arXiv:2303.00478v1 [physics.optics] 1 Mar 2023

通过逆向设计实现超材料透明性的无极化等离激元超原子

Emadeldeen Hassan，*,†,‡ Andrey B.Evlyukhin，*,¶,§ 和 Antonio Calà Lesina*,‖,§,⊥

†于默奥大学应用物理与电子学系，瑞典于默奥 *SE-901 87*

‡米努菲亚大学电子与电气通信系，埃及米努夫 *32952*

¶汉诺威莱布尼茨大学量子光学研究所，德国汉诺威 *30167*§汉诺威莱布尼茨大学 *PhoenixD*卓越集群，德国汉诺威 *30167*‖汉诺威莱布尼茨大学光学技术中心，德国汉诺威 *30167*

⊥汉诺威莱布尼茨大学机械工程学院运输与自动化技术研究所，德国汉诺威 *30167*

电子邮箱：emadeldeen.hassan@umu.se；evlyukhin@iqo.uni-hannover.de；antonio.calalesina@hot.uni-hannover.de

摘要

无极点态因能够实现场增强和透明性，已在纳米光子学领域得到广泛研究。介电纳米粒子由于不存在本征损耗，已实现低消光；但在等离激元纳米结构中，这一目标仍未实现。本文报道了一种通过拓扑优化发现、易于制造的平面等离激元纳米结构。它在可见光波段呈现出接近理想特性的无极点态，包括弱吸收、高

近场增强以及强散射抑制。由于耦合较弱，即使应用于高密度排列的超表面和超材料中，该纳米天线仍能保持其光学响应，因此可作为独立的超原子。低损耗源于优化拓扑：它能使场集中在结构外部，同时将场进入金属内部的程度降至最低。与介电结构中的无极点态相比，其增强场的可接近体积更适合用于传感应用。无极点态通常被解释为电偶极矩与环形偶极矩之间干涉的结果。本文基于一种新颖的方法，在次级多极分析的背景下，提出了不借助环形偶极矩贡献来描述无极点态的概念。本文为理解等离激元纳米结构中的无极点及其实现方式提供了新见解，同时彰显了拓扑优化在开拓具备新颖功能的设计方面的强大能力。

1 引言

近年来，纳米光子结构因能够通过设计来调控其对入射光的散射方式而备受关注。已有研究提出了各种新颖的纳米结构设计，它们能够支持电荷电流分布，从而产生任意辐射场或非辐射场。非辐射源具有所谓的无极点态，代表一类特殊的电磁对象，因为它们能够实现看似矛盾的特性：近场中的场增强与远场中的零散射（即在阵列构型中使用时的幺正透射率）。[1,2] 微波频段首次实现无极点现象的研究涉及一种金属环形超材料[3,4]，而光学领域的首个实例则报道于一种高折射率介电纳米圆盘中。[5] 关于纳米光子学中非辐射无极点态的更多详情，建议参阅综述文章，[6–8] 其中也介绍了该领域的发展历程。

精确的多极分解和无散射态识别需要将远场展开为球谐函数。[7] 然而，对于尺寸远小于波长的纳米结构，对其进行笛卡尔坐标泰勒展开（即长波近似），并纳入纳米结构中的电流密度，能更清晰地揭示无极点态的形成机制。[9,10] 实现无极点态最广为人知的方式是环形偶极与电偶极子之间的相消干涉，但其他多极项也可能促成无极点的形成。典型例子包括混合无散射态[11]，以及由横向 Kerker 效应导致的无极点态 [12,13]。文献 [11], 中的研究得到了扩展， [14] 提出了一种介质纳米结构，其无极点态使该纳米结构表现得如同理想超原子，其性能不受邻近结构的影响（耦合可忽略），从而为实现高密度超表面铺平了道路；此类超表面也可采用纳米结构的随机分布，且基底的影响可忽略。此外，文献 [15]还探讨了通过相变材料主动调控介电超表面中的无极点态。

上述示例基于介质，这是因为无极点态需要低损耗。然而，介质纳米结构只能在结构体积内部提供场增强，这对于传感和某些非线性光学应用并不理想，而在这些应用中金属更受青睐。尽管人们努力降低等离激元材料的损耗 [16], ，金属的内禀吸收阻碍了在无极点中实现接近理想性能的可能性，即使是在数值研究中也是如此。尽管存在这些局限，研究人员仍对金属纳米结构中的多个无极点态进行了理论研究，例如由精心排列的U形开口环谐振器 [17], 、间隙表面等离激元谐振器 [18], 构成的等离激元超材料，以及通过利用增益材料来克服损耗的设计 [19]。研究人员通过不锈钢片中的哑铃形孔径在太赫兹波段实现了无极点态[20]，类似的几何结构也被应用于红外波段 [21]。在后一种情况下，金片上的哑铃形孔径阵列与垂直开口环谐振器阵列相结合，后者负责产生环形

偶极子，使每个孔径位置处产生环形偶极。然而，这种系统制造起来较为复杂，因为它需要垂直开口环谐振器，以及两个超表面之间的对准。

本文探讨了一个问题：是否能够在可见光波段实现易于制造（即平面型）的等离激元纳米结构中的近乎理想无极点态。通过拓扑优化进行逆向设计 [22–29]，结果表明答案是肯定的。本文所述的等离激元纳米结构，是通过优化结构中央间隙体积内的场增强而得到的。优化采用了我们团队近期开发的一种算法 [30], ，该算法可在一次代码运行中考虑 Drude色散，从而获得器件性能的宽带概览。借此，我们确定了一个散射截面极低的光谱区域，即无极点态；在该区域中，纳米结构还在间隙处表现出高场增强。结果表明，这种无极点具有近乎理想的特性，包括极低的损耗。这归功于优化拓扑将场局域在间隙周围的开放体积区域内，使其极少渗入金属。此外，我们的无极点纳米结构可作为独立的等离激元元原子，类似于文献 [14]中讨论的介质纳米结构。我们分别对独立状态下、超表面构型和超材料构型中的纳米结构进行了分析；在所有情况下，包括置于基底上的情况，它都能保持自身特性。因此，该结构既可用于实现高密度等离激元热点的超表面，也可用于实现高透明度的等离激元超材料。文献 [21] 中并未观察到这一现象，因为其单元胞彼此相连，迫使作者引入环形偶极，也使他们无法实现平面结构。而在我们的研究中，平面结构意味着环形偶极的贡献并非形成无极点态的必要条件。因此，我们将电偶极子的极小值视为无极点的起源。通过次级多极分析，我们仅以电偶极矩解释无极点效应。我们发现，纳米结构的不同子体积对应两个相位相反的电偶极矩，它们解释了该结构的形成

无极点态源于二者的相消干涉。我们的设计特性有利于增强非线性光学效应和实现非线性光场结构化。事实上，由于耦合较弱，纳米结构之间距离很近，这一特点可用于实现无衍射非线性光场结构化[31]和激光发射。第 2 节介绍纳米结构的光学数值表征，以阐明无极点态。第 3 节采用多极分析，阐明散射抵消的机制。第 4 节展示实现透明超表面并同时提供场增强的可能性。第 5 节将这一展示拓展至超材料构型。结论和未来展望见第 6 节。

2 拓扑优化结构

在近期的一项研究中，[30]我们提出了一种新的拓扑优化方法，用于优化宽带色散等离激元纳米结构。该方法将给定材料分布在指定的设计域中，以使定义的目标函数达到极值。该方法提供的大量自由度能够实现高效且非直觉的结构设计，并取得卓越性能。我们应用该方法优化银纳米结构的拓扑，以最大化入射平面波在位于纳米结构中心的间隙区域内产生的电场。图1a和图1b分别展示了一种优化纳米结构的三维透视图和二维横截面图，其尺寸为 $200 \times 200 \times 30$ 纳米^3。该纳米结构中心设有间隙区域 Ω_g，其尺寸为 $12 \times 12 \times 30$ 纳米^3。如图1d所示，该优化纳米结构在 560–1180 纳米的光谱范围内实现了超过 30 倍的平均场增强；我们还使用商业软件包 Ansys Lumerical FDTD 对时域有限差分代码的计算结果进行了交叉验证。[32]值得一提的是，我们的纳米结构与文献中此前报道的结构具有相似之处；这些相似结构曾得到研究，但研究背景是周期性超表面，其中包括一种

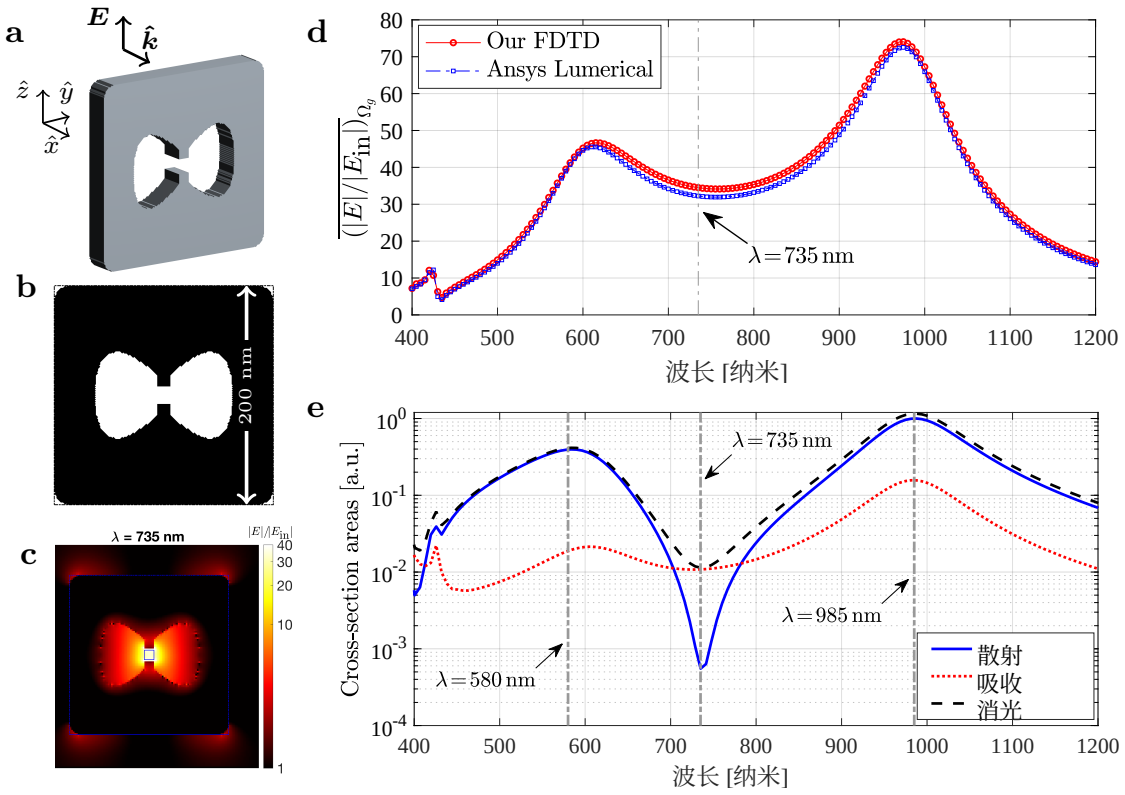


图 1：优化银纳米结构。(a) 优化设计的三维视图和 (b) 截面视图。(c) 在环形偶极子波长 $\lambda = 735$纳米处的场分布，该波长由 (d) 和 (e) 中的垂直点划线标出。(d) 位于纳米结构中心间隙区域内的平均场增强，并通过 Ansys Lumerical 商业软件包进行交叉验证。[32] (e) 纳米结构的散射、吸收和消光截面，显示出无极点态（使用 Ansys Lumerical 计算）。

被相应孔径穿孔的金属薄膜。[21,33]

图 1e 所示的散射截面曲线显示出两个峰值，分别位于约 580 纳米和 985 纳米处，以及一个位于约 735 纳米处的谷值；与峰值相比，该处的散射截面大幅降低了近四个数量级。同一图中还展示了吸收截面和消光截面，它们的变化趋势基本与散射曲线一致。也就是说，尽管如图 1c 所示，该纳米结构在约 735 纳米处的谷值位置具有近场增强能力，但由于其在该处的吸收相对较小，消光截面也较小。该纳米结构在 735 纳米处的综合特征表明存在无极点态。为了解这种无极点态的起源，我们将在下一节采用多极分析研究该纳米结构。

3 多极分析

本节简要介绍多极分析方法，随后运用该方法分析纳米结构，并找出对其远场有贡献的多极矩。我们采用传统的多极分析方法研究该纳米结构，但这种方法不足以解释无极点态的起源。因此，我们采用次级多极分析，解释该纳米结构在 735 纳米附近的奇特特征，并将这些特征与无极点态联系起来。与传统上认为通过电偶极子和环形偶极的叠加实现无极点态的观点不同，我们的次级多极分析揭示了一种实现无极点态的新概念，其主要基于准静态电偶极矩的贡献。在我们的方法中，假设所有涉及的多极矩都位于纳米结构的对称中心。

3.1 理论背景

散射截面（SCS）的多极展开 σ_{sca}，显式纳入电偶极（ED）矢量矩 $\mathbf{p}$ 和磁四极（MQ）张量矩 $\hat{M}$ 后，可写为 [34]

$$\sigma_{\mathrm{sca}} = \frac{k_0^4}{6\pi\varepsilon_0^2|\mathbf{E}|^2}|\mathbf{p}|^2 + \frac{k_0^6\varepsilon_d^2\mu_0}{80\pi\varepsilon_0|\mathbf{E}|^2}\sum_{\alpha\beta}|M_{\alpha\beta}|^2 + \cdots, \tag{1}$$

其中， k_0 为真空中的波数， ε_0 为真空介电常数， ε_d 为周围介质的相对介电常数， μ_0 为真空磁导率，**E**为多极矩局域化点处的入射电场。用于确定精确多极矩的积分表达式已在文献中讨论， [35,36] 而电偶极和磁四极矩可表示为

$$\begin{aligned}\mathbf{p} = &\frac{i}{\omega}\int_{V_s} j_0(k_d r')\mathbf{j}(\mathbf{r}')d\mathbf{r}' + \\ &+ \frac{ik_d^2}{2\omega}\int_{V_s}\frac{j_2(k_d r')}{(k_d r')^2}\{3[\mathbf{r}'\cdot\mathbf{j}(\mathbf{r}')]\mathbf{r}' - r'^2\mathbf{j}(\mathbf{r}')\}d\mathbf{r}',\end{aligned} \tag{2}$$

$$\hat{M} = 5\int_{V_s}\frac{j_2(k_d r')}{(k_d r')^2}\{[\mathbf{r}'\times\mathbf{j}(\mathbf{r}')]\mathbf{r}' + \mathbf{r}'[\mathbf{r}'\times\mathbf{j}(\mathbf{r}')]\}d\mathbf{r}', \tag{3}$$

其中， $k_d = k_0\sqrt{\varepsilon_d}$；矢量**j(r′)**是入射光波以角频率 ω照射散射体时在其中感应产生的电流密度；$\mathbf{r}'$ 是散射体内部体积元的位置矢量，坐标原点位于纳米结构的中心； V_s 为散射体的体积； $j_n(k_d r')$为 n阶球贝塞尔函数。

需要注意的是，在式（1）中，我们明确列出了所考虑结构的散射截面（SCS）中的主要多极贡献。仅包含这些项即可很好地近似

完整的散射截面（SCS）。因此，散射截面（SCS）表示为

$$\sigma_{\mathrm{sca}} \simeq \sigma_{\mathrm{sca}}^{p} + \sigma_{\mathrm{sca}}^{M}, \tag{4}$$

其中，第一项和第二项分别是电偶极和磁四极贡献。

3.2 环形偶极与无极点态

通过将式(2)中的贝塞尔函数展开为泰勒级数（在零附近），并仅取前两项，电偶极矩矢量可近似为[34,35]

$$\begin{aligned}\mathbf{p} &\approx \frac{i}{\omega}\int_{V_s}\mathbf{j}(\mathbf{r}')d\mathbf{r}' + \frac{ik_d^2}{10\,\omega}\int_{V_s}\{[\mathbf{r}'\cdot\mathbf{j}(\mathbf{r}')]\mathbf{r}' - 2r'^2\mathbf{j}(\mathbf{r}')\}d\mathbf{r}' \\ &\equiv \mathbf{p}^0 + \frac{ik_d^2}{\omega}\mathbf{T},\end{aligned} \tag{5}$$

其中，第一个积分项记为$\mathbf{p}^0$, ，是长波近似下的电偶极子（ED_0）矩；第二个积分项包含环形偶极矩（TD）$\mathbf{T}$。我们强调，表达式(5)对应于长波近似（LWA），此时多极矩定义中的贝塞尔函数自变量对于散射体$\mathbf{r}'$ 内部所有点都足够小。[35] 在长波近似下，电偶极贡献对σ_{scat} 为

$$\sigma_{\mathrm{sca}}^{p} \approx \sigma_{\mathrm{sca}}^{\mathrm{ED}_0+\mathrm{TD}} = \frac{k_0^4}{6\pi\varepsilon_0^2|\mathbf{E}|^2}|\mathbf{p}^0 + \frac{ik_d^2}{\omega}\mathbf{T}|^2, \tag{6}$$

可表示为

$$\sigma_{\mathrm{sca}}^{\mathrm{ED}_0+\mathrm{TD}} = \frac{k_0^4}{6\pi\varepsilon_0^2|\mathbf{E}|^2}\left\{|\mathbf{p}^0|^2 + \frac{k_d^4}{\omega^2}|\mathbf{T}|^2 - 2\frac{k_d^2}{\omega}\Im(\mathbf{T}\cdot\mathbf{p}^{0*})\right\}. \tag{7}$$

在动态环形态的传统概念中，[5,8] 电偶极散射（辐射）的抑制与由准静态电偶极矩$\mathbf{p}^0$ 和环形偶极矩$\mathbf{T}$产生的场之间的相消干涉有关。根据式（6）和

式（7），为了实现 $\sigma^{p}_{\mathrm{sca}} \to 0$，应满足以下条件：

$$\mathbf{p}^0 = -\frac{ik_d^2}{\omega}\mathbf{T} \quad \text{or} \quad |\mathbf{p}^0|^2 + \frac{k_d^4}{\omega^2}|\mathbf{T}|^2 = 2\frac{k_d^2}{\omega}\Im(\mathbf{T}\cdot\mathbf{p}^{0*}). \tag{8}$$

请注意，在此处，为了实现无极点态，需要激发具有特定大小和相位的环形偶极矩。

我们使用多极展开分析纳米结构的散射截面。图2a展示了基于公式（1）的散射截面多极分解，其中还纳入了使用 Ansys Lumerical 软件包计算的图1e中的全波散射截面，以供比较。可以看出，在所考虑的光谱范围内，除了 $\lambda = 735$ 纳米处极小值附近的狭窄区域外，仅电偶极贡献便足以正确描述总散射截面；在该狭窄区域内，磁四极贡献十分重要，而电偶极达到其极小值，对应于无极点态。应用公式（5），我们可以对精确的电偶极进行长波近似分解，其中包含准静态电偶极 ED_0 和环形偶极 TD。结果见图2b。可以看出，λ =735 纳米处电偶极的极小值主要由 ED_0 贡献决定，而 TD 仅使电偶极的极小值产生微弱的（~ 3 纳米）光谱位移$_0$。此外，在远离极小值处，TD 对电偶极的贡献比 ED_0 贡献小几个数量级。因此，我们可以得出结论，偶极无极点态的形成无法用 ED_0 与 TD 产生的场之间的简单相消干涉来解释。事实上，只有当 ED_0受到显著抑制时，这种干涉才开始发挥作用。我们看到，无极点态正是由于 ED_0受到显著抑制而形成的。因此，为了阐明无极点态的形成机制，我们需要理解 ED_0受到抑制的原因。在下一节中，我们将进行次级多极分析，进一步研究这一问题。

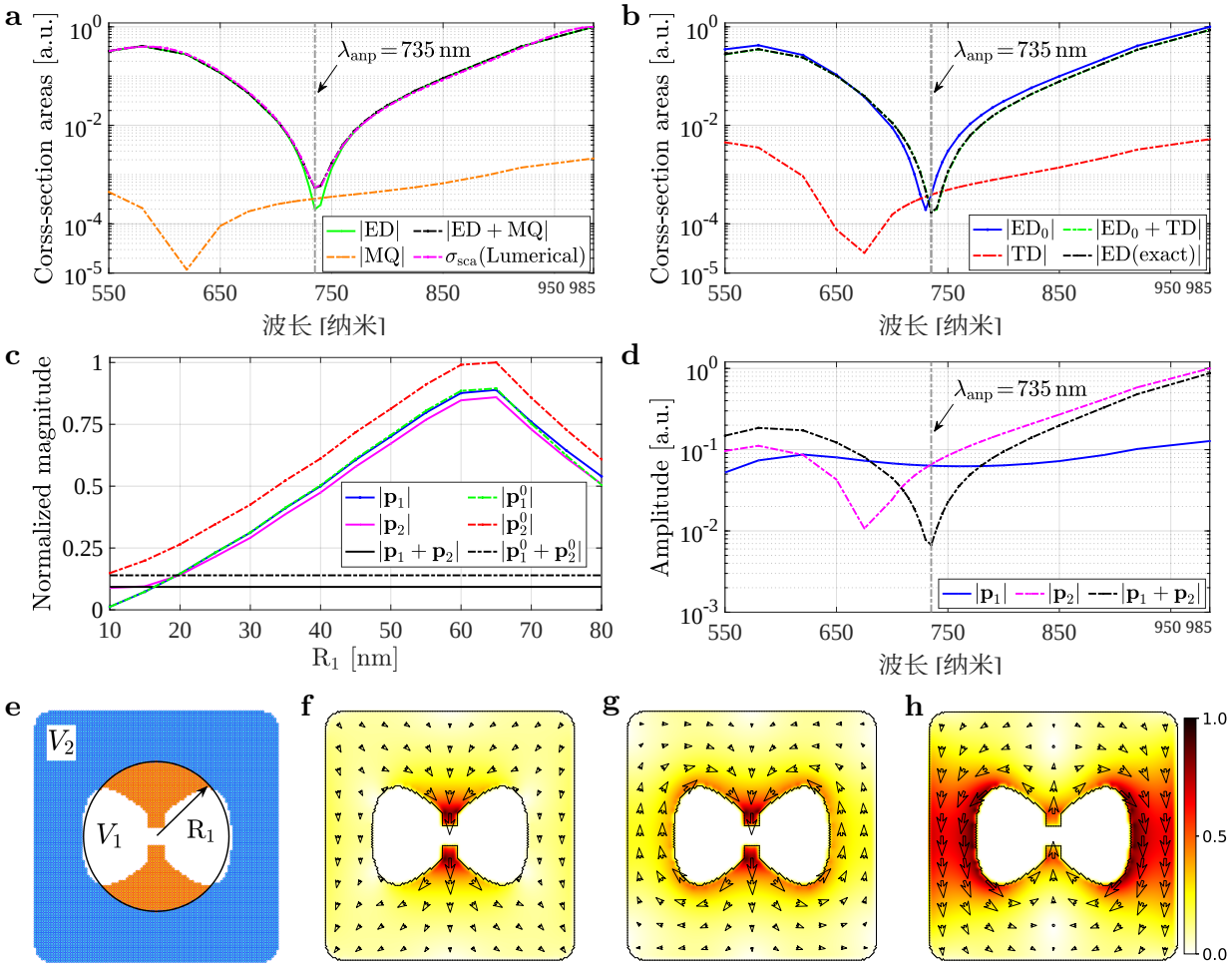


图2：纳米结构多极分析。(a) 总散射截面及相应的精确电偶极（ED）和磁四极（MD）贡献。(b) 准静态电偶极（ED$_0$）、环形偶极（TD）、两者之和（ED$_0$+TD）以及精确电偶极（ED）对总散射截面的贡献。(c) 整个结构的精确ED的绝对值（$\mathbf{p} = \mathbf{p_1} + \mathbf{p_2}$）和长波近似电偶极（$\mathbf{p^0} = \mathbf{p_1^0} + \mathbf{p_2^0}$），以及子体积 V_1 和 V_2各自的贡献；在不同半径R$_1$，下，于 $\lambda = 735$纳米处计算，见(e)。(d) 在R$_1$=60纳米时，ED $\mathbf{p}_1$ ofV_1和ED $\mathbf{p}_2$ of V_2绝对值的光谱依赖性，以及总ED $\mathbf{p} = \mathbf{p_1} + \mathbf{p_2}$。(e) 以半径R$_1$ 为界将纳米结构划分为子体积 V_1 和 V_2。(f)、(g)和(h)分别为波长580纳米、735纳米和985纳米时纳米结构中心处的归一化电场分布。

3.3 次级多极分析与无极点态

为了进行次级多极分析，我们将散射体的总体积 V分为两部分，如图 2e 所示。第一部分记为 V_1，是纳米结构中心处一个圆柱体内部的体积，该圆柱体的半径为 R_1 ，轴线垂直于平面。第二部分记为 V_2，是圆柱体外部的剩余体积，因此$V = V_1 + V_2$。随后，我们计算纳米结构的总电偶极矩$\mathbf{p}$，并分别计算与 V_1 和 V_2对应的电偶极矩$\mathbf{p}_1$ 和$\mathbf{p}_2$ 。所有偶极矩均以纳米结构的中心为原点。我们采用矢量方程$\mathbf{p} = \mathbf{p}_1 + \mathbf{p}_2,$ ，其中每个偶极矩均通过式（2）计算，并在相应体积上积分得到。

将纳米结构划分为两个子体积，可以将总电偶极矩 $\mathbf{p}$ 表示为

$$\mathbf{p} = \mathbf{p}_1 + \mathbf{p_2}, \tag{9}$$

其中，$\mathbf{p}_1$ ($\mathbf{p}_2$) 是对应于子体积 V_1 (V_2) 的电偶极矩。据此，我们可以将电偶极散射截面表示为

$$\sigma_{\mathrm{sca}}^{p} = \frac{k_0^4}{6\pi\varepsilon_0^2|\mathbf{E}|^2}\left\{|\mathbf{p}_1|^2 + |\mathbf{p}_2|^2 + 2\Re(\mathbf{p}_1 \cdot \mathbf{p}_2^*)\right\}. \tag{10}$$

通过这种表示方式，可以提出另一种实现无极点态的方法，而无需显式引入环形偶极贡献。例如，给定波长λ_{anp} 以及子体积 V_1 和 V_2，假设电偶极矩 $|\mathbf{p}_1| = |\mathbf{p}_2|$ 均具有非零的最大值。接着令 $\sigma_{\mathrm{sca}}^{p} \to 0$，由此便可基于电偶极矩 $\mathbf{p}_1$ 和 $\mathbf{p}_2$所产生的场之间的相消干涉实现无极点态。

此外，TD 对无极点态形成的贡献可以 e

通过使用该表达式估算

$$\sigma_{\mathrm{sca}}^{p} \approx \frac{k_0^4}{6\pi\varepsilon_0^2|\mathbf{E}|^2}\left\{|\mathbf{p}_1^0|^2+|\mathbf{p}_2^0|^2+2\Re(\mathbf{p}_1^0\cdot\mathbf{p}_2^{0*})+\right.$$
$$\left.+\frac{k_d^4}{\omega^2}|\mathbf{T}|^2-2\frac{k_d^2}{\omega}\Im(\mathbf{T}\cdot\mathbf{p}_1^{0*})-2\frac{k_d^2}{\omega}\Im(\mathbf{T}\cdot\mathbf{p}_2^{0*})\right\} \tag{11}$$

这是公式（10）的长波近似。在表达式（11）中，如果包含$\mathbf{T}$ 的项远小于 $|\mathbf{p}_1^0|^2$ 和 $|\mathbf{p}_2^0|^2$, 那么 TD 在无极点态的形成过程中就不会发挥主要作用。相反，无极点态可以通过准静态电偶极矩$\mathbf{p}_1^0$ 和$\mathbf{p}_2^0$的干涉形成。

图2c展示了波长为735纳米时，精确偶极矩和长波近似偶极矩对半径 R_1 的依赖关系，此时$\mathbf{p}$ 最小。与$\mathbf{p}$不同，$\mathbf{p}_1$ 和$\mathbf{p}_2$ 的大小取决于分割半径 R_1 ，且其大小基本相同（$|\mathbf{p}_1| \approx |\mathbf{p}_2|$），最大值出现在 $\mathrm{R}_1 = 60$纳米附近。我们注意到$\mathbf{p}_1^0$ 和$\mathbf{p}_2^0$ 也呈现类似的变化趋势，但二者大小略有差异，这可归因于环形偶极矩对精确电偶极矩的贡献较弱；该贡献也导致散射截面中凹陷位置红移，见图2b。值得一提的是，计算得到的相位差 $\angle\mathbf{p}_1 - \angle\mathbf{p}_2 \approx 180°$, 解释了图2c所示的相消干涉。

由于电偶极矩由感应电流决定，而感应电流与结构中的总电场成正比，因此图2c中$\mathbf{p}_1$ 和$\mathbf{p}_2$, 的最大值表明，在总电偶极矩$\mathbf{p}$达到最小值时，电场会在结构的 V_1 和 V_2 中聚集。这一分析与我们对无极点态的解释一致：它是分别与 V_1 和 V_2相关的电偶极矩$\mathbf{p}_1$ 和$\mathbf{p}_2$,发生相消干涉的结果。图2d展示了当纳米结构体积以半径为 R_1=60纳米的方式划分时，$|\mathbf{p}|$、$|\mathbf{p}_1|$和 $|\mathbf{p}_2|$的振幅随波长的变化。 $|\mathbf{p}|$ 在 $\lambda = 735$ 纳米处的最小值对应于散射截面的最小值（见图2a），且如图2c所示，该值不依赖于 R_1, 。此外，在最小值处， $|\mathbf{p}| < |\mathbf{p}_1|$

以及 $|\mathbf{p}| < |\mathbf{p}_2|$。这类不等式只能对应于$\mathbf{p}_1$ 和$\mathbf{p}_2$ 对总$\mathbf{p}$的相消（反相）贡献。此外，图2f-h展示了纳米结构在三个波长下的场分布，此时纳米结构的散射截面分别呈现两个峰值（580纳米和985纳米）和一个谷值（735纳米）。在图2f中，场线在 V_1 和 V_2中实际上均指向同一下方方向；鉴于纳米结构的尺寸小于波长，这意味着发生了远场相长干涉，与图2d中约580纳米波长处的结果一致。另一方面，在735纳米（图2g）和985纳米（图2h）处， V_1和 V_2中的场线方向相反，这意味着发生了远场相消干涉，与图2d中相应波长附近$\mathbf{p_1}$ 和$\mathbf{p_2}$ 的叠加情况一致。

因此，次级多极分析和场分布证实了我们的结论：纳米结构中两个电偶极子相消干涉形成了无极点态，其中一个位于中心，另一个靠近其外周边。需要注意的是，在这种情况下，环形偶极矩对实现无极点态的作用并不显著，因为电偶极矩 $\mathbf{p}_1$ 和 $\mathbf{p}_2$ 主要由长波近似电偶极^0 矩 $\mathbf{p}_1^0$ 和 $\mathbf{p}_2^0$, 决定，这一点可从图 2c 所示曲线的比较中看出。事实上，$\mathbf{p}_1$ 和 $\mathbf{p}_1^0$ 的值几乎相等，而 $\mathbf{p}_2$ 和 $\mathbf{p}_2^0$ 的值仅略有不同，这是因为环形偶极矩对精确电偶极矩 $\mathbf{p}_2$ 的贡献较弱。因此，无极点态可归因于长波近似电偶极矩 $\mathbf{p}_1^0$ 和 $\mathbf{p}_2^0$ 产生的场之间的相消（反相）干涉；它们的最大值出现在 $\mathrm{R}_1 = 60$纳米附近。

4 超表面构建单元

为了证明我们的等离激元纳米结构可作为无辐射模超构原子，我们需要测试其抵御与相邻纳米结构发生电磁耦合的稳健性。因此，我们将其用作超表面的构建单元，即纳米结构的二维周期排列，并

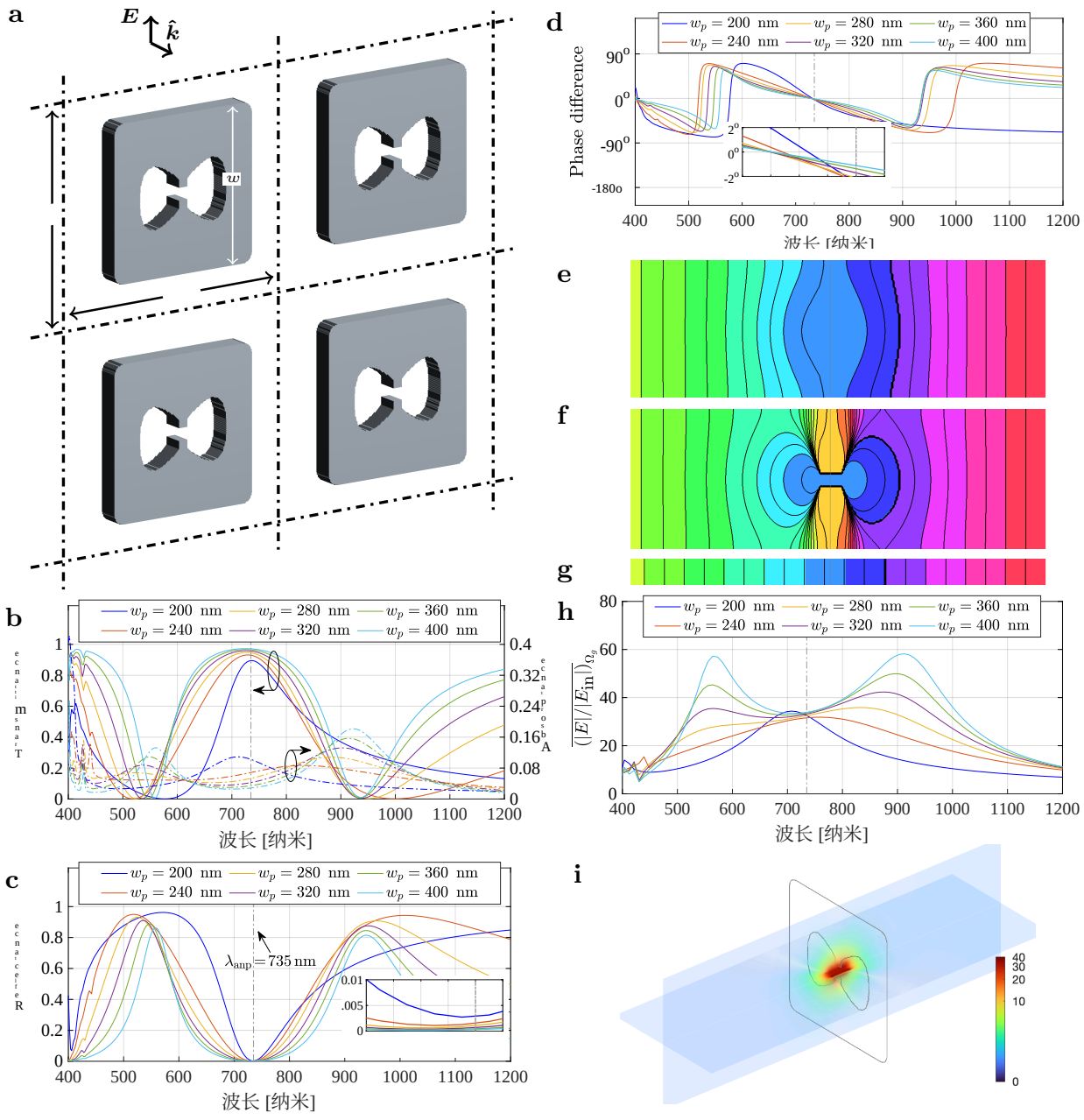


图3：无辐射模超构原子作为超表面的构建单元。(a) 周期为 w_p 的超表面。(b) 超表面的透射率（实线）和吸收率（点划线）。(c) 超表面的反射率。(d) 在远离纳米结构的位置，透射波与入射平面波之间的相位差。相位差在 λ_{anp}处为零。(e) 和 (f) 分别为周期为 $w_p = 200$纳米且$\lambda_{\mathrm{anp}} = 731.5$纳米的单元胞在垂直对称面和水平对称面上的电场相位分布（见可视化1）。(g) 自由空间中入射平面波的相位分布，用作参考。(h) 间隙区域的平均场增强。(i) $w_p = 200$纳米单元胞的电场振幅（切片视图）（见可视化2）。

研究其性能随晶格周期性的尺寸变化情况，见图 3a。超表面采用周期大小为 w_p 的方形晶胞进行仿真（下文称为周期），并将其设定在 200 nm 至 400 nm 之间变化。仿真中，分别在平面内和面外方向施加周期性边界条件和完美匹配层。注意， $w_p = 200\text{nm}$ 对应于超表面相邻纳米结构之间的间距为零（回想一下，纳米结构的宽度为 $w = 200\text{nm}$）。图 3b 和图 3c 分别展示了超表面的透射率和反射率随 w_p 的变化。在 735 nm 波长附近，无论周期大小如何，所有超表面都表现出基本稳定的性能，即反射率极低、透射率极高。当 w_p 较大时，超表面的透射率接近 97% ；即使在极端情况下，相邻纳米结构之间的间距为零，相应超表面在 735 nm 附近仍能保持约 89% 的透射率和可忽略不计的反射率。

在 550 纳米和 950 纳米附近的波长处，所有超表面的透射率均出现极小值，并与反射率曲线的极大值相对应。由于超原子的共振散射仅由其电偶极矩决定，因此根据多极透射抑制理论，超表面在这些共振处呈现全反射效应。[37] 随着周期减小，超表面的光谱峰/谷在 550 纳米附近的波长处蓝移，在 950 纳米附近的波长处适度红移，而在 735 纳米附近基本保持稳定。550 纳米和 950 纳米附近的峰值发生蓝移和红移，取决于晶格周期 w_p，可归因于相邻共振纳米结构之间的近场相互作用。[38]当相邻纳米结构相互接触时（即当 $w_p = 200$），我们观察到 550 纳米和 950 纳米附近波长处的光谱峰/谷出现明显的突变，但 735 纳米附近的峰/谷则没有。图 3b 显示，随着 w_p 减小，单元胞的吸收率增大；在极端情况下，$w_p = 200$ 纳米时达到最大值 $\sim 11\%$，而当 $w_p = 400$ 纳米时为 $\sim 3\%$。相反，在 550 纳米和 950 纳米附近，

随着 w_p 增大，单元胞吸收率也增大，这与图 3h 所示的场增强增大相对应。也就是说，共振电偶极子的吸收率与无极点态的吸收率在对周期参数 w_p的依赖关系上呈现相反的变化趋势。

图3d显示了在距离纳米结构足够远处，透射波与入射平面波之间的相位差。图中显示，在波长约为735纳米处，无论周期大小如何，所有超表面基本上都产生零相位延迟。同一图中的插图显示，零交叉相位处的波长（下文称为 λ_{anp}）略微取决于 w_p。当 w_p取较大值时， λ_{anp}趋近于 $\simeq$ 729纳米。也就是说，与自由空间中单个纳米结构的无极点波长735纳米相比，蓝移了6纳米。随着 w_p 减小，λ_{anp}的值表现出红移，在 $w_p = 200$ 纳米处达到 $\lambda_{\mathrm{anp}} \simeq 731.5$纳米的最大值，也就是相邻纳米结构彼此接触时。此外，我们注意到，随着 w_p减小，曲线变得更加陡峭，在729纳米至731.5纳米之间的最大相位变化为 2°，表明 λ_{anp} 对周期参数的依赖性非常小。图3e和图3f显示了单元胞的电场在垂直和水平对称面上的相位分布，其中 $w_p = 200$ 纳米， $\lambda_{\mathrm{anp}} = 731.5$纳米。在超表面右侧（监测透射波处），我们观察到平坦波前，如图3e和图3f中的竖线所示。该波前与在自由空间中传播的平面波的波前一致（见图3g）。在超表面左侧，我们观察到轻微的错位，这归因于有限反射率（见图3c插图），其导致了与入射波的干涉。我们注意到，间隙位置处的相位与未受扰动的平面波相位相匹配，从而为纳米尺度上的相位控制创造了机会。这些结果证明了利用我们的纳米结构构建的超表面在无极点波长λ_{anp}附近具有透明特性。

图3h展示了单元胞间隙区域在不同 w_p值下的平均场增强。在550 纳米和950 纳米附近，场增强

高度依赖于 w_p，这可能归因于相邻超原子之间的近场相互作用。随着 w_p 减小，相互作用增强会削弱各个纳米结构的场增强。除了 λ_{anp}附近，间隙中的场增强取决于 w_p ；在该波长附近，超表面单元表现出的增强能力与自由空间中的单个元件基本相同（见图1d）。图3i展示了一个切片视图，说明周期为 $w_p = 200$纳米的单元胞在环形偶极子波长 $\lambda_{\mathrm{anp}} = 731.5$ 纳米处的间隙电场增强。

总之，单个纳米结构所具有的无极点态，在用于构建超表面时仍能保持。我们仅观察到极小的 λ_{anp} 位移，即使在极端情况下也不超过 6 纳米。在无极点态下，所有超表面都表现出高透射率、可忽略的反射率和显著的场增强。在无极点态下，透射波的相位与入射波相同，因此，对于吸收极弱的配置，可以实现超表面的透明性。为了强调其作为超原子的行为，我们还提供了更多证据，证明其对不同周围环境条件具有稳健性。在附录7.1中，我们证明，即使存在基底或不同于空气的均匀背景，无极点态仍能保持，只是无极点波长发生光谱位移。此外，我们证明无极点态具有偏振依赖性（见附录7.2），并观察到一种光学开关机制：垂直（z轴）偏振时透射率高，水平（y轴）偏振时透射率低。

5 超材料中的应用

通过超表面中优化的无极点超构原子实现的透明性引发了这样一个问题：在超材料构型中，透明性是否以及在多大程度上能够得以保持。在本节中，我们研究使用无极点超构原子构建的超材料的特性。首先，我们考察由两层组成的薄型超材料

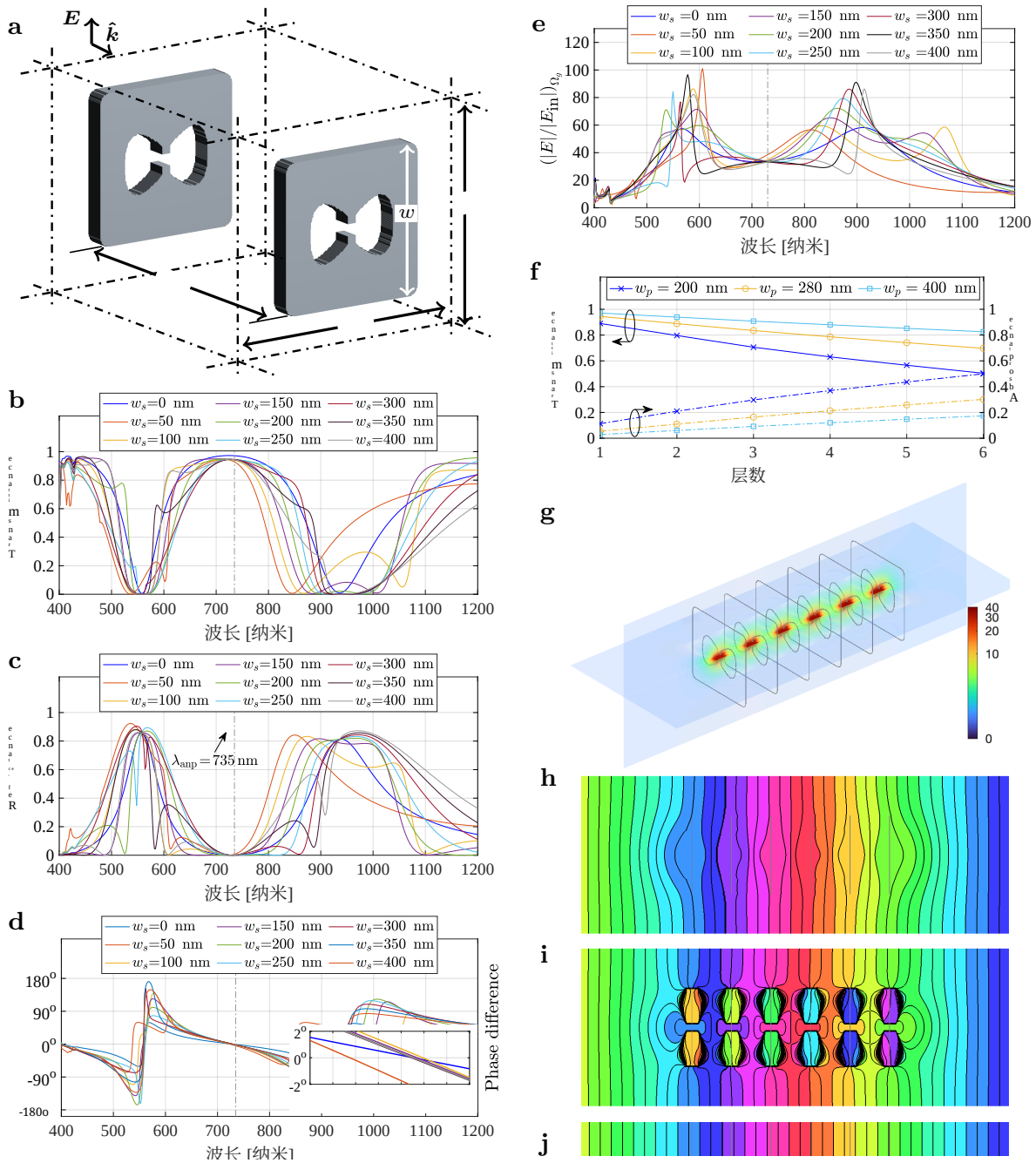


图 4：基于无托极的超材料。（a）超材料双层单元胞的几何参数。（b）单元胞透射率随 w_s （ w_p = 400 ）的变化。（c）反射率。（d）透射波与入射平面波在远离纳米结构足够远处某点的相位差。无极点波长处的相位差为零。（e）第一层间隙区域的平均场增强。（f）在三个节距值 w_p 和固定 w_s = 100 纳米条件下，透射率和吸收率随层数的变化。（g）切片视图显示了在 λ_{anp} = 730 纳米处，具有 w_p = 400 纳米和 w_s = 100 纳米参数的六层超材料单元胞上的电场振幅（见可视化 3）。（h）和（i）分别为（g）中六层单元胞在垂直对称面和水平对称面上的电场相位分布（见可视化 4）。（j）730 纳米入射平面波的相位分布，用作参考。19

超表面，见图4a。其次，我们将研究扩展到包含多层超表面的厚超材料。首先，我们将周期固定为 $w_p = 400$纳米，然后给出其他 w_p值的结果。

图4b–e展示了双层超材料的透射率、反射率、相位延迟和场增强随层间间隔距离 w_s 变化的情况。 $w_s = 0$纳米对应于单层超表面（其 $w_p = 400$ 纳米）的性能，并用作参考。与单层超表面相比，我们发现，间隔距离大于150纳米时，超材料在无极点态附近的性能仍能保持；见图4d插图，其中 λ_{anp} 收敛至单层超表面的729纳米（见图3d插图）。此外，如图4b所示，在环形偶极子波长处，透射率振幅相比单层超表面仅降低了3%。图4c显示，与单层超表面类似，在环形偶极子波长附近，反射率振幅可忽略不计。图4d展示了双层超材料在不同 w_s值下的相位延迟。当间隔距离 w_s 大于150纳米时，双层超材料的 $\lambda_{\mathrm{anp}} = 729$纳米值与单层超表面基本相同（即 $w_s = 0$ 纳米）。图4e展示了双层超材料的场增强（位于第一层的间隙处），凸显了其在环形偶极子波长附近未受扰动的性能。

我们将研究扩展至厚超材料。这里，我们选择 $w_s = 100$纳米，并沿传播方向叠加超表面以形成超材料。图4f总结了周期参数 w_p 取三个不同值时，厚度不同的超材料的特性。为便于比较，我们纳入了每种情况下的单层超表面（即层数为一）。当 w_p 分别等于 200 纳米、280 纳米和 400 纳米时，每层平均衰减分别为 7.7%、5.0% 和 2.9%。透射率衰减率最高的情况对应于 $w_p = 200$纳米，此时晶格中相邻纳米结构对该纳米结构的无极点态造成的扰动最大。图4f还给出了 w_p 取三个不同值时的吸收率曲线。

所有情况下的最大反射率（此处未展示）均低于 0.6%，这意味着透射率衰减主要由纳米结构中的吸收造成。我们注意到，随着节距增大，吸收率会降低。

图4g展示了周期为 $w_p = 400$纳米、层间距为 $w_s = 100$ 纳米的六层超材料单元胞电场分布的切片视图。图4h和图4i展示了该六层单元胞在 $\lambda_{\text{anp}} = 730$纳米处的电场相位，图4j则描绘了相应的自由空间传播平面波的相位分布。结果表明，该纳米结构可用于构建厚超材料，并具有透明性；通过选择合适的周期 w_p 和层间距 w_s 参数，每层的衰减可低至3%。我们认为，沿传播方向，每个纳米结构间隙中产生的热点可使众多应用受益。此外，间隙位置处的相位与参考平面波的相位相匹配，因此，若在间隙中放置分子或非线性材料，便有望实现相干发射。

6 结论

我们通过理论和数值方法证明，借助薄型平面等离激元纳米结构，可以在可见光波段实现近乎理想的无极点态。该纳米结构具有极低的消光截面，从而实现透明性，并在保持低损耗的同时增强结构间隙体积中的场强。该设计通过拓扑优化获得，优化目标为宽带场增强。通过多极分析，我们进一步认识了无极点态的形成机制：其主要源于与结构不同部分相关的两个准静态电偶极矩之间的相消干涉。即使将该纳米结构用于高度紧密排列的超表面或超材料中，包括将其置于基底上的情况，无极点态仍能保持。这些特性相结合，使我们的纳米结构能够充当一种

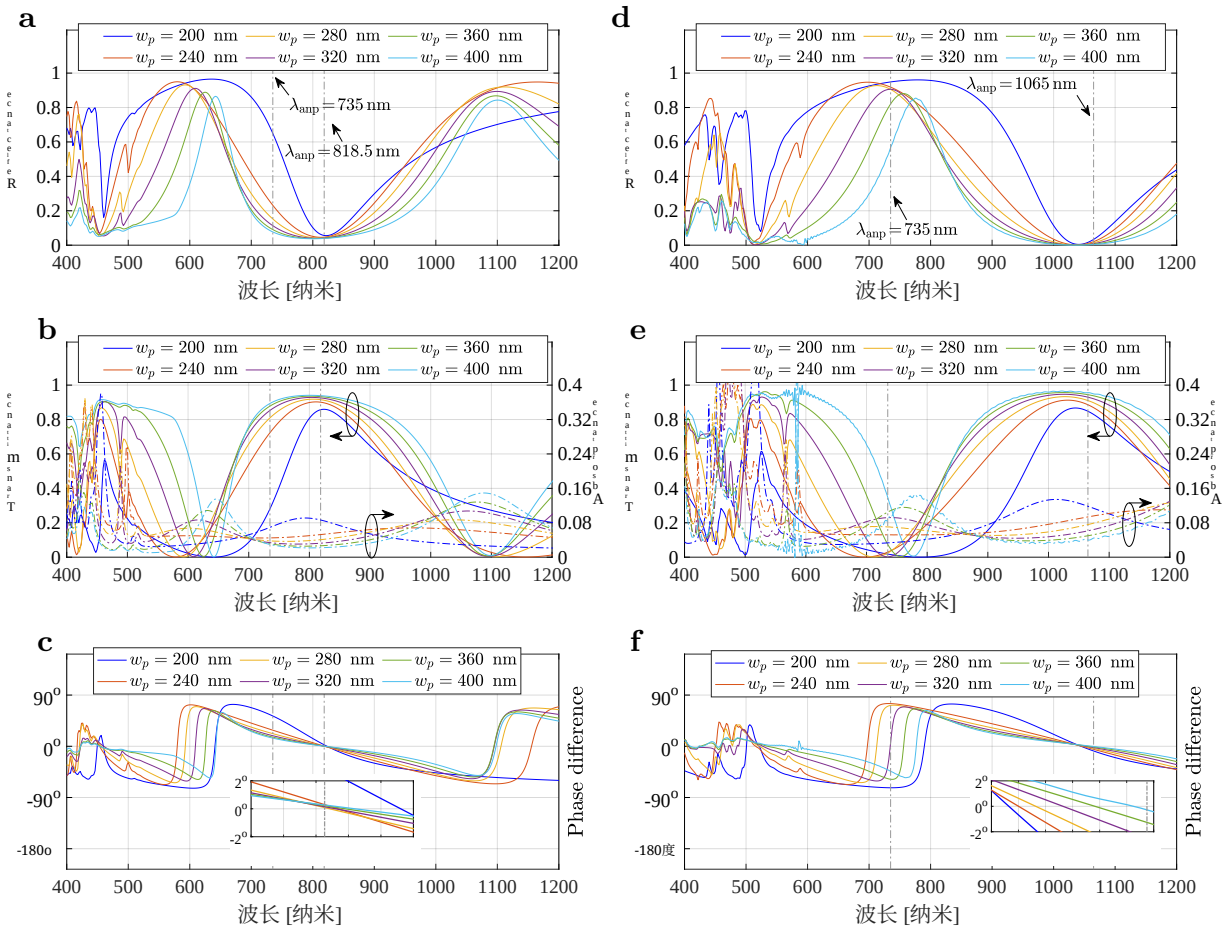


图5：单层超表面的性能：（1）放置在折射率为 1.45 的玻璃基底上时的性能。(a) 反射率；(b) 透射率；(c) 透射波与自由空间中平面波之间的相位差。无极点波长红移至 ∼ 818.5纳米。（2）(d)–(f) 为超表面浸没在背景玻璃介质中时的相应性能。无极点波长红移至 ∼ 1065纳米。无极点态得以维持，但波长会随周围介质的折射率而调谐。

相关超原子。纳米结构外部的场约束使其能够应用于传感和激光腔，而等离激元热点的高密度分布，以及间隙中的相位与参考平面波相位相匹配，有利于非线性光增强与调控。此外，该设计的平面性使其制造过程比此前报道的等离激元无极点更为简单。我们的研究还基于对无极点态低损耗的预测；鉴于我们设计的大多数特征都无法通过具有相似尺寸的介电结构实现，这项研究有望为等离激元学开辟新的机遇。最后，我们指出，逆向设计技术在纳米尺度光与物质相互作用中解锁新物理现象和新功能方面具有巨大潜力。

7 附录

7.1 周围介质的影响

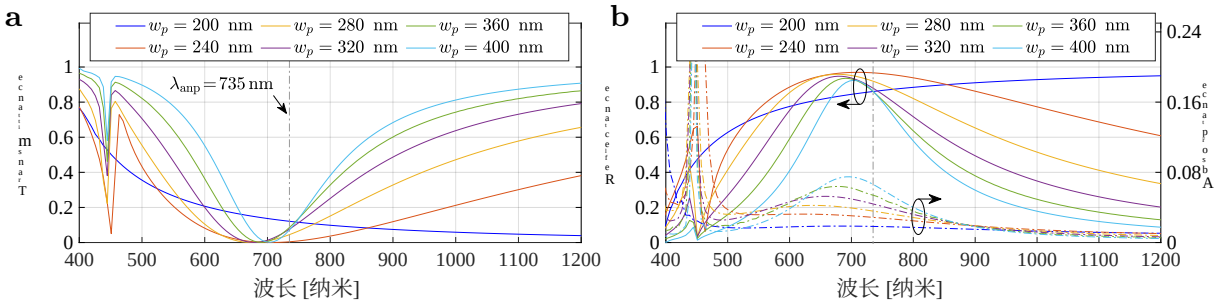


图6：单层超表面在偏振方向与入射平面波正交（图1中的 y-方向）且周期参数 w_p 取不同值时的性能。(a) 透射率。(b) 反射率（实线）和吸收率（点划线）。 $wp = 240$纳米的情况表现出超过96%的反射率和低于0.5%的透射率，表明这些超表面可用作高性能偏振器。

本节研究周围介质对无极点态的影响。图5a-c展示了单层超表面置于折射率为1.45的玻璃基底上时的性能。与自由空间相比，我们观察到两处变化。首先，当{v1}取较大值时，无极点波长红移至约818 纳米。

其次，反射率/透射率曲线的振幅分别略微增加/降低了3.4%，其变化幅度与平面波法向入射至空气-玻璃界面时几乎相同。也就是说，超表面置于玻璃基底上时，无极点态仍得以维持，只是无极点波长发生红移。图5d-f展示了超表面被背景玻璃介质包围时的性能。无极点波长从 ~ 735纳米红移至约 $735 \times 1.45 = 1065$纳米。也就是说，无极点波长与周围介质的折射率成正比。在这种情况下，我们观察到零交叉波长 λ_{anp} 对超表面周期参数 w_p具有明显的敏感性，见图5f中的插图。

7.2 偏振的影响

本文研究了超表面在正交偏振激发下的性能（即入射波的偏振相对于图3a中的示意图旋转 90° ）。图6a展示了超表面在正交偏振激发下的透射率和反射率。在波长为735纳米处，超表面表现出低透射率和高反射率。随着 w_p 减小，透射率的低谷呈现轻微蓝移；当相邻纳米结构相互接触时（即当 $w_p = 200$纳米时），会发生突变。对于所选的w_p范围，在波长735纳米处，如图6a和图6b所示，透射率低于8.5%，反射率高于86%。当 $w_p = 240$纳米时，超表面表现出宽带性能，其中透射率低于0.5%，反射率高于96.5%。透射率与反射率之间的差值为超表面吸收的损耗，如图6b所示。在正交照射下，超表面表现出高效的光学开关机制，例如可用于构建光偏振器。

致谢

计算工作在以下资源上完成：瑞典国家计算基础设施（SNIC）在HPC2N中心提供的资源；由莱布尼茨大学信息技术服务（LUIS）运营的中央计算集群；以及作为NHR基础设施一部分的北德超级计算联盟（HLRN）。A.C.L.感谢德国联邦教育与研究部（BMBF）在终身教职轨道计划下提供的资助。A.B.E.和A.C.L.感谢德国研究联合会（DFG，德国研究基金会）依据德国卓越战略、在PhoenixD卓越集群（EXC 2122，项目编号390833453）框架内提供的支持。本文的发表由汉诺威莱布尼茨大学开放获取基金资助。

经费

德国研究联合会（DFG，德国研究基金会）根据德国卓越战略，在PhoenixD卓越集群（EXC 2122，项目编号390833453）框架下提供资助。

参考

(1) Savinov, V.；Papasimakis, N.；D. P. Tsai；Zheludev, N. I. 光学无极点。《Commun. Phys.》2019年，2，69。

(2) Zanganeh, E.；Evlyukhin, A.；Miroshnichenko, A.；Song, M.；Nenasheva, E.；Kapitanova, P. 环形偶极子超原子：非辐射电磁源。《物理评论快报》2021年，127，096804。

(3) T. Kaelberer；V. A. Fedotov；N. Papasimakis；D. P. Tsai；Zheludev, N. I. 超材料中的环形偶极响应。《科学》**2010**，*330*，1510–1512。

(4) V. A. Fedotov；Rogacheva, A. V.；Savinov, V.；D. P. Tsai；Zheludev, N. I. 环形超材料中的共振透明与非平凡非辐射激发。《科学报告》**2013**，*3*，2967。

(5) A. Miroshnichenko; Evlyukhin, A. B.; Yu, Y. F.; Bakker, R. M.; Chipouline, A.; Kuznetsov, A. I.; Luk'yanchuk, B.; Chichkov, B. N.; Kivshar, Y. S. 介电纳米粒子中的非辐射无极点模式。《自然·通讯》 **2015年**，*6*，1–8。

(6) Yang, Y.; Bozhevolnyi, S. I. 纳米光子学中的非辐射无极点态：从基础到应用。纳米技术 **2019年**，*30*，204001。

(7) Baryshnikova, K. V.; Smirnova, D. A.; Luk'yanchuk, B. S.; Kivshar, Y. S. 光学无极点：概念与应用。先进光学材料 **2019年**，*7*，1801350。

(8) Saadabad, R. M.; Huang, L.; Evlyukhin, A. B.; Miroshnichenko, A. E. 多面向的无极点：从物理学到应用。《光学材料快报》**2022年**, *12*, 1817–1837.

(9) Fernandez-Corbaton, I.; Nanz, S.; Alaee, R.; Rockstuhl, C. 局域电流分布的精确偶极矩。《光学快报》**2015**, *23*, 33044.

(10) Gurvitz, E. A.; Ladutenko, K. S.; Dergachev, P. A.; Evlyukhin, A. B.; Miroshnichenko, A. E.; Shalin, A. S. 全介质光子学中的高阶环形矩与无极点态。《激光与光子学评论》**2019年**, *13*, 1800266.

(11) Canós Valero, A.; Gurvitz, E. A.; Benimetskiy, F. A.; Pidgayko, D. A.; Samusev, A.; Evlyukhin, A. B.; Bobrovs, V.; Redka, D.; Tribelsky, M. I.; Rahmani, M.; Kamali, K. Z.; Pavlov, A. A.; Miroshnichenko, A. E.; Shalin, A. S. 光散射中混合无散射态的理论、观测与超快响应。激光与光子学评论**2021**，*15*，2100114。

(12) Terekhov, P. D.; Babicheva, V. E.; Baryshnikova, K. V.; Shalin, A. S.; Karabchevsky, A.; Evlyukhin, A. B. 由非球形纳米颗粒构成的介电超表面的多极分析及晶格隐身效应。

《物理评论*B*》**2019年**，*99*，045424。

(13) Shamkhi, H. K.; Sayanskiy, A.; Valero, A. C.; Kupriianov, A. S.; Kapitanova, P.; Kivshar, Y. S.; Shalin, A. S.; Tuz, V. R. 横向 Kerker 效应调控的全介质共振超表面的透明性与完美吸收。《物理评论：材料》**2019年**, *3*,085201.

(14) Kuznetsov, A. V.; Canós Valero, A.; Tarkhov, M.; Bobrovs, V.; Redka, D.; Shalin, A. S. 电磁耦合可忽略的透明混合无极点超表面：相位工程。纳米光子学**2021**, *10*, 4385–4398.

(15) Tian, J.; Luo, H.; Yang, Y.; Ding, F.; Qu, Y.; Zhao, D.; Qiu, M.; Bozhevolnyi, S. I. 通过构造相变合金 Ge2Sb2Te5 主动调控无极点态。《自然·通讯》**2019年**, *10*, 396.

(16) Naik, G. V.; Shalaev, V. M.; Boltasseva, A. 替代等离激元材料：超越金和银。《先进材料》**2013年**，*25*，3264–3294。

(17) Huang, Y.-W.; Chen, W. T.; Wu, P. C.; Fedotov, V.; Savinov, V.; Ho, Y. Z.; Chau, Y.- F.; Zheludev, N. I.; D. P. Tsai. 光学频率下等离激元环面超材料的设计。《光学快报》**2012年**，*20*，1760。

(18) Yezekyan, T.; Zenin, V. A.; Beermann, J.; Bozhevolnyi, S. I. 间隙表面等离激元谐振器中的无极点态。《纳米快报》**2022年**，*22*，6098–6104。

(19) Pan, G.-M.; Shu, F.-Z.; Wang, L.; Shi, L.; Evlyukhin, A. B. 有源超分子的等离激元无极点态。《光子学研究》**2021**, *9*, 822.

(20) Li, X.; Yin, J.; Liu, J.; Shu, F.; Lang, T.; Jing, X.; Hong, Z. 太赫兹频率下平面无极点超材料的共振透明。《光子学研究》 **2021年**, *9*, 125.

(21) Wu, P. C.; Liao, C. Y.; Savinov, V.; Chung, T. L.; Chen, W. T.; Huang, Y.-W.; Wu, P. R.; Chen, Y.-H.; Liu, A.-Q.; Zheludev,N. I., 等. 光学无极点超材料。*ACS Nano* **2018年**, *12*, 1920–1927.

(22) Bendsøe, M. P.; Sigmund, O.《拓扑优化》; Springer Berlin Heidelberg，2004年。
(23) Wadbro, E.; Berggren, M. 声学号角的拓扑优化。《计算方法与应用力学和工程》2006年，196，420–436。

(24) Hassan, E.; Wadbro, E.; Berggren, M. 金属天线的拓扑优化。《IEEE天线与传播汇刊》2014年，62，2488–2500。

(25) Aage, N.; Andreassen, E.; Lazarov, B. S.; Sigmund, O. 面向结构设计的十亿体素计算形态发生。《自然》2017年，550，84。

(26) Molesky, S.; Lin, Z.; Piggott, A. Y.; Jin, W.; Vucković, J.; Rodriguez, A. W. 纳米光子学中的逆向设计。《自然·光子学》2018年，12，659–670。

(27) Christiansen, R. E.; Vester-Petersen, J.; Madsen, S. P.; Sigmund, O. 一种用于通过拓扑优化设计金属纳米颗粒的非线性材料插值方法。计算方法与应用力学和工程**2019年**, *343*，23–39。

(28) Hassan, E.; Scheiner, B.; Michler, F.; Berggren, M.; Wadbro, E.; Röhrl, F.; Zorn, S.; Weigel, R.; Lurz, F. 宽带基片集成波导至波导过渡结构的多层拓扑优化。*IEEE*微波理论与技术汇刊**2020年**，*68*，1326–1339。

(29) Hammond, A. M.; Oskooi, A.; Chen, M.; Lin, Z.; Johnson, S. G.; Ralph, S. E. 面向大规模光子学逆向设计的高性能混合时域/频域拓扑优化。《光学快报》**2022年**，*30*, 4467–4491。

(30) Hassan, E.; Calà Lesina, A. 时域色散等离激元纳米结构的拓扑优化。《光学快报》2022年，30，19557–19572。

(31) Calà Lesina, A.; Berini, P.; Ramunno, L. 利用手性蝴蝶纳米天线对非线性发射进行矢量控制：生成纯高阶非线性涡旋光束。《光学快报》2017年，25，2569。

(32) Ansys，Lumerical 版本 2020-2.4。https://www.ansys.com/products/photonics/fdtd，最后访问时间：2023年1月。

(33) Yue, W.; Wang, Z.; Yang, Y.; Li, J.; Wu, Y.; Chen, L.; Ooi, B.; Wang, X.; Zhang, X.-x. 通过桥接纳米孔对阵列增强超常光学透射（EOT）及其传感应用。纳米尺度 **2014年**, *6*, 7917–7923。

(34) Evlyukhin, A. B.; Fischer, T.; Reinhardt, C.; Chichkov, B. N. 光学定理与任意形状纳米颗粒对光的多极散射。《物理评论*B*》 **2016**,*94*, 205434。

(35) Alaee, R.; Rockstuhl, C.; Fernandez-Corbaton, I. 超越长波近似的电磁多极展开。《光学通讯》 **2018**, *407*, 17–21。

(36) A. B. Evlyukhin；Chichkov, B. N. 用于定向光散射的多极分解。《物理评论*B*》**2019年**，*100*，125415。

(37) Babicheva, V. E.；Evlyukhin, A. B. 高折射率超表面中的多极晶格效应。《应用物理杂志》**2021年**，*129*，040902。

(38) Rechberger, W.；Hohenau, A.；Leitner, A.；Krenn, J. R.；Lamprecht, B.；Aussenegg, F. R. 两个相互作用的金纳米颗粒的光学性质。《光学通讯》**2003**，*220*，137–141。