

$D_{3h}$  和  $D_{4h}$  等离子激元超分子的 Fano 共振光谱的子集合分解解释

李梦君 方晖 李小明 袁小聪

Subgroup decomposition analyses of  $D_{3h}$  and  $D_{4h}$  plasmonic metamolecule Fano resonance spectrum

Li Meng-Jun Fang Hui Li Xiao-Ming Yuan Xiao-Cong

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 057302 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.057302

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.057302>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I5>

---

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

两端线型双量子点分子 Aharonov-Bohm 干涉仪电输运

Electron transport through a two-terminal Aharonov-Bohm interferometer coupled with linear di-quantum dot molecules

物理学报.2015, 64(20): 207304 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.207304>

电子的谷自由度

The valley degree of freedom of an electron

物理学报.2015, 64(18): 187301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.187301>

光激发作用下分子与多金属纳米粒子间的电荷转移研究

Theoretical study of photoinduced charge transfer in molecule and multi-metalnanoparticles system

物理学报.2015, 64(14): 147303 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.147303>

T型双量子点分子 Aharonov-Bohm 干涉仪的电输运

Electron transport through T-shaped double quantum dot molecule Aharonov-Bohm interferometer

物理学报.2014, 63(22): 227304 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.227304>

异质结电荷转移的密度矩阵理论近似研究

Study on electron transfer in a heterogeneous system using a density matrix theory approach

物理学报.2014, 63(13): 137302 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.137302>

# $D_{3h}$ 和 $D_{4h}$ 等离子激元超分子的 Fano 共振光谱的子集合分解解释\*

李梦君<sup>1)</sup> 方晖<sup>2)†</sup> 李小明<sup>2)</sup> 袁小聪<sup>2)</sup>

1)(南开大学电子信息与光学工程学院, 现代光学研究所, 天津 300071)

2)(深圳大学纳米光子学研究中心, 深圳大学光电工程学院, 光电子器件与系统教育部重点实验室, 深圳 518060)

(2015年10月4日收到; 2015年12月7日收到修改稿)

针对  $D_{3h}$  和  $D_{4h}$  对称构型金属纳米多颗粒集合即等离子激元超分子表面等离子激元共振光谱的子集合分解及其相对应的 Fano 共振光谱低谷的产生机理, 本文运用群论的方法做出了详细的分析研究. 运用与群论中求解分子简正振动模式类似的方法, 推导证实了在线偏振光入射时,  $D_{nh}$  环形多颗粒只有 2 个电偶极表面等离子激元共振模式, 增加中心颗粒会使模式增加 1 个. 对  $D_{3h}$  和  $D_{4h}$  等离子激元超分子的表面等离子激元共振模式进行不可约表示基向量正交分解分析表明, Fano 共振光谱低谷是由于两个起主要作用的相邻模式包含有共同的正交基向量, 并形成相消干涉而产生. 这进一步验证了 Fano 共振光谱低谷的起源除传统观点(即源自于宽频超辐射亮模式和窄频低辐射暗模式之间的耦合)之外的另一种解释视角.

**关键词:** 表面等离子激元共振光谱, 子集合分解, 群论, Fano 共振光谱低谷

**PACS:** 73.63.-b, 73.20.Mf, 36.40.Mr, 02.20.-a

**DOI:** 10.7498/aps.65.057302

## 1 引言

随着金属纳米结构的制备及其光谱表征技术的快速发展, 表面等离子激元(surface plasmon polariton, SPP) 光学已成为目前纳米科技领域的一个引领性研究方向<sup>[1]</sup>, 这不仅体现在诸如生物医学超灵敏分子探测、太阳能高效收集、纳米光子集成器件超快运算等层出不穷的各种应用上, 也反映在大量涌现的基于半经典或全量子理论的各种数值模拟结果上. 对尺度大于 10 nm、间隙大于 1 nm 的金属纳米结构, 利用基于半经典理论的 SPP 杂化理论就可以对其 SPP 共振光谱特性进行准确描述, 该理论早期成功应用于纳米球壳、双纳米球<sup>[2]</sup>、纳米球和金属表面等简单结构上, 之后通过引入群论, 又被应用于对称构型颗粒集合的光谱解析中<sup>[3]</sup>.

群论之所以能够应用于描述金属纳米颗粒集

合的 SPP 共振光谱, 源自于各个颗粒之间的 SPP 杂化实际上可以很好地对应于由原子轨道构建分子轨道的过程, 即可以把颗粒集合看成是一种“等离子激元超分子”<sup>[4,5]</sup>. 所以, 在分子光谱中建立的群论描述方法可以相应地移植过来, 不仅能给出 SPP 共振大致的能级结构, 而且可以给出与各能级相对应的 SPP 共振本征态电子运动空间分布形式及其所对应的电场分布<sup>[6]</sup>. 体现该方法实用性优点的一个典型实例是对等离子激元超分子表面增强拉曼旋光效应的直观解释<sup>[7,8]</sup>.

Fano 共振最早出现于物理领域中的量子系统, 在随后的几十年中一直是人们研究的热点. 例如, 在金属-电介质-金属波导中由对称性破缺产生 Fano 共振<sup>[9]</sup>; 单一共振模式在引入结构不对称几何因素时形成 Fano 共振谱<sup>[10]</sup>; 在两个量子点金属纳米线系统上, 通过激子-等离子激元相互作用在理

\* 国家重点基础研究发展计划(批准号: 2015CB352004)、高等学校博士学科点专项科研基金(批准号: 20130031110036)和天津市应用基础与前沿技术研究计划(批准号: 14JCYBJC16600)资助的课题.

† 通信作者. E-mail: fhui79@szu.edu.cn

论上实现了系统的开关效应与 Fano 共振 [11]; 在对称表面等离子激元结构上基于多模式相互干涉而产生的 Fano 共振在等激元纳米传感上具有重要的应用 [12] 等. 近年来, Fano 共振的概念逐渐扩展到更广阔的研究领域, 除表面等离子激元纳米颗粒系统 (包括对称构型的等激元超分子以及引入对称性破缺的几何结构) 外, 还有光子晶体以及电磁超材料等. 在等激元超分子中的 Fano 共振表现为 SPP 共振光谱 Fano 低谷, 该现象目前已受到人们越来越多的关注 [3,5,13-16], 其中虽多次提及或应用群论的解释, 但对在 SPP 杂化理论框架下的这种具

体应用还未有细致的描述. 文献 [16] 在研究  $D_{3h}$  和  $D_{4h}$  对称构型 4 颗粒和 5 颗粒等激元超分子的 Fano 共振低谷光谱时, 提出了将整个颗粒集合分解成两个颗粒子集合的有趣观点, 分析认为 Fano 共振低谷来自于这两个颗粒子集合各自 SPP 共振光谱的相干叠加, 如图 1 所示. 我们注意到该观点与最近基于离散电偶极耦合理论下的群论分析结果 [17] 是一致的, 均与之前 Fano 共振光谱低谷来自于宽频超辐射亮模式和窄频低辐射暗模式之间的耦合 [5,15] 这一普遍看法有所不同.

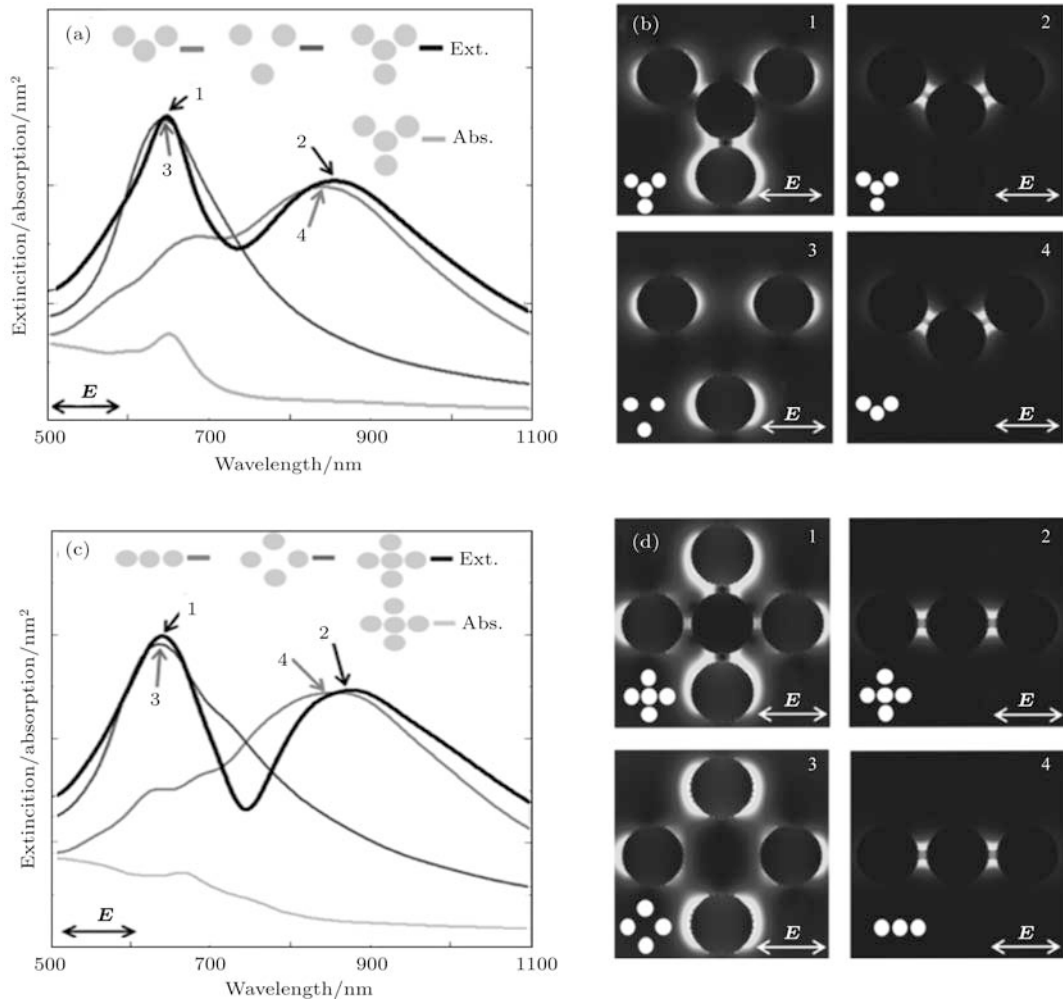


图 1 文献 [16] 中的关于等激元超分子子集合分解与 SPP 共振光谱峰形成相互关联的模拟计算结果 (a)  $D_{3h}$  四颗粒等激元超分子的消光光谱峰 (1, 2) 和吸收光谱, 以及颗粒子集合对应的消光光谱峰 (3, 4); (b) 对应于图 (a) 各消光光谱峰的电场强度分布; (c)  $D_{4h}$  五颗粒等激元超分子的消光光谱峰 (1, 2) 和吸收光谱, 以及颗粒子集合对应的消光光谱峰 (3, 4); (d) 对应于图 (c) 各消光光谱峰的电场强度分布 (本图修改自文献 [16])

Fig. 1. The simulation results in Ref. [16] about the correlation between the plasmonic metamolecule subgroup decomposition and the SPP resonance spectral forming: (a) Extinction spectral peaks (1, 2) and absorption spectrum for  $D_{3h}$  four nanoparticle plasmonic metamolecule, and the extinction spectral peaks (3, 4) for the subgroups; (b) electric field intensity distribution correlated to each of the spectral peaks in (a); (c) extinction spectral peaks (1, 2) and absorption spectrum for  $D_{4h}$  five nanoparticle plasmonic metamolecule, and the extinction spectral peaks (3, 4) for the subgroups; (d) electric field intensity distribution correlated to each of the spectral peaks in (c). Adapted from Ref. [16].

本文旨在对这种颗粒子集合分解方法给出 SPP 电偶极杂化的群论具体解释, 沿用文献 [6] 中传统的构建不可约表示正交基向量的方法给出详细的群论解释推导过程, 并讨论与文献 [17] 中用不同方法构建不可约表示正交基向量之间的关联, 以整理出对 Fano 共振光谱低谷起因的统一认识.

## 2 $D_{nh}$ 等离子激元超分子 SPP 电偶极共振模式的不可约表示构建方法

首先考虑在普适情况下由  $n$  个金属纳米颗粒形成的环形  $D_{nh}$  对称构型, 找到其 SPP 电偶极共振模式的不可约表示构建方法, 对于在环中心处增加 1 个颗粒的构型, 可把中心颗粒作为独立的颗粒来处理. 然后我们就可将此方法具体应用到  $D_{3h}$  和  $D_{4h}$  这两种情况.

如图 2(a) 所示,  $n$  个颗粒在  $xy$  平面内形成一个正  $n$  边形, 由于所考虑的问题只涉及到所有颗粒处于此平面内的电偶极电子振荡, 因此我们先以所有  $(x_i, y_i)$  构成的基来构建一个  $2n$  维的笛卡尔可约表示  $\Gamma_d$ , 然后再采用标准的不可约分解公式

$$n_q = \frac{1}{g} \sum_i \chi^{\Gamma_d}(T_i) \chi^q(T_i) \quad (1)$$

来得到不可约分解构成, 其中  $n_q$  表示某个不可约表示  $q$  出现的次数,  $g$  表示点群的阶,  $\chi^{\Gamma_d}(T_i)$  和  $\chi^q(T_i)$  分别表示  $\Gamma_d$  和  $q$  表示在各对称操作  $T_i$  下的特征标. 该求解过程可以用由原子轨道构建分子轨道的计算方式, 也可以沿用获得分子简正振动

坐标的求解方式 [18]. 这里采用后一种方法, 将笛卡尔可约表示  $\Gamma_d$  简化分解为  $\Gamma_{xy} \otimes \Gamma_p$  的直积形式, 其中  $\Gamma_{xy}$  为以  $(x, y)$  为基的 2 维表示,  $\Gamma_p$  为以颗粒编号本身为基的  $n$  维表示. 这样 (1) 式可以进一步地写为

$$n_q = \frac{1}{g} \sum_i \chi^{\Gamma_{xy}}(T_i) \chi^{\Gamma_p}(T_i) \chi^q(T_i). \quad (2)$$

本文考虑一般情况下线偏振光的 SPP 共振激发光谱, 由于要求 SPP 电偶极矩和激发电场满足  $\mathbf{p} \cdot \mathbf{E} \neq 0$ , 以群论来描述即要求他们所对应的不可约表示相同, 即

$$\Gamma_p = \Gamma_E, \quad (3)$$

因此在求解方程 (2) 时, 我们实际上只关心  $q = \Gamma_E \equiv \Gamma_{xy}$  的不可约表示 (从查  $D_{nh}$  特征标表可知,  $\Gamma_{xy}$  对应一个 2 维不可约表示, 在本文附录中给出了  $D_{3h}$  和  $D_{4h}$  的特征标表). 通过仔细观察特征标表可知, 对 (2) 式有贡献的对称操作  $T_i$  只有恒等操作  $E$  和镜面操作  $\sigma_h$ , 其对应的  $\chi^{\Gamma_p}(E) = \chi^{\Gamma_p}(\sigma_h) = n$ , 而  $\chi^{\Gamma_{xy}}(E) = \chi^{\Gamma_{xy}}(\sigma_h) = 2$ , 以及  $g = 4n$ , 因此我们最终得到

$$n_q = 2, \quad (4)$$

即由  $n$  个纳米颗粒构成的环形  $D_{nh}$  对称构型只有 2 个二维简并的 SPP 电偶极共振模式, 均对应于  $\Gamma_{xy}$  不可约表示 (当  $n$  为奇数时为  $E'$ ,  $n$  为偶数时为  $E_u$ ). 当环形中心增加 1 个颗粒时, 再增加 1 个相同的模式, 所以一共只有 3 个. 以上结论和文献 [17] 中以不同分析方法得到的结果是相同的.

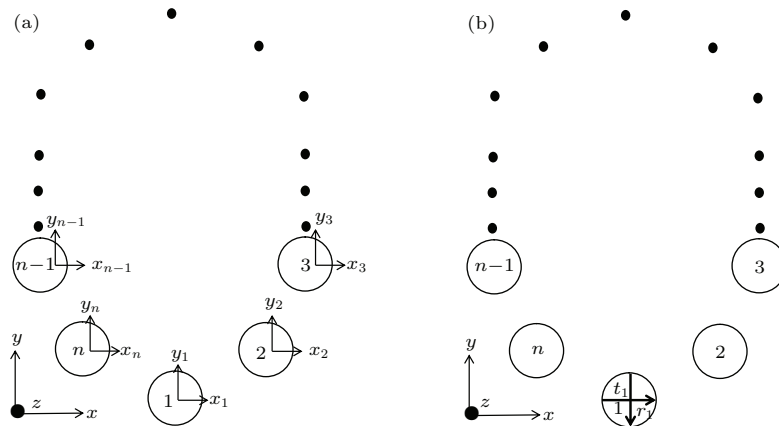


图 2  $D_{nh}$  等离子激元超分子的群表示基矢量构建示意图 (a)  $2n$  维笛卡尔可约表示基矢量构建; (b) 对称模式不可约表示的基矢量

Fig. 2. Schematic to build the representation bases for the general  $D_{nh}$  configuration: (a) Reducible representation bases under the Cartesian coordinates; (b) irreducible representation basis for building the symmetric modes.



我们接下来就可利用特征标投影算符

$$\mathbf{p}^{E'_{xy}} = \frac{l_p}{g} \sum_i \chi^{E'_{xy}}(T_i) \mathbf{R}(T_i) \quad (5)$$

(其中  $l_p = 2$  为不可约表示的维数,  $\mathbf{R}(T_i)$  为与各对称操作  $T_i$  对应的坐标变换算符) 来构建不可约表示的基向量也即 SPP 电偶极对称模式. 如图 2(b) 所示, 我们也同样沿用类似计算简正振动坐标时所用的内坐标对其施用特征标投影算符, 对于两个  $E'$  (或  $E_u$ ) 模式, 一个由径向向量  $\mathbf{r}$  来构建, 另一个由角向向量  $\mathbf{t}$  来构建, 其各自简并的另外一个则由正交原则来构建. 当增加 1 个中心颗粒时, 只需增加这个颗粒对应的独立的沿  $(x, y)$  方向上的 1 个  $E'$  (或  $E_u$ ) 模式即可.

### 3 $D_{3h}$ 对称构型 4 颗粒等离子激元超分子 SPP 共振光谱的颗粒子集合分解

首先我们将上述方法应用于  $D_{3h}$  对称构型 4 颗粒等离子激元超分子, 这里将构建 3 个  $E'$  电偶极模式 (参见附录中的  $D_{3h}$  特征标表). 对于外围 3 个颗粒, 施用如 (5) 式所示的特征标投影算符, 由图 2(b) 所示的  $\mathbf{r}$  向量出发得到

$$P^{E'}(\mathbf{r})_y = \frac{1}{\sqrt{6}} [2r_1 - r_2 - r_3], \quad (6)$$

而由  $\mathbf{t}$  向量出发则得到

$$P^{E'}(\mathbf{t})_x = \frac{1}{\sqrt{6}} [2t_1 - t_2 - t_3], \quad (7)$$

再由正交条件得到与之相互简并的模式分别为

$$P^{E'}(\mathbf{r})_x = \frac{1}{\sqrt{2}} [r_2 - r_3], \quad (8)$$

$$P^{E'}(\mathbf{t})_y = \frac{1}{\sqrt{2}} [t_2 - t_3], \quad (9)$$

图 3 前两行显示了这两个简并对称模式的结果, 最后一行显示了中间颗粒单独的  $E'$  模式. 图中将 3 个  $E'$  模式按照总电偶极矩沿  $x$  或  $y$  方向分为左右两列, 在本文中, 为了对图 1 即文献 [16] 中的研究结果进行分析, 我们只关注第一列即入射电场沿  $x$  方向的 SPP 电偶极激发情况.

由图 3 可以看到, 3 个  $E'$  模式是相互正交的, 而真正被激发的 SPP 模式将是这三者的线性组合. 我们发现由第一行 (a) 和第二行 (b) 这两个

模式的线性叠加 (结果如图 4(a) 所示), 恰好可以构成图 1(b) 所示的 SPP 模式 1, 而由第一行 (a) 和第三行 (c) 的线性叠加 (结果如图 4(b) 所示), 则与图 1(b) 所示的 SPP 模式 2 相同. 此处叠加系数的大小无法由群论来确定, 须根据实际结果来定义, 但系数的正负能够确定. 对于 SPP 模式 2, 线性叠加时图 3 中模式 (a) 和 (c) 的系数需要符号相同 (这里定义均为正), 这样才能使沿  $x$  方向的总电偶极矩增加, 从而构成能量较低的 (即长波长) SPP 模式, 是 SPP 杂化模型中的“成键”模式. 对于 SPP 模式 1, 图 3 中 (a) 模式的系数符号需为负数, 这样才能形成能量较高的“反键”模式, 通过仔细观察图 1(b) 中 SPP 模式 1 的电场分布, 可以得出在形成这一模式时图 3 中 (a) 模式所取系数的绝对值相对于图 3 中 (b) 模式所取系数应该小很多这一结论.

$D_{3h}$	$x$ 方向	$y$ 方向
	$(r_2 - r_3)/\sqrt{2}$	$(2r_1 - r_2 - r_3)/\sqrt{6}$
(a) 由 $\mathbf{r}$ 构建		
	$(t_1 - t_2 - t_3)/\sqrt{6}$	$(t_2 - t_3)/\sqrt{2}$
(b) 由 $\mathbf{t}$ 构建		
	$P_x$	$P_y$
(c) 由 $P_x$ 和 $P_y$ 构建		

图 3  $D_{3h}$  对称构型四颗粒等离子激元超分子 SPP 电偶极共振对称模式示意图 (a) 由径向向量  $\mathbf{r}$  构建; (b) 由角向向量  $\mathbf{t}$  构建; (c) 中心颗粒单独的  $E'$  模式. 模式 (a), (b) 中箭头的长短表示电偶极矩的大小; 模式 (c) 用了另外一种箭头以示和外围颗粒电偶极矩的区别

Fig. 3. Schematic of SPP dipolar resonance symmetric modes for  $D_{3h}$  four nanoparticles plasmonic metamolecule: (a) Built from the radial vector basis; (b) built from the angular vector basis; (c) the  $E'$  mode belonging to the center particle. The lengths of arrows in (a) and (b) represent the magnitude of the dipole moments; a different kind of arrows is used for modes (c).

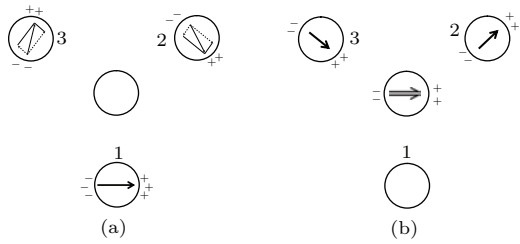


图4 由图3中的对称模式进行线性叠加得到的两个SPP共振模式 (a)由图3中的模式(a) (由短虚线箭头表示)和模式(b) (由长虚线箭头表示) 叠加获得; (b)由图3中的模式(a)和模式(c)叠加获得

Fig. 4. Two SPP resonance modes formed from linear superpositions of symmetric modes in Fig. 3: (a) the linear superposition mode formed from the linear superposition of modes (a) denoted by short dashed line arrows and (b) denoted by long dashed line arrows in Fig. 3; (b) the linear superposition mode formed from the linear superposition of modes (a) and (c) in Fig. 3.

#### 4 $D_{4h}$ 对称构型5颗粒等离子激元超分子SPP共振光谱的颗粒子集合分解

采用同样的方法, 我们计算了  $D_{4h}$  对称构型5颗粒等离子激元超分子的3个  $E_u$  模式 (参见附录中的  $D_{4h}$  特征标表). 对  $\mathbf{r}$  和  $\mathbf{t}$  向量分别施用特征标投影算符可以直接得到:

$$P^{E_u}(\mathbf{r})_y = \frac{1}{\sqrt{2}} [r_1 - r_3], \quad (10)$$

$$P^{E_u}(\mathbf{t})_x = \frac{1}{\sqrt{2}} [t_1 - t_3], \quad (11)$$

再由正交化关系可得

$$P^{E_u}(\mathbf{r})_x = \frac{1}{\sqrt{2}} [r_2 - r_4], \quad (12)$$

$$P^{E_u}(\mathbf{t})_y = \frac{1}{\sqrt{2}} [t_2 - t_4]. \quad (13)$$

图5中前两行分别显示了这两种简并模式的电偶极分布情况, 第三行是中心颗粒单独的  $E_u$  模式. 与图3相同, 图5左右两列总电偶极矩分别沿  $x$  和  $y$  方向, 本文只关注外电场沿  $x$  方向偏振的激发情况.

与图1(d)的结果进行比较分析发现: 将图5中的第一行(a)模式和第二行(b)模式进行线性叠加 (结果如图6(a)所示), 得到图1(d)的SPP模式1; 将图5中的第一行(a)模式和第三行(c)模式进行线性叠加 (结果如图6(b)所示), 得到图1(d)的SPP模式2. 显然这里的SPP模式2为“成键”模式, SPP模式1为“反键”模式, 叠加时

图5中(a)模式的系数为负而图5中(b)模式的系数为正, 并且前者的绝对值略小一些. 当然这些系数需要通过理论计算来具体确定.

$D_{4h}$	$x$ 方向	$y$ 方向
(a) 由 $\mathbf{r}$ 构建	$(r_2 - r_4)/\sqrt{2}$	$(r_1 - r_3)/\sqrt{2}$
(b) 由 $\mathbf{t}$ 构建	$(t_1 - t_3)/\sqrt{2}$	$(t_2 - t_4)/\sqrt{2}$
(c) 由 $P_x$ 和 $P_y$ 构建	$P_x$	$P_y$

图5  $D_{4h}$  对称构型五颗粒集合SPP电偶极共振对称模式示意图 (a)由径向向量  $\mathbf{r}$  构建; (b)由角向量  $\mathbf{t}$  构建; (c)中心颗粒单独的  $E_u$  模式. 模式(a)、(b)中箭头的长短表示电偶极矩的大小; 模式(c)用了另外一种箭头以示和外围颗粒电偶极矩的区别

Fig. 5. Schematic of SPP dipolar resonance symmetric modes for  $D_{4h}$  five nanoparticles oligomers: (a) Built from the radial vector basis; (b) built from the angular vector bases; (c) the  $E_u$  mode belonging to the center particle. The lengths of arrows in modes (a) and (b) represent the magnitude of the dipole moments; a different kind of arrows is used for modes (c).

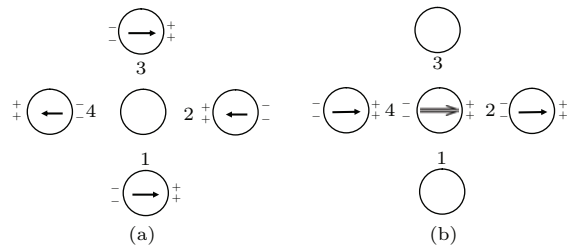


图6 由图5中的对称模式进行线性叠加得到的两个SPP共振模式 (a)由图5中的模式(a)和模式(b)叠加获得; (b)由图5中的模式(a)和模式(c)叠加获得

Fig. 6. Two SPP resonance modes formed from linear superpositions of symmetric modes in Fig. 5: (a) the linear superposition mode formed from the linear superposition of modes (a) and (b) in Fig. 5; (b) the linear superposition mode formed from the linear superposition of modes (a) and (c) in Fig. 5.

### 5 讨论与总结

比较图 4、图 6 与图 1 的结果可以看到, 运用群论的方法可以得到和数值计算非常接近的结果, 这是因为运用群论从对称性限定上得到了相互正交的 3 种独立对称模式, 而实际激发的 SPP 模式一定是其某种线性叠加, 但群论无法具体给出这些叠加系数.

本文的分析过程也给如图 1 所示的 SPP 光谱中出现的 Fano 共振凹陷提供了一个很好的物理解释. 如图 4 和图 6 所示, 图 1(a) 和图 1(c) 的 SPP 共振光谱峰 2 都对应了“成键”模式, 而两者的 SPP 共振光谱峰 1 都对应了总电偶极矩较小的“反键”模式. 但这两个本征模式在形成时都包含一个相同的对称模式, 即图 3 和图 5 中的模式 (a), 因此 Fano 共振光谱低谷是由相邻的两个非正交本征模式的干涉叠加形成的, 而且由于模式 (a) 的叠加系数总是相反, 因此形成的是 Fano 共振光谱凹陷. 这个分析结果和文献 [17] 中的结论是一致的, 虽然在那里构建的不可约表示基向量是不同的, 构建的对称模式一个是超亮模式 (对应于颗粒总的电偶极矩取可能的最大值), 另一个是暗模式 (对应于颗粒总的电偶极矩为零). 这种因表面等离激元共振本征态相消干涉的解释看起来和传统的观点有所不同, 但实际上是可以相互统一的, 传统观点的超亮模式和暗模式的相互耦合不是在本征态模式下而是在相互正交的对称模式的框架下进行的一种解释 [19].

同时我们也看到, 在  $D_{3h}$  四颗粒的光谱中, 叠加构成 SPP 模式 1 时, 模式 (a) 的贡献很小 (即叠加系数的绝对值很小), 因此和 SPP 模式 2 的干涉效应很弱, 所以这里的 Fano 共振其实很微弱甚至可以忽略. 然而,  $D_{4h}$  五颗粒光谱中的叠加系数绝对值较大, Fano 共振效应较强, 其中 SPP 模式 1 也更接近于暗模式. 以上分析也非常符合文献 [16] 中提出的结论.

本文的分析结果给出了文献 [16] 中将  $D_{3h}$  和  $D_{4h}$  对称构型等离激元超分子的 SPP 电偶极模式进行子集合分解的群论证明以及 Fano 共振光谱凹陷的群论解释, 这种分析过程具有直观、容易理解的优点. 对于这样的分解方法是否普遍适用于  $D_{nh}$  等离激元超分子的 Fano 共振光谱分析, 还有待进一步的研究.

### 附录

表 1  $D_{3h}$  特征标  
Table 1. Characters of  $D_{3h}$ .

$D_{3h}$	$E$	$2C_3$	$3C_2$	$\sigma_h$	$2S_3$	$3\sigma_v$	
$A'_1$	1	1	1	1	1	1	$x^2 + y^2, z^2$
$A'_2$	1	1	-1	1	1	-1	$R_z$
$E'$	2	-1	0	2	-1	0	$(x, y) \quad (x^2 - y^2, xy)$
$A''_1$	1	1	1	-1	-1	-1	
$A''_2$	1	1	-1	-1	-1	1	$z$
$E''$	2	-1	0	-2	1	0	$(R_x, R_y) \quad (xz, yz)$

表 2  $D_{4h}$  特征标  
Table 2. Characters of  $D_{4h}$ .

$D_{4h}$	$E$	$2C_4$	$C_2$	$2C'_2$	$2C''_2$	$i$	$2S_4$	$\sigma_h$	$2\sigma_v$	$2\sigma_d$	
$A_{1g}$	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	$x^2 + y^2, z^2$
$A_{2g}$	1	1	1	-1	-1	1	1	1	-1	-1	$R_z$
$B_{1g}$	1	-1	1	1	-1	1	-1	1	1	-1	$x^2 - y^2$
$B_{2g}$	1	-1	1	-1	1	1	-1	1	-1	1	$xy$
$E_g$	2	0	-2	0	0	2	0	-2	0	0	$(R_x, R_y) \quad (xz, yz)$
$A_{1u}$	1	1	1	1	1	-1	-1	-1	-1	-1	
$A_{2u}$	1	1	1	-1	-1	-1	-1	-1	1	1	$z$
$B_{1u}$	1	-1	1	1	-1	-1	1	-1	-1	1	
$B_{2u}$	1	-1	1	-1	1	-1	1	-1	1	-1	
$E_u$	2	0	-2	0	0	-2	0	2	0	0	$(x, y)$

## 参考文献

- [1] Halas N J 2010 *Nano Lett.* **10** 3816
- [2] Zou W B, Zhou J, Jin L, Zhang H P 2012 *Acta Phys. Sin.* **61** 097805 (in Chinese) [邹伟博, 周骏, 金理, 张昊鹏 2012 物理学报 **61** 097805]
- [3] Halas N J, Lal S, Chang W S, Link S, Nordlander P 2011 *Chem. Rev.* **111** 3913
- [4] Wang H, Brandl D W, Nordlander P, Halas N J 2007 *Acc. Chem. Res.* **40** 53
- [5] Hentschel M, Saliba M, Vogelgesang R, Giessen H, Alivisatos A P, Liu N 2010 *Nano Lett.* **10** 2721
- [6] Brandl D W, Mirin N A, Nordlander P 2006 *J. Phys. Chem. B* **110** 12302
- [7] Chuntunov L, Haran G 2013 *MRS Bull.* **38** 642
- [8] Chuntunov L, Haran G 2013 *Nano Lett.* **13** 1285
- [9] Tang D H, Ding W Q 2014 *Chin. Phys. Lett.* **31** 057301
- [10] Dong Z G, Liu H, Xu M X, Li T, Wang S M, Cao J X, Zhu S N, Zhang X 2010 *Opt. Express* **18** 22412
- [11] Li J B, He M D, Wang X J, Peng X F, Chen L Q 2014 *Chin. Phys. B.* **23** 067302
- [12] Chen Z Q, Qi J W, Chen J, Li Y D, Hao Z Q, Lu W Q, Xu J J, Sun Q 2013 *Chin. Phys. Lett.* **30** 057301
- [13] Lukyanchuk B, Zheludev N I, Maier S A, Halas N J, Nordlander P, Giessen H, Chong C T 2010 *Nature Mater.* **9** 707
- [14] Hentschel M, Dregely D, Vogelgesang R, Giessen H, Liu N 2011 *ACS Nano.* **5** 2042
- [15] Lassiter J B, Sobhani H, Knight M W, Mielczarek W S, Nordlander P, Halas N J 2012 *Nano Lett.* **12** 1058
- [16] Rahmani M, Lei D Y, Giannini V, Lukiyanchuk B, Rahnbar M, Liew T Y F, Hong M H, Maier S A 2012 *Nano Lett.* **12** 2101
- [17] Hopkins B, Poddubny A N, Miroshnichenko A E, Kivshar Y S 2013 *Phys. Rev. A* **88** 053819
- [18] Harris D C, Bertolucci M D 1987 *Symmetry and Spectroscopy* (Oxford: Oxford University Press) pp135–151
- [19] Frimmer M, Coenen T, Koenderink F 2012 *Phys. Rev. Lett.* **108** 077404



# Subgroup decomposition analyses of $D_{3h}$ and $D_{4h}$ plasmonic metamolecule Fano resonance spectrum\*

Li Meng-Jun<sup>1)</sup> Fang Hui<sup>2)†</sup> Li Xiao-Ming<sup>2)</sup> Yuan Xiao-Cong<sup>2)</sup>

1) (Institute of Modern Optics, College of Electronic Information and Optical Engineering, Nankai University, Tianjin 300071, China)

2) (Nanophotonics Research Centre, Shenzhen University, Key Laboratory of Optoelectronic Devices and Systems of Ministry of Education and Guangdong Province, College of Optoelectronic Engineering, Shenzhen University, Shenzhen 518060, China)

( Received 4 October 2015; revised manuscript received 7 December 2015 )

## Abstract

In recent decades, research about surface plasmon polariton (SPP) has earned its popularity in nanotechnology with many theoretical achievements, much progress in metal nanostructure manufacturing, spectral analyzing, biomedicine ultrasensing, etc. Group theory is an effective tool for analyzing the spectra of symmetrical organized multiparticles (dubbed as plasmonic metamolecule). Recently, SPP Fano resonance in nanostructure either from plasmonic metamolecules or from symmetry-breaking has attracted much attention. Regarding to the subgroup decomposition analysis of the  $D_{3h}$  and  $D_{4h}$  plasmonic metamolecule surface plasmon resonance spectra and the mechanism of forming the Fano resonance spectral dip, this paper proposes an explanation method based on group theory.

By using a similar group theory approach to constructing the molecular vibration normal modes, the method to build the dipolar SPP symmetric modes of plasmonic metamolecules is established. It is confirmed that under the linear polarization excitation there exists only two dipolar SPP symmetric modes for a ring shaped  $D_{nh}$  plasmonic metamolecule, while adding the center particle will merely add an extra independent symmetric mode. For the  $D_{3h}$  and  $D_{4h}$  plasmonic metamolecule, it is found that there are two dominant eigenmodes i.e., one is composed by adding two symmetric modes and the other by subtracting two symmetric modes. The decomposition analysis further reveals that the negative coefficient of the symmetric mode for forming the short wavelength eigenmode for  $D_{3h}$  tetramer plasmonic metamolecules is much smaller than that for  $D_{4h}$  pentamer plasmonic metamolecules, thereby explaining that the Fano resonance dip of the pentamer is sharper than that of the tetramer. It is worth noting that the group theory can provide some guidance for building the symmetric modes and the SPP eigenmodes, but is unable to determine the coefficient of each symmetric mode.

As for the origin of Fano resonance dip, so far there have existed two different perspectives: one is the traditional viewpoint, i.e., the Fano resonance dip is formed due to the coupling of the wideband superradiant bright mode with the narrowband subradiant dark mode, and the other is that the Fano resonance dip is formed by the destructive interference between two neighboring eigenmodes. The decomposition analysis described in this paper actually can unify these two perspectives.

**Keywords:** surface plasmon resonance spectrum, subgroup decomposition analysis, group theory, Fano resonance spectral dip

**PACS:** 73.63.-b, 73.20.Mf, 36.40.Mr, 02.20.-a

**DOI:** 10.7498/aps.65.057302

\* Project supported by The National Basic Research Program of China (Grant No. 2015CB352004), the Specialized Research Fund for the Doctoral Program of Higher Education of China (Grant No. 20130031110036), and the Tianjin Municipal Science and Technology Commission, China (Grant No. 14JCYBJC16600).

† Corresponding author. E-mail: [fhui79@szu.edu.cn](mailto:fhui79@szu.edu.cn)