

國立交通大學

電子工程學系 電子研究所

碩士論文

高品質因子及低增益閾值之受激輻射引致表面
電漿子放大元件模擬特性研究

Numerical Simulation of High Quality Factor and
Low Gain Threshold SPASER

研究生：賴詩韻

指導教授：林詩淳 助理教授

中華民國一〇三年八月

高品質因子及低增益閾值之受激輻射引致表面
電漿子放大元件模擬特性研究

Numerical Simulation of High Quality Factor and
Low Gain Threshold SPASER

研究生：賴詩韻

Student : Shih-Yun Lai

指導教授：林詩淳

Advisor : Albert Shihchun Lin



Submitted to Department of Electronics Engineering and
Institute of Electronics
College of Electrical and Computer Engineering
National Chiao Tung University
in partial Fulfillment of the Requirements
for the Degree of
Master of Science
in
Electronics Engineering

September 2014

Hsinchu, Taiwan, Republic of China

中華民國 一〇三年 八月

摘要

光子傳輸可以提供快速、低功耗、無失真之訊號傳輸，能克服積體電路線寬的微縮下訊號延遲、失真與耗能等問題。目前積體電路尺度發展至今已可以微縮至奈米等級，若要以光路取代電路，勢必須將同調光源微縮至相同尺寸，然而傳統的半導體雷射受限於光學繞射限制，其光學共振腔至少需半波長的長度，其體積仍遠大於積體電路傳輸尺寸。然而，受激輻射引致表面電漿子放大元件 (surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation, SPASER) 利用增益介質引致表面電漿子放大達到雷射所需之回饋機制，且金屬粒子自成腔體，故能將腔體微縮至遠小於波長之等級，突破傳統雷射之光學繞射限制，還能將光源聚焦於奈米尺度，大幅改善傳統雷射僅能聚焦微米尺度之窘境[2]，因此受激輻射引致表面電漿子放大元件 (SPASER) 可望取代傳統雷射成為未來奈米光源之主流，故本論文針對該元件研究。

由於 SPASER 元件是利用表面電漿子取代傳統雷射之光子，因此在本文第二章中，我們簡述了表面電漿共振模態的原理，並介紹此元件產生雷射的物理機制，以及評斷該元件優劣之參數。本實驗使用有限元素法模擬單一粒子的 SPASER 元件，採用二維度模擬取得元件最佳化，其模擬結果也預期會與三維模擬結果相同。

在第三章中，我們藉由不同幾何形狀之設計尋找最佳化結構，綜觀六種不同形貌之受激輻射引致表面電漿子放大元件，三層半球殼結構因為其半球殼構造具「高局域場」，能提供強大的回饋機制更易於產生受激輻射致使表面電漿子放大，再加上「半球殼金屬僅為全包覆結構之一半」減少了金屬材料的能量吸收損耗，此外，金屬殼層外多了一層增益材料的殼層，其增益介質比例相對較高且包覆於金屬兩側，更能有效地從金屬兩側補償金屬殼層損耗，故三層金屬全包覆結構具有最佳特性：高局域電場、低增益閾值、高品質因子及最高 Purcell factor，整體而言，其特性顯著提升也遠高於目前文獻所刊載之結構。

第四章中，以最佳結構—三層金屬全包覆結構為基礎，調變摻雜增益介質的二氧化矽殼層厚度，觀察該參數對電漿子雷射特性之影響。結果發現，隨著殼層厚度越大，增益閾值/ k /下降、品質因子上升、輻射之光源單頻性更佳、Purcell factor 也會提升，但是有效膜態面積卻相對變大，此外也有共振波長藍移之現象，我們可以利用改變殼層厚度任意調變其共振波長，做為更廣泛之應用。

Numerical Simulation of High Quality Factor and Low Gain Threshold SPASER

Student : Shih-Yun Lai

Advisors : Dr. Albert Shihchun Lin

Department of Electronics Engineering & Institute of Electronics Engineering
National Chiao Tung University

ABSTRACT

Photon transmission can provide high speed, low power dissipation and non-distortion for signal transmission which can overcome the problems caused by line width. IC has been developed to be at the scale of nanometer, and if we want to replace it with optical path, it will be necessary to keep them in the same scale. However, due to the diffraction limit in conventional laser, optical cavity should be at least half-wavelength but causing the volume exceed of IC's transmission scale.

To deal with this problem, SPASER has been developed for its surface plasmon amplification to achieve the feedback mechanism, making the cavity much smaller than the wavelength that breakthrough the traditional limit. Moreover, we can concentrate the source on the scale of nanometer that improve the embarrassment compared to the conventional laser. To sum up all above, we can notice that SPASER will play an important role in the near future, and in our study, we focus on this topic.

The rest of the study is organized as follows. Because of the photons replaced by surface plasmon in a SPASER, we introduce the theory of the surface plasmon, the physical mechanism and relative parameter in chapter two. Besides, in this work, we simulate the SPASER with the finite element method (FEM) and optimize the structure in two-dimension which will be the same result expected in three-dimension.

In chapter three, we research for the optimal structure by different geometric designs. Taking six different structures of SPASER into consideration, "Three-layer semishell SPASER" has high local field providing strong feedback effect on SP amplification. Beside, with the half-metal compared to full cover structure, we can reduce the power dissipation in lasing mode. We can conclude that "three-layer semishell SPASER" has the best property in comparison to the reference purposed before: higher local electric field, lower gain threshold, higher quality factor and the best Purcell factor.

In chapter four, based on the optimal structure-"three-layer semishell SPASER", we modulate the semishell thickness of gain medium. With the experiment, we can find that with the higher thickness of shell, the result show us the lower gain threshold, higher quality factor, higher Purcell factor.

誌謝

首先感謝我的指導教授—林詩淳博士，在過去的碩士生涯中，無論是課業抑或是研究相關問題，都能循循善誘並不厭其煩地與我討論，不僅指出研究上的盲點，並讓我學會解決問題，培養我獨立學習的態度，並給予良好的學習環境與自由空間。也謝謝實驗室裡的大學長—思銘學長，能夠在我研究上給予我不少幫助，指導各軟體的操作，平時也總是耐心的與我討論問題，還在口試的前夕陪我們預演並給予建議，感謝彥凱在課業與研究相關也都能適時予以幫助，也謝謝我的室友兼好友紀維，不僅討論課業上的問題，還能自在的分享任何事紓解不少壓力，謝謝尚儒學長、偉銘陪我們一起玩樂並在煩悶的生活中帶來歡笑，還用那樂天的個性感染我們。還有謝謝聖倫、柏宇以及念平，一起當助教並幫我們分擔不少事，與你們相處的時光真的充滿歡笑，讓生活變得精采，在這研究生活中能夠有實驗室的各位陪伴真的是件幸運的事。

也感謝這兩年的室友姣柔雪倩，在研究遇到瓶頸之餘，能夠促膝長談還能大肆聊天，舒緩不少壓力。謝謝 113 寢的各位，每天有你們的陪伴及打鬧，讓我又充滿了電，有勇氣面對接下來的挑戰，謝謝羽球棒棒的各位，能不時的相約打球，在久坐的生活中提供活絡筋骨的機會，和你們在一起的每一刻充滿歡笑，讓我在枯燥的研究生生活中增添了很大的樂趣，每天都很期待和你們的相聚。除了放送歡樂外，還能在課業及研究上予以不少援助，一起陪我面對問題，有你們真的很好！

近一個月論文寫作的日子，謝謝芸錚與信宏早起吃早餐，和你們的聚餐能讓我在一天的開始充滿活力，謝謝妳陪我一起奮戰，彼此督促彼此打氣，很感謝在這難熬的日子裡能有妳陪著，很溫暖，一切只怨相見恨晚。謝謝你，每天給我信心並給我鼓勵，在我難過時給我肩膀，即使距離遙遠還能夠感受到你的陪伴。

最後，也謝謝我的家人，儘管距離在遠，每每遇到挑戰，您們總會無時的用電話給我打氣鼓勵，用堅定的信仰給予我信心，並提供我經濟後援，讓我專心於研究上而無後顧之憂，順利完成碩士學業，也謝謝姊姊總是聽我大吐苦水還會用那大而化之的個性開導我，謹以此文獻給我摯愛的雙親及姊姊。

目錄

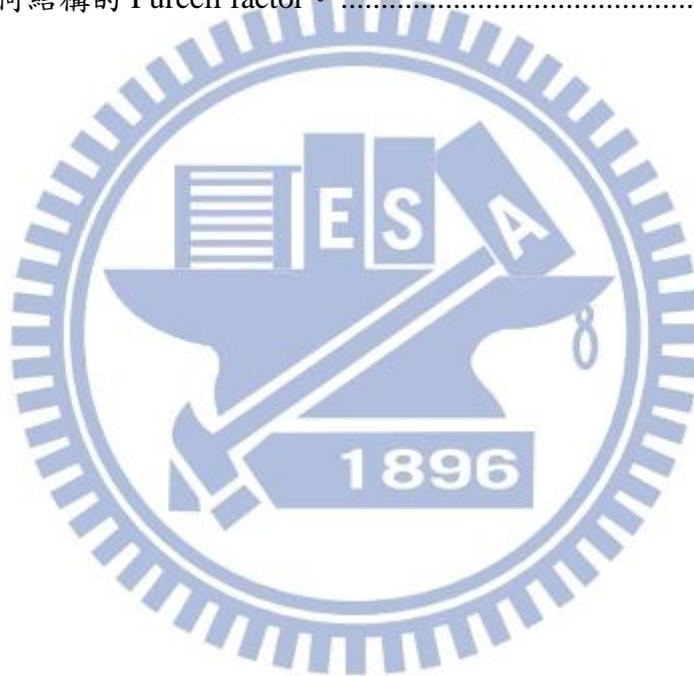
摘要.....	i
ABSTRACT.....	ii
誌謝.....	iii
目錄.....	iv
表目錄.....	vi
圖目錄.....	vii
第一章 緒論.....	1
1.1 前言.....	1
1.2 受激輻射引致表面電漿子放大元件概論.....	2
1.3 研究動機與目的.....	6
第二章 受激輻射引致表面電漿子放大元件基礎理論.....	8
2.1 表面電漿子.....	8
2.1.1 介電物質與金屬介面的表面電漿共振模態.....	8
2.1.2 局域性表面電漿共振模態.....	13
2.1.3 應用與挑戰.....	15
2.2 受激輻射引致表面電漿子放大元件結構.....	16
2.2.1 原理.....	16
2.2.2 雷射機制.....	18
2.2.3 激發來源 (pumping source) :	19
2.2.4 共振腔體 (optical cavity/optical resonator)	19
2.2.5 增益介質 (gain/active medium)	24
2.3 受激輻射引致表面電漿子放大元件物理.....	25
2.3.1 增益閾值 (threshold gain)	25
2.3.2 散射/吸收截面積 (scattering/absorption cross-section)	26
2.3.3 品質因子 (Q factor)	27
2.3.4 等效膜態體積 (Mode volume)	28
2.3.5 Purcell factor	28
2.4 模擬受激輻射引致表面電漿子放大元件特性.....	29
第三章 幾何型態對受激輻射引致表面電漿子放大元件分析.....	33
3.1 奈米殼型結構.....	33
3.2 三層奈米殼型結構.....	38
3.3 三層半球殼厚核結構.....	41
3.4 半包覆介電質殼結構.....	45
3.5 六種結構總結.....	49
第四章 殼層厚度對受激輻射引致表面電漿子放大元件分析.....	56

第五章 結論與未來展望.....63
參考文獻.....65



表目錄

表 1、不同結構（對稱性及非對稱性核-殼結構）及不同極化方向下（X 極化、Y 極化）的各參數值：共振波長 (λ_{res})、品質因子 (Q)、增益閾值 (k_{thre})。[19] 5	
表 2、不同幾何形狀的受激輻射引致表面電漿子放大元件及其參數。.....	49
表 3、不同幾何結構的品質因子。左欄為雷射膜態時的品質因子；右欄為空腔膜態時的品質因子。.....	51
表 4、不同幾何結構的半高寬 (FWHM)。左欄為雷射膜態時的半高寬，右欄為空腔膜態時的半高寬。.....	52
表 5、不同幾何結構的增益閾值。.....	53
表 6、不同幾何結構的有效模態面積。.....	54
表 7、不同幾何結構的 Purcell factor。.....	54



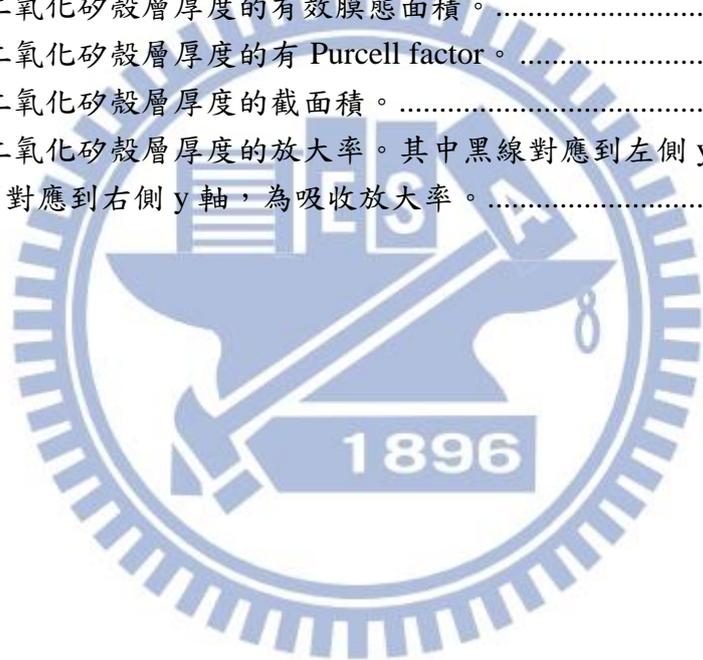
圖目錄

圖 1、(a) 最初由 Bergman 及 Stockman 所提出的 V 型受激輻射引致表面電漿子放大元件結構及位置圖。[2,5] (b) V 型受激輻射引致表面電漿子放大元件的場值分布圖，最強增益發生在亮本徵膜態 $\hbar\omega_n = 1.15eV$ 且在 V 型的尖端處具有高強度局域場。[2].....	2
圖 2、金屬包覆型奈米雷射。(a) 結構剖面圖 (b) 實驗製作的奈米柱所拍攝的 SEM (c) 三維 FDTD 模擬之場分布圖。[14]	3
圖 3、(a) 注入電流 $200 \mu A$ 的雷射頻譜[插圖為注入電流達 $2 \mu A$ (藍線)、 $4 \mu A$ (綠線)、 $6 \mu A$ (紅線) 的雷射頻譜] (b) 雷射光強度與注入電流關係圖。[14].....	3
圖 4、混合型電漿波導型奈米雷射。(a) 結構示意圖。(b) 光場分布圖。(c) 光子雷射與電漿雷射的閾值強度對尺寸的關係圖。[16].....	4
圖 5、(a) 受激輻射引致表面電漿子放大元件腔體設計，(b) 採用脈衝 5ns、波長 488nm 的激發源，但激發能量分別為 (1) 22.5mJ (2) 9mJ (3) 4.5mJ (4) 2 mJ (5) 1.25 mJ 打入玻璃管中所獲取的奈米粒子受激輻射頻譜圖。右上小圖為樣品濃度稀釋 100 倍後所得的受激輻射頻譜圖。[17].....	4
圖 6、(a) 金屬半球受激輻射引致表面電漿子放大元件腔體構造，由半徑 100nm、摻雜增益介質的二氧化矽為核，金屬銀包覆其半球面，其厚度為 10nm。(b) 半球殼受激輻射引致表面電漿子放大元件的遠場極化圖，及極化圖相對應的結構位置及入射角度。[18].....	5
圖 7、非對稱性核-殼奈米受激輻射引致表面電漿子放大元件結構。.....	5
圖 8、由金殼 ($R_2 = 35nm$) 包覆二氧化矽核 ($R_1 = 30nm$) 的奈米蛋及奈米杯型結構遠場消光特性。(a) 平面波的消光頻譜，黑色線段為 FEM 計算結果，不同線段表示不同的 D 值，紅點為 $D=0$ 時對應到 Mie 理論結果 (b) 不同 D 值所對應的「多極點消光頻譜的峰值波長」。[20].....	7
圖 9、(a) 奈米殼結構 (b) 奈米球結構 (c) 奈米蛋結構。[5]	7
圖 10、在外加電磁場的作用下，由於金屬與介電質垂直分量不連續，故在表面上形成面電荷密度為 $\sigma_{s(x,t)}$ 的自由電子。[22].....	9
圖 11，電荷密度在金屬表面上發生集體式電偶極震盪電場分量示意圖。電場離開介面會呈指數函數衰減的情況。電場在金屬內部衰減率要比在介電物質來得大。[21].....	9
圖 12、發生在空氣-銀表面電漿子的色散關係[21].....	12
圖 13、非輻射性表面電漿電磁波示意圖[22].....	12
圖 14、輻射性表面電漿電磁波示意圖[22].....	13
圖 15、(a) 入射電磁波穿透半徑 5nm 的金屬奈米球。(b) 入射電磁波影響金屬奈米球導電團使之產生電位移。.....	14
圖 16、金屬奈米球受到外加電磁場作用下激發電漿子震盪示意圖。(a) 金屬球	

上導電電子團到受電場作用後，以球體為中心發生電偶極 (dipole) 震盪現象，其金屬半徑 r 遠小於入射光波長。(b) 金屬奈米球的電漿子連貫性震盪示意圖。	14
圖 17、三層異質結構場圖 (a) 金屬厚度大時，兩介面表面電漿膜態互相獨立 (b) 金屬厚度小時，兩介面表面電漿膜態互相影響耦合。	15
圖 18、受激吸收能階圖	16
圖 19、自發輻射能階圖	17
圖 20、受激輻射能階圖	17
圖 21、雷射能階躍遷圖	18
圖 22、受激輻射引致表面電漿子放大元件能階躍遷圖	19
圖 23、簡易的雷射模型與其構成的要件	20
圖 24、雷射光在共振腔中來回震盪之模型	21
圖 25、金介電常數與奈米大小的相依性。(a) 介電常數實部 (b) 介電常數虛部 [7]	22
圖 26、銀介電常數與奈米大小的相依性。(a) 介電常數實部 (b) 介電常數虛部 [7]	23
圖 27、金屬銀與金的 spasing 頻率 ω —增益閾值 g_{th} 特性圖。紅線區分 $g_{th} < 3000 \text{cm}^{-1}$ (可藉由直接能帶半導體 (DBGS) 而相對容易達到)。增益介質的介電常數實部以 ϵ_d 表示。(a) $\epsilon_d = 2$ (b) $\epsilon_d = 10$ 。 [7]	23
圖 28、三能階活性介質系統	24
圖 29、奈米核-殼型態受激輻射引致表面電漿子放大元件其增益介質位於「殼外」及「殼內」 [4]	25
圖 30、模擬設定流程圖	31
圖 31、(a) 總場邊界條件設定圖、(b) 散射場邊界條件設定圖	32
圖 32、(a) 金屬全包覆結構 (Full metal SPASER)。(b) 半金屬殼型結構 (Metal semishell SPASER)。	33
圖 33、(a) 金屬全包覆結構在 $k=0$ 時的光學截面積頻譜圖。(b) 半金屬殼型結構在 $k=0$ 時的光學截面積頻譜圖。	34
圖 34、(a) 金屬全包覆結構在波長 651.243nm 時，以 k 為函數之光學截面積圖。(b) 半球殼奈米結構在波長 651.243nm 時，以 k 為函數之光學截面積圖。	34
圖 35、(a) 金屬全包覆結構在 $k=-0.09507$ 時的光學截面積頻譜圖。(b) 半球殼奈米結構在 $k=-0.0902$ 時的光學截面積頻譜圖。	35
圖 36、金屬全包覆結構電場分佈圖，其中紅色箭頭為能量流向。(a) 能量流大小歸一化。(b) 能量流大小正比於箭頭長度。	36
圖 37、半金屬殼型結構電場分佈圖，其中紅色箭頭為能量流向。(a) 能量流大小歸一化。(b) 能量流大小正比於箭頭長度。	36
圖 38、(a) 金屬全包覆結構的遠場極化圖。(b) 半金屬殼型結構的遠場極化圖。	

.....	37
圖 39、(a) 金屬全包覆結構的能量流極化圖。(b) 半金屬殼型結構的能量流極化圖。.....	37
圖 40、(a) 三層全包覆結構 (Three-layer SPASER)。(b) 三層半包覆結構 (Three-layer semishell SPASER)。	38
圖 41、(a) 三層全包覆結構在 $k=0$ 時的光學截面積頻譜圖。(b) 三層半包覆結構在 $k=0$ 時的光學截面積頻譜圖。	39
圖 42、(a) 三層全包覆結構波長 738.114nm 時，以 k 為函數之光學截面積圖。(b) 三層半包覆結構波長 651.243nm 時，以 k 為函數之光學截面積圖。	39
圖 43、(a) 三層全包覆結構在 $k=-0.09208$ 時的光學截面積頻譜圖。(b) 三層半包覆結構在 $k=-0.08413$ 時的光學截面積頻譜圖。	39
圖 44、三層全包覆結構電場分佈圖，其中紅色箭頭為能量流向。(a) 能量流大小歸一化。(b) 能量流大小正比於箭頭長度。	40
圖 45、三層半包覆結構電場分佈圖，其中紅色箭頭為能量流向。(a) 能量流大小歸一化。(b) 能量流大小正比於箭頭長度。	40
圖 46、(a) 三層全包覆結構的遠場極化圖。(b) 三層半包覆結構的遠場極化圖。	41
.....	41
圖 47、(a) 三層全包覆結構的能量流極化圖。(b) 三層半包覆結構的能量流極化圖。	41
圖 48、三層半球殼厚核結構 (Thicker core SPASER)。	41
圖 49、 $k=0$ 時的光學截面積圖 (吸收、散射、消光截面積)。	42
圖 50、(a) 結構在波長 655.84nm 時，以 k 為函數之光學截面積圖。(b) 結構在 $k=-0.08366$ 時的光學截面積頻譜圖。	43
圖 51、 k 為增益閾值時 ($k=-0.08366$)，(a) 各波長下所對應的平均電場值。(b) 各波長下所對應的最大電場值。	43
圖 52、 $k=k_{thre}$ 且波長 655.84nm 時的電場分佈圖，其中紅色箭頭表示能量流向。(a) 能量流大小歸一化。(b) 能量流大小正比於箭頭長度。	44
圖 53、 $k=0$ 且波長 661.73nm 時的電場分佈圖，其中紅色箭頭表示能量流向。(a) 能量流大小歸一化。(b) 能量流大小正比於箭頭長度。	44
圖 54、三層半球殼厚核結構。(a) 遠場極化圖。(b) 能量流極化圖。	45
圖 55、半包覆介電質殼結構 (Silica semishell SPASER)。	45
圖 56、 $k=0$ 時的光學截面積圖 (吸收、散射、消光截面積)。	46
圖 57、半包覆介電質殼結構。(a) 波長 655.84nm 時，以 k 為函數之光學截面積圖。(b) $k=-0.09375$ 時的光學截面積頻譜圖。	47
圖 58、 k 為增益閾值時 ($k=-0.09375$)，(a) 各波長下所對應的平均電場值。(b) 各波長下所對應的最大電場值。	47
圖 59、 $k=k_{thre}$ 且波長 726.7nm 時的電場分佈圖，其中紅色箭頭表示能量流向。(a) 能量流大小歸一化。(b) 能量流大小正比於箭頭長度。	48

圖 60、 $k=0$ 且波長 728.16nm 時的電場分布圖，其中紅色箭頭表示能量流向。(a) 能量流大小歸一化。(b) 能量流大小正比於箭頭長度。.....	48
圖 61、半包覆介電質殼結構。(a) 遠場極化圖。(b) 能量流極化圖。.....	48
圖 62、三層半包覆結構，其中最外殼層厚度為一變數 t 。.....	56
圖 63、不同二氧化矽殼層厚度的增益閾值。.....	57
圖 64. 不同二氧化矽殼層厚度的品質因子。其中黑線對應到左側 y 軸，為雷射膜態時的品質因子；紅線則對應到右側 y 軸，為空腔膜態時的品質因子。.....	57
圖 65、不同二氧化矽殼層厚度的品質因子。.....	58
圖 66. 不同二氧化矽殼層厚度的半高寬 (FWHM)。其中黑線對應到左側 y 軸，為雷射膜態時的半高寬；紅線則對應到右側 y 軸，為空腔膜態時的半高寬。..	58
圖 67、不同二氧化矽殼層厚度的半高寬。.....	59
圖 68、不同二氧化矽殼層厚度的共振波長。.....	60
圖 69、不同二氧化矽殼層厚度的有效膜態面積。.....	61
圖 70、不同二氧化矽殼層厚度的有 Purcell factor。.....	61
圖 71、不同二氧化矽殼層厚度的截面積。.....	62
圖 72、不同二氧化矽殼層厚度的放大率。其中黑線對應到左側 y 軸，為散射放大率，紅線則對應到右側 y 軸，為吸收放大率。.....	62



第一章 緒論

1.1 前言

科技日新月異，對於電子產品的需求也與日俱增，受到莫爾定律的驅動下，積體電路晶片整合之電路數目每隔 18 個月增加一倍、微處理器效能提高一倍，IC 講求效能快且體積小！然而在積體電路不斷追求縮小線寬尺寸的要求下，訊號的傳輸上遇到延遲效應、失真與耗能等問題。而光子傳輸不會有電容附載效應 (capacitive loading effects)，能夠有效避免大量的損耗，提供快速及無失真的訊號傳輸，能克服積體電路線寬縮小時所遇到的問題，並突破現代的電子產品效能，故利用光取代運算速度相對低的電子一直是致力的目標。而同調光源具有光通訊、生物感測、資料儲存、光學微影等應用，成為人們研究重點之一。

目前積體電路尺度發展至今已可以微縮至奈米等級，若要以光路取代電路，勢必須將同調光源微縮至相同尺寸，然而傳統的半導體雷射受限於光學繞射限制，要達到雷射所需的回饋機制，其光學共振腔至少需光波波長的長度，約莫為微米等級，其體積仍遠大於積體電路傳輸尺寸。同時，將雷射能量聚焦到奈米尺度下仍受到限制，最多僅能集中在微米範圍。

儘管將能量聚焦於奈米尺度的光源選擇性多，但因它們具散射背景場及非局域光場，因此無法提供用以引致非線性過程所需的強度或是飛秒光譜學 (femtosecond spectroscopy) 所需的超快速度，一個不會耦合到遠場區的光場理想奈米源需求油然而生 [1]，目前存在的局域光場奈米源沒有完全擁有這些特性，但是受激輻射引致表面電漿子放大元件的提出為此帶來一線希望，不僅如此，受激輻射引致表面電漿子放大元件為一種利用表面電漿子的奈米尺寸光傳輸元件，它提供了方法完善的解決「光纖傳輸其相關硬體設施體積遠大於積體電路傳輸尺寸」之問題。

在 2003 年，Bergman 及 Stockman 提出了 SPASER 的理論 [2] (即 surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation 的縮寫，受激輻射引致表面電漿子放大)，藉由表面電漿子的放大達到雷射的回饋機制，由於金屬奈米粒子本身即為共振腔體，故能將尺寸限制在深次微米等級，克服傳統雷射無法微縮的困難。然而使用金屬腔體微縮雷射的尺寸雖是一個可行的方法，但是金屬腔體會吸收造成能量損耗，尤其是在可見光頻段更為嚴重，因此克服損耗是一重要的課題。

在應用層面上，因受激輻射引致表面電漿子放大元件具高密度的光場及可產生奈米局域同調量子等特性，可作為主動元件之用。目前奈米尺度放大器元件主流為金屬氧化物半導體場效電晶體 (MOSFET) [3]，儘管應用廣泛，但受於頻率及帶寬需小於 100G 赫茲限制、對溫度具高敏感性，還有電場及離子輻射 (ionizing radiation) 等問題限制了環境條件及其應用如：核能科技、軍事用途。未來也可望受激輻射引致表面電漿子放大元件作為超快奈米放大器 (ultrafast nanoamplifier) [4] 將 MOSFET 取代之。

1.2 受激輻射引致表面電漿子放大元件概論

關於受激輻射引致表面電漿子放大元件之起源，最早可追溯至西元 2003 年，Bergman 及 Stockman 提出 SPASER 概念[2]，採用特殊奈米結構：排列成 V 字型的金奈米粒子並鑲嵌著量子點，其中金屬粒子作為受激輻射引致表面電漿子放大元件的共振腔，量子點為增益介質且由中性基板所支撐，如圖 1 所示。他們觀察受激輻射引致表面電漿子放大之雷射情形，發現受激輻射引致表面電漿子放大元件會產生同調高密度場且侷限在奈米尺度，並預期受激輻射引致表面電漿子放大元件可作為奈米電漿子元件。

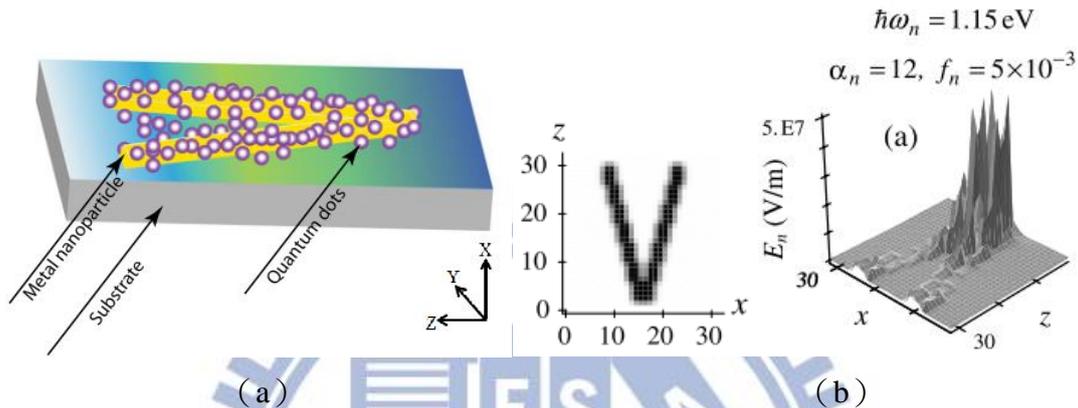


圖 1、(a) 最初由 Bergman 及 Stockman 所提出的 V 型受激輻射引致表面電漿子放大元件結構及位置圖。[2,5] (b) V 型受激輻射引致表面電漿子放大元件的場值分布圖，最強增益發生在亮本徵膜態 $\hbar\omega_n = 1.15\text{eV}$ 且在 V 型的尖端處具有高強度局域場。[2]

在受激輻射引致表面電漿子放大元件提出後，相關理論及實驗也相繼問世，在理論的領域上，提出可聚焦於奈米尺度的局部場 (the hot spot) 的「奈米鏡受激輻射引致表面電漿子放大元件」[6]，而文獻[2, 6]中在擾動理論基礎上建立了 spasing 的必要條件。也有一些理論發表描述 SPP SPASER (有時亦稱奈米雷射) 現象，考慮將增益介質視為折射率虛部為負的介電材料並建立在古典線性電動力學基礎上[7]。有關於 metamaterials 損耗補償的基礎也提出[8-11]，但這類的線性響應方法並沒有考慮非平衡相時 spasing 的作用。受激輻射引致表面電漿子放大元件必為一個非線性現象，其同調表面電漿子共振所引致的場常使增益介質飽和，最終建立 spasing 穩態區 (或是連續波 continuous wave (CW)) [4]。線性響應結果的主要差異是源自於微觀量子力學理論中 spasing 區域。藉由電性激發的蝴蝶結受激輻射引致表面電漿子放大元件的理論也發表[12]，這是基於平衡方程式且僅描述 CW spasing 密度產生；由平面陣列構成的 lasing SPASER 理論也隨之發展[13]。上述所提及之理論發表皆是處理連續波的區段。

在實驗領域方面，我們便針對近年奈米雷射較具代表性的研究進行文獻探討。2007 年，M.T.Hill 研究團隊[14]首次利用電性幫泵激發金屬包覆型奈米雷射結構，以理論模擬及實驗並行實現之，其結構以金包覆 (磷化銦—砷化銦鎵—磷化銦) 半導體圓柱，並在圓柱側邊設置氮化矽絕緣層，其中砷化銦鎵作為雷射主動層材料，包覆半導體的金自成一金屬腔體，並在奈米柱的頂端注入電子，在 p-InGaAsP 及大面積橫向接觸面注入電

洞，如圖 2a 所示。利用金屬—半導體—金屬材料的搭配，金屬腔體能有效的將光場侷限在主動層（圖 2b），且該 HE_{11} 膜態在砷化銦鎵截止頻率附近產生共振。該雷射具有低臨界電流且為當時最小電性激發的雷射尺寸。也展現了金屬包覆的奈米腔體其膜態體積會小於介電質腔體且可以調變品質因子。

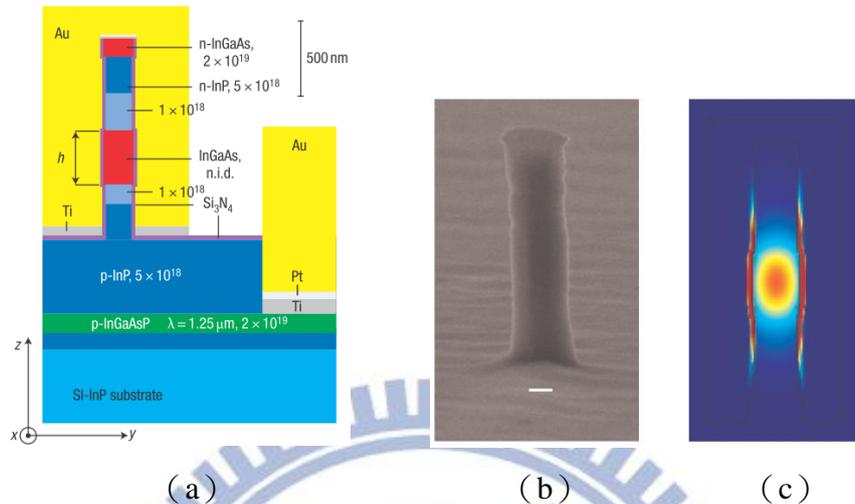


圖 2、金屬包覆型奈米雷射。(a) 結構剖面圖 (b) 實驗製作的奈米柱所拍攝的 SEM (c) 三維 FDTD 模擬之場分布圖。[14]

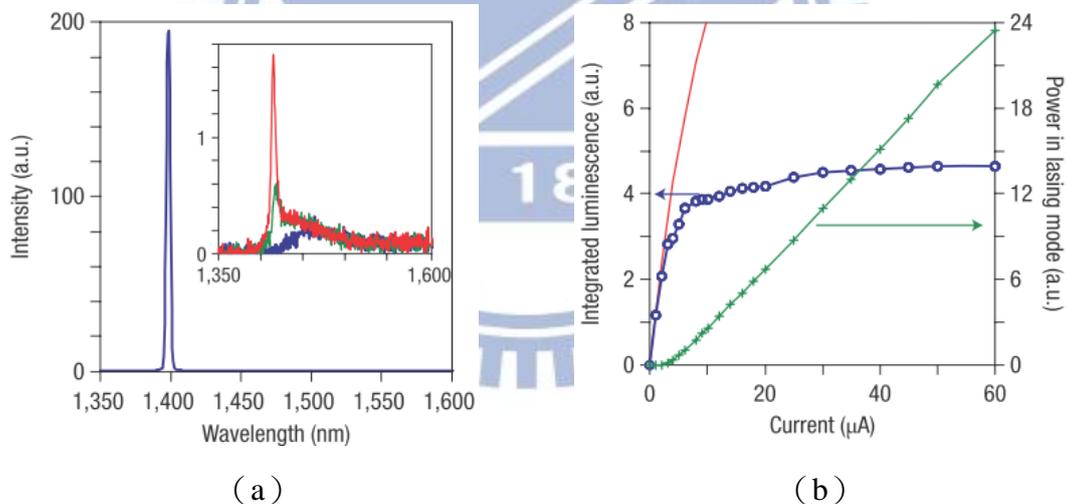


圖 3、(a) 注入電流 $200 \mu A$ 的雷射頻譜[插圖為注入電流達 $2 \mu A$ (藍線)、 $4 \mu A$ (綠線)、 $6 \mu A$ (紅線) 的雷射頻譜] (b) 雷射光強度與注入電流關係圖。[14]

2008 年，R.F. Oulton[15,16] 等人提出混合電漿波導型 (hybird plasmonic wavelength) 奈米雷射的概念，將半導體 CdS 奈米線置於金屬銀上，並在兩者間佈層奈米厚的絕緣層 MgF_2 ，如圖 4 所示，該結構是藉由奈米線產生的波導膜態與金屬表面的表面電漿膜態耦合，使得能量儲存於非金屬區域，形成混合電漿型波導態。此膜態將兼具波導模態的低損耗特性以及表面電漿模態的高侷限能力，能夠使半導體和金屬介面附近光場被侷限在比繞射限制小百倍的極小區域中。實驗結果也顯示，比起介電材料的光子雷射，表面電

漿雷射更能夠微縮其物理尺寸。

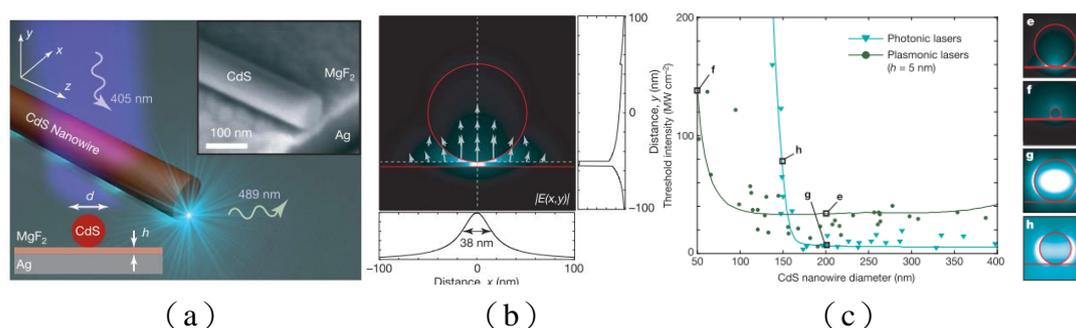


圖 4、混合型電漿波導型奈米雷射。(a) 結構示意圖。(b) 光場分布圖。(c) 光子雷射與電漿雷射的閾值強度對尺寸的關係圖。[16]

2009 年，M. A. Noginov 等人使用直徑分別為 14nm 及 15nm 的金核與摻雜染色分子（作為增益介質）之二氧化矽殼層構成之受激輻射引致表面電漿子放大元件（圖 5a）[17]，並將其奈米粒子浸在水溶液中，樣品至於長 2mm 的小玻璃管中，並外加波長 488nm 且時脈 5ns 的脈衝，得到其輻射頻譜（圖 5b），進而了解受激輻射效應。其結構藉由增益完全克服局域表面電漿的損耗，並用實驗實現之，是當時報導的最小的奈米雷射，且是第一個操作在可見光波段（531nm）。

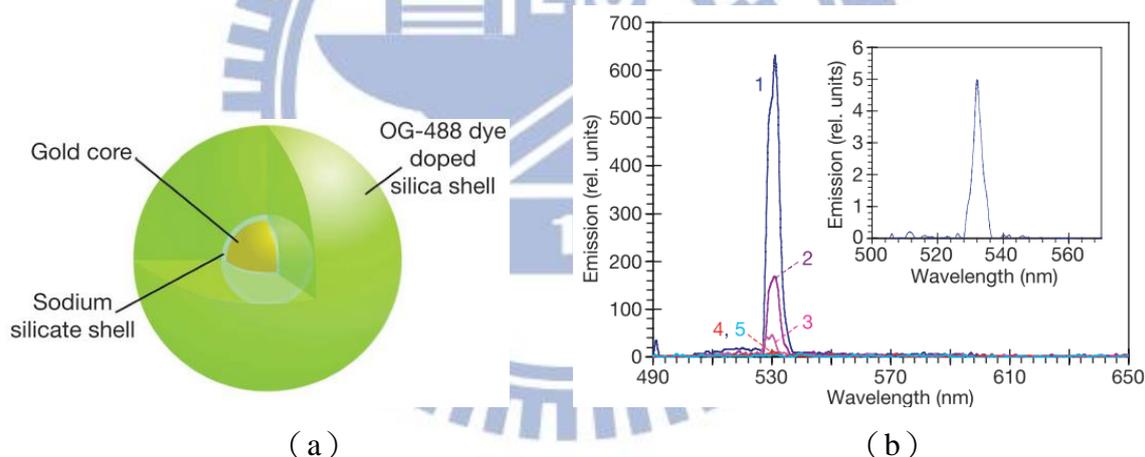


圖 5、(a) 受激輻射引致表面電漿子放大元件腔體設計，(b) 採用脈衝 5ns、波長 488nm 的激發源，但激發能量分別為 (1) 22.5mJ (2) 9mJ (3) 4.5mJ (4) 2 mJ (5) 1.25 mJ 打入玻璃管中所獲取的奈米粒子受激輻射頻譜圖。右上小圖為樣品濃度稀釋 100 倍後所得的受激輻射頻譜圖。[17]

2012 年，Xiangeng Meng 等人利用介電質核及金屬半球殼組成的共振腔體的不對稱受激輻射引致表面電漿子放大元件（圖 6a），對於單一粒子的方向性控制佳，以此結構為例，回沿著半球殼軸輻射出光（圖 6b），且其 spasing 效率是高於一般封閉式核-殼（core-shell）一個數量級大。計算顯示破壞一些對稱性的結構可產生單一方向輻射、高密度、深次微米尺度同調光源。[18]

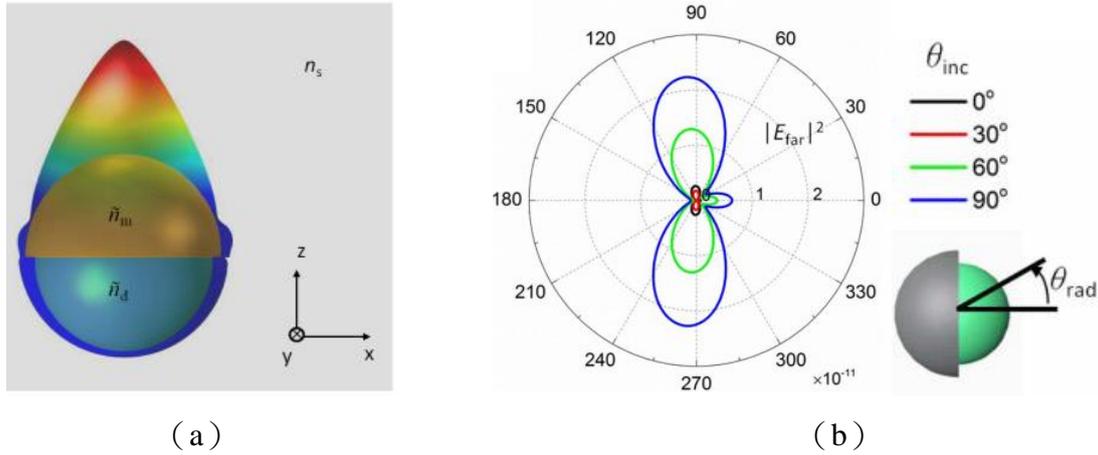


圖 6、(a) 金屬半球受激輻射引致表面電漿子放大元件腔體構造，由半徑 100nm、摻雜增益介質的二氧化矽為核，金屬銀包覆其半球面，其厚度為 10nm。(b) 半球殼受激輻射引致表面電漿子放大元件的遠場極化圖，及極化圖相對應的結構位置及入射角度。[18]

2013 年，Pei Ding 等人提倡藉由（與金屬殼層）偏移的摻雜增益介質的介電核、或是藉由非對稱性核-殼（core-shell）等結構，如圖 7，可以大幅減少核-殼奈米粒子的受激輻射引致表面電漿子放大元件的增益臨界值。[19]

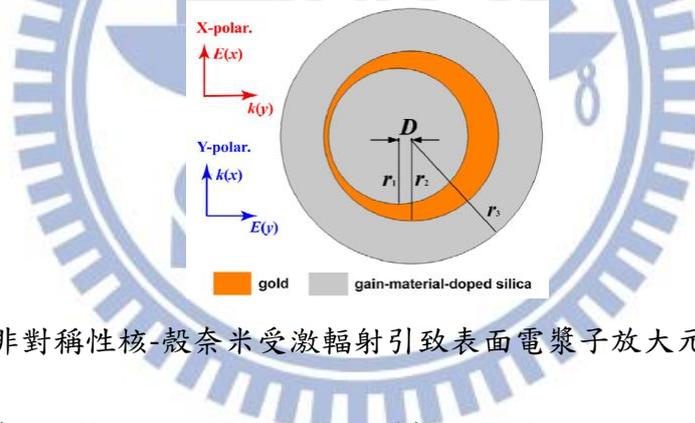


圖 7、非對稱性核-殼奈米受激輻射引致表面電漿子放大元件結構。

表 1、不同結構（對稱性及非對稱性核-殼結構）及不同極化方向下（X 極化、Y 極化）的各參數值：共振波長（ λ_{res} ）、品質因子（ Q ）、增益閾值（ k_{thre} ）。[19]

Core offset	Mode index	λ_{res} (nm)	Q	k_{thre}	
$D = 0$ nm	$l = 1$	797.5	16.4	0.080 128	
	X-polarization ($E \parallel x$)	$l = 1$	914.4	19.6	0.058 531
		$l = 2$	778.8	22.3	0.056 177
$D = 4$ nm	$l = 3$	697.2	24.5	0.054 006	
	Y-polarization ($E \parallel y$)	$l = 1$	952.5	15.5	0.060 441
		$l = 2$	785.2	21.8	0.056 391
		$l = 3$	699.4	24.5	0.054 526

1.3 研究動機與目的

SPASER 利用受激輻射引致表面電漿放大達到雷射所需之回饋機制，不僅突破傳統雷射之光學繞射限制，將腔體微縮至遠小於波長之等級，還能將光源聚焦於奈米尺度，若將此元件運用於光運算系統以取代目前電晶體為主的電運算系統，理論預測其運算速度可大幅提升 1000 倍[4]。此外，該光子元件能微縮至與電晶體相仿之尺寸，可促成單一矽晶片上整合電漿子及奈米電子元件的發展並拓展其應用價值，可望成為後勢看漲之奈米光源。

欲提升受激輻射引致表面電漿子放大元件操作效能，如：增益閾值、品質因子、Purcell factor，除了直觀改變金屬抑或是增益介值材料，如：金屬部分使用可見光波段損耗較低之銀取代金，也因表面電漿模態的交互作用與奈米粒子之表面密切相關，不同的金屬—介電質奈米粒子幾何結構能夠支持不同的電漿膜態，因而我們可以藉由不同幾何形狀結構設計，亦能達到改善元件特性之目的。

而目前文獻已刊載許多特殊結構設計，其中 Mark W Knight 等人[20]以核—殼型奈米粒子為主軸，分別針對不同的結構設計：奈米殼 (nanoshell)、奈米蛋 (nanoegg) 以及奈米杯 (nanocup)，探討其近、遠場光性。定義一核殼偏移參數 D ($D = offset/R_2 - R_1$) 區分各結構，奈米殼 ($D=0$) 其結構為金殼 ($R_2 = 35nm$) 包覆二氧化矽球狀核 ($R_1 = 30nm$)，而奈米蛋則是在殼內偏移球核位置 ($0 < D < 1$)，若球核偏移量大於殼層厚度，球核刺穿殼層時即為奈米杯結構 ($D > 1$)。奈米杯結構比起奈米殼具有較大的近場增強效應，且發現 $D \approx 1$ 其吸收及散射截面積—頻譜特性圖上，具有多重極點且峰值有顯著紅位移，該多極點現象可由原始球體電漿膜態與核腔體電漿膜態混合耦合效應解釋，一旦球核刺穿殼層，隨著 D 越大，峰值波長則有藍位移現象。此外，對於超出準靜態區的更大奈米蛋結構而言，奈米粒子的吸收與散射相對比與「核殼偏移」和「整體粒徑」具相關性。這項研究結果顯示受激輻射引致表面電漿子放大元件可藉由改變偏移量 D 的大小達到調變共振波長之目的，且不同幾何形貌會產生不同近遠場特性，此特性將提供一個可調變控制的奈米結構，可作為特定應用並在實際應用上更加廣泛，如：高性能表面增強光譜、生物成像和奈米基礎療法。

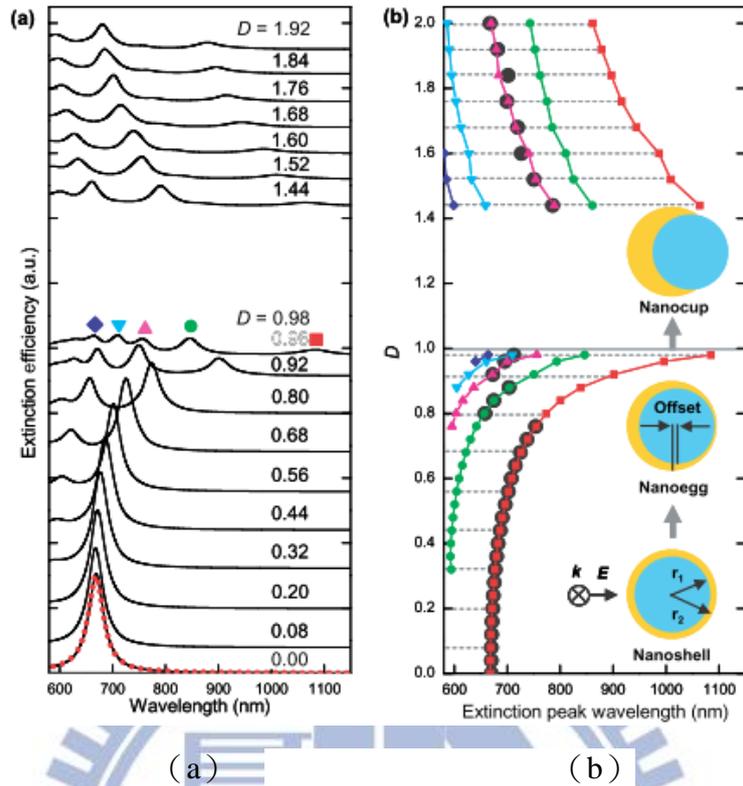


圖 8、由金殼 ($R_2 = 35nm$) 包覆二氧化矽核 ($R_1 = 30nm$) 的奈米蛋及奈米杯型結構遠場消光特性。(a) 平面波的消光頻譜，黑色線段為 FEM 計算結果，不同線段表示不同的 D 值，紅點為 D=0 時對應到 Mie 理論結果 (b) 不同 D 值所對應的「多極點消光頻譜的峰值波長」。^[20]

2012 年，Haopeng Zhang 等人^[5]提出「二氧化矽—金屬—二氧化矽」奈米殼結構 (增益閾值 $k = 0.080075$)，相較於奈米球結構 ($k = 0.5503$) 及奈米蛋結構 ($k = 0.11308$)，其增益閾值約小一個數量級。此外，在增益閾值處奈米殼結構相較於奈米球及奈米蛋兩種型態具有較高的表面電漿放大的強度及較大的吸收及散射截面積。綜觀上述論點，為求取得最佳化的受激輻射引致表面電漿子放大元件，故以金屬全包覆結構作為我們此篇研究的結構形式。

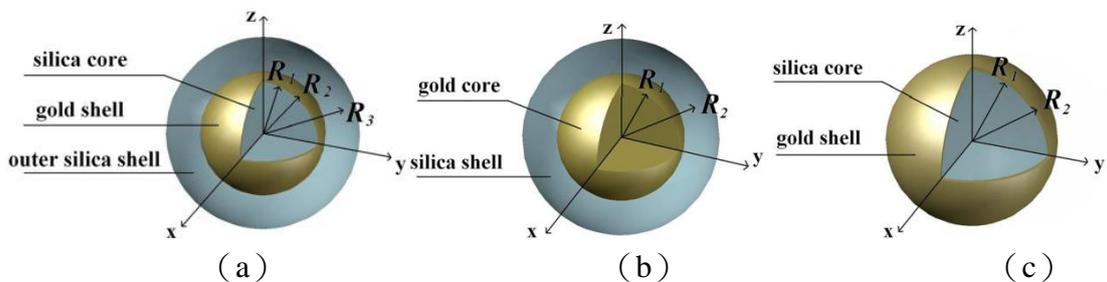


圖 9、(a) 奈米殼結構 (b) 奈米球結構 (c) 奈米蛋結構。^[5]

第二章 受激輻射引致表面電漿子放大 元件基礎理論

2.1 表面電漿子

「電漿」原用以形容以自由電子和帶電離子為主要成分的物質型態，然而在金屬內部自由電子可視為限制在金屬體積範圍內的高密度電子流體，故可視為一種電漿系統。

由於金屬中的自由電子可以任意移動，並會隨外加電場的激發而發生電偶極振盪的現象，稱之「表面電漿震盪」，若將此行為量化，即「表面電漿量子波」，這種激發貴金屬材料表面而形成的自由電子密度集體震盪波，會以表面波形式沿著金屬介面傳播。金屬的表面電漿共振以共振區域作為區分可分為四種：金屬的體積電漿共振模態（描述大面積金屬板的共振現象）、有限厚度薄板的表面電漿模態、介電物質與金屬介面的表面電漿共振模態、局域性表面電漿共振模態，以下便特別針對後兩者進行詳述。

2.1.1 介電物質與金屬介面的表面電漿共振模態

表面電漿子以表面波的形式在金屬與介電物質介面上傳播，是存在於金屬與介電質界面的表面電磁波。

位於金屬表面的自由電子，受到電磁波作用下，表面電子會產生集體運動。若考慮一 TM 極化的電磁波從介電物質經由介面入射到金屬中時，在金屬與介電質的垂直方向上的內外電場分量不連續，使得金屬表面處累積自由電子，其表面極化電荷密度為 σ_s 。若在適當的條件下，受到外加電磁波平行於介面的電場向量驅動，這些表面電荷密度的空間分布將會沿介面產生縱波形式的震盪，即金屬的表面振盪，如圖 10、圖 11 所示， $z < 0$ 是金屬的部分， $z > 0$ 是介電材料或是真空。 ϵ_1 、 ϵ_2 分別代表介電質及金屬的介電係數。這些集體運動的自由電子也形成所謂的表面電漿量子，且其表面電漿振盪所產生之電磁波亦具有特定的色散關係及共振頻率[21,22]。

另一方面，對於 TE 極化波而言，由於其電場在介面處只有沿著介面方向連續的水平向量，故無法在介面處累積自由電子產生極化強度，無法造成表面電漿共振模態。

然而隨著人造的負折射物質出現後，因其負磁導率故可允許 TE 的表面電漿子振動模式存在。依據文獻顯示，在同一頻率下，表面電漿子的 k_x 會比平面波來的大，故一般平面波的入射到金屬表面並不會激發表面電漿子效應。若要激發表面電漿子，需透過全反射產生消散波（evanescent wave）。

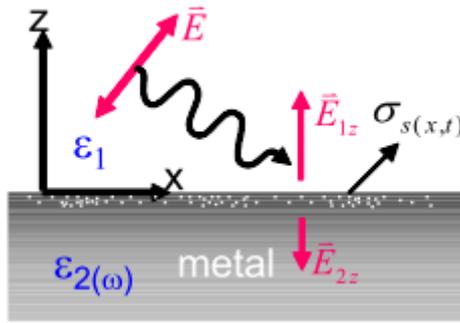


圖 10、在外加電磁場的作用下，由於金屬與介電質垂直分量不連續，故在表面上形成面電荷密度為 $\sigma_{s(x,t)}$ 的自由電子。[22]

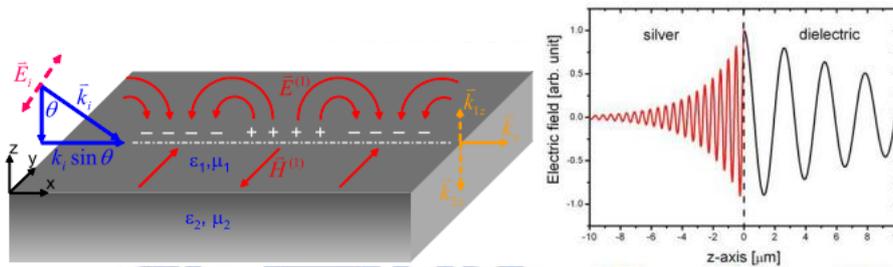


圖 11，電荷密度在金屬表面上發生集體式電偶極震盪電場分量示意圖。電場離開介面會呈指數函數衰減的情況。電場在金屬內部衰減率要比在介電物質來得大。[21]

考慮一表面波以 TM 偏振方式（指磁場方向垂直於入射平面，即圖的 xz 平面）在介面上（ $z=0$ ）傳播，該表面波的電場與磁場波函數可以表示如下（下標 1、2 分別代表位於介電質及金屬處）：

位於介電物質中($z > 0$)

$$\mathbf{H}_1 = (0, H_{y1}, 0) e^{i(k_{x1}x + k_{z1}z - \omega t)}$$

$$\mathbf{E}_1 = (E_{x1}, 0, E_{z1}) e^{i(k_{x1}x + k_{z1}z - \omega t)}$$

(1)

位於金屬中($z < 0$)

$$\mathbf{H}_2 = (0, H_{y2}, 0) e^{i(k_{x2}x - k_{z2}z - \omega t)}$$

$$\mathbf{E}_2 = (E_{x2}, 0, E_{z2}) e^{i(k_{x2}x - k_{z2}z - \omega t)}$$

為了滿足邊界條件(boundary condition)以及利用平行介面方向之波向量分量 (k_x) 在各物質中皆相同的性質。電、磁場在介面上須滿足下式條件：

$$\begin{aligned}
H_{y1} &= H_{y2} \\
E_{x1} &= E_{x2} \\
\varepsilon_1 E_{z1} &= \varepsilon_2 E_{z2} \\
k_{x1} &= k_{x2}
\end{aligned} \tag{2}$$

ε_1 : 介電物質的介電係數

ε_2 : 金屬的介電係數

考慮表面波對稱的因素，所以要求 $E_{z1} = -E_{z2}$ ，代入式 (2) 可以得到介電物質和金屬的介電係數關係 (式 (3))，這也就是為什麼需要利用具有負介電係數的金屬激發表面電漿的原因。

$$\varepsilon_2 = -\varepsilon_1 \tag{3}$$

利用 $\varepsilon_2 = -\varepsilon_1$ 可以得到平板表面電漿子頻率 ω_{sp} 。利用 Drude's model 得到金屬在高頻極限下的介電係數 (式 4)。其中， ω_p 為塊材電漿共振頻率 (bulk plasma frequency)

$$\varepsilon_2(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \tag{4}$$

將式 (4) 代入式 (3)，可得到：

$$\begin{aligned}
\varepsilon_1 + 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega_{sp}^2} &= 0 \\
\omega_{sp} &= \omega_p \sqrt{\frac{1}{\varepsilon_1 + 1}}
\end{aligned} \tag{5}$$

藉由馬克示威旋度方程式 (Maxwell equation) : $\nabla \times H_i = \varepsilon_i \frac{\partial E_i}{\partial t}$, $i=1,2$, 可得到

$$\begin{aligned}
k_{z1} H_{y1} &= \varepsilon_1 \omega E_{x1} \\
k_{x1} H_{y1} &= -\varepsilon_1 \omega E_{z1} \\
k_{z2} H_{y2} &= -\varepsilon_2 \omega E_{x2} \\
k_{x2} H_{y2} &= -\varepsilon_2 \omega E_{z2} \\
\frac{k_{z1}}{\varepsilon_1} + \frac{k_{z2}}{\varepsilon_2} &= 0
\end{aligned} \tag{6}$$

將式 (6) 代入邊界條件式 (2)，可得到金屬平面表面電漿色散關係

$$k_{sp} = k_x = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_1 \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2}} = k'_{sp} + ik''_{sp} \quad (7)$$

金屬的介電係數 $\epsilon_2(\omega)$ 可表示為

$$\begin{aligned} \epsilon_2(\omega) &= \epsilon'_2 + i\epsilon''_2 \\ &= 1 + \frac{i\sigma(\omega)}{\epsilon_0 \omega} = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + i\omega\gamma_D} \\ &\approx 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \text{ (假設 } \gamma_D \text{ 可以忽略的情況下)} \end{aligned} \quad (8)$$

因為金屬介電係數可以表示為 $\epsilon_2 = \epsilon'_2 + i\epsilon''_2$ ，故 k_{sp} 可用複數形式 $k_{sp} = k'_{sp} + ik''_{sp}$ 表示。將

$\epsilon_2 = \epsilon'_2 + i\epsilon''_2$ 代入式 (7) 且因 $k'_{sp} \gg k''_{sp}$ ，可得到

$$k_{sp} = k'_{sp} + ik''_{sp} \approx k'_{sp} \left[1 + \frac{1}{2} \frac{\left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \frac{i\epsilon''_2 \epsilon_1^2}{(\epsilon_1 + \epsilon_2)^2 + \epsilon_2''^2}}{k_{sp}^{\prime 2}} \right] \quad (9)$$

$$k'_{sp} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\epsilon_1 (\epsilon_2'^2 + \epsilon_2' \epsilon_1 + \epsilon_2''^2)}{(\epsilon_1 + \epsilon_2')^2 + \epsilon_2''^2}} \quad (10)$$

$$k''_{sp} = \left(\frac{\omega}{c}\right)^2 \frac{1}{2k'_{sp}} \frac{\epsilon_2'' \epsilon_1^2}{(\epsilon_1 + \epsilon_2')^2 + \epsilon_2''^2} \quad (11)$$

藉由式 (6) $\frac{k_{z1}}{\epsilon_1} + \frac{k_{z2}}{\epsilon_2} = 0$ 、式 (8) 以及波向量關係式 $k^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon \mu$ ，可得到表面電漿電磁

場的波向量在各物質中的分量 k_x 、 k_{z1} 及 k_{z2} ，其式表示如下：

$$\begin{aligned} k_x &= \frac{\omega}{c} \left[\frac{\epsilon_1 (1 - \omega_p^2 / \omega^2)}{(1 + \epsilon_1 - \omega_p^2 / \omega^2)} \right]^{1/2} \\ k_{z1} &= \frac{\omega}{c} \left[\frac{\epsilon_1^2}{(1 + \epsilon_1 - \omega_p^2 / \omega^2)} \right]^{1/2} \\ k_{z2} &= \frac{\omega}{c} \left[\frac{(1 - \omega_p^2 / \omega^2)^2}{(1 + \epsilon_1 - \omega_p^2 / \omega^2)} \right]^{1/2} \end{aligned} \quad (12)$$

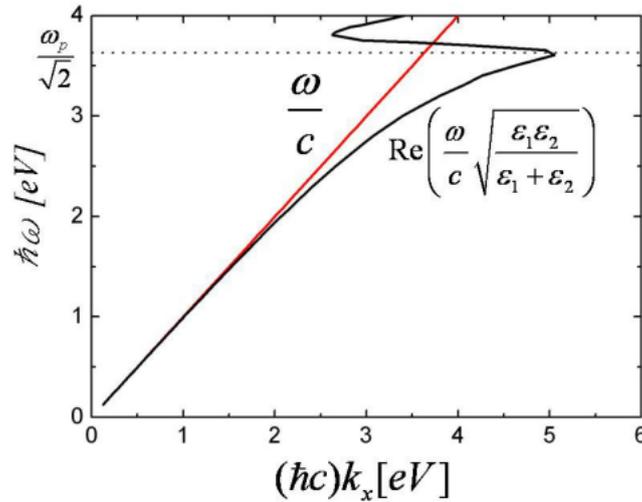


圖 12、發生在空氣-銀表面電漿子的色散關係[21]

圖 12 黑線為發生在空氣-銀表面電漿子的色散關係，紅色線為平面波在真空環境傳播的色散關係。由此可知，在相同頻率下，表面電漿的 k_x 會比平面波還大，故一般的平面波入射到金屬表面是無法激起表面電漿效應，除非是利用全反射產生的消散波。

在要求 k_x 為實數的前提下，從式 (12) 可以知道，表面電漿的電磁場可以分為非輻射性及輻射性兩種表面電漿模態類型。

一、非輻射性表面電漿模態：

當用以激發表面電漿的電磁波其頻率 (ω) 小於 $\omega_p/\sqrt{1+\epsilon_1}$ ，即 $\omega < \omega_p/\sqrt{1+\epsilon_1}$ ，其中 ω_p 為電漿共振頻率，表面電漿振盪所產生的電磁場會沿著平行於介面的方向傳播，而在垂直於介面的方向，電磁場的振幅會隨著遠離介面而成指數遞減，此類型的稱為「非輻射性表面電漿模態」，其產生的電磁場會限制在金屬表面附近，是一種消散場電磁波，對於常用的金屬而言，表面電漿共振頻率在可見光範圍即屬於此類型，如圖 13。

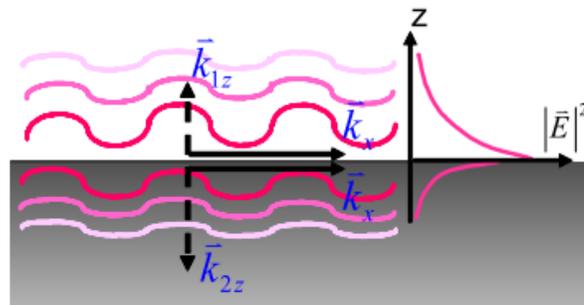


圖 13、非輻射性表面電漿電磁波示意圖[22]

二、輻射性表面電漿模態：

用以激發表面電漿的電磁波其頻率 (ω) 大於 $\omega_p/\sqrt{1+\epsilon_1}$ ，即 $\omega > \omega_p/\sqrt{1+\epsilon_1}$ ，此表面電漿所產生之電磁場會輻射傳播至遠離介面之空間中，此為「輻射性表面電漿模態」

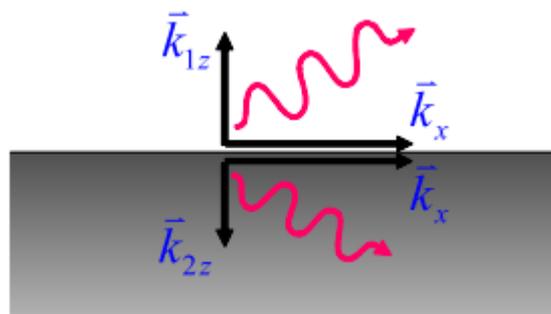


圖 14、輻射性表面電漿電磁波示意圖[22]

2.1.2 局域性表面電漿共振模態

以上描述單一介電質與金屬介面或是有限厚度的金屬薄板的表面電漿共振，其形成的電磁場皆可以沿著金屬表面而傳播，但是當金屬為有限大小的奈米結構或是金屬表面具有微週期結構下，表面電漿子的共振便不再沿金屬介面傳播，會局限在微小金屬結構附近，故稱「局域性表面電漿」(Localized surface plasmon)。

以半徑 5nm 金屬奈米球為例，由於其半徑小於穿透膚深，故入射電磁波能夠穿透整個粒子並影響奈米粒子的導電團產生集體震盪的現象，稱之為「表面電漿子現象」，如圖 15.16。受到入射電場影響，奈米粒子的導電團脫離原子核產生電子位移（相對於晶格），並在其電子位移相反之方向留下正電荷，而電子與原子核間的庫倫引力會牽制原子核一起震動，其連貫性的震盪運動如圖。當表面電漿子的頻率 ω_{sp} 接近於激發光源之頻率，會產生共振之現象，由於局域性表面電漿共振的電磁場受限在微小的區域中，其電磁場強度具有局域場增強之現象。

奈米系統中的半徑 R 小於穿透膚深，不僅定義光場能量中的局域範圍，且會隨著系統大小變化而改變其場空間分布，換言之，局域性表面電漿的共振膜態如：共振波長及峰值處的線寬等特性會與奈米金屬結構的幾何形狀及大小密切相關，因此對於設計一個具雷射功能的奈米粒子受激輻射引致表面電漿子放大元件而言具極大的設計彈性空間，且其電漿子共振之電磁場也會局限在小空間區域，並有局域電磁場增強之效果。

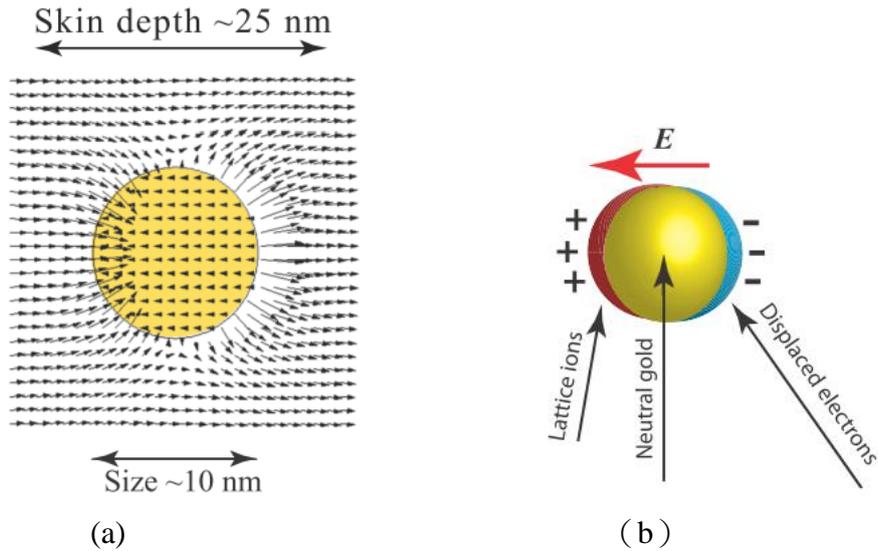


圖 15、(a) 入射電磁波穿透半徑 5nm 的金屬奈米球。(b) 入射電磁波影響金屬奈米球導電團使之產生電位移。

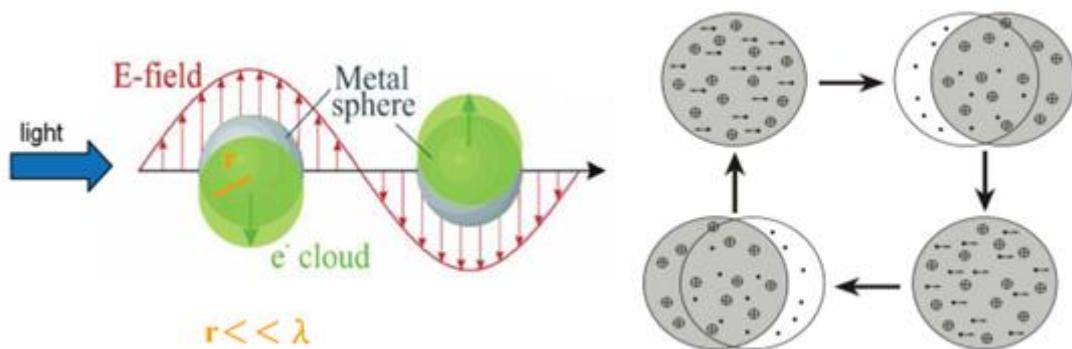


圖 16、金屬奈米球受到外加電磁場作用下激發電漿子震盪示意圖。(a) 金屬球上導電電子團到受電場作用後，以球體為中心發生電偶極 (dipole) 震盪現象，其金屬半徑 r 遠小於入射光波長。(b) 金屬奈米球的電漿子連貫性震盪示意圖。

圖源自：「利用金奈米粒子之侷域性表面電漿效應提升有機太陽能電池元件特性」碩士論文

由於金屬奈米粒子尺寸遠小於入射光波波長，故可以忽略金屬粒子的集膚效應 (Skin depth effect) 且可視為在一電場恆定的環境下，可用「準靜電理論」 (Quasi-static approximation) 描述其振盪行為。但是當金屬奈米粒子逐漸增大並超過準靜態限制條件時，其粒子光學消光特性將從吸收主導逐漸轉為散射主導，且高次項的貢獻越益明顯，漸漸佔據主導作用，此時，對於分析奈米粒子的光學吸收，由球形邊界條件下求解馬克示威方程組獲得的 Mie 散射理論更加適用。

Mie 理論描述等向球體對入射平面波產生的散射現象，不僅提供散射、吸收、消光等資訊，它還提供如四級、八級等高次項訊息以及散射光的角分布和光牆的空間分布等特性。

多層結構電漿共振

2-1-1 中分析金屬—介電質界面的表面電漿性質，此為理想情況，但在實際應用上，其結構會更加複雜。以本研究的結構「介電質—金屬—介電質」為例，其相對介電常數依序為 ϵ_1 、 ϵ_2 、 ϵ_3 ，金屬厚度較大時，兩介面電漿膜態彼此獨立（圖 17a），但隨著金屬厚度減小，金屬—介電質的兩介面非常接近時，其場重疊，導致兩介面上的表面電漿子之間發生耦合（圖 17b），耦合的表面電漿子與單介面的表面電漿子性質上會有所差異，需從場的分布分析。

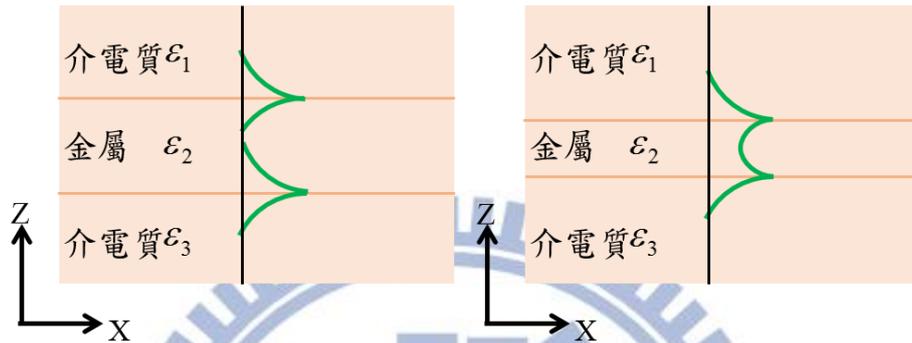


圖 17、三層異質結構場圖 (a) 金屬厚度大時，兩介面表面電漿膜態互相獨立 (b) 金屬厚度小時，兩介面表面電漿膜態互相影響耦合。

2.1.3 應用與挑戰

由於表面電漿之電磁場為一消散場，當受到外在電磁波激發而發生共振時，激發源的電磁場能量會被吸收並侷限在產生表面電漿子的奈米尺度結構附近，因此在產生共振處的光學近場範圍內，電磁場強度（或電磁波能量）將會有顯著地增強現象，其金屬表面增強特性也已用於各類表面光譜的測量上，如表面增強拉曼量測(Raman spectrum)、二階諧波生成及螢光現象。

表面電漿模態約束在金屬表面附近，除了突破長久以來的光學繞射極限造成元件無法微縮之困境外，其局域特性使得表面電漿子對金屬表面結構、介面組成物質或金屬厚度等的變化具有高靈敏度，可應用於生物、化學甚至是微量成分氣體與液體的感測。藉由表面電漿共振的全反射光譜也可作為薄膜物質的厚度及光學常數(如折射率)精確量測。因此，表面電漿子應用廣泛：奈米光學、metamaterials、影像、生物感測、thermally assisted magnetic recording[23]、generation of extreme UV、SP-assisted thermal cancer treatment、奈米光學微影術(photolithography)、近場光學顯微術(near-field optical microscopy)[24, 25]、超高密度光學儲存(如近場超解析光碟片)。然而這些應用卻受到限制：因電子振盪及其他損耗機制造成在可見光及近紅外光波段表面電漿子生命週期短，為了克服此障礙，許多學家採用表面電漿子放大的方法進行損耗補償。

2.2 受激輻射引致表面電漿子放大元件結構

SPASER（即 Surface Plasmon Amplification by Stimulated Emission of Radiation 之縮寫）譯為「受激輻射引致表面電漿子放大」，又稱電漿子雷射（plasmon laser），是一種奈米電漿子形式的雷射，僅是輻射粒子由表面電漿子取代光子做為的量子產生放大器。受激輻射引致表面電漿子放大元件中的表面電漿子能夠取代雷射中的光子，是基於下列因素：

第一、表面電漿子是玻色子：具有相位激發且自旋為 1，其特性如同光子。

第二、表面電漿子為電中性激發。

第三、表面電漿子是自然界中具最佳集體震盪之材料，這表示他們是最和諧（harmonic）且彼此交互作用最微弱的。

因表面電漿子與光子具有相似物理特性，故表面電漿子可承受受激輻射，並在單一模式態下累積為數可觀的電漿子，這同時也是雷射及受激輻射引致表面電漿子放大元件的物理基礎機制。SPASER 的表面電漿子工作行為類似雷射的光子，但不同的是表面電漿子侷限在奈米尺度，這一特性致使表面電漿產生之高電場「局域化」，有效將輻射光聚焦在奈米面積上，改善傳統雷射能量最多聚焦微米範圍之窘境[1]。

2.2.1 原理

雷射的產生過程就是物質與輻射場的交互作用，在此所謂的物質是指原子或分子，輻射場即光子或電磁波。每一種原子皆具特定能階，當電磁波與物質交互作用時，以能階的角度而言，即從某一能階躍遷到另一能階狀態，且藉由躍遷過程「吸引」與「輻射」電磁波來維持平衡。值得注意的是，並非所有原子能階都可以互相躍遷，少部分的能階躍遷是不被允許的，他必須遵守選擇規則（Selection Rules）。電磁波與物質的交互作用，其方式有三種，（1）受激吸收（stimulated absorption）（2）自發放射（spontaneous emission）（3）受激放射（stimulated emission）。若以二能階系統為例考慮一個原子內的兩個能階 E_1 和 E_2 [26, 27]：

受激吸收：對於物質中處於低能階 E_1 的粒子而言，可以吸收特定頻率之外界輻射場能量並躍遷至高能階 E_2 ，其中原子從外界輻射場獲得的能量需恰等於兩能階的能量差 $\Delta E = E_2 - E_1$ ，否則不會有吸引現象發生，如圖 18 所示。

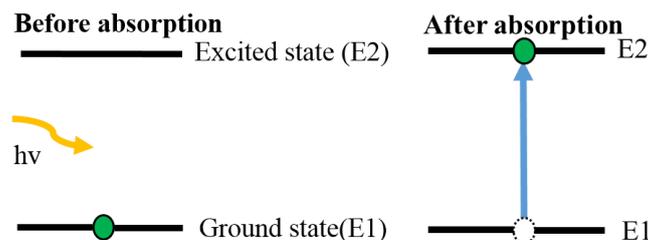


圖 18，受激吸收能階圖

自發輻射：由於處於高能階(激態) E_2 的原子有其生命週期 $\tau \approx 1/\Delta\omega$ (其典型值為 10^{-8} 秒)，並不會永遠處於激發態，因此在無外來光子的情況下，自發地向低能階 E_1 躍遷，其能量差 $\Delta E = E_2 - E_1$ 以光子的形式釋放，稱之為「自發輻射」，如圖 19 所示。

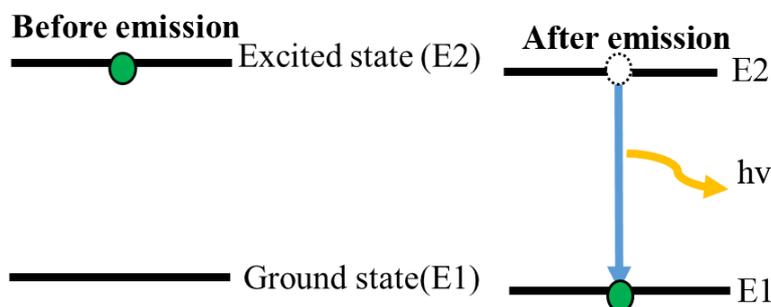


圖 19、自發輻射能階圖

受激輻射：亦稱誘發放射，處於高能階 E_2 上的原子，受到頻率為 ν 的輻射場作用下，躍遷至低能階 E_1 並輻射一與入射輻射場同相位且能量為 $h\nu$ 且的光子，此過程稱之「受激發射躍遷」，因受激發射躍遷而輻射之光波稱「受激輻射」，如圖 20 所示。

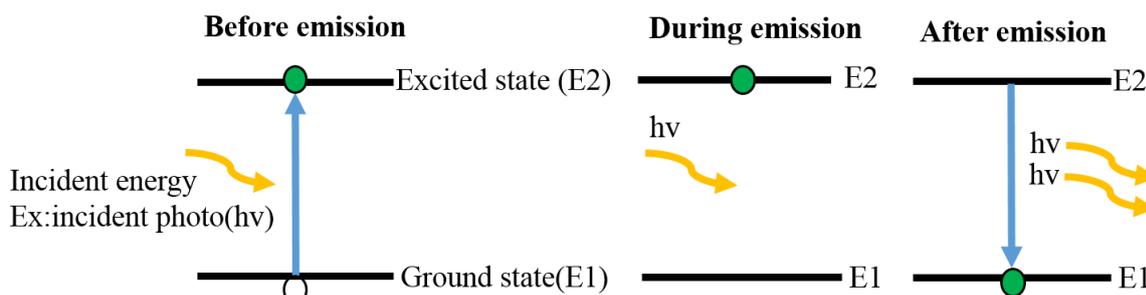


圖 20、受激輻射能階圖

受激輻射與自發輻射最大的區別在於干涉性，由於自發性輻射是在不受外界輻射場控制下的自發過程，大量原子的自發輻射其相位是不干涉的，其輻射場的傳播方向及偏振方向也是無規律的，如：發光二極體。反之，受激輻射是受到外界場所誘導的輻射行為，其輻射的每個光子頻率、相位、傳播方向和偏振態皆與外界輻射場完全相同。雷射就是一種受激發射的干涉光。

由於受激輻射引致表面電漿子放大元件為一種奈米電漿子的雷射，在原理及許多特性上與傳統雷射有許多異同之處，因此我們先以熟知的雷射做基礎闡述，並針對「雷射原理」、「激發來源」、「增益介質」、「共振結構」四部份深入淺出的介紹受激輻射引致表面電漿子放大元件。

2.2.2 雷射機制

Laser (Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation)

是指受激輻射而產生放大的光。當外加能量（如：光子、電場、化學等形式）被一能級系統所吸收時，電子會從低能階躍遷至高能階，當自發輻射所產生的光子碰到那些因外加能量激發而躍遷至高能階的電子時，高能階電子受到誘導而遷至低能階，並且釋放相應能量的光子（即受激輻射），其光子與原本自發輻射光子具有相同的光學特性：頻率、相位、前進方向，如圖 21。當受激光子碰到因外加能量而躍上高能階的電子，又會誘導遷至低能階，如此周而復始便會產生更多同樣特性光子，光強度也隨之增大。因此，雷射具單色性極好、發散度極小、亮度（功率）極高等特性。

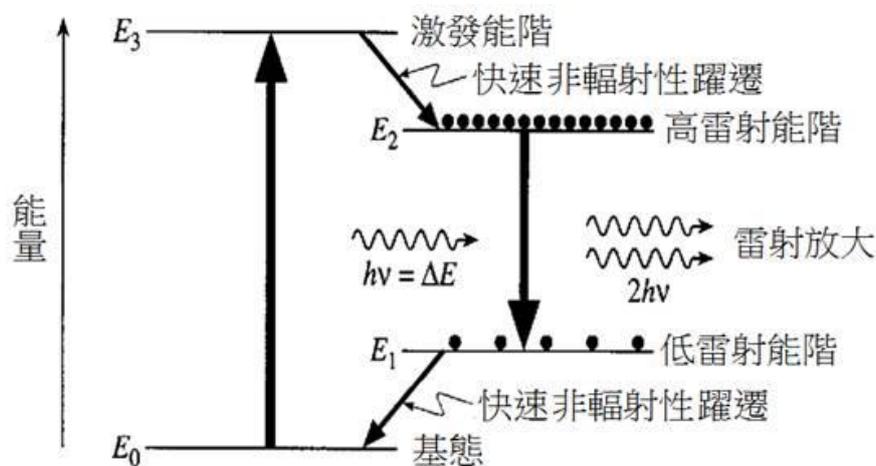


圖 21、雷射能階躍遷圖

(資料來源：<http://www.ieo.nctu.edu.tw/~ieofuture/102/LZori.html>)

SPASER (Surface Plasmon Amplification by Stimulated Emission of Radiation)

如圖 22 所示，當外加能量以電場、光子、抑或是化學等方式激發，使得電子獲能從基態躍遷至高能階（黑色箭號），隨後，高能階的電子因 carrier multiplication[1]釋能形成 excitons 狀態（綠色箭號），exciton 若躍遷至基態其釋出的能量以非輻射型態轉移提供表面電漿子輻射（紅色箭號）。若在真空中，excitons 會複合並以光子形式輻射，但在受激輻射引致表面電漿子放大元件的結構中，由於增益介質位於振動奈米粒子的表面，必須將此振盪能量轉移至表面電漿子，故輻射光子的現象會被抑制。

在SPASER膜態中電漿會產生極高的局域場，且隨低損耗的表面電漿共振而大幅增加其局域場，其場存在著巨大的空間擾動，不僅可將能量聚焦於奈米大小的體積，還可以激發增益介質且可產生更多受激激發到此模式，致使更多表面電漿子的產生，甚至達到增益飽和的狀態，產生一回饋機制。若回饋機制足夠大且受激輻射引致表面電漿子放大元件表面電漿模態的生命週期夠長，不穩定的現象發生，這將導致spasing膜態表面電

漿子輻射的累增崩潰以及自發對稱破壞 (spontaneous symmetry breaking)，建立spasing 狀態的相位同調 (phase coherence)，因此spasing的建立又可稱之非平衡相轉移 (nonequilibrium phase transition)。[4,28]

我們可以藉由改變電漿共振腔體設計，改善 spasing 的輻射機制。如：些微不對稱性 (reduce symmetry) 結構可以打破捕捉模態 (trapped mode) 震盪的非輻射現象，允許小部分電流震盪所累積的能量被輻射至真空中，此現象可以比擬成經由雷射共振腔體輸出耦合器造成輻射滲漏。[13]

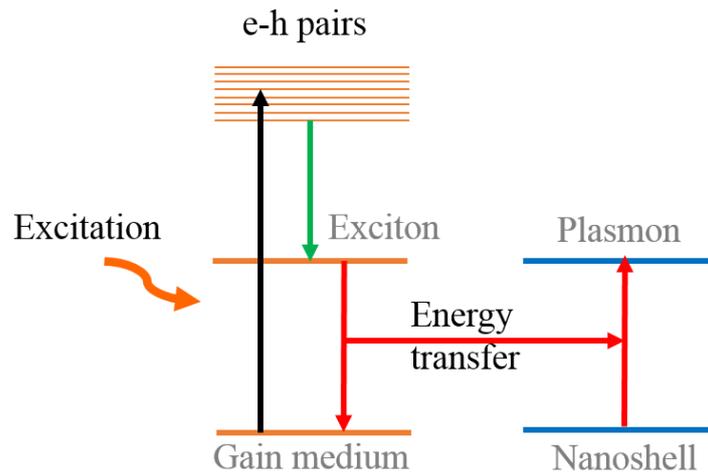


圖 22、受激輻射引致表面電漿子放大元件能階躍遷圖

2.2.3 激發來源 (pumping source) :

激發能源用以供給增益介質能量，使低能級的電子激發成為高能級電子，使它滿足居量反轉的條件，能量供給的方式有電荷放電、光子、化學作用...等。不論是受激輻射引致表面電漿子放大元件抑或是雷射，兩者皆須藉外部場 (激發源) 激發增益介質 (gain/active medium) 提供能量引發 spasing 機制。值得一提的是，其激發場可以是與受激輻射引致表面電漿子放大元件操作頻率無關的光子，例如：受激輻射引致表面電漿子放大元件操作在近紅外線的頻段，但是激發增益介質的激發源可以為紫外光脈衝。

2.2.4 共振腔體 (optical cavity/optical resonator)

如圖 23 所示，雷射的共振腔體是由全反射鏡及半反射鏡兩面平行鏡所組成，光線可在反射鏡間來回反射，使被激發的光經過增益介質多次以得到足夠放大，當光大到足以穿透半反射鏡時，雷射便從半反射鏡發射出去。因此，此半反射鏡又稱為輸出耦合鏡 (output coupler)。在傳統雷射中，其輻射的方向由外部共振腔體所決定，它的同調性是由原子中的增益介質受激輻射所支撐，且只有在兩鏡間的距離產生共振的波長才能產生雷射，故兩鏡面間的距離會決定輸出雷射之波長。[26,27]

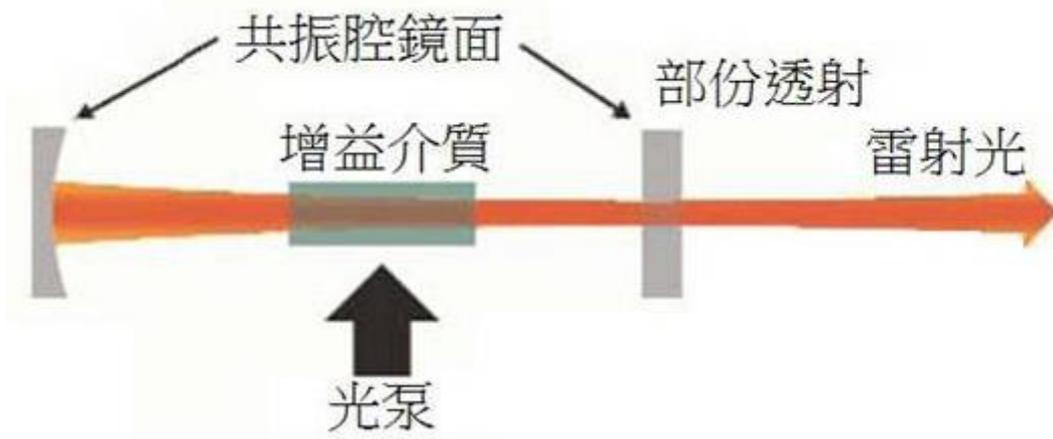


圖 23、簡易的雷射模型與其構成的要件

假設雷射光在光學共振腔內來回傳遞，共振腔由兩面反射率為 R_1 和 R_2 的反射鏡所組成，且兩鏡面的距離（共振腔）為 L ，圖 24 中 A、B、C 和 D 為雷射光在一直線來回震盪時不同的時間點，其中 A 和 D 正好發生在 R_1 反射鏡的一側，其中 B 和 C 正好發生在 R_2 反射鏡的一側，雷射光在共振腔行經時會有增益 γ ，同時也會遇到內部損耗 α_i 假設雷射光的波數為 k ，A 點的光強度可表示為 $I_0 e^{jkz_0}$ ，若光往 B 點行進，經過 L 的長度後其 B 點光強和相位為 $I_0 e^{(\gamma-\alpha_i)L} e^{jk(z_0+L)}$ ，依此類推，C 點 $R_2 I_0 e^{(\gamma-\alpha_i)L} e^{jk(z_0+L)}$ ，D 點 $R_2 I_0 e^{2(\gamma-\alpha_i)L} e^{jk(z_0+2L)}$ ，接著在 D 點的光遇到 R_1 反射鏡反射回到 A 點，光強和相位變成 $R_1 R_2 I_0 e^{2(\gamma-\alpha_i)L} e^{jk(z_0+2L)}$ ，為了滿足雷射振盪，A 點相位須相等（式 13），且其相位的變化要等於 2π 的整數倍（式 14），

$$e^{jkz_0} = e^{jk(z_0+2L)} \quad (13)$$

$$2kL = q \cdot 2\pi \quad (14)$$

q 為正整數，因 $k = 2n_r \pi / \lambda$ ，固可整理成

$$L = q \cdot \left(\frac{\lambda}{2n_r} \right) \quad (15)$$

上式符合駐波條件。因此，受限於其腔體設計，其雷射共振腔長度為半波長的整數倍。

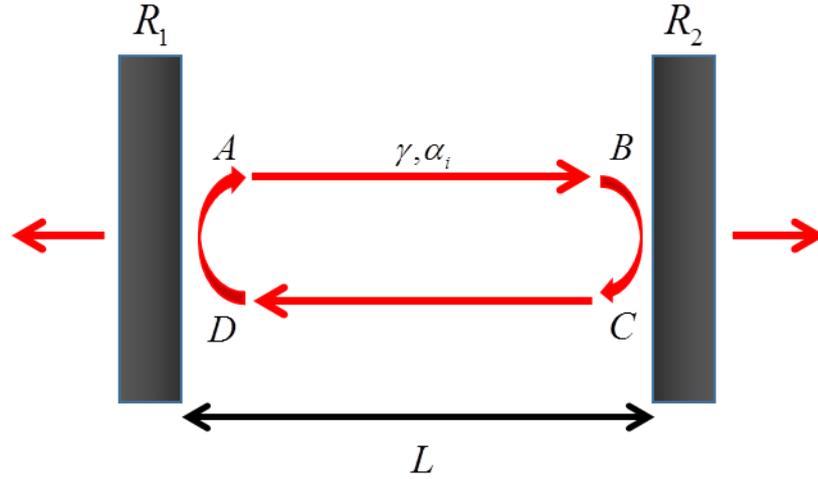


圖 24、雷射光在共振腔中來回震盪之模型

另一方面，受激輻射引致表面電漿子放大元件是由金屬及增益介質所構成的奈米粒子，其中金屬奈米粒子扮演著共振腔體的角色，支持著電漿模態 (plasmonic modes) 且利用表面電漿子的放大產生回饋機制，正因 Spasing mode 是由表面電漿子決定，金屬厚度需介於穿透膚深 (skin depth, l_s) 及非局域半徑下 (nonlocality radius, l_n) 才可發生奈米電漿現象，因此腔體最多受限於電漿金屬的最小 inhomogeneity 尺度及非局域半徑。

穿透膚深之所以決定奈米光學之尺度是源於負折射率材料 (如：金屬) 並不幫助電磁波的行進，相反的，電磁波會在特定表面深度 (即穿透膚深, skin depth) 內衰減，且大多的入射能量會被反射回去[1]。但若是發生在小於穿透膚深的奈米粒子，光場能夠穿透整個粒子並驅使表面電漿子振動，滿足受激輻射引致表面電漿子放大元件所需之機制，因此穿透膚深會決定金屬奈米粒子大小，通常在單價電漿金屬 (single-valence plasmonic)，如：金、銀、銅、鹼金屬，其穿透膚深約為 25nm。

$$l_s = \bar{\lambda} \left[\text{Re} \left(\frac{-\epsilon_m^2}{\epsilon_m + \epsilon_d} \right)^{1/2} \right]^{-1} \quad (16)$$

其中 $\bar{\lambda} = \lambda / (2\pi) = \omega / c$ ，為簡化真空波長 (reduced vacuum wavelength)， ϵ_m 是金屬的介電函數， ϵ_d 則是周圍介電質的介電函數。

而非局域半徑是指光場的特定週期下，具費米速度 v_F 的電子移動到空間 (space) 的距離，對於貴金屬而言， $l_n \sim v_F / \omega \sim 1\text{nm}$ ，其中 ω 是指光頻率，此計算是針對光頻段。[28]

總而言之，只要受激輻射引致表面電漿子放大元件其腔體大小是任意滿足「金屬厚度介於 l_{nl} 及 l_s 之間」且「整體大小遠小於波長」的電漿金屬奈米粒子即可，故受激輻射引致表面電漿子放大元件其最小尺寸可達僅幾奈米大，為奈米等級，由於金、銀奈米粒子表面電漿子共振位於可見光的波段，以此兩種金屬製成奈米結構是目前奈米光學中一個極熱門的研究課題。此外，我們也可以藉由改變共振腔體的設計進而改善受激輻射引致表面電漿子放大元件特性，如：電漿共振腔體設計些微的小不對稱性可以打破 trapped mode 震盪的非輻射現象，允許小部分電流震盪所累積的能量被輻射至真空中，此現象可以比擬成經由雷射共振腔體輸出耦合器造成輻射滲漏。[13]

在 lasing SPASER 中，以陣列結構為例，其輻射方向垂直於陣列的平面。在這種情況下，由於反對稱電流的同相集體震盪具有最低的輻射損耗，因此最容易激發，造成同調性上升。[13]

對於金屬共振腔體的選擇而言，金與銀奈米粒子的介電係數在可見光的範圍內會變成負值（圖 25a, 26a），當銀與金奈米粒子的介電係數變成某些特定的負值時會有表面電漿共振的現象，而這些特定負值的介電係數是跟粒子的大小和形狀有密切相關，一般認為該現象與粒子在表面電漿共振會有很大的表面增強拉曼散射且在某些區域電磁場會有增強的效應有關。

由於本研究針對奈米粒子進行探討，在奈米尺度下，為了更精確地分析金屬全包覆結構的光學特性，必須考慮結構的大小相依性（size dependent）。一旦材料的大小趨近於材料中導電電子的自由平均路徑（mean free path），其結構的大小相依性越趨明顯，可視為一效應。當材料尺度下降至約略幾十奈米等級時，其材料的介電常數實部值會上升，也會具有顯著的大小相依效應（size dependent effect）。如圖 25.26 所示，藍線為純金屬的介電常數值，黑線表示材料尺度的增加量（從 2 到 100nm）。由此可知，當尺度下降，介電常數的實部及虛部值會上升，這是因為在厚度薄的金屬殼中，Drude 電子的自由平均路徑下降，碰撞頻率隨之上升，致使更多的熱能消散、光學損耗增加，因此會影響增益介值的選擇，我們必須選擇具有足夠增益放大的材料來補償因電漿殼層大小相依效應而造成的損耗。電漿殼層的大小效應會改變被動奈米殼的共振特性，如：共振擴展及相對應的強度減小。

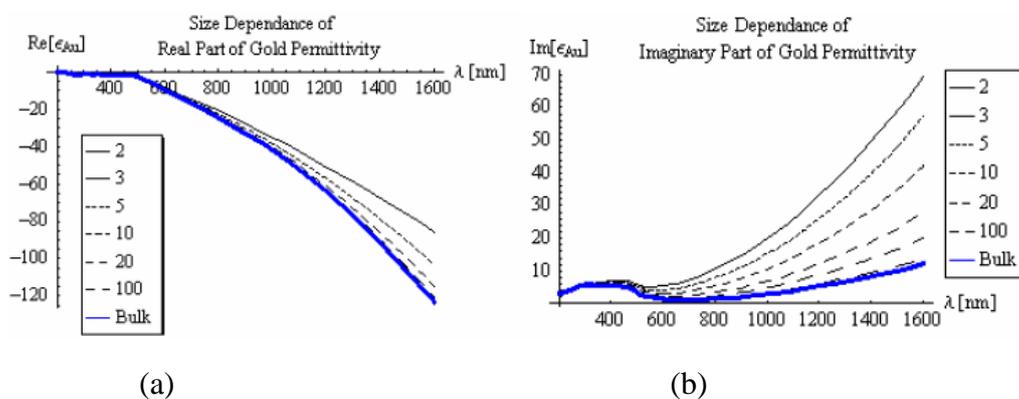


圖 25、金介電常數與奈米大小的相依性。(a)介電常數實部(b)介電常數虛部[7]

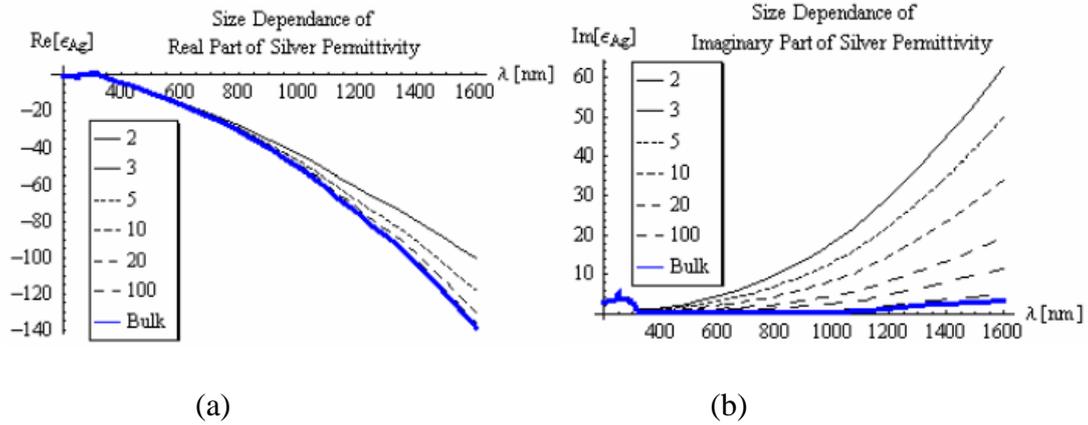


圖 26、銀介電常數與奈米大小的相依性。(a)介電常數實部(b)介電常數虛部[7]

由於金屬—金的複數介電常數，相較於銀殼所包覆的奈米粒子，金殼包覆的被動奈米粒子受限在較長的共振波長中。在這長共振波長中，金的光學損耗大於銀，也就是說，用以補償損耗所需的增益閾值相對較小，即 $|k_{Ag}| \leq |k_{Au}|$ 。圖 27 顯示金屬銀與金的 spasing 頻率 ω —增益閾值 g_{th} 特性圖，由此可知，在相同 spasing 頻率 ω 下，金增益閾值比銀來的大。除此之外，銀相較於其他金屬其表面電漿共振在可見光的範圍且共振區的範圍較窄，故以下便針對銀奈米粒子進行探討。

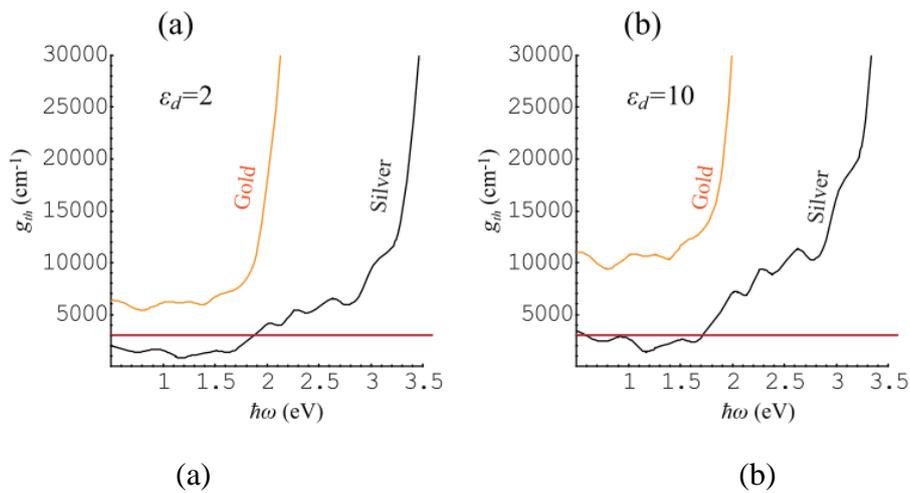


圖 27、金屬銀與金的 spasing 頻率 ω —增益閾值 g_{th} 特性圖。紅線區分 $g_{th} < 3000 \text{cm}^{-1}$ (可藉由直接能帶半導體(DBGS)而相對容易達到)。增益介質的介電常數實部以 ϵ_d 表示。(a) $\epsilon_d = 2$ (b) $\epsilon_d = 10$ 。[7]

2.2.5 增益介質 (gain/active medium)

一般材料都會吸收入射光波，使之光強度因而減弱，此類材料為「被動材料」(passive)，而某些材料會因為適當的能源激發而具有入射光波放大的能力，稱「活性介質」或是「增益介質」，換言之，增益介質是「被激發而釋放光子」的電子所在的物質，是具有居量反轉特性的介質，其物理特性會影響所產生雷射的波長等特性。

對於前面章節 2-2-1 所敘述之二能階系統，不論是何種激發能源，皆無法達到居量反轉，只有迂迴其他能階才可成立。一般而言，活性介質系統分為三能階系統及四能階系統。以三能階系統為例，當原子系統受到幫泵能源 (pumping sources) 激發，處於低能階 E_1 的粒子受激吸收躍遷至高能階 E_3 ， E_3 能階的粒子藉由多種途徑衰減至 E_2 ，其中以非輻射型態降至 E_2 可能性最大，即 $E_3 \rightarrow E_2$ 躍遷機率高於其他過程機率，若入射激發強度夠大，則可能產生粒子反轉。為了更容易達到粒子反轉，就必須有兩個條件：(1) $E_3 \rightarrow E_2$ 躍遷極快 (2) 粒子處於 E_2 能階的壽命極長，這樣有利於 E_2 粒子數的累積。

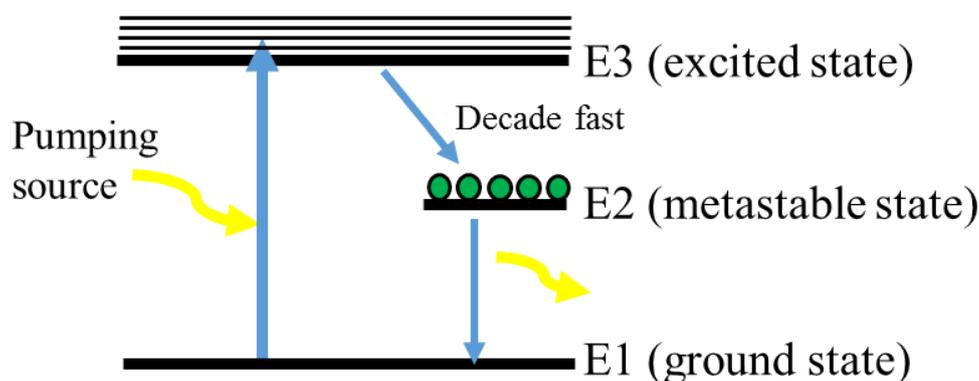


圖 28、三能階活性介質系統

受激輻射引致表面電漿子放大元件結構中的介電質會含有增益介質，增益介質具有兩級的發射器 (two-level emitters)，如同雷射中的增益介質，兩者皆由外界場激發，主要用以產生群數反轉 (或居量反轉)，並以非輻射的型態將能量轉移至共振奈米系統，激發表面電漿子，提供 spasing 所需的能量。早期由於金屬的能量損耗以致應用受限，但藉由在受激輻射引致表面電漿子放大元件中引入增益介質，可以補償金屬的損耗。增益介質有許多選擇：半導體奈米晶體量子點 (semiconductor nanocrystal quantum dot) [2,29]、量子點摻雜的介電質 (Quantum-dot-doped dielectric)、稀土離子 (Rare-earth ions) [7]、染色分子 (Dye molecules) [30,31]。

許多稀土離子可作為介電材料的摻雜物用以提供涵蓋不同波長 (從可見光到近紅外光) 等的光學增益，如： Pr^{3+} 、 Ho^{3+} 、 Er^{3+} 、 Nd^{3+} 、 Tm^{3+} ，[33,34]，在電信技術上，摻雜稀土離子 Er^{3+} 的二氧化矽已經證實是二氧化矽基質材料有效實現增益的方法。而在介電材料中的許多稀土離子可視為三階斯塔克分割原子系統 (Stark-split atomic system)。

對於奈米核-殼型態 (nanoshell) 的受激輻射引致表面電漿子放大元件而言，增益介質可置於「奈米殼層外部」(如圖) 或是「殼內」(如圖)，研究證實置於「核內」的

增益介質因為其局域場的「熱點 (hot spot)」並不會被增益介質所覆蓋可用於空間上的應用，因此具有顯著的優勢。[4]

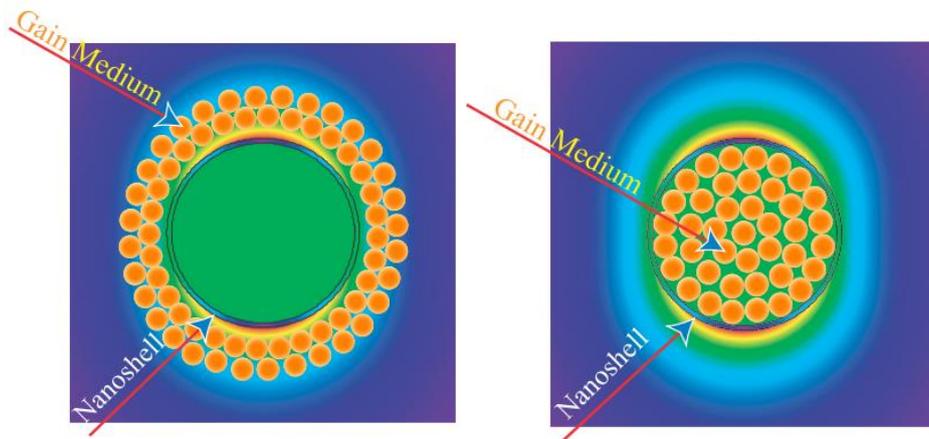


圖 29、奈米核-殼型態受激輻射引致表面電漿子放大元件其增益介質位於「殼外」及「殼內」[4]

奈米電漿子的主動元件—受激輻射引致表面電漿子放大元件具有高密度的光場特性，可作為奈米局域同調量子產生器外，未來也預測其元件可做為超快奈米放大器 (ultrafast nanoamplifier) 取代日前奈米放大器之主流—MOSFET。然而，由於受激輻射引致表面電漿子放大元件中的金屬電漿奈米粒子支持電漿模態 (SP mode)，其場持續對增益介質產生擾動而產生回授，故回饋機制一直存在而無法消除，造成非局域表面電漿子的產生，最後增益飽和 (saturation of gain)、淨增益 (net gain) 消除，使之不適合做為放大用。但在 2009 年 Mark I Stockman 解決其問題並發現受激輻射引致表面電漿子放大元件在暫態 (transient) 及次穩態 (bistable) 兩種模態下可以做為超快速奈米放大器之用[4]。

2.3 受激輻射引致表面電漿子放大元件物理

2.3.1 增益閾值 (threshold gain)

受激輻射引致表面電漿子放大元件結構是由金屬及摻雜增益介質的介電質所組成，我們定義後者折射率為 $n_d = n_r + ik$ ，其中 n_r 實部為介電質折射率，虛部 k 表示光損耗/增益常數，在此，我們可以將增益介質視為折射率虛部為負的介電材料，故虛部 k 則定義為活性介質的光增益程度，由實驗可知，當 $k < 0$ ，吸收截面積與散射截面積有頻譜窄化現象。[5,18,19]

在實驗模擬中，我們可以藉著掃描特定波長的特性圖 (其橫軸為光增益值 k ，縱軸為消光截面積 (extinction cross-section)) 取得臨界光增益值，消光截面積為吸收截面積與散射截面積之和 (可參見章節)。當消光截面積近似為 0 時，會對應一 k 值，且發現該 k 若向左右偏移一非常微小之量會得到極負與極正的消光截面積，我們可以定義該 k 為臨界增益值 k_{thre} ，又稱增益閾值。此時 k_{thre} 可視為開始發生 spasing 的臨界值，通常理想的 k_{thre} 會隨周圍介質折射率增加而減少，在文獻[19]中，核殼結構的受激輻射引致表

面電漿子放大元件可以藉由偏移核的圓心（相對於金屬殼圓心處）有效減少 k_{thre} ，且對於微不對稱性的受激輻射引致表面電漿子放大元件而言， k_{thre} 會受到不同電漿膜態影響。

2.3.2 散射/吸收截面積 (scattering/absorption cross-section)

一平面波入射至等向球體，由該球體對平面波產生的散射現象是由 Mie theory 理論所描述，若是擴及至同心球的散射情形時，可由 Aden[20]及其他理論所輔佐。

對於入射場抑或是散射場，其散射截面積及吸收截面積皆由波因廷定理 (Poynting's theorem) 加以定義，簡而言之，截面積即為「散射或吸收功率」與「入射強度」之比值，其中入射強度表示每單位面積平面波入射多少功率。散射場中的總積分功率與入射強度之比值即是散射截面積；而吸收截面積則指垂直於同心球殼表面的靜能量通量除以入射強度，即是中心球殼吸收了多少能量。

欲求得散射及吸收截面積之值，必先分別求得其吸收功率及散射功率，如式 (17) [7]：

$$\begin{aligned} P_{scat} &= \text{Re} \left\{ \frac{1}{2} \iint_s [\vec{E}_s \times \vec{H}_s^*] \cdot \hat{n} dS \right\} \\ P_{abs} &= -\text{Re} \left\{ \frac{1}{2} \iint_s [\vec{E}_{tot} \times \vec{H}_{tot}^*] \cdot \hat{n} dS \right\} \end{aligned} \quad (17)$$

其中參數代表如下：

S ：包覆奈米粒子的邊界，為一球體，單位平方公尺

\hat{n} ：垂直於表面且方向指向外的單位向量

下標 inc、scat、tot 則分別代表入射場、散射場、總場。

分別利用「散射或吸收功率」與「入射強度」之比值，求得散射及吸收截面積（式 18）消光截面積則為散射截面積與吸收截面積之和（式 19）。

$$\begin{aligned} \sigma_{scat} &= \frac{P_{scat}}{I_{inc}} = \frac{1}{I_{inc}} \times \text{Re} \left\{ \frac{1}{2} \iint_s [\vec{E}_s \times \vec{H}_s^*] \cdot \hat{n} dS \right\} \\ &= \frac{2\pi}{\beta_0^2} \sum_n (2n+1) (|a_n|^2 + |b_n|^2) \end{aligned} \quad (18)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{abs} &= \frac{P_{abs}}{I_{inc}} = \frac{1}{I_{inc}} \times -\text{Re} \left\{ \frac{1}{2} \iint_s [\vec{E}_{tot} \times \vec{H}_{tot}^*] \cdot \hat{n} dS \right\} \\ &= -\frac{2\pi}{\beta_0^2} \sum_n (2n+1) (\text{Re}\{a_n\} + |a_n|^2 + \text{Re}\{b_n\} + |b_n|^2) \end{aligned}$$

$$\sigma_{ext} = \sigma_{scat} + \sigma_{abs} \quad (19)$$

σ_{scat} ：散射截面積，單位平方公尺

σ_{abs} ：吸收截面積，單位平方公尺

σ_{ext} ：消光截面積，單位平方公尺

I_{inc} ：入射平面波的強度，單位瓦/平方公尺

β_0 ：當粒子置於真空系統時，其值等於 $2\pi/\lambda$ ，其中 λ 為激發源之波長

2.3.3 品質因子 (Q factor)

對於雷射而言，共振腔侷限表面電漿子的能力優劣以品質因子 (quality factor, Q) 量化說明，品質因子可用來表示共振腔內之損耗值，其主要損耗可歸因於材料 (Q_{mat}) 及輻射漏失 (Q_{rad})，腔體品質因子可由下式表示。[32,33]

$$\frac{1}{Q_{tot}} = \frac{1}{Q_{mat}} + \frac{1}{Q_{rad}} \quad (20)$$

Q_{mat} ：材料品質因子 (material quality factor)

Q_{rad} ：輻射品質因子 (radiation quality factor)

Q_{mat} 用以描述材料吸收造成之損耗，而輻射品質因子 Q_{rad} 象徵輻射出腔體外的損耗量，定義為在一系統的共振頻率下，當信號振幅不隨時間變化時，系統儲存能量與單一周期內漏失損耗之比值[32] (式 21)。Q 值越大代表共振腔內的損耗越小，損耗速率較慢，振動可持續較長時間，反之，Q 值越小代表共振腔內的損耗越大，由於損耗小時共振波長能量會遠超過非共振波長的能量，因此在實驗模擬上，我們將品質因子定義為共振波長的頻率除以共振線寬的半高全寬 (full width at half maximum, FWHM) (式 22)，因該式便於實驗觀測與計算，故廣為實驗使用之定義。另也常見將頻率取代波長得到品質因子 (式 22) 本篇論文即使用此表示方法量化品質因子，以頻譜的角度而言，當共振頻率相同時，品質因子越高，則共振峰的頻寬越窄，所產生的光源單頻性較佳。反之，若品質因子越低，共振峰的頻寬越大，其光源涵蓋的頻段越廣。此外，我們也可以藉由比較空腔體及達雷射條件時兩者的品質因子觀察相對線寬改善情形。

$$Q_{rad} = 2\pi \frac{\text{energy stored in cavity}}{\text{radiated energy per optical period}} = \frac{\omega W}{P_{rad}} \quad (21)$$

W ：腔體內總電磁波能量，單位焦耳

P_{rad} ：輻射出腔體表面外之能量，單位焦耳

$$Q = \frac{\omega_0}{\Delta\omega} = \frac{\lambda_0}{\Delta\lambda} \quad (22)$$

ω_0 ：腔體內的表面電漿子共振頻率，單位赫茲

$\Delta\omega$ ：表面電漿子共振頻率之半高寬，單位赫茲

λ_0 ：腔體內的表面電漿子共振波長，單位公尺

$\Delta\lambda$ ：表面電漿子共振波長下的線寬（半高寬），單位公尺

此外，我們還可以使用品質因子去描述表面電漿膜態特性。此時的品質因子是指振動一致的電子數目且在該膜態下能夠維持它的相位並從外在激發場下累積能量。最好的電漿金屬（如：貴重金屬：銀、金、鉑）它的品質因子可從 10-100。外部激發使得電漿奈米粒子產生局域場，且品質因子與幾何結構會增強其場，其增強的場範圍僅能由奈米粒子的大小所決定。[1]

2.3.4 等效膜態體積（Mode volume）

等效模態體積 V_{eff} 用以評估模態的大小。在設計次波長尺度元件時，我們透過等效模態體積的估算，與半共振波長的三次方 $(\lambda/2)^3$ 進行比較，以觀察元件是否突破繞射極限的限制達到我們所需的尺寸。等效模態體積估算方法是在計算空間中對能量密度進行體積分，接著再除以空間中能量密度的最大值，其表示式如下，詳見式（23）。對於固定量/數目的增益介質而言，等效模態體積越小，越利於滿足 spasing 條件，從物理角度而言，spasing 表面電漿模態的等效模態體積越小，這些表面電漿子會產生越高的局域場，最終在受激輻射引致表面電漿子放大元件中有很強的回饋機制，使表面電漿子增益放大，更易達到 spasing 條件。

$$V_{eff} = \frac{\int \epsilon(r) |E(r)|^2 d^3r}{\max[\epsilon(r) |E(r)|^2]} = \frac{\text{total electric field energy}}{\text{maximum of the electric field energy density}} \quad (23)$$

V ：量化體積（涵蓋共振腔體及腔體輻射區的邊界），單位立方公尺

$\epsilon(r)$ ：位置 r 處的介電常數

$|E(r)|^2$ ：位置 r 處的場強度

積分範圍涵蓋整個增益介質區域

2.3.5 Purcell factor

利用腔體可得受激輻射的增益增強，由於此現象為 Purcell 所研究，故制定了 Purcell factor 用以描述腔體增益光性的參數。Purcell factor 定義為增加腔體增益 g_c 與載波光性增益 g_f 的比值（式 24），也因 $g_c(\omega_0)\delta\omega = g_f(\omega_0)\Delta\omega$ ，故等式成立。

$$F = \frac{g_c(\omega_0)}{g_f(\omega_0)} = \frac{\Delta\omega}{\delta\omega} \quad (24)$$

Purcell factor 另也定義為「非輻射能量轉移至表面電漿子的機率」與「光子輻射衰減之機率」。如同 2-2 章節所述，在電漿子雷射結構中，由於增益介值緊鄰振動奈米粒子，故輻射之光子會將其能量供給表面電漿子，亦即非輻射能量轉移至 SPASER 模態是一主要過程，其機率为「輻射至遠場區」的幾個數量級大[34]。在模擬計算上，Purcell factor 定義如下(式 25.26)，由於本論文模擬二維結構，故選用式 (26)。

$$F_{3D} = \frac{3Q}{4\pi^2 V} \left(\frac{\lambda_{res}}{n}\right)^3 \propto \frac{Q}{V_{eff}} \quad (25)$$

$$F_{2D} = \frac{3Q}{4\pi^2 A} \left(\frac{\lambda_{res}}{n}\right)^2 \quad (26)$$

Q ：品質因子

V ：雷射腔體之膜態體積，單位立方公尺

A ：雷射腔體之膜態面積，單位平方公尺

λ_{res} ：共振波長，單位公尺

n ：材料的折射率

$\left(\frac{\lambda_{res}}{n}\right)$ ：在該材料中的波長，單位公尺

2.4 模擬受激輻射引致表面電漿子放大元件特性

本研究以有限元素法 (Finite element method, FEM) 為基礎，透過求解偏微分方程或是偏微分方程組可以模擬真實物理行為，本論文模擬受激輻射引致表面電漿子放大元件使用射頻 (Radio Frequency Module) — 電磁波頻域模組 (Electromagnetic Waves, Frequency Domain) 進行光電性模擬，進而求得雷射重要參數 (章節 2.3 有詳述) 並評斷該元件特性。

RF 模組可以解決一般電磁波的場問題，如射頻、微波應用、光學、光子，可分析頻域的電磁波，或是使用時間和諧及本徵頻率或本徵模態的研究類型供選擇。適用於天線、微波工程中的波導及腔體共振、光纖、光子波導、光子晶體、光電子中的主動元件。

電磁波頻域模組是以馬克士威方程式—安培迴路定律及法拉第定律為基本定理

$$\begin{aligned} \nabla \times \mathbf{H} &= \mathbf{J} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \\ \nabla \times \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \end{aligned} \quad (27)$$

利用下列關係式（式 28）取代上式（式 27）

$$\begin{aligned}\mathbf{D} &= \varepsilon \mathbf{E} \\ \mathbf{B} &= \mu \mathbf{H} \\ \mathbf{J} &= \sigma \mathbf{E}\end{aligned}\quad (28)$$

代入式可得式（29）

$$\begin{aligned}\nabla \times \mathbf{H} &= \sigma \mathbf{E} + \frac{\partial \varepsilon \mathbf{E}}{\partial t} \\ \nabla \times \mathbf{E} &= -\mu \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t}\end{aligned}\quad (29)$$

假設電磁波為一正弦波激發型態線性介質，並將場表示為時間和諧形式：

$$\begin{aligned}\mathbf{E}(x, y, z, t) &= \mathbf{E}(x, y, z)e^{j\omega t} \\ \mathbf{H}(x, y, z, t) &= \mathbf{H}(x, y, z)e^{j\omega t}\end{aligned}\quad (30)$$

將式（30）代入式（29）可得

$$\begin{aligned}\nabla \times (\mu^{-1} \nabla \times \mathbf{E}) - \omega^2 \varepsilon_c \mathbf{E} &= 0 \\ \nabla \times (\varepsilon_c^{-1} \nabla \times \mathbf{H}) - \omega^2 \mu \mathbf{H} &= 0\end{aligned}\quad (31)$$

其中，關係式如下

$$\begin{aligned}\varepsilon_r &= n^2 \\ k_0 &= \omega \sqrt{\varepsilon_0 \mu_0} = \frac{\omega}{c_0}\end{aligned}\quad (32)$$

將式（32）代入式（31）整理可得

$$\nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}) - k_0^2 n^2 \mathbf{E} = 0\quad (33)$$

利用下列關係式（34）

$$\varepsilon_c = \varepsilon - j \frac{\sigma}{\omega}\quad (34)$$

或是利用式（34）.式（32）代入式（31）可得

$$\nabla \times \mu_r^{-1} (\nabla \times \mathbf{E}) - k_0^2 (\varepsilon_r - j \frac{\sigma}{\omega \varepsilon_0}) \mathbf{E} = 0\quad (35)$$

E：電場，單位伏特/公尺（V/m）

H：磁場，單位安培/公尺（A/m）

J：電流密度，單位安培/平方公尺（A/m²）

D：電位移，單位庫倫/平方公尺（A/m²）

B：磁通密度，單位特士拉

ε ：介質介電常數（F/m）

μ ：介質磁導率（H/m）

σ ：電導率，單位西門子/公尺 (S/m)

n ：折射率

k_0 ：真空中的波向量

c_0 ：真空中的光速

該軟體模擬受激輻射引致表面電漿子放大元件流程總覽如圖 30。初始操作介面是用以定義所需的模擬其結構維度 (1D, 2D, 3D)、適用模組、研究類型 (頻率、本徵頻率)。初始設定「空間維度及模組」後，軟體會依據所選定之模組套用該物理方程式其相關參數。計算完成後，可在 Result 一欄選定所想要觀察之結果，如：電場、吸收率、遠場圖。其圖形類型選擇多樣，涵蓋分布圖、曲線圖以及極化圖。



圖 30、模擬設定流程圖

其中在結構設定上，本實驗模擬二維受激輻射引致表面電漿子放大元件結構，由半徑 110nm 之銀殼層包覆半徑 100nm 的二氧化矽球核為組成基礎，其中二氧化矽部分摻雜增益介質 (如：有機染色分子、稀土離子等)，在參數的設定上，介電質核其折射率為 $n_d=1.52+ik$ ，其中實部為一常數 1.52，是二氧化矽的折射率，而虛部為一負值 k ，定義為光學增益 (optical gain) 的程度。金屬銀殼層其折射率使用文獻 {Palik, 1985} 所定義之值，且該值為頻率的函數，而周圍介質為空氣，其折射率 n_s 為 1。

我們定義一 TM 極化的平面波以 (-y) 方向入射至受激輻射引致表面電漿子放大元件、其電場極化方向為 x 方向，入射場設定為 $E_x = 1 \cdot e^{+jky}$ ，周圍使用完美匹配層 (Perfectly matched layer, PML)，最外層邊界使用 scattering boundary condition，利用總場域 (total field) 計算吸收截面積。

同理，使用四周 PML 包圍四周，最外層邊界使用 scattering boundary condition，並利用散射場域計算散射截面積。

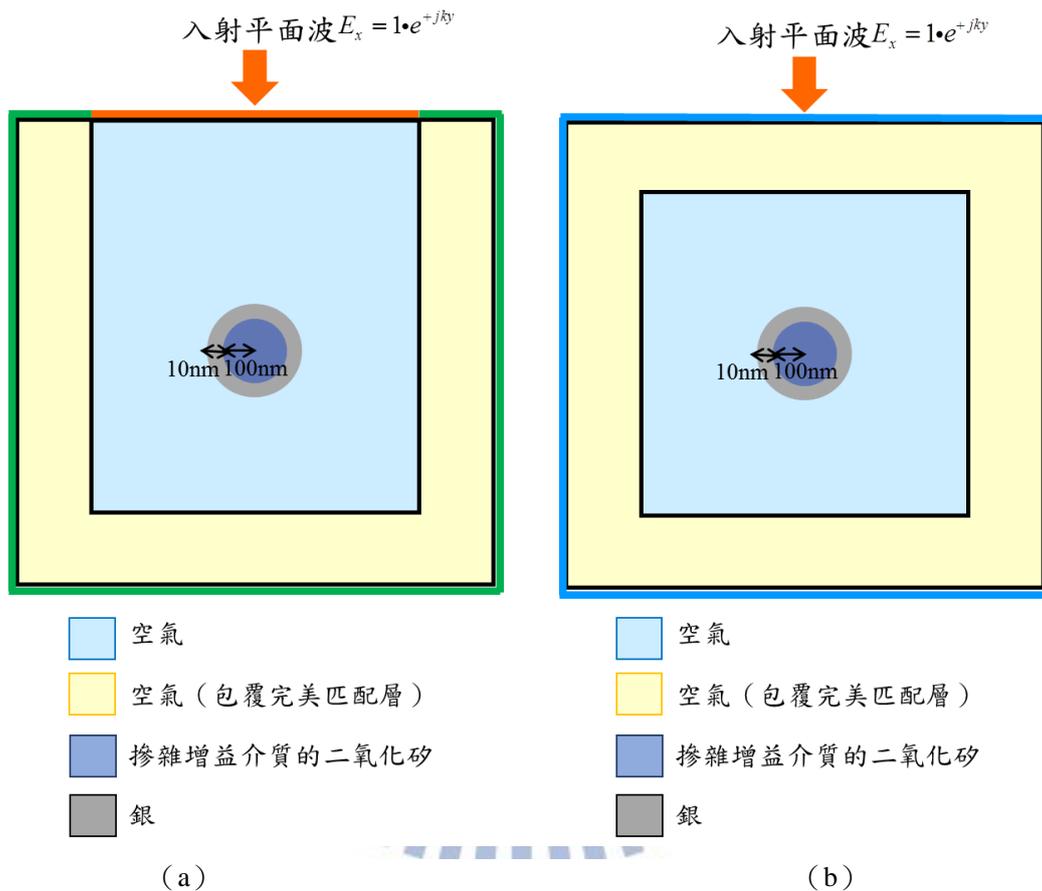


圖 31、(a) 總場邊界條件設定圖、(b) 散射場邊界條件設定圖

第三章 幾何型態對受激輻射引致表面電漿子放大元件分析

由於在增益閾值處奈米殼結構相較於奈米球及奈米蛋兩種型態具有較高的表面電漿放大的強度及較大的吸收及散射截面積。因此，為求取得最佳化的 SPASER 元件，故以金屬全包覆結構作為我們此篇研究的結構形式。我們以 SPASER 一般形式—金屬球殼包覆介電質核為基礎，其中以金屬部分以銀取代金，減少電漿損耗，並在介電質內摻雜增益介質，藉由設計不同幾何結構，得到具最佳性能之 SPASER 元件。本研究以 Xiangeng Meng 研究團隊的受激輻射引致表面電漿子放大元件結構為發想[18]，將 spasing 之波長鎖定在可見光-近紅外光波段，並利用有限元素法模擬二維 SPASER 元件特性。

3.1 奈米殼型結構

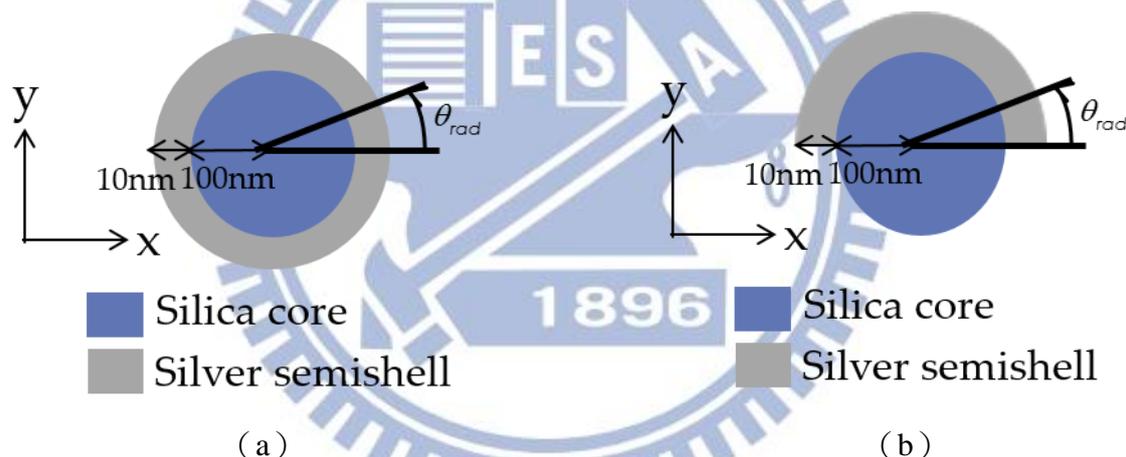


圖 32、(a) 金屬全包覆結構 (Full metal SPASER)。(b) 半金屬殼型結構 (Metal semishell SPASER)。

金屬全包覆結構 (Full metal SPASER) 為厚度 10nm 之銀金屬殼層包覆半徑 100nm 的二氧化矽球核，而半金屬殼型結構 (Metal semishell SPASER) 則是銀殼層包覆球核的一半。其中球核處摻雜增益介質，用以提供表面電漿子能量並使其放大。

當二氧化矽介電質沒有外加增益介質，亦即光學增益程度 k 為零時，不論是何種結構，其散射截面積皆會比吸收截面積大，表示電磁波入射至受激輻射引致表面電漿子放大元件時，大多能量被奈米粒子反射至真空中，而僅有相對較少的能量被奈米粒子所吸收，其原因可能為奈米粒子本身半徑較大，故越趨向於散射主導，如圖 33 所示，在光學頻譜圖上出現兩個高峰 (peak)，對於金屬全包覆結構來說，對應到波長 716.1nm 及 590.55nm，而對半金屬殼型結構而言，則對應到波長 632.91nm 及 330.4nm，這表示在未加入增益介質下金屬殼層的表面電漿子會於該波長處發生共振，由於本實驗設計之受

激輻射引致表面電漿子放大元件希望其雷射輸出在可見光-近紅外光波段，故針對波長 390-1000nm 作探討。

局域表面電漿子的放大輸出可以簡易的從受激輻射引致表面電漿子放大元件的物理機制了解，實際上是由入射光、金屬殼層、摻有增益介質的二氧化矽三者的交互作用產生表面電漿放大。此作用為一動態過程：摻有增益介質的二氧化矽提供能量「補償金屬殼層局域性表面電漿共振 (Local SP resonance, LSPR) 損耗」或是「形成表面電漿子放大輸出」，其 LSPR 膜態也會再次激發增益介質形成回饋機制，為了顯示局域表面電漿共振與增益介質的相關性，我們以 k 為函數繪製光學截面積圖，如圖 34 所示，對於金屬全包覆結構，當 k 略大於 -0.09507 具有最正之消光截面積，而 k 略小於 -0.09507 具有最負之消光截面積，在 $k \sim -0.09507$ 時其光學消光截面積趨近於零時，其吸收及散射截面積其大小會達到最大之值，因此我們可以將該 k 值視為波長 713.586nm 的增益閾值，此時具有最大 spasing 效率。對於一穩定操作的受激輻射引致表面電漿子放大元件，其系統淨光學放大量 (net optical gain) 應為零，亦即其消光截面積 (吸收與散射截面積之和) 為零[4]。同理，我們也可以求得半球殼奈米結構增益閾值為 -0.0902。

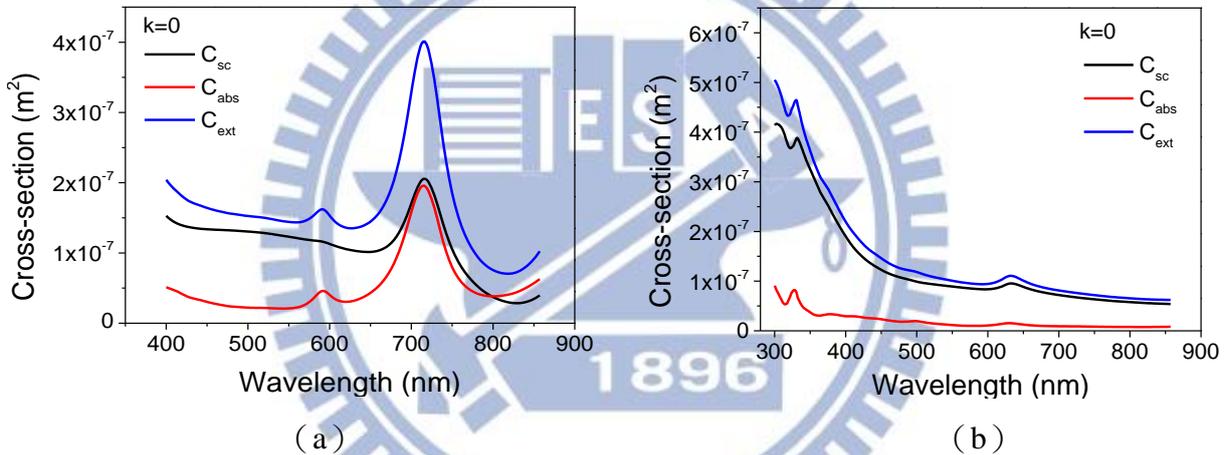


圖 33、(a) 金屬全包覆結構在 $k=0$ 時的光學截面積頻譜圖。(b) 半球殼型結構在 $k=0$ 時的光學截面積頻譜圖。

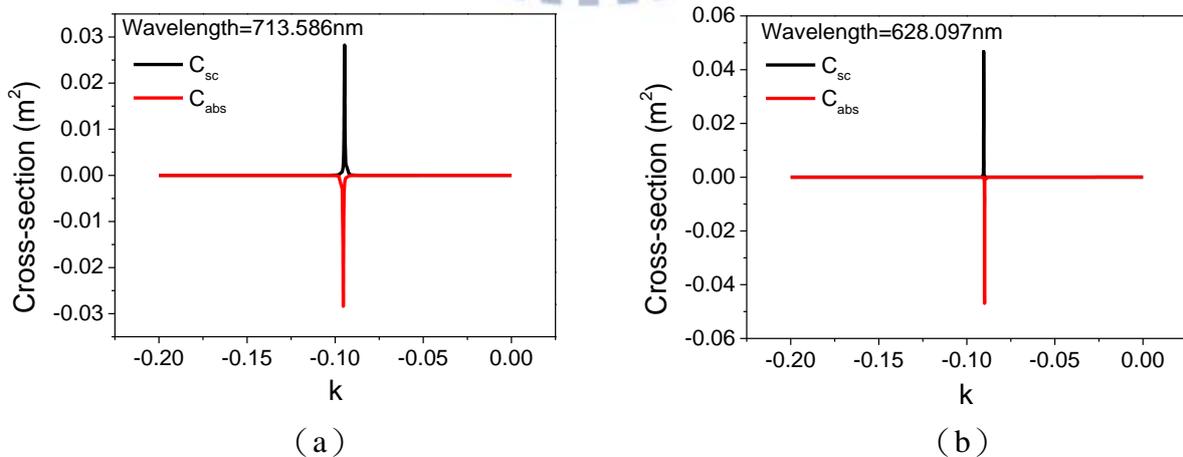


圖 34、(a) 金屬全包覆結構在波長 651.243nm 時，以 k 為函數之光學截面積圖。(b) 半球殼奈米結構在波長 651.243nm 時，以 k 為函數之光學截面積圖。

由上述物理機制我們可以推得當 k 大於增益閾值時，二氧化矽中的增益介質並不會改變金屬殼層的局域電漿子的物理特性，最多僅吸收來自入射場的能量[5]。因此，此時 ($k=0$) 金屬全包覆結構的品質因子僅 17.35，其值較低可能原因為金屬內導電電子的強大消散[35,36]。同理，半金屬殼型結構的品質因子為 22.55。

但是一旦 k 達到增益閾值時，增益介質所吸收的能量會藉由能量共振方式完全轉移至 LSPR 膜態並藉由該膜態的交互作用使表面電漿子放大並補償其金屬損耗，最終，金屬殼層能量損耗與增益介質的放大維持相對平衡，其淨放大為 0 且超級共振

(super-resonance) 穩定存在[7]。我們定義 A_{abs} 及 A_{sca} 為奈米系統吸收與散射放大率：

$$A_{abs} = |C_{abs}^{\min} / C_{abs}^0|, A_{sca} = |C_{sca}^{\max} / C_{sca}^0|, \text{ 其中 } C_{abs}^{\min} \text{ 及 } C_{sca}^{\max} \text{ 分別表示 } k = k_{thre} \text{ 時在奈米系統的操作波長下所得到的吸收及散射截面積, } C_{abs}^0 \text{ 及 } C_{sca}^0 \text{ 則分別代表 } k=0 \text{ 時的吸收及散射截面積。}$$

如圖 35 所示，當 k 為增益閾值時，會具有相對最正的散射截面積及最負的吸收截面積，這表示在此波長下有顯著的共振現象，以金屬全包覆結構為例，其散射截面積達到最大峰值為 0.00877m^2 ，而吸收截面積達到極值時為 -0.00877m^2 ，根據基本定義，金屬全包覆結構的散射放大率及吸收放大率分別為 7.5×10^4 及 1.9×10^5 。同理可得半金屬殼型結構的散射放大率及吸收放大率分別為 5.41×10^3 及 3.35×10^4 。

此外，隨著光學增益的下降 ($k < 0$)，半高寬 (Full width at half maximum, FWHM) 會大幅下降且品質因子也顯著上升，這是因為光場放大量勝過奈米系統的消散能量。對於金屬全包覆結構而言，當 $k = k_{thre}$ 時其共振峰值的半高寬為 0.239nm 、品質因子為 2989，而半球殼奈米結構半高寬則為 0.12nm ，品質因子為 5225。

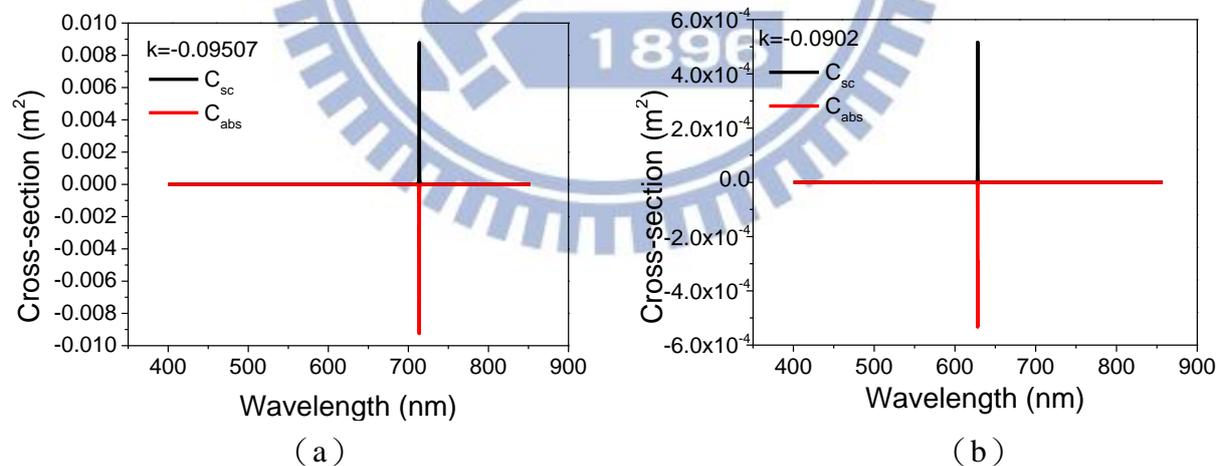


圖 35、(a) 金屬全包覆結構在 $k=-0.09507$ 時的光學截面積頻譜圖。(b) 半球殼奈米結構在 $k=-0.0902$ 時的光學截面積頻譜圖。

金屬全包覆結構在波長 713.586nm 且達到增益閾值時，電場集中在靠近「球核與金屬殼介面處」以及「二氧化矽殼層四個角落」，其最大場值為 669.41V/m ，是入射場大小的 669.4 倍，並分別隨著越靠近球核中心及越遠離最外殼層而電場衰減，而紅色箭頭表示能量流向並可視為元件 spacing 軌跡，如圖 36，能量分別從中心以十字形方向散出，

我們也可以藉由計算奈米粒子邊界得到能量流極化圖加以印證「能量等量的向四方傳遞」訊息。由遠場極化圖（圖 38）可知，金屬全包覆結構最終將輻射至十字軸方向。

另一方面，如圖所示，半球殼結構二氧化矽核與半殼層交界處，有極大的局域場，其值可高達 1709.59V/m，其值大小不僅遠高於金屬全包覆結構且其場分布更集中於奈米局域，此高強度局域場意指能夠再次激發增益介質，引致更多受激輻射並致使更多表面電漿子的產生，提供「強」回饋機制。如圖 37 所示，能量大致向外散射，主要源於元件上方處及兩側輻射，且隨著遠離奈米結構能量流會向兩側匯聚。比較兩結構之遠場極化圖，半球殼結構比起金屬全包覆結構更具有較佳的方向性，並沿半殼層之軸輻射。

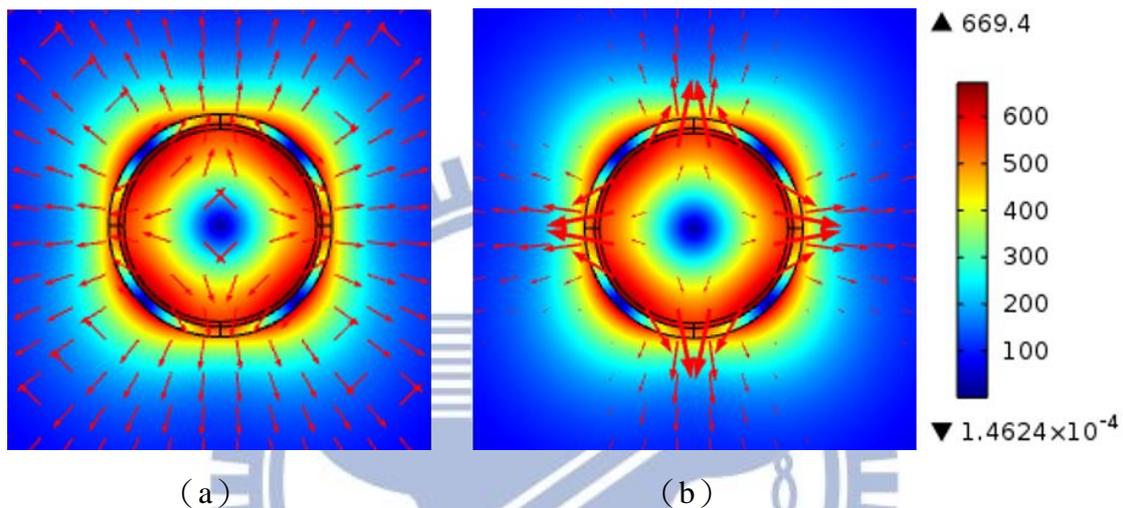


圖 36、金屬全包覆結構電場分佈圖，其中紅色箭頭為能量流向。(a) 能量流大小歸一化。(b) 能量流大小正比於箭頭長度。

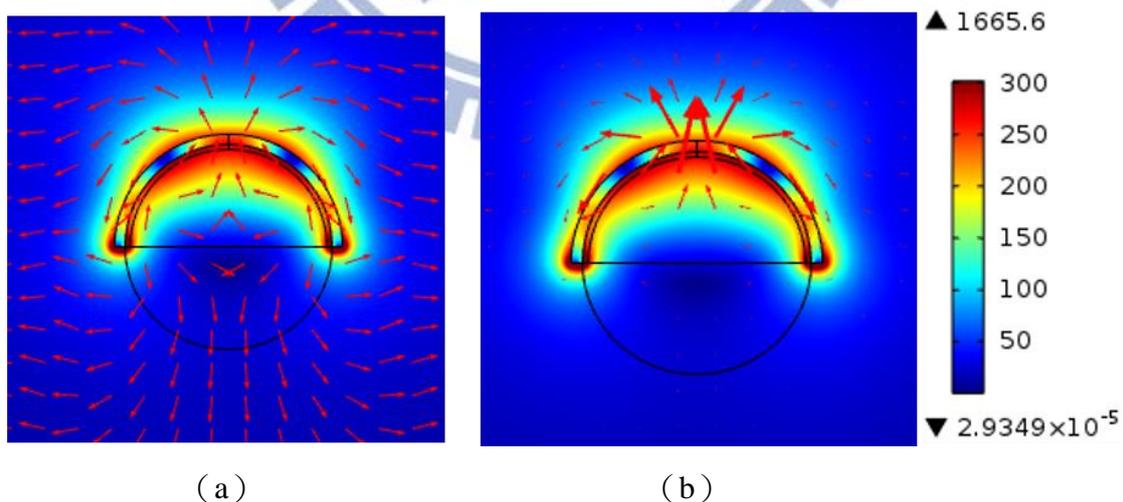


圖 37、半金屬殼型結構電場分佈圖，其中紅色箭頭為能量流向。(a) 能量流大小歸一化。(b) 能量流大小正比於箭頭長度。

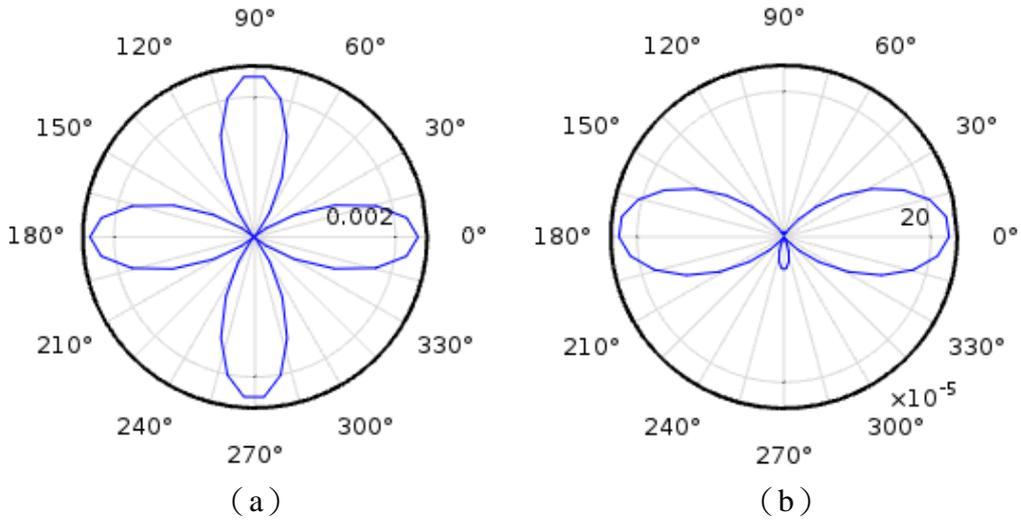


圖 38、(a) 金屬全包覆結構的遠場極化圖。(b) 半金屬殼型結構的遠場極化圖。

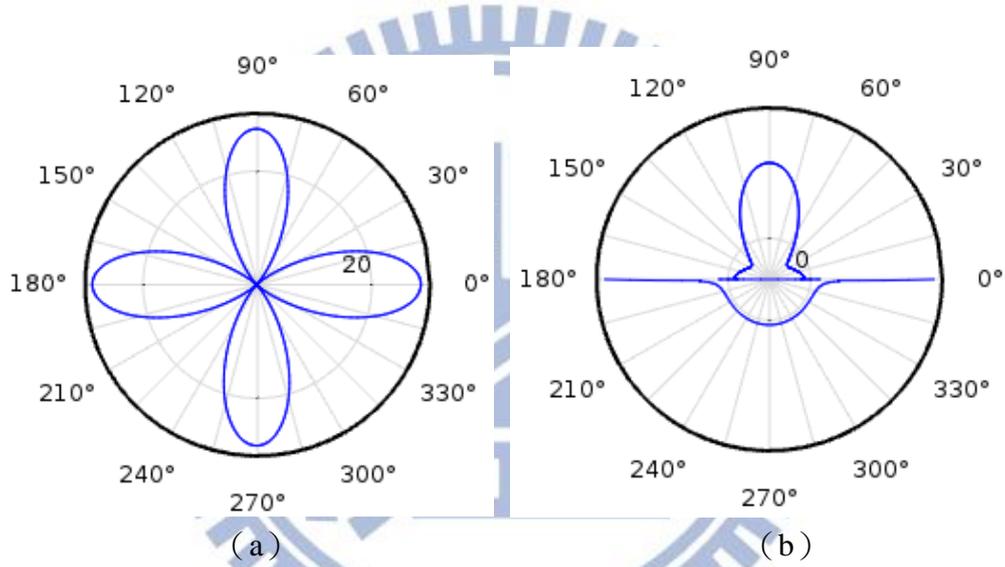


圖 39、(a) 金屬全包覆結構的能量流極化圖。(b) 半金屬殼型結構的能量流極化圖。

3.2 三層奈米殼型結構

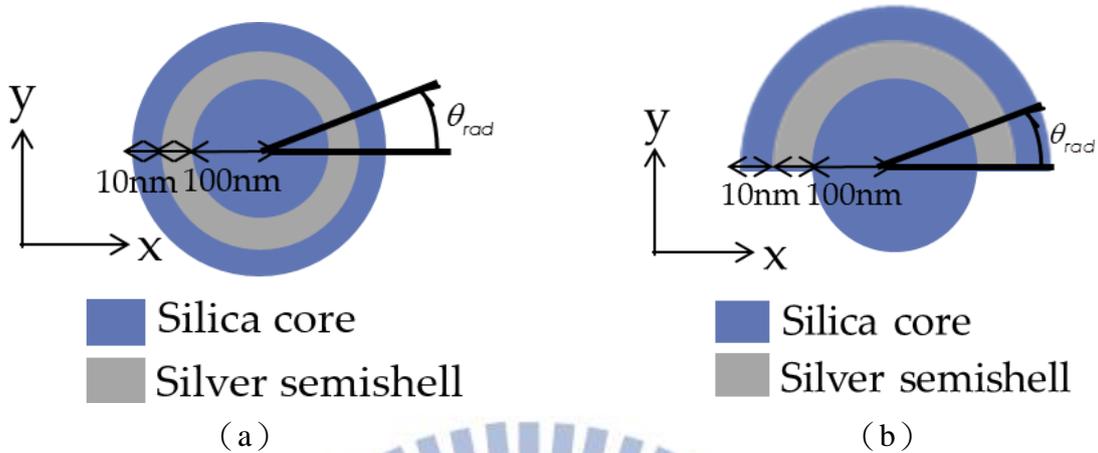


圖 40、(a) 三層全包覆結構 (Three-layer SPASER)。(b) 三層半包覆結構 (Three-layer semishell SPASER)。

本章節探討三層奈米殼型結構，該結構是由半徑 100nm 且摻雜增益介質的二氧化矽為核，並在外層包覆厚度皆為 10nm 的銀奈米殼以及摻雜增益介質的二氧化矽殼層。如圖 40 所示，(a) 為外殼層全包覆的奈米結構。(b) 為外殼層為包覆一半的半球殼。

當光學增益程度 $k=0$ 時，也就是為二氧化矽沒有摻雜增益介質時，三層全包覆結構在可見光波段其散射截面積會大於吸收截面積，但在波長 800nm 之後，其吸收截面積會比散射截面積大，表示在該波長之後，入射電磁波的能量會以奈米粒子吸收為主，如圖 41a 所示，當一電磁波入射時，收集該結構之散射平面波，可以發現其波主要集中在波長 617.28nm 及 740.16nm。而三層半包覆結構在波長 400-900nm 之間皆以散射形式為主，且在波長 331.5nm 及 654.88nm 出現高峰，而我們針對可見光-近紅外光波段進行研究。在 $k=0$ 時三層全包覆結構的品質因子僅 17.99，而三層半包覆結構的品質因子為 21.63，在二氧化矽未摻雜增益介質時其品質因子值較低歸因於金屬內導電電子的強大消散。

隨著增益介質的摻雜 ($k<0$)，光學頻譜線寬 (即半高寬) 會有窄化現象，以三層全包覆結構為例，當 $k=0$ 時，其半高寬為 41.19nm，且當 $k=k_{thre}$ 時，其頻寬窄化至 0.2590nm，由於 k 到達臨界增益值時表示其「受激輻射引致的表面電漿子放大量」與「金屬殼層的損耗量」取得動態平衡，此時會開始發生 spasing，故光學頻譜曲線之線寬為發生 spasing 時的輻射波段，其共振峰的頻寬越窄，所產生的光源單頻性越佳。如圖 42 所示，對於三層全包覆結構而言，當 $k=k_{thre}=-0.09208$ 時散射及吸收截面積大小值會達到最大，其散射放大率 A_{sca} 與吸收放大率 A_{abs} 為 3.4×10^4 與 3.77×10^4 ，而圖 43a 顯示在波長 738.11nm 下有顯著的共振現象，其共振峰值的半高寬為 0.259nm、品質因子為 2850，相同地，三層半包覆結構在 $k=k_{thre}=-0.08413$ 其散射與吸收截其放大率為 1.43×10^4 及 7.29×10^4 ，且在波長 651.24 時發生超級共振現象，其共振半高寬為 0.0947nm，品質因子為 6878。比較各結構之增益閾值 $|k|$ ，發現三層奈米殼型結構普遍會比奈米殼型結構

來的低，而半球殼型也會比全包覆殼型結構具有較低的增益閾值/ k ，因此，三層半包覆結構目前具有較低之臨界增益值/ k 。

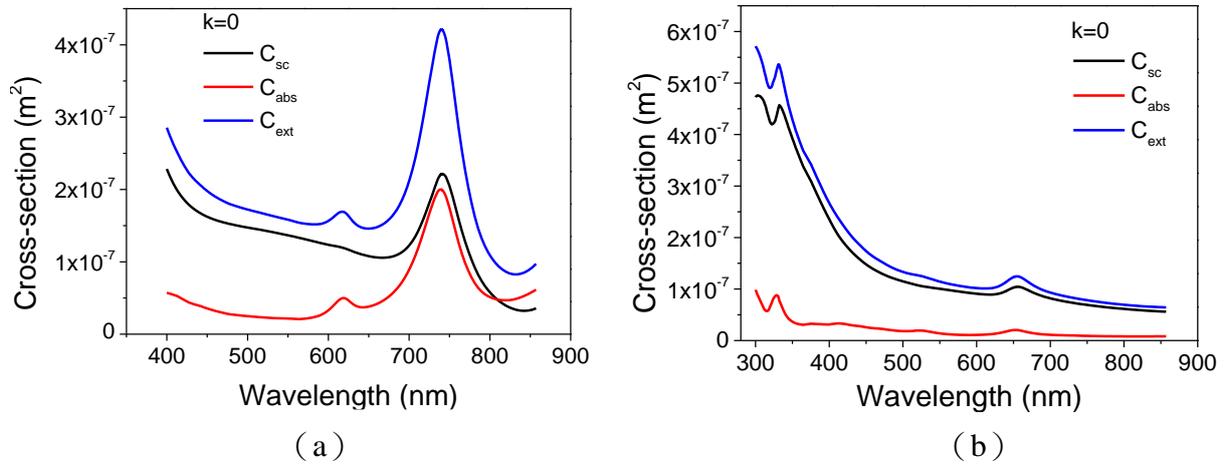


圖 41、(a) 三層全包覆結構在 $k=0$ 時的光學截面積頻譜圖。(b) 三層半包覆結構在 $k=0$ 時的光學截面積頻譜圖。

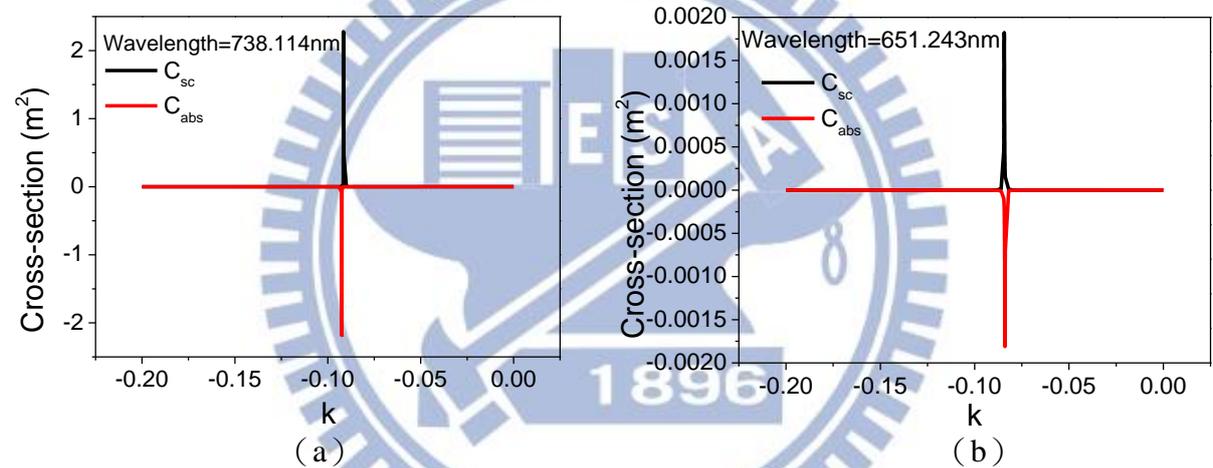


圖 42、(a) 三層全包覆結構波長 738.114nm 時，以 k 為函數之光學截面積圖。(b) 三層半包覆結構波長 651.243nm 時，以 k 為函數之光學截面積圖。

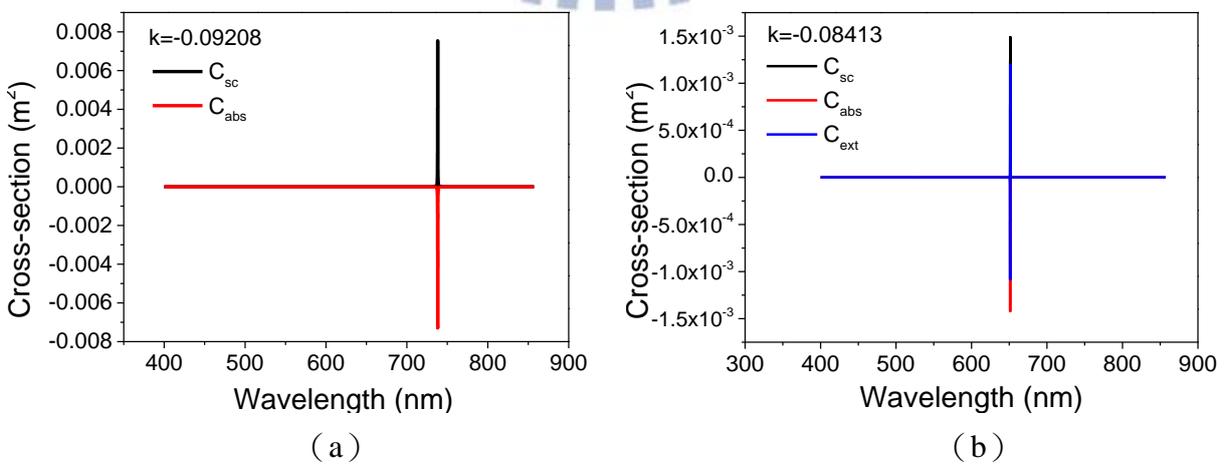


圖 43、(a) 三層全包覆結構在 $k=-0.09208$ 時的光學截面積頻譜圖。(b) 三層半包覆結構在 $k=-0.08413$ 時的光學截面積頻譜圖。

三層全包覆結構電場集中在靠近核-金屬殼介面處以及分布在外層二氧化矽殼層四個角落，其最大場值為 638.57 V/m，而紅色箭頭表示能量流向並可視為雷射 spasing 軌跡，如圖 44，能量分別從中心向四方位角散出，我們也可以藉由計算奈米粒子邊界得到能量流極化圖加以印證「能量等量的向四方傳遞」訊息。由遠場極化圖可知，三層全包覆結構最終將輻射至四個方向。

另一方面，如圖 45 所示，三層半球殼層奈米型在共振波長 651.243nm 及 k 為增益閾值時，二氧化矽核與半殼層交界處，有極大的局域場，其值可高達 1967.15 V/m，其值大小不僅遠高於三層全包覆結構且其場更集中於奈米局域，此高強度局域場意指能夠再次激發增益介質，引致更多受激輻射並致使更多表面電漿子的產生，而提供強回饋機制。如圖 45 所示，能量大致向外散射，且主要由元件上方處及兩側輻射，並向兩側匯聚。比較兩結構之遠場極化圖，三層半殼層奈米型結構比起全包覆的三層奈米型結構更具有較佳的方向性，並沿半殼層之軸輻射。

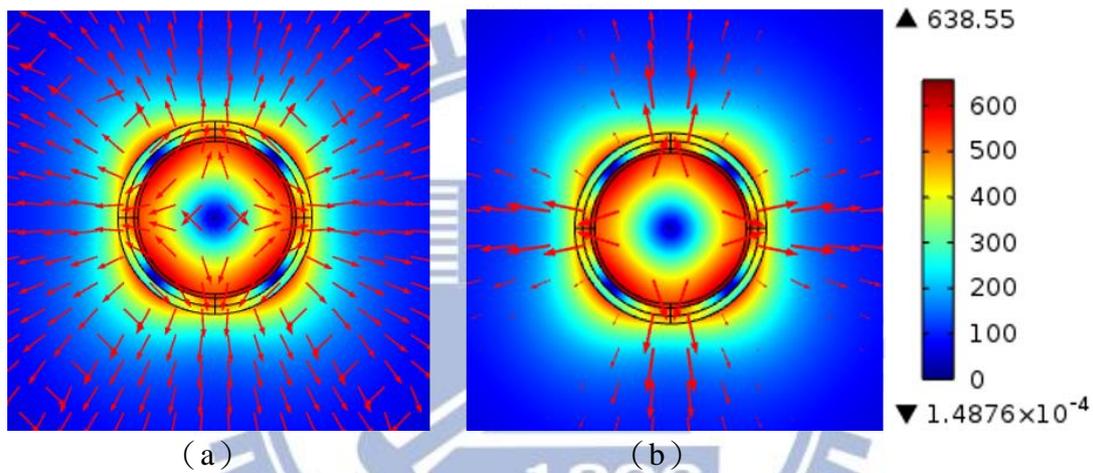


圖 44、三層全包覆結構電場分佈圖，其中紅色箭頭為能量流向。(a) 能量流大小歸一化。(b) 能量流大小正比於箭頭長度。

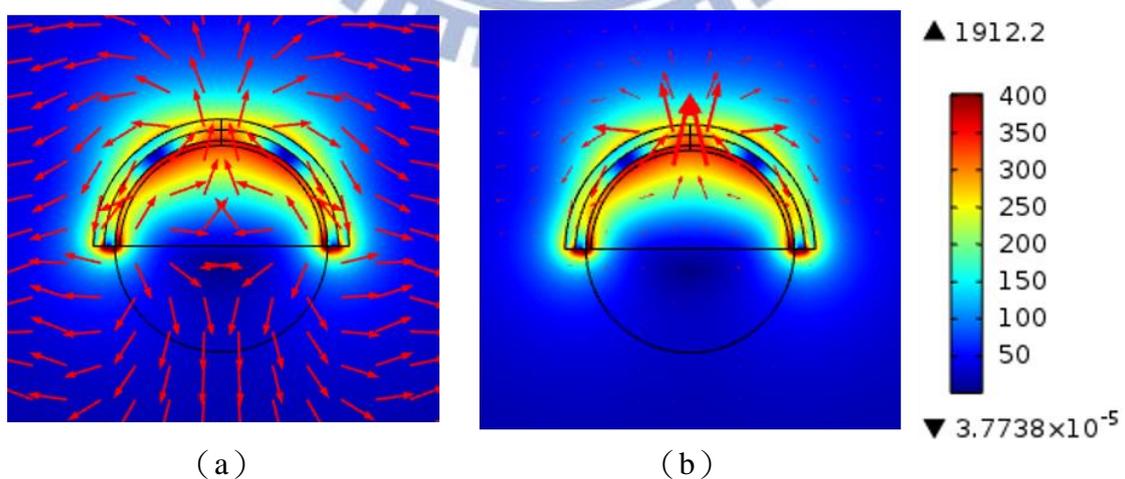


圖 45、三層半包覆結構電場分佈圖，其中紅色箭頭為能量流向。(a) 能量流大小歸一化。(b) 能量流大小正比於箭頭長度。

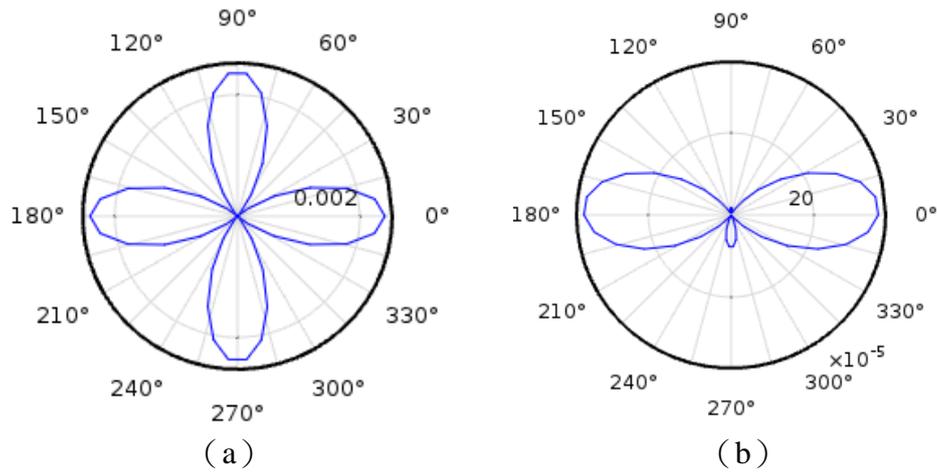


圖 46、(a) 三層全包覆結構的遠場極化圖。(b) 三層半包覆結構的遠場極化圖。

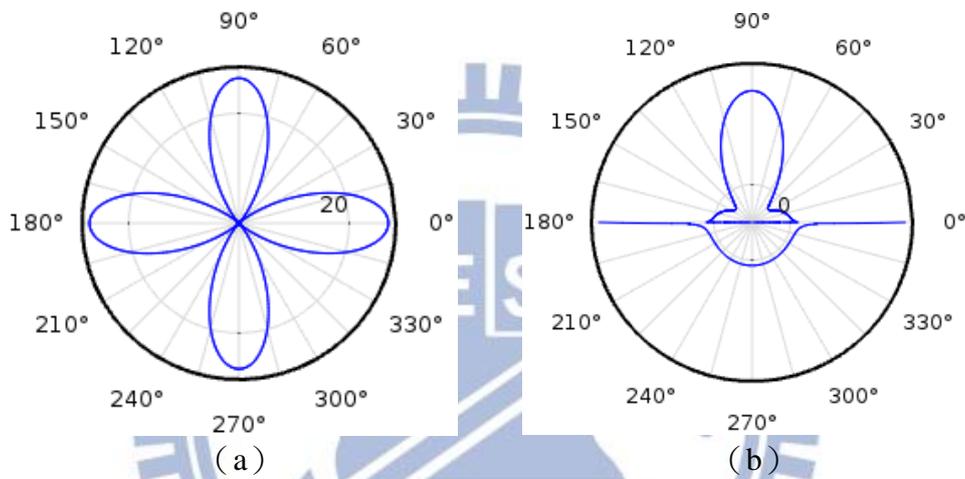


圖 47、(a) 三層全包覆結構的能量流極化圖。(b) 三層半包覆結構的能量流極化圖。

3.3 三層半球殼厚核結構

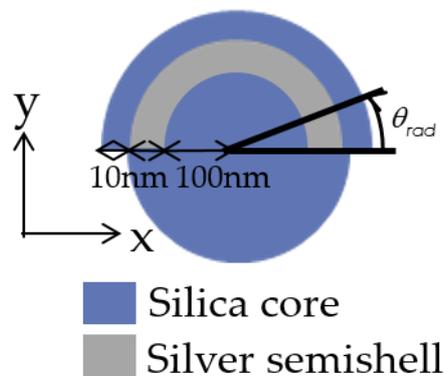


圖 48、三層半球殼厚核結構 (Thicker core SPASER)。

此結構可分為兩部分，上半球為半徑 100nm 的二氧化矽球核及厚度皆為 10nm 的殼層結構，由內而外分別為銀以及二氧化矽薄殼，而下半球為半徑 110nm 的二氧化矽球核，此處所有的二氧化矽皆摻雜增益介質。

當 $k=0$ 時，其散射截面積大於吸收截面積，表示電磁波入射至受激輻射引致表面電漿子放大元件時，大多能量以散射的形式將電磁波反射至真空中，如圖 49 所示，在光學頻譜圖上出現兩個高峰 (peak)，分別位於波長 332.59 及 661.73nm，表示在未摻入增益介質下金屬殼層的表面電漿子於該波長處發生共振，由於本實驗設計之受激輻射引致表面電漿子放大元件期望其雷射輸出在可見光-近紅外波段，故針對波長 661.73nm 該模態作探討。

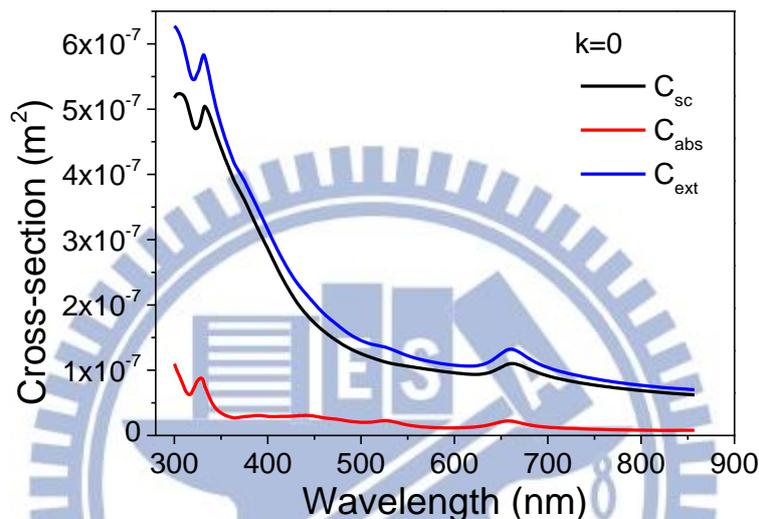


圖 49、 $k=0$ 時的光學截面積圖 (吸收、散射、消光截面積)。

對於該奈米結構而言，隨著增益介質的加入初始會有吸收之現象，隨著光學增益 k 的下降 ($k < 0$) 而有表面電漿放大的效果，當 $k = -0.08366$ 時其表面電漿放大量會恰好補償銀殼層的損耗量，此時其散射與吸收截面積之和為零，表示達到穩態受激輻射引致表面電漿子放大元件的條件，且有很強的表面電漿共振放大發生在波長 655.84nm 處，見圖 50b。如圖 51 所示，當 k 為增益閾值時，最大電場增強的光譜曲線清晰地顯示在波長 655.84nm 附近有共振行為，其值約為 1576.75，為平均電場時的 54 倍，這意味著一個顯著場增強效應只發生在某些小區域，我們將在稍後討論這些熱點區域。此外，我們發現最大電場增強的光譜曲線的共振波長與光學截面積頻譜曲線的共振波長相符，這表明當電漿共振模式被激發時，散射及吸收效率和近場振幅發生共振增強。計算 spasing 膜態時的品質因子，其值為 7939，相較於 $k=0$ 時的 20.15，整整大了 394 倍，這是因為未摻雜增益介質的奈米粒子其金屬損耗大，且產生共振的表面電漿子數目少，故品質因子小很多，而在雷射膜態下的受激輻射引致表面電漿子放大元件其共振的電子數多且金屬損耗被增益介質剛好補償，故其值居高不下。在臨界增益值下，三層半球殼厚核結構的散射截面積及吸收截面積大小皆達到最大，為 0.00211 m^2 ，而散射及吸收放大率分別為 1.91×10^4 及 9.48×10^4 ，線寬為 0.0826nm。

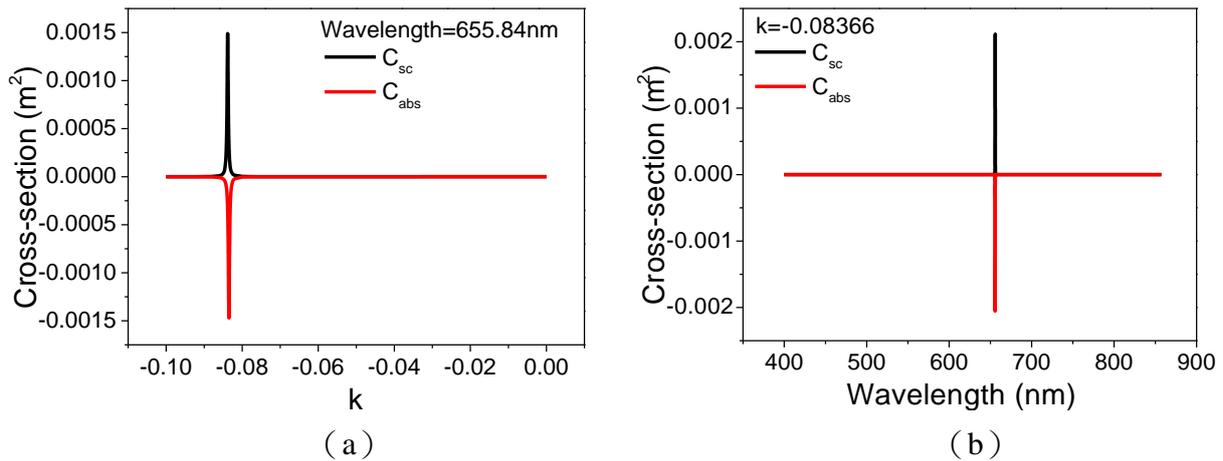


圖 50、(a)結構在波長 655.84nm 時，以 k 為函數之光學截面積圖。(b)結構在 $k=-0.08366$ 時的光學截面積頻譜圖。

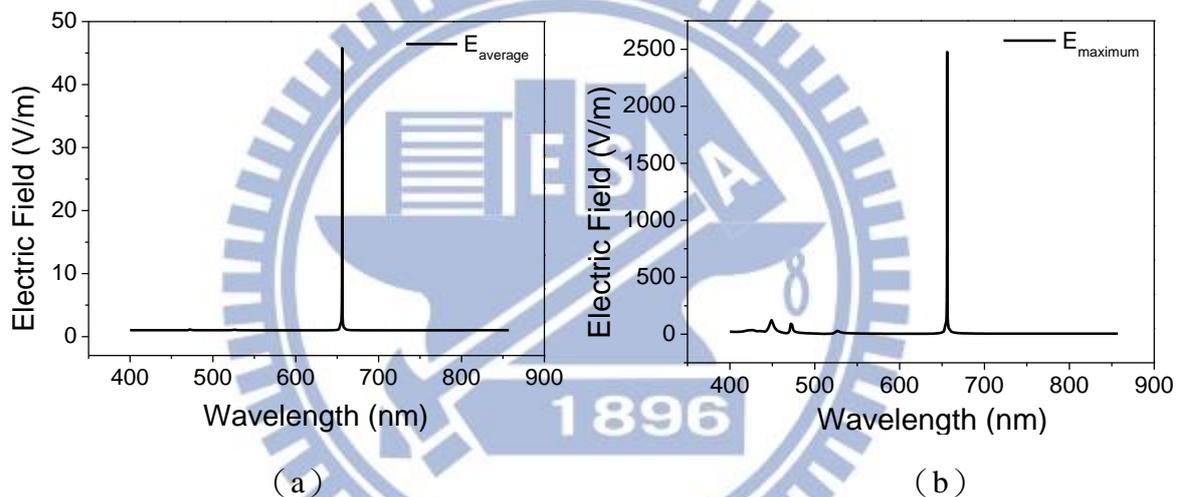


圖 51、 k 為增益閾值時 ($k=-0.08366$)，(a) 各波長下所對應的平均電場值。(b) 各波長下所對應的最大電場值。

一般而言，局部電場分佈已被廣泛用於識別一個出現在消光頻譜圖上特定的共振模態（例如，偶極或四極模態）的物理性質[37]。平均電場增強因子定義為平均電場與入射場之比值，由於模擬設定其入射電場大小為 1，故平均電場增強因子等於平均電場值，同理，最大增強因子定義為最大電場與入射場之比值，且等於最大電場值，如圖 51 所示，由於平均電場增強因子比最大增強因子小得多，這意味著一個顯著場增強效應只發生在某些小區域，而這些熱點區域位於接近半球殼的尖角及奈米粒子上方處（圖 52），且其最大場值為 1576.75，為一「高局域場」，而由能量流可以得知，雷射主要由粒子的對稱軸（ y 軸）上方處輻射，且隨著遠離奈米粒子而往上方及兩側散出，此趨勢與遠場極化圖相呼應，最終會往平行於 x 軸之方向輻射。

比較 $k=0$ 及 $k=k_{thre}$ 兩者不同的增益程度在共振波長下的電場分佈圖（圖 52.53），我們可以觀察到兩個值得討論的現象：第一，不論是被動奈米系統 ($k=0$) 抑或是主動奈

米系統 ($k=k_{thre}$)，其整體電場分布相似，如：場的分布、高局域場點 (hot spot) 的數目或是所在的位置都十分相近。第二，局域場強度大幅增強之現象，我們可以詳見在電場最強之區域其場值，由被動奈米結構時的 8.33，到主動奈米結構的 1576.75，表示當 k 到達臨界增益時，其共振場有大幅增強之現象，並引致強回饋機制，刺激增益介質引發受激輻射造成表面電漿子放大。

對於一理想的受激輻射引致表面電漿子放大元件，須具備高輸出功率、方向性佳、低增益閾值、高品質因子、有效模態體積小以及高 Purcell factor 等特性。整體而言，三層半球殼厚核結構具有最佳的單色性以及最低之增益閾值，且其品質因子也居中之冠，這些優勢歸因於其特殊的幾何設計—在金屬殼外以及下半球核外多出了增益介質層，能夠有效的補償銀殼內導電電子的損耗，使之更易於發生 spasing。然而品質因子與有效模態體積一直是魚與熊掌不可兼得，故該奈米粒子的有效模態體積也因為多了摻雜增益介質的二氧化矽而上升，因此我們最終可能會較傾向於「品質因子與有效模態體積比值高」。

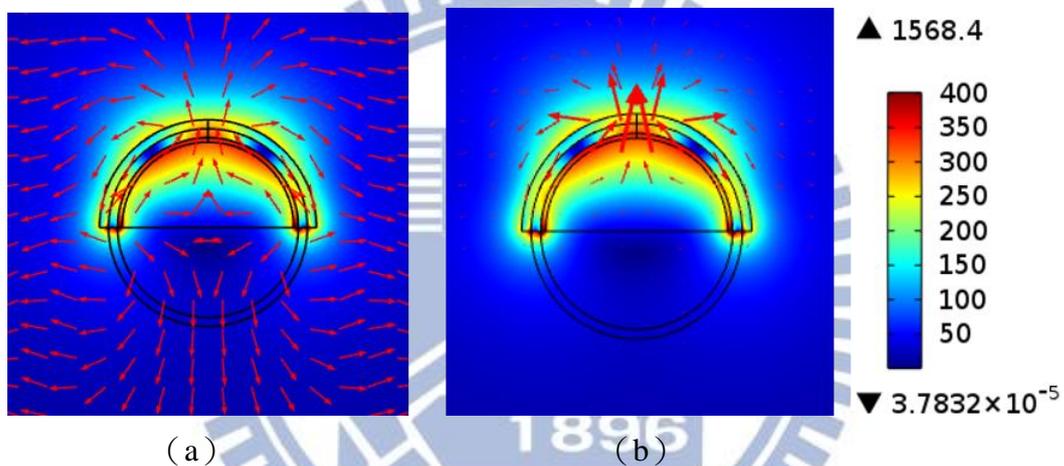


圖 52、 $k=k_{thre}$ 且波長 655.84nm 時的電場分布圖，其中紅色箭頭表示能量流向。(a) 能量流大小歸一化。(b) 能量流大小正比於箭頭長度。

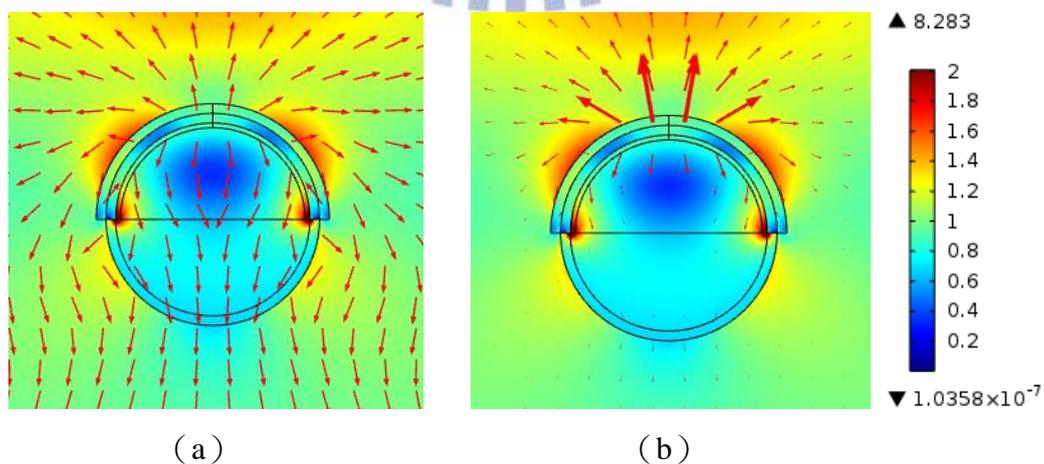


圖 53、 $k=0$ 且波長 661.73nm 時的電場分布圖，其中紅色箭頭表示能量流向。(a) 能量流大小歸一化。(b) 能量流大小正比於箭頭長度。

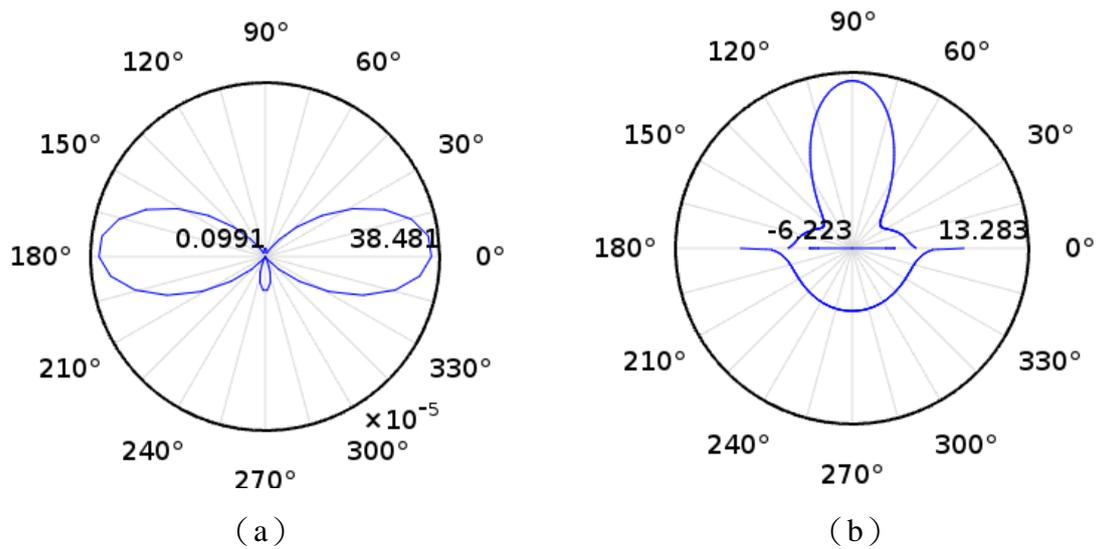


圖 54、三層半球殼厚核結構。(a) 遠場極化圖。(b) 能量流極化圖。

3.4 半包覆介電質殼結構

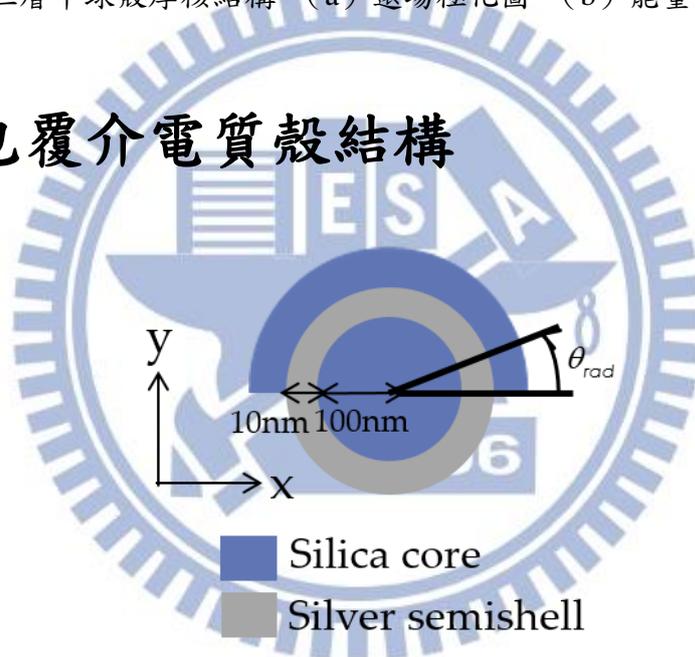


圖 55、半包覆介電質殼結構 (Silica semishell SPASER)。

此結構由半徑 100nm 的二氧化矽球核及厚度皆為 10nm 的殼層結構所組成，其中銀殼全包覆整個球核而二氧化矽殼層僅有包覆球體的一半，所有的二氧化矽皆摻雜增益介質，如圖 55 所示。

當光學增益程度 $k=0$ 時，也就是二氧化矽沒有摻雜增益介質時，該結構在可見光波段其散射截面積會大於吸收截面積，表示電磁波入射至受激輻射引致表面電漿子放大元件時，大多能量以散射的形式將電磁波反射至真空中，但在波長 800nm 之後，其吸收截面積會比散射截面積大，表示在該波長之後，入射電磁波的能量會以奈米粒子吸收為主，如圖 56 所示，當一電磁波入射時，收集該結構之散射平面波，可以發現其波主要集中在波長 330.76nm 及 728.16nm，此實驗針對波長 728.16nm 附近的模態作探討。

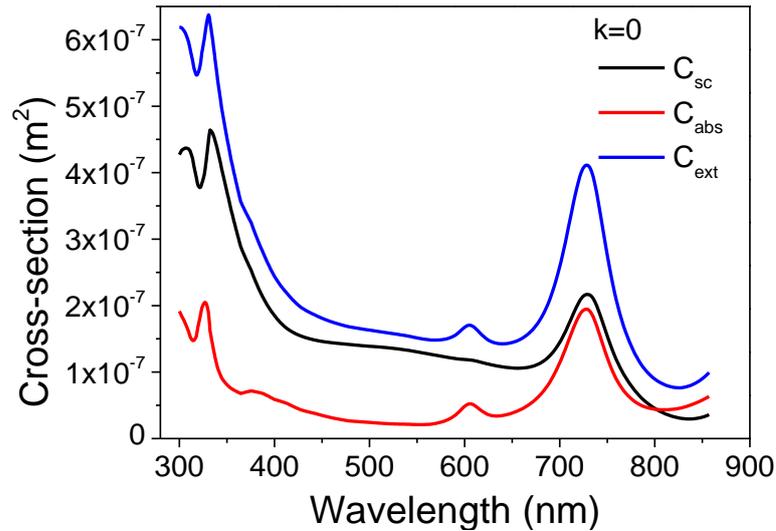


圖 56、 $k=0$ 時的光學截面積圖（吸收、散射、消光截面積）。

對於該奈米結構而言，隨著增益介質的加入初始會有吸收之現象，隨著光學增益 k 的下降 ($k < 0$) 而有表面電漿放大的效果，當 $k = -0.09375$ 時其表面電漿放大量會恰好補償銀殼層的損耗量，此時其散射與吸收截面積之和為零，表示達到穩態受激輻射引致表面電漿子放大元件的條件，且有很強的表面電漿共振放大發生在波長 726.7nm 處，見圖 57b。如圖 58 所示，當 k 為增益閾值時，最大電場增強的光譜曲線清晰地顯示在波長 726.7nm 附近有共振行為，其值約為 858.98，為平均電場時的 8.25 倍，這意味著一個顯著場增強效應只發生在某些小區域，我們將在稍後討論這些熱點區域。此外，我們發現最大電場增強的光譜曲線的共振波長與光學截面積頻譜曲線的共振波長相符，這表明當電漿共振模式被激發時，散射及吸收效率和近場振幅發生共振增強。計算 spasing 膜態時的品質因子，其值為 2884，相較於 $k=0$ 時的 17.31，整整大了 167 倍，這是因為未摻雜增益介質的奈米粒子其金屬損耗大，且產生共振的表面電漿子數目少，故品質因子小很多，而在雷射膜態下的受激輻射引致表面電漿子放大元件其共振的電子數多且金屬損耗被增益介質剛好補償，故其值居高不下。在臨界增益值下，半包覆介電質殼結構的散射截面積及吸收截面積大小皆達到最大，為 $0.0095m^2$ ，而散射及吸收放大率分別為 4.38×10^4 及 4.88×10^4 ，線寬為 0.2519nm。

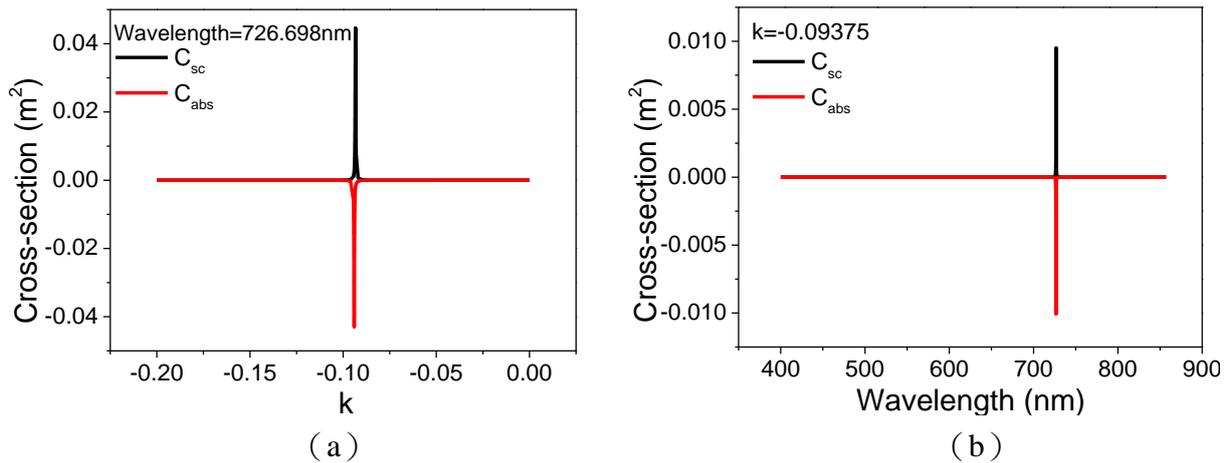


圖 57、半包覆介電質殼結構。(a) 波長 655.84nm 時，以 k 為函數之光學截面積圖。(b) $k = -0.09375$ 時的光學截面積頻譜圖。

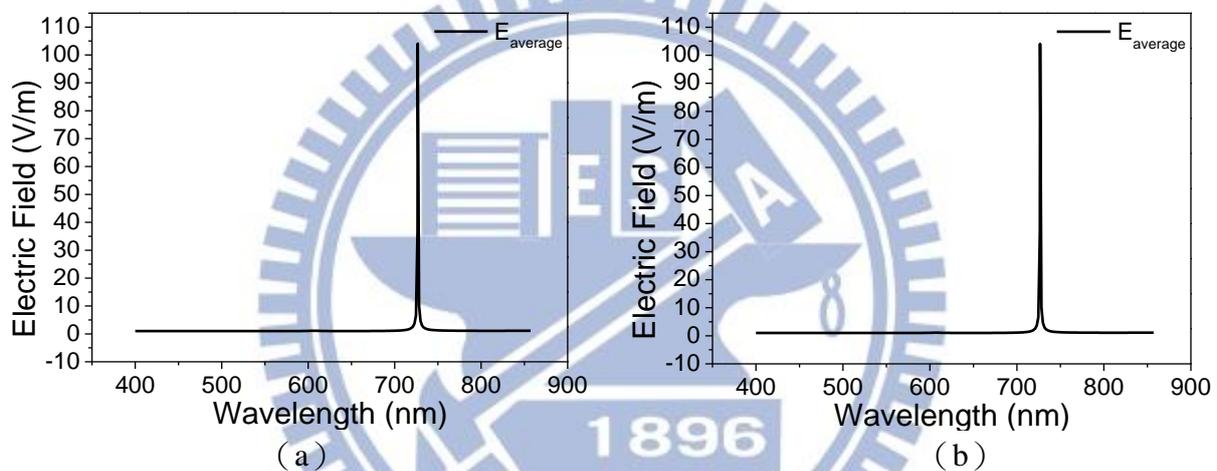


圖 58、 k 為增益閾值時 ($k = -0.09375$)，(a) 各波長下所對應的平均電場值。(b) 各波長下所對應的最大電場值。

如圖 58 所示，由於平均電場增強因子比最大增強因子小得多，這意味著一個顯著場增強效應只發生在某些小區域，而這些熱點區域位於接近球核-金屬殼層介面的四個角落 (圖 59)，且其最大場值為 858.98，為一「高局域場」，而由圖 59b 可以得知，能量分別從中心以十字形方向散出，我們也可以藉由計算奈米粒子邊界得到能量流極化圖 (圖 61b) 加以印證「能量等量的向四方傳遞」訊息。由遠場極化圖 (圖 61a) 可知，金屬全包覆結構最終將輻射至十字軸方向。

比較 $k = 0$ 及 $k = k_{thre}$ 兩者不同的增益程度在共振波長下的電場分佈圖 (圖 59.60)，我們可以觀察到兩個值得討論的現象：第一，不論是被動奈米系統 ($k = 0$) 抑或是主動奈米系統 ($k = k_{thre}$)，其高局域場點 (hot spot) 的數目都十分相近，然而分布卻有些微差異： $k = 0$ 時熱點集中在「下半球的核-殼界面延伸至球核處」以及「二氧化矽殼層斜角處」，而 $k = k_{thre}$ 時分布於球核-金屬殼層介面的四個角落。第二，局域場強度大幅增強之現象，我們可以詳見在電場最強之區域其場值，由被動奈米結構時的 3.68，到主動奈米

結構的 858.98，表示當 k 到達臨界增益時，其共振場有大幅增強之現象，並引致強回饋機制，刺激增益介質引發受激輻射造成表面電漿子放大。

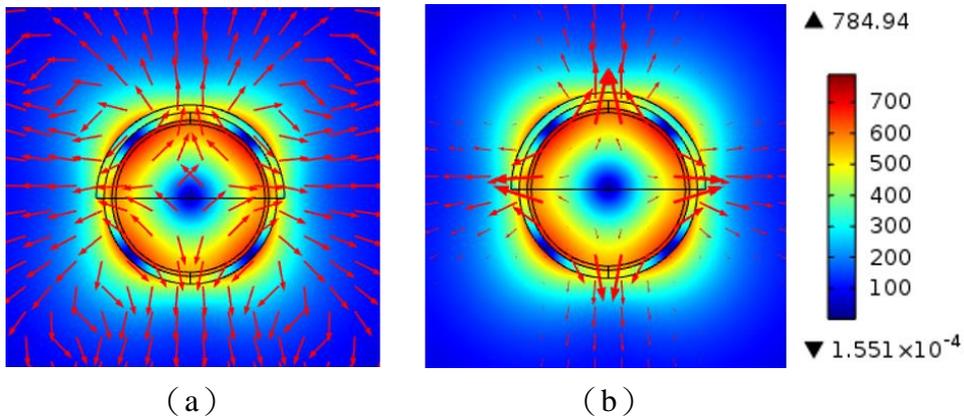


圖 59、 $k=k_{thre}$ 且波長 726.7nm 時的電場分布圖，其中紅色箭頭表示能量流向。(a) 能量流大小歸一化。(b) 能量流大小正比於箭頭長度。

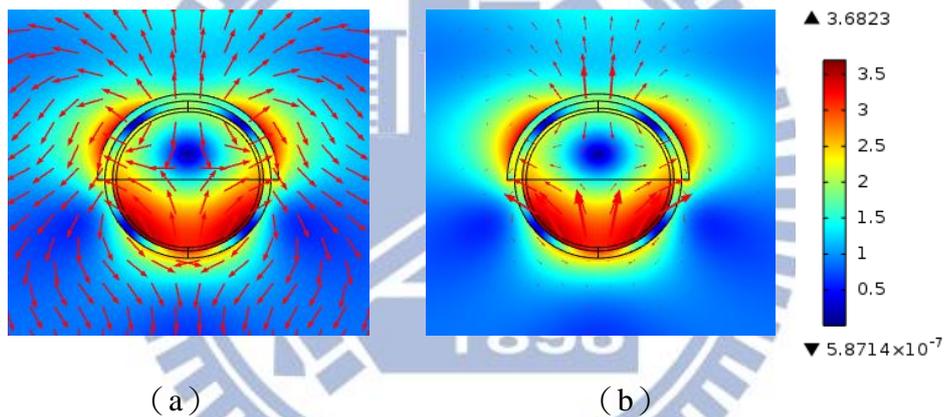


圖 60、 $k=0$ 且波長 728.16nm 時的電場分布圖，其中紅色箭頭表示能量流向。(a) 能量流大小歸一化。(b) 能量流大小正比於箭頭長度。

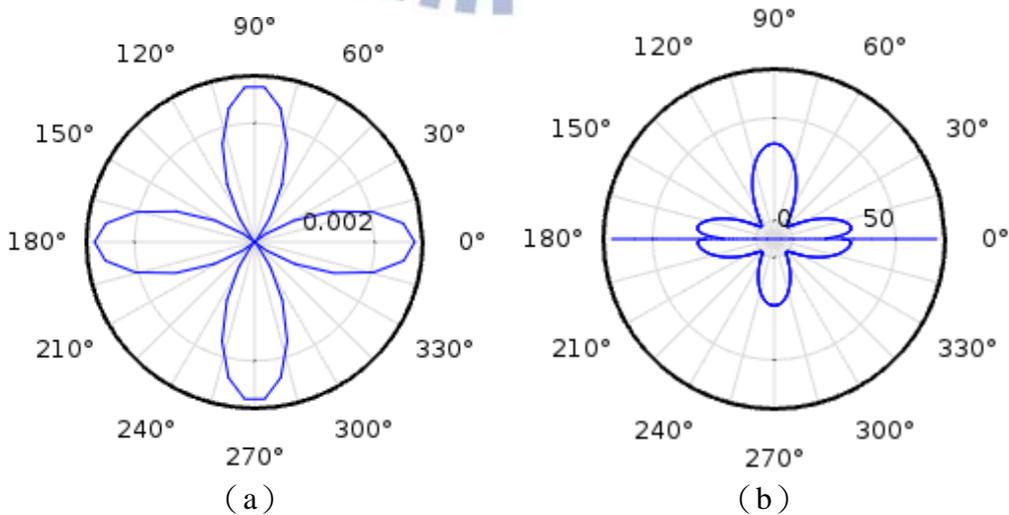


圖 61、半包覆介電質殼結構。(a) 遠場極化圖。(b) 能量流極化圖。

3.5 六種結構總結

對於一理想的受激輻射引致表面電漿子放大元件，須具備高輸出功率、方向性佳、低增益閾值、高品質因子、有效模態體積小以及高 Purcell factor 等特性。此章節為綜觀上述六種受激輻射引致表面電漿子放大元件，以不同的角度分析各結構之優劣。表 2 為不同幾何形狀的受激輻射引致表面電漿子放大元件及其參數，其中金屬全包覆結構、半金屬殼型結構、三層全包覆結構為文獻所設計之形貌，而文獻使用三維模擬元件特性，此論文僅以二維模擬之。

表 2、不同幾何形狀的受激輻射引致表面電漿子放大元件及其參數。

	金屬全包覆結構 Full metal SPASER	半金屬殼型結構 Metal semishell SPASER	三層全包覆結構 Three-layer SPASER	三層半包覆結構 Three-layer semishell SPASER	三層半球殼厚核結構 Thicker core SPASER	半包覆介電質殼結構 Silica semishell SPASER
Structure						
Response Wavelength	714nm	628nm	738nm	651nm	656nm	727nm
Max Electric field	669	1710	639	1967	1577	859
k_{thre}	-0.09507	-0.0902	-0.09208	-0.08413	-0.08366	-0.09375
Linewidth (nm)	0.2387	0.1202	0.2590	0.0947	0.0826	0.252
Q factor	2989	5225	2850	6878	7939	2884
Mode area (2D)	1.58×10^{-14}	1.88×10^{-16}	1.83×10^{-14}	2.58×10^{-16}	3.97×10^{-16}	1.48×10^{-16}
Purcell factor (2D)	3171	360294	2787	371873	283162	3383

一、輻射方向性

傳統雷射是由高品質的光學鏡組成 Fabry-Perot (FP) 腔體，其腔體會決定輻射的方向性[38]，當光學腔體藉由特殊設計而微縮至微米等級時，在不需要額外腔體下，系統本身會提供光學回饋機制，因此腔體的幾何形貌以及主導的膜態會影響雷射之方向性，可能為等向性輻射或是輻射至特定方向。

對於上述結構而言，幾何結構的些微不對稱性 (reduce symmetry) 可以打破捕捉模態 (trapped mode) 震盪的非輻射現象，允許小部分電流震盪所累積的能量被輻射至真空中[13]，在半球殼結構中，能量會從微不對稱性之處—半球殼軸 (平行於 x 軸) 滲漏，故其輻射的方向性相對於全包覆型結構 (其輻射方向為十字形) 具有較佳的表現。整體而言，只要其幾何結構為「金屬殼層半包覆」型態皆會有較好的方向性，如：半球殼型、三層半球殼型、三層半球殼厚核。

二、品質因子及半高寬

儘管受激輻射引致表面電漿子放大元件使用金屬粒子作為共振腔體解決傳統雷射無法微縮的困難，但是金屬腔體會吸收造成能量損耗，尤其是在可見光頻段更為嚴重，因此克服損耗是一重要的課題。

在文獻[28]中提及許多方法可以省略、減輕甚至是克服光與金屬交互作用而產生的損耗，其方法如下：

- 一、使用超導體電漿 (superconducting plasmonics) 可以大幅減少損耗，然而僅適用於「低於超導體間隙 (superconducting gaps) 的頻率」，亦即只適用於兆赫茲頻段 (terahertz region)
- 二、使用高摻雜半導體，由於自由載子密度下降，故使其歐姆損耗顯著下降，然而其問題可能依然存在，這是因為電漿膜態之有效性與品質因子相關，但與本身損耗無相關性，對於摻雜半導體而言其品質因子可能低於電漿金屬。
- 三、使用低損耗電漿 metamaterial，利用增益介質去補償介電 (歐姆) 損耗，增益介質將會提供量子放大供以補償其損耗。

此外，文獻[4]也提及將電漿子雷射結構降到低溫可以減少金屬損耗且改善增益能力。

而受激輻射引致表面電漿子放大元件本身即利用上述 (三) 之概念—利用增益介質引致表面電漿放大進而補償能量的耗散，當光學損耗達到全補償 (full compensation) 或是過補償 (overcompensation) 將導致不穩定性，其不穩定性將引致 spasing[34]。

品質因子為共振波長與其共振線寬之比值，是衡量腔體能量損耗的指標，當品質因子值越大表示共振腔內的損耗越小，在二氧化矽未摻入增益介質的受激輻射引致表面電漿子放大元件中，其品質因子較低，這歸因於金屬內振動一致的電子數少且導電電子的強大消散未獲得補償，然而當達到 spasing 條件時，相較於金屬全包覆結構，由於半金屬殼型結構其金屬比例相對較少，故來自於銀殼的損耗量下降，品質因子因而大幅提升 (表 3)。如表 4 所示，當各結構由空腔膜態轉變至雷射膜態時，其半高寬會大幅下降，小約兩個數量級，換言之，當元件開始發生 spasing 時所輻射的頻段會侷限在小範圍，

其產生光源的單頻性較佳。此外，在雷射膜態下，相較於全包覆殼層結構，半金屬殼型結構的線寬明顯較低，表示此幾何設計具有較佳之單色性。

相較於「金屬全包覆結構」，「三層金屬全包覆結構」其品質因子顯著提高且增益閾值也會大幅改善，這皆歸因於「三層金屬全包覆結構」在金屬殼層外多了一層摻雜增益介質的二氧化矽殼，其增益介質比例相對較高，較易於達到補償效果。由於整體奈米結構為「二氧化矽球核—金屬殼—二氧化矽殼」，其增益介質分布於球殼及最外殼層，將金屬完全包覆，故更能同時從金屬兩側有效地補償金屬殼層損耗，因此在達到相同補償效果的條件下，「三層全包覆結構」其臨界增益值相對低，其金屬能量耗損也較能有效補償。在共振膜態下，品質因子可以視為振動一致的電子數目，隨著該結構的增益介質多，更能引致受激輻射並將能量提供給表面電漿子振盪而產生光—電漿子耦合，故其產生共振的電子數也會隨之增長，品質因子因而上升。

綜觀這六種幾何設計，發現「三層半球殼厚核結構」其雷射膜態時的品質因子為 7939 居中之冠，其次是三層半包覆結構 (Q=6878)，再者才是半金屬殼型結構 (Q=5225)，如表 3 所示，左欄為發生共振並產生雷射膜態時的品質因子；右欄則是未摻入增益介質時空腔膜態時的品質因子，整體而言雷射膜態與空腔膜態之趨勢相近，但在雷射膜態時三層半球殼厚核結構其品質因子顯著提升，這是因為當受激輻射引致表面電漿子放大元件進入雷射膜態時，其摻入之增益介質有效被激發並引致表面電漿子放大進而補償銀殼層損耗。

表 3、不同幾何結構的品質因子。左欄為雷射膜態時的品質因子；右欄為空腔膜態時的品質因子。

Structure	Q lasing mode	Q cavity mode
Full metal SPASER	2989	17.35
Metal semishell SPASER	5225	22.55
Three-layer SPASER	2850	17.99
Three-layer semishell SPASER	6878	21.63
Thicker core SPASER	7939	20.15
Silica semishell SPASER	2884	17.31

表 4、不同幾何結構的半高寬 (FWHM)。左欄為雷射膜態時的半高寬，右欄為空腔膜態時的半高寬。

Structure	FWHM lasing mode (nm)	FWHM cavity mode (nm)
Full metal SPASER	0.239	41.26
Metal semishell SPASER	0.120	28.06
Three-layer SPASER	0.259	41.19
Three-layer semishell SPASER	0.095	30.33
Thicker core SPASER	0.083	32.84
Silica semishell SPASER	0.252	42.06

三、增益閾值及共振波長

受激輻射引致表面電漿子放大元件增益閾值/ k /居高不下通常是因為實際應用所不需要的能量耗散高，當損耗減少了，其增益閾值 k 及品質因子也會隨之上升。增益閾值 k 的上升 ($k < 0$)，亦即光學增益的大小/ k /越小，表示該元件較易達到 spasing 狀態，低增益閾值/ k /隱含只需摻雜較少的增益材料就可達到相同補償的效果，換句話說，其增益介質的材料選擇較具多樣性且成本也較低。

半球殼型奈米結構比起金屬全包覆結構而言其共振波長會有藍移現象，且其增益閾值/ k /會下降，這是因為在半球殼結構中具「高局域場」，能提供強大的回饋機制更易於產生受激輻射致使表面電漿子放大，再加上「半球殼金屬僅為全包覆結構之一半」減少了金屬材料的能量吸收損耗，因此為達到穩態的受激輻射引致表面電漿子放大元件操作，需具有零階淨放大 (zero-level net optical gain)，亦即藉由增益介質引致表面電漿放大而補償金屬損耗，其中金屬損耗減少，用以補償損耗之增益介質其臨界值/ k /也會隨之下降。整體而言，比起全包覆結構，些微不對稱性 (如：半金屬殼型結構) 可以有效改善元件特性，這歸因於對稱性的破壞致使新的電漿膜態產生[18]。

相較於金屬全包覆結構，「三層金屬全包覆結構」其共振波長會有紅移的現象且增益閾值也會明顯改善，這歸因於其特殊的幾何形貌設計，如同其品質因子提升之原因，「三層金屬全包覆結構」在金屬殼層外多了一層增益材料的殼層，其增益介質比例相對較高且包覆於金屬兩側，更能有效地從金屬兩側補償金屬殼層損耗，因此在達到相同補償效果的條件下，三層金屬全包覆結構其臨界增益值相對較低。

一般的奈米結構，共振波長的可調控性歸因於金屬球殼的內外半徑交互作用，換言之，金屬殼層的局域表面電漿共振膜態可以解釋為球體與共振腔的電漿子混合效應。該交互作用致使電漿共振的的吸收峰分裂成一個較低能量的鍵結膜態 (bonding mode) 與

高能量的反鍵結膜態 (antibonding mode)，其中鍵結膜態通常是介於可見光至近紅外光的範圍，且可以利用調控球殼的厚度與球核的比例達到改變共振波長。另一方面，反鍵結膜態因為屬於高能量且強度非常微弱故不易發現[39,40]。

綜觀這六種幾何設計，如表 5 所示，發現「三層半球殼厚核結構」之增益閾值/ k 最低 ($k=-0.08366$)，其次是三層半包覆結構 ($k=-0.08413$)，再者才是半金屬殼型結構 ($k=-0.0902$)。由於三層半包覆結構集結了「金屬半球殼包覆」以及「三層奈米殼型」之優點，故其臨界增益值位居第二，而「三層半球殼厚核結構」可以視為三層半包覆結構其中下半球核厚度增加，由於增益介質的增加及金屬兩側的包覆，故更能有效的補償銀殼層的損耗，因此其增益閾值最高，最易發生 spasing。

表 5、不同幾何結構的增益閾值。

Structure	k_{thre}
Full metal SPASER	-0.09507
Metal semishell SPASER	-0.09020
Three-layer SPASER	-0.09208
Three-layer semishell SPASER	-0.08413
Thicker core SPASER	-0.08366
Silica semishell SPASER	-0.09375

五、有效膜態面積及 Purcell factor

品質因子最佳的結構由大至小分別為三層半球殼厚核結構、三層半包覆結構、半金屬殼型結構，其有效膜態面積由大至小也分別為三層半球殼厚核結構 (3.97×10^{-16})、三層半包覆結構 (2.58×10^{-16})、半金屬殼型結構 (1.88×10^{-16})，也就是說，品質因子較高之結構，其有效膜態面積通常也會越大，這是因為增益介質比例越高，補償金屬損耗之能力越佳且發生共振之電子數越多，品質因子會隨之增高，然而卻也同時使得有效膜態面積變大。但值得一提的是，藉由「金屬半球殼」設計卻能夠同時使得有效模態體積下降並提升品質因子，故儘管三層半球殼厚核結構有效膜態面積位居三者中最大，但是相較於金屬全包覆結構及三層全包覆結構其面積已顯著下降 (約小兩個數量級)，這隱含該結構之物理尺寸已大幅微縮並且突破傳統光學繞射限制。由於品質因子與有效模態面積必須有所取捨，因此為了有效地從腔體中取出信號，我們會較傾向於在保持合理的品質因子條件下選擇「品質因子與有效模態體積比值高」之結構，其參考準則如同 Purcell factor。

對於 Purcell factor 而言，其值正比於「品質因子與有效模態體積比值」，如表 7 所示，由大至小分別為三層半包覆結構 (SNSBS)、半金屬殼型結構 (MSNEBS)、三層半球殼厚核結構 (TSSNSBS)、半包覆介電質殼結構 (SMSGNEBS)、金屬全包覆結構 (NEBS)、三層全包覆結構 (NSBS)。

表 6、不同幾何結構的有效模態面積。

Structure	Mode area(m^2)
Full metal SPASER	1.58×10^{-14}
Metal semishell SPASER	1.88×10^{-16}
Three-layer SPASER	1.83×10^{-14}
Three-layer semishell SPASER	2.58×10^{-16}
Thicker core SPASER	3.97×10^{-16}
Silica semishell SPASER	1.48×10^{-16}

表 7、不同幾何結構的 Purcell factor。

Structure	Purcell factor
Full metal SPASER	3171
Metal semishell SPASER	360294
Three-layer SPASER	2787
Three-layer semishell SPASER	371873
Thicker core SPASER	283162
Silica semishell SPASER	3383

綜觀六種不同形貌之受激輻射引致表面電漿子放大元件，觀察發現相較於目前文獻所刊載之設計（金屬全包覆結構、半金屬殼型結構、三層全包覆結構），三層半球殼厚核結構具有最低之臨界增益/ k 、最佳之雷射單頻性以及最高之品質因子，但水能載舟亦

能覆舟，由於其額外的增益材料殼層以及下半球的增益球核半徑增加，雖改善了元件特性，但也因此大幅增加了有效膜態面積，減小了 Purcell factor，並與最高 Purcell factor 的三層半包覆結構相差約 23.9%。

雖然三層半包覆結構之半高寬及品質因子位居第二，但由於 Purcell factor 涵蓋半高寬、品質因子以及膜態面積等參數，整體而言，三層半包覆結構具有最強之局域電場及最佳之 Purcell factor，雖然增益閾值位居第二，但僅與最佳之結構相差 0.5%，故綜觀來說，在比較各種面相下，三層半球殼型 SPASER 元件特性不僅遠高於目前文獻所刊載之結構特性且為六種結構之冠，是最佳之幾何設計。



第四章 殼層厚度對受激輻射引致表面電漿子放大元件分析

綜觀上述所設計之結構，我們選擇最佳化之結構—三層半包覆結構作為研究對象，由於該結構相較於一般金屬全包覆結構多了摻雜增益介質的二氧化矽殼層，其特殊的幾何設計也顯著改善了許多雷射特性，因此我們便將重點著重在最外殼層對整體性能影響，在此章節中，我們改變二氧化矽殼層厚度，觀察厚度對特性之影響並探究其原因。

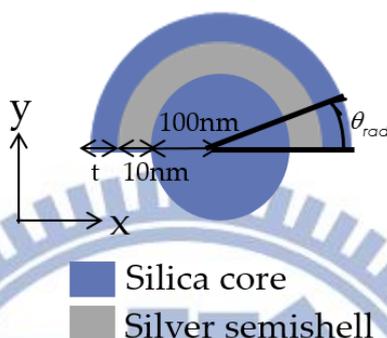


圖 62、三層半包覆結構，其中最外殼層厚度為一變數 t 。

如圖 62 所示，我們採用 3.1 章節中最佳結構—三層半包覆結構為基礎，該結構是由半徑 100nm 的二氧化矽為核，並在外層包覆厚度皆為 10nm 的銀奈米殼以及二氧化矽殼層，其中兩殼層皆為包覆一半的半球殼且二氧化矽皆有摻雜增益介質。在實驗模擬中，我們改變二氧化矽殼層的厚度 (t)，分別選取 5、8、10、13、16、20nm 進行討論分析。

一、增益閾值及品質因子

增益介質能夠藉由受激輻射提供非輻射之能量補償金屬的能量耗損，由於三層半包覆結構特殊幾何設計—「二氧化矽球核—銀殼層—二氧化矽殼層」，在銀殼層外又多了摻雜增益介質的殼層，且銀的兩側包覆增益介質，故更能有效地從兩側補償金屬內的表面電漿損耗。

如圖 63 所示，隨著最外殼層厚度的增加，增益閾值/ k /也會呈線性下降，這歸因於固定的銀殼層體積其本質的金屬損耗是為一常數，而增益介質殼層厚度增加更能有效補償能量耗損，故增益閾值的降低可以確保穩態的受激輻射引致表面電漿子放大元件操作，因此，當達到 spasing 條件所需的臨界增益降低，表示更易達到 spasing 而成為奈米光源。

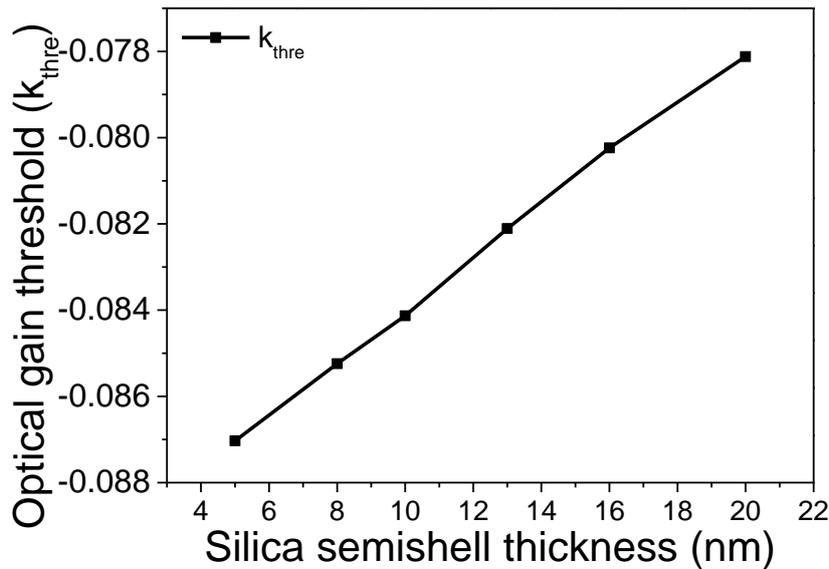


圖 63、不同二氧化矽殼層厚度的增益閾值。

如圖 64 所示，黑線對應到左側 y 軸，為發生共振並產生雷射膜態時的品質因子；紅線則對應到右側 y 軸，是未摻入增益介質時空腔膜態時的品質因子，整體而言無論二氧化矽殼層厚度為何，其空腔膜態時的品質因子幾乎為一定值，這是因為品質因子是衡量共振腔損耗的指標，對於相同幾何設計，其銀殼層體積相同，則本質的金屬損耗為一定值，故品質因子不變。但在雷射膜態時其品質因子會隨著摻雜增益材料的厚度增加而 exponential 指數上升（圖 65），表示共振腔侷限表面電漿子的能力會隨最外殼層越厚而有顯著改善，這歸因於受激輻射引致表面電漿子放大元件產生共振並發生雷射時，其摻入之增益介質有效被激發並引致表面電漿子放大進而補償銀殼層損耗。因此，摻雜增益材料的殼層厚度增加，銀殼層越能有效補償，其品質因子值越大。

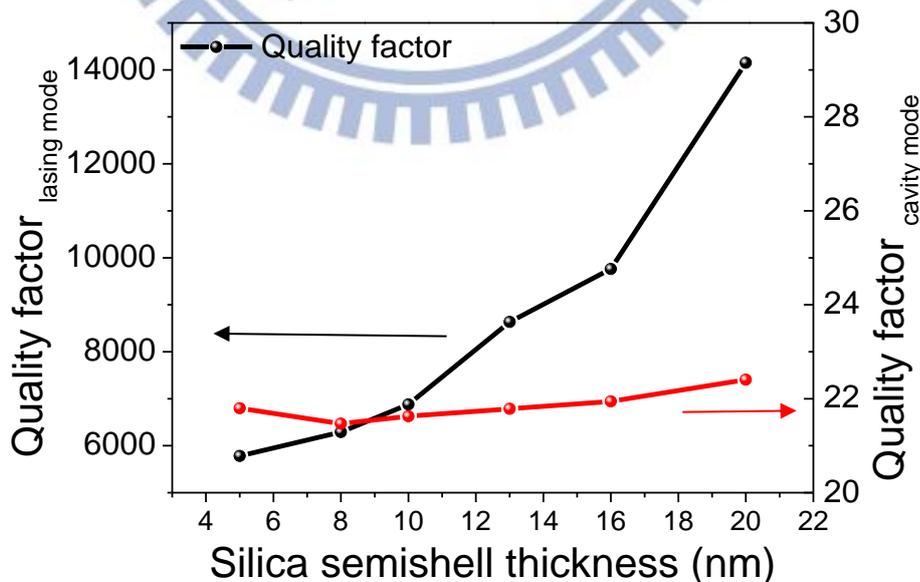


圖 64. 不同二氧化矽殼層厚度的品質因子。其中黑線對應到左側 y 軸，為雷射膜態時的品質因子；紅線則對應到右側 y 軸，為空腔膜態時的品質因子。

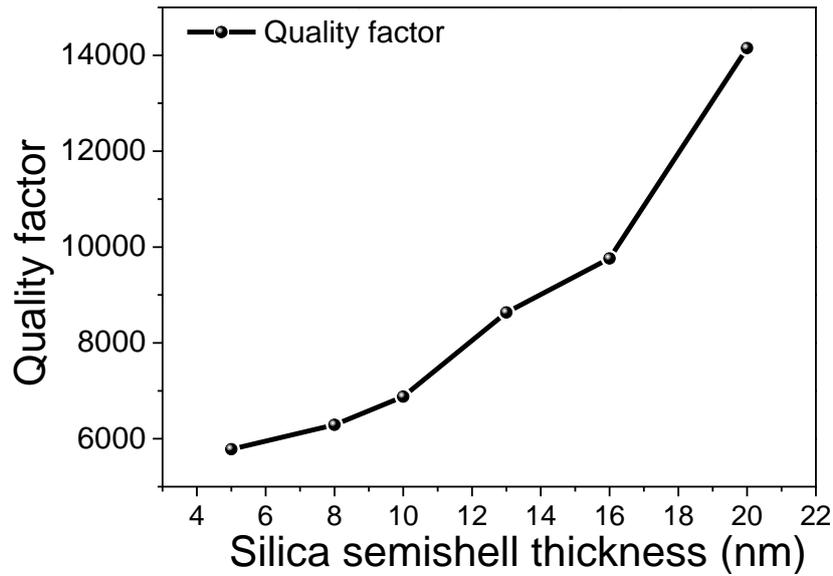


圖 65、不同二氧化矽殼層厚度的品質因子。

二、半高寬及共振波長

當增益介質與金屬殼層發生光-電漿子耦合 (photon-plasmon coupling) 時，表面電漿共振並發生輻射，其光源的單頻性程度可藉由萃取共振膜態時的半高寬而得，詳見圖 66，黑線對應到左側 y 軸，為雷射膜態時的半高寬；紅線則對應到右側 y 軸，為空腔膜態時的半高寬。當增益介質未摻入二氧化矽殼層中，其表面電漿共振所產生輻射之半高寬幾乎為一定值，然而當共振腔體達到增益閾值並發生 spasing 時，隨著摻雜增益材料的殼層厚度增加，半高寬越窄 (圖 67)，表示受激輻射引致表面電漿子放大元件的表面電漿子振動頻率幾乎相同，所產生的光源集中在特定頻段，其單色性高。

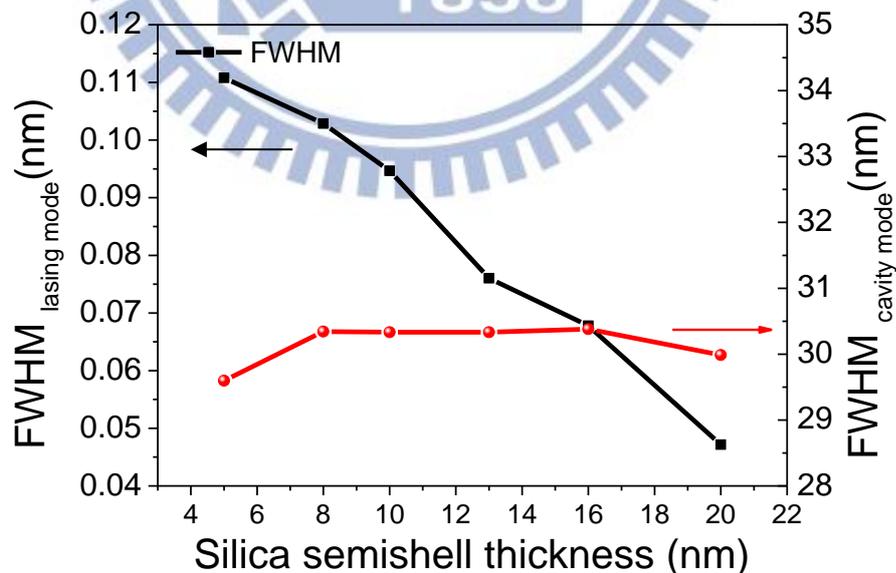


圖 66. 不同二氧化矽殼層厚度的半高寬 (FWHM)。其中黑線對應到左側 y 軸，為雷射膜態時的半高寬；紅線則對應到右側 y 軸，為空腔膜態時的半高寬。

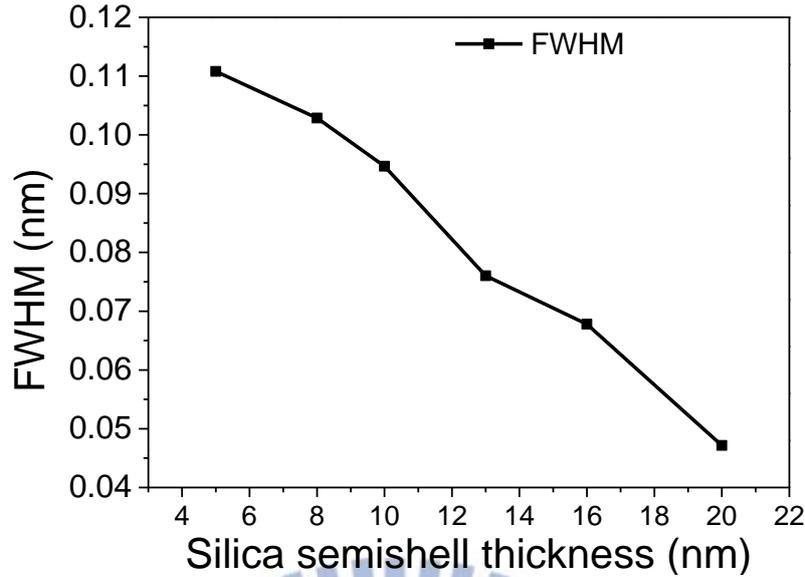


圖 67、不同二氧化矽殼層厚度的半高寬。

受激輻射引致表面電漿子放大元件其局域性表面電漿的共振膜態（如：共振波長及峰值處的線寬）會與奈米金屬結構的幾何形狀及大小密切相關[20,41-47]，我們發現隨著厚度的增加，其共振波長會有紅移的現象，我們可以使用電漿混合理論（plasmon hybridization）闡述奈米殼型幾何結構具調變性共振頻率之現象，他提供一個可信的準則預測共振頻率，並提供一設計準則。由於電漿共振頻率與奈米幾何結構及周圍介質有密切相關，故波長紅移的現象與二氧化矽層的厚度有關，厚度決定了球與球殼之間的耦合強度，此外，隨著增益介質殼層厚度的增加，其周圍環境的有效折射率隨之增加，使得金屬殼層的局域性表面電漿共振能量下降，上述原因皆會使得共振波長紅移。其中 LSPR 的共振波長對於改變局域介電環境的敏感度是由奈米粒子幾何形狀差異所決定。根據 Mie 理論，單一球狀金屬奈米粒子的消光大小是由下式所主導[48]：

$$E(\lambda) = \frac{24\pi^2 a^3 \epsilon_m^{3/2}}{\lambda \ln(10)} \left[\frac{\epsilon_i(\lambda)}{(\epsilon_r(\lambda) + 2\epsilon_m)^2 + \epsilon_i(\lambda)^2} \right] \quad (36)$$

$E(\lambda)$ ：消光大小

a ：金屬奈米球的半徑

λ ：入射光的波長

ϵ_m ：(圍繞金屬奈米粒子)周圍介質的介電常數，為一實數且與波長無關

$\epsilon_i(\lambda)$ ：金屬奈米粒子的介電函數虛部值，且為波長的函數

$\epsilon_r(\lambda)$ ：金屬奈米粒子的介電函數實部值，且為波長的函數

其中 LSPR 的共振波長發生在該式分母括號值為零的時候，也就是說它發生在 $\epsilon_r(\lambda)$ 小且 $\epsilon_r(\lambda) = -2\epsilon_m$ 之波長。對於非球體之奈米粒子而言，式 (36) 會有所改變，且當 $\epsilon_r(\lambda) = -\chi\epsilon_m$ 時會發生 LSPR 共振，其中 χ 與奈米粒子形狀相關，且為奈米粒子的高寬比函數。對於一個給定的局域介電環境改變量 (ϵ_m)， χ 表示 LSPR 共振響應對改變周圍介質的介電常數的敏感性，換言之， χ 值越大將引致較大的折射率敏感度，則 LSPR 共振響應更容易受到周圍介質折射率之影響，進而產生共振波長位移情形，對於球狀奈米粒子而言， $\chi=2$ ，且 χ 會隨高寬比越大而增大。

因此可以藉由改變摻雜增益介質的二氧化矽殼層厚度達到可調變共振波長之目的，因此對於具有高同調光源的受激輻射引致表面電漿子放大元件而言，具有極大的設計彈性，且可以提供廣泛的應用。

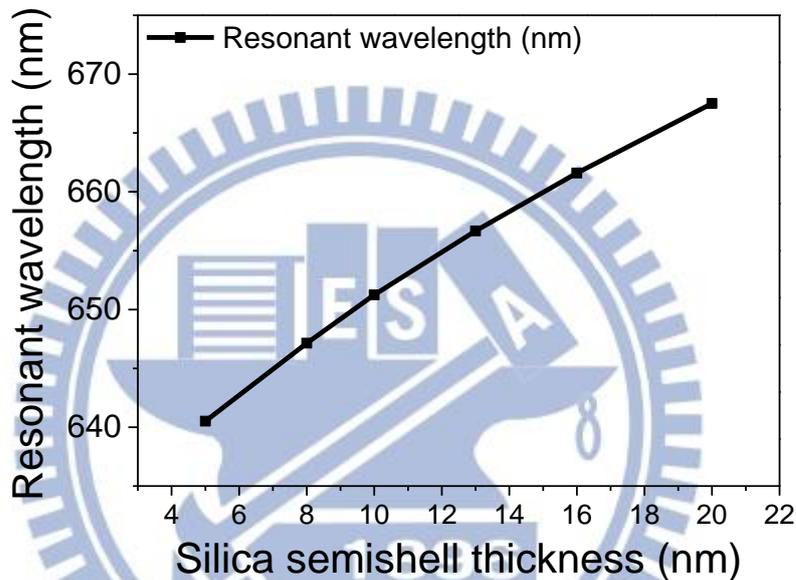


圖 68、不同二氧化矽殼層厚度的共振波長。

三、有效膜態面積及 Purcell factor

如圖 69 所示，觀察發現隨著最外殼層的厚度增加，儘管改善了增益閾值以及輻射光源之單色性，但是卻也使得有效膜態面積呈線性提升。然而其有效膜態面積數量級為 10^{-16} ，仍遠小於傳統雷射尺度。

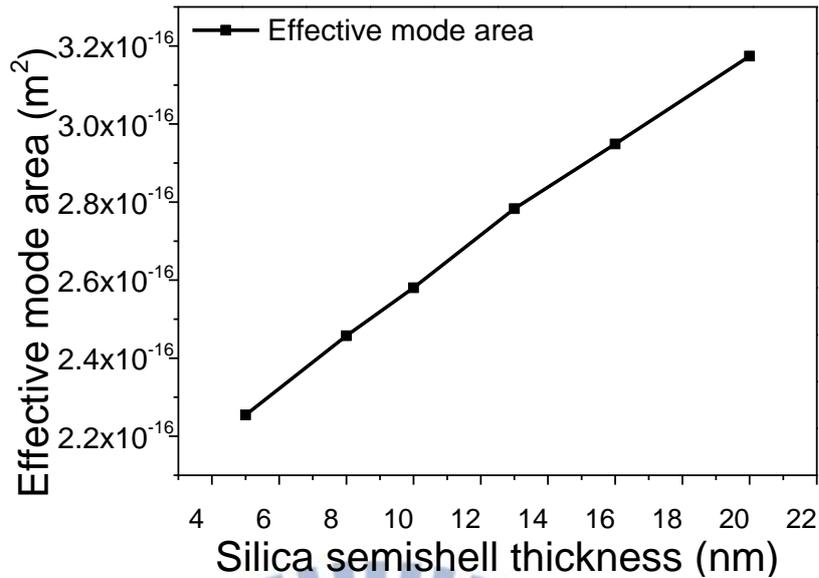


圖 69、不同二氧化矽殼層厚度的有效膜態面積。

整體而言，當摻有增益介質的二氧化矽殼層厚度增加，其 Purcell factor 之值也隨之增強，並呈 exponential 指數上升之趨勢（圖 70），這表示「非輻射能量轉移至表面電漿子的機率」與「光子輻射衰減之機率」之比值越高。如同 2-2 章節所述，在電漿子雷射結構中，由於增益介值緊鄰振動奈米粒子，故輻射之光子會將其能量供給表面電漿子，亦即非輻射能量轉移至表面電漿模態是一主要過程，其機率為「輻射至遠場區」的幾個數量級大。

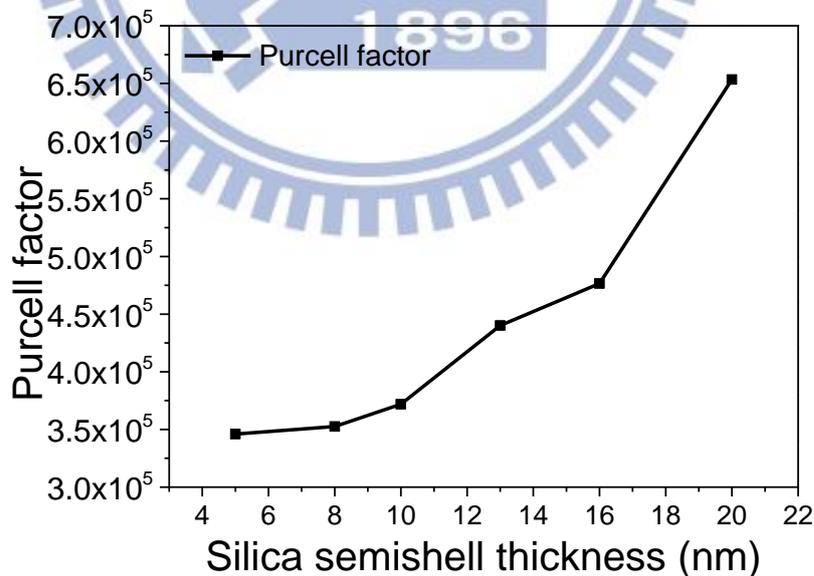


圖 70、不同二氧化矽殼層厚度的有 Purcell factor。

四、截面積及放大率

表面電漿子是存在於在金屬及介電質介面的一表面電磁波，其膜態會局限在金屬表面附近，且奈米球殼的電漿子共振與球殼內外半徑表面所產生的電漿子交互作用有關，而此交互作用取決於球殼厚度的大小，隨著摻雜增益材料的二氧化矽殼層厚度增加，當到達增益閾值時，我們發現散射截面積、散射放大率及吸收放大率皆會呈指數上升（圖 71），此現象可以由 Quenching effect 解釋之：當一光場入射並引發受激輻射，增益介質會轉移能量給金屬，此時金屬粒子視為一個激發系統，且可以藉由非輻射及輻射方式衰減。而金屬與增益介質的交互作用會影響衰減方式，而衰減方式則影響奈米粒子輸出的特性。通常焦耳熱、電漿吸收都是造成非輻射衰減之主因。隨著二氧化矽殼層厚度變大，從場圖可以得知局域場最大值顯著提升，金屬與表面電漿子交互作用大，利於光子-電漿子耦合，理想的局域表面電漿共振發生，因此奈米粒子的輸出特性由輻射主導。由圖 71.72 可知，在共振膜態時散射截面積越大，表示表面電漿放大程度越高，其發生 spasing 所輻射之功率越大！

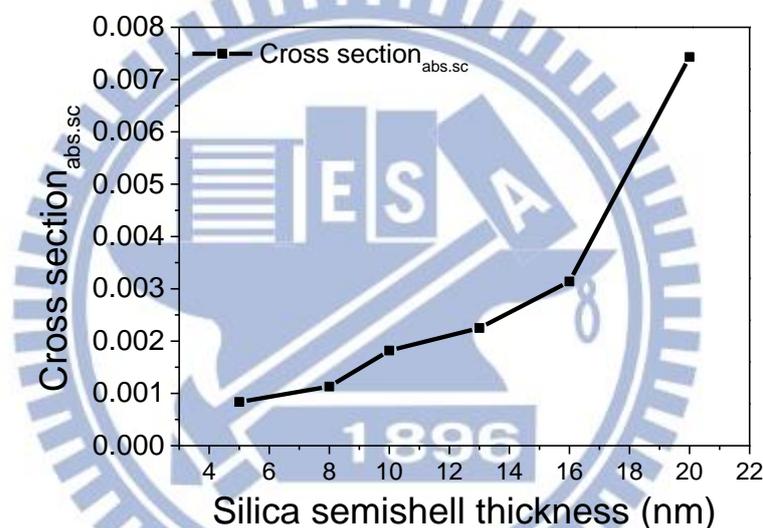


圖 71、不同二氧化矽殼層厚度的截面積。

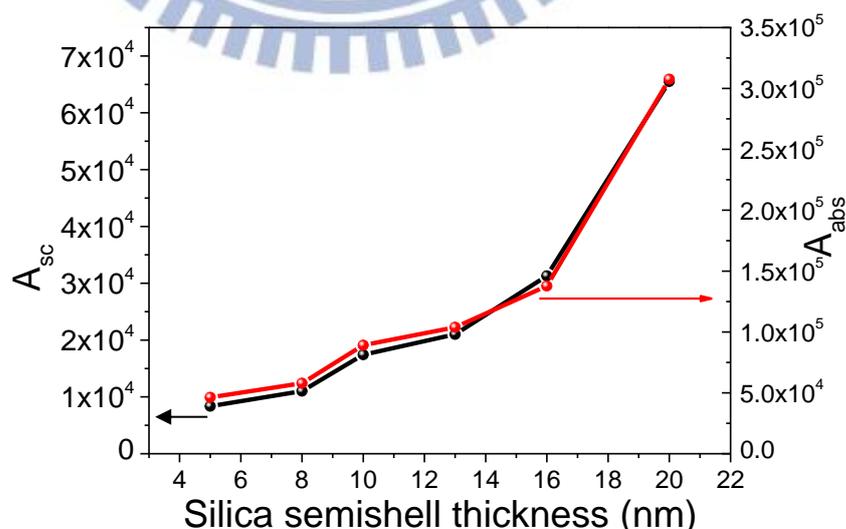


圖 72、不同二氧化矽殼層厚度的放大率。其中黑線對應到左側 y 軸，為散射放大率，紅線則對應到右側 y 軸，為吸收放大率。

第五章 結論與未來展望

本實驗使用有限元素法模擬分析二維單一粒子的電漿子雷射(SPASER)，利用萃取基本雷射參數，如：增益閾值、消光截面積、品質因子、有效膜態面積、Purcell factor 等，進而求得最佳化的結構設計。一般而言，我們傾向於設計具有高輸出功率、方向性佳、低增益閾值、高品質因子、有效模態體積小以及高 Purcell factor 等特性的奈米電漿雷射。而其中 Purcell factor 為「非輻射能量轉移至表面電漿子的機率」與「光子輻射衰減之機率」之比值，由於它隱含著產生表面電漿共振放大並引起 spasing 效率程度多寡，故占有舉足輕重之地位。

SPASER 是藉由受激輻射引致表面電漿子放大，由於其結構為有限大小的奈米結構，故表面電漿子的共振便不再沿金屬介面傳播，會局限在微小金屬結構附近，即「局域性表面電漿 (LSPR)」，而 LSPR 會與奈米粒子的幾何形狀及大小密切相關[20,41-47]，因此在本篇論文的第三章中，我們藉由不同幾何形狀之設計尋找最佳化的電漿子雷射結構。綜觀六種結構，我們發現「半包覆」球殼的奈米結構比起全包覆奈米結構其表面電漿子共振波長有藍移現象，除此之外其特性也會有大幅改善，如：增益閾值 $|k|$ 下降、品質因子上升、有效膜態面積減小、發生雷射時其半高寬下降、局域性最大電場值提升以及雷射方向性較佳，同時 Purcell factor 也顯著提升，約大兩個數量級以上。另一方面，相較於金屬全包覆結構，「三層」金屬全包覆結構的共振波長有紅移現象外，其增益閾值 $|k|$ 也會顯著下降，然而有效膜態面積卻會增加。

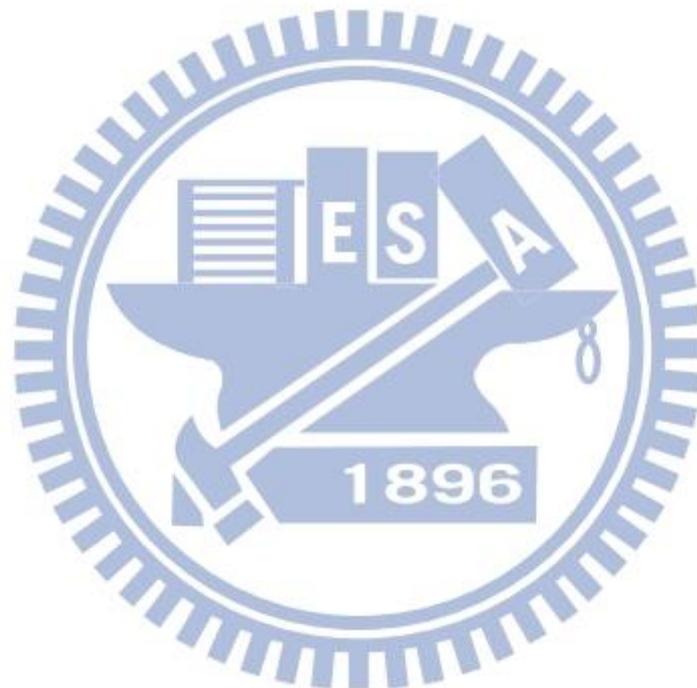
綜觀六種不同形貌之受激輻射引致表面電漿子放大元件，儘管三層半球殼厚核結構具有最低增益閾值、最高的品質因子、最高的局域電場，然而品質因子與有效膜態面積須有所權衡，三層半球殼厚核結構有效膜態面積雖仍遠小於金屬全包覆結構，但其值相對其他半金屬殼型結構來的大，而 Purcell factor 也受限於有效膜態面積其值僅達 283162，位居第三且與最高 Purcell factor 之三層半包覆結構相差 23.9%，因此最後我們傾向於在合理品質因子下選擇品質因子與有效膜態面積比值高（即 Purcell factor）之結構。相較之下，三層半球殼結構整體具有更好的特性。

三層半球殼結構具有低增益閾值、高品質因子、高局域電場等特性，並與三層半球殼厚核結構不分軒輊，而相較於文獻所刊載之金屬全包覆結構，三層半球殼結構增益閾值下降 11%，更易於發生 spasing，且當元件達到臨界增益 k 時，其增益介質有效被激發並引起表面電漿子放大恰巧補償銀殼層損耗，其衡量共振腔體能量損耗之標準—品質因子為 6878，不僅大幅提升 1.35 倍，且其 Purcell factor 為 371872，更是居中之冠，而有效膜態面積也顯著減少，小約 2 個數量級，整體而言，其特性以顯著提升也遠高於目前文獻所刊載之結構！因此三層半球殼結構為最佳之結構設計。

在本篇論文的第四章中，以最佳化之幾何結構—三層半球殼結構為基礎，改變最外殼層—摻雜增益材料之二氧化矽層厚度，觀察其厚度對電漿子雷射特性之影響。結果發

現隨著殼層厚度越大，增益閾值 $|k|$ 下降、品質因子上升、輻射之光源單頻性更佳、Purcell factor 也會提升，但是有效膜態面積卻相對變大，此外也有共振波長藍移之現象，我們可以利用改變殼層厚度任意調變其共振波長，做為更廣泛之應用。

光運算系統具有高速、無失真且低功耗之優勢，若將電漿子雷射(SPASER)運用於此，可望取代目前電晶體為主的電運算系統，大幅提升系統效能，此外，由於電漿子雷射可大幅微縮其腔體體積，若未來將此微縮至與電晶體相仿之尺寸，可以促成單一晶片上整合電漿子與奈米電子的發展，並為未來發展積體整合型光世代科技邁出重要的一步。不過，因當前光元件無法微縮至如同電子晶片的尺寸，故即使光纖通信雖然快速，但現今仍以電子運算為主，且電漿奈米雷射雖然突破光學繞射極限，但要整合實際產品仍有問題需要解決。目前雖已模擬出最佳結構設計，可望在未來能夠實作並應用之。



參考文獻

- [1] M. I. Stockman, "SPASERS explained," *nature photonics*, vol. 2, pp.327-329 June 2008.
- [2] D. Bergman and M. Stockman, "Surface plasmon amplification by stimulated emission of radiation: quantum generation of coherent surface plasmons in nanosystems," *Physical Review Letters*, vol. 90, pp.027402, 2003.
- [3] Yannis Tsididis and Colin McAndrew, *Operation and Modeling of the MOS Transistor*. New York: McGraw-Hill, 1999
- [4] M. I. Stockman, "The SPASER as a nanoscale quantum generator and ultrafast amplifier," *Journal of Optics*, vol. 12, p. 024004, 2010.
- [5] H. Zhang, J. Zhou, W. Zou, and M. He, "Surface plasmon amplification characteristics of an active three-layer nanoshell-based SPASER," *Journal of Applied Physics*, vol. 112, p. 074309, 2012.
- [6] K. Li, X. Li, M. Stockman, and D. Bergman, "Surface plasmon amplification by stimulated emission in nanolenses," *Physical Review B*, vol. 71, p.115409, 2005.
- [7] Joshua. A. Gordon. and Richard. W. Ziolkowski, "The design and simulated performance of a coated nano-particle laser," *Optics Express*, vol. 15, pp. 2622-2653, 5 March 2007.
- [8] S. Wuestner, A. Pusch, K. L. Tsakmakidis, J. M. Hamm, and O. Hess, "Overcoming Losses with Gain in a Negative Refractive Index Metamaterial," *Physical Review Letters*, vol. 105, p.127401, 2010.
- [9] Hui. Liu. Zheng-Gao Dong, Tao Li, Zhi-Hong Zhu, Shu-Ming Wang, Jing-Xiao Cao, Shi-Ning Zhu, and X. Zhang, "Resonance amplification of left-handed transmission at optical frequencies by stimulated emission of radiation in active metamaterials," *Optics Express*, vol. 16, pp. 20974-20980, 2008
- [10] A. Fang, T. Koschny, M. Wegener, and C. Soukoulis, "Self-consistent calculation of metamaterials with gain," *Physical Review B*, vol. 79, p.241104, 2009.
- [11] M. Wegener, J. L. García-Pomar, C. M. Soukoulis, N. Meinzer, M. Ruther, and S. Linden, "Toy model for plasmonic metamaterial resonances coupled to two-level system gain," *Optics Express*, vol. 16, 24 November 2008.
- [12] Chi-Yu. Adrian Ni, Shu-Wei Chang, and Shun Lien Chuang, "Theory for bowtie plasmonic nanolasers," *Optics Express*, vol. 16, 2008.
- [13] N. I. Zheludev, S. L. Prosvirnin, N. Papasimakis, and V. A. Fedotov, "Lasing SPASER," *Nature Photonics*, vol. 2, pp. 351-354, 2008.
- [14] M. T. Hill, Y.-S. Oei, B. Smalbrugge, Y. Zhu, T. de Vries, P. J. van Veldhoven, *et al.*, "Lasing in metallic-coated nanocavities," *Nature Photonics*, vol. 1, pp. 589-594, 2007.
- [15] R. F. Oulton, V. J. Sorger, D. A. Genov, D. F. P. Pile, and X. Zhang, "A hybrid

- plasmonic waveguide for subwavelength confinement and long-range propagation," *Nature Photonics*, vol. 2, pp. 496-500, 2008.
- [16] R. F. Oulton, V. J. Sorger, T. Zentgraf, R. M. Ma, C. Gladden, L. Dai, "Plasmon lasers at deep subwavelength scale," *Nature*, vol. 461, pp. 629-632, Oct 1 2009.
- [17] M. A. Noginov, G. Zhu, A. M. Belgrave, R. Bakker, V. M. Shalae, E. E. Narimanov, *et al.*, "Demonstration of a SPASER-based nanolaser," *Nature*, vol. 460, pp. 1110-1112, 2009.
- [18] X. Meng, U. Guler, A. V. Kildishev, K. Fujita, K. Tanaka, and V. M. Shalae, "Unidirectional SPASER in symmetry-broken plasmonic core-shell nanocavity," *Scientific Reports*, vol. 3, p. 1241, 2013.
- [19] P. Ding, J. He, J. Wang, C. Fan, G. Cai, and E. Liang, "Low-threshold surface plasmon amplification from a gain-assisted core-shell nanoparticle with broken symmetry," *Journal of Optics*, vol. 15, p. 105001, 2013.
- [20] M. W. Knight and N. J. Halas, "Nanoshells to nanoeggs to nanocups: optical properties of reduced symmetry core-shell nanoparticles beyond the quasistatic limit," *New Journal of Physics*, vol. 10, p. 105006, 2008.
- [21] 吳民耀、劉威志, "表面電漿子理論與模擬," *物理雙月刊*, vol. 二十八卷二期, pp.486-496, 2006.
- [22] 邱國斌、蔡定平, "金屬表面電漿簡介," *物理雙月刊*, vol. 二八卷二期, pp.472-485, 2006.
- [23] Chubing. Peng, W. A. Challener, A. V. Itagi, D. Karns, Wei Peng, Yingguo Peng, XiaoMin Yang, Xiaobin Zhu, N. J. Gokemeijer, Y.-T. Hsia, G. Ju, Robert E. Rottmayer, Michael A. Seigler and E. C. Gage, "Heat-assisted magnetic recording by a near-field transducer with efficient optical energy transfer," *Nature Photonics*, vol. 3, pp. 220-224, 2009.
- [24] Lukas Novotny and Bert Hecht, *Principles of Nano-Optics*. Cambridge University Press, 2006.
- [25] Michael Mrejen. Abraham Israel, Yulia Lovsky, Mila Polhan, Stefan Maier, and Aaron Lewis, "Near-field imaging probes electromagnetic waves.," *Laser Focus World*, vol. 43, no.11, pp.99-102, 2007
- [26] 盧廷昌,王興宗, *半導體雷射導論*. 臺北: 五南出版社, 2008.
- [27] 楊國輝,黃宏彥, *雷射原理與量測概論*. 臺北市: 五南出版社, 2008.
- [28] A. V. Zayats and S. A. Maier, *Active Plasmonics and Tuneable Plasmonic Metamaterials*: John Wiley & Sons, Inc., 2013.
- [29] E. Plum, V. A. Fedotov, P. Kuo, D. P. Tsai, and N. I. Zheludev, "Towards the lasing spaser:controlling metamaterial optical response with semiconductor quantum dots," *Optics Express*, vol. 17, pp.8548-8551, 2009.
- [30] J. Seidel, S. Grafström, and L. Eng, "Stimulated Emission of Surface Plasmons at the Interface between a Silver Film and an Optically Pumped Dye Solution," *Physical*

- Review Letters*, vol. 94, p.177401, 2005.
- [31] M. Noginov, G. Zhu, M. Mayy, B. Ritzo, N. Noginova, and V. Podolskiy, "Stimulated Emission of Surface Plasmon Polaritons," *Physical Review Letters*, vol. 101, p.226806, 2008.
- [32] Chien-Yao Lu and Shun Lien Chuang, "A surface-emitting 3D metal-nanocavity laser: proposal and theory," *Optics Express*, vol. 19, pp. 13225-13244, 2011.
- [33] Marko Lončar, Jelena Vučković, Hideo Mabuchi, and Axel Scherer, "Optimization of the Q Factor in Photonic Crystal Microcavities," *IEEE Journal of quantum electronics*, vol. 38, pp.850-856, 2002.
- [34] M. I. Stockman, *Active Plasmonics and Tuneable Plasmonic Metamaterials*, USA: John Wiley & Sons, 2013
- [35] Z. Y. Li and Y. Xia, "Metal nanoparticles with gain toward single-molecule detection by surface-enhanced Raman scattering," *Nano Letters*, vol. 10, pp. 243-249, Jan 2010.
- [36] S.-Y. Liu, J. Li, F. Zhou, L. Gan, and Z.-Y. Li, "Efficient surface plasmon amplification from gain-assisted gold nanorods," *Optics Letters*, vol. 36, pp.1296-1298, 2011.
- [37] Zhi-Yuan Li, Fei Zhou and Ye Liu, "Quantitative Analysis of Dipole and Quadrupole Excitation in the Surface Plasmon Resonance of Metal Nanoparticles," *The Journal of Physical Chemistry C*, vol. 112, pp. 20233-20240, 2008.
- [38] J. C. Johnson, H. J. Choi, K. P. Knutsen, R. D. Schaller, P. Yang, and R. J. Saykally, "Single gallium nitride nanowire lasers," *Nature Materials*, vol. 1, pp. 106-110, Oct 2002.
- [39] E. Prodan, C. Radloff, N. J. Halas, and P. Nordlander, "A hybridization model for the plasmon response of complex nanostructures," *Science*, vol. 302, pp. 419-422, Oct 2003.
- [40] Allen Lee, E. Prodan, P. Nordlander, "The effect of a dielectric core and embedding medium on the polarizability of metallic nanoshells," *Chemical Physics Letters*, vol. 360, pp. 325-332, 2002.
- [41] C. Ungureanu, R. G. Rayavarapu, S. Manohar, and T. G. van Leeuwen, "Discrete dipole approximation simulations of gold nanorod optical properties: Choice of input parameters and comparison with experiment," *Journal of Applied Physics*, vol. 105, p. 102032, 2009.
- [42] T. Ming, L. Zhao, Z. Yang, H. Chen, L. Sun, Jianfang Wang, "Strong Polarization Dependence of Plasmon-Enhanced Fluorescence on Single Gold Nanorods," *Nano Letters*, vol. 9, pp. 3896-3903, 2009.
- [43] A. M. Funston, C. Novo, T. J. Davis, and P. Mulvaney, "Plasmon Coupling of Gold Nanorods at Short Distances and in Different Geometries," *Nano Letters*, vol. 9, pp. 1651-1658, 2009.
- [44] D. J. Wu and X. J. Liu, "Optimization of silica–silver–gold layered nanoshell for large

- near-field enhancement," *Applied Physics Letters*, vol. 96, p. 151912, 2010.
- [45] E. S. Kooij and B. Poelsema, "Shape and size effects in the optical properties of metallic nanorods," *Physical Chemistry Chemical Physics*, vol. 8, pp. 3349-3357, 2006.
- [46] P. K. Jain, K. S. Lee, I. H. El-Sayed, and M. A. El-Sayed, "Calculated Absorption and Scattering Properties of Gold Nanoparticles of Different Size, Shape, and Composition Applications in Biological Imaging and Biomedicine," *The Journal of Physical Chemistry B*, vol. 110, pp. 7238-7248, 2006.
- [47] S. W. Prescott and P. Mulvaney, "Gold nanorod extinction spectra," *Journal of Applied Physics*, vol. 99, p. 123504, 2006.
- [48] A. D. McFarland and R. P. van. Duyne, "Single silver nanoparticles as real-time optical sensors with zeptomole sensitivity," *Nano Letters*, vol. 3, pp. 1057-1062, 2003.
- [49] Zhi-Yuan Li and Younan Xia, "Metal nanoparticles with gain toward single-molecule detection by surface-enhanced Raman scattering," *Nano Letters*, vol. 10, pp. 243-249, Jan 2010.
- [50] I. Protsenko, A. Uskov, O. Zaimidoroga, V. Samoilov, and E. O'Reilly, "Dipole nanolaser," *Physical Review A*, vol. 71, p.063812, 2005.
- [51] K. S. L. Prashant K. Jain, Ivan H. El-Sayed and Mostafa A. El-Sayed, "Calculated Absorption and Scattering Properties of Gold Nanoparticles of Different Size, Shape, and Composition Applications in Biological Imaging and Biomedicine," *The Journal of Physical Chemistry B*, vol. 110, pp. 7238-7248, 2006.
- [52] S. W. Prescott and P. Mulvaney, "Gold nanorod extinction spectra," *Journal of Applied Physics*, vol. 99, p. 123504, 2006.
- [53] D. J. Wu and X. J. Liu, "Optimization of silica–silver–gold layered nanoshell for large near-field enhancement," *Applied Physics Letters*, vol. 96, p. 151912, 2010.
- [54] C. N. Alison M. Funston, Tim J. Davis, and Paul Mulvaney, "Plasmon Coupling of Gold Nanorods at Short Distances and in Different Geometries," *Nano Letters*, vol. 9, pp. 1651-1658, 2009.
- [55] E. Stefan Kooij and B. Poelsema, "Shape and size effects in the optical properties of metallic nanorods," *Physical Chemistry Chemical Physics*, vol. 8, pp. 3349-3357, Jul 28 2006.
- [56] U. S. Raikar, V. B. Tangod, B. M. Mastiholi, and V. J. Fulari, "Fluorescence quenching using plasmonic gold nanoparticles," *Optics Communications*, vol. 284, pp. 4761-4765, 2011.
- [57] M. I. Stockman, "Lasing spaser in two-dimensional plasmonic crystals," *NPG Asia Materials*, vol. 5, p. e71, 2013.
- [58] M. Noginov, G. Zhu, M. Mayy, B. Ritzo, N. Noginova, and V. Podolskiy, "Stimulated Emission of Surface Plasmon Polaritons," *Physical Review Letters*, vol. 101, p226806, 2008.

- [59] J. Seidel, S. Grafström, and L. Eng, "Stimulated Emission of Surface Plasmons at the Interface between a Silver Film and an Optically Pumped Dye Solution," *Physical Review Letters*, vol. 94, p.177401, 2005.
- [60] Min Cao, Meng Wang, and Ning. Gu, "Plasmon Singularities from Metal Nanoparticles in Active Media: Influence of Particle Shape on the Gain Threshold," *Plasmonics*, vol. 7, pp. 347-351, 2011.
- [61] V. M. Shalaev, "Optical negative-index metamaterials," *Nature Photonics* vol. 1, pp. 41-48, 2007.
- [62] S.-W. Chang, "Confinement factors and modal volumes of micro- and nanocavities invariant to integration regions," *IEEE Journal of quantum electronics*, vol. 18, pp. 1771-1780, 2012.
- [63] Israel De Leon and Pierre Berini, "Amplification of long-range surface plasmons by a dipolar gain medium," *Nature Photonics*, vol. 4, pp. 382-387, 2010.
- [64] O. Hess and K. L. Tsakmakidis, "Applied physics. Metamaterials with quantum gain," *Science*, vol. 339, pp. 654-655, Feb 2013.
- [65] L. H. Xiaolei Shi, and Robert L. Thornton, "Ultrahigh light transmission through a C-shaped nanoaperture," *Optics Letters*, vol. 28, pp. 1320-1322, 2003.
- [66] S. Derom, R. Vincent, A. Bouhelier, and G. Colas des Francs, "Resonance quality, radiative/ohmic losses and modal volume of Mie plasmons," *Europhysics Letters*, vol. 98, p. 47008, 2012.
- [67] L. H. Kauffman, M. Kerker, and W. A. Farone, "Scattering of Electromagnetic Waves from Two Concentric Spheres When the Outer Shell has a Variable Refractive Index. Numerical Results," *Journal of the Optical Society of America*, vol. 56, pp. 1053-1055, 1966.
- [68] M. Khajavikhan, A. Simic, M. Katz, J. H. Lee, B. Slutsky, A. Mizrahi, V. Lomakin and Y. Fainman, "Thresholdless nanoscale coaxial lasers," *Nature*, vol. 482, pp. 204-7, Feb 2012.
- [69] A. A. Lisyansky, I. A. Nechepurenko, A. V. Dorofeenko, A. P. Vinogradov, and A. A. Pukhov, "Channel spaser: Coherent excitation of one-dimensional plasmons from quantum dots located along a linear channel," *Physical Review B*, vol. 84, p.153409, 2011
- [70] V. A. P. M. A. Noginov, G. Zhu, M. Mayy, M. Bahoura, J. A. Adegoke, B. A. Ritzo, and K. Reynolds, "Compensation of loss in propagating surface plasmon polariton by gain in adjacent dielectric medium," *Optics Express*, vol. 16, pp. 1385-1392, 2008.
- [71] Craig F. Bohren and Donald R. Huffman, *Absorption and scattering of light by small particles*. German Federal Republic Wiley-VCH 1998.