일-나노미터 구조 안으로의 밀리미터/테라헤르츠파 초집속

DOI: 10.3938/PhiT.23.004

박형렬·김대식

Funneling Millimeter/Terahertz Waves through One-nanometer Gaps

Hyeon-Ryeol PARK and Dai-Sik KIM

We introduce a new technology based on atomic layer deposition to construct vertically-oriented gaps as narrow as 9.9 Å with arbitrary shapes and high aspect ratios (>200) in an opaque metal film. Our technique combines two vastly different length scales to construct 1-nm-wide gaps that extend along the entire contour of a millimeter-sized pattern and can pack $\sim 150,000$ such devices on a 4-inch wafer. Electromagnetic resonances of the nanogaps can be tuned by simply changing the contour length. When millimeter waves funnel through 1.1-nm-wide gaps ($\lambda/4,000,000$), an unprecedented intensity enhancement close to one billion can be achieved.

본 연구는 서울대학교와 미네소타대학교(University of Minnesota)의 공동 연구로 수행되었다. 시료를 위한 공정 개발 및 제작, 가시광선(visible) 영역대에서의 광학 측정은 미네소타대학교 전기컴퓨터공학부 오상현 교수 연구실에서 수행되었으며, 근적외선(near-infrared) 영역의 측정 및 데이터 분석은 Argonne National Laboratory의 Matthew Pelton에 의해 수행되었다. 테라헤르츠(Terahertz) 영역에서의 측정 및 데이터 분석은 서울대학교 물리천문학부 김대식 교수 연구실에서 수행되었으며, 관련 실험 데이터를 바탕으로 한 이차원과 삼차원 시뮬레이션 및 분석은 서울대학교 전기컴퓨터공학부 박남규 교수 연구실에서 수행되었다.

저자약력

박형렬 박사는 2012년 서울대학교 물리천문학부에서 테라헤르츠 슬롯 안테나와 금속 나노 물질 사이의 강한 상호 작용에 관한 연구로 박사학위를 취득하였고, 현재는 미국 미네소타 대학교 전기컴퓨터공학부에서 박사 후 연구원으로 재직하고 있다. (park1347@umn.edu)

김대식 교수는 U.C. Berkeley 이학박사(1990)로서 1994년부터 서울대 물리천문학부에 재직하고 있다. 한국연구재단에서 지원하는 SRC '파장한계 광학연구센터' 소장이며 APS, OSA fellow이다. Mercator Fellowship, 젊은과학자상, 성도광과학상, 한국과학상을 받았다. (dsk@phy.snu.ac.kr)

소 개

파장보다 작은 금속 구조 안에 빛이 집속되는 현상은, 나노 입자(Nano particle), 나노 구멍(Nano hole), 나노 슬릿(Nano slit) 등 다양한 형태의 구조물을 통해서 그동안 깊이 연구되어 왔다. 이런 금속 나노 구조물에서 빛의 집속 현상은 두 개의 금속 표면 사이의, 일반적으로 10 – 100 나노미터($1 \text{ nm} = 10^{-9} \text{ m}$) 크기를 가지는 틈(gap)에서 일어난다. 금속 구조 안에 나노미터 크기의 틈을 만들기 위해서 전자 빔 리소그래피(Electron-Beam lithography), 이온 빔(Focused ion beam), 전자 이동(Electro-migration), 나노 탐침(Nano Scanning Probe) 등 여러 가지 기술들이 이용되어 왔다. 그러나 현재까지의 기술들을 이용해서 옹스트롬(Ångstrom, $1 \text{ Å} = 10^{-10} \text{ m}$) 단위로 조절가능하면서 크기가 1 나노미터인 틈을 만들고, 빛과의 상호작용을 증가시키기 위하여 그 틈을 빛의 파장 길이 이상으로 확장시키는 것은 쉬운 일이 아니었다. 지금까지 제작된 금속 나노 구조물들은 광학적 에너지를 집속시키는 데 그 단면적이 나 부피 측면에서 크게 제한될 수밖에 없었다. 특히 테라파(Terahertz wave)와 같은 수 밀리미터 길이의 파장을 지닌 빛을 이용하여 1 nm 크기의 틈을 연구하기 위해서는 수 밀리미터($1 \text{ mm} = 10^{-3} \text{ m}$) 길이를 가진 나노 구조물을 제작할 수 있어야 하기 때문에 실제로 이를 구현하는 것은 거의 불가능하였다.

본 연구는 앞에서 언급했던 문제점들을 해결하기 위해서 원자층 리소그래피(atomic layer lithography)라 불리는 새로운 나노 구조물 제작 기법을 제시한다.^[1] 이 기술은 기존의 원자층 증착(atomic layer deposition) 기술과 광리소그래피(photo-lithography), 그리고 스카치테이프(Scotch tape)에 의한 제거(peeling off) 기술을 조합하여 개발되었다. 원자층 증착(atomic layer deposition)은 원자 단위의 크기, 즉 옹스트롬(Ångstrom) 두께로 기판 표면 위에 균일하게 박막을 쌓는 것을 가능하게 하는 기술이다. 광리소그래피 기술은 반도체 공정에서 흔히 사용되고 있으며, 마스크(mask)라는 원판에 빛을 쬔어 생기는 그림자를 기판(substrate) 상에 전사시켜 복사하는 기술이다. 마지막으로, 스카치테이프에 의한 제거 기술은 미소역학적 절개

REFERENCES

- [1] X. Chen *et al.*, Nature Commun. **4**, 2361 (2013).

Fig. 1. (a) Schematics of a 3 nm-thick and 55-nm-long plasmon cavity, consisting of metal-SiO₂-metal waveguides.^[2] (b) (left) Fabrication process schematic of the nanogap array. (right) SEM image of 9×9 annular nanogap array with 500 nm diameter.^[3] Reprinted (adapted) with permission from Ref. [3]. Copyright 2010 American Chemical Society.

(micromechanical cleavage) 또는 스카치테이프 기술(Scotch tape technique)이라 불리며, 스카치테이프의 접착력을 이용하여 흑연(graphite)에서 간단하게 그래핀(graphene)을 떼어낸 것으로 유명한 기술이다.

광학에서, 특히 빛의 투과 측정을 하는 경우에, 금속 사이의 구멍(hole)이나 틈(gap)과 같은 구조물은 빛의 입사면에 수직으로 있어야 하고 그 외 다른 부분들은 빛이 투과하지 못하도록 해야 한다. 원자층 증착 방식은 금속 표면에 평행하게 쌓을 수 있는 기술이므로 샌드위치 형태로 금속과 금속 사이에 빛이 투과할 수 있는 얇은 유전물질로 이루어진 틈(gap)을 만드는 것은 가능하지만 광학 측정을 위해서는 이런 나노 틈(nano gap)을 금속 표면에 수직하게 놓이도록 만들어야 하는 문제가 있었다.

그림 1(a)에서와 같이 금속-유전물질-금속(metal-dielectric-metal) 구조를 샌드위치 형태로 만든 후 이온 빔(focused ion beam)을 이용해서 원하는 길이만큼만 남겨두고 나머지 부분은 전부 제거한다. 그 후 빛을 측면에서 입사시키면 금속과 금속 사이에 3 nm 두께의 SiO₂로 채워진 틈으로 55 nm 길이의 도파관(wave-guide)이 형성되면서 가시광선 영역대에서 나노 공진기(nano-cavity)의 특성을 관찰할 수 있었다.^[2] 그러나 이 구조의 경우, 측면으로 빛을 입사시킨 후 산란(scatter)되어 나오는 빛을 측정할 때 다른 구조물들에 의해 방해받는 경우가 생긴다. 그리고 시료의 측면을 이용하기 때문에 증착시킬 수 있는 박막 두께의 한계(∼수 μm)로, 적외선 영역이나 테라와 영역에서는 빛의 입사 면적보다 넓은 면적의 시료를 만드는 것이 불가능하여 이러한 구조의 시료를 사용하기가 쉽지 않았다. 또한 이 기술은 슬릿 형태의 구조만 제작할 수 있기 때문에 형태(shape)에 따른 공명(resonance) 현상을 가지는 나노

구조물을 배열(array)시키는 것도 불가능하였다. 이러한 단점을 극복하기 위해서, 그림 1(b)에서와 같이 금속, 유전물질, 금속을 순서대로 증착시킨 후 이온빔을 이용해서 두 번째 금속 층을 제거하면 안쪽 금속과 바깥쪽 금속 사이에 유전물질 두께만큼의 틈이 만들어지며, 그림 1(a)에서와 같은 금속-유전물질-금속으로 이루어진 도파관(waveguide)이 금속 박막에 수직한 방향으로 만들어진다.^[3] 이 기술을 이용하면 나노미터 크기의 너비를 가진 도파관을 금속면에 수직으로 유지시키면서 다양한 형태(shape)의 구조물을 배열(array)시킬 수 있다는 장점이 있다. 그러나 이 기술은 두 번째 금속 층을 제거하는 과정에서 생기는 가운데 부분의 구멍이 배경 잡음(background noise)을 만들기 때문에 빛의 투과 측정 실험에서는 적절하지 않았다.

원자층 리소그래피(Atomic layer lithography)

본 연구에서 새롭게 개발한 원자층 리소그래피 기술은 다음과 같은 과정으로 이루어진다. 첫 번째로, 광리소그래피(photo-lithography), 이빔(E-beam) 리소그래피, 또는 이온빔(Focused ion-beam) 등을 이용하여 원하는 형태의 금속 구조물을 만든다. 그 후 원자층 증착(atomic layer deposition) 방법을 통하여 나노미터 두께(1–20 nm)의 유전물질(여기서는 주로 Al₂O₃를 이용하였다.)을 앞에서 만들어진 금속 구조물 위에 증착시킨다(그림 2(a)). 두 번째로, Al₂O₃가 덮여진 금속 구

REFERENCES

- [2] H. T. Miyazaki *et al.*, Phys. Rev. Lett. **96**, 097401 (2006).
- [3] H. Im *et al.*, Nano Lett. **10**, 2231 (2010).

Fig. 2. (a) A patterned substrate is conformally coated with a thin layer of insulator (Al_2O_3) using atomic layer deposition. (b) Subsequent metal plugs are embedded in the substrate. (c, d) Excess metal onto the substrate is removed using a standard adhesive, such as Scotch tape. Reprinted with permission from Ref. [1]. Copyright 2013 Nature Publishing Group.

조물 안을 두 번째 금속 증착을 통하여 채운다. 이때 구조물의 돌출된 부분은 여분의 금속이 더 쌓이게 되고, 오목하게 들어간 부분은 전부 메워진다(그림 2(b)). Al_2O_3 면(surface)과 금속면(metal surface) 사이의 접착력은 일반적인 접착테이프와 금속면 사이의 접착력보다 약하기 때문에 그 접착력의 차이를 이용하여 돌출된 부분에 쌓여 있는 여분의 금속 층을 스카치테이프를 이용하여 손쉽게 제거하면 원하는 형태의 나노미터 너비의 틈 구조가 시료 표면에 수직으로 만들어진다(그림 2(c), (d)).

그림 3(a), (b)는 1 μm 의 지름을 가진 원형구조의 둘레에 만들어진 5 nm 틈 구조의 전자주사현미경(Scanning Electron Microscope, SEM) 이미지들이다. 두 금속(silver) 사이의 틈에 Al_2O_3 가 균일한 두께로 채워져 있으며, 경우에 따라서 다른 종류의 금속, 예를 들면, 안쪽은 은(silver)으로 채우고 밖은 금(gold)으로 구성할 수도 있다. 또한 첫 번째 금속 구조물의 모양을 어떻게 하는지에 따라서 그림 3(c), (d)와 같이 임의의 형태의 나노미터 크기의 틈 구조물을 제작할 수 있다. 또한 원자층 리소그래피 기술은 다양한 형태의 나노 크기의 틈 구조물을 다량(>150,000)으로 웨이퍼 크기의 면적에 배열시킬 수 있으며 전체 수율은 대략 90% 정도로 나타난다(그림 3(e), (f)). 이런 장점으로 인해 가시광선이나 적외선 영역에서 사용하는 시료뿐만 아니라 테라헤르츠(terahertz) 영역에서 공명(resonance) 현상을 관찰할 수 있도록 나노 틈(nano-gap) 구조물의 둘레 길이가 수 밀리미터에 이르는 시료의 제작도 가능하게 되었다.

Fig. 3. (a) Top-view SEM image of 5 nm-wide annular gap in a 200 nm-thick silver film. (b) Bottom-view SEM image of the same sample. Colorized top-view SEM of (c) star and (d) bowtie samples in a 200 nm-thick gold film on a glass substrate. (e) Optical microscope image of a silver nanogap sample (gap size = 5 nm; metal thickness = 150 nm; total loop length = 0.7 mm; total image area = 1.6 mm $\times$ 1.0 mm). Approximately 150,000 rectangular loops are patterned over an entire 4-inch glass wafer. (f) Half of a Si wafer is planarized using adhesive tape (inset), creating a wafer-scale array of Ag plugs in an Si wafer with nanogaps. Scale bars: (a-d) 300 nm; (e) 0.2 mm. Reprinted with permission from Ref. [1]. Copyright 2013 Nature Publishing Group.

나노 틈 구조의 가시광선과 근적외선 영역에서의 특성

나노 틈(Nano gap) 구조가 금속 박막 안에서 박막의 두께 방향으로 균일하게 잘 만들어져 있는지 입증하기 위해서, 본 연구진은 가시광선 영역과 근적외선 영역에서 광학적 투과(Optical transmission) 실험을 진행하였다. 나노 틈 구조는 박막의 두께 방향으로 금속-유전물질-금속(Metal-Insulator-Metal, MIM)으로 이루어진 도파로(waveguide)와 같은 특성을 지니며, 티엠 모드(transverse magnetic mode)의 빛의 편광(polarization) 성분이 나노 틈 구조에 수직일 때 빛이 MIM 도파로(MIM waveguide) 안으로 투과될 수 있다. 그림 4(a)는 시료 표면에 수직으로 입사하는 빛의 편광 성분에 따라 나노 틈 구조를 투과한 빛을 영상화(imaging)한 실험 결과이다.

MIM 도파로를 투과한 빛의 스펙트럼 곡선을 분석해보면, Fabry-Perot 공명(resonance) 현상에 따른 봉우리(peak) 값들을 얻어낼 수 있는데, 이 값들은 실제로 도파로의 길이(금속 박막의 두께)와 너비(나노 틈의 크기)에 따라 결정된다.^[2,4] 이와 같은 현상을 Gap-plasmon 현상이라고도 부르는데, 그림 4(b)에서는 이론적으로 얻어낸 분산 곡선(dispersion curve)과

REFERENCES

- [4] R. de Waele *et al.*, Nano Lett. **9**, 2832 (2009).

Fig. 4. (a) Transmission optical microscope images of nano-gaps, having several gap sizes of 2, 4, 5 and 6 nm in 190 nm-thick silver films: (top) unpolarized light, (middle) vertically polarized light, and (bottom) horizontally polarized light. The color scale bars on the right show charge-coupled device counts. (b) Dispersion relation of gap-plasmon modes in Metal-Insulator-Metal (MIM) nanogaps. The solid curves are theoretical dispersion curves for different gap sizes and materials. The markers are measured resonance peaks from MIM nanogap waveguides. Reprinted with permission from Ref. [1]. Copyright 2013 Nature Publishing Group.

실험에서 구한 공명 모드(resonant mode)가 잘 맞는다는 것을 알 수 있었다. 이 결과를 통하여 본 연구진은 1.1 nm에서 6 nm까지의 나노 틈 구조가 박막의 두께 방향으로 균일한 너비를 가지면서 잘 형성되어 있다는 것을 입증할 수 있었다. 그림 4(b)의 결과에 따르면, 자유 공간(free space)에서 517 nm의 파장을 지닌 빛이 2 nm 너비의 MIM 도파로(waveguide)에 집속될 때, 강한 공진(cavity) 효과로 인해 틈 안에 채워진 Al_2O_3 의 유효 굴절률(effective refractive index)이 17.8까지 증가되는 것(일반적으로 가시광선 영역대에서 1.75의 굴절률을 가지고 있다.)으로 관찰되었다.

나노 틈 구조안에서의 테라파 초집속

앞선 가시광선 및 근적외선 영역에서의 실험에서는 박막 두께에 의한 Fabry-Perot 공명 현상을 관찰하였지만, 박막 표면에 나노 틈(nano gap)으로 이루어진 링(ring)의 둘레 길이가 밀리미터 크기로 확장되었을 때 우리는 테라헤르츠 영역에서 링 구조(ring structure)에 의한 투과 공명 현상(resonant transmission)을 관찰할 수 있다(그림 5(a)).^[5] 나노 틈 구조에서 틈의 너비가 줄어들수록 축전기(capacitor)와 비슷한 원리로 틈 안에 유도되는 전기장(electric field)의 크기는 점점 커지게 된다. 실제로, 70 nm 너비의 슬릿 안에 3 mm의 파장을 가진 테라파를 집속하였을 때 전기장의 크기가 1,000배까지 증가하였다는 연구가 보고된 바 있다.^[6] 이차원(two-dimensional) FDTD(Finite-difference-time-domain) 시뮬레이션을 사용하여 슬릿 구조에서 틈의 너비를 1 nm까지 줄였을 때 전기장의 크기를 살펴보면, 4 mm 파장의 테라파의 경우 7,800배, 5.4 mm 파장의 테라파의 경우 10,000배까지 증폭되었다(그림

5(b)).

1차원 구조인 슬릿에서 벗어나서 공명 현상을 가지는 2차원 링 형태의 나노 틈(nano gap) 구조의 테라파 투과 현상을 관찰하기 위하여 본 연구진은 그림 3(e)에서 소개된 시료를 가지고 테라헤르츠 시분할 분광학(Terahertz Time-Domain Spectroscopy) 측정을 하였다. 측정 장비의 파장 영역대는 0.2 mm에서 6 mm까지였으며, 시료의 틈 너비(gap size)는 1, 2, 5, 10 nm였다. 1 nm 너비의 틈(gap) 구조의 단면적 비율(coverage ratio)은 0.002%에 불과하였지만, 시료를 투과한 테라파의 투과율은 공명 파장(= 4 mm)에서 무려 50%나 되었다. Kirchhoff's integral formalism에 의해^[6,7] 추정되는 나노 틈(nano gap) 출구에서의 전기장 크기(electric field amplitude)는 약 25,000배 정도 증폭되었으며, 전기장의 세기(intensity)는 약 6억 배 가까이 증폭된 것이다(그림 5(c), 실선). 이 값은 슬릿 구조에서 예측한 10,000배보다 훨씬 큰 값이며, 링 공명(ring resonance) 현상의 도움으로 그 차이가 생긴 것이다. 측정된 투과 스펙트럼(transmission spectrum)에서 봉우리(peak) 값이 링 공명(ring resonance) 현상에 의한 것인지를 증명하기 위해서, 본 연구진은 COMSOL FEM(Finite Element Method) 시뮬레이션 프로그램을 이용하여 동일하게 디자인된 나노 틈(nano gap) 링 구조를 분석하였다. 시뮬레이션을 통해 얻은 스펙트럼 결과들은 실험 결과와 유사한 파장대에서 투과 스펙트럼의 봉우리(peak) 값을 가진다는 것을 보

REFERENCES

- [5] J. Shu *et al.*, Opt. Express **19**, 26666 (2011).
- [6] M. A. Seo *et al.*, Nature Photon. **3**, 152 (2009).
- [7] J. S. Kyoung *et al.*, Opt. Commun. **283**, 4907 (2010).

Fig. 5. (a) Schematic of terahertz waves being funneled through nanogaps arranged in rectangular loops. (b) Distribution of electric field enhancements around 1 nm-wide slit structure in a silver film are calculated by two-dimensional FDTD simulation. (c) Electric field enhancement spectra of the nanogaps with the gap sizes of 1, 2, 5, and 10 nm. Solid lines indicate measured field using terahertz time-domain spectroscopy. Dashed lines indicate calculated spectra, determined by finite element modelling (FEM). Reprinted with permission from Ref. [1]. Copyright 2013 Nature Publishing Group.

였으며(그림 5(c), 점선), 링 구조물에서의 전기장 분포도(electric field distribution)는 그 봉우리 값이 링 공명(ring resonance) 현상에 의한 것임을 입증하였다.^[1]

맺는 글

본 연구진은 기존의 광리소그래피(photo-lithography) 기술과 원자층 증착(atomic layer deposition) 기법, 그리고 스카치 테이프 기술(Scotch tape technique)을 이용하여 웨이퍼(wafer) 크기의 대면적에 1 nm 크기의 틈(gap) 구조를 150,000개 이상 배열시킬 수 있는 원자층 리소그래피(atomic layer lithography) 기술을 개발하였다. 이 기술을 이용하여 밀리미터 길이

의 둘레를 가진 나노 틈(nano gap) 링(ring) 구조를 만들 수 있었으며, 이 구조물에 테라파가 입사하였을 때 전기장의 세기는 틈 안에서 6억 배까지 증폭하였다. 이러한 전기장의 집속, 증폭 등의 특성들을 이용하면 생분자(bio-molecule) 또는 나노 입자(nanoparticle)와 빛과의 상호작용을 증가시킬 수 있으며, 초고감도센서, 단분자 분광학(single molecule spectroscopy), 비선형(nonlinear) 현상으로의 응용도 가능할 것이다. 또한, 이 기술을 응용하여 틈(gap)의 너비를 1 나노미터 이하의 영역으로 가져간다면, 전자들의 터널링(tunneling) 효과나 플라즈몬(Plasmon) Landau 감쇠(damping), 비국소 효과(nonlocal effect)와 같은 양자적인 효과(quantum effect)도 관찰할 수 있을 것으로 기대된다.