arXiv:2304.01820v1 [physics.optics] 4 Apr 2023

通过调控非均匀环境中的表面晶格共振实现动态介电超表面

Izzatjon Allayarov[†1,2,3], *Andrey B. Evlyukhin*[†3,4*], *Diane J. Roth*[†5], *Boris Chichkov*[3,4], *Anatoly V.Zayats*[5*] 和 *AntonioCal`a Lesina*[1,2,3*]

[1] *Hannover Centre for Optical Technologies, Leibniz University Hannover, Nienburger Str. 17, D-30167 Hannover, Germany*

[2] *Institute of Transport and Automation Technology, Leibniz University Hannover, An der Universität 2, D-30823 Garbsen, Germany*

[3] *Cluster of Excellence PhoenixD, Leibniz University Hannover, Welfengarten 1A, D-30167 Hannover, Germany*

[4] *Institute of Quantum Optics, Leibniz University Hannover,Welfengarten 1, D-30167 Hannover, Germany and*

[5] *Department of Physics and London Centre for Nanotechnology,King's College London, Strand, WC2R 2LS London, UK*

超材料和超表面的动态调控对于许多光子技术至关重要，例如平面透镜、显示器、增强现实设备和波束控制等。动态响应通常通过利用电光效应、相变效应或非线性效应，对单个元原子的共振相位和/或振幅进行调控来实现。在此，我们提出并验证了一种新的实用策略，通过利用阵列中元原子之间的相互作用对周围介质非均匀性的依赖关系，实现对光与介电超表面之间共振相互作用的动态调控。所揭示的调谐机制基于表面晶格共振（SLR）这一概念，其发展在很大程度上取决于上覆介质与基底材料之间介电常数的差值。我们通过实验展示了介电（硅）超表面中的表面晶格共振，并揭示了在光流体环境中对应于表面晶格共振（SLR）偏移或阻尼的两种调谐机制。所展示的动态调谐效应及观察到的鲜明色彩变化，有望为传感器提供兼具高光谱选择性和增强灵敏度的动态超表面方案，同时也有望应用于像素尺寸较小的高分辨率显示器。

纳米光子超表面的最终目标是实现动态可调的光学响应，从而支持波束控制、自适应透镜、增强现实、光开关和显示器等应用[1]。超表面的可调谐性已通过多种方式得到验证，包括利用电压栅控实现载流子积累/耗尽、使用液晶、机械驱动、化学反应、相变材料、时变材料中的非线性效应、通过微流道注入液体[2–4], 以及液体浸没 [5, 6]。在所有这些情况下，主要受影响的是单个等离激元或介电元原子的光学共振，进而影响透射光或反射光的振幅、相位或方向。

为了实现单个粒子通常无法获得的光学响应，例如具有高品质因数的共振 [7]，人们研究了纳米颗粒周期性二维阵列中的集体效应，如表面晶格共振（SLR）。当周期性阵列的一级衍射阶次变为在阵列平面内传播的倏逝波，即所谓的瑞利异常（RA）时，就会产生表面晶格共振。表面晶格共振对环境折射率的灵敏度，以及由此导致的表面晶格共振光谱位置变化及其品质因数的变化，使这种集体效应在传感应用中极具吸引力 [8–12]。

表面晶格共振最初是在具有电偶极响应的金属纳米颗粒阵列中提出的[9, 13–15], ，随后扩展至支持高阶等离激元多极矩的金属颗粒 [16, 17]。此外，已有研究报道了基于表面晶格共振实现多重共振等离激元超表面的设计策略 [18, 19]。在等离激元超表面中，表面晶格共振的可调谐性通过制造后的热调控 [20] 以及采用电控液晶 [21] 得以实现。晶格共振的概念在理论上也已扩展至支持米氏共振的介电超表面 [22–24]。

在上述大多数关于表面晶格共振的研究中，为了简化仿真，采用了均匀环境近似。然而，基底的存在会显著改变超表面的光学性质。这对于表面晶格共振尤其如此：当超表面处于非均匀介质中时，表面晶格共振可能会被完全抑制 [25, 26]。尽管如此，基底的存在也可能带来优势：利用超基底/基底之间的介电对比度来调控 SLR 激发，从而实现光学响应的可调谐性和动态调控。

本文以玻璃基底上的硅超表面为例，描述并展示了这一动态调谐原理，并介绍了一种光流控平台，通过改变水位来控制上覆介质的折射率。

*通讯作者。电子邮箱：evlyukhin@iqo.uni-hannover.de、anatoly.zayats@kcl.ac.uk、antonio.calalesina@hot.uni-hannover.de

† 这些作者对本研究的贡献相同

尽管迄今尚无介电超表面中表面晶格共振的实验报道，但选择介电超表面的原因在于，与等离激元超表面相比，其材料损耗可忽略不计，而且这一方法未来还可能拓展至其他米氏型多极子。使用水使调谐机制具有可逆性，因为与油不同，水可以从超表面上完全移除。液体环境具有灵活性，可通过微流控控制 [2], 电润湿效应 [27] 或简单地借助热蒸发／冷凝进行调节，还可扩展至水以外的各种液体。此外，通过采用合适的微流控控制技术，可以调节超表面的切换速度。

数值、理论和实验研究表明，有两种机制可通过表面晶格共振（SLR）调控介电超表面的光学响应：一种机制会抑制共振透射/反射，另一种则会导致共振发生光谱位移。水环境变化时，这两种机制都会使超表面的着色产生显著变化。研究结果展示了在亚波长尺度调控光与物质相互作用的新实用可能性，可应用于超高分辨率显示器的动态色彩生成、高灵敏度折射率传感器和防伪保护。

结果

数值模拟

我们考虑一个无限延展的超表面，该超表面由直径为 D 、高度为 H 的硅纳米盘构成，置于半无限玻璃基底上，形成周期为P的方形晶格，并受到正入射的线偏振平面波照射（图1a）。超表面的模拟反射率高度依赖于周期以及基底上方的水位 h_{WL} （图1(b)）。当表面晶格共振出现时，在与玻璃基底相关的瑞利异常（RA glass）的长波一侧附近可观察到最强反射率。实际上，表面晶格共振只能存在于无衍射区；我们将基底瑞利异常右侧的光谱范围称为SLR区域。同时，在基底瑞利异常左侧的范围内，由于衍射散射进入上覆介质和/或基底 [25, 26]，不会出现表面晶格共振。

根据超表面的周期，可区分出共振响应发展的两种情形，如图1b中的两条水平虚线所示，分别绘于图1c、d中。对于较长的周期，例如 P=550 nm（图1c），超表面处于空气中（$h_{\mathrm{WL}}=0$）时不会出现共振。只有在超过一定阈值（约为 $h_{\mathrm{WL}}\geq H=100$ nm）后，尖锐共振才开始显现，此时圆盘已完全浸没。

被水包围。共振的品质因数和光谱位置表明存在SLR激发。对于较短的周期，例如 P=450 nm（图1d），当上覆介质为空气时，共振已经存在，而随着水位升高，共振会发生红移。在这两种情况下，当水位超过 $h_{\mathrm{WL}}\geq 400$ nm 时，进一步增加水位不会显著改变共振的形状和位置，因此可以将上覆介质视为均匀的水环境（$h_{\mathrm{WL}}=\infty$）。尽管有限的水位可能会引入法布里–珀罗共振 [18], ，但这些共振会出现在基底瑞利异常的左侧，并且只有当水位与波长相当时才会变得显著。这并非本文所研究的工作范围。在下一节中，我们将基于解析模型，解释这两种不同的动态响应状态如何由SLR激发产生，以及它们如何随上覆介质折射率的变化而演变。

解析模型

构成超表面的硅盘（图1a）在所考虑的光谱范围内主要呈现电偶极和磁偶极响应，无论照明条件和周围环境如何（补充信息中的图S1–S5）。因此，可使用耦合偶极子模型 [28–30]，解析研究图1b中通过数值计算观察到的超表面集体共振的产生。由于在均匀周围介质中，超表面的电偶极耦合强于磁偶极耦合（参见补充信息第2节），且玻璃基底的存在仅在电偶极子与磁偶极子之间引入极弱的耦合 [31], ，我们将只考虑硅盘电偶极子之间的耦合。

由于面内平移对称性且采用正入射照明（图1a），无限超表面中的每个粒子都具有相同的电偶极矩 $\mathbf{p}=(p_x,0,0)$，定义为 [22, 32]

$$p_x=\frac{\varepsilon_0\varepsilon_{\mathrm{d}}\tilde{E}_x}{1/\tilde{\alpha}^{\mathrm{p}}_{xx}-\tilde{S}}\,, \tag{1}$$

其中， ε_0、 ε_{d} 和 ε_{s} 分别为真空介电常数、上覆介质和基底的相对介电常数， $\tilde{\alpha}^{\mathrm{p}}_{xx}$ 为基底附近单个˜圆盘的电偶极极化率， E_x 为圆盘几何中心处的入射电场（不存在圆盘˜但存在基底时）， S 为存在基底时的偶极子晶格和，与超表面中偶极粒子之间的电磁相互作用（耦合）相关。

当式（1）的分母为零时，这个偶极系统发生共振。在存在与材料损耗和辐射损耗相关的阻尼时，该条件—

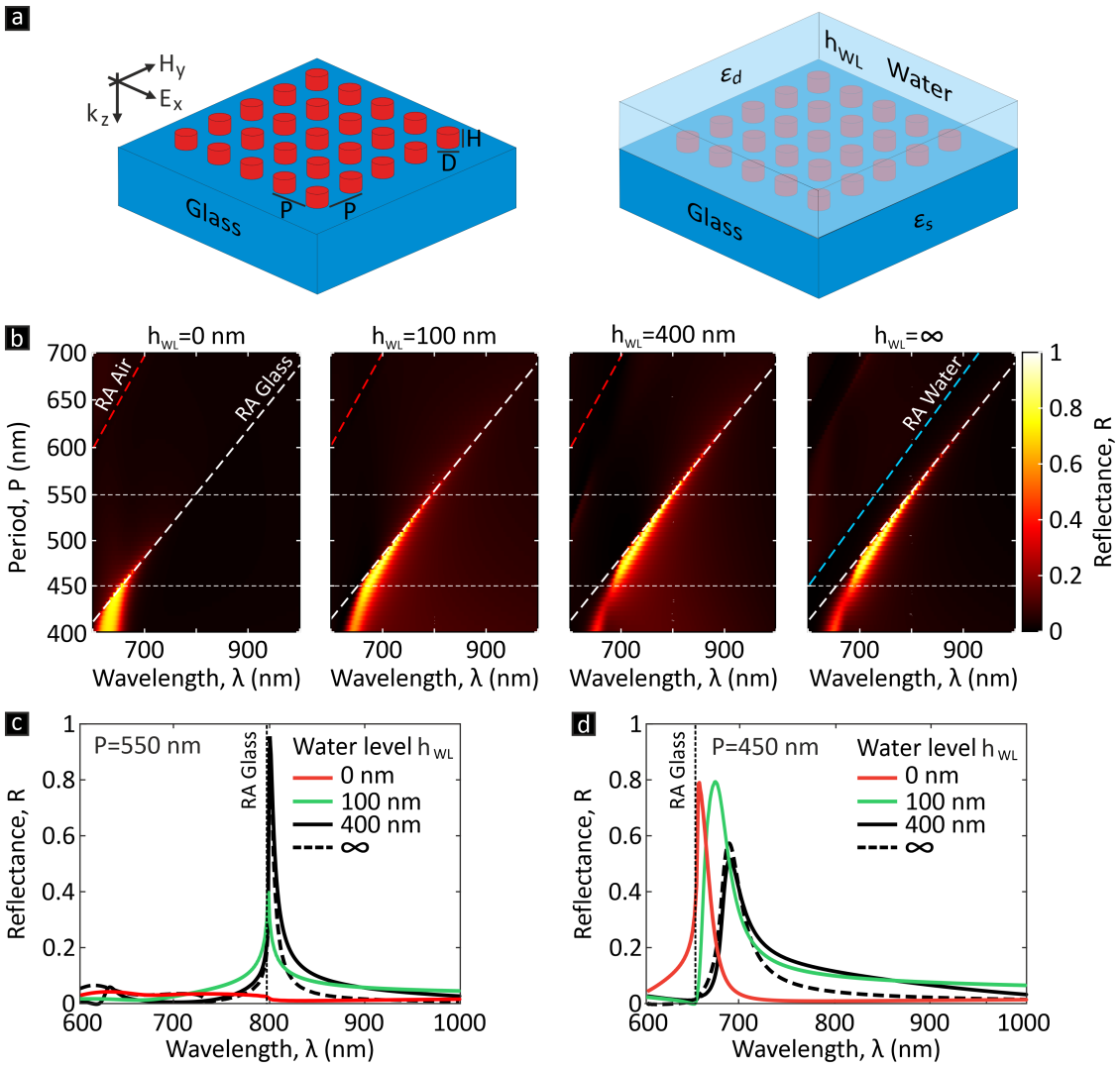


图1。**具有动态上覆介质的超表面光学响应**。(a) 超表面示意图：直径为 D、高度为 H 的硅纳米圆盘以周期 P 排列成方形阵列，位于玻璃基底上，沿 x 和 y 方向排列。通过控制超表面顶部的水位 h_{WL} 来调节系统的光学响应。超表面在正入射条件下受到照射，采用 x 线偏振光，并观测反射或透射。(b) 水位为 h_{WL} 时，周期 P 对直径为 D=200 nm、高度为 H=100 nm 的无限硅纳米圆盘阵列反射光谱的影响。红色（蓝色）和白色虚线分别表示空气（玻璃）基底上覆介质和水上覆介质的瑞利异常条件。(c,d) 超表面的反射光谱：(c) P=550 nm 和 (d) P=450 nm，分别为图1b的截面（图1b中的白色水平虚线），展示了在 h_{WL} 的极限值处实现切换的两种机制：(c) 中的共振抑制和 (d) 中的共振光谱位移。

表面晶格共振激发的条件是

$$\begin{cases} \mathrm{Re}(1/\tilde{\alpha}^{\mathrm{p}}_{xx}) = \mathrm{Re}(\tilde{S}), & \text{(2a)} \\ \min\{|\mathrm{Im}(1/\tilde{\alpha}^{\mathrm{p}}_{xx} - \tilde{S})|\}. & \text{(2b)} \end{cases}$$

这些条件包括通过极化率体现的单个粒子的性质，以及通过偶极子晶格和体现的阵列性质；后者不依赖于粒子性质 [12]。式（2）中的条件只能在 SLR区域（$\lambda > \lambda_{\mathrm{s}}^{\mathrm{RA}}$）内满足。基底与上覆介质之间适中的（空气/玻璃或水/玻璃）介电对比度 $\Delta\varepsilon = (\varepsilon_{\mathrm{s}} - \varepsilon_{\mathrm{d}})$ 不显著影响 $\tilde{\alpha}^{\mathrm{p}}_{xx}$的宽共振，仅导致其红偏移（图 S5）。因此，随着水位变化，超表面的光学响应中出现窄共振（图1b）与~ $\Delta\varepsilon$ 对晶格求和 S 的影响（即粒子间相互作用）有关。

对于均匀玻璃环境（$\Delta\varepsilon = 0$），晶格求和 S 在瑞利异常处存在发散奇点（图 2a、b），这是由于阵列中的纳米粒子之间存在辐射（远场）耦合所致（图 S6）。因此，满足式（2）中的共振条件，表面晶格共振

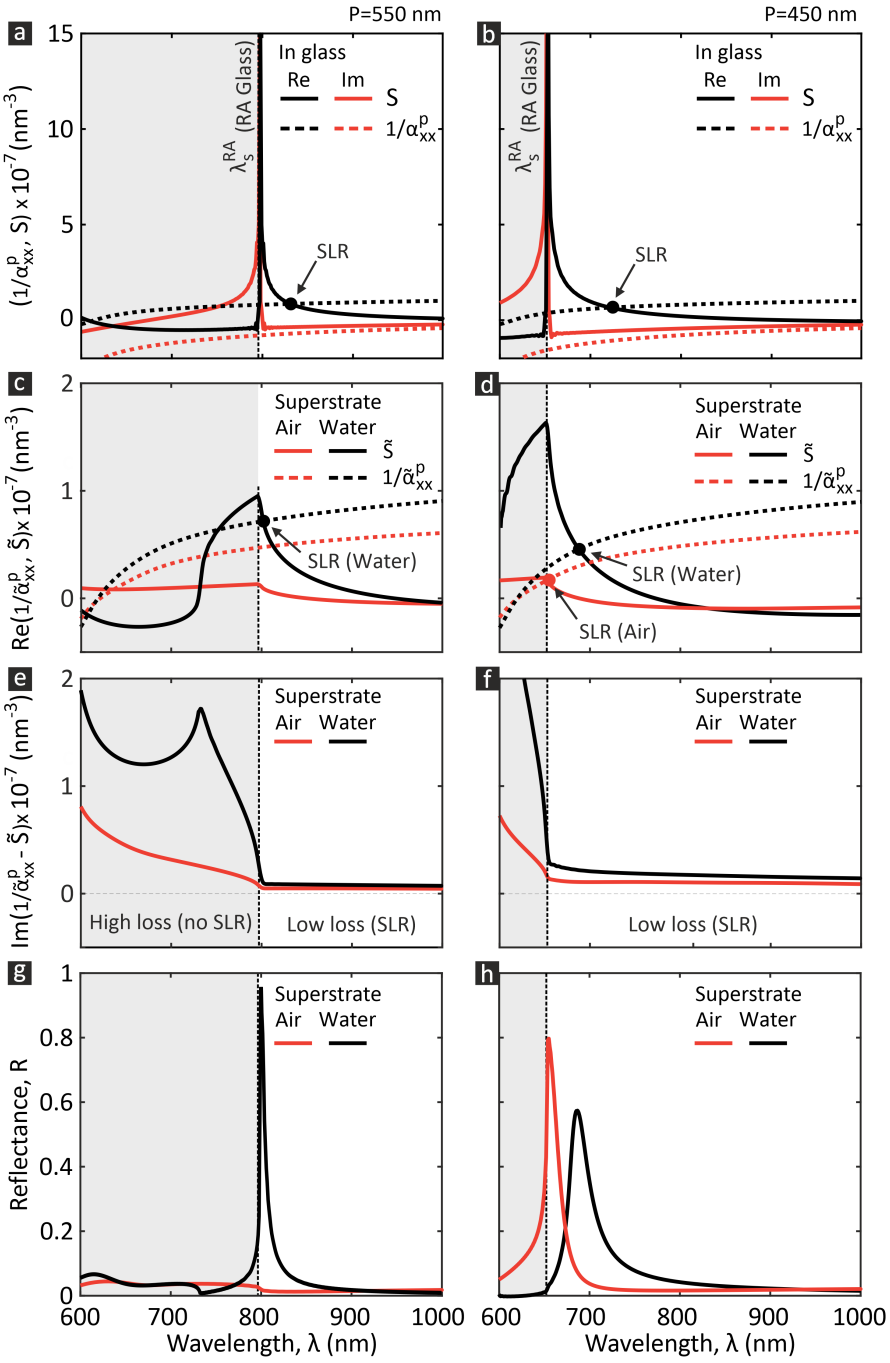


图 2. **共振条件分析**。(a,b) 均匀玻璃环境中超表面的电偶极极化率的倒数 $1/\alpha^{\mathrm{p}}_{xx}$ 和完整晶格求和 S 的光谱：（黑色）实部和（红色）虚部。(c,d) 玻璃基底上超表面的 $1/\tilde{\alpha}^{\mathrm{p}}_{xx}$ 和 $\tilde{S}$ 光谱，其中上覆介质为（红色）空气或（黑色）水（仅显示实部）。(e,f) 超表面在（红色）空气/玻璃和（黑色）水/玻璃上覆介质/基底组合情况下，$1/\tilde{\alpha}^{\mathrm{p}}_{xx}$ 与 $\tilde{S}$ 之差的光谱（仅显示虚部）。(g,h) 超表面在（红色）空气/玻璃和（黑色）水/玻璃情况下的反射光谱。(a,c,e,g) 对应 P=550 nm，(b,d,f,h) 对应 P=450 nm；所有面板中 D=200 nm 且 H=100 nm；上覆介质和基底均视为半无限介质。竖直黑色虚线 $\lambda_{\mathrm{s}}^{\mathrm{RA}}$表示玻璃基底中的瑞利异常位置。(a,b,c,d) 中的实心圆表示表面晶格共振的光谱位置。

被激发，如图 2a、b 中 $1/\alpha^{\mathrm{p}}_{xx}$ 与 S 在表面晶格共振区域的交点所示。

$\tilde{}$存在基底时，晶格求和 S 变为有限值，并取决于介电对比度 $\Delta\varepsilon$

以及阵列周期性。在这种情况下，除了S之外，晶格求和还包含一项考虑基底反射的贡献 S^{R}，因此 $\tilde{S} = S + S^{\mathrm{R}}$。

˜对于 S 和 S两种情况，晶格求和的发散仅取决于远场贡献。基底上超表面中与远场粒子间耦合相对应的部分 $\tilde{S}^{\mathrm{FF}}$可计算为（见《补充信息》第3节）

$$\tilde{S}^{\mathrm{FF}} \approx \sum_{l\neq 0}^{\infty} S_l^{\mathrm{FF}} \left(1 + r_l^{(\mathrm{s})}\right), \tag{3}$$

其中， S_l^{FF}是均匀环境（上覆介质）中的第 l 个远场晶格项，而 $r_l^{(\mathrm{s})}$ 是由位于晶格第 l 个节点的电偶极子产生并传播至具有 $l = 0$ 的节点的 s偏振波的反射系数（这两点间的距离为 R_l）。反射系数为

$$r_l^{(\mathrm{s})} = \frac{1 - \sqrt{R_l^2/\tilde{R}^2 + 1}}{1 + \sqrt{R_l^2/\tilde{R}^2 + 1}}, \tag{4}$$

其中， $\tilde{R} = z_{\mathrm{p}}\sqrt{\varepsilon_{\mathrm{d}}/|\Delta\varepsilon|}$ 是由介电对比度 $\Delta\varepsilon$ 决定的有效距离， z_{p} 为纳米盘中心到基底的距离。 R 的值˜可用于估算位于基底上的超表面中纳米粒子之间长程（远场）相互作用的作用。重要的是，对于图1中所考虑的超表面，˜ R 远小于超表面周期˜，即 $R_l >> R$。因此，由式（4）可知，反射系数$r_l^{(\mathrm{s})} \simeq -1$ 和远场求和式（3）仅由有限个项决定，这是因为纳米粒子间的远场耦合受到抑制。因此，存在基底时晶格求和不会发散，在基底瑞利异常 [26]处取有限值。然而，如图2c、d所示，晶格求和实部的最大值仍出现在基底瑞利异常处（$\lambda_{\mathrm{s}}^{\mathrm{RA}}$），并随介电对比度 $\Delta\varepsilon$的增大而减小。

一方面，晶格求和的减小可能导致在基底瑞利异常处˜Re(S) <Re($1/\tilde{\alpha}_{xx}^{\mathrm{p}}$)，此时无法满足公式（ 2 ）中的条件，因此不会激发表面晶格共振。另一方面，如果晶格求和˜足够大，使得在基底瑞利异常处满足 Re(S) > Re($1/\tilde{\alpha}_{xx}^{\mathrm{p}}$)，那么公式（2）中的条件便得到满足，晶格共振也就能够存在于 SLR 区域。这˜是因为在 SLR 区域内，Re(S) 随波长单调减小，而 Re($1/\tilde{\alpha}_{xx}^{\mathrm{p}}$) 随波长单调增大。图2c展示了这种行为，其中只有具有较小介电对比度（水/玻璃）且周期为 P=550 nm 的超表面满足公式（2）a 中的条件。第二个条件公式（2）b 如图2e所示，对于两种上覆介质，该条件在 SLR 区域内均得到满足。因此，采用水上覆层的反射光谱具有一个狭窄的对应于图2c中完整圆圈的共振峰，其理论品质因数超过 100（图2g）。我们注意到，通过进一步优化结构（例如周期、上覆介质材料），系统的品质因数可以提高一个数量级。同时，在SLR区域之外，SLR条件并未得到完全满足；公式（2）a中的条件得到满足（图2c），而由于高损耗，公式（2）b中的条件则未能满足（图2e）。

对于周期较小的超表面 P=450 nm，在两种上覆介质下，基底瑞利异常处的晶格求和均大于极化率倒数。因此，对于空气/玻璃和水/玻璃构型，在 SLR区域内均满足表面晶格共振的条件（图2d、f），并且激发出的表面晶格共振会产生取决于介电对比度 $\Delta\varepsilon$ 的共振光谱位移（图2h）。

为了实际实现这两种情形并将其用于超表面响应的动态调控，可以采用以下策略。首先，对于给定的 $\Delta\varepsilon$，需要在基底瑞利异常处满足 Re(S) > Re($1/\tilde{\alpha}_{xx}^{\mathrm{p}}$)，从而使表面晶格共振在 SLR区域内被激发。其次，可以实现以下效果：(i) 开/关切换。如果将 $\Delta\varepsilon$ 增大到足以在基底瑞利异常处满足条件˜Re(S) < Re($1/\tilde{\alpha}_{xx}^{\mathrm{p}}$)，则表面晶格共振将被关闭。(ii) 共振位移。如果减小 $\Delta\varepsilon$，表面晶格共振仍会被激发，但会发生红移。对于将上覆介质从空气变为水的情况，这些可能实现颜色调谐的切换和位移效应分别如图2g和图2h所示。

实验演示

静态光学响应

为通过实验展示晶格共振的切换和偏移方案，我们采用电子束光刻技术，制造了由沉积在玻璃基底上的厚度为 H=100 nm的多晶硅纳米圆盘组成的超表面（制造过程和几何参数的详情见“方法”）。为研究切换和偏移两种方案的可调谐性，我们考察了多种纳米圆盘直径和周期（“方法”中的表I列出了四种超表面：M1-M4）。我们记录了超表面的透射光谱、反射光谱和CCD图像，以展示光学性质对上覆介质折射率的依赖关系（实验装置的详情见“方法”）。

对于超表面 M1（图3a），超表面在空气中的反射光谱没有任何共振特征，因为空气/玻璃的介电对比度较大，不会产生晶格共振（图 3）。因此，将超表面浸入水中，降低介电对比度（水/玻璃系统），会使波长约为 730 nm 处的晶格共振强烈切换，并产生显著的反射峰。在透射中也观察到类似的切换行为（图3e）；请注意

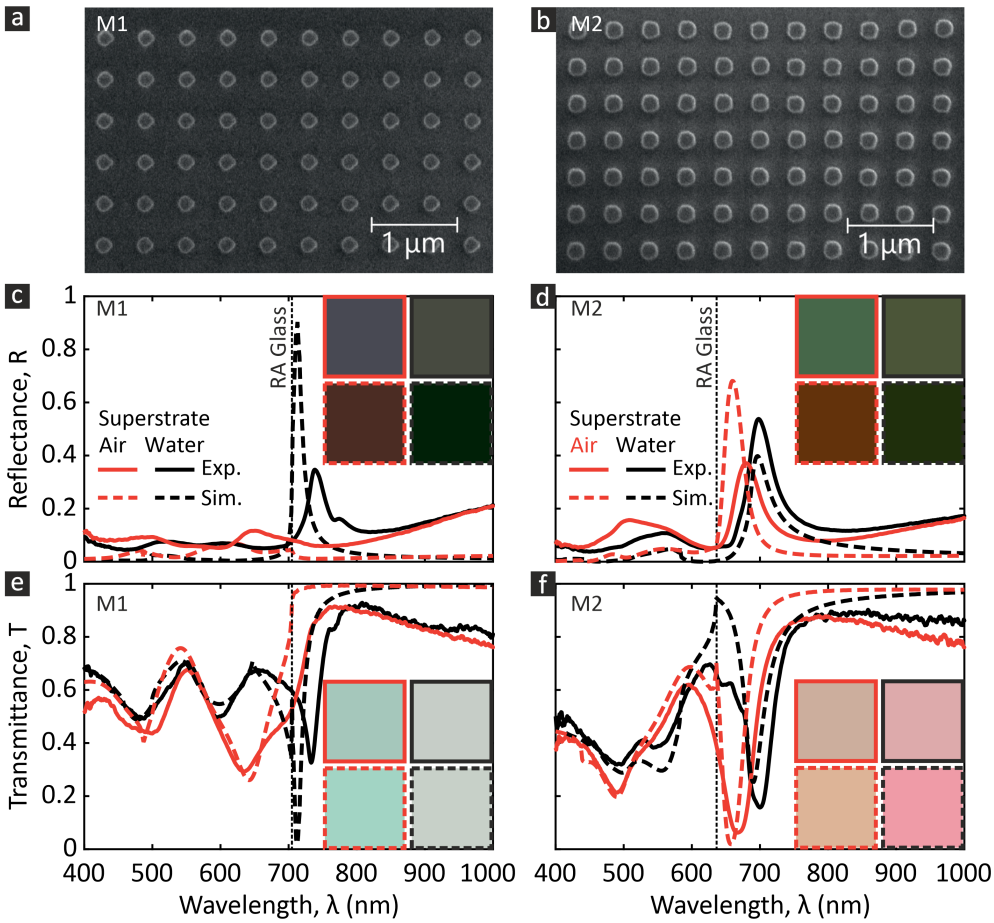


图 3. **不同上覆介质下超表面的透射与反射**。(a,b) 制备的超表面的扫描电子显微镜（SEM）图像：(a) M1，尺寸为 D=185 nm 和 P=490 nm；(b) M2，尺寸为 D=220 nm 和 P=440 nm。(c,d) 超表面 M1 的反射率 (c,e) 和透射率，以及超表面 M2 的反射率 (d,f) 和透射率，分别对应 (红色) 空气和 (黑色) 水上覆层：(实线) 实验结果，(虚线) 仿真结果。竖直虚线表示玻璃基底的瑞利异常的光谱位置 λ_s^{RA}。插图显示了相应光谱的颜色表示。

透射光谱还显示出其他共振，这是由于硅在较短波长处的吸收所致。测量光谱总体上与建模结果吻合良好。我们还利用 CIE 1931 XYZ 色彩空间 [33] 将模拟的透射率和反射率光谱转换为对应的颜色，从而可将模拟的视觉外观直接与实验颜色进行比较（见图 3c、d、e、f 的插图）。虽然硅在可见光范围内的吸收使我们无法获得丰富的色域，但可通过使用其他材料（例如氮化硅）改善这一点。实验中观察到的共振幅度较小，且共振相较于模型光谱略有偏移，这可能是由于制造过程并非完美、纳米盘几何参数略有变化，以及所制造超表面的有限尺寸所致。请注意，$R+T<1$ 在图 3 中，因为实验测量中的收集角为 $<180°$。在在仿真中，为了公平比较，考虑收集角范围内的反射率或透射率比例。

第二种光学响应调谐方式通过超表面 M2 展示（图 3b）。周围介质折射率从空气变为水，使晶格共振发生红移，在空气中的位置为 λ=680 nm，在水中的位置为 λ=700 nm（图 3b,d）。同样，实验结果与理论结果高度吻合。图 S10 展示了超表面 M3 和 M4 的静态光学响应，其内容与图 3 相对应。

动态可调性

与表面晶格共振相关的光学响应对超表面顶部水层厚度的灵敏度，可用于实现动态调谐，

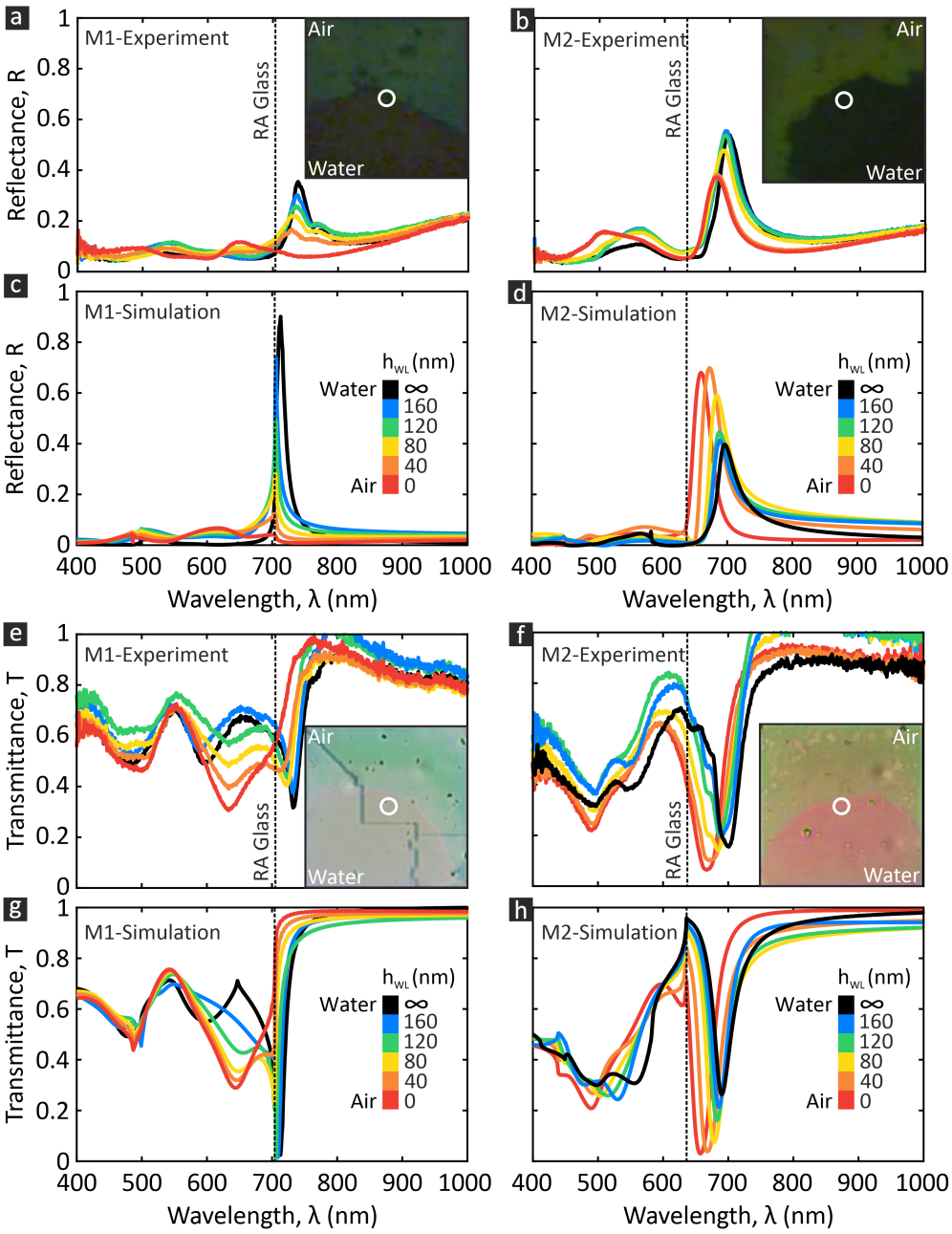


图 4. **通过上覆层控制动态调谐超表面的透射和反射**。 (a–d) 超表面的反射率，(e–h) 超表面的透射率；(a、c、e、g) 为 M1，(b、d、f、h) 为 M2。通过在空气和水之间动态改变上覆介质：(a、b、e、f) 为每隔 100 ms 测量一次的实验光谱（分别为补充视频 M1R、M2R、M1T 和 M2T 的快照）；(c、d、g、f) 为不同水位下的模拟光谱。插图显示了补充视频 M1R、M2R、M1T 和 M2T 中水滴蒸发过程所记录的特定画面。画面中的白色圆圈表示实验中反射光/透射光的收集区域。

并实时控制超表面的光学光谱及相关着色。为展示这一点，我们通过每隔 100 ms 记录一次透射率和反射光谱的变化，监测沉积在超表面顶部的水滴蒸发过程，直至水滴完全蒸发（图 4a、b、e、f）。这些实验采用相同的超

前一节所描述的表面，显示出反射率和透射率的光谱形状均随时间逐渐变化。具体而言，反射光谱的时间演化显示，晶格共振随时间逐渐消失（超表面 M1，图 4a）或发生偏移（超表面 M2，图 4b），并伴随着表观颜色的相应变化。模拟的

水位逐渐降低时的光谱呈现出与实验光谱动态演变相似的趋势（图 4c、d、g、h）。图 S11 展示了超表面 M3 和 M4 动态可调性的图 4 对应结果。虽然本研究未探讨对水位的精确控制，但这些结果证实，此类控制能够实现超表面光学响应的动态调谐。

水蒸发过程中超表面的快照显示，蒸发过程会形成一道清晰且弯曲的界面，将空气区域与水区域分隔开来，两侧呈现不同的颜色（见补充视频），从而能够实时动态调节颜色。值得一提的是，在我们的实验条件下（环境温度），水-空气转变只需几秒钟（见补充视频和补充信息图 S12a、b）。通过控制超表面的温度，可以加快这一过程。针对水位在 0 至 400 nm 之间的情况进行的反射率和透射率仿真（见补充信息图 S12c、d）表明，反射率和透射率光谱特征的变化对水位十分敏感（见补充信息图 S13）。因此，这些实验证明，可基于超表面的光学响应，将水位推断至纳米尺度。此外，超表面上颜色的均匀性证实，共振条件不涉及长程（远场）贡献，这一点已由理论推导预先预测。这意味着表面晶格共振可在有限尺寸超表面中形成，这可能有利于高分辨率显示器中的像素。

讨论

我们提出并展示了一种实用且通用的策略：通过改变超表面的上覆介质，动态控制基底上全介电超表面的光学响应。在我们的实验中，这是通过改变超表面顶部的水位来实现的，使我们的调谐方法完全可逆。一般而言，当晶格求和与单个粒子极化率的倒数相等时，表面晶格共振便存在于该波长处。在均匀介质中，晶格求和的发散保证了这一等式始终成立。然而，当超表面处于非均匀介质中时，由于晶格求和中的长程（远场）贡献受到抑制，晶格求和为有限值，并且随着上覆介质/基底介电对比度的增加而减小。这实际上减少了参与表面晶格共振的纳米粒子数量，并为在有限尺寸超表面中实现和控制表面晶格共振创造了可能性。

对于具有静态上覆介质的超表面，本文考察的空气和水两种情况有两种可能：（1）两种上覆介质中均存在表面晶格共振；（2）表面晶格共振仅存在于一种上覆介质中。在情况（1）中，我们展示了表面晶格共振的光谱移动；而在情况（2）中，表面晶格共振呈现开/关切换。在这两种情况下，基底的存在对于实现光学调控都发挥着重要作用。

对于具有动态上覆介质的超表面，水位的变化使其光学响应具备可调性。实验展示不仅揭示了上覆介质的动态变化所引发的显著色彩变化，还表明通过监测超表面的光学响应，有望将水位测量精度提升至纳米尺度。基于本文所述调谐原理的介电超表面具有设计好的光谱选择性，并可动态调控光谱响应，可应用于小尺寸像素着色、高分辨率显示器、传感器、波长选择性可调滤波器和反射镜、增强现实及防伪领域。

方法

分析方法

补充信息第1节讨论了不同激发和环境条件下单粒子共振及各个多极贡献的行为。补充信息第2节在耦合偶极子方法的框架下，全面阐述了超表面在均匀周围环境中的响应理论。补充信息第3节详细推导了远场近似下基底存在时的晶格求和（式（3））。

数值模拟

仿真中使用的空气、水和玻璃的折射率分别为 n=1、n=1.33 和 n=1.45。硅的折射率见图 S1。

使用 Ansys Lumerical，根据参考文献 [34] 中给出的多极矩表达式，计算单粒子共振的各个多极贡献（多极分解）。

使用 Ansys Lumerical 中的全波有限差分时域（FDTD）仿真，数值计算单个粒子的散射效率，以及阵列的反射率和透射率。对于单个粒子，所有边界均采用完美匹配层（PML）边界条件。对于阵列，沿面内 x-和 y-方向采用周期性边界条件。使用 Ansys Lumerical 的“光栅级次透射”分析组对象，计算各光栅级次所对应的反射率和透射率比例。

表I. 制备的超表面的几何参数。所有超表面的纳米盘高度均为 H=100 nm。

超表面	D (nm)	P (nm)	属性
M1	185	490	切换
M2	220	440	偏移
M3	225	535	切换
M4	285	585	偏移

˜存在基底时的完整偶极子和 S 按如下方式进行数值计算。首先，我们在$\mathbf{r}_0 = (0,0,z_\mathrm{p})$处放置一个 x偏振的偶极点源（其默认偶极矩 p_x 由软件 Ansys Lumerical 设定），并沿面内x 和 y方向施加周期性边界条件，周期为 P （即相对于位于 $x = y = \pm P/2$处的$\mathbf{r}_0$ 保持对称），同时沿 z方向施加完美匹配层边界条件。随后，我们计算$\mathbf{r}_0$处总电场 E_x^M的x分量。为排除中心偶极子（l=0）的贡献，我们在所有笛卡尔方向上均采用完美匹配层边界条件，重复上述计算，并从第一次模拟的结果 E_x^M中减去单个偶极子的电场 E_x^1 。最后，我们将完整偶极和计算为$\tilde{S} = \varepsilon_0\varepsilon_\mathrm{d}(E_x^\mathrm{M} - E_x^1)/p_x$。

实验方法

Sample design and fabrication

这些超表面采用电子束光刻技术，制作在沉积于玻璃基底上的100 nm厚多晶硅薄膜上。研究了四种直径和周期各不相同的纳米盘阵列（表I）。每种结构的方形阵列尺寸为100 μm×100 μm。

Optical measurements

通过钨卤素白光光源照射样品，在正入射条件下测量透射率和反射率。光束沿纳米盘阵列的 x 轴偏振，并通过数值孔径为 0.1 的显微物镜弱聚焦至样品上。测量反射率时，反射光由同一显微物镜收集；测量透射率时，则使用数值孔径为 0.25 的显微物镜收集透射光。随后，收集到的光经光纤耦合至光谱仪。收集区域的尺寸为 ∼75 μm^2。在这两种情况下，均使用非偏振分束器，将部分收集到的光引至 CCD 相机，以记录样品的图像或视频（图 S14）。通过将 50 μL 去离子水滴加到纳米结构上并使其完全浸没，测量纳米结构在水中的光谱响应。为捕捉样品在圆盘间水位变化过程中的光谱响应，每隔 100 ms 记录一次光谱，直至水滴完全蒸发。同时记录水在纳米结构上干燥过程的视频。

补充信息

本文附有以下补充材料：

补充信息 补充视频-M1R 补充视频-M2R 补充视频-M3R 补充视频-M4R 补充视频-M1T 补充视频-M2T 补充视频-M3T 补充视频-M4T

致谢

本研究部分获得了德国研究联合会（DFG，德国研究联合会）在德国卓越战略框架下 Cluster of Excellence PhoenixD（EXC 2122，项目编号 390833453）、亚历山大·冯·洪堡基金会、欧洲研究委员会 iCOMM 项目（789340）以及英国工程与自然科学研究委员会项目 EP/W017075/1 的支持。作者感谢 Cornerstone 在样品制造方面提供的帮助。

资金支持

德国研究联合会（DFG），通过德国卓越战略框架下的 Cluster of Excellence PhoenixD（EXC 2122，项目编号 390833453）、亚历山大·冯·洪堡基金会、欧洲研究委员会 iCOMM 项目（789340）以及英国工程与自然科学研究委员会项目 EP/W017075/1 资助。

[1] A. M. Shaltout、V. M. Shalaev 和 M. L. Brongersma，《利用主动超表面实现时空光调控》，《科学》**364**（2019）。

[2] Q. Li、J. van de Groep、A. K. White、J.-H. Song、S. A. Longwell、P. M. Fordyce、S. R. Quake、P. G. Kik 和 M. L. Brongersma，用于动态调控的超表面光流体学

光场调控，《自然·纳米技术》**17**，1097（2022）。[3] H. Liu、H. Yang、Y. Li、B. Song、Y. Wang、Z. Liu、L. Peng、H. Lim、J. Yoon 和 W. Wu，《用于全彩反射式显示的可切换全介质超表面》，《先进光学材料》**7**，1801639（2019）。[4] S. Sun、W. Yang、C. Zhang、J. Jing、Y. Gao、X. Yu、Q. Song 和 S. Xiao，《基于微流控可重构全介质超表面的实时可调颜色》，《ACS Nano》**12**，2151（2018）。[5] H. Li、Y. Xu、X. Zhang、X. Xiao、F. Zhou 和 Z. Zhang，《通过多极调制超表面增强的全介质高饱和度结构色》，《光学快报》**30**，28954（2022）。[6] S. Wan、C. Dai、Z. Li、L. Deng、Y. Shi、W. Hu、G. Zheng、S. Zhang 和 Z. Li，《迈向水浸式可编程超表面显示器》，《先进科学》，2205581（2022）。[7] M. S. Bin-Alam、O. Reshef、Y. Mamchur、M. Z. Alam、G. Carlow、J. Upham、B. T. Sullivan、J.-M. M´enard、M. J. Huttunen、R. W. Boyd 和 K. Dolgaleva，《等离激元超表面中的超高Q共振》，《自然·通讯》**12**，974（2021）。[8] A. I. Kuznetsov、A. B. Evlyukhin、M. R. Gonc̦alves、C. Reinhardt、A. Koroleva、M. L. Arnedillo、R. Kiyan、O. Marti 和 B. N. Chichkov，《用于传感应用的大规模纳米颗粒阵列的激光制造》，《ACS Nano》**5**，4843（2011）。[9] P. Offermans、M. C. Schaafsma、S. R. Rodriguez、Y. Zhang、M. Crego-Calama、S. H. Brongersma 和 J. G´omez Rivas，《等离激元传感器品质因数的普适标度关系》，《ACS Nano》**5**，5151（2011）。[10] B. D. Thackray、V. G. Kravets、F. Schedin、G. Auton、P. A. Thomas 和 A. N. Grigorenko，《在非对称空气和水环境中通过法向光入射观测纳米结构阵列中的窄集体等离激元共振，以实现简化传感》，《ACS Photonics》**1**，1116（2014）。[11] A. I. Aristov、U. Zywietz、A. B. Evlyukhin、C. Reinhardt、B. N. Chichkov 和 A. V. Kabashin，《用于生物传感应用的等离激元超材料阵列中相位奇点的激光烧蚀工程》，《应用物理快报》**104**，071101（2014）。[12] V. G. Kravets、A. V. Kabashin、W. L. Barnes 和 A. N. Grigorenko，《等离激元表面晶格共振：性质与应用综述》，《化学评论》**118**，5912（2018）。[13] S. Zou、N. Janel 和 G. C. Schatz，《产生异常窄等离激元线形的银纳米颗粒阵列结构》，《化学物理学杂志》**120**，10871（2004）。[14] V. A. Markel，《偶极子和的发散及一维周期纳米球阵列中非洛伦兹型指数窄共振的本质》，《物理学杂志B》**38**，L115（2005）。[15] B. Auguiˊe 和 W. L. Barnes，《金纳米颗粒阵列中的集体共振》，《物理评论快报》**101**，143902（2008）。[16] V. Giannini、G. Vecchi 和 J. G. Rivas，《通过纳米天线阵列中的集体共振激发多极表面等离激元》，《物理评论快报》**105**，266801（2010）。[17] A. B. Evlyukhin、C. Reinhardt、U. Zywietz 和 B. N. Chichkov，《具有偶极-四极相互作用的金属纳米颗粒阵列中的集体共振》，《物理评论B》。85, 245411（2012）。[18] O. Reshef、M. Saad-Bin-Alam、M. J. Huttunen、G. Carlow、B. T. Sullivan、J.-M. M´enard、K. Dolgaleva 和 R. W. Boyd，多共振高 Q 等离激元超表面，《纳米快报》19，6429（2019）。[19] T.-L. Lim、Y. Vaddi、M. S. Bin-Alam、L. Cheng、R. Alaee、J. Upham、M. J. Huttunen、K. Dolgaleva、O. Reshef 和 R. W. Boyd，经傅里叶设计的等离激元晶格共振，《ACS Nano》16，5696（2022）。[20] J. Kelavuori、V. Vanyukov、T. Stolt、P. Karvinen、H. Rekola、T. K. Hakala 和 M. J. Huttunen，等离激元表面晶格共振的热调控，《纳米快报》22，3879（2022）。[21] M. Sharma、L. Michaeli、D. B. Haim 和 T. Ellenbogen，等离激元超表面中的液晶可切换表面晶格共振，《ACS Photonics》9，2702（2022）。[22] A. B. Evlyukhin、C. Reinhardt、A. Seidel、B. S. Luk'yanchuk 和 B. N. Chichkov，硅纳米粒子阵列的光学响应特征，《物理评论B》82，045404（2010）。[23] G. W. Castellanos、P. Bai 和 J. G´omez Rivas，介电超表面中的晶格共振，《应用物理学杂志》125，213105 2019( )。[24] V. E. Babicheva 和 A. B. Evlyukhin，高折射率超表面中的多极晶格效应，《应用物理学杂志》129，040902（2021）。[25] N. Mahi、G. L´evˆeque、O. Saison、J. Marae-Djouda、R. Caputo、A. Gontier、T. Maurer、P.-M. Adam、B. Bouhafs 和 A. Akjouj，对衬底支撑光栅中金属单体与二聚体的晶格等离激元模式进行深入研究，《物理化学杂志C》121，2388（2017）。[26] B. Auguiˊe、X. M. Bendana、W. L. Barnes 和 F. J. G. de Abajo，界面附近的金纳米粒子衍射阵列：基底的关键作用，《物理评论B》82，155447（2010）。[27] J. Wu、Y. Du、J. Xia、W. Lei、T. Zhang 和 B. Wang，基于电润湿技术的光流体系统，用于动态可调光谱吸收器，《光学快报》27，2521（2019）。[28] G. W. Mulholland、C. F. Bohren 和 K. A. Fuller，团聚体的光散射：耦合电偶极与磁偶极方法，《朗缪尔》10，2533（1994）。[29] O. Merchiers、F. Moreno、F. Gonzˊalez 和 J. Saiz，同时具有电极化率与磁极化率的相互作用偶极粒子系综的光散射，《物理评论A》76，043834（2007）。[30] X. Bendaˆna 和 F. G. De Abajo，自支撑与衬底支撑平面周期粒子阵列中的受限集体激发，《光学快报》17，18826（2009）。[31] A. E. Miroshnichenko、A. B. Evlyukhin、Y. S. Kivshar 和 B. N. Chichkov，基底诱导的介电纳米粒子共振磁电效应，《ACS Photonics》2，1423（2015）。[32] F. G. De Abajo，专题综述：粒子与孔阵列的光散射，《现代物理评论》79，1267（2007）。[33] T. Smith 和 J. Guild，国际照明委员会色度标准及其应用，《光学学会汇刊》33，73（1931）。[34] A. B. Evlyukhin 和 B. N. Chichkov，定向光散射的多极分解，《物理评论B》100，125415（2019）。

arXiv:2304.01820v1 [physics.optics] 4 Apr 2023

补充信息

for

通过调控非均匀环境中的表面晶格共振实现动态介电超表面

IzzatjonAllayarov[†1,2,3], AndreyB. Evlyukhin[†3,4*], Diane J.Roth[†5], Boris Chichkov[3,4], Anatoly V. Zayats[5*] 和 Antonio Cal`aLesina[1,2,3*]1汉诺威光学技术中心，汉诺威莱布尼茨大学，*Nienburger Str. 17, D-30167* 汉诺威，德国[2]交通与自动化技术研究所，

德国加布森 *D-30823*，莱布尼茨汉诺威大学，*Ander Universit ¨at2[3]Cluster of Excellence PhoenixD*，德国汉诺威 *D-30167*，*Welfengarten 1A*，莱布尼茨汉诺威大学[4]*Institute of Quantum Optics*，德国汉诺威 *D-30167*，*Welfengarten 1*，莱布尼茨汉诺威大学，以及[5]英国伦敦 *WC2R 2LS*，*Strand*，伦敦国王学院物理系和 *London Centre for Nanotechnology*。

I. 单粒子响应

在本节中，我们研究单个粒子的响应，该粒子用作正文中所考虑超表面（图1a）的构成单元；仿真中使用多晶硅（图1b）。

在均匀介质中的硅纳米盘，其直径为 D=100 nm；对于不同的（顶部、侧面）入射角，以及在与本研究相关的不同周围介质（空气、玻璃）中，主要表现出电偶极和磁偶极响应（图 2）。

对于侧向和顶部激发构型，相应的偶极极化率相似（图 3），因此，可以忽略偶极极化率对激发条件（即非局域效应）的依赖 [1]。

同样，基底的存在并未显著改变响应的性质，响应仍由偶极响应主导（图 4）。因此，耦合偶极子法可用于解析描述均匀环境中的超表面以及存在玻璃基底时的超表面。图 4 中仅考虑电偶极子和磁偶极子的直接贡献，即忽略因基底反射而产生的多极子间干涉 [2]。

由于基底对硅纳米圆盘偶极极化率的影响较弱。

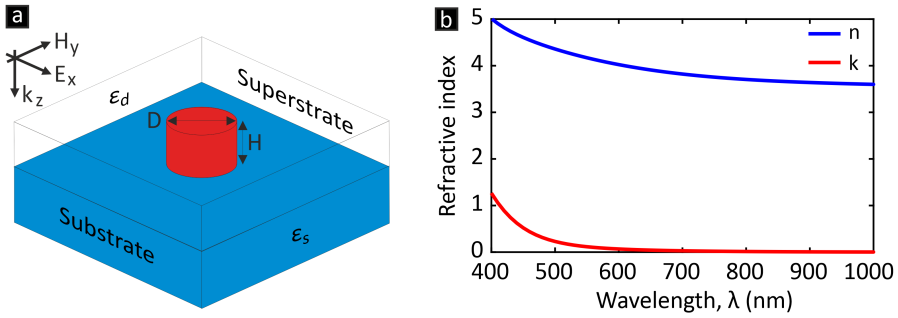


图1。**超表面的晶胞和硅的折射率**。(a) 超表面晶胞示意图：直径为 D 、高度为 H 的硅纳米盘置于玻璃基底上。粒子在正入射条件下受到激发，入射光为 x线偏振光。(b) 仿真所用多晶硅折射率的实部（n，蓝色）和虚部（k，红色）。

*通讯作者。电子邮箱：evlyukhin@iqo.uni-hannover.de、anatoly.zayats@kcl.ac.uk、antonio.calalesina@hot.uni-hannover.de

† 这些作者对本研究贡献相同

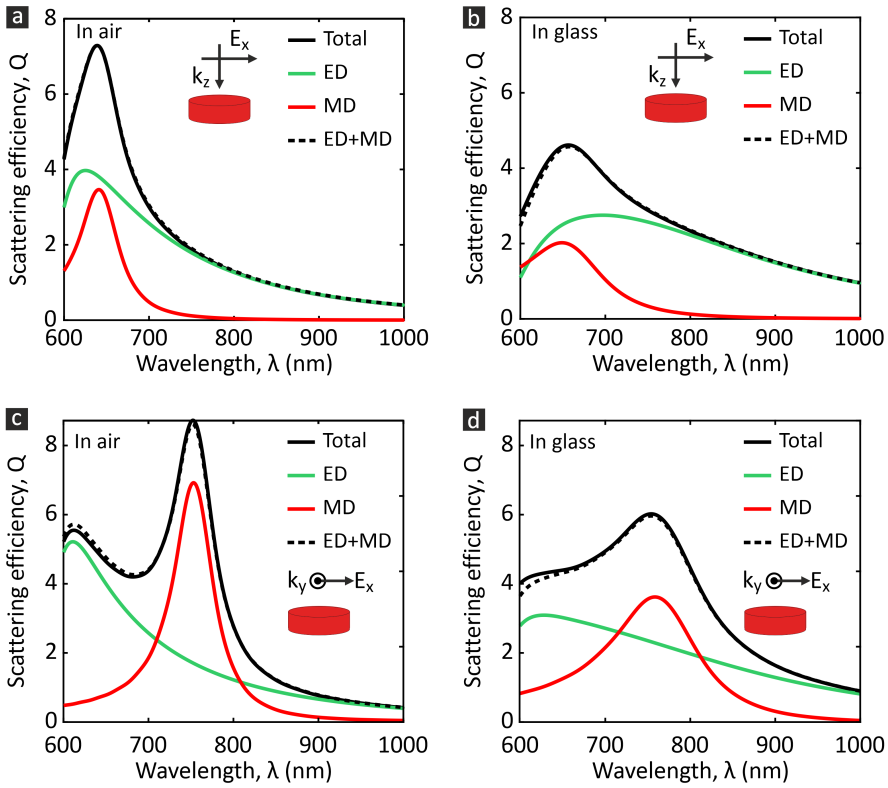


图 2。**均匀介质中不同激发构型下的单粒子共振**。浸没在 (a、c) 空气和 (b、d) 玻璃中的单个硅纳米盘的散射效率 ($Q = 4\sigma D^{-2}/\pi$) 光谱，其尺寸为D=200 nm H=100 nm。使用线偏振平面波从硅纳米盘的 (a、b) 顶部和 (c、d) 侧面进行照明。散射效率（黑线）分解为单独的电（ED，绿线）和磁（MD，红线）偶极子贡献。

（图 5）在近场方法中，我们可以将圆盘近似为一个扁椭球体，其在基底附近的极化率 $\tilde{\alpha}^{\mathrm{p}}_{xx}$ 为 [3]

$$\tilde{\alpha}^{\mathrm{p}}_{xx} \approx \left(\frac{1}{\alpha^{\mathrm{p}}_{xx}} + \frac{1}{4\pi(2z_{\mathrm{p}})^3} \frac{\varepsilon_{\mathrm{d}} - \varepsilon_{\mathrm{s}}}{\varepsilon_{\mathrm{d}} + \varepsilon_{\mathrm{s}}} \right)^{-1}, \tag{1}$$

其中， z_{p} 是基底表面与圆盘中心之间的距离， α^{p}_{xx} 是在介电常数为 ε_{d} 的均匀环境中的极化率，而 ε_{s} 是基底的介电常数。如图 5 所示，对于位于空气上覆层和玻璃基底上的圆盘（粗虚线），当圆盘的尺寸为 D=200 nm 和 H=100 nm（z_{p}=H/2）] 时， $\tilde{\alpha}^{\mathrm{p}}_{xx}$（虚线）与 α^{p}_{xx} （实线）之间的最大相对差值为 $\leq$15% [。它变得

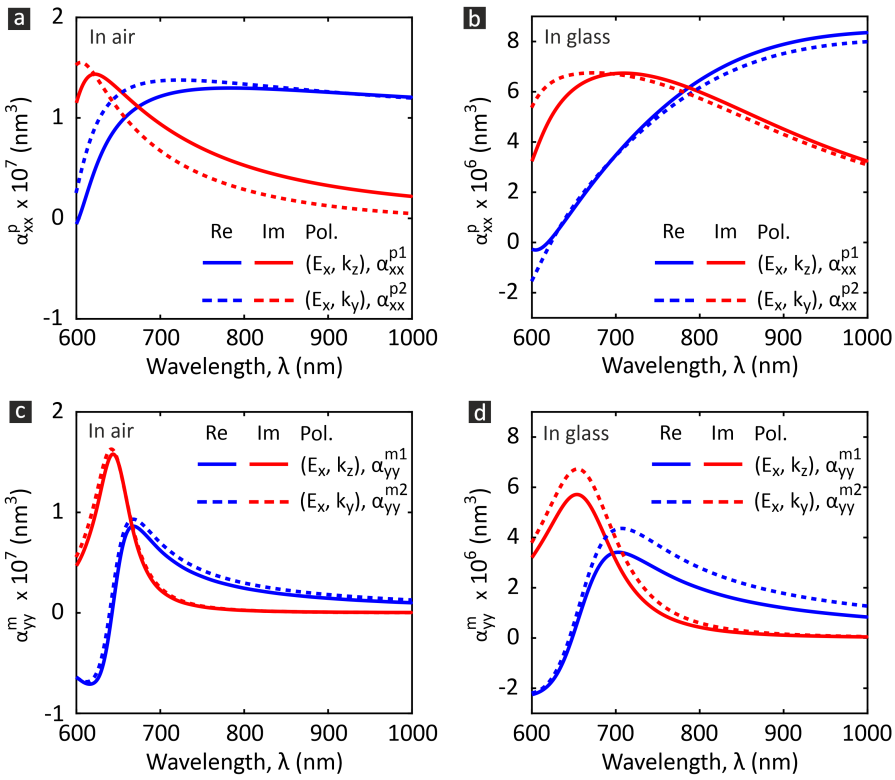


图 3. **均匀环境下不同激发条件对应的偶极极化率**

环境。 硅纳米盘电偶极极化率的实部（蓝色）和虚部（红色）： [面板 (a) 和 (b)] 中为位于 D=200 nm处、周围环境为 (a) 空气和 (b) 玻璃的硅纳米盘。实线表示从硅纳米盘顶部入射（E_x 和 k_z）的线偏振平面波激发，虚线表示从侧面（E_x 和 k_y）入射的激发。面板 (c) 和 (d) 分别显示空气和玻璃周围环境下磁偶极极化率的相同曲线图。

对于水上覆层（细虚线），这一比例甚至更小（低于 5%）。因此，我们可以假设，并且稍后也会在正文中看到，基底附近阵列的晶格共振条件˜会受到晶格求和 S的影响。

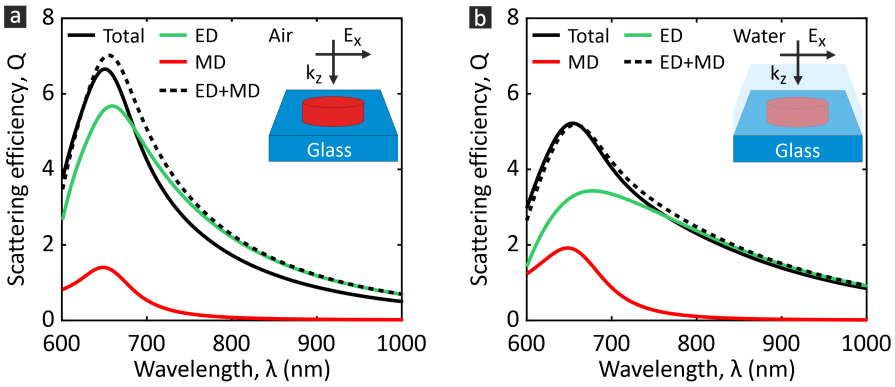


图 4. **正入射照明和非均匀环境下的单粒子共振**。单个硅纳米盘（Si nanodisk，尺寸为 D=200 nm）分别置于 (a) 空气和 (b) 水上覆层及玻璃基底上时的散射效率（$Q = 4\sigma D^{-2}/\pi$）光谱。硅纳米盘受到来自其顶部的线偏振平面波照射。散射效率（黑线）分解为独立的电偶极子（ED，绿线）和磁偶极子（MD，红线）贡献。

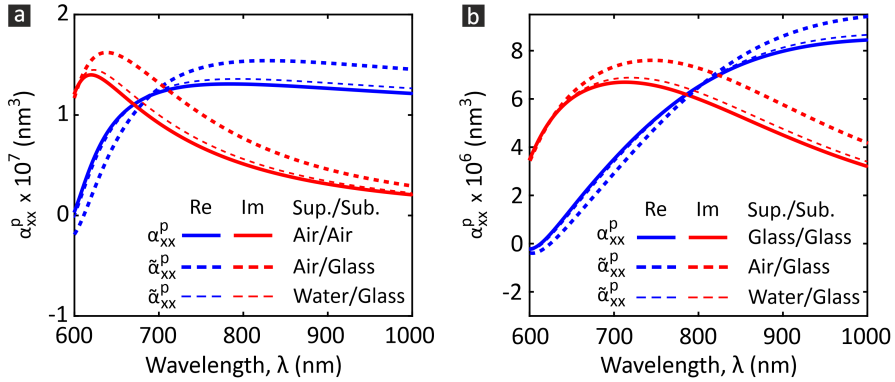


图 5. **不同上覆介质/基底配置下电偶极极化率的估算**。根据正文中的公式 4 计算得到的电偶极极化率 $\tilde{\alpha}^{\mathrm{p}}_{xx}$ 的实部（蓝色）和虚部（红色）（虚线），对应于空气/玻璃（细虚线）和水/玻璃（粗虚线）上覆介质/基底组合。实线表示位于（a）空气和（b）玻璃均匀周围介质中的硅纳米盘的电偶极极化率 α^{p}_{xx}，其中 D=200 nm，在从硅纳米盘顶部（E_x 和 k_z）入射的线偏振平面波激发下。

II. 均匀环境中的超表面耦合偶极子模型

对于相对介电常数为 ε_{d} 的均匀环境，且照明/偏振条件如图1a所示，超表面中圆盘的电偶极矩$\mathbf{p}$ =(p_x,0,0)和磁偶极矩$\mathbf{m}$ =(0, m_y,0)（其正方形单元的周期为 P）可表示为 [4, 5]

$$p_x = \varepsilon_0 \varepsilon_{\mathrm{d}} \alpha_{xx}^{\mathrm{p1}} E_x + \alpha_{xx}^{\mathrm{p2}} S_{xx} p_x, \tag{2a}$$

$$m_y = \alpha_{yy}^{\mathrm{m1}} H_y + \alpha_{yy}^{\mathrm{m2}} S_{yy} m_y, \tag{2b}$$

其中， ε_0 为真空介电常数；对于外部波的正入射/顶部入射（侧向/侧面入射），单个圆盘的电和磁偶极极化率张量的相应对角分量分别为 $\alpha_{xx}^{\mathrm{p1}}$ ($\alpha_{xx}^{\mathrm{p2}}$)和 $\alpha_{yy}^{\mathrm{m1}}$($\alpha_{yy}^{\mathrm{m2}}$)； S_{xx} 和 S_{yy} 为晶格偶极子和的对角元素； E_x 和 H_y 分别为位于坐标系原点处圆盘几何中心的入射波电场和磁场。请注意，这里我们考虑到极化率张量的分量通常可能取决于照明方向。我们考虑一个满足 $P_x = P_y = P$的正方形基本单元，因此 $S_{xx} = S_{yy} = S$。由方程（2）的解

$$p_x = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_{\mathrm{d}} E_x}{1/\alpha_{xx}^{\mathrm{p1}} - \alpha_{xx}^{\mathrm{p2}} S/\alpha_{xx}^{\mathrm{p1}}}, \tag{3a}$$

$$m_y = \frac{H_y}{1/\alpha_{yy}^{\mathrm{m1}} - \alpha_{yy}^{\mathrm{m2}} S/\alpha_{yy}^{\mathrm{m1}}}, \tag{3b}$$

超表面共振的光谱位置由以下因素决定

$$\mathrm{Re}\Big(1/\alpha_{xx}^{\mathrm{p1}} - \alpha_{xx}^{\mathrm{p2}} S/\alpha_{xx}^{\mathrm{p1}}\Big) = \mathrm{Re}\Big(1/\alpha_{xx}^{\mathrm{p,eff}}\Big) = 0, \tag{4a}$$

$$\mathrm{Re}\Big(1/\alpha_{yy}^{\mathrm{m1}} - \alpha_{yy}^{\mathrm{m2}} S/\alpha_{yy}^{\mathrm{m1}}\Big) = \mathrm{Re}\Big(1/\alpha_{yy}^{\mathrm{m,eff}}\Big) = 0, \tag{4b}$$

其中 $\alpha^{\mathrm{p,\ eff}}_{xx}$和 $\alpha^{\mathrm{m,\ eff}}_{yy}$分别为有效电偶极极化率和磁偶极极化率。需要注意的是，方程（3）中分母的虚部定义了共振的品质因数。如果该虚部不够小，即使满足方程（4）中的条件，也可能观察不到明显的共振。

在耦合偶极子近似下，超表面的反射率 R 和透射率 T 可表示为 [5]

$$R = \left| \frac{i k_{\mathrm{d}}}{2A} \Big(\alpha_{xx}^{\mathrm{p,eff}} - \alpha_{yy}^{\mathrm{m,eff}} \Big) \right|^2 \quad \text{and} \quad T = \left| 1 - \frac{i k_{\mathrm{d}}}{2A} \Big(\alpha_{xx}^{\mathrm{p,eff}} + \alpha_{yy}^{\mathrm{m,eff}} \Big) \right|^2, \tag{5}$$

其中 k_d 是 w　均匀环境中的波数， ε_d, A 是晶胞面积　.

圆盘极化率 $\alpha^\mathrm{p}_{xx} = p_x/(\varepsilon_0\varepsilon_\mathrm{d}E_x)$ 和 $\alpha^\mathrm{m}_{yy} = m_y/H_y$ 可通过数值计算单个圆盘响应（图 3）得到。注意，如果圆盘响应的非局域效应 [1] 可以忽略，则 $\alpha^\mathrm{p1}_{xx} = \alpha^\mathrm{p2}_{xx}$ 和 $\alpha^\mathrm{m1}_{yy} = \alpha^\mathrm{m2}_{yy}$。事实上，对于图 2 所示的圆盘，在图 3 所示的顶部和侧面激发条件下，电极化率与磁极化率相近。

均匀介质中的晶格偶极子和 S 可写成各个远场 S^FF、中场 S^MF 和近场 S^NF 贡献 [6] 之和：

$$S = S^\mathrm{FF} + S^\mathrm{MF} + S^\mathrm{NF}, \tag{6}$$

with

$$S^\mathrm{FF} = \frac{k_\mathrm{d}^2}{4\pi}\sum_{l\neq 0}^{\infty}\frac{\mathrm{e}^{ik_\mathrm{d}R_l}}{R_l}\left(1-\frac{x_l^2}{R_l^2}\right), \tag{7a}$$

$$S^\mathrm{MF} = \frac{k_\mathrm{d}^2}{4\pi}\sum_{l\neq 0}^{\infty}\frac{\mathrm{e}^{ik_\mathrm{d}R_l}}{R_l^2}\left(\frac{i}{k_\mathrm{d}}-\frac{3ix_l^2}{k_\mathrm{d}R_l^2}\right), \tag{7b}$$

$$S^\mathrm{NF} = \frac{k_\mathrm{d}^2}{4\pi}\sum_{l\neq 0}^{\infty}\frac{\mathrm{e}^{ik_\mathrm{d}R_l}}{R_l^3}\left(-\frac{1}{k_\mathrm{d}^2}+\frac{3x_l^2}{k_\mathrm{d}^2R_l^2}\right), \tag{7c}$$

其中，求和遍历所有晶格节点，但不包括位于坐标系原点的节点（$l = 0$）； R_l 是编号为 l 的节点与坐标系原点之间的距离； x_l 是第 l 个节点的 x 坐标。

通过将这三项贡献与周期为 P=550 nm、位于玻璃中的 x偏振偶极子的总晶格求和（图 6）进行比较，可以发现，只有远场贡献（红线）在瑞利异常波长（$\lambda^\mathrm{RA} = Pn_\mathrm{d}$，其中 n_d 是周围介质的折射率）处发散，而中场（绿色虚线）和近场（蓝线）部分则不会发散。 S^FF 的发散特性确保了式（4）存在解。

我们将该模型应用于预测和计算置于空气或玻璃均匀周围介质中的无限硅纳米圆盘阵列的共振，其中 D=200 nm 和 P=550 nm（图 7）。在前一种情况下，在所考虑的波长范围内，系统处于无衍射区。图 7a 和 7c 展示了方程（4a-b）的根，分别确定了电和磁晶格共振的光谱位置。超表面预测的共振（蓝线的交点）位于约 625 nm 处，对应电偶极子

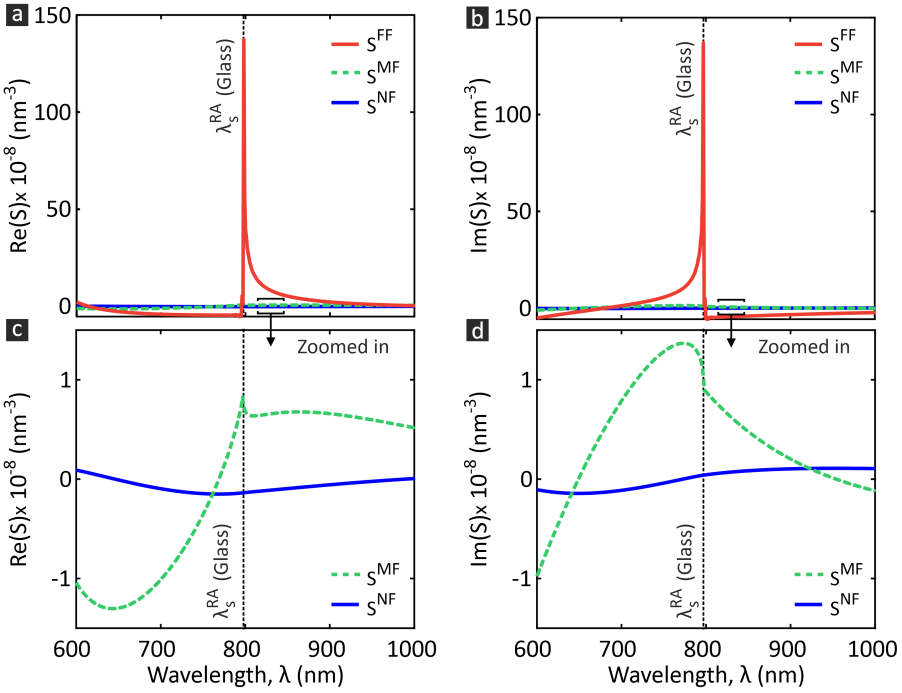


图 6. **晶格偶极子和的远场、中场和近场部分** S。 (a) 随波长变化的 S 贡献的实部和 (b) 虚部，其中远场（红色）、中场（绿色虚线）和近场（蓝色）部分对应位于玻璃中的 x偏振偶极子。黑色竖向虚线表示瑞利异常 $\lambda_{\mathrm{d}}^{\mathrm{RA}}$的位置。圆盘的直径和周期分别为$D$=200 nm 和 P=550 nm。

而磁偶极子的共振位于约 650 nm 处。事实上，从图 7(e) 的反射率计算结果中，我们可以清楚地看到这些位置处各自的电（绿色）和磁（红色）偶极子共振。磁偶极子共振的强度低于电偶极子共振。这是因为对于磁偶极子，偶极子和与极化率倒数的虚部（红线）之间的差值大于电偶极子的情况。此外，耦合偶极子近似 [方程（5），黑色虚线] 计算得到的总反射率与完整数值计算（黑色实线）高度吻合。

在玻璃环境中，图 7b、d 显示存在三个共振条件：一个位于瑞利异常位置 $\lambda_{\mathrm{d}}^{\mathrm{RA}}$（垂直虚线处），另外两个分别位于其两侧。由于衍射散射进入均匀周围介质，在 $\lambda \leq \lambda_{\mathrm{d}}^{\mathrm{RA}}$区域内，共振不会被激发，或会受到强烈阻尼（虚部差值较大）。在$\lambda > \lambda_{\mathrm{d}}^{\mathrm{RA}}$区域内，由于虚部差值最小，我们观察到尖锐的电共振和磁共振（图 7f），这归因于最小的

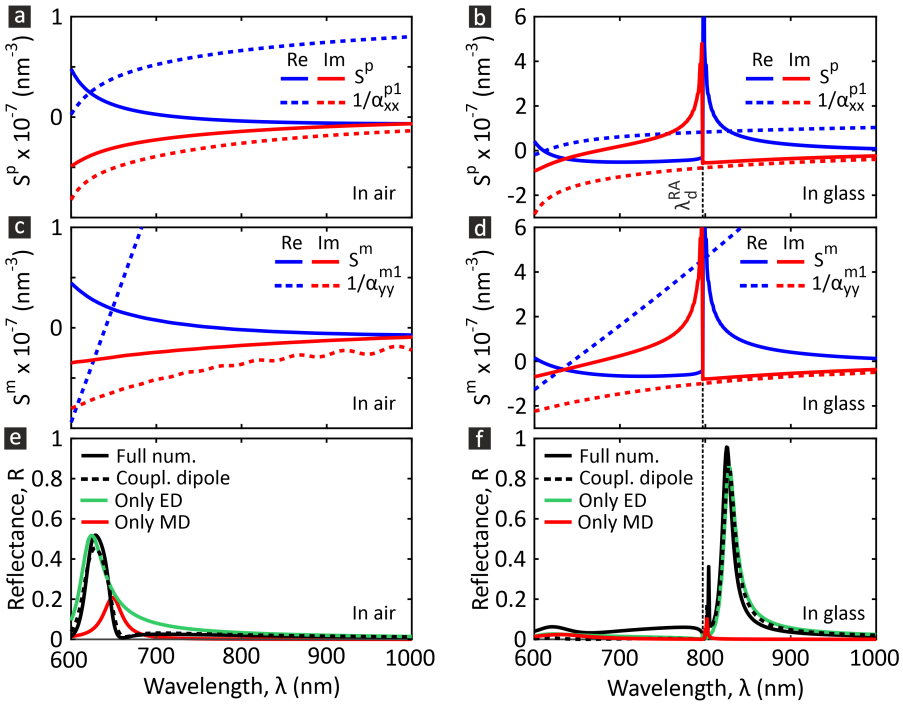


图 7. **超表面在均匀空气和玻璃环境中的共振条件与光谱。**(a,b) $1/\alpha_{xx}^{\mathrm{p1}}$ 和 $S^{\mathrm{p}} = \alpha_{xx}^{\mathrm{p1}} S/\alpha_{xx}^{\mathrm{p2}}$的光谱。(c,d) $1/\alpha_{yy}^{\mathrm{m1}}$和$S^{\mathrm{m}} = \alpha_{yy}^{\mathrm{m1}} S/\alpha_{yy}^{\mathrm{m2}}$的光谱。(e,f) 通过全波数值模拟和耦合偶极近似计算得到的超表面反射光谱，并分别显示电偶极子和磁偶极子的贡献。超表面分别处于(a,c,e)空气和(b,d,h)玻璃环境中。黑色竖直虚线 $\lambda_{\mathrm{d}}^{\mathrm{RA}}$表示玻璃中的瑞利异常的光谱位置。圆盘参数分别为 D=200 nm、H=100 nm和 P=550 nm。

虚部差值。请注意，磁共振（位于 ∼800 nm）的品质因数高于电共振（位于 ∼825 nm）。这是因为其光谱位置更接近 $\lambda_{\mathrm{d}}^{\mathrm{RA}}$。然而，与空气周围介质的情况一样，磁偶极共振比电共振弱得多。可以观察到，耦合偶极子模型与完整数值模拟之间具有非常好的一致性。

˜III. 在远场近似下推导 S

层状系统的晶格求和（本质上是格林函数）可以在傅里叶空间 [7–9] 中进行半解析计算。这里，在实部中进行计算较为方便。

˜空间。存在基底时的晶格求和 S 可表示为均匀环境中的求和S [见式 (6)] 加上额外求和 S^{R}，用于计入基底的反射。在远场近似下，若考虑位于平面基底表面附近、点$\mathbf{r}_0$处的电偶极矩 p_x 沿该表面辐射的电远场，则可解析计算 S^{R}。利用参考文献 [10], 中的式 (B1) 和 (B2)，以及式 (B5) 和 (B6)，可得由置于 $\mathbf{r}_0 = (0, 0, z_{\mathrm{p}})$ 处的 p_x 辐射、位于球坐标 (r, θ, φ) 处的电远场 E_x 的 x 分量，它是直接在上覆介质中传播的波的电远场 E_x^0 之和

$$E_x^0(r,\theta,\varphi) = \frac{k_0^2}{4\pi\varepsilon_0 r} \mathrm{e}^{ik_{\mathrm{d}} r} \mathrm{e}^{-ik_{\mathrm{d}} z_{\mathrm{p}} \cos\theta} p_x (\sin^2\varphi + \cos^2\theta \cos^2\varphi), \tag{8}$$

以及由基底反射的波的电远场 E_x^{R}

$$E_x^{\mathrm{R}}(r,\theta,\varphi) = \frac{k_0^2}{4\pi\varepsilon_0 r} \mathrm{e}^{ik_{\mathrm{d}} r} \mathrm{e}^{ik_{\mathrm{d}} z_{\mathrm{p}} \cos\theta} p_x (r^{(\mathrm{s})} \sin^2\varphi - r^{(\mathrm{p})} \cos^2\theta \cos^2\varphi), \tag{9}$$

其中包含 s 偏振波和 p偏振波的反射系数

$$r^{(\mathrm{s})} = \frac{\cos\theta - \sqrt{\varepsilon_{\mathrm{s}}/\varepsilon_{\mathrm{d}} - \sin^2\theta}}{\cos\theta + \sqrt{\varepsilon_{\mathrm{s}}/\varepsilon_{\mathrm{d}} - \sin^2\theta}}, \tag{10a}$$

$$r^{(\mathrm{p})} = \frac{\varepsilon_{\mathrm{s}}\cos\theta - \varepsilon_{\mathrm{d}}\sqrt{\varepsilon_{\mathrm{s}}/\varepsilon_{\mathrm{d}} - \sin^2\theta}}{\varepsilon_{\mathrm{s}}\cos\theta + \varepsilon_{\mathrm{d}}\sqrt{\varepsilon_{\mathrm{s}}/\varepsilon_{\mathrm{d}} - \sin^2\theta}}, \tag{10b}$$

其中考虑到 $r >> |\mathbf{r}_0|$，而 k_0 和 k_{d} 分别是真空和上覆介质的波数，$\mathbf{n} = \mathbf{r}/r = (\sin\theta$ cos φ，sin θ sin φ，cos θ) 是指向观察点的单位向量。

根据互易原理，可以证明，位于$\mathbf{r}_0$ 的偶极点源在$\mathbf{r}$ 处产生的电场，等价于同一偶极子位于$\mathbf{r}$时在$\mathbf{r}_0$ 处产生的电场，即$\mathbf{p}(\mathbf{r}_0, \omega) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}\ \omega) = \mathbf{p}(\mathbf{r}\ \omega) \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r}_0, \omega)$。利用公式（8）和（9），我们可以获得 $\tilde{S}^{\mathrm{FF}}$ 的远场部分 $\tilde{S} = S + S^{\mathrm{R}}$的解析估算。考虑$\tilde{S}^{\mathrm{FF}} = S^{\mathrm{FF}} + S^{\mathrm{R,FF}}$，可得

$$\begin{aligned} S^{\mathrm{FF}} &= \frac{\varepsilon_0\varepsilon_{\mathrm{d}}}{p_x} \sum_{l\neq 0}^{\infty} E_x^0(\mathbf{r}_l) \\ &= \frac{k_{\mathrm{d}}^2}{4\pi} \sum_{l\neq 0}^{\infty} \frac{\mathrm{e}^{ik_{\mathrm{d}} R_l}}{R_l} \mathrm{e}^{-ik_{\mathrm{d}} z_{\mathrm{p}}^2/R_l} \left[1 - \frac{x_l^2}{R_l^2}\left(1 - \frac{z_{\mathrm{p}}^2}{R_l^2}\right)\right], \end{aligned} \tag{11}$$

$$S^{\mathrm{R,FF}} = \frac{\varepsilon_0\varepsilon_\mathrm{d}}{p_x}\sum_{l\neq 0}^{\infty} E_x^{\mathrm{Ref}}(\mathbf{r}_l) \tag{12}$$
$$= \frac{k_\mathrm{d}^2}{4\pi}\sum_{l\neq 0}^{\infty}\frac{\mathrm{e}^{ik_\mathrm{d}R_l}}{R_l}\mathrm{e}^{ik_\mathrm{d}z_\mathrm{p}^2/R_l}\left[r_l^{(\mathrm{s})} - \frac{x_l^2}{R_l^2}\left(r_l^{(\mathrm{s})} + r_l^{(\mathrm{p})}\frac{z_\mathrm{p}^2}{R_l^2}\right)\right],$$

在笛卡尔坐标中，位于各点的偶极子产生的s偏振波和p偏振波的反射系数为[10]

$$r_l^{(\mathrm{s})} = \frac{z_\mathrm{p}/R_l - \sqrt{\Delta\varepsilon/\varepsilon_\mathrm{d} + z_\mathrm{p}^2/R_l^2}}{z_\mathrm{p}/R_l + \sqrt{\Delta\varepsilon/\varepsilon_\mathrm{d} + z_\mathrm{p}^2/R_l^2}}, \tag{13a}$$

$$r_l^{(\mathrm{p})} = \frac{\varepsilon_\mathrm{s}z_\mathrm{p}/R_l - \varepsilon_\mathrm{d}\sqrt{\Delta\varepsilon/\varepsilon_\mathrm{d} + z_\mathrm{p}^2/R_l^2}}{\varepsilon_\mathrm{s}z_\mathrm{p}/R_l + \varepsilon_\mathrm{d}\sqrt{\Delta\varepsilon/\varepsilon_\mathrm{d} + z_\mathrm{p}^2/R_l^2}}, \tag{13b}$$

其中，电场 $E_x^0(\mathbf{r}_l)$ 和 $E_x^{\mathrm{Ref}}(\mathbf{r}_l)$ 分别由公式（8）和（9）确定，其中包含 $\mathbf{r}_l = (x_l,\ y_l,\ z_\mathrm{p})$、$R_l = |\mathbf{r}_l|$、$\cos\,\theta_l = z_\mathrm{p}/R_l$ 和 $\Delta\varepsilon = (\varepsilon_\mathrm{s} - \varepsilon_\mathrm{d})$。

从不同上覆介质折射率 n_d 和 n_s=1.45 的玻璃基底的远场晶格偶极子和 $\tilde{S}^{\mathrm{FF}}$ 的光谱（图 8）中可以看出，$\tilde{S}^{\mathrm{FF}}$ 发散

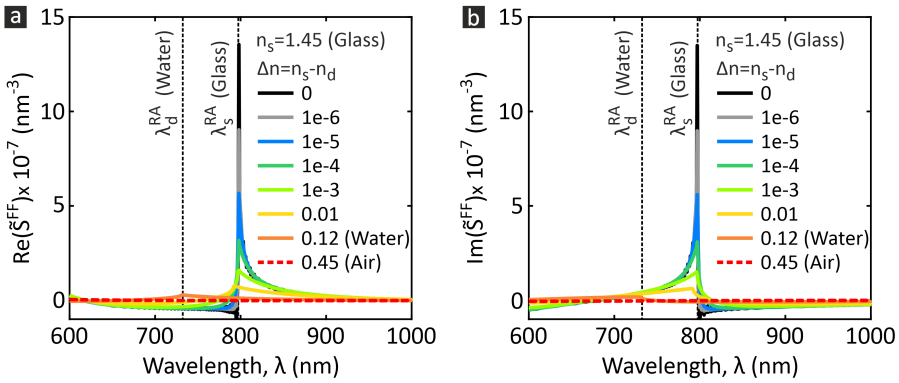


图 8。 **不同基底/上覆介质介电常数对比下的远场晶格求和。**

基底存在时，远场晶格求和 $\tilde{S}^{\mathrm{FF}}$ 的 (a) 实部和 (b) 虚部光谱，其中上覆介质 (n_d) 与基底 (n_s) 之间的折射率对比不同，$\Delta n = (n_\mathrm{s} - n_\mathrm{d})$。黑色竖直虚线表示玻璃基底和水上覆层中的瑞利异常波长。

在 $n_{\mathrm{d}} = n_{\mathrm{s}}$ 处的瑞利异常 $\lambda_{\mathrm{s}}^{\mathrm{RA}}$（红线）处，因为 $r^{(\mathrm{s})} = r^{(\mathrm{p})} = 0$ 和 $\tilde{S}^{\mathrm{FF}} = S^{\mathrm{FF}}$（另见图 6），而在 $n_{\mathrm{d}} \neq n_{\mathrm{s}}$ 处则收敛。

在条件 $R_l >> z_{\mathrm{p}}$ 下，即超表面的周期 P 远大于粒子中心相对于基底表面的位置时，方程 (11) 和 (12) 可写为

$$S^{\mathrm{FF}} \approx \frac{k_{\mathrm{d}}^2}{4\pi} \sum_{l\neq 0}^{\infty} \frac{e^{ik_{\mathrm{d}}R_l}}{R_l} e^{-ik_{\mathrm{d}}z_{\mathrm{p}}^2/R_l} \left[1 - \frac{x_l^2}{R_l^2}\right], \tag{14}$$

$$S^{\mathrm{R,FF}} \approx \frac{k_{\mathrm{d}}^2}{4\pi} \sum_{l\neq 0}^{\infty} \frac{e^{ik_{\mathrm{d}}R_l}}{R_l} e^{ik_{\mathrm{d}}z_{\mathrm{p}}^2/R_l} \left[1 - \frac{x_l^2}{R_l^2}\right] r_l^{(\mathrm{s})}. \tag{15}$$

为评估基底在方程 (15) 中的作用，我们引入有效距离 $\tilde{R} = z_{\mathrm{p}}\sqrt{\varepsilon_{\mathrm{d}}/|\Delta\varepsilon|}$，它与圆盘中心相对于基底表面的位置 ($z_{\mathrm{p}}$) 以及介电对比度 $\Delta\varepsilon$ 有关，并考虑 $r_l^{(\mathrm{s})}$ 的以下极限情况，同时注意到在所研究的系统中，ε_{s} 和 ε_{d} 仅取实数值:

(1) $\Delta\varepsilon = 0$, $\tilde{R} = \infty \quad \Rightarrow \quad r_l^{(\mathrm{s})} = 0$.˜(2) $R_l = R$: 2.1)
$\Delta\varepsilon < 0 \quad \Rightarrow \quad r_l^{(\mathrm{s})} = 1$, 2.2) $\Delta\varepsilon > 0 \quad \Rightarrow \quad r_l^{(\mathrm{s})} =$ (
$1 - \sqrt{2})/(1 + \sqrt{2}) \approx -0.2$; (3) $R_l << \tilde{R}$,
$\Delta\varepsilon \neq 0 \quad \Rightarrow \quad |r_l^{(\mathrm{s})}| << 1$; (4) $R_l >> \tilde{R}$, _
$\Delta\varepsilon \neq 0 \quad \Rightarrow \quad r_l^{(\mathrm{s})} \simeq -1$;

在情况（1）中——超表面处于均匀环境中——不存在反射，且$S^{\mathrm{R,\ FF}} = 0$。如上一节所述，S^{FF} 在RA位置处发散，因此方程（4）有解，从而可以在光谱区域 $\lambda > \lambda^{\mathrm{RA}}$ 激发表面晶格共振（SLR），且与单粒子极化率 [11]无关。此外，远场部分的发散特性取决于˜处偶极子 $R \Rightarrow \infty$的贡献。从实际角度来看，这意味着超表面必须足够大，才能确保SLR激发。

情况（2）是一种中间情形，此时反射系数具有某个固定值，且不依赖于 $|\Delta\varepsilon|$。

情况（3）对应于晶格求和中的短距离项。由于 $|r_l^{(\mathrm{s})}| << 1$，基底对这些项的影响可以忽略不计。

情形（4）——基底上的超表面——总是从某个较大的R_l 开始实现，此时 $r_l^{(\mathrm{s})}$ 实际上等于 -1 和 $\tilde{S}_l^{\mathrm{FF}} \simeq 0$。这意味着其贡献

中较大 R_l 对应项的贡献可以忽略，而 $\tilde{S}^{\mathrm{FF}}$ 必须为有限值，才能使总晶格求和 $\tilde{S}$ 不发散。因此，远场粒子间相互作用可以忽略，近场和中场相互作用占主导地位。由此，可以通过选择 $\Delta\varepsilon$ 来控制 S 和表面晶格共振（SLR）的数值。这也意味着超表面可以相对紧凑，从而使这类系统更具吸引力。

请注意，由于近场项和中场项的贡献不可忽略，$\tilde{S}$（通过数值计算得出，见方法）高于 $\tilde{S}^{\mathrm{FF}}$（通过公式 3 解析计算得出）（图 9）。

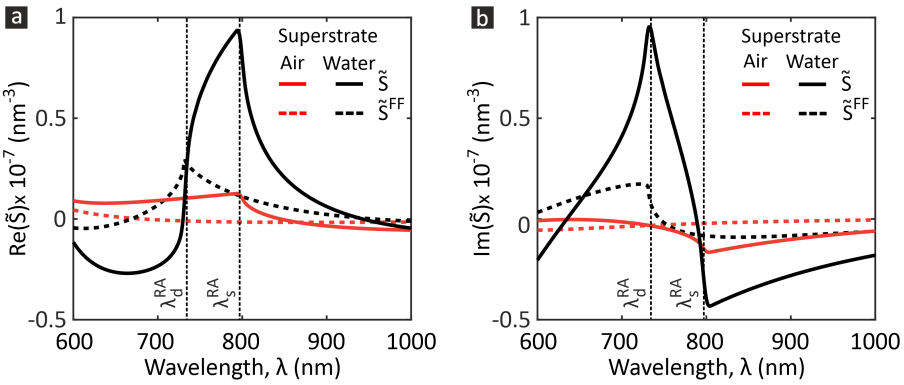


图 9. **存在基底时的偶极子晶格和与共振条件分析。**

空气（红色）和水上覆层（黑色）中，数值计算得到的完整晶格求和 $\tilde{S}$（实线）及其远场部分 $\tilde{S}^{\mathrm{FF}}$（虚线）的（a）实部和（b）虚部光谱。晶格周期为 P=550 nm。

IV. 补充实验与仿真结果

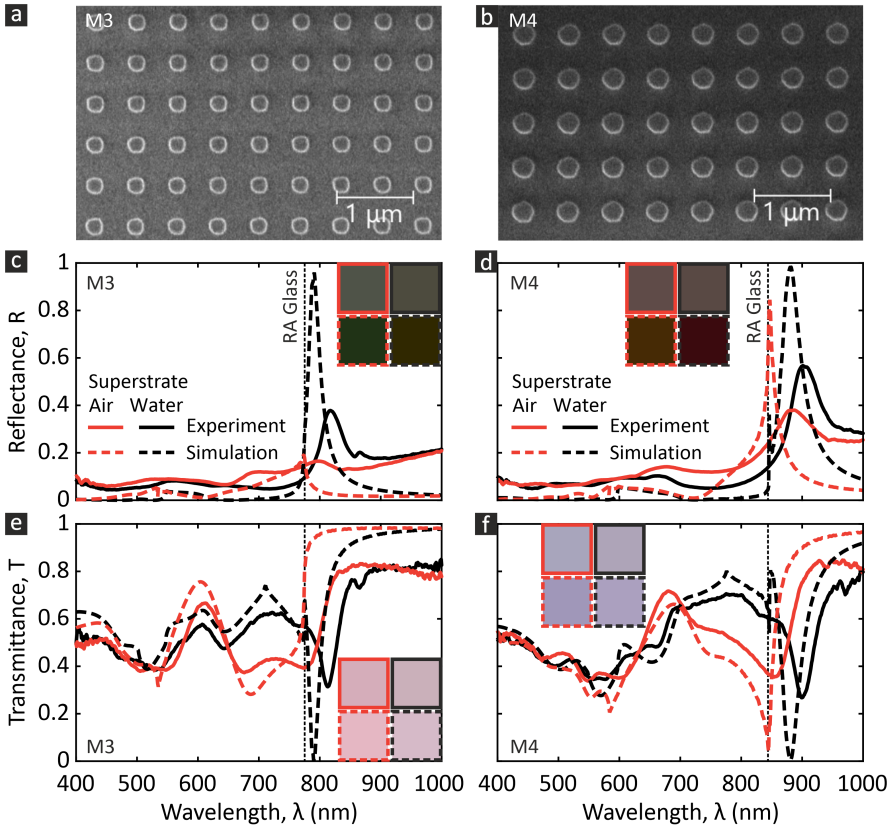


图10. **不同上覆介质下超表面的透射与反射。**

（a、b）制备的超表面的扫描电子显微镜（SEM）图像：（a）M3，其D=225 nm 和 P=535 nm；（b）M4，其 D=285 nm 和 P=585 nm。（c、d）超表面的反射率和（e、f）透射率：（c、e）M3 和（d、f）M4，在（红色曲线）空气和（黑色曲线）水上覆层中分别对应：（实线）实验结果，（虚线）仿真结果。竖直虚线对应于玻璃基底 λ_s^{RA} 的瑞利异常的光谱位置。插图展示了相应光谱的颜色表示。在仿真中，考虑的是无限阵列，且仅计入主要衍射级次的贡献；而测量结果对应于有限尺寸的、尺寸为 100 μm×100 μm 的超表面。

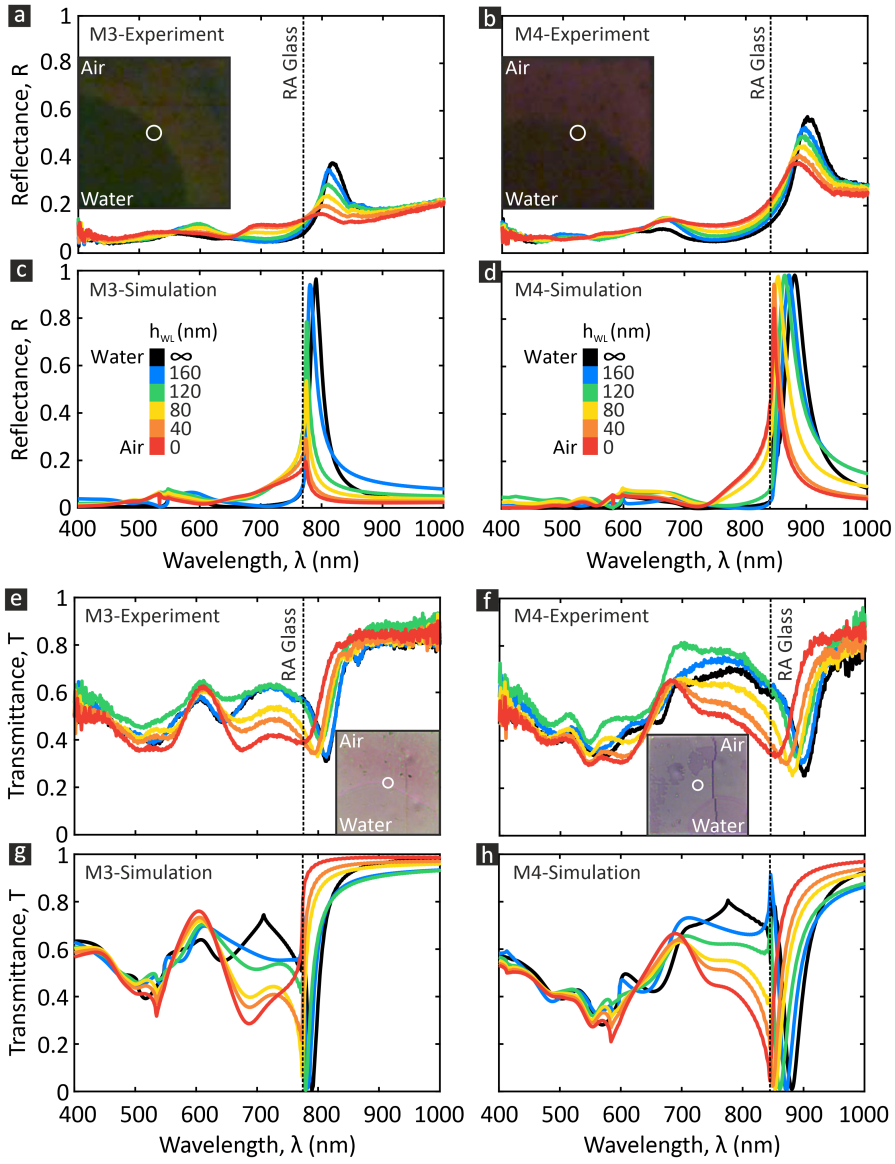


图11。**通过上覆层控制动态调谐超表面的透射与反射**。(a–d) 超表面的反射率和 (e–h) 透射率：(a,c,e,g) M3 和 (b,d,f,h) M4 的上覆介质在空气与水之间动态变化时的表现：(a,b,e,f) 每隔 100 ms 测量一次的实验光谱（分别为补充视频 M3R、M4R、M3T 和 M4T 的截图），(c,d,g,f) 不同水位下的模拟光谱。插图展示了补充视频 M3R、M4R、M3T 和 M4T 中记录的水滴蒸发过程的特定画面。画面中的白色圆圈表示实验中反射光/透射光的收集区域。模拟中考虑了无限阵列，且仅计入主要衍射级次的贡献；而测量结果对应有限尺寸的 100 μm×100 μm 超表面。

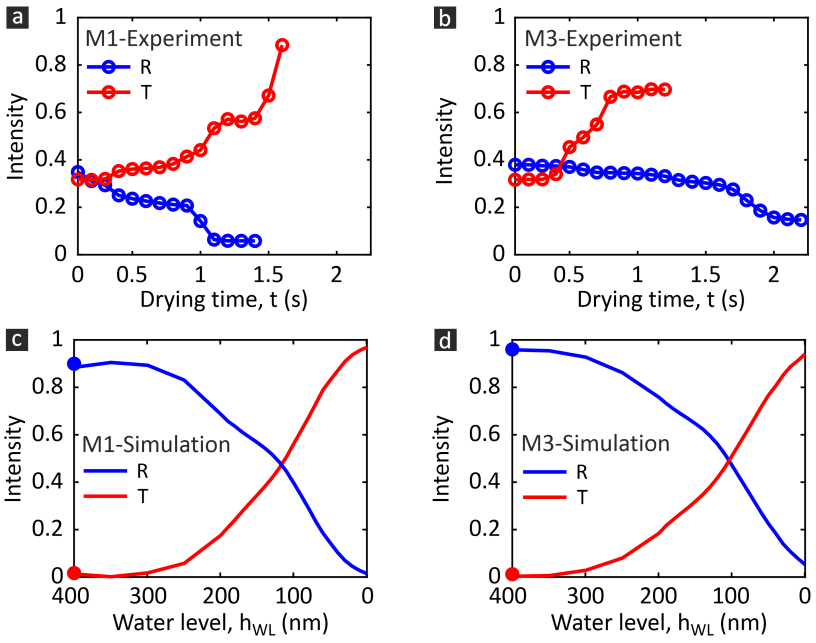


图12。**超表面的共振响应随水位和干燥时间的变化**。共振波长 λ 处的反射率（R，蓝线）和透射率（T，红线）随水位（上方面板，模拟）和干燥时间（下方面板，实验）的变化，其中（a、c）为超表面 M1（λ=735 nm），（b、d）为超表面 M3（λ=815 nm）。(a、b) 中的实心圆表示水位无限高时共振波长处对应的反射率和透射率。

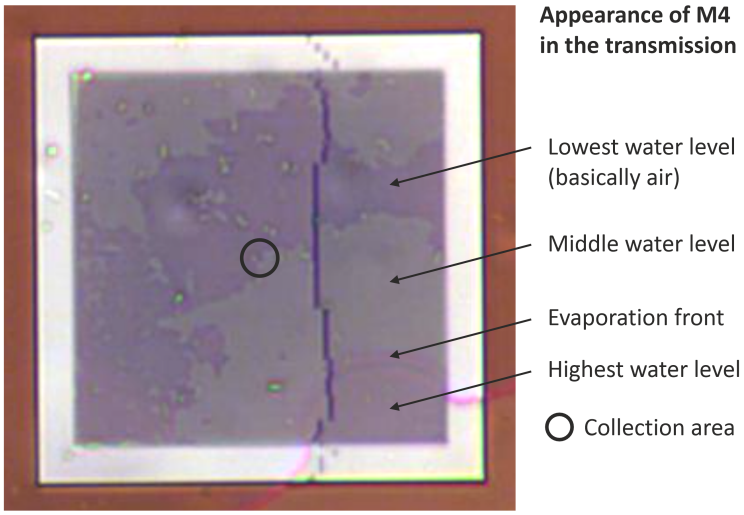


图13。**M4 在透射中的外观快照**。该快照（补充视频-M4T）展示了不同水位下的超表面响应。

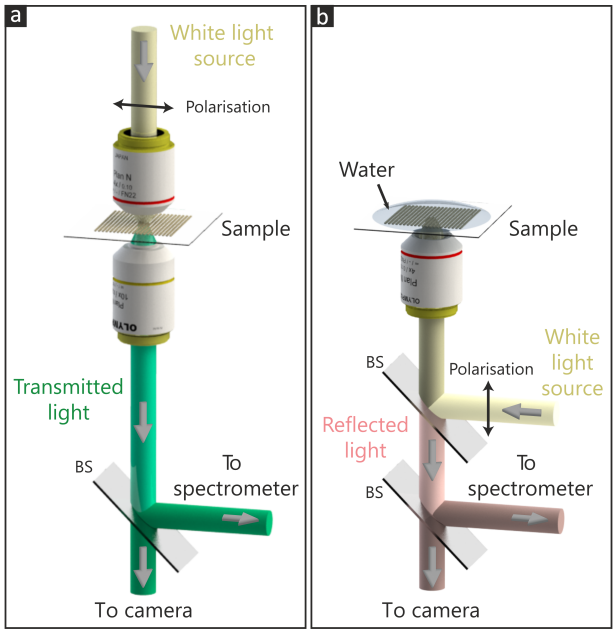


图14。**实验装置示意图**。用于测量 (a) 透射率和 (b) 反射率的实验装置示意图（BS：分束器）。

[1] D. A. Bobylev、D. A. Smirnova 和 M. A. Gorlach，Mie 共振介电粒子的非局域响应，《物理评论B》**102**，115110（2020）。[2] A. Pors、S. K. Andersen 和 S. I. Bozhevolnyi，基底附近纳米粒子的单向散射：广义Kerker条件，《光学快报》**23**，28808（2015）。[3] A. B. Evlyukhin 和 S. I. Bozhevolnyi，小型椭球粒子引起的表面等离激元极化子散射，《表面科学》**590**，173（2005）。[4] F. G. De Abajo，专题综述：粒子与孔阵列的光散射，《现代物理评论》**79**，1267（2007）。[5] A. B. Evlyukhin、C. Reinhardt、A. Seidel、B. S. Luk'yanchuk 和 B. N. Chichkov，硅纳米粒子阵列的光学响应特征，《物理评论B》**82**，045404（2010）。[6] A. B. Evlyukhin、C. Reinhardt、U. Zywietz 和 B. N. Chichkov，具有偶极-四极相互作用的金属纳米粒子阵列中的集体共振，《物理评论B》**85**，245411（2012）。[7] M. Paulus、P. Gay-Balmaz 和 O. J. Martin，分层介质中格林张量的精确高效计算，《物理评论E》**62**，5797（2000）。[8] L. Novotny 和 B. Hecht，《纳米光学原理》（剑桥大学出版社，*2012*）。[9] N. Mahi、G. L´evˆeque、O. Saison、J. Marae-Djouda、R. Caputo、A. Gontier、T. Maurer、P.- M. Adam、B. Bouhafs 和 A. Akjouj，衬底支撑的金属单体与二聚体光栅中晶格等离激元模式的深入研究，《物理化学杂志C》**121**，2388（2017）。[10] A. B. Evlyukhin、C. Reinhardt、E. Evlyukhin 和 B. N. Chichkov，平面表面上任意形状纳米粒子的光散射多极分析，《美国光学学会志B》**30**，2589（2013）。[11] V. A. Markel，偶极子和的发散及一维纳米球周期阵列中非洛伦兹型指数窄共振的本质，《物理学杂志B》**38**，L115（2005）。