

## 银纳米粒子阵列中衍射诱导高品质因子的四偶极晶格等离子体模式

熊磊 丁洪伟 李光元

## Quadrupolar lattice plasmon modes induced by diffraction of high-quality factors in silver nanoparticle arrays

Xiong Lei Ding Hong-Wei Li Guang-Yuan

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 047802 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20211629

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211629>

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

---

### 您可能感兴趣的其他文章

#### Articles you may be interested in

#### 基于时域有限差分法的核壳双金属纳米颗粒光吸收率反转行为

Reversal behavior of optical absorption rate of bimetallic core-shell nanoparticles based on finite-difference time-domain method

物理学报. 2021, 70(20): 207801 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210602>

#### 纳米颗粒布朗扩散边界条件的分子动力学模拟

Molecular dynamics simulation of Brownian diffusion boundary condition for nanoparticles

物理学报. 2021, 70(14): 148201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202240>

#### 表面活性剂对气-液界面纳米颗粒吸附规律的影响

Effect of surfactants on adsorption behavior of nanoparticles at gas-liquid surface

物理学报. 2020, 69(2): 026801 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20190756>

#### 基于单层二硫化钼的高品质因子、高品质因数的四波段完美吸收器

A four-band perfect absorber based on high quality factor and high figure of merit of monolayer molybdenum disulfide

物理学报. 2021, 70(12): 128101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20202163>

#### 非水平海底情况下海底地震波时域有限差分数值模拟

Seabed seismic wave simulation by finite difference time domain scheme in marine environment with complex seafloor topography

物理学报. 2021, 70(22): 224303 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210634>

#### Ti纳米粒子熔化与凝结的原子尺度模拟

Simulations of Ti nanoparticles upon heating and cooling on an atomic scale

物理学报. 2019, 68(16): 166402 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190228>

# 银纳米粒子阵列中衍射诱导高品质因子的四偶极晶格等离子体模式\*

熊磊<sup>1)†</sup> 丁洪伟<sup>1)</sup> 李光元<sup>2)</sup>

1) (云南大学信息学院, 昆明 650500)

2) (中国科学院深圳先进技术研究院, 深圳 518055)

(2021 年 9 月 2 日收到; 2021 年 10 月 28 日收到修改稿)

金属纳米颗粒阵列中形成的四偶极晶格共振模式具有低辐射损耗、高品质因子的特性, 因此广泛应用于纳米激光、传感、固态照明等领域. 基于时域有限差分法在均匀环境下研究了银纳米圆柱阵列的光谱与近场特性. 研究表明, 在  $x$  偏振光直入射下, 通过调节阵列  $x$  方向的周期, 共振强度先增加后降低, 当两个方向上的周期相等时, 提出的阵列结构能够产生一个线宽约 0.4 nm、品质因子高达 1815 的四偶极晶格共振模式, 这种共振模式呈现出 Fano 线型的透射谷; 调控  $y$  方向的周期能够实现从 Fano 线型的透射峰到透射谷的转变. 本文说明了粒子大小、晶格周期对四偶极晶格共振模式的重要性, 同时为银纳米颗粒在可见光波段设计高品质因子共振提供了优化策略.

**关键词:** 时域有限差分法, 四偶极晶格共振, 品质因子, 纳米颗粒

**PACS:** 78.67.Bf, 04.60.Nc, 42.25.Fx, 73.20.Mf

**DOI:** 10.7498/aps.71.20211629

## 1 引言

金属纳米粒子所支持局域表面等离子体共振 (localized surface plasmon resonances, LSPRs) 能有效地将电磁场束缚在粒子表面, 因此可以极大地增强电场近场特性, 被广泛应用于增强光与物质相互作用, 在纳米激光<sup>[1]</sup>、生物化学传感<sup>[2]</sup>、表面增强拉曼散射<sup>[3]</sup>、荧光增强<sup>[4]</sup>等领域展现出极大的应用价值. 然而金属本身存在较高的吸收损耗, 导致光谱共振线宽较宽, 因此, 这也成为阻碍表面等离子体共振进一步发展的障碍之一.

近年来, 研究人员发现在阵列结构中金属纳米粒子的 LSPRs 与瑞利异常 (rayleigh anomalies, RAs) 衍射之间的耦合能产生一种狭窄的共振模式, 称作品格等离子体模式<sup>[5–11]</sup> (lattice plasmon modes,

LPMs), 这种共振由于能有效地抑制辐射损耗、进一步增强光与物质相互作用而被广泛应用于光子-激子耦合<sup>[12]</sup>、非线性增强<sup>[13,14]</sup>、LED<sup>[15]</sup>等诸多领域. 然而, 许多研究主要集中在均匀介质环境下 LSPRs 与沿外加电场垂直方向的衍射波相互耦合而产生的集体共振, 这种共振模式被称作垂直晶格表面等离子体共振. 虽然这种共振模式能极大地增强纳米粒子周围的电磁场强度, 但此类型共振的调控却只能局限于一个周期方向, 这在很大程度上限制了其实际应用. 随后研究人员在金纳米粒子阵列实验中发现沿外加电场方向的衍射波同样能与 LSPRs 产生狭窄的等离子体集体共振<sup>[16]</sup>, 这种共振模式被称作平行晶格表面等离子体共振. 不同的是, 垂直晶格表面等离子体共振通常情况下由偶极 LSPRs 与衍射光波耦合产生, 具有偶极共振特性; 而平行晶格表面等离子体共振则能由四偶极

\* 国家自然科学基金地区科学基金 (批准号: 61461053) 和云南大学研究生创新项目 (批准号: 2020295) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xlei0320@163.com

LSPRs 与衍射光波耦合获得, 具有四偶极共振特性. 因此, 四偶极晶格等离子体模式 (quadrupolar lattice plasmon modes, QLPMs) 比偶极晶格等离子体模式 (dipolar lattice plasmon modes, DLPMs) 有更低的辐射阻尼损耗, 在调控晶格共振波长时, QLPMs 能在一个宽波段范围内保持较高的品质因子<sup>[17]</sup>; 此外, 这种共振模式能容忍覆层与基底的折射率存在差异, 因此, 非常适用于纳米激光<sup>[18]</sup>、传感<sup>[19]</sup>、发射增强<sup>[16]</sup>等领域. 目前, 金属纳米圆柱<sup>[20]</sup>、纳米条<sup>[16]</sup>、三聚体<sup>[21]</sup>和纳米核壳<sup>[19]</sup>结构中的平行晶格等离子体共振已在非均匀环境下被研究了, 然而, 在均匀环境下, 这种多偶极 (亚辐射) 共振模式能进一步增强光与物质的相互作用; 文献<sup>[22]</sup>通过抑制  $y$  方向的衍射模式, 调控  $x$  方向周期不仅实现了透射谷向透射峰的转变, 而且电场也得到增强, 但并未考虑  $y$  方向变化对共振的影响, 同时也限制了调控的自由度.

本文研究了均匀环境下银纳米圆柱阵列中高品质因子的 QLPMs, 在  $x$  偏振光直入射下情况下, 通过调控阵列在  $x$  与  $y$  方向的周期, 能够在可见光波段产生品质因子高达 1815 的 QLPM 共振. 值得注意的是, 通过调控  $y$  方向周期, 改变衍射模式的波长, 由此控制 DLPMs 共振出现的位置, 能够实现一个 Fano 线型的透射峰与谷, 其光谱特征也将通过近场电场分布来解释说明; 此外, 研究了银纳米圆柱直径、高度的变化对 QLPMs 的影响, 说明了粒子大小、晶格周期对 QLPMs 的重要性. 这种模式的设计也将为光开关、滤波器件的设计开辟新道路.

## 2 理论与结构设计

当光入射到一个周期分别为  $P_x$  与  $P_y$  二维纳米颗粒阵列时, LPMs 的光谱响应会出现在 RAs 附近, 而 RAs 可以由光栅方程<sup>[23,24]</sup>得到, 其关系式如下:

$$\mathbf{k}_{i,j}^{\parallel} = \mathbf{k}_0 \sin \theta + i\mathbf{G}_x + j\mathbf{G}_y. \quad (1)$$

这里  $\mathbf{k}_{i,j}^{\parallel}$ ,  $\mathbf{k}_0$ ,  $\theta$  分别为面内波矢、入射光波矢以及入射角,  $|\mathbf{G}_x| = 2\pi/P_x$  与  $|\mathbf{G}_y| = 2\pi/P_y$  为倒格矢, 整数对  $(i, j)$  表示不同的衍射阶次. 此外, 沿  $z$  方向的波矢  $\mathbf{k}_{i,j}^{\perp}$  可以被表示为

$$\mathbf{k}_{i,j}^{\perp} = \sqrt{\mathbf{k}_0 - \mathbf{k}_{i,j}^{\parallel 2}}. \quad (2)$$

$\mathbf{k}_{i,j}^{\perp}$  的实部表示辐射衍射, 虚部表示倏逝衍射. 从

倏逝衍射到辐射衍射的转变引起了粒子之间强相互作用, 诱导了 LPMs; 由于本文只研究在直入射下面内  $(\pm 1, 0)$  阶衍射 (在  $x$  方向传播) 与  $(0, \pm 1)$  阶衍射 (在  $y$  方向传播) 对 LPMs 的影响, 因此, 由 (1) 式和 (2) 式可得到 RAs 的波长为

$$\lambda_{i,j}^{\text{RA}} = \frac{n}{\sqrt{i^2/P_x^2 + j^2/P_y^2}}. \quad (3)$$

这里  $n$  为环境折射率. 对于一个周期性纳米阵列, 选择入射场偏振沿  $x$  方向, 因此  $(\pm 1, 0)$  阶衍射决定了平行方向耦合, 而  $(0, \pm 1)$  阶衍射决定了垂直方向耦合.

图 1 给出了所研究的纳米阵列结构示意图, 它由周期性排列、嵌入在均匀介质环境中的银纳米圆柱组成. 在  $x$  与  $y$  方向的周期分别是  $P_x$  与  $P_y$ , 银纳米圆柱的高为  $h$ ,  $d$  代表直径. 整个阵列结构嵌入在折射率为 1.45 的均匀介质环境中. 对于结果的分析, 使用 3D 时域有限差分法 (finite difference time domain, FDTD) 进行数值模拟, 在仿真区域的  $x$  与  $y$  方向采用周期性边界条件,  $z$  方向使用足够厚的吸收层——完美匹配层 (perfectly-matched layer, PML). 同时, 为了确保仿真结果计算准确, 在银纳米圆柱上使用了精度为 2 nm 的网格. 对于所有的计算, 银纳米圆柱的折射率参数取自实验数据<sup>[25]</sup>.

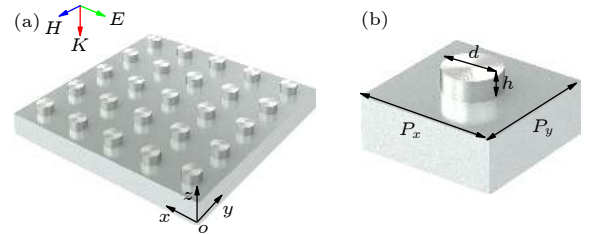


图 1 (a) 银纳米圆柱在均匀介电环境下的阵列结构示意图, 电场沿  $x$  方向的光场垂直入射到阵列表面; (b) 单个单元的结构示意图, 其中阵列在  $x$  与  $y$  方向的周期用  $P_x$  与  $P_y$  表示, 圆柱高度、直径分别用  $h$ ,  $d$  表示

Fig. 1. (a) A schematic diagram of silver nanodisk arrays in a symmetric medium environment under  $x$ -polarized light incidence; (b) oblique view of a unit cell of the proposed array structure.  $P_x$ ,  $P_y$ ,  $h$  and  $d$  represent period in  $x$  and  $y$  directions, height and diameter of silver nanodisk arrays, respectively.

## 3 结果与讨论

图 2(a) 首先讨论了在高度  $h = 100$  nm, 直径  $d = 160$  nm 下单个粒子的散射截面, 从图 2(a) 中

可知, 散射截面在 551 与 764 nm 处呈现一窄一宽两个共振峰, 随后在图 2(a) 的插图中给出了两个峰位的电场分布图, 从插图的电场与电流分布来看, 窄带共振峰为四偶极 LSPR, 电场主要集中在粒子轮廓的四个角落附近; 宽带共振峰的电场主要分布在粒子左右两侧, 为偶极 LSPR. 接着, 图 2(b) 展示了银纳米圆柱阵列结构在  $x$  偏振光垂直入射下银纳米圆柱的透射光谱. 当阵列结构的周期  $P_x = P_y = 500$  nm, 高度  $h = 100$  nm, 直径  $d = 160$  nm 时, 图 2(b) 中的蓝色曲线在 725.9 与 801 nm 处分别出现了一个窄带与一个宽带透射谷, 对于共振的损耗可以通过  $Q$  品质因子来评估, 其表达式可以定义为<sup>[26]</sup>

$$Q = \frac{\lambda_0}{\Delta\lambda}. \quad (4)$$

这里  $\lambda_0$  为共振的中心波长,  $\Delta\lambda$  为共振的半高全宽 (full-width at half-maximum, FWHM). 因此, 可以计算得到上述两个共振峰位对应 FWHM 分别是 0.4 nm 与 50.7 nm, 相应的  $Q$  值分别是 1815 与 16, 此时, 窄带共振对应 QLPM, 宽带共振对应 DLPM. 此外, 理解 LPMs 形成机理通常采用耦合偶极近似 (coupled dipole approximation, CDA) 方法<sup>[27]</sup>, 该方法通过分离纳米粒子的材料效应 (粒子极化率) 和晶格几何效应 (格点和)<sup>[28]</sup> 来分析 LPMs. 阵列中每个粒子被看作一个偶极子, 并且有相同的偶极矩, 其消光截面可以被表达为

$$C_{\text{ext}} = \frac{-4\pi k [\text{Im}(1/\alpha) - \text{Im}(S)]}{[\text{Re}(1/\alpha) - \text{Re}(S)]^2 + [\text{Im}(1/\alpha) - \text{Im}(S)]^2}. \quad (5)$$

这里  $k$  表示入射光的波数,  $\alpha$  表示单个粒子极化率,  $S$  表示格点和; LPMs 的线宽可以通过  $\text{Im}(1/\alpha - S)$  的大小来调控, 而共振波长的位置可以通过  $\text{Re}(1/\alpha)$  与  $\text{Re}(S)$  的交点来选择. 图 2(c) 计算了上述参数下周期性阵列中银纳米圆柱的极化率倒数 ( $1/\alpha$ ) 与阵列格点和 ( $S$ ). 当  $\text{Re}(1/\alpha)$  与  $\text{Re}(S)$  相交时, 即  $\text{Re}(1/\alpha - S) = 0$ , 图 2(c) 中总共有三个波长位置出现交点; 第一个交点出现的位置大约在 670 nm, 代表着单个粒子的 LSPR, 此时,  $\text{Im}(1/\alpha)$  与  $\text{Im}(S)$  符号相反,  $\text{Im}(1/\alpha - S)$  数值很大, 因此, LSPR 呈现出宽带共振, 损耗高,  $Q$  值低; 而瑞利异常衍射波长位置大约在 725 nm 处 (图 2(c) 中黑色虚线标记), 这与 (3) 式理论计算结果一致, 但在图 2(b) 的透射谱中, 此处并无明显共振出现, 原因

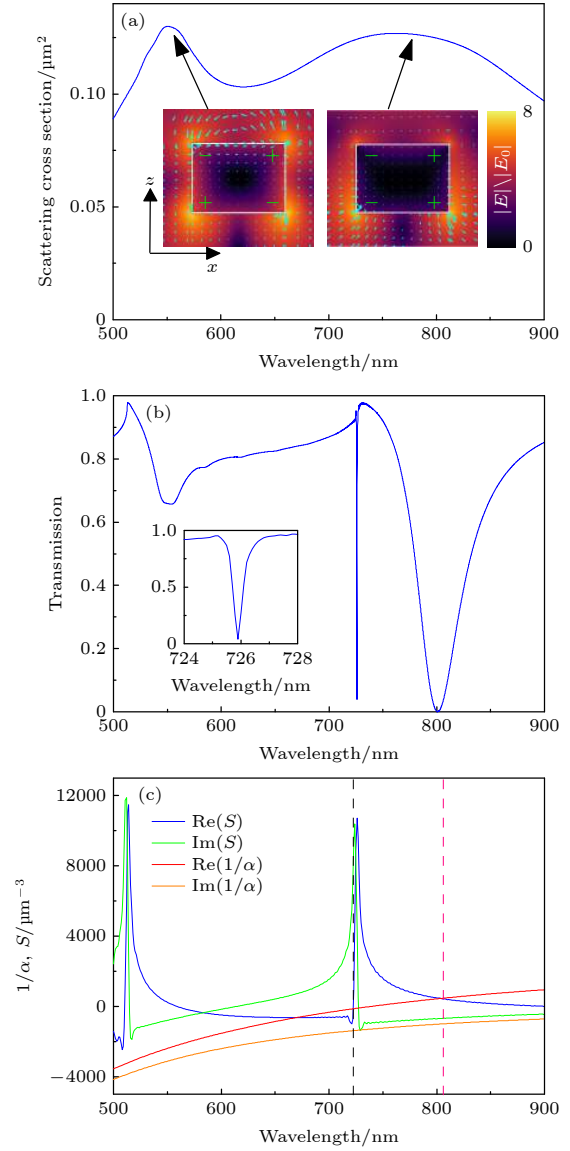


图 2 (a) 高度  $h = 100$  nm, 直径  $d = 160$  nm 的单个银纳米粒子散射截面光谱; 插图为偶极与四偶极 LSPRs 在  $x$ - $z$  平面对应的电场强度与方向 (箭头) 分布, 纳米圆柱的侧面轮廓用白色框表示, “+”与“-”符号表示正负电荷; (b) 银纳米圆柱阵列在  $x$  偏振光照射下的透射谱, 插图 of QLPM 的放大图; (c) 银纳米圆柱阵列极化率倒数 ( $1/\alpha$ ) 与格点和 ( $S$ ), 黑色虚线表示瑞利异常衍射, 粉色虚线表示 DLPM 共振波长

Fig. 2. (a) Scattering cross section for single silver nanoparticle with  $h = 100$  nm and  $d = 160$  nm. The inset shows the electric field intensity and direction (in arrow) distribution corresponding to the dipolar and the quadrupolar LSPR modes. The outline of the nanoparticle is represented by a white box, and the sign “+” and “-” indicate positive and negative charges; (b) the transmission spectra of DLPM and QLPM of the silver nanodisks array under the  $x$ -polarized light. Inset: zoom-in of the transmission dip for the QLPM; (c) the real part of the reciprocal polarizability ( $1/\alpha$ ) and the lattice sum ( $S$ ) for the silver nanodisk arrays. The black and pink dashed lines represent the  $(0, \pm 1)$  RAs and resonance wavelength, respectively.



在于  $\text{Im}(1/\alpha)$  与  $\text{Im}(S)$  之间差异过大; 最后一个交点位置为 LPM, 出现在 803 nm 处 (如图 2(c) 中粉色虚线标记), 相较于前述的 LSPR,  $\text{Im}(1/\alpha)$  与  $\text{Im}(S)$  符号相同, 并且  $\text{Im}(1/\alpha - S)$  明显变小, 此时消光截面最大,  $Q$  值增加, 共振增强; 如果共振位置向衍射模式靠近, 那么将会有更多的光能局限在阵列表面, 粒子损耗降低,  $\text{Im}(1/\alpha - S)$  进一步变小, 导致一个窄线宽共振模式出现<sup>[9]</sup>. 图 2(c) 中共振模式明显远离衍射模式, 且  $\text{Im}(1/\alpha - S)$  仍然保持一个较大的数值, 故共振线宽较宽. 然而, 此处并没有体现 QLPM 的共振特征, 原因在于只考虑到偶极共振之间的相互影响, 并未引入四偶极共振的计算, 但粒子大小的改变引起 LSPRs 波长的移动, 相对于衍射耦合来说, 得到的 DLPMs 与 QLPMs 在线宽与共振波长上也发生了相应的变化, 并且有着相同的变化趋势 (如图 5 所示), 因此, 这种方法同样对 QLPMs 的优化设计有参考意义.

为了更好地理解这种 DLPM 与 QLPM 的物理机制, 图 3 给出了图 2(b) 中两个晶格共振点的电场强度分布. 图 3(a) 展现了 725.9 nm 处狭窄的 QLPM 在  $x$ - $y$  面的电场强度分布, 阵列中的粒子沿着入射场方向产生了两种杂化模式, 一种是电场围绕在粒子周围的类似局域等离激元共振模式, 另一种是与入射场方向平行的  $(\pm 1, 0)$  衍射模式; 而在  $x$ - $z$  面 (图 3(c)), 电场主要分布在粒子的四个角落, 并且向周围介质扩散, 因此, 对于狭窄的 QLPM 来说, 粒子的电场局域性减弱, 损耗降低,  $Q$  值增

加. 而在较宽共振的 DLPM 中, 银纳米粒子在  $x$ - $y$  面的电场特性类似 QLPM, 如图 3(b) 所示, 主要区别在于此时衍射模式传播方向与入射电场方向垂直, 而且电场强度也更低; 从  $x$ - $z$  面的电场分布来看, 电场主要集中在粒子左右两侧, 向周围介质扩散的更少, 故粒子的 LSPR 增强, 损耗增加,  $Q$  值降低.

图 4(a) 和图 4(b) 讨论了高度  $h = 100$  nm, 直径  $d = 160$  nm 的银纳米粒子阵列在同时改变两个方向周期的情况下对 QLPMs 的影响. 当  $P_y = 500$  nm,  $P_x$  以 50 nm 波长间距从 300 nm 变化到 550 nm 时, 图 4(a) 透射谱中的 QLPMs 在  $P_x < 400$  nm 的情况下并未出现, 这是因为衍射模式波长小于四偶极 LSPR, 不能形成有效耦合; 而随着  $P_x$  继续增加, QLPMs 越来越明显, 并且线宽变窄, 当  $P_x = P_y = 500$  nm 时, 由于沿  $x$  方向的  $(\pm 1, 0)$  衍射阶次与沿  $y$  方向的  $(0, \pm 1)$  衍射阶次在 725 nm 处发生简并, 因此, 线宽最窄, 对应的  $Q$  值达到最大; 而随着  $x$  方向的周期继续增大, 散射效率降低并且耦合变弱, 最后 QLPMs 逐渐消失, 其对应的  $Q$  值与 FWHM 变化如图 4(c) 所示. 图 4(b) 描述了固定  $P_x = 500$  nm,  $P_y$  以 50 nm 波长间距从 300 nm 变化到 550 nm 时阵列的透射谱. 在  $P_y < 400$  nm 时, 透射谱逐渐由不对称的 Fano 线向对称的 Fano 线型演变, 形成衍射诱导透明, 出现这种现象的原因在于, 当入射光波长大于 550 nm 小于 725 nm (沿  $x$  方向  $(\pm 1, 0)$  阶衍射波长) 时, 银纳米粒子由于自身 LSPR 影响, 透射率逐渐降低, 消光增加; 而当入射光波长等于 725 nm 时, 沿  $x$  方向的  $(\pm 1, 0)$  阶衍射增强, 此时粒子的能量主要通过衍射模式耗散, 从而削弱了粒子的 LSPR, 导致消光减小, 因此透射迅速增加; 然而, 当入射光波长大于 725 nm 时, 由光栅方程<sup>[24]</sup>得出  $(\pm 1, 0)$  阶衍射迅速消失, 导致消光增加, 透射降低, 因此粒子逐渐回归到 LSPR 模式上; 由于  $(0, \pm 1)$  阶衍射波长随  $y$  方向周期增加而发生红移, 导致  $y$  方向的 DLPMs 逐渐显现并随之红移, 当  $P_y$  增加到 400 nm 时, 一个宽带的 DLPM 出现在 725 nm 附近, 致使粒子 LSPR 增强, 透射相对于前述周期下的 LSPRs 来说下降更多, 此时 QLPM 表现为一个品质因子  $Q$  高达 1452 的类电磁诱导透明现象; 随着  $y$  方向周期持续的增大, 光谱的 Fano 线型将逐渐失去对称性, 此时 FWHM 也将会变宽 (如图 4(d) 所示); 继续增加  $P_y$  到 500 nm, 跟之前结论一致,

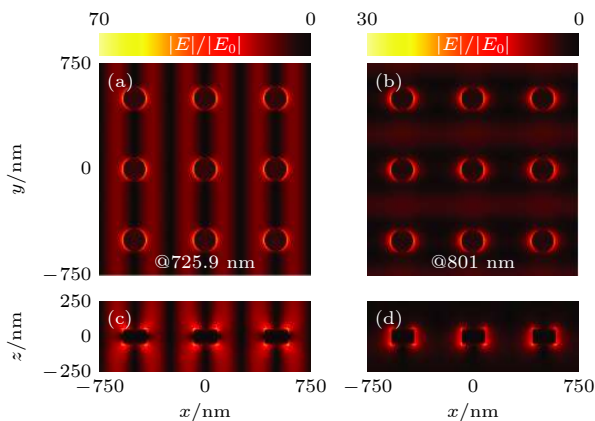


图 3 波长在 (a), (c) 725.9 nm 与 (b), (d) 801 nm 处 QLPM 与 DLPM 电场强度分布

Fig. 3. The electric field intensity distribution of QLPM for (a), (c) corresponding to resonance wavelength at 725.9 nm and DLPM for (b), (d) corresponding to resonance wavelength at 801 nm.

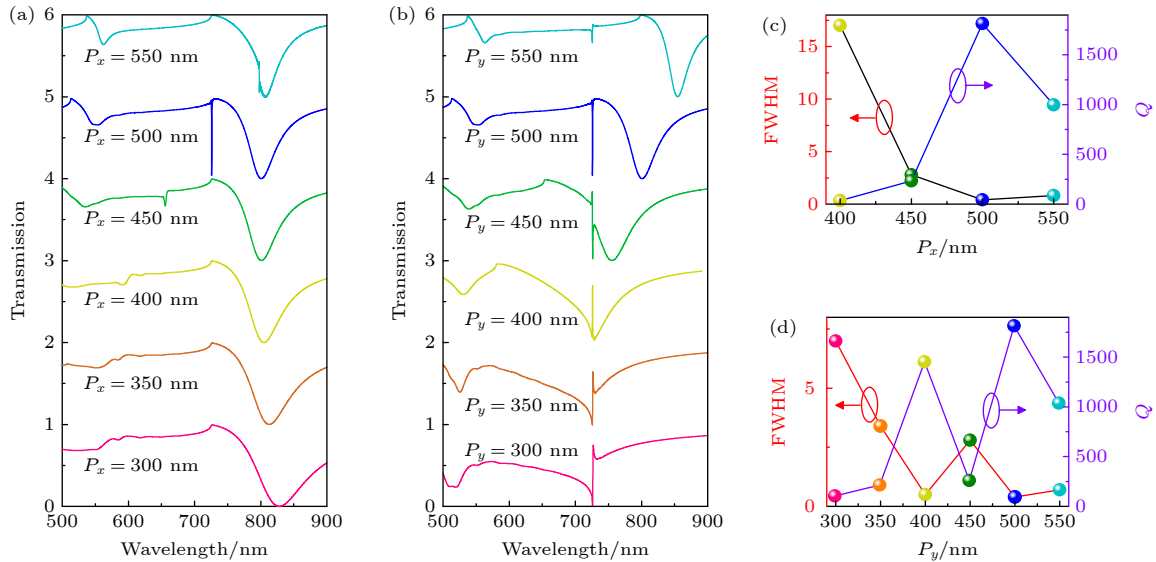


图 4 当其他所有参数保持不变时 (a), (b) 分别是  $x$  与  $y$  方向上不同周期的阵列透射谱; (c), (d) 分别是相对应的 FWHMs 与品质因子

Fig. 4. (a), (b) Transmission spectra, and (c), (d) FWHMs and quality factors for different lattice periods while all others parameters are fixed.

四种衍射模式的叠加导致一个更窄线宽的共振, 此时, QLPM 出现在 DLPM 边沿, 呈现出一个对称度较高的透射谷. 当  $P_y > 500$  nm 时, DLPMs 对 QLPMs 的影响减小, 并且共振强度也因简并态的分离而减弱. 为了凸显本文结构的 QLPM 具有超高品质因子, 我们跟同类型的共振模式进行对比, 并将结果整理在表 1 中. 从表 1 中可以看到, 针对于金、银等不同金属材料, 在可见光与近红外波段, 本文提出的结构有着更优的共振性能.

表 1 数值仿真获得的高  $Q$  值 LPMs 总结  
Table 1. Summary of numerically obtained high- $Q$  factors of LPMs.

材料	波长/nm	$Q$	文献
金	可见光	>1000	[7]
金	877	219	[17]
金	840	280	[22]
金、银、铝	可见光	<300	[28]
银	648	1500	[8]
银	725.9	1815	本文

为了进一步明确 QLPMs 的一般变化规律, 保持周期  $P_x = P_y = 500$  nm, 在不同高度下改变银纳米圆柱直径, 其透射光谱的变化如图 5(a)–(c) 所示. 当高度  $h = 50$  nm 时, 随着银纳米圆柱直径的增加, 能清晰的看到 DLPMs 的共振波长发生红移并且线宽展宽, 而 QLPMs 在直径  $d \geq 170$  nm

才开始出现, 并且此时共振位置非常靠近  $(\pm 1, 0)$  阶次瑞利异常衍射, 具有较窄的线宽; 继续增加银纳米圆柱高度, 此时随着圆柱直径变大, QLPMs 逐渐显现比较明显, 线宽变宽, 共振波长红移, 同时, 由于 DLPMs 线宽变的更宽, 两种模式会相互靠近, 逐渐变为 LSPRs, 这说明粒子尺寸越大, 越容易激发 QLPMs, 并且随着粒子尺寸的增大, QLPMs 远离衍射模式, 线宽也逐渐变宽, 这与文献 [17] 的结论一致. 在高度  $h = 100$  nm, 圆柱直径分别为  $d = 80$  nm,  $100$  nm 与  $120$  nm 时,  $x$  与  $y$  方向的周期同时变化对透射谱的影响如图 5(d)–(f) 所示. 从图 5(d)–(f) 中可以看出, 粒子尺寸越小, 或者阵列周期越大, 其 DLPMs 与 QLPMs 线宽似乎持续变窄, 但透射幅度会降低, 这种现象产生的主要原因在于, 周期增大, 粒子相对于 LPMs 的波长来说越来越小, 散射强度降低并且耦合效率下降; 此外, 随着周期增加, 共振波长随着衍射模式变化而发生红移.

## 4 结 论

本文研究了均匀环境下银纳米圆柱阵列中高品质因子的 QLPMs, 在  $x$  偏振光直入射下, 通过调控阵列在  $x$  与  $y$  方向的周期, 能够在可见光波段产生品质因子高达 1815 的 QLPM 共振; 通过调

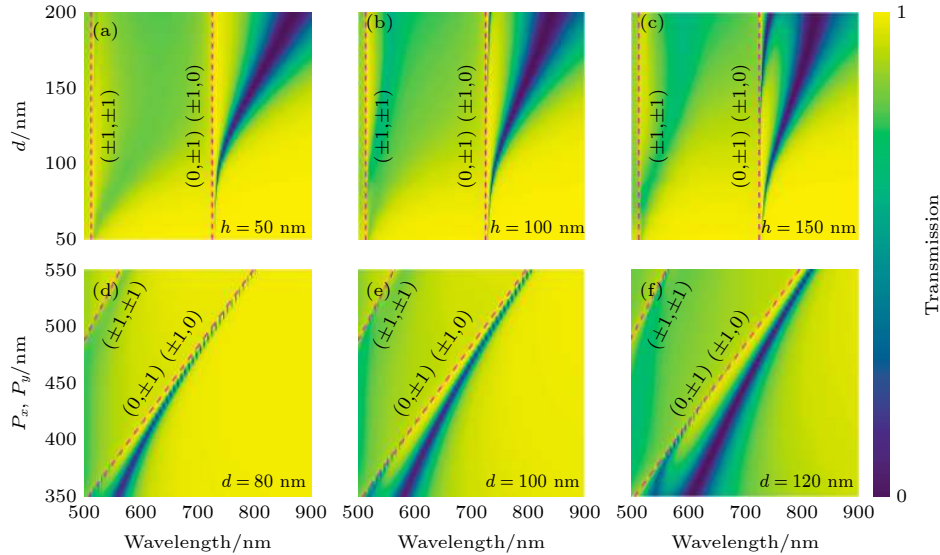


图5 周期  $P_x = P_y = 500$  nm 保持不变, 对于银纳米圆柱高度 (a)  $h = 50$ , (b) 100 与 (c) 150 nm 下直径  $d$  从 50 nm 变化到 200 nm 时阵列的透射谱. 高度  $h = 100$  nm 保持不变, 对于圆柱直径 (d)  $d = 80$ , (e) 100 与 (f) 120 nm 下, 银纳米圆柱阵列周期  $P$  从 350 nm 变化到 550 nm 时的透射谱. 粉色虚线表示瑞利异常衍射阶次, 颜色条代表透射强度

Fig. 5. Transmission spectra of silver nanodisk arrays with (a)  $h = 50$ , (b) 100, and (c) 150 nm for different diameters (from 50 to 200 nm with a 5 nm step) under the normal incidence, while  $P_x = P_y = 500$  nm is fixed. Transmission spectra of silver nanodisk arrays with (d)  $d = 80$ , (e) 100 and (f) 120 nm for different lattice periods (from 350 to 550 nm with a 5 nm step) under the normal incidence, when  $h = 100$  nm is fixed. The pink dashed lines represent the diffraction orders, and the color bar represents the transmission intensity.

控  $y$  方向周期, 改变衍射模式的波长, 由此控制 DLPMs 出现的位置, 能够实现一个 Fano 线型的透射峰与谷, 出现这种现象的原因在于, 当粒子足够大, 能够使得单个粒子出现的偶极与四偶极 LSPRs 分别与不同方向衍射模式发生耦合, 由此产生 DLPMs 与 QLPMs, 因此单独调控  $y$  方向的周期使  $x$  方向衍射模式的突变出现在 DLPM 的透射谷时, 消光先减小后增大, 此时 QLPMs 表现为透射峰; 当  $x$  方向的衍射波长远离 DLPM 时, 此时阵列光谱透射率较高, 衍射模式的变化使得 QLPMs 呈现透射谷. 本文的研究将对设计高品质因子的 QLPMs 提供新思路.

## 参考文献

- [1] Wang D Q, Bourgeois M R, Guan J, Fumani A K, Schatz G C, Odom T W 2020 *ACS Photonics* **7** 630
- [2] Polavarapu L, Liz-Marzán L M 2013 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15** 5288
- [3] Nie S M, Emory S R 1997 *Science* **275** 1102
- [4] Chowdhury M H, Ray K, Gray S K, Pond J, Lacowicz J R 2009 *Anal. Chem.* **81** 1397
- [5] Castellanos G W, Bai P, Gómez Rivas J 2019 *J. Appl. Phys.* **125** 213105
- [6] Humphrey A D, Barnes W L 2016 *J. Opt.* **18** 035005
- [7] Khlopin D, Laux F, Wardley W P, Martin J, Wurtz G A, Plain J, Bonod N, Zayats A V, Dickson W, Gérard D 2017 *J. Opt. Soc. Am. B: Opt. Phys.* **34** 691
- [8] Le-Van Q, Zoethout E, Geluk E J, Ramezani M, Berghuis M, Gómez Rivas J 2019 *Adv. Opt. Mater.* **7** 1801451
- [9] Humphrey A D, Barnes W L 2014 *Phys. Rev. B* **90** 075404
- [10] Zundel L, May A, Manjavacas A 2021 *ACS Photonics* **8** 360
- [11] Bin-Alam M S, Reshef O, Mamchur Y, Alam M Z, Carlow G, Upham J, Sullivan B T, Ménard J-M, Huttunen M J, Boyd R W, Dolgaleva K 2021 *Nat. Commun.* **12** 947
- [12] Hakala T K, Antti J M, Aaro I V, Guo R, Martikainen J P, Daskalakis K S, Rekola H T, Julku A, Törmä P 2018 *Nat. Phys.* **14** 739
- [13] Han A X, Dineen C, Babicheva V E, Moloney J V 2020 *Nanophotonics* **9** 3545
- [14] Zhang M L, Qin Z F, Chen Z 2021 *Acta Phys. Sin.* **70** 054206 (in Chinese) [张萌徕, 覃赵福, 陈卓 2021 物理学报 **70** 054206]
- [15] Lozano G, Louwers D J, Rodríguez S R K, Murai S, Jansen O T A, Verschuuren M A, Gómez Rivas J 2013 *Light-Sci. Appl.* **2** e66
- [16] Vitrey A, Aigouy L, Prieto P, García-Martín J M, González M U 2014 *Nano Lett.* **14** 2079
- [17] Wang D Q, Bourgeois M R, Lee W K, Li R, Trivedi D, Knudson M P, Wang W J, Schatz G C, Odom T W 2018 *Nano Lett.* **18** 4549
- [18] Li R, Wang D Q, Guan J, Wang W J, Ao X Y, Schatz G C, Schaller R, Odom T W 2019 *J. Opt. Soc. Am. B: Opt. Phys.* **36** E104
- [19] Lin L H, Zheng Y B 2015 *Nanoscale* **7** 12205
- [20] Muravitskaya A, Movsesyan A, Kostcheev S, Adam P M 2019 *J. Opt. Soc. Am. B: Opt. Phys.* **36** E65
- [21] Liu S D, Yue P, Zhang S, Wang M S, Dai H W, Chen Y Q, Nie Z Q, Cui Y X, Han J B, Duan H G 2020 *Adv. Opt. Mater.* **8** 1901109
- [22] Nikitin A G 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 061107

- [23] Lin L H, Yi Y S 2015 *Opt. Express* **23** 130  
 [24] Meier M, Wokaun A, Liao P F 1985 *J. Opt. Soc. Am. B: Opt. Phys.* **2** 931  
 [25] Johnson P B, Christy R W 1972 *Phys. Rev. B* **6** 4370  
 [26] Kravets V G, Kabashin A V, Barnes W L, Grigorenko A N 2018 *Chem. Rev.* **118** 5912  
 [27] Teperik T V, Degiron A 2012 *Phys. Rev. B* **86** 245425  
 [28] Yang A, Hryn A J, Bourgeois M R, Lee W K, Hu J, Schatz G C, Odom T W 2016 *Proc. Natl. Acad. Sci. U. S. A.* **113** 14201

# Quadrupolar lattice plasmon modes induced by diffraction of high-quality factors in silver nanoparticle arrays\*

Xiong Lei <sup>1)†</sup> Ding Hong-Wei <sup>1)</sup> Li Guang-Yuan <sup>2)</sup>

<sup>1)</sup> (School of Information Science and Engineering, Yunnan University, Kunming 650500, China)

<sup>2)</sup> (Shenzhen Institutes of Advanced Technology, Chinese Academy of Sciences, Shenzhen 518055, China)

( Received 2 September 2021; revised manuscript received 28 October 2021 )

## Abstract

Periodic nanoparticle arrays with lower loss or high-quality ( $Q$ ) factor resonances have made great advances in numerous applications. Such arrays can support narrow resonance modes by the hybridization of plasmonic-photonic modes, known as lattice plasmon modes (LPMs). The LPMs arise from the diffraction-induced coupling between localized surface plasmon resonances (LSPRs) of nanoparticles in symmetric or quasi-symmetric refractive index environment. To date, the great majority of researches have focused on the coupling of dipolar modes to in-plane orthogonal diffraction waves in nanoparticle arrays, resulting in dipolar lattice plasmon modes (DLPMs). However, there are few studies about quadrupolar lattice plasmon modes (QLPMs) for parallel coupling in symmetric environment, especially for high  $Q$ -factor QLPMs. In this work, we explore the sharp QLPMs of the silver nanodisk arrays by  $x$ -polarized light at normal incidence. In the first place, the scattering cross-section and near-field electric field distribution of single silver nanodisk indicate the existence of dipolar and quadrupolar LSPRs, thus, the optical responses of silver nanodisk arrays exhibit the peak-and-dip profiles of DLPMs and QLPMs at different wavelengths. Also, the electromagnetic field distributions confirm that the parallel propagating electric field introduces QLPM and results in electric field delocalization, while DLPM is existent in another way in periodic silver nanodisk arrays. Moreover, the position, linewidth and lineshape of the QLPM strongly depend on the role of lattice period. We enable these resonance modes to be selectively accessed and individually optimized by tuning lattice periods in the  $x$ - or  $y$ -direction. By changing the lattice period in the  $x$ -direction from 300 to 550 nm in steps of 50 nm, the dip of transmission intensity increases gradually, and when periods in the two directions are equal, the transmission dip exhibits a narrow-band QLPM resonance with a linewidth of 0.4 nm, corresponding quality factor is as high as  $Q = 1815$  under the  $x$ -polarized light. In particular, by varying periods in the  $y$ -direction, the QLPM can also be manipulated in a range from an asymmetric Fano-like lineshape peak to a dip. The acquisition of these results may provide a design strategy for high- $Q$  factor resonance in nanolaser, sensing, and nonlinear optics.

**Keywords:** finite difference time domain method, quadrupolar lattice plasmon modes, quality factors, nanoparticles

**PACS:** 78.67.Bf, 04.60.Nc, 42.25.Fx, 73.20.Mf

**DOI:** 10.7498/aps.71.20211629

\* Project supported by the Fund for Less Developed Regions of the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61461053) and the Yunnan University's Research Innovation Fund for Graduate Students, China (Grant No. 2020295).

† Corresponding author. E-mail: xlei0320@163.com