



HAL
open science

Modélisation électromagnétique de milieux complexes et métasurfaces à base de nanoparticules : Méthode de la Matrice de Polarisabilité Globale

Maxime Bertrand

► **To cite this version:**

Maxime Bertrand. Modélisation électromagnétique de milieux complexes et métasurfaces à base de nanoparticules : Méthode de la Matrice de Polarisabilité Globale. Physique [physics]. Université de Bordeaux, 2021. Français. NNT : 2021BORD0158 . tel-03344187

HAL Id: tel-03344187

<https://theses.hal.science/tel-03344187>

Submitted on 14 Sep 2021

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE PRÉSENTÉE POUR OBTENIR LE GRADE DE

**DOCTEUR
DE L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX**

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES PHYSIQUES
ET DE L'INGÉNIEUR

LASERS, MATIÈRE ET NANOSCIENCES

Par **Maxime BERTRAND**

**Modélisation électromagnétique de milieux
complexes et métasurfaces à base de
nanoparticules**

Méthode de la Matrice de Polarizabilité Globale

Soutenue le **28 juin 2021** devant le jury composé de :

CANIONI Lionel	Directeur de Recherche	Université de Bordeaux	Examineur
CHAUMET Patrick	Professeur	Université Aix-Marseille	Rapporteur
FLISS Sonia	Maître de Conférences	ENSTA Paris	Examinatrice
GOMARD Guillaume	Ingénieur de Recherche	ZEISS, Karlsruhe	Examineur
LALANNE Philippe	Directeur de Recherche	CNRS, Bordeaux	Directeur
PICHON Lionel	Directeur de Recherche	CNRS, Paris	Rapporteur
VYNCK Kevin	Chargé de Recherche	CNRS, Bordeaux	Co-encadrant

Modélisation électromagnétique des milieux complexes et métasurfaces à base de nanoparticules : La méthode de la Matrice de Polarizabilité Globale

Résumé : Il est aujourd’hui possible de synthétiser une grande variété de nanoparticules électromagnétiques en quantités importantes par voie colloïdale. Ces nanoparticules, potentiellement composites (diélectriques et métalliques) et de forme complexe, peuvent ensuite être auto-assemblées dans des milieux stratifiés. Les nanostructures photoniques et plasmoniques ainsi fabriquées offrent un large éventail de fonctionnalités optiques, comme le contrôle de l’émission, de l’absorption ou de la diffusion de la lumière. Cette richesse est due à la fois aux résonances optiques des particules individuelles, à leurs interactions avec les interfaces du milieu, et à leurs interactions mutuelles à travers l’espace libre et des modes guidés. Prédire quantitativement la réponse optique de telles nanostructures complexes constitue cependant un réel défi, car cela demande d’être capable de modéliser les phénomènes cohérents à la fois à l’échelle (nano) d’une particule et à l’échelle (méso) de l’ensemble de particules en interaction. Le présent manuscrit introduit une nouvelle méthode numérique, appelée méthode de la Matrice de Polarizabilité Globale (GPM), développée dans le cadre de la thèse pour relever ce défi. La méthode consiste à trouver un petit ensemble d’éléments polarisables fictifs – les « dipôles numériques » – qui reproduise le champ diffusé par une particule arbitraire pour n’importe quelle excitation (en champ proche ou en champ lointain). La GPM de l’ensemble de dipôles numériques est déterminée numériquement en résolvant un problème inverse. Ce problème inverse est constitué à partir d’une série de simulations réalisées avec un solveur externe des équations de Maxwell. Une fois la GPM connue, les problèmes de diffusion multiple dans des grands ensembles de particules dans des milieux stratifiés peuvent être résolus via un formalisme de tenseur de Green, y compris lorsque des particules se trouvent proches les unes des autres, d’interfaces planes, ou de sources de lumière localisées. Dans ce manuscrit, on décrit la méthode GPM et on analyse ses performances dans le cadre de la diffusion par une particule et de la diffusion multiple. Dans une dernière partie, on introduit le concept de GPM « habillée » pour étendre la méthode aux cas où des particules sont directement en contact avec des interfaces, ouvrant ainsi assurément de nouvelles perspectives dans la modélisation des milieux complexes et métasurfaces à base de nanoparticules.

Mots-clés : Nanophotonique, méthode numérique, problème inverse, champ proche, diffusion multiple, milieux désordonnés

Electromagnetic modeling of nanoparticle-based complex media and metasurfaces: The Global Polarizability Matrix method

Abstract: A great variety of electromagnetic nanoparticles, possibly mixing dielectric and metallic materials and having a complex shape, can nowadays be synthesized on large quantities by colloidal means and then self-assembled in stratified media. These complex photonic and plasmonic nanostructures offer a wide panel of optical functionalities, such as control of light emission, absorption or diffuse scattering, thanks to the optical resonances of the individual particles, their interaction with the interfaces and their mutual interaction via free space and guided modes. Predicting quantitatively the optical response of such complex nanostructures is however a real challenge because it requires being able to model coherent phenomena at both levels of a particle (nano-scale) and of an ensemble of interacting particles (meso-scale). The present manuscript introduces a new numerical method, named Global Polarizability Matrix (GPM) method, developed during this thesis to tackle this challenge. The method consists of finding a small set of fictitious polarizable elements – or “numerical dipoles” – that can reproduce the near field scattered by an arbitrary particle for any (near- or far-field) excitation. The GPM of the dipole set is determined numerically by solving an inverse problem relying on full-wave simulation data obtained with an external Maxwell’s equations solver. Once known, multiple scattering problems by large ensembles of particles in stratified media can be solved with a Green tensor formalism, even in cases of particles interacting in the near field of each other, of planar interfaces, or of localized light sources. In this manuscript, we describe the GPM method and analyze its performance in single and multiple scattering problems. In a last part, we generalize the method to handle particles directly in contact with interfaces by introducing the concept of “dressed” GPM, thereby firmly opening novel perspectives in modeling of nanoparticle-based complex media and metasurfaces.

Keywords: Nanophotonics, numerical method, inverse problem, near field, multiple scattering, disordered media

Unité de recherche

UMR 5298 – Laboratoire Photonique, Numérique et Nanosciences (LP2N)
Avenue des Facultés, 33400 Talence, France

À mon père.

TABLE DES MATIÈRES

Liste des acronymes	11
Liste des figures	15
Liste des tableaux	17
Introduction	19
1 Diffusion de la lumière par des particules	27
1.1 Théorie de la diffusion des ondes électromagnétiques	27
1.1.1 Équations de Maxwell	28
1.1.2 Équations de Helmholtz	28
1.1.3 Problème de diffusion	29
1.1.4 Équation pour le champ diffusé	30
1.1.5 Tenseur de Green	30
1.1.6 Équation intégrale	33
1.1.7 Opérateur de transition	33
1.1.8 Diffusion multiple	34
1.2 Méthodes de modélisation	36
1.2.1 Discrete Dipole Approximation	37
1.2.2 Matrice T	39
1.2.3 Generalized Multipole Technique	40
1.2.4 Application à la diffusion multiple	42
2 Méthode de la matrice de polarisabilité globale (GPM)	49
2.1 Concept et formalisme	49
2.2 Implémentation numérique	53
2.2.1 Étapes principales de la méthode	53
2.2.2 Systèmes surdéterminés, pseudo-inverses et régularisation	55
2.3 Exemple d'application : cylindre diélectrique dans un milieu homogène	57

2.3.1	Étude des paramètres principaux de la méthode	57
	Sources d'apprentissage	58
	Surface et points d'apprentissage	62
	Dipôles numériques	64
2.3.2	Matrice de polarisabilité globale (GPM)	67
2.3.3	Généralisation pour des excitations arbitraires	69
2.4	Conclusion du chapitre 2	72
3	Méthode de la GPM pour la diffusion multiple	77
3.1	Formalisme de la diffusion multiple entre dipôles numériques	77
3.2	Diffusion multiple pour des interactions en champ proche	79
3.2.1	Interaction entre deux cylindres	80
3.2.2	Interaction entre un cylindre et une interface plane	82
3.2.3	Diffusion multiple dans un système périodique	82
3.2.4	Diffusion multiple par un ensemble dense dans un milieu stratifié .	85
3.3	Modélisation de grands ensembles	87
3.3.1	Évolution de la charge de calcul	88
3.3.2	Propagation de l'erreur	89
3.4	Conclusion du chapitre 3	92
4	GPM habillée pour les particules en contact avec des interfaces	95
4.1	GPM habillée	95
4.1.1	Motivations	95
4.1.2	Implémentation	96
4.1.3	Diffusion multiple	98
4.2	Validation de la méthode GPM habillée : parallélépipède diélectrique sur substrat diélectrique	99
4.2.1	Apprentissage	100
4.2.2	Résultats	104
4.3	Exemples d'application	110
4.3.1	Nanocubes métalliques sur substrat métallo-diélectrique	110
4.3.2	Trous dans une couche diélectrique	116
4.4	Conclusion du chapitre 4	120

Conclusions et perspectives	123
Optimisation de la méthode pour une particule	125
Nanoparticules complexes	126
Vers la modélisation de systèmes réels?	126
Au-delà de la diffusion par des nanoparticules	127
Benchmark et déploiement dans la communauté scientifique	127

LISTE DES ACRONYMES

BEM	<i>Boundary Element Method</i>
DDA	<i>Discrete Dipole Approximation</i>
DSM	<i>Discrete Sources Method</i>
EBCM	<i>Extended Boundary Condition Method</i>
EFIE	<i>Electric Field Integral Equation</i>
EM	<i>Electromagnetic</i>
FEM	<i>Finite Element Method</i>
GMT	<i>Generalized Multipole Technique</i>
GPM	<i>Global Polarizability Matrix</i>
LDOS	<i>Local Density Of States</i>
MIM	<i>Metal-Insulator-Metal</i>
MMP	<i>Multiple Multipole Program</i>
NFFT	<i>Near-to-Far-Field Transformation</i>
NFM	<i>Null-Field Method</i>
NFM-DS	<i>Null-Field Method with Discrete Sources</i>
OLED	<i>Organic Light-Emitting Device</i>
RAM	<i>Random Access Memory</i>
RSA	<i>Random Sequential Addition</i>
SERS	<i>Surface Enhanced Raman Spectroscopy</i>
SIE	<i>Surface Integral Equation</i>
SNOM	<i>Scanning Near-field Optical</i>
SPP	<i>Surface Plasmon Polariton</i>
SVD	<i>Singular Value Decomposition</i>
TE	Tranverse Électrique
TM	Tranverse Magnétique
TSVD	<i>Truncated Singular Value Decomposition</i>
VIE	<i>Volume Integral Equation</i>
VSHs	<i>Vector Spherical Harmonics</i>

TABLE DES FIGURES

1	Nouvelles nanoparticules colloïdales complexes pour l'optique.	21
2	Ensembles désordonnés de nanoparticules dans des empilements de couches minces.	22
1.1	Illustration d'un problème de diffusion classique.	29
1.2	Illustration de la fonction dyadique de Green.	31
1.3	Cartes du champ rayonné par un dipôle ponctuel dans un milieu homogène infini.	32
1.4	Illustration de la <i>Discrete Dipole Approximation</i> (DDA).	37
1.5	Illustration de la différence d'approche entre la méthode de la matrice T et la DDA.	40
1.6	Illustration de la <i>Generalized Multipole Technique</i> (GMT).	41
1.7	Modélisation d'un ensemble très dense d'environ 1600 petites nano-étoiles en or via une méthode SIE.	43
1.8	Modélisation d'un ensemble très dense de 2500 nano-sphères diélectriques via des méthodes basées sur la matrice T.	44
1.9	Convergence du champ proche diffusé par un cylindre allongé avec la matrice T.	45
1.10	Modélisation d'une particule allongée posée sur un substrat via une variante de la méthode de la matrice T.	46
1.11	Modélisation d'un ensemble dense de 20 particules diélectriques allongées via une variante de la méthode de la matrice T.	47
2.1	Illustration du concept de la méthode GPM.	50
2.2	Illustration des 3 paramètres principaux de la méthode GPM.	59
2.3	Convergence du champ diffusé au niveau de la surface d'apprentissage en fonction de sa distance d_1 à la particule.	63
2.4	Convergence du champ diffusé au niveau de la surface d'apprentissage en fonction du nombre N_d de dipôles numériques utilisé, dans différentes configurations.	65

TABLE DES FIGURES

2.5	Effets de différentes régularisations sur la qualité de la GPM calculée en fonction du nombre N_d de dipôles numériques sur l'axe du cylindre.	66
2.6	Matrice de polarisabilité globale (GPM).	68
2.7	Reproduction du champ proche pour une source apprise.	69
2.8	Capacité à généraliser pour des sources non- apprises.	70
2.9	Généralisation à des ondes planes.	71
3.1	Implémentation de la diffusion multiple dans un milieu stratifié avec la méthode GPM.	78
3.2	Modélisation de l'interaction en champ proche de deux particules.	81
3.3	Évolution de l'erreur avec la distance entre deux particules.	82
3.4	Modélisation de l'interaction entre une particule et une interface proche.	83
3.5	Transmission d'un réseau 2D de cylindres.	85
3.6	Modélisation d'un ensemble dense de particules dans un milieu stratifié.	86
3.7	Évolution de la mémoire physique requise en fonction du nombre de cylindres de l'ensemble à modéliser.	89
3.8	Évolution du temps de calcul en fonction du nombre de cylindres de l'ensemble à modéliser.	90
3.9	Évolution de l'erreur sur la section efficace de diffusion en fonction du nombre de cylindres de l'ensemble à modéliser.	91
4.1	Illustration du concept de la GPM habillée.	97
4.2	Implémentation de la diffusion multiple dans un milieu stratifié avec la GPM habillée.	99
4.3	Configuration de l'apprentissage et GPM habillée calculée pour un parallélépipède en Si posé sur un substrat en SiO ₂	101
4.4	Reproduction du champ proche pour une source ponctuelle apprise.	104
4.5	Prédictions de la LDOS pour une source ponctuelle non- apprise.	106
4.6	Prédictions de la section efficace de diffusion du système.	106
4.7	Reproduction du champ proche pour une illumination par une onde plane.	107
4.8	Prédiction de la section efficace de diffusion de deux parallélépipèdes en forte interaction.	108
4.9	Reproduction du champ proche diffusé par deux parallélépipèdes en forte interaction.	109

4.10	Prédictions de la section efficace de diffusion de deux parallélépipèdes séparés d'une distance variable.	109
4.11	Configuration de l'apprentissage et GPM habillée calculée pour un nanocube d'argent couplé à un film en or.	112
4.12	Reproduction du plasmon de gap sous un nanocube métallique couplé à un film métallique.	114
4.13	Absorption d'un réseau 2D de nanocubes métalliques couplés à un film métallique.	115
4.14	Modélisation d'un ensemble désordonné de 7 nanocubes métalliques couplés à un film métallique.	116
4.15	Système étudié et configuration de l'apprentissage.	117
4.16	Modélisation du champ total dans une couche de GaAs perforée d'un ensemble désordonné de 33 trous.	118
4.17	Modélisation du couplage aux modes guidés dans une couche de GaAs perforée d'un ensemble désordonné de 33 trous.	119
4.18	Modélisation de la lumière extraite d'une couche de GaAs perforée d'un ensemble désordonné de 33 trous.	120

LISTE DES TABLEAUX

2.1	Erreur sur le champ diffusé au niveau de la surface d'apprentissage en fonction des sources utilisées pour l'apprentissage.	61
2.2	Comparaison de la précision numérique, du temps d'utilisateur et de la mémoire physique utilisée pour la méthode GPM et une méthode numérique basée sur des dipôles physiques (couplés).	73
4.1	Convergence du champ diffusé au niveau de la surface d'apprentissage en fonction de sa distance d_1 à la surface de la particule.	102

INTRODUCTION

“There’s plenty of room at the bottom – An invitation to enter a new field of physics” C’est ainsi que Feynman baptisait sa désormais célèbre conférence de 1959 [Feynman, 1960], au cours de laquelle il allait prophétiser l’avènement des nanosciences et nanotechnologies. Preuve s’il en fallait du caractère visionnaire de son discours, le préfixe « nano- » est venu se greffer devant nombre de domaines de recherche scientifique : nanomédecine, nanoélectronique, nanobiotechnologie, nanomécanique, ...

L’optique n’est pas en reste, avec l’apparition de la nanophotonique et son essor à la fin des années 80. Ce moment correspond aux premières démonstrations de la possibilité de faire apparaître des bandes interdites photoniques dans des structures diélectriques possédant une modulation périodique de leur indice de réfraction dans toutes les dimensions de l’espace [John, 1987; Yablonovitch, 1987]. La découverte de ces structures, appelées « cristaux photoniques », a ouvert le champ des possibles pour contrôler l’émission et le confinement de la lumière [Joannopoulos *et al.*, 2008]. En parallèle, des travaux précurseurs ont été conduits en plasmonique autour des phénomènes optiques dans les surfaces et nanoparticules métalliques [Barnes *et al.*, 2003]. En particulier, la possibilité de confiner la lumière dans des volumes extrêmement sub-longueur d’onde a définitivement placé l’optique au coeur des nanotechnologies [Schuller *et al.*, 2010]. Au début du siècle, la rencontre des concepts sur les cristaux photoniques et la plasmonique a fait s’élever la recherche en nanophotonique à un niveau encore supérieur. Il a alors été montré dans une série de travaux que des arrangements périodiques de nanorésonateurs métalliques pourraient reproduire le comportement d’un milieu homogène aux propriétés optiques complètement inédites. Cette idée permettrait de façonner la permittivité et la perméabilité des structures ainsi créées, appelées « métamatériaux », offrant des possibilités uniques pour contrôler la propagation de la lumière [Soukoulis et Wegener, 2011]. L’attention de la communauté se porte maintenant vers les équivalents 2D des métamatériaux, les « métasurfaces ». Celles-ci sont plus faciles à fabriquer et sont beaucoup moins affectées par les pertes liées à l’absorption dans le métal [Meinzer *et al.*, 2014]. En optimisant les nanorésonateurs et en contrôlant leur arrangement spatial sur un substrat planaire (diélectrique ou métallique), de nouvelles fonctionnalités très recherchées comme le contrôle

du front d'onde ou l'imagerie sub-longueur d'onde semblent à portée de main.

C'est un autre domaine des nanosciences qui vient renforcer cet espoir de faire des nanoparticules les briques de base des technologies nanophotoniques de demain. En effet, les trois dernières décennies ont vu se développer de manière considérable les techniques dites ascendantes (*bottom-up*) de synthèse de nano-objets. L'idée derrière ces techniques physico-chimiques est l'illustration parfaite de la vision de Feynman : on part de l'atome pour fabriquer des structures cohérentes nanométriques. Elles mettent à disposition des chercheurs et ingénieurs toute une palette de nouvelles nanoparticules différentes. Ces nanoparticules colloïdales sont en particulier capables d'interagir fortement avec la lumière malgré leur petite taille et ce sur une large gamme de longueurs d'onde, offrant un éventail riche de propriétés optiques à exploiter.

Les premiers travaux ont essentiellement été dédiés au contrôle de la forme des nanoparticules (sphères, ellipsoïdes, nanofils, nanotiges, ...) [Mock *et al.*, 2002; Sun et Xia, 2002; Xia et Halas, 2005; Sau et Rogach, 2010]. Un grand pas en avant a ensuite été effectué avec la réalisation de nanoparticules métallo-diélectriques (voir Fig. 1), celles-ci manifestant des résonances beaucoup plus fortes que leur homologues purement diélectriques ou purement métalliques (plasmoniques). Leur fréquence de résonance peut de plus généralement être ajustée à volonté, du domaine du visible à celui de l'infrarouge [Oldenburg *et al.*, 1998]. En incorporant des matériaux à hauts indices, en brisant la symétrie [Wang *et al.*, 2006], ou en formant de petits agrégats de nanoparticules [Fan *et al.*, 2010], on est par ailleurs en mesure d'exciter des résonances d'ordre supérieur au lieu des résonances dipolaires électriques et magnétiques classiques. Cela permet par exemple de contrôler la directivité de la lumière émise [Fu *et al.*, 2013], ou bien encore celle de la lumière diffusée en fonction de la fréquence, de l'angle et de la polarisation de la lumière incidente [Mirin et Halas, 2009]. Les nanoparticules évoquées peuvent à elles seules être à l'origine d'innovations variées, par exemple en tant que sondes locales pour l'imagerie biomédicale [Lal *et al.*, 2007], mais elles peuvent surtout constituer des briques de base dans la conception de nanostructures plus avancées.

En effet, les nanoparticules colloïdales peuvent être synthétisées en grandes quantités et auto-assemblées sur ou dans des empilements de couches minces métallo-diélectriques possédant des modes guidés photoniques et/ou plasmoniques. Les possibilités offertes par la nanostructure complexe ainsi formée sont alors décuplées : aux propriétés optiques remarquables des nanoparticules individuelles s'ajoutent des effets exotiques provenant des interactions électromagnétiques entre les nanoparticules et les interfaces planes, et

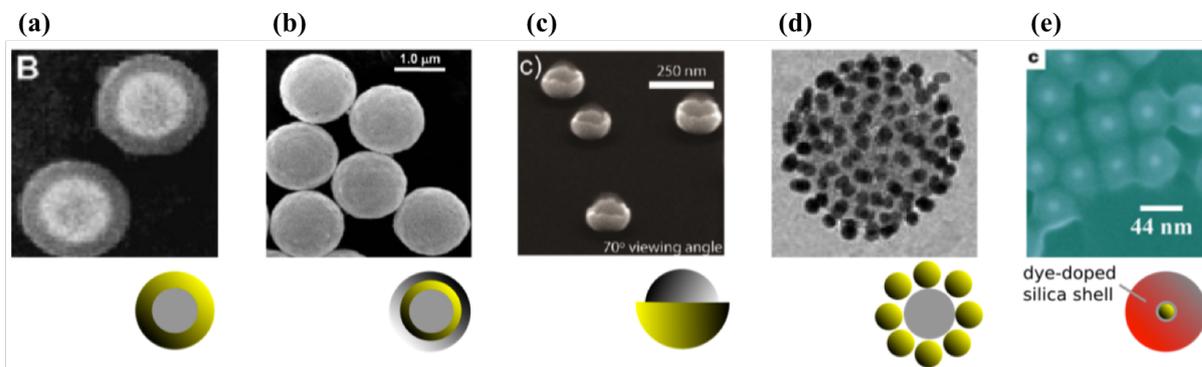


FIGURE 1 – Les nouvelles nanoparticules complexes et composites offrent des propriétés optiques riches. (a) Les nanoparticules à structure coeur-coquille (*core-shell*) [Oldenburg *et al.*, 1998] et (b) les nanoparticules métal-diélectrique-métal [Prodan *et al.*, 2003] exhibent de fortes résonances accordables en fréquence; (c) Les *nanocups* apportent une grande directivité de la lumière diffusée [King *et al.*, 2011]; (d) Les agrégats de nanoparticules métalliques autour d’une nanoparticule diélectrique offrent une résonance dipolaire magnétique [Ponsinet *et al.*, 2015]; (e) Une nanoparticule métallique avec une coquille diélectrique contenant des molécules fluorescentes a permis la réalisation d’un nano-laser (*spaser*) [Noginov *et al.*, 2009].

entre les nanoparticules elles-mêmes [Castanié *et al.*, 2012; Miroshnichenko *et al.*, 2015; Leseur *et al.*, 2016]. La formation de nouveaux modes résonants hybrides {nanoparticule + substrat} permet par exemple d’obtenir des (méta)surfaces présentant une très forte absorption sélective en fréquence et peu dépendante de l’angle d’incidence (« absorbeurs parfaits ») [Moreau *et al.*, 2012; Akselrod *et al.*, 2015] (voir Fig. 2(a)). Par ailleurs, utiliser des nanorésonateurs avec des résonances dipolaires électrique et magnétique rend possible la conception de (méta)matériaux avec des permittivités et perméabilités effectives très dispersives [Mühlig *et al.*, 2011; Baron *et al.*, 2016] pour contrôler la propagation de la lumière. Ces modes hybrides sont accompagnés de modes collectifs liés au phénomène de diffusion multiple à l’échelle de l’ensemble désordonné de nanoparticules. Ces derniers peuvent par exemple servir à améliorer l’extraction de la lumière dans les OLEDs [Gomard *et al.*, 2016; Jouanin *et al.*, 2016; Donie *et al.*, 2020] (voir Fig. 2(b)), en imposant une corrélation sur la position relative des nanoparticules de l’ensemble. Ce concept a également été étudié dans des systèmes analogues pour maîtriser le couplage de la lumière entre les modes guidés de la structure et l’espace libre [Vynck *et al.*, 2012], ce qui ouvre la voie, entre autres, vers un meilleur piégeage de la lumière dans les cellules photovoltaïques dans le but d’améliorer leur efficacité [Trompoukis *et al.*, 2016]. Les modifications de la réponse optique macroscopique apportées par de telles métasurfaces désordonnées ouvrent

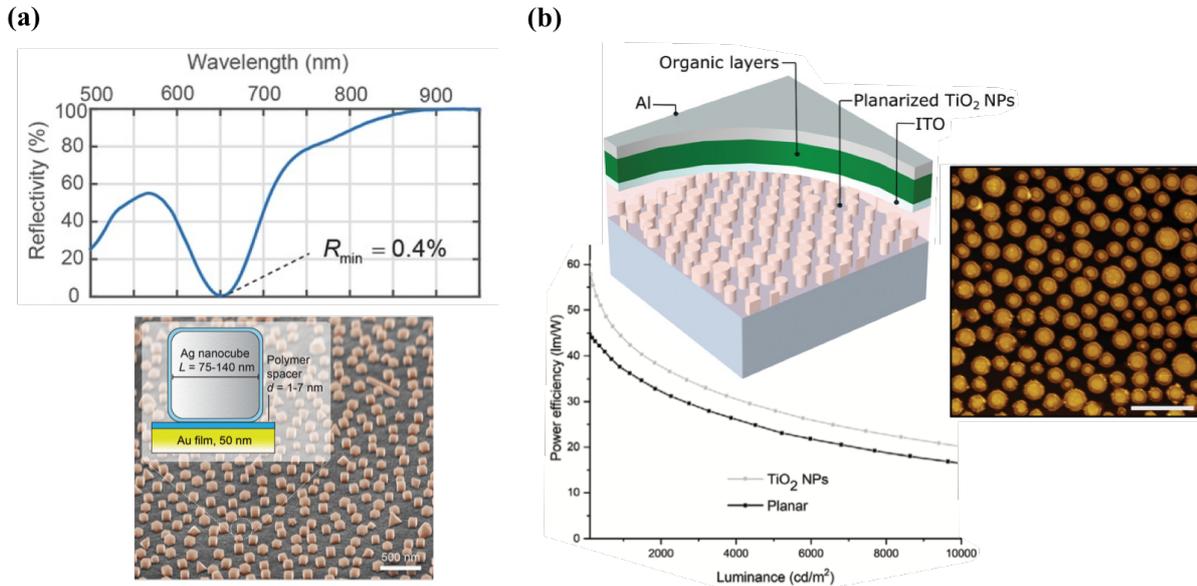


FIGURE 2 – Les nanostructures faites d’ensembles désordonnés de nanoparticules en interaction dans des empilements de couches minces représentent un fort potentiel technologique. **(a)** Un ensemble désordonné de nanocubes métalliques placé sur un empilement de couches minces métallo-diélectrique a permis la réalisation d’un « absorbeur parfait » grâce à la formation d’un mode hybride confiné sous les nanoparticules [Akselrod *et al.*, 2015]; **(b)** Un ensemble désordonné de nanotiges diélectriques incorporé dans l’empilement de couches minces d’un OLED a permis d’améliorer son efficacité énergétique en modifiant la manière dont est diffusée la lumière [Donie *et al.*, 2020].

également de nouvelles perspectives dans le domaine de la réalité augmentée [Hsu *et al.*, 2014] ainsi que dans la création d’apparences visuelles nouvelles pour les arts, la mode ou encore le design d’intérieur [Vynck *et al.*, soumis].

On voit donc que les ensembles désordonnés de nanoparticules fortement résonantes et en interaction dans des empilements de couches minces offrent un grand nombre de degrés de liberté pour créer des réponses optiques aussi complexes que variées. La possibilité de fabriquer ces nanostructures à bas coût dans un futur proche les rend très prometteuses pour le développement de nouvelles fonctionnalités dans les technologies photoniques. Malgré le fort potentiel scientifique et technologique que représentent ces milieux complexes et métasurfaces à base de nanoparticules, les efforts pour en tirer parti sont restés relativement rares. Ceci s’explique en grande partie par le manque d’outils de modélisation adaptés pour en avoir une réelle compréhension physique et apprendre à les concevoir. Pour cause, prédire théoriquement ou numériquement les propriétés optiques de

ces systèmes constitue aujourd'hui un défi de taille. Cela nécessite de simuler des phénomènes cohérents engendrés depuis l'échelle nanoscopique – au niveau de la nanoparticule individuelle – jusqu'à l'échelle mésoscopique – au niveau de l'ensemble de nanoparticules. D'un côté, les phénomènes à l'échelle nanoscopique sont généralement étudiés via des méthodes de résolution directe des équations de Maxwell (FDTD, éléments finis, ...) qui sont bien trop lourdes numériquement pour analyser des ensembles non-périodiques lorsque que le nombre de nanoparticules est important (au-delà de quelques dizaines) ou que le système est spatialement étendu (au-delà de quelques longueurs d'onde). De l'autre côté, la méthode la plus efficace pour traiter la diffusion multiple dans de grands ensembles (*superposition T-matrix*) est limitée dès lors que les nanoparticules interagissent en champ proche avec une ou plusieurs interfaces et/ou entre elles.

L'objectif principal de cette thèse était de proposer un outil permettant de combler ce manque pour espérer enfin exploiter pleinement tout le potentiel des milieux complexes et métasurfaces à base de nanoparticules. On a donc cherché à développer une méthode numérique capable de simuler efficacement la diffusion de la lumière dans de grands ensembles désordonnés de nanoparticules incorporés dans des empilements de couches minces, et ce même dans les cas de fortes interactions entre les nanoparticules et des interfaces planes et/ou entre les nanoparticules elles-mêmes. C'est la progression vers ce but ultime qui est présentée dans les chapitres 2, 3 et 4, avec une complexité croissante des problèmes considérés.

Chapitre 1

Dans le chapitre 1, on introduit des concepts de base d'électromagnétisme et de la diffusion de la lumière par des particules, ceci afin de donner les outils nécessaires à la compréhension des principaux enjeux de la thèse. On présente ensuite trois méthodes de modélisation électromagnétique qui nous permettent de faire un état-de-l'art de la modélisation de la diffusion multiple dans des ensembles de particules.

Chapitre 2

Dans le chapitre 2, on présente la méthode de la Matrice de Polarisabilité Globale (GPM) [Bertrand *et al.*, 2020], développée dans le cadre de la thèse pour répondre à la problématique formulée précédemment. La méthode GPM consiste à trouver un *petit* ensemble d'éléments polarisables fictifs pour reproduire le champ diffusé par une particule d'intérêt. Cette représentation, qui se veut légère, doit tout de même permettre des prédictions quantitatives du champ diffusé, y compris dans la zone de champ proche. Pour parvenir à ce compromis, on utilise des éléments polarisables d'un genre nouveau, appelés « dipôles numériques ».

Les dipôles numériques ne sont pas couplés de manière classique, comme le seraient des dipôles physiques. Au contraire, le couplage entre les dipôles numériques correspond à des degrés de liberté supplémentaire à exploiter pour décrire le problème de diffusion. Les degrés de liberté dont on dispose sont les éléments de la GPM, la matrice complexe qui décrit le comportement de l'ensemble de dipôles numériques. L'approche numérique pour calculer cette GPM est également présentée. Le calcul nécessite de résoudre un problème inverse constitué à partir de données issues d'une série de simulations indépendantes réalisées sur la particule avec un solveur externe des équations de Maxwell (ensemble d'apprentissage).

Finalement, à travers l'exemple d'un cylindre diélectrique allongé et fortement résonant, on illustre le calcul de la GPM. On cherche ensuite à valider la méthode dans le cadre de la diffusion par une particule individuelle en comparant diverses prédictions à des données de référence. On veut en particulier montrer qu'on est capable de reproduire le champ proche diffusé par la particule avec peu de dipôles numériques, et ce pour n'importe quelle excitation (sources ponctuelles en champ proche et ondes planes) à la fréquence désirée.

Chapitre 3

Dans le chapitre 3, on s'intéresse naturellement à l'application de la méthode GPM à la résolution de problèmes de diffusion multiple [Bertrand *et al.*, 2020], ce pour quoi elle a été développée. On présente le formalisme de diffusion multiple associé à la méthode GPM, où chaque particule du système considéré est logiquement remplacée par l'ensemble de ses dipôles numériques. Le problème de diffusion multiple peut alors être résolu, y compris dans un milieu stratifié, en prenant en compte les interactions entre dipôles numériques via des tenseurs de Green.

On reprend également la GPM validée dans le chapitre 2 pour modéliser des ensembles de cylindres. À nouveau, on présente divers résultats pour tester puis valider la méthode, en particulier dans les cas critiques où des particules sont très proches les unes des autres ou d'interfaces. On cherche également à légitimer l'utilisation de la méthode pour la modélisation de grands ensembles, en étudiant deux points cruciaux : la propagation de l'erreur initiale sur la prédiction du champ diffusé par la particule individuelle, et l'évolution de la demande en ressources de calcul.

Chapitre 4

Dans le chapitre 4, on présente une généralisation de la méthode GPM initiale. Celle-ci repose sur l'introduction d'une nouvelle GPM, dite « habillée », qui permet d'élargir son domaine d'application aux cas où des particules sont directement en contact avec des interfaces planes [Bertrand *et al.*, en préparation]. Ceci permet en principe notamment de considérer des systèmes où les particules sont posées sur un substrat, comme c'est le cas dans la plupart des métasurfaces. La GPM habillée doit être apprise à partir de calculs électromagnétiques réalisés sur le système {particule + milieu stratifié} afin d'encoder l'interaction entre la particule et le milieu stratifié. La résolution du problème de diffusion multiple est ensuite traitée avec un formalisme très similaire à celui utilisé avec la GPM des chapitres 2 et 3.

Toujours dans une démarche de validation, on applique la généralisation de la méthode GPM à trois systèmes très différents : un parallélépipède diélectrique sur une interface air-verre, un nanocube métallique couplé à un substrat métallique, et un trou d'air dans une membrane diélectrique à fort indice.

DIFFUSION DE LA LUMIÈRE PAR DES PARTICULES

Dans ce chapitre 1, on introduit des concepts de base d'électromagnétisme et de la diffusion de la lumière par des particules, nécessaires à la compréhension des principaux enjeux de cette thèse. On fait ensuite un état de l'art des méthodes numériques pour la modélisation de la diffusion multiple de la lumière dans des ensembles désordonnés de particules. L'accent est mis sur trois d'entre elles pour mieux appréhender par la suite leurs points communs et différences avec la méthode développée dans le cadre de la thèse, qui est présentée dans les chapitres suivants.

1.1 Théorie de la diffusion des ondes électromagnétiques

La diffusion de la lumière par des particules est un sujet ancien, puisqu'il a suscité l'intérêt de théoriciens dès la fin du 19^{ème} siècle, duquel sont nés les travaux fondateurs de Clebsch, Lorenz, Mie et Debye sur la diffusion par une particule sphérique homogène et isotrope [Clebsch, 1863; Lorenz, 1890; Mie, 1908; Debye, 1909]. Mie cherchait initialement à expliquer les différentes couleurs affichées par des suspensions colloïdales de petites sphères métalliques, mais la théorie qui porte son nom allait avoir une portée bien plus large. En effet, la diffusion de la lumière est omniprésente autour de nous, et son étude est aujourd'hui devenue d'une importance majeure dans bien des domaines [van de Hulst, 1981; Doicu *et al.*, 2006; Bohren et Huffman, 2008] : en météorologie, en astronomie et astrophysique, en océanographie, en biologie médicale, dans les télécommunications et technologies photoniques... Malgré cette grande diversité des applications et la complexité croissante des particules considérées (non-sphériques, hétérogènes, chirales,

anisotropes, ...), les problèmes peuvent tous être abordés par le même prisme, celui de l'électromagnétisme (classique) des équations de Maxwell.

1.1.1 Équations de Maxwell

On considère dans un premier temps un milieu homogène infini, linéaire, isotrope et non-magnétique dans lequel sont présentes des sources de courant et des charges. On s'intéresse aux champs électromagnétiques monochromatiques générés dans ce milieu à la fréquence angulaire ω , de la forme $\Psi(\mathbf{r}, t) = \text{Re}\{\Psi(\mathbf{r}) \exp(-i\omega t)\}$. Dans ces conditions, les amplitudes complexes des champs recherchés obéissent aux équations de Maxwell harmoniques :

$$\left\{ \begin{array}{l} \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}) = i\omega \mathbf{B}(\mathbf{r}), \\ \nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}) = -i\omega \mathbf{D}(\mathbf{r}) + \mathbf{j}(\mathbf{r}), \\ \nabla \cdot \mathbf{D}(\mathbf{r}) = \rho(\mathbf{r}), \\ \nabla \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r}) = 0, \end{array} \right. \begin{array}{l} (1.1) \\ (1.2) \\ (1.3) \\ (1.4) \end{array}$$

où \mathbf{E} désigne le champ électrique, \mathbf{H} le champ magnétique, \mathbf{D} l'induction électrique, \mathbf{B} l'induction magnétique, \mathbf{j} la densité de courant, ρ la densité de charge, et \mathbf{r} la position en coordonnées cartésiennes.

Trois relations, dites constitutives, viennent compléter la description des champs :

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathbf{D}(\mathbf{r}) = \epsilon_b \epsilon_0 \mathbf{E}(\mathbf{r}), \\ \mathbf{B}(\mathbf{r}) = \mu_0 \mathbf{H}(\mathbf{r}), \\ \mathbf{j}(\mathbf{r}) = \sigma \mathbf{E}(\mathbf{r}), \end{array} \right. \begin{array}{l} (1.5) \\ (1.6) \\ (1.7) \end{array}$$

où ϵ_b est la permittivité diélectrique relative du milieu, ϵ_0 est la permittivité diélectrique du vide, μ_0 est la perméabilité magnétique du vide, et σ est la conductivité électrique du milieu.

1.1.2 Équations de Helmholtz

En combinant les équations (1.1) et (1.2) et à l'aide des relations constitutives (1.5) et (1.6), on peut obtenir les équations d'onde sur le champ électrique \mathbf{E} et sur le champ magnétique \mathbf{H} dans le domaine fréquentiel, aussi appelées équations de Helmholtz non

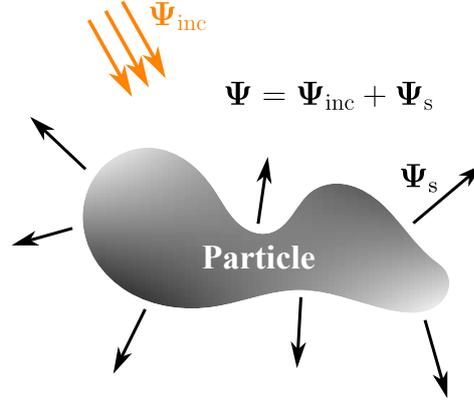


FIGURE 1.1 – Illustration d’un problème de diffusion classique. Une particule est placée dans un milieu ambiant infini, dépourvu de source de courant et de charge. Lorsque cette particule est soumise à un champ incident Ψ_{inc} , elle diffuse un champ Ψ_s . Le champ total peut alors s’écrire dans tout l’espace $\Psi = \Psi_{\text{inc}} + \Psi_s$

homogènes :

$$\begin{cases} \nabla \times \nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}) - k_0^2 \epsilon \mathbf{E}(\mathbf{r}) = i\omega\mu_0 \mathbf{j}(\mathbf{r}), & (1.8) \\ \nabla \times \epsilon^{-1} \nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}) - k_0^2 \mathbf{H}(\mathbf{r}) = \nabla \times \epsilon^{-1} \mathbf{j}(\mathbf{r}), & (1.9) \end{cases}$$

où $k_0 = \omega/c$ est le nombre d’onde dans le vide, $c = 1/\sqrt{\epsilon_0\mu_0}$ étant la célérité de la lumière.

1.1.3 Problème de diffusion

On s’intéresse ensuite à un problème de diffusion classique où une particule, placée dans le milieu infini décrit précédemment maintenant dépourvu de source de courant et de charge ($\mathbf{j} = \mathbf{0}$ et $\rho = 0$), est soumise à un champ incident \mathbf{E}_{inc} (voir Fig. 1.1). La permittivité relative dans tout l’espace est définie par $\epsilon(\mathbf{r}) = \epsilon_b \mathbf{I} + \Delta\epsilon(\mathbf{r})$, où ϵ_b est la permittivité relative du milieu ambiant, \mathbf{I} le tenseur identité d’ordre 2 et $\Delta\epsilon$ la variation de permittivité due à la particule.

Dans cette nouvelle configuration, les équations (1.8) et (1.9) deviennent homogènes. S’y ajoutent des conditions de passage à l’interface entre le milieu ambiant et la particule. Elles s’écrivent ici :

$$\begin{cases} \mathbf{n}(\mathbf{r}) \times (\mathbf{E}^{\text{int}}(\mathbf{r}) - \mathbf{E}^{\text{ext}}(\mathbf{r})) = \mathbf{0}, & (1.10) \\ \mathbf{n}(\mathbf{r}) \times (\mathbf{H}^{\text{int}}(\mathbf{r}) - \mathbf{H}^{\text{ext}}(\mathbf{r})) = \mathbf{0}, & (1.11) \end{cases}$$

où \mathbf{n} désigne le vecteur unitaire normal à la surface de la particule, orienté vers l’extérieur, \mathbf{E}^{int} le champ électrique à l’intérieur de la particule, et \mathbf{E}^{ext} le champ électrique à l’extérieur

de la particule (idem pour le champ magnétique \mathbf{H}).

Dans un problème de diffusion, il est courant d'écrire le champ total sous la forme $\mathbf{E} = \mathbf{E}_s + \mathbf{E}_{\text{inc}}$, où \mathbf{E}_s désigne le champ diffusé par la particule. De la même manière, on a $\mathbf{H} = \mathbf{H}_s + \mathbf{H}_{\text{inc}}$. Le champ diffusé prend son origine au niveau de la particule et se propage dans le domaine extérieur. Pour assurer cette réalité physique, on lui impose de vérifier la condition de rayonnement de Silver-Müller :

$$\lim_{|\mathbf{r}| \rightarrow \infty} (\sqrt{\epsilon_0} \mathbf{E}_s(\mathbf{r}) \times \mathbf{r} + |\mathbf{r}| \sqrt{\mu_0} \mathbf{H}_s(\mathbf{r})) = \mathbf{0}. \quad (1.12)$$

1.1.4 Équation pour le champ diffusé

On peut reformuler toutes les équations et conditions de la section précédente en fonction d'un seul des deux champs électrique et magnétique. À partir de maintenant on ne s'intéresse plus qu'aux équations sur le champ électrique \mathbf{E} . En insérant les décompositions du champ \mathbf{E} et de la permittivité relative ϵ dans l'équation (1.8) homogène, et parce que le champ incident \mathbf{E}_{inc} est lui-même solution de cette équation par définition, on obtient :

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E}_s(\mathbf{r}) - k_b^2 \mathbf{E}_s(\mathbf{r}) = k_0^2 \Delta \epsilon(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r}), \quad (1.13)$$

où $k_b = k_0 \sqrt{\epsilon_b}$ est le vecteur d'onde dans le milieu ambiant.

Le champ diffusé \mathbf{E}_s dans le milieu ambiant satisfait donc l'équation de Helmholtz (1.8) avec pour terme source $\mathbf{j}_s(\mathbf{r}) = -i\omega \mathbf{P}(\mathbf{r})$ où $\mathbf{P}(\mathbf{r}) = \epsilon_0 \Delta \epsilon(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r})$ est la densité de polarisation induite dans la particule. Ainsi, on voit que le champ total créé dans le volume de la particule agit comme une source pour le champ diffusé dans le milieu ambiant.

1.1.5 Tenseur de Green

Comme on va le voir par la suite, il peut être très utile de reformuler l'équation différentielle (1.13) sous une forme intégrale. Cette reformulation nécessite cependant l'introduction d'un outil mathématique fondamental appelé fonction de Green [Tai, 1994].

En électromagnétisme, on appelle fonction dyadique de Green \mathbf{G} la solution de l'équation de Helmholtz (1.8) avec un terme source décrit par une distribution de Dirac δ :

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') - k_0^2 \epsilon(\mathbf{r}) \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \mathbf{I}. \quad (1.14)$$

Grâce au principe de superposition, on peut utiliser cette fonction pour exprimer la solu-

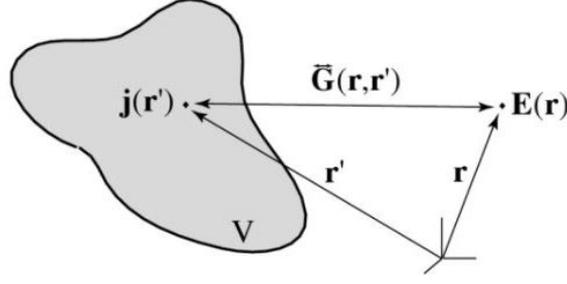


FIGURE 1.2 – Illustration de la fonction dyadique de Green. La fonction dyadique de Green $\mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ donne le champ électrique \mathbf{E} généré au point d'observation \mathbf{r} par un point source \mathbf{j} situé en \mathbf{r}' . La fonction \mathbf{G} doit tenir compte des effets de toutes les orientations possibles de la source sur le champ généré, elle prend donc la forme d'un tenseur. Adapté de la Réf. [Novotny et Hecht, 2012].

tion générale de l'équation (1.8) initiale, qui s'écrit alors

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = i\omega\mu_0 \int \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')\mathbf{j}(\mathbf{r}'), \quad (1.15)$$

et qui est illustrée par la Fig. 1.2. On voit que la fonction dyadique de Green doit relier toutes les composantes du champ à toutes les composantes de la source, il s'agit donc d'un tenseur d'ordre 2, qui peut-être représenté par une matrice de taille 3x3 en coordonnées cartésiennes. Dans toute la suite, on utilise l'appellation « tenseur de Green ».

Si la source est un dipôle électrique ponctuel de moment dipolaire \mathbf{p} placé en \mathbf{r}' ($\mathbf{j}(\mathbf{r}) = -i\omega\mathbf{p}\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$), l'équation (1.15) devient

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = i\omega^2\mu_0\mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')\mathbf{p}. \quad (1.16)$$

Le tenseur de Green décrit alors simplement le champ électrique rayonné par le dipôle dans tout l'espace. La figure 1.3 montre des cartes du champ électrique calculées à partir de l'équation (1.16) pour un dipôle électrique placé dans un milieu homogène infini. Dans ce cas, l'expression du tenseur de Green est

$$\mathbf{G}_b(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = -\frac{1}{3k_b^2}\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') + \text{VP} \left\{ \left[\mathbf{I} + \frac{1}{k_b^2} \nabla \otimes \nabla \right] \exp \left(\frac{ik_b|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}{4\pi|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} \right) \right\}, \quad (1.17)$$

où le premier terme rend compte de la singularité du champ au niveau de la source, et où le second terme, en valeur principale (VP), correspond à la partie non-singulière de la fonction [Yaghjian, 1980; Van Bladel, 1991]. Le calcul de \mathbf{G}_b est analytique donc très

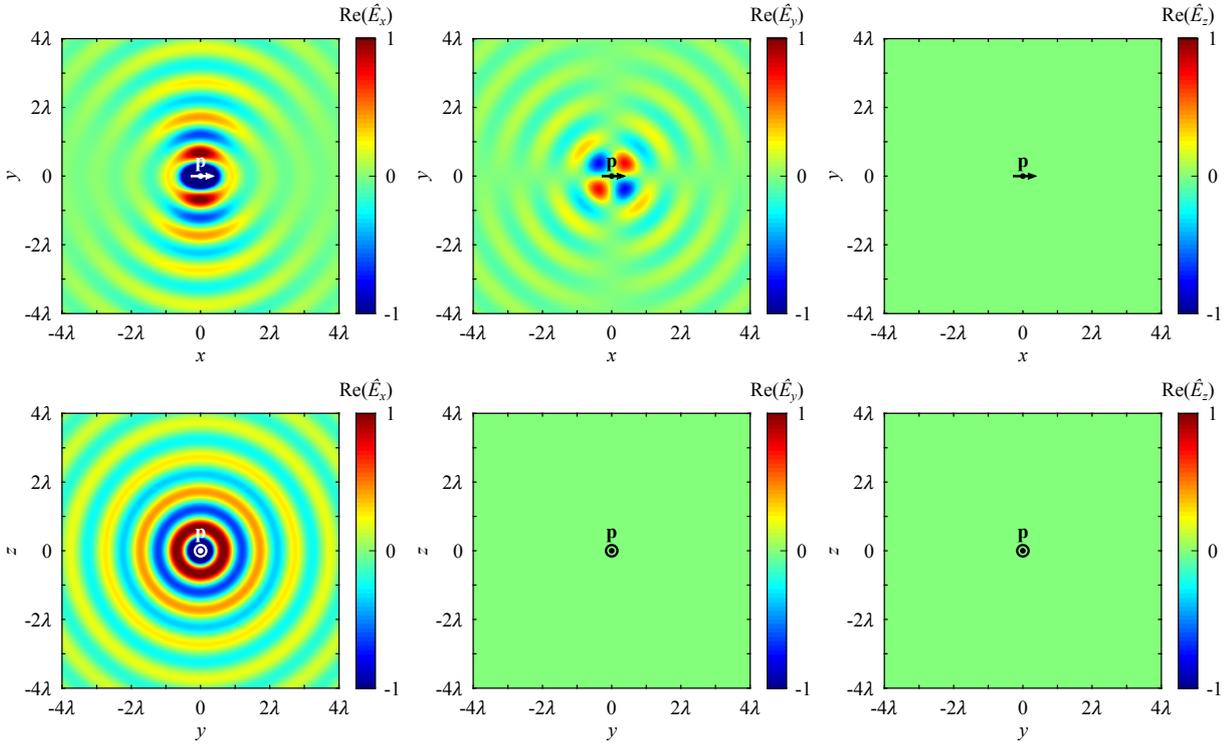


FIGURE 1.3 – Cartes du champ rayonné par un dipôle ponctuel dans un milieu homogène infini. On affiche la partie réelle (composantes x , y et z) du champ rayonné par un dipôle électrique ponctuel en $\mathbf{r} = (0, 0, 0)$ et polarisé suivant la direction x dans deux plans perpendiculaires (xy et yz). Ce champ est calculé analytiquement à partir de l'expression de \mathbf{G}_b (Éq. (1.17)), insérée dans l'équation (1.16). Il faut moins d'une seconde pour l'évaluer aux 1000×1000 points d'observation dans chaque plan.

efficace numériquement [Morse et Feshbach, 1954]. Il faut ainsi moins d'une seconde pour obtenir les cartes de champ de 1000×1000 points de la figure 1.3. Il est aussi intéressant de remarquer que $\mathbf{G}_b(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \mathbf{G}_b(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$.

Le champ d'application du tenseur de Green est bien plus large que le seul cas des milieux homogènes infinis. En effet, on peut définir un tenseur de Green dans un milieu stratifié comprenant un nombre arbitraire d'interfaces planes [Paulus *et al.*, 2000]. Le tenseur de Green \mathbf{G} doit alors prendre en compte les éventuelles réflexions et réfractions aux différentes interfaces. Son calcul est néanmoins plus coûteux d'un point de vue numérique car il devient semi-analytique : des intégrations dans le plan complexe en domaine fréquentiel sont nécessaires. Il est également possible de calculer des tenseurs de Green périodique [Ewald, 1921; Ham et Segall, 1961] et pseudo-périodique (périodicité sur un nombre de dimensions inférieur à la dimension du problème) [Kambe, 1967].

1.1.6 Équation intégrale

À l'aide du tenseur de Green que l'on vient d'introduire, on peut exprimer la solution \mathbf{E}_s de l'équation (1.13) sous la forme

$$\mathbf{E}_s(\mathbf{r}) = k_0^2 \int \mathbf{G}_b(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \Delta\epsilon(\mathbf{r}') \mathbf{E}(\mathbf{r}') d\mathbf{r}', \quad (1.18)$$

où l'intégrale sur tout l'espace se limite dans les faits au volume de la particule car $\Delta\epsilon$ est nul en-dehors. Le champ total \mathbf{E} s'écrit alors

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) + k_0^2 \int \mathbf{G}_b(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \Delta\epsilon(\mathbf{r}') \mathbf{E}(\mathbf{r}') d\mathbf{r}'. \quad (1.19)$$

Cette reformulation de l'équation différentielle (1.13), appelée équation intégrale sur le champ électrique (EFIE), décrit de manière exacte le processus de diffusion. Elle contient d'ailleurs déjà les conditions de passage à l'interface et la condition de rayonnement. Physiquement, on peut l'interpréter comme suit : chaque volume élémentaire de la particule se comporte comme un dipôle oscillant de moment dipolaire $\mathbf{p} = \mathbf{P}(\mathbf{r}) d\mathbf{r} = \epsilon_0 \Delta\epsilon(\mathbf{r}) \mathbf{E}(\mathbf{r}) d\mathbf{r}$. Le champ diffusé \mathbf{E}_s est le résultat de la superposition des champs rayonnés en-dehors de la particule par chaque volume élémentaire. En l'absence de particule ($\Delta\epsilon = \mathbf{0}$), celui-ci est nul et le champ total se réduit au champ incident : $\mathbf{E} = \mathbf{E}_{\text{inc}}$.

Dans le cas général, l'EFIE est implicite et il faut avoir recours à des méthodes numériques pour la résoudre. Dans certains cas particuliers cependant, comme celui des particules sphériques homogènes (théorie de Mie [Stratton, 2007]), il est possible de dériver des solutions explicites exactes.

1.1.7 Opérateur de transition

Une manière classique de lever le caractère implicite de l'EFIE (1.19) consiste à exprimer le champ total \mathbf{E} dans l'intégrale en fonction du champ incident \mathbf{E}_{inc} , et ce de manière itérative. Cette reformulation intuitive, appelée développement de Born [Born, 1926], s'écrit

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}) &= \mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) + k_0^2 \int \mathbf{G}_b(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \Delta\epsilon(\mathbf{r}') \mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' \\ &+ k_0^4 \int \mathbf{G}_b(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \Delta\epsilon(\mathbf{r}') \mathbf{G}_b(\mathbf{r}', \mathbf{r}'') \Delta\epsilon(\mathbf{r}'') \mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}'') d\mathbf{r}' d\mathbf{r}'' \\ &+ \dots \end{aligned} \quad (1.20)$$

Elle laisse apparaître les contributions des différents ordres de diffusion générés par la densité de polarisation induite dans le volume de la particule. Ainsi la première intégrale décrit le processus de diffusion simple, la deuxième intégrale celui de diffusion double, et ainsi de suite.

Une façon plus pratique de retranscrire cette idée est d'introduire l'opérateur de transition \mathbf{T} [Mishchenko, 2007]. Il est défini par

$$\mathbf{T}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = k_0^2 \Delta \epsilon \left[\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \mathbf{I} + \int \mathbf{G}_b(\mathbf{r}, \mathbf{r}'') \mathbf{T}(\mathbf{r}'', \mathbf{r}') d\mathbf{r}'' \right], \quad (1.21)$$

et permet finalement de réécrire l'équation (1.18) sous une forme implicite compacte :

$$\mathbf{E}_s(\mathbf{r}) = \int \mathbf{G}_b(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mathbf{T}(\mathbf{r}', \mathbf{r}'') \mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}'') d\mathbf{r}' d\mathbf{r}''. \quad (1.22)$$

L'opérateur \mathbf{T} est intrinsèque à la particule à une fréquence ω donnée et lie directement le champ diffusé au champ incident, c'est donc un élément clef dans la résolution des problèmes de diffusion par des particules.

On peut remarquer que \mathbf{T} est spatialement non-local, ce qui traduit directement le phénomène physique de diffusion multiple survenant dans le volume de la particule. Cette non-localité ne peut être négligée que dans le cas de petites particules. Une autre approximation, l'approximation de Born, consiste à ne conserver que l'ordre le plus bas dans l'Éq. (1.21). L'opérateur \mathbf{T} décrit alors la réponse de la particule en régime de diffusion simple, où la lumière n'interagit qu'une fois avec le diffuseur. Cette approximation est par exemple souvent utilisée pour étudier la diffusion multiple dans des ensembles de diffuseurs peu denses (milieux dilués).

1.1.8 Diffusion multiple

On considère finalement le cas d'un ensemble de N_p particules distinctes placées dans le milieu ambiant précédent et soumises à un champ incident \mathbf{E}_{inc} . Dans cette configuration, le champ total \mathbf{E} est la somme du champ incident et du champ \mathbf{E}_s^i diffusé par chaque

particule i du système. En utilisant l'équation (1.22), on peut donc écrire

$$\begin{aligned}\mathbf{E}(\mathbf{r}) &= \mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) + \sum_{i=1}^{N_p} \mathbf{E}_s^i(\mathbf{r}) \\ &= \mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) + \sum_{i=1}^{N_p} \int \mathbf{G}_b(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mathbf{T}_i(\mathbf{r}', \mathbf{r}'') \mathbf{E}_{\text{exc}}^i(\mathbf{r}'') d\mathbf{r}' d\mathbf{r}'',\end{aligned}\quad (1.23)$$

où $\mathbf{E}_{\text{exc}}^i$ est le champ qui excite la particule i , et \mathbf{T}_i est l'opérateur de transition de la particule i , défini en l'absence de toutes les autres particules. L'expression de ce dernier est directement issue de l'équation (1.21) :

$$\mathbf{T}_i(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = k_0^2 \Delta \epsilon_i(\mathbf{r}) \left[\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \mathbf{I} + \int \mathbf{G}_b(\mathbf{r}, \mathbf{r}'') \mathbf{T}_i(\mathbf{r}'', \mathbf{r}') d\mathbf{r}'' \right], \quad (1.24)$$

où $\Delta \epsilon_i$ est la variation de permittivité due à la particule i .

Le champ $\mathbf{E}_{\text{exc}}^i$ qui excite la particule i correspond à la somme du champ incident et du champ diffusé par toutes les particules $j \neq i$:

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_{\text{exc}}^i(\mathbf{r}) &= \mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) + \sum_{j \neq i}^{N_p} \mathbf{E}_s^j(\mathbf{r}) \\ &= \mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}) + \sum_{j \neq i}^{N_p} \int \mathbf{G}_b(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mathbf{T}_j(\mathbf{r}', \mathbf{r}'') \mathbf{E}_{\text{exc}}^j(\mathbf{r}'') d\mathbf{r}' d\mathbf{r}''.\end{aligned}\quad (1.25)$$

Les équations auto-consistantes (1.23) et (1.25) sont connues sous le nom d'équations de Foldy-Lax [Foldy, 1945; Lax, 1951, 1952]. On peut en trouver une dérivation rigoureuse dans la Réf. [Mishchenko *et al.*, 2006]. Elles sont de première importance car elles décrivent rigoureusement le processus de diffusion multiple, phénomène au coeur de nombreux domaines de recherche, comme l'observation atmosphérique et l'imagerie biomédicale [Ishimaru, 1999], ou bien encore l'optique mésoscopique et même l'optique atomique [Legendijk et Van Tiggelen, 1996]. En pratique, les équations de Foldy-Lax peuvent être résolues numériquement, d'abord en inversant le système correspondant à l'équation (1.25) pour trouver le champ qui excite les particules, puis en insérant la solution dans l'équation (1.23) pour obtenir le champ partout dans l'espace.

1.2 Méthodes de modélisation

Des méthodes numériques nombreuses et variées sont aujourd’hui disponibles pour résoudre les équations de Maxwell en présence de particules [Gallinet *et al.*, 2015; Kahnert, 2003]. On peut essentiellement les classer en trois grandes catégories :

— **Méthodes différentielles :**

L’approche différentielle consiste à résoudre directement les équations de Maxwell différentielles ou l’équation de Helmholtz (1.8). Pour cela, un domaine de simulation est défini et tout l’espace y est discrétisé, particules comme milieu ambiant. Les deux méthodes les plus connues dans cette catégorie sont la méthode des éléments finis (FEM) [Monk *et al.*, 2003; Jin, 2015] et la méthode des différences finies (FDTD) [Taflove et Hagness, 2005].

— **Méthodes intégrales :**

L’approche intégrale, comme son nom l’indique, consiste à résoudre l’EFIE (1.19). La propagation dans le milieu ambiant, homogène comme stratifié, se fait alors à l’aide du tenseur de Green et la discrétisation se retrouve réduite aux seules particules. Cette discrétisation est opérée sur le volume de la particule dans les méthodes intégrales de volume, comme la *Discrete Dipole Approximation* (DDA) [Yurkin et Hoekstra, 2007]. Dans les méthodes intégrales de surface, comme la méthode de l’équation intégrale de surface (SIE) [Kern et Martin, 2009] ou la *Boundary Element Method* (BEM) [Buffa et Hiptmair, 2003], c’est la surface de la particule qui est discrétisée.

— **Méthodes hybrides et semi-analytiques :**

De nombreuses méthodes existantes ne rentrent dans aucune des deux catégories précédentes. On peut notamment citer la méthode de la matrice T [Mishchenko *et al.*, 2004], la *Generalized Multipole Technique* (GMT) [Wriedt et Eremin, 2018], ou bien encore la *Rigorous Coupled-Wave Analysis* (RCWA) [Moharam et Gaylord, 1981]. Dans ces trois méthodes, l’espace est divisé en sous-domaines homogènes et le champ diffusé y est développé sur une base de fonctions elles-mêmes solutions de l’équation de Helmholtz. Il n’y a pas de discrétisation à proprement parler, si ce n’est parfois pour forcer des conditions aux limites sur les surfaces entre les différents sous-domaines afin de déterminer les coefficients des développements.

Toutes ces méthodes ont leurs forces et leurs faiblesses, et sont plus ou moins adaptées aux différents types de problèmes qui peuvent être rencontrés : propagation, localisation, diffusion... Notre but ici n’est pas de présenter toutes les méthodes avec lesquelles on

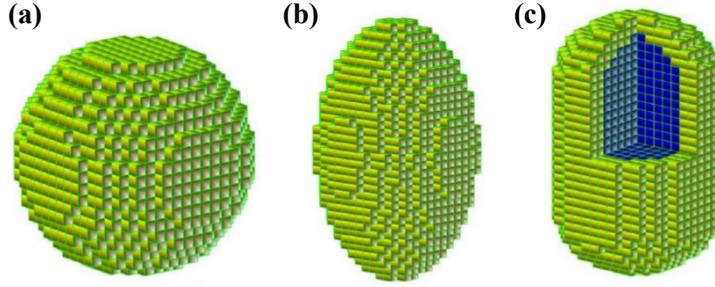


FIGURE 1.4 – Illustration de la *Discrete Dipole Approximation* (DDA). La particule d'intérêt est remplacée par un réseau dense de dipôles ponctuels interagissant entre eux (dipôles couplés). Pour un champ incident donné, le système d'équations correspondant est inversé pour déterminer tous les moments dipolaires. Toutes les quantités de diffusion intéressantes peuvent ensuite être obtenues. Une des forces de la DDA est de pouvoir traiter des particules de formes et compositions variées. Ici, des nanoparticules en forme de (a) sphère, (b) sphéroïde et (c) coeur-coquille sont discrétisées en environ 10 000 volumes élémentaires cubiques. Adapté de la Réf. [Shabaninezhad *et al.*, 2021].

peut modéliser la diffusion de la lumière. Une liste exhaustive peut être trouvée sur le portail d'information dédié [sca], ainsi que des programmes en accès libre. À la place, on s'attache à en présenter trois : la *Discrete Dipole Approximation* (DDA), la matrice T, et la *Generalized Multipole Technique* (GMT). Ces choix nous permettent par la suite d'établir un état-de-l'art de la modélisation de la diffusion multiple dans des ensembles de particules et de soulever des points de comparaison importants avec la méthode développée dans le cadre de la thèse.

1.2.1 Discrete Dipole Approximation

L'approximation dipolaire discrète (DDA) a été introduite par Purcell et Pennypacker pour étudier la diffusion de la lumière par des grains de poussière interstellaire [Purcell et Pennypacker, 1973]. Elle consiste à discrétiser la particule d'intérêt en N volumes élémentaires (voir Fig. 1.4). Chaque volume élémentaire i est assimilé à un dipôle électrique ponctuel en \mathbf{r}_i dont le moment dipolaire induit \mathbf{p}_i s'exprime par

$$\mathbf{p}_i = \alpha_i \mathbf{E}_{\text{exc}}(\mathbf{r}_i), \quad (1.26)$$

où α est la polarisabilité associée au dipôle i et $\mathbf{E}_{\text{exc}}(\mathbf{r}_i)$ est le champ électrique local qui l'excite, supposé constant dans le volume élémentaire correspondant. L'objectif de la méthode est de déterminer ces moments dipolaires.

La polarisabilité α est déterminée analytiquement en fonction du volume élémentaire

considéré et de sa permittivité, supposée constante également. Depuis la formulation originale de la méthode, différentes améliorations du modèle de polarisabilité ont été proposées [Yurkin et Hoekstra, 2007]. On peut citer notamment les Réfs. [Goedecke et O’Brien, 1988; Draine et Goodman, 1993; Lakhtakia et Mulholland, 1993].

Le champ électrique local \mathbf{E}_{exc} au niveau du dipôle i , quant à lui, est dû au champ incident \mathbf{E}_{inc} , connu a priori, mais aussi aux champs rayonnés par les dipôles $j \neq i$. On peut exprimer ces derniers à l’aide de leurs moments dipolaires \mathbf{p}_j et du tenseur de Green selon l’équation (1.16). On obtient alors

$$\mathbf{E}_{\text{exc}}(\mathbf{r}_i) = \mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}_i) + \mu_0 \omega^2 \sum_{j \neq i} \mathbf{G}_b(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j) \mathbf{p}_j, \quad (1.27)$$

qui n’est rien d’autre que l’équation (1.25) appliquée à des dipôles électriques ponctuels.

Les équations (1.26) et (1.27) sont couplées, on peut les réécrire pour obtenir un système linéaire dont les moments dipolaires sont les inconnues. Ce système de $3N$ équations est alors résolu numériquement. Une fois les moments dipolaires connus, on peut directement déterminer le champ diffusé grâce au tenseur de Green (y compris le champ proche [Liu *et al.*, 2001]), ainsi que toutes les autres quantités de diffusion mesurables (sections efficaces [Draine, 1988], forces optiques [Chaumet et Nieto-Vesperinas, 2000], ...).

Une des grandes forces de la DDA réside dans sa capacité à traiter des particules de formes arbitraires, inhomogènes, et anisotropes (voir Fig. 1.4). La disponibilité d’implémentations robustes en accès libre (DDSCAT [Draine et Flatau, 1994], ADDA [Yurkin et Hoekstra, 2011], IF-DDA [Chaumet *et al.*, 2004], ...) en est une autre. Enfin, il a été montré que l’approche de la DDA était équivalente à une discrétisation directe de l’EFIE [Goedecke et O’Brien, 1988]. Ce point théorique est un atout indéniable, car il signifie que cette méthode intégrale de volume est censée converger vers les résultats exacts pour une discrétisation suffisamment fine.

Il existe justement une condition théorique sur le nombre approximatif minimal de dipôles à utiliser pour obtenir des résultats fiables [Draine, 1988], qui s’écrit

$$|m|kd \leq 1, \quad (1.28)$$

où m est l’indice de réfraction du matériau considéré, k est le vecteur d’onde et d est la taille caractéristique d’un volume élémentaire. Elle traduit simplement la nécessité d’avoir suffisamment de dipôles par longueur d’onde λ ($d < \lambda/10$, comme règle de base).

Cette règle n'est plus forcément valable pour des particules à fort indice, car il faut alors utiliser beaucoup de dipôles et la convergence des résultats commence à en pâtir (on évite généralement de dépasser $N = 10^6$ dipôles en pratique). Cette première condition est complétée par une seconde condition qui veut que la discrétisation soit assez fine pour décrire correctement la forme de la particule.

1.2.2 Matrice T

Le concept de matrice T a été introduite par Waterman [Waterman, 1965] dans le contexte de la diffusion par une particule dans un milieu homogène. Il repose sur une décomposition des champs incident et diffusé sur une base de fonctions, généralement celle des harmoniques sphériques vectorielles (VSHs), celle-ci étant complète et orthonormale. Dans cette base, on peut écrire les champs sous la forme

$$\mathbf{E}_{\text{inc}}(\mathbf{r}, \omega) = \sum_{l=1}^{\infty} \sum_{m=-l}^l (a_{lm}^{\text{inc}}(\omega) \mathbf{N}_{lm}^{(1)}(\mathbf{r}, \omega) + b_{lm}^{\text{inc}}(\omega) \mathbf{M}_{lm}^{(1)}(\mathbf{r}, \omega)) \quad (1.29)$$

$$\mathbf{E}_s(\mathbf{r}, \omega) = \sum_{l=1}^{\infty} \sum_{m=-l}^l (a_{lm}^s(\omega) \mathbf{N}_{lm}^{(3)}(\mathbf{r}, \omega) + b_{lm}^s(\omega) \mathbf{M}_{lm}^{(3)}(\mathbf{r}, \omega)), \quad (1.30)$$

où \mathbf{N}_{lm} et \mathbf{M}_{lm} sont les multipôles électrique et magnétique, respectivement, de degré l et d'ordre m . Le paramètre ν sert à distinguer les VSHs régulières ($\nu = 1$) et les VSHs sortantes ($\nu = 3$). On peut trouver des dérivations explicites des VSHs dans la littérature [Doicu *et al.*, 2006]. La matrice T, où « T » est l'abréviation de « transition », est alors l'opérateur linéaire reliant les coefficients du champ diffusé \mathbf{E}_s à ceux du champ incident \mathbf{E}_{inc} :

$$\begin{bmatrix} a_{lm}^s \\ b_{lm}^s \end{bmatrix} = \mathcal{T} \begin{bmatrix} a_{lm}^{\text{inc}} \\ b_{lm}^{\text{inc}} \end{bmatrix} \quad (1.31)$$

Physiquement, la matrice T revient donc à remplacer la particule d'intérêt par un ensemble de multipôles placés en son centre. Cette approche est très différente de celle de la DDA, directement inspirée de la physique du problème décrite par l'EFIE 1.19 (voir Fig.1.5). Pourtant, tout comme la polarisabilité, la matrice T est intrinsèque à la particule à une fréquence ω donnée. Elle encapsule ainsi toutes ses propriétés de diffusion, ce qui

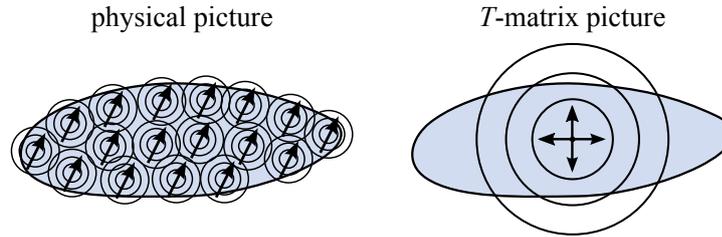


FIGURE 1.5 – Illustration de la différence d’approche entre la méthode de la matrice T et la DDA. L’approche de la DDA (gauche) suit l’interprétation physique de l’équation intégrale : la particule est décrite par un ensemble dense de dipôles oscillants distribués dans son volume. L’approche de la matrice T est radicalement différente : les contributions sont regroupées pour former une source multipolaire au centre de la particule. Adapté de la Réf. [Egel *et al.*, 2017a].

permet de calculer simplement la solution à n’importe quel nouveau problème obtenu en changeant l’excitation ou l’orientation de la particule. La précision des résultats dépend du nombre d’ordres multipolaires retenus dans la décomposition.

Le calcul de la matrice T, appelé « méthode de la matrice T », a été initialement conduit avec la *Null-Field Method* (NFM), aussi appelée *Extended Boundary Condition Method* (EBCM) [Waterman, 1965]. En principe, néanmoins, il est possible de calculer la matrice T avec n’importe quelle méthode résolvant les équations de Maxwell, comme par exemple la FEM [Fruhnert *et al.*, 2017] ou la DDA [Mackowski, 2002]. Ce n’est pas tant la manière de la calculer mais surtout l’opérateur lui-même qui nous intéresse ici.

1.2.3 Generalized Multipole Technique

Generalized Multipole Technique (GMT) est un terme générique faisant référence à une classe de méthodes numériques apparues dans les années 80 [Ludwig, 1991]. Comme ces dernières ont été développées indépendamment dans plusieurs groupes dans le monde, elles existent sous différents noms : méthode des multipôles multiples (MMP) [Hafner, 1990], méthode des sources discrètes (DSM) [Eremin *et al.*, 1999], méthode des sources fictives (MFS) [Zolla *et al.*, 1994], méthode des sources auxiliaires (MAS) [Kaklamani et Anastassiou, 2002], méthode de Yasuura [Ikuno et Yasuura, 1973]...

Malgré la diversité de leurs noms, le principe derrière toutes ces méthodes est le même : une solution approchée d’un problème de diffusion est exprimée comme une combinaison linéaire finie de champs produits par des sources fictives distribuées [Wriedt, 1999]. La figure 1.6 illustre ce principe de base dans le cas d’une particule dans un milieu ambiant. Le champ à l’extérieur de la particule (domaine \mathbf{D}_0) est rayonné par les sources fictives

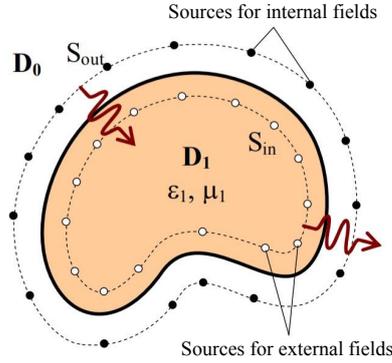


FIGURE 1.6 – Illustration de la *Generalized Multipole Technique* (GMT). Le champ dans chaque domaine est approximé par la somme des contributions de sources fictives, solutions analytique de l'équation d'onde, placées dans un autre domaine. Les amplitudes de ces sources sont déterminées numériquement en forçant les conditions de passage sur la surface de la particule, qui est discrétisée. Ici, le champ à l'extérieur de la particule (domaine \mathbf{D}_0) est rayonné par les sources fictives placées à l'intérieur de la particule (domaine \mathbf{D}_1) sur la surface virtuelle S_{in} (points blancs). Inversement, le champ dans \mathbf{D}_1 est rayonné par les sources fictives placées dans \mathbf{D}_0 sur la surface virtuelle S_{out} (points noirs). Adapté de la Réf. [Tavzarashvili *et al.*, 2007].

placées à l'intérieur de la particule (domaine \mathbf{D}_1) sur la surface virtuelle S_{in} (points blancs). Inversement, le champ dans \mathbf{D}_1 est rayonné par les sources fictives placées dans \mathbf{D}_0 sur la surface virtuelle S_{out} (points noirs). Pour plus de clarté, on ne parle plus que des sources fictives à l'intérieur de la particule dans la suite.

La partie numérique de la GMT consiste à déterminer les amplitudes des sources fictives en discrétisant la surface de la particule et en y forçant des conditions de passage. Cette technique s'appelle collocation par points ou *Point Matching* (PM) [Hafner, 1980; Harrington, 1993]. Pour des raisons de performance, on utilise généralement un nombre de points suffisant pour construire un système surdéterminé et le résoudre au sens des moindres carrés (*Generalized Point Matching*) [Hafner, 1990]. La donnée des amplitudes des sources donne directement les champs dans tout le domaine extérieur.

Les fonctions sur lesquelles les champs sont développés doivent toutes être des solutions analytiques de l'équation d'onde. Très souvent, ce sont des multipôles qui sont utilisés, comme pour la matrice \mathbf{T} . La différence fondamentale réside dans le fait que ces multipôles n'ont pas une origine commune (localisée) au centre de la particule mais des origines multiples (distribuées) dans le volume de la particule. Une autre différence qu'il faut souligner est le fait que l'ensemble des amplitudes des sources fictives est déterminé pour un champ incident donné. Autrement dit, il faut recalculer ces amplitudes pour une autre excitation à la même fréquence ω , ce qui n'est pas le cas pour les multipôles de la matrice

T, qui sont intrinsèques à la particule.

La force de la GMT réside dans sa grande flexibilité quant au choix des sources (par exemple l'ordre des différents multipôles) et de leurs positions. Cette flexibilité explique que la méthode ait été utilisée pour modéliser un grand nombre de systèmes différents : réseaux de diffractions, guides d'ondes, antennes, capteurs plasmoniques [Tayeb et Enoch, 2004; Benelli, 2007; Sannomiya et Hafner, 2010]... Évidemment, cela implique également que la bonne résolution du problème considéré est conditionnée par un choix judicieux de ces différents paramètres. Heureusement, un autre avantage majeur de la GMT est l'opportunité unique qu'elle offre de quantifier directement la qualité de la solution calculée en observant l'erreur effectuée aux points de collocation.

1.2.4 Application à la diffusion multiple

Il est bien connu que les méthodes différentielles ne sont pas les plus adaptées aux problèmes de diffusion en général. Ceci est encore plus vrai lorsqu'il s'agit de problèmes de diffusion multiple. En effet, même l'étude la plus basique de l'interaction entre deux particules peut devenir problématique si l'on sépare ces dernières de quelques longueurs d'onde, car la discrétisation nécessaire de tout l'espace devient trop lourde.

Pour ce type de problèmes, il est beaucoup plus judicieux de faire appel à des méthodes intégrales, qui exploitent toute la puissance du tenseur de Green pour décrire la propagation dans le milieu, qu'il soit homogène infini ou stratifié. La discrétisation est alors restreinte aux particules uniquement, ce qui peut représenter un gain considérable en termes de ressources de calcul. La DDA, méthode intégrale de volume la plus populaire, est parfois utilisée pour étudier des milieux aléatoires discrets [Mishchenko *et al.*, 2016], et en nanophotonique pour modéliser des particules individuelles sur substrat [Mazzucco *et al.*, 2012], des dimères [Ahmadivand *et al.*, 2016] ou des ensembles de quelques nanoparticules [Souza *et al.*, 2019; Shaikh *et al.*, 2011]. Toutefois, elle souffre d'une croissance rapide de la complexité de calcul avec le nombre de dipôles utilisés [Yurkin, 2016]. Ainsi, il devient très compliqué de traiter des systèmes de plus de 10^6 dipôles en milieu homogène. En pratique, quelques dizaines de milliers de dipôles sont souvent nécessaires pour assurer la convergence des résultats dans l'étude d'une particule de taille comparable à la longueur d'onde, d'autant plus si celle-ci possède un indice de réfraction élevé. L'utilisation de la DDA pour la diffusion multiple en nanophotonique semble donc devoir se limiter à des études de systèmes de quelques dizaines de nanoparticules tout au plus. Le fait que l'inversion du problème se fasse pour une excitation donnée exclut probablement

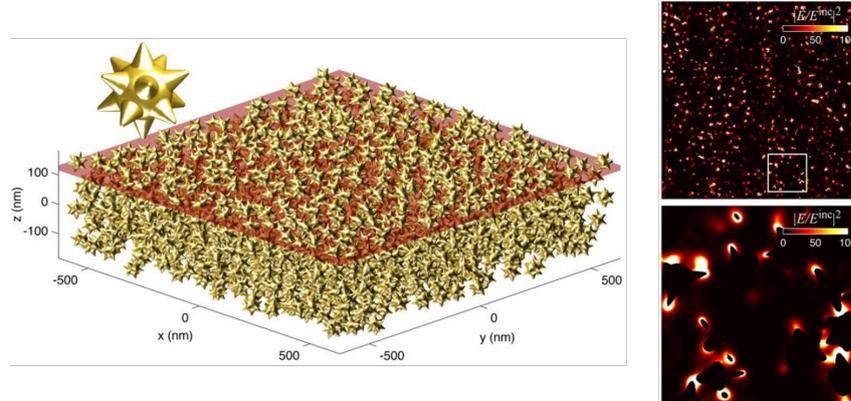


FIGURE 1.7 – Modélisation d’un ensemble très dense d’environ 1600 petites nano-étoiles en or via une méthode SIE. L’échantillon considéré fait $1,2 \times 1,2 \times 0,3 \mu\text{m}^3$, les étoiles ont une taille caractéristique d’environ 30 nm et leur séparation minimale est de seulement 1 nm. Il faut environ 2h de calcul et 120 Gb de mémoire pour résoudre le système de 9 millions d’inconnues. Adapté de la Réf. [Solís *et al.*, 2015].

la possibilité de l’appliquer dans des processus de design.

Il faut dans les faits réduire la dimensionnalité de la discrétisation d’un niveau, en passant aux méthodes intégrales de surface comme la méthode SIE ou la BEM, pour réellement trouver des travaux où sont considérés de grands nombres de particules. Des résultats remarquables ont notamment été obtenus en plasmonique dans les Réfs. [Solís *et al.*, 2014, 2015], où des ensembles très denses de plus d’un millier de petites particules en or ont été modélisés avec une très bonne précision (voir Fig. 1.7). Une limitation de ces méthodes reste leur difficulté à traiter les cas de particules hétérogènes.

La GMT, quant à elle, semble peu adaptée aux problèmes de diffusion multiple dans de grands ensembles de particules. En effet, il faudrait disposer des sources fictives dans chacune des particules et déterminer en une fois l’ensemble des amplitudes associées en satisfaisant les conditions de passage simultanément sur toutes les surfaces du système, et ce pour un seul champ incident donné. À notre connaissance, il n’existe pas de travaux allant dans ce sens. Néanmoins, le principe-même de la GMT, à savoir utiliser des sources fictives distribuées dans le volume d’une particule pour décrire le champ à l’extérieur, représente une réelle inspiration pour la méthode développée dans le cadre de la thèse. Il faut également souligner que la GMT est parfois utilisée dans d’autres méthodes. La DSM sert par exemple à améliorer la stabilité du calcul de la matrice T par la NFM dans le cas de particules allongées (NFM-DS [Doicu et Wriedt, 1997]).

Bien qu’initialement conceptualisée dans le cadre de la diffusion par une particule

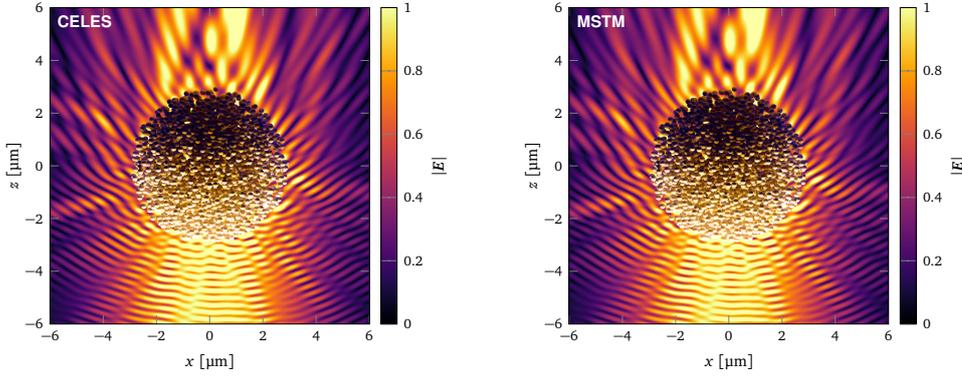


FIGURE 1.8 – Modélisation d’un ensemble très dense de 2500 nano-sphères diélectriques via des méthodes basées sur la matrice T . Les deux méthodes (CELES et MSTM) implémentent des opérateurs de transition entre les matrices T des sphères individuelles pour décrire la diffusion multiple. Adapté de la Réf. [Egel *et al.*, 2017b].

individuelle, la matrice T a rapidement été appliquée à la résolution de problèmes de diffusion multiple avec des nombres importants de particules [Mishchenko *et al.*, 2004] (voir par exemple la Fig. 1.8). À une longueur d’onde donnée, un nombre limité d’ordres multipolaires est souvent suffisant pour que la matrice T décrive avec précision toutes les propriétés de diffusion d’une particule de taille comparable à la longueur d’onde. Une fois la matrice T d’une particule connue, le problème de diffusion multiple entre plusieurs particules peut donc être résolu très efficacement, y compris dans des milieux stratifiés, grâce à une description adéquate des opérations de translation [Peterson et Ström, 1973; Kristensson, 1980; Xu, 1996; Mishchenko *et al.*, 2006; Stout *et al.*, 2008; Egel *et al.*, 2016a]. Il existe de nombreux codes en accès libre implémentant la diffusion multiple entre des particules décrites par leur matrice T (voir [sca] pour une liste).

Comme dans toutes les méthodes numériques, les avantages certains de la matrice T viennent également avec des limitations. La plus importante est la suivante : la décomposition en VSHs du champ diffusé ne converge formellement qu’au-delà de la surface de la sphère englobante minimale de la particule. On peut effectivement voir sur la figure 1.9 que le champ rayonné par les multipôles ne semble pas valide aux abords immédiats de la surface de la particule mais plutôt au-delà du cercle en pointillés, ce que confirme la comparaison avec une simulation rigoureuse par la FEM implémentée dans COMSOL. Le problème persiste peu importe le nombre d’ordres multipolaires utilisé. Cette restriction peut-être considérée comme un problème majeur en soi, car pour des particules qui dévient beaucoup de la forme d’une sphère elle est synonyme de perte d’information importante

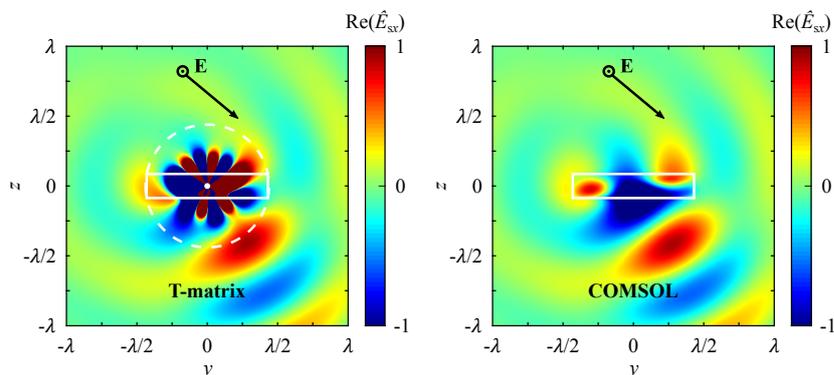


FIGURE 1.9 – Convergence du champ proche diffusé par un cylindre allongé avec la matrice T. Un cylindre diélectrique (traits blancs continus) dans l’air est éclairé par une onde plane en polarisation TE avec un angle $\theta_i = 30^\circ$. Les cartes montrent le champ électrique diffusé (composante x) tel que prédit avec la matrice T et par la méthode des éléments finis (COMSOL). Avec la matrice T, la particule est remplacée par un ensemble de multipôles placés en son centre (point blanc). Le champ diffusé développé en VSHs ne converge formellement qu’au-delà de la sphère minimale englobante de la particule (cercle blanc en pointillés). En effet, on constate des différences importantes avec la simulation rigoureuse FEM sur le champ diffusé à l’intérieur du cercle, et ce peu importe le nombre d’ordres retenus dans le développement en VSHs.

sur le champ proche. Ce champ proche diffusé par une particule est pourtant une donnée précieuse et sa prédiction est de première importance dans le développement d’applications comme la spectroscopie Raman exaltée de surface (SERS) ou la microscopie optique en champ-proche (SNOM). Ce constat a motivé d’importants efforts pour développer une *near-field T-matrix*.

Une solution proposée est de décomposer le champ proche en VSHs régulières et sortantes puis de résoudre un problème aux limites entre la surface de la particule et sa sphère englobante minimale [Bringi et Seliga, 1980; Doicu et Wriedt, 2010]. L’utilisation de sources multipolaires distribuées dans le volume de la particule, inspirée de la GMT, améliore le calcul du champ proche pour des particules à haut rapport de forme [Forestiere et al., 2011]. On peut anticiper des difficultés à résoudre des problèmes où les particules possèdent des géométries complexes (avec des coins par exemple) ou sont hétérogènes (en mélangeant des matériaux diélectriques et métalliques par exemple), mais cette solution a démontré de bonnes performances dans le cas de sphéroïdes de permittivité élevée. Malheureusement, elle ne permet pas de contourner d’autres conséquences, indirectes mais au moins aussi importantes, de la restriction géométrique de la matrice T.

La première conséquence est l’impossibilité, en l’état, de prendre correctement en compte les interactions en jeu lorsque l’on considère une particule allongée proche d’un

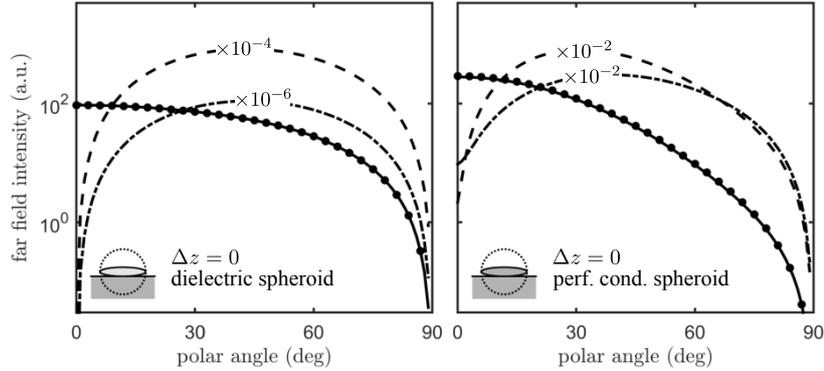


FIGURE 1.10 – Modélisation d’une particule allongée posée sur un substrat via une variante de la méthode de la matrice T . La description correcte de l’interaction entre la particule et le substrat est rendue possible en transformant le champ diffusé sous la particule en passant d’un développement en VSHs divergent en un développement en ondes planes convergent. Adapté de la Réf. [Egel *et al.*, 2016b].

substrat ou posée dessus. En effet, des problèmes de convergence apparaissent lorsque la sphère contenant les singularités du champ diffusé intersecte une interface [Doicu *et al.*, 1999]. Cette limitation semble avoir freiné le déploiement de la méthode de la matrice T en nanophotonique où ce problème est omniprésent, par exemple dans l’étude de surfaces rugueuses, en granulométrie, ou dans le développement de capteurs [Moreno *et al.*, 2007; Maradudin, 2010]. Des travaux récents ont cependant ouvert la voie. L’idée originale réside dans le développement des VSHs sortantes en ondes planes sur un plan à proximité de la particule [Egel *et al.*, 2016b, 2017a]. En choisissant des seuils de troncature adaptés et avec une modification appropriée de l’opérateur de translation, il est possible de modéliser une particule allongée très proche d’un substrat ou bien directement posée dessus (voir Fig. 1.10).

La deuxième conséquence, directement liée à la première, est l’impossibilité en l’état de décrire les interactions en champ proche entre plusieurs particules non-sphériques. Effectivement, l’approche classique est assez logiquement aussi mise à mal lorsque la sphère englobante minimale d’une particule intersecte celle d’une deuxième particule. Ce point a d’ailleurs restreint l’utilisation de la matrice T aux études de diffusion multiple aux ensembles de particules sphériques [Mackowski et Mishchenko, 1996], ou aux ensembles peu denses [Markkanen et Yuffa, 2017]. Il faut toutefois signaler que les travaux cités précédemment et qui reposent sur la transformation en ondes planes des VSHs sortantes s’étendent aux interactions inter-particules, à condition de pouvoir séparer chaque paire de diffuseurs par un plan sans les intersecter [Theobald *et al.*, 2017]. Cette technique a permis

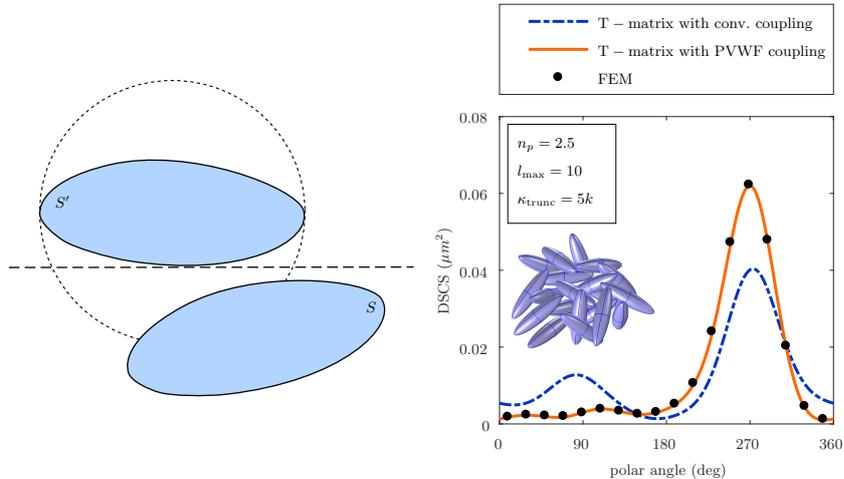


FIGURE 1.11 – Modélisation d’un ensemble dense de 20 particules diélectriques allongées via une variante de la méthode de la matrice T. L’interaction en champ proche de chaque paire de particules peut être prise en compte grâce à une formulation alternative des opérateurs de transition basée sur un développement en ondes planes du champ diffusé. Le couplage peut être décrit ainsi à condition de pouvoir définir un plan séparant les objets. Adapté de la Réf. [Theobald *et al.*, 2017].

l’obtention de résultats notables sur un ensemble très dense de sphéroïdes diélectriques allongés (voir Fig. 1.11). À cause des transformations multiples à effectuer entre VSHs et ondes planes, la méthode peut toutefois devenir assez lourde en termes de ressources de calcul pour des ensembles de particules plus conséquents. Il convient de mentionner également une seconde approche, très différente en apparence, qui consiste à translater l’origine du développement multipolaire d’une particule pour décaler la sphère englobante associée et ainsi être en mesure de rapprocher une deuxième particule plus près qu’initialement [Martin, 2019]. On signale enfin des travaux qui indiquent que la restriction sur le champ proche que l’on vient de décrire, assez communément admise, serait trop stricte dans de nombreux cas [Schebarchov *et al.*, 2019]. On pourrait alors dans les faits décrire correctement des interactions entre particules plus proches avec la matrice T et les VSHs.

Dans tous les cas, on peut noter qu’aucune des améliorations apportées à la matrice T ne traite de la possibilité de placer une source localisée dans le champ proche d’une particule. C’est un problème qui semble encore ouvert. Par ailleurs, dans les études présentées, il est souvent question de sphéroïdes mais quasiment jamais de particules avec des formes réellement complexes, métalliques avec des coins, concaves, etc. On est donc en droit de s’interroger sur les performances de la matrice T dans de telles situations.

MÉTHODE DE LA MATRICE DE POLARISABILITÉ GLOBALE (GPM)

Dans ce chapitre 2, on introduit la méthode de la matrice de polarisabilité globale pour la modélisation de la diffusion par des particules complexes individuelles. Le concept de matrice de polarisabilité globale (GPM) est défini et l'approche numérique adoptée pour la calculer est présentée en détail. La méthode est ensuite illustrée à travers l'exemple d'un long cylindre diélectrique à fort indice. Cela permet d'étudier l'influence des principaux paramètres sur la convergence des résultats. Une fois des paramètres adaptés déterminés, on présente divers résultats obtenus avec la GPM correspondante et on les compare à des données de référence afin de valider la méthode dans le cadre de la diffusion par une particule, notamment sa capacité à prédire le champ proche pour n'importe quelle excitation. Il s'agit d'une étape nécessaire avant de s'intéresser à la résolution de problèmes de diffusion multiple dans le chapitre 3.

2.1 Concept et formalisme

Pour aborder le problème de la diffusion de la lumière par des ensembles de particules arbitraires lorsque ces dernières sont proches entre elles, d'interfaces planes ou de sources de lumière localisées, on doit être capable de prédire le champ proche autour de chaque particule pour n'importe quelle excitation, que ce soit en champ proche ou en champ lointain. Il est largement admis que les variations spatiales rapides du champ électromagnétique autour d'un objet peuvent être reproduites en distribuant de manière optimale un certain nombre de sources multipolaires dans un certain volume. Ce concept est exploité depuis des années dans le développement de méthodes électromagnétiques basées sur des sources élémentaires [Wriedt *et al.*, 2000] qui ont démontré d'excellentes performances dans la résolution de problèmes directs de diffusion de la lumière par des objets individuels. De telles reproductions du champ proche ont également été étudiées dans le

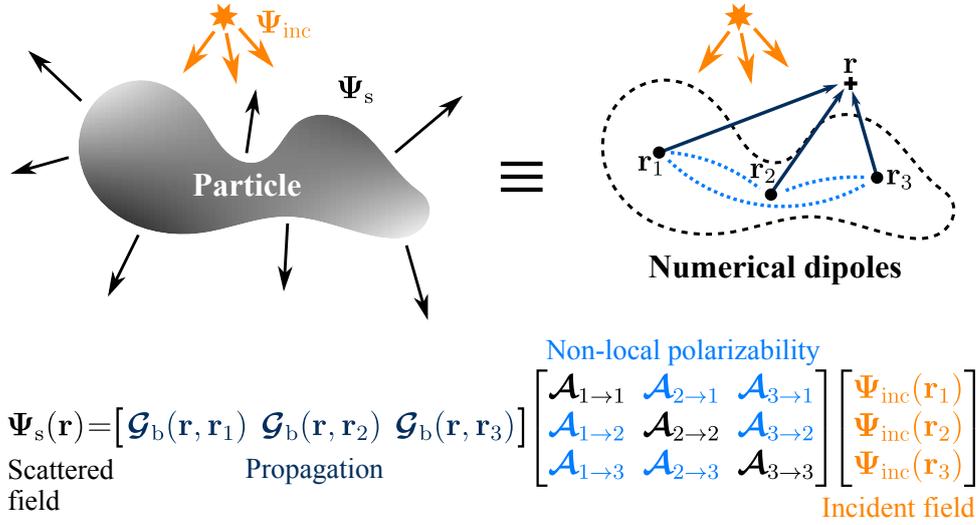


FIGURE 2.1 – Illustration de la méthode de la matrice de polarisabilité globale (GPM). On modélise la diffusion de la lumière par une particule arbitraire (gauche) avec un petit ensemble d’éléments polarisables (droite). Cet ensemble permet de reproduire avec précision le champ $\Psi_s = [\mathbf{E}_s; \mathbf{H}_s]$ diffusé par la particule partout autour d’elle, y compris dans la zone de champ-proche, et ce pour n’importe quel champ incident $\Psi_{\text{inc}} = [\mathbf{E}_{\text{inc}}; \mathbf{H}_{\text{inc}}]$. Les dipôles numériques sont décrits par un tenseur, appelé aussi matrice de polarisabilité globale (GPM). La GPM est non-locale spatialement, car chaque moment induit en un dipôle dépend non seulement du champ incident à sa position, mais aussi de celui aux positions de tous les autres dipôles de l’ensemble. Cette non-localité est représentée ici par les lignes bleues en pointillée. Elle est décrite formellement par les termes non-diagonaux de la GPM, $\mathcal{A}_{i \rightarrow j}$, avec $i \neq j$. La formulation du problème de diffusion de l’équation (2.1) est retranscrit ici pour $N_d = 3$.

domaine des composants micro-ondes. Il a été montré que le champ proche rayonné par des appareils électroniques de puissance pouvait être reproduit à l’aide de petits ensembles de dipôles électriques et magnétiques, dont les amplitudes sont déterminées en résolvant un problème inverse reposant sur des mesures en champ proche [Beghou *et al.*, 2009]. On peut également trouver des efforts similaires en acoustique, par exemple lorsque des enceintes sont optimisées pour essayer de répliquer un champ sonore de référence dans une zone d’intérêt [Chardon *et al.*, 2014]. Dans tous ces travaux, les éléments sont des *sources de courant*, produisant soit un champ total dans le cas d’objets rayonnants, soit un champ diffusé pour un champ incident donné dans le cas d’objets diffusants.

La méthode introduite ici exploite le concept de reproduction du champ proche avec des sources distribuées. Elle consiste à trouver un ensemble de dipôles électriques et magnétiques *polarisables*, capables de prédire le champ proche diffusé par une particule pour une excitation *arbitraire*, en champ proche ou en champ lointain (voir la Fig. 2.1).

On considère une onde électromagnétique monochromatique $\Psi_{\text{inc}} = [\mathbf{E}_{\text{inc}}; \mathbf{H}_{\text{inc}}]$ à la

fréquence $\omega = k_0 c$, k_0 étant le nombre d'onde dans le vide et c la célérité de la lumière. Cette onde est incidente sur une particule placée dans un milieu homogène et isotrope infini. La permittivité relative est décrite dans tout l'espace par $\boldsymbol{\epsilon}(\mathbf{r}) = \epsilon_b \mathbf{I} + \boldsymbol{\Delta\epsilon}(\mathbf{r})$, où \mathbf{r} correspond à la position en coordonnées cartésiennes, ϵ_b à la permittivité du milieu ambiant et $\boldsymbol{\Delta\epsilon}$ à la variation de permittivité due à la présence de la particule. On formule le problème de diffusion électromagnétique correspondant en affirmant que le champ électromagnétique diffusé $\boldsymbol{\Psi}_s = [\mathbf{E}_s; \mathbf{H}_s]$ en-dehors de la particule peut être décrit précisément par un ensemble de N_d dipôles ponctuels électriques et magnétiques comme suit

$$\boldsymbol{\Psi}_s(\mathbf{r}) = \sum_{i,j=1}^{N_d} \mathcal{G}_b(\mathbf{r}, \mathbf{r}_j) \mathcal{A}(\mathbf{r}_j, \mathbf{r}_i) \boldsymbol{\Psi}_{\text{inc}}(\mathbf{r}_i). \quad (2.1)$$

Dans cette expression, \mathcal{G}_b est le tenseur dyadique des fonctions de Green

$$\mathcal{G}_b = \begin{bmatrix} \mathbf{G}_b^{ee} & \mathbf{G}_b^{em} \\ \mathbf{G}_b^{me} & \mathbf{G}_b^{mm} \end{bmatrix}, \quad (2.2)$$

où $\mathbf{G}_b^{\gamma\delta}$ est la fonction de Green dyadique décrivant les champs électrique et magnétique ($\delta = e$ ou m) produits par des dipôles électrique et magnétique ($\gamma = e$ or m) dans un milieu homogène d'indice de réfraction $n_b = \sqrt{\epsilon_b}$ [Tai, 1994].

L'équation (2.1) peut être comprise comme suit : Un champ électromagnétique incident à la position d'un dipôle \mathbf{r}_i induit des moments dipolaires électriques et magnétiques aux positions \mathbf{r}_j de *tous* les dipôles via un tenseur de polarisabilité \mathcal{A} que l'on qualifie donc de *global*. Comme illustré sur la Fig. 2.1, pour $N_d = 3$ par exemple, le moment dipolaire induit au dipôle 1 serait $\mathbf{d}_1 = \mathcal{A}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_1) \boldsymbol{\Psi}_b(\mathbf{r}_1) + \mathcal{A}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) \boldsymbol{\Psi}_b(\mathbf{r}_2) + \mathcal{A}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_3) \boldsymbol{\Psi}_b(\mathbf{r}_3)$, et de même pour les autres dipôles. Les moments dipolaires induits aux positions \mathbf{r}_j génèrent ensuite un champ électromagnétique au point \mathbf{r} via les tenseurs de Green respectifs. Le champ diffusé est alors simplement déduit en effectuant la somme sur tous les dipôles i (pour le champ incident) et j (pour les dipôles rayonnants). En reprenant l'exemple de la Fig. 2.1, le champ diffusé serait donc $\boldsymbol{\Psi}_s(\mathbf{r}) = \mathcal{G}_b(\mathbf{r}, \mathbf{r}_1) \mathbf{d}_1 + \mathcal{G}_b(\mathbf{r}, \mathbf{r}_2) \mathbf{d}_2 + \mathcal{G}_b(\mathbf{r}, \mathbf{r}_3) \mathbf{d}_3$.

L'ingrédient clef dans l'Éq. (2.1) est évidemment le tenseur de polarisabilité global \mathcal{A} (abrégé GPM pour 'Global Polarizability Matrix'). Il est essentiel de noter que \mathcal{A} est une propriété de l'*ensemble* de dipôles et qu'il est spatialement non-local (ce qui est symbolisé par les lignes en pointillés bleus sur la Fig. 2.1). Comme on le montre dans la suite, cette non-localité spatiale est exploitée pour bénéficier de degrés de liberté supplémentaires afin

de reproduire le champ diffusé. Les dipôles utilisés ne doivent pas être confondus avec des dipôles physiques, qui sont décrits individuellement par des polarisabilités *locales* et interagissent entre eux par la propagation classique des ondes électromagnétiques [Draine et Flatau, 1994]. Pour cette raison, on les qualifie de « dipôles numériques ».

Il est intéressant de remarquer que l'Éq. (2.1) est très similaire à l'Éq. (1.22) impliquant l'opérateur de transition \mathbf{T} défini dans le chapitre 1. Dans les deux cas, le champ diffusé est relié linéairement au champ incident par un opérateur décrivant le rayonnement d'une densité de polarisation. En fait, étendre l'Éq. (1.22) au champ magnétique et discrétiser l'opérateur de transition en $\mathbf{T}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \sum_{i,j=1}^{N_d} \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_j) \mathcal{A}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \delta(\mathbf{r}'-\mathbf{r}_i)$ donnerait l'Éq. (2.1). À l'instar de la GPM \mathcal{A} , l'opérateur \mathbf{T} est intrinsèque à la particule (à une fréquence ω donnée) et spatialement non-local. Cette analogie entre l'opérateur de transition et la GPM s'arrête cependant ici. En effet, comme le montre l'Éq. (1.21), l'opérateur \mathbf{T} dépend de la variation de permittivité locale $\Delta\epsilon$ et sa non-localité spatiale est régie par le tenseur de Green \mathbf{G}_b , c'est donc une représentation directe du problème *physique*. La GPM \mathcal{A} , quant à elle, est un objet purement mathématique introduit dans le cadre de la méthode numérique pour résoudre efficacement le problème de diffusion. Elle est totalement déconnectée de la composition et de la forme de la particule car elle n'est explicitement reliée ni à la variation de permittivité (les dipôles numériques peuvent d'ailleurs tout à fait être placés dans des zones où $\Delta\epsilon = \mathbf{0}$), ni à la propagation interne de l'onde électromagnétique.

L'enjeu principal ici est de trouver comment obtenir un tenseur de polarisabilité \mathcal{A} qui permette des prédictions précises du champ proche et du champ lointain pour n'importe quel type d'excitations, qu'elles soient en champ proche ou en champ lointain. On propose de le faire en construisant une base de données, appelée « ensemble d'apprentissage », contenant les solutions d'un certain nombre de problèmes de diffusion *indépendants*. Ces solutions sont obtenues grâce à des simulations rigoureuses effectuées avec un solveur externe et arbitraire des équations de Maxwell, par exemple un solveur qui utilise la méthode des éléments finis. Une fois cet ensemble d'apprentissage constitué, on procède à une inversion numérique du problème [Vogel, 2002] afin de déterminer une GPM qui puisse reproduire les solutions pré-calculées. La GPM ainsi calculée est spécifique à l'ensemble d'apprentissage et à l'ensemble de dipôles numériques choisi. Lorsqu'un nombre suffisant de dipôles numériques est utilisé, celle-ci est censée redonner avec précision les champs diffusés pré-calculés correspondants à toutes les excitations de l'ensemble d'apprentissage. Une description correcte des champs sur une surface fermée autour de la particule im-

pliquant une description correcte des champs partout au-delà de cette surface [Balanis, 2016], l'apprentissage peut être restreint au champ diffusé sur une surface fermée, que l'on appellera par la suite « surface d'apprentissage ».

Reproduire le champ diffusé pour des excitations qui font partie de l'ensemble d'apprentissage n'est cependant pas suffisant pour atteindre notre objectif. En effet, pour résoudre des problèmes de diffusion multiple, on doit être capable de *prédire* le champ diffusé pour des excitations *inconnues*. On appelle cela la « généralisation ». Les variations d'un champ background donné pouvant être reproduites par la superposition de plusieurs champs background distincts, on peut s'attendre à ce que l'utilisation d'excitations variées en nombre suffisant lors de l'apprentissage permette cette généralisation et une prédiction précise. On montre dans les sections suivantes que ces attentes sont tout à fait fondées.

2.2 Implémentation numérique

2.2.1 Étapes principales de la méthode

On peut décomposer la méthode GPM en six étapes principales, des simulations rigoureuses jusqu'à la prédiction du champ diffusé.

- **Étape 1** : En utilisant un solveur rigoureux des équations de Maxwell, on calcule le champ diffusé par une particule d'intérêt pour N_s excitations indépendantes à une fréquence ω . Ces excitations peuvent être des ondes planes avec différents angles d'incidence et différentes polarisations ou bien encore des dipôles ponctuels électriques ou magnétiques avec différentes orientations et positions dans l'espace. L'ensemble d'apprentissage ainsi constitué contient les champs incident et diffusé électriques et magnétiques, Ψ_{inc} et Ψ_s , en un grand nombre de points autour de la particule. Naturellement, ce nombre de points dépend de la méthode et de la discrétisation utilisées. Collecter les champs dans un volume tout autour de la particule à ce stade permet plus de flexibilité lors du choix ultérieur d'une surface d'apprentissage. Cette étape est la seule à demander un temps conséquent, mais seule une itération est nécessaire pour une particule et une fréquence données.
- **Étape 2** : La surface fermée sur laquelle on cherche à reproduire précisément le champ diffusé, la surface d'apprentissage, est définie. Cette surface peut *a priori* être de forme arbitraire et aussi proche de la particule que voulu. Elle remplace la sphère d'exclusion de la méthode de la matrice T. Pour chacune des N_s excitations, les six composantes

des champs électrique et magnétique diffusés Ψ_s sont évaluées en N_l points sur la surface d'apprentissage (que l'on appelle donc 'points d'apprentissage' par la suite), pour créer la matrice $\mathbf{P}_s^{\text{true}}$ de taille $6N_l \times N_s$.

- **Étape 3** : On définit les positions de N_d dipôles numériques, préférablement à l'intérieur du volume de la particule. Les six composantes des champs incidents électrique et magnétique Ψ_{inc} sont évaluées à ces positions pour chacune des N_s excitations pour créer la matrice \mathbf{P}_{inc} de taille $6N_d \times N_s$.
- **Étape 4** : Les tenseurs dyadiques des fonctions de Green entre les N_d dipôles numériques et les N_l points d'apprentissage sont calculés pour toutes les composantes des moments dipolaires électriques et magnétiques et des champs électriques et magnétiques. On les concatène pour construire une matrice \mathbf{G}_b de taille $6N_l \times 6N_d$.
- **Étape 5** : La matrice de polarisabilité globale \mathbf{A} , de taille $6N_d \times 6N_d$, est finalement déterminée en résolvant un problème inverse à partir de tout l'ensemble d'apprentissage (N_s excitations et autant de solutions du problème de diffusion). C'est l'étape clef de la méthode GPM. Le problème inverse est résolu en deux temps. Dans un premier temps, on détermine les moments dipolaires à fixer aux positions de chacun des N_d dipôles numériques pour générer le champ diffusé de référence aux N_l points d'apprentissage. Cette partie est parfaitement équivalente aux problèmes radiatifs mentionnés précédemment [Beghou *et al.*, 2009; Chardon *et al.*, 2014]. Ici, on cherche donc une fonction qui minimise la distance euclidienne entre la solution reproduite $\mathbf{G}_b \mathbf{X}$ et la référence (solution exacte) $\mathbf{P}_s^{\text{true}}$, à savoir

$$\mathcal{I}_1 = \min_{\mathbf{X}} \left\| \mathbf{P}_s^{\text{true}} - \mathbf{G}_b \mathbf{X} \right\|_2, \quad (2.3)$$

où $\|\cdot\|_2$ représente la norme euclidienne. La seconde étape consiste alors à trouver une matrice de polarisabilité qui convertisse les champs incidents générés par les N_s sources d'apprentissage en les moments dipolaires aux positions de chacun des N_d dipôles numériques. On résout donc

$$\mathcal{I}_2 = \min_{\mathbf{A}} \left\| \mathbf{X}^{\text{H}} - \mathbf{P}_{\text{inc}}^{\text{H}} \mathbf{A}^{\text{H}} \right\|_2, \quad (2.4)$$

où \mathbf{X}^{H} désigne la matrice adjointe de \mathbf{X} .

La méthode GPM permet d'exploiter pas moins de $36N_d^2$ degrés de liberté (i.e. la taille

de \mathbf{A}) pour prédire le champ diffusé. À titre de comparaison, on ne disposerait que de $36N_d$ degrés de liberté pour résoudre ce problème avec des dipôles électriques et magnétiques *physiques*, c'est-à-dire des dipôles locaux présentant un couplage électromagnétique décrit par des tenseurs de Green. On s'attend donc à ce que, pour le même nombre de dipôles, un ensemble de dipôles numériques donne de meilleures prédictions qu'un ensemble de dipôles physiques. Ce point est crucial pour pouvoir étudier des systèmes avec un grand nombre de particules tout en conservant une charge de calcul raisonnable.

- **Étape 6** : Une fois la matrice de polarisabilité globale \mathbf{A} obtenue, le champ diffusé peut-être calculé à partir de l'équation (2.1) pour n'importe quel champ background comme suit

$$\mathbf{P}_s = \mathbf{G}_b \mathbf{A} \mathbf{P}_{inc}. \quad (2.5)$$

2.2.2 Systèmes surdéterminés, pseudo-inverses et régularisation

Lors de l'étape 5, on est amené à résoudre deux problèmes inverses successifs, décrits par les Éqs. (2.3) et (2.4). Dans la méthode GPM, on cherche à réduire le nombre de dipôles numériques. On se retrouve donc essentiellement dans des problèmes où $N_l \gg N_d$ et $N_s > 6N_d$, auquel cas les deux systèmes d'équations sont surdéterminés, c'est-à-dire qu'ils sont composés de plus d'équations indépendantes que d'inconnues.

Constituer volontairement des systèmes surdéterminés est une pratique courante pour gagner en stabilité lors de la résolution de tels problèmes inverses. Cette technique est ainsi utilisée en modélisation électromagnétique dans plusieurs implémentations de la *Generalized Multipole Technique* (GMT), notamment dans le *Multiple Multipole Program* (MMP) [Hafner, 1990] et la *Discrete Sources Method* (DSM) [Wriedt et Eremin, 2018]. Ainsi, on demande à satisfaire les conditions de passage en un nombre de points (les équations) supérieur au nombre d'amplitudes de sources (les inconnues) au lieu d'en utiliser autant. Il est préconisé d'utiliser au moins 2 à 3 fois plus de points que d'inconnues [Ludwig, 1991].

En général, un système (S) d'équations linéaires $\mathbf{A}\mathbf{x} = \mathbf{b}$ ne possède pas de solution lorsqu'il est surdéterminé. On peut en revanche toujours lui trouver au moins une pseudo-solution (souvent une infinité), nom donné à une solution du système d'équations normales $(\mathbf{A}^H \mathbf{A})\mathbf{x} = \mathbf{A}^H \mathbf{b}$. Déterminer ces pseudo-solutions est équivalent à résoudre (S) au sens des moindres carrés, c'est-à-dire en trouvant les vecteurs $\hat{\mathbf{x}}$ qui minimisent la distance

$\|\mathbf{b} - \mathbf{A}\mathbf{x}\|_2$. Une solution très utilisée dans ces problèmes est celle de norme minimale, $\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{A}^+\mathbf{b}$, où \mathbf{A}^+ désigne la pseudo-inverse de Moore-Penrose (ou inverse généralisée) [Barata et Hussein, 2012]. C'est ainsi que l'on a implémenté l'étape 5 de la méthode GPM. Dans la pratique, résoudre l'Éq. (2.4) revient donc finalement à déterminer $\mathbf{A} = \mathbf{X}\mathbf{P}_{\text{inc}}^+$, soit $\mathbf{A} = \mathbf{G}_b^+\mathbf{P}_s^{\text{true}}\mathbf{P}_{\text{inc}}^+$ en insérant la solution particulière de l'Éq. (2.3). Il faut donc calculer les pseudo-inverses des matrices \mathbf{P}_{inc} et \mathbf{G}_b , construites lors des étapes 3 et 4 respectivement, pour déterminer la GPM du problème.

Il est bien connu que les problèmes inverses discrets sont souvent mal posés, c'est-à-dire instable par rapport à des erreurs dans les données [Kabanikhin, 2011]. Dans notre cas, les données sont entachées d'erreurs numériques issues des calculs COMSOL et limitées en précision, et les matrices \mathbf{P}_{inc} et \mathbf{G}_b peuvent donc être mal conditionnées. Dans ces cas, les algorithmes classiques d'inversion (décompositions LU et QR, factorisation de Cholesky, ...) ne permettent pas souvent d'obtenir des solutions approchées valables. En revanche, un moyen judicieux de traiter de telles matrices est d'utiliser la décomposition en valeurs singulières (SVD) [Bakushinsky et Goncharsky, 2012]. Si la SVD d'une matrice \mathbf{A} est $\mathbf{A} = \mathbf{U}\mathbf{\Sigma}\mathbf{V}^H$, alors sa pseudo-inverse est $\mathbf{A}^+ = \mathbf{V}\mathbf{\Sigma}^+\mathbf{U}^H$. La matrice $\mathbf{\Sigma}^+$ est obtenue en inversant tous les éléments non-nuls sur la diagonale de $\mathbf{\Sigma}$, les éléments nuls étant conservés, puis en la transposant. Passer par la SVD présente deux avantages d'un point de vue numérique. Premièrement, on évite de former explicitement la matrice de Gram $\mathbf{A}^H\mathbf{A}$, encore plus mal conditionnée que \mathbf{A} (le conditionnement est élevé au carré). Deuxièmement, cela permet de réduire à zéro des valeurs singulières très petites afin de les ignorer. Cette décomposition en valeurs singulières tronquée (TSVD) constitue une méthode de régularisation des solutions de problèmes inverses parmi d'autres [Hansen, 2007] et permet de ne pas propager de manière prédominante dans la solution à la fois les erreurs d'arrondi introduites lors de son calcul et le bruit \mathbf{e} associé aux données du problème $\mathbf{b} = \hat{\mathbf{b}} + \mathbf{e}$. On verra par la suite qu'il peut parfois s'avérer indispensable de procéder à une régularisation des pseudo-inverses, notamment lorsque le nombre de dipôles numériques devient conséquent.

Il convient de signaler qu'il est tout à fait possible de reformuler le problème défini par les Éqs. (2.3) et (2.4) pour n'avoir plus qu'un seul système $\mathbf{A}\mathbf{x} = \mathbf{b}$. Cependant, dans ce cas, la matrice à inverser \mathbf{A} est de taille $6N_lN_s \times (6N_d)^2$. Cela représente un nombre colossal d'éléments (généralement plus d'un milliard) qui peut saturer la mémoire d'une station de calcul standard et rendre le calcul de la GPM très long, voire impossible à réaliser sans recourir à des algorithmes spéciaux. En conservant le calcul en deux étapes

décrit précédemment, on évite cette limitation, les matrices à inverser ayant des tailles caractéristiques de plusieurs centaines de milliers d'éléments tout au plus. De plus, on peut aisément se représenter la signification physique derrière l'opération mathématique effectuée, comme expliqué dans la sous-section précédente.

2.3 Exemple d'application : cylindre diélectrique dans un milieu homogène

Pour illustrer la méthode, étudier ses différents paramètres et la valider, on considère le cas d'un cylindre diélectrique à fort indice et haut rapport de forme. La particule, en silicium (Si), possède une longueur de $L = 500$ nm et un diamètre de $d = 100$ nm (voir Fig. 2.2). Elle est placée dans un milieu infini de verre et excitée à une longueur d'onde dans le vide $\lambda = 2\pi/k_0$ de 580 nm, pour laquelle le système est multi-résonant (i.e. plusieurs modes du cylindre sont excités simultanément) et diffuse fortement la lumière. Les permittivités des deux matériaux à cette longueur d'onde ($\epsilon_{\text{Si}} = 15,8877 + 0,1796i$, $\epsilon_{\text{b}} = 2,25$) sont extraites de données tabulées [Green et Keevers, 1995]. Les simulations numériques rigoureuses nécessaires pour construire la base de données de l'apprentissage (étape 1), ainsi que pour valider les prédictions issues de la méthode GPM (étape 6), sont réalisées avec le logiciel commercial COMSOL Multiphysics [COM], basé sur la méthode des éléments finis (FEM) [Monk *et al.*, 2003; Jin, 2015]. On souligne à nouveau que la méthode GPM ne restreint aucunement le choix du solveur externe pour construire l'ensemble d'apprentissage. N'importe quelle méthode résolvant rigoureusement les équations de Maxwell peut être utilisée. Un grand nombre de logiciels et codes pour la modélisation de la diffusion de la lumière sont aujourd'hui disponibles en accès libre [sca].

2.3.1 Étude des paramètres principaux de la méthode

Dans la méthode GPM, il y a trois éléments clés que l'utilisateur doit définir et qui peuvent avoir une grande influence sur la qualité des résultats obtenus. Ces éléments sont, par ordre chronologique d'apparition dans la méthode : un ensemble d'excitations d'apprentissage, un ensemble de points d'apprentissage, et un ensemble de dipôles numériques. Dans cette sous-section, on étudie ces trois paramètres un à un afin de déterminer ceux qui permettent de calculer une GPM qui reproduit quantitativement la diffusion de la lumière par le cylindre étudié. C'est également l'occasion de dégager quelques règles générales qui

constituent un bon point de départ pour espérer obtenir des résultats probants quelle que soit la particule considérée.

Dans la suite, à chaque fois que l'on étudie l'influence d'un paramètre sur la performance de la méthode, on fixe les deux autres. Ces choix sont annoncés au début de chaque étude. Pour évaluer la performance de la méthode dans une configuration donnée, on calcule la GPM \mathbf{A} correspondante et on observe sa capacité à restituer les données de référence, celles de l'ensemble d'apprentissage retenu. Une quantité pertinente pour établir la comparaison est la densité d'énergie électromagnétique diffusée $u_s = \frac{1}{2}(\mathbf{E}_s \cdot \mathbf{D}_s + \mathbf{B}_s \cdot \mathbf{H}_s)$, car elle fait intervenir à la fois le champ électrique et le champ magnétique et elle permet d'éviter les valeurs nulles [Hafner, 1990]. On compare donc systématiquement, aux points d'apprentissages retenus, les densités d'énergie électromagnétique calculées à partir des champs diffusés issus de la GPM ($\mathbf{P}_s = \mathbf{G}_b \mathbf{A} \mathbf{P}_b$) et de l'ensemble d'apprentissage ($\mathbf{P}_s^{\text{true}}$). En moyennant les erreurs relatives sur tous les points d'apprentissage et pour toutes les excitations d'apprentissage, on obtient finalement une valeur unique e qui quantifie la qualité de la solution \mathbf{A} vis-à-vis du problème inverse posé. Déjà présentée comme une force de la GMT, cette opportunité offerte par la collocation par points est un avantage dont bénéficie aussi la méthode GPM.

Sources d'apprentissage

Paramètres fixés :

- $N_l = 338$ points d'apprentissage à $d_l = 20$ nm de la surface de la particule (surface bleue en Fig. 2.2) ;
- $N_d = 10$ dipôles numériques répartis sur l'axe du cylindre (sphères bleues en Fig. 2.2) ;

Pour calculer la GPM du cylindre diélectrique, on doit tout d'abord définir un ensemble d'excitations que l'on applique tour à tour à la particule pour construire l'ensemble d'apprentissage (étape 1). C'est le premier paramètre à choisir dans la méthode, et il faut bien évidemment étudier son influence sur les résultats, c'est-à-dire étudier l'influence du type d'excitations utilisé (sources ponctuelles, ondes planes, ...), de leur nombre, mais aussi de leur distance à la particule dans le cas de sources ponctuelles.

Le choix le plus naturel est justement de considérer des dipôles ponctuels pour éclairer le cylindre. Il est avant tout motivé par la possibilité qu'ils offrent d'exciter la particule en champ proche. Cet aspect semble primordial étant donné notre volonté de faire interagir

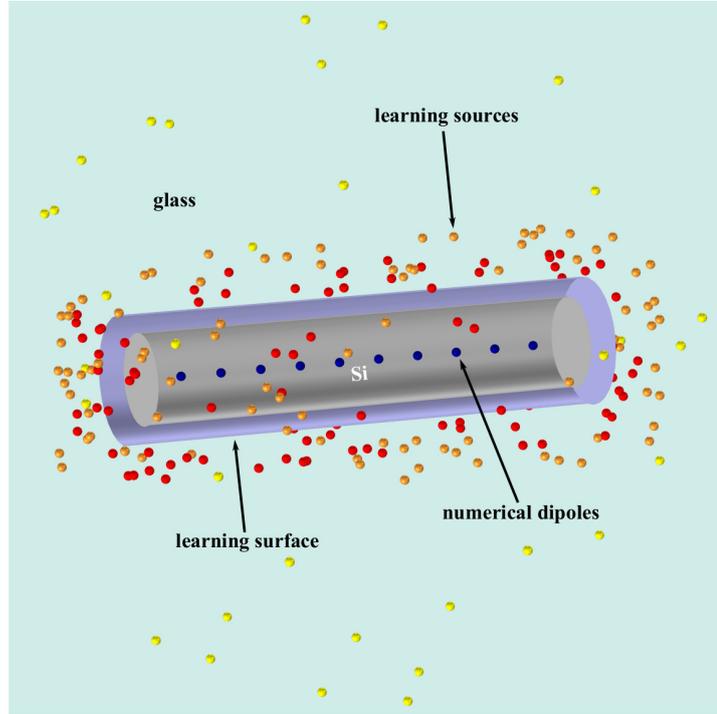


FIGURE 2.2 – Illustration des 3 paramètres principaux de la méthode GPM. Pour calculer la GPM d'une particule, ici celle d'un cylindre ($L = 500$ nm, $d = 100$ nm) en Si dans un milieu infini en verre, il faut choisir à différents stades 3 paramètres principaux. Ces paramètres sont, par ordre d'apparition dans la méthode : un ensemble d'excitations d'apprentissage, un ensemble de points d'apprentissage, et un ensemble de dipôles numériques. Les N_s excitations d'apprentissage sont définies lors de l'étape 1 et utilisées une à une pour exciter la particule dans une série de simulations rigoureuses réalisées avec un solveur externe des équations de Maxwell. Ici, on distribue un total de 240 sources ponctuelles à différentes distances de la particule (sphères rouges, oranges et jaunes). Utiliser une de ces sources pour l'apprentissage revient à effectuer 6 simulations indépendantes, correspondant à un dipôle électrique et un dipôle magnétique polarisés suivant les directions x , y et z . Les positions des N_l points d'apprentissage sont définies lors de l'étape 2 pour y collecter les champs diffusés $\mathbf{P}_s^{\text{true}}$ calculés lors de la série de simulations rigoureuses. Ils sont répartis sur une surface arbitraire englobant la particule, appelée surface d'apprentissage, que l'on prend ici de la même forme que la particule (surface bleue transparente) et à une distance d_l de sa surface. Les positions des N_d dipôles numériques sont définies lors de l'étape 3, dans le volume de la particule. On peut alors calculer analytiquement les matrices \mathbf{P}_{inc} et \mathbf{G}_b , puis enfin déterminer la GPM $\mathbf{A} = \mathbf{G}_b^+ \mathbf{P}_s^{\text{true}} \mathbf{P}_{\text{inc}}^+$ dans cette configuration. Ici, on représente $N_d = 10$ dipôles numériques régulièrement répartis sur l'axe du cylindre.

des particules très rapprochées ultérieurement. Il faut souligner également qu'il est aisé d'implémenter une source dipolaire dans COMSOL, et que l'on peut calculer efficacement le champ qu'elle rayonne en l'absence de particule via le tenseur de Green à l'aide de n'importe quel outil de calcul numérique.

On commence donc par définir un grand nombre de points autour de la particule, où sont positionnées des sources appelées « sources de test ». On utilise un échantillon total de 240 sources de test, qui sont représentées par des sphères rouges, oranges et jaunes sur la figure 2.2, et qui sont réparties comme suit :

- 102 sources sont distribuées sur un parallélépipède virtuel dont les faces sont à une distance de 40 nm du cylindre (sphères rouges) ;
- 102 sources sont distribuées sur un parallélépipède virtuel dont les faces sont à une distance de 60 nm du cylindre (sphères oranges) ;
- 36 sources sont distribuées sur une sphère de rayon $r = 345$ nm centrée sur le cylindre (sphères jaunes) ;

À la position de chaque source de test, on fait émettre successivement des dipôles électriques et magnétiques polarisés suivant les trois axes de coordonnées cartésiennes, ce qui correspond à $N_s = 6 \times 240 = 1440$ simulations indépendantes réalisées avec COMSOL pour calculer le champ diffusé par le cylindre et construire un jeu de données de référence appelé « ensemble de test ». Cela permet de tester quelles sont les sources les plus pertinentes, et donc d'optimiser leur choix. Les positions des sources sont tirées aléatoirement afin d'éviter d'introduire des informations redondantes dans l'ensemble à cause des symétries du système.

Pour comprendre l'influence de la position et du nombre de sources pour l'apprentissage, on utilise différents sous-échantillons de sources de test comme sources pour l'apprentissage. Dit autrement, on n'utilise que les données de référence correspondant à un certain nombre de sources soit rouges, soit oranges, soit jaunes pour calculer une GPM **A**. On évalue alors sa capacité à reproduire les données de l'ensemble de test, correspondant à l'échantillon *total*. On calcule pour cela l'erreur relative e sur la densité d'énergie électromagnétique diffusée, qui est donc obtenue en faisant une moyenne sur l'ensemble des 240 sources.

Le tableau 2.1 donne e en fonction du nombre N de sources utilisé dans chaque ensemble (rouge, orange ou jaune) correspondant à une surface virtuelle différente, avec les paramètres fixés donnés au début de la section. Les sources sont choisies aléatoirement dans chaque cas. Si on utilise la totalité des 240 sources de test comme sources

d'apprentissage, l'erreur e obtenue est de 0,0387.

Distance des sources	Nombre de sources			
	N = 15	N = 30	N = 60	N = 100
À 40 nm (rouges)	0,0525	0,0398	0,0397	0,0395
À 60 nm (oranges)	15,9544	0,0415	0,0409	0,0391
À $r = 345$ nm (jaunes)	27,1764	2,4431	—	—

TABLE 2.1 – Erreur sur le champ diffusé au niveau de la surface d'apprentissage en fonction des sources utilisées pour l'apprentissage. On tire aléatoirement un nombre N de sources d'apprentissage parmi un des ensembles de sources de test définis sur la Fig. 2.2 (sphères rouges, oranges ou jaunes). On calcule la GPM \mathbf{A} correspondante, les deux autres paramètres étant fixés ($N_1 = 338$ points d'apprentissage distribués régulièrement à la surface d'un cylindre virtuel à $d_1 = 20$ nm de la surface de la particule (surface bleue), $N_d = 10$ dipôles numériques répartis sur l'axe du cylindre (sphères bleues)). On compare alors, aux points d'apprentissage, les densités d'énergie électromagnétique calculées pour la totalité des 240 sources de test à partir des champs diffusés issus de \mathbf{A} et de l'ensemble de test. Les valeurs affichées correspondent à l'erreur relative e obtenue en faisant la moyenne sur les points d'apprentissage et sur les 240 sources de test.

On peut tirer plusieurs conclusions de ces résultats. Premièrement, on voit qu'utiliser uniquement des sources en champ lointain n'est pas efficace. En effet, pour un même nombre de sources d'apprentissage utilisé les erreurs obtenues avec les sources sur la sphère de 345 nm de rayon (sphères jaunes) sont beaucoup plus importantes que celles obtenues avec les sources en champ proche (sphères rouges et oranges). Les sources en champ lointain semblent ne pas permettre d'exciter suffisamment de modes de la particule lors de l'apprentissage. En conséquence, assez logiquement, la GPM calculée n'est pas capable de reproduire les champs diffusés par la particule lorsqu'elle est excitée en champ proche. On peut avancer qu'on observerait la même chose en utilisant uniquement des ondes planes, c'est donc un test que nous n'effectuerons pas. À l'inverse, avec des sources en champ proche seulement, on obtient des résultats très satisfaisants puisque comparables à celui obtenu avec l'ensemble des 240 sources. Deuxièmement, on constate qu'il faut tout de même utiliser un nombre minimum de sources en champ proche pour avoir des résultats corrects. Dit autrement, il faut un nombre minimum de sources d'apprentissage pour permettre la généralisation des résultats, c'est-à-dire donner la capacité à la GPM de prédire le champ diffusé pour des sources non-apprises (le reste des sources de l'échantillon total ici). Par ailleurs, ce nombre semble être d'autant plus important que ces sources sont disposées loin de la particule. À 40 nm, un nombre de sources relativement faible ($N = 30$) est suffisant pour faire converger l'erreur sur la reproduction des champs. Utiliser un nombre réduit de sources pour l'apprentissage est intéressant, puisque

cela permet de réduire la durée de l'étape 1. Pour $N = 30$ sources d'apprentissage, celle-ci dure environ 9 heures ici, chacune des $N_s = 6 \times 30 = 180$ simulations indépendantes réalisées avec COMSOL nécessitant environ 3 minutes de calcul. Au vu de ces observations, on décide de garder un ensemble de 30 sources d'apprentissage à 40 nm du cylindre pour construire l'ensemble d'apprentissage de cette particule et étudier les paramètres suivants.

Surface et points d'apprentissage

Paramètres fixés :

- $N = 30$ sources d'apprentissage à 40 nm de la surface de la particule (sphères rouges en Fig. 2.2) ;
- $N_d = 10$ dipôles numériques répartis sur l'axe du cylindre (sphères bleues en Fig. 2.2) ;

Maintenant que l'on a définitivement fixé les sources d'apprentissage, on s'intéresse à l'influence des points d'apprentissage, points en lesquels on veut reproduire les champs diffusés $\mathbf{P}_s^{\text{true}}$. Les points d'apprentissage sont répartis sur une surface fermée englobant la particule, de forme a priori arbitraire. Ici, on fait le choix assez naturel de les disposer sur une surface de forme cylindrique séparée de la surface de la particule d'une distance d_1 (surface bleue sur la Fig. 2.2). Chaque fois que l'on définit un ensemble de points d'apprentissage on peut calculer la GPM \mathbf{A} correspondante et déterminer l'erreur e associée, cette fois-ci vraiment par rapport à l'ensemble d'apprentissage.

On distribue les points d'apprentissage de façon régulière sur la surface. Le nombre N_1 de points sélectionnés doit être suffisant pour enregistrer les variations spatiales du champ diffusé dans toutes les directions. On rappelle que pour la GMT il est recommandé d'utiliser au moins 2 à 3 fois plus de points que d'inconnues [Ludwig, 1991], ce qui correspond dans notre cas à $N_1 > N_d = 10$. En pratique, on peut en fait choisir $N_1 \gg N_d$ (quelques centaines voire milliers de points). En effet, contrairement au nombre de sources d'apprentissage N_s , le nombre de points d'apprentissage n'a pas d'impact significatif sur le temps de calcul de la GPM, l'extraction des champs diffusés depuis les fichiers COMSOL (étape 2) et la pseudo-inversion de la matrice \mathbf{G}_b (étape 4) étant des opérations rapides dans tous les cas. Lorsque le nombre de points retenu est suffisant, l'erreur sur les champs diffusés sur toute la surface d'apprentissage, donc entre les points d'apprentissage, est comparable à celle obtenue aux points d'apprentissage seulement.

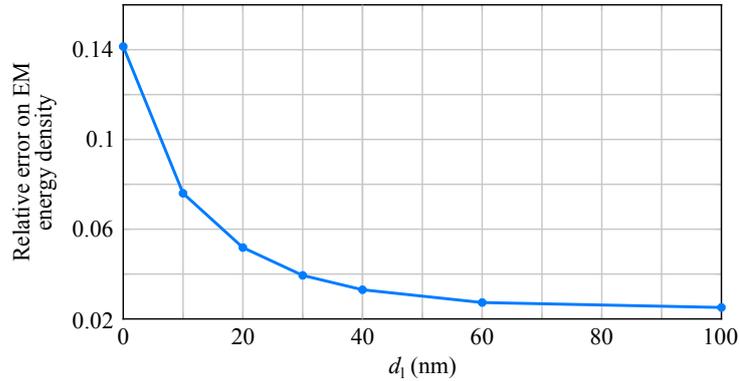


FIGURE 2.3 – Convergence du champ diffusé au niveau de la surface d'apprentissage en fonction de sa distance d_1 à la particule. On compare, aux points d'apprentissage, les densités d'énergie électromagnétique calculées à partir des champs diffusés issus de la GPM ($\mathbf{P}_s = \mathbf{G}_b \mathbf{A} \mathbf{P}_b$) et de l'ensemble d'apprentissage ($\mathbf{P}_s^{\text{true}}$). L'erreur relative e affichée est moyennée sur les points d'apprentissage et sur les 180 excitations de l'apprentissage. Pour chaque distance d_1 on veille à prendre un nombre de points d'apprentissage N_1 suffisant pour que l'erreur obtenue soit minimale. On constate que la modélisation gagne en précision à mesure que d_1 augmente.

Il reste cependant à choisir la distance d_1 . La Fig. 2.3 montre l'erreur e obtenue pour différentes valeurs de d_1 , avec un nombre de points d'apprentissage N_1 optimisé à chaque fois (suffisamment important pour que l'erreur soit minimale). On constate qu'il est de plus en plus difficile de reproduire précisément le champ diffusé sur la surface d'apprentissage à mesure qu'on l'approche de celle de la particule. Ceci s'explique probablement en partie par le fait que les variations spatiales du champ y sont de plus en plus rapides. Il s'agit en fait de trouver un compromis entre la proximité de la surface d'apprentissage et notre capacité à y reproduire les champs. Ce choix peut-être conditionné par la distance moyenne (ou la distance minimale) séparant les particules dans les ensembles que l'on souhaite modéliser ultérieurement avec la GPM. On décide de garder une surface d'apprentissage relativement proche de la particule pour pouvoir ensuite considérer des interactions fortes : on fixe $d_1 = 20$ nm. À cette distance et avec un ensemble de $N_1 = 338$ points, la GPM calculée donne une erreur e globale sur la densité d'énergie électromagnétique diffusée de 5,2%.

Dipôles numériques

Paramètres fixés :

- $N = 30$ sources d'apprentissage à 40 nm de la surface de la particule (sphères rouges en Fig. 2.2) ;
- $N_1 = 338$ points d'apprentissage à $d_1 = 20$ nm de la surface de la particule (surface bleue en Fig. 2.2) ;

Maintenant que l'on a définitivement fixé les sources d'apprentissage et les points d'apprentissage, il ne reste plus qu'à trouver un ensemble de dipôles numériques pertinent pour déterminer la GPM de la particule. Il s'agit d'étudier l'influence de leur nombre et de leur organisation spatiale sur les résultats obtenus.

En figure 2.4, on montre la convergence de e en fonction du nombre de dipôles numériques utilisé dans deux configurations différentes. La première a déjà été exploitée précédemment, il s'agit d'une ligne de dipôles numériques régulièrement répartis sur l'axe du cylindre (courbe bleue). La seconde configuration est une ligne de triplets de dipôles numériques répartis au sommet de triangles centrés sur l'axe du cylindre (courbe rouge). Les encarts schématisent les vues de profil des cylindres avec les dipôles numériques dans ces deux configurations. Des tests ont montré que quelque soit la configuration considérée, ordonnée comme aléatoire, les résultats s'améliorent drastiquement lorsqu'on éloigne les dipôles numériques de la surface de la particule, jusqu'au point de les restreindre dans un petit rayon de quelques nanomètres autour de l'axe du cylindre. C'est pour cela que les dipôles de la seconde configuration sont représentés très proches de l'axe du centre du cylindre. En réalité, ils sont positionnés au sommet d'un triangle inscrit dans un cercle de seulement 2 nm de diamètre. Les 2 courbes affichées montrent qu'il faut un nombre de dipôles numériques minimum pour terminer leur décroissance rapide et converger vers une erreur acceptable. Ce résultat est attendu pour des particules volumineuses comme ce cylindre, qui ne rayonnent pas comme un simple dipôle électrique et/ou dipôle magnétique en champ lointain. Dans le cas de la ligne de dipôles numériques, un plateau se dessine franchement après une convergence très rapide, atteinte dès $N_d \approx 10$, pour une erreur relative d'environ 3,6%. Disposer ainsi les dipôles numériques sur l'axe de symétrie de la particule semble assez naturel, c'est d'ailleurs ce qui est fait dans la DSM pour les particules axisymétriques allongées [Doicu *et al.*, 2015]. On constate que, dans notre cas, accumuler davantage de dipôles numériques sur cet axe n'améliore pas les résultats. C'est bien dans la deuxième configuration que l'on peut continuer à faire décroître l'erreur e

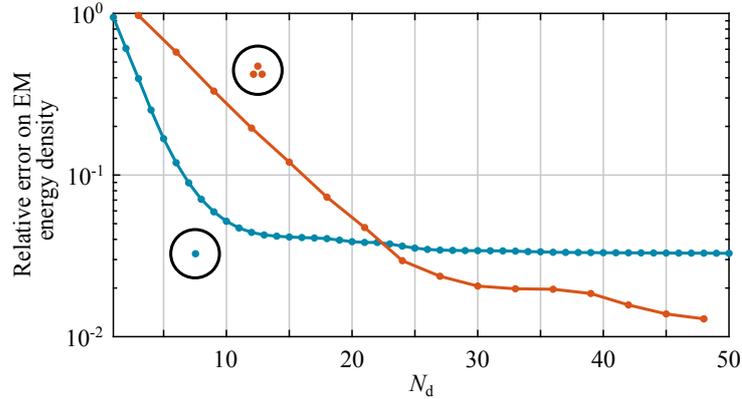


FIGURE 2.4 – Convergence du champ diffusé au niveau de la surface d'apprentissage en fonction du nombre N_d de dipôles numériques utilisé, dans différentes configurations. Les courbes montrent l'évolution de l'erreur e pour deux configurations spatiales de dipôles numériques différentes. La première configuration est une ligne de dipôles numériques répartis sur l'axe du cylindre (courbe bleue). La seconde configuration est une ligne de triplets de dipôles numériques répartis au sommet de triangles centrés sur l'axe du cylindre (courbe rouge), comme illustré sur l'encart avec les trois points rouges, schématisant le cylindre vu de profil. On constate une convergence rapide associée à la ligne de dipôles numériques, suivie d'un plateau, tandis que la courbe rouge a une décroissance plus lente avec N_d mais permet d'obtenir des erreurs bien plus faibles pour un nombre élevé de dipôles numériques.

au-delà de $N_d = 20$ dipôles numériques. Cette inversion de la tendance semble indiquer qu'il faut occuper la longueur du cylindre en priorité, mais qu'une fois que cela est fait avec une dizaine de dipôles numériques, il devient nécessaire de s'éloigner très légèrement de la ligne. Ce nouveau gain s'explique très certainement par le fait que l'on peut alors représenter des dérivées d'ordre supérieur dans les directions perpendiculaires à l'axe, ce qui n'était pas possible sur une ligne. Il est assez remarquable de voir que l'on peut atteindre une erreur de l'ordre du pour cent dans la seconde configuration, mais cette performance est atteinte au prix d'un nombre conséquent de dipôles numériques utilisé (plus d'une quarantaine). Un tel chiffre va à l'encontre de l'idée même de la méthode GPM, qui est on le rappelle de trouver une représentation de la diffusion par une particule suffisamment légère pour pouvoir ensuite traiter des problèmes de diffusion multiple dans de grands ensembles.

Il faut préciser que la courbe correspondant à la ligne de dipôles présentée en figure 2.4 est obtenue grâce à une régularisation de la GPM. En effet, on constate dans cette configuration des sauts de l'erreur sur la reproduction du champ diffusé après $N_d = 30$ lorsqu'on ne régularise pas correctement la GPM. La GPM peut alors prendre des valeurs extrêmes et donner des prédictions totalement erronées. Pour empêcher ces instabilités,

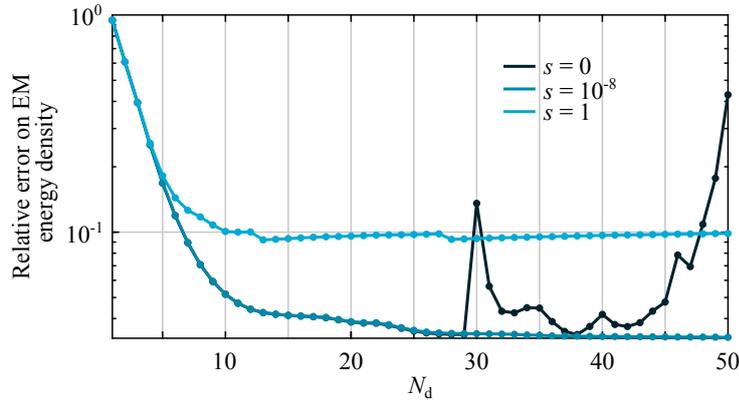


FIGURE 2.5 – Effets de différentes régularisations sur la qualité de la GPM calculée en fonction du nombre N_d de dipôles numériques sur l’axe du cylindre. Évolution de l’erreur relative e sur la densité du champ diffusé au niveau de la surface d’apprentissage en fonction du nombre N_d de dipôles numériques répartis sur l’axe du cylindre, pour différentes régularisations de la GPM. Les valeurs singulières inférieures au seuil s ne sont pas prises en compte lors du calcul de la seconde pseudo-inverse \mathbf{P}_b^+ par SVD. Sans régularisation ($s = 0$), on constate des instabilités à partir de $N_d = 30$. Avec un seuil trop grand à l’inverse (ici $s = 1$), on ne converge pas vers une erreur satisfaisante. Finalement, avec un seuil adapté (ici $s = 10^{-8}$), on empêche les instabilités tout en assurant la convergence vers l’erreur visée.

il est nécessaire de fixer des seuils en-dessous desquels on ignore les valeurs singulières lors du calcul des deux pseudo-inverses. La figure 2.5 montre les effets de l’application de différents seuils s lors du calcul de la seconde pseudo-inverse \mathbf{P}_b^+ . Au vu de ces courbes, on comprend qu’il faut choisir un seuil suffisamment grand pour filtrer les valeurs singulières responsables des instabilités mais assez petit pour conserver celles qui contribuent à améliorer la solution. Un seuil adapté peut être déterminé en utilisant le principe de discordance [Morozov, 2012], mais il faut pour cela connaître la borne supérieure du bruit \mathbf{e} qui entache les données de l’apprentissage, ce qui est loin d’être trivial en pratique. Il est souvent plus aisé d’effectuer des tests numériques comme ici. Bien qu’il soit intéressant de chercher à comprendre d’où viennent ces problèmes et potentiellement comment les éviter, ces questions ne seront pas approfondies davantage ici. En effet, les instabilités surviennent ici à partir d’un nombre de dipôles numériques assez conséquent, alors que dans la même configuration on estime avoir déjà des résultats satisfaisants pour $N_d = 10$. Il semble s’agir d’un bon compromis entre la charge de calcul (très corrélée à N_d) et la qualité de reproduction des champs. C’est donc cet ensemble que l’on utilise pour calculer la GPM qui sert à valider la méthode dans la suite.

2.3.2 Matrice de polarisabilité globale (GPM)

On a donc maintenant fixé les 3 paramètres principaux de la méthode. La figure 2.6(a) montre la configuration d'apprentissage finalement retenue. On a en particulier une distance d_1 de seulement 20 nm entre la surface d'apprentissage et le cylindre ($L = 500$ nm, $d = 100$ nm). Avec les $N_d = 10$ dipôles numériques représentés (sphères bleues) et sans régularisation, on obtient la matrice de polarisabilité globale (GPM) \mathbf{A} dont on montre la valeur absolue en figure 2.6(b). On rappelle qu'elle correspond à une erreur relative e sur la reproduction de la densité d'énergie électromagnétique diffusée sur la surface d'apprentissage de 5,2%.

La matrice obtenue est presque symétrique par blocs dans cette configuration car l'ensemble de dipôles numériques est sur l'axe de symétrie du cylindre et les sources d'apprentissage ont été disposées aléatoirement tout autour de la particule. Cette forme ne constitue toutefois pas une propriété générale de la GPM. Chaque bloc de 6×6 éléments décrit comment des champs électriques et magnétiques induisent des moments dipolaires électriques et magnétiques suivant les trois axes de coordonnées cartésiennes. Les blocs hors de la diagonale décrivent la non-localité spatiale de \mathbf{A} , qui permet de disposer de N_d fois plus de degrés de liberté que ce qu'offriraient des dipôles physiques.

On teste ensuite à quel point le champ est bien reproduit partout dans l'espace pour une des excitations de l'apprentissage. Pour ce faire, on calcule une carte de champ autour de la particule en utilisant la méthode GPM et on la compare à une carte de référence, issue du calcul FEM de COMSOL. Sur la Fig. 2.7(a), on montre la partie réelle du champ magnétique total (composante z) généré pour un des dipôles ponctuels de l'apprentissage. Les champs ont été normalisés par leur amplitude maximale à l'extérieur de la particule. La divergence du tenseur de Green cause bien sûr des différences importantes dans le volume de la particule (délimitée par une ligne continue blanche), où se trouvent les dipôles numériques. Ceci ne constitue pas un problème dans notre cas. En revanche, et c'est le plus important, l'accord des champs à proximité et au-delà de la surface d'apprentissage (indiquée par une ligne en pointillés blancs) semble excellent. La Fig. 2.7(b) montre l'erreur relative entre les deux cartes de champ, point par point et en échelle \log_{10} . Les erreurs supérieures à 10% sont bornées au volume de la particule, les erreurs supérieures à 1% s'étendent quant à elle rarement au-delà de la surface d'apprentissage si ce n'est au voisinage de la source et aux deux extrémités du cylindre. L'erreur maximale au-delà de la surface d'apprentissage est de 3,9%, ce qui prouve un bon accord global des champs. La qualité de reproduction du champ varie légèrement avec la source d'apprentissage consi-

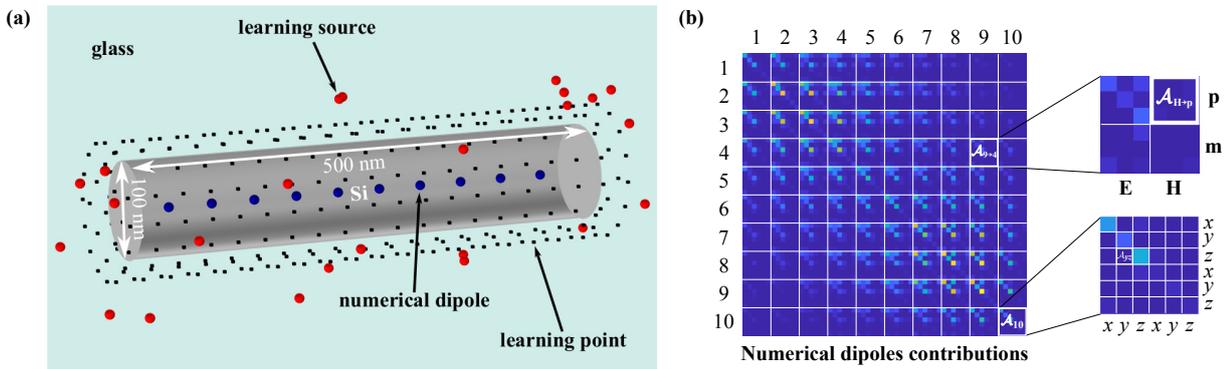


FIGURE 2.6 – Matrice de polarisabilité globale (GPM). **(a)** On considère la diffusion de la lumière par un long cylindre diélectrique. 30 sources ponctuelles (des dipôles électriques et magnétiques polarisés suivant les directions x , y et z) sont distribuées aléatoirement sur la surface d'un cylindre virtuel à 40 nm de celle de la particule (points rouges). On utilise successivement chacune de ces sources pour exciter la particule, résultant en $6 \times 30 = 180$ simulations numériques indépendantes. Le champ diffusé est évalué en $N_1 = 338$ points d'apprentissage (point noirs) distribués régulièrement sur la surface d'un cylindre virtuel à une distance d_1 de la particule, ici à $d_1 = 20$ nm. Un ensemble de N_d dipôles numériques est utilisé, ici $N_d = 10$ dipôles espacés régulièrement sur l'axe du cylindre (points blancs). **(b)** Matrice de polarisabilité globale \mathbf{A} calculée dans la configuration décrite en **(a)** avec $N_1 = 338$. Chaque bloc (i, j) de 6×6 éléments décrit la contribution du dipôle numérique i aux moments électriques et magnétiques induits au niveau du dipôle numérique j . Les encarts montrent des zooms d'un bloc hors diagonale ($i = 9$ et $j = 4$ ici) et d'un bloc sur la diagonale ($i = j = 10$ ici).

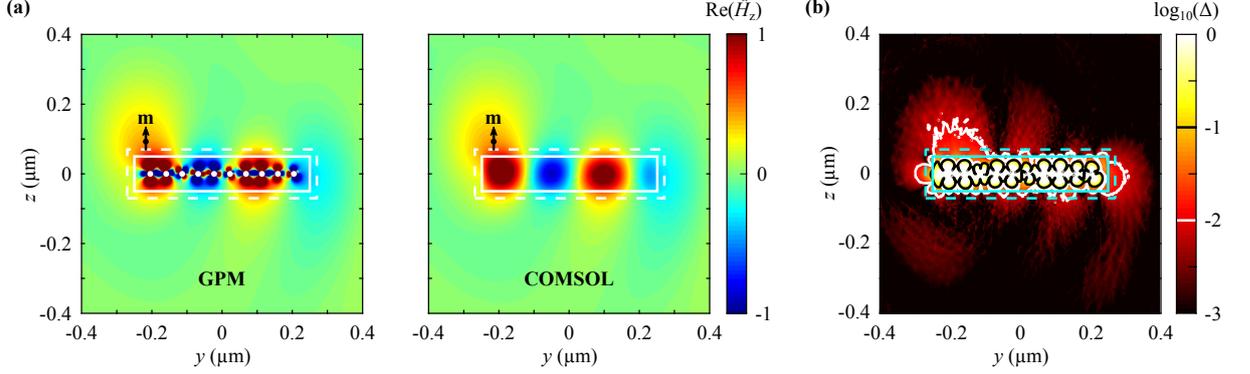


FIGURE 2.7 – Reproduction du champ total autour de la particule pour une excitation par l’une des sources d’apprentissage. Le cylindre est éclairé par une des 180 sources apprises, un dipôle ponctuel magnétique polarisé suivant z à la position $(x, y, z) = (-24, -219, 90)$ nm. **(a)** Carte yz de la composante z du champ magnétique total, normalisé au maximum de son amplitude au-delà de la surface d’apprentissage. Le volume du cylindre est délimitée par une ligne continue blanche et la surface d’apprentissage est indiquée par une ligne en pointillés blancs. 10 dipôles numériques (points blancs) sont arrangés régulièrement sur l’axe du cylindre. **(b)** Différence entre les deux cartes de champs en échelle \log_{10} avec des contours à 1% et 10% d’erreur. Les erreurs supérieures à 10% sont restreintes à l’intérieur de la particule. On peut trouver des erreurs supérieures à 1% au voisinage de la source et aux extrémités du cylindre mais elles restent globalement bornées par la surface d’apprentissage, ce qui prouve un bon accord des champs proches.

dérée et la composante observée, mais elle reste toujours très satisfaisante ce qui nous rend confiant quant à la validité de la méthode.

2.3.3 Généralisation pour des excitations arbitraires

Jusqu’à maintenant, la méthode a été validée pour des excitations utilisées lors de l’apprentissage pour calculer la GPM **A**. Notre objectif est cependant de prédire le champ diffusé pour n’importe quelle excitation. Pour vérifier cela, on considère tout d’abord un dipôle ponctuel que l’on place à une distance variable h de la surface de la particule comme illustré sur la Fig. 2.8(a). On calcule alors la puissance diffusée par la particule. Pour la GPM, ce calcul est réalisé à partir des dipôles numériques avec une approche analogue à celle employée avec des dipôles physiques dans la DDA [Draine, 1988]. La Fig. 2.8(b) montre une comparaison entre les résultats obtenus avec la méthode GPM (lignes continues) et les données de référence (marqueurs blancs) pour un dipôle électrique polarisé suivant y (p_y) et un dipôle magnétique polarisé suivant z (m_z). La puissance diffusée décroît logiquement à mesure qu’on écarte la source de la particule. On observe un accord quantitatif entre les prédictions et les données de référence pour des positions

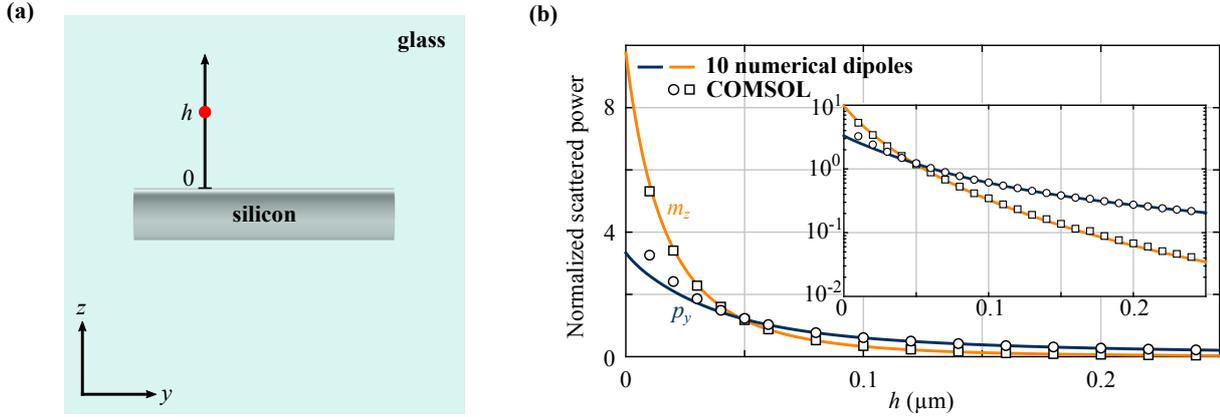


FIGURE 2.8 – Capacité à généraliser pour des sources non-apprises. (a) Un dipôle ponctuel est placé à différentes hauteurs h au-dessus de la particule (position latérale à $1/4$ de la longueur du cylindre, $y = -125$ nm). (b) Puissance diffusée, normalisée par la puissance émise par la source en l’absence de la particule, pour différentes distances h et deux sources dipolaires différentes, p_y and m_z . Comparaison des résultats de la méthode GPM (lignes continues) avec la référence (COMSOL, marqueurs blancs). Un accord quantitatif est observé pour des distances $h \gtrsim 30$ nm.

de la source $h \gtrsim 30$ nm. Des écarts se manifestent lorsque la source approche de la surface de la particule, notamment pour p_y . On retrouve des comportements similaires pour les autres sources dipolaires. Ces différences sont attendues puisque la surface d’apprentissage est à $d_1 = 20$ nm et que les sources d’apprentissage ont été placées à 40 nm de la particule. Il faut néanmoins souligner que cette capacité de la méthode GPM à prédire la diffusion par ce cylindre allongé alors même que l’excitation est en champ proche constitue déjà une réelle avancée en soi. La plupart des sources ponctuelles utilisées ici sont à l’intérieur de la sphère d’exclusion de la matrice T , ce qui rend cette approche et ses variantes inenvisageables pour modéliser ce problème.

On considère ensuite une onde plane polarisée rectilignement, incidente dans le plan yz avec un angle θ_i par rapport à la normale à l’axe du cylindre (direction z), voir Fig. 2.9(a). On calcule la section efficace de diffusion de la particule pour différents angles d’incidence. Les résultats sont montrés en Fig. 2.9(b) pour les polarisations TE et TM. On observe à nouveau un accord quantitatif entre les prédictions et les données de référence, l’erreur relative maximale étant de seulement 1.6%, constatée pour un angle $\theta_i = 50^\circ$ en polarisation TE. Dans les Figs. 2.9(c)-(d), on montre les cartes du champ électrique diffusé (partie réelle, composante x) dans cette configuration, ainsi que leur différence en échelle \log_{10} . Mis à part pour les champs à l’intérieur de la particule, il est difficile de distinguer de réelle différence, d’autant plus difficile au-delà de la surface d’apprentissage. On remarque

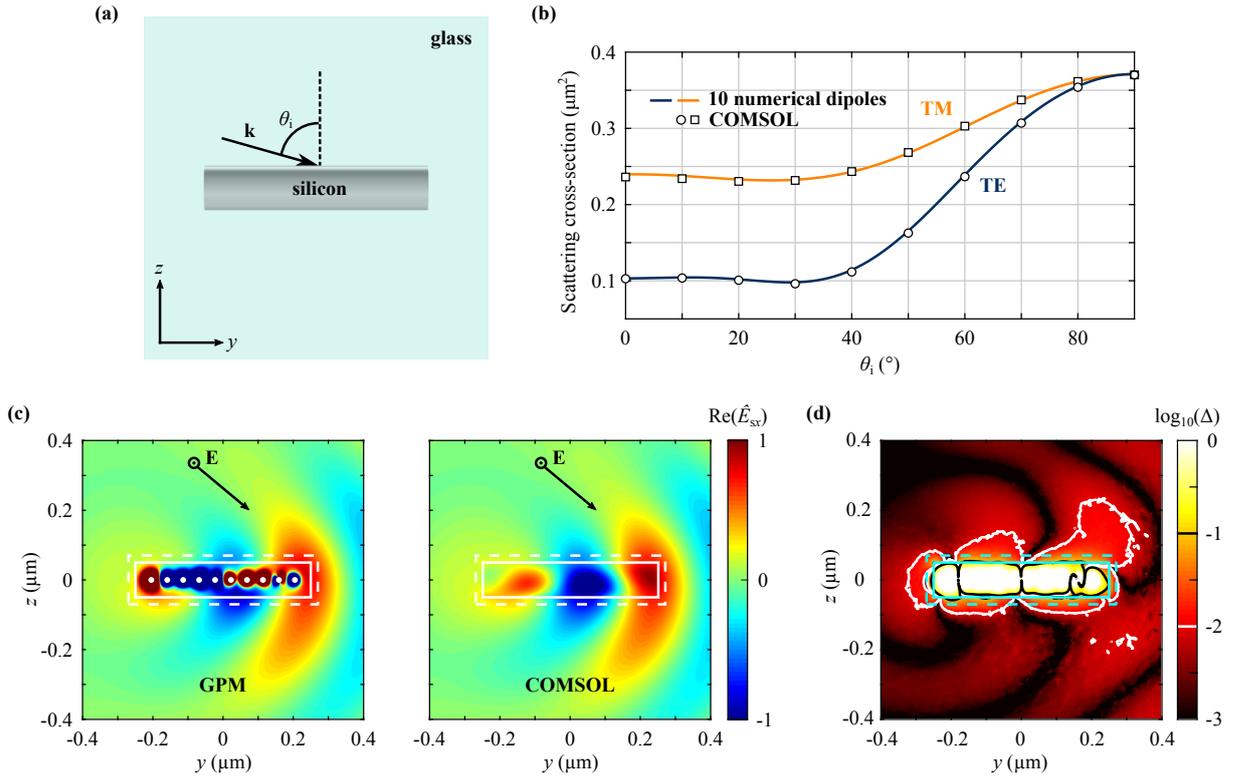


FIGURE 2.9 – Généralisation à des ondes planes. (a) Le cylindre est éclairé par une onde plane avec un angle θ_i . (b) Sections efficaces de diffusion pour les polarisations TE et TM. Les prédictions issues de la GPM (lignes continues) sont en très bon accord avec les données de référence (COMSOL, marqueurs blancs). (c) Cartes du champ électrique diffusé (composante x) pour une polarisation TE à $\theta_i = 50^\circ$, normalisées à l'amplitude maximale du champ diffusé au-delà de la surface d'apprentissage. Le cylindre et les dipôles numériques sont les mêmes que sur les figures précédentes. (d) Différence entre les cartes de champs en échelle \log_{10} avec des contours à 1% et 10% d'erreur.

que la carte des différences montre des erreurs légèrement plus importantes autour de la direction de la réflexion spéculaire, qui restent néanmoins acceptables (maximum de 4,5%).

Pour finir, il est intéressant d’avoir une idée du bénéfice apporté par les dipôles numériques de la méthode GPM et leur non-localité spatiale (non-local) en comparaison avec la méthode bien connue des dipôles couplés (ou DDA pour *Discrete Dipole Approximation*) présentée dans le chapitre 1. Pour l’illustrer, on considère à nouveau la diffusion par un cylindre éclairé par une onde plane (voir Fig. 2.9), avec $\theta_i = 90^\circ$. La table 2.2 compare les sections efficaces de diffusion calculées avec la méthode GPM, implémentée dans MATLAB 2018a [MAT], et la DDA, implémentée dans le logiciel DDSCAT 7.3 [dds; Draine et Flatau, 1994], ainsi que les erreurs relatives correspondantes par rapport à la valeur de référence obtenue avec COMSOL. On y montre également le temps d’utilisateur et la quantité de mémoire vive (RAM) nécessaires pour réaliser les différents calculs. Ceux-ci ont été réalisés sur un même ordinateur portable, doté d’une capacité de calcul standard. On peut constater que la DDA a des difficultés à atteindre une bonne précision dans ce problème de diffusion par une particule résonante à fort indice. Bien que cet exemple isolé ne soit pas suffisant pour tirer des conclusions générales sur les performances d’une méthode, il semble fournir une première preuve de la capacité de la méthode GPM à donner des résultats précis avec une charge de calcul significativement réduite par rapport à une méthode basée sur des dipôles physiques.

2.4 Conclusion du chapitre 2

Dans ce chapitre 2, on a introduit la méthode de la matrice de polarisabilité globale (GPM). Après avoir présenté son concept, on a explicité le déroulé de son implémentation numérique. On a ensuite considéré le cas de la diffusion par une particule diélectrique allongée fortement résonante.

Cet exemple nous a d’abord servi à réaliser une brève étude de l’influence des 3 paramètres principaux de la méthode (ensemble d’excitations d’apprentissage, ensemble de points d’apprentissage, ensemble de dipôles numériques) sur la qualité de la GPM calculée, que l’on a quantifiée à l’aide d’un indicateur simple. L’indicateur en question, l’erreur relative e , est obtenue en comparant, aux points d’apprentissage, les densités d’énergie électromagnétique calculées à partir des champs diffusés issus de la GPM ($\mathbf{P}_s = \mathbf{G}_b \mathbf{A} \mathbf{P}_b$) et de l’ensemble d’apprentissage ($\mathbf{P}_s^{\text{true}}$), puis en moyennant les résultats sur les points d’ap-

Méthode numérique	GPM	DDA		
Logiciel ¹	MATLAB 2018a script	DDSCAT 7.3		
Nombre d'éléments ²	20	2 080	16 640	107 400
σ_s (μm^2) ³	0.3741	0.2197	0.3334	0.3595
Erreur relative (%) ³	1.05	40.65	9.94	2.89
Temps d'utilisateur (s)	0.271 ⁴	0.329	3.086	14.762
Mémoire physique (Mb)	1.91	38.4	56.0	168.3

TABLE 2.2 – Comparaison de la précision numérique, du temps d'utilisateur et de la mémoire physique utilisée pour la méthode GPM et une méthode numérique basée sur des dipôles physiques (couplés) pour le calcul de la section efficace de diffusion d'un cylindre de Si éclairé par une onde plane à $\theta_i = 90^\circ$.

¹On a exécuté le script de la méthode GPM sur MATLAB 2018a [MAT] et le logiciel DDSCAT 7.3 [dds] sur le même ordinateur portable équipé d'un CPU Intel(R) Core(TM) i5-6300 U @2.40 GHz et de 8 Gb de RAM. On a utilisé les paramètres de calcul par défaut dans DDSCAT.

²Le nombre d'éléments correspond à $2N_d$ pour la méthode GPM (pour prendre en compte les dipôles électriques et magnétiques) et au nombre de dipôles physiques, ou de manière équivalente au nombre de domaines, pour DDSCAT.

³Le calcul par la méthode des éléments finis, réalisé avec COMSOL Multiphysics 5.4 et un maillage très fin comportant 154 941 éléments, donne une section efficace de diffusion de $0.3702 \mu\text{m}^2$. L'erreur relative est calculée par rapport à cette valeur.

⁴Le temps d'utilisateur présenté pour la méthode GPM n'inclut pas le temps nécessaire pour construire l'ensemble d'apprentissage, cet effort de calcul initial dépendant du solveur utilisé et ne devant être effectué qu'une seule fois.

prentissage et pour toutes les excitations de l'apprentissage. Le calcul de e est maintenant implémenté dans le code et sa valeur est donnée dès lors qu'une GPM est calculée. Grâce à lui, on a établi qu'il fallait utiliser des excitations d'apprentissage en champ proche pour obtenir une GPM satisfaisante. On a également constaté qu'il était de plus en plus difficile de résoudre le problème inverse posé lorsque l'on rapproche la surface d'apprentissage de la particule.

Finalement, on est arrivé à la configuration d'apprentissage suivante : $N_s = 180$ dipôles ponctuels à 40 nm de la particule pour l'excitation et $N_1 = 338$ points à $d_1 = 20$ nm de la particule pour collecter les champs diffusés correspondants. Avec ces paramètres, il suffit de $N_d = 10$ dipôles numériques répartis sur l'axe du cylindre pour obtenir une erreur e d'environ 5%. La GPM correspondante (de taille 60×60) a ensuite permis de prédire quantitativement le champ diffusé partout au-delà de la surface d'apprentissage pour des excitations non-apprises (sources ponctuelles y compris en champ proche, ondes planes), ce qui prouve la capacité de généralisation de la méthode lorsque les paramètres utilisés sont pertinents. Ces premiers résultats sont très encourageants dans la perspective de résoudre des problèmes de diffusion multiple où des particules complexes interagissent en champ proche entre elles ou avec des interfaces planes.

On peut néanmoins toujours dégager quelques pistes d'amélioration de la méthode. Les premiers points concernent la réduction du temps nécessaire à la construction de l'ensemble d'apprentissage. Dans ce but et indépendamment de la méthode utilisée, on pourrait tout d'abord considérer le fait d'exploiter des symétries de la particule pour répliquer des excitations d'apprentissage sans avoir à répéter les simulations correspondantes. Ces répliques n'apporteraient pas d'information supplémentaire à proprement parler, mais permettraient certainement d'assurer l'équilibre de l'ensemble d'apprentissage. Il serait intéressant d'étudier les effets d'une telle stratégie. Par rapport à la FEM et COMSOL maintenant, il existe probablement un moyen de ne pas effectuer à nouveau l'intégralité de la simulation à chaque excitation. En effet, si le maillage du modèle ne change pas, il serait peut-être possible d'extraire les matrices de l'équation linéaire formée (matrice de rigidité, de masse, ...) pour pouvoir calculer chaque nouvelle solution par simple multiplication matricielle, gagnant ainsi un temps considérable.

Les points suivants concernent quant à eux directement l'optimisation des paramètres de la méthode pour réduire l'erreur e , à commencer par les excitations d'apprentissage. On peut s'interroger sur la pertinence de placer les sources ponctuelles sur une surface autour de la particule. En effet, il serait peut-être plus intéressant de distribuer ces sources dans un volume, à différentes distances de la particule. On pourrait même imaginer combiner des sources ponctuelles en champ proche et des ondes planes. Une étude systématique de ces différentes options serait bienvenue. Il faut aussi souligner que l'on calcule e en moyennant les résultats obtenus sur toutes les excitations de l'apprentissage. Il serait néanmoins intéressant d'analyser les variations de cette erreur en fonction des sources utilisées (type de dipôle, polarisation, position par rapport à la particule) pour identifier si certaines sont problématiques. On pourrait alors les exclure de l'ensemble d'apprentissage. Cela nous permettrait peut-être également de mieux comprendre quelles sont les excitations à éviter et celles à privilégier.

On peut également essayer d'optimiser la position des dipôles numériques. Il est très aisé de conduire des tests sur ce paramètre, le calcul de la GPM ne nécessitant que quelques secondes une fois l'ensemble défini. Ce point laisse même envisager l'utilisation de méthodes plus sophistiquées [Beghou *et al.*, 2009; Koyama *et al.*, 2018] comme des algorithmes génétiques. Cette approche pourrait être très efficace dans une logique de performance pure, mais aussi amener une meilleure compréhension sur le placement des dipôles numériques à adopter en fonction de la particule. Pour le cylindre et avec $N_d = 10$ dipôles numériques, on peut se demander s'il serait possible de trouver une configuration

qui donne de meilleurs résultats que la disposition sur l'axe de symétrie de la particule.

MÉTHODE DE LA GPM POUR LA DIFFUSION MULTIPLE

Dans ce chapitre 3, on applique la méthode GPM introduite dans le chapitre 2 à la résolution de problèmes de diffusion multiple. Pour cela, on reprend l'exemple du cylindre allongé en silicium (Si) et la GPM associée que l'on a validée dans le cadre de la diffusion par la particule individuelle. On présente alors divers résultats pour valider l'approche et démontrer la capacité de la méthode GPM à modéliser efficacement et avec précision des ensembles désordonnés de particules incorporés dans des milieux stratifiés, y compris dans les cas où les particules interagissent fortement en champ proche entre elles ou avec des interfaces planes.

3.1 Formalisme de la diffusion multiple entre dipôles numériques

On considère le cas général d'un ensemble de N_p particules dans un milieu stratifié, où la m -ième particule est modélisée avec N_m dipôles numériques (précédemment noté N_d). Les particules peuvent ne pas toutes être identiques et peuvent être placées dans des couches d'indices différents, auxquels cas leurs matrices de polarisabilité globale \mathcal{A}^m seraient différentes.

Habituellement, on écrit le champ diffusé par l'ensemble de particules comme la somme des contributions des N_p particules. Avec les dipôles numériques, on a donc

$$\Psi_s(\mathbf{r}) = \sum_{m=1}^{N_p} \sum_{i,j=1}^{N_m} \mathcal{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_{jm}) \mathcal{A}^m(\mathbf{r}_{jm}, \mathbf{r}_{im}) \Psi_{\text{exc}}^{im}(\mathbf{r}_{im}), \quad (3.1)$$

où \mathbf{r}_{im} est la position du i -ième dipôle numérique de la m -ième particule, Ψ_{exc}^{im} est le champ qui excite ce dipôle numérique, et \mathcal{G} est le tenseur de Green total qui décrit la

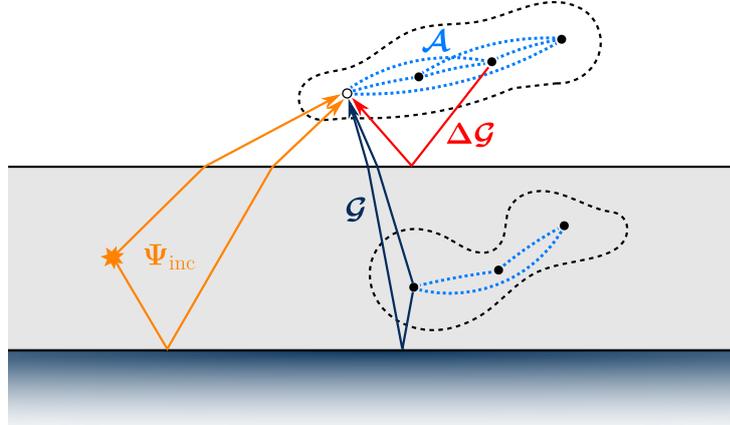


FIGURE 3.1 – Implémentation de la diffusion multiple dans un milieu stratifié avec la méthode GPM. Dans le cas général, les particules peuvent avoir des formes et compositions différentes et être disposées dans des couches différentes. Le champ excitateur pour un dipôle numérique spécifique (disque blanc) est la somme du champ incident (flèches oranges) et des champs rayonnés par les autres dipôles numériques (disques noirs). Les dipôles numériques appartenant à des particules distinctes interagissent de manière classique via le tenseur de Green total \mathcal{G} dans le milieu stratifié (flèches noires). Les dipôles numériques appartenant à une même particule, eux, interagissent seulement via les interfaces à travers la variation du tenseur de Green $\Delta\mathcal{G}$ dans le milieu stratifié (flèches rouges). Certaines flèches ne sont pas représentées dans un souci de clarté du propos.

propagation électromagnétique dans le milieu stratifié [Paulus *et al.*, 2000]. Il convient de remarquer que, comparé à l'Éq. (2.1) qui décrit le champ diffusé par une particule seule dans un milieu homogène infini, les dipôles numériques sont ici excités par un champ dans le milieu stratifié et rayonnent dans ce même milieu stratifié. L'équation (3.1) décrit le champ diffusé dans tout l'espace.

La première étape dans les calculs de diffusion multiple consiste à évaluer Ψ_{exc} . Pour la m -ième particule, ce champ est non seulement le champ incident, mais aussi le champ diffusé par toutes les autres particules ($n \neq m$) dans le milieu stratifié [Mishchenko *et al.*, 2006]. Dans un ensemble de dipôles physiques, comme on en aurait dans la DDA, les dipôles sont couplés via le tenseur de Green total dans le milieu, indépendamment du fait qu'ils soient reliés ou non à une même particule. Ce n'est pas le cas dans la méthode GPM, puisque la matrice de polarisabilité globale \mathcal{A}^m prend déjà en compte les moments induits par le champ excitateur aux positions de *tous* les dipôles numériques d'une même particule. En conséquence, et comme illustré sur la Fig. 3.1, les dipôles numériques appartenant à une même particule interagissent uniquement via les interfaces du milieu stratifié, particularité décrite par la variation du tenseur de Green $\Delta\mathcal{G} = \mathcal{G} - \mathcal{G}_b$. Ceci est une conséquence directe de la non-localité de la GPM. Les dipôles numériques appartenant à des particules

distinctes interagissent eux normalement via le tenseur de Green total \mathcal{G} . On a donc

$$\Psi_{\text{exc}}^{kn}(\mathbf{r}_{kn}) = \Psi_{\text{inc}}(\mathbf{r}_{kn}) + \sum_{m=1}^{N_p} \sum_{i,j=1}^{N_m} [\mathcal{G}(\mathbf{r}_{kn}, \mathbf{r}_{jm}) - \delta_{mn} \mathcal{G}_{b,m}(\mathbf{r}_{kn}, \mathbf{r}_{jm})] \mathcal{A}^m(\mathbf{r}_{jm}, \mathbf{r}_{im}) \Psi_{\text{exc}}^{im}(\mathbf{r}_{im}), \quad (3.2)$$

où δ_{mn} est le delta de Kronecker ($\delta_{mn} = 1$ pour $m = n$ et 0 pour $m \neq n$). Ici, Ψ_{inc} est le champ créé par une excitation dans le milieu stratifié sans particule (flèches oranges pour une source ponctuelle sur la Fig. 3.1) et $\mathcal{G}_{b,m}$ est le tenseur de Green dans un milieu homogène infini de même indice que celui où se trouve la m -ième particule. La somme du côté droit de l'Éq. (3.2) ne doit pas être interprétée comme le champ diffusé par toutes les particules sauf une, comme dans le formalisme classique des dipôles couplés. Cette quantité prendrait plutôt la forme de l'Éq. (3.1). Dans un milieu homogène infini ($\mathcal{G} = \mathcal{G}_b$), l'Éq. (3.2) devient

$$\Psi_{\text{exc}}^{kn}(\mathbf{r}_{kn}) = \Psi_{\text{inc}}(\mathbf{r}_{kn}) + \sum_{m \neq n}^{N_p} \sum_{i,j=1}^{N_m} \mathcal{G}_b(\mathbf{r}_{kn}, \mathbf{r}_{jm}) \mathcal{A}^m(\mathbf{r}_{jm}, \mathbf{r}_{im}) \Psi_{\text{exc}}^{im}(\mathbf{r}_{im}). \quad (3.3)$$

En pratique, on commence par résoudre numériquement l'Éq. (3.2) par une inversion de matrice classique, pour connaître le champ qui excite tous les dipôles numériques. On résout ensuite l'Éq. (3.1) pour obtenir le champ diffusé en tout point de l'espace. La résolution est effectuée en utilisant un code maison développé sous MATLAB par Jean-Paul Hugonin, et qui a déjà été utilisé avec succès dans plusieurs travaux antérieurs [Langlais *et al.*, 2014; Jouanin *et al.*, 2016; Hugonin *et al.*, 2017].

3.2 Diffusion multiple pour des interactions en champ proche

On veut maintenant tester la capacité de la méthode GPM à résoudre des problèmes de diffusion multiple, en particulier dans les cas de fortes interactions en champ proche. On réutilise la GPM calculée dans le Chap. 2, associée à un ensemble de 10 dipôles numériques, et qui a servi à valider la méthode pour la diffusion par le cylindre diélectrique.

3.2.1 Interaction entre deux cylindres

On considère d’abord deux cylindres parallèles décalés de 100 nm suivant la direction y , comme illustré sur la Fig. 3.2(a). Les deux cylindres sont séparés d’une distance dz et illuminés par une onde plane avec un angle d’incidence θ_i dans le plan (yz) . Pour commencer, on fixe $dz = 40$ nm, ce qui correspond à la situation critique où les surfaces d’apprentissage associées aux deux cylindres se touchent ($d_1 = 20$ nm). La Fig. 3.2(b) montre la section efficace de diffusion de la paire de particules pour une polarisation TM et plusieurs angles d’incidence, telle que prédite par la méthode GPM (ligne continue) et calculée avec COMSOL (marqueurs blancs). À titre comparatif, on fait également apparaître des prédictions obtenues avec la méthode de la matrice T basée sur les VSHs (ligne en pointillés). Comme attendu, cette représentation est totalement invalide dans cette situation d’interaction en champ proche où les sphères englobantes minimales des deux particules s’intersectent. À l’inverse, la méthode GPM fournit des prédictions quantitatives, l’erreur relative maximale vis-à-vis des données de référence étant d’environ 4% pour $\theta = 80^\circ$. Les cartes de champ proche et leur différence sont présentées en Fig. 3.2(c)-(d). Il convient de souligner que le champ est assez bien reproduit même entre les deux cylindres.

Pour connaître davantage les limites de notre approche, on étudie l’évolution des résultats dans le cas le plus défavorable (polarisation TM à $\theta = 80^\circ$), notamment pour des petites distances dz . Sur la figure 3.3, on montre l’erreur relative entre les données de référence et nos prédictions (ligne continue), ainsi que celles de la méthode de la matrice T (ligne pointillée). Pour la méthode GPM, l’accord s’améliore lorsque la distance séparant les cylindres augmente, avec des erreurs relatives en-dessous du pour cent pour $dz \gtrsim 110$ nm, ce qui est comparable à l’erreur faite sur une particule seule (voir la Fig. 2.9). L’erreur augmente significativement pour de plus fortes interactions en champ proche, ce qui était prévisible, mais celle-ci ne diverge pas complètement. L’erreur obtenue avec les VSHs est systématiquement plus importante, d’environ un ordre de grandeur. Il faut tout de même préciser que les résultats obtenus dépendent du degré multipolaire maximal retenu dans la décomposition en VSHs. Néanmoins, cette comparaison démontre clairement l’apport de notre méthode dans les cas où les particules sont très proches les unes des autres.

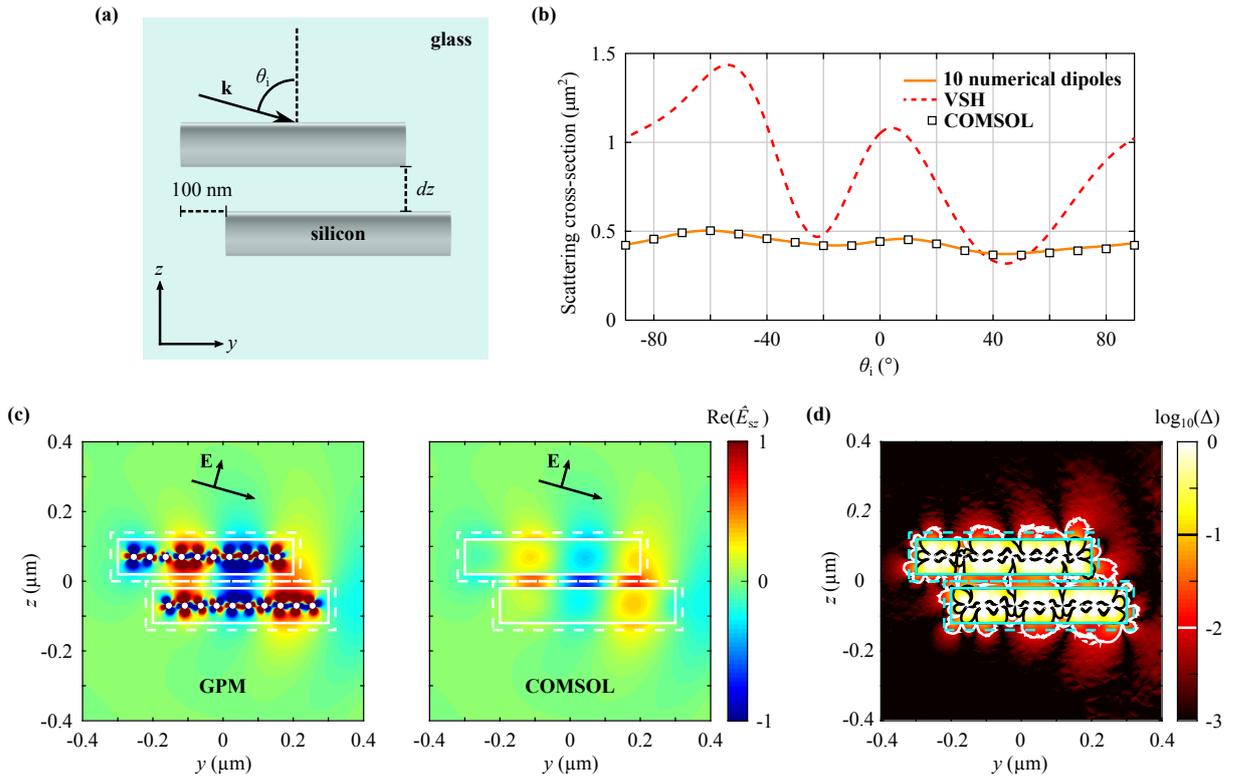


FIGURE 3.2 – Modélisation de l’interaction en champ proche de deux particules. **(a)** Deux cylindres parallèles, décalés de 100 nm suivant y et séparés d’une distance dz , sont illuminés par une onde plane avec un angle d’incidence θ_i . **(b)** Sections efficaces de diffusion de la paire de cylindres pour $dz = 40$ nm, en polarisation TM et pour différents θ_i . Les prédictions de la méthode GPM et ses dipôles numériques (ligne continue) sont en très bon accord avec les résultats issus de COMSOL (marqueurs blancs). En revanche et comme attendu, les prédictions de la méthode de la matrice T avec une décomposition en harmoniques sphériques sont erronées dans une telle configuration. **(c)** Cartes du champ électrique diffusé, normalisées par le maximum de son amplitude à l’extérieur du cylindre, pour $dz = 40$ nm et une onde plane polarisée TM à $\theta = 80^\circ$. **(d)** Différence entre les cartes de champ de (c) avec des contours d’erreur à 1% et 10%, représentée en échelle \log_{10} . Les erreurs supérieures à 1% vont rarement au-delà de la surface d’apprentissage (ligne en pointillés) ce qui prouve une bonne prédiction du champ proche.

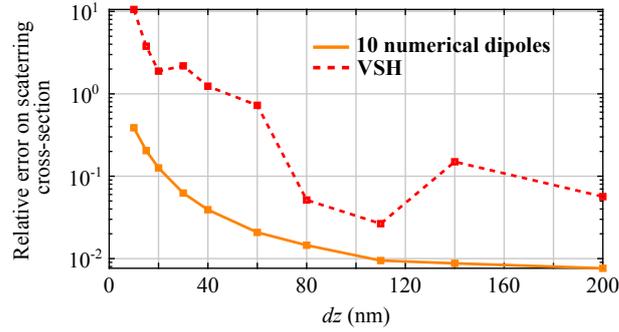


FIGURE 3.3 – Erreur relative sur la section efficace de diffusion calculée dans la configuration de la Fig. 3.2 (polarisation TM, $\theta_i = 80^\circ$) en fonction de la distance dz entre les deux cylindres. Les erreurs vis-à-vis de la référence (COMSOL) augmentent à mesure que la distance dz diminue. La méthode GPM et ses dipôles numériques sont environ 10 fois plus précises que la méthode de la matrice T et sa décomposition en harmoniques sphériques (ici jusqu’au onzième multipôle). On s’attend cependant à ce que la méthode de la matrice T soit valide seulement pour des distances $dz \gtrsim 410$ nm.

3.2.2 Interaction entre un cylindre et une interface plane

On réalise ensuite une étude similaire pour une particule seule à proximité d’une interface plane. On utilise pour cela un substrat en or (Au), avec une permittivité relative $\epsilon_{\text{Au}} = -8.7494 + 1.5808i$ à $\lambda = 580$ nm [Palik, 1998]. On illumine la particule par une onde plane dans le cas limite où sa surface d’apprentissage touche l’interface, pour $dz = 20$ nm (voir Fig. 3.4(a)). Dans la Fig. 3.4(b), on montre la section efficace de diffusion du système pour les polarisation TE et TM en fonction de l’angle d’incidence θ_i dans le plan (yz). On obtient une erreur relative maximale de 6,1% en polarisation TE et pour $\theta_i = 50^\circ$. Les cartes de champ proche sont plutôt calculées pour la polarisation TM à $\theta_i = 20^\circ$ (erreur relative de 3% sur la section efficace de diffusion), pour pouvoir y observer l’excitation de plasmons polaritons de surface (SPPs) à l’interface métallo-diélectrique. Comme montré sur les Figs. 3.4(c)-(d), un bon accord est également obtenu. On peut noter en particulier que le champ à l’interface est correctement prédit. Naturellement, la précision des prédictions s’améliore à mesure que l’on éloigne la particule de l’interface, avec une évolution similaire à celle montrée en Fig. 3.3 pour deux particules.

3.2.3 Diffusion multiple dans un système périodique

Les structures périodiques ont grandement participé à l’essor de la nanophotonique avec les cristaux photoniques [Joannopoulos *et al.*, 2008] et les réseaux de diffraction [Loewen et Popov, 2018], deux concepts arrivés à maturité depuis. Elles sont encore au

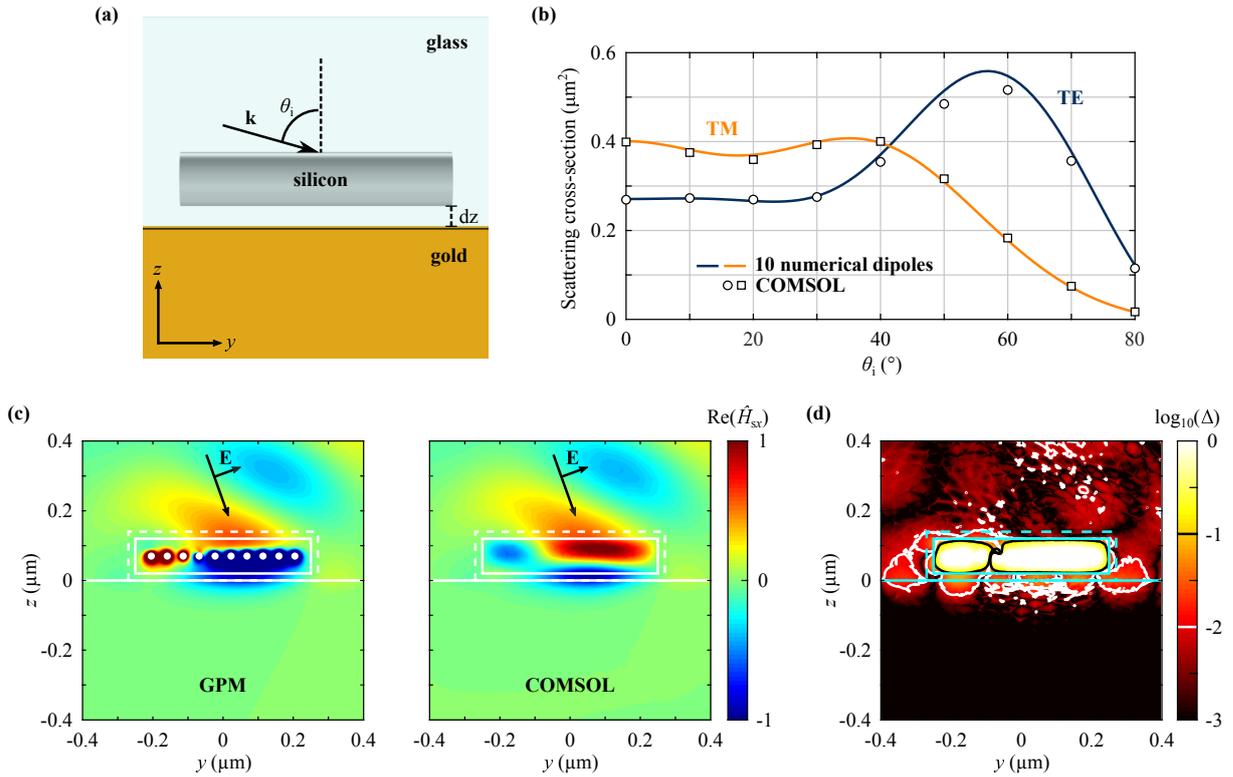


FIGURE 3.4 – Modélisation de l’interaction en champ proche entre une particule et une interface métallique. **(a)** Un cylindre, placé à une distance dz au-dessus d’une interface avec un substrat en or, est illuminé par une onde plane avec un angle d’incidence θ_i . **(b)** Sections efficaces de diffusion du cylindre pour $dz = 20$ nm, en polarisations TE et TM et pour différents θ_i . Un bon accord est constaté entre les prédictions de la méthode GPM (ligne continue) et la référence calculée avec COMSOL (marqueurs blancs). **(c)** Cartes du champ électrique diffusé, normalisées par le maximum de son amplitude à l’extérieur du cylindre, pour une onde plane en polarisation TM à $\theta = 20^\circ$. **(d)** Différence entre les cartes de champ de (c) avec des contours de l’erreur à 1% et 10%, représentée en échelle \log_{10} . Les erreurs supérieures à 1% se retrouvent principalement près de l’interface et dans la direction de la réflexion spéculaire. Les résultats sont néanmoins très bons au vu du cas extrême considéré ici.

coeur de l'attention avec le sujet très actif des métasurfaces. Ces arrangements planaires de résonateurs sub-longueur d'onde, plasmoniques [Meinzer *et al.*, 2014] ou photoniques [Kuznetsov *et al.*, 2016], présentent de nombreux avantages par rapport à leurs contreparties 3D [Zhu *et al.*, 2017]. Bien que des métasurfaces colloïdales désordonnées commencent à émerger [Rozin *et al.*, 2015], les systèmes restent pour la très grande majorité périodiques. Cette périodicité est parfois appliquée à une cellule unitaire étendue contenant plusieurs nanoparticules, aussi appelées méta-atomes. Celles-ci peuvent par exemple être toutes identiques mais avec des orientations différentes dans le plan de la surface [Ding *et al.*, 2015], ou bien être de tailles ou de formes différentes [Azad *et al.*, 2016].

De nombreuses méthodes numériques permettent d'exploiter la périodicité de structures photoniques pour les modéliser plus simplement, comme la FEM (on peut aisément implémenter des conditions de bord périodiques dans COMSOL), ou la DDA [Chaumet *et al.*, 2003; Chaumet et Sentenac, 2009]. Bien que ces alternatives performantes existent déjà, et même si la méthode GPM a initialement été imaginée pour l'étude d'ensembles désordonnés de particules, il semble important qu'elle soit capable de traiter efficacement les métasurfaces que l'on vient de décrire. Ceci est d'autant plus vrai que même pour simuler une surface désordonnée infinie, on utilise parfois une approche dite « supercellule » (*supercell*) qui consiste à répliquer périodiquement une cellule unitaire contenant un grand ensemble désordonné de particules [Liu *et al.*, 2018].

Le code de diffusion multiple utilisé avec la GPM [Langlais *et al.*, 2014] offre bien la possibilité de répliquer en 2D (plan (xy)) une cellule unitaire contenant une particule individuelle (réseau classique) ou plusieurs particules, et ce même en présence d'un milieu stratifié (suivant z). Cette fonctionnalité repose sur le calcul de tenseurs de Green pseudo-périodiques [Kambe, 1967] pour décrire les interactions entre les dipôles numériques. Le code permet alors par exemple d'éclairer par une onde plane la (méta)surface ainsi formée pour prédire sa réflexion R et sa transmission T , quantités macroscopiques obtenues à partir des efficacités de diffraction calculées dans les différents ordres. C'est ce que l'on montre ici dans le cas le plus simple possible : un réseau classique de particules dans un milieu homogène infini. On peut ainsi à nouveau se comparer à COMSOL et aisément valider l'implémentation.

On place donc des cylindres à la verticale dans un réseau périodique 2D (voir l'encart en Fig. 3.5) afin d'obtenir une monocouche infinie dans le plan (xy) . On éclaire ce système avec une onde plane polarisée TE à $\theta_i = 50^\circ$ d'incidence. La figure 3.5 montre une comparaison entre la transmission obtenue avec la méthode GPM (ligne en pointillés bleue)

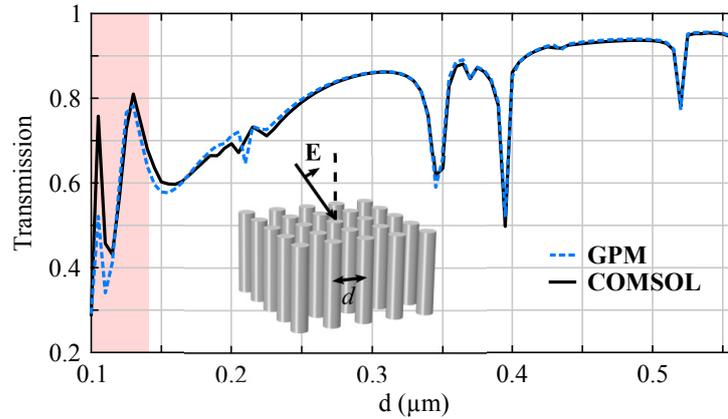


FIGURE 3.5 – Transmission d'un réseau 2D de cylindres. Comparaison de la transmission calculée avec la méthode GPM (ligne en pointillés) et COMSOL (ligne continue) pour un réseau 2D de cylindres verticaux illuminé par une onde plane TE à 50° d'incidence, en fonction du pas du réseau d . La zone surlignée en rouge correspond aux pas auxquels les surfaces d'apprentissage des cylindres s'intersectent ($d \leq 140$ nm). L'accord est globalement très bon malgré quelques petites différences autour des décroissances rapides de la transmission, qui correspondent à des résonances du réseau.

et avec COMSOL (ligne continue noire) en fonction du pas d du réseau. On constate que la courbe de référence est globalement correctement reproduite, et ce dès $d = 115$ nm, alors même que les surfaces d'apprentissage des cylindres s'intersectent pour $d \leq 140$ nm (zone surlignée en rouge). Au-delà de valider l'implémentation des tenseurs de Green pseudo-périodiques, ce test est aussi très intéressant pour vérifier rapidement si la GPM calculée permet une prédiction correcte des interactions entre particules aussi bien en champ proche qu'en champ lointain, ce qui semble donc être le cas ici. On conclut cette étude en notant que si les résonances sont remarquablement bien reproduites aux grandes valeurs de d , il y a en revanche quelques différences autour de celles correspondant à de plus petit pas. Cela montre qu'il est probablement plus difficile de modéliser correctement les résonances du réseau périodique.

3.2.4 Diffusion multiple par un ensemble dense dans un milieu stratifié

On teste maintenant la capacité de la méthode à simuler un ensemble plus conséquent de particules dans un milieu stratifié. On considère pour cela un ensemble désordonné de $N_p = 16$ cylindres incorporés dans un empilement métallo-diélectrique, voir la Fig. 3.6(a)-(b). Comparé à une étude similaire réalisée dans la littérature [Theobald *et al.*, 2017], les

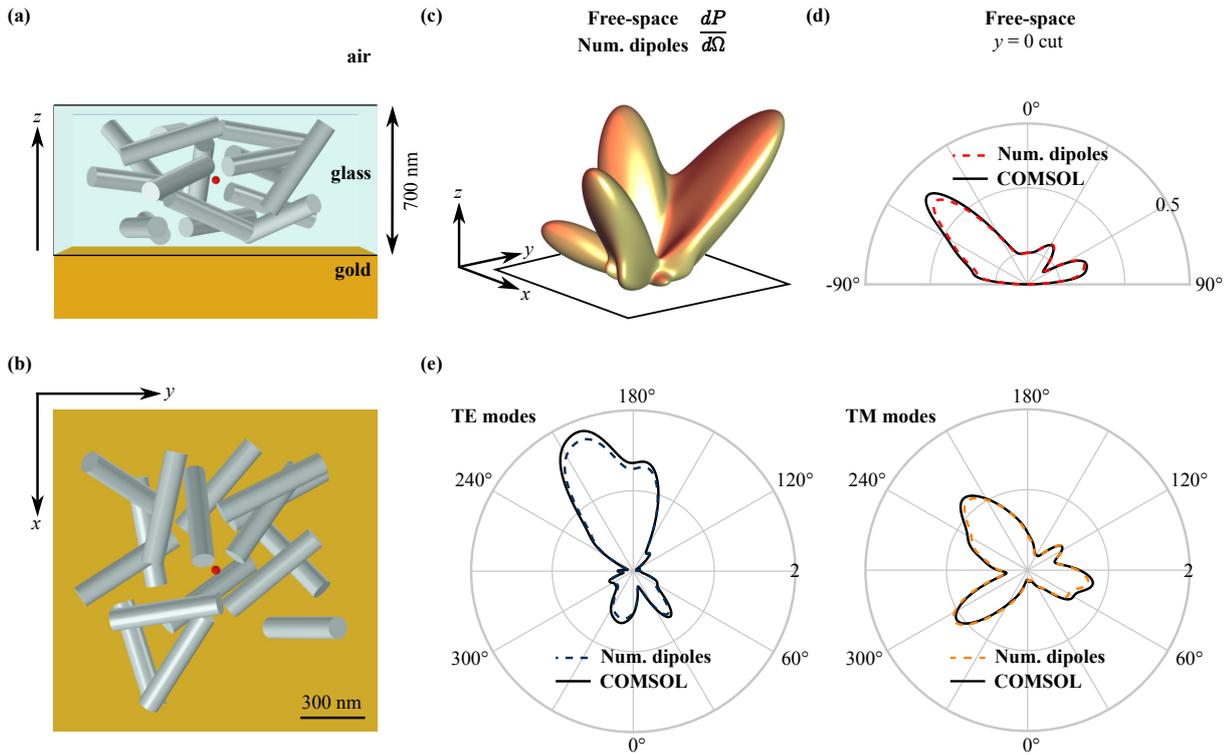


FIGURE 3.6 – Modélisation d'un ensemble dense de particules dans un milieu stratifié. 16 cylindres de silicium sont disposés aléatoirement dans une couche de verre de 700 nm d'épaisseur déposée sur un substrat semi-infini en or. Le système est excité par un dipôle électrique polarisé suivant x et placé en son centre (point rouge). (a) Vue latérale (xz) du système. (b) Vue du haut (xy) du système. (c) Diagramme de rayonnement en espace libre obtenu avec la méthode GPM et 10 dipôles numériques. (d) Coupe 2D des diagrammes de rayonnement prédit par la méthode GPM (ligne en pointillés) et calculé avec COMSOL (ligne continue) respectivement. (e) Diagrammes de rayonnements dans les modes guidés, composés de 4 modes TE (gauche) et 4 modes TM (droite), calculés avec la méthode GPM et COMSOL. Compte-tenu de la complexité de ce système, l'accord observé est très bon, aussi bien pour les diagrammes de rayonnement dans l'espace libre que pour ceux dans les modes guidés. Les calculs COMSOL ont requis 78 Gb de mémoire vive, contre 14,4 Mb pour la méthode GPM implémentée dans MATLAB 2018a.

particules sont plus grandes et placées dans un empilement de couches. L'ensemble est également bien plus dense que dans un travail antérieur effectué avec la version initiale de la méthode [Jouanin *et al.*, 2016]. Compte-tenu du temps de calcul mais surtout de la quantité de mémoire nécessaires pour réaliser de tels calculs et obtenir des données de référence fiables, nous n'avons pas étudié de systèmes plus grands avec COMSOL. L'empilement est constitué d'une couche de verre de 700 nm d'épaisseur posée sur un substrat semi-infini d'or et surmontée d'air. La position et l'orientation de chaque cylindre de l'ensemble sont générées aléatoirement de manière séquentielle (RSA) en imposant une distance minimale de 40 nm entre les particules et avec les interfaces. Pour modéliser la rotation des particules par rapport à leur axe initial, dans la configuration de l'apprentissage, la GPM \mathbf{A} de chaque cylindre doit être transformée en utilisant un opérateur de rotation en coordonnées cartésiennes. Le système est excité avec un dipôle électrique polarisé suivant x placé au centre de l'ensemble de cylindres (point rouge sur la Fig.3.6(a)-(b)). Les diagrammes de rayonnement $dP/d\Omega$ dans l'espace libre et dans les modes guidés de la couche sont calculés en utilisant un logiciel maison en accès libre implémentant une transformation champ proche champ lointain généralisée (NFFT) [Yang *et al.*, 2016]. Ils sont obtenus analytiquement à partir du champ rayonné par les dipôles numériques pour la méthode GPM et à partir du champ à la surface d'une boîte englobant le système entier pour les calculs FEM.

La Fig. 3.6(c) montre le diagramme de rayonnement dans l'espace libre prédit par la méthode GPM. Sur la Fig. 3.6(d), on compare une coupe de ce diagramme (plan xz en $y = 0$) avec celle obtenue avec COMSOL et le logiciel de NFFT. Notre méthode reproduit avec précision les lobes du diagramme de rayonnement, avec une erreur relative de 7,3% au niveau du pic du rayonnement et une erreur globale de 4,1% sur la puissance diffusée (intégrale du diagramme sur l'hémisphère supérieur). Des conclusions similaires sont faites sur les diagrammes de rayonnement dans les modes guidés (où l'on retrouve à la fois des modes photoniques et des modes plasmoniques). Les erreurs relatives y sont comprises entre 2% et 5%.

3.3 Modélisation de grands ensembles

Les résultats présentés dans la section précédente laissent entrevoir la possibilité de modéliser avec précision des ensembles désordonnés composés de centaines de particules avec des interactions à petites et grandes distances, chose qu'il serait impossible de réa-

liser avec des solveurs d'équations de Maxwell basés sur une discrétisation complète de l'espace de simulation. Il est néanmoins impératif d'étudier la convergence de la méthode avec le nombre de particules. On s'intéresse donc finalement au problème de la modélisation d'ensembles plus conséquents, comprenant plusieurs dizaines, centaines voire milliers de particules. Tous les résultats présentés dans cette section sont obtenus avec la méthode GPM uniquement, sans comparaison avec des valeurs de référence. Les calculs sont effectués sur des ensembles de cylindres placés dans un milieu homogène infini en verre à partir de la GPM de $N_d = 10$ dipôles numériques.

3.3.1 Évolution de la charge de calcul

On l'a vu lors de l'étude du système présenté en Fig. 3.6, une fois l'étape de l'apprentissage effectuée, l'utilisation de la GPM peut considérablement diminuer la charge de calcul nécessaire à la résolution d'un problème de diffusion multiple dans un grand ensemble désordonné de particules. Premièrement, le fait d'utiliser des dipôles pour décrire les particules permet de traiter leurs interactions à l'aide de tenseurs de Green (semi-)analytiques, quelque soit la distance entre les particules. Ceci représente un avantage considérable par rapport aux méthodes différentielles, comme la FEM, où l'on doit discrétiser tout le milieu ambiant et qui se retrouvent donc très rapidement limitées lorsque l'étalement spatial de l'ensemble augmente. Deuxièmement, le fait de n'utiliser que peu de dipôles numériques permet de limiter le nombre d'interactions dipôle-dipôle à prendre en compte et donc de mémoire requise pour mener le calcul à bien. On peut ainsi espérer être en mesure de modéliser quelques centaines voire milliers de particules. C'est cette limite que l'on cherche à déterminer dans un premier temps.

La figure 3.7 montre la quantité de mémoire physique (RAM) effectivement utilisée par la méthode GPM (avec Matlab R2019b) lors de calculs prédisant la section efficace de diffusion d'un ensemble de cylindres en fonction de leur nombre N_p . On constate une évolution proche de $O(N_p^2)$, classique dans un problème d'interactions entre des dipôles physiques placés arbitrairement [Draine et Flatau, 1994]. On peut d'ailleurs avoir un bon ordre de grandeur de la mémoire minimale requise en transposant à notre méthode la formule donnée dans la Réf. [Draine et Flatau, 1994] : en prenant en compte les dipôles magnétiques et la précision double utilisée ici (16 octets par valeur complexe), on obtient $16 \times 36 \times (N_p N_d / 1000)^2$ Mb. Cette formule simple ne prend pas en compte le fait que les dipôles numériques d'une même particule n'interagissent pas entre eux dans un milieu homogène, mais ce gain devient vite négligeable lorsque N_p augmente. En pratique, notre

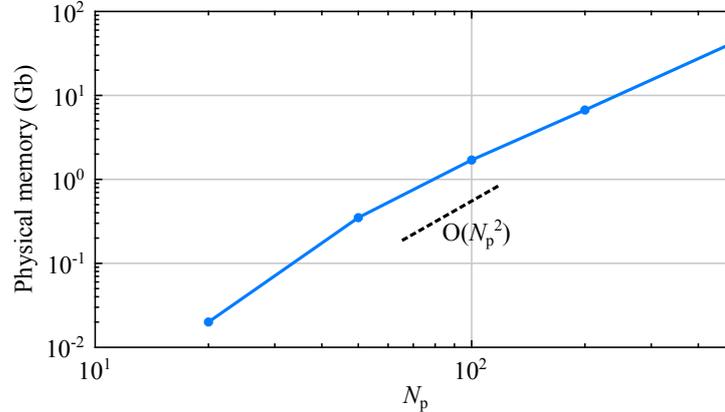


FIGURE 3.7 – Évolution de la mémoire physique (RAM) requise pour prédire la section efficace de diffusion d’un ensemble de N_p cylindres dans un milieu homogène. On montre une évolution en $O(N_p^2)$ pour référence (ligne en pointillés). Pour $N_p = 500$ et avec $N_d = 10$ dipôles numériques par particules (5000 dipôles numériques dans le système au total), la RAM utilisée est d’environ 43 Gb en précision double.

configuration (64 Gb de mémoire totale disponible) devient limitante au-delà de $N_p \approx 500$. Pour $N_p = 500$ cylindres (5000 dipôles numériques dans le système au total), la méthode GPM utilise environ 43 Gb de RAM.

Dans la figure 3.8, on montre le temps nécessaire pour effectuer les calculs précédents. On rappelle que ce temps est totalement indépendant des positions des cylindres. Assez logiquement, la courbe obtenue montre à nouveau une évolution du temps de calcul proche de $O(N_p^2)$. Dans notre configuration (CPU Intel(R) Xeon(R) E5-2637 v3 @ 3,50 GHz 3,50 GHz) le temps de calcul est raisonnable, avec une durée d’environ 12 minutes pour $N_p = 500$ cylindres.

3.3.2 Propagation de l’erreur

Maintenant que l’on sait que la méthode GPM nous permet de considérer quelques centaines de particules, il est temps de s’intéresser à la précision que l’on peut espérer obtenir sur de tels ensembles. Comme on l’a vu dans le chapitre 2, l’utilisation d’un petit ensemble de dipôles numériques amène à commettre une erreur sur le champ diffusé calculé à l’échelle d’une particule individuelle. On a ainsi constaté des erreurs relatives de l’ordre du pour cent sur les sections efficaces de diffusion d’un cylindre diélectrique seul (voir Fig. 2.9). Dans un problème de diffusion multiple, cette erreur sur la GPM de chaque particule d’un ensemble pourrait s’accumuler (« effet boule de neige ») lors des

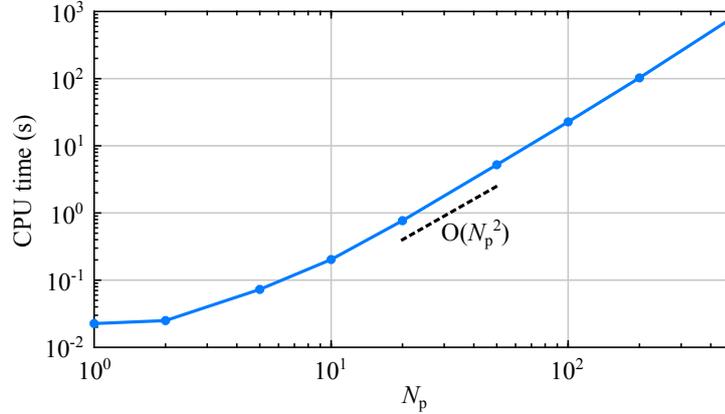


FIGURE 3.8 – Évolution du temps de calcul nécessaire pour prédire la section efficace de diffusion d’un ensemble de N_p cylindres dans un milieu homogène. On a affiché une évolution en $O(N_p^2)$ pour référence (ligne en pointillés). Pour $N_p = 500$ et avec $N_d = 10$ dipôles numériques par particules (5000 dipôles numériques dans le système au total), le temps de calcul est d’environ 12 minutes.

interactions en champ proche entre elles et avec des interfaces, et éventuellement mener à une erreur globale beaucoup plus conséquente pour un grand nombre de particules. Les simulations effectuées sur un ensemble dense de 16 cylindres dans un milieu stratifié se sont révélées plutôt rassurantes, les erreurs constatées étant restées de l’ordre de quelques pour cent. Il n’en demeure pas moins critique de vérifier cette tendance pour de plus grands ensembles de particules.

Pour cette étude, on prend pour référence la GPM \mathbf{A} calculée sur le cylindre diélectrique dans le chapitre 2. On construit ensuite une GPM bruitée \mathbf{A}' dont chaque coefficient vaut $\mathbf{A}'_{i,j} = (1 + \mathbf{E}_{i,j})\mathbf{A}_{i,j}$ où $\mathbf{E}_{i,j}$ est une valeur aléatoire tirée à partir d’une distribution uniforme entre $-\epsilon$ et $+\epsilon$. En prenant $\epsilon = 0.025$, l’erreur relative sur la section efficace de diffusion d’un cylindre obtenue avec \mathbf{A}' est de l’ordre du pour cent, comparable à celle qui avait été constatée avec \mathbf{A} par rapport à COMSOL. La figure 3.9 montre alors comment cette différence initiale pour un cylindre se répercute sur le calcul de la section efficace de diffusion d’ensembles dont le nombre N_p de cylindres augmente. Les cylindres sont étalés aléatoirement dans le plan (xy) et sur une portion de 700 nm suivant z , avec une densité élevée fixée (voir l’encart). On utilise 100 GPM bruitées différentes pour chaque système, les erreurs relatives affichées sont des moyennes sur les réalisations accompagnées de barres d’erreurs représentant les variances correspondantes. On peut constater que l’erreur initiale ne s’accumule pas, les différences obtenues avec les sections efficaces de référence ayant même plutôt tendance à être inférieures. Ce résultat mérite un com-

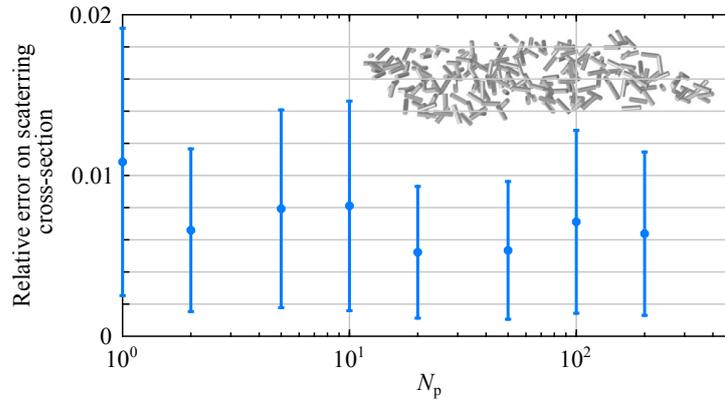


FIGURE 3.9 – Évolution de l’erreur sur la section efficace de diffusion en fonction du nombre N_p de cylindres d’un ensemble. Les cylindres sont étalés aléatoirement dans le plan (xy) et sur une portion de 700 nm suivant z , avec une densité élevée fixée, comme le montre l’encart pour $N_p = 200$ cylindres. On compare les valeurs issues de la GPM calculée dans le chapitre 2, la référence ici, à celles issues d’une GPM bruitée. La GPM bruitée est obtenue en modifiant chaque coefficient de la GPM de référence à hauteur d’une valeur aléatoire comprise entre $-2,5\%$ et $+2,5\%$ de son amplitude initiale. Les erreurs relatives sont calculées pour 100 tirages de la GPM bruitée, les valeurs centrales représentent la moyenne sur l’échantillon tandis que les barres d’erreur indiquent la variance. On constate que l’erreur initiale ne s’accumule pas avec le nombre de cylindres.

mentaire. On sait que pour des particules n’interagissant pas, la section efficace totale d’un ensemble est égale à la somme des sections efficaces individuelles. Si les cylindres étaient tous suffisamment éloignés pour négliger leurs interactions, on aurait donc logiquement une erreur relative constante. Ici la situation est différente car les ensembles considérés sont très denses, il y a donc de fortes interactions entre les cylindres. On peut alors penser que dans ce cas la section efficace totale de l’ensemble dépend surtout de la GPM moyenne. Il serait intéressant de comparer les résultats pour d’autres types de biais introduits sur la GPM \mathbf{A} , bien que celui considéré ici semble logique compte-tenu de la nature des erreurs pouvant survenir lors de son calcul (erreurs numériques lors des calculs COMSOL des champs diffusés de référence et lors des pseudo-inversions principalement). On pourrait également observer les répercussions sur des cartes de champ ou des diagrammes de rayonnement.

3.4 Conclusion du chapitre 3

Dans ce chapitre 3, on a utilisé la méthode GPM introduite dans le chapitre 2 pour résoudre des problèmes de diffusion multiple. On a d'abord présenté le formalisme de la diffusion multiple entre les dipôles numériques d'un système de plusieurs particules dans un milieu stratifié. On a ensuite repris la GPM calculée dans le chapitre 2 et qui a servi à valider la méthode dans le cadre de la diffusion par un cylindre diélectrique seul. On s'est alors intéressé aux cas classiques de l'interaction entre deux particules et entre une particule et un substrat. On a en particulier observé la convergence des résultats en fonction de la distance entre les objets. Ces études ont permis de démontrer que la méthode GPM permettait de modéliser avec précision ces interactions via celles entre les dipôles numériques, et ce même lorsqu'elles ont lieu en champ proche, jusqu'à une certaine limite. La séparation limite entre les objets pour obtenir des prédictions quantitatives est directement liée aux distances à la particule de la surface d'apprentissage et des sources d'apprentissage, on peut ainsi se rapprocher jusqu'à seulement quelques dizaines de nanomètres (entre 20 nm et 40 nm environ) dans le cas du cylindre. La description correcte des interactions aussi bien en champ proche qu'en champ lointain a été confirmée avec la modélisation d'un réseau 2D infini de cylindres, étude qui a également servi de validation pour l'implémentation de la diffusion multiple dans les systèmes périodiques avec la GPM. On a également considéré un système beaucoup plus complexe, à savoir un ensemble dense de 16 cylindres dans un milieu stratifié métal-diélectrique à deux interfaces. Les résultats se sont montrés très satisfaisants étant donné les nombreuses interactions fortes en champ proche à prendre en compte, avec des distances de séparation des objets d'environ $\lambda/(10n_b)$, où n_b est l'indice de réfraction de la couche où sont incorporés les cylindres.

Pour finir, on a démontré que la méthode GPM ouvrait la voie vers une modélisation efficace de réels grands ensembles denses de particules. Premièrement, parce que la description de chaque particule par un nombre restreint de dipôles numériques permet de réduire la quantité de mémoire nécessaire à la modélisation d'un ensemble. On a ainsi été en mesure de simuler la diffusion de la lumière dans un ensemble de 500 particules sur une station de calcul standard (43 Gb de mémoire physique utilisée, 12 minutes de calcul). Deuxièmement, parce que l'erreur commise sur le champ diffusé faite à l'échelle d'une particule individuelle, approximation inhérente à la méthode, ne s'accumule pas lors des interactions multiples et reste stable lorsque le nombre de particules augmente. On peut donc prétendre conserver une bonne précision des prédictions sur de grands ensembles.

Par rapport à la précision escomptée justement, l'essentiel des efforts à fournir semble devoir se porter sur l'optimisation de l'erreur réalisée sur une particule seule, pour un nombre limité de dipôles numériques. Des pistes relatives à ce point ont été données en conclusion du chapitre 2. Il serait néanmoins intéressant de conduire les dernières études sur les grands ensembles dans un milieu stratifié, où le calcul des tenseurs de Green devient semi-analytique. On pourrait ainsi connaître l'influence sur la précision des résultats des intégrations dans le plan complexe, en fonction de leurs paramètres et du nombre d'interfaces. Il en va de même pour les performances de calcul, sur lesquelles il y a probablement plus de remarques à faire. En l'état actuel, on peut estimer en extrapolant les courbes obtenues que l'on aurait besoin d'environ 400 Gb de mémoire pour modéliser un ensemble de $N_p = 1500$. Ce chiffre est sensiblement supérieur à celui indiqué dans la Réf. [Solís *et al.*, 2015] (environ 100 Gb) pour une méthode SIE appliquée à un ensemble de la même taille, mais il faut noter qu'il est constitué de particules plasmoniques bien plus petites. On peut penser avoir besoin d'un peu moins de dipôles numériques pour modéliser de telles particules. Cela étant dit, le temps de calcul estimé est comparable (environ 2h). Si l'on voulait réellement considérer plus de particules avec notre station de calcul standard (64 Gb de mémoire disponible), plusieurs pistes pourraient être envisagées. La plus directe serait de passer les calculs en précision simple au lieu de double, ce qui n'aurait peut-être pas d'influence notable sur les résultats finaux. On pourrait également utiliser des méthodes itératives [Barrett *et al.*, 1994] lors de la résolution, ainsi que chercher à paralléliser le code, comme cela a été fait dans le cas de sphères avec la matrice T [Egel *et al.*, 2017b]. Enfin, avec l'emploi de certaines astuces dans le traitement des interactions entre dipôles numériques, on pourrait peut-être espérer faire passer la complexité de $O(N_p^2)$ à $O(N_p \log(N_p))$, comme le permettent des techniques sophistiquées comme la *Fast Multipole Method* (FMM) dans d'autres méthodes [Gumerov et Duraiswami, 2005].

GÉNÉRALISATION DE LA MÉTHODE : GPM HABILLÉE POUR LES PARTICULES EN CONTACT AVEC DES INTERFACES

Dans ce chapitre 4, on présente une généralisation de la méthode GPM introduite et validée dans les chapitres 2 et 3. Cette généralisation repose sur une nouvelle GPM dite « habillée », calculée directement sur un système {particule + milieu stratifié}. Celle-ci permet en principe d'élargir le domaine d'application de la méthode initiale aux cas où des particules sont en contact direct avec une ou plusieurs interfaces planes d'un milieu stratifié, ou même à cheval entre plusieurs milieux. Il devient alors par exemple possible de considérer des métasurfaces où les particules sont déposées sur un substrat, ou bien encore des nanostructures perforées de trous.

4.1 GPM habillée

4.1.1 Motivations

Dans la version initiale de la méthode de la matrice de polarisabilité globale (GPM) [Bertrand *et al.*, 2020], présentée dans le chapitre 2, la GPM d'une nanoparticule individuelle est calculée dans un milieu homogène infini. Elle permet de prédire la diffusion de la particule dans ce milieu ambiant pour n'importe quelle excitation à la longueur d'onde λ utilisée pour l'apprentissage. Pour étudier la diffusion de cette particule dans un milieu stratifié, il suffit ensuite de définir la nouvelle configuration avec les indices des différentes couches qui viennent s'ajouter au milieu ambiant et les positions des interfaces planes ainsi formées. C'est ce qui a été fait dans le chapitre 3, où l'on a notamment démontré la capacité de la méthode GPM à modéliser l'interaction en champ proche entre des particules non-sphériques et une interface. La forme totalement arbitraire de la surface d'apprentis-

sage donne accès au champ diffusé au plus proche de la particule. Le gain sur la restriction imposée par la sphère d'exclusion de la matrice T est d'autant plus important pour les particules à haut rapport de forme comme le cylindre de silicium (Si) considéré jusqu'ici. Il est tout à fait possible de faire coïncider la surface d'apprentissage avec la surface réelle de la particule pour tenter de prédire le champ diffusé absolument partout autour d'elle. Toutefois, il est montré dans le chapitre 2 que, pour une disposition des dipôles numériques sur l'axe de symétrie du cylindre, il est de plus en plus difficile de reproduire les champs diffusés sur la surface d'apprentissage à mesure que celle-ci se rapproche de la surface de la particule (voir Fig. 2.3). Dans le cas limite où elles sont confondues ($d_1 = 0$), on obtient une erreur non négligeable de 7%. Il est également montré dans le chapitre 3 que la qualité des prédictions issues de la GPM se détériore sensiblement lorsque la surface d'apprentissage associé à la particule vient à intersecter une autre particule (voir Fig. 3.2). Les erreurs observées sur la section efficace de diffusion sont supérieures à 10% lorsque la séparation dz est inférieure à $d_1 = 20$ nm. Des tests ont montré qu'il en va de même lorsque que la surface d'apprentissage intersecte un substrat, assez logiquement. En combinant ces deux observations, on comprend qu'il peut se révéler très compliqué, en l'état, de modéliser avec précision la diffusion par une nanoparticule en contact direct avec une interface plane. Ceci constitue une limite importante de la méthode GPM dans la mesure où dans la plupart des applications pratiques les nanoparticules sont posées sur un substrat, notamment dans le cas des métasurfaces (voir Fig. 2(a)). Plus généralement, les nanoparticules incorporées dans des milieux stratifiés sont souvent en contact direct avec une voire même deux interfaces (voir Fig. 2(b)), on pourrait même imaginer qu'elles soient à cheval entre plusieurs milieux.

4.1.2 Implémentation

On considère pour commencer le cas d'une particule dans un milieu de permittivité ϵ_1 et posée sur un substrat de permittivité $\epsilon_2 \neq \epsilon_1$, comme illustré en Fig. 4.1. Comme dans le chapitre 2, on cherche à utiliser un petit ensemble de dipôles numériques pour reproduire un champ diffusé Ψ_s , mais cette fois directement celui diffusé par l'ensemble {particule + interface}. Dans cette situation, la GPM calculée doit donc « encoder » l'interaction entre la particule et le substrat, on l'appelle alors GPM « habillée » et on la note $\tilde{\mathcal{A}}$ pour la

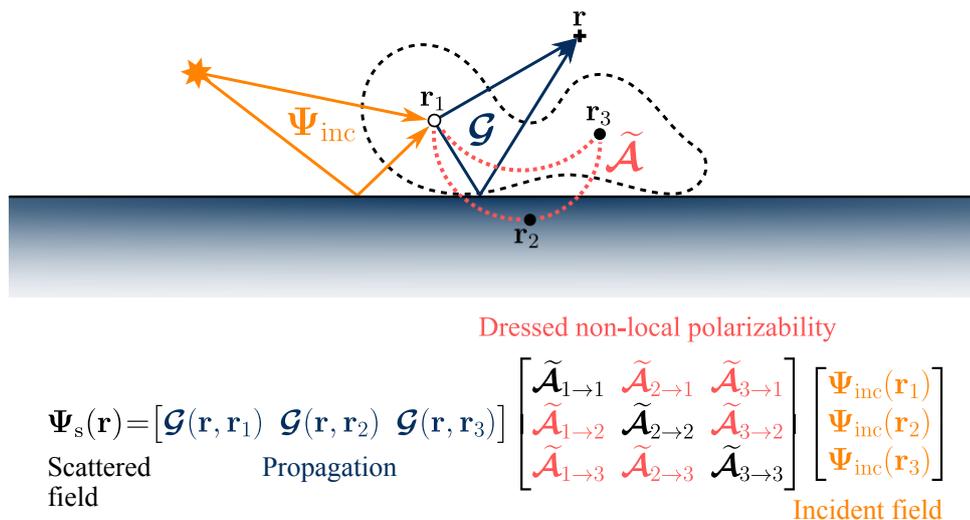


FIGURE 4.1 – Illustration du concept de la GPM habillée. Un petit ensemble de dipôles numériques permet de modéliser le champ Ψ_s diffusé par l'ensemble {particule + interface} pour n'importe quel champ incident Ψ_{inc} , réponse à l'excitation du milieu stratifié sans la particule. Comme pour la méthode de la GPM initiale, l'ensemble de dipôles numériques est décrit par un tenseur de polarisabilité global et non-local. À la différence de la GPM classique \mathcal{A} , celui-ci prend en compte l'interaction entre la particule et l'interface, on l'appelle donc GPM habillée et on le note $\tilde{\mathcal{A}}$. L'équation 4.1 est retranscrite ici sous forme matricielle pour $N_d = 3$ dipôles numériques. La propagation du champ induit au niveau de chaque dipôle numérique jusqu'au point \mathbf{r} se fait maintenant via les tenseurs de Green totaux dans le milieu stratifié \mathcal{G} . Contrairement à la méthode de la GPM classique, on peut envisager dans la méthode de la GPM habillée d'avoir des dipôles numériques en-dehors du volume de la particule pour les placer dans le substrat, comme illustré ici avec le dipôle numérique à la position \mathbf{r}_2 .

différencier de la GPM « classique » \mathcal{A} . L'équation (2.1) du chapitre 2 devient

$$\Psi_s(\mathbf{r}) = \sum_{i,j=1}^{N_d} \mathcal{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_j) \tilde{\mathcal{A}}(\mathbf{r}_j, \mathbf{r}_i) \Psi_{\text{inc}}(\mathbf{r}_i). \quad (4.1)$$

Le concept de la GPM habillée est illustré sur la Fig. 4.1 pour $N_d = 3$ dipôles numériques. La présence d'une interface entraîne les différences suivantes par rapport à la méthode GPM classique :

- Le champ Ψ_s à reproduire, et donc à calculer rigoureusement pendant l'apprentissage, est celui diffusé par l'ensemble {particule + interface} ;
- Le champ incident Ψ_{inc} auquel réagissent les dipôles numériques correspond maintenant à la réponse à l'excitation du milieu stratifié sans la particule (flèches oranges sur la Fig. 4.1) ;
- La propagation des moments dipolaires induits se fait via les tenseurs de Green

totaux dans le milieu stratifié \mathcal{G} (flèches bleues sur la Fig. 4.1).

Contrairement au cas de la GPM classique, il peut être pertinent de disposer des dipôles numériques en-dehors du volume de la particule pour le calcul de la GPM habillée. C'est ce qui est illustré ici avec le dipôle numérique à la position \mathbf{r}_2 .

On n'a considéré ici qu'une seule interface pour la clarté du propos, mais il faut souligner que le concept demeure entièrement valable dans un milieu stratifié à plusieurs interfaces. Évidemment, si l'on modifie le milieu stratifié ou la position relative de la particule par rapport aux interfaces planes la GPM habillée doit être recalculée.

4.1.3 Diffusion multiple

On considère ensuite le cas d'un ensemble de N_p particules dans un milieu stratifié. Ces particules peuvent ne pas toutes être identiques et être disposées dans des couches différentes. Pour chaque type de particule, avec une position relative aux interfaces planes fixée, on a calculé une GPM habillée différente. On note N_m le nombre de dipôles numériques utilisés pour la m -ième particule et $\tilde{\mathcal{A}}_m$ la GPM habillée associée.

Le champ diffusé par l'ensemble de particules est la somme de leurs contributions, ce qui avec les dipôles numériques donne

$$\Psi_s(\mathbf{r}) = \sum_{m=1}^{N_p} \sum_{i,j=1}^{N_m} \mathcal{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_{jm}) \tilde{\mathcal{A}}_m(\mathbf{r}_{jm}, \mathbf{r}_{im}) \Psi_{\text{exc}}^{im}(\mathbf{r}_{im}) \quad (4.2)$$

où \mathbf{r}_{im} est la position du i -ième dipôle numérique de la m -ième particule, Ψ_{exc}^{im} le champ qui l'excite, et \mathcal{G} le tenseur de Green total décrivant la propagation du champ électromagnétique dans le milieu stratifié. Il s'agit pour l'instant du même formalisme que pour la GPM classique (voir Éq. (3.1)).

Pour résoudre ce problème de diffusion multiple, illustré dans la Fig. 4.2 avec deux particules différentes, il est d'abord nécessaire de déterminer Ψ_{exc} . Pour le k -ième dipôle numérique de la n -ième particule, il s'agit non seulement du champ incident $\Psi_{\text{inc}}(\mathbf{r}_{kn})$ (flèches oranges sur la Fig. 4.2), mais aussi du champ diffusé par toutes les autres particules ($m \neq n$) dans le milieu stratifié. Ceci se traduit simplement par l'interaction entre les dipôles numériques de particules différentes via le tenseur de Green total dans le milieu stratifié \mathcal{G} (flèches bleues sur la Fig. 4.2). Il faut enfin remarquer que la GPM habillée prend en compte l'effet des différentes interfaces du milieu stratifié sur les moments induits

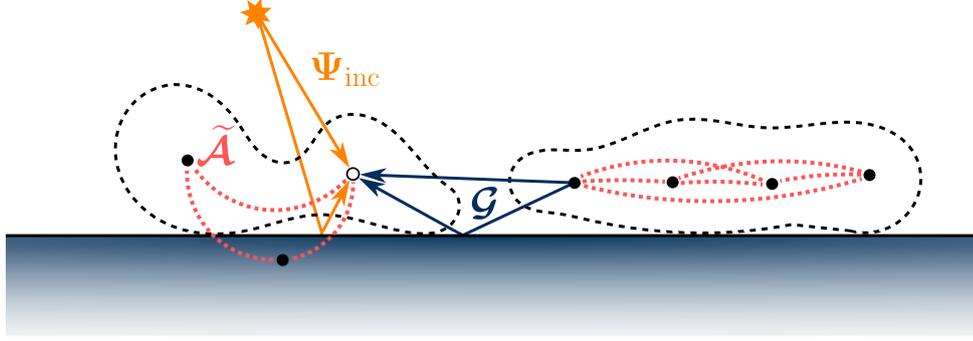


FIGURE 4.2 – Implémentation de la diffusion multiple dans un milieu stratifié avec la GPM habillée. Deux particules différentes sont posées sur un même substrat et interagissent entre elles. Cette interaction est modélisée par la diffusion multiple par les deux ensembles de dipôles numériques associés aux particules. Le champ diffusé est la somme des contributions de ces deux ensembles, calculé à partir du champ qui les excite et leurs GPM habillées. Le champ qui excite un des dipôles numériques de la particule de gauche (disque blanc) est la somme du champ incident Ψ_{inc} (flèches oranges) et du champ rayonné par chacun des quatre dipôles numériques de la particule de droite via le tenseur de Green total dans le milieu stratifié \mathcal{G} (flèches bleues).

aux positions des dipôles numériques. L'interaction indirecte entre dipôles numériques d'une même particule, présente dans le formalisme de diffusion multiple du chapitre 3, est donc supprimée et il n'y a alors plus aucune interaction électromagnétique entre eux. On a finalement

$$\Psi_{\text{exc}}^{kn}(\mathbf{r}_{kn}) = \Psi_{\text{inc}}(\mathbf{r}_{kn}) + \sum_{m \neq n} \sum_{i,j=1}^{N_p} \mathcal{G}(\mathbf{r}_{kn}, \mathbf{r}_{jm}) \tilde{\mathcal{A}}_m(\mathbf{r}_{jm}, \mathbf{r}_{im}) \Psi_{\text{exc}}^{im}(\mathbf{r}_{im}) \quad (4.3)$$

Cette expression est alors la parfaite transposition de celle correspondant à la GPM classique dans un milieu homogène (voir Éq. (3.3)).

4.2 Validation de la méthode GPM habillée : parallélépipède diélectrique sur substrat diélectrique

Pour valider la méthode de la GPM habillée, que l'on vient d'introduire, on commence par considérer le cas d'une particule diélectrique posée sur un substrat semi-infini lui aussi diélectrique. La particule est un parallélépipède rectangle ($a = 500$ nm, $b = c = 100$ nm) en Si dans l'air, reposant sur une de ses faces allongées sur un substrat en SiO_2 (voir Fig. 4.3(a)). Le tout est excité à la longueur d'onde $\lambda = 2\pi/k_0 = 570$ nm, à laquelle le

système est multi-résonant et diffuse fortement la lumière. Les permittivités des différents matériaux à cette longueur d'onde ($\epsilon_{\text{Si}} = 16,1196+0,1938i$, $\epsilon_{\text{SiO}_2} = 2,1290$) sont issues de données tabulées [Green et Keevers, 1995]. On a donc comme dans le chapitre 2 une particule à fort indice et grand rapport de forme, mais celle-ci est cette fois en contact direct avec une interface. Elle est aussi maintenant légèrement plus petite que la longueur d'onde dans l'air.

4.2.1 Apprentissage

Pour calculer la GPM habillée de ce système, on adopte une démarche similaire à celle de l'apprentissage sur le cylindre du chapitre 2. On dispose d'abord aléatoirement 30 sources d'apprentissage sur la surface d'un parallélépipède virtuel se trouvant à une distance de 40 nm de la surface de la particule (sphères rouges sur la Fig. 4.3(a)). Chaque source d'apprentissage correspond à 6 dipôles ponctuels, 3 dipôles électriques et 3 dipôles magnétiques orientés suivant les directions x , y , et z . Il y a donc au total 180 excitations différentes en champ proche. L'apprentissage se fait maintenant sur le système {particule + substrat}, il y a donc à la fois des sources dans l'air (18) et dans le substrat de SiO_2 (12). Pour éviter toute instabilité numérique, on veille à ne pas utiliser de source trop proche de l'interface, les plus proches étant ici à une distance de 10 nm.

On doit maintenant trouver un ensemble de points d'apprentissage adapté au problème. Pour ce faire, on commence par fixer un premier ensemble de dipôles numériques jugé judicieux. On choisit de reprendre la disposition de dipôles numériques retenue pour le cylindre, à savoir une ligne de $N_d = 10$ dipôles numériques espacés régulièrement au centre du parallélépipède et dans sa longueur (sphères jaunes sur la Fig. 4.3(b)), sur une distance $l = 409$ nm. Comme on l'a fait avec la GPM classique, on calcule ensuite la GPM habillée pour différentes surfaces d'apprentissage. On utilise à nouveau une forme homothétique à celle de la particule, à savoir un parallélépipède virtuel qui l'englobe, à une distance d_1 de sa surface. Pour chaque valeur de d_1 testée, on compare la densité d'énergie électromagnétique obtenue à partir des champs diffusés donnés par la GPM habillée ($\mathbf{P}_s = \mathbf{GAP}_{\text{inc}}$) à celle obtenue à partir des champs diffusés de l'ensemble d'apprentissage. L'erreur relative est moyennée sur tous les points d'apprentissage et sur les 180 excitations de l'apprentissage. Cette valeur nous donne une bonne première estimation de la qualité de la GPM habillée calculée. Il s'agit de trouver un compromis entre proximité à la particule de la surface d'apprentissage et précision sur la reproduction des champs diffusés associés. On ne teste ici que 3 valeurs de d_1 en champ proche, les résultats sont compilés

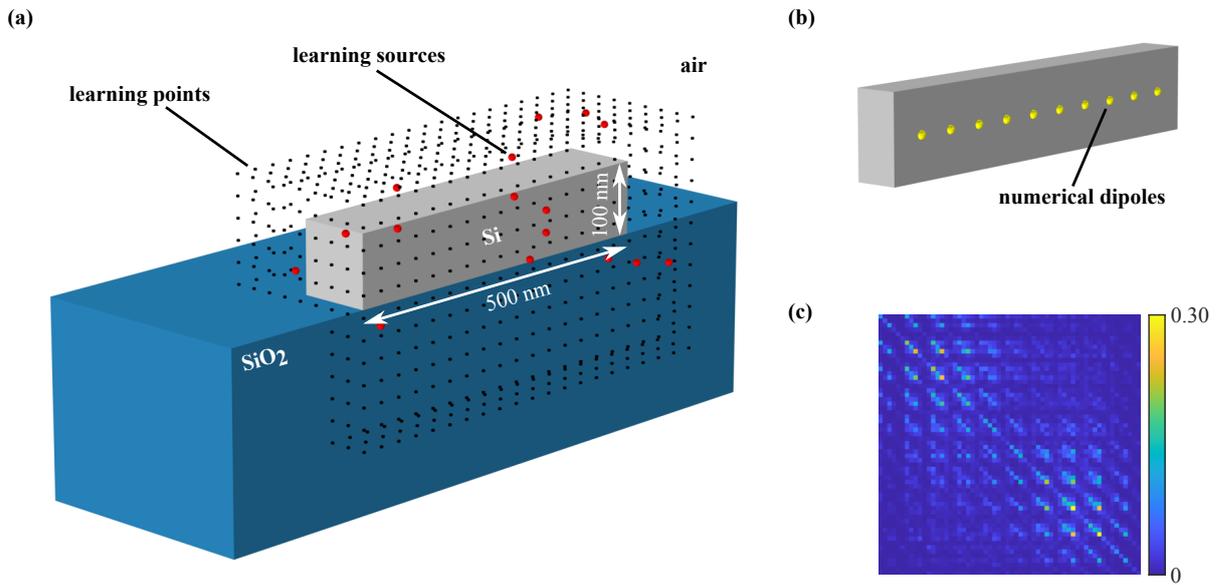


FIGURE 4.3 – Configuration de l'apprentissage et GPM habillée calculée pour un parallélépipède en Si posé sur un substrat en SiO₂. (a) Coupe du système considéré pour l'apprentissage. 30 sources d'apprentissage (sphères rouges, certaines ne sont pas visibles) sont disposées aléatoirement sur la surface d'un parallélépipède virtuel à 40 nm de la surface de la particule. 938 points d'apprentissage (points noirs) sont distribués régulièrement sur la surface d'un parallélépipède virtuel à 60 nm de la surface de la particule et qui descend 160 nm dans le substrat. (b) La particule sur le substrat est modélisée avec 10 dipôles numériques régulièrement espacés sur une ligne de longueur $l = 409$ nm au centre du parallélépipède. (c) Valeur absolue de la GPM habillée calculée dans la configuration d'apprentissage décrite en (a) et avec l'ensemble de dipôles numériques montré en (b), sans régularisation.

en première ligne du Tab. 4.1. Le nombre de points d'apprentissage, que l'on a répartis régulièrement sur la surface, est optimisé à chaque fois ($N_1 \approx 600$). Toujours dans le souci d'éviter toute instabilité numérique, on veille naturellement à ne pas positionner de point d'apprentissage sur l'interface. Les résultats montrent que la reproduction s'améliore à mesure que d_1 augmente, un comportement physiquement compréhensible et déjà observé pour la GPM classique sur le cylindre (voir Fig. 2.3). On remarque cependant que les erreurs sont bien supérieures avec cet ensemble de dipôles numériques. En effet, il faut aller jusqu'à $d_1 = 60$ nm pour passer sous la barre des 10% d'erreur. On doit souligner le fait que les points d'apprentissage sont alors au-delà des sources d'apprentissage. Ce point ne semble pas poser de problème particulier, la reproduction des champs sur la surface ayant continué à s'améliorer. La seule conséquence directe vraisemblable concerne la séparation minimale à laquelle on pourra décrire avec précision les interactions entre plusieurs particules. En effet, pour cela, et bien que les sources d'apprentissage se trouvent ici à une distance de 40 nm de la particule, on peut s'attendre à ce que les parallélépipèdes doivent être séparés d'une distance d'au moins 60 nm environ (voire $2d_1 = 120$ nm).

	$d_1 = 20$ nm	$d_1 = 40$ nm	$d_1 = 60$ nm
$dz_1 = d_1$	0.1630	0.1029	0.0811
$dz_1 = d_1 + 100$ nm	0.1537	0.0971	0.0788

TABLE 4.1 – Convergence du champ diffusé au niveau de la surface d'apprentissage en fonction de sa distance d_1 à la surface de la particule. On compare la densité d'énergie électromagnétique obtenue à partir des champs diffusés donnés par la GPM habillée ($\mathbf{P}_s = \mathbf{GAP}_{inc}$) à celle obtenue à partir des champs diffusés de l'ensemble d'apprentissage. Les valeurs affichées correspondent à l'erreur relative moyennée sur tous les points d'apprentissage et sur les 180 excitations de l'apprentissage. La surface d'apprentissage est un parallélépipède rectangle dont la surface est à une distance d_1 de la surface de la particule sur les côtés et au-dessus, et à une distance dz_1 en-dessous. Le nombre N_1 de points d'apprentissage, répartis régulièrement sur la surface d'apprentissage, a été optimisé dans chaque cas.

Il faut maintenant souligner que l'ajout d'un substrat a brisé la symétrie suivant la direction z que l'on avait dans le cas d'un milieu homogène. Pour tenter de prédire au mieux les champs diffusés par le système, on peut essayer d'étirer la surface d'apprentissage vers le bas. On peut ainsi collecter plus d'information sur la variation suivant z des champs dans le substrat. On peut par exemple placer le côté inférieur du parallélépipède virtuel à une distance $dz_1 = d_1 + 100$ nm de l'interface (au lieu de $dz_1 = d_1$). On a dans ce cas un nombre de points d'apprentissage équilibré entre l'air et le SiO_2 . On présente en deuxième ligne du Tab. 4.1 les erreurs obtenues en utilisant cette nouvelle configuration, pour les mêmes valeurs de d_1 . Le nombre de points d'apprentissage est à nouveau optimisé dans

chaque cas ($N_1 \approx 900$). Les résultats montrent qu'on arrive un peu mieux à reproduire les champs avec cette surface d'apprentissage plus profonde, ce qui est toutefois logique puisqu'on sait qu'il est plus aisé de reproduire des champs diffusés en des points plus éloignés. Pour autant, il est raisonnable de penser qu'en procédant ainsi on ne limite pas notre capacité future à modéliser plusieurs parallélépipèdes proches. On se prive en revanche certainement de la possibilité de traiter avec précision le cas où on exciterait la particule avec une source ponctuelle placée en-dessous d'elle à proximité de l'interface. Ces remarques illustrent le fait qu'en pratique le choix de la surface d'apprentissage doit avant tout se faire en fonction du type de problèmes de diffusion multiple qu'on envisage de résoudre avec la méthode GPM.

On choisit pour la suite d'utiliser la surface d'apprentissage étirée dans le substrat ($dz_1 = d_1 + 100$ nm), avec $d_1 = 60$ nm. On a dans ce cas $N_1 = 938$ points d'apprentissage (points noirs sur la Fig. 4.3(a)). On essaye alors d'améliorer l'erreur correspondante (7,9%), en ajustant la longueur l occupée par l'ensemble de $N_d = 10$ dipôles numériques (sphères jaunes sur la Fig. 4.3(b)). Finalement, on conserve la valeur initiale ($l = 409$ nm), celle-ci correspondant déjà au minimum global pour cet agencement. Au bilan, avec un nombre de dipôles numériques égal, on a donc une erreur supérieure à celle obtenue pour la GPM classique dans le cas du cylindre (5,2%), alors même que la distance de la surface d'apprentissage à la particule y était inférieure ($d_1 = 20$ nm). Ces distances sont peut-être à mettre en perspective avec l'indice du milieu dans lequel se trouve la particule ($n_{\text{verre}} = 1,5$ pour le cylindre, $n_{\text{air}} = 1$ ici). Quoi qu'il en soit, cela montre que le problème considéré ici est bien plus difficile à modéliser en raison de la présence de l'interface. Les interactions entre la particule et le substrat doivent être encodés dans la GPM habillée, ce qui augmente les contraintes sur le champ diffusé à reproduire.

Il faut signaler que d'autres dispositions de dipôles numériques ont été testées. On a par exemple essayé de les répartir sur deux lignes ou d'en placer une partie dans le substrat. On a également tenté d'augmenter N_d . Ces tests n'ont pas semblé apporter d'amélioration significative mais mériteraient d'être approfondis dans le futur. Pour la suite, on conserve l'ensemble de dipôles numériques décrit précédemment. Tous les résultats présentés dans la section suivante sont obtenus avec la GPM habillée affichée en Fig. 4.3(c), calculée avec tous les paramètres retenus et sans régularisation.

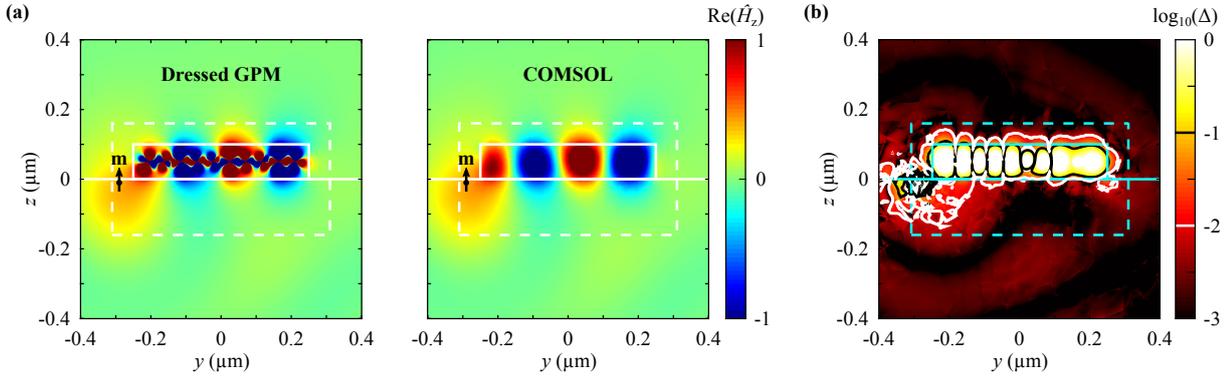


FIGURE 4.4 – Reproduction du champ autour de la particule pour un des dipôles sources de l’apprentissage. Le système est excité par un dipôle magnétique orienté suivant z à la position $(x, y, z) = (0, -290, -60)$ nm. (a) Cartes de la partie réelle du champ magnétique total, normalisée à la moitié de son amplitude maximale en-dehors du parallépipède. (b) Différence entre les cartes de champ en échelle \log_{10} avec des contours de l’erreur à 1% et 10%.

4.2.2 Résultats

On commence par valider la reproduction du champ lorsque le système est excité par l’une des sources d’apprentissage (excitation connue). La figure 4.4 compare la partie réelle du champ magnétique total (composante z) calculé avec la GPM habillée et avec COMSOL, pour un dipôle magnétique orienté suivant z situé 10 nm sous l’interface. On observe un très bon accord des champs, avec une erreur relative inférieure à 1% partout en-dehors de la surface d’apprentissage (lignes en pointillés), et même bien avant, mis à part au voisinage immédiat de la position de la source ponctuelle.

On s’intéresse ensuite aux résultats obtenus pour des excitations non-apprises. On utilise d’abord un point source que l’on place à une distance h au-dessus du parallépipède et au quart de sa longueur, comme illustré sur la Fig. 4.5(a). La figure 4.5(b) montre la comparaison entre les densités locales d’états (LDOS) obtenues avec la GPM habillée (lignes continues) et avec COMSOL (marqueurs blancs) pour différentes distances h et deux types de dipôles ponctuels, un dipôle électrique orienté suivant z (p_z) et un dipôle magnétique orienté suivant y (m_y). Les valeurs sont normalisées par la LDOS calculée en l’absence de la particule. Les prédictions réalisées suivent la même tendance que la référence malgré des écarts importants lorsque la source est très proche de la particule. La partie supérieure de la surface d’apprentissage étant à 60 nm du haut de la particule, on ne s’attend pas à avoir des prédictions quantitatives pour $h < 60$ nm, et encore moins

pour $h < 40$ nm, distance à laquelle ont été placées les sources d'apprentissage. Pour le dipôle m_y , l'erreur relative est de 4,38% pour $h = 60$ nm et ne cesse de diminuer en éloignant la source pour se stabiliser entre 1% et 2% pour des distances supérieures à 90 nm. Des résultats similaires sont obtenus pour tous les autres dipôles magnétiques et électriques, excepté le dipôle p_z dont la convergence est plus lente. En effet, l'erreur relative est encore de 16% pour $h = 60$ nm, mais les résultats deviennent comparables à celui du dipôle magnétique pour $h > 100$ nm.

À titre de comparaison, on montre également sur la figure les résultats obtenus avec la GPM classique (lignes en pointillés), calculée à partir d'un apprentissage avec les mêmes sources que pour la GPM habillée mais qui excitent le parallélépipède dans l'air. La surface d'apprentissage est placée à $d_1 = 60$ nm tout autour de la particule. On utilise également le même ensemble de 10 dipôles numériques, dont l'étalement suivant y se trouve être optimal pour la même valeur $l = 409$ nm. Pour le dipôle p_z , les résultats obtenus sont encore plus lents à converger vers les valeurs de référence que ceux issus de la GPM habillée. Pour le dipôle m_y en revanche, ils sont presque systématiquement meilleurs, avec une erreur relative inférieure à 2% dès $h = 40$ nm. Bien que pour la GPM classique la surface d'apprentissage intersecte assez largement le substrat sans que celui-ci soit pris en compte à l'apprentissage, ce qui constitue un cas normalement problématique, les prédictions obtenues avec la GPM classique ne divergent pas et sont proches des valeurs attendues. Ce bon comportement s'explique probablement par le faible contraste d'indice entre le substrat utilisé et l'air. La présence d'un substrat métallique, comme dans le chapitre 3, serait par exemple beaucoup plus défavorable.

Après avoir étudié le cas des sources ponctuelles on en vient naturellement à celui d'un autre type d'excitations non-apprises, celui des ondes planes. On illumine donc maintenant le système par une onde plane polarisée rectilignement et incidente dans le plan yz avec un angle θ_i par rapport à la normale au substrat comme illustré en Fig. 4.6(a). On calcule alors la section efficace de diffusion du système pour les polarisations TE et TM et différents angles d'incidence. Les résultats sont montrés en Fig. 4.6(b), où l'on constate un accord quantitatif entre les prédictions de la GPM habillée et les valeurs de référence. L'erreur relative maximale obtenue est de 2,17% dans le cas TE et de 1,37% dans le cas TM, les erreurs moyennes sur tous les angles d'incidence sont quant à elles de 1,42% et 0,69% respectivement. La GPM classique est également plutôt performante dans ce cas de figure, mais les erreurs maximales atteintes sont de l'ordre de 3%.

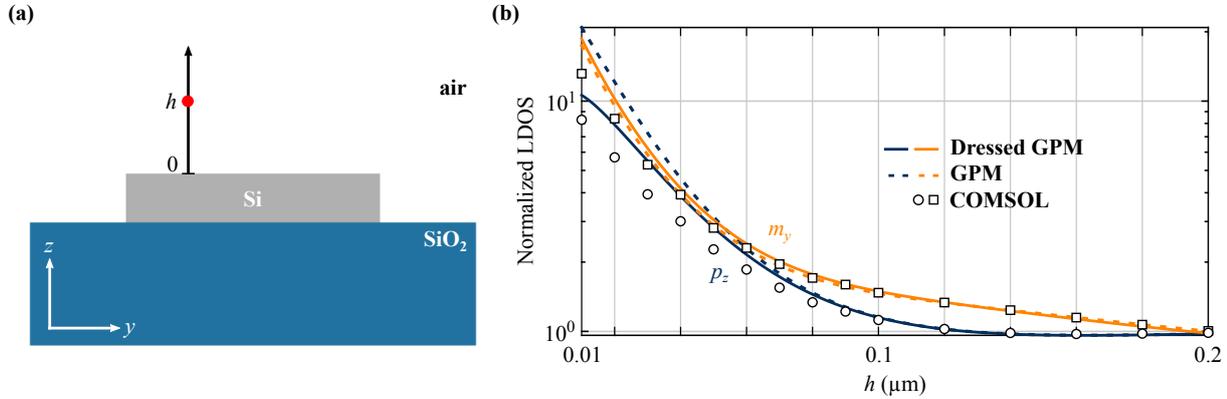


FIGURE 4.5 – Prédications de la LDOS pour des dipôles sources arbitraires. (a) Le système est excité par un dipôle ponctuel placé à une distance h au-dessus du parallélépipède et au quart de sa longueur. (b) LDOS à la position de la source $((x, y, z) = (0, -125, h) \text{ nm})$, normalisée par celle calculée sans la particule, pour différentes distances h avec deux sources différentes p_z et m_y . Comparaison des prédictions issues de la GPM classique (lignes en pointillées) et de la GPM habillée (lignes continues) avec les résultats issus de COMSOL (marqueurs blancs).

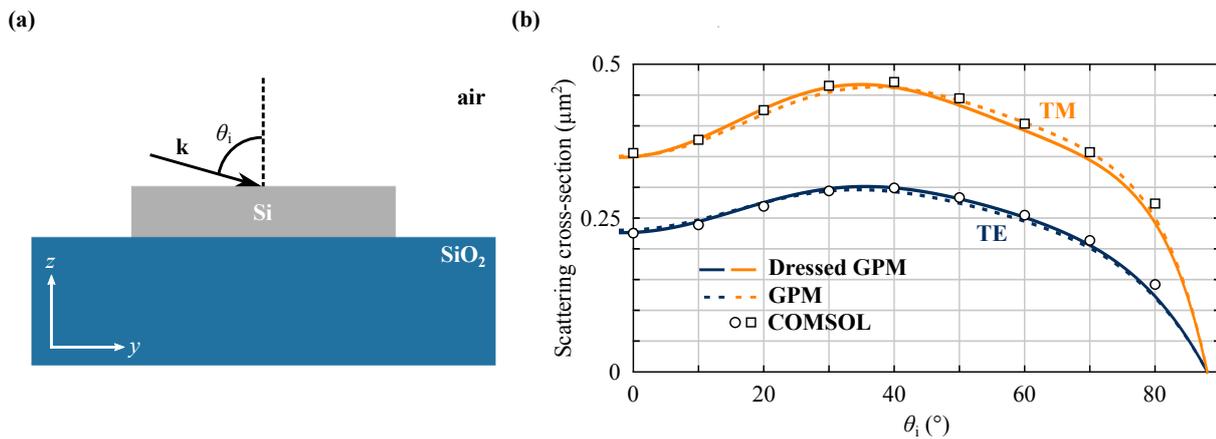


FIGURE 4.6 – Prédications de la section efficace de diffusion du système. (a) Le système est illuminé par une onde plane avec un angle θ_i . (b) Sections efficaces de diffusion calculées pour les polarisations TE et TM. Les prédictions de la GPM classique (lignes en pointillées) et de la GPM habillée (lignes continues) sont en bon accord global avec les résultats issus de COMSOL (marqueurs blancs).

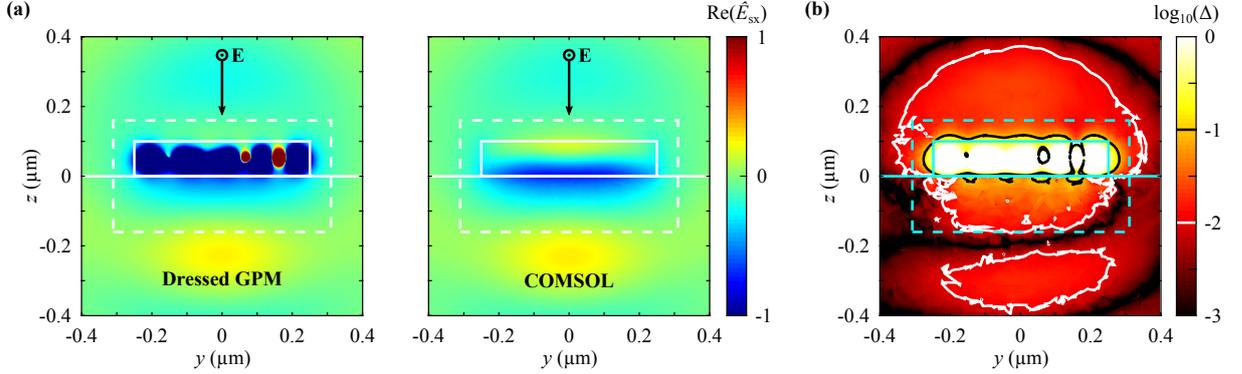


FIGURE 4.7 – Reproduction du champ autour de la particule pour une excitation non-apprise. Le système est illuminé par une onde plane polarisée TE en incidence normale. (a) Cartes de la partie réelle du champ électrique diffusé (composante x), normalisée à la moitié de son amplitude maximale en-dehors du parallélépipède. (b) Différence entre les cartes de champ en échelle \log_{10} avec des contours de l'erreur à 1% et 10%.

On montre en Fig. 4.7 une comparaison du champ proche calculé avec la GPM habillée et avec COMSOL dans le cas où l'erreur sur la section efficace de diffusion est la plus grande, à savoir celui d'une onde plane polarisée TE en incidence normale. Malgré cette erreur de 2,17%, les cartes de champ sont très similaires à l'oeil, et il faut regarder la carte de différence en échelle \log_{10} pour s'apercevoir qu'on peut trouver des différences de quelques pour cent en-dehors de la surface d'apprentissage, notamment à la verticale au-dessus dans l'air et en-dessous dans le substrat.

La GPM habillée calculée permettant de reproduire les propriétés de diffusion d'un parallélépipède de manière quantitative, on peut désormais s'intéresser au cas de la diffusion multiple. Pour cela, on considère le cas de deux parallélépipèdes parallèles posés sur le substrat, décalés de 100 nm suivant la direction y comme illustré en Fig. 4.8(a). Les deux particules sont séparés d'une distance dx et éclairés par une onde plane polarisée rectilignement et incidente dans le plan yz avec un angle θ_i par rapport à la normale au substrat. On commence par fixer $dx = 120$ nm, ce qui correspond au cas critique où les surfaces d'apprentissage des deux parallélépipèdes se touchent pour la GPM habillée. On calcule alors à nouveau la section efficace de diffusion du système en faisant varier θ_i et ce pour les deux polarisations TE et TM. La figure 4.8(b) montre la comparaison entre les valeurs prédites par la GPM habillée et la GPM classique et celles calculées avec COMSOL. L'accord est encore très bon avec la GPM habillée, pour laquelle les erreurs relatives ne dépassent pas 1,77% dans le cas TE et 2,02% dans le cas TM, ce qui est

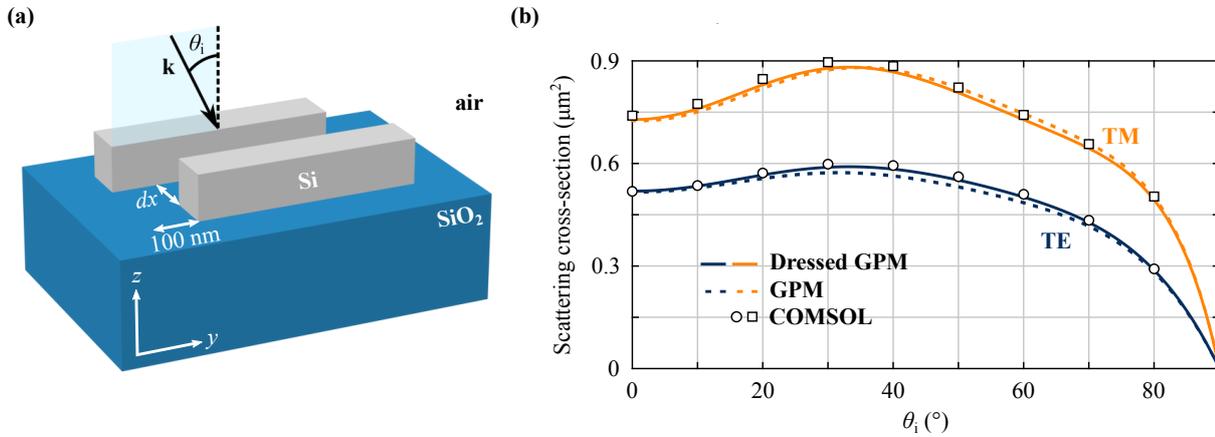


FIGURE 4.8 – Prédiction de la section efficace de diffusion de deux parallélépipèdes en forte interaction. (a) Deux parallélépipèdes parallèles, décalés d’une distance de 100 nm suivant y , sont séparés d’une distance dx . Le système est illuminé par une onde plane polarisée rectilignement et incidente dans le plan yz avec un angle θ_i par rapport à la normale au substrat. (b) Sections efficaces de diffusion pour $dx = 120$ nm, calculées pour les polarisations TE et TM en faisant varier θ_i . Les prédictions de la GPM classique (lignes en pointillés) et de la GPM habillée (lignes continues) sont en bon accord global avec les résultats issus de COMSOL (marqueurs blancs).

comparable aux résultats obtenus sur une particule seule. On montre les cartes du champ proche calculé pour l’erreur de 2,02%, correspondant à une onde plane TM à $\theta_i = 20^\circ$ d’incidence, en Fig. 4.9. La coupe transversale des deux cylindres, dans le plan xz , montre un très bon accord avec la référence, les zones avec une erreur sur les champs supérieure à 1% étant peu étendues.

Il reste à vérifier l’évolution des erreurs sur la section efficace de diffusion en fonction de la distance dx entre les parallélépipèdes. Dans ce but, on choisit un angle d’incidence arbitraire : $\theta_i = 30^\circ$. La figure 4.10 montre la comparaison entre les prédictions de la GPM classique et de la GPM habillée avec les valeurs de référence. Pour la GPM habillée, on peut voir une réduction nette de l’écart avec l’augmentation de la distance dans le cas TE, écart qui devient inférieur à 2% dès $dx = 100$ nm pour se stabiliser ensuite autour de 1% aux grandes distances. Dans le cas TM, la section efficace de diffusion prédite est systématiquement inférieure à la valeur attendue, ce biais étant déjà présent pour un parallélépipède seul. L’écart ne dépasse cependant jamais 3% et se stabilise également autour du pour cent. Dans cette configuration il devient flagrant que la GPM classique est moins performante.

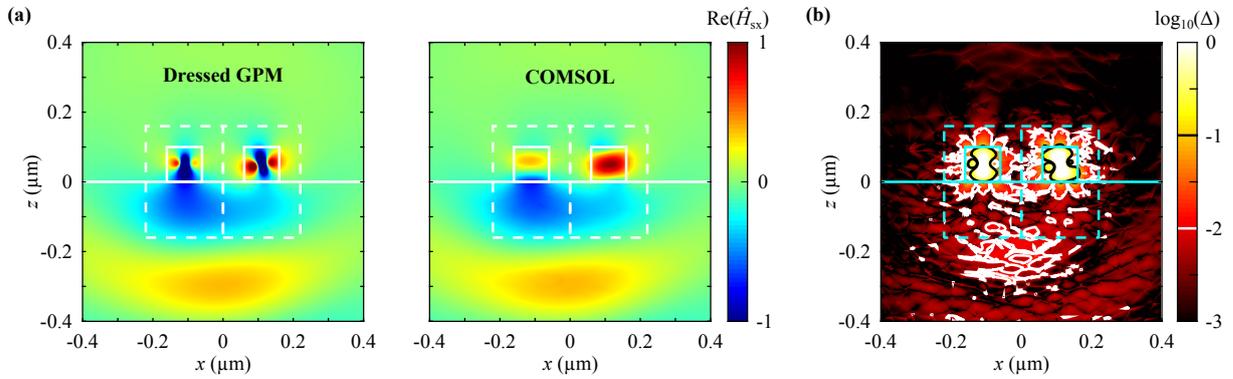


FIGURE 4.9 – Reproduction du champ proche diffusé par deux parallélépipèdes en forte interaction. Le système est illuminé par une onde plane polarisée TM à $\theta_i = 20^\circ$. (a) Cartes de la partie réelle du champ magnétique diffusé (composante x), normalisée à la moitié de son amplitude maximale en-dehors du parallélépipède. (b) Différence entre les cartes de champ en échelle \log_{10} avec des contours de l'erreur à 1% et 10%.

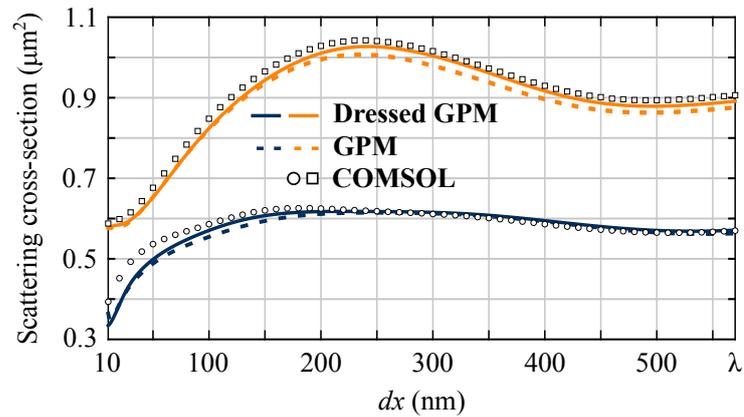


FIGURE 4.10 – Prédictions de la section efficace de diffusion calculée dans la configuration de la Fig. 4.8(a), avec $\theta_i = 30^\circ$, en fonction de la distance dx séparant les deux parallélépipèdes. Les prédictions de la GPM classique (lignes en pointillés) et de la GPM habillée (lignes continues) sont en bon accord global avec les résultats issus de COMSOL (marqueurs blancs).

4.3 Exemples d'application

Dans cette partie, la généralisation de la méthode GPM est appliquée à deux systèmes concrets plus complexes qu'elle permet de modéliser efficacement : une métasurface de nanocubes métalliques couplés à un film métallique et une couche diélectrique perforée de trous.

4.3.1 Nanocubes métalliques sur substrat métallo-diélectrique

Le premier système étudié est constitué de résonateurs plasmoniques sub-longueur d'onde en forme de cube, des particules qui connaissent un gain d'intérêt récent pour leur utilisation en grands ensembles désordonnés [Stewart *et al.*, 2020; Fusella *et al.*, 2020; Cruz *et al.*, 2020; Traverso *et al.*, 2021]. En positionnant un nanocube plasmonique au-dessus d'un film métallique, et en séparant les deux par une fine couche diélectrique (*gap*, < 50 nm), on obtient leur couplage électromagnétique dans une configuration métal-isolant-métal (MIM). À la résonance, on peut exciter un plasmon qui oscille dans le gap sous le nanocube comme dans une cavité Fabry-Pérot, résultant en de fortes amplifications locales du champ [Lassiter *et al.*, 2013]. Cette résonance plasmon est très dépendante de la taille du nanocube et de l'épaisseur du gap, paramètre sur lequel une excellente précision est obtenue avec des techniques de fabrication *bottom-up* relativement simples.

Ce système plasmonique hautement contrôlable est un bon candidat comme brique de base pour concevoir des métasurfaces avec des réflectances sur-mesure, parfois appelés « absorbeurs parfaits » [Moreau *et al.*, 2012; Akselrod *et al.*, 2015; Li *et al.*, 2019]. Dans ces systèmes, chaque nanocube agit comme un résonateur qui dissipe efficacement l'énergie apportée, résultant en une absorption quasi-totale de la lumière par la surface sur un intervalle spectral restreint. Il a été montré que ce phénomène était de plus en plus sensible à l'angle d'incidence et à la polarisation de la lumière. Par ailleurs, aucun arrangement régulier des nanocubes n'étant nécessaire, ceux-ci peuvent être synthétisés par voie colloïdale et auto-assemblés pour obtenir de grandes surfaces à moindre coût, ce qui serait impossible avec un procédé lithographique. La densité de l'ensemble est ajustable en contrôlant le temps d'exposition à la solution de nanoparticules, ce qui offre un levier d'action supplémentaire.

Il faut souligner que ce premier système constitue un vrai pas en avant pour la méthode GPM en matière de complexité. D'abord, parce que les nanocubes considérés sont

métalliques. On s'attend à ce que celles-ci soient plus difficiles à modéliser que les particules diélectriques, notamment à cause de la présence potentielle de points chauds [Chung *et al.*, 2011], ici aux coins des nanocubes. Ensuite, parce que la nano-structure absorbe beaucoup. La méthode GPM repose sur l'inversion d'un problème dont on cherche à reproduire les champs diffusés. On peut penser qu'il est plus difficile d'obtenir une GPM précise lorsque ces derniers sont faibles. Enfin, parce qu'il n'y a pas moins de 3 interfaces à prendre en compte et que cette structure permet aux nanocubes d'interagir à différentes échelles, à la fois via l'espace libre et via des modes guidés.

Pour l'étude qui suit, on a repris la géométrie d'un système déjà fabriqué expérimentalement et modélisé avec COMSOL [Hoang *et al.*, 2015] pour mettre au point un modèle FEM le plus réaliste possible. Comme montré en Fig. 4.11(a), le nanocube est en argent (Ag) et fait 100 nm de côté. Ses arêtes et sommets sont légèrement arrondis (rayon de courbure de 8 nm), et il est entièrement recouvert d'une pellicule de polymère de 3 nm d'épaisseur. La particule est couplée à un film en or (Au) de 50 nm d'épaisseur. La couche isolante est elle aussi en polymère et fait 5 nm d'épaisseur, ce qui crée un gap de 8 nm sous le cube. Le tout repose sur un substrat semi-infini de SiO₂. Le calcul FEM du spectre de diffusion du système permet d'identifier la résonance fondamentale à $\lambda = 810$ nm, longueur d'onde à laquelle nous allons donc calculer la GPM habillée. Les permittivités relatives des métaux ($\epsilon_{\text{Ag}} = -31,8092 + 0,4343i$, $\epsilon_{\text{Au}} = -24,8802 + 1,5750i$) sont extraites de données tabulées [Palik, 1998], celles des autres matériaux ($\epsilon_{\text{poly}} = 1,4$, $\epsilon_{\text{SiO}_2} = 1,47$) sont reprises de la Réf. [Hoang *et al.*, 2015].

Des tests numériques ont permis d'aboutir à la configuration d'apprentissage présentée en Fig. 4.11(a). 50 sources d'apprentissage (sphères rouges sur la figure) sont utilisées, toutes placées dans l'air. Elles ont été distribuées aléatoirement à différentes distances du nanocube, dans le volume entre deux demi-sphères centrées sur lui, de rayons $r_{\text{min}} = 100$ nm et $r_{\text{max}} = \lambda/2$. Une distance minimale de 3 nm a également été imposée entre les sources et l'interface air/polymère pour limiter les instabilités numériques. Les points d'apprentissage (points noirs sur la figure), au nombre de 314, sont distribués régulièrement sur la surface d'un parallélépipède virtuel à 60 nm des bords du nanocube et qui descend 35 nm dans le substrat.

La convergence des résultats avec la position et le nombre des dipôles numériques a été étudiée. Il en est ressorti qu'un ensemble de 8 dipôles numériques positionnés aux

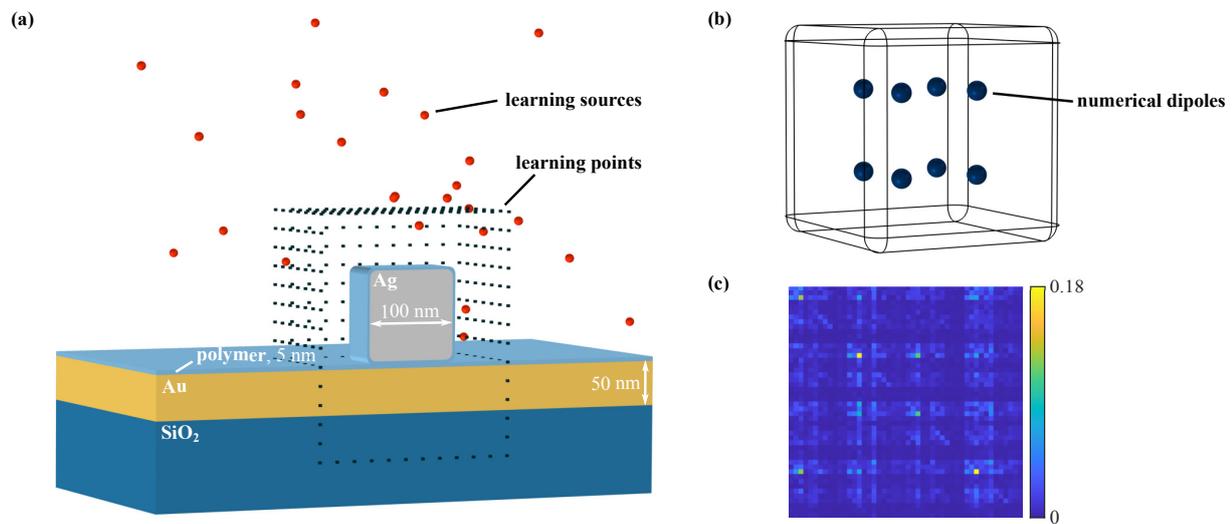


FIGURE 4.11 – Configuration de l'apprentissage et GPM habillée calculée pour un nanocube d'argent couplé à un film en or. (a) Coupe du système considéré pour l'apprentissage. 50 sources d'apprentissage (sphères rouges) sont disposées aléatoirement dans l'air à différentes distances du nanocube. 314 points d'apprentissage (points noirs) sont distribués régulièrement sur la surface d'un parallélépipède virtuel à 60 nm des bords du nanocube et qui descend 35 nm dans le substrat. Une partie des sources et points d'apprentissage n'est pas représentée pour des soucis de clarté. (b) La particule sur l'empilement est modélisée avec 8 dipôles numériques aux sommets d'un cube virtuel de 40 nm de côté centré sur le nanocube. (c) Valeur absolue de la GPM habillée calculée dans la configuration d'apprentissage décrite en (a) et avec l'ensemble de dipôles numériques montré en (b), sans régularisation.

sommets d'un petit cube virtuel dans le volume du nanocube permettait d'obtenir des résultats satisfaisants. Pour un cube virtuel de 40 nm de côté centré sur le nanocube, l'inversion du problème donne la GPM habillée de la 4.11(c), sans aucune régularisation. L'erreur relative correspondante sur la densité d'énergie électromagnétique diffusée aux points d'apprentissage est de seulement 2,1%. Tous les résultats qui sont présentés dans la suite de cette partie ont été obtenus avec cet ensemble de dipôles numériques.

On vérifie tout d'abord notre capacité à reproduire la diffusion du système pour des excitations apprises et non-apprises. On s'intéresse en particulier à la résonance plasmonique dans le gap. Pour cela, on présente en Fig. 4.12 deux cartes du champ diffusé avec des motifs signatures du plasmon sous le nanocube, ici illuminé par une onde plane TM à 30° d'incidence dans le plan yz (excitation non-apprise). La figure 4.12(a) montre la polarisation du plasmon sur la composante y du champ magnétique tandis que la carte de la composante z du champ électrique en Fig. 4.12(c) montre son oscillation suivant x . Dans les deux cas, on observe une bonne reproduction du champ sur les côtés du cube et en-dessous, et ce même bien avant la surface d'apprentissage indiquée en pointillés blancs. Ce résultat est assez remarquable car on ne cherche pas explicitement à reproduire le champ dans cette zone. Ceci peut s'expliquer par la grande complexité du système : le nombre élevé de contraintes sur le champ diffusé à reproduire imposerait la reproduction de ce mode plasmon. La GPM habillée obtenue pour un nanocube étant satisfaisante, on cherche ensuite à vérifier sa capacité à traiter des problèmes de diffusion multiple et notamment pour modéliser une métasurface.

On commence par modéliser une surface infinie en plaçant les nanocubes en réseau 2D (voir l'encart dans la Fig. 4.13). On cherche alors à calculer des quantités macroscopiques telles que la réflexion R , la transmission T et l'absorption A de la surface lorsqu'elle est éclairée par le haut par une onde plane. On détermine R et T avec la GPM habillée grâce à un calcul de tenseurs de Green périodiques dans le milieu stratifié. Les efficacités de diffraction dans les différents ordres sont ensuite sommées et normalisées par l'intensité de l'onde plane incidente. On obtient alors l'absorption de la surface $A = 1 - R - T$. La Fig. 4.13 montre la comparaison entre l'absorption obtenue avec la GPM habillée et avec COMSOL en fonction du pas du réseau d , lorsque celui-ci est éclairé par une onde plane TE à 6° d'incidence. On peut constater un bon accord des valeurs dans l'ensemble, en particulier pour les pas du réseau inférieurs à la longueur d'onde ($d < 810$ nm) et notam-

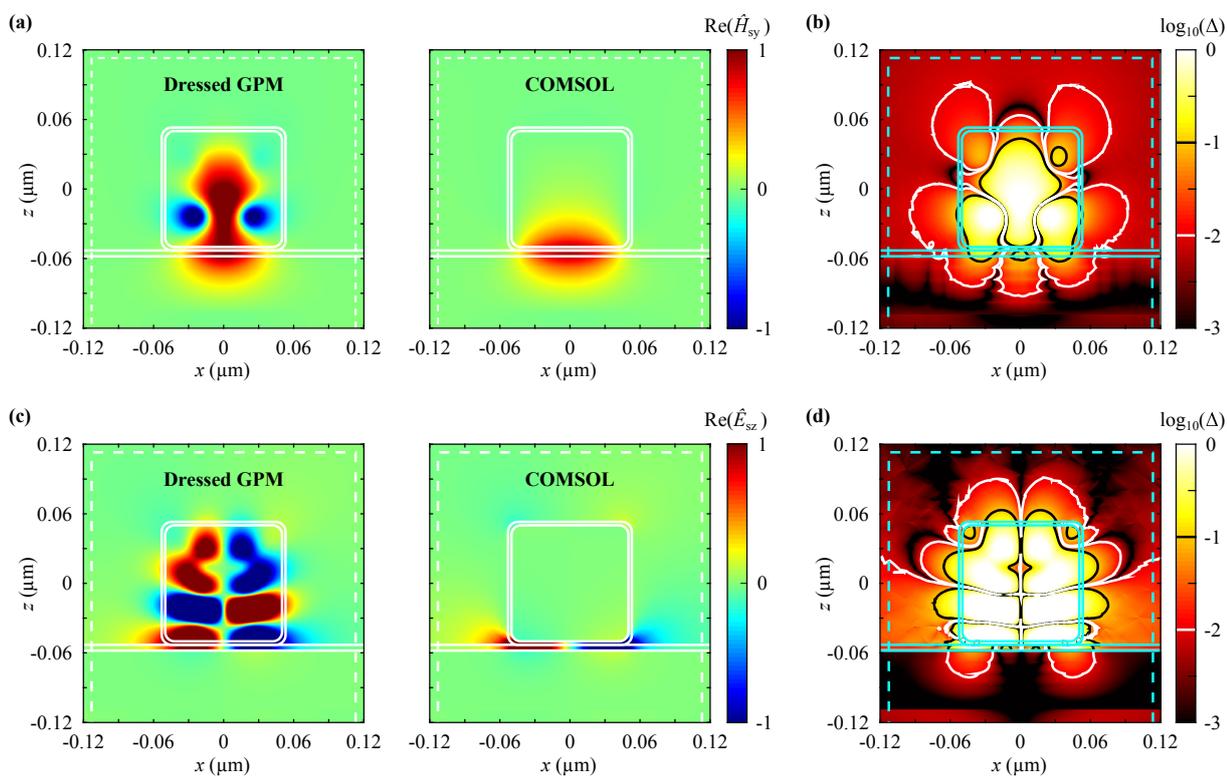


FIGURE 4.12 – Reproduction du plasmon de gap sous le nanocube. (a) Cartes de la partie réelle du champ magnétique diffusé (composante y), normalisée à la moitié de son amplitude maximale en-dehors du nanocube, pour une onde plane TE à $\theta_i = 50^\circ$. (b) Différence entre les cartes de champ en échelle \log_{10} avec des contours de l'erreur à 1% et 10%.

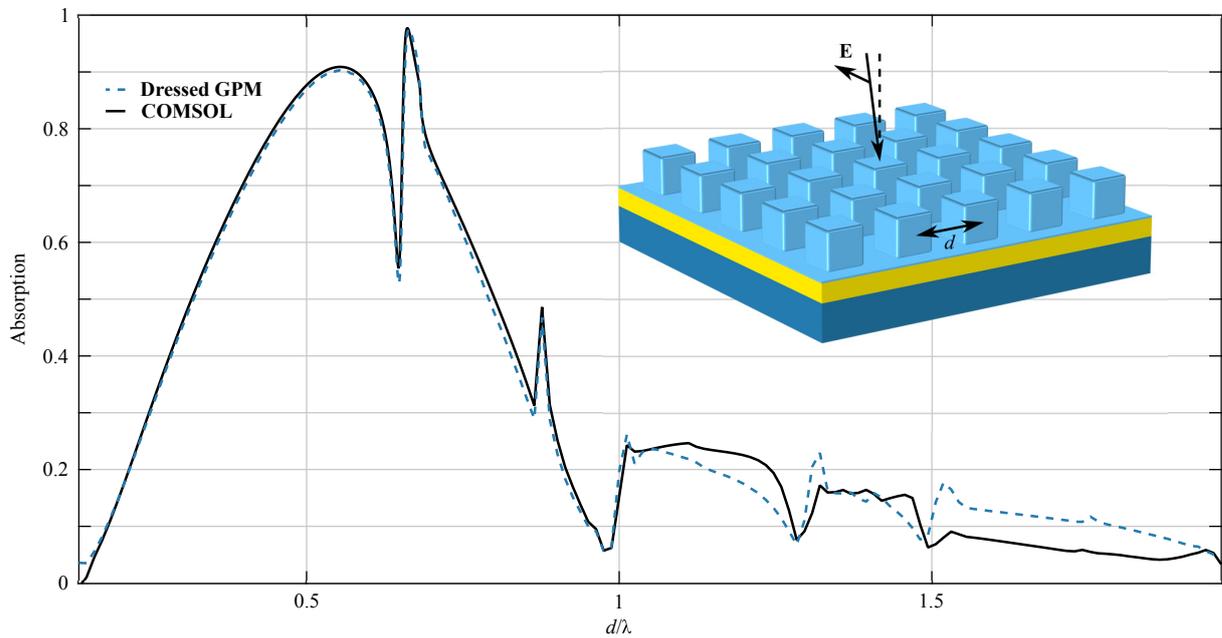


FIGURE 4.13 – Absorption d’un réseau 2D de nanocubes. Comparaison de l’absorption calculée avec la GPM habillée (ligne en pointillés) et COMSOL (ligne continue) pour un réseau 2D de nanocubes illuminé par une onde plane TE à 6° d’incidence, en fonction du pas du réseau normalisé par la longueur d’onde d/λ .

ment au maximum d’absorption ($A = 97,5\%$ pour $d = 538$ nm, avec une erreur relative de $0,5\%$). L’erreur augmente significativement pour $d < 150$ nm jusqu’au cas limite où les nanocubes entrent en contact, pour $d = 106$ nm. Ceci est attendu puisque les surfaces d’apprentissage commencent à s’intersecter dès $d = 226$ nm. Au-delà de $d = 810$ nm des erreurs plus importantes surviennent. À ces distances les nanocubes interagissent très peu entre eux, probablement seulement via des plasmons de surface. On a essayé d’ajouter des ondes planes lors de l’apprentissage pour améliorer les résultats sur cette plage, sans que cela n’apporte d’amélioration notable. À ce stade, il s’agit encore d’un problème ouvert et il serait intéressant de l’étudier dans le futur pour en comprendre les causes et tenter de diminuer ces erreurs. Un premier test serait d’effectuer les mêmes calculs en polarisation TM.

On s’intéresse finalement au cas d’un ensemble dense de 7 nanocubes. Leurs positions ont été tirées aléatoirement sur un échantillon carré de 800 nm de côté et on leur a appliqué des rotations aléatoires dans le plan de la surface. On a également veillé à ce que leurs surfaces d’apprentissage ($d_1 = 60$ nm) ne s’intersectent pas (voir la Fig. 4.14). Ce système

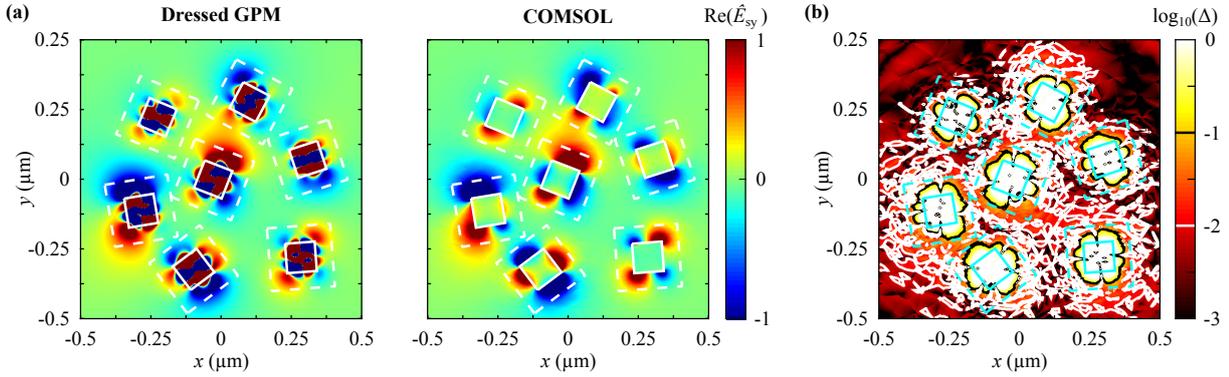


FIGURE 4.14 – Modélisation d’un ensemble désordonné de 7 nanocubes posés sur un empilement métal-diélectrique. (a) Cartes de la partie réelle du champ magnétique diffusé, normalisée au maximum de l’amplitude du champ incident, pour une onde plane TE à $\theta_i = 6^\circ$. (b) Différence entre les cartes de champ en échelle \log_{10} avec des contours de l’erreur à 1% et 10%.

est à la limite de ce que COMSOL est capable de traiter avec la mémoire disponible (64 Go) car beaucoup d’éléments sont nécessaires pour modéliser chaque nanocube. Comme pour le réseau 2D, on illumine l’échantillon avec une onde plane TE à 6° d’incidence. Les cartes de champ montrent un accord satisfaisant entre les résultats de la méthode GPM habillée et ceux de COMSOL, les variations du champ étant correctement reproduites autour des nanocubes.

4.3.2 Trous dans une couche diélectrique

Le second système étudié est une couche semi-conductrice d’arséniure de gallium (GaAs) dans l’air perforée de trous circulaires sub-longueur d’onde (voir Fig. 4.15(a)). Elle repose sur un substrat semi-infini de SiO_2 . On peut remarquer que ce système présente des similarités avec celui présenté en Fig. 2(b). L’originalité réside dans la présence de trous au lieu des particules. Ce type de systèmes est tout aussi intéressant à modéliser. Conséquence du théorème de Babinet, des trous de forme spécifique dans une couche métallique peuvent par exemple agir comme des nano-antennes pour des métasurfaces [Ni *et al.*, 2013]. Il est de plus possible de les fabriquer avec des techniques de lithographie colloïdale [Trompoukis *et al.*, 2016].

Fondamentalement, il n’y a pas de différence du point de vue de la méthode GPM à traiter un trou ou une particule. En effet, tout se passe comme si le trou était une particule cylindrique d’air incluse dans la couche de GaAs, en contact direct à la fois avec le substrat de SiO_2 en-dessous et avec la couche d’air au-dessus.

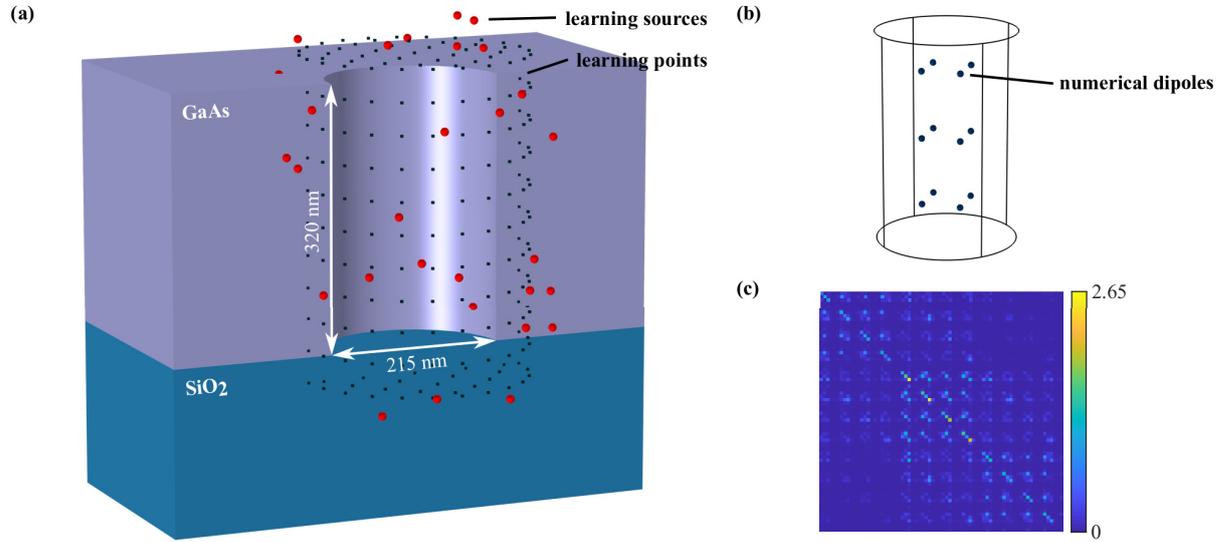


FIGURE 4.15 – Configuration de l'apprentissage et GPM habillée calculée pour un trou d'air dans une membrane de GaAs. (a) Coupe du système considéré pour l'apprentissage. 40 sources d'apprentissage (sphères rouges) sont disposées aléatoirement sur la surface d'un cylindre virtuel à 60 nm des bords du trou. 314 points d'apprentissage (points noirs) sont distribués régulièrement sur la surface d'un cylindre virtuel à 30 nm des bords du trou. (b) Le trou dans la membrane est modélisé avec 12 dipôles numériques placés en son centre sur la surface d'un cylindre virtuel dont la base fait 50 nm de rayon. (c) Valeur absolue de la GPM habillée calculée dans la configuration d'apprentissage décrite en (a) et avec l'ensemble de dipôles numériques montré en (b), sans régularisation.

La géométrie retenue, décrite dans la Fig. 4.15(a), provient à nouveau d'articles théoriques et expérimentaux [Vynck *et al.*, 2012; Riboli *et al.*, 2014]. La couche de GaAs fait 320 nm d'épaisseur et les trous circulaires possèdent un diamètre de 215 nm. Ce système exhibe une résonance dans le proche infrarouge, à $\lambda = 1250$ nm. Les permittivités relatives des différents matériaux à cette longueur d'onde ($\epsilon_{\text{GaAs}} = 11,62$, $\epsilon_{\text{SiO}_2} = 1,4475$) sont extraites de données tabulées [Green et Keevers, 1995]. Celles-ci sont toutes réelles, le système est donc sans perte.

La configuration d'apprentissage finale est présentée en Fig. 4.15(a). À la manière de ce qui a été fait avec le cylindre de Si dans le chapitre 2, 40 sources d'apprentissage (sphères rouges sur la figure) ont été distribuées aléatoirement sur la surface d'un cylindre virtuel englobant le trou, à une distance de 60 nm de ses bords. Les points d'apprentissage (points noirs sur la figure), au nombre de 314, sont distribués régulièrement sur un cylindre virtuel à 30 nm des bords du trou. Le trou ayant un rapport de forme beaucoup plus petit que le

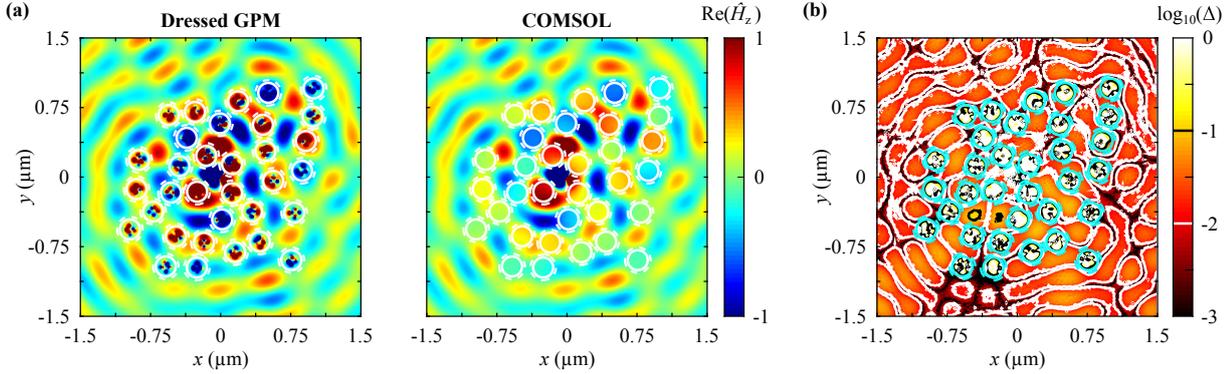


FIGURE 4.16 – Modélisation du champ total dans une couche de GaAs perforée d'un ensemble désordonné de 33 trous. (a) Cartes de la partie réelle du champ magnétique total, normalisée au maximum de son amplitude en-dehors des trous, pour une excitation par un dipôle électrique d'orientation aléatoire placé au milieu de l'ensemble. (b) Différence entre les cartes de champ en échelle \log_{10} avec des contours de l'erreur à 1% et 10%.

cylindre de Si, on a constaté que placer des dipôles numériques uniquement sur l'axe de révolution n'était pas optimal. Pour occuper d'avantage le volume à l'intérieur du trou, on les dispose à la surface d'un petit cylindre virtuel centré dessus, comme dans le cas du nanocube. L'ensemble retenu est montré en Fig. 4.15(b). Il consiste en 3 cercles de 4 dipôles placés à la surface d'un cylindre dont la base à un rayon de 50 nm. La GPM habillée correspondante est montrée en Fig. 4.15(c). Aucune régularisation n'est nécessaire. L'erreur relative correspondante sur la densité d'énergie électromagnétique diffusée aux points d'apprentissage est de 6,9%.

Après avoir vérifié que la GPM habillée calculée permettait une modélisation quantitative de la diffusion par le trou étudié, on s'intéresse directement à la diffusion multiple dans un système désordonné de 33 trous, visible du dessus sur la Fig. 4.16(a) (cercles blancs pleins). On a encore choisi de considérer un système assez dense pour pouvoir modéliser autant de trous que COMSOL nous le permet en termes de mémoire sans être limité par la taille du domaine de simulation. Il est intéressant dans ce type de systèmes d'étudier la manière dont la lumière se couple aux modes guidés et aux modes de l'espace libre, à la manière de ce qui a été fait dans le chapitre 3 avec l'ensemble désordonné de cylindres. Pour ce faire, on excite l'ensemble de trous avec un dipôle électrique d'orientation aléatoire placé en son centre dans la membrane de GaAs.

La Fig. 4.16 compare le champ magnétique total (composante z) calculé avec la GPM habillée et COMSOL au milieu de la couche semi-conductrice. On constate une très bonne

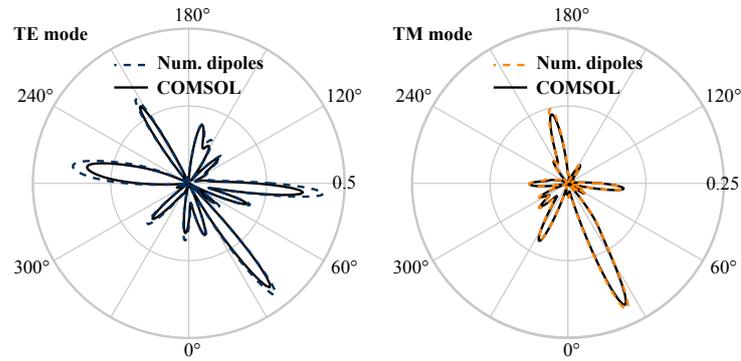


FIGURE 4.17 – Modélisation du couplage aux modes guidés dans une couche de GaAs perforée d'un ensemble désordonné de 33 trous pour une excitation par un dipôle électrique d'orientation aléatoire placé au milieu de l'ensemble. Comparaison des diagrammes de rayonnement obtenus avec la GPM habillée et COMSOL pour un mode guidé TE ($n_{\text{eff}} = 3,1129$) à gauche et un mode guidé TM ($n_{\text{eff}} = 2,8731$) à droite.

reproduction du motif complexe de diffusion de la lumière dans la structure, bien que les extrema du champ semblent légèrement supérieurs pour les dipôles numériques.

En Fig. 4.17, on présente les diagrammes de rayonnement dans les modes guidés TE ($n_{\text{eff}} = 3,1129$) et TM ($n_{\text{eff}} = 2,8731$). On constate un accord satisfaisant entre les résultats de la GPM habillée et ceux de COMSOL, tous les lobes de ces diagrammes assez complexes étant reproduits. Il faut tout de même noter que les puissances rayonnées correspondantes sont surévaluées par rapport à la référence, de 13,7% dans le mode TE et 4,7% dans le mode TM.

Les diagrammes de rayonnement $dP/d\Omega$ dans l'espace libre présentés en Fig. 4.18(a) nous renseignent sur la manière dont la lumière est extraite dans l'air et dans le substrat de SiO_2 . On constate cette fois encore une forte ressemblance des diagrammes calculés, qu'on peut vérifier plus quantitativement sur des coupes 2D comme celle dans le plan xz en $y = 0$ présentée sur la Fig. 4.18(b). Les puissances extraites dans l'air et dans le substrat, obtenues en intégrant les diagrammes de rayonnement dans les demi-espaces supérieur et inférieur, sont à nouveau supérieures avec la GPM habillée par rapport à la référence, avec des écarts relatifs de 5,8% en haut et 3,4% en bas. Au vu du biais systématique remarqué sur les cartes de champ et sur les diagrammes de rayonnement, à la fois dans les modes guidés et dans l'espace libre, on peut se demander si la puissance réellement émise par la source dans COMSOL n'est pas en réalité supérieure à la puissance théorique demandée.

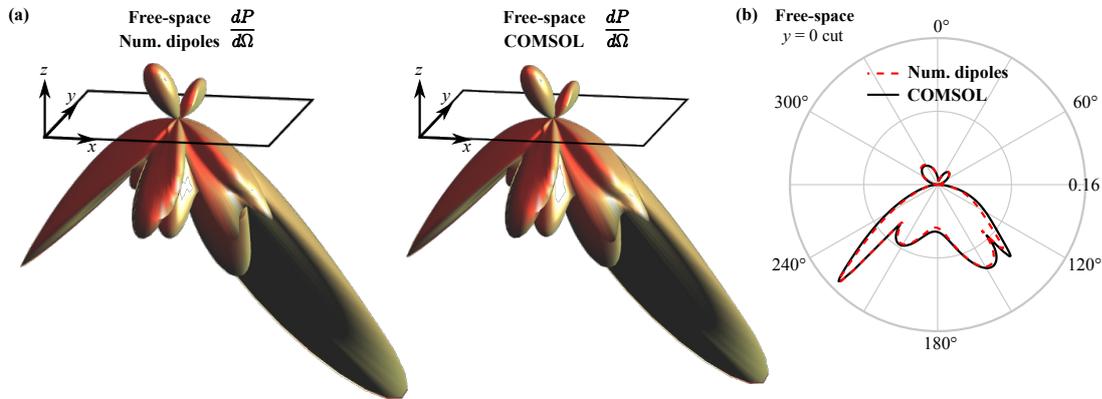


FIGURE 4.18 – Modélisation de la lumière extraite d’une couche de GaAs perforée d’un ensemble désordonné de 33 trous. (a) Diagrammes de rayonnement 3D dans l’espace libre. (b) Comparaison d’une coupe dans le plan xz des diagrammes présentés en (a).

4.4 Conclusion du chapitre 4

Dans ce chapitre 4, on a présenté une généralisation de la méthode GPM introduite et validée dans les chapitres 2 et 3. Cette généralisation repose sur une nouvelle GPM dite habillée, calculée directement sur un système {particule + milieu stratifié}. Celle-ci permet en principe d’élargir le domaine d’application de la méthode initiale aux cas où des particules sont en contact direct avec une ou plusieurs interfaces planes d’un milieu stratifié, ou même à cheval entre plusieurs milieux.

On a d’abord cherché à valider la méthode de la GPM habillée dans une configuration basique, celle d’une particule diélectrique posée sur une simple interface air-silice. Une série de tests a été effectuée et les comparaisons avec des calculs rigoureux COMSOL ont démontré l’efficacité de la généralisation. Il a par ailleurs été constaté que la GPM classique permettait d’obtenir des résultats plus qu’honorables dans cette même configuration qui lui est pourtant défavorable. Ceci s’explique probablement par le faible contraste d’indice entre le milieu ambiant et le substrat. Il serait intéressant de conduire une étude similaire avec un substrat diélectrique d’indice plus élevé ou un substrat métallique.

On s’est ensuite naturellement orienté vers la modélisation de systèmes concrets plus complexes, déjà étudiés théoriquement ou expérimentalement. On a choisi deux métasurfaces représentant de réels défis de modélisation, l’une faite de nanocubes métalliques couplés à un film métallique, l’autre faite de trous circulaires dans une couche de semi-conducteur à fort indice. Les résultats sont apparus très encourageants. Dans le cas du nanocube, on a été capable de prédire quantitativement l’absorption d’une surface péri-

dique infinie ainsi que la diffusion dans un ensemble désordonné de 7 particules. Dans le cas de la membrane de semi-conducteur perforée, on a pu reproduire les motifs complexes des cartes de champ et diagrammes de rayonnement dans l'espace libre et dans les modes guidés rencontrés dans le problème de l'émission d'une source ponctuelle au milieu d'un ensemble dense de 33 trous.

L'étude de ces systèmes est encore en cours et une optimisation des différents paramètres utilisés est très certainement possible pour réduire davantage les erreurs observées. Parmi les pistes à envisager, on retrouve évidemment toutes celles évoquées en conclusion du chapitre 2. On a d'ailleurs pour la première fois essayé de distribuer les sources d'apprentissage à différentes distances de la particule (nanocube) - et même d'utiliser des ondes planes - pour s'assurer d'avoir une GPM habillée aussi performante dans les interactions en champ proche que dans celles en champ plus lointain. L'effet de ce choix est à étudier plus rigoureusement. D'autres pistes viennent naturellement s'ajouter à celles déjà évoquées du fait de l'apprentissage en milieu stratifié. Pour les sources d'apprentissage, on peut par exemple envisager d'ajuster leurs amplitudes en fonction du milieu où elles se trouvent et de leur distance aux interfaces pour s'assurer que le champ qu'elles génèrent au niveau de la particule soit toujours le même, ceci afin d'avoir des contributions équilibrées. Pour les points d'apprentissage, outre l'influence de leur distance à la particule, on pourrait s'intéresser à celle de leur répartition dans les différentes strates. Il faudrait en effet peut-être faire varier leur densité en fonction de l'indice du milieu dans lequel ils se trouvent. Pour les dipôles numériques, il semble très intéressant d'explorer la possibilité qu'offre la méthode de la GPM habillée de disposer des dipôles numériques dans différentes couches du milieu stratifié.

Il reste également bien sûr à modéliser des systèmes réellement étendus, avec un grand nombre de particules, sans forcément chercher à se comparer à une référence. Il serait à cette occasion utile d'évaluer les performances de la méthode de la GPM habillée en termes de ressources de calcul utilisées, comme il l'a été fait à la fin du chapitre 3 pour la GPM classique. Naturellement, on s'attend à ce que l'erreur initiale ne se propage pas non plus avec la GPM habillée. Le calcul semi-analytique incontournable des tenseurs de Green totaux dans le milieu stratifié peut en revanche limiter la méthode en termes de mémoire utilisée et de temps de calcul. Comme les dipôles numériques d'une même particule n'interagissent plus, il y a un peu moins d'interactions à traiter que pour la GPM classique en milieu stratifié, mais ce gain devient très négligeable pour des grands nombres de particules. Pour les applications de type métasurfaces, où les ensembles de

particules sont essentiellement disposés sur un même plan horizontal (monocouche), il existe cependant peut-être des moyens d'optimiser le code de diffusion multiple. En effet, on pourrait penser mettre en commun une partie des calculs de tenseurs de Green pour les dipôles numériques d'un même plan z .

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Les milieux complexes et métasurfaces à base de nanoparticules résonantes sont des systèmes qui pourraient avoir un fort impact scientifique et technologique en photonique et plasmonique dans un futur proche. S’il est maintenant possible de les fabriquer à relativement grande échelle et bas coût, leur étude et leur déploiement semblent pour l’instant freinés, en grande partie à cause du manque d’outils de modélisation disponibles. Pour cause, dès lors que les particules considérées sont non-sphériques et leur disposition non-périodique, modéliser de tels systèmes est un vrai défi qui s’explique par l’aspect multi-échelle du problème. D’un côté, il faut être capable de traiter des ensembles contenant un grand nombre de particules et de décrire leurs interactions sur de grandes distances comparé à la longueur d’onde, via l’espace libre ou des modes guidés. De l’autre côté, on doit être en mesure de prendre en compte les phénomènes optiques à l’échelle de la particule individuelle, lorsque celle-ci interagit en champ proche avec d’autres particules, des interfaces ou une source de lumière localisée. Les méthodes rigoureuses comme la FEM ou la DDA vérifient ce dernier point mais ne permettent pas de traiter de grand ensembles. Inversement, les méthodes reposant sur la matrice T , très utilisées dans les problèmes de diffusion multiple dans de grand ensembles, sont limitées lorsqu’il faut décrire des interactions en champ proche.

Dans ce manuscrit, on a introduit une nouvelle méthode numérique, la méthode de la Matrice de Polarisabilité Globale [Bertrand *et al.*, 2020], développée dans le cadre de la thèse pour relever le défi de modélisation présenté. La méthode consiste à trouver un petit ensemble d’éléments polarisables fictifs – les “dipôles numériques” – qui reproduise le champ diffusé par une particule arbitraire pour n’importe quelle excitation (en champ proche ou en champ lointain). L’ensemble de dipôles numériques est associé à une matrice de polarisabilité globale (GPM) qui est spatialement non-locale. Pour un même nombre d’éléments N_d , cette description offre plus de degrés de liberté $((6N_d)^2)$ que des dipôles physiques $(6N_d)$. C’est ce point fondamental qui doit permettre de reproduire quantitativement le champ proche diffusé tout en limitant la charge de calcul nécessaire. La GPM d’une particule est déterminée en résolvant un problème inverse. L’ensemble d’apprentissage, qui contient les données du problème inverse, est construit grâce à des simulations

externes où la particule est soumise à une multitude d'excitations indépendantes. Ces simulations peuvent être réalisées avec n'importe quel solveur des équations de Maxwell. Cette étape demande un effort de calcul initial important, qui doit de plus être renouvelé s'il y a changement de la forme de la particule, de son indice de réfraction, de celui du milieu ambiant, ou de la fréquence. Cela dit, une fois que l'ensemble d'apprentissage est constitué, la GPM est calculée très rapidement et encapsule toutes les propriétés de diffusion de la particule, à la manière de la matrice T. Ainsi, elle peut ensuite être utilisée pour décrire efficacement la diffusion par la particule dans n'importe quelle orientation et pour n'importe quelle excitation à la fréquence de l'apprentissage, y compris dans des milieux stratifiés avec un nombre arbitraire d'interfaces. Grâce au nombre réduit de dipôles numériques et à l'efficacité du calcul du tenseur de Green, elle peut surtout être utilisée pour résoudre des problèmes de diffusion multiple dans de grands ensembles, y compris lorsque des particules se trouvent proches les unes des autres, d'interfaces planes, ou de sources de lumière localisées.

Dans le chapitre 2, on a validé la méthode GPM avec l'exemple d'un cylindre diélectrique à fort indice et haut rapport de forme. On a montré qu'une fois la GPM calculée, la diffusion par la particule pouvait en effet être prédite quantitativement pour des sources arbitraires (sources ponctuelles y compris en champ proche, ondes planes), en particulier son champ proche. Toujours avec cet exemple, on a confirmé dans le chapitre 3 qu'une telle représentation de la particule, relativement légère et valide en champ proche, permettait ensuite de résoudre des problèmes de diffusion multiple dans des ensembles de particules, y compris dans les cas critiques où l'ensemble est très dense et où des particules se trouvent proches d'une interface ou d'une source de lumière localisée. Ces observations ont ensuite été prolongées aux cas des grands ensembles de plusieurs centaines de particules, qu'il a été possible de traiter sur une station de calcul standard et dont l'étude a permis de démontrer que l'erreur sur la reproduction du champ diffusé par la particule individuelle ne se propageait pas, un point essentiel pour légitimer le déploiement de la méthode GPM. Pour finir, dans le chapitre 4, on a introduit la notion de GPM habillée [Bertrand *et al.*, en préparation], une généralisation de la GPM initiale qui permet de traiter les cas extrêmes où des particules sont directement en contact avec des interfaces. Cette nouvelle implémentation, pas si différente de la GPM classique mais essentielle pour l'étude des systèmes de type métasurfaces, a été testée avec 3 exemples différents : un parallélépipède diélectrique sur une interface air-verre, un nanocube métallique couplé à un substrat métallique, et un trou d'air dans une membrane diélectrique à fort indice. Les

résultats se sont montrés très encourageants puisque, dans chaque cas, on a pu utiliser la GPM habillée pour prédire quantitativement des comportements collectifs. En somme, la méthode GPM ne demande qu'à être utilisée pour modéliser des systèmes complexes réels, par exemple des milieux complexes pour l'optique mésoscopique ou bien encore des métasurfaces colloïdales.

Optimisation de la méthode pour une particule

Il ressort de tous les tests effectués que le point central de la méthode GPM est la résolution du problème inverse initial. En effet, qu'elle soit habillée ou classique, on comprend qu'il est essentiel d'optimiser la GPM de la particule avant de l'utiliser dans un cadre de diffusion multiple. En pratique, étudier un système précis pour une application donnée permet de fixer certains paramètres avant d'optimiser cette résolution. Premièrement, le nombre de particules dans le système à modéliser et la quantité de mémoire disponible donnent une idée du nombre maximal N_d de dipôles numériques que l'on a à notre disposition pour représenter au mieux la particule d'intérêt. Deuxièmement, la séparation moyenne (ou minimale) entre les particules du système fixe le choix de la surface d'apprentissage (essentiellement sa distance à la particule d_1). On peut alors énoncer le problème ainsi : Comment minimiser l'erreur sur la densité d'énergie électromagnétique diffusée sur la surface d'apprentissage avec N_d dipôles numériques à notre disposition ?

Pour répondre à cette question, le premier levier d'action à étudier est sans doute la disposition des dipôles numériques. Il est très aisé de conduire des tests sur ce paramètre, le calcul de la GPM ne nécessitant que quelques secondes une fois l'ensemble défini. Toutes les dispositions présentées dans ce manuscrit sont le fruit de premières intuitions et de raisonnements physiques sur les résonances des différentes particules. On pourrait envisager une approche radicalement opposée, basée sur des méthodes d'optimisation sophistiquées [Beghou *et al.*, 2009; Koyama *et al.*, 2018], par exemple avec un algorithme génétique. Cette approche pourrait être très efficace dans une logique de performance pure, mais aussi amener une meilleure compréhension sur le placement des dipôles numériques à adopter en fonction de la particule. Il serait par exemple intéressant de voir si de tels algorithmes auraient tendance à privilégier une répartition des dipôles numériques sur le squelette topologique de la particule. Des travaux suggèrent en effet que cette disposition serait particulièrement adaptée [Lamprianidis, 2021]. Il y a enfin fort à parier que l'on gagnerait à s'inspirer des travaux sur les GMT et des règles générales sur le placement des sources fictives qu'ils ont permis de dégager [Hafner, 1990].

Nanoparticules complexes

On peut se demander quelles sont les limites de la méthode en termes de complexité de la particule à modéliser. Au travers des quatre particules très différentes étudiées dans ce manuscrit, on a vu que l'utilisation de la FEM pour l'apprentissage offrait une grande flexibilité dans l'utilisation de la méthode. Il serait intéressant d'étudier de nouvelles particules pour pousser le curseur encore plus loin, comme des particules coeur-coquille [Oldenburg *et al.*, 1998]. De la même manière, on pourrait exploiter la flexibilité offerte par la forme arbitraire de la surface d'apprentissage. Un exemple de test allant dans ce sens serait l'étude du champ proche diffusé dans la partie centrale de particules en forme de « U », qui possèdent des résonances de type dipolaire magnétique très fortes [Varault *et al.*, 2013]. Ce genre de particules concaves est très rarement étudié avec les autres méthodes.

Vers la modélisation de systèmes réels ?

La méthode GPM est envisagée pour développer des métasurfaces à l'apparence visuelle exotique [Vynck *et al.*, soumis]. L'utilisation de la méthode est justifiée car il est alors nécessaire de pouvoir modéliser de grands ensembles denses de particules complexes en contact avec des interfaces. Cependant, si la méthode permet de considérer quelques centaines de particule, un simple échantillon de 1 cm^2 peut déjà contenir plusieurs millions de particules. On comprend donc qu'il ne sera jamais possible de modéliser directement une telle métasurface étendue. À la place, on pourra tout de même se baser sur la modélisation d'un système plus réduit et avoir recours à des approches super-cellule, ou bien encore à des modèles théoriques pour étendre les résultats obtenus à des surfaces infinies. Ces efforts laissent cependant entrevoir la possibilité de conduire de premières validations expérimentales de la méthode. Cette application donne aussi l'occasion de parler d'une grande limitation actuelle de la méthode, à savoir son utilisation à une fréquence unique. En effet, à chaque fois que l'on veut étudier un système à une fréquence différente, on doit construire un nouvel ensemble d'apprentissage avant de calculer une nouvelle GPM. Cette étape durant quelques heures, ce point limite considérablement les perspectives de la méthode dans des applications de design. Il est bien sûr envisageable d'essayer de réduire ce temps de calcul. Dans notre cas, on pourrait par exemple utiliser les symétries de la particule pour réduire le nombre d'excitations nécessaires, ou bien encore enregistrer les matrices intermédiaires construites lors du calcul FEM pour ne pas avoir à les recalculer

lors de chaque excitation. Il existe une autre piste, plus ambitieuse, qui consisterait à coupler la méthode GPM à la théorie des modes quasi-normaux (QNMs) [Lalanne *et al.*, 2018]. On pourrait ainsi espérer obtenir une représentation numérique de la particule basée sur ses modes, que l'on pourrait donc utiliser à n'importe quelle fréquence.

Au-delà de la diffusion par des nanoparticules

Il faut finir par souligner que la portée de la méthode GPM est bien plus grande que le cadre pour lequel elle a été développée, qui est celui des milieux complexes et métasurfaces désordonnés pour la photonique et la plasmonique. On a par exemple montré qu'elle pouvait aussi être appliquée très efficacement à des systèmes périodiques. Cette complémentarité pourrait par exemple stimuler de nouveaux efforts sur la compréhension des conséquences d'une rupture de la périodicité dans les métasurfaces, que cette rupture soit voulue ou bien causée par des défauts de fabrication [Alu *et Engheta*, 2010]. Par ailleurs, la méthode GPM est une méthode de modélisation électromagnétique de la diffusion par des particules au sens large, sans restriction sur la taille des particules et la partie du spectre considérés. On pourrait donc tout à fait utiliser la méthode GPM pour modéliser des systèmes complètement différents. La méthode de la matrice T et la DDA ont par exemple toutes deux déjà été utilisées pour modéliser la diffusion de la lumière par des globules rouges [Nilsson *et al.*, 1998; Yurkin *et al.*, 2005]. Pour pousser le raisonnement encore plus loin, on pourrait même imaginer exploiter la grande généralité du concept de dipôles numériques pour décrire des systèmes sans particules, comme des surfaces rugueuses.

Benchmark et déploiement dans la communauté scientifique

Puisqu'on vient de les évoquer, il faut souligner qu'il serait également très intéressant de se comparer aux autres méthodes de modélisation de la diffusion de la lumière. En effet, un benchmark approfondi sur différents types de particules et pour différentes applications pourrait achever de valider la méthode GPM et apporter un nouvel éclairage sur les avantages et inconvénients des différents codes. Un indicateur intéressant serait la précision obtenue en fonction du nombre d'éléments et de degrés de liberté utilisés. Il est d'ores et déjà prévu de diffuser le code de la méthode GPM sur le web afin que quiconque puisse l'utiliser à terme. Le code en accès libre pourrait même être accompagné d'une plateforme collaborative dédiée au développement d'un catalogue de GPM associées à différents problèmes.

BIBLIOGRAPHIE

SCATTPORT (Light Scattering Information Portal), voir www.scattport.org.

COMSOL Multiphysics 5.4, voir www.comsol.com.

MATLAB 2018a, voir www.mathworks.com.

DDSCAT 7.3, voir www.ddscat.wikidot.com.

Ahmadivand, A., Sinha, R. et Pala, N. : Resonance coupling in plasmonic nanomatryoshka homo-and heterodimers. *AIP Adv.*, 6(6):065102, 2016.

Akselrod, G. M., Huang, J., Hoang, T. B., Bowen, P. T., Su, L., Smith, D. R. et Mikkelsen, M. H. : Large-area metasurface perfect absorbers from visible to near-infrared. *Adv. Mater.*, 27(48):8028–8034, 2015.

Alu, A. et Engheta, N. : Effect of small random disorders and imperfections on the performance of arrays of plasmonic nanoparticles. *New J. Phys.*, 12(1):013015, 2010.

Azad, A. K., Kort-Kamp, W. J., Sykora, M., Weisse-Bernstein, N. R., Luk, T. S., Taylor, A. J., Dalvit, D. A. et Chen, H.-T. : Metasurface broadband solar absorber. *Sci. Rep.*, 6(1):1–6, 2016.

Bakushinsky, A. et Goncharsky, A. : *Ill-posed problems : theory and applications*, volume 301. Springer Science & Business Media, 2012.

Balanis, C. A. : *Antenna theory : analysis and design*. John Wiley & Sons, 2016.

Barata, J. C. A. et Hussein, M. S. : The Moore–Penrose pseudoinverse : A tutorial review of the theory. *Braz. J. Phys.*, 42(1-2):146–165, 2012.

Barnes, W. L., Dereux, A. et Ebbesen, T. W. : Surface plasmon subwavelength optics. *Nature*, 424(6950):824–830, 2003.

Baron, A., Aradian, A., Ponsinet, V. et Barois, P. : Self-assembled optical metamaterials. *Opt. Laser Technol.*, 82:94–100, 2016.

-
- Barrett, R., Berry, M., Chan, T. F., Demmel, J., Donato, J., Dongarra, J., Eijkhout, V., Pozo, R., Romine, C. et Van der Vorst, H. : *Templates for the solution of linear systems : building blocks for iterative methods*. SIAM, 1994.
- Beghou, L., Liu, B., Pichon, L. et Costa, F. : Synthesis of equivalent 3-D models from near field measurements – Application to the EMC of power printed circuit boards. *IEEE Trans. Magn.*, 45(3):1650–1653, 2009.
- Benelli, G. : *Development of the fictitious sources method for stratified media and design of resonant cavities antennas*. Thèse de doctorat, Université Paul Cézanne-Aix-Marseille III, 2007.
- Bertrand, M., Devilez, A., Hugonin, J.-P., Lalanne, P. et Vynck, K. : Global polarizability matrix method for efficient modeling of light scattering by dense ensembles of non-spherical particles in stratified media. *J. Opt. Soc. Am. A*, 37(1):70–83, 2020.
- Bertrand, M., Hugonin, J.-P., Lalanne, P. et Vynck, K. : Efficient modeling of disordered photonic and plasmonic metasurfaces with the global polarizability matrix method. en préparation.
- Bohren, C. F. et Huffman, D. R. : *Absorption and scattering of light by small particles*. John Wiley & Sons, 2008.
- Born, M. : Quantenmechanik der stoßvorgänge. *Z. Phys.*, 38(11):803–827, 1926.
- Bringi, V. et Seliga, T. : Surface currents and near zone fields. *In Acoustic, Electromagnetic and Elastic Wave Scattering-Focus on the T-Matrix Approach*, pages 79–90, 1980.
- Buffa, A. et Hiptmair, R. : Galerkin boundary element methods for electromagnetic scattering. *In Topics in computational wave propagation*, pages 83–124. Springer, 2003.
- Castanié, E., Vincent, R., Pierrat, R. et Carminati, R. : Absorption by an optical dipole antenna in a structured environment. *Int. J. Opt.*, 2012:452047, 2012.
- Chardon, G., Cohen, A. et Daudet, L. : Sampling and reconstruction of solutions to the Helmholtz equation. *Sampl. Theory Signal Image Process.*, 13(1):67–90, 2014.
- Chaumet, P. C. et Nieto-Vesperinas, M. : Time-averaged total force on a dipolar sphere in an electromagnetic field. *Opt. Lett.*, 25(15):1065–1067, 2000.

-
- Chaumet, P. C., Rahmani, A. et Bryant, G. W. : Generalization of the coupled dipole method to periodic structures. *Phys. Rev. B*, 67(16):165404, 2003.
- Chaumet, P. C. et Sentenac, A. : Simulation of light scattering by multilayer cross-gratings with the coupled dipole method. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 110(6-7):409–414, 2009.
- Chaumet, P. C., Sentenac, A. et Rahmani, A. : Coupled dipole method for scatterers with large permittivity. *Phys. Rev. E*, 70(3):036606, 2004.
- Chung, T., Lee, S.-Y., Song, E. Y., Chun, H. et Lee, B. : Plasmonic nanostructures for nano-scale bio-sensing. *Sensors*, 11(11):10907–10929, 2011.
- Clebsch, A. : Ueber die reflexion an einer kugelfläche. 1863.
- Cruz, D. F., Fontes, C. M., Semeniak, D., Huang, J., Hucknall, A., Chilkoti, A. et Mikkelsen, M. H. : Ultrabright fluorescence readout of an inkjet-printed immunoassay using plasmonic nanogap cavities. *Nano Lett.*, 20(6):4330–4336, 2020.
- Debye, P. : Der lichtdruck auf kugeln von beliebigem material. *Ann. Phys.*, 335(11):57–136, 1909.
- Ding, F., Wang, Z., He, S., Shalaev, V. M. et Kildishev, A. V. : Broadband high-efficiency half-wave plate : a supercell-based plasmonic metasurface approach. *ACS Nano*, 9(4):4111–4119, 2015.
- Doicu, A., Eremin, Y. A. et Wriedt, T. : Convergence of the T-matrix method for light scattering from a particle on or near a surface. *Opt. Commun.*, 159(4-6):266–277, 1999.
- Doicu, A. et Wriedt, T. : Extended boundary condition method with multipole sources located in the complex plane. *Opt. Commun.*, 139(1-3):85–91, 1997.
- Doicu, A., Eremin, Y., Efremenko, D. S. et Trautmann, T. : Methods with discrete sources for electromagnetic scattering by large axisymmetric particles with extreme geometries. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 164:137–146, 2015.
- Doicu, A. et Wriedt, T. : Near-field computation using the null-field method. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 111(3):466–473, 2010.

-
- Doicu, A., Wriedt, T. et Eremin, Y. A. : *Light scattering by systems of particles : null-field method with discrete sources : theory and programs*, volume 124. Springer, 2006.
- Donie, Y. J., Theobald, D., Moghadamzadeh, S., Mertens, A., Hossain, I. M., Paetzold, U. W., Lemmer, U. et Gomard, G. : Planarized and compact light scattering layers based on disordered titania nanopillars for light extraction in organic light emitting diodes. *Adv. Opt. Mater.*, 2020.
- Draine, B. T. : The discrete-dipole approximation and its application to interstellar graphite grains. *Astrophys. J.*, 333:848–872, 1988.
- Draine, B. T. et Flatau, P. J. : Discrete-dipole approximation for scattering calculations. *J. Opt. Soc. Am. A*, 11(4):1491–1499, 1994.
- Draine, B. T. et Goodman, J. : Beyond Clausius-Mossotti : Wave propagation on a polarizable point lattice and the discrete dipole approximation. *Astrophys. J.*, 405:685–697, 1993.
- Egel, A., Eremin, Y., Wriedt, T., Theobald, D., Lemmer, U. et Gomard, G. : Extending the applicability of the T-matrix method to light scattering by flat particles on a substrate via truncation of Sommerfeld integrals. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 202:279–285, 2017a.
- Egel, A., Kettlitz, S. W. et Lemmer, U. : Efficient evaluation of Sommerfeld integrals for the optical simulation of many scattering particles in planarly layered media. *J. Opt. Soc. Am. A*, 33(4):698–706, 2016a.
- Egel, A., Pattelli, L., Mazzamuto, G., Wiersma, D. S. et Lemmer, U. : CELES : CUDA-accelerated simulation of electromagnetic scattering by large ensembles of spheres. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 199:103–110, 2017b.
- Egel, A., Theobald, D., Donie, Y., Lemmer, U. et Gomard, G. : Light scattering by oblate particles near planar interfaces : on the validity of the T-matrix approach. *Opt. Express*, 24(22):25154–25168, 2016b.
- Eremin, Y. A., Orlov, N. et Sveshnikov, A. : Models of electromagnetic scattering problems based on discrete sources method. *In Generalized multipole techniques for electromagnetic and light scattering*, pages 39–80. Elsevier, 1999.

-
- Ewald, P. P. : Die berechnung optischer und elektrostatischer gitterpotentiale. *Ann. Phys.*, 369(3):253–287, 1921.
- Fan, J. A., Wu, C., Bao, K., Bao, J., Bardhan, R., Halas, N. J., Manoharan, V. N., Nordlander, P., Shvets, G. et Capasso, F. : Self-assembled plasmonic nanoparticle clusters. *Science*, 328(5982):1135–1138, 2010.
- Feynman, R. P. : There’s plenty of room at the bottom. *Engineering and Science*, 23(5):22–36, 1960.
- Foldy, L. L. : The multiple scattering of waves. I. General theory of isotropic scattering by randomly distributed scatterers. *Phys. Rev.*, 67(3-4):107, 1945.
- Forestiere, C., Iadarola, G., Dal Negro, L. et Miano, G. : Near-field calculation based on the T-matrix method with discrete sources. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 112(14):2384–2394, 2011.
- Fruhnert, M., Fernandez-Corbaton, I., Yannopapas, V. et Rockstuhl, C. : Computing the T-matrix of a scattering object with multiple plane wave illuminations. *Beilstein J. Nanotechnol.*, 8(1):614–626, 2017.
- Fu, Y. H., Kuznetsov, A. I., Miroshnichenko, A. E., Yu, Y. F. et Luk’yanchuk, B. : Directional visible light scattering by silicon nanoparticles. *Nat. Commun.*, 4:1527, 2013.
- Fusella, M. A., Saramak, R., Bushati, R., Menon, V. M., Weaver, M. S., Thompson, N. J. et Brown, J. J. : Plasmonic enhancement of stability and brightness in organic light-emitting devices. *Nature*, 585(7825):379–382, 2020.
- Gallinet, B., Butet, J. et Martin, O. J. : Numerical methods for nanophotonics : standard problems and future challenges. *Laser Photonics Rev.*, 9(6):577–603, 2015.
- Goedecke, G. H. et O’Brien, S. G. : Scattering by irregular inhomogeneous particles via the digitized Green’s function algorithm. *Appl. Opt.*, 27(12):2431–2438, 1988.
- Gomard, G., Preinfalk, J. B., Egel, A. et Lemmer, U. : Photon management in solution-processed organic light-emitting diodes : a review of light outcoupling micro-and nano-structures. *J. Photonics Energy*, 6(3):030901, 2016.

-
- Green, M. A. et Keevers, M. J. : Optical properties of intrinsic silicon at 300 K. *Prog. Photovolt.*, 3(3):189–192, 1995.
- Gumerov, N. A. et Duraiswami, R. : Computation of scattering from clusters of spheres using the fast multipole method. *J. Acoust. Soc. Am.*, 117(4):1744–1761, 2005.
- Hafner, C. : *Beiträge zur Berechnung der Ausbreitung elektromagnetischer Wellen in zylindrischen Strukturen mit Hilfe des »Point-Matching-Verfahrens«*. Thèse de doctorat, ETH Zurich, 1980.
- Hafner, C. : *Generalized multipole technique for computational electromagnetics*. Artech House, 1990.
- Ham, F. et Segall, B. : Energy bands in periodic lattices – Green’s function method. *Phys. Rev.*, 124(6):1786, 1961.
- Hansen, P. C. : Regularization tools version 4.0 for Matlab 7.3. *Numerical algorithms*, 46(2):189–194, 2007.
- Harrington, R. F. : *Field computation by moment methods*. Wiley-IEEE Press, 1993.
- Hoang, T. B., Akselrod, G. M., Argyropoulos, C., Huang, J., Smith, D. R. et Mikelsen, M. H. : Ultrafast spontaneous emission source using plasmonic nanoantennas. *Nat. Commun.*, 6(1):1–7, 2015.
- Hsu, C. W., Zhen, B., Qiu, W., Shapira, O., DeLacy, B. G., Joannopoulos, J. D. et Soljačić, M. : Transparent displays enabled by resonant nanoparticle scattering. *Nat. Commun.*, 5(1):1–6, 2014.
- Hugonin, J.-P., Besbes, M. et Ben-Abdallah, P. : Photovoltaics : Light energy harvesting with plasmonic nanoparticle networks. In *Nanotechnology for Energy Sustainability*, volume 1, pages 83–100. Wiley, 2017.
- Ikuno, H. et Yasuura, K. : Improved point-matching method with application to scattering from a periodic surface. *IEEE Trans. Antennas Propag.*, 21(5):657–662, 1973.
- Ishimaru, A. : *Wave Propagation and Scattering in Random Media*, volume 12. John Wiley & Sons, 1999.
- Jin, J.-M. : *The finite element method in electromagnetics*. John Wiley & Sons, 2015.

-
- Joannopoulos, J. D., Johnson, S. G., Winn, J. N. et Meade, R. D. : *Photonic Crystals : Molding the flow of light*. Princeton University Press, 2008.
- John, S. : Strong localization of photons in certain disordered dielectric superlattices. *Phys. Rev. Lett.*, 58(23):2486, 1987.
- Jouanin, A., Hugonin, J. P. et Lalanne, P. : Designer colloidal layers of disordered plasmonic nanoparticles for light extraction. *Adv. Funct. Mater.*, 26(34):6215–6223, 2016.
- Kabanikhin, S. I. : *Inverse and ill-posed problems : theory and applications*, volume 55. Walter De Gruyter, 2011.
- Kahnert, F. M. : Numerical methods in electromagnetic scattering theory. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 79:775–824, 2003.
- Kaklamani, D. I. et Anastassiou, H. T. : Aspects of the method of auxiliary sources (MAS) in computational electromagnetics. *IEEE Antennas Propag. Mag.*, 44(3):48–64, 2002.
- Kambe, K. : Theory of electron diffraction by crystals : I. Green’s function and integral equation. *Zeitschrift für Naturforschung A*, 22(4):422–431, 1967.
- Kern, A. M. et Martin, O. J. : Surface integral formulation for 3D simulations of plasmonic and high permittivity nanostructures. *J. Opt. Soc. Am. A*, 26(4):732–740, 2009.
- King, N. S., Li, Y., Ayala-Orozco, C., Brannan, T., Nordlander, P. et Halas, N. J. : Angle- and spectral-dependent light scattering from plasmonic nanocups. *ACS Nano*, 5(9):7254–7262, 2011.
- Koyama, S., Chardon, G. et Daudet, L. : Joint source and sensor placement for sound field control based on empirical interpolation method. *In 2018 IEEE International Conference on Acoustics, Speech and Signal Processing (ICASSP)*, pages 501–505. IEEE, 2018.
- Kristensson, G. : Electromagnetic scattering from buried inhomogeneities—a general three-dimensional formalism. *J. Appl. Phys.*, 51(7):3486–3500, 1980.

-
- Kuznetsov, A. I., Miroshnichenko, A. E., Brongersma, M. L., Kivshar, Y. S. et Luk'yan-chuk, B. : Optically resonant dielectric nanostructures. *Science*, 354(6314), 2016.
- Lagendijk, A. et Van Tiggelen, B. A. : Resonant multiple scattering of light. *Phys. Rep.*, 270(3):143–215, 1996.
- Lakhtakia, A. et Mulholland, G. W. : On two numerical techniques for light scattering by dielectric agglomerated structures. *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.*, 98(6):699, 1993.
- Lal, S., Link, S. et Halas, N. J. : Nano-optics from sensing to waveguiding. *Nat. Photonics*, 1(11):641–648, 2007.
- Lalanne, P., Yan, W., Vynck, K., Sauvan, C. et Hugonin, J.-P. : Light interaction with photonic and plasmonic resonances. *Laser Photonics Rev.*, 12(5):1700113, 2018.
- Lamprianidis, A. G. : Overcoming the Rayleigh hypothesis with sources distributed on the topological skeleton of the scatterer : a numerical demonstration of the method. *In Bremen Zoom Workshop on Light Scattering 2021*, 2021.
- Langlais, M., Hugonin, J.-P., Besbes, M. et Ben-Abdallah, P. : Cooperative electromagnetic interactions between nanoparticles for solar energy harvesting. *Opt. Express*, 22(103):A577–A588, 2014.
- Lassiter, J. B., McGuire, F., Mock, J. J., Ciraci, C., Hill, R. T., Wiley, B. J., Chilkoti, A. et Smith, D. R. : Plasmonic waveguide modes of film-coupled metallic nanocubes. *Nano Lett.*, 13(12):5866–5872, 2013.
- Lax, M. : Multiple scattering of waves. *Rev. Mod. Phys.*, 23(4):287, 1951.
- Lax, M. : Multiple scattering of waves. II. The effective field in dense systems. *Phys. Rev.*, 85(4):621, 1952.
- Leseur, O., Pierrat, R. et Carminati, R. : High-density hyperuniform materials can be transparent. *Optica*, 3(7):763–767, 2016.
- Li, L., Wu, S., Li, L., Zhou, Z., Ding, H., Xiao, C. et Li, X. : Gap-mode excitation, manipulation, and refractive-index sensing application by gold nanocube arrays. *Nanoscale*, 11(12):5467–5473, 2019.

-
- Liu, A., Rahmani, A., Bryant, G. W., Richter, L. J. et Stranick, S. J. : Modeling illumination-mode near-field optical microscopy of Au nanoparticles. *J. Opt. Soc. Am. A*, 18(3):704–716, 2001.
- Liu, M., Zhao, C., Wang, B. et Fang, X. : Role of short-range order in manipulating light absorption in disordered media. *J. Opt. Soc. Am. B*, 35(3):504–513, 2018.
- Loewen, E. G. et Popov, E. : *Diffraction gratings and applications*. CRC Press, 2018.
- Lorenz, L. : *Lysbevægelsen i og uden for en af plane Lysbølger belyst Kugle*. na, 1890.
- Ludwig, A. : The generalized multipole technique. *Comput. Phys. Commun.*, 68(1-3):306–314, 1991.
- Mackowski, D. W. : Discrete dipole moment method for calculation of the T matrix for nonspherical particles. *J. Opt. Soc. Am. A*, 19(5):881–893, 2002.
- Mackowski, D. W. et Mishchenko, M. I. : Calculation of the T matrix and the scattering matrix for ensembles of spheres. *J. Opt. Soc. Am. A*, 13(11):2266–2278, 1996.
- Maradudin, A. A. : *Light scattering and nanoscale surface roughness*. Springer Science & Business Media, 2010.
- Markkanen, J. et Yuffa, A. J. : Fast superposition T-matrix solution for clusters with arbitrarily-shaped constituent particles. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 189:181–188, 2017.
- Martin, T. : T-matrix method for closely adjacent obstacles. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 234:40–46, 2019.
- Mazzucco, S., Geuquet, N., Ye, J., Stéphan, O., Van Roy, W., Van Dorpe, P., Henrard, L. et Kociak, M. : Ultralocal modification of surface plasmons properties in silver nanocubes. *Nano Lett.*, 12(3):1288–1294, 2012.
- Meinzer, N., Barnes, W. L. et Hooper, I. R. : Plasmonic meta-atoms and metasurfaces. *Nat. Photonics*, 8(12):889, 2014.
- Mie, G. : Beiträge zur optik trüber medien, speziell kolloidaler metallösungen. *Ann. Phys.*, 330(3):377–445, 1908.

-
- Mirin, N. A. et Halas, N. J. : Light-bending nanoparticles. *Nano Lett.*, 9(3):1255–1259, 2009.
- Miroshnichenko, A. E., Evlyukhin, A. B., Kivshar, Y. S. et Chichkov, B. N. : Substrate-induced resonant magnetoelectric effects for dielectric nanoparticles. *ACS Photonics*, 2(10):1423–1428, 2015.
- Mishchenko, M. I. : Electromagnetic scattering by a fixed finite object embedded in an absorbing medium. *Opt. Express*, 15(20):13188–13202, 2007.
- Mishchenko, M. I., Dlugach, J. M., Yurkin, M. A., Bi, L., Cairns, B., Liu, L., Panetta, R. L., Travis, L. D., Yang, P. et Zakharova, N. T. : First-principles modeling of electromagnetic scattering by discrete and discretely heterogeneous random media. *Phys. Rep.*, 632:1–75, 2016.
- Mishchenko, M. I., Travis, L. D. et Lacis, A. A. : *Multiple scattering of light by particles : radiative transfer and coherent backscattering*. Cambridge University Press, 2006.
- Mishchenko, M. I., Videen, G., Babenko, V. A., Khlebtsov, N. G. et Wriedt, T. : T-matrix theory of electromagnetic scattering by particles and its applications : a comprehensive reference database. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 88(1-3):357–406, 2004.
- Mock, J., Barbic, M., Smith, D., Schultz, D. et Schultz, S. : Shape effects in plasmon resonance of individual colloidal silver nanoparticles. *J. Chem. Phys.*, 116(15):6755–6759, 2002.
- Moharam, M. et Gaylord, T. : Rigorous coupled-wave analysis of planar-grating diffraction. *J. Opt. Soc. Am.*, 71(7):811–818, 1981.
- Monk, P. et others : *Finite element methods for Maxwell's equations*. Oxford University Press, 2003.
- Moreau, A., Ciraci, C., Mock, J. J., Hill, R. T., Wang, Q., Wiley, B. J., Chilkoti, A. et Smith, D. R. : Controlled-reflectance surfaces with film-coupled colloidal nanoantennas. *Nature*, 492(7427):86–89, 2012.
- Moreno, F., Saiz, J. et González, F. : Light scattering by particles on substrates. Theory and experiments. In *Light scattering and nanoscale surface roughness*, pages 305–340. Springer, 2007.

-
- Morozov, V. A. : *Methods for solving incorrectly posed problems*. Springer Science & Business Media, 2012.
- Morse, P. M. et Feshbach, H. : Methods of theoretical physics. *Am. J. Phys.*, 22(6):410–413, 1954.
- Mühlig, S., Rockstuhl, C., Yannopapas, V., Bürgi, T., Shalkevich, N. et Lederer, F. : Optical properties of a fabricated self-assembled bottom-up bulk metamaterial. *Opt. Express*, 19(10):9607–9616, 2011.
- Ni, X., Ishii, S., Kildishev, A. V. et Shalaev, V. M. : Ultra-thin, planar, Babinet-inverted plasmonic metalenses. *Light Sci. Appl.*, 2(4):e72, 2013.
- Nilsson, A. M., Alsholm, P., Karlsson, A. et Andersson-Engels, S. : T-matrix computations of light scattering by red blood cells. *Appl. Opt.*, 37(13):2735–2748, 1998.
- Noginov, M., Zhu, G., Belgrave, A., Bakker, R., Shalaev, V., Narimanov, E., Stout, S., Herz, E., Suteewong, T. et Wiesner, U. : Demonstration of a spaser-based nanolaser. *Nature*, 460(7259):1110–1112, 2009.
- Novotny, L. et Hecht, B. : *Principles of nano-optics*. Cambridge University Press, 2012.
- Oldenburg, S., Averitt, R., Westcott, S. et Halas, N. : Nanoengineering of optical resonances. *Chem. Phys. Lett.*, 288(2-4):243–247, 1998.
- Palik, E. D. : *Handbook of optical constants of solids*, volume 3. Academic Press, 1998.
- Paulus, M., Gay-Balmaz, P. et Martin, O. J. : Accurate and efficient computation of the Green’s tensor for stratified media. *Phys. Rev. E*, 62(4):5797, 2000.
- Peterson, B. et Ström, S. : T matrix for electromagnetic scattering from an arbitrary number of scatterers and representations of E (3). *Phys. Rev. D*, 8(10):3661, 1973.
- Ponsinet, V., Barois, P., Gali, S. M., Richetti, P., Salmon, J.-B., Vallecchi, A., Albani, M., Le Beulze, A., Gomez-Grana, S., Duguet, E. et others : Resonant isotropic optical magnetism of plasmonic nanoclusters in visible light. *Phys. Rev. B*, 92(22):220414, 2015.
- Prodan, E., Radloff, C., Halas, N. J. et Nordlander, P. : A hybridization model for the plasmon response of complex nanostructures. *Science*, 302(5644):419–422, 2003.

-
- Purcell, E. M. et Pennypacker, C. R. : Scattering and absorption of light by nonspherical dielectric grains. *Astrophys. J.*, 186:705–714, 1973.
- Riboli, F., Caselli, N., Vignolini, S., Intonti, F., Vynck, K., Barthelemy, P., Gerardino, A., Balet, L., Li, L. H., Fiore, A. et autres : Engineering of light confinement in strongly scattering disordered media. *Nat. Mater.*, 13(7):720–725, 2014.
- Rozin, M. J., Rosen, D. A., Dill, T. J. et Tao, A. R. : Colloidal metasurfaces displaying near-ideal and tunable light absorbance in the infrared. *Nat. Commun.*, 6(1):1–7, 2015.
- Sannomiya, T. et Hafner, C. : Multiple multipole program modelling for nano plasmonic sensors. *J. Comput. Theor. Nanosci.*, 7(8):1587–1595, 2010.
- Sau, T. K. et Rogach, A. L. : Nonspherical noble metal nanoparticles : colloid-chemical synthesis and morphology control. *Adv. Mater.*, 22(16):1781–1804, 2010.
- Schebarchov, D., Le Ru, E., Grand, J. et Auguié, B. : Mind the gap : testing the Rayleigh hypothesis in T-matrix calculations with adjacent spheroids. *Opt. Express*, 27(24):35750–35760, 2019.
- Schuller, J. A., Barnard, E. S., Cai, W., Jun, Y. C., White, J. S. et Brongersma, M. L. : Plasmonics for extreme light concentration and manipulation. *Nat. Mater.*, 9(3):193–204, 2010.
- Shabaninezhad, M., Awan, M. et Ramakrishna, G. : Matlab package for discrete dipole approximation by graphics processing unit : Fast Fourier Transform and Biconjugate Gradient. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 262:107501, 2021.
- Shaikh, M., Kieß, S., Grégoire, M., Simon, S., Tausendfreund, A., Zimmermann, M. et Goch, G. : In-process characterization tool for optically produced sub-100-nm structures. *J. Vac. Sci. Technol. B*, 29(5):051807, 2011.
- Solís, D. M., Taboada, J. M., Obelleiro, F., Liz-Marzan, L. M. et Garcia de Abajo, F. J. : Toward ultimate nanoplasmonics modeling. *ACS Nano*, 8(8):7559–7570, 2014.
- Solís, D., Araújo, M., Landesa, L., García, S., Taboada, J. et Obelleiro, F. : MLFMA-MoM for solving the scattering of densely packed plasmonic nanoparticle assemblies. *IEEE Photon. J.*, 7(3):1–9, 2015.

-
- Soukoulis, C. M. et Wegener, M. : Past achievements and future challenges in the development of three-dimensional photonic metamaterials. *Nat. Photonics*, 5(9):523–530, 2011.
- Souza, K. S., Teixeira-Neto, E., Temperini, M. L. et dos Santos, D. P. : Interplay between near-field properties and Au nanorod cluster structure : Extending hot spots for surface-enhanced Raman scattering. *J. Braz. Chem. Soc.*, 30(12):2624–2633, 2019.
- Stewart, J. W., Vella, J. H., Li, W., Fan, S. et Mikkelsen, M. H. : Ultrafast pyroelectric photodetection with on-chip spectral filters. *Nat. Mater.*, 19(2):158–162, 2020.
- Stout, B., Auger, J.-C. et Devilez, A. : Recursive T matrix algorithm for resonant multiple scattering : applications to localized plasmon excitations. *J. Opt. Soc. Am. A*, 25(10):2549–2557, 2008.
- Stratton, J. A. : *Electromagnetic theory*, volume 33. John Wiley & Sons, 2007.
- Sun, Y. et Xia, Y. : Shape-controlled synthesis of gold and silver nanoparticles. *Science*, 298(5601):2176–2179, 2002.
- Taflove, A. et Hagness, S. C. : *Computational electrodynamics : the finite-difference time-domain method*. Artech House, 2005.
- Tai, C.-T. : *Dyadic Green functions in electromagnetic theory*. IEEE, 1994.
- Tavzarashvili, K., Hafner, C., Xudong, C., Vahldieck, R., Kakulia, D., Ghvedashvili, G. et Karkashadze, D. : Method of auxiliary sources and model-based parameter estimation for the computation of periodic structures. *J. Comput. Theor. Nanosci.*, 4(3):667–674, 2007.
- Tayeb, G. et Enoch, S. : Combined fictitious-sources–scattering-matrix method. *J. Opt. Soc. Am. A*, 21(8):1417–1423, 2004.
- Theobald, D., Egel, A., Gomard, G. et Lemmer, U. : Plane-wave coupling formalism for T-matrix simulations of light scattering by nonspherical particles. *Phys. Rev. A*, 96(3):033822, 2017.
- Traverso, A. J., Huang, J., Peyronel, T., Yang, G., Tiecke, T. G. et Mikkelsen, M. H. : Low-loss, centimeter-scale plasmonic metasurface for ultrafast optoelectronics. *Optica*, 8(2):202–207, 2021.

-
- Trompoukis, C., Massiot, I., Depauw, V., El Daif, O., Lee, K., Dmitriev, A., Gordon, I., Mertens, R. et Poortmans, J. : Disordered nanostructures by hole-mask colloidal lithography for advanced light trapping in silicon solar cells. *Opt. Express*, 24(2):A191–A201, 2016.
- Van Bladel, J. : *Singular electromagnetic fields and sources*. Clarendon Press Oxford, 1991.
- van de Hulst, H. C. : *Light scattering by small particles*. Courier Corporation, 1981.
- Varault, S., Rolly, B., Boudarham, G., Demésy, G., Stout, B. et Bonod, N. : Multipolar effects on the dipolar polarizability of magneto-electric antennas. *Opt. Express*, 21(14):16444–16454, 2013.
- Vogel, C. R. : *Computational methods for inverse problems*, volume 23. SIAM, 2002.
- Vynck, K., Burrese, M., Riboli, F. et Wiersma, D. S. : Photon management in two-dimensional disordered media. *Nat. Mater.*, 11(12):1017–1022, 2012.
- Vynck, K., Pacanowski, R., Dufay, A., Granier, X. et Lalanne, P. : Novel visual appearances by disordered metasurface design. soumis.
- Wang, H., Wu, Y., Lassiter, B., Nehl, C. L., Hafner, J. H., Nordlander, P. et Halas, N. J. : Symmetry breaking in individual plasmonic nanoparticles. *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 103(29):10856–10860, 2006.
- Waterman, P. : Matrix formulation of electromagnetic scattering. *Proc. IEEE*, 53(8):805–812, 1965.
- Wriedt, T. : *Generalized Multipole Techniques for Electromagnetic and Light Scattering*. North Holland, 1999.
- Wriedt, T., Doicu, A. et Eremin, Y. : *Acoustic and electromagnetic scattering analysis using discrete sources*. Academic Press, San Diego, 2000.
- Wriedt, T. et Eremin, Y. : *The generalized multipole technique for light scattering*. Springer, 2018.
- Xia, Y. et Halas, N. J. : Shape-controlled synthesis and surface plasmonic properties of metallic nanostructures. *MRS Bull.*, 30(5):338–348, 2005.

-
- Xu, Y.-L. : Calculation of the addition coefficients in electromagnetic multisphere-scattering theory. *J. Comput. Phys.*, 127(2):285–298, 1996.
- Yablonovitch, E. : Inhibited spontaneous emission in solid-state physics and electronics. *Phys. Rev. Lett.*, 58(20):2059, 1987.
- Yaghjian, A. D. : Electric dyadic Green’s functions in the source region. *Proc. IEEE*, 68(2):248–263, 1980.
- Yang, J., Hugonin, J.-P. et Lalanne, P. : Near-to-far field transformations for radiative and guided waves. *ACS Photonics*, 3(3):395–402, 2016.
- Yurkin, M. A. : Capabilities of the discrete dipole approximation for large particle systems. In *2016 URSI International Symposium on Electromagnetic Theory (EMTS)*, pages 386–389. IEEE, 2016.
- Yurkin, M. A. et Hoekstra, A. G. : The discrete dipole approximation : an overview and recent developments. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 106(1-3):558–589, 2007.
- Yurkin, M. A. et Hoekstra, A. G. : The discrete-dipole-approximation code ADDA : capabilities and known limitations. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 112(13):2234–2247, 2011.
- Yurkin, M. A., Semyanov, K. A., Tarasov, P. A., Chernyshev, A. V., Hoekstra, A. G. et Maltsev, V. P. : Experimental and theoretical study of light scattering by individual mature red blood cells by use of scanning flow cytometry and a discrete dipole approximation. *Appl. Opt.*, 44(25):5249–5256, 2005.
- Zhu, A. Y., Kuznetsov, A. I., Luk’yanchuk, B., Engheta, N. et Genevet, P. : Traditional and emerging materials for optical metasurfaces. *Nanophotonics*, 6(2):452–471, 2017.
- Zolla, F., Petit, R. et Cadilhac, M. : Electromagnetic theory of diffraction by a system of parallel rods : the method of fictitious sources. *J. Opt. Soc. Am. A*, 11(3):1087–1096, 1994.

