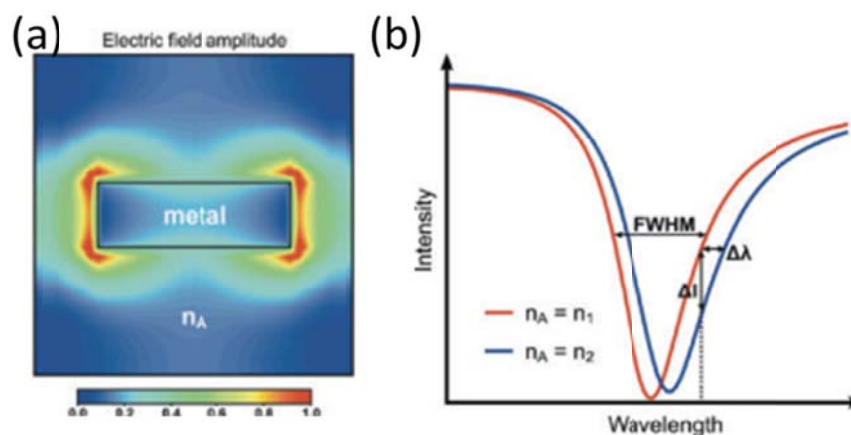


圖 1-6: (a)表面電漿子共振的電場強度分佈圖。(b)電漿子共振波段隨著不同環境折射率而位移。[8]

1-3 電漿子超穎物質介紹

1-3.1 超穎物質介紹

上一段細述了局域性表面電漿子共振的原理與特性，但上述都只是在討論單一金屬結構的共振，在 2001 年，有研究團隊利用經排列的金屬結構創造出在微波波段具有負介電常數與負磁導率的新材料，此材料具有負折射現象，由於自然界中並沒有負折射材料[9]，因此這個新材料在國際電磁學領域與電漿子領域引起廣泛的關注[10]，此新材料被命名為電漿子超穎物質。

圖 1-7(a)[11]是自然界中，可以觀察到的原子結構，原子之間的距離遠小於光波長，因此對光而言，原子與原子間的排列可視為連續表面。電漿子超穎物質是泛指次波長(sub-wavelength)尺度下週期排列的人造結構之統稱，結構示意圖如圖 1-7(b)[11]所示。Metamaterial(超穎物質)的字根 meta-在希臘文中代表著超越的意思，因此超穎物質的字隱含著超越一般物質的意思，其電磁波特性是藉由妥善的操控金屬微結構來決定[12]。

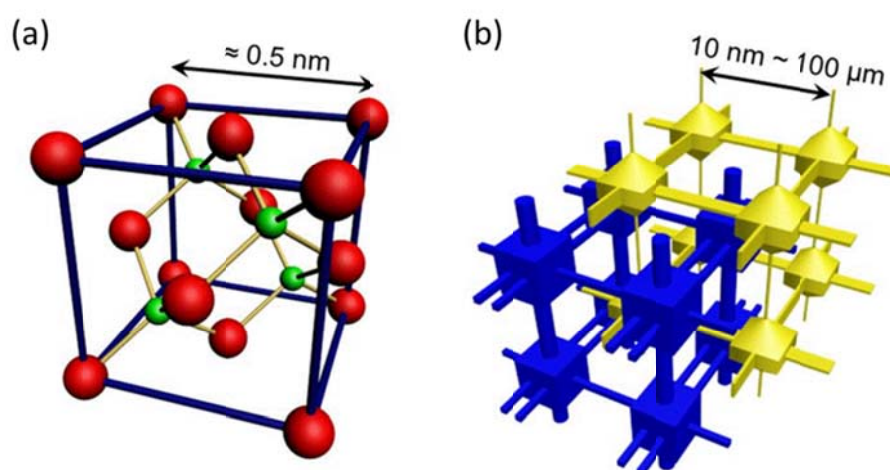


圖 1-7: (a)一般物質，(b)人造超穎物質。[11]

當實驗證實科學家可以藉由電漿子超穎材料來產生自然界不存在的光學現象後，陸續有科學家提出藉由電漿子超穎物質達到電磁波的操控行為，從一開始的負折射材料[12-14]到環形矩[15-21]、光學天線[22,23]、超薄透鏡[24-26]與超解析透鏡[27-30]等都是自然界不存在的有趣光學特性。隨著製程技術的發展，電漿子超穎物質的研究逐漸走向具有特定功能如具感測力(Sensing)[31]與調控力(Tunable)[32]的超穎元件(meta-device)或超穎介面(meta-surface)。在 2012 年英國南安普敦大學的 Nikolay I. Zheludev 教授首先提出超穎元件(Meta-device)的觀念，其定義是該元件具有特殊的應用功能，而該功能可以藉由超穎物質的人在結構來調控。示意圖如圖 1-8 所示。[33]

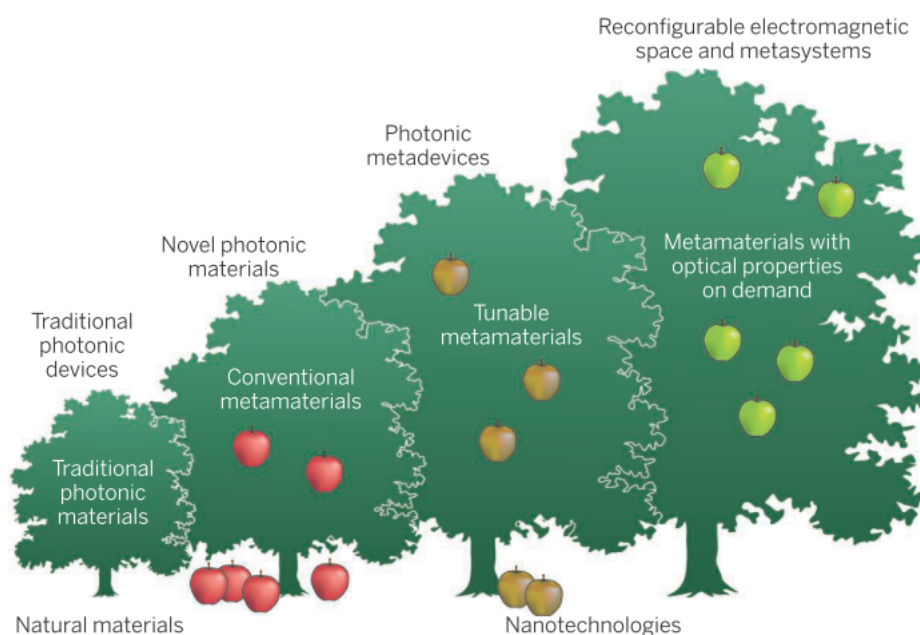


圖 1-8: 超穎物質未來的走向示意圖。[33]

1-3.2 裂環共振器介紹

在眾多的超穎材料的結構中，裂環共振器(Split-ring resonator)是最受矚目且最具代表性的一種，由於裂環共振器同時擁有電共振(electric resonance)與磁響應(magnetic response)，因此被廣泛的應用在許多超穎物質的設計中。裂環共振器最

早被 John Pendry 所設計，欲應用在微波波段的超解析透鏡[34]。隨著超穎材料的發展，裂環共振器也發展出許多相似的結構，如 C 型或是 U 型等[35,36]。目前主要有兩種方式能夠激發裂環共振器的磁響應。第一種方式是讓入射光的電場平行於裂環共振器的兩個手臂，如圖 1-9 所示[37]，此時能在結構表面感應出環型電流，並感應出磁偶共振。

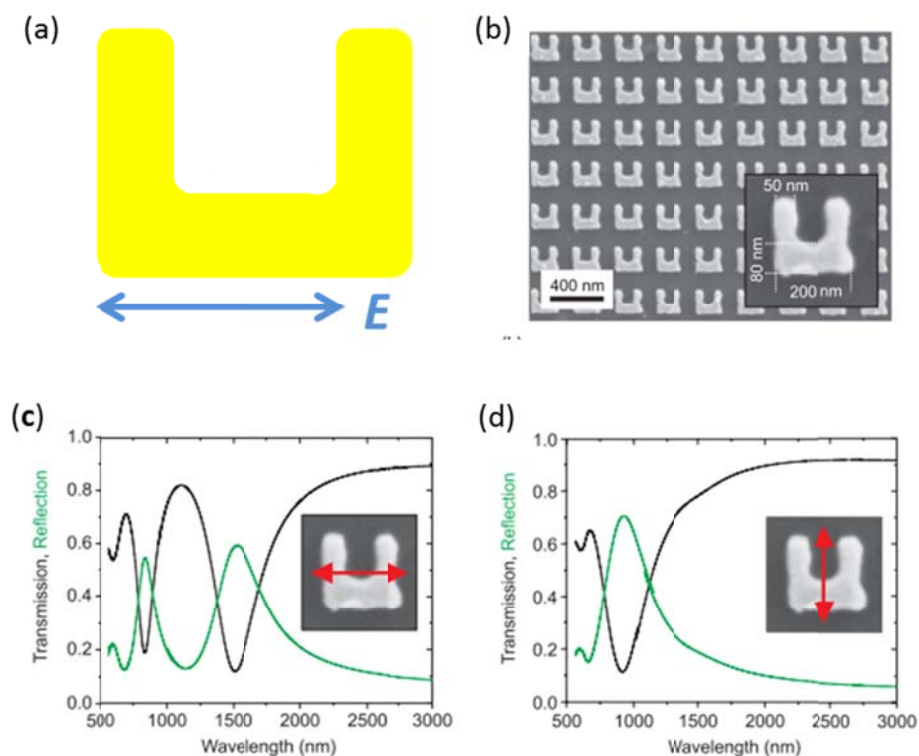


圖 1-9: (a)入射光電場方向平行於裂環共振器的手臂之示意圖。(b)裂環共振器陣列之 SEM 影像圖。入射電場(c)平行與(d)垂直裂環共振器手臂的光譜圖。[37]

第二種方式是讓入射光的磁場穿過裂環共振器兩個手臂間，如圖 1-10(a)所示，根據冷次定律，當裂環共振器感受到環境磁通量的變化時，會感應出一個反向的磁場來抑制變化，進而在結構表面產生感應的環型電流。對於平面式的裂環共振器而言，正向入射的磁場無法激發磁共振，主要的原因是入射光的磁場無法穿過裂環共振器的手臂間，無法造成磁通量的變化。若欲用入射光的磁場來激發裂環共振器的磁共振，就必須讓入射光傾斜，如圖 1-10(b)所示[38]，讓磁場的分量對裂環共振器產生磁通量的變化，但是這種方法會降低入射光激發裂環共振器

的效率。

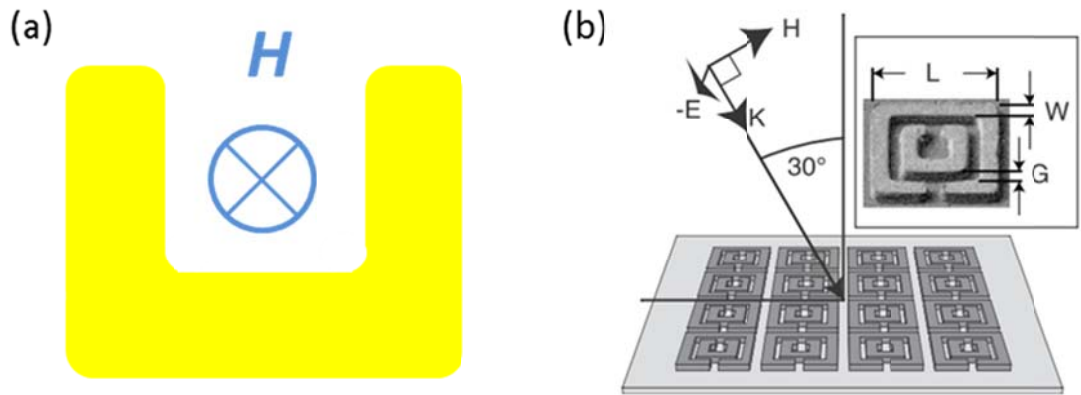


圖 1-10: (a)入射光磁場方向穿越裂環共振器手臂間之示意圖。(b)斜向入射示意圖。

[38]

隨著超穎物質的功能需求，裂環共振器也演變出各種複合結構，例如非對稱裂環共振器(Asymmetric split ring resonators)。這種結構最早是被英國南安普敦大學的 Nikolay I. Zheludev 教授所提出，如上述所說，裂環共振器在特定的偏振下，可於結構表面感應出環型電流震盪並同時產生磁偶極共振，當兩個尺寸不同的裂環共振器互相靠近時(如圖 1-11(a)所示)[39]，由於不同尺寸對於入射光的感應力不同，兩個結構產生不同的共振相位，在特定的波長激發下(反射光譜如圖 1-11(b)所示)，兩個結構的共振相位剛好相差 180° ，此時兩個結構會擁有相似的電流強度但電流方向卻是相反(如圖 1-(c)所示)[39]，從圖 1-11(c)可以發現只有在特定波長下才能被激發。此反向共振的共振模態需要藉由破壞超穎物質幾何結構對稱性才能被激發，此共振模態也被稱為束縛模態(trapped mode)[40]，也因為只有在特定的條件下才激發束縛模態，因此束縛模態擁有較高的品質係數(Q-factor)。

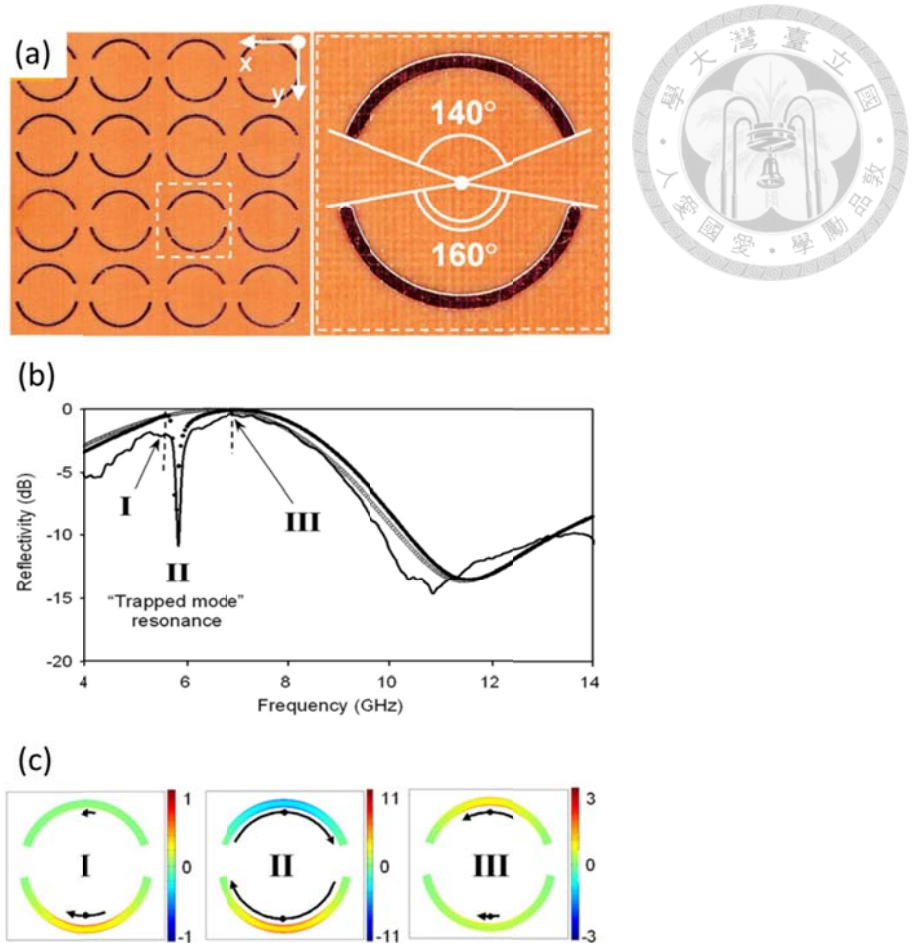


圖 1-11: 非對稱裂環共振器之(a)示意圖、(b)反射光譜圖與(c)不同頻率下的表面電流振盪。[39]

截至目前為止，大部分對於裂環共振器的研究僅限於二維結構，也就是裂環共振器平躺在基板上，如圖 1-12(a)所示[41]。如之前所提到的，入射光電場能激發二維裂環共振器，並在結構表面產生環形電流(圖 1-12(b)) [41]，並在兩個手臂間誘發磁偶共振；若要使用入射光的磁場來激發，就必須讓光傾斜入射，相對地此方法也會讓磁場對結構的激發效率減弱。為了增加入射光與裂環共振器間的耦合，我們設計了三維的直立式裂環共振，結構設計如圖 1-12(d) [41]所示，裂環共振器站在基板上，其中 $L = 195 \text{ nm}$ 。直立式裂環共振器能同時被正向入射光的電場與磁場激發，圖 1-12(f) [41]是磁場能量密度分佈，由於電場與磁場能同時激發此結構，因此直立式裂環共振器比平面式裂環共振器擁有更高的磁場能量密度。

直立式裂環共振器能更有效率的利用入射光能量。

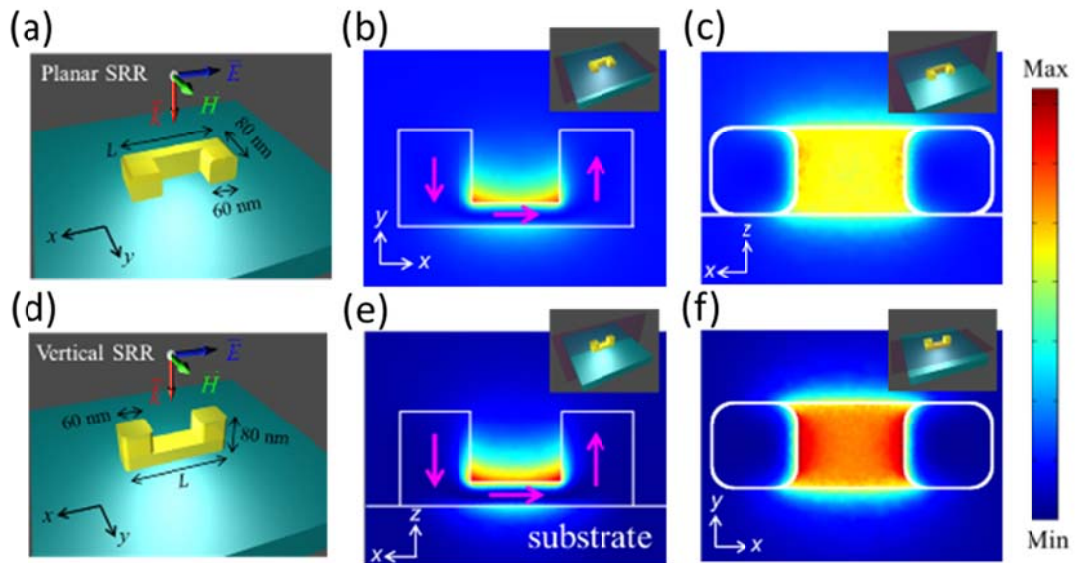


圖 1-12: (a)平面式與(d)直立式裂環共振器示意圖，其中 $L = 195 \text{ nm}$ ，介電質基板為玻璃。(b)、(c)平面式裂環共振器之磁場能量密度圖，(e)、(f)直立式裂環共振器之磁場能量密度圖。[41]

1-3.3 巴比內原理

超穎物質除了可以用金屬粒子組成之外(正結構)，也可以在金屬膜上製作狹縫型結構(負結構)，有趣的是根據巴比內原理(Babinet's principle)，在幾何參數相同的兩種互補結構其光學特性也會彼此互補，也就是說這種負結構可以視為金屬粒子的互補結構(Complementary structure)，圖 1-13 是裂環共振器(a)正結構與(b)負結構的示意圖[42]。

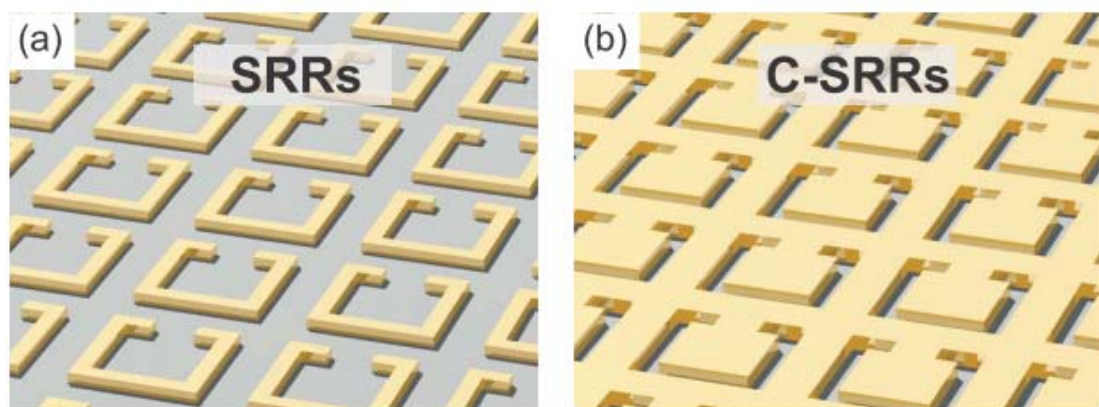


圖 1-13: 裂環共振器(a)正結構與(b)負結構之示意圖。[42]

圖 1-14[42]是裂環共振器正結構與裂環共振器負結構的穿透、反射光譜圖。其中圖 1-14(a)與(d)是正結構分別在 x 偏振與 y 偏振下的量測結果；圖 1-14(b)與(c)是裂環共振器負結構分別在 y 偏振與 x 偏振下的量測結果。有趣的是，從圖 1-14(a)與(b)中可以觀察到正結構在 x 偏振下的穿透光譜與負結構在 y 偏振下的反射光譜極為相似，而正結構的反射光譜與負結構的穿透光譜也具有相似的趨勢。從圖 1-14(c)與(d)也能觀察到一樣的現象，這就是巴比內原理提到的光學特性互補。此外，如果考慮兩個結構的吸收光譜(利用 $1 - \text{穿透率} - \text{反射率} = \text{吸收率}$)，也可以發現兩種結構的光譜幾乎一致，代表著這兩種結構在相同的波段下有相似的共振行為。這個結果對於超穎材料的結構製作有很重大的意義，舉例來說，假如超穎材料的正結構太複雜而不利於製作，我們便可以選擇製程較容易的負結構來製作樣品，由於正負結構在相同波段下有相似的共振，因此要轉換結構也比較容易。另一方面，負結構的局域表面電漿子共振需要考慮到狹縫與狹縫間的耦合，往往會讓模態分析變得很複雜，此時我們也可以選擇改用容易探討共振模態的正結構來進行數值分析與模擬。若善加利用結構與光譜的互補特性，可以簡化超穎物質的設計與製作。

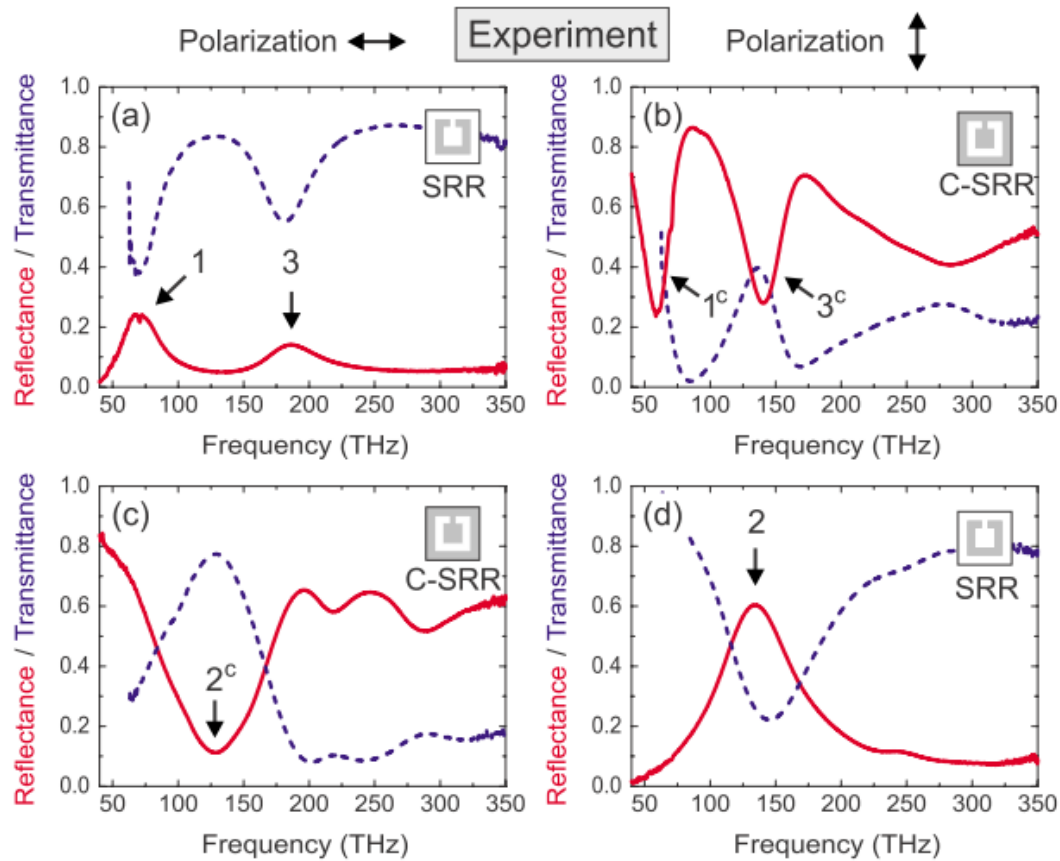


圖 1-14: 裂環共振器正結構在(a)x 偏振與(d)y 偏振下的量測光譜圖；負結構在(b)y 偏振與(c)x 偏振下的量測光譜圖。[42]

1-3.4 電子混和模型與法諾共振

就如前幾節所討論的，表面電漿子共振是在適當條件下，自由電子在次波長尺寸的金屬微結構表面產生集體震盪，在前一節也提及某些特定結構存在著表面電漿子共振的耦合。在 2003，美國萊斯大學的 Peter Nordlander 教授提出以古典電磁理論描述表面電漿子的耦合行為，並發現有一些現象與量子系統中的電子耦合非常相似，如電子耦合後產生的能階分裂。其中最著名的電漿子耦合模型如圖 1-15 所示。[43]

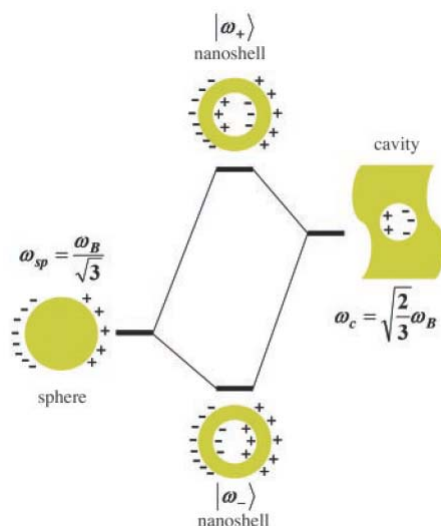


圖 1-15:描述金屬球殼上的表面電漿子交互作用所產生的能階分裂示意圖。[43]

此電漿子耦合模型不僅成功解釋了單一結構間的電偶耦合，更可用於解釋多層求殼結構表面上的電漿子共振所造成的能階分裂。除了上述不同形狀的金屬結構能被成功解釋外，在 2015 年，Wu 團隊發現，電漿子混和模型也能成功解釋不同尺寸間的金屬微結構耦合現象，如圖 1-16 所示[41]。當奈米結構之間的距離夠接近時，結構表面的電漿子會進行交互作用，此時這兩個兼併態會在能階系統中產生能階分裂如圖 1-16(a)所示，從穿透光譜中可以觀察到兩個明顯的共振訊號。圖 1-16(b)為兩個共振訊號的表面電流密度模擬圖，裂環共振器中的藍色箭頭為電流方向，首先可以發現短波長共振時的電流方向相同，此時兩個裂環共振器之間所產生的磁偶與電偶皆為同向；另一方面，在長波長的共振波段下，兩個裂環共振器之間的電流方向為反向，此時裂環共振器的磁偶與電偶皆為反向。根據古典電磁學理論，我們知道兩個同向的電偶有著比反向電偶還要高的能量，然而兩個反向的磁偶有著比兩個同向磁偶還要高的能量，在裂環共振器的系統裡，電偶的能量較磁偶高，因此電偶能主導了兩個裂環共振器的共振波段。此研究結果顯示，古典的電磁學理論能成功解釋電漿子的混和模型。

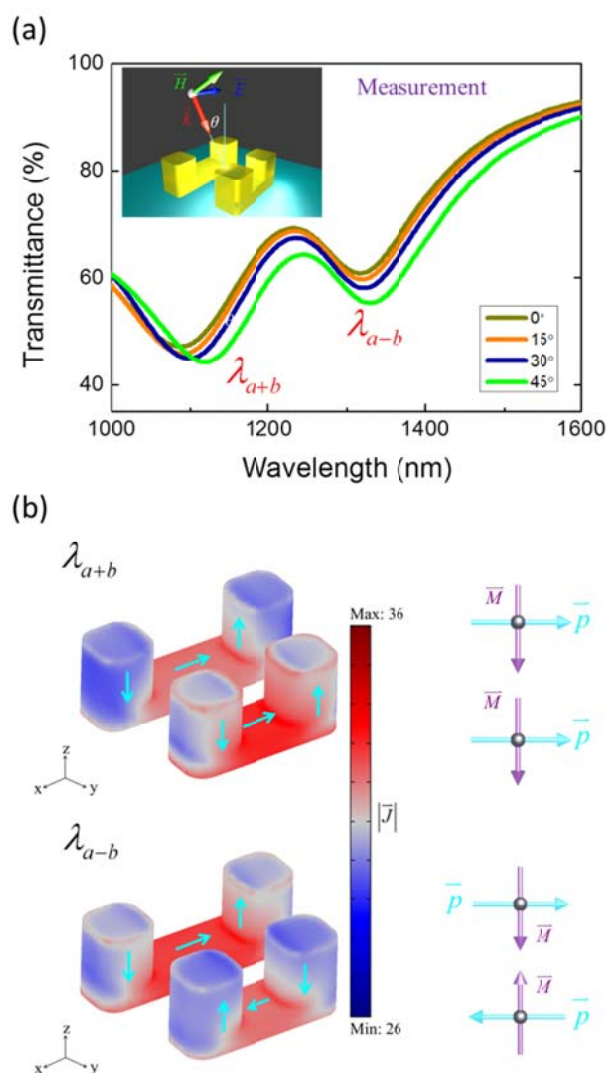


圖 1-16: 兩個不同尺寸的直立式裂環共振器之(a)穿透光譜與(b)電流密度圖。[41]

電漿子混和模型已經被廣泛的應用在超穎物質上，如平面與多層裂環共振器[44]、多層電漿子超穎物質[45,46]與電磁誘發穿透等[47,48]。在電漿子混和模型中，又以法諾共振(Fano resonance)最受矚目，此現在首先由 Ugo Fano 在 1935 年所提出[49]，法諾共振為一個具有寬帶響應的共振模態與一個具有窄帶響應的共振模態間交互作用，並於光譜中觀察到一個非對稱的訊號，如圖 1-17 所示。由於法諾共振產生的共振光譜具有很高的品質因子(Quality factor)，因此常被應用在感測元件上。

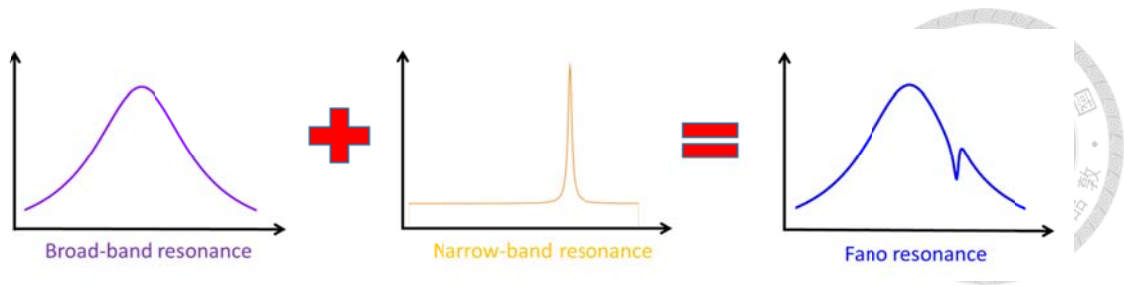


圖 1-17: 寬帶與窄帶共振耦合形成法諾共振示意圖。[49]

1-4 電漿子超穎介面介紹

1-4.1 簡介

直到現在，大多數的光操控元件主要應用於改變電場的偏振、振幅、光波前 (Wavefront) 的相位或是光波長 (Wavelength) 調製[25]。首先，擁有調製電場偏振特性與振幅強度的光學元件主要是偏振片 (Polarizer) 及衰減片 (Attenuator)。能改變光波前向位與前進方向的元件主要包含透鏡 (Lens) 與稜鏡 (Prism) 系統，以及空間光調製器 (Spatial Light Modulator) 等。具有光波長調製的元件包含了光過濾器 (Notch Filter) 與各種能帶阻波器 (Band-stop Filter、Short pass Filter、Long pass Filter) 等。除了上述常見的光學元件之外，擁有光學繞射基礎能於遠場中進行光圖案 (Optical Pattern) 調製功能的全相片 (Hologram)，以及具有光學各向異性 (Optical Anisotropy) 的雙折射晶體 (Biefringent Crystal)，如相位延遲片 (Waveplates) 等元件在近期也被廣泛的討論與使用。值得一提的是，上述具有改變光波前能力的元件皆遵守光的傳播效應 (Propagation Effect)，這表示光在元件中傳遞時，相位變化是連續 (Phase Continuities) 的過程。

超穎介面擁有不依靠傳播效應便能調控光波前的能力[50]，在此我們引入相位非連續性 (Phase Discontinuities) 的概念於光的路徑中。一道入射光入射在光學散射體 (Optical Scatters) 上並產生交互作用，散射出的光具有一個相位的偏移量，

當入射光與散射體達到共振時，散射光具有極大的相位偏移量。隨著改變散射體的尺寸結構或是折射率，便能有效的控制散射光的相位偏移，藉由有系統地排列光學散射體，便能擁有相位非連續性，進而達到控制光波前的效果。最有名的例子為 Cappaso 團隊在 2011 年所發表的超穎材料調控光波前之結果(示意圖如圖 1-18 所示)[51]。該團隊利用不同旋轉角度的”<”型光學散射體來調製透射光的相位偏移，進一步讓透射光的相位偏移量有梯度變化，每個”<”型光學散射體在空間中都可視為點波源，彼此干涉後便能形成光波前，此結構排列能在正向入射光的條件下，讓透射光沿一特定角度出射。

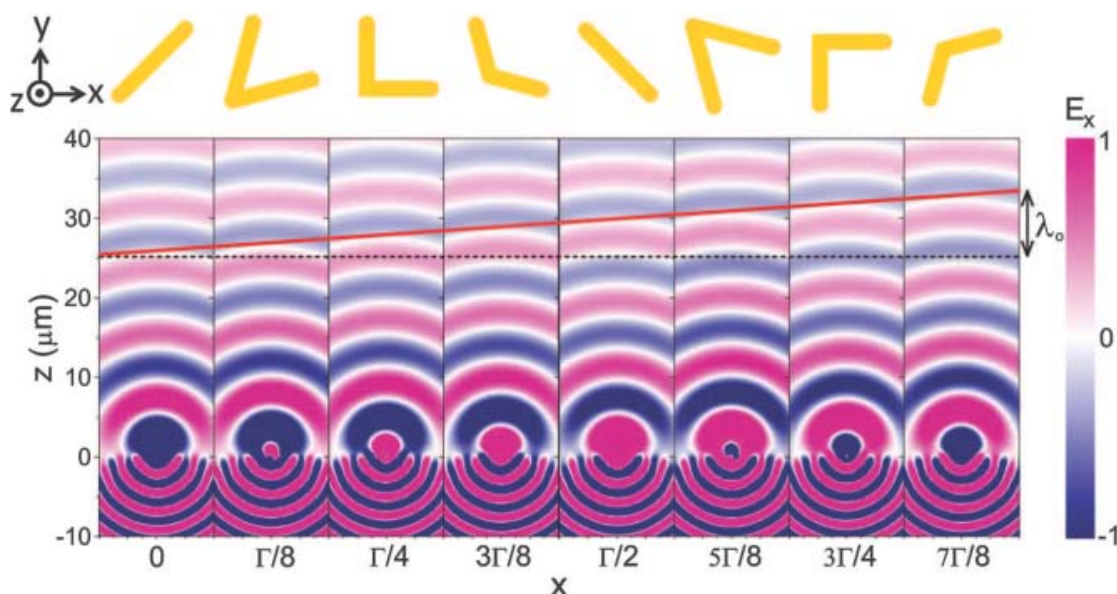


圖 1-18:超穎材料的光波前調製示意圖。[51]

具有調控性的光學散射體空間分布必須滿足尺寸、厚度與間距皆為次波長尺度。這些藉由共振特性來改變電磁波散射相位的結構陣列，我們稱為超穎介面，超穎介面的相位非連續性特性為光學元件開啟一個新的設計自由度。因此，超穎介面在近期有諸多的設計與應用，如奈米級光學天線、超薄透鏡與超穎全相片等。

在此諸多功能的超穎介面中，本文將著重於如何利用光學散射體來設計具有光學天線特性的超穎介面。當一道光入射超穎介面並與其中的金屬天線(光學散射體)進行交互作用(電漿子共振)，此時金屬天線會產生具有相位變化的散射光，根據廣義的斯乃爾定律，金屬天線的相位調製需要達到 2π 才能完全調控電磁波的波前。在固定入射光波長(λ)的條件下，當金屬天線的長度 $L = \lambda/2$ 時，將會產生共振，此時，天線表面被引發的電流與入射場同向，因此之間沒有相位差。當金屬天線的長度改變漸漸遠離共振條件時，相較於入射場，表面電流的震盪方向有領先或延遲的相位。藉由調控金屬天線的長度，我們將可以調控金屬天線的相位。就單一個金屬天線而言，最大的相位調製能力是 π (也就是表面電流震盪與入射場呈反向) 因此無法達成完全調控光波前的條件 2π 。近幾年，有三種方法被提出讓金屬天線的相位調製達到 2π ：(1) 多重獨立共振 (Multiple Independent Resonances)，(2) 結構的幾何效應 (Geometric Effects) 與 (3) 天線的耦合式共振 (Coupled Antenna Resonances)。

多重獨立共振主要是適當的排列具有對稱模態與反對稱模態的金屬天線，在入射特定偏振光下，讓此兩種模態相互疊加，而產生 2π 的相位調製效果。幾何效應是藉由旋轉金屬天線，使的散射光產生像位延遲，達到 2π 的相位調製效果。此方法具有各金屬天線的散射光強度相近的優點；欲使用此方法達到相位調製，就必須使用圓偏振光來激發金屬天線。耦合式天線是最常被應用的方法，其中又以金屬-介電質-金屬(MIM)多層結構最被廣泛利用(請參考圖 1-19)[52]。金屬-介電質-金屬(MIM)多層結構是利用一層介電質分隔結構最底部的金屬反射鏡與最上方的金屬天線。底部的金屬反射鏡具有兩個重要的功能，第一個功能是反射鏡能與金屬天線進行耦合，當金屬天線受到入射光激發而產生表面電流時，底部的金屬反射鏡能被感應出一個反向的電流，此時介於金屬與反射鏡間的介電質即會產生磁耦振盪響應，擴展了像位的調製能力。第二個功能是反射所有的穿透光，

能增加入射光與金屬天線的耦合，也減少了穿透光的損耗，使的超穎介面的效率被大幅提升。

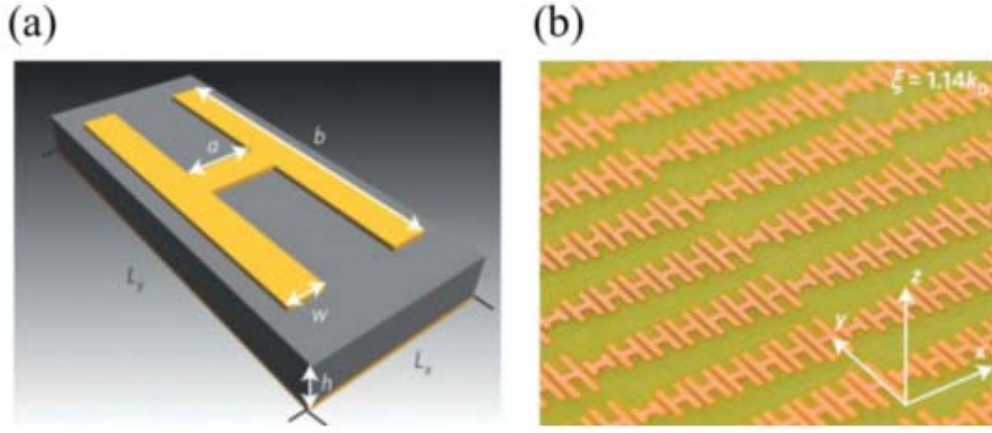


圖 1-19: (a)超穎介面的單一結構示意圖，(b)超穎介面的光學影像圖。[52]

1-4.2 廣義斯乃爾定律

根據費馬定理(Fermat's principle)的結果，光會挑選最短路徑進行傳遞，在兩種不同的均勻介質中，可以表示成：

$$[k_0 n_i \sin(\theta_i) dx] - [k_0 n_t \sin(\theta_t) dx] = 0 \quad (1.4.1)$$

整理後可以得到角度與折射率的關係，這便是我們所熟知的斯奈爾定律(Snell's law)關係式，可以表示成：

$$n_i \sin(\theta_i) = n_t \sin(\theta_t) \quad (1.4.2)$$

圖 1-20(a)是斯奈爾定律的折射示意圖，當外加一個超穎表面在兩均勻物質之介面時，便能額外對入射光提供一個相位，因此費馬定律必須作修正，示意圖如圖 1-20(b)所示，公式如下：

$$k_0 n_i \sin(\theta_i) dx + (\Phi + d\Phi) = k_0 n_t \sin(\theta_t) dx + \Phi \quad (1.4.3)$$

其中 Φ 是由超穎表面所額外提供的相位，而折射的廣義斯乃爾定律則表示成：

$$n_t \sin(\theta_t) - n_i \sin(\theta_i) = \left(\frac{\lambda_0}{2\pi} \right) \frac{d\Phi}{dx} \quad (1.4.4)$$

另一方面反射的廣義斯奈爾定律可表示成：

$$k_r \sin(\theta_r) - n_i \sin(\theta_i) = k_i \sin(\theta_i) + \frac{d\Phi}{dx} \quad (1.4.5)$$

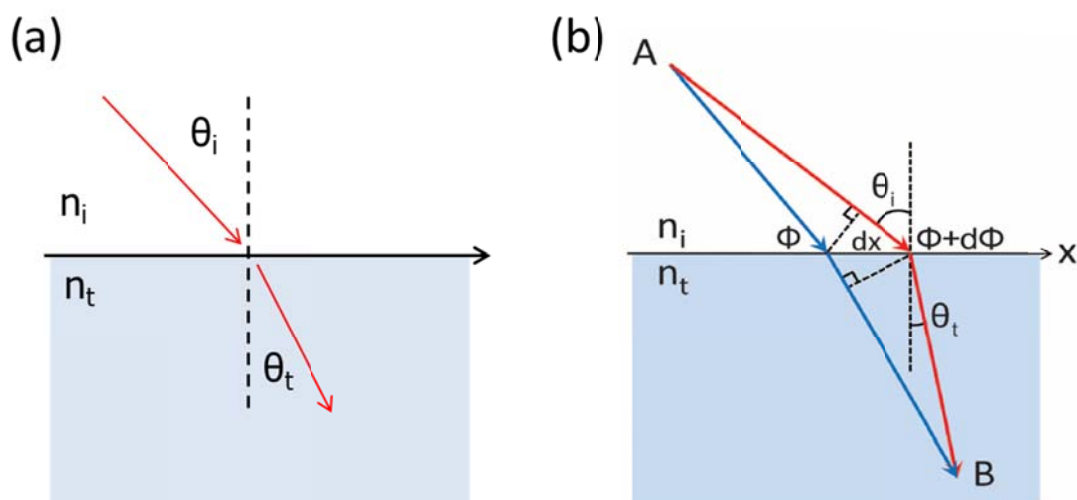


圖 1- 20(a)斯奈爾定律的折射示意圖，(b)當介面有額外提供相位的超穎介面時的廣義斯奈爾定律示意圖[51]。

Yu 團隊等人[51]在 2011 年發表了具有梯度相位變化的超穎表面(圖 1-21(a))，此表面能對入射光額外提供相位因此能產生異常折射的現象(1-21(b))，此超穎表面的設計讓 x 與 y 偏振的光都能產生相同的作用。在 2012 年，相似的結構(圖 1-21(c))也發現具有很廣的工作波段，能在 1100 nm 至 1500 nm (圖 1-21(d))的波段下工作[53]，讓超穎表面擁有更廣泛的運用空間。

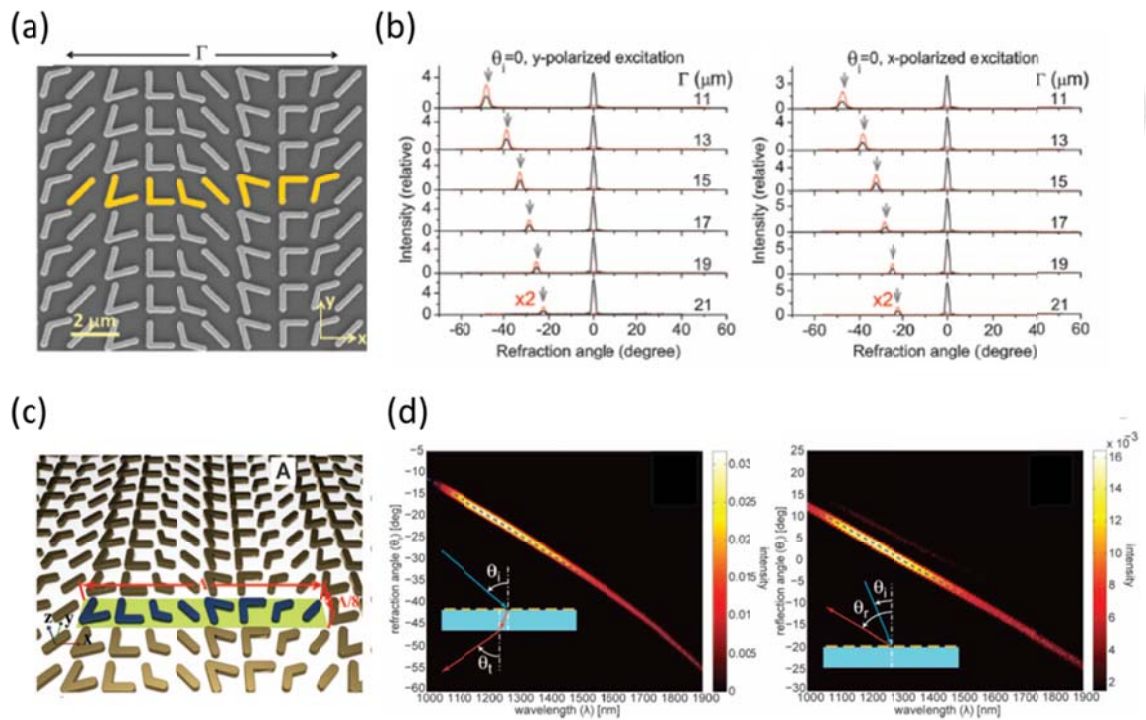


圖 1-21 (a)L 型結構超穎表面 SEM 圖，(b)不同偏振下超穎表面的折射角度[4]，(c) L 型結構超穎表面示意圖，(d) L 型結構超穎表面在不同入射光波段下的折射角與折射強度圖[53]。

1-5 參考資料

[1]圖片來源: photo by Andre Yakovlev.

[2]圖片來源: Epoch Times (2013)

[3] K. L. Kelly, E. Coronado, L. L. Zhao, and G. C. Schatz, “The optical properties of metal nanoparticles: The influence of size, shape and dielectric environment,” J. Phys. Chem. B107(3), 668–677 (2003).

[4] Seungchul Kim, Jonghan Jin, Young-Jin Kim, In-Yong Park, Yunseok Kim and Seung-Woo Kim, High-harmonic generation by resonant plasmon field enhancement, Nature 453, 757-760 (2008).

[5] Andrea E. Schlather, Nicolas Large, Alexander S. Urban, Peter Nordlander, and Naomi J. Halas, Near-Field Mediated Plexcitonic Coupling and Giant Rabi Splitting in Individual Metallic Dimers, Nano Lett. 13, 3281-3286 (2013)

[6] W. T. Chen, K.-Y. Yang, C.-M. Wang, Y.-W. Huang, G. Sun, I.-D. Chiang, C. Y. Liao, W.-L. Hsu, H. T. Lin, S. Sun, L. Zhou, A.-Q. Liu, D. P. Tsai, High-efficiency broadband meta-hologram with polarization-controlled dual images, Nano Letters 14 (1), 225-230 (2014).

[7] R. Jin, Y. Cao, C. A. Mirkin, K. L. Kelly, G. C. Schatz, and J. G. Zheng, “Photoinduced conversion of silver nanosphere to nanoprisms, Science 294(5548), 1901–1903 (2001).

[8] R. Ameling and H. Giessen, Microcavity plasmonics: strong coupling of photonic cavities and plasmons, Laser Photonics Rev. 1–29 (2012)

[9] Shelby R A, Smith D R, Schultz S, Experimental Verification of a Negative Index of Refraction, Science 292, 77(2001)

[10] Zheludev N I, A Roadmap for Metamaterials, Opt. & Photonics News 22, 30 (2011).



[11] 圖片來源: Yao-Wei Huang

[12] Y. Lin, M. H. Hong, T. C. Chong, C. S. Lim, G. X. Chen, L. S. Tan, Z. B. Wang, and L. P. Shi, Ultrafast laser induced parallel phase change nanolithography, *Appl. Phys. Lett.* 89(4), 041108 (2006).

[12] Veselago, V. G. The electrodynamics of substances with simultaneously negative values of ϵ and μ . *Sov. Phys. Usp.* 10 509–514 (1968).

[13] Shalaev, V. M. Optical negative-index metamaterials. *Nat. Photon.* 1, 41-48 (2006).

[14] Hoffman, A. J. et al. Negative refraction in semiconductor metamaterials, *Nat. Mater.* 6, 946-950 (2007).

[15] K. Marinov, A. D. Boardman, V. A. Fedotov, and N. Zheludev, “Toroidal metamaterial,” *New J. Phys.* 9(9), 324 (2007).

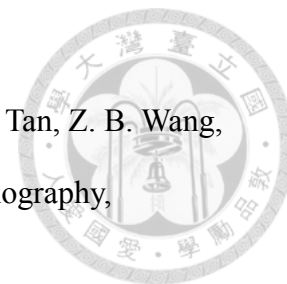
[16] T. Kaelberer, V. A. Fedotov, N. Papasimakis, D. P. Tsai, and N. I. Zheludev, Toroidal dipolar response in a metamaterial, *Science* 330(6010), 1510–1512 (2010).

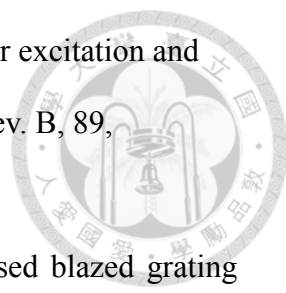
[17] Y.-W. Huang, W. T. Chen, P. C. Wu, V. Fedotov, V. Savinov, Y. Z. Ho, Y.-F. Chau, N. I. Zheludev, and D. P. Tsai, Design of plasmonic toroidal metamaterials at optical frequencies, *Opt. Express* 20(2), 1760–1768 (2012).

[18] Ogut, B., Talebi, N., Vogelgesang, R., Sigle, W. & van Aken, P. A. Toroidal plasmonic eigenmodes in oligomer nanocavities for the visible. *Nano Lett.* 12, 5239–5244 (2012).

[19] Y. Fan, Z. Wei, H. Li, H. Chen, and C. M. Soukoulis, “Low-loss and high-Q planar metamaterial with toroidal moment,” *Phys. Rev. B* 87, 115417 (2013).

[20] Z. G. Dong, J. Zhu, J. Rho, J. Q. Li, C. Lu, X. Yin, and X. Zhang, “Optical toroidal dipolar response by an asymmetric double-bar metamaterial,” *Appl. Phys. Lett.* 101, 144015 (2012).



- 
- [21] V. Savinov, V. A. Fedotov, and N. I. Zheludev, “Toroidal dipolar excitation and macroscopic electromagnetic properties of metamaterials,” *Phys. Rev. B*, 89, 205112 (2014)
- [22] Huang, Y. et al. Phase-gradient gap-plasmon metasurface based blazed grating for real time dispersive imaging. *Appl. Phys. Lett.* 104, 161106 (2014).
- [23] Hsu, W.-L. et al. Vertical split-ring resonator based anomalous beam steering with high extinction ratio, *Scientific Reports* 5, 11226 (2015).
- [24] Wan, X. Jiang, W. X., Ma, H. F. and Cui, T. J., A broadband transformation-optics metasurface lens. *Appl. Phys. Lett.* 104, 151601 (2014).
- [25] Yu, N. et al. Flat optics with designer metasurfaces. *Nat. Mater.* 13,139-150 (2014).
- [26] Rogers, E. T. F. et al. A super-oscillatory lens optical microscope for subwavelength imaging, *Nat. Mater.* 11, 432-435 (2012)
- [27] Cheng, B. H., Lan, Y. C. and Tsai, D. P. Breaking optical diffraction limitation using optical hybrid-super-hyperlens with radially polarized light. *Opt. Express* 21, 14898-14906 (2013).
- [28] Zhang, X. and Liu, Z. Superlenses to overcome the diffraction limit. *Nat. Mater.* 7, 435, (2008).
- [29] Cheng, B. H., Ho, Y. Z., Lan, Y. C. and Tsai, D. P. Optical hybrid-superlens hyperlens for superresolution imaging. *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electron.* 19, 4601305 (2013).
- [30] Cheng, B. H., Chang, K. J., Lan, Y.-C. and Tsai, D. P. Achieving planar plasmonic subwavelength resolution using alternately arranged insulator-metal and insulator-insulator-metal composite structures, *Scientific Reports* 5, 7996 (2015).
- [31] C. Wu, A. B. Khanikaev, R. Adato, N. Arju, A. A. Yanik, H. Altug, and G. Shvets, Fano-resonant asymmetric metamaterials for ultrasensitive spectroscopy and

identification of molecular monolayers, *Nat. Mater.* 11, 69-75 (2012).

[32] B. Gholipour, J. Zhang, K. F. MacDonald, D. W. Hewak, and N. I. Zheludev, An all-optical, non-volatile, bidirectional, phase-change meta-switch, *Adv. Mater.* 25, 3050-3054 (2013).

[33] Nikolay I. Zheludev, Obtaining optical properties on demand, *Science* 348, 973 (2015)

[34] J. B. Pendry, Negative refraction makes a perfect lens, *Phys. Rev. Lett.* 85, 3966 (2000).

[35] S. M. Hein and H. Giessen, Tailoring magnetic dipole emission with plasmonic split-ring resonators, *Phys. Rev. Lett.* 111, 026803 (2013).

[36] X. Xu, B. Peng, D. Li, J. Zhang, L. M. Wong, Q. Zhang, S. Wang, and Q. Xiong, Flexible visible-infrared metamaterials and their applications in highly sensitive chemical and biological sensing, *Nano Lett.* 11(8), 3232–3238 (2011).

[37] C. Enkrich, M. Wegener, S. Linden, S. Burger, L. Zschiedrich, F. Schmidt, J. F. Zhou, Th. Koschny, and C. M. Soukoulis, Magnetic Metamaterials at Telecommunication and Visible Frequencies, *Phys. Rev. Lett.* 95, 203901 (2005).

[38] N Liu, S Kaiser, H Giessen, Magnetoinductive and electroinductive coupling in plasmonic metamaterial molecules, *Adv. Materials* 20 (23), 4521-4525 (2008).

[39] V. A. Fedotov, M. Rose, S. L. Prosvirnin, N. Papasimakis, and N. I. Zheludev, Sharp trapped-mode resonances in planar metamaterials with a broken structural symmetry, *Phys. Rev. Lett.* 99, 147401–1–4 (2007).

[40] V. A. Fedotov, N. Papasimakis, E. Plum, A. Bitzer, M. Walther, P. Kuo, D. P. Tsai, and N. I. Zheludev, Spectral collapse in ensembles of metamolecules, *Phys. Rev. Lett.* 104(22), 223901 (2010).

[41] P. C. Wu, W.-L. Hsu, W. T. Chen, Y.-W. Huang, C. Y. Liao, A. Q. Liu, N. I. Zheludev, G. Sun, D. P. Tsai, "Plasmon coupling in vertical split-ring resonator

metamolecules," *Scientific Reports* 5, 9726 (2015).

[42] T. Zentgraf, T. P. Meyrath, A. Seidel, S. Kaiser, and H. Giessen, Babinet's principle for optical frequency metamaterials and nanoantennas, *Phys. Rev. B*, 76, 033407 (2007).

[43] E. Prodan, C. Radloff, N. J. Halas, and P. Nordlander, "A hybridization model for the plasmon response of complex nanostructures," *Science* 302, 419-422 (2003).

[44] N. Liu, L. Langguth, T. Weiss, J. Kastel, M. Fleischhauer, T. Pfau, and H. Giessen, Plasmonic analogue of electromagnetically induced transparency at the Drude damping limit, *Nat. Mater.* 8, 758-762 (2009).

[45] N. Liu, H. Liu, S. N. Zhu, and H. Giessen, Stereometamaterials, *Nat. Photon.* 3, 157-162 (2009).

[46] W. M. Zhu, A. Q. Liu, X. M. Zhang, D. P. Tsai, T. Bourouina, J. H. Teng, X. H. Zhang, H. C. Guo, H. Tanoto, T. Mei, G. Q. Lo, and D. L. Kwong, Switchable magnetic metamaterials using micromachining processes," *Adv. Mater.* 23, 1792-1796 (2011).

[47] J. Chen, Z. Li, S. Yue, J. Xiao, and Q. Gong, Plasmon-induced transparency in asymmetric T-shape single slit, *Nano Lett.* 12, 2494-2498 (2012).

[48] B. Luk'yanchuk, N. I. Zheludev, S. A. Maier, N. J. Halas, P. Nordlander, H. Giessen, and C. T. Chong, The Fano resonance in plasmonic nanostructures and metamaterials, *Nat. Mater.* 9, 707-715 (2010).

[49] A. E. Miroshnichenko, S. Flach, and Y. S. Kivshar, Fano resonances in nanoscale structures, *Rev. Mod. Phys.* 82, 2257-2298 (2010).

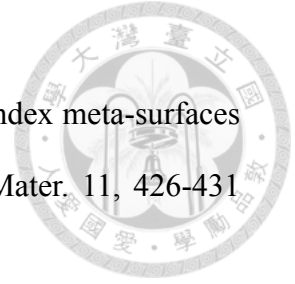
[50] N. Meinzer, W. L. Barnes, and I. R. Hooper, Plasmonic meta-atoms and metasurfaces, *Nat. Photon.* 8, 889-898 (2014).

[51] N. Yu, P. Genevet, M. A. Kats, F. Aieta, J.-P. Tetienne, F. Capasso, and Z. Gaburro, Light propagation with phase discontinuities: Generalized laws of reflection

and refraction, *Science* 334, 333-337 (2011).

[52] S. Sun, Q. He, S. Xiao, Q. Xu, X. Li, and L. Zhou, Gradient-index meta-surfaces as a bridge linking propagating waves and surface waves, *Nat. Mater.* 11, 426-431 (2012).

[53] X. Ni, N. K. Emani, A. V. Kildishev, A. Boltasseva, V. M. Shalaev, Broadband Light Bending with Plasmonic Nanoantennas, *Science* 335, 427 (2012).



第二章、實驗製程與數值模擬計算



2-1 前言

本論文主要以聚焦離子束蝕刻(Focus ion beam milling, FIB)來製備奈米等級金屬結構陣列。聚焦離子束蝕刻技術是乾式製程，擁有製成速度快、沒有光學繞射極限限制、不用製作光罩等優點，是製作奈米結構絕佳的方法。聚焦離子束系統通常以鎢金屬為離子源，鎢離子的質量約是電子的十二萬八千倍，在電場加速後，鎢離子的速度可以達電子的三百六十分之一，因此鎢離子所具有的動能為電子的三百六十倍，利用鎢離子的巨大動能對基板進行轟擊，由於此轟擊屬於物理作用，因此聚焦離子束蝕刻能作用於大部分的機板。此外，在加速電壓 30kV 的條件下，聚焦離子束蝕刻系統能刻繪出 10nm 線寬的圖案。本論文使用兩種商業軟體進行數值模擬計算與分析，分別為 COMSOL Multiphysics 以及 Computer Simulation Technology (CST)，在本章將分別介紹這兩種軟體的特色。

2-2 聚焦離子束蝕刻技術

樣品的製備流程是先使用丙酮(acetone)、甲醇(methanol)、異丙醇(isopropyl alcohol)與去離子水(de-ionized water)各以超音波震洗五分鐘以去除玻璃基板表面的污染物，接著利用熱蒸鍍(thermal evaporator)系統在基板上蒸鍍一層 50nm 的金膜，鍍膜時以石英振盪片膜厚計來確認金膜厚度。實驗中所使用的聚焦離子束蝕刻機台為 FEI 公司的 Helios 660 NanoLab FESEM/FIB dual beams。圖 2-1(a)是機台的外觀圖[1]，圖 2-1(b)是腔體內部的示意圖[2]，此機台同時具有聚焦離子束系統、場發式電子顯微鏡與鉑金屬沉積系統。實驗中，聚焦離子束的加速電壓為 30 kV，依不同線寬所需，使用的電流從 1 到 29 pA 不等，除了調整電壓與電流

外，我們也調整了離子束聚焦在薄膜上的時間(也稱為劑量，doses)，讓樣品的線寬能符合預期。

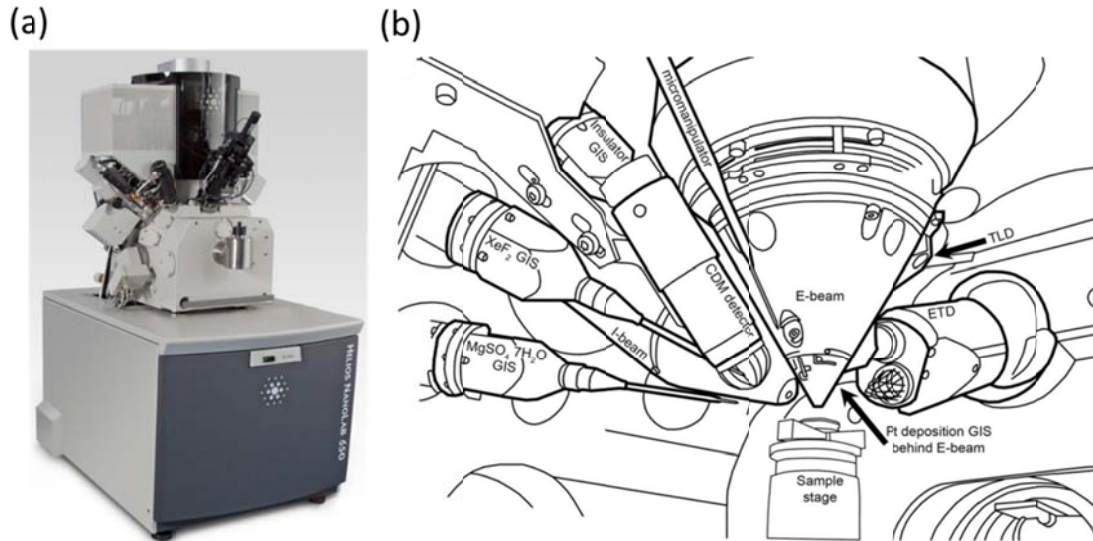


圖 2-1: 聚焦離子束蝕刻系統(a)外觀與(b)腔體內部示意圖。[1,2]

聚焦離子束系統主要的組成有介面工作站、真空系統、離子/電子柱、液態金屬離子源、五軸電動載台與偵測器所組成。其中各元件的介紹如下:

(1) 介面工作站(User station):

使用者在此操作系統的運作，對於系統的工作指令都在這裡完成，此外對於系統的狀態也會由工作站的電腦螢幕顯現出來。

(2) 真空系統(Vacuum system):

高真空環境能大幅減少環境對離子束的干擾(如離子撞擊環境氣體分子而造成布朗運動等)，因此維持高真空的工作環境將會提升離子束蝕刻的品質。腔體內部是由渦卷幫浦(scroll pre-vacuum pump)與渦輪幫浦(Turbo Molecular Pump)維持真空度 $< 2.6 \times 10^{-6}$ mbar。

(3) 離子/電子柱(ion/electron column)

離子/電子柱是由眾多精密的透鏡與控制器所組成(請參考圖 2-2)[1]，主要的元件是

- i. 離子電子源(ion/electron source):提供離子或電子進入腔體中。
- ii. 透鏡系統(Lens system):所使用的透鏡為靜電透鏡，主要功能是進行聚焦。
- iii. 變流開關(Deflection system):量測離子束大小。
- iv. 聚焦透鏡(Final lens):調整離子束的焦點。
- v. 偵測站(Detection):偵測二次粒子訊號，了解切割狀況。

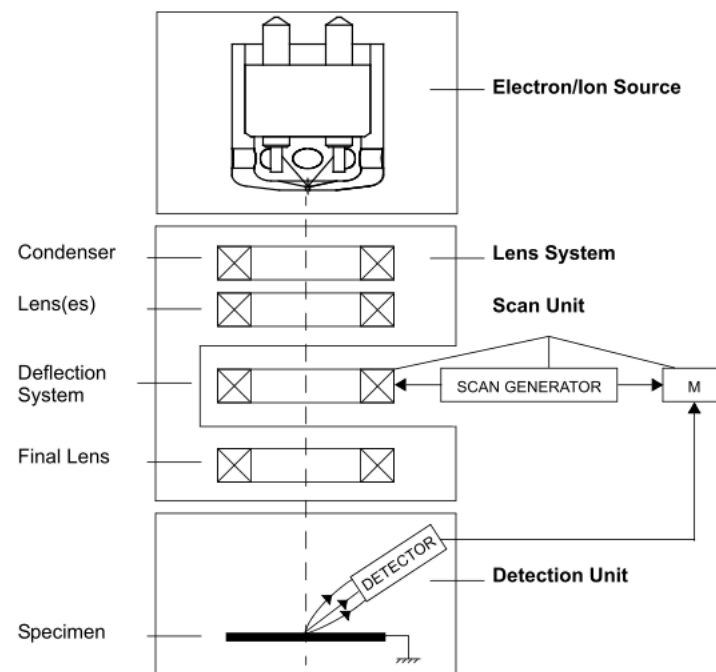


圖 2-2: 離子/電子柱示意圖。[1]

(4) 液態金屬離子源(liquid metal ion source):

由於鎢離子具有熔點低($T_{mp} = 29.8^{\circ}\text{C}$)與揮發性低等優點，因此成為目前常見的液態金屬離子源，此外鎢離子還具有低的表面自由能，可以促進與鎢鎢熱線的黏性。良好的抗氧化性能使鎢離子在腔體中維持好品質並延長使用期限。

(5) 五軸電動載台(5-axes motorized stage):

高精準度的電動載台除了可以進行 xyz 三軸平移外，還可以進行 54° 的傾斜與 360° 的旋轉。其中在 xy 軸方向可以移動 150 mm 的行動，z 軸方向可以移動 10 mm。



(6) 偵測器(Detection and CCD):

偵測器除了可以分析二次粒子並形成影像外，此聚焦離子束蝕刻系統還設有一般攝影機，可以隨時監控載台與離子柱的相對距離。

聚焦離子束系統另一項優點是能快速地進行結構加工，透過高解析能力的場發式電子顯微鏡(field-emission scanning electron microscopy)影像，使用者能立即修正加工參數，大幅縮短樣品的製程時間。修正參數的過程就如圖 2-3 所示，圖 2-是利用聚焦離子束在厚度為 50 nm 的金屬薄膜上測試劑量的 SEM 影像圖，使用的電流為 28 pA。當劑量為 $4 \text{ mC}/\mu\text{m}^2$ 時，從 SEM 影像圖可以觀察到大部分的金膜皆未被完全蝕刻，因此結構表面還殘留著剩餘的金；隨著劑量向上提升，結構表面殘留的金越來越少。當劑量提升到 $10 \text{ mC}/\mu\text{m}^2$ 時，從 SEM 影像中觀察到金膜被完全蝕刻，製作出完整的奈米柱負結構。藉由此測試可以快速找到適合製作超穎結構的參數，減少製成失誤的機會，因此在加工前的測試是製程中非常重要的一環。

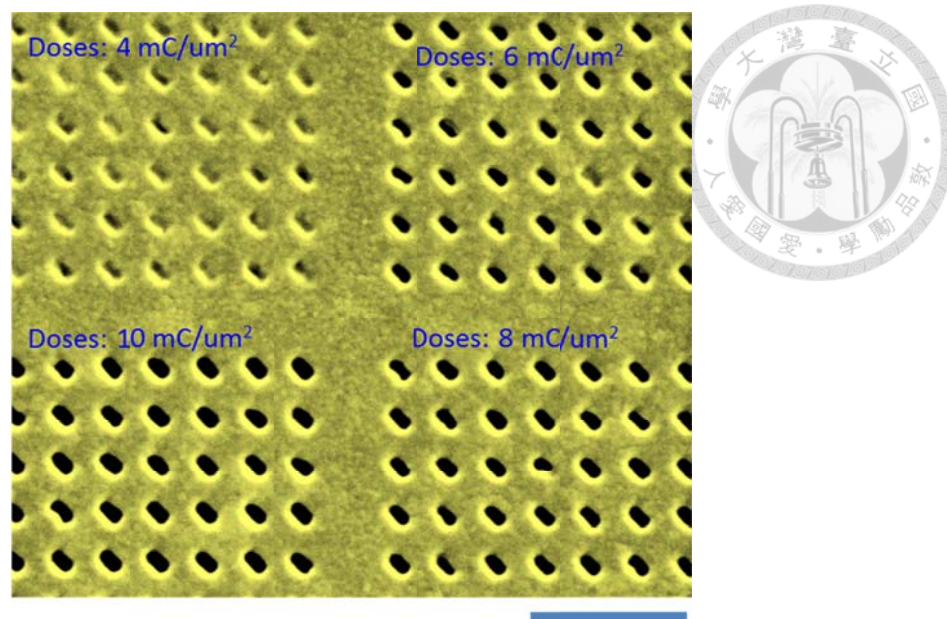


圖 2-3: 不同劑量(doses)下的柱狀結構 SEM 圖，藍色比例尺為 1 μ m。

2-3 光學量測系統

在製備完樣品後，接著進行光學分析，本論文所使用的傅氏影像顯微鏡 (Fourier-based imaging spectroscopy) 分為兩個模式，分別是亮場穿透光譜分析與暗場散射分析。此顯微鏡分別由商用影像光譜儀 (SpectraCube by Applied Spectral Imaging, Haifa, Israel) 與顯微鏡 (AxioImager Z1.m by Zeiss, Oberkochen, Germany) 所組成。第一個模式是亮場穿透光譜量測，量測示意圖如圖 2-4 所示。圖中的紅色箭頭是入射光入射到樣品的路徑圖，白光從燈源出射後經過線偏振片後入射進樣品。

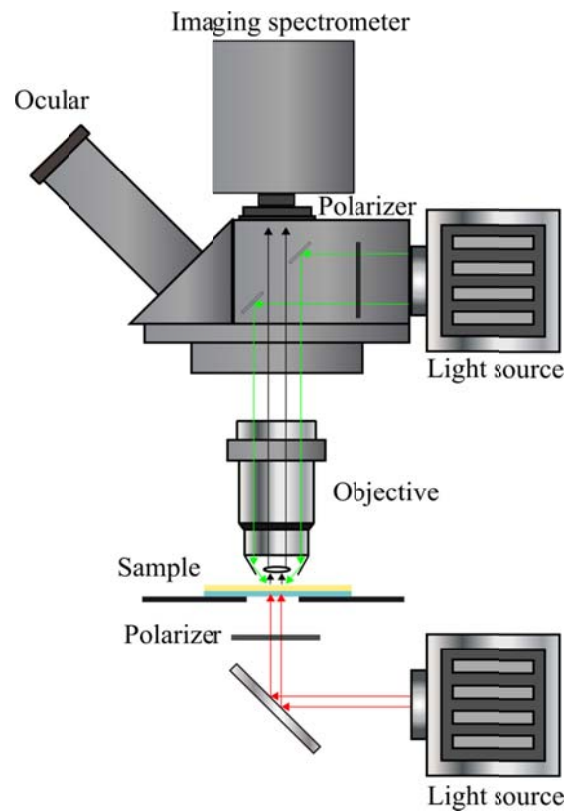


圖 2-4: 亮場穿透光譜量測系統示意圖。

第二種模式是暗場散射光分析，架構示意圖如圖 2-5 所示。圖中藍色箭頭代表入射至樣品的入射光，所使用的物鏡倍率是 100X (LD EC Epiplan-Neofluar 100x/0.75 HD DIC M27 by Zeiss, Oberkochen, Germany)，入射光入射樣品的平均的角度為 61° 。圖中的紅色箭頭是被物鏡所接收的散射光，從示意圖中可以知道，被物鏡所接收的散射訊號是不包含入射光的背景雜訊，比起亮場量測，暗場量測能更完美的呈現漿子共振散射訊號。

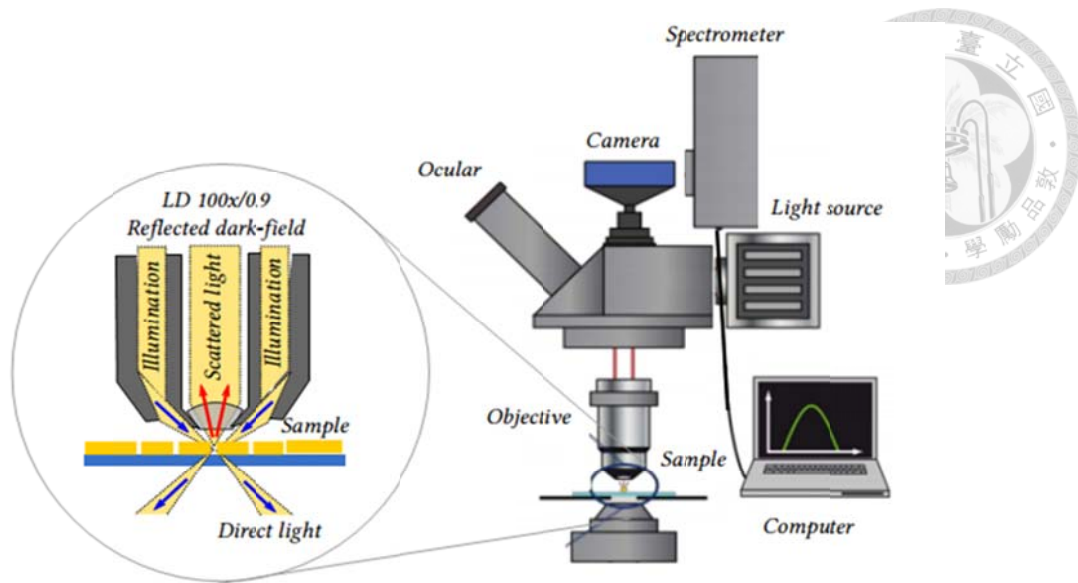


圖 2-5: 暗場反射量測系統示意圖。

2-4 數值模擬計算

2-4.1 杜德-羅倫茲模型(Drude-Lorentz model)

當金屬感應到外加的電磁場時，金屬的自由電子主導了金屬的光學性質，因此金屬的光學性質可以藉由杜德模型(Drude model)進行分析[3]。在不考慮電子間交互作用下，單一自由電子受外加電場 \vec{E} 作用時，電子的運動方程式可以表示為：

$$m \frac{d^2 \vec{x}}{dt^2} + m\gamma \frac{d\vec{x}}{dt} = -e\vec{E} \quad (2.4.1)$$

其中 m 是電子的等效光學質量， \vec{x} 是自由電子隨時變的位移函數， γ 為阻尼係數， e 為電子的帶電量。假若外加電場是隨時變的簡協場 $\vec{E}(t) = \vec{E}_0 e^{-i\omega t}$ ，則可以求得解：

$$\bar{x}(t) = \frac{e}{m(\omega^2 + i\gamma\omega)} \bar{E}(t) \quad (2.4.2)$$

接著將金屬內部極化量 $\bar{P} = -ne\bar{x}$ 帶入(2.4.2)後可以得到:

$$\bar{P} = -\frac{ne^2}{m(\omega^2 + i\gamma\omega)} \bar{E}(t) \quad (2.4.3)$$

接著導入電位移與電場的關係試 $\bar{D} = \epsilon_0 \bar{E} + \bar{P}$ 後，可以得到:

$$\bar{D}(t) = \epsilon_0 \left(1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega}\right) \bar{E}(t) \quad (2.4.4)$$

其中， $\omega_p^2 = \frac{ne^2}{\epsilon_0 m}$ 為電漿頻率(plasma frequency)，因此可以得到自由電子的介電函

數:

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} = \epsilon_1(\omega) + i\epsilon_2(\omega) \quad (2.4.5)$$

上式即為杜德模型，其中實部與虛部分別表示成:

$$\epsilon_1(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \gamma^2} \quad (2.4.6)$$

$$\epsilon_2(\omega) = \frac{\omega_p^2 \gamma}{\omega(\omega^2 + \gamma^2)} \quad (2.4.7)$$

其中 $\gamma = \frac{1}{\tau}$ 為自由電子的碰撞頻率(collision frequency)，而 τ 為自由電子碰撞時間。

當入射光頻率小於電漿頻率時，金屬便保持著本身的金屬特性，當頻率接近電漿頻率時，損耗項可以忽略不計，因此可以改寫成:

$$\epsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \quad (2.4.8)$$

在很廣的電磁波頻率中，此模型對於鹼金屬的最高頻率適用可以擴展製紫外光；而對貴金屬而言，在可見光波段存在著兩個不同能帶的躍遷，因此限制了此模型的適用範圍。另一方面，杜德模型只描述金屬內部自由電子的運動狀態，而



未考慮到金屬內部有束縛電子。為了修正此誤差，勞倫茲(Lorentz)項在此被引入杜德模型中，及杜德勞倫茲模型(Drude-Lorentz model)[4]:

$$\varepsilon(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\gamma\omega} + \sum_{m=1}^3 \frac{f_m \omega_m^2}{\omega_m^2 - \omega^2 - i\gamma_m \omega} \quad (2.4.9)$$

其中 $\sum_{m=1}^3 \frac{f_m \omega_m^2}{\omega_m^2 - \omega^2 - i\gamma_m \omega}$ 為勞倫茲項，與杜德模型做比較杜德勞倫茲模型多了束縛力的貢獻。

在本文的模擬計算中，金屬的介電系數是採用來描述，其中金的電漿頻率為 8.997 電子伏特[5]，而阻尼常數為 0.14 電子伏特[6]。

2-4.2 有限元素法(Finite-Element method)

有限元素法起源於 1941 年，當時首先用於航空工程與土木工程上[7,8]，有限元素法的概念是任何的連續量都可用一個不連續的函數做近似表示，也就是將連續性的物體分割成許多有限的網格(mesh)並利用網格進行計算，求解時需要讓網格上的解進行收斂去近似整體的答案，因此網格的數目也決定了答案的真實性。COMSOL Multiphysics 是建立於有限元素分析法的商用軟體[9]。在進行計算時，軟體會將我們所設計的複雜幾何結構進行網格切割，如圖 2-6(a)[10]所示，網格的邊界稱為節點(node)，每個節點都必須符合內插函數方程式(interpolation equation)，並求解所有網格的微分方程，其解必須為收斂，所得的解被稱為內插近似解(interpolation approximation)，在本文中所用到的函數方程式是求解電磁波用的三維全波馬克斯威爾方程式(Three-dimensional fullwave Maxwell's equations)。如前面所提到，由於有限元素分析法是利用近似法進行求解，因此網格的數目變成了計算值是否符合實際值的關鍵，在 COMSOL 軟體中，如何設定網格大小與密度變成了很重要的課題，過疏的網格往往會造成計算值與實際值差異過大，但

過密的網格卻會大幅增加數據的計算量，讓電腦無法負荷，勢必在解的準確性與電腦性能間取得一個平衡。此時 COMSOL 軟體中的部分網格加密功能就凸顯了優勢，如圖 2-6(b)[10]所示，我們可以選取較複雜的結構區域進行網格加密切割，此舉能讓計算值更趨近於實際值，而且也不會造成電腦過重的計算負荷。

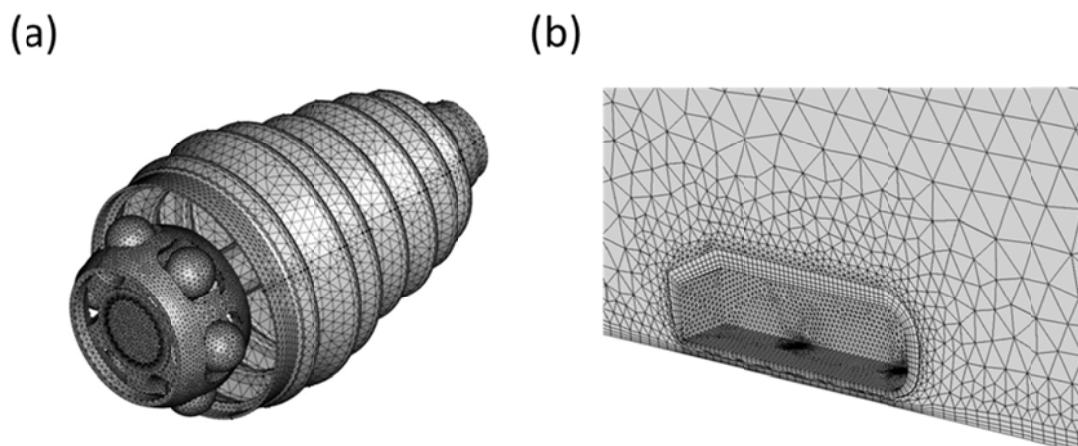


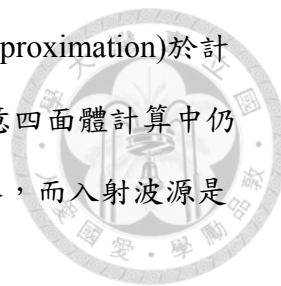
圖 2-6: (a)任意四面體進行網格切割，(b)部分區域進行網格加密切割。[10]

除了上述的網格外，結構外圍的邊界條件設定也是影響計算準確性的重要因素，在設定邊界條件時，必須考慮實際樣品的排列方式來決定使用何種邊界設定。在本文中，由於實際的結構具有規律的周期性排列，因此使用的是週期性邊界(periodic condition)，此設定是模擬無限重複的結構。

2-4.3 有限積分法(Finite-Integration technique)

有限積分法與有限元素法一樣都是利用網格來分割區域並進行求解，但不同於有限元素法，有限積分法是利用離散馬克斯威爾的積分進行計算，而非微分方程式。而接下來要介紹的另一套商業軟體 Computer Simulation Technology (CST) Microwave Studio 就是利用有限積分法來做運算的基礎[11]。有限積分法提供了一個空間辨認平面(Universal Spatial Discrimination)，並適用於高頻電磁場的計算。此外，CST 的網格系統是以卡笛耳座標系為基底，為了增加在複雜邊界的精

確度，CST 軟體引進了完美邊界近似技術(Perfect Boundary Approximation)於計算中，並保持卡笛耳座標系的計算優勢，同時在比較複雜的任意四面體計算中仍然能維持準確性。在利用 CST 作運算時，我們使用週期性邊界，而入射波源是平面波。



2-5 參考資料

- [1] 圖片來源: Helios 660 NanoLab FESEM/FIB dual beams 使用者手冊
- [2] 圖片來源: <http://www.2spi.com/catalog/grids/silicon-nitride.php>
- [3] P. Drude, C. Riborg Mann, The Theory Of Optics, Longmans, Green, and Company (1902).
- [4] Aleksandar D. Rakic, Aleksandra B. Djurišić, Jovan M. Elazar, and Marian L., Majewski, Optical Properties of Metallic Films for Vertical-Cavity Optoelectronic Devices, Applied Optics 37(22), 5271-5283(1998).
- [5] Z. Liu, A. Boltasseva, R. H. Pedersen, R. Bakker, A. V. Kildishev, V. P. Drachev, and V. M. Shalaev, "Plasmonic nanoantenna arrays for the visible," Metamaterials 2, 45-51 (2008).
- [6] P. B. Johnson and R. W. Christy, "Optical-constants of noble-metals," Phys. Rev. B 6(12), 4370–4379 (1972).
- [7] A. Hrennikoff, Solution of Problems of Elasticity by the Frame-Work Method, ASME J. Appl. Mech. 8, A619–A715 (1941).
- [8] Woon Siong Gan. Acoustical Imaging: Techniques and Applications for Engineers, John Wiley & Sons (2012).
- [9] 資料來源: COMSOL Multiphysics 使用者手冊
- [10] 圖片來源: 皮托科技
- [11] 資料來源: CST GmbH, Germany. www.cst.de

第三章:直立式電漿子超穎介面



3-1 前言

拜近年來科學發展的進步所賜，使得製程技術有突破式的飛進，為了滿足人們對更輕薄，更高效能，更小尺寸的需求，奈米科技因應而生，讓各種光學、電子元件達到更小尺寸的需求，其中超穎介面就是一個很好的例子。超穎介面擁有高效率、輕薄、寬頻工作波段與自然界所沒有的光調控能力等優勢，未來在光學元件上擁有很高的應用價值[1-18]。在 2011 年，Capasso 團隊提出了具有調製光的能力的超穎介面(如圖 3-1 所示)[10]，圖 3-1(a)是超穎介面的 SEM 圖，圖 3-1(b)與(c)是分別在 x 與 y 偏振光的激發下所得到的遠場折射圖，此超穎介面能讓入射光異常折射。

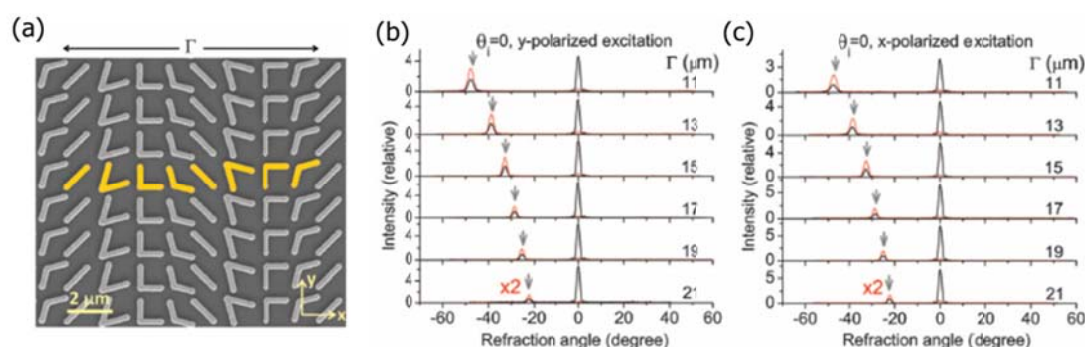


圖 3-1:(a)超穎介面的 SEM 圖。超穎介面在(b)y 偏振光與(c)x 偏振光下的遠場折射圖。[10]

在 2012 年，Sun 等人發表了由奈米金屬棒所組成的超高效率的異常反射超穎介面[11]，後來陸續有許多團隊也陸續發表優化的超穎介面，讓金屬奈米棒所組成的超穎介面成為研究的主流。在 2014 年，Huang 等人發表了用銀奈米棒所製作的超穎介面[12]，結構示意圖如圖 3-2(a)所示，圖 3-2(b)是該超穎介面的遠場反射工作圖，該超穎介面具有將正向入射光異常反射至 50° 的能力。上述幾個例

子，由於結構長短不一，讓超穎介面有許多區域都沒被結構覆蓋，無法調製入射光，從圖 3-1(b)、(c)與圖 3-2(b)皆可觀察出不佳的訊雜比。

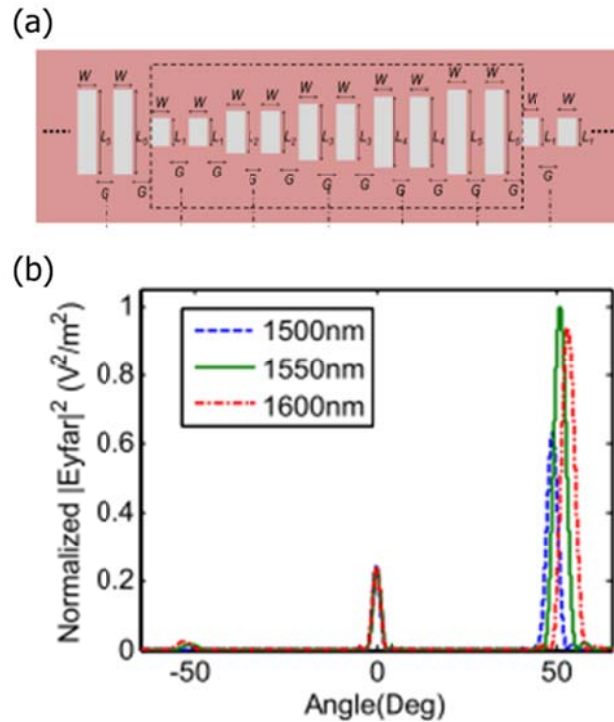


圖 3-2:(a)銀金屬棒超穎介面的示意圖。(b)超穎介面在不同波長下的遠場反射圖。

[12]

3-2 研究動機

截至目前為止，超穎表面的相位與反射穿透強度都是在 x-y 平面上做調控，為了達到 2π 的相位調控，金屬奈米棒需要有一定的大小，因此難以讓超穎介面的尺寸縮小，此外，不佳的訊雜比也需要藉由提高結構密度來改善。在 2011 年，我們團隊發展出直立式的裂環共振器[19-21]，相關模擬結果如圖 3-3 (a)，(b)所示，圖 a 是改變底部棒狀結構的長度 L_1 (此時手臂高度 H_2 固定)結果，可以發現共振位置隨著棒狀結構長度的增加而紅移，這表示藉由調整 L_1 的長度，我們便能調整裂環共振器的共振位置。圖 b 是改變裂環共振器的手臂高度 H_2 ，隨著手臂長度增加，共振位置會紅移。我們發現直立式裂環共振器的共振不僅與底部

棒狀結構有關，我們還發現不同的手臂長度也能調整裂環共振器的共振位置，因此我們結合直立式裂環共振器與超穎介面，不僅能在 x - y 平面上調整超穎介面的相位與反射率，還能在 z 方向上進行調控，因此這種設計將能使整體超穎介面的尺度變得更小，大幅增加超穎介面的密度，並期望能改善訊雜比不佳的現象。此外，這種三維結構也能利用電子束微影製成的多次曝光技術來達成，如圖(c)(d)所示。

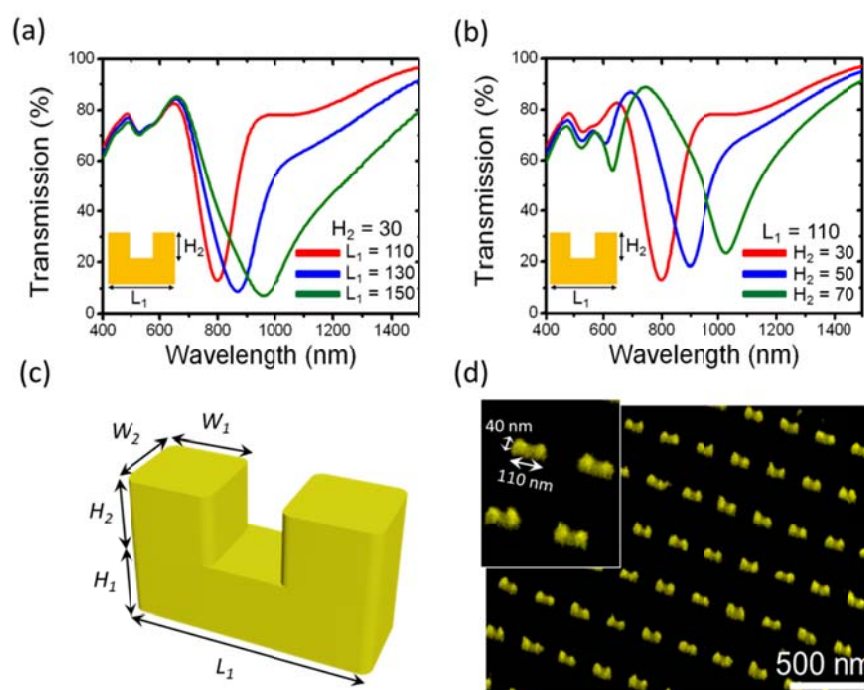
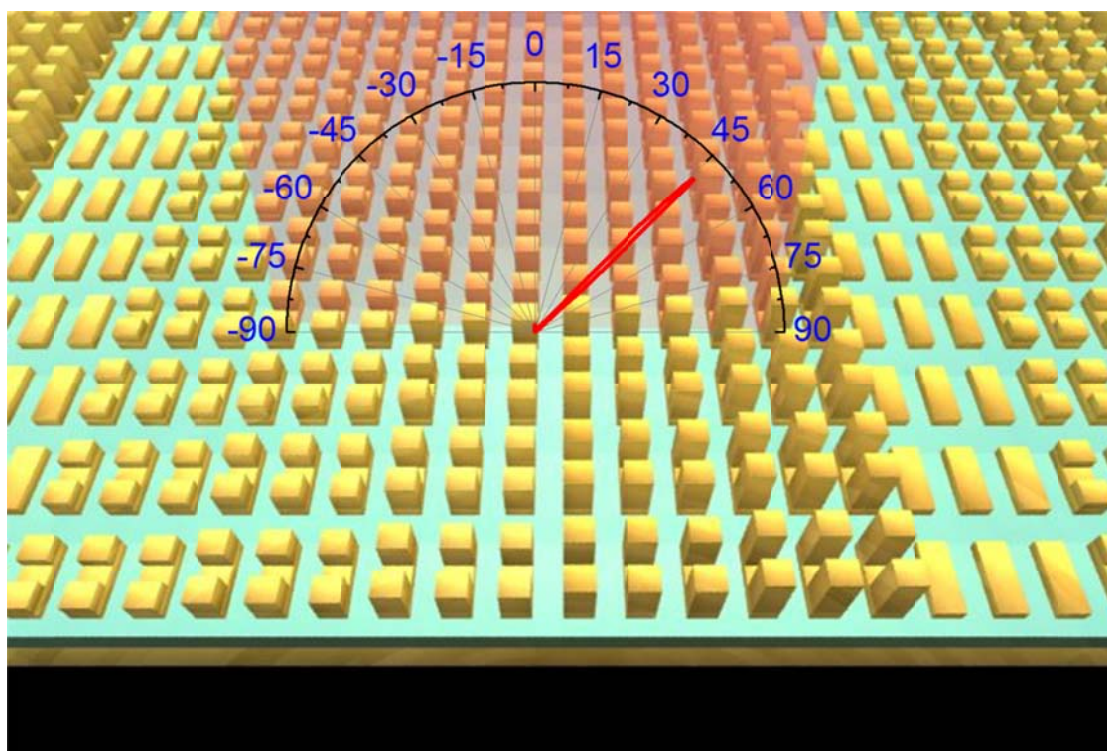


圖 3-3:(a)直立式裂環共振器在不同 L_1 下的模擬穿透光譜圖，(b) 直立式裂環共振器在不同手臂長度下的模擬穿透光譜圖，(c)直立式裂環共振器示意圖，其中 $W_1=W_2=40$ nm、 $L_1=110$ nm、 $H_1=30$ nm、 $H_2=30$ nm，(d)直立式裂環共振器陣列之 SEM 圖[19]。

3-3 結構設計

在章節中，我們設計一個具有高指向性，高訊雜比與高密度且能在通訊波段

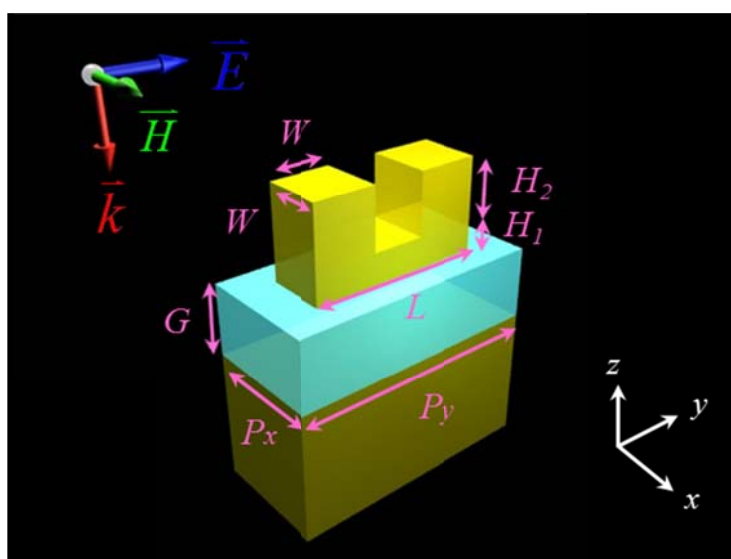
1548nm 工作的超穎介面[22]。圖 3-4 是直立式裂環共振器超穎介面的工作示意圖，如圖 3-4 中所示，我們設計的是一個六階的超穎表面，這代表的著此超穎介面是由六種不同相位的裂環共振器所組成，當一道正向的偏振光入射到超穎介面上時，超穎表面能提供反射光一個額外的動量讓反射光以 45 度角出射。藉由改變直立式裂環共振器的手臂長度，我們能設計出具有不同相位的裂環共振器。



圖片 3-4: 直立式裂環共振器超穎介面示意圖。

我們先模擬單一個直立式裂環共振器的反射率與相位，設計的結構如圖 3-5 所示，金屬-介電質-金屬的單一結構由上而下分別是直立式裂環共振器，一層介電質與一層金膜反射鏡所構成，其中裂環共振器的尺寸參數是 $W=60\text{ nm}$ 、 $L=170\text{ nm}$ 、 $H_1=30\text{ nm}$ 、 $P_x=120\text{ nm}$ 、 $P_y=250\text{ nm}$ ；金膜的厚度為 130 nm ，介電質是玻璃，厚度為 70 nm ，以上的結構參數都是固定的，在此唯一改變的參數是裂環共振器的手臂長度 H_2 。值得一提的是，裂環共振器的尺寸設計，是為了讓共振波段接

近我們所需要的光通訊波段，130 nm 厚的金膜能將入射光完全反射，讓超穎介面達告更高效率。如前面所介紹的，單一個金屬天線(直立式裂環共振器)是無法擁有 2π 的相位調製，因此需要借助金屬天線與反射鏡之間的耦合來達成 2π 的相位調製，在此，介電質的厚度變成了非常關鍵的參數，當介電質的厚度太厚時，金屬天線與金膜的耦合太弱，變無法達成 2π 的相位調製；當介電質厚度太薄時，金屬天線與金膜的耦合太強，使的反射率降低，讓超穎介面的效率跟著降低。

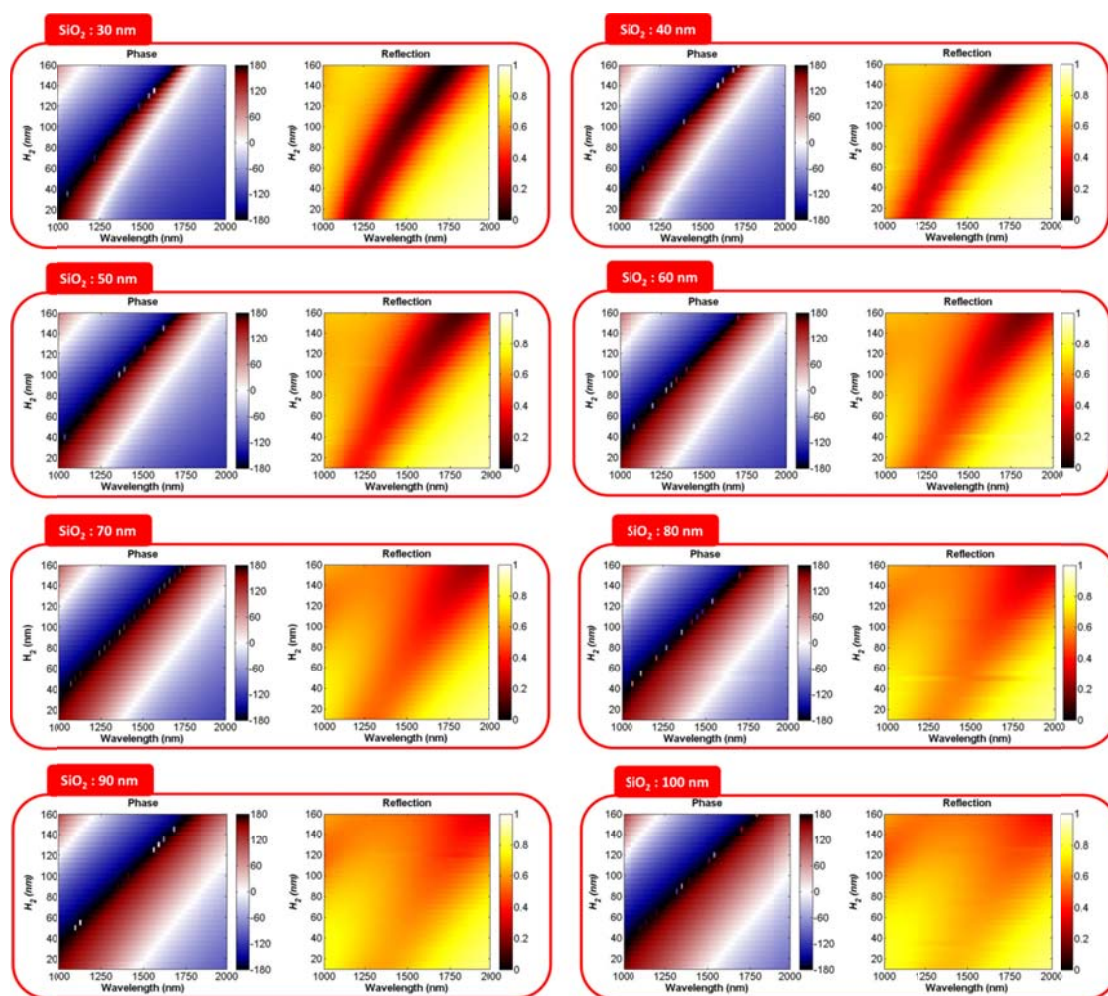


圖片 3-5: 單一直立式裂環共振器示意圖，其中 $W=60\text{ nm}$ 、 $L=170\text{ nm}$ 、 $H_1=30\text{ nm}$ 、 $P_x=120\text{ nm}$ 、 $P_y=250\text{ nm}$ 。

3-4 數值計算與分析

在入射光為 y 偏振的條件下，模擬了單一直立式裂環共振器在不同手臂長度 (H_2)與介電質厚度下的反射相位與反射光強度(如圖 3-6 所示)，圖中反射光強度是以紅色跟黃色的色塊來表達，紅色越深代表反射率越低，也代表更強的共振在該波段被激發。反射相位圖的顏色代表不同反射相位。上一段有提到在設計超穎介面時，介電質的厚度非常重要。當介電質的厚度為 30 nm 時，在入射光波長為

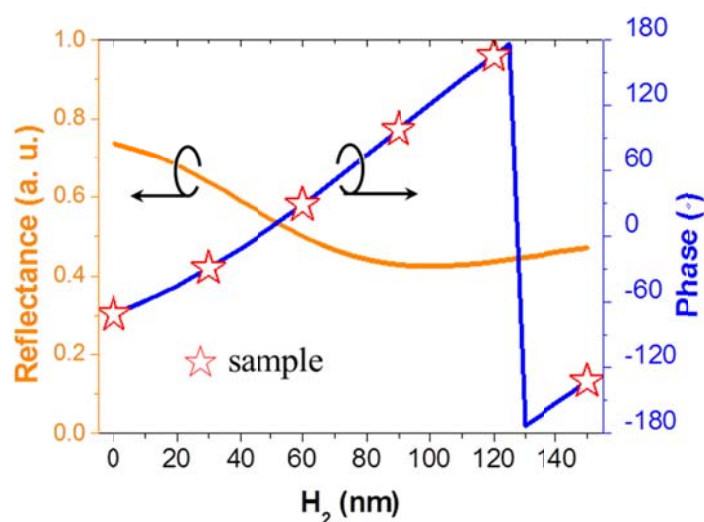
1548 nm 的條件下，相位調製可以達到 2π ，但由於金屬天線與金膜的耦合太強，使的反射率降低，這會讓超穎介面的效率跟著降低。隨著介電質厚度逐漸增加，讓金屬天線與金膜的耦合漸弱，因此可以從圖中觀察到，單一直立式裂環共振器的反射率逐漸增加，當介電質厚度大於 70 nm 時，相位調製已經無法達到 2π ，由於介電質厚度為 70 nm 時同時擁有 2π 的相位調製與最高的反射率，因此最適合用於設計超穎介面。



圖片 3-6: 單一裂環共振器在 y 偏振光下改變介電質(SiO_2)厚度與手臂長度(H_2)的反射強度及反射光相位圖。

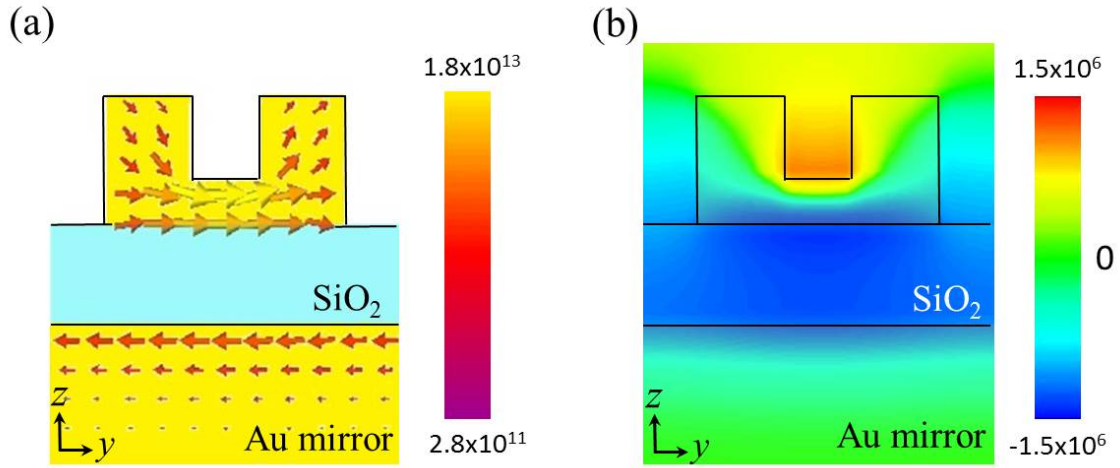
本文所設計的是能應用在光通訊波段之超穎介面，因此我們從圖 3-6 中選擇入射光波段為 1548 nm 並將不同手臂長度條件下的反射強度與相位整理成圖 3-7，

從圖中可以觀察到，所有手臂長度的裂環共振器之反射強度都在 40% 以上，表示設計出來的超穎表面能擁有較高的反射率，另外我們也特別挑選了六個不同的手臂長度，如圖中的紅色星星所示，挑選的手臂長度分別為 0、30、60、90、120、150 nm，其相位差皆約為 60 度，這六個手臂長度能涵蓋 2π 的相位調製。



圖片 3-7: 入射光為 1548 nm 下不同手臂長度之反射與相位圖，紅色星星是挑選後的手臂長度。

進一步分析當入射光為 1548nm 時，直立式裂環共振器單一結構之共振模態，圖 3-8 (a) 是直立式裂環共振器(手臂長度為 60nm)的電流密度圖，裂環共振器在入射光的激發下，會誘發一個環型電流，而裂環共振器底部棒狀結構亦會在金屬反射鏡上誘發一個反向電流。圖 3-8 (b)是 x 分量的磁場分布圖，可以觀察到裂環共振器的環型電流在手臂之間產生一個磁偶共振，而金反射鏡與裂環共振器底部棒狀結構的反向電流也能誘發一個反向的磁偶共振，藉由這兩個磁偶極的耦合，直立式裂環共振器的相位調製能拓展到 2π 。根據圖 3-8 的計算結果，我們能說：在波長為 1548 nm 的共振是一個磁共振。



圖片 3-8:手臂長度 $H_2 = 60\text{nm}$ 的直立式裂環共振器在入射光為 1548nm 下(a)電流密度與(b)x 分量的磁場分布圖。

圖 3-9 是我們所設計的直立式裂環共振器超穎表面之單位結構，此單位結構由六種不同手臂長度共 18 個直立式裂環共振器所構成，由左到右的手臂長度分別是 30、60、90、120、150、0 nm，每種手臂長度各有三個裂環共振器，整體大小分別是 $L_x=2160\text{ nm}$ 、 $L_y=250\text{ nm}$ 。此單位結構之動量守恆可以表示成：

$$k_0 \sin \theta_r = k_0 \sin \theta_i + \xi,$$

上式也被稱為廣義的斯乃爾定律，其中 θ_i 是入射光角度， θ_r 是反射光的出射角，其中 ξ 是超穎介面提供的動量，經整理後可用 θ_r 表示成：

$$\theta_r = \sin^{-1}(\sin \theta_i + \xi / k_0), \quad \xi = 2\pi / L_x$$

又 $k_0=2\pi/\lambda$ ，其中 $\lambda=1548\text{ nm}$ ， L_x 是超穎介面單位結構的長度，進一步能推得：

$$\theta_r = \sin^{-1}(0.716) \approx 46^\circ$$

若以反射角為 $\theta_r=90^\circ$ 的條件進行計算，我們亦可推得入射的極限角為 $\theta_c \approx 16.5^\circ$ 。

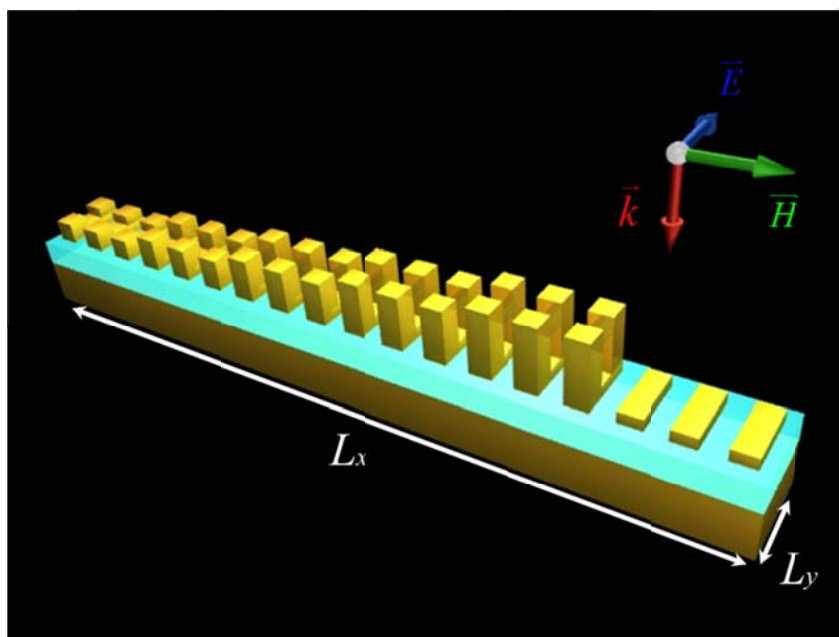


圖 3-9: 直立式裂環共振器超穎介面之單位結構

根據廣義的斯乃爾公式，超穎介面之單位結構長度 L_x 能調製反射光的出射角 θ_r ，因此單位結構長度是決定出射角的重要參數，我們設計的六階超穎介面有六種手臂長度，為了讓結構長度能達到 2160 nm，每種長度須由三個相同結構所構成。反射的相位分布示意圖如圖 3-10 所示，圖 3-10 (a) 是由 18 個裂環共振器組成，這樣的設計能讓超穎介面的效率提升。圖 3-10 (b) 是由 6 個裂環共振器組成(結構長度仍是 2160 nm)的單位結構，當入射光入射在沒有直立式裂環共振器的區域時，金屬反射鏡會直接反射入射光，而反射光會有 180° 的相位變化，從圖中可以觀察到超穎介面的相位調製不是梯度變化，這會造成超穎介面的光調製力變弱。在這裡也可以設計更高階數的超穎介面，當階數越高，超穎介面對於入射光的調製能力會越好，但是相對的，在製作上的難度也會跟著提升。

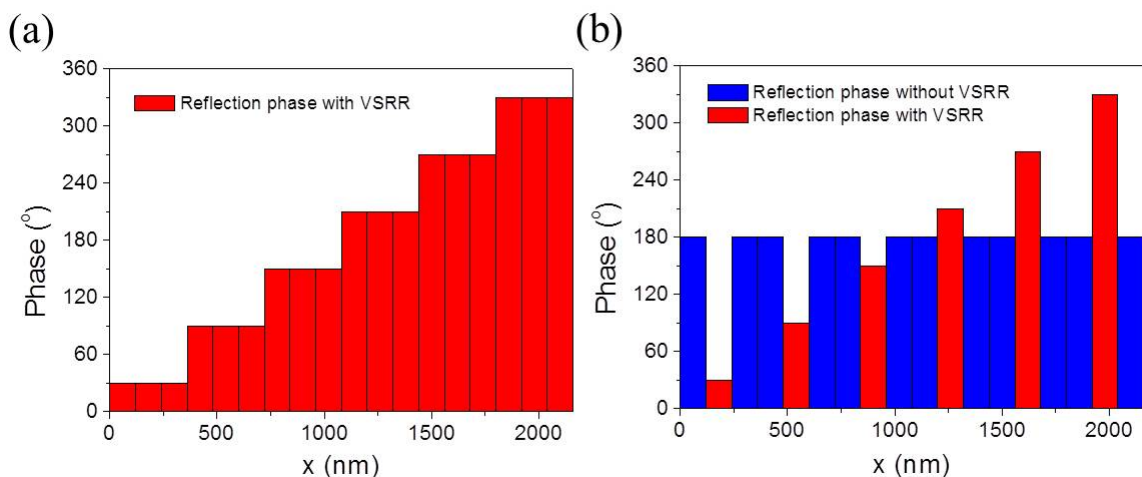


圖 3-10: (a)18 個與(b)6 個直立式裂環共振器組成的單位結構之相位分佈示意圖

圖 3-11 (a)是模擬的遠場散射圖，從圖中可以發現，當入射角度為 0° 時散射的出射角為 46° ，此結果符合廣義的斯乃爾公式的預測，當入射角越來越大時，可以觀察到反射角也越來越大。值得注意的是，在同一個入射角度下，可以觀察到兩個遠場反射訊號，第一個微弱的反射訊號出現在小角度，此反射訊號是來自於入射光未被超穎介面所調製的反射光，也就是鏡像反射光，此反射光遵守傳統的斯乃爾定律；第二個強反射訊號出現在大角度的位置，此訊號是由直立式電漿子超穎介面調控得到的異常反射光，其遵守廣義斯乃爾定律。在入射角為 0° 的例子中，經調製的反射訊號強度比未經調製的反射訊號強度還要高 31 倍，這表示我們所設計的超穎介面具有很高的訊雜比。為了進一步驗證數值模擬分析結果與廣義的斯乃爾公式的預測是否相符，圖 3-11 (b)描繪了兩者的結果比較圖，在不同入射角度下，數值模擬分析非常符合廣義的斯乃爾公式的預測。在圖 3-11 中還可以觀察到另一個有趣的現象，那就是當入射角度為 20° 時(此角度已經超過入射的極限角 θ_c)，從數值分析結果中並沒有觀察到異常反射訊號，因此我們推測在 20° 的入射角條件下，所有的平面波都被轉換成表面波並在結構表面上進行傳遞。

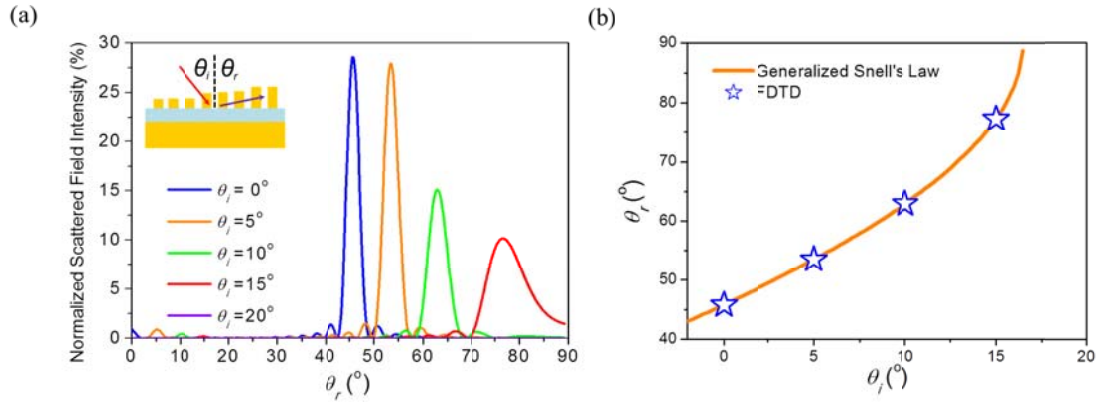


圖 3-11: (a)超穎表面在不同入射光角度下的遠場散射圖，插圖為入射角與出射角之示意圖，(b)數值模擬分析與廣義斯乃爾定律的計算結果比較圖。

為了證實此推測，我們繪製了 y 方向偏振電場的場型圖，圖 3-12(a)是入射光為 0° 時的電場場型圖，從圖中可以看見反射光的波前以 46° 出射，而當入射角度為 20° 時(圖 3-12(b))可以觀察到 y 方向的電廠被侷限在結構表面，因此比起 0° 入射結果還擁有更強的電場，從此模擬結果也可以應證我們的推測。

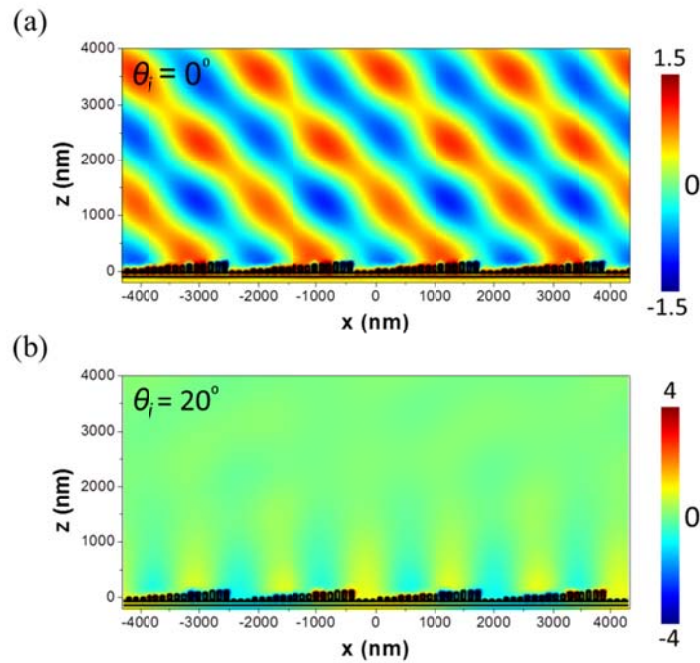


圖 3-12:在入射角為(a) 0° 與(b) 20° 時的 y 方向偏振電場場型圖

筆者也設計的一個具有相同異常反射功能金屬棒超穎介面，此超穎介面能在通訊波段 1548nm 下工作。單一個金屬棒的結構如圖 3-13 (a)所示，此結構也是由金屬-介電質-金屬構成，由上而下分別是金屬棒，一層玻璃介電質與一層金膜反射鏡，其中金屬棒的尺寸參數是 $W=60\text{ nm}$ 、 $H_1=30\text{ nm}$ 、 $P_x=120\text{ nm}$ 、 $P_y=480\text{ nm}$ ；金膜的厚度為 130 nm ，玻璃的厚度為 70 nm ，以上的結構參數都是固定的，在此唯一改變的參數是金屬棒長度 L_r 。圖 3-13 (b)是金屬棒在不同長度下的相位，根據此相位圖，筆者挑選了六個不同金屬棒長度，組成六階金屬棒超穎介面。圖 3-13 (c)是金屬棒超穎介面與直立式裂環共振器超穎介面的尺寸比較圖，金屬棒超穎介面所占的面積(footprint)是 $480\text{ nm}\times 2160\text{ nm}$ ，而直立式裂環共振器超穎介面所占的面積是 $250\text{ nm}\times 2160\text{ nm}$ ，這意味著比起傳統的金屬棒超穎介面，直立式裂環共振器超穎介面縮小了將近一半的面積，換句話說，直立式裂環共振器超穎介面具有高密度的特性。

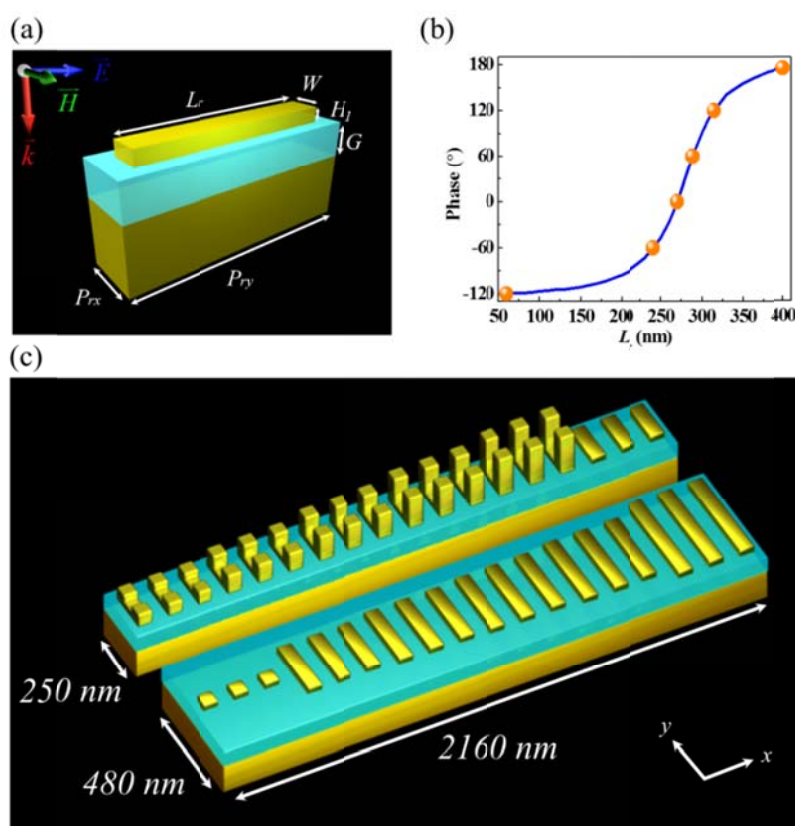
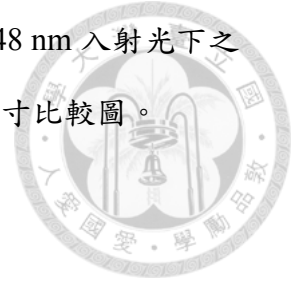


圖 3-13: (a)金屬棒超穎介面之單一結構示意圖，其中 $W=60\text{ nm}$ 、 $H_1=30\text{ nm}$ 、 G

= 70 nm、 $P_x=120$ nm、 $P_y=480$ nm，(b)不同長度的奈米棒在 1548 nm 入射光下之相位圖，(c)直立式裂環共振器超穎介面與金屬棒超穎介面之尺寸比較圖。



3-5 本章結論

本章以設計全新型態的超穎介面為主軸，並將三維直立式裂環共振器引入超穎介面系統中，增加 z 方向的調整參數，突破傳統超穎表面只能在二維平面調整反射率與相位的限制，讓超穎介面能達到更小尺寸。經模擬計算後挑選六種不同手臂長度的裂環共振器並組成六階的梯度式超穎介面，此超穎介面能在光通訊波段 1548 nm 下工作，根據模擬結果，在正向入射光下，此超穎介面擁有很好的反射光指向性與很高的訊雜比，能將正向反射光調製到反射角度是 45° 。此外，超穎介面還能在不同角度的入射光下工作，最大工作角度是 16.5° ，當角度大於 16.5° 時，入射的平面波便會轉換成表面波並在結構表面傳遞。若與傳統的二維奈米棒超穎介面做比較，由直立式裂環共振器所組成的超穎介面可以省下將近 50% 的表面積，讓超穎介面的密度提升兩倍，因此在未來，此類型的超穎介面所製成的元件將具有高密度的特性。

3-6 參考資料



- [1] Shalaev, V. M. Optical negative-index metamaterials. *Nat. Photon.* 1, 41-48 (2006).
- [2] Veselago, V. G. The electrodynamics of substances with simultaneously negative values of ϵ and μ . *Sov. Phys. Usp.* 10 509–514 (1968).
- [3] Cheng, B. H. et al. Photonic Bloch oscillations in multi-layered fishnet structure. *Plasmonics* 7, 215-220 (2012).
- [4] Cheng, B. H. et al. Breaking optical diffraction limitation using optical hybrid-super-hyperlens with radially polarized light. *Opt. Express* 21, 14898-14906 (2013).
- [5] Zhang, X. et al. Superlenses to overcome the diffraction limit. *Nat. Mater.* 7, 435, (2008).
- [6] Cheng, B. H. et al. Optical hybrid-superlens hyperlens for superresolution imaging. *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electron.* 19, 4601305 (2013).
- [7] Han, T. et al. Full Control and Manipulation of Heat Signatures: Cloaking, Camouflage and Thermal Metamaterials. *Adv. Mater.* 26, 1731-1734 (2014).
- [8] Pendry, J. B. et al. Controlling electromagnetic fields. *Science* 312, 1780 (2006).

[9] Murray, W. A. et al. Plasmonic Materials. *Adv. Mater.* 19, 3771-3782 (2007).

[10] Yu, N. et al. Light Propagation with Phase Discontinuities: Generalized Laws of Reflection and Refraction. *Science* 334, 333-337 (2011).

[11] Sun, S. et al. High-Efficiency Broadband Anomalous Reflection by Gradient Meta-Surfaces. *Nano Lett.* 12, 6223–6229 (2012).

[12] Huang, Y. et al. Phase-gradient gap-plasmon metasurface based blazed grating for real time dispersive imaging. *Appl. Phys. Lett.* 104, 161106 (2014).

[13] Sun, S. et al. Gradient-index meta-surfaces as a bridge linking propagating waves and surface waves. *Nat. Mater.* 11, 426-431 (2012).

[14] Wan, X. et al. A broadband transformation-optics metasurface lens. *Appl. Phys. Lett.* 104, 151601 (2014).

[15] Yu, N. et al. Flat optics with designer metasurfaces. *Nat. Mater.* 13,139-150 (2014).

[16] Aieta, F. et al. Out-of-Plane Reflection and Refraction of Light by Anisotropic Optical Antenna Metasurfaces with Phase Discontinuities. *Nano Lett.* 12, 1702–1706 (2012).

[17] Huang, L. et al. Three-dimensional optical holography using a plasmonic metasurface. *Nat. Commun.* 4, 1-8 (2013).

[18] Chen, W. T. et al. High-efficiency broadband meta-hologram with polarization-controlled dual images. Nano Lett. 14, 225-230 (2014)



[19] Chen, W. T. et al. Optical magnetic response in three-dimensional metamaterial of upright plasmonic meta-molecules. Opt. Express 19, 12837-12842 (2011).

[20] Wu, P. C. et al. Magnetic plasmon induced transparency in three-dimensional metamolecules. Nanophotonics 1, 131-138 (2012).

[21] Wu, P. C. et al. Vertical split-ring resonator based nanoplasmonic sensor. Appl. Phys. Lett. 105, 033105 (2014).

[22] Hsu, W.-L. et al. Vertical split-ring resonator based anomalous beam steering with high extinction ratio, Scientific Reports 5, 11226 (2015).

第四章：裂環共振器超穎介面之邊界發光效應探討與應用



4-1 前言

近年來，在各個團隊的努力下，人造超穎材料發展出了許多種能調製光的特性，這些特性在自然界中是沒有被發現的，如負折射(negative refraction)材料[1-3]、光控制[4-15]與環形矩(toroidal)等[16-18]，超穎材料甚至能突破傳統繞射極限並實現超解析(super-resolution)[19-22]的能力。超穎材料能有這些奇特的功能最主要是歸功於材料表面的金屬微結構上有局域表面電漿子共振(localized surface plasmonic resonances)[23]。被入射光激發的局域表面電漿子共振具有調控入射光的反射強度與相位偏移等能力，而超穎材料的奇特特性是藉由組合這些局域表面電漿子共振而形成的，因此，了解局域表面電漿子共振與金屬微結構間的關係便成了一個重要的議題。穿透、反射與吸收光譜等亮場(Bright-field)量測是最常用來探討局域表面電漿子共振的方式，此外，由於暗場(Dark-field)量測沒有入射光等背景訊號干擾，因此在近期也被用來分析局域表面電漿子共振的散射光，如圖4-1所示。



圖 4-1: 不同形狀與尺寸的金屬微結構在暗場下的散射訊號。[23]

隨著時間演進，人造超穎材料的光調製特性逐漸發展成具有應用性的元件，

如環形矩雷射、超解析透鏡、光學天線、超平透鏡、完美吸收體與超穎全相片等 (如圖 4-2 所示)，我們稱這些具有應用性功能的超穎材料為超穎介面。

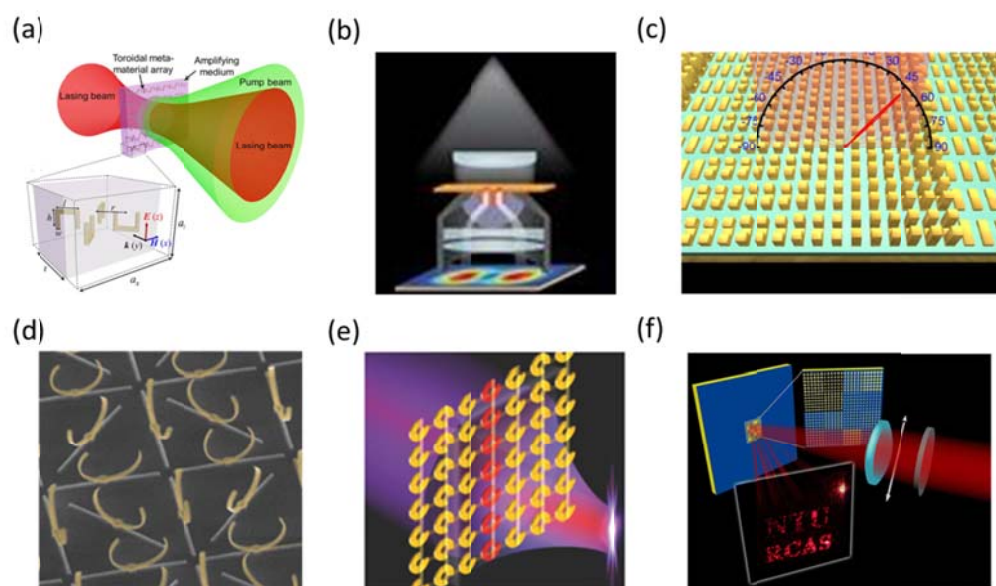


圖 4-2: (a)環形矩雷射、(b)超解析透鏡、(c)光學天線、(d)完美吸收體、(e)超平透鏡與(f)超穎全相片之示意圖[5, 10, 13, 18, 19, 24]

4-2 研究動機

截至目前為止，超穎介面的研究探討與工作能力皆是設計在亮場下，在暗場方面的應用還沒有被提出，據我們所知，藉由超穎介面非凡的工作能力，可以實現許多難以實現在暗場的光學應用，如光捕獲器等。因此我們利用裂環共振器結構設計一個可以在暗場下工作的超穎介面，藉由改變裂環共振器的週期大小，我們可以調控裂環共振器的發光分佈，製作只有邊緣發光的超穎介面。此超穎介面有機會能應用在暗場的光捕獲器上。

4-3 結構設計與樣品製備

在本章節中，我們設計一個能在暗場下進行邊界發光的超穎介面，如圖 4-3

所示，我們將其發光波段設計在可見光的紅光波段。此超穎介面是由一層金膜與玻璃基板所構成，金膜上刻了非對稱裂環共振器負結構。我們也藉由改變非對稱裂環共振器的週期大小來調製超穎介面的發光圖案。

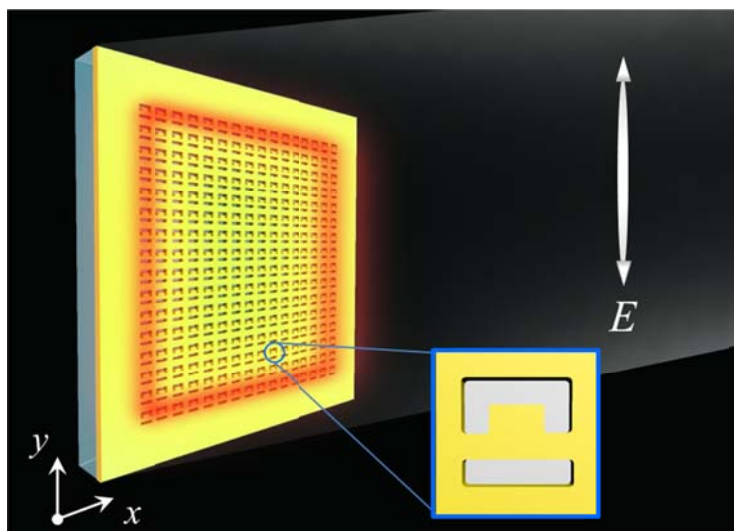


圖 4-3: 裂環共振器超穎介面示意圖。

首先設計單一個非對稱裂環共振器負結構，設計的結構如圖 4-4(a)所示，金屬-介電質的單一結構由上而下是由裂環共振器與玻璃所構成，其中裂環共振器的尺寸參數是 $W = 50 \text{ nm}$ 、 $L = 200 \text{ nm}$ 、 $H = 100 \text{ nm}$ 、 $G = 50 \text{ nm}$ 、 P 為週期尺寸，金膜的厚度為 $D = 50 \text{ nm}$ 。製作的流程是先利用熱蒸鍍系統在清潔後的玻璃基板上鍍上一層 50 nm 的金膜，接著再用離子束蝕刻系統(FIB, Helios Nanolab 660 DualBeam)刻寫裂環共振器負結構矩陣，矩陣共含 256 個裂環共振器，結構分佈為 16×16 個。此外，我們所設計的週期尺寸有兩種，分別是 300 nm 與 500 nm 。圖 4-4(b)是週期為 300 nm 的裂環共振器負結構電子顯微鏡圖，圖中的比例尺為 500 nm 。

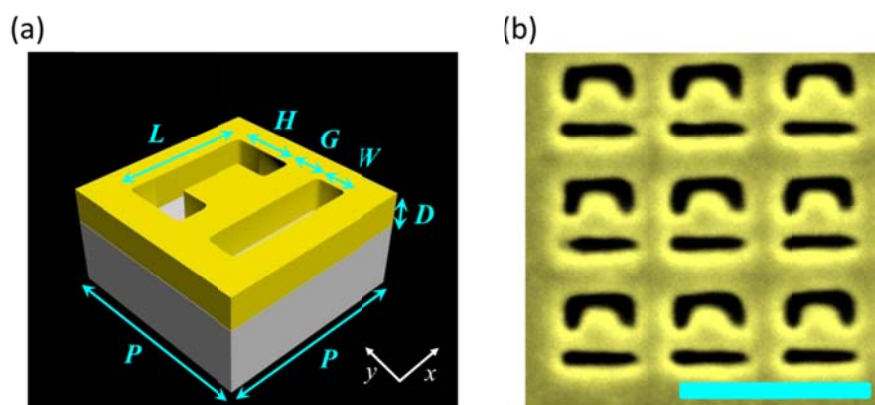


圖 4-4: (a)單一非對稱裂環共振器示意圖，其中 $W = 50 \text{ nm}$ 、 $L = 200 \text{ nm}$ 、 $H = 100 \text{ nm}$ 、 $G = 50 \text{ nm}$ 、 $D = 50 \text{ nm}$ 、 P 為週期尺寸。(b) $P = 300 \text{ nm}$ 的非對稱裂環共振器電子顯微鏡影像圖(SEM)其中，圖中的藍色比例尺為 500 nm 。

4-4 光學量測與數值模擬分析

$P = 300 \text{ nm}$ 的非對稱裂環共振器光譜量測如圖 4-5(a)所示，在圖中所有的模擬和量測都是在 Y 偏振光下進行，偏振方向與結構的關係如圖 4-5(a)的插圖所示。模擬所使用的邊界是週期性邊界，入射光為正向入射。從量測的穿透光譜中觀察到在波長約為 670 nm 時有個明顯的法諾共振訊號。模擬結果顯示法諾共振出現在 660 nm ，模擬結果與量測值相當符合，此外從模擬中也可以觀察到一個較強的吸收峰位於 660 nm 。為了進一步探討非對稱裂環共振器在法諾共振時的模態，我們繪製在波長為 660 nm 的磁場場型分佈圖(圖 4-5(b))，此時非對稱裂環共振器的共振模態為磁四極(quadrupole)，相較於磁偶極共振(dipole)，磁四極共振屬於高階共振模態，難以被正向入射光激發，而此磁四極是由結構與結構間的耦合所產生。

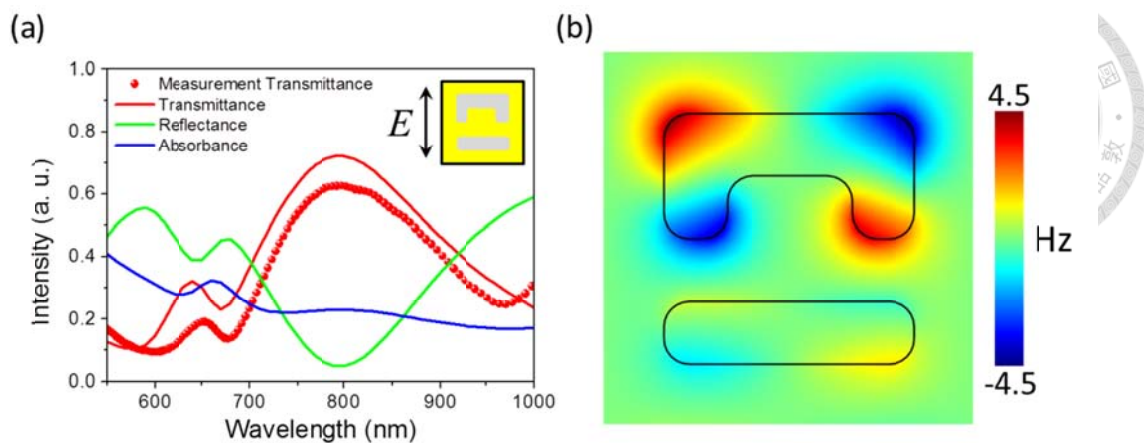


圖 4-5: (a)正向入射光下的量測與模擬光譜，(b) $P = 300$ nm 裂環共振器 z 分量之磁場分佈圖，激發波長為 660 nm。

由於暗場量測系統的入射光平均角度為 61° ，因此接下來的模擬所設定的入射光皆具有 61° 的入射角，偏振模態為 TE 模態。圖 4-6(a) 是週期 $P = 500$ nm 時的模擬光譜圖，一個強吸收峰位於 870 nm，此時非對稱裂環共振器的共振模態為磁偶極共振(如圖 4-6(c) 所示)。此外有另一個較小的吸收峰值位在波長為 710 nm，而共振模態為磁四極共振，此磁四極是由斜向入射光所激發。圖 4-6(b) 為週期 $P = 300$ nm 時的模擬光譜圖，在入射角度為 61° 的條件下非對稱裂環共振器仍然具有法諾共振，最強吸收峰位值於 760 nm，此時非對稱裂環共振器的共振模態為磁四極共振(如圖 4-6(d) 所示)。從磁場分佈圖中可以觀察到當週期為 500 nm 時，非對稱裂環共振器之間沒有耦合的現象。在週期為 300 nm 時，從磁場分佈圖中可以觀察到很強的耦合存在於結構與結構間。當週期為 500 nm 時，非對稱裂環共振器在入射光的激發下，在波長為 870 nm 時產生單體(isolate resonance)的磁偶極共振，而偶極共振的輻射(radiation)訊號在遠場被觀測到，在波長為 710 nm 時，可觀察到高階的共振模態；當週期縮小時，結構與鄰近結構間的耦合隨之增強，在週期為 300 nm 時，結構間存有很強的耦合，此耦合誘發了高階的磁四極共振，相較於偶極共振，四極共振擁有弱遠場輻射(weak-radiation)能力，因此在不易在遠場量測中被觀測到。四極共振是由鄰近結構的耦合所誘發，因此在矩陣結構最

外圍的非對稱裂環共振器無法被誘發四極共振，因此可以被觀察到遠場輻射訊號。

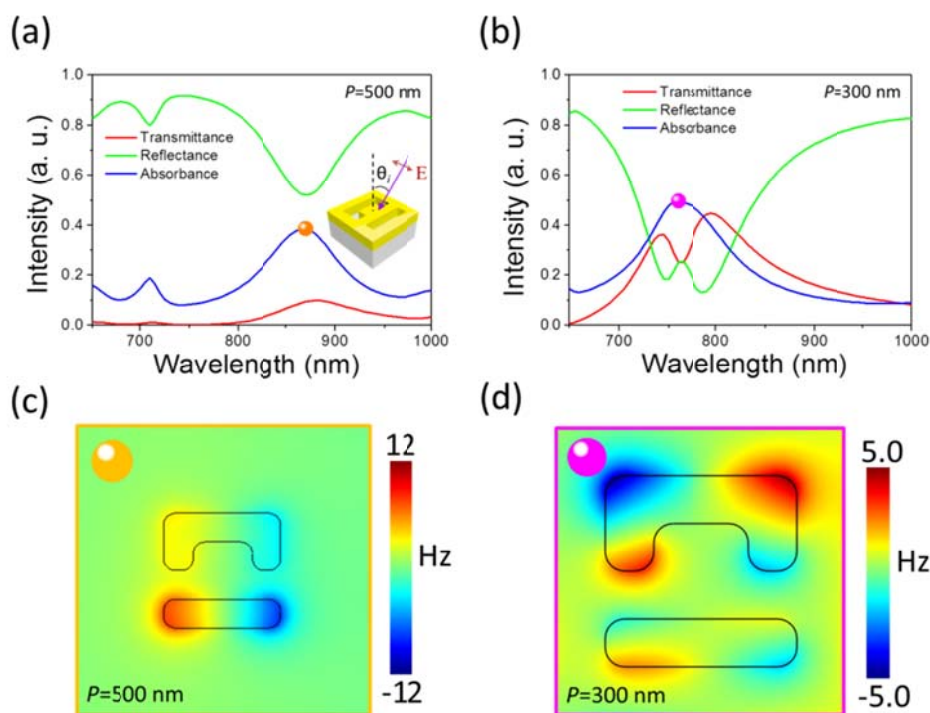


圖 4-6: 週期為(a) $P = 500 \text{ nm}$ 與(b) $P = 300 \text{ nm}$ 在 y 偏振下的模擬光譜，此時的入射角為 61° ，偏振模態為 TE 模態。(c)週期 $P = 500 \text{ nm}$ 的裂環共振器在激發波長為 870 nm 時的 z 分量之磁場分佈圖。(d)週期 $P = 300 \text{ nm}$ 的裂環共振器在激發波長為 760 nm 時的 z 分量之磁場分佈圖。

在暗場的量測中，入射光具有 TE 與 TM 兩種模態，因此我們模擬了週期為 500 nm 與 300 nm 在 TM 模態下的光學性質(如圖 4-7 所示)，在與圖 4-6 的結果比較後，可以發現不論在 TE 或 TM 模態下，非對稱裂環共振器的共振波段不變，但 TM 模態的共振強度較 TE 模態小，這是由於激發裂環共振器的電場強度在 TM 模態下須考慮電場在 y 方向的投影分量，因此入射光的電場強度較 TE 模態小。

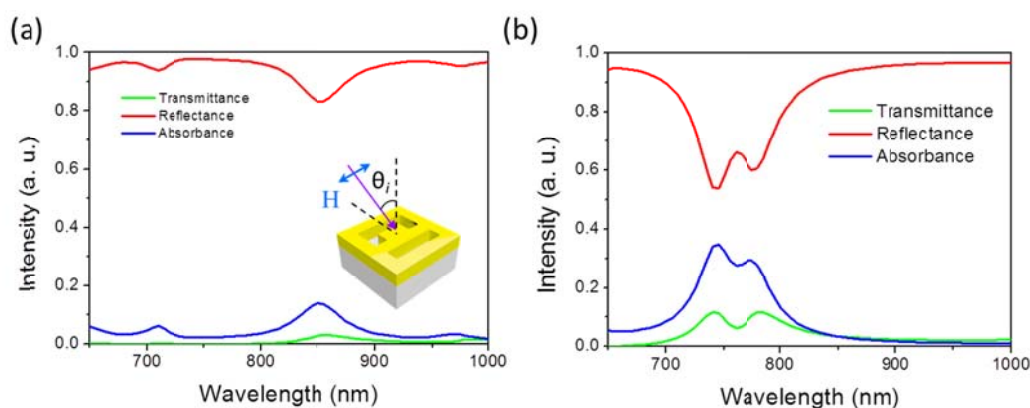


圖 4-7:週期為(a) $P = 500$ nm 與(b) $P = 300$ nm 在 y 偏振下的模擬光譜，此時的入射角為 61° ，偏振模態為 TM 模態。

圖 4-8(a)是週期 $P = 500$ nm 非對稱裂環共振器矩陣的暗場影像圖，量測時所使用的是白光光源，影像顯示所有的結構都在發光。圖 4-8(b)是週期為 300 nm 非對稱裂環共振器矩陣的暗場影像圖，從影像中可以明顯地觀察到只有矩陣的邊界有散射訊號，此結果也與我們之前的預測相符。

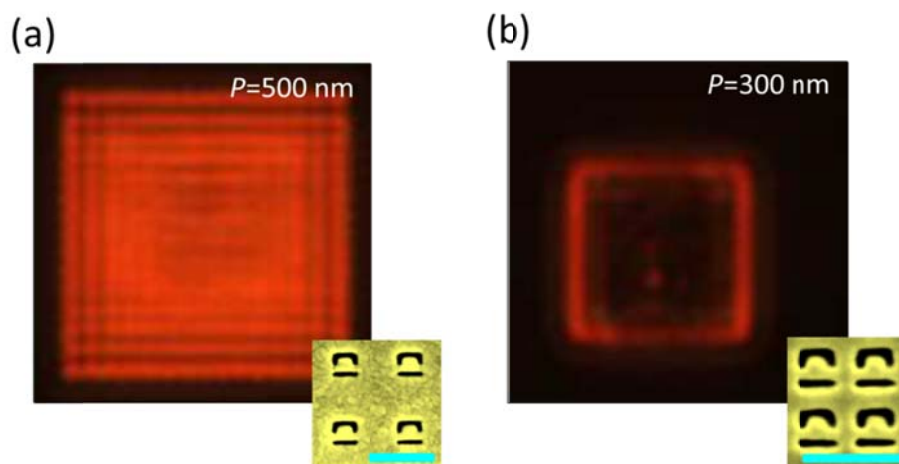


圖 4-8: 週期為(a) 500 nm 與(b)300 nm 的暗場影像圖，內插圖為樣品的 SEM 影像圖，比例尺為 500 nm。

為了進一步探討暗場影像與入射光波長的關係，我們繪製了入射光波長與散射光強度分佈圖，如圖 4-9 所示。圖 4-9(a),(b)為週期 500 nm 的裂環共振器矩陣之暗場影像，我們將(a)中的紅色矩形選取出來，矩形的畫素為 $x1\ y1$ ，接著將此

舉行中的散射光強度沿著 x 方向進行平均，即可得到 $1 \times y1$ 的畫素，最後將 $1 \times y1$ 畫素在不同波長下的強度繪製成(c)。此外，我們也一樣從(b)的綠色框中取出 $x2 \times y2$ 的畫素，並沿著 y 方向平均成 $x2 \times 1$ 的畫素，再將其與波長的關係繪製成(d)。從(c)與(d)中皆可觀察到週期為 500 nm 的裂環共振器在可見光波段皆是全亮的狀態，當波長接近 900 nm 時，已經達到 CCD 的感測極限，因此在該波段我們不進行討論。

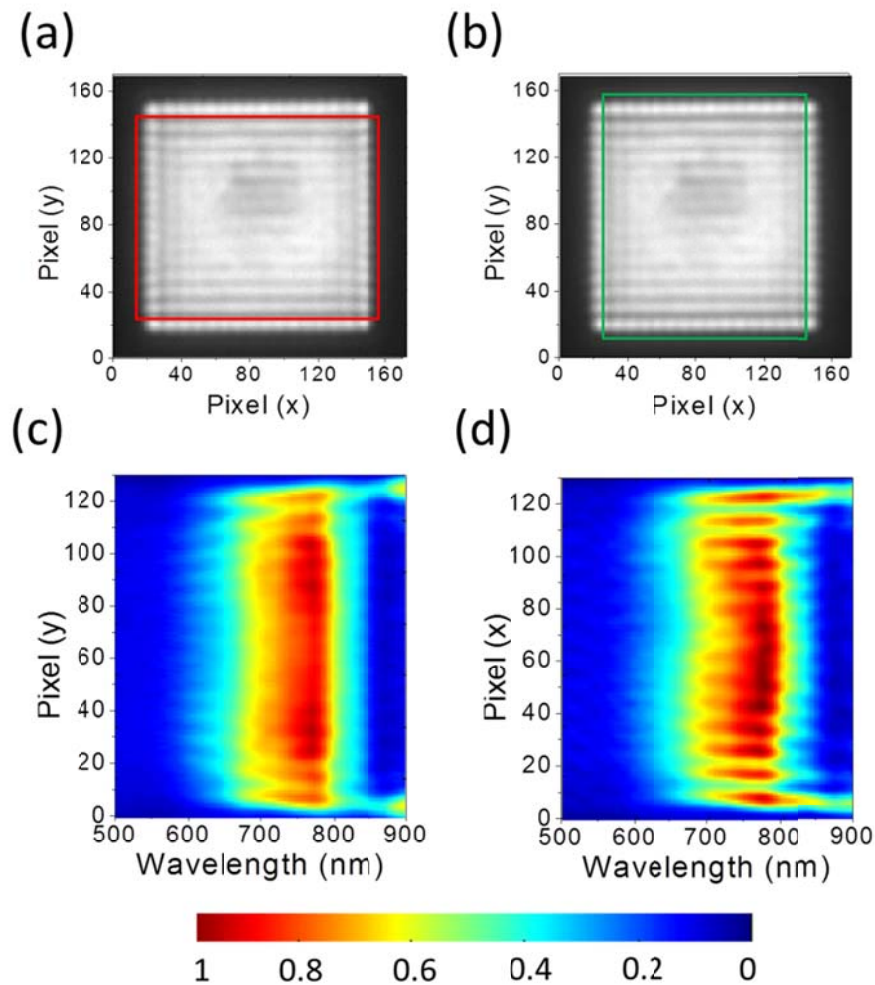


圖 4-9: (a),(b)週期為 500 nm 的裂環共振器矩陣之暗場影像。(c)為(a)中紅框 y 方向在不同波長下的散射光強度。(d)為(b)中紅框 x 方向在不同波長下的散射光強度。

圖 4-10(a),(b)為週期 300 nm 的裂環共振器矩陣之暗場影像，與上圖(圖 4-9)

的取法一樣，我們將(a)中的紅色矩形選取出來，畫素為 $x3 \times y3$ ，接著將此舉行之中的散射光強度沿著 x 方向進行平均，即可得到 $1 \times y3$ 的畫素，最後將 $1 \times y3$ 畫素在不同波長下的強度繪製成(c)。從(b)的綠色框中取出 $x4 \times y4$ 的畫素，並沿著 y 方向平均成 $x4 \times 1$ 的畫素，再將其與波長的關係繪製成(d)。從(c)與(d)中皆可觀察到週期為 300 nm 的裂環共振器從波長 600 nm 開始就是矩陣的邊界在進行發光，邊界的發光涵蓋了可見光的紅光波段。

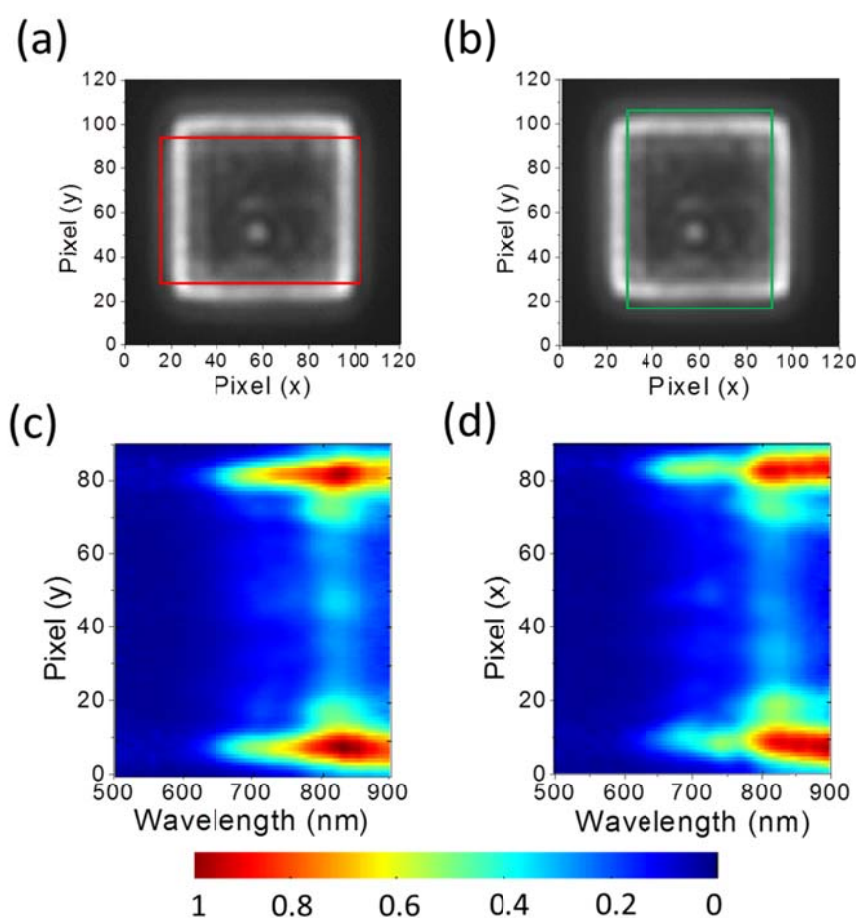


圖 4-10: (a),(b)週期為 300 的裂環共振器矩陣之暗場影像。(c)為(a)中紅框 y 方向在不同波長下的散射光強度。(d)為(b)中紅框 x 方向在不同波長下的散射光強度。

暗場的影像圖案可以藉由改變裂環共振器的矩陣圖案而調控，圖 4-11(a)是”回”形矩陣圖案的 SEM 圖，矩陣最外圍是由 15 15 個裂環共振器組成，而矩陣中心

被移除了 33 個裂環共振器。圖 4-11(b)是”回”形圖案的暗場影像圖，在矩陣內外兩個邊界都能觀察到散射影像。圖 4-11(c)是擁有隨機位置缺陷的矩陣，矩陣最外圍是由 15×15 個裂環共振器組成，在矩陣中我們隨機移除了 15 的裂環共振器。圖 4-11(d)是圖 4-11(c)圖案的暗場影像圖，在影像中可以觀察到數個光點，其光點都可以對應到矩陣的缺陷處，由於矩陣缺陷的尺寸已經小於顯微鏡的辨識極限，因此從影像上觀測到的是一個亮點。從這裡也證明了只要改變晶包對稱性就能調控裂環共振器在遠場的散射光。

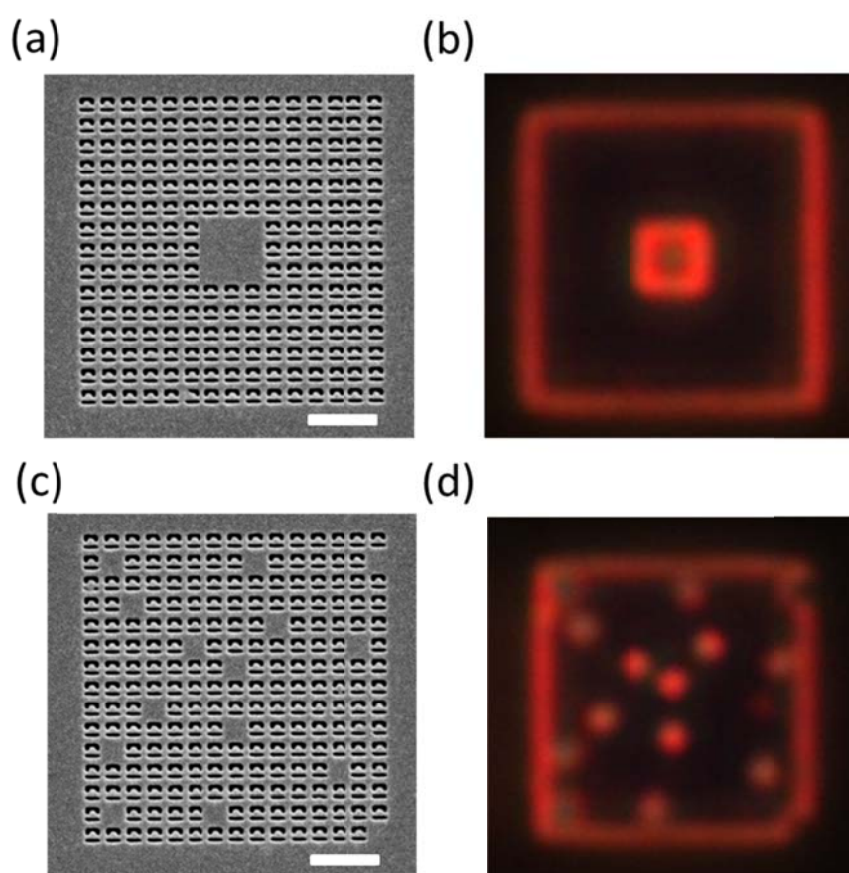


圖 4-11: (a)”回”形結構矩陣的 SEM 圖與其(b)暗場影像圖。(c)隨機缺陷的結構矩陣的 SEM 圖與其(d)暗場影像圖。比例尺為 1000 nm。以上兩個矩陣是由週期 300 nm 的裂環共振器所組成。



4-5 本章總結

在本章中，我們利用裂環共振器結構設計一個可以在暗場下工作的超穎介面，藉由改變裂環共振器的週期大小，我們可以調控裂環共振器的發光分佈，並利用聚焦離子束蝕刻技術製備製作超穎介面。我們證實藉由改變裂環共振器的週期，可以調控超穎介面在暗場下的發光區域，在週期為 300 nm 的超穎介面，只有結構最外圍有散射光訊號；另一方面，整體的結構發光則可以在週期為 500 nm 的超穎介面中被觀察到，在未來，能利用細胞有特定嗜好波長的特性[25]將此超穎介面應用在暗場的光捕獲器上。

4-6 參考文獻

- [1] Veselago, V. G. The electrodynamics of substances with simultaneously negative values of ϵ and μ . *Sov. Phys. Usp.* 10 509–514 (1968).
- [2] Shalaev, V. M. Optical negative-index metamaterials. *Nat. Photon.* 1, 41-48 (2006).
- [3] Hoffman, A. J. *et al.* Negative refraction in semiconductor metamaterials, *Nat. Mater.* **6**, 946-950 (2007).
- [4] Huang, Y. *et al.* Phase-gradient gap-plasmon metasurface based blazed grating for real time dispersive imaging. *Appl. Phys. Lett.* **104**, 161106 (2014).
- [5] Hsu, W.-L. *et al.* Vertical split-ring resonator based anomalous beam steering with high extinction ratio, *Scientific Reports* **5**, 11226 (2015).



[6] Wan, X. Jiang, W. X., Ma, H. F. and Cui, T. J. A broadband transformation-optics metasurface lens. *Appl. Phys. Lett.* **104**, 151601 (2014).

[7] Yu, N. *et al.* Flat optics with designer metasurfaces. *Nat. Mater.* **13**, 139-150 (2014).

[8] Rogers, E. T. F. *et al.* A super-oscillatory lens optical microscope for subwavelength imaging, *Nat. Mater.* **11**, 432-435 (2012)

[9] Huang, Y.-W. *et al.* "Aluminum Plasmonic Multicolor Meta-Hologram," *Nano Lett.* **15**(5), 3122-3127 (2015).

[10] Chen, W. T. *et al.* High-efficiency broadband meta-hologram with polarization-controlled dual images. *Nano Lett.* **14**, 225-230 (2014)

[11] Huang, L. *et al.* Three-dimensional optical holography using a plasmonic metasurface. *Nat. Commun.* **4**, 1-8 (2013).

[12] Ozaki, M., Kato, J.-i. and Kawata, S. Surface-Plasmon Holography with White-Light Illumination, *Science* **332**, 218-220 (2011)

[13] Chen, C.-C. *et al.* Uniaxial-isotropic metamaterials by three-dimensional split-ring resonators, *Advanced Optical Materials* **3**(1), 44-48 (2015).

[14] Stanca, S. E. *et al.* Magnetic apatite for structural insights on the plasma

membrane, *Nanotechnology* **26**, 3035601 (2015)



[15] Wirth, J. *et al.* Plasmonically Enhanced Electron Escape from Gold Nanoparticles and Their Polarization-Dependent Excitation Transfer along DNA Nanowires, *Nano Lett.* **14**, 3809-3816 (2016)

[16] Kaelberer, T., Fedotov, V. A., Papasimakis, N., Tsai, D. P. and Zheludev, N. I. Toroidal dipolar response in a metamaterial. *Science* **330**, 1510-1512 (2010).

[17] Huang, Y.-W. *et al.* Design of plasmonic toroidal metamaterials at optical frequencies. *Opt. Express* **20**, 1760-1768 (2012).

[18] Huang, Y. -W. *et al.* Toroidal lasing spaser, *Scientific Reports* **3**, 1237 (2013).

[19] Cheng, B. H., Lan, Y. C. and Tsai, D. P. Breaking optical diffraction limitation using optical hybrid-super-hyperlens with radially polarized light. *Opt. Express* **21**, 14898-14906 (2013).

[20] Zhang, X. and Liu, Z. Superlenses to overcome the diffraction limit. *Nat. Mater.* **7**, 435, (2008).

[21] Cheng, B. H., Ho, Y. Z., Lan, Y. C. and Tsai, D. P. Optical hybrid-superlens hyperlens for superresolution imaging. *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electron.* **19**, 4601305 (2013).

[22] Cheng, B. H., Chang, K. J., Lan, Y.-C. and Tsai, D. P. Achieving planar

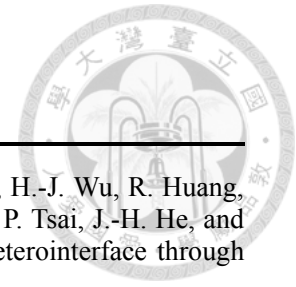
plasmonic subwavelength resolution using alternately arranged insulator-metal and insulator-insulator-metal composite structures, *Scientific Reports* **5**, 7996 (2015).



[23] Murray, W. A. *et al.* Plasmonic Materials. *Adv. Mater.* **19**, 3771-3782 (2007).

[24] W. M. Zhu, Q. H. Song, L. B. Yan, W. Zhang, P. C. Wu, L. K. Chin, H. Cai, D. P. Tsai, Z. X. Shen, T. W. Deng, S. K. Ting, Y. D. Gu, D. L. Kwong, Z. C. Yang, R. Huang, A. Q. Liu and N. I. Zheludev, "A Flat Lens with Tunable Phase Gradient by Using Random Access Reconfigurable Metamaterial," *Advanced Materials* **27**, 4739–4743 (2015).

[25] J. -L. Xiao, T.-H. Hsu, P.-Y. Hsu, W.-J. Yang, P.-L. Kuo, and C.-H. Lee, "Motion of cancer-cell lamellipodia perturbed by laser light of two wavelengths," *Appl. Phys. Lett* **97**, 203702 (2010)



Publication List

1. J.-C. Lin, T.-V. Thanh, D.-S. Tsai, T.-T. Lin, B.-C. Huang, **W.-L. Hsu**, H.-J. Wu, R. Huang, N. V. Chien, R. Yoshida, J.-Y. Lin, Y. Ikuhara, Y.-P. Chiu, S. Gwo, D. P. Tsai, J.-H. He, and Y.-H. Chu, "Control of metal-insulator transition at complex oxide heterointerface through visible light, " *Advanced Materials*, accept (2015)
2. **W.-L. Hsu**, P. C. Wu, J.-W. Chen, T.-Y. Chen, B. H. Cheng, W. T. Chen, Y.-W. Huang, C. Y. Liao, G. Sun, D. P. Tsai, " Vertical split-ring resonator based anomalous beam steering with high extinction ratio," *Scientific Reports* 5, 11226 (2015).
3. P. C. Wu, **W.-L. Hsu**, W. T. Chen, Y.-W. Huang, C. Y. Liao, A.-Q. Liu, N. I. Zheludev, G. Sun, D. P. Tsai, " Plasmon coupling in vertical split-ring resonator metamolecules," *Scientific Reports* 5, 9726 (2015)
4. P. C. Wu, G. Sun, W. T. Chen, K.-Y. Yang, Y.-W. Huang, Y.-H. Chen, H. L. Huang, **W.-L. Hsu**, H. P. Chiang, D. P. Tsai, "Vertical split-ring resonator based nanoplasmonic sensor," *Applied Physics Letters* 105, 033105 (2014).
5. W. T. Chen, K.-Y. Yang, C.-M. Wang, Y.-W. Huang, G. Sun, I.-D. Chiang, C. Y. Liao, **W.-L. Hsu**, H. T. Lin, S. Sun, L. Zhou, A.-Q. Liu, D. P. Tsai, "High-efficiency broadband meta-hologram with polarization-controlled dual images," *Nano Letters* 14 (1), 225-230 (2014).
6. K. F. Chien, **W. L. Hsu**, A. J. Tzou, Y. C. Lin, W. C. Chou, L. Lee, C. H. Chia, C. S. Yang, "Thermal-activated carrier transfer in ZnCdO thin film grown by plasmaassisted molecular beam epitaxy, " *Journal of Crystal Growth* 12, 151 (2012)
7. T. C. Han, **W. -L. Hsu**, W. D. Lee, "Grain size-dependent magnetic and electric properties in nanosize YMnO₃ multiferroic ceramics, " *Nanoscale Research Letters* 6, 201 (2011)
8. C. H. Chia, J. N. Chen, T. C. Han, J. W. Chiou, Y. C. Lin, **W. L. Hsu**, W. C. Chou, "Size dependence of exciton-phonon coupling in sol-gel ZnMgO powders, " *Journal of Applied Physics* 109, 063526 (2011)
9. C. H. Chia, Y. L. Lai, **W. L. Hsu**, T. C. Han, J. W. Chiou, "Biexciton emission from sol-gel ZnMgO nanopowders, " *Applied Physics Letter* 96, 191902 (2010)

Conference participation and presentation

1. P. C. Wu, **W.-L. Hsu**, W. T. Chen, Y.-W. Huang, C. Y. Liao, W.-Y. Tsai, A. Q. Liu, N. I. Zheludev, G. Sun and D. P. Tsai, "Vertical split-ring resonators based plasmon coupling, nanophotonic sensing and light manipulation," IMWS-Bio 2015, Taipei, Taiwan
2. **W.-L. Hsu**, P. C. Wu, W. T. Chen, Y.-W. Huang, C. Y. Liao, A. Q. Liu, A. Q. Liu, G. Sun and D. P. Tsai, " Plasmon coupling in upright magnetic SRR metamolecules," SPIE O+P 2014, San Diego CA, U.S.A.
3. **W.-L. Hsu**, P. C. Wu, W. T. Chen, Y.-W. Huang, C. Y. Liao, A. Q. Liu, A. Q. Liu, G. Sun and D. P. Tsai, " Plasmon hybridization in 3D SRRs magnetic metamolecules," Surface Enhanced Spectroscopies 2014, Chemnitz, Germany
4. **W.-L. Hsu**, W.-Y. Tsai, P. C. Wu, W. T. Chen, Y.-W. Huang, C. Y. Liao, A. Q. Liu, G. Sun and D. P. Tsai, " Plasmon coupling in three-dimensional magnetic SRR metamolecules," META 2014, Singapore.
5. **W. -L. Hsu**, C. M. Chang, C. H. Chu, I -D. Chiang, M. L. Tseng, Y. -W.Huang, H. W. Huang,

B. H. Chen, D. -W. Huang, and D. P. Tsai, " Three-Dimensional Light Manipulation by Gold Nanobumps," FiO/LS 2013, Orlando FL, U.S.A.

6. **W. L. Hsu**, P. C. Wu, W. T. Chen, K.-Y. Yang, G. Sun, A. Q. Liu, N. I. Zheludev, and D. P. Tsai, "Magnetic plasmon induced transparency in three dimensional metamolecules, " Moleculus plasmonics 2013, Jena, Germany.
7. P. C. Wu, **W.-L. Hsu**, W. T. Chen, Y.-W. Huang, C. Y. Liao, A. Q. Liu, G. Sun, and D. P. Tsai, "Plasmon coupling of three-dimensional magnetic metamolecules," Optics & Photonics Taiwan, the International Conference 2013, Zhongli, Taiwan.
8. Y. -L. Yang, K. -F. Chien, **W. -L. Hsu**, and W. -C. Chou, "Growth and optical properties of ZnO:(Mn,Mg,Se) epilayers grown by plasma assisted molecular beam epitaxy," The 3rd GCOE International Symposium 2012, Sendai, Japan.

Awards

1. “**Best Poster Paper Award**,” Annual Meeting of the Physical Society of Republic of China, Hualien, Taiwan (2013).