Optique sub-longueur d'onde de structures semi-conductrices hyperdopées

Clement Majorel

▶ **To cite this version:**

Clement Majorel. Optique sub-longueur d'onde de structures semi-conductrices hyperdopées. Optique [physics.optics]. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2021. Français. NNT : 2021TOU30094 . tel-03560816

HAL Id: tel-03560816
https://theses.hal.science/tel-03560816

Submitted on 7 Feb 2022

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

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par l'Université Toulouse 3 - Paul Sabatier

Présentée et soutenue par

Clément MAJOREL

Le 8 octobre 2021

Optique sub-longueur d'onde de structures semi-conductrices hyperdopées

---

Ecole doctorale : **SDM - SCIENCES DE LA MATIERE - Toulouse**

Spécialité : **Physique de la Matière**

Unité de recherche :
CEMES - Centre d'Elaboration de Matériaux et d'Etudes Structurales

Thèse dirigée par
Caroline BONAFOS et Christian GIRARD

Jury

Mme Nathalie DESTOUCHES, Rapporteure
M. Christophe DELERUE, Rapporteur
M. Pierre RENUCCI, Examinateur
M. Nicolas BONOD, Examinateur
M. Jérôme PLAIN, Examinateur
M. Peter WIECHA, Examinateur
Mme Caroline BONAFOS, Directrice de thèse
M. Christian GIRARD, Co-directeur de thèse

A ma mère,
grâce à qui j'en suis là aujourd'hui

Remerciements

Cela fait presque deux ans que je m'imagine écrire ces quelques lignes de remerciements et je réalise seulement aujourd'hui combien cette tâche est difficile. Par conséquent, j'espère n'oublier personne dans ces prochains paragraphes et faire honneur à tous ceux qui m'ont accompagné durant ces trois années.

Mon aventure au CEMES a commencé presque un an et demi avant le début de la thèse. Le jour où Christian Girard m'a choisi comme stagiaire durant mon M1, avant de poursuivre en stage de M2 et de déboucher sur ce doctorat. Je ne pourrai jamais suffisamment le remercier pour ce choix, travailler à ses côtés m'a poussé à poursuivre en thèse et je ne regrette pas cette décision. Toutes ces années de collaboration ont grandement façonné le scientifique que je suis aujourd'hui. Nos multiples discussions m'ont permis de comprendre et d'apprendre de nombreux concepts en nano-sciences mais aussi en physique générale, le tout accompagné d'anecdotes sur l'histoire des sciences. Merci pour tout le soutien et toute l'amitié dont vous avez fait preuve à mon égard.

Je remercie infiniment Peter Wiecha qui a été omniprésent depuis le début de mon stage de M2 et tout le long de la thèse. A chaque fois que j'avais des questions sur des codes, ou en physique, tu répondais super vite et toutes nos discussions furent réellement stimulantes. Merci énormément d'avoir développé et partagé pyGDM et notamment de m'avoir laissé contribuer autant que possible à son amélioration. J'aimerais aussi te remercier pour ton soutien et tes mots rassurants lorsque j'étais en plein doute (très souvent quoi), mais également d'avoir été présent durant le premier confinement, notamment sur la fin où ça devenait compliqué d'être seul dans mon petit appartement. Je garde plein de bons moments comme la SFO à Toulouse, où on a bien profité du gala de fin, ainsi que le séjour à Paris pour le GDR NACRE. Tout dernièrement ce fut le workshop à Cargèse, sûrement la semaine la plus paradisiaque de ces trois années et qui donne envie de faire de la recherche. Je suis heureux d'être le premier thésard que tu auras encadré.

Je voudrais aussi remercier ma directrice de thèse, Caroline Bonafos, d'avoir accepté de me prendre en thèse en cotutelle, sur les recommandations de Christian. Grâce à nos discussions et les quelques rares manips de MET que j'ai faites, j'ai pu entrevoir le monde de la microscopie électronique. Bien que la thèse ait pris une direction plus théorique et majoritairement optique, tu as toujours été disponible et à l'écoute dès lors que j'avais des doutes et des questions. Merci beaucoup pour tout.

Je désire également remercier Arnaud Arbouet pour les innombrables idées stimulantes et toutes ses explications, ainsi qu'Aurélien Cuche pour nos discussions et pour m'avoir permis d'utiliser son setup expérimental lorsque j'étais en stage. Je veux aussi adresser quelques mots à Vincent Paillard et à Pascal Puech qui ont été mes mentors en tant que DCE, merci beaucoup pour votre confiance durant ces deux années d'enseignement. Je tiens à remercier Jean-Marie Poumirol pour toutes les mesures FTIR sur les échantillons, ainsi que nos nombreux échanges autour de la plasmonique. Merci à Nicolas Chery pour son énorme travail de caractérisation MET et Hall des échantillons et d'avoir fourni plusieurs figures pour la thèse. Une petite pensée

à cette semaine à Mittelwihr (je suis obligé de l'écrire ici, sinon je ne me souviendrai jamais du nom), au milieu des vignobles, pour l'école thématique.

Je veux maintenant faire une petite mention spéciale aux copains qui m'ont accompagné tout le long de mon séjour au laboratoire. Pour commencer Giuseppe Mario Caruso qui fut mon premier colocataire dans le bureau C244 durant mes stages et le début de ma thèse. Nos discussions autour des jeux vidéos, des mangas et des séries étaient super (on a sûrement parlé de physique, mais cette partie là m'a moins marqué). Encore merci pour tous ces très bons moments passés ensemble notamment durant la conférence à Nice.

Je dois remercier ensuite le successeur de Giuseppe, à savoir Adelin Patoux. Comment dire ? Je pense que je ne pouvais pas trouver meilleur collègue pour la suite de la thèse, vraiment un type extraordinaire. Ces deux années et demi de thèse en ta compagnie ont été très stimulantes du point de vue de la physique et de l'informatique, mais cela a surtout été une succession de péripéties aussi drôles les unes que les autres. De nos sorties en ville à n'importe quelle heure de la journée pour faire des "courses", à notre road trip à Pau en passant par nos repas du mardi à *Pimp My Burger* et tant d'autres. T'auras été mon senpai de la japanimation et du manga, et mon portefeuille en pleure encore (Elodie pourra témoigner).

La troisième personne à laquelle je pense est Julien Gosteau qui est mon compagnon de galères depuis le début de la fac. Nous en aurons traversé des aventures pour en arriver là, durant la licence en particulier (notamment l'histoire du petit vieux sur l'autoroute ou de l'avion qui se crashe). Tu es le créateur du régime du mardi midi à *Pimp My Burger* et pour cela merci, nos trajets étant rythmés par de longues discussions de physique (les "pandas roues" en particulier). Comme dirait Karadoc, "le gras c'est la vie" et cette pause burger faisait sacrément du bien, et les parties de baby qui suivaient aussi.

Pour finir, je veux remercier Mélodie Humbert qui fut une autre de mes partenaires de galères durant le master. Nous avons passé de bons moments ensemble, notamment les soirées Poincaré et d'autres. Apparemment, tu faisais une thèse en mi-temps au laboratoire, mais tu passais souvent en courant d'air dans le bureau, préférant vivre en recluse dans ta grotte de manips. Merci pour tous ces bons moments durant ces cinq dernières années.

Je remercie également les membres de la confrérie du baby-foot du CEMES, à savoir Marc Legros, Christophe Collard, Sébastien Joulié, Julien Gosteau, Adelin Patoux et Abdelouahed Lasfar. Toutes ces sessions baby permettaient de décompresser et de se changer les idées pour bien attaquer l'après-midi, en deux mots : "ET BIM ! ! ! ! !".

Je tiens également à remercier tous les gens du CEMES (Élodie, Lionel, Meiling, ...) avec qui j'ai eu l'occasion d'échanger et qui ont rendu ces quatre années très agréables.

Au-delà du CEMES, je remercie Anne-Sophie Royet, Pablo Acosta Alba et Sébastien Kerdiles, tous membres du CEA-LETI, qui ont pris part au projet et qui ont fourni les échantillons SOI. Je remercie également toutes les personnes du LAAS qui ont contribué à l'élaboration et la caractérisation des échantillons, notamment Nicolas Mallet, Filadelfo Cristiano et Guilhem Larrieu.

J'exprime également ma reconnaissance à Nathalie Destouches, Christophe Delerue, Pierre Renucci, Nicolas Bonod et Jérôme Plain de s'être intéressés à mon travail de thèse en participant à mon jury de thèse ainsi que pour leur relecture précise du manuscrit.

En suivant, je remercie la famille Bousquet qui m'a hébergé dans sa contrée paysanne durant les deux derniers confinements (évènements qui ont haché le bon déroulement de cette thèse), m'évitant par là d'être seul dans mon petit appartement. Un grand merci à Tiphaine Paulhe et Philippe Cadars pour leur relecture minutieuse de ce manuscrit.

Je remercie ensuite tous les copains d'Aveyron, et particulièrement ceux du foot, qui m'ont permis de décompresser de mes semaines de boulot.

Enfin, j'aimerais remercier ma famille et tout particulièrement ma mère Myriam et mes deux sœurs Justine et Laura pour leur soutien et leurs encouragements tout au long de mes études. Pour finir, je remercie profondément Marine qui est à mes côtés depuis de longues années et qui a toujours cru en moi durant mes études et cela même si j'avais une baisse de régime. Merci aussi d'avoir supporté ma playlist **Oasis** en boucle durant notre télétravail, mais je n'avais pas meilleure inspiration pour l'écriture (puis il fallait que je conseille à tous les lecteurs d'écouter le groupe **Oasis** et ça me donne une excuse pour en parler).

Table des matières

Remerciements **i**

Introduction **1**

1 Méthode Dyadique de Green et propriétés optiques d'un système nanométrique **3**

1.1 Résolution des équations de Maxwell : détermination des susceptibilités du champ . . . 4

1.1.1 Les équations de Maxwell . . . 5

1.1.2 Les équations d'onde . . . 6

1.1.3 Résolution des équations de propagation en présence de deux dipôles sources : $\mathbf{p}(\omega)$ et $\mathbf{m}(\omega)$ . . . 6

1.2 Définitions cartésiennes des susceptibilités du champ . . . 8

1.2.1 Dans un milieu homogène . . . 8

1.2.2 En présence d'un substrat semi-infini . . . 9

1.2.2.1 Dans la zone de champ lointain . . . 11

1.2.2.2 Dans la zone de champ proche . . . 12

1.3 Susceptibilités du champ dans un milieu homogène pour des structures 2D . . . 13

1.3.1 Susceptibilité électrique-électrique 2D . . . 13

1.3.2 Susceptibilité magnétique-électrique 2D . . . 15

1.4 Utilisation des tenseurs pour la Méthode Dyadique de Green . . . 15

1.4.1 Des équations de Maxwell dans la matière aux équations de Lippmann-Schwinger . . . 16

1.4.2 Discrétisation volumique et système auto-cohérent . . . 17

1.4.2.1 Définition du propagateur au point source . . . 18

1.4.2.2 Résolution du système auto-cohérent . . . 19

1.4.3 Différentes illuminations . . . 21

1.4.4 Propriétés optiques des structures . . . 23

1.4.4.1 Spectres d'extinction, d'absorption et de diffusion . . . 23

1.4.4.2 Diagramme de rayonnement . . . 24

1.4.4.3 Zone de champ proche . . . 25

1.4.4.4 Densité locale d'états photoniques (LDOS) . . . 27

2 Matériaux conventionnels et semi-conducteurs hyperdopés pour la plasmonique **31**

2.1 Plasmonique "standard" avec des structures de métaux nobles . . . 31

2.1.1 Constante diélectrique des métaux et modèle de Drude 32
2.1.1.1 De l'atome au cristal : de l'orbitale atomique à la structure de bandes 32
2.1.1.2 Modèle de Drude du gaz d'électrons libres 33
2.1.1.3 Transitions interbandes : au-delà du modèle de Drude 35
2.1.2 Conditions d'excitation des plasmons : modes de surface 36
2.1.2.1 Plasmon polaritons de surface 36
2.1.2.2 Plasmons de surface localisés 37
2.2 Semi-conducteurs dopés et plasmonique "artificielle" 38
2.2.1 Silicium pur, propriétés et constante diélectrique 38
2.2.2 Résonances de Mie et nano-optique des matériaux d'indices élevés . . 39
2.2.3 Nanostructures semi-conductrices pour la plasmonique IR : modèle de Drude 41
2.2.3.1 Dopage et structure de bandes 41
2.2.3.2 Modèle de Drude pour les semi-conducteurs hyperdopés . . 42
2.3 Couplage plasmon-phonon avec un substrat de SiO_2 44
2.3.1 Constante diélectrique de la silice dans l'infrarouge 44
2.3.2 Modèle analytique de l'interaction plasmon-phonon 45
2.4 Modélisation d'une métasurface avec la GDM : nécessité des pseudo-polarisabilités 47
2.4.1 Concept de polarisabilité 48
2.4.2 Extraction des polarisabilités de petites nanostructures 49
2.4.2.1 Polarisabilité électrique-électrique pour une structure de forme arbitraire 50
2.4.2.2 Couplage en champ proche entre plusieurs nanostructures . 53
2.5 Conclusion et Perspectives 55

3 Modélisation et interprétation des propriétés optiques de nanostructures de Si dopé 57
3.1 Nanostructures de Si dopé pour la plasmonique IR : état de l'art 57
3.1.1 Nanostructures semi-conductrices dopées pour la plasmonique IR 57
3.1.1.1 Approche top-down 59
3.1.1.2 Approche bottom-up 59
3.1.2 Nanostructures de Si dopé 60
3.1.2.1 Prédictions théoriques 61
3.1.2.2 Résultats expérimentaux 62
3.2 Spectre d'extinction du visible à l'IR pour une particule dopée de grande taille 65
3.2.1 Effet du dopage sur la réponse optique d'un cuboïde de silicium dopé 66
3.2.1.1 Efficacité d'extinction 66
3.2.1.2 Distribution de champ proche autour d'un bloc de silicium dopé 68
3.2.2 Assemblée de Si-NS aléatoirement orientées et/ou dopées 69
3.2.3 Effet spectral et polarisant d'un nanofil de Si dopé 70

3.2.4 Effet de la forme sur la concentration de champ proche . . . 71
3.2.5 Gradient de dopants dans la structure . . . 73
3.3 Conclusion et Perspectives . . . 75

4 Étude expérimentale du spectre d'extinction de nano-disques de Si dopé et comparaison avec la GDM 77
4.1 Fabrication et caractérisation structurale et optique de métasurfaces par spectroscopie IR . . . 77
4.1.1 Étapes de fabrication . . . 77
4.1.1.1 Dopage à basse énergie . . . 79
4.1.1.2 Recuit thermique par laser . . . 79
4.1.1.3 Lithographie électronique . . . 81
4.1.2 Mesures optiques par spectroscopie IR et comparaison expérience/théorie 83
4.1.2.1 Mesures sur une couche continue . . . 83
4.1.2.2 Mesures sur la couche nanostructurée . . . 85
4.1.3 Comparaison du modèle de polarisabilités pour une métasurface avec les mesures expérimentales . . . 88
4.2 Conclusion et Perspectives . . . 90

5 *Deep Learning* pour la prédiction de polarisabilités habillées 93
5.1 Concept de polarisabilité habillée . . . 94
5.1.1 Polarisabilité classique . . . 94
5.1.2 Polarisabilité habillée . . . 94
5.2 Introduction au Deep Learning . . . 96
5.2.1 Présentation du modèle . . . 97
5.2.1.1 Neurone artificiel et réseau neuronal . . . 97
5.2.1.2 Entraînement du réseau neuronal . . . 98
5.2.2 Quelques exemples d'applications . . . 99
5.2.2.1 Dans la vie de tous les jours . . . 99
5.2.2.2 En nanophotonique . . . 100
5.3 Prédictions de polarisabilités habillées pour des structures aléatoirement réparties sur un substrat . . . 100
5.3.1 Structuration du réseau . . . 100
5.3.2 Préparation des données . . . 102
5.3.3 Entraînement du réseau et statistiques . . . 103
5.3.4 Comparaison prédiction/simulation pour des géométries spécifiques . 105
5.4 Prédictions spectrales . . . 106
5.5 Approximation des plus proches voisins pour de très grandes métasurfaces apériodiques . . . 109
5.6 Application de cette approche de Deep Learning à une métasurface en silicium dopé et théorie des milieux effectifs . . . 112
5.6.1 Calcul de la réflectance et de la transmittance et détermination de l'indice effectif n_{eff} . . . 113
5.6.2 Effet du désordre sur l'indice effectif d'une métasurface en silicium dopé . . . 113
5.6.2.1 Entraînement du réseau neuronal . . . 115

5.6.2.2 Prédictions de polarisabilités habillées, propriétés optiques et indices effectifs de métasurfaces . . . 116
5.7 Conclusion . . . 117

Conclusion générale **119**

ANNEXES

A Illumination d'une couche mince par une onde plane **121**
A.1 Conditions aux limites . . . 122
A.1.1 Solution pour une couche mince d'épaisseur *d* illuminée par-dessous . . . 123
A.1.2 Solution pour une couche mince d'épaisseur *d* illuminée par-dessus . . . 125

B Calculs de quatre susceptibilités du champ électromagnétique en présence d'une interface plane **127**
B.1 Représentation de Weyl des susceptibilités du champ . . . 127
B.2 Formes non-retardées et limite électrostatique . . . 128
B.3 Formes asymptotiques retardées . . . 129
B.4 Susceptibilité $\mathbf{S}^{\mathrm{EE}}$ du champ en présence d'une surface . . . 130
B.4.1 Le champ électrique total transmis dans le milieu 1 . . . 130
B.4.2 Le champ électrique total transmis dans le milieu 2 . . . 131
B.4.3 Conditions aux limites . . . 132
B.4.4 Champ électrique au-dessus de la surface . . . 132
B.4.5 Champ électrique au-dessous de la surface . . . 134
B.4.6 Formes non-retardées et limite électrostatique . . . 136
B.4.6.1 Au-dessus de l'interface . . . 136
B.4.6.2 Au-dessous de l'interface . . . 137
B.4.7 Formes asymptotiques retardées . . . 137
B.4.7.1 Au-dessus de la surface . . . 137
B.4.7.2 Au-dessous de la surface . . . 138

C Tableau de conversion SI-CGS **139**

Liste des abréviations **141**

Publications durant la thèse **143**

Bibliographie **171**

Résumé/Abstract **187**

Introduction générale

Depuis une trentaine d'années, la communauté scientifique s'est fortement intéressée à l'interaction de la lumière avec des objets sub-longueur d'onde. Ce domaine de la recherche est appelé nanophotonique ou nano-optique. Un des principaux axes de recherche en nano-optique est la plasmonique [1], qui a pour but d'étudier comment la lumière interagit avec des nanosystèmes métalliques (couches infinies, nanofils, nanostructures tridimensionnelles), entraînant une oscillation collective des électrons de conduction, à l'interface entre le métal et l'environnement diélectrique. Ce mouvement collectif de charges est ce qu'on appelle un plasmon.

Les progrès actuels en termes de fabrication et de caractérisation des systèmes nanométriques sont à l'origine du fort intérêt suscité par la plasmonique. Par exemple, la lithographie électronique permet de fabriquer des motifs avec une précision de l'ordre de la dizaine de nanomètres. Cette qualité de fabrication permet de façonner des dispositifs dont la forme, la taille et la périodicité des nanostructures sont parfaitement connues, et homogènes sur de larges dimensions. De tels systèmes peuvent servir pour réaliser des biocapteurs [2-4], pour des applications en spectroscopie comme du Surface Enhanced Raman Scattering (SERS) [5], ou en photovoltaïque [6], mais aussi pour fabriquer des photodétecteurs [7] ou bien encore en imagerie [8].

Les matériaux conventionnels de la plasmonique, tels que l'or ou l'argent, présentent des résonances plasmoniques dans la gamme proche UV-visible [9-14]. Pour obtenir des résonances dans l'infrarouge (IR), il faut considérer des structures de grandes tailles [15], ce qui peut être problématique pour l'intégration de nanostructures dans des dispositifs. De plus, la majorité des dispositifs électroniques sont à base de semi-conducteurs, ce qui complique encore plus l'intégration.

Depuis une quinzaine d'années, les matériaux semi-conducteurs dopés ont été envisagés pour obtenir des résonances plasmon dans l'infrarouge moyen, et cela, même pour de petits objets [16, 17]. Le dopage n'est pas une science nouvelle, mais son utilisation était centrée sur la modification des propriétés électroniques, et non optiques, des semi-conducteurs. En nanophotonique, l'intérêt du dopage est de pouvoir induire une réponse plasmonique dans un matériau qui n'en présente pas intrinsèquement. La quantité de dopants devient un nouveau paramètre pour ajuster la position de la résonance [16]. Effectivement, de nombreux travaux, avec une approche de fabrication top down [18-20] ou bottom-up [21-23], ont montré qu'il est possible de créer, et d'ajuster, une réponse plasmonique dans des matériaux dopés. Parmi les semi-conducteurs, le silicium présente un intérêt particulier de par son faible coût de production, son abondance et sa non-toxicité. De plus, toute l'électronique moderne est à base de silicium. Ainsi, si nous pouvions fabriquer et optimiser des nanostructures de silicium dopé pour de la plasmonique, ces dernières pourraient être facilement intégrées dans les dispositifs électroniques actuels, tels que les composants CMOS.

D'un point de vue théorique, de nombreux modèles ont été développés durant les trente dernières années pour résoudre les équations de Maxwell, afin de simuler la réponse optique de nanostructures plasmoniques. Par exemple, nous pouvons penser à l'approximation dipolaire

discrète (Discrete Dipole Approximation (DDA)) [24], la méthode des éléments finis (Finite Difference Time Domain (FDTD)) [25], ou bien encore la méthode différentielle des réseaux (Differential Theory of Gratings (DTG)) [26], ...

Dans ce contexte, l'objectif de cette thèse est de simuler la réponse optique de nanostructures de silicium dopé, et en particulier celles réalisées expérimentalement par technique top-down à partir de la couche supérieure d'un substrat de silicium sur isolant (Silicon On Insulator (SOI)). Pour cela, nous avons utilisé la Méthode Dyadique de Green, qui a été adaptée pour la nano-optique par O. J. F. Martin, C. Girard et A. Dereux dans les années 90 [27].

Le chapitre 1 est une présentation complète de cette méthode numérique qui permet de connaître le champ électromagnétique à l'intérieur et à l'extérieur d'une nanostructure. Ce chapitre est une continuité du formalisme présenté dans les thèses de G. Colas des Francs [28], R. Marty [29] et P. R. Wiecha [30]. Nous allons un peu plus loin, en expliquant comment obtenir le champ magnétique, en plus du champ électrique, dans la nanostructure. De plus, nous détaillons comment adapter ce formalisme pour modéliser la réponse optique de nanostructures 2D. Pour finir, nous donnons une liste non exhaustive des propriétés optiques qui peuvent être déduites grâce à cette méthode numérique.

Dans le second chapitre, nous nous intéressons aux différences entre les constantes diélectriques des métaux et des diélectriques. L'objectif étant de comprendre comment le dopage influence la constante diélectrique de structures en silicium fortement dopé. De plus, nous étudions l'influence du substrat de silice sur la réponse de nos nano-objets. Enfin, nous présentons une approximation dipolaire, basée sur la Méthode Dyadique de Green, pour pouvoir coupler un grand nombre d'objets, et ainsi simuler des métasurfaces dans leur globalité.

Le chapitre 3 est une synthèse des différentes simulations réalisées durant la thèse pour comprendre comment le dopage, la taille et la forme des objets en silicium dopé modifient la position de la résonance plasmonique. Pour cela, nous simulons le spectre d'extinction ainsi que la distribution de champ proche au voisinage de nano-objets uniques.

Dans le chapitre 4, nous décrivons notre système d'étude, notamment sa fabrication et sa caractérisation par Microscopie Électronique en Transmission (MET) et par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (Fourier Transform InfraRed spectroscopy (FTIR)). Les mesures de spectroscopie nous permettent d'obtenir la réflectance et la transmittance de nos couches lithographiées en fonction de la longueur d'onde, mettant en avant un décalage de la résonance plasmon en fonction de la densité de porteurs introduits. Ensuite, nous confrontons ces mesures expérimentales à nos simulations sur un objet unique. Enfin, nous modélisons la réponse optique de nos métasurfaces à l'aide du modèle de polarisabilité introduit dans le chapitre 2, ce qui nous permet de tenir compte du couplage optique entre objets.

Dans le chapitre 5, nous développons une procédure numérique, basée sur une approche d'apprentissage profond (en anglais *Deep Learning*), couplée à un modèle de polarisabilités habillées pour prédire la réponse optique de grandes assemblées, non ordonnées, de nanostructures. Dans notre formalisme, la perturbation du champ électromagnétique induite par les structures voisines est contenue dans une polarisabilité habillée. Nous entraînons un réseau neuronal afin de prédire ces polarisabilités habillées à partir d'images, vues de dessus, de métasurfaces. Nous pouvons ensuite réutiliser notre réseau neuronal pour déterminer le couplage au sein de très grandes métasurfaces, ainsi que déterminer l'indice optique effectif de cette dernière.

Chapitre 1

Méthode Dyadique de Green et propriétés optiques d'un système nanométrique

L'objectif de ce premier chapitre est de fournir une présentation complète de la Méthode Dyadique de Green (Green Dyadic Method (GDM) en anglais) qui permet de modéliser l'interaction rayonnement-matière entre une onde quelconque (plane, sphérique, gaussienne, ...) et une structure de forme arbitraire positionnée dans un environnement plus ou moins complexe. Cette structure peut être de nature métallique (faite d'or ou d'argent par exemple), diélectrique (silicium ou dioxyde de titane (TiO_2)), voire hybride (mi-métallique et mi-diélectrique). Initialement, le formalisme des tenseurs de Green a été introduit par G. S. Agarwal dans les années 70 dans le but de traiter des problèmes de physique des surfaces [31]. Dans les années 90, il a été adapté par O. J. F. Martin, C. Girard et A. Dereux afin de modéliser les propriétés électromagnétiques de structures nanométriques de formes quelconques [27, 32, 33]. La Méthode Dyadique de Green est basée sur une approche dipolaire de la matière : elle consiste à considérer une structure de forme arbitraire comme un ensemble de dipôles fluctuants couplés entre eux. Une autre particularité de cette méthode est que la résolution des équations de Maxwell se fait dans le domaine fréquentiel, autrement dit nous cherchons la solution à temps fixe t=0 tout en balayant la gamme des longueurs d'onde. Cette méthode numérique a fait ses preuves pour modéliser les propriétés de champ proche de structures métalliques [2, 34] et diélectriques [35, 36], mais aussi pour calculer les propriétés de champ lointain telles que les diagrammes de rayonnement de ces antennes nanométriques [37] ou les capacités d'absorption et de diffusion de ces objets [38].

Dans ce chapitre, nous aborderons dans un premier temps les tenseurs de Green, aussi appelés susceptibilités du champ, qui décrivent la propagation du champ électromagnétique émis par un dipôle ponctuel électrique ou magnétique. Nous montrerons comment modifier ces susceptibilités pour tenir compte d'un environnement plus complexe (en présence d'un substrat par exemple) ou pour décrire des dipôles non ponctuels. Dans un second temps, nous développerons le formalisme mathématique permettant de modéliser l'interaction rayonnement-matière entre une onde quelconque et un objet de forme arbitraire. Nous expliquerons notamment comment discrétiser l'objet et comment définir l'onde d'illumination. En suivant, nous présenterons une liste non exhaustive de propriétés optiques déduites avec la GDM, comme par exemple la distribution de champ proche, le rayonnement de l'objet, les sections efficaces ou encore la densité d'états photoniques.

1.1 Résolution des équations de Maxwell : détermination des susceptibilités du champ

Jusqu'à présent, la GDM a été essentiellement consacrée à l'étude de la réponse électrique en présence d'excitation dipolaire (ou multipolaire) électrique. Dans ce chapitre, nous nous proposons d'étendre sa généralité au cas de la réponse magnétique, sous excitation d'origine multipolaire magnétique. Nous avons récemment publié une généralisation de cette méthode dans des milieux présentant une réponse électrique et magnétique [39]. Dans ce chapitre, nous proposons un développement complet de ce formalisme, qui donne suite aux travaux de U. Schröter [40] et P. C. Chaumet [41].

Cette approche est basée sur la recherche des susceptibilités du champ électromagnétique, représentées par quatre tenseurs dyadiques, qui permettent de décrire la propagation de l'onde électromagnétique émise par une source ponctuelle (dipôle électrique ou magnétique) dans un environnement plus ou moins complexe (en présence d'un substrat ou dans un système multi-couches). En déterminant les expressions de ces susceptibilités, nous en déduisons le champ émis par le dipôle en tout point de l'espace. Le formalisme est semblable à celui utilisé en mécanique quantique, sauf qu'ici les champs sont des vecteurs, ce qui implique une forme tensorielle des fonctions de Green. Ces propagateurs s'obtiennent en résolvant les équations de Maxwell en présence de deux excitations élémentaires : $\mathbf{p}(\omega)$ le dipôle électrique et $\mathbf{m}(\omega)$ le dipôle magnétique placés en $\mathbf{r}_0$ dans un environnement de permittivité diélectrique $\epsilon_{\text{env}}(\omega)$ et de perméabilité $\mu_{\text{env}}(\omega) = 1$ (cf. Fig. 1.1).

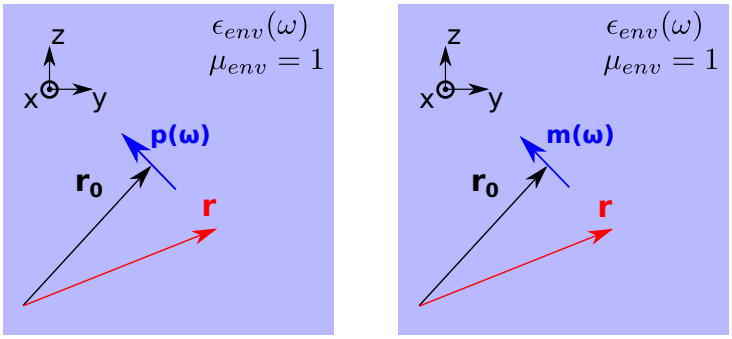

FIGURE 1.1 – Schéma d'un dipôle oscillant électrique $\mathbf{p}(\omega)$, ou magnétique $\mathbf{m}(\omega)$, à la position $\mathbf{r}_0$ dans un environnement de permittivité diélectrique $\epsilon_{\text{env}}(\omega)$ et de perméabilité $\mu_{\text{env}}(\omega) = 1$.

1.1.1 Les équations de Maxwell

Dans le domaine spatio-temporel, les équations de Maxwell s'expriment en unité CGS (tableau de conversion SI-CGS en annexe C) d'après [31]

$$\nabla \wedge \mathbf{E}(\mathbf{r},t) = -\frac{1}{c}\frac{\partial}{\partial t}\left[\mathbf{B}(\mathbf{r},t) + 4\pi\mathbf{m}(t)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0})\right] \qquad \text{(Maxwell-Faraday)} \qquad (1.1a)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r},t) = -4\pi\nabla\cdot\mathbf{m}(t)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0}) \qquad \text{(Maxwell-Gauss)} \qquad (1.1b)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{H}(\mathbf{r},t) = \frac{1}{c}\frac{\partial}{\partial t}\left[\mathbf{D}(\mathbf{r},t) + 4\pi\mathbf{p}(t)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0})\right] \qquad \text{(Maxwell-Ampère)} \qquad (1.1c)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D}(\mathbf{r},t) = -4\pi\nabla\cdot\mathbf{p}(t)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0}) \qquad \text{(Maxwell-flux)} \qquad (1.1d)$$

avec $\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$ et $\mathbf{H}(\mathbf{r},t)$ les champs électrique et magnétique à la position $\mathbf{r}$. $\mathbf{D}(\mathbf{r},t)$ est le déplacement électrique et $\mathbf{B}(\mathbf{r},t)$ l'induction magnétique à cette même position. La vitesse de propagation est bien sûr c/n_{env}, où n_{env} est l'indice de réfraction du milieu et c la vitesse de la lumière dans le vide. Cet indice est relié à la permittivité diélectrique $\epsilon_{env}(\omega)$ et à la perméabilité magnétique $\mu_{env}(\omega)$ du milieu d'après $n_{env} = \sqrt{\epsilon_{env}\mu_{env}}$ [42]. Afin de s'affranchir des dérivées temporelles, nous allons passer dans l'espace de Fourier temporel. Pour cela, nous appliquons la transformée de Fourier (TF), à toutes les variables dépendantes du temps, définie comme suit

$$f(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(\omega)e^{-i\omega t}d\omega \qquad , \qquad f(\omega) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} f(t)e^{i\omega t}dt. \qquad (1.2)$$

Cela conduit à

$$\nabla \wedge \mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) = \frac{i\omega}{c}\mathbf{B}(\mathbf{r},\omega) + \frac{4\pi i\omega}{c}\mathbf{m}(\omega)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0}) \qquad (1.3a)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{B}(\mathbf{r},\omega) = -4\pi\nabla\cdot\mathbf{m}(\omega)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0}) \qquad (1.3b)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{H}(\mathbf{r},\omega) = -\frac{i\omega}{c}\mathbf{D}(\mathbf{r},\omega) - \frac{4\pi i\omega}{c}\mathbf{p}(\omega)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0}) \qquad (1.3c)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{D}(\mathbf{r},\omega) = -4\pi\nabla\cdot\mathbf{p}(\omega)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0}). \qquad (1.3d)$$

De plus, dans l'espace de Fourier, $\mathbf{D}(\mathbf{r},\omega) = \epsilon_{env}(\omega)\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega)$ et $\mathbf{B}(\mathbf{r},\omega) = \mu_{env}(\omega)\mathbf{H}(\mathbf{r},\omega)$ et $k_0 = \dfrac{\omega}{c}$ est le vecteur d'onde dans le vide. En introduisant ces expressions et en isolant les rotationnels et les divergences des champs, le système s'écrit

$$\nabla \wedge \mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) = ik_0\left[\mu_{env}(\omega)\mathbf{H}(\mathbf{r},\omega) + 4\pi\mathbf{m}(\omega)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0})\right] \qquad (1.4a)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H}(\mathbf{r},\omega) = -\frac{4\pi}{\mu_{env}(\omega)}\nabla\cdot\mathbf{m}(\omega)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0}) \qquad (1.4b)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{H}(\mathbf{r},\omega) = -ik_0\left[\epsilon_{env}(\omega)\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) + 4\pi\mathbf{p}(\omega)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0})\right] \qquad (1.4c)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) = -\frac{4\pi}{\epsilon_{env}(\omega)}\nabla\cdot\mathbf{p}(\omega)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0}). \qquad (1.4d)$$

Dans la suite du document la dépendance fréquentielle de ϵ_{env} et μ_{env} sera implicite.

1.1.2 Les équations d'onde

Comme cela a été fait dans des travaux antérieurs, nous utilisons les équations de Maxwell sous la forme précédente (Eq. (1.4)) pour déduire des équations de Helmhotz, traduisant la propagation des champs électrique et magnétique. Ce sont des équations différentielles du second ordre faisant intervenir, dans le cadre électromagnétique, les dérivées partielles spatiales.

Elles s'obtiennent en appliquant l'opérateur rotationnel $\nabla\wedge$ aux équations (1.4a) et (1.4c) puis en injectant les équations (1.4b) et (1.4d) dans ces dernières. Nous en déduisons les deux équations d'onde suivantes

$$\left[\Delta + \epsilon_{\text{env}}\mu_{\text{env}}k_0^2\right]\mathbf{E} = -4\pi\left[\mu_{\text{env}}k_0^2\mathbf{I} + \frac{\nabla\nabla}{\epsilon_{\text{env}}}\right]\mathbf{p}\,\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0}) - 4\pi\mathrm{i}k_0\nabla\wedge\mathbf{m}\,\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0}) \tag{1.5a}$$

$$\left[\Delta + \epsilon_{\text{env}}\mu_{\text{env}}k_0^2\right]\mathbf{H} = -4\pi\left[\epsilon_{\text{env}}k_0^2\mathbf{I} + \frac{\nabla\nabla}{\mu_{\text{env}}}\right]\mathbf{m}\,\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0}) + 4\pi\mathrm{i}k_0\nabla\wedge\mathbf{p}\,\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0}) \tag{1.5b}$$

où $\mathbf{I}$ est la matrice identité et, pour une meilleure lisibilité, nous avons omis la dépendance $(\mathbf{r},\omega)$ des champs et la dépendance en ω des dipôles.

1.1.3 Résolution des équations de propagation en présence de deux dipôles sources : $\mathbf{p}(\omega)$ et $\mathbf{m}(\omega)$

Les équations d'onde précédentes (1.5a) et (1.5b) peuvent être réécrites sous forme opératorielle

$$\begin{aligned}\mathcal{O}_{\mathbf{r}}\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) &= -4\pi\mathcal{A}_{\mathbf{r}}\cdot\mathbf{p}(\omega)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0}) - 4\pi\mathcal{B}_{\mathbf{r}}\cdot\mathbf{m}(\omega)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0})\\ \mathcal{O}_{\mathbf{r}}\mathbf{H}(\mathbf{r},\omega) &= -4\pi\frac{\epsilon_{\text{env}}}{\mu_{\text{env}}}\mathcal{A}_{\mathbf{r}}\cdot\mathbf{m}(\omega)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0}) + 4\pi\mathcal{B}_{\mathbf{r}}\cdot\mathbf{p}(\omega)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0})\end{aligned} \tag{1.6}$$

où $\mathcal{O}_{\mathbf{r}} = \Delta + \epsilon_{\text{env}}\mu_{\text{env}}k_0^2$ est un opérateur différentiel scalaire tandis que $\mathcal{A}_{\mathbf{r}} = (\nabla\nabla/\epsilon_{\text{env}} + \mu_{\text{env}}k_0^2\mathbf{I})$ et $\mathcal{B}_{\mathbf{r}} = \mathrm{i}k_0\nabla\wedge$ sont des opérateurs tensoriels dyadiques. Ils agissent tous sur la variable de position $\mathbf{r}$.

Notre objectif est de déterminer quatre susceptibilités du champ électromagnétique $\mathbf{S}_0^{\text{EE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$, $\mathbf{S}_0^{\text{HH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$, $\mathbf{S}_0^{\text{EH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$ et $\mathbf{S}_0^{\text{HE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$ qui décrivent le champ électromagnétique en $\mathbf{r}$, dans un milieu uniforme, engendré par les dipôles $\mathbf{p}$ et $\mathbf{m}$ en $\mathbf{r}_0$ et qui vérifient le système linéaire suivant

$$\begin{aligned}\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) &= \mathbf{S}_0^{\text{EE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)\cdot\mathbf{p}(\omega) + \mathbf{S}_0^{\text{EH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)\cdot\mathbf{m}(\omega)\,,\\ \mathbf{H}(\mathbf{r},\omega) &= \mathbf{S}_0^{\text{HE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)\cdot\mathbf{p}(\omega) + \mathbf{S}_0^{\text{HH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)\cdot\mathbf{m}(\omega)\,.\end{aligned} \tag{1.7}$$

Or, d'après l'équation (1.6)

$$\begin{aligned}\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) &= -4\pi\mathcal{O}_{\mathbf{r}}^{-1}\mathcal{A}_{\mathbf{r}}\cdot\mathbf{p}(\omega)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0}) - 4\pi\mathcal{O}_{\mathbf{r}}^{-1}\mathcal{B}_{\mathbf{r}}\cdot\mathbf{m}(\omega)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0})\\ \mathbf{H}(\mathbf{r},\omega) &= -4\pi\frac{\epsilon_{\text{env}}}{\mu_{\text{env}}}\mathcal{O}_{\mathbf{r}}^{-1}\mathcal{A}_{\mathbf{r}}\cdot\mathbf{m}(\omega)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0}) + 4\pi\mathcal{O}_{\mathbf{r}}^{-1}\mathcal{B}_{\mathbf{r}}\cdot\mathbf{p}(\omega)\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r_0})\end{aligned} \tag{1.8}$$

D'où, par identification avec l'équation (1.7)

$$\begin{aligned}\mathbf{S}_0^{\text{EE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) &= -4\pi\mathcal{O}_{\mathbf{r}}^{-1}\mathcal{A}_{\mathbf{r}}\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0),\\ \mathbf{S}_0^{\text{EH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) &= -4\pi\mathcal{O}_{\mathbf{r}}^{-1}\mathcal{B}_{\mathbf{r}}\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0),\\ \mathbf{S}_0^{\text{HH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) &= -4\pi\mathcal{O}_{\mathbf{r}}^{-1}\frac{\epsilon_{\text{env}}}{\mu_{\text{env}}}\mathcal{A}_{\mathbf{r}}\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0),\\ \mathbf{S}_0^{\text{HE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) &= 4\pi\mathcal{O}_{\mathbf{r}}^{-1}\mathcal{B}_{\mathbf{r}}\delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0).\end{aligned} \tag{1.9}$$

Afin d'exprimer ces susceptibilités de manière explicite, nous introduisons la fonction de Green scalaire $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ associée à l'équation différentielle suivante [38]

$$\mathcal{O}_{\mathbf{r}} G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = -4\pi\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \tag{1.10}$$

soit [43]

$$\Delta G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) + \epsilon_{\text{env}}\mu_{\text{env}} k_0^2 G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = -4\pi\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \tag{1.11}$$

avec

$$G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \frac{e^{\mathrm{i}k|\mathbf{r}-\mathbf{r}_0|}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} \tag{1.12}$$

et $k = \sqrt{\epsilon_{\text{env}}\mu_{\text{env}}} k_0 = n_{\text{env}} k_0$ le vecteur d'onde dans le milieu d'indice n_{env}. A partir de l'équation (1.10), nous exprimons $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ sous forme opératorielle, soit

$$G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = -4\pi\mathcal{O}_{\mathbf{r}}^{-1}\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0). \tag{1.13}$$

En utilisant cette dernière équation, nous pouvons écrire les susceptibilités du champ définies en (1.9) sous la forme [1]

$$\begin{aligned}
\mathbf{S}_0^{\text{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) &= \mathcal{A}_{\mathbf{r}} G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) \\
\mathbf{S}_0^{\text{EH}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) &= \mathcal{B}_{\mathbf{r}} G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) \\
\mathbf{S}_0^{\text{HH}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) &= \frac{\epsilon_{\text{env}}}{\mu_{\text{env}}} \mathcal{A}_{\mathbf{r}} G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) \\
\mathbf{S}_0^{\text{HE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) &= -\mathcal{B}_{\mathbf{r}} G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega).
\end{aligned} \tag{1.14}$$

Finalement, en remplaçant les opérateurs $\mathcal{A}_{\mathbf{r}}$ et $\mathcal{B}_{\mathbf{r}}$ par leurs expressions et $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ par la sienne, nous obtenons

$$\mathbf{S}_0^{\text{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \left[\frac{\nabla\nabla}{\epsilon_{\text{env}}} + \mu_{\text{env}} k_0^2 \mathbf{I}\right] \frac{e^{\mathrm{i}k|\mathbf{r}-\mathbf{r}_0|}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} \tag{1.15a}$$

$$\mathbf{S}_0^{\text{EH}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \mathrm{i}k_0 \nabla \wedge \frac{e^{\mathrm{i}k|\mathbf{r}-\mathbf{r}_0|}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} \tag{1.15b}$$

$$\mathbf{S}_0^{\text{HH}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \left[\frac{\nabla\nabla}{\mu_{\text{env}}} + \epsilon_{\text{env}} k_0^2 \mathbf{I}\right] \frac{e^{\mathrm{i}k|\mathbf{r}-\mathbf{r}_0|}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|} \tag{1.15c}$$

$$\mathbf{S}_0^{\text{HE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = -\mathrm{i}k_0 \nabla \wedge \frac{e^{\mathrm{i}k|\mathbf{r}-\mathbf{r}_0|}}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}_0|}\,. \tag{1.15d}$$

Ces quatre dernières expressions sont les représentations cartésiennes des susceptibilités du champ électromagnétique $\{\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega), \mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega)\}$ dans un milieu homogène d'indice $n_{\text{env}} = \sqrt{\epsilon_{\text{env}}\mu_{\text{env}}}$ (cf. Fig. 1.1).

Dans la suite du document, nous supposons que le milieu est non magnétique, c'est-à-dire $\mu_{\text{env}} = 1$, ce qui est toujours le cas pour un milieu naturel [44].

1. Nous avons utilisé ici la relation de commutation entre l'opérateur scalaire $\mathcal{O}_{\mathbf{r}}$ et les opérateurs tensoriels $\mathcal{A}_{\mathbf{r}}$ et $\mathcal{B}_{\mathbf{r}}$.

1.2 Définitions cartésiennes des susceptibilités du champ

1.2.1 Dans un milieu homogène

En tenant compte du caractère non magnétique de l'environnement, nous pouvons réécrire les propagateurs $\mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$ et $\mathbf{S}_0^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$ comme la somme de trois tenseurs $\mathbf{T}_1^{\mathrm{EE}}(\mathbf{R})$, $\mathbf{T}_2^{\mathrm{EE}}(\mathbf{R})$ et $\mathbf{T}_3^{\mathrm{EE}}(\mathbf{R})$ [27, 38, 40, 45]

$$\mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) = \left[-k^2\mathbf{T}_1^{\mathrm{EE}}(\mathbf{R}) - \mathrm{i}k\mathbf{T}_2^{\mathrm{EE}}(\mathbf{R}) + \mathbf{T}_3^{\mathrm{EE}}(\mathbf{R})\right]\frac{e^{\mathrm{i}kR}}{\epsilon_{\mathrm{env}}} \tag{1.16a}$$

$$\mathbf{S}_0^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) = \left[-k^2\mathbf{T}_1^{\mathrm{EE}}(\mathbf{R}) - \mathrm{i}k\mathbf{T}_2^{\mathrm{EE}}(\mathbf{R}) + \mathbf{T}_3^{\mathrm{EE}}(\mathbf{R})\right]e^{\mathrm{i}kR} \tag{1.16b}$$

avec $\mathbf{R} = \mathbf{r} - \mathbf{r}_0 = (x - x_0, y - y_0, z - z_0)$, $k = n_{\mathrm{env}}k_0$ et

$$\mathbf{T}_1^{\mathrm{EE}}(\mathbf{R}) = \frac{\mathbf{RR} - \mathbf{I}R^2}{R^3} \tag{1.17a}$$

$$\mathbf{T}_2^{\mathrm{EE}}(\mathbf{R}) = \frac{3\mathbf{RR} - \mathbf{I}R^2}{R^4} \tag{1.17b}$$

$$\mathbf{T}_3^{\mathrm{EE}}(\mathbf{R}) = \frac{3\mathbf{RR} - \mathbf{I}R^2}{R^5}. \tag{1.17c}$$

Nous constatons assez facilement que $\mathbf{T}_1^{\mathrm{EE}}(\mathbf{R}) \sim 1/R$, $\mathbf{T}_2^{\mathrm{EE}}(\mathbf{R}) \sim 1/R^2$ et $\mathbf{T}_3^{\mathrm{EE}}(\mathbf{R}) \sim 1/R^3$ décrivent respectivement les contributions associées aux champs lointain, intermédiaire et proche.

De la même manière, on peut définir les susceptibilités mixtes $\mathbf{S}_0^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$ et $\mathbf{S}_0^{\mathrm{EH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$ comme une somme de tenseurs décrivant les contributions au champ électromagnétique à plus ou moins grande distance [35, 40]

$$\begin{aligned}\mathbf{S}_0^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) &= \left[n_{\mathrm{env}}k_0^2\mathbf{T}_1^{\mathrm{HE}}(\mathbf{R}) + \mathrm{i}k_0\mathbf{T}_2^{\mathrm{HE}}(\mathbf{R})\right]e^{\mathrm{i}kR} \\ &= -\mathbf{S}_0^{\mathrm{EH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)\end{aligned} \tag{1.18}$$

avec

$$\mathbf{T}_1^{\mathrm{HE}}(\mathbf{R}) = \frac{1}{R^2}\begin{pmatrix} 0 & -(z-z_0) & y-y_0 \\ z-z_0 & 0 & -(x-x_0) \\ -(y-y_0) & x-x_0 & 0 \end{pmatrix}, \tag{1.19a}$$

$$\mathbf{T}_2^{\mathrm{HE}}(\mathbf{R}) = \frac{1}{R^3}\begin{pmatrix} 0 & -(z-z_0) & y-y_0 \\ z-z_0 & 0 & -(x-x_0) \\ -(y-y_0) & x-x_0 & 0 \end{pmatrix}. \tag{1.19b}$$

Ces deux susceptibilités mixtes décrivent de quelle manière un dipôle magnétique (respectivement électrique) engendre un champ électrique (respectivement magnétique). Contrairement aux susceptibilités directes, il n'y a pas de terme en $1/R^3$, ce qui signifie qu'à très courtes distances (zone de champ proche) le champ de même nature que le dipôle est prépondérant ($\mathbf{E}$ pour $\mathbf{p}$ et $\mathbf{H}$ pour $\mathbf{m}$). Mais dès que la distance augmente, l'onde devient transverse et les champs $\mathbf{E}$ et $\mathbf{H}$ deviennent orthogonaux entre eux et avec le vecteur d'onde $\mathbf{k}$. Les champs $\mathbf{E}$ et $\mathbf{H}$ sont reliés par la relation fixe suivante

$$\mathbf{H} = \frac{\mathbf{k}\wedge\mathbf{E}}{k}. \tag{1.20}$$

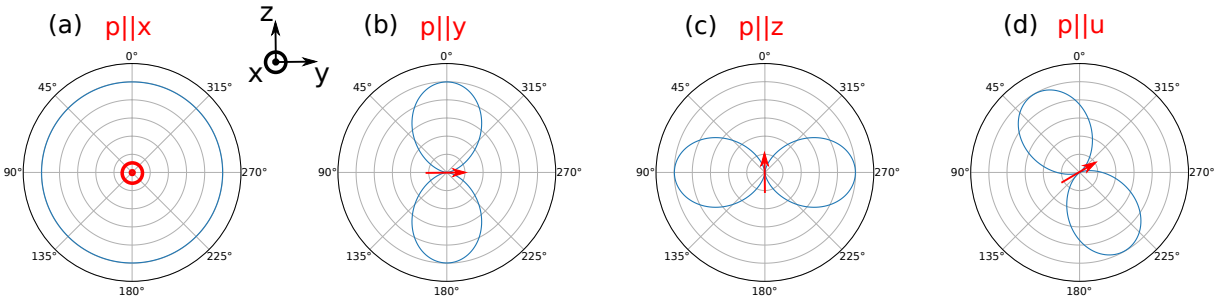

FIGURE 1.2 – Diagrammes de rayonnement dans le plan yOz d'un dipôle dans un milieu homogène d'indice optique $n_{\text{env}} = 1$. La longueur d'onde d'émission est $\lambda_0 = 500$ nm. Le dipôle est orienté (a) selon Ox, (b) selon Oy, (c) selon Oz et (d) selon la direction u faisant un angle $\theta = 30°$ avec l'axe Oy.

Le diagramme de rayonnement d'un dipôle dans un milieu homogène est parfaitement connu avec ses deux lobes caractéristiques pointant dans les directions orthogonales à l'orientation du dipôle (Fig. 1.2). Les diagrammes de rayonnement de cette figure ont été obtenus en utilisant l'expression angulaire du tenseur $\mathbf{T}_1$ (Eq. (B.12)).

1.2.2 En présence d'un substrat semi-infini

Dans la réalité, un dipôle oscillant n'est jamais totalement isolé dans l'espace. En fait, il est souvent au voisinage d'une interface entre deux milieux d'indice optique différents (cf. Fig. 1.3) [28, 31, 46] . Cette variation d'indice entre les deux environnements va perturber la propagation de la lumière émise par le dipôle. En effet, lorsque la lumière rencontre l'interface, une partie de celle-ci sera réfléchie et une autre partie sera réfractée. Dans le formalisme de Green, la contribution de la surface au champ électromagnétique émis par un dipôle (électrique ou magnétique) peut s'exprimer sous forme tensorielle pour décrire la nature vectorielle, dépendante de l'orientation du dipôle, dans l'espace Cartésien 3D. Pour cela, nous introduisons une paire de tenseurs, le premier décrivant la réflexion sur la surface et le second décrivant la transmission à travers l'interface. Sur la figure 1.3, nous représentons schématiquement le comportement de la lumière émise par un dipôle électrique et comment cela se traduit à l'aide de tenseur de Green. Le dipôle électrique $\mathbf{p}(\omega)$ est positionné en $\mathbf{r}_0$ dans l'environnement de permittivité $\epsilon_1(\omega)$ et perméabilité $\mu_1 = 1$. Le milieu 1 correspond au demi-espace z>0 et le substrat (milieu 2) au demi espace z<0. Si la position d'évaluation du champ, $\mathbf{r}$, est dans le même milieu que le dipôle source, le champ électrique $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$ est égal à la somme du champ se propageant directement entre $\mathbf{r}_0$ et $\mathbf{r}$ et du champ réfléchi sur l'interface. Comme schématisé sur la figure 1.3, la propagation directe se traduit par le biais de la susceptibilité $\mathbf{S}_0^{\text{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ dans le milieu homogène 1 et la partie réflexion est contenue dans le tenseur $\mathbf{S}_{\text{s}}^{\text{EE}^+}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$. A contrario, si la position $\mathbf{r}$ est en dessous de l'interface, le champ électrique arrivant en ce point est uniquement dû à la réfraction de l'onde à l'interface (il n'y a pas de propagation directe entre le point source et le point d'évaluation). Une telle décomposition en différents tenseurs est possible uniquement en supposant que l'interaction lumière-matière est linéaire, ce qui nous permet d'appliquer le principe de superposition.

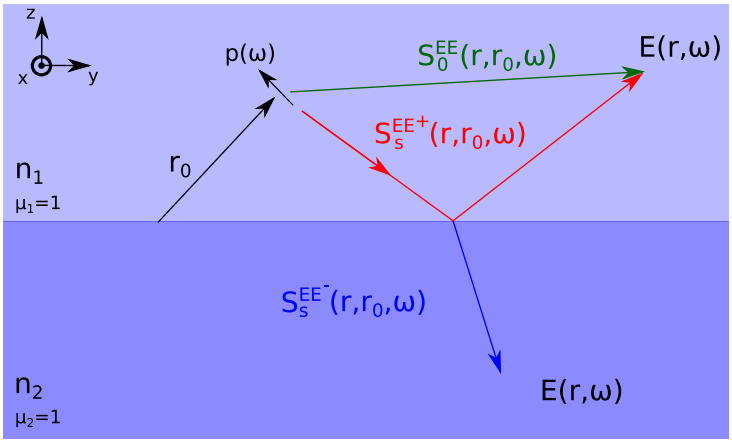

FIGURE 1.3 – Représentation schématique d'un dipôle électrique oscillant $\mathbf{p}(\omega)$ situé en $\mathbf{r}_0 = (x_0, y_0, z_0)$ dans un environnement d'indice n_1 (demi-espace tel que z>0) en présence d'une surface de constante diélectrique $\epsilon_2 = n_2^2$ (demi-espace z<0). La perméabilité magnétique est partout supposée égale à l'unité. $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$ est le champ électrique à la position $\mathbf{r} = (x, y, z)$, le tenseur $\mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ décrit la propagation directe du champ entre les points $\mathbf{r}_0$ et $\mathbf{r}$ dans le milieu 2. Les tenseurs $\mathbf{S}_s^{\mathrm{EE}^+}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ et $\mathbf{S}_s^{\mathrm{EE}^-}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ décrivent la contribution de la surface au champ électrique respectivement en dessus et en dessous de l'interface.

Ce raisonnement est généralisable aux trois autres types de susceptibilités. Pour retranscrire ces phénomènes, nous introduisons quatre tenseurs $\mathbf{S}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$, $\mathbf{S}^{\mathrm{EH}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$, $\mathbf{S}^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ et $\mathbf{S}^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ qui permettent de réécrire le système d'équations (1.7) sous la forme

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) &= \mathbf{S}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) \cdot \mathbf{p}(\omega) + \mathbf{S}^{\mathrm{EH}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) \cdot \mathbf{m}(\omega), \\ \mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega) &= \mathbf{S}^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) \cdot \mathbf{p}(\omega) + \mathbf{S}^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) \cdot \mathbf{m}(\omega). \end{aligned} \tag{1.21}$$

Les quatre tenseurs $\mathbf{S}^{\alpha\beta}$ sont définis comme suit [47]

$$\begin{aligned} \mathbf{S}^{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) &= \mathbf{S}_0^{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) + \mathbf{S}_s^{\alpha\beta^+}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) && \text{si } \mathbf{r} \text{ et } \mathbf{r}_0 \text{ dans le même milieu} \\ \mathbf{S}^{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) &= \mathbf{S}_s^{\alpha\beta^-}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) && \text{sinon} \end{aligned} \tag{1.22}$$

où les couples $\alpha\beta$ correspondent aux différentes combinaisons d'indices E et H. Par conséquent, si l'on veut connaître le champ électromagnétique généré par un dipôle électrique ou magnétique en tout point de l'espace, nous devons être capables de définir ces huit tenseurs de surface. Cependant, le formalisme numérique de ces tenseurs est très lourd car il fait intervenir des fonctions de Bessel. Pour la susceptibilité *électrique-électrique*, le formalisme est complètement décrit dans la référence [48]. Dans ce manuscrit, nous nous sommes focalisés sur l'établissement des expressions analytiques de ces tenseurs pour la zone de champ proche (régime électrostatique) ou pour la zone de champ lointain (régime asymptotique). Nous renvoyons le lecteur à la section B de l'annexe pour le calcul analytique du tenseur *électrique-électrique* dans ces deux régimes. Celui-ci requiert le développement en série de Weyl des susceptibilités et l'application de conditions aux limites des composantes tangentielles du champ à l'interface. Ces calculs sont identiques à ceux présentés dans les références [31, 46].

1.2.2.1 Dans la zone de champ lointain

Pour déterminer comment le champ électrique est rayonné par un dipôle électrique en présence d'une surface, nous utilisons directement les expressions (B.52) et (B.54). Sur les figures 1.4 et 1.5 sont synthétisés différents diagrammes de rayonnement dans le plan yOz ($\varphi = \pi/2$ et $\theta \in [0, 2\pi]$).

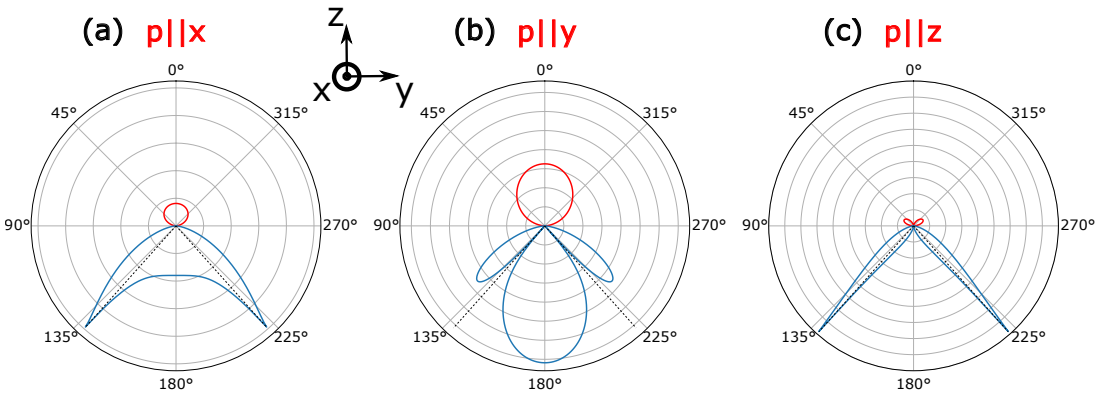

FIGURE 1.4 – Diagrammes de rayonnement dans le plan yOz d'un dipôle positionné à une hauteur $h = 10$ nm au-dessus d'une surface d'indice $n_2 = 1.5$. La longueur d'onde de travail est $\lambda_0 = 500$ nm. Le dipôle est orienté (a) selon Ox, (b) selon Oy, (c) selon Oz. La courbe rouge représente la distribution angulaire au-dessus de la surface et la courbe bleue la distribution dans le substrat. Les droites en pointillés sur les courbes représentent l'angle critique de réfraction $\theta_{\text{lim}} = \arcsin(n_1/n_2)$.

Sur la figure 1.4 sont représentés les diagrammes de rayonnement électrique pour des orientations du dipôle électrique $\mathbf{p}(\omega)$ selon les 3 axes du repère cartésien. La courbe en rouge correspond à $z > 0$ et celle en bleue à $z < 0$. Ces courbes ont déjà été décrites dans les références [49-51]. Lorsque $p \parallel x$ et $p \parallel z$, nous constatons que les lobes d'émission sous la surface sont centrés autour de l'angle critique définit par $\theta_{\text{lim}} = \arcsin(n_1/n_2)$ où $n_1 = 1, n_2 = 1.5$ dans cet exemple. Nous voyons que ces lobes d'émissions sont parfaitement symétriques par rapport à l'axe Oz. Ceci est dû au fait que l'on considère une surface de dimension infinie dans le plan xOy et un dipôle parfaitement orienté selon les axes du repère cartésien. A présent, si l'on oriente le dipôle dans la direction faisant un angle $\theta = 60°$ avec l'axe Oz, cette symétrie est brisée (Fig. 1.5), notamment les lobes d'émissions sous la surface qui sont centrés autour de l'angle critique de réfraction $\theta_{\text{lim}} = \arcsin(n_1/n_2)$. Si l'on compare les quatre diagrammes de la figure 1.5, nous observons également que le rayonnement du dipôle dans la zone interdite $\theta > \theta_{\text{lim}}$ décroit exponentiellement avec la hauteur h du dipôle, tandis que le rayonnement dans la zone permise $\theta < \theta_{\text{lim}}$ est inchangé.

Ensuite, pour déterminer le champ magnétique dans la zone de champ lointain, nous utilisons la relation (1.20).

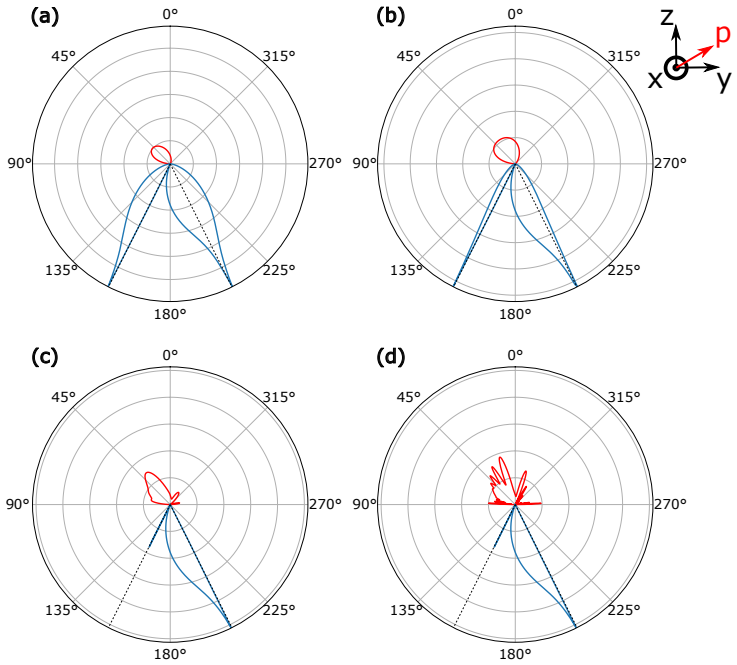

FIGURE 1.5 – Diagrammes de rayonnement dans le plan yOz d'un dipôle orienté avec un angle $\theta = 60°$ avec l'axe Oz à différentes distances d'une surface plane. Dans l'ordre des courbes, le dipôle se situe respectivement à une distance (a) $h = \lambda_0/100$, (b) $h = \lambda_0/10$, (c) $h = \lambda_0$ et (d) $h = 5\lambda_0$ avec $\lambda_0 = 500$ nm. Les deux droites en pointillés représentent l'angle critique de réfraction $\theta_{\text{lim}} = \arcsin(n_1/n_2)$ avec $n_1 = 1$ et $n_2 = 2.23$.

1.2.2.2 Dans la zone de champ proche

Afin de calculer le champ électromagnétique dans le voisinage du dipôle, nous nous plaçons dans la limite électrostatique (cf. annexe B). Celle-ci nous permet de déterminer des formes analytiques des différentes susceptibilités dans la zone de champ proche. Ces expressions sont déterminées en faisant l'approximation $c \to \infty$, mais nous pouvons aboutir au même résultat en utilisant la méthode des dipôles images [2] [43]. En champ proche, les expressions de la susceptibilité $\mathbf{S}_s^{\text{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$, respectivement au-dessus et en dessous de l'interface, sont

$$\mathbf{S}_s^{\text{EE}^+}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = r_{12} \frac{\mathbf{T}_3(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)}{\epsilon_2} \begin{pmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}, \tag{1.23a}$$

$$\mathbf{S}_s^{\text{EE}^-}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = t_{12} \mathbf{T}_3(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0), \tag{1.23b}$$

où $r_{12} = (\epsilon_1 - \epsilon_2)/(\epsilon_1 + \epsilon_2)$ et $t_{12} = 2/(\epsilon_1 + \epsilon_2)$ sont les coefficients de réflexion et de transmission à l'interface. Le calcul de ces limites électrostatiques est développé dans l'annexe B.

2. Cette théorie des dipôles images consiste à considérer, pour que le potentiel électrique associé au champ $\mathbf{E}$ ainsi que la composante normale de $\mathbf{D}$ soient continus à l'interface, que toute la réponse de la surface peut être décrite par un dipôle de signe opposé situé symétriquement au dipôle source par rapport à l'interface.

La méthode développée dans l'annexe est généralisable à un système multi-couches à l'aide de matrices de transfert permettant de décrire les réflexions/réfractions à chacune des interfaces [48, 52].

1.3 Susceptibilités du champ dans un milieu homogène pour des structures 2D

Jusqu'ici nous avons étudié la propagation de la lumière émise par des dipôles sources ponctuels dans des environnements plus ou moins complexes. Nous allons voir dans la section 1.4 que la GDM consiste dans la discrétisation d'une structure en un nombre fini de dipôles couplés entre eux via un grand tenseur contenant l'ensemble des susceptibilités entre tous ces dipôles [32]. Nous développerons cela plus tard dans le manuscrit, mais l'avantage d'utiliser des dipôles ponctuels est la capacité à discrétiser des structures tridimensionnelles de formes plus ou moins complexes. Néanmoins, il est tout à fait possible de considérer des dipôles de formes quelconques, pour cela il suffit d'ajuster l'expression des susceptibilités pour qu'elles conviennent à ceux-ci [53-55]. Si, par exemple, la géométrie qui nous intéresse est un fil infini, au lieu de discrétiser cette structure en un nombre infini de dipôles ponctuels, nous pouvons le subdiviser en un nombre fini de *"dipôles lignes"*. Cette astuce réduit considérablement le nombre de dipôles dont il faut tenir compte et par conséquent, comme nous allons le voir par la suite, le temps de calcul numérique.

L'utilisation de dipôles lignes (dipôle infiniment long dans une direction) permet de tenir compte de l'invariance de forme le long du grand axe du fil. Si l'on considère un fil dont le grand axe est selon Oy, les susceptibilités dépendront uniquement des coordonnées radiales de la position source $\mathbf{r}_0^{2D} = (x_0, z_0)$ et de la position d'évaluation $\mathbf{r}^{2D} = (x, z)$. Toute dépendance en y des susceptibilités se fera à travers un terme de phase $\exp(\mathrm{i}k_y y)$ où k_y est la composante du vecteur d'onde incident selon l'axe infini. Dans un milieu homogène, pour passer du tenseur 3D $\mathbf{S}_0^{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ au tenseur 2D $\mathbf{S}_0^{2\mathrm{D},\alpha\beta}(\mathbf{r}^{2D}, \mathbf{r}_0^{2D}, \omega)$, on réalise une intégrale sur l'axe d'invariance [32, 56]

$$\mathbf{S}_0^{2D,\alpha\beta}(\mathbf{r}^{2D}, \mathbf{r}_0^{2D}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{S}_0^{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) e^{\mathrm{i}k_y y_0} \mathrm{d}y_0 \tag{1.24}$$

avec $\mathbf{S}_0^{\alpha\beta}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ les tenseurs définis en (1.15). La nomenclature $\alpha\beta$ sert à dire que l'expression ci-dessus est valable pour tous types de susceptibilités, mais ici nous nous intéresserons uniquement aux cas *électrique-électrique* et *magnétique-électrique*.

1.3.1 Susceptibilité électrique-électrique 2D

Si nous appliquons la formule (1.24) en remplaçant $\mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ par son expression (1.15a), nous avons l'intégrale suivante à calculer

$$\mathbf{S}_0^{2D,\mathrm{EE}}(\mathbf{r}^{2D}, \mathbf{r}_0^{2D}, \omega) = \frac{1}{\epsilon_{\mathrm{env}}} \left(k^2 \mathbf{I} + \nabla\nabla\right) \int_{-\infty}^{\infty} G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) e^{\mathrm{i}k_y y_0} \mathrm{d}y_0 \tag{1.25}$$

où $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ est la fonction scalaire de Green définie d'après (1.12).

L'intégrale de $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ selon y_0 s'exprime comme la fonction de Hankel d'ordre zéro du premier type $H_0^{(1)}$ [32, 57]

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{e^{\mathrm{i}k\sqrt{R^2+(y-y_0)^2}}}{\sqrt{R^2+(y-y_0)^2}} e^{\mathrm{i}k_y y_0} \mathrm{d}y_0 = \mathrm{i}\pi H_0^{(1)}\Big(k_r\, R\Big) e^{\mathrm{i}k_y y_0} \tag{1.26}$$

où nous définissons la distance radiale $R = |\mathbf{R}^{2D}| = |\mathbf{r}^{2D} - \mathbf{r}_0^{2D}|$, et

$$k_r = \sqrt{k^2 - k_y^2} \tag{1.27}$$

avec k le nombre d'onde dans l'environnement de constante diélectrique $\epsilon_{\text{env}}(\omega)$.

En appliquant les opérateurs différentiels présents dans (1.25), nous obtenons l'expression matricielle suivante

$$\mathbf{S}_0^{2D,\text{EE}}(\mathbf{r}^{2D}, \mathbf{r}_0^{2D}, \omega) = \frac{\mathrm{i}\pi}{\epsilon_{\text{env}}} \begin{pmatrix} k^2 + \frac{\partial^2}{\partial x^2} & \mathrm{i}k_y \frac{\partial}{\partial x} & \frac{\partial^2}{\partial x \partial z} \\ \mathrm{i}k_y \frac{\partial}{\partial x} & k^2 - k_y^2 & \mathrm{i}k_y \frac{\partial}{\partial z} \\ \frac{\partial^2}{\partial z \partial x} & \mathrm{i}k_y \frac{\partial}{\partial z} & k^2 + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \end{pmatrix} \times H_0^{(1)}\Big(k_r R\Big) e^{\mathrm{i}k_y y_0}\,. \tag{1.28}$$

Pour calculer les dérivées partielles secondes dans l'expression (1.28), nous utilisons la dérivée de la fonction de Hankel d'ordre ν

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}a} H_\nu^{(1)}(a) = \frac{\nu H_\nu^{(1)}(a)}{a} - H_{(\nu+1)}^{(1)}(a)\,, \tag{1.29}$$

et la relation de récurrence entre les fonctions d'ordre $(\nu-1)$, ν et $(\nu+1)$

$$H_\nu^{(1)}(a) = \frac{a}{2\nu}\left(H_{(\nu-1)}^{(1)}(a) + H_{(\nu+1)}^{(1)}(a)\right)\,. \tag{1.30}$$

Après calculs, nous obtenons les expressions suivantes pour les neuf composantes du tenseur 2D dyadique $\mathbf{S}_0^{2D,\text{EE}}(\mathbf{r}^{2D}, \mathbf{r}_0^{2D}, \omega)$

$$S_{0,xx}^{2D,\text{EE}} = \mathrm{i}\pi\left(k_0^2 - k_r^2/(2\epsilon_{\text{env}})\right) H_0^{(1)}(k_r\, R) + \mathrm{i}\pi \frac{k_r^2\,(2(\Delta x/R)^2 - 1)}{2\epsilon_{\text{env}}} H_2^{(1)}(k_r\, R) \tag{1.31a}$$

$$S_{0,xy}^{2D,\text{EE}} = \pi \frac{k_r\, k_y\, \Delta x/R}{\epsilon_{\text{env}}} H_1^{(1)}(k_r\, R) \tag{1.31b}$$

$$S_{0,xz}^{2D,\text{EE}} = \mathrm{i}\pi \frac{k_r^2\, \Delta x \Delta z/R^2}{\epsilon_{\text{env}}} H_2^{(1)}(k_r\, R) \tag{1.31c}$$

$$S_{0,yy}^{2D,\text{EE}} = \mathrm{i}\pi\left(k_0^2 - k_y^2/\epsilon_{\text{env}}\right) H_0^{(1)}(k_r\, R) \tag{1.31d}$$

$$S_{0,yz}^{2D,\text{EE}} = \pi \frac{k_r\, k_y \Delta z/R}{\epsilon_{\text{env}}} H_1^{(1)}(k_r\, R) \tag{1.31e}$$

$$S_{0,zz}^{2D,\text{EE}} = \mathrm{i}\pi\left(k_0^2 - k_r^2/(2\epsilon_{\text{env}})\right) H_0^{(1)}(k_r\, R) + \mathrm{i}\pi \frac{k_r^2\,(2(\Delta z/R)^2 - 1)}{2\epsilon_{\text{env}}} H_2^{(1)}(k_r\, R) \tag{1.31f}$$

$$\begin{aligned} S_{0,yx}^{2D,\text{EE}} &= S_{0,xy}^{2D,\text{EE}} \\ S_{0,zx}^{2D,\text{EE}} &= S_{0,xz}^{2D,\text{EE}} \\ S_{0,zy}^{2D,\text{EE}} &= S_{0,yz}^{2D,\text{EE}} \end{aligned} \tag{1.31g}$$

avec, nous le rappelons, $\Delta x = x - x_0$ et $\Delta z = z - z_0$ et $H_0^{(1)}(k_r\, R)$, $H_1^{(1)}(k_r\, R)$ et $H_2^{(1)}(k_r\, R)$ des fonctions de Hankel du premier type.

1.3.2 Susceptibilité magnétique-électrique 2D

De manière similaire, pour la susceptibilité mixte nous avons

$$\begin{aligned}\mathbf{S}_0^{2D,\mathrm{HE}}(\mathbf{r}^{2D},\mathbf{r}_0^{2D},\omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{S}_0^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)e^{\mathrm{i}k_y y_0}\mathrm{d}y_0 \\ &= -\mathrm{i}k_0\nabla\times\int_{-\infty}^{\infty} G_0(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)e^{\mathrm{i}k_y y_0}\mathrm{d}y_0 \\ &= k_0\pi\begin{pmatrix} 0 & \frac{-\partial}{\partial z} & \frac{\partial}{\partial y} \\ \frac{\partial}{\partial z} & 0 & \frac{-\partial}{\partial x} \\ \frac{-\partial}{\partial y} & \frac{\partial}{\partial x} & 0 \end{pmatrix} H_0^{(1)}\Big(k_r R\Big)e^{\mathrm{i}k_y y_0}\end{aligned} \tag{1.32}$$

où les neuf composantes du tenseur ont les expressions suivantes

$$S_{0,xy}^{2D,\mathrm{HE}} = \pi\frac{k_0 k_r \Delta z}{R}\,H_1^{(1)}\left(k_r\,R\right) \tag{1.33a}$$
$$S_{0,xz}^{2D,\mathrm{HE}} = \mathrm{i}\pi k_0 k_y\,H_0^{(1)}\left(k_r\,R\right) \tag{1.33b}$$
$$S_{0,yz}^{2D,\mathrm{HE}} = \pi\frac{k_0 k_r \Delta x}{R}\,H_1^{(1)}\left(k_r\,R\right) \tag{1.33c}$$
$$S_{0,yx}^{2D,\mathrm{HE}} = -S_{0,xy}^{2D,\mathrm{HE}} \tag{1.33d}$$
$$S_{0,zx}^{2D,\mathrm{HE}} = -S_{0,xz}^{2D,\mathrm{HE}} \tag{1.33e}$$
$$S_{0,zy}^{2D,\mathrm{HE}} = -S_{0,yz}^{2D,\mathrm{HE}} \tag{1.33f}$$
$$S_{0,xx}^{2D,\mathrm{HE}} = S_{0,yy}^{2D,\mathrm{HE}} = S_{0,zz}^{2D,\mathrm{HE}} = 0. \tag{1.33g}$$

En première approximation, comme pour les dipôles ponctuels, nous pouvons utiliser la théorie du dipôle image pour décrire la présence d'une surface. Néanmoins, cette approche est valable uniquement dans la zone de champ proche. Pour des grandes distances, il faudrait une forme asymptotique des tenseurs 2D, ce qui n'a pas été traité dans le cadre de cette thèse.

1.4 Utilisation des tenseurs pour la Méthode Dyadique de Green

Nous avons longuement introduit les différents tenseurs de Green pour des dipôles ponctuels isolés, en présence d'un substrat, mais aussi pour des dipôles lignes. Il nous semblait important de le faire car les tenseurs de Green sont la clé de voûte de la Méthode Dyadique de Green, décrivant le couplage entre un champ d'illumination et une structure de forme aléatoire. La spécificité de la GDM est que l'étude se fait dans le domaine fréquentiel et repose sur la discrétisation de la structure étudiée en un nombre plus ou moins conséquent de dipôles. Sous l'influence du champ d'illumination, les dipôles constituant la matière vont se polariser et le couplage entre eux conduira à une réponse de la structure dans son ensemble [38]. Cette réponse dépend de la nature du matériau constituant la structure, de l'environnement dans lequel elle est plongée, mais aussi du type d'excitation lumineuse à laquelle elle est soumise [38].

1.4.1 Des équations de Maxwell dans la matière aux équations de Lippmann-Schwinger

Afin de traiter les interactions rayonnement-matière, nous partons des équations de Maxwell dans la matière. Dans le domaine fréquentiel, celles-ci s'expriment comme suit (en unité CGS)

$$\nabla \wedge \mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) = \mathrm{i}k_0[\mu_{\text{env}}(\omega)\mathbf{H}(\mathbf{r},\omega) + 4\pi\mathbf{M}(\mathbf{r},\omega)] \qquad \text{(Maxwell-Faraday)} \qquad (1.34a)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{H}(\mathbf{r},\omega) = -\frac{4\pi}{\mu_{\text{env}}(\omega)}\nabla \cdot \mathbf{M}(\mathbf{r},\omega) \qquad \text{(Maxwell-Gauss)} \qquad (1.34b)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{H}(\mathbf{r},\omega) = -\mathrm{i}k_0[\epsilon_{\text{env}}(\omega)\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) + 4\pi\mathbf{P}(\mathbf{r},\omega)] \qquad \text{(Maxwell-Ampère)} \qquad (1.34c)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) = -\frac{4\pi}{\epsilon_{\text{env}}(\omega)}\nabla \cdot \mathbf{P}(\mathbf{r},\omega) \qquad \text{(Maxwell-flux)} \qquad (1.34d)$$

où $\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega)$ (respectivement $\mathbf{H}(\mathbf{r},\omega)$) est le champ électrique (respectivement magnétique) à la position $\mathbf{r}$. $\mathbf{P}(\mathbf{r},\omega)$ et $\mathbf{M}(\mathbf{r},\omega)$ sont les polarisations électrique et magnétique, ϵ_{env} et μ_{env} sont respectivement la permittivité et la perméabilité du milieu environnant et $k_0 = \omega/c$ est le nombre d'onde de la lumière dans le vide. Afin d'avoir les équations les plus générales possible, nous gardons le terme μ_{env} différent de l'unité mais, par la suite, nous tiendrons à nouveau compte du caractère non magnétique de la matière.

Comme dans la section 1.1.2, nous appliquons l'opérateur rotationnel aux expressions de Maxwell-Faraday (Eq. (1.34a)) et Maxwell-Ampere (Eq. (1.34c)) et en réarrangeant le résultat, nous pouvons définir deux équations d'onde (une pour $\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega)$ et l'autre pour $\mathbf{H}(\mathbf{r},\omega)$) [31, 40, 43]

$$(\Delta + k^2)\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) = -4\pi\left[\frac{1}{\epsilon_{\text{env}}}(\nabla\nabla + k^2)\mathbf{P}(\mathbf{r},\omega) + \mathrm{i}k_0\nabla \wedge \mathbf{M}(\mathbf{r},\omega)\right] \qquad (1.35a)$$

$$(\Delta + k^2)\mathbf{H}(\mathbf{r},\omega) = -4\pi\left[\frac{1}{\mu_{\text{env}}}(\nabla\nabla + k^2)\mathbf{M}(\mathbf{r},\omega) + \mathrm{i}k_0\nabla \wedge \mathbf{P}(\mathbf{r},\omega)\right] \qquad (1.35b)$$

avec $k = \sqrt{\epsilon_{\text{env}}\mu_{\text{env}}}k_0$ le vecteur d'onde dans le milieu. Localement et linéairement, dans la théorie de la réponse linéaire, les polarisations électrique et magnétique sont proportionnelles aux champs électrique et magnétique d'après $\mathbf{P} = \boldsymbol{\chi}_{\text{e}} \cdot \mathbf{E}$ et $\mathbf{M} = \boldsymbol{\chi}_{\text{m}} \cdot \mathbf{H}$. La susceptibilité électrique (respectivement magnétique) est égale à $\boldsymbol{\chi}_{\text{e}}(\mathbf{r},\omega) = (\boldsymbol{\epsilon}(\omega) - \epsilon_{\text{env}}\mathbf{I})/4\pi$ (respectivement $\boldsymbol{\chi}_{\text{m}}(\mathbf{r},\omega) = (\boldsymbol{\mu}(\omega) - \mu_{\text{env}}\mathbf{I})/4\pi$) avec au numérateur la différence entre les permittivités (respectivement perméabilités) relatives de la structure et de l'environnement. Pour un peu plus de généralité, les susceptibilité et polarisabilité de l'objet $\boldsymbol{\epsilon}(\omega)$ et $\boldsymbol{\mu}(\omega)$ ont des expressions vectorielles pour tenir compte d'une éventuelle anisotropie de ces grandeurs.

Il est clair que si nous remplaçons $\mathbf{P}$ et $\mathbf{M}$ par leurs expressions dans (1.35a) et (1.35b), nous obtenons un système d'équations où $\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega)$ et $\mathbf{H}(\mathbf{r},\omega)$ sont couplés entre eux. Pour alléger le formalisme, nous introduisons la notation des *super vecteurs* : $\mathbf{F}(\mathbf{r},\omega) = \{\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega), \mathbf{H}(\mathbf{r},\omega)\}$. Ainsi, nous pouvons écrire la solution du système différentiel (1.35) comme une seule équation vectorielle de Lippmann-Schwinger [27, 39-41]

$$\mathbf{F}(\mathbf{r},\omega) = \mathbf{F}_0(\mathbf{r},\omega) + \int_V \mathbb{S}(\mathbf{r},\, \mathbf{r}_0,\omega) \cdot \boldsymbol{\chi}(\mathbf{r}_0,\omega) \cdot \mathbf{F}(\mathbf{r}_0,\omega)\mathrm{d}\mathbf{r}_0 \qquad (1.36)$$

où le champ $\mathbf{F}_0(\mathbf{r},\omega)$ est solution de l'équation homogène (en absence de structure) et l'intégrale est la solution particulière du système (1.35). Cette équation établit une relation auto-cohérente entre le champ local $\mathbf{F}(\mathbf{r},\omega)$ à la position $\mathbf{r}$ dans la structure et le champ d'illumination $\mathbf{F}_0(\mathbf{r},\omega)$ à la même position. L'intégrale est réalisée sur le volume V de la structure et le tenseur de rang 2 $\boldsymbol{\chi}(\mathbf{r}_0,\omega)$ s'exprime comme suit

$$\boldsymbol{\chi}(\mathbf{r}_0,\omega) = \begin{pmatrix} \boldsymbol{\chi}_{\mathrm{e}}(\mathbf{r}_0,\omega) & 0 \\ 0 & \boldsymbol{\chi}_{\mathrm{m}}(\mathbf{r}_0,\omega) \end{pmatrix} . \tag{1.37}$$

Le *super-propagateur* $\mathbb{S}$ (tenseur dyadique (6×6)) contient toute l'information sur le couplage électromagnétique entre la structure et l'environnement dans lequel elle est plongée

$$\mathbb{S}(\mathbf{r},\ \mathbf{r}_0,\omega) = \begin{pmatrix} \mathbf{S}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) & \mathbf{S}^{\mathrm{EH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) \\ \mathbf{S}^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) & \mathbf{S}^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) \end{pmatrix} . \tag{1.38}$$

Les expressions des quatre tenseurs du super-propagateur dépendent du système étudié. Par exemple, pour une nanostructure en présence d'une surface, on utilise les définitions (1.22). Il est très rare que des structures aient une réponse directe au champ magnétique de la lumière. Une telle réponse peut être spécifiquement forcée par la création de nanostructures de formes géométriques bien particulières (anneaux, ...) utilisées pour des métamatériaux [58, 59]. Par conséquent, nous considérerons une réponse purement diélectrique ($\boldsymbol{\chi}_{\mathrm{e}} \neq 0, \boldsymbol{\chi}_{\mathrm{m}} = 0$), de telle manière que l'équation (1.36) ne dépende que des termes $\mathbf{S}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$ et $\mathbf{S}^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$.

Alors, le champ électromagnétique local à la position $\mathbf{r}$ dans la structure s'écrit

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) &= \mathbf{E}_0(\mathbf{r},\omega) + \int_V \mathbf{S}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)\cdot\boldsymbol{\chi}_{\mathrm{e}}(\mathbf{r}_0,\omega)\cdot\mathbf{E}(\mathbf{r}_0,\omega)\mathrm{d}\mathbf{r}_0 \\ \mathbf{H}(\mathbf{r},\omega) &= \mathbf{H}_0(\mathbf{r},\omega) + \int_V \mathbf{S}^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)\cdot\boldsymbol{\chi}_{\mathrm{e}}(\mathbf{r}_0,\omega)\cdot\mathbf{E}(\mathbf{r}_0,\omega)\mathrm{d}\mathbf{r}_0 . \end{aligned} \tag{1.39}$$

1.4.2 Discrétisation volumique et système auto-cohérent

Pour une structure de forme arbitraire, le calcul numérique de l'ensemble d'équations (1.39) est basé sur la subdivision du volume de la structure en N cellules unitaires (dipôles électriques) centrées autour des positions $\mathbf{r}_i$. Sur la figure 1.6, nous représentons deux exemples de nanostructures reposant sur un substrat. La première, constituée de deux parallélépipèdes (Fig. 1.6a), est discrétisée en utilisant un maillage cubique (Fig. 1.6b). Nous utilisons ce maillage car, pour des géométries à angles droits, il permet de restituer au mieux la bordure de la structure d'étude. A contrario, pour des structures présentant des angles quelconques ou des formes arrondies, comme un cylindre par exemple (Fig. 1.6c), il est préférable d'utiliser un maillage hexagonal compact (Fig. 1.6d). La discrétisation transforme l'intégrale dans l'équation (1.39) en une somme discrète sur le nombre fini de cellules et le terme différentiel $\mathrm{d}\mathbf{r}_0$ est remplacé par le volume de la cellule unitaire V_{cell},

$$\begin{aligned} \mathbf{E}(\mathbf{r}_i,\omega) =& \mathbf{E}_0(\mathbf{r}_i,\omega) + \sum_{j=1}^{N} \mathbf{S}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}_i,\mathbf{r}_j,\omega)\cdot\boldsymbol{\chi}_{\mathrm{e}}(\mathbf{r}_j,\omega)\cdot\mathbf{E}(\mathbf{r}_j,\omega)V_{\mathrm{cell}} , \\ \mathbf{H}(\mathbf{r}_i,\omega) =& \mathbf{H}_0(\mathbf{r}_i,\omega) + \sum_{j=1}^{N} \mathbf{S}^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r}_i,\mathbf{r}_j,\omega)\cdot\boldsymbol{\chi}_{\mathrm{e}}(\mathbf{r}_j,\omega)\cdot\mathbf{E}(\mathbf{r}_j,\omega)V_{\mathrm{cell}} . \end{aligned} \tag{1.40}$$

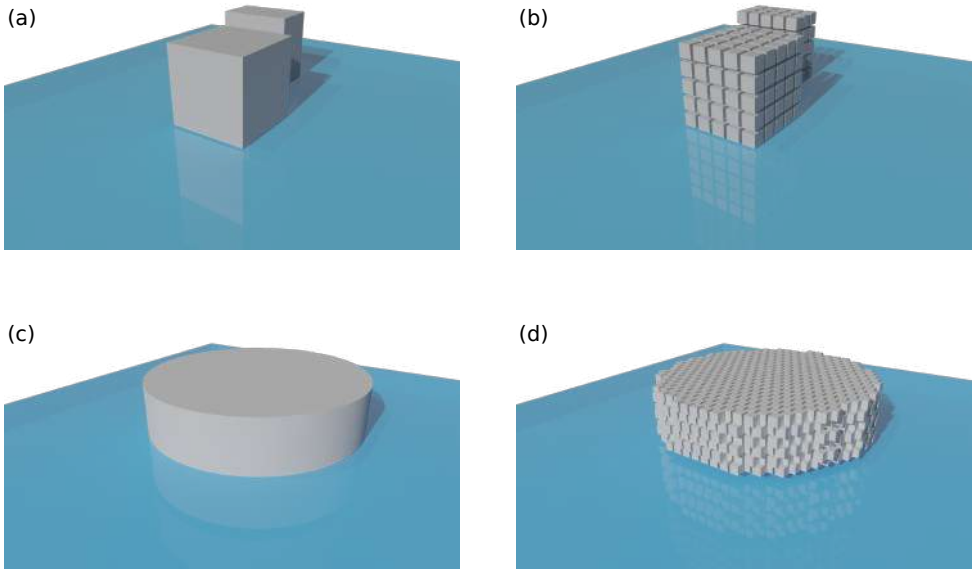

FIGURE 1.6 – Deux exemples de structures sur un substrat : (a) Deux pavés de forme cubique avec (b) leurs discrétisations en maillage cubique et (c) un cylindre avec (d) sa discrétisation en maillage hexagonal.

Dans cette procédure de discrétisation, le volume de la cellule unité V_{cell} dépend du type de maillage utilisé. En regardant le système d'équations (1.40), nous pouvons nous demander comment évaluer le champ à la position du dipôle source, autrement dit lorsque $\mathbf{r}_i = \mathbf{r}_j$.

1.4.2.1 Définition du propagateur au point source

Nous devons faire un petit aparté pour aborder ce problème de définition des susceptibilités du champ (Eq. (1.15)) au niveau du point source. Celui-ci est non négligeable dans la procédure GDM et il est dû à la définition de la fonction de Green scalaire

$$G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \frac{e^{ik|\mathbf{r}-\mathbf{r}_0|}}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}_0|}. \tag{1.41}$$

Nous constatons que cette fonction est inversement proportionnelle à la distance $R = |\mathbf{r}-\mathbf{r}_0|$ entre le point source $\mathbf{r}_0$ et le point d'évaluation $\mathbf{r}$ du champ, donc il est évident que celle-ci diverge lorsque $\mathbf{r} = \mathbf{r}_0$. Tout l'enjeu est de définir les expressions des susceptibilités $\mathbf{S}_0^{\alpha\beta}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0)$ en ce point.

Le choix du type de maillage est principalement motivé par la meilleure retranscription de la forme réelle de l'objet, mais le volume de la cellule élémentaire, évoluant avec ce choix, joue un rôle clef dans la procédure pour contourner ce problème de singularité [60]. Les dipôles étant régulièrement espacés, nous introduisons un pas de discrétisation d. Pour un maillage cubique, le volume élémentaire d'une cellule est $V_{\text{cell}} = d^3$ et pour un maillage hexagonal $V_{\text{cell}} = d^3/\sqrt{2}$ [34].

Cas 3D Pour une discrétisation tridimensionnelle, la susceptibilité $\mathbf{S}_0^{\text{EE}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0)$ a pour expression [34]

$$\mathbf{S}_0^{\text{EE}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0) = \frac{-1}{3\epsilon_{\text{env}} V_{\text{cell}}} \mathbf{I} \tag{1.42}$$

où $\mathbf{I}$ représente la matrice identité et V_{cell} le volume de la cellule. La susceptibilité mixte $\mathbf{S}_0^{\text{HE}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0)$ est nulle quel que soit le maillage. En anglais, ces tenseurs décrivant le champ à la position du dipôle sont appelés *self-term*. Par abus de langage, nous utiliserons cet anglicisme dans la suite du document.

Cas 2D Pour une discrétisation avec des dipôles lignes infinis, nous considérons uniquement un maillage cubique. Dans ce cas-là, le self-term électrique-électrique s'écrit [32]

$$\mathbf{S}_0^{2D,\text{EE}}(\mathbf{r}_0^{2D}, \mathbf{r}_0^{2D}, \omega) = \begin{pmatrix} \text{norm}_x & 0 & 0 \\ 0 & \text{norm}_y & 0 \\ 0 & 0 & \text{norm}_z \end{pmatrix} \tag{1.43}$$

avec

$$\text{norm}_x = \text{norm}_z = \frac{-4\pi}{2\epsilon_{\text{env}} S_{\text{cell}}} + 4\text{i}\pi^2 \left(2k_0^2 - \frac{k_r^2}{\epsilon_{\text{env}}}\right) \frac{H_1^{(1)}\left(k_r d/\sqrt{\pi}\right) + 2\text{i}/(\pi k_r)}{4 S_{\text{cell}} k_r} \tag{1.44}$$

et

$$\text{norm}_y = 4\text{i}\pi^2 \left(k_0^2 - \frac{k_y^2}{\epsilon_{\text{env}}}\right) \frac{H_1^{(1)}\left(k_r d/\sqrt{\pi}\right) + 2\text{i}/(\pi k_r)}{2 S_{\text{cell}} k_r} \tag{1.45}$$

où $S_{\text{cell}} = d^2$ est la surface couverte par une cellule carrée de côté d. Comme pour le tenseur de Green 3D, le self-term magnétique-électrique est nul.

1.4.2.2 Résolution du système auto-cohérent

Après cette petite parenthèse pour évoquer la définition de la susceptibilité décrivant la contribution du champ à la position du point source, nous pouvons discuter de la résolution du système (1.40).

Pour cela, nous utilisons la notation des *super-vecteurs* permettant de réduire le système d'équations à l'expression matricielle $\mathbf{F}_{0,\text{obj}} = \mathbb{M} \cdot \mathbf{F}_{\text{obj}}$, telle que

$$\mathbf{F}_{0,\text{obj}} = \begin{pmatrix} \mathbf{M}^{\text{EE}} & 0 \\ \mathbf{M}^{\text{HE}} & \mathbf{I}_{3\text{N}} \end{pmatrix} \cdot \mathbf{F}_{\text{obj}} \tag{1.46}$$

avec $\mathbf{I}_{3\text{N}}$ la matrice identité de taille 3N. $\mathbf{M}^{\text{EE}}$ et $\mathbf{M}^{\text{HE}}$ sont des matrices (3N×3N) composées de N matrices (3×3) définies par

$$\begin{aligned} \mathbf{M}^{\text{EE}}(\mathbf{r}_i,\, \mathbf{r}_j, \omega) &= \mathbf{I}\delta_{ij} - \sum_{j=1}^{N} \mathbf{S}^{\text{EE}}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, \omega) \cdot \boldsymbol{\chi}_{\text{e}}(\mathbf{r}_j, \omega) V_{\text{cell}}\,, \\ \mathbf{M}^{\text{HE}}(\mathbf{r}_i,\, \mathbf{r}_j, \omega) &= -\sum_{j=1}^{\text{N}} \mathbf{S}^{\text{HE}}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, \omega) \cdot \boldsymbol{\chi}_{\text{e}}(\mathbf{r}_j, \omega) V_{\text{cell}}\,. \end{aligned} \tag{1.47}$$

Par ailleurs, les vecteurs $\mathbf{F}_{\text{obj}}$ et $\mathbf{F}_{0,\text{obj}}$ de dimensions 6N contiennent les champs électromagnétiques à toutes les positions $\mathbf{r}_i$, et sont structurés de la manière suivante

$$\begin{aligned} \mathbf{F}_{0,\text{obj.}} &= \Big(\mathbf{E}_0(\mathbf{r}_1), \mathbf{E}_0(\mathbf{r}_2), \ldots \mathbf{E}_0(\mathbf{r}_N), \mathbf{H}_0(\mathbf{r}_1), \mathbf{H}_0(\mathbf{r}_2), \ldots, \mathbf{H}_0(\mathbf{r}_N)\Big)\,, \\ \mathbf{F}_{\text{obj.}} &= \Big(\mathbf{E}(\mathbf{r}_1), \mathbf{E}(\mathbf{r}_2), \ldots, \mathbf{E}(\mathbf{r}_N), \mathbf{H}(\mathbf{r}_1), \mathbf{H}(\mathbf{r}_2), \ldots, \mathbf{H}(\mathbf{r}_N)\Big). \end{aligned} \tag{1.48}$$

Maintenant, en inversant la matrice $\mathbb{M}$, nous pouvons déduire le champ local $\mathbf{F}_{\text{obj}}$ dans la structure en fonction du champ incident $\mathbf{F}_{0,\text{obj}}$, nous notons $\mathbb{N} = \mathbb{M}^{-1}$ tel que

$$\mathbf{F}_{\text{obj}} = \mathbb{N} \cdot \mathbf{F}_{0,\text{obj}} \,. \tag{1.49}$$

Le choix de ne pas considérer de réponse magnétique de la structure ($\boldsymbol{\chi}_{\text{m}} = 0$) intervient ici. En effet, il implique l'expression (1.46) de $\mathbb{M}$ et ce type de matrice peut être plus rapidement inversée en utilisant la méthode d'inversion par blocs de Hans Boltz [61]. Dans notre cas, la matrice inverse $\mathbb{N}$ est simplement égale à

$$\mathbb{N} = \begin{pmatrix} (\mathbf{M}^{\text{EE}})^{-1} & 0 \\ -\mathbf{M}^{\text{HE}} \cdot (\mathbf{M}^{\text{EE}})^{-1} & \mathbf{I}_{3\text{N}} \,. \end{pmatrix} \tag{1.50}$$

Le terme $(\mathbf{M}^{\text{EE}})^{-1}$ lie le champ électrique local $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega)$ au champ d'illumination $\mathbf{E}_0(\mathbf{r}, \omega)$, tous les deux dans la structure. Donc si, en plus du champ électrique, nous voulons déterminer le champ magnétique dans la structure, un simple produit de matrices suffit. Cette méthode d'inversion par blocs est intéressante car le temps de calcul requis est considérablement réduit par rapport à une inversion de la matrice (6N×6N) dans son intégralité.

La procédure présentée ici est valable quel que soit le matériau que l'on veut étudier (métallique, diélectrique, ...). Il suffit d'introduire dans la susceptibilité électrique $\boldsymbol{\chi}_{\text{e}}(\mathbf{r}, \omega)$ la constante diélectrique $\boldsymbol{\epsilon}(\omega)$ correspondante. Dans le prochain chapitre, nous nous pencherons plus en détails sur la définition de cette constante diélectrique pour différents types de matériaux : métalliques, diélectriques et diélectriques dopés.

Néanmoins, pour une bonne convergence des calculs, il faut que le pas de discrétisation d respecte le critère [62]

$$d < \frac{1}{2|n|k} \,, \tag{1.51}$$

où n est l'indice imaginaire du matériau et $k = 2\pi/\lambda$ est le vecteur d'onde dans le milieu. Le problème majeur de la GDM est que la taille des matrices augmente en N^2 (avec N le nombre de volumes élémentaires). Il est donc très facile de saturer la mémoire RAM de l'ordinateur [45]. De plus, il faut être capable d'inverser numériquement ces matrices. Or, le temps d'inversion des programmes exacts d'inversion évolue en N^3. Par conséquent, même si l'on ne sature pas la RAM, le temps de calcul explose. Pour donner un ordre d'idées, pour le petit cube au premier plan de la figure 1.6b, discrétisé avec $N = 125$ dipôles ($5 \times 5 \times 5$), la matrice $\mathbb{N}$ contiendrait $36N^2 = 562500$ termes, ce qui est déjà conséquent vu la simplicité de l'objet. De manière empirique, il semble que pour la plupart des structures métalliques ou diélectriques avec des indices de réfraction relativement petits ($n \leq 3$), illuminées avec de la lumière visible, il est suffisant de discrétiser avec un pas d'environ 10 nm. Pour des diélectriques à forts indices, il faut réduire encore plus ce pas de discrétisation [45]. De plus, afin de contourner le problème de temps de calcul, il est possible d'inverser approximativement la matrice avec des méthodes itératives d'inversion comme la méthode des gradients conjugués.

En définitive, il faut un pas de discrétisation raisonnable mais respectant le critère énoncé à l'instant ($d < 0.5/|n|k$) tout en décrivant au mieux la géométrie de la structure, ce qui n'est pas toujours évident. Par exemple, pour des structures très pointues, la géométrie requiert une discrétisation fine pour modéliser au mieux les extrémités de cette dernière. Il faut réussir à réaliser un compromis entre les propriétés géométrique et physique de la structure et les capacités de calcul de la machine utilisée.

1.4.3 Différentes illuminations

Dans les sections 1.4.1 et 1.4.2, nous avons longuement développé la procédure numérique pour traiter des structures de formes et de compositions quelconques. Nous allons parler ici de l'autre composante essentielle de ce genre de problèmes, à savoir la partie illumination. Comme précédemment évoqué, la GDM fournit une résolution des équations de Maxwell dans le domaine fréquentiel. Nous cherchons la solution du système (1.39) pour chacune des fréquences ω de la gamme spectrale qui nous intéresse. Pour cela, nous devons, dans un premier temps, être capables de définir le champ d'illumination $\mathbf{E}_0(\mathbf{r},\omega)$ en tout point $\mathbf{r}$ de l'environnement dans lequel est plongée la structure. Nous allons donc considérer un ensemble d'ondes monochromatiques $\tilde{\mathbf{E}}_0(\mathbf{r},t)$ (à chaque onde une seule fréquence associée), de formes génériques suivantes

$$\tilde{\mathbf{E}}_0(\mathbf{r},t) = \frac{1}{2}\left\{\mathbf{E}_0(\mathbf{r},\omega)e^{\mathrm{i}\omega t} + \mathbf{E}_0^*(\mathbf{r},\omega)e^{-\mathrm{i}\omega t}\right\} \tag{1.52}$$

avec $\tilde{\mathbf{E}}_0(\mathbf{r},t)$ le champ électrique et $\mathbf{E}_0(\mathbf{r},\omega)$ l'amplitude complexe du champ. Tout l'objectif de cette partie est d'être capable de trouver l'expression de l'amplitude complexe $\mathbf{E}_0(\mathbf{r},\omega)$ du champ d'illumination à toutes les positions $\mathbf{r}$ de la zone d'étude.

La première étape est de définir le champ d'illumination incident $\mathbf{E}_\mathrm{i}(\mathbf{r},\omega)$ que nous voulons considérer. Par exemple, il peut s'agir d'une onde plane, d'un faisceau gaussien, d'une illumination dipolaire, etc. [45]. Puis, dans le cadre d'un environnement formé de plusieurs couches infinies superposées, il faut en plus décrire l'ensemble des réflexions/transmissions à toutes les interfaces. Pour cela, nous appliquons les conditions aux limites des composantes normales des vecteurs $\mathbf{D}$ et $\mathbf{B}$ et des champs $\mathbf{E}$ et $\mathbf{H}$ à chacune des interfaces. Ces conditions aux limites permettent d'établir un système d'équations couplées traduisant la propagation de l'ensemble des ondes réfléchies et transmises dans tous les milieux. En résolvant ce système, nous en déduisons les coefficients de transmission et de réflexion associés à toutes les interfaces de manière auto-cohérente. Dans l'annexe A, nous avons développé cette procédure pour deux interfaces éclairées par une onde plane, polarisée s ou p, se propageant avec un angle quelconque par rapport à la normale. Pour un nombre de couches plus élevé, il est souvent plus commode d'utiliser la méthode des matrices de transfert qui est moins lourde analytiquement [63].

Nous définissons le champ d'illumination $\mathbf{E}_0(\mathbf{r},\omega)$ comme la somme vectorielle de l'onde incidente $\mathbf{E}_\mathrm{i}(\mathbf{r},\omega)$ et des différentes ondes réfléchies/réfractées dans les différents milieux. A ce point là du raisonnement, nous sommes capables de définir le champ d'éclairage pour n'importe quelle onde incidente et dans n'importe quel environnement multi-couches plan. Pour finir, si nous venons placer une structure dans cet environnement électromagnétique définit par le champ $\mathbf{E}_0(\mathbf{r},\omega)$, celle-ci est sensible au champ environnant tout en le modifiant.

Sur la figure 1.7, nous montrons une illustration qualitative avec comme exemple d'illumination une onde plane oblique polarisée p (transverse magnétique (TM)) de longueur d'onde $\lambda_0 = 710$ nm se propageant des z positifs vers les z négatifs. Nous avons choisi une direction de propagation ayant un angle $\theta_\mathrm{i} = 30°$ avec l'axe Oz (voir Fig 1.7a). Sur la figure 1.7b, l'évolution de la partie réelle de la composante E_x du champ est représentée en fonction de la position dans le plan xOz. Nous reconnaissons parfaitement les fronts d'onde d'une onde plane, la partie réelle de E_x oscillant périodiquement entre +1 et -1. Si maintenant, en $z = 0$, nous considérons que l'onde passe d'un milieu 1, d'indice optique $n_1 = 1$, à un milieu 2, d'indice $n_2 = 1.5$, (voir Fig 1.7c), il se produit la réfraction de l'onde à l'interface. Par conséquent, d'après les lois de Snell-Descartes [43], la direction de propagation dans le milieu 2 se fait

avec un angle $\theta_r = 19.5°$ (voir Fig. 1.7d). Pour finir, si l'on place une structure dans cet environnement, ici un cube d'or de taille $160 \times 160 \times 160$ nm^3, nous observons une modification supplémentaire du champ proche, due à la présence de la structure sur le substrat (voir Fig. 1.7e-f).

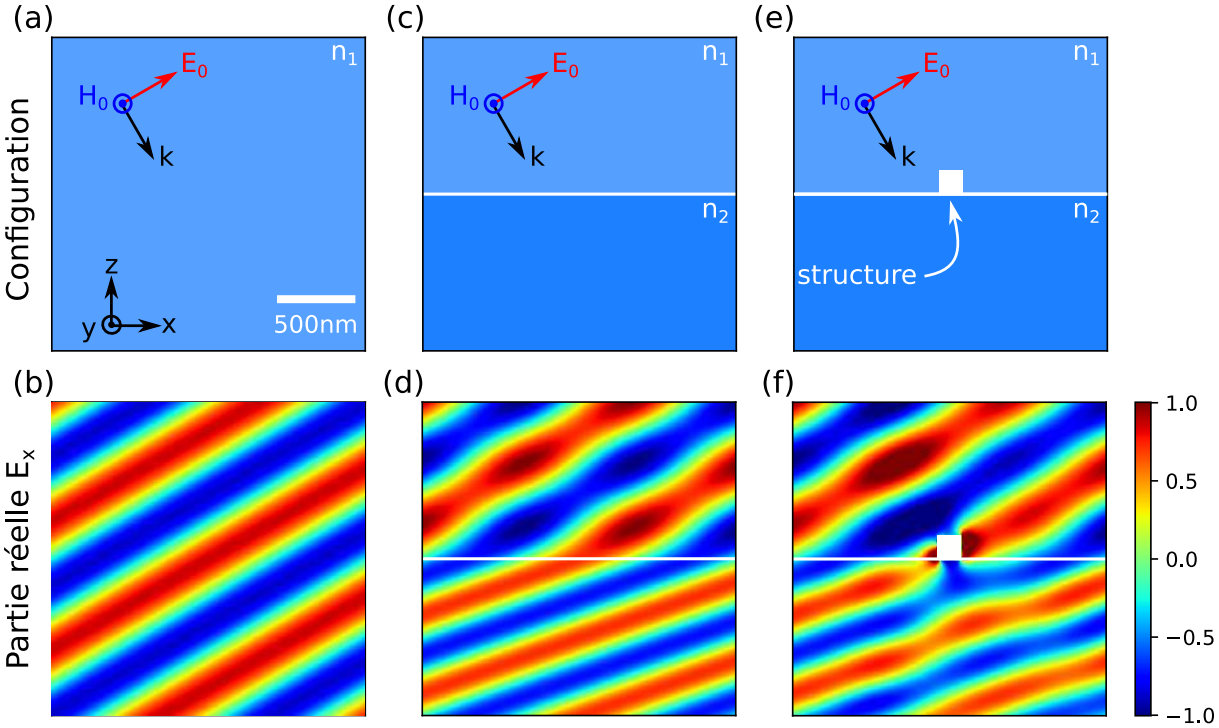

FIGURE 1.7 – Cartes représentant la partie réelle du champ électrique E_x dans le plan xOz (fenêtre de calcul : 2000×2000 nm^2). Le calcul est réalisé pour une onde plane oblique polarisée p, de longueur d'onde $\lambda_0 = 710$ nm se propageant des z positifs vers les z négatifs en faisant un angle $\theta_i = 30°$ avec l'axe Oz (a) dans un milieu homogène d'indice $n_1 = 1$, (c) en présence d'un substrat d'indice $n_2 = 1.5$ et (e) en présence d'un substrat sur lequel repose une structure cubique d'or de taille $160 \times 160 \times 160$ nm^3 (bloc blanc). Les cartes associées à chacune des configurations correspondent respectivement aux sous-figures (b), (d) et (f) [64].

Bien évidemment, à tout champ électrique d'illumination $\mathbf{E}_0(\mathbf{r}, \omega)$, nous pouvons associer un champ magnétique $\mathbf{H}_0(\mathbf{r}, \omega)$. En connaissant le champ d'illumination $\mathbf{F}_0(\mathbf{r}, \omega) = \{\mathbf{E}_0(\mathbf{r}, \omega), \mathbf{H}_0(\mathbf{r}, \omega)\}$ et en résolvant le système auto-cohérent (1.40), nous connaissons le champ électromagnétique local $\mathbf{F}(\mathbf{r}, \omega) = \{\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega), \mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega)\}$ en tout point de la structure. Dans la prochaine partie de ce chapitre, nous allons déterminer le champ local $\mathbf{F}(\mathbf{r}, \omega) = \{\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega), \mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega)\}$ en dehors de la structure et introduire les grandeurs physiques qui découlent du champ électromagnétique dehors/dedans la structure.

1.4.4 Propriétés optiques des structures

Pour connaître le champ électromagnétique en tout point $\mathbf{r}$ en dehors de la zone source, nous devons réutiliser l'équation de Lippmann-Schwinger (1.39). Cependant, nous n'avons pas besoin d'inverser la matrice comme dans la section 1.4.2.2 car la zone d'évaluation du champ est spatialement séparée de la zone source. Maintenant que le champ électromagnétique est connu en tout point de l'espace, nous sommes capables de déduire les propriétés optiques de la nanostructure étudiée.

1.4.4.1 Spectres d'extinction, d'absorption et de diffusion

Lorsqu'un objet est éclairé par une source de lumière, ce rayonnement peut être absorbé et/ou rediffusé [65]. En champ lointain, pour quantifier l'interaction rayonnement-matière, nous calculons les sections efficaces d'extinction σ_{ext}, d'absorption σ_{abs} et de diffusion σ_{sca}. L'extinction, étant tout simplement la somme de l'absorption et de la diffusion, correspond à la réduction du champ électromagnétique incident dû à la présence de la structure. Le théorème optique permet de relier σ_{ext} et σ_{abs} au champ électrique dans la structure d'après [24]

$$\sigma_{\text{ext}}(\omega) = \frac{8\pi^2}{n_{\text{env}}\lambda_0|\mathbf{E}_0(\mathbf{r},\omega)|^2}\int_{\text{V}} \text{Im}\Big\{\mathbf{E}_0^*(\mathbf{r},\omega)\cdot\mathbf{P}(\mathbf{r},\omega)\Big\}\text{d}\mathbf{r} \tag{1.53}$$

$$\sigma_{\text{abs}}(\omega) = \frac{8\pi^2}{n_{\text{env}}\lambda_0|\mathbf{E}_0(\mathbf{r},\omega)|^2}\int_{\text{V}} \text{Im}\Big\{\epsilon(\omega)\Big\}|\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega)|^2\text{d}\mathbf{r} \tag{1.54}$$

puis nous en déduisons la section de diffusion

$$\sigma_{\text{sca}}(\omega) = \sigma_{\text{ext}}(\omega) - \sigma_{\text{abs}}(\omega)\,. \tag{1.55}$$

En CGS, ces grandeurs ont la dimension d'une surface (en nm^2) et afin de faciliter l'étude, il est plus commode de travailler avec les efficacités d'extinction Q_{ext}, d'absorption Q_{abs} et de diffusion Q_{sca}, définies d'après

$$Q_{\text{ext}} = \frac{\sigma_{\text{ext}}}{\sigma_{\text{geo}}}, \quad Q_{\text{abs}} = \frac{\sigma_{\text{abs}}}{\sigma_{\text{geo}}} \quad \text{et} \quad Q_{\text{sca}} = \frac{\sigma_{\text{sca}}}{\sigma_{\text{geo}}}, \tag{1.56}$$

où σ_{geo} est la section géométrique de la structure. En calculant ces ratios, nous obtenons des valeurs relatives proportionnelles à la section géométrique de la nanostructure. Si $Q_{\text{ext}} > 1$, cela signifie que la structure semble avoir une section plus grande que ce qu'elle n'a en réalité (elle absorbe ou diffuse comme une structure de section géométrique plus grande), et au contraire si $Q_{\text{ext}} < 1$, alors elle semble plus petite que sa taille réelle. Ces structures peuvent présenter une réponse optique très élevée pour une ou plusieurs fréquences en particulier, on parle alors du phénomène de résonance. Il existe des résonances de tout type. Par exemple, pour les métaux, les résonances sont essentiellement plasmoniques (causées par une oscillation collective des électrons) [9, 66], tandis que dans les diélectriques, ce sont principalement des résonances de Mie qui prédominent (liées à un phénomène d'interférences par réflexion multiple de la lumière dans la structure) [30, 67, 68].

Nous détaillerons cet aspect dans le chapitre 2, mais pour illustrer notre discours nous avons représenté l'évolution spectrale de ces trois efficacités pour une particule sphérique d'or de rayon $R = 50$ nm dans le vide illuminée par une onde plane (figure 1.8). Nous observons une

résonance plasmonique aux alentours de $\lambda_0 = 520$ nm, pour laquelle la section efficace d'extinction effective est plus de quatre fois supérieure à la section géométrique $\sigma_{\text{geo}} = \pi R^2$ de la sphère. Nous constatons qu'à la résonance, environ un tiers de l'extinction est de l'absorption et le reste de la diffusion. Pour des structures plus petites (de l'ordre de 10 nm), l'extinction est presque exclusivement due à de l'absorption, mais dès lors que la taille des structures augmente, la diffusion apparaît et la résonance se décale vers le rouge [9].

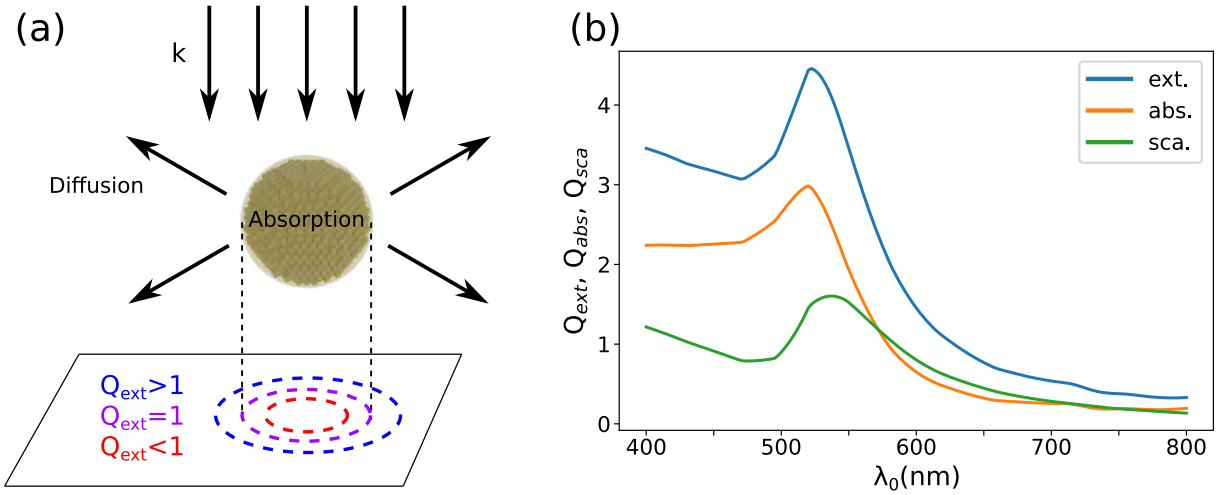

FIGURE 1.8 – Spectres des efficacités d'extinction Q_{ext}, d'absorption Q_{abs} et de diffusion Q_{sca} d'une sphère d'or de rayon $R = 50$ nm (de section géométrique $\sigma_{\text{geo}} = \pi R^2$) dans le vide illuminée par une onde plane. (a) Schéma de la sphère d'or où sont représentés les phénomènes de diffusion et d'absorption ainsi que trois exemples de section efficace d'extinction ($\sigma_{\text{ext}} > \sigma_{\text{geo}}$ en bleu, $\sigma_{\text{ext}} = \sigma_{\text{geo}}$ en magenta et $\sigma_{\text{ext}} < \sigma_{\text{geo}}$ en rouge) et (b) les spectres d'extinction, d'absorption et de diffusion associés à cette particule.

1.4.4.2 Diagramme de rayonnement

Une application envisagée par la communauté scientifique fut d'utiliser les nanostructures comme des antennes afin d'émettre un champ électromagnétique de longueur d'onde particulière, et éventuellement dans une direction bien précise [37, 69-73].

Comme dans la section précédente, nous nous intéressons aux propriétés du champ électrique dans la zone de champ lointain, mais ici nous déterminons dans quelles directions il se propage. Nous rappelons que dans cette zone, la propagation est décrite par le terme $\mathbf{T}_1^{\text{EE}}$ de la susceptibilité du champ (1.16a). Pour obtenir le champ dans cette portion de l'espace, nous devons utiliser les formes asymptotiques des susceptibilités du champ démontrées dans l'annexe B. Dans la région de propagation, les trois vecteurs ($\mathbf{E}$, $\mathbf{H}$, $\mathbf{k}$) forment un trièdre direct. Ainsi, en connaissant le champ électrique, nous pouvons aisément déduire le champ magnétique associé $\mathbf{H}$ en appliquant le produit vectoriel entre $\mathbf{k}$ et $\mathbf{E}$. Le diagramme de rayonnement d'un dipôle isolé (cf. figures 1.4 et 1.5), ou d'un ensemble de dipôles couplés entre eux via (1.40), est obtenu en calculant la puissance rayonnée par unité d'angle solide sur une grande sphère de rayon r englobant le système source [74, 75]. Cette puissance est proportionnelle à la moyenne temporelle du vecteur de Poynting $\langle \mathbf{S} \rangle = \langle \mathbf{E} \times \mathbf{H} \rangle$ dans la direction considérée.

Sur la figure 1.9, nous avons représenté un exemple de diagrammes de rayonnement pour une antenne Yagi-Uda d'or dans le vide ($n_1 = 1$) reposant sur un substrat d'indice $n_2 = 1.5$. Ce type d'antenne est aussi appelé "antenne râteau" à cause de sa forme caractéristique qui consiste en un ensemble de barreaux parallèles. Par sa géométrie, basée sur le concept des antennes radio-fréquences et sur la loi d'échelle pour ajuster à la gamme du visible [76], elle permet d'émettre un rayonnement électromagnétique en champ lointain dans une direction bien spécifique [37, 70, 77, 78]. Dans notre exemple, elle est constituée de 5 nanotubes de rayon $R = 30$ nm. De gauche à droite, nous avons le tube réflecteur de longueur $L_1 = 170$ nm, le tube d'alimentation de longueur $L_2 = 145$ nm et les trois derniers de longueurs $L_3 = 115$ nm, ces derniers étant les tubes directeurs (cf. figure 1.9a). On vient positionner un dipôle électrique $\mathbf{p}$, de longueur d'onde $\lambda_0 = 820$ nm, au voisinage du tube d'alimentation. Il permet de capter le signal émis par ce dipôle, tandis que les autres, grâce à des distances inter-tubes dépendantes de la longueur d'onde effective dans la structure [79], permettent d'émettre le champ selon les Ox positifs (cf. figure 1.9b) [78]. Puis, comme observé sur la figure 1.9c, la variation d'indice entre le milieu contenant la structure et le substrat infléchit le rayonnement autour de l'angle critique $\theta_c = \arcsin(n_1/n_2) = 222°$.

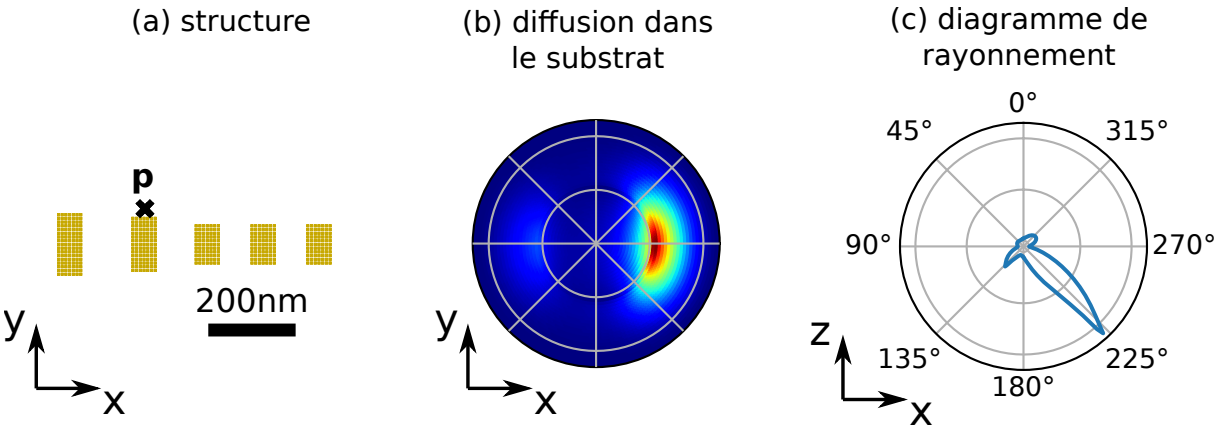

FIGURE 1.9 – Diagramme de rayonnement d'une antenne Yagi Uda d'or dans le vide ($n_1 = 1$) reposant sur un substrat d'indice de réfraction $n_2 = 1.5$. (a) Vue du dessus de la structure. Elle consiste en 5 nanotubes de rayon $R = 30$ nm, leurs longueurs sont respectivement $L_1 = 170$ nm pour le tube réflecteur (le plus à gauche), $L_2 = 145$ nm pour le tube d'alimentation (voisin du dipôle électrique, représenté par la croix noire) et $L_3 = 115$ nm pour les tubes directeurs (les trois autres). Le dipôle est orienté selon l'axe Oy et émet à la longueur d'onde $\lambda_0 = 820$ nm. (b) Vue de dessus de la distribution d'intensité du rayonnement dans le substrat. (c) Distribution angulaire du rayonnement dans le plan xOz, le maximum d'émission est centré autour de l'angle critique $\theta_c = 222°$ [64].

1.4.4.3 Zone de champ proche

Les premiers travaux dans le domaine de la nano-optique consistaient en l'étude de la distribution du champ proche autour des nano-objets. Ils ont mis en avant une concentration de l'intensité lumineuse dans des zones de l'espace inférieures à la limite de diffraction prévue par l'optique standard [80-82]. Expérimentalement, il a fallu être capable de mesurer les variations

de champ proche au voisinage de la structure isolée avec une résolution très grande (de l'ordre de la dizaine de nanomètres). Pour cela, des dispositifs à sonde locale comme le Photon Scanning Tunneling Microscope (PSTM) ou le Scanning Nearfield Optical Microscope (SNOM) ont été utilisés [83-85]. Ils permettent d'effectuer la carte du champ proche dans un plan à hauteur fixe au-dessus de l'objet, ou de mesurer les profils d'iso-intensité (balayer la pointe en changeant la hauteur pour garder l'intensité mesurée constante). Une autre grandeur intéressante est le spectre de champ proche [86], qui correspond à la variation du champ en un point fixe en fonction de la longueur d'onde d'illumination. Numériquement, il faut donc générer des données comparables à celles mesurées expérimentalement. Pour cela, nous étudions la variation de l'intensité normalisée du champ électromagnétique

$$\begin{aligned} \mathbf{I}_{\mathrm{e}}(\mathbf{r},\omega) &= \frac{|\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega)|^2}{|\mathbf{E}_0(\mathbf{r},\omega)|^2}\,, \\ \mathbf{I}_{\mathrm{h}}(\mathbf{r},\omega) &= \frac{|\mathbf{H}(\mathbf{r},\omega)|^2}{|\mathbf{H}_0(\mathbf{r},\omega)|^2}\,. \end{aligned} \tag{1.57}$$

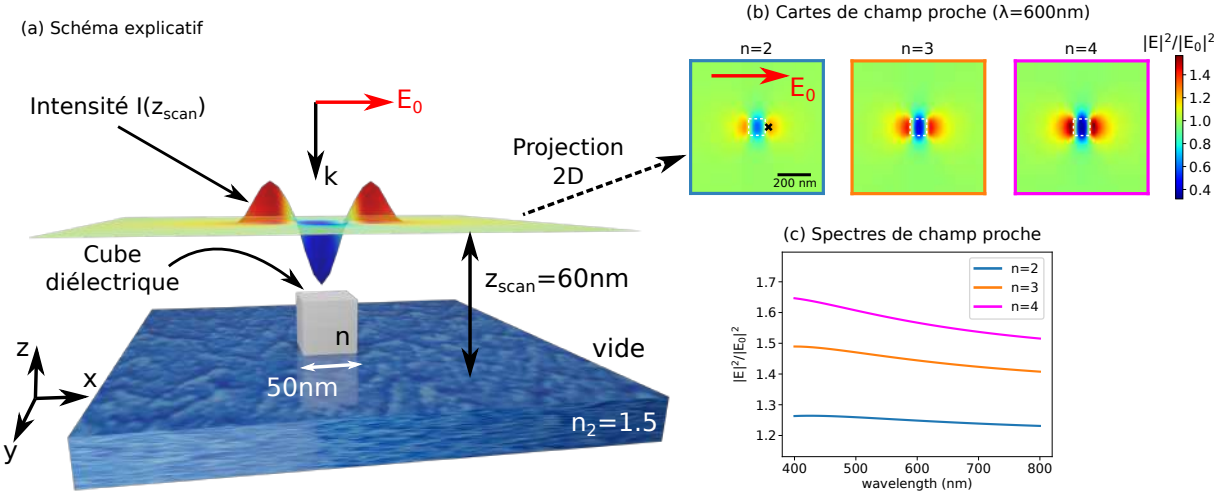

FIGURE 1.10 – (a) Schéma de la configuration d'étude : illumination, à l'aide d'une onde plane de longueur d'onde d'illumination $\lambda_0 = 600$ nm polarisée selon l'axe Ox, d'un cube diélectrique de dimension $50 \times 50 \times 50$ nm^3 positionné dans le vide et reposant sur un substrat d'indice optique $n_2 = 1.5$. (b) Projections 2D du champ proche dans le plan xOy calculées à la hauteur $z_{\mathrm{scan}} = 60$ nm pour des indices du cube $n = 2$, $n = 3$ et $n = 4$ (taille de cartes : 400×400 nm^2). (c) Spectres calculés à la position représentée par une croix noire sur la première carte (n=2).

Sur la figure 1.10, nous représentons des exemples de cartes et de spectres de champ proche. Le schéma de la configuration d'étude est représenté sur la figure 1.10a. Nous illuminons, à l'aide d'une onde plane descendante de longueur d'onde d'illumination $\lambda_0 = 600$ nm polarisée selon l'axe Ox, un cube diélectrique de dimension $50 \times 50 \times 50$ nm^3 positionné dans le vide et reposant sur un substrat d'indice optique $n_2 = 1.5$. Nous nous intéressons à l'intensité du champ à la hauteur $z_{\mathrm{scan}} = 60$ nm au-dessus de la surface, pour trois indices différents du cube ($n = 2, n = 3$ et $n = 4$). Les cartes associées aux trois valeurs d'indices sont synthétisées sur la figure 1.10b. Nous observons des résultats parfaitement connus, avec une intensité maximale (respectivement minimale) au-dessus du bord (respectivement centre) du cube [35, 87]. Pour

$n = 4$, nous observons (en raison de la présence de la particule) une exaltation maximale du champ de l'ordre de 60% et une atténuation d'au plus 65% contre 25% et 40% pour $n = 2$. Par conséquent, le contraste optique est d'autant plus fort que la différence d'indice entre la partie réelle de n et l'environnement n_{env} (ici le vide) est élevée [88].

Ensuite, pour fournir une étude complète du champ proche, nous avons calculé les spectres de champ proche à la position présentant le maximum d'intensité (croix noire sur la première carte de la figure 1.10b). Quel que soit l'indice, nous constatons que la variation du champ est relativement faible sur l'ensemble de la gamme spectrale (environ 10%), ceci étant dû au fait que n est constant pour toutes les longueurs d'onde. Dans la réalité, l'indice optique des matériaux évolue plus ou moins fortement en fonction de la longueur d'onde, par exemple du fait de transitions inter-bandes, intra-bandes ou de vibrations du réseau cristallin (phonons) [1, 89-91]. L'étude du spectre de champ proche fait donc un peu plus de sens pour ces matériaux. Dans notre cas, pour que l'étude deviennent plus intéressante, il aurait fallu considérer une structure plus grande permettant des résonances optiques. Mais nous reviendrons un peu plus en détails sur ces aspects dans le second chapitre de cette thèse.

1.4.4.4 Densité locale d'états photoniques (LDOS)

Le formalisme des tenseurs de Green ne sert pas uniquement à déduire le champ électromagnétique dans et en dehors de la structure, mais il permet aussi de calculer la densité d'états photoniques (Local Density of States (LDOS) en anglais) au voisinage de celle-ci. C'est une grandeur étudiée dans la zone proche de l'objet en complément de la distribution de champ [92-94]. Pour remonter à cette dernière, il est possible d'utiliser une pointe SNOM à sonde passive ou à sonde active. Pour avoir une sonde active, des émetteurs quantiques présentant des transitions dipolaires sont fixés à l'extrémité de la pointe [94-97]. En supposant que ces derniers sont excités à saturation, leur émission va dépendre de canaux disponibles pour extraire des photons. La LDOS recense le nombre de modes du champ électromagnétique disponibles à une énergie $\hbar\omega$ donnée [28, 29]. Les atomes de terres rares, et plus particulièrement les ions europium Eu^{3+}, sont un type de systèmes quantiques utilisés car ils présentent l'avantage d'avoir des transitions dipolaires d'origine électrique et magnétique d'intensités comparables [98, 99], permettant d'imager en même temps les LDOS électrique et magnétique [94, 100].

Si nous considérons un dipôle (électrique ou magnétique) oscillant de fréquence ω dans le vide, de part l'uniformité du milieu, il a la même probabilité d'émettre des photons quelle que soit sa position dans l'espace. Autrement dit, le nombre de modes accessibles par les photons est en tout point identique. On parle tout simplement de LDOS photonique du vide $\rho_0(\omega)$ [38, 101]

$$\rho_0(\omega) = \frac{\omega^2}{\pi^2 c^3} \tag{1.58}$$

où c est la vitesse de la lumière et ω la fréquence d'oscillation du dipôle.

Maintenant, si on positionne une structure dans le voisinage du dipôle, le nombre de modes accessibles par les photons ne sera pas le même selon la position relative entre les deux objets [94]. De plus, par la présence de la structure, il peut exister une séparation entre les LDOS d'origine magnétique $\rho_{\text{H}}(\mathbf{r}_0, \omega)$ et électrique $\rho_{\text{E}}(\mathbf{r}_0, \omega)$ [100, 102]. Cela signifie que pour une même position relative, dans la zone de champ proche, deux dipôles (un électrique et l'autre magnétique) n'ont pas la même probabilité d'émettre des photons.

Les grandeurs décrivant ces variations sont les LDOS magnétique et électrique qui, dans le formalisme de Green, s'expriment en fonction de deux susceptibilités $\mathbf{S}^{\text{HH}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0, \omega)$ et $\mathbf{S}^{\text{EE}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0, \omega)$

d'après [103]

$$\rho_{\mathrm{H}}(\mathbf{r}_0,\omega) = \frac{1}{2\pi^2\omega}\mathrm{Im}\left[\mathrm{Tr}(\mathbf{S}^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r}_0,\mathbf{r}_0,\omega))\right] , \tag{1.59a}$$

$$\rho_{\mathrm{E}}(\mathbf{r}_0,\omega) = \frac{1}{2\pi^2\omega}\mathrm{Im}\left[\mathrm{Tr}(\mathbf{S}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}_0,\mathbf{r}_0,\omega))\right] . \tag{1.59b}$$

où Im représente la partie imaginaire, Tr la trace et $\mathbf{r}_0$ la position du dipôle. Dans ces deux dernières expressions, les tenseurs sont définis comme

$$\mathbf{S}^{\mathrm{HH/EE}}(\mathbf{r}_0,\mathbf{r}_0,\omega) = \mathbf{S}_0^{\mathrm{HH/EE}}(\mathbf{r}_0,\mathbf{r}_0,\omega) + \mathbf{S}_{\mathrm{p}}^{\mathrm{HH/EE}}(\mathbf{r}_0,\mathbf{r}_0,\omega) \tag{1.60}$$

où le tenseur $\mathbf{S}_0^{\mathrm{HH/EE}}(\mathbf{r}_0,\mathbf{r}_0,\omega)$ représente la réponse fonction du vide définie en (1.16) (ou (1.22), pour un environnement avec substrat) et $\mathbf{S}_{\mathrm{p}}^{\mathrm{HH/EE}}(\mathbf{r}_0,\mathbf{r}_0,\omega)$ est la réponse associée à la nanostructure.

En développant les susceptibilités dans les deux expressions (1.59), nous faisons apparaître la LDOS du vide

$$\rho_{\mathrm{H}}(\mathbf{r}_0,\omega) = \rho_0(\omega) + \frac{1}{2\pi^2\omega}\mathrm{Im}\left[\mathrm{Tr}(\mathbf{S}_{\mathrm{p}}^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r}_0,\mathbf{r}_0,\omega))\right] , \tag{1.61a}$$

$$\rho_{\mathrm{E}}(\mathbf{r}_0,\omega) = \rho_0(\omega) + \frac{1}{2\pi^2\omega}\mathrm{Im}\left[\mathrm{Tr}(\mathbf{S}_{\mathrm{p}}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}_0,\mathbf{r}_0,\omega))\right] . \tag{1.61b}$$

Pour imager la séparation des LDOS, nous considérons par la suite une configuration entièrement descriptible analytiquement. Il s'agit du dipôle magnétique d'un ion europium Eu^{3+}, situé en $\mathbf{r}_0$, en présence d'une particule sphérique de silicium $R_{\mathrm{sphere}} = 10$ nm suffisamment petite pour être considérée comme ponctuelle (le tout dans le vide), voir figure 1.11. Pour alléger le calcul, nous supposerons que la particule est au centre du repère cartésien. La procédure présentée est celle pour le dipôle magnétique $\mathbf{m}(\omega)$ mais, par analogie, on en déduira celle pour le dipôle électrique $\mathbf{p}(\omega)$. Ce dipôle émet un champ électromagnétique qui induit un dipôle électrique $\mu_{\mathrm{p}}(\omega)$ dans la sphère diélectrique. Il a pour expression

$$\begin{aligned}\mu_{\mathrm{p}}(\omega) &= \alpha(\omega)\cdot\mathbf{E}(0,\omega)\\ &= \alpha(\omega)\cdot\mathbf{S}_0^{\mathrm{EH}}(0,\mathbf{r}_0,\omega)\cdot\mathbf{m}(\omega)\end{aligned} \tag{1.62}$$

où $\alpha(\omega)$ est la polarisabilité de la nano-sphère définie d'après [24, 65]

$$\alpha(\omega) = R_{\mathrm{sphere}}^3\frac{\epsilon(\omega)-1}{\epsilon(\omega)+2} \tag{1.63}$$

avec $\epsilon(\omega)$ la constante diélectrique de la particule. La particule qui est devenue, sous l'influence du dipôle magnétique, un dipôle dynamique électrique va maintenant engendrer un champ magnétique $\mathbf{H}(\mathbf{r},\omega)$ en tout point $\mathbf{r}$ de l'espace, qui s'exprime [102]

$$\begin{aligned}\mathbf{H}(\mathbf{r},\omega) &= \mathbf{S}_0^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r},0,\omega)\cdot\alpha(\omega)\cdot\mathbf{S}_0^{\mathrm{EH}}(0,\mathbf{r}_0,\omega)\cdot\mathbf{m}(\omega)\\ &= \mathbf{S}_{\mathrm{p}}^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)\cdot\mathbf{m}(\omega)\,.\end{aligned} \tag{1.64}$$

Dans cette dernière équation, les deux tenseurs $\mathbf{S}_0^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r},0,\omega)$ et $\mathbf{S}_0^{\mathrm{EH}}(0,\mathbf{r}_0,\omega)$ sont les susceptibilités mixtes du champ (1.18) et $\mathbf{S}_{\mathrm{p}}^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$ correspond à la réponse de la particule évoquée dans l'équation (1.61a). Le calcul de la réponse électrique se déduit exactement de la même

manière, à la différence que l'on remplace les deux susceptibilités mixtes par les susceptibilités électrique-électrique, mais toujours avec les mêmes points d'évaluation des champs [92]

$$\mathbf{S}_{\mathrm{p}}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) = \mathbf{S}_{0}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r},0,\omega)\cdot\alpha(\omega)\cdot\mathbf{S}_{0}^{\mathrm{EE}}(0,\mathbf{r}_0,\omega)\,. \tag{1.65}$$

Pour finir, afin d'évaluer les LDOS, on calcule les expressions des tenseurs $\mathbf{S}_{\mathrm{p}}^{\mathrm{HH/EE}}(\mathbf{r}_0,\mathbf{r}_0,\omega)$ à la position des dipôles $\mathbf{r}_0$ et on les introduit dans les équations (1.61).

Nous développons les produits de tenseurs des équations (1.64) et (1.65) en supposant que le dipôle émetteur est contenu dans le plan $\mathbf{r}_0 = (0, y_0, z_0)$. Cela permet d'obtenir des expressions de $\mathbf{S}_{\mathrm{p}}^{\mathrm{HH}}$ et $\mathbf{S}_{\mathrm{p}}^{\mathrm{EE}}$ relativement simples dans lesquelles nous pouvons discerner facilement la contribution de la structure dans la zone de champ proche et celle de champ lointain. Après calcul et simplification, nous obtenons pour la LDOS magnétique

$$\mathbf{S}_{\mathrm{p}}^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r}_0,\mathbf{r}_0,\omega) = \alpha(\omega)Ce^{2\mathrm{i}k_0r_0}\left\{-\frac{k_0^4}{r_0^4}-\frac{2\mathrm{i}k_0^3}{r_0^5}+\frac{k_0^2}{r_0^6}\right\}, \tag{1.66}$$

où la matrice C vaut

$$C = \begin{pmatrix} z_0^2+y_0^2 & 0 & 0 \\ 0 & z_0^2 & -z_0y_0 \\ 0 & -z_0y_0 & y_0^2 \end{pmatrix}. \tag{1.67}$$

De même, pour la LDOS électrique

$$\mathbf{S}_{\mathrm{p}}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}_0,\mathbf{r}_0,\omega) = \alpha(\omega)e^{2\mathrm{i}k_0r_0}\left[\left\{\frac{k_0^4}{r_0^4}+\frac{2\mathrm{i}k_0^3}{r_0^5}-\frac{2k_0^2}{r_0^6}\right\}A+\left\{\frac{1}{r_0^8}-\frac{2\mathrm{i}k_0}{r_0^7}-\frac{k_0^2}{r_0^6}\right\}B\right] \tag{1.68}$$

avec

$$A = \begin{pmatrix} z_0^2+y_0^2 & 0 & 0 \\ 0 & z_0^2 & -y_0z_0 \\ 0 & -y_0z_0 & y_0^2 \end{pmatrix} \tag{1.69}$$

et

$$B = \begin{pmatrix} z_0^2+y_0^2 & 0 & 0 \\ 0 & 4y_0^2+z_0^2 & 3y_0z_0 \\ 0 & 3y_0z_0 & 4z_0^2+y_0^2 \end{pmatrix}. \tag{1.70}$$

Sur la figure 1.11, nous avons représenté le calcul des LDOS électrique et magnétique selon une ligne à hauteur fixe en utilisant les équations (1.61) dans lesquelles nous avons injecté les matrices (1.66) et (1.68). Nous observons tout d'abord qu'au plus près de la particule, la LDOS électrique prédomine. Ceci provient des termes $1/r_0^8$ et $1/r_0^7$ de l'équation (1.68) qui n'existent pas pour la LDOS magnétique. De plus, le second détail remarquable est l'inversion de contraste entre les deux LDOS en périphérie de la particule. Par conséquent, comme nous l'avions évoqué précédemment, en tout point de l'espace, deux dipôles de natures différentes n'ont pas les mêmes probabilités d'émettre des photons.

La GDM est surtout intéressante pour modéliser le couplage entre une structure de forme arbitraire et un dipôle pour déduire la contribution de la structure aux LDOS. Dans ce cas-là, le résultat n'est plus analytique et requiert la procédure de discrétisation évoquée dans la section 1.4.2. Dans la définition des LDOS (1.61), les termes qui seront modifiés sont les susceptibilités associées à la particule $\mathbf{S}_{\mathrm{p}}^{\mathrm{HH/EE}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0, \omega)$ qui vont s'écrire sous forme de deux intégrales [102]

$$\mathbf{S}_{\mathrm{p}}^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \int_V \mathrm{d}\mathbf{r}' \int_V \mathrm{d}\mathbf{r}'' \mathbf{S}_0^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \cdot \chi_{\mathrm{e}}(\mathbf{r}', \omega) \cdot \mathbf{K}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}', \mathbf{r}'', \omega) \cdot \mathbf{S}_0^{\mathrm{EH}}(\mathbf{r}'', \mathbf{r}_0, \omega) \quad (1.71)$$

et

$$\mathbf{S}_{\mathrm{p}}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \int_V \mathrm{d}\mathbf{r}' \int_V \mathrm{d}\mathbf{r}'' \mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \cdot \chi_{\mathrm{e}}(\mathbf{r}', \omega) \cdot \mathbf{K}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}', \mathbf{r}'', \omega) \cdot \mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}'', \mathbf{r}_0, \omega) \quad (1.72)$$

avec $\mathbf{K}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}', \mathbf{r}'', \omega)$ le propagateur généralisé [27, 29, 30, 38, 45]. Les intégrales sont réalisées sur le volume de la nanostructure et permettent de décrire le couplage entre tous les dipôles induits dans la structure par le dipôle source positionné en $\mathbf{r}_0$. Numériquement, les intégrales sont transformées en sommes discrètes, et comme les couples $\mathbf{r}'$ et $\mathbf{r}''$ sont toujours les mêmes, le calcul peut être fortement accéléré en pré-calculant les tenseurs de Green [64].

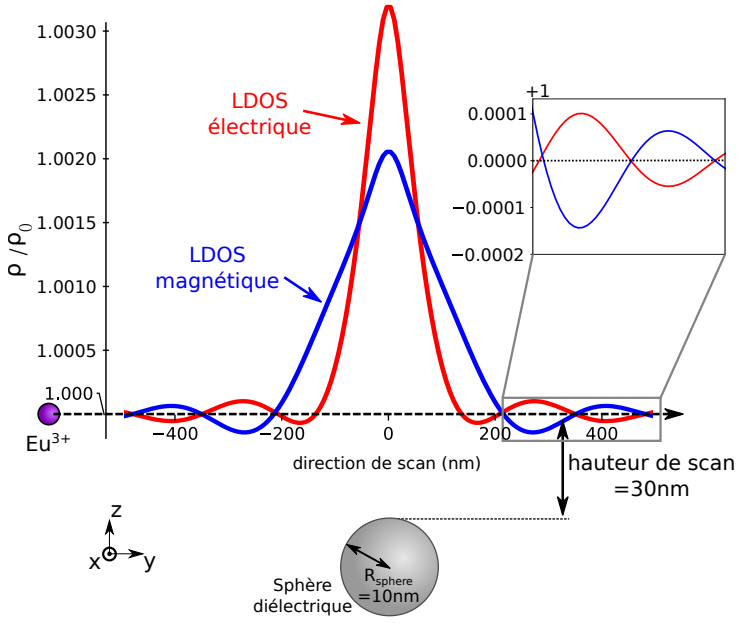

FIGURE 1.11 – Densité d'états photoniques d'un ion europium Eu^{3+}, vu de manière simpliste comme un ensemble de deux dipôles (un électrique, l'autre magnétique), au voisinage d'une sphère de silicium dans le vide. Le dipôle électrique a une longueur d'onde d'oscillation $\lambda_{\mathrm{ED}} = 610$ nm et le magnétique $\lambda_{\mathrm{MD}} = 590$ nm. Les LDOS sont calculées selon une ligne à hauteur fixe (30 nm) au-dessus de la surface supérieure de la sphère de rayon $R_{\mathrm{sphere}} = 10$ nm située au centre du système de coordonnées. La LDOS électrique (respectivement magnétique) est représentée en rouge (respectivement bleue) [100].

Chapitre 2

Matériaux conventionnels et semi-conducteurs hyperdopés pour la plasmonique

Dans le chapitre précédent, nous avons détaillé en intégralité la méthode des tenseurs de Green qui est un modèle générique s'appliquant à un large panel de matériaux [45]. Nous avons montré un petit échantillon de propriétés optiques déduites à l'aide de ces outils numériques. Ces dernières dépendent fortement de la nature du matériau étudié et notamment de sa constante diélectrique. Dans le domaine de la nano-optique, il existe deux grandes catégories de matériaux, qui sont les diélectriques et les métaux plasmoniques. Il est donc important de décrire en quoi diffère la constante diélectrique d'un métal de celle d'un diélectrique.

Le premier objectif de ce chapitre est de développer cet aspect et de comprendre pourquoi (et comment) la réponse plasmonique de nano-structures métalliques est totalement différente de la réponse optique de structures diélectriques. Cela nous permettra ensuite d'étendre la méthode des tenseurs de Green à la modélisation des propriétés optiques d'un nouveau type de matériau dans le domaine de la nano-optique, qui est un des objectifs de cette thèse : les nanostructures de semi-conducteurs hyperdopés.

En anticipant sur les systèmes expérimentaux que nous étudierons dans le chapitre 4 et qui seront réalisés à partir de substrats SOI (Silicon On Insulator), nous modéliserons la réponse optique du substrat de silice qui supporte ces nanostructures et nous verrons qu'elle peut être fortement exaltée en interagissant avec ces dernières dans la gamme infrarouge.

Enfin, dans une dernière partie, nous présenterons un formalisme qui permet de dépasser une des principales limites de la méthode des tenseurs de Green qui ne modélise que l'objet unique et non une assemblée d'objets potentiellement en interaction entre eux, comme c'est souvent le cas expérimentalement. Notre stratégie consiste à approximer chaque structure, petite par rapport à la longueur d'onde, par un dipôle pour lequel nous associons une polarisabilité effective dipolaire, puis à coupler les structures entre elles en utilisant la GDM.

Ce chapitre est basé en partie sur la publication [39].

2.1 Plasmonique "standard" avec des structures de métaux nobles

Cette section a pour but de synthétiser l'état de l'art de l'étude des propriétés plasmoniques des métaux nobles. Nous aborderons notamment le modèle de Drude qui permet de décrire le comportement des électrons de la bande de conduction lorsqu'ils sont soumis à un champ élec-

tromagnétique. A titre d'exemple, nous considérerons l'or et l'argent mais tout ce formalisme peut être appliqué aux autres métaux nobles tels que le cuivre et l'aluminium.

2.1.1 Constante diélectrique des métaux et modèle de Drude

2.1.1.1 De l'atome au cristal : de l'orbitale atomique à la structure de bandes

Pour débuter le raisonnement, rappelons que l'or et l'argent sont des métaux de transition ayant pour configurations électroniques $[Xe]4f^{14}5d^{10}6s^{1}$ et $[Kr]4d^{10}5s^{1}$, respectivement [104]. Ces deux matériaux présentent une couche d complètement remplie et une couche s (6s pour l'or et 5s pour l'argent) partiellement occupée avec un seul électron. Cet électron de valence sera à l'origine des propriétés métalliques, notamment les conductions électrique et thermique [1, 105].

Nous travaillons avec des structures "macroscopiques" cristallines. Par conséquent, nous devons aller plus loin que cette description de l'atome unique et rentrer dans le domaine de la physique des solides. La physique des solides, par le biais de la théorie des bandes, permet de modéliser les états énergétiques que peuvent prendre les électrons d'un solide cristallin. Un cristal est un solide dont les atomes sont répartis périodiquement sur un maillage élémentaire spécifique. Les électrons sont en présence du potentiel périodique des noyaux des atomes chargés positivement. Le recouvrement des fonctions d'ondes des électrons de tous les atomes donne naissance à un continuum d'états électroniques accessibles [106]. Les états sont regroupés en deux catégories de bandes : les bandes de conduction (BC) et de valence (BV) [104-107]. Les électrons qui appartiennent à la BV sont ceux qui permettent la cohésion du cristal tandis que ceux appartenant à la BC sont beaucoup plus libres de mouvement et contribuent aux propriétés de conduction. Par abus de langage, à cause de leur grande mobilité, on emploie même le terme d'*électrons libres*.

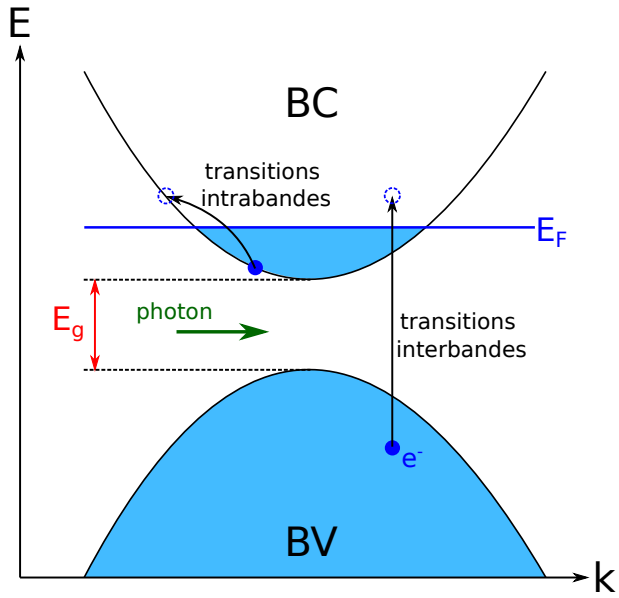

FIGURE 2.1 – Schéma simplifié de la structure de bandes à gap direct pour un cristal métallique. La ligne horizontale E_F est le niveau de Fermi et E_g est l'énergie de la bande interdite. Nous avons symbolisé, à l'aide des deux flèches noires, des exemples de transitions intrabandes et interbandes.

Pour montrer la forme générique d'une structure de bandes, nous schématisons très simplement sur la figure 2.1 la structure de bande à gap direct d'un métal. La ligne horizontale bleue correspond au niveau de Fermi E_F qui est le dernier état occupé par des électrons à température $T = 0$ K. L'énergie E_g est la bande d'énergie interdite entre la bande de valence complètement remplie (ou partiellement vide) et la bande de conduction complètement vide (ou partiellement remplie).

A $T = 0$ K, la bande de conduction d'un métal est occupée par des électrons alors qu'elle est vide pour un diélectrique. Les métaux présentent donc des électrons pouvant participer à la conduction électrique (matériaux conducteurs), tandis que pour les diélectriques, ce n'est pas le cas (matériaux isolants). Pour l'or (respectivement l'argent), la bande de conduction est peuplée de l'ensemble des électrons de la couche $6s^1$ (respectivement $5s^1$) de tous les atomes du cristal [105]. Ayant une approche très schématique, nous omettons le fait que la taille de la bande interdite dépend de la direction cristallographique qui nous intéresse. N'ayant pas besoin d'entrer en détails dans la description de ce phénomène, nous renvoyons le lecteur vers les nombreux ouvrages qui traitent de ce sujet [104-107].

Si l'on apporte à notre cristal de l'énergie sous forme lumineuse, sous certaines conditions les électrons l'absorbent et passent dans des états non occupés de plus haute énergie. On parle de *transitions intrabandes* si, après excitation, les électrons restent dans la même bande qu'avant excitation. Sur la figure 2.1, nous avons représenté un exemple de transition intrabande où un électron de la bande de conduction passe sur un état au-dessus du niveau de Fermi. Ces transitions ne nécessitant pas un apport énergétique très conséquent (dans l'infrarouge pour les métaux), elles se produisent facilement. A contrario, si l'on apporte une énergie supérieure à l'énergie du gap E_g (cf. figure 2.1), les électrons de la bande de valence peuvent atteindre des états énergétiques dans la bande de conduction [105]. Dans ce cas, on parle de *transitions interbandes*. Pour l'or ou l'argent, les photons qui permettent ces transitions ont des énergies correspondant au spectre visible.

Nous parlons de gap direct depuis le début, mais il existe aussi des matériaux à gap indirect, avec les extrema des BV et de BC qui ne sont pas à la même valeur du vecteur d'onde k. Pour ceux-ci, les transitions interbandes ne sont possibles qu'avec l'absorption d'un phonon, en supplément de l'absorption du photon, permettant la conservation du moment en plus de la conservation de l'énergie [104, 106].

2.1.1.2 Modèle de Drude du gaz d'électrons libres

Pour les métaux, les propriétés des électrons de la bande de conduction se décrivent à l'aide du modèle de Drude. Ce modèle est pleinement expliqué dans la référence [1], ici nous n'en rappelons que les points clefs.

Ce modèle consiste à voir cet ensemble d'électrons comme un gaz libre de densité n et de masse effective m^* se déplaçant au-dessus des noyaux des atomes (chargés positivement). Cette masse est inversement proportionnelle à la dérivée seconde de l'énergie E par rapport au vecteur d'onde $\mathbf{k}$ [104, 106]

$$m^* = \frac{\hbar^2}{\frac{\mathrm{d}^2 E}{\mathrm{d}k^2}} \,. \tag{2.1}$$

Par conséquent, plus la bande est courbée, plus la masse des électrons est faible (il faut peu d'impulsion pour changer l'énergie de l'électron) et vice versa. Sous l'action d'un champ d'illumination $\mathbf{E}(t)$, ces électrons vont osciller à la fréquence ω autour d'une position d'équilibre $\mathbf{x}_0$.

Durant leur déplacement, les électrons subissent des collisions soit avec des impuretés dans le cristal ou bien encore avec les noyaux eux-mêmes [105]. Pour tenir compte de ces collisions, un facteur d'amortissement γ est introduit dans le modèle. Ce terme est inversement proportionnel au temps τ entre deux collisions successives de l'électron et donc s'exprime en Hertz (Hz). Typiquement, pour les métaux ce facteur d'amortissement est de l'ordre de $\gamma = 100$ THz.

L'équation du mouvement d'un de ces électrons dépend de tous les paramètres évoqués à l'instant

$$m^*\ddot{\mathbf{x}} + m^*\gamma\dot{\mathbf{x}} = -e\mathbf{E} \tag{2.2}$$

où $\mathbf{x}$ est la position de l'électron et e sa charge. Nous considérons un champ d'illumination harmonique de la forme $\mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 e^{-\mathrm{i}\omega t}$. Par conséquent, la variation de la position de l'électron sera aussi harmonique. En résolvant l'équation précédente, on aboutit à la solution

$$\mathbf{x}(t) = \frac{e}{m^*(\omega^2 + \mathrm{i}\omega\gamma)}\mathbf{E}(t)\,. \tag{2.3}$$

La polarisation électrique dans la matière $\mathbf{P}(t)$ est proportionnelle aux déplacements de tous les électrons

$$\mathbf{P}(t) = -ne\mathbf{x}(t)\,. \tag{2.4}$$

En remplaçant $\mathbf{x}(t)$ par son expression, on obtient l'équation

$$\mathbf{P}(t) = -\frac{ne^2}{m^*(\omega^2 + \mathrm{i}\gamma\omega)}\mathbf{E}(t)\,. \tag{2.5}$$

Pour connaître l'expression de la constante diélectrique du matériau $\epsilon_{\mathrm{D}}(\omega)$, nous utilisons les différentes formules du déplacement électrique $\mathbf{D}(t)$

$$\begin{aligned}\mathbf{D}(t) &= \epsilon_{\mathrm{D}}(\omega)\mathbf{E}(t)\\ &= \mathbf{E}(t) + 4\pi\mathbf{P}(t)\,.\end{aligned} \tag{2.6}$$

En remplaçant $\mathbf{P}(t)$ par son expression, nous avons

$$\mathbf{D}(t) = \left(1 - \frac{4\pi ne^2}{m^*(\omega^2 + \mathrm{i}\gamma\omega)}\right)\mathbf{E}(t)\,. \tag{2.7}$$

En comparant les deux dernières équations, nous en déduisons l'expression de la constante diélectrique dans le modèle de Drude

$$\epsilon_{\mathrm{D}}(\omega) = 1 - \frac{\omega_{\mathrm{p}}^2}{\omega^2 + \mathrm{i}\gamma\omega}\,, \tag{2.8}$$

avec

$$\omega_{\mathrm{p}} = \sqrt{\frac{4\pi ne^2}{m^*}} \tag{2.9}$$

la fréquence plasma du gaz d'électrons libres (en CGS).

Cette constante diélectrique est un nombre complexe de partie réelle $\epsilon'(\omega)$ et de partie imaginaire $\epsilon''(\omega)$ qui s'expriment d'après

$$\epsilon'(\omega) = 1 - \frac{\omega_{\mathrm{p}}^2}{\omega^2 + \gamma^2} \quad , \quad \epsilon''(\omega) = \frac{\omega_{\mathrm{p}}^2\gamma}{\omega(\omega^2 + \gamma^2)}\,. \tag{2.10}$$

La fréquence plasma ω_p est la fréquence à partir de laquelle un métal perd son caractère métallique et laisse la lumière se propager en son sein, entrainant une oscillation du nuage électronique. Dans la gamme de fréquences $\omega \ll \omega_p$, la partie imaginaire de la constante diélectrique prédomine ($|\epsilon''| \gg |\epsilon'|$), ce qui traduit une très forte absorption de la lumière par les métaux. La lumière est capable de pénétrer sur une très faible distance appelée épaisseur de peau δ. A contrario, lorsque $\omega > \omega_p$, des modes de propagation de la lumière sont permis et celle-ci atteint des distances beaucoup plus grandes dans la matière. Cela conduit à une séparation de charges dans la matière, et si l'on se positionne à la fréquence ω_p, tous les électrons oscillent en phase. Nous appelons cette oscillation collective de charges un *plasmon de volume*.

2.1.1.3 Transitions interbandes : au-delà du modèle de Drude

Sur la figure 2.2, nous comparons les constantes diélectriques de l'or et de l'argent tabulées dans la publication de Johnson et Christy [108] avec celles prédites par le modèle de Drude (équation (2.8)). La partie réelle ϵ' de la constante diélectrique est représentée en rouge et la partie imaginaire ϵ'' en bleue. Pour le calcul de Drude, nous avons repris les valeurs de ω_p et de γ mentionnées dans la référence [109], à savoir

- pour l'or : $\hbar\omega_p = 9.01$ eV, $\hbar\gamma = 0.072$ eV,
- pour l'argent : $\hbar\omega_p = 8.9$ eV, $\hbar\gamma = 0.020$ eV.

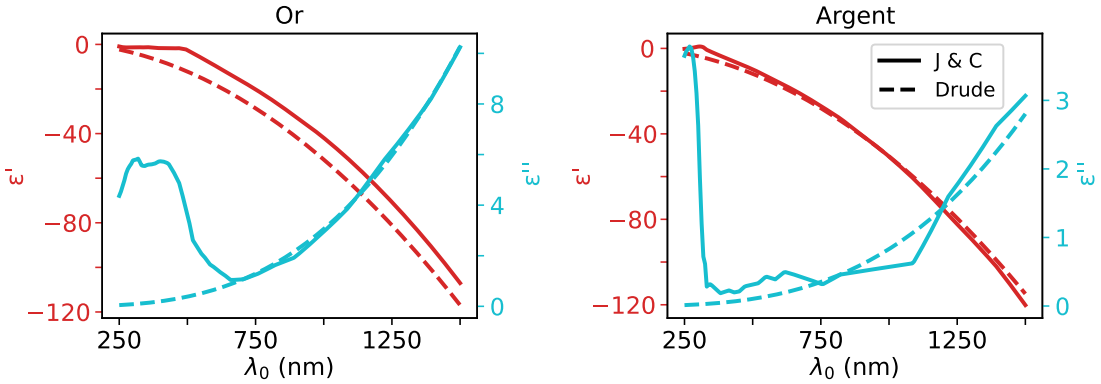

FIGURE 2.2 – Parties réelles (en rouges) et imaginaires (en bleues) des constantes diélectriques $\epsilon(\omega)$ de l'or et de l'argent. Les lignes continues correspondent aux valeurs expérimentales issues de la publication de Johnson et Christy [108]. En lignes pointillées est représenté le calcul du modèle de Drude.

Pour l'or, le modèle de Drude (lignes pointillées) décrit bien les valeurs tabulées (parties réelle et imaginaire) pour des longueurs d'onde supérieures à 600 nm (énergies inférieures à 2 eV) tandis que pour l'argent, l'accord s'étend jusqu'à 300-350 nm[1, 74].

Néanmoins, en deçà de ces valeurs, les parties imaginaires présentent de très forts pics qui ne sont pas retranscrits par le modèle de Drude qui décroit vers 0.

Ces pics sont dus aux transitions interbandes d'électrons occupant des états de la bande de valence vers des états inoccupés de la bande de conduction.

Dans leur livre, L. Novotny et B. Hecht utilisent un modèle à base de fonctions Lorentziennes pour tenir compte de ces transitions interbandes [74]. Ils définissent une constante diélectrique

$\epsilon_{ib}(\omega)$ de forme semblable à l'équation (2.8) et l'ajoutent à la constante diélectrique de Drude. Mathématiquement, la constante diélectrique des métaux $\epsilon(\omega)$ s'exprime alors

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_D(\omega) + \epsilon_{ib}(\omega)\,. \tag{2.11}$$

Comme le mentionne A. Arbouet dans sa thèse [110], une approche quantique, reposant sur la formule de Lindhard, permet également de définir ce terme $\epsilon_{ib}(\omega)$.

Dans cette section, nous avons vu les limitations du modèle de Drude dans la modélisation des propriétés optiques d'un métal, dont on devra aussi tenir compte dans la définition de la constante diélectrique des semi-conducteurs hyperdopés.

2.1.2 Conditions d'excitation des plasmons : modes de surface

Tout le formalisme rappelé dans la section précédente permet de décrire l'interaction rayonnement-matière entre une onde et un morceau de métal massif. Ce formalisme nous dit que si l'on éclaire un objet métallique à la fréquence particulière ω_p, nous induisons un mouvement collectif des électrons dans le volume dont le quanta s'appelle plasmon. En plus de ces modes de volume, le champ électromagnétique d'excitation peut se coupler au plasma d'électrons à l'interface entre le métal et l'environnement diélectrique qui l'entoure. Cela donne naissance à des oscillations des électrons localisés à la surface et, dans ce cas, on parle de plasmon polaritons de surface. Si maintenant on éclaire des objets plus petits que la longueur d'onde d'illumination, les modes de surface sont confinés sur la surface de l'objet et l'on parle alors de résonance plasmon de surface localisée. Le but de cette section est d'introduire ces deux modes différents ainsi que leurs conditions d'excitation.

2.1.2.1 Plasmon polaritons de surface

Dans un premier temps, nous considérons une interface infinie (dans le plan xOy) entre un métal et un milieu diélectrique homogène de constante diélectrique ϵ_{env} (typiquement de l'air ou du vide). Sous condition particulière d'illumination, nous observons l'apparition de modes plasmoniques de surface. Il s'agit d'ondes électromagnétiques se propageant à l'interface entre le métal et le diélectrique. Ces modes sont appelés *plasmon polaritons de surface*. L'onde, dont l'existence est due à l'oscillation des électrons dans le métal, décroît exponentiellement en s'éloignant de l'interface. Ce mode de surface provient de l'inversion de signe entre la partie réelle de la constante diélectrique du métal $\mathrm{Re}\{\epsilon\} < 0$ et celle du diélectrique $\epsilon_{env} > 0$ (cf. figure 2.2).

Pour déterminer la fréquence ω_{sp} de ce dernier, il faut étudier la continuité des composantes du champ électromagnétique à l'interface entre les deux milieux. Toute la procédure est développée dans le chapitre 2 de la référence [1].

Pour une interface infiniment plane, cette fréquence de surface ω_{sp} est proportionnelle à la fréquence du plasmon de volume ω_p comme suit

$$\omega_{sp} = \frac{\omega_p}{\sqrt{1+\epsilon_{env}}}\,. \tag{2.12}$$

Pour une surface plane, il n'est pas possible d'exciter directement un plasmon de surface avec une source lumineuse. En effet, la composante parallèle k_x du vecteur d'onde de l'onde dans l'air est inférieure au vecteur d'onde $k_{sp} = \omega_{sp}/c$ du plasmon de surface, et ce quelle que soit

la fréquence de l'onde [111, 112]. Des dispositifs expérimentaux ont été développés pour augmenter la composante k_x du vecteur d'onde au niveau de l'interface et permettre ce couplage. Par exemple, deux méthodes créées dans les années 60 par E. Kretschmann et A. Otto, respectivement, permettent l'excitation du plasmon de surface par une onde évanescente [111, 112]. La première consiste à déposer un prisme sur une fine couche métallique et de l'éclairer en condition de réflexion interne totale pour générer une onde évanescente à l'interface prisme-métal [113]. La méthode d'Otto repose sur le même principe sauf que le prisme n'est pas en contact direct avec la couche métallique, ce qui permet de ne pas la dégrader [112, 114]. Il est également possible de réaliser ce couplage à l'aide d'un réseau déposé sur la surface métallique [115]. Dans ce cas, la composante k_x est accentuée d'un facteur qui dépend de la périodicité de ce réseau [111, 112].

2.1.2.2 Plasmons de surface localisés

Pour des structures très petites, il existe aussi des plasmons de surface. Ils sont confinés sur la surface de l'objet et nous utilisons le terme de résonance plasmon de surface localisée (Localized Surface Plasmon Resonance (LSPR) en anglais). Cela signifie que le nuage électronique de cette petite structure métallique oscille proche de la surface sans avoir l'espace suffisant pour se déplacer comme c'était le cas pour la surface plane infinie. Pour imager ce point, nous représentons sur la figure 2.3 l'oscillation du nuage électronique d'une petite particule d'or métallique illuminée par une onde plane.

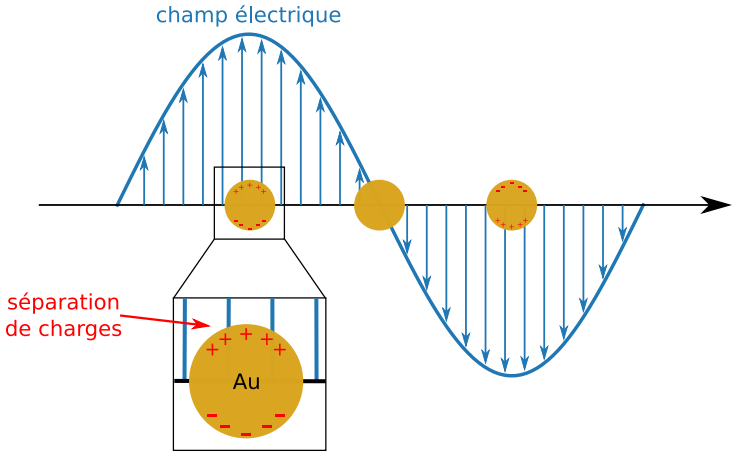

FIGURE 2.3 – Schéma représentant l'oscillation du nuage électronique dans une particule métallique sous excitation par un champ électrique.

Pour des structures tridimensionnelles, l'excitation de plasmon de surface localisé ne requiert pas de condition particulière d'illumination. Dans le cas d'une particule sphérique dont la taille est fortement inférieure à la longueur d'onde d'illumination, la fréquence ω_{sp} de cette résonance se calcule analytiquement [1] et est égale à

$$\omega_{sp} = \frac{\omega_p}{\sqrt{1 + 2\epsilon_{env}}} . \tag{2.13}$$

Si l'on compare les deux dernières équations (équations (2.12) et (2.13)), on constate que le pré facteur devant la constante diélectrique de l'environnement vaut 1 pour l'interface plane et 2 pour la particule sphérique. Nous notons aussi que la position de cette résonance dépend de

l'environnement. Cette dernière évolue également avec la taille et la forme de la structure [9, 10].

Comme de nombreuses études l'ont montré, pour l'or et l'argent, ces résonances dipolaires électriques de surface se situent dans la gamme UV-visible pour de petits objets [9-14]. Elles aboutissent à une augmentation de l'extinction de la structure à cette résonance [1, 9-11].

2.2 Semi-conducteurs dopés et plasmonique "artificielle"

Dans la partie précédente, nous avons pris le temps de résumer les différentes propriétés électroniques et optiques des métaux nobles. Cela nous permettra de faire l'analogie avec le modèle de permittivité utilisé pour les semi-conducteurs hyperdopés et notamment du silicium qui a été le matériau d'étude de cette thèse.

Dans cette section, nous ferons un petit résumé historique de l'utilisation du silicium et plus globalement des matériaux à fort indice de réfraction dans le domaine de la nano-optique. Puis, nous aborderons l'idée de travailler avec du silicium dopé sachant que, historiquement, le dopage du silicium a été réalisé pour modifier les propriétés de conduction électrique et non optique. Pour cela, nous rappellerons ce qu'est le dopage, puis nous expliquerons comment il est à l'origine de comportements plasmoniques dans l'infrarouge pour des matériaux qui n'en présentent pas naturellement. Nous verrons comment utiliser le dopage, en plus des paramètres évoqués pour les métaux nobles (taille, forme, environnement, ...), afin d'ajuster la position de la LSPR de nanostructures.

2.2.1 Silicium pur, propriétés et constante diélectrique

Le silicium est un semi-conducteur de configuration électronique $[Ne]3s^2 3p^2$ [104]. C'est un matériau tétravalent, c'est-à-dire qu'il forme 4 liaisons chimiques à l'aide des électrons des couches 3s et 3p. Contrairement aux métaux nobles, il ne possède pas de porteurs libres pouvant se déplacer sur des distances macroscopiques car les liaisons covalentes sont très fortes et donc les électrons sont fortement liés à leur noyau. On dit que c'est un matériau *diélectrique*.

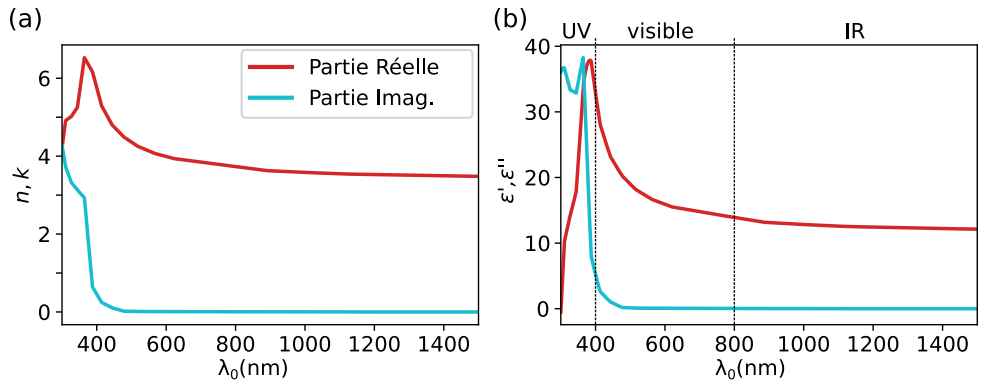

FIGURE 2.4 – Parties réelles (en rouges) et imaginaires (en bleues) de (a) l'indice de réfraction et (b) la constante diélectrique du silicium. Ces courbes sont tracées à partir des valeurs expérimentales du livre de Edward D. Palik [116] pour la gamme du visible et de la publication de Deane Chandler-Horowitz [117] pour l'infrarouge.

Dans le visible et l'IR, le silicium, tout comme le germanium, est considéré comme un matériau diélectrique à fort indice optique $n_{\mathrm{Si}} = 3.5 - 4$. Sur la figure 2.4, nous représentons les parties réelles et imaginaires de l'indice optique et de la constante diélectrique du silicium sur la gamme spectrale allant de 300 nm à 1500 nm. Nous étendons l'étude des propriétés optiques au domaine de l'infrarouge pour anticiper sur la suite du document. Contrairement aux métaux (Fig. 2.2), pour toutes longueurs d'onde supérieures à 400 nm, la constante diélectrique du silicium est toujours purement réelle et positive. Ceci est dû à l'absence de porteurs libres. Dans l'IR, elle atteint la valeur $\epsilon_{\mathrm{Si}}(\omega) = 11.62$ puis n'évolue presque plus [117]. Nous avons donc choisi de ne pas représenter sa variation au-delà de 1500 nm.

Par conséquent, lorsque l'on soumet un objet diélectrique à une excitation électromagnétique, sa réponse optique n'est pas la même que pour un même objet métallique. En effet, la lumière peut se propager dans le silicium, créant une séparation de charges entre les électrons de cœur et le noyau auquel ils sont rattachés. Cette séparation conduit à la polarisation de la matière, dont l'origine est complètement différente des métaux (due à une délocalisation du nuage électronique).

L'augmentation de la partie imaginaire pour $\lambda_0 < 400$ nm est due aux transitions interbandes. Comme pour les métaux, nous en évoquons les raisons mais cette gamme de longueurs d'onde ne nous intéressera pas dans la suite de cet écrit.

2.2.2 Résonances de Mie et nano-optique des matériaux d'indices élevés

Les diélectriques à fort indice optique font partie, avec les métaux, de l'une des deux grandes familles de matériaux utilisés en nano-optique. Tout comme les métaux, les nanostructures diélectriques présentent des résonances optiques pour certaines fréquences particulières. Ils sont utilisés comme antennes pour concentrer ou repropager la lumière [118, 119], mais peuvent aussi servir de guide d'ondes [36, 120, 121].

Depuis plusieurs années, un fort intérêt s'est développé pour l'étude des *métasurfaces* qui sont une assemblée de plots disposés périodiquement (ou non) sur une surface. Les travaux se sont principalement focalisés sur les métasurfaces diélectriques [122], mais à l'origine les premières métasurfaces étudiées étaient métalliques [58, 59]. Cependant, les métasurfaces métalliques n'ont pas une bonne transmission de la lumière, à cause de la forte absorption des structures plasmoniques [123]. C'est pourquoi les métasurfaces diélectriques ont été privilégiées pour modifier le front d'onde de la lumière qui les traverse. Il est donc possible, par exemple, de focaliser la lumière [124] ou bien de la défléchir [125]. Que cela soit pour un objet unique ou pour une assemblée, les résonances ne proviennent pas d'oscillations de charges libres, car ils en sont dépourvus, mais d'un autre phénomène physique qui sont les *résonances de Mie*.

Elles tiennent leur nom du physicien Gustav Mie qui en 1908 a élaboré une théorie permettant de décrire la diffusion de la lumière par des particules sphériques [126]. Cette théorie permet de mettre en avant des modes résonants de propagation de la lumière dans de grosses particules sphériques dans le vide. Durant les trente dernières années, de nombreux travaux ont montré que des modes semblables existent aussi dans des structures de formes quelconques reposant sur un substrat [118, 119, 127-129]. La lumière est piégée dans la nanostructure qui forme une sorte de nano-cavité [130]. Ils peuvent être d'origine électrique ou magnétique [131], et selon la distribution du champ électromagnétique dans la structure, on parle de résonances

dipolaires, quadrupolaires, octupolaires, ... [132] Pour que les modes magnétiques puissent exister, il faut que le champ électrique puisse se propager de manière cyclique (vortex) dans l'objet en interférant constructivement [30, 118, 128]. Sur la figure 2.5c, nous montrons des exemples de distributions cycliques du champ électrique dans un cylindre.

L'existence de modes magnétiques repose sur le fait que la longueur d'onde effective dans le matériau est commensurable à un multiple de la dimension de l'objet [30]. Par conséquent, pour remplir cette condition, il faut soit une structure très grande, soit qu'elle ait un indice de réfraction élevé afin de considérer des objets sub-longueur d'onde.

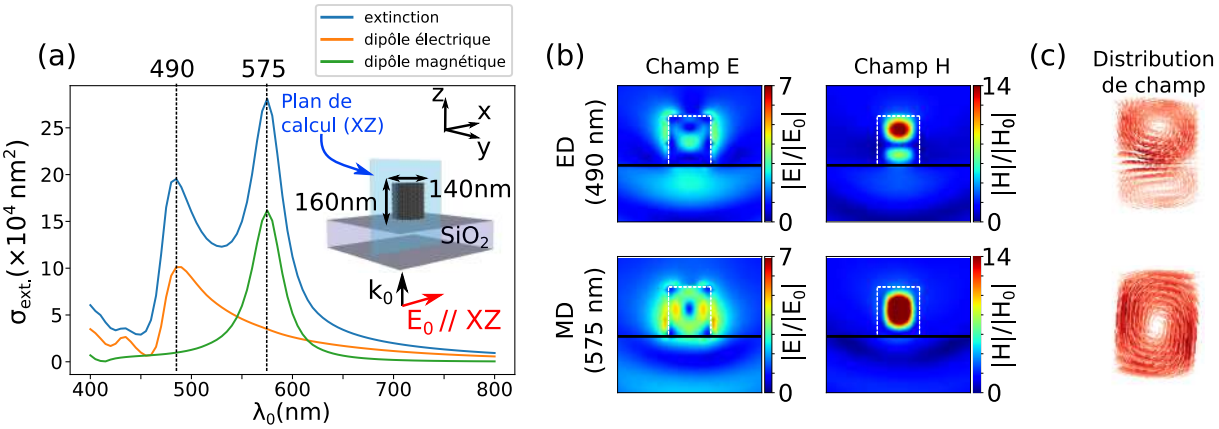

FIGURE 2.5 – Spectre d'extinction et cartes de champ proche pour un cylindre de Si seul reposant sur un substrat de silice d'indice $n_2 = 1.5$. Le cylindre de diamètre $D = 140$ nm et de hauteur $H = 160$ nm, est discrétisé avec N=1490 dipôles selon un maillage hexagonal compact. (a) La section efficace d'extinction totale (courbe bleue) et les contributions électrique (courbe orange) et magnétique (courbe verte) sont calculées pour une illumination par une onde plane se propageant de bas en haut avec le champ électrique parallèle au plan XZ (voir encart). (b) Cartes dans le plan XZ de l'intensité normalisée des champs électrique et magnétique, calculée aux résonances électrique ($\lambda_{ED} = 490$ nm) et magnétique ($\lambda_{MD} = 575$ nm). (c) Distribution du champ électrique interne (partie réelle) pour chacune des résonances.

Sur la figure 2.5, nous représentons la section efficace d'extinction d'un cylindre de silicium de diamètre $D = 140$ nm et de hauteur $H = 160$ nm, illuminé par une onde plane ascendante, et reposant sur un substrat d'indice optique $n_2 = 1.5$. Nous avons également représenté les contributions des dipôles électrique (courbe orange) et magnétique (courbe verte) induits dans la structure. On note l'existence de deux résonances de type Mie, une première d'origine électrique à $\lambda_{ED} = 490$ nm, et une seconde magnétique à $\lambda_{MD} = 575$ nm. En supplément d'informations, on a représenté la norme du champ électromagnétique dans la structure aux deux résonances. Pour finir, sur la figure 2.5c, nous avons représenté la distribution de la partie réelle du champ électrique dans la structure pour les deux fréquences. Pour la résonance magnétique, on voit très bien le vortex électrique dans la structure (distribution en bas à droite). Ces résultats calculés par la GDM reproduisent bien ceux obtenus à l'aide de la méthode FDTD dans la publication de R. M. Bakker et al. [67]. Nous renvoyons donc le lecteur vers cette dernière pour de plus amples informations sur l'interprétation des courbes et des cartes.

2.2.3 Nanostructures semi-conductrices pour la plasmonique IR : modèle de Drude

2.2.3.1 Dopage et structure de bandes

Nous venons de voir que des nanostructures de silicium peuvent présenter à la fois des résonances électrique et magnétique dans le spectre visible. Cependant, la structure doit être suffisamment grande pour que ces différents modes puissent coexister.

Que ce soit pour les métaux ou pour le silicium, les résonances des structures sont majoritairement cantonnées au spectre visible. Pour parvenir à des résonances dans l'IR, il faut considérer des structures de très grandes tailles, plus proche du micromètre que du nanomètre [15, 133-135]. Elles sont donc inadaptées pour des applications telles que les détecteurs infrarouges à haute résolution nécessitant une densité élevée de pixels de petite taille.

Pour atteindre la gamme spectrale de l'IR avec des petites nanostructures possédant tout de même une réponse optique résonante, des travaux sur "l'ingénierie" de la quantité de charges libres se sont intensifiés depuis une quinzaine d'années. En dopant des semi-conducteurs, une réponse plasmonique peut être artificiellement créée, dont la fréquence plasmon est ajustée avec la densité de dopants introduite [16, 22, 136, 137].

Très brièvement, le dopage consiste en la substitution d'atomes d'une matrice cristalline pure (constituée d'un seul type d'atome) par d'autres atomes (défauts) de structure électronique différente. L'exemple le plus typique, et qui est le matériau d'étude de cette thèse, est le silicium dopé avec du phosphore (dopage n) ou avec du bore (dopage p). Le phosphore qui possède cinq atomes de valence (un de plus que le silicium) fournit un électron libre lorsqu'il occupe un site du réseau cristallin du silicium (cf. Figure 2.6a) [106]. On parle d'atome donneur d'électron. Ces électrons occupent un niveau énergétique juste en dessous de la bande de conduction (cf. Figure 2.6b). Par conséquent, l'énergie à apporter pour qu'ils atteignent la bande de conduction est bien moindre que pour exciter un électron de la bande de valence vers la bande de conduction [104]. Nous créons un gaz libre d'électrons semblable à celui intrinsèquement présent dans les métaux.

Le principe est le même pour le dopage avec du bore mais, ce dernier n'ayant que trois atomes de valence, on crée une densité de porteurs libres positifs appelés trous (cf. Figure 2.6c). On introduit des atomes dit accepteurs d'électrons dont les trous peuplent un niveau énergétique juste au-dessus de la bande de valence (représenté par la ligne horizontale noire sur la figure 2.6d), l'idée étant, dans le cas du dopage p, d'exciter les électrons de la bande de valence pour qu'ils transitent vers cet état électronique.

Le dopage n'est pas une science nouvelle. Il est utilisé depuis la moitié du dernier siècle afin de modifier les propriétés électroniques des semi-conducteurs massifs pour, par exemple, fabriquer des jonctions p/n comme blocs élémentaires des dispositifs électroniques et optoélectroniques. Typiquement, les densités de porteurs qui sont introduites dans les matériaux sont de l'ordre de $10^{16} - 10^{19}$ cm^3 [16], ce qui est bien en deçà des densités de porteurs des métaux nobles ($10^{22} - 10^{23}$ cm^3).

Depuis une quinzaine d'années, le domaine de la plasmonique porte un intérêt grandissant pour les matériaux dopés. En effet, ces derniers, comme les métaux, présentent des densités conséquentes de porteurs libres qui peuvent présenter une réponse plasmonique si on les excite avec de la lumière. Avoir des densités de plusieurs ordres inférieurs à celles des métaux nobles permet d'obtenir des LSPR dans l'IR, et cela même pour des structures nanométriques (cf. Eq. (2.9)) [16].

L'état de l'art du dopage sur les nanostructures de semi-conducteurs dopés sera présenté au début du chapitre 3.

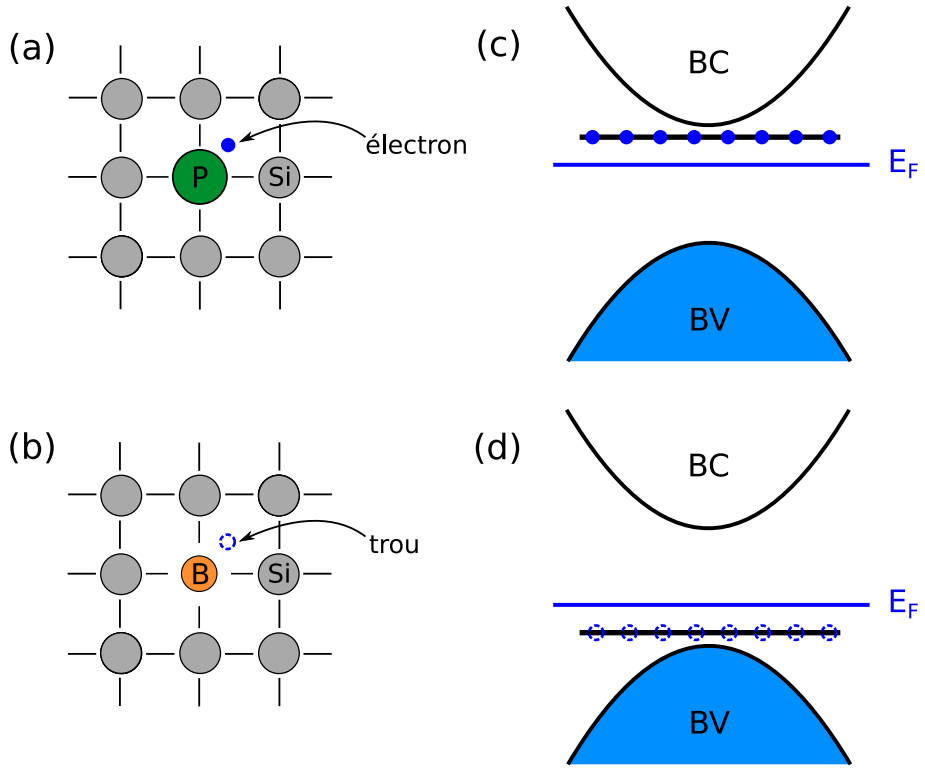

FIGURE 2.6 – Schéma simplifié du réseau cristallin de silicium dans lequel un atome (a) de phosphore P (b) de bore B a substitué un atome de silicium Si. Les porteurs libres sont représentés soit par un point bleu pour un électron ou un cercle en pointillés pour un trou. Sur les sous-figures (c) et (d), nous avons représenté les structures de bandes du silicium dopé n ou p, respectivement, sur lesquelles nous avons fait apparaître les niveaux énergétiques associés aux porteurs (lignes horizontales noires).

2.2.3.2 Modèle de Drude pour les semi-conducteurs hyperdopés

Comme évoqué à l'instant, si les structures dopées sont plus grandes que la quinzaine de nanomètres, le modèle de Drude permet de décrire le comportement des porteurs libres introduits [16, 17, 23]. Par conséquent, pour établir la constante diélectrique $\epsilon_{\text{dop}}(\omega)$ du silicium dopé, nous utiliserons exactement le même formalisme que celui rappelé dans la section 2.1.1.2.

Si l'on suppose du silicium dopé avec une densité $n = N_{\text{dop}}$ de porteurs libres de masse effective m^* et de mobilité μ, alors la constante diélectrique s'écrit

$$\epsilon_{\text{dop}}(\omega) = \epsilon_{\text{Si}}(\omega) - \frac{\omega_{\text{p}}^2}{\omega(\omega + \mathrm{i}\gamma)} \tag{2.14}$$

où $\epsilon_{\text{Si}}(\omega)$ est la constante diélectrique du silicium intrinsèque (non dopé) présentée dans la section 2.2.1, ω_{p} est la fréquence plasma et γ est le facteur d'amortissement. Ces deux dernières

grandeurs dépendent des caractéristiques des porteurs libres [17]

$$\omega_{\mathrm{p}} = \sqrt{\frac{4\pi N_{\mathrm{dop}} e^2}{m^*}} \quad , \quad \gamma = \frac{e}{m^* \mu} \, . \tag{2.15}$$

Dans le silicium, la masse effective des électrons (respectivement trous) introduits par dopage vaut $m^* = 0.3 m_{\mathrm{e}}$ (respectivement $m^* = 0.4 m_{\mathrm{e}}$) [23]. En regardant l'expression (2.15), on comprend très facilement que, pour des dopages équivalents, la fréquence plasmon sera plus grande pour les électrons que pour les trous. Cette affirmation est moins évidente pour le facteur d'amortissement γ car il dépend, en plus de la masse effective, de la mobilité des charges, cette dernière évoluant avec le taux de dopage introduit dans la structure [23, 138, 139].

A titre comparatif, dans le tableau 2.1, nous regroupons les taux réels de porteurs dans l'or et l'argent [109], ainsi que des exemples de dopages pour le silicium dopé p ou n (extrait de la référence [23]). Nous avons précisé dans la seconde colonne les masses effectives des porteurs dans les différents matériaux. Dans les colonnes 3 et 4 sont regroupés les énergies des plasmons ainsi que des facteurs d'amortissement mentionnés dans les deux publications.

	n (en cm^{-3})	m^* (en m_{e})	$\hbar\omega_{\mathrm{p}}$ (en eV)	$\hbar\gamma$ (en eV)
Au	5.90×10^{22}	1	9.01	0.072
Ag	5.86×10^{22}	1	8.90	0.020
Si dopé n	2.4×10^{19}	0.3	0.33	0.066
Si dopé p	4.0×10^{20}	0.4	1.17	0.124

TABLE 2.1 – Tableau synthétisant les grandeurs clefs à introduire dans le modèle de Drude pour de l'or, de l'argent et du silicium dopé n et p. La première colonne correspond aux densités de porteurs, la seconde aux masses effectives de ces derniers. Les colonnes 3 et 4 donnent les énergies du plasmon et du facteur d'amortissement calculés avec le modèle de Drude.

On constate tout d'abord que l'énergie des plasmons de l'or et de l'argent est beaucoup plus grande que celle du silicium dopé. Cela se traduit par des résonances dans le visible et non dans l'infrarouge, ce qui est en accord avec notre discours de début de section. A contrario, les énergies d'amortissement des plasmons sont du même ordre de grandeur pour tous les types de matériaux. La qualité de la résonance plasmonique est déterminée par le rapport entre $\omega_{\mathrm{p}}/\gamma$. Plus ce rapport est grand, meilleure sera la résonance [140]. A première vue, les pertes sont beaucoup plus grandes pour le silicium dopé que pour les métaux nobles. Ceci peut s'expliquer par une introduction d'une grosse quantité de défauts non activés dans le cristal. En effet, dans leur publication, S. Zhou et al. mentionnent qu'environ 0.5 à 5 % des impuretés introduites sont réellement activées. Par conséquent, beaucoup des atomes insérés dans le cristal dégradent le plasmon. Tout l'enjeu de notre fabrication est d'avoir le meilleur rapport insertion/activation afin de générer le moins de pertes possible et avoir un bon facteur de qualité.

2.3 Couplage plasmon-phonon avec un substrat de SiO_2

Dans les sections précédentes, nous avons vu que nous pouvions jouer sur la nature (métallique, diélectrique, ...) de l'objet étudié en modifiant la constante diélectrique $\epsilon(\omega)$ introduite dans la GDM.

Dans notre modèle, il est aussi possible d'introduire la constante diélectrique réelle de l'environnement ou du substrat. Nous devons étudier l'influence d'un environnement dispersif sur la réponse optique du système dans l'IR, car de nombreuses vibrations collectives de liaisons atomiques (phonons) existent dans cette gamme de fréquences. Cela se traduit par une grosse variation de la constante diélectrique à des fréquences particulières. Ainsi, si l'on excite notre système avec de la lumière, la réponse du substrat peut jouer un rôle non négligeable dans la réponse optique du système global.

Comme évoqué dans l'introduction de la thèse, nous travaillons avec des plaques SOI constituées de nanostructures de silicium dopé gravées sur une couche de SiO_2. Par conséquent, il nous a fallu comprendre comment le couplage entre le plasmon de la nanostructure et le phonon du substrat influence la réponse optique du système. Pour cela, nous avons établi un petit modèle analytique décrivant le couplage entre une particule sphérique de silicium dopé et un substrat de silice.

2.3.1 Constante diélectrique de la silice dans l'infrarouge

Dans un premier temps, nous avons besoin d'expliciter la constante diélectrique de la silice que nous introduirons dans notre modèle. Dans l'IR, cette constante est un nombre complexe de la forme

$$\epsilon_{SiO_2} = \epsilon' + i\epsilon'' , \tag{2.16}$$

où ϵ' et ϵ'' sont respectivement les parties réelle et imaginaire.

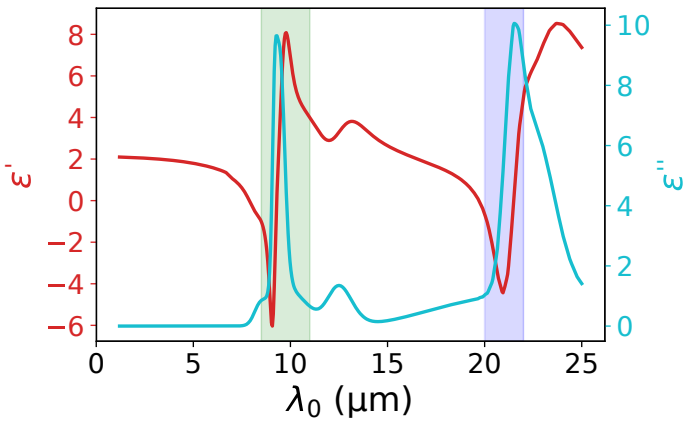

FIGURE 2.7 – Partie réelle (courbe rouge) et imaginaire (courbe bleue) de la constante diélectrique de la silice [90, 141] en fonction de la longueur d'onde en micromètres. Les cadrans vert et bleu indiquent les positions des bandes d'absorption majeures dues aux vibrations de la liaison Si-O-Si [142].

L'évolution de ces deux grandeurs, en fonction de la longueur d'onde, est représentée sur la figure 2.7. Dans la gamme du visible, $0.4\ \mu m \leq \lambda_0 \leq 0.8\ \mu m$, la constante diélectrique est

purement réelle, valant $\epsilon_{SiO_2} = 2.25$. Si l'on accroît la longueur d'onde et que l'on bascule dans le MIR-FIR (infrarouge moyen-lointain), nous commençons à observer de grandes variations des parties réelle et imaginaire. Plus précisément, la partie imaginaire présente trois pics autour des positions $\lambda_0 = 10$ µm, $\lambda_0 = 12$ µm et $\lambda_0 = 22$ µm [90, 141, 142]. Ces pics sont le résultat de différents modes phonons de la liaison Si-O-Si [141, 142]. Dans le même temps, la partie réelle évolue jusqu'à devenir négative. Nous avons mis en exergue les zones où cela se produit à l'aide de deux boîtes de couleur (verte autour de 10 µm et bleue autour de 22 µm). Comme la zone de travail avec les nanostructures de Si dopé est dans le MIR, pour avoir les résultats numériques les plus réalistes possible, il est impératif de tenir compte de ce type d'évolution dans notre modèle GDM.

2.3.2 Modèle analytique de l'interaction plasmon-phonon

Dans cette section, nous développons le modèle analytique décrivant l'interaction plasmon-phonon d'une particule sphérique de silicium dopé au voisinage d'un substrat de silice. Il servira à comprendre comment l'indice réel de la silice modifie la réponse plasmonique d'une petite particule de silicium dopé. Pour cela, nous étudions la configuration représentée sur la figure 2.8a, où une petite particule sphérique de Si dopé de rayon $a = 10$ nm est positionnée en $R_0 = 50$ nm au-dessus d'une interface air-silice.

Pour tenir compte des modes phonons du substrat, nous utilisons la permittivité représentée sur la figure 2.7, tandis que pour la constante diélectrique de la structure dopée, nous utilisons le modèle de Drude (Eq. (2.14)). La permittivité du silicium intrinsèque a été extraite des références [116, 117]. Les mesures expérimentales dans ces références sont très précises, retranscrivant même un petit saut de la partie imaginaire de l'indice de réfraction aux alentours de 16 µm. Ce dernier est dû à des processus d'absorption à deux phonons [142-144].

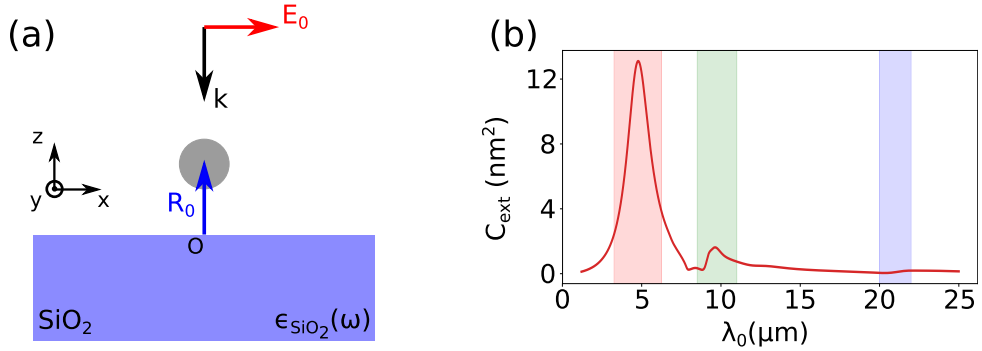

FIGURE 2.8 – (a) Particule sphérique de rayon $a = 10$ nm et de permittivité $\epsilon_p(\omega)$ dans le vide située en $R_0 = 50$ nm au-dessus d'un substrat de silice de permittivité $\epsilon_{SiO_2}(\omega)$ L'ensemble est éclairé par une onde plane polarisée selon Ox se propageant de haut en bas. (b) Spectre d'extinction associé à cette configuration.

Tout d'abord, comme nous l'avons vu dans la section 1.4.4.4, la polarisabilité d'une petite particule dans le vide s'exprime en fonction de sa permittivité $\epsilon_p(\omega)$ et de son volume a^3 [65]

$$\alpha(\omega) = a^3 \frac{\epsilon_p(\omega) - 1}{\epsilon_p(\omega) + 2}\,. \tag{2.17}$$

A la position $\mathbf{R}_0 = (0, 0, R_0)$, l'onde plane d'illumination a pour expression

$$\mathcal{E}_0(\mathbf{R}_0, \omega) = \mathbf{E}_0(\mathbf{R}_0, \omega) e^{i\mathbf{k_0}\cdot\mathbf{r}} = (\mathcal{E}_0^{(x)},\, \mathcal{E}_0^{(y)},\, \mathcal{E}_0^{(z)})\,, \tag{2.18}$$

où $\mathbf{E}_0(\mathbf{R}_0, \omega)$ est la polarisation de l'onde et $e^{i\mathbf{k_0}\cdot\mathbf{r}}$ le terme de phase décrivant la propagation de l'onde. Le champ local $\mathcal{E}(\mathbf{R}_0, \omega)$, à la position de la particule, se déduit du champ d'illumination à l'aide de la version analytique de l'équation auto-cohérente (1.39) [38]

$$\mathcal{E}(\mathbf{R}_0, \omega) = \mathbf{M}^{-1}(\mathbf{R}_0, \omega) \cdot \mathcal{E}_0(\mathbf{R}_0, \omega)\,, \tag{2.19}$$

où $\mathbf{M}(\mathbf{R}_0, \omega)$ est la matrice (3×3) définie en (1.47)

$$\mathbf{M}(\mathbf{R}_0, \omega) = \mathbf{I} - \alpha(\omega) \cdot \mathbf{S}_s^{EE^+}(\mathbf{R}_0, \mathbf{R}_0, \omega)\,, \tag{2.20}$$

avec $\mathbf{I}$ la matrice identité et $\mathbf{S}_s^{EE^+}(\mathbf{R}_0, \mathbf{R}_0, \omega)$ la susceptibilité électrique-électrique associée à la surface. Comme la particule est proche de la surface, nous considérerons la forme quasi-statique de ce tenseur (sans effet de retard), qui a été indiquée en (1.23a). Dans cette configuration, nous établissons, à l'aide de la théorie du dipôle image, l'expression de ce tenseur

$$\mathbf{S}_s^{EE^+}(\mathbf{R}_0, \mathbf{R}_0, \omega) = \Delta_{12}(\omega)\mathbf{T}_3^{EE}(\mathbf{R}_1) \cdot \begin{pmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \tag{2.21}$$

où $\Delta_{12}(\omega) = (\epsilon_{SiO_2}(\omega) - 1) \,/\, (\epsilon_{SiO_2}(\omega) + 1)$ et $\mathbf{R}_1 = (X_1,\, Y_1,\, Z_1) = (0, 0, 2R_0)$ est la distance entre la particule dipolaire à la position $\mathbf{R}_0 = (0, 0, R_0)$ et le dipôle image, associé à la surface, situé en $\mathbf{R}_0' = (0, 0, -R_0)$.

En introduisant les composantes de $\mathbf{R}_1$ dans la formule cartésienne de $\mathbf{T}_3^{EE}(\mathbf{R}_1)$ (Eq. (1.17c)), nous obtenons la forme matricielle suivante

$$\mathbf{T}_3^{EE}(\mathbf{R}_1) = \begin{pmatrix} 2X_1^2 - Y_1^2 - Z_1^2 & 3X_1Y_1 & 3X_1Z_1 \\ 3Y_1X_1 & 2Y_1^2 - X_1^2 - Z_1^2 & 3Y_1Z_1 \\ 3Z_1X_1 & 3Z_1Y_1 & 2Z_1^2 - Y_1^2 - X_1^2 \end{pmatrix}. \tag{2.22}$$

Après simplification, nous aboutissons à cette relation analytique très simple

$$\mathbf{S}_s^{EE^+}(\mathbf{R}_0, \mathbf{R}_0, \omega) = \frac{\Delta_{12}(\omega)}{(2R_0)^3} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 2 \end{pmatrix}. \tag{2.23}$$

En remplaçant ce terme dans l'expression (2.20) puis en injectant la matrice $\mathbf{M}(\mathbf{R}_0, \omega)$ obtenue dans la relation (2.19), nous en déduisons les trois composantes du champ local en $\mathbf{R}_0$

$$\mathcal{E}(\mathbf{R}_0, \omega) = \left(\frac{8R_0^3}{8R_0^3 - \alpha\Delta_{12}} \mathcal{E}_0^{(x)},\, \frac{8R_0^3}{8R_0^3 - \alpha\Delta_{12}} \mathcal{E}_0^{(y)},\, \frac{4R_0^3}{4R_0^3 - \alpha\Delta_{12}} \mathcal{E}_0^{(z)} \right). \tag{2.24}$$

Pour alléger la notation, nous avons volontairement omis la dépendance en ω des termes α et Δ_{12}.

Pour une petite particule, la théorie de la réponse linéaire nous dit que la polarisation électrique $\mathbf{P}(\mathbf{R}_0, \omega)$ est proportionnelle au champ électrique $\mathcal{E}(\mathbf{R}_0, \omega)$ dans la structure dipolaire d'après

$$\mathbf{P}(\mathbf{R}_0, \omega) = \alpha(\omega) \cdot \mathcal{E}(\mathbf{R}_0, \omega)\,. \tag{2.25}$$

A partir des deux précédentes équations, nous calculons les trois composantes de $\mathbf{P}(\mathbf{R}_0, \omega)$

$$\mathbf{P}(\mathbf{R}_0, \omega) = \left(\frac{\alpha 8 R_0^3}{8R_0^3 - \alpha \Delta_{12}} \mathcal{E}_0^{(\mathrm{x})}, \frac{\alpha 8 R_0^3}{8R_0^3 - \alpha \Delta_{12}} \mathcal{E}_0^{(\mathrm{y})}, \frac{\alpha 4 R_0^3}{4R_0^3 - \alpha \Delta_{12}} \mathcal{E}_0^{(\mathrm{z})} \right) . \tag{2.26}$$

Finalement, le coefficient d'extinction $C_{\mathrm{ext}}(\omega)$, pour une petite particule sphérique dans le vide, est donné par

$$C_{\mathrm{ext}}(\omega) = \frac{8\pi^2}{\lambda_0 |E_0|^2} \mathrm{Im} \left\{ \mathcal{E}_0^*(\mathbf{R}_0, \omega) \cdot \mathbf{P}(\mathbf{R}_0, \omega) \right\} . \tag{2.27}$$

Pour alléger encore plus le formalisme, nous supposons que le champ électrique d'illumination est en incidence normale (cf. Fig. 2.8a). Dans ce cas, nous avons l'expression facilement interprétable suivante

$$C_{\mathrm{ext}}(\omega) = \frac{8\pi^2}{\lambda_0} \mathrm{Im} \left\{ \frac{\alpha(\omega) 8 R_0^3}{8R_0^3 - \alpha(\omega) \Delta_{12}(\omega)} \right\} . \tag{2.28}$$

Nous avons tracé l'évolution spectrale de cette grandeur sur la figure 2.8b. Nous notons dans un premier temps la présence de trois pics, un premier imposant aux alentours de $\lambda_0 = 4.78\,\mu\mathrm{m}$ (bloc rouge) qui provient du plasmon de la particule, un plus petit vers $\lambda_0 = 10\,\mu\mathrm{m}$ (bloc vert) et enfin une petite aspérité à $\lambda_0 = 22\,\mu\mathrm{m}$ (bloc bleu), ces deux derniers étant dus aux phonons de la silice.

Le pic plasmon existe lorsque le dénominateur de $\alpha(\omega)$ s'annule (résonance), ce qui se produit lorsque $\mathrm{Re}\left\{\epsilon_{\mathrm{p}}(\omega)\right\} = -2$. En contrepartie, les deux autres aspérités émergent lorsque le terme de surface $\Delta_{12}(\omega)$ est résonant, c'est-à-dire quand $\mathrm{Re}\left\{\epsilon_{\mathrm{SiO_2}}(\omega)\right\} = -1$. Dans notre cas, les pics à 4.78 µm et 10 µm sont suffisamment dissociés pour que le couplage entre les deux pics soit faible. Néanmoins, pour des concentrations de dopants plus faibles, les résonances sont proches et l'on peut s'attendre à un couplage entre les deux modes (plasmon et phonon). Ce couplage donne naissance à des modes dit couplés qui sont une superposition des deux modes propres plasmonique et phononique. Ce type de phénomène plasphonique a déjà été étudié dans les références [145-147].

2.4 Modélisation d'une métasurface avec la GDM : nécessité des pseudo-polarisabilités

Comme nous l'avons évoqué à maintes reprises depuis le début de la thèse, les principales limitations de la GDM sont le temps de calcul, et l'espace mémoire requis, qui explosent lorsque le nombre de volumes élémentaires, pour discrétiser les objets, devient trop important. La GDM est donc inutilisable pour simuler des échantillons constitués d'une grosse assemblée de structures pouvant interagir entre elles, comme ce sera le cas pour nos substrats SOI lithographiés. Par conséquent, nous avons élaboré un formalisme qui permet d'approximer une structure, petite par rapport à la longueur d'onde, par un dipôle effectif. Enfin, pour des assemblées de structures, nous associons un ensemble de polarisabilités effectives dipolaires.

Ces polarisabilités sont des tenseurs calculés à partir de la GDM, et plus précisément avec l'expression du propagateur généralisé [39]. Elles contiennent toute l'information sur la forme complexe de notre objet, avec les termes des tenseurs qui sont plus ou moins forts selon la géométrie de la structure. Cette condensation nous permettra de simuler le couplage, en utilisant la GDM présentée dans le chapitre 1, d'un grand nombre d'objets (vu comme des dipôles

ponctuels). Nous introduisons le modèle ici, en évoquant notamment ses limites, pour pouvoir l'utiliser pour simuler nos échantillons dans le chapitre 4.

2.4.1 Concept de polarisabilité

Dans une multitude de domaines de la physique et de la chimie contemporaines, le concept de polarisabilité s'est avéré extrêmement utile. En particulier, en physique des gaz et des surfaces, le tenseur de polarisabilité dynamique des molécules apparaît explicitement dans la description, par exemple, de l'énergie de dispersion de Van der Waals, ou dans la description de processus de diffusion Raman [148-153]. Dans les années 1970, A. D. Buckingham a écrit un article fondateur sur ce sujet dans lequel une liste exhaustive des polarisabilités linéaires est proposée [154]. Bien que ce travail se soit limité aux systèmes atomiques et moléculaires, il représente un support précieux des différentes contributions possibles ainsi que leur classement, en termes de polarisabilités multipolaires électriques et magnétiques.

L'étude théorique de la réponse optique linéaire de petites particules métalliques ou diélectriques a également fait l'objet de nombreuses recherches au cours des dernières décennies. En particulier, dans le contexte de la plasmonique, le concept de polarisabilité est souvent appliqué à la description du spectre plasmon de particules de métaux nobles sub-longueur d'onde [155-161]. Comme nous l'avons vu dans la section 1.4.4.4, dans de nombreuses situations des particules métalliques isolées peuvent être approximées par une sphère de rayon a, auquel cas leur réponse optique peut être décrite par une polarisabilité scalaire $\alpha(\omega)$ dépendant de la fréquence. Alors, le tenseur de polarisabilité est diagonal et tous les éléments tensoriels sont identiques. En unité CGS, il s'écrit [24]

$$\alpha_{ij}(\omega) = a^3 \left(\frac{\epsilon_{\mathrm{p}}(\omega) - \epsilon_{\mathrm{env}}}{\epsilon_{\mathrm{p}}(\omega) + 2\epsilon_{\mathrm{env}}} \right) , \tag{2.29}$$

où ϵ_{env} (respectivement ϵ_{p}) est la constante diélectrique de l'environnement (respectivement de la nanosphère). A partir de la relation (2.29), nous pouvons extraire le spectre d'extinction à partir de la partie imaginaire de $\alpha(\omega)$. Par conséquent, le spectre d'extinction d'un échantillon contenant un grand nombre N de particules, de polarisabilités $\alpha_i(\omega)$ n'interagissant pas entre elles, est donné par [24, 34]

$$I_{\mathrm{ext}}(\lambda_0) = \frac{8\pi^2}{n_{\mathrm{env}}\lambda_0} \sum_i^N \mathrm{Im}\Big(\alpha_i(\omega)\Big) , \tag{2.30}$$

où λ_0 représente la longueur d'onde incidente, n_{env} l'indice de réfraction du milieu, et "Im" la partie imaginaire.

Comme indiqué ci-dessus, dans ce cas, tous les éléments diagonaux de la polarisabilité sont identiques, et le système affiche une réponse scalaire définie par $\alpha_{ij} = \alpha\delta_{ij}$ (voir Eqs. (2.29) et (2.30)). Quand on transforme la sphère en un ellipsoïde appartenant au groupe de symétrie $D_{\infty h}$, la polarisabilité doit être définie avec deux composantes indépendantes [162], et pour des symétries encore plus basses, toutes les composantes α_{ij} de la polarisabilité doivent être calculées. Cette situation correspond à une forte anisotropie induite par une forme complexe de particules (ou nano-cavités). Notons que d'autres types d'anisotropie peuvent venir de l'anisotropie intrinsèque de la constante diélectrique de la particule mais aussi de la surface d'un autre objet [163]. Dans ce dernier cas, la notion de polarisabilité effective est généralement

introduite, et la symétrie finale de la particule est habillée par la symétrie de la surface (c'est-à-dire $D_{\infty h}$, pour une surface parfaitement plane). Le concept de polarisabilités habillées sera développé, en détail, dans le chapitre 5.

Comme l'illustrent ces exemples, la conception des polarisabilités de nanostructures commence par la conception d'une géométrie de référence par des considérations intuitives. Une telle approche se limite cependant à des problèmes assez simples. Dans le cas de structures complexes ou de phénomènes compliqués, la méthode intuitive échoue souvent, car des effets inattendus tels que la conversion de polarisation se produisent dans les tenseurs de polarisabilité.

Dans cette section, nous proposons une méthode numérique pour extraire les tenseurs de polarisabilité pour des nanostructures plasmoniques et diélectriques de formes complexes grâce à la technique de discrétisation volumique présentée dans le chapitre 1. De plus, afin de fidèlement décrire les effets optiques d'origine magnétique dans les nanostructures diélectriques, où l'approximation conventionnelle des polarisabilités échoue, nous introduisons des *pseudo-polarisabilités* qui contiennent le terme de phase induisant les résonances dipolaires magnétiques, similaires à certaines approches d'homogénéisation pour les métamatériaux [164, 165], mais au niveau d'une seule structure isolée. Nos pseudo-polarisabilités pourraient alors être utilisées pour construire des assemblages apériodiques ou aléatoires de type métasurface sans périodicité. Cette méthode, même approximative, nous permettra d'outrepasser la principale limitation de la GDM à savoir l'impossibilité de calculer la réponse d'une assemblée de structures, et donc de modéliser la réponse optique de nos échantillons.

2.4.2 Extraction des polarisabilités de petites nanostructures

Pour extraire les polarisabilités d'une petite nanostructure, nous devons repartir du champ électromagnétique dans cette dernière (cf. Eq. (1.49))

$$\mathbf{F}(\mathbf{r},\omega) = \int_V \mathbb{K}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)\cdot\mathbf{F}_0(\mathbf{r}_0,\omega)\mathrm{d}\mathbf{r}_0\,, \tag{2.31}$$

où, on le rappelle, $\mathbf{F}_0(\mathbf{r},\omega) = (\mathbf{E}_0(\mathbf{r},\omega),\ \mathbf{H}_0(\mathbf{r},\omega))$ est le champ électromagnétique d'éclairage et $\mathbf{F}(\mathbf{r},\omega) = (\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega),\ \mathbf{H}(\mathbf{r},\omega))$ le champ local à la position $\mathbf{r}$ dans la structure. Le *super-propagateur* $\mathbb{K}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$ de taille (6×6), qui agit sur le volume V de la zone source, établit le lien entre ces deux vecteurs.

Dans le cas général, le super-propagateur est composé de quatre tenseurs dyadiques de tailles (3×3)

$$\mathbb{K}(\mathbf{r},\ \mathbf{r}_0,\omega) = \begin{pmatrix} \mathbf{K}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) & \mathbf{K}^{\mathrm{EH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) \\ \mathbf{K}^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) & \mathbf{K}^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) \end{pmatrix} \tag{2.32}$$

avec $\mathbf{K}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$ le propagateur généralisé qui représente le couplage électrique-électrique [27, 29, 30, 38, 45]. Les trois autres, c'est-à-dire $\mathbf{K}^{\mathrm{EH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$, $\mathbf{K}^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$ et $\mathbf{K}^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$, décrivent le couplage avec le champ magnétique. Ces quatre tenseurs sont reliés aux susceptibilités du champ $\mathbf{S}^{\mathrm{EE}}$, $\mathbf{S}^{\mathrm{EH}}$, $\mathbf{S}^{\mathrm{HE}}$, et $\mathbf{S}^{\mathrm{HH}}$ [39].

Comme expliqué dans le chapitre 1, ces tenseurs dyadiques peuvent être calculés numériquement en réalisant une discrétisation de la zone source, et en appliquant une inversion de matrice. Une telle procédure convertit les intégrales sur le volume source V en sommes

discrètes. Pour un matériau qui ne présente pas de réponse magnétique ($\boldsymbol{\chi}_{\mathrm{m}}(\omega) = 0$), la polarisation électrique à l'endroit de la cellule *i*, dans la région source, peut s'écrire comme

$$\mathcal{P}(\mathbf{r}_i, \omega) = V_{\mathrm{cell}}^2 \boldsymbol{\chi}_{\mathrm{e}}(\omega) \times \sum_{j=1}^{N} \mathbf{K}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, \omega_0) \cdot \mathbf{E}_0(\mathbf{r}_j, \omega)\,. \tag{2.33}$$

Le formalisme complet, incluant la contribution du champ magnétique à la polarisation électrique locale, ainsi que la détermination de la polarisation magnétique, est totalement développé dans la référence [39].

La polarisation électrique totale $\mathcal{P}(\omega)$ (respectivement polarisation magnétique $\mathcal{M}(\omega)$) est obtenue en sommant les polarisations électriques locales Eq. (2.33) (respectivement les polarisations magnétiques locales) de toutes les cellules élémentaires du volume discrétisé. Ces polarisations sont reliées au super-vecteur $\mathbf{F}_0(\mathbf{r}_{\mathrm{c}}, \omega)$ au centre de masse $\mathbf{r}_{\mathrm{c}}$ de la nanostructure par les relations

$$\begin{aligned} \mathcal{P}(\omega) &= \alpha^{\mathrm{EE}}(\omega) \cdot \mathbf{E}_0(\mathbf{r}_{\mathrm{c}}, \omega) + \alpha^{\mathrm{EH}}(\omega) \cdot \mathbf{H}_0(\mathbf{r}_{\mathrm{c}}, \omega) \\ \mathcal{M}(\omega) &= \alpha^{\mathrm{HE}}(\omega) \cdot \mathbf{E}_0(\mathbf{r}_{\mathrm{c}}, \omega) + \alpha^{\mathrm{HH}}(\omega) \cdot \mathbf{H}_0(\mathbf{r}_{\mathrm{c}}, \omega) \end{aligned} \tag{2.34}$$

où les polarisabilités $\alpha^{\mathrm{EE}}(\omega)$, $\alpha^{\mathrm{EH}}(\omega)$, $\alpha^{\mathrm{HE}}(\omega)$ et $\alpha^{\mathrm{HH}}(\omega)$ sont des tenseurs dyadiques (3×3). Dans la suite du manuscrit, nous aurons uniquement besoin du tenseur $\alpha^{\mathrm{EE}}(\omega)$, qui s'exprime d'après

$$\alpha^{\mathrm{EE}}(\omega) = V_{\mathrm{cell}}^2 \boldsymbol{\chi}_{\mathrm{e}}(\omega) \sum_{i,j}^{N} \mathbf{K}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, \omega) e^{\mathbf{i}\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}_j}\,. \tag{2.35}$$

Nous renvoyons le lecteur à la référence [39] pour les expressions des trois autres polarisabilités.

Pour être plus précis, il s'agit d'une *pseudo-polarisabilité* puisqu'elle dépend de la direction d'illumination, due au terme de phase $\exp(\mathbf{i}\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j)$. Les polarisabilités conventionnelles ne dépendent que de la géométrie et du matériau de la nanostructure [158, 159]. Ce terme de phase est la cause directe de l'émergence de vortex de polarisation, responsable de l'existence de moments magnétiques multipolaires dans les nanostructures diélectriques [118, 119]. Afin de pouvoir décrire la polarisation magnétique due à la susceptibilité mixte, nous conservons le terme de phase dans les expressions des *pseudo-polarisabilités*.

Nous notons que cette approximation suppose un éclairage avec une onde plane et nécessite que le vecteur d'onde du champ incident soit déjà connu lors du calcul de $\boldsymbol{\alpha}(\omega)$. Cependant, nous avons montré dans l'annexe de la publication [39], qu'à l'aide d'une approximation supplémentaire, nous pouvions généraliser ces pseudo-polarisabilités pour n'importe quelle illumination oblique sans connaître au préalable l'angle d'incidence. Nous notons qu'il est possible de remplacer le terme de phase par un champ évanescent, ce qui conduirait néanmoins à une perte de généralité concernant l'orientation de la géométrie par rapport au champ incident. Pour finir, des champs comme par exemple un faisceau gaussien fortement focalisé peuvent souvent être décrits comme une série d'ondes planes. Dans ce cas là, les polarisabilités et les pseudo-polarisabilités peuvent être appliquées sans modification supplémentaire du formalisme.

2.4.2.1 Polarisabilité électrique-électrique pour une structure de forme arbitraire

Dans cette section, nous nous intéressons à l'évolution du tenseur de polarisabilités lorsque la géométrie et/ou l'environnement d'une structure d'or évolue. Pour cette étude, nous déci-

dons d'utiliser comme système modèle l'or plutôt que le silicium dopé car les propriétés de ce matériau ont largement été étudiées dans la littérature. Néanmoins, dès que le formalisme sera validé et que nous en comprendrons les rouages, nous l'utiliserons dans le chapitre 4 pour étudier la réponse plasmonique d'une métasurface de disques de silicium dopé.

Pour être sûr que notre formalisme, reposant sur la GDM, donne des résultats cohérents, nous avons étudié la polarisabilité de l'objet le plus basique qu'il soit, à savoir une particule d'or, isolée, de rayon $r = 5$ nm. Plus précisément, nous avons regardé la variation spectrale de la partie imaginaire de la polarisabilité dipolaire $\mathrm{Im}[\alpha^{\mathrm{EE}}(\omega)]$. La figure 2.9a montre la comparaison du terme diagonal $\alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{xx}}$, calculé analytiquement avec l'équation (2.29) (ligne bleue) ou numériquement en utilisant l'équation (2.35) (ligne rouge). Pour une sphère suspendue dans le vide, tous les termes diagonaux de α^{EE} sont identiques, et les termes hors-diagonaux sont nuls.

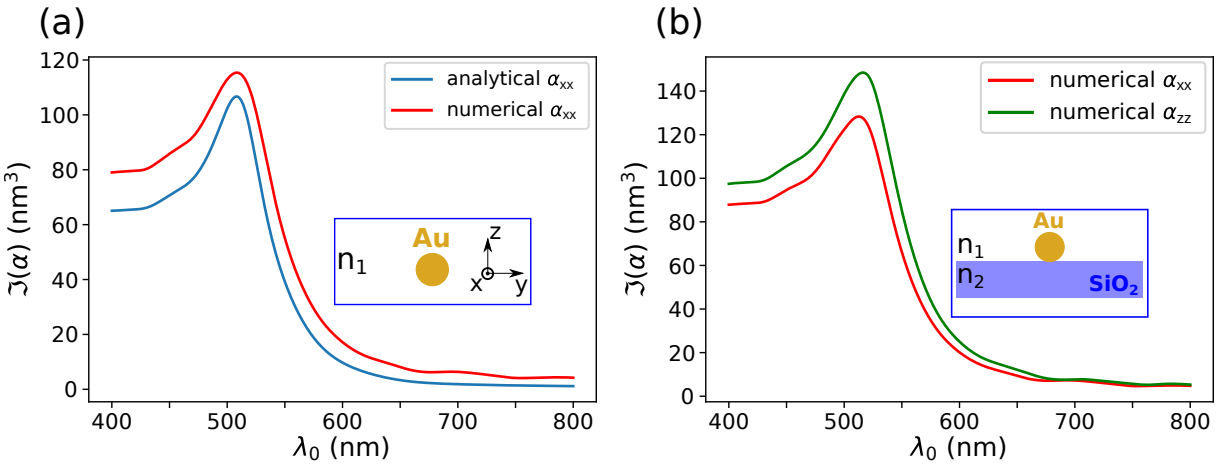

FIGURE 2.9 – Variation spectrale de la partie imaginaire de la polarisabilité dipolaire d'une particule sphérique d'or de rayon 5 nm. (a) Nanosphère suspendue dans le vide ($n_1 = 1$). Comparaison de la polarisabilité analytique de Clausius-Mossotti (bleue) et le calcul numérique (rouge). (b) Calcul numérique des termes dans le plan (rouge) et en dehors du plan (vert) du tenseur de polarisabilité d'une nanosphère déposée sur un substrat de silice ($n_2 = 1.48$). Les encarts montrent des schémas de l'environnement des particules. Pour le calcul numérique, nous avons discrétisé les sphères avec 6337 cellules identiques réparties sur une grille hexagonale compacte. Cette figure est reprise de la publication [39].

Notre approche de discrétisation numérique reproduit la résonance plasmonique bien connue des nanoparticules d'or autour de $\lambda_0 = 520$ nm [166]. La légère différence quantitative entre les deux représentations est due à l'imprécision de la formule analytique sur des échelles de tailles non atomiques. Si l'on ajoute un substrat de silice dans le calcul (voir encart Fig. 2.9b), la symétrie est abaissée de sphérique à cylindrique. En conséquence, le tenseur de polarisabilité n'est plus diagonal et $\alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{xx}} = \alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{yy}} \neq \alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{zz}}$, comme représenté sur la figure 2.9b. Ce calcul a été réalisé avec le tenseur de surface dans la limite électrostatique définie d'après (1.23a).

Cependant, dans notre méthode, nous pouvons décrire la contribution exacte de la surface avec un tenseur complètement retardé afin d'améliorer la précision des calculs pour des particules plus grosses sur des substrats plasmoniques ou à indice plus élevé [167]. Nous renvoyons les lecteurs à l'annexe de l'article [39] pour la comparaison entre les calculs quasi-statique et

retardé pour une particule de rayon $r = 50$ nm sur un substrat de silice et sur une couche d'or de 50 nm reposant sur le substrat de silice. Brièvement, pour la particule sur la silice uniquement, la variation quantitative à la résonance est d'environ 5%, mais l'effet est plus conséquent en présence de la fine pellicule d'or. Nous n'entrons pas plus dans les détails car, pour notre système d'étude, nous n'aurons pas besoin d'utiliser les tenseurs retardés de surface.

La discrétisation volumique nous permet de traiter des nanostructures de forme arbitraire [38, 45]. Par conséquent, l'étape suivante consiste à étudier l'évolution des différents termes du tenseur de pseudo-polarisabilité électrique-électrique $\alpha^{\mathrm{EE}}(\omega)$, alors que nous augmentons graduellement la complexité de la structure, comme illustré sur les figures 2.10a-d. Le tenseur de polarisabilité étant symétrique (voir Eq. (2.35)), nous avons tracé sur les figures 2.10e-l uniquement les éléments de la matrice triangulaire supérieure.

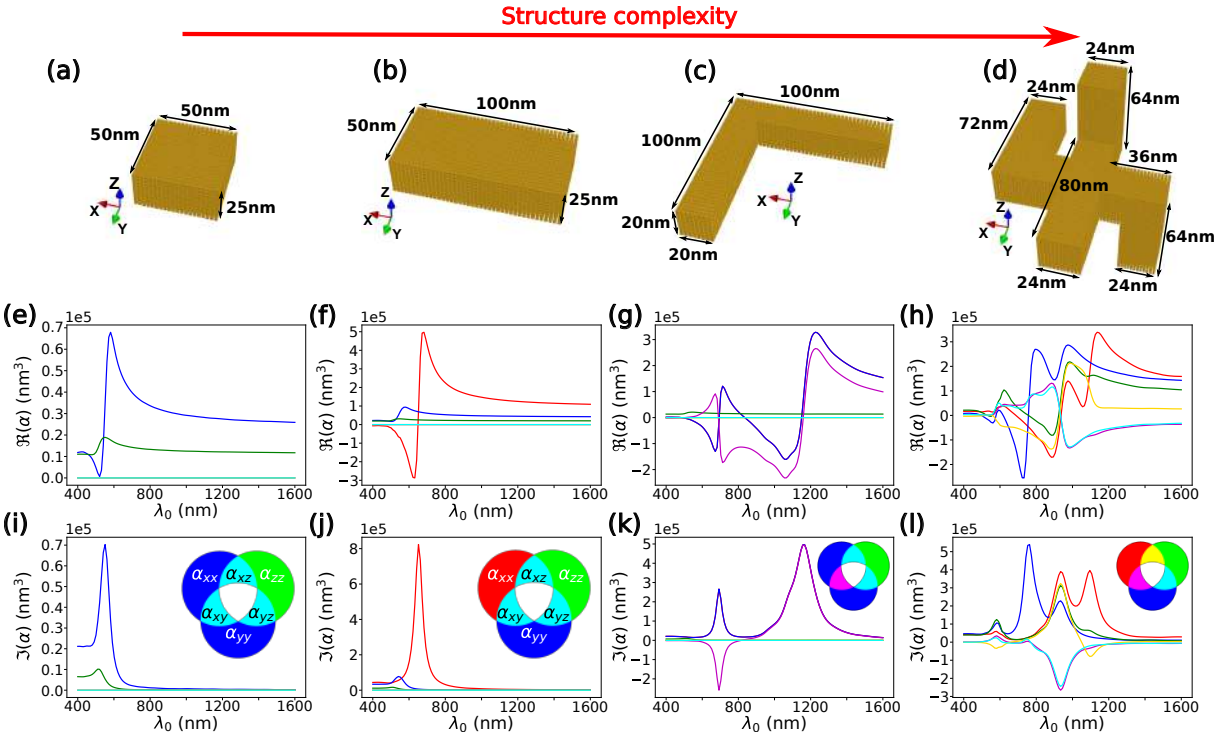

FIGURE 2.10 – Variations spectrales des parties (e)-(h) réelles et (i)-(l) imaginaires des termes de la matrice de polarisabilité dipolaire pour les différentes structures en (a)-(d). Les géométries consistent en (a) un plot rectangulaire de section carrée, (b) un plot rectangulaire anisotrope, (c) une structure en "L" incluse dans le plan xOy et (d) une structure "3D" avec plusieurs ramifications dans les trois directions de l'espace. Les dimensions des différents objets sont précisées sur la figure. Pour les trois premières structures, les calculs ont été réalisés avec un pas de discrétisation $d = 2.5$ nm tandis que nous avons utilisé un pas $d = 2$ nm pour la dernière structure pour avoir une bonne convergence de la simulation. Les diagrammes de couleurs montrent les composantes générées du tenseur de polarisabilité. Cette figure est reprise de la publication [39].

Tout d'abord, nous calculons la variation spectrale de la matrice de polarisabilité pour un plot carré de taille $50 \times 50 \times 25$ nm^3, discrétisé avec un maillage cubique de pas $d = 2.5$ nm (cf. Fig. 2.10a). Les parties réelles et imaginaires de chacune des composantes du tenseur sont re-

présentées sur les figures 2.10e et 2.10i, respectivement. A cause de la symétrie de la structure, les termes hors-diagonaux de α^{EE} sont tous nuls (courbe cyan). De plus, nous observons que $\alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{xx}} = \alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{yy}}$ (courbes bleues) qui est un résultat de la section carrée de la structure. Comme la hauteur n'est que la moitié de la largeur de la structure, la composante $\alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{zz}}$ est significativement plus petite que les deux autres (courbe verte). Malgré les petites dimensions du plot, la résonance plasmon localisée est décalée vers les grandes longueurs d'onde autour de $550 - 600$ nm. Maintenant, si nous augmentons la taille du plot selon la direction Ox par un facteur deux, à cause du rapport d'aspect, les termes $\alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{xx}}$ et $\alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{yy}}$ ne sont plus égaux. Dans ce cas, la résonance pour l'excitation le long du grand axe est encore plus décalée vers les grandes longueurs d'onde autour de 650 nm, ce qui reflète l'échelle de longueur d'onde effective de la résonance plasmonique localisée [76]. Ensuite, nous continuons de déformer cette structure en la transformant en "L" et nous calculons son tenseur de polarisabilité. Les résultats sont synthétisés sur la figure 2.10c. Dans cette structure, le couplage entre le bras horizontal et le bras vertical amène à avoir le terme hors-diagonal $\alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{xy}}$ non nul, comme nous pouvons le remarquer sur les figures 2.10g et 2.10k (lignes magenta). A cause de ce terme hors diagonal, deux résonances additionnelles émergent autour de 690 nm et 1170 nm pour lesquelles se produit un processus de conversion de polarisation entre les bras X et Y de l'antenne [168, 169]. Les deux pics à 690 nm et 1170 nm correspondent, respectivement, aux modes anti-liant et liant entre les deux bras [170, 171]. Nous notons que la phase opposée entre les deux modes est correctement reflétée dans le spectre de l'élément hors-diagonal de la polarisabilité. Comme le processus de conversion se produit uniquement entre les directions X et Y, les autres termes hors-diagonaux restent nuls (courbes cyan). De plus, comme les deux bras sont de même longueur, les termes diagonaux sont égaux $\alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{xx}} = \alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{yy}}$ (courbes bleues). Finalement, nous avons construit une structure avec des ramifications de tailles différentes selon les trois directions de l'espace cartésien, ce qui donne plusieurs interactions entre toutes les directions du repère, comme symbolisé sur la figure 2.10d. Dans ce cas, chaque élément de la matrice montre un comportement spectral unique, représentant les mécanismes d'interaction complexes entre les bras d'antenne dans les différentes directions (Fig. 2.10h et 2.10l).

Si l'approximation de polarisabilité effective est principalement intéressante pour la description des caractéristiques en champ lointain où la réponse dipolaire domine généralement, elle peut également être utilisée, dans une certaine mesure, pour calculer le champ électromagnétique au voisinage d'une nanostructure. Cependant, comme nous avons montré dans l'annexe de notre publication [39], la précision dans le champ proche diminue considérablement si le champ doit être évalué trop près de la nanostructure ou lorsque la réponse optique locale ne peut être décrite par une seule source dipolaire ponctuelle.

On note à ce stade que l'approche est également capable de traiter des nano-cavités creusées dans un milieu massif, en utilisant une permittivité non unitaire pour l'environnement et $\chi_{\mathrm{e}} = \chi_{\mathrm{m}} = 0$ dans la région source creuse.

2.4.2.2 Couplage en champ proche entre plusieurs nanostructures

Dans cette section, nous discuterons des limites du modèle de couplage des polarisabilités effectives, en fonction de la distance inter-structures, et la précision sur l'évaluation du champ proche.

Comme la distribution de vecteurs d'ondes dans la zone de champ proche d'une assemblée de plusieurs particules est hétérogène, l'approche de pseudo-polarisabilité échoue à décrire un tel système de multiples entités couplées en champ proche. Cependant, dans le cas de polarisa-

bilités effectives “statiques" (sans le terme de phase dans (2.35)), il est possible de tenir compte des interactions optiques entre plusieurs polarisabilités de ce type, rapprochées les unes des autres. C’est réalisable de manière auto-cohérente en utilisant le formalisme GDM [27, 45].

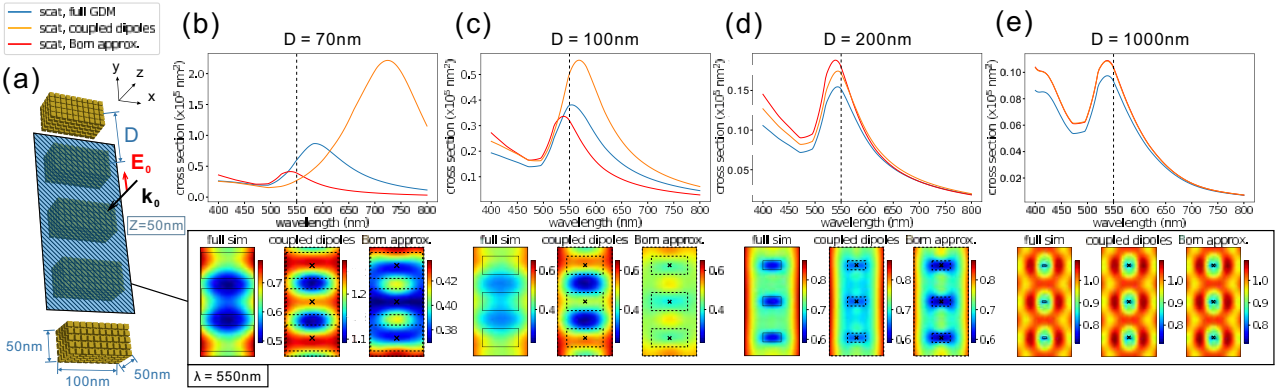

FIGURE 2.11 – Couplage de cinq nano-bâtonnets d’or de taille $100 \times 50 \times 50\,\text{nm}^3$ ($X \times Y \times Z$), alignés selon l’axe Oy. Comme illustré en (a), les objets sont séparés par une distance D (centre à centre) ajustable et ils sont illuminés par une onde plane linéairement polarisée selon Oy. (b-e) Pour différentes distances D entre les nano-bâtonnets, comparaison en haut : du spectre de diffusion et en bas : cartes de l’intensité en champ proche $|\mathbf{E}|^2/|\mathbf{E}_0|^2$ dans un plan parallèle au plan xOy à la hauteur $z = 50$ nm au-dessus de la surface supérieure des structures. Nous comparons la simulation GDM complète (courbes bleues, cartes de champ les plus à gauche) avec le modèle des polarisabilités effectives, dans lequel nous avons inclus les interactions optiques entre les dipôles via un schéma de couplage auto-cohérent (courbes oranges, cartes de champ centrales) où nous assumons que les dipôles sont isolés optiquement. Pour finir, nous simulons uniquement les interférences, sans couplage, via l’approximation de Born (représentées avec les courbes rouges et avec les cartes de droites). La zone imagée dans les cartes de champ proche vaut $3D/2 \times 3D$, la longueur d’onde d’illumination est 550 nm. A noter que sur (b) les cartes de champ proche n’ont pas la même échelle de couleurs. Cette figure est reprise de la publication [39].

Puisque le modèle décrit la diffusion au niveau d’une nanostructure comme un diffuseur ponctuel dipolaire, une certaine distance entre les diffuseurs individuels est nécessaire, de sorte que le champ dipolaire soit une bonne approximation pour le champ proche optique de la nanostructure (voir aussi l’annexe F de la référence [39]). Pour accéder à la distance minimale requise entre plusieurs petites structures métalliques, nous montrons sur la figure 2.11 des simulations pour une chaîne de cinq nano-bâtonnets d’or (voir l’illustration sur la figure 2.11a), où la distance entre les structures augmente progressivement. Sur les figures 2.11b-e, nous comparons les spectres de diffusion et les cartes d’intensité en champ proche obtenues avec la simulation complète GDM, le modèle des polarisabilités statiques couplées et enfin avec l’approximation de Born. Dans cette dernière approximation, la diffusion est calculée pour chaque polarisabilité séparément, par conséquent seuls les effets d’interférence sont pris en compte alors que les couplages en champ proche ou les diffusions multiples ne le sont pas. L’approximation de Born donne des résultats se rapprochant de la solution totale exacte, via la GDM, uniquement pour un espacement inter-structures suffisamment grand (c’est-à-dire $\gtrsim 1$ µm,

montré sur la figure 2.11e). Le recouplage des polarisabilités statiques fournit une meilleure approximation à des distances plus courtes (c'est-à-dire 200 nm, voir figure 2.11e). Un très petit espacement inter-particules conduit alors aux échecs des deux modèles approximatifs, comme nous pouvons le voir sur les sous-figures 2.11b et 2.11c.

Il faut également noter que le modèle dipolaire semble légèrement surestimer les sections efficaces optiques, ce que nous avions remarqué tout le long de nos travaux sur ce modèle de pseudo-polarisabilités [39].

Dans cette section, nous avons pris le temps d'introduire le formalisme de pseudo-polarisabilités permettant de tenir compte d'un gradient de phase du champ électrique dans des structures de tailles intermédiaires. Les structures de silicium dopé que nous présenterons dans le chapitre 4 sont petites par rapport à la longueur d'onde, c'est pourquoi nous avons uniquement introduit la polarisabilité électrique-électrique statique, et nous pourrons négliger le terme de phase. En effet, nous avons montré dans la référence [39], que le terme de phase a un effet négligeable sur la réponse spectrale d'une structure relativement large ($\sim \lambda_0/3$), bien plus grande que les dimensions de nos objets en silicium dopé.

2.5 Conclusion et Perspectives

Dans ce chapitre, nous avons fait quelques rappels de physique des solides, en précisant notamment que les cristaux possèdent deux bandes continues d'états électroniques : la bande de valence et la bande de conduction. Pour les métaux, la bande de conduction est partiellement remplie, alors que cette dernière est vide pour les semi-conducteurs.

Lorsque nous excitons un métal, sous conditions particulières d'illumination, nous engendrons une oscillation collective délocalisée d'électrons : on parle de plasmon. Les modes d'oscillation sont qualifiés de volumique ou de surfacique, selon la localisation des électrons qui bougent en phase. Ces phénomènes résonants se produisent à des fréquences bien particulières, pour lesquelles l'interaction rayonnement-matière est exaltée.

Dans cette thèse, nous avons travaillé sur le dopage de nanostructures de silicium pour créer ces comportements plasmoniques dans la gamme infrarouge. Nos échantillons étant à base de substrats SOI, nous avons étudié comment les modes phonons de la couche de silice peuvent influencer la réponse plasmonique de nos nanostructures. Nous en avons déduit que nous devions introduire une forte concentration de dopants pour décaler la résonance plasmonique vers des longueurs d'onde plus courtes que celles du phonon, et éviter tout couplage entre les deux modes.

Pour finir, nous avons présenté une approximation dipolaire, basée sur la GDM, que nous avons développée durant cette thèse pour réussir à coupler une grande quantité de nanostructures entre elles. Cette méthode vise à considérer une structure de forme complexe comme un dipôle ponctuel, pour lequel nous associons une polarisabilité effective qui tient compte de la géométrie de l'objet.

Chapitre 3

Modélisation et interprétation des propriétés optiques de nanostructures de Si dopé

Le premier chapitre de la thèse avait pour but de montrer le formalisme des tenseurs de Green et son domaine d'application. Nous avons notamment mentionné qu'il suffit d'ajuster la constante diélectrique dans le modèle pour changer le matériau d'étude. Dans le second chapitre, nous avons vu que la constante diélectrique de structures nanométriques de semi-conducteurs dopés peut être décrite à l'aide du modèle de Drude.

La GDM n'ayant jamais été utilisée pour ce type de matériaux, il nous a fallu dans un premier temps tester notre modèle. Dans ce chapitre, nous regroupons nos premiers travaux théoriques réalisés, avec cette méthode de calcul, sur ces "nouveaux" matériaux plasmoniques.

Pour anticiper les simulations à venir, sur nos échantillons lithographiés, nous commençons à étudier de manière très générale l'influence du dopage et de la géométrie de l'objet sur la réponse optique (fréquence de la LSPR, exaltation de champ proche, ...) de nanostructures de silicium dopé (Si-NS). Nous nous sommes basés sur l'état de l'art pour choisir des paramètres réalistes et compatibles avec la technique de synthèse top-down qui allait être utilisée (dimensions et formes des nanostructures, niveaux de dopage atteignables dans le Si massif, mobilités des porteurs). Cette étude théorique nous a guidé pour le design des échantillons dédiés à l'étude expérimentale qui sera présentée dans le chapitre 4.

Ce chapitre est basé en partie sur la publication [172].

3.1 Nanostructures de Si dopé pour la plasmonique IR : état de l'art

Dans cette section, nous allons présenter un récapitulatif des principales avancées dans le domaine de la plasmonique infrarouge mettant en jeu des nanostructures semi-conductrices dopées, et en particulier celles à base de Si, tant d'un point de vue théorique que d'un point de vue expérimental.

3.1.1 Nanostructures semi-conductrices dopées pour la plasmonique IR

Comme mentionné dans le chapitre précédent, les méthodes courantes pour améliorer l'absorption et la diffusion optique et pour localiser la lumière à des dimensions sous-longueur

d'onde sont basées sur des nano-antennes métalliques plasmoniques [173] ou à indice de réfraction élevé [119] et des métasurfaces composées de ces structures [174].

Dans le spectre visible, les nano-antennes semi-conductrices et diélectriques suscitent un intérêt croissant, et sont une alternative aux nanostructures de métaux nobles, grâce à leur faible absorption [119, 175] et leur compatibilité directe avec les techniques de fabrication à grande échelle issues de la microélectronique. Dans l'infrarouge moyen (MIR), en particulier à des longueurs d'onde allant de 2 à 15 µm (région d'intérêt pour la détection chimique ou biologique et pour l'imagerie thermique [176, 177]), ces approches présentent des limites. Pour les métaux nobles, il est difficile de générer une résonance plasmonique de surface localisée (LSPR) dans le spectre MIR, en raison de leur concentration d'électrons libres très élevée (environ 10^{23} cm^{-3}) [16], ou de leur comportement proche d'un conducteur parfait dans cette gamme de fréquences [15]. Pour les nano-antennes diélectriques à fort indice, les dimensions de la nanostructure requises pour décaler les résonances optiques de Mie dans le MIR sont très grandes (de l'ordre du µm), donc inadaptées aux applications telles que les détecteurs infrarouges à haute résolution nécessitant une densité élevée de pixels de petite taille.

Les nanostructures semi-conductrices dopées sont donc une alternative prometteuse pour ouvrir la plasmonique à la gamme infrarouge sur un large spectre [18, 178], car leur LSPR est ajustable grâce à la concentration de dopants, en plus d'autres paramètres tels que la forme et la taille [137]. J. M. Luther et al. [16] ont réalisé un calcul analytique utilisant les modèles de Clausius-Mossotti et de Drude pour calculer la polarisabilité d'une petite particule de semi-conducteur dopé. Ils ont montré avec ce modèle analytique que la fréquence LSPR de nanoparticules est ajustable de la gamme infrarouge lointain (FIR) pour des concentrations de dopant standards (quelques 10^{18} à 10^{19} cm^{-3}) à l'infrarouge moyen pour les semi-conducteurs fortement dopés (environ 10^{20} cm^{-3}), et même dans le proche infrarouge (NIR) si une concentration plus élevée peut être obtenue (au-dessus de 10^{21} cm^{-3}), comme montré sur la Fig. 3.1.

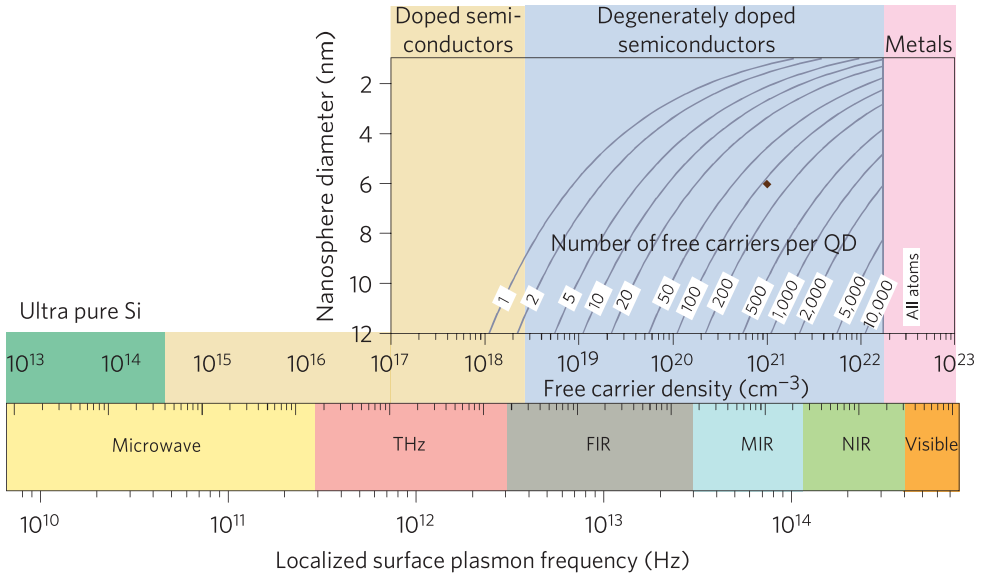

FIGURE 3.1 – Évolution de la fréquence LSPR en fonction de la densité de porteurs libres introduite dans des particules sphériques dont le diamètre varie entre 2 et 12 nm. Le calcul est réalisé avec le modèle de polarisabilité présenté dans la section 1.4.4.4. Cette figure est extraite de la publication de J. M. Luther [16].

Ainsi, depuis une dizaine d'années, différents matériaux semi-conducteurs ont été dopés et étudiés pour des applications en plasmonique, comme des oxydes métalliques parmi lesquels l'oxyde de zinc dopé avec de l'aluminium (AZO) [179, 180], du gallium (GZO) [181] ou du germanium (GeZO) [182]. Ces nanostructures présentent des LSPR autour de 3 µm. L'oxyde d'étain (ITO) dopé indium [183-186] ou antimoine (ATO) [187] présente également des LSPR intenses autour de 1.6 µm [188, 189]. On peut également citer les chalcogénures de cuivre dopés avec des lacunes [137] ainsi que les semi-conducteurs III-V [22] ou tout simplement le germanium dopé [181, 190, 191].

Deux types d'approches sont utilisées dans la littérature pour fabriquer des nanostructures semi-conductrices dopées pour la plasmonique IR : l'approche top-down et l'approche bottom-up. Quelle que soit l'approche envisagée, trois jalons doivent être franchis afin d'obtenir une LSPR à partir de ces objets : (i) insérer le dopant au sein de la nanostructure, (ii) l'activer, c'est-à-dire le placer en position substitutionnelle dans le réseau pour qu'il soit électriquement actif et génère des porteurs libres, et (iii) que ces porteurs libres soient assez nombreux [192] pour donner lieu à un plasmon de surface.

3.1.1.1 Approche top-down

La première méthode est l'approche top-down qui consiste à doper un semi-conducteur massif et ensuite à le nanostructurer. Dans ce cas, le dopage est en général bien maîtrisé, que ce soit pour l'insertion ou l'activation du dopant, puisqu'il s'agit de doper un matériau massif. Les nanostructures sont ensuite obtenues par des techniques associées à la technologie top-down comme la lithographie électronique et sont donc en général de grandes tailles (quelques dizaines à quelques centaines de nm). Ces nanostructures se présentent sous la forme de réseaux avec des objets de différentes formes (semi-sphériques, disques, parallélépipèdes etc.), présentant toutes la même concentration de dopants. De plus, nous pouvons choisir de fabriquer tous les objets avec la même géométrie, et les répartir périodiquement, afin d'éviter des effets statistiques. Le seul inconvénient de ce type d'approche concerne la taille des échantillons : ce type de réseau est fabriqué sur des petites surfaces (de l'ordre du mm^2 au maximum), ce qui pourrait être problématique pour de futures applications. On trouve ainsi de nombreux travaux dans la littérature montrant l'obtention de LSPR dans le MIR, obtenues sur des réseaux d'antennes semi-conductrices dopées issues des technologies top-down [18] dont la LSPR est ajustable avec le dopage de la couche initiale, avant nanostructuration. Ces travaux concernent par exemple des semi-conducteurs III/V [19] ou des antennes à base de Ge dopé [20]. Il est important de souligner que jusque-là, cette approche n'a jamais été utilisée pour fabriquer des nano-antennes de Si dopé.

3.1.1.2 Approche bottom-up

La seconde approche est bien entendu l'approche bottom-up, qui consiste à doper à l'échelle nanométrique. Elle met en jeu des techniques de dépôt par voie physique et permet d'obtenir des nanoparticules libres [21-23, 193] ou enrobées en matrice [194, 195]. Contrairement aux méthodes top-down, elles sont fabriquées sur des surfaces bien plus grandes (plusieurs cm^2). Cependant, le dopage efficace à l'échelle du nanomètre reste un défi et est loin d'être maîtrisé pour des raisons à la fois thermodynamiques et de science des matériaux, le premier verrou à lever concernant la localisation des dopants. Comme rappelé dans le chapitre précédent, pour être actif électriquement et donner lieu à des charges (électrons ou trous) libres, un dopant

doit se trouver en position substitutionnelle dans le réseau du semi-conducteur. Par ailleurs, une incorporation des dopants dans le volume de la nanostructure plutôt qu'en surface, où de nombreux défauts (comme les liaisons pendantes) existent, devrait donner lieu à une activation plus efficace.

J. P. Petropoulos et al. [196] ont modélisé, avec des concepts thermodynamiques simples, l'incorporation d'impuretés dopantes dans des nanoparticules. Ils ont montré qu'à mesure que la taille des particules diminue, la compétition entre l'enthalpie et l'entropie devient plus prononcée et la concentration de dopants dans le cœur de la nanoparticule diminue. Ils montrent l'existence d'une taille critique en dessous de laquelle le dopage du cœur est énergétiquement défavorable. Ainsi, l'emplacement privilégié d'une impureté dépend de la taille des particules et se déplacera du cœur vers la surface pour les très petites nanoparticules. Ils montrent également que pour de fortes concentrations de dopants, la formation d'alliages est possible, ce qui peut poser un problème lorsque des forts dopages sont visés. Cependant, il s'agit là d'un modèle basé sur la thermodynamique à l'équilibre, et les effets cinétiques et la possibilité pour les nanoparticules d'être dans des états métastables et hors équilibre est négligée. Nous verrons plus tard dans la thèse que, dans le cas de nanostructures de Si, les résultats expérimentaux de la littérature contredisent souvent ces prédictions théoriques et que certains dopants comme le P peuvent être facilement insérés dans le volume de petites nanoparticules.

Le deuxième point clé concerne le niveau de dopage. Si l'on considère une nanostructure de diamètre 3 nm, qui contient 1000 atomes, il faut garder à l'esprit qu'un dopant unique inséré dans cette nanoparticule représente déjà un niveau de dopage de 10^{19} cm^{-3}.

Le troisième verrou concerne les effets statistiques. Contrairement à l'approche top-down, l'approche bottom-up ne permet pas de contrôler le nombre de dopants introduits dans chaque nanostructure : certaines seront fortement dopées alors que d'autres ne contiennent pas de dopants et cet effet est amplifié par la dispersion en taille, et le positionnement désordonné, des nanoparticules [195]. Ces effets statistiques peuvent donner lieu à l'élargissement de la réponse plasmonique [197, 198].

3.1.2 Nanostructures de Si dopé

Bien que la plupart des semi-conducteurs cités plus haut soient compatibles avec les processus de fabrication de la microélectronique, les nanostructures en Si fortement dopé sont des candidates de choix pour la production en série de dispositifs plasmoniques MIR intégrés et à faible coût [17]. Par ailleurs, le dopage du Si, matériau de base de la microélectronique, est parfaitement maîtrisé depuis des années et des concentrations de dopants allant jusqu'à quelques 10^{19} cm^{-3} sont courantes dans le Si massif dopé. De plus, ce matériau est abondant, bon marché et non toxique. Pour toutes ces raisons, nous avons choisi les nanostructures de Si dopé comme système modèle dans ce travail de thèse.

Récemment, des plasmon polaritons de surface ont été mis en évidence sur des couches de Si dopé p et n [199, 200], montrant un meilleur confinement par rapport aux interfaces classiques métal/diélectrique. Cependant, seuls quelques articles rapportent des LSPR accordables dans la gamme IR à partir de nanostructures de Si dopé. Ces travaux mettent en œuvre uniquement des approches bottom-up, et en particulier une technique de dépôt plasma non thermique donnant lieu à des nanocristaux distribués en taille et dopés de manière aléatoire [21, 22].

3.1.2.1 Prédictions théoriques

Concernant les nanostructures de Si dopé, les études théoriques ont été principalement réalisées sur de toutes petites particules (nanocristaux de Si - Si-NCs) de quelques centaines d'atomes, c'est-à-dire avec des tailles de l'ordre de 2 - 3 nm [192, 201, 202]. La majorité des travaux théoriques concernent la structure électronique des nanoparticules dopées et reposent sur la théorie de la fonctionnelle de la densité (Density Functional Theory).

Dans leurs travaux, S. Ossicini et al. se sont intéressés via des simulations de type ab initio à la localisation des atomes de B et de P (donnant lieu respectivement à un dopage p et n) lorsque des particules de 2 ou 3 nanomètres sont dopées [202-204] et ont envisagé le cas où elles sont "libres" (free-standing) et celui où elles sont enrobées dans une matrice de SiO_2. Ils ont tout d'abord constaté que les niveaux électroniques des impuretés dans des nanocristaux de Si sont plus élevés que dans du silicium massif. Cela est dû à la déformation de la matrice cristalline qui est facilitée lorsque la taille de la particule diminue. Lorsque les nanoparticules de Si sont enrobées dans la silice, les atomes de P se positionnent préférentiellement dans le cœur et les atomes de B se logent plutôt à l'interface nanoparticule/matrice de silice [202, 205]. Ces résultats sont en bon accord avec les observations expérimentales, en particulier en sonde atomique tomographique [194, 195]. Dans le cas de nanoparticules de Si libres, la position la plus favorable énergétiquement pour le bore est à nouveau la surface de la nanoparticule. Il est intéressant de noter que dans le cas de l'impureté de phosphore, sa position dépend du diamètre du nanocristal de Si. Ainsi, les atomes de P se positionnent sous la surface lorsque le diamètre est inférieur à 2 nm, tandis que pour les nanocristaux plus gros, le cœur du nanocristal est la position la plus favorable du point de vue énergétique [205].

On trouve peu de travaux prédisant la réponse optique des Si-NCs dopés. En 2013, X. Pi et C. Delerue ont été les premiers à utiliser des simulations de type liaisons fortes (Tight Binding) pour modéliser la réponse optique de nanocristaux de Si dopé avec de fortes concentrations d'atomes de P [192]. Une réponse collective des électrons induite par la présence de P est démontrée, conduisant à une LSPR lorsqu'un nanocristal de Si contient plus de 10 atomes de P. Ils ont par ailleurs démontré que l'énergie de la LSPR variait non seulement avec la concentration de dopage, mais également avec la taille du nanocristal en raison de l'écrantage par les électrons de valence, fortement dépendant de la taille (voir Fig. 3.2). Dans les petits nanocristaux, l'écrantage est moins efficace, entraînant un décalage vers le bleu de la LSPR. On retrouve cependant un comportement simple de type Drude pour des diamètres supérieurs à 4 nm, ce qui sera le cas des nanostructures étudiées expérimentalement dans ce travail de thèse (voir chapitre 4). Par ailleurs, les auteurs démontrent qu'un nanocristal contenant un grand nombre de défauts profonds à la place d'impuretés hydrogénées ne donne pas lieu à un LSPR.

La largeur des pics LSPR est liée à son amortissement, et le seul papier théorique concerne non pas des nanoparticules de Si mais des nanoparticules de ZnO dopé [206], dont les conclusions peuvent être étendues à notre système. Dans cette publication, C. Delerue utilise un modèle qui tient compte des effets de confinement quantique, de contraste diélectrique, de surface et de diffusion par les impuretés ionisées. Ces quatre phénomènes étant à l'origine des pertes plasmon. Il montre que la largeur du pic plasmon dépend faiblement de la taille du nanocristal mais est considérablement augmentée lorsque des dopants sont placés près de la surface ou lorsque des charges fixes sont présentes dans les nanocristaux.

H. Zhang et al. ont plus récemment utilisé une approche de type TDLDA (quantum mechanical time dependent local density approximation) pour simuler la réponse optique (absorption)

de nanocristaux de Si dopé [207]. La présence de deux porteurs de charge distincts, mais en interaction, est prise en compte dans la description théorique de cette réponse. En effet, en raison de la structure de bande indirecte du silicium, les deux processus de dopage (p pour le B et n pour le P) aboutissent à deux types de porteurs, les électrons (trous) lourds et légers pour le phosphore (bore), avec des masses effectives différentes.

L'interaction entre les deux types de porteurs se traduit sous la forme d'une hybridation en deux modes dans la résonance plasmon : un mode "bonding" à faible énergie et un mode "antibonding" d'énergie plus élevée avec une énergie qui dépend de la somme des densités de dopage des deux porteurs. Dans la limite classique (nanoparticules de grandes tailles ou fortement dopées), l'interaction est très forte et les modes "bonding" à faible énergie sont décalés vers le rouge à énergie nulle, et seul le mode "antibonding" à énergie supérieure est observé dans les spectres d'absorption. D'après leurs calculs, ces deux modes devraient être observés expérimentalement pour des nanoparticules de diamètre inférieur ou égal à 8 nm et présentant des dopages inférieurs à 5×10^{20} cm^{-3}. Les systèmes modèles qui seront présentés dans le chapitre 4 ont des dimensions et des dopages trop élevés pour observer ce type d'effet quantique, impliquant des porteurs lourds et des porteurs légers.

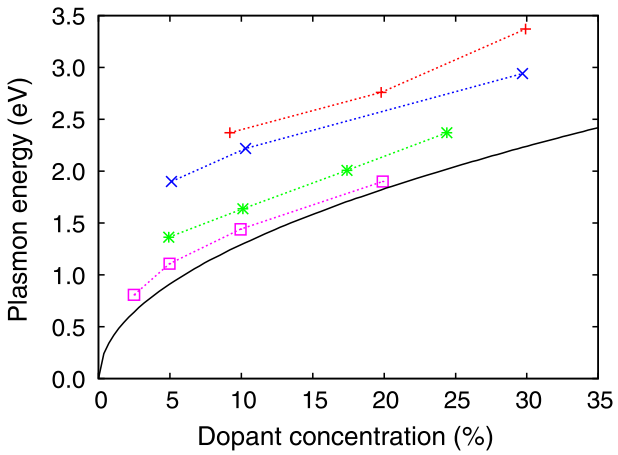

FIGURE 3.2 – Évolution du maximum du pic d'absorption en fonction de la concentration de dopants pour des nanocristaux de Si. Le diamètre des nanocristaux est 1.8 nm ('+' rouges), 2.2 nm ('×' bleus), 3.2 nm (étoiles vertes) ou 4.0 nm (carrés roses). La courbe noire représente l'énergie de la LSPR calculée avec la formule (4.1) pour $m^* = 0.3m_e$, $\epsilon_\infty^{Si} = 11.7$ (valeurs du Si massif) et $\epsilon_{env} = 1.0$. Ce graphe est extrait de la référence [192].

3.1.2.2 Résultats expérimentaux

Dans la majorité des travaux publiés, les nanostructures de Si dopé pour lesquelles une LSPR dans l'IR (ajustable avec le dopage) a été démontrée, sont fabriquées par une technique bottom-up hors équilibre (dépôt plasma non thermique).

Il s'agit de petits nanocristaux (diamètres autour de 10 nm) libres (free-standing), c'est-à-dire non enrobés en matrice, et dopés P ou B [21-23]. Ces systèmes présentent une distribution de tailles et une distribution aléatoire des dopants au sein des nanocristaux. Les LSPR mesurées par absorption optique sont dans la gamme infrarouge moyen, entre 500-3500 cm^{-1} (3000-

20000 nm), et leur position est ajustable avec le dopage. Par ailleurs, les pics obtenus sont larges (>3000 cm^{-1}) et monomodaux.

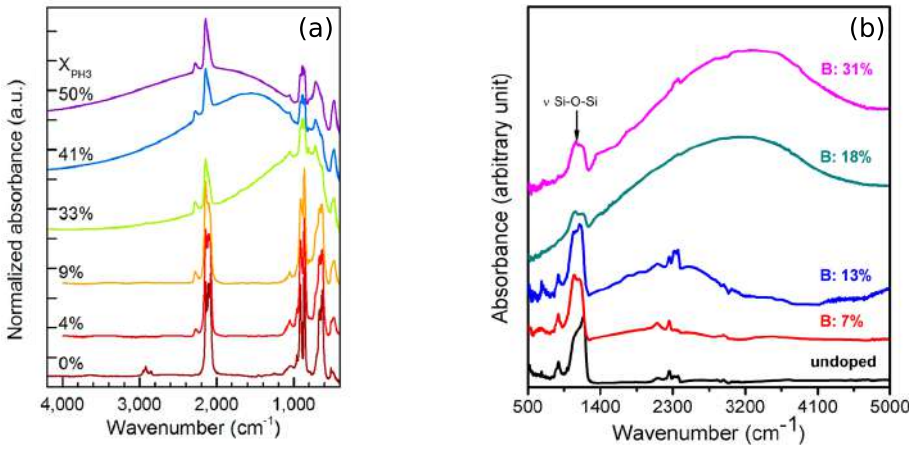

FIGURE 3.3 – Spectres normalisés d'absorbance mesurés sur des assemblées de nanocristaux fabriquées par technique bottom-up. La courbe (a), extraite de la référence [21], a été mesurée sur des cristaux dopés phosphore, alors que la courbe (b), extraite de la référence [23] a été mesurée sur des cristaux dopés bore.

Les concentrations de porteurs, déduites de ces mesures expérimentales en utilisant la loi de Drude, atteignent des concentrations maximales de 2.5×10^{20} cm^{-3} (0.5 at. %) pour le P et 4×10^{20} cm^{-3} pour le B (0.8 at. %). Ces valeurs sont très inférieures aux concentrations de dopants introduites à l'intérieur de nanocristaux de Si, mesurées par Spectroscopie de rayons X à dispersion d'énergie (EDX pour Energy-dispersive X-ray spectroscopy), témoignant d'une activation partielle des dopants. Pour une quantité nominale de dopants introduite, S. Zhou et al. [23] montrent que la LSPR des nanocristaux de Si dopé B est décalée vers les hautes énergies par rapport à ceux dopés P, et en concluent que B est plus efficacement activé que P.

Ces différentes études semblent par ailleurs montrer que ces deux types de dopants ne sont pas localisés de la même manière au sein des nanocristaux de Si, ce qui impacte à la fois leur activation et la diffusion des porteurs. Cependant, les trois études de ces mêmes objets mènent à des conclusions contradictoires. Ainsi, N. J. Kramer et al. [22] ont montré que les nanocristaux de Si dopé P présentent une LSPR juste après leur synthèse, qui disparaît lors de leur exposition à l'air (par oxydation), tandis que ceux dopés B ne présentent pas de LSPR initialement, mais cette dernière apparaît lors de l'exposition à l'air ou suite à un recuit. Ils en concluent à un dopage par substitution dans le volume du nanocristal pour le P, les défauts induits piégeant les électrons libres lors de l'oxydation. Dans le cas des nanocristaux dopés B, le dopage est en surface. Par conséquent, les nanocristaux présentent une plus faible densité de défauts, ces derniers étant passivés par le B. Ces résultats sont en accord avec les prédictions théoriques pour des nanoparticules de Si non enrobées [203].

Par ailleurs, en utilisant la même technique et des conditions de synthèse très proches, S. Zhou et al. n'observent aucun signal LSPR juste après synthèse et ce, pour les deux types de dopants. Par contre, ces mêmes nanocristaux de Si présentent une LSPR intense lorsqu'ils sont oxydés à l'air pendant une longue période ($\sim$ 330 jours). Il semblerait donc que les propriétés plasmoniques de Si-NCs dopés non enrobés en matrice et fabriqués par dépôt plasma soient très sensibles à l'oxydation, ce qui pose des questions en termes de reproductibilité, stabilité,

et vieillissement des nanostructures plasmoniques.

Plus récemment P. Rohani et al. [193] ont montré, en utilisant une autre technique de dépôt (pyrolyse laser), la synthèse de nanocristaux de Si "libres" dans la même gamme de tailles et dopés au B, présentant une réponse plasmonique ajustable avec le dopage dans le MIR (entre 1000 et 3000 cm^{-1}) juste après synthèse, sans nécessité de passivation par une couche d'oxyde de surface. La concentration maximale de porteurs déduite de la loi de Drude est proche de 4.3×10^{20} cm^{-3}. Leurs propriétés plasmoniques restent par ailleurs stables après un an d'exposition à l'air.

Outre ces questions de stabilité, ce type de système bottom-up présente une dispersion en tailles d'une part, et en dopages au sein des nanostructures d'autre part, qui pourraient expliquer en partie la largeur des LSPR mesurées. De plus, avec ce type d'approche, il n'est pas possible de les arranger sous la forme d'un réseau parfaitement ordonné, alors que cela serait nécessaire pour de nombreuses applications, comme par exemple la détection infrarouge [17]. Enfin, un réseau modèle, constitué de plots tous identiques et identiquement dopés, devrait permettre de mieux comprendre et découpler les phénomènes fondamentaux mis en jeu lors du dopage, en associant résultats expérimentaux et simulations théoriques de leur réponse plasmonique. Pour toutes ces raisons, nous avons choisi d'étudier dans la suite de ce travail de thèse un système modèle sous la forme de réseaux de nano-antennes de Si dopé au P obtenues par une approche top-down (lithographie électronique).

Dans les expériences précédemment évoquées, les concentrations de dopants actifs sont de l'ordre de quelques 10^{19} à quelques 10^{20} cm^{-3} et des taux d'activation inférieurs à 5% pour le phosphore et 1% pour le bore [23]. Pour obtenir le meilleur taux d'activation possible dans du silicium massif, il faut utiliser des méthodes hors équilibre thermodynamique afin d'activer le dopant dans le Si en phase liquide [139] et dépasser la limite de solubilité à l'état solide. C'est possible en utilisant des procédés à l'état de l'art de la microélectronique actuelle, que sont des recuits laser (LTA pour Laser Thermal Annealing) d'une durée de quelques dizaines de ns. Il est ainsi possible d'atteindre des concentrations de phosphore actif de l'ordre de 5×10^{20} à 2×10^{21} cm^{-3} dans respectivement une couche mince de SOI [208] et du silicium massif [139].

Ainsi, l'objectif de cette thèse est d'étudier la réponse optique d'une assemblée de structures identiques, de silicium fortement dopé, périodiquement réparties sur un substrat, obtenues en couplant approche top-down et procédés hors équilibre. Pour cela, nous comparerons les prédictions théoriques de propriétés optiques modélisées avec la méthode GDM et les mesures expérimentales effectuées en spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR). Ces structures ont été fabriquées à partir de la couche supérieure d'un substrat de SOI, fourni par le Laboratoire d'électronique et de technologie de l'information (CEA-LETI) à Grenoble. Cette couche a été dopée massivement avec différentes quantités de dopants par implantation ionique à basse énergie suivie d'un recuit LTA. Puis, via la lithographie à faisceau d'électrons à faible énergie (e-beam lithography) au Laboratoire d'analyse et d'architecture des systèmes (LAAS) à Toulouse, cette couche a été "nanostructurée" en une assemblée de nano-objets de forme identique, uniformément dopés et répartis. Dans le chapitre 4, nous présenterons plus en détails la méthode de fabrication, nos échantillons, et les mesures de transmittance et de réflectance effectuées sur ces derniers. L'approche top-down que nous avons choisie permet en théorie le contrôle de la LSPR en changeant la taille, la forme de la structure, son dopage, ainsi que son environnement, tout en conservant une assemblée de nanostructures parfaitement homogènes. Nous venons de montrer que les différentes équipes qui ont travaillé sur le silicium dopé, pour faire de la plasmonique accordable dans l'infrarouge, se sont intéressées à

des petites nanoparticules. Par conséquent, nous avons étudié numériquement, avec la GDM, des structures de tailles plus importantes, avant de réaliser des expériences sur nos systèmes SOI (cf. Chap. 4).

3.2 Spectre d'extinction du visible à l'IR pour une particule dopée de grande taille

Dans un premier temps, nous calculons, avec la GDM, les efficacités de diffusion et d'extinction d'une particule sphérique de silicium dopé phosphore, de rayon $R = 80$ nm, illuminée par une onde plane. Nous utilisons ces deux quantités pour déterminer l'absorption de la lumière par la structure, lorsque l'on se positionne à la résonance plasmon. Les charges libres introduites par dopage dans le silicium permettent une réponse plasmonique dipolaire dans la gamme IR, mais la structure est suffisamment grande pour que des résonances de Mie persistent dans le visible. Nous effectuons le calcul sur une structure dopée avec une haute densité $N_{\text{dop}} = 3 \times 10^{21}$ cm^{-3} d'atomes de phosphore (limite haute de ce qui est faisable expérimentalement dans le massif).

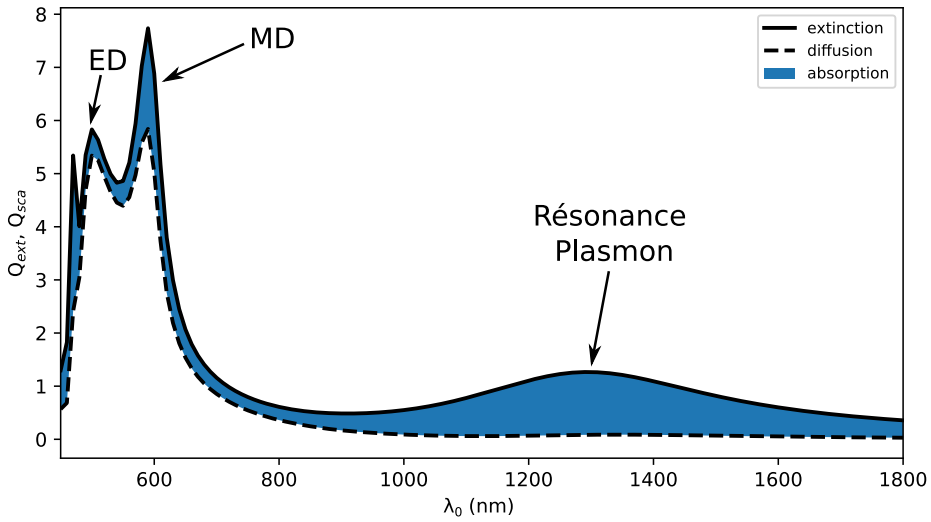

FIGURE 3.4 – Efficacités d'extinction et de diffusion d'une particule de silicium de rayon $R = 80$ nm, dopée avec $N_{\text{dop}} = 3 \times 10^{21}$ cm^{-3} porteurs libres, illuminée par une onde plane dans le vide. Le pic à 500 nm est une résonance de Mie dipolaire électrique, le pic à 600 nm est d'origine dipolaire magnétique et le pic à 1300 nm provient de l'oscillation plasmonique des porteurs introduits.

Sur la figure 3.4, nous représentons l'évolution spectrale des efficacités d'extinction et de diffusion entre 450 et 1800 nm. La résonance plasmon est aux alentours de $\lambda_{\text{sp}} = 1300$ nm et les résonances de Mie sont à $\lambda_{\text{ED}} = 500$ nm et $\lambda_{\text{MD}} = 600$ nm, correspondant respectivement à des modes dipolaires électrique et magnétique. Les deux pics à 500 nm et 600 nm sont d'origine dipolaire électrique et magnétique, respectivement. Tout d'abord, on constate que les résonances de Mie ont des sections d'extinction environ 2 à 3 fois plus élevées que la résonance plasmonique. De plus, à la résonance plasmon, la lumière est exclusivement absorbée

par la structure, alors que pour les deux autres pics la majorité de la lumière est diffusée. Il est très peu surprenant que notre particule ne diffuse aucune lumière à la résonance plasmon. En effet, dans l'infrarouge, cette dernière est beaucoup plus petite que la longueur d'onde d'illumination ($R \ll \lambda_0$), et dans ce cas, l'efficacité d'absorption (évoluant en R^3) est beaucoup plus grande que l'efficacité de diffusion (évoluant en R^6) [1, 65].

Ces résultats sont semblables à ceux présentés dans la section 1.1.3 de la thèse de P. R. Wiecha [30].

3.2.1 Effet du dopage sur la réponse optique d'un cuboïde de silicium dopé

3.2.1.1 Efficacité d'extinction

Pour réaliser notre étude concernant l'effet du dopage sur la réponse plasmonique, nous regardons l'évolution de l'efficacité d'extinction d'un cube de silicium, de taille $100 \times 100 \times 50$ nm^3, déposé sur un substrat de silice, en fonction de la quantité de dopants uniformément introduite. Nous choisissons ces caractéristiques de l'objet (forme et dimensions) car de telles structures sont envisageables en lithographie électronique [209]. De plus, nous faisons le choix d'un substrat de silice comme support car nos substrats de base pour l'étude expérimentale sont des SOI (cf. Chap. 4). Ce cuboïde est illuminé par une onde plane descendante, polarisée selon la direction Ox. La configuration est représentée sur les figures 3.5b et 3.5c.

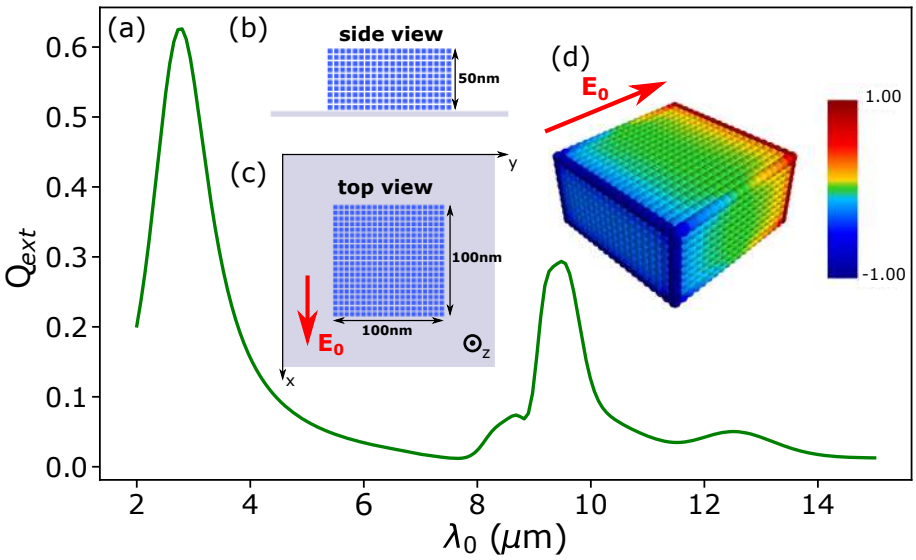

FIGURE 3.5 – (a) Spectre de l'efficacité d'extinction calculé pour un seul cuboïde de silicium hyperdopé de taille $100 \times 100 \times 50$ nm^3 supporté par un substrat de silice plan et illuminé par une onde plane descendante. La concentration de dopants introduits N_{dop} est 8×10^{20} cm^{-3}. (b) Vue de côté, et (c) vue du dessus de la structure discrétisée. Chaque point représente une cellule élémentaire de volume V_{cell}. $\mathbf{E}_0$ donne la polarisation de l'onde incidente selon l'axe x. (d) Distribution tridimensionnelle de la densité de charges dans la structure [210]. Cette figure est extraite de la référence [172].

Afin d'avoir des valeurs réalistes de dopages et de facteurs d'amortissement, nous définissons le facteur d'amortissement proportionnel à la fréquence plasmon, d'après $\gamma = 0.1\omega_p$. Cette décision permet de prendre en compte l'accumulation de défauts dans la structure quand nous augmentons la concentration de dopants introduits. Nos valeurs de facteur d'amortissement sont du même ordre de grandeurs que celles de la référence [23].

Dans nos calculs, nous simulons des cubes dopés avec des densités de porteurs N_{dop} comprises entre 1×10^{20} cm^{-3} et 3×10^{21} cm^{-3}. Si dans l'équation (2.15) nous remplaçons N_{dop} par ces deux valeurs et que nous multiplions ω_p par 0.1, nous obtenons les valeurs extrémales $\gamma = 1.64 \times 10^{13}$ Hz et $\gamma = 11.60 \times 10^{13}$ Hz, respectivement. Ces valeurs seront bien sûr adaptées dans le chapitre 4, en fonction des mesures expérimentales réalisées sur notre système d'étude, mais ces valeurs de départ nous permettent d'évaluer la validité du modèle avec des paramètres cohérents.

Pour calculer l'efficacité d'extinction, nous utilisons la formule (1.53). La constante diélectrique du silicium fortement dopé introduite dans le modèle est celle définie en (2.14) qui dépend des paramètres N_{dop} et γ. Le spectre de l'efficacité d'extinction Q_{ext} (section efficace d'extinction divisée par la section géométrique) présente un pic plasmon bien défini, situé autour de 2.8 µm (voir figure 3.5). Cette résonance correspond à la LSPR induite par les porteurs libres. La résonance à plus haute longueur d'onde, avec un pic dominant autour de 9.5 µm, est la signature de l'excitation du phonon dans la silice que nous avons évoquée dans la section 2.3. Comme nous l'avons vu dans la section 2.3.2, le pic à 9.5 µm provient du coefficient $r_{12}(\omega)$ du propagateur de surface $\mathbf{S}_s^{EE^+}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ (voir Eq. (1.23a)) qui résonne à la fréquence du phonon.

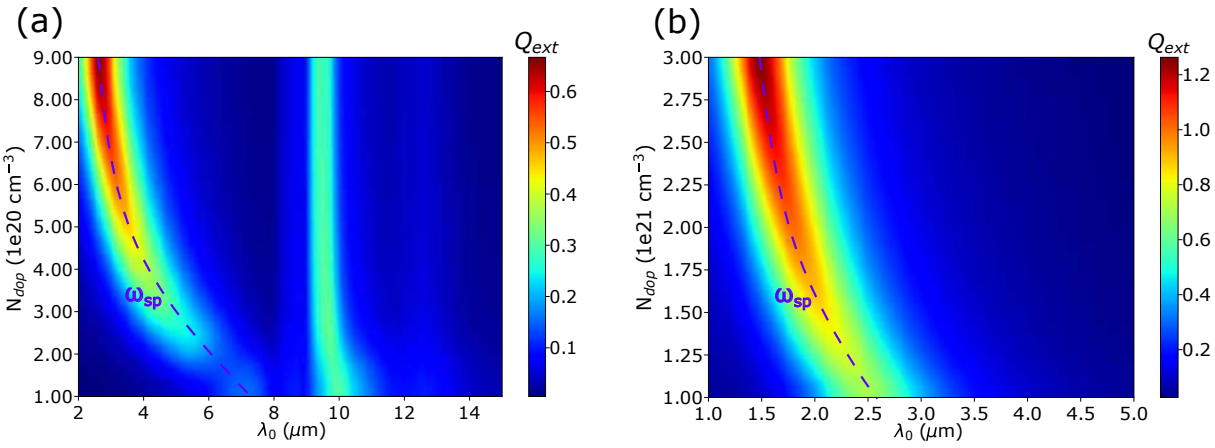

FIGURE 3.6 – Cartes 2D de l'efficacité d'extinction d'une nanostructure cuboïdale de silicium fortement dopé de taille $100 \times 100 \times 50$ nm^3 reposant sur un substrat de silice. La concentration de dopants N_{dop} varie entre (a) 1×10^{20} et 9×10^{20} cm^{-3} et (b) 1×10^{21} et 3×10^{21} cm^{-3}. La ligne pointillée violette représente l'évolution de la LSPR en fonction de la concentration en dopants. Cette figure est extraite de la référence [172].

Le comportement des deux bandes d'absorption est mis en évidence sur la figure 3.6a, montrant l'efficacité d'extinction pour le même plot de Si en fonction des concentrations de dopant dans la gamme $1 \times 10^{20} - 9 \times 10^{20}$ cm^{-3} et de la longueur d'onde d'excitation. On peut voir que la bande LSPR à courtes longueurs d'onde suit la racine carrée de la densité de porteurs (Eq. (2.15)), tandis que la bande de phonon autour de 9.5 µm est plutôt insensible à la concentration de dopants. Pour de faibles concentrations de dopants, comprises entre 1×10^{20} et

2×10^{20} cm^{-3} (cf. Fig. 3.6a), nous observons le couplage entre les deux résonances, évoqué dans la section 2.3.2, dû à la LSPR dans la nanostructure de Si et l'absorption de phonon dans la silice, entraînant un léger décalage du mode phonon vers les grandes longueurs d'onde.

Pour de fortes concentrations de dopants (entre 1.5×10^{21} et 3×10^{21} cm^{-3}, voir Fig. 3.6b), la bande LSPR est localisée dans la gamme $1.5 - 2$ µm. De telles fréquences sont accessibles pour des structures d'or fortement anisotropes, par exemple, dans la référence [76], où des nano-bâtonnets de longueur 110 nm et de rayon 5 nm présentent des résonances à $\lambda_0 = 1170$ nm. Par conséquent, il est plus intéressant d'utiliser des métaux nobles pour obtenir des LSPR dans cette gamme spectrale. En effet, il n'est pas trivial de doper aussi fortement du silicium, et de plus, la mobilité des porteurs libres sera faible à cause de la forte dégradation du matériau par le dopage, entraînant une résonance plasmonique de moins bonne qualité. Cependant, le silicium peut être intéressant pour le NIR plus lointain et l'infrarouge moyen, comme nous allons le démontrer dans le chapitre 4.

3.2.1.2 Distribution de champ proche autour d'un bloc de silicium dopé

Ensuite, nous regardons l'effet du dopage sur la distribution de champ proche au voisinage de ce cube de silicium dopé. Sur la figure 3.7a, nous montrons l'efficacité d'extinction d'une Si-NS avec une concentration de dopants $N_{\text{dop}} = 2.66 \times 10^{21}$ cm^{-3} correspondant à une longueur d'onde LSPR d'environ 1.54 µm.

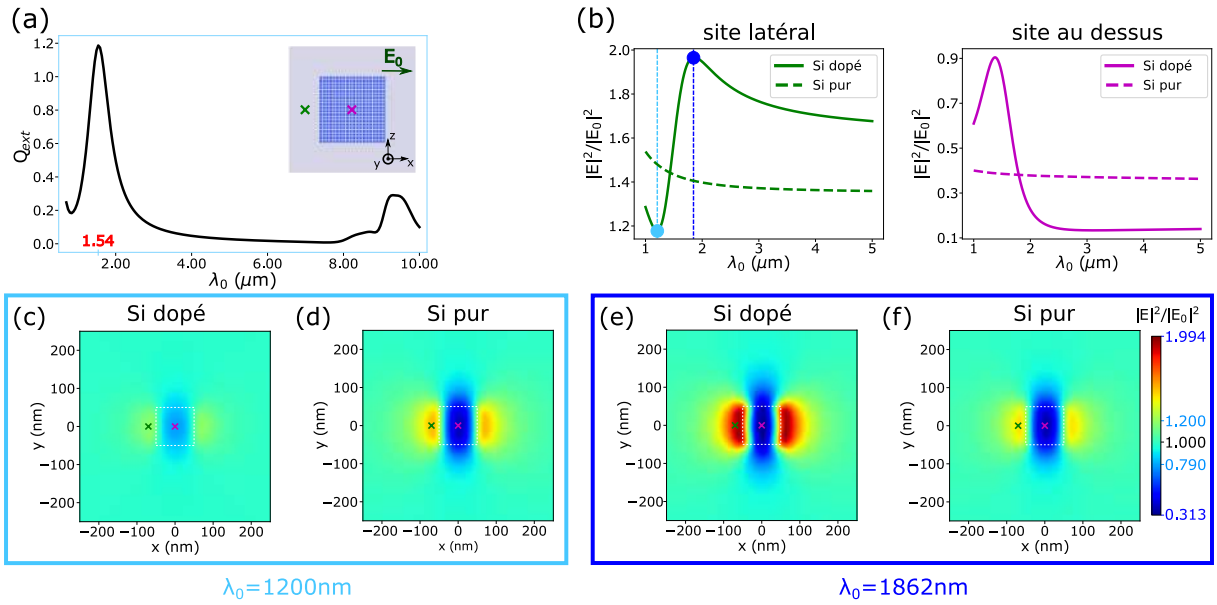

FIGURE 3.7 – Simulation du champ proche électrique dans le voisinage de nanostructures en silicium dopé avec $N_{\text{dop}} = 2.66 \times 10^{21}$ cm^{-3} et en silicium intrinsèque. Les nanostructures sont cuboïdales de volume $100 \times 100 \times 50$ nm^3. (a) Vue du dessus de la géométrie et spectre d'extinction ; (b) Spectres de champ proche local calculés aux deux positions $\mathbf{R} = (-60, 0, 70)$ (site latéral) et $\mathbf{R} = (0, 0, 70)$ (site au-dessus). Les points bleus indiquent à la fois les valeurs minimale et maximale de l'intensité du champ proche au-dessus du bord de la Si-NS dopée, à $\lambda_0 = 1200$ nm et $\lambda_0 = 1862$ nm, respectivement. (c)-(e) Cartes d'intensité de champ proche correspondantes calculées dans le plan $Z = 70$ nm ; (d)-(f) Mêmes cartes que (c)-(e) mais pour la structure intrinsèque. Cette figure est extraite de la référence [172].

Cette longueur d'onde correspond à la concentration maximale de dopants phosphore actifs de l'état de l'art qui peut être obtenue expérimentalement par recuit laser pulsé dans le Si [139], et présente un grand intérêt pour la photonique. Elle appartient en effet à la fenêtre des télécommunications optiques et correspond à l'émission d'ions Erbium, qui ont récemment trouvé de nouvelles applications en optique quantique dans la bande télécom [211].

Ensuite, nous calculons le champ proche normalisé à deux endroits différents représenté dans l'encart de la figure 3.7a, correspondant à un site à la position $\mathbf{R} = (0, 0, 70)$ au-dessus du Si-NS (croix magenta), et sur un site latéral en $\mathbf{R} = (-60, 0, 70)$ (croix verte). Les distributions d'intensité du champ proche sont représentées sur la figure 3.7b. La caractéristique la plus frappante est la présence d'un fort contraste observé au-dessus du site latéral lors du changement de longueur d'onde de 1200 nm à 1900 nm (figure 3.7b gauche). Le changement de contraste est moins marqué au-dessus du site supérieur (figure 3.7b droite). Nous avons tracé sur la figure 3.7c (respectivement 3.7e) la distribution d'intensité du champ électrique pour la longueur d'onde $\lambda_0 = 1200$ nm (respectivement $\lambda_0 = 1862$ nm) correspondant au minimum (respectivement maximum) d'intensité pour le site latéral. En comparant les cartes 2D, on note une absence ou une exaltation de contraste autour des structures de silicium dopé lorsque l'on change la longueur d'onde d'excitation. Par comparaison, les mêmes cartes pour le silicium intrinsèque (figures 3.7d et 3.7f) changent très peu avec cette dernière. Dans le cas du silicium dopé, l'absence d'un fort contraste local du champ proche, à $\lambda_0 = 1200$ nm, peut s'expliquer par la réduction de l'écart entre les parties réelles des permittivités de l'environnement ($\epsilon_{\text{env}} = 1$) et du silicium dopé autour de la longueur d'onde $\lambda_0 = 1.2$ µm (proche du changement de signe de $\text{Re}\{\epsilon_{\text{dop}}\}$) [88].

3.2.2 Assemblée de Si-NS aléatoirement orientées et/ou dopées

Sur la figure 3.8, nous illustrons l'effet du dopage sur le champ proche avec un ensemble de $N = 5$ structures aléatoirement localisées et orientées, dont le taux de dopage est progressivement augmenté. Nous éclairons cette assemblée de structures par une onde plane incidente. De plus, nous analysons des changements dans les cartes de champ proche lors de l'augmentation progressive du taux de dopage du plot.

L'analyse de ces résultats soulève les commentaires suivants :

- Bien que le système soit éclairé selon la direction Ox (champ électrique incident parallèle au substrat), chaque Si-NS (intrinsèque ou dopée) affiche un contraste typique dans les cartes de champ proche avec un grand gradient de champ près des bords.

- Pour le silicium intrinsèque, ce contraste ne dépend pas de la longueur d'onde. Ce constat est en accord avec les résultats rapportés dans les références [33, 82] car en absence de résonance plasmon, ces plots de silicium intrinsèque se comportent comme des diélectriques.

- A contrario, dans la gamme spectrale de 1200 nm à 1850 nm centrée autour de la résonance plasmon à $\lambda_{\text{sp}} = 1540$ nm, nous observons un changement significatif du motif de champ proche lorsque l'on augmente la concentration de dopants.

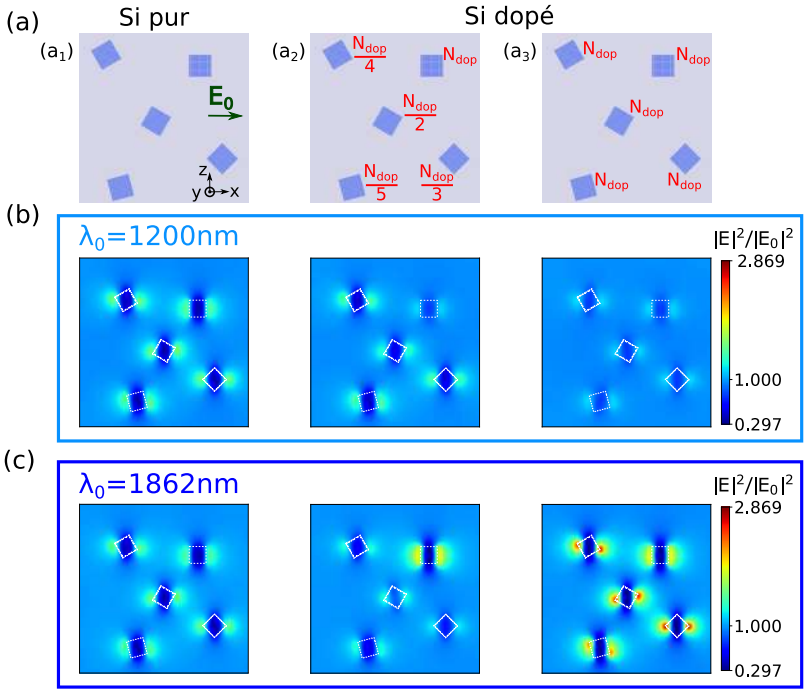

FIGURE 3.8 – Séquence de cartes de champ proche décrivant l'évolution du motif de champ proche lorsque l'on passe d'une structure de silicium pur à dopé (l'échelle de couleurs augmente du bleu au rouge, taille de fenêtre : 1000×1000 nm^2). Tous les paramètres optiques et géométriques sont identiques à ceux de la figure 3.5. (a) Géométrie et concentrations de dopants considérés dans les simulations numériques ; (b) Évolution de la carte de champ proche calculée à $\lambda_0 = 1200$ nm ; (c) Identique à (b) mais pour $\lambda_0 = 1862$ nm. Cette figure est extraite de la référence [172].

3.2.3 Effet spectral et polarisant d'un nanofil de Si dopé

Dans cette section, nous étudions l'impact de la forme de la nanostructure de silicium dopé sur la LSPR. Contrairement aux cuboïdes de silicium dopé décrits précédemment, le spectre d'extinction d'une structure anisotrope dopée, telle que des nanofils, présente deux bandes plasmon qui dépendent de la polarisation. Ces modes correspondent aux oscillations des porteurs selon leur grand axe (mode longitudinal) ou leur petit axe (mode transverse). Ce comportement, présenté sur la figure 3.9, est bien connu dans le domaine de la plasmonique "standard" (avec métaux) [10, 212]. La rupture de symétrie lève la dégénérescence du mode plasmon et donne naissance à deux bandes distinctes, une transversale et une longitudinale.

Dans notre cas, le résultat le plus frappant est que deux régions distinctes du spectre infrarouge peuvent être étudiées à l'aide de nanofils semi-conducteurs dopés (cf. Fig. 3.9). En effet, pour le dopage le plus élevé $N_{\text{dop}} = 5 \times 10^{21}$ cm^{-3}, la résonance longitudinale se situe à $\lambda_{\text{max},\parallel} = 3000$ nm et le mode transversal à $\lambda_{\text{max},\perp} = 1100$ nm. Les deux modes sont espacés de $\Delta\lambda_{\text{max}} = 1900$ nm pour une structure de Si dopé ayant un rapport d'aspect de 5. A titre comparatif, nous avons fait la même simulation mais pour une structure d'or et nous trouvons un espacement inter-modes $\Delta\lambda_{\text{max}} = 65$ nm.

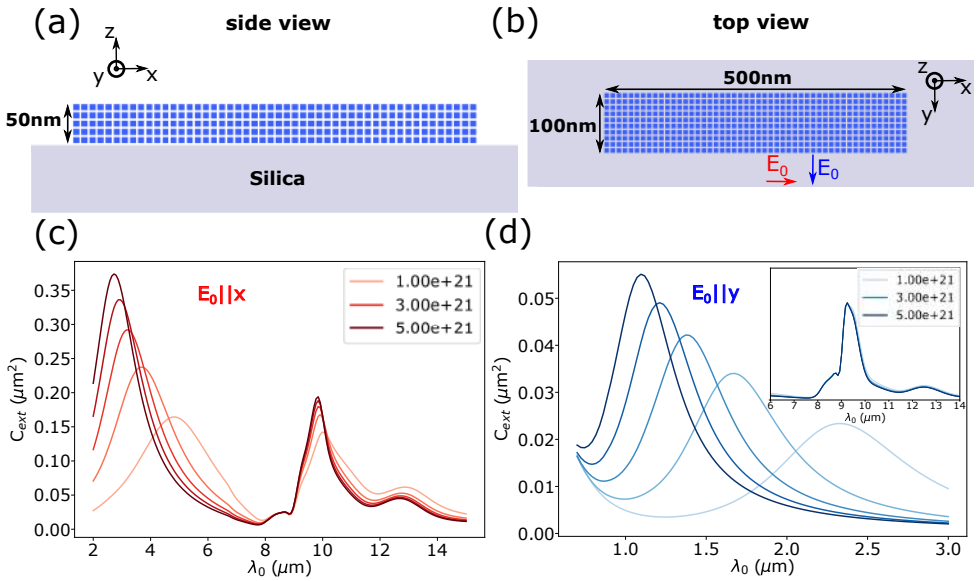

FIGURE 3.9 – (a) Vue de côté, et (b) vue du dessus de la structure discrétisée de taille $500 \times 100 \times 50$ nm^3. Les deux flèches en (b) représentent la polarisation de l'onde incidente, parallèle (flèche rouge) ou perpendiculaire (flèche bleue) à l'axe du nanofil. (c) Évolution de la section efficace d'extinction pour une excitation du mode plasmon longitudinal en fonction de la concentration de dopants (de 1×10^{21} à 5×10^{21} cm^{-3}). (d) Mêmes spectres mais pour l'excitation du mode plasmon transverse. A noter que la gamme spectrale en (d) n'est pas la même qu'en (c). Cette figure est extraite de la référence [172].

Nous pourrions penser que nos modes sont mieux dissociés que pour l'or, mais il faut tenir compte du fait que les résonances se situent dans des gammes spectrales différentes et que la largeur des pics n'est pas la même. Pour comparer efficacement ces résultats, il faut évaluer la séparabilité des pics (rapport entre la distance crête à crête, $\Delta\lambda_{\text{max}}$, et la largeur à mi-hauteur des pics, $\Delta\lambda_{\text{fwhm}}$). Pour l'or, la largeur à mi-hauteur du mode longitudinal est de l'ordre de $\Delta\lambda_{\text{fwhm}} = 55$ nm contre environ 2000 nm pour cet exemple de silicium dopé. Par conséquent, le rapport vaut $\Delta\lambda_{\text{max}}/\Delta\lambda_{\text{fwhm}}$=1.2 pour l'or, et $\Delta\lambda_{\text{max}}/\Delta\lambda_{\text{fwhm}}$=0.95 pour le silicium dopé. La séparation est donc très similaire. A priori, cette étude nous permet de dire que nous pouvons observer, comme pour l'or, une levée de dégénérescence du mode plasmon pour des structures anisotropes lithographiées sur notre substrat SOI. Par conséquent, la résonance d'une structure n'est pas uniquement ajustable par le dopage mais aussi par la géométrie, comme pour les métaux.

3.2.4 Effet de la forme sur la concentration de champ proche

Dans la section précédente, nous avons vu que la taille et la forme de la nanostructure de silicium dopé modifie fortement la résonance plasmon. Nous voulons comparer ici quelques formes spécifiques, en fixant la quantité de matière, pour étudier uniquement l'impact de la géométrie sur la réponse optique. En plus de tous les phénomènes étudiés précédemment, nous nous intéressons à l'évolution de l'intensité du champ proche en fonction de la géométrie de la structure. L'idée ici est d'envisager la forme la plus adaptée pour étudier facilement, en plus du spectre d'extinction, des propriétés d'exaltation de champ proche sur nos échantillons. Pour

cela, nous avons considéré trois types de structures qui ont déjà été étudiées en plasmonique standard avec de l'or : des cylindres, des cuboïdes et des structures "nœud papillon" (en anglais "bow-tie") [213-216]. Nous avons pensé au nœud papillon afin de voir si, comme pour l'or, nous observions une très grande exaltation du champ proche à la jonction entre les deux prismes le constituant.

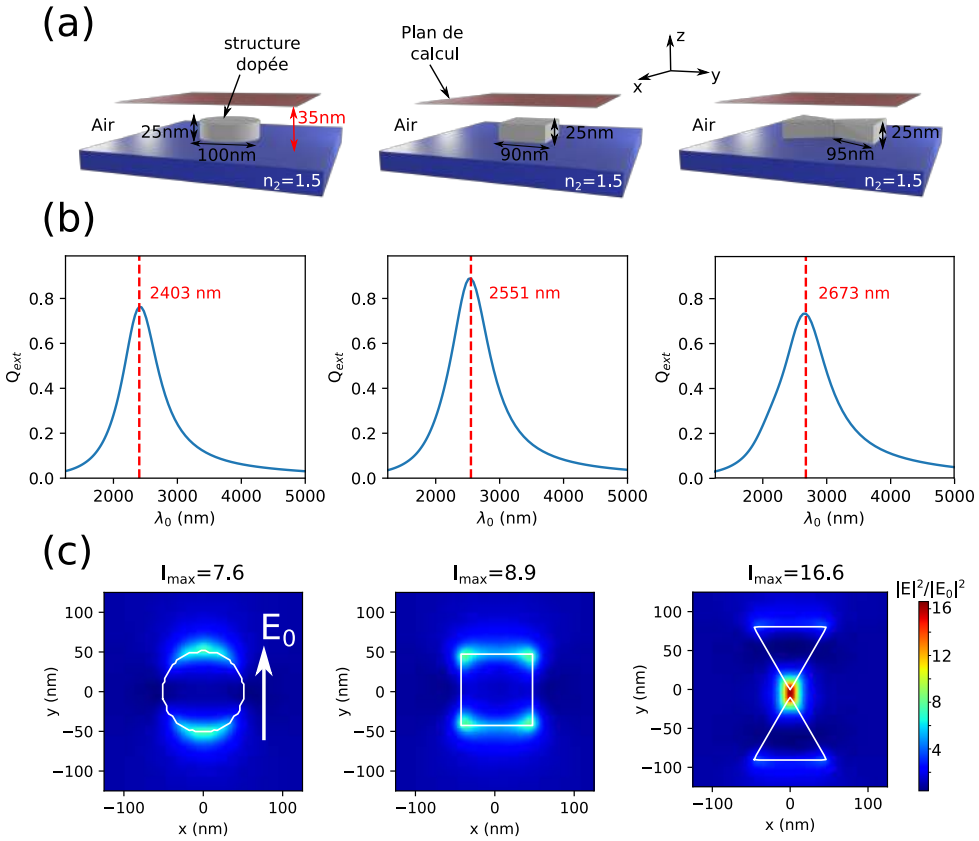

FIGURE 3.10 – Étude de l'efficacité d'extinction et de la carte de champ proche de trois structures de même section géométrique $\sigma_{\text{geo}} = 7854$ nm^2, déposées sur un substrat d'indice $n_2 = 1.5$ et illuminées par une onde plane descendante polarisée selon Oy. Tous les objets ont été dopés avec $N_{\text{dop}} = 1.1 \times 10^{21}$ cm^{-3} porteurs ayant un facteur d'amortissement $\gamma = 3.48 \times 10^{13}$ Hz. (a) Schéma des trois structures, en premier un cylindre de hauteur 25 nm et de rayon 50 nm, en deuxième un cube de hauteur 25 nm et côté 90 nm, et pour finir deux triangles équilatéraux mis pointe à pointe (nœud papillon) de hauteur 25 nm et de côté 95 nm. L'espacement entre les deux triangles est de 5 nm. (b) Spectres associés aux trois objets et (c) les cartes de champ proche correspondantes calculées 10 nm au-dessus de la structure (toutes représentées avec la même échelle de couleurs). Les cartes de champ proche couvrent une aire de taille 250×250 nm^2.

Dans nos simulations, les structures reposent sur un substrat de silice d'indice $n_2 = 1.5$ et sont illuminées par une onde plane descendante. Sur la figure 3.10a, nous schématisons les différents objets avec le plan de calcul de champ proche représenté en marron. Les structures ont toutes une hauteur de 25 nm et des dimensions choisies de telle sorte à ce qu'elles aient toutes la même section géométrique $\sigma_{\text{geo}} = 7854$ nm^2. De plus, toujours pour avoir une comparaison pertinente, nous dopons tous les objets avec le même nombre de porteurs libres

$N_{\text{dop}} = 1.1 \times 10^{21}$ cm^{-3}. Ces dimensions et cette concentration de dopants actifs sont comparables à celles choisies et obtenues sur nos échantillons expérimentaux qui seront présentés dans le chapitre 4.

Dans un premier temps, nous simulons le spectre d'extinction pour chacune des structures, nous permettant de connaître la position de la LSPR pour ensuite calculer la carte de champ proche à cette fréquence précise. Les trois spectres sont présentés sur la figure 3.10b. Pour le cylindre, la résonance est à $\lambda_{\text{sp}} = 2403$ nm, puis à $\lambda_{\text{sp}} = 2551$ nm et $\lambda_{\text{sp}} = 2673$ nm pour le cube et le nœud papillon, respectivement. Concernant l'amplitude, la différence entre les maxima est d'au plus 10%. Par conséquent, la forme de l'objet influence très faiblement la quantité de lumière absorbée par la structure.

Connaissant la position des trois résonances, nous calculons les cartes de champ proche dans le plan 10 nm au-dessus des nanostructures (voir Fig. 3.10a). Elles sont représentées sur la figure 3.10c. Comme attendu, nous remarquons que la forme de l'objet a une influence non négligeable sur l'intensité du champ proche. En effet, pour le cylindre l'intensité maximale est 7.5 fois plus grande que l'intensité d'illumination. Lorsque l'on passe ensuite d'un cylindre à un cube, le champ est encore accru de 17.1% par rapport au cylindre. Enfin, on constate que l'intensité maximale est obtenue avec le nœud papillon (16.6, soit une hausse de 118.4% par rapport au cylindre). Cette augmentation du champ proche est liée à la présence de coins abrupts dans la structure qui favorisent l'exaltation du champ [217, 218]. Néanmoins, l'exaltation du champ pour un bow-tie en silicium dopé est bien moindre que celle obtenue pour une même structure d'or ($I_{\text{max}}/I_0 = 233$). Nous en concluons que la fabrication de structures très pointues, qui est d'ailleurs loin d'être triviale, n'apportait aucun intérêt vis-à-vis de la faible augmentation du champ induite par la géométrie. Par conséquent, pour notre preuve de concept, nous avons décidé de fabriquer des échantillons constitués de cylindres périodiquement répartis sur le dessus de notre plaquette de SOI (cf. Chap. 4).

3.2.5 Gradient de dopants dans la structure

En complément des études sur les effets de la densité de porteurs introduite et de la géométrie de l'objet sur la réponse optique, nous souhaitons connaître l'influence de la distribution des dopants dans la nanostructure. La GDM permet d'attribuer des constantes diélectriques différentes à chacune des cellules élémentaires formant l'objet [64]. Ainsi, en changeant la valeur de la constante diélectrique implémentée, en fonction de la position de la cellule, nous sommes capables de définir ce gradient.

Pour notre étude, nous considérons un cylindre de hauteur $H = 200$ nm et de rayon $R = 50$ nm reposant sur un substrat de silice. Ce cylindre est discrétisé en $N = 2388$ volumes élémentaires répartis sur un réseau hexagonal compact, ce qui correspond à 24 couches selon le grand axe (direction Oz) du cylindre.

Nous codons de sorte que la densité de porteurs N_{dop} évolue avec la hauteur z dans la structure, ce qui nous permet d'associer une seule constante diélectrique à chacune des 24 couches de cellules. Nous simulons trois profils de dopage relativement simples : homogène, linéaire et gaussien, mais il est tout à fait possible d'envisager des profils plus complexes. Le dopage dans les trois cylindres est tel que la densité moyenne $\overline{N}_{\text{dop}}$ soit égale à 1.1×10^{21} cm^{-3}.

Dans le cas du dopage homogène, la densité de porteurs $N_{\text{dop}}(z)$ vaut tout simplement

$$N_{\text{dop}}(z) = \overline{N}_{\text{dop}} \,. \tag{3.1}$$

Pour le dopage linéaire, nous prenons

$$N_{\text{dop}}(z) = \overline{N}_{\text{dop}} \left[0.75 + \frac{1}{2} \times \left(\frac{z - z_{\text{min}}}{z_{\text{max}} + z_{\text{min}}} \right) \right] , \tag{3.2}$$

avec $z_{\text{max}} = 200$ nm et $z_{\text{min}} = 0$ nm les hauteurs extrémales de l'objet, et pour le dopage gaussien

$$N_{\text{dop}}(z) = \overline{N}_{\text{dop}} \left[0.8 + 0.78e^{-\frac{1}{2}\left(\frac{z - \overline{z}}{\sigma_{\text{z}}} \right)^2} \right] , \tag{3.3}$$

où $\overline{z} = 100$ nm est la demi-hauteur et $\sigma_{\text{z}} = 20$ nm correspond à l'écart-type de notre gaussienne.

Ces distributions donnent des variations de dopants suffisamment importantes pour voir des effets sur la réponse optique de la structure. Sur la figure 3.11a, nous représentons les différents profils sous forme de cartes, correspondant à une coupe transverse dans le cylindre. Pour le cas linéaire, $N_{\text{dop}}(z)$ évolue entre 8.25×10^{20} et 1.38×10^{21} cm^{-3} pour z variant de 0 à 200 nm. Le dopage est donc plus important sur le haut de la structure. Pour la distribution gaussienne, $N_{\text{dop}}(z)$ varie entre 1.72×10^{21} cm^{-3} pour $z = 100$ nm et 8.80×10^{20} cm^{-3} pour $z = 0$ nm et $z = 200$ nm. Dans les trois cas, nous admettons un facteur d'amortissement $\gamma = 3.48 \times 10^{13}$ Hz, et cela qu'importe la valeur du dopage et la position dans la structure. Ce choix permet d'étudier uniquement l'effet de la distribution de dopants sur la réponse plasmonique. Cependant, pour avoir des simulations plus réalistes, il aurait fallu modifier le facteur d'amortissement conjointement au dopage, mais cela complexifierait l'interprétation des résultats, c'est pourquoi nous nous en sommes affranchis.

Les spectres d'absorption qui correspondent aux trois cylindres sont représentés sur la figure 3.11b, où pour faciliter la lecture, nous avons utilisé le même code couleurs que sur la figure 3.11a. Tout d'abord, on constate à la résonance une perte d'intensité de 17% lorsque l'on passe d'un dopage homogène à une distribution linéaire de dopants. Cette perte atteint 37% lorsque ces derniers sont répartis selon un profil gaussien. Pour comprendre pourquoi la réponse plasmonique se dégrade, nous regardons l'orientation du champ électrique local dans les trois cylindres. Autrement dit, nous voulons savoir comment la matière se polarise (cf. Fig. 3.11c). Nous avons constaté que le champ électrique local se polarise plus efficacement pour la structure uniformément dopée. Pour les profils gaussien et linéaire, deux cellules dopées différemment ne présentent pas la même résonance plasmon. Par conséquent, en cumulant cet effet sur un grand nombre de cellules, la polarisation globale de la structure se dégrade fortement.

De plus, cela induit un décalage de la résonance, avec $\lambda_{\text{sp}} = 2094$ nm pour le dopage homogène, $\lambda_{\text{sp}} = 1985$ nm pour le dopage linéaire et $\lambda_{\text{sp}} = 2272$ nm pour le dopage gaussien. Ces variations sont relativement faibles (~ 150 nm) si on les compare à la largeur à mi-hauteur du pic (~ 630 nm). Les deux gradients non homogènes conduisent à l'élargissement de la résonance, cet élargissement étant plus important avec le profil gaussien. Néanmoins, il est préférable d'avoir le dopage le plus uniforme possible pour obtenir la meilleure résonance envisageable.

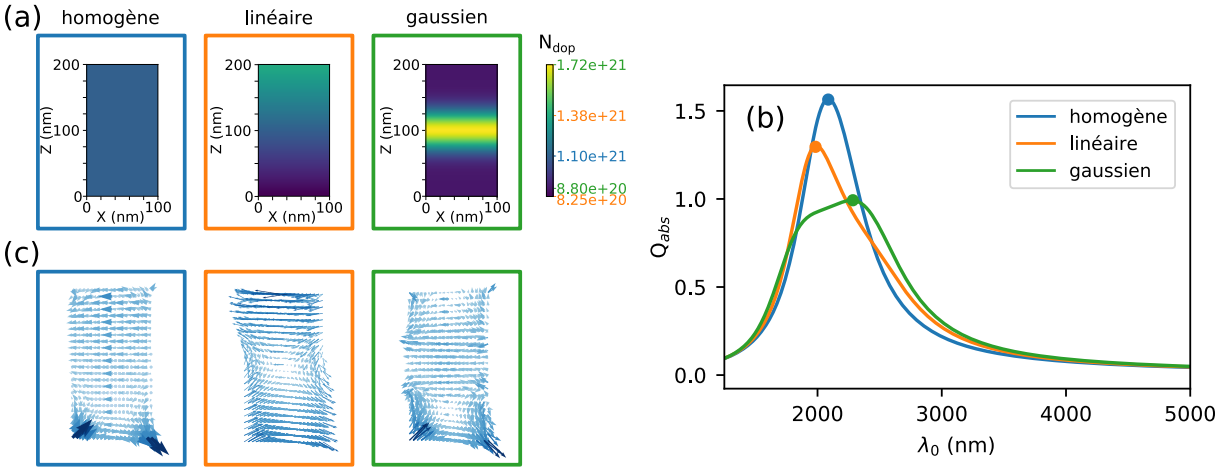

FIGURE 3.11 – Efficacité d'absorption pour des cylindres de hauteur $H = 200$ nm et rayon $R = 50$ nm ayant des profils de dopage différents (uniforme, linéaire, gaussien), tous trois reposant sur un substrat de silice. (a) Distributions de dopants en fonction de la hauteur z dans la structure pour les trois profils. Dans le cadre bleu est représenté le dopage uniforme dans la structure avec $N_{\text{dop}}(z) = 1.1 \times 10^{21}$ cm^{-3}. Dans le cadre orange, nous montrons le profil linéaire avec $N_{\text{dop}}(z)$ qui évolue entre 1.38×10^{21} cm^{-3} pour $z = 200$ nm et 8.25×10^{20} cm^{-3} pour $z = 0$ nm. Pour finir, dans le cadre vert est exposé le profil gaussien centré en $z = 100$ nm avec un dopage maximum $N_{\text{dop}}(z) = 1.72 \times 10^{21}$ cm^{-3} et en $z = 0$ nm et $z = 200$ nm le dopage minimal $N_{\text{dop}}(z) = 8.80 \times 10^{20}$ cm^{-3}. Dans tous les cas, la densité moyenne de porteurs dans la structure vaut $\overline{N_{\text{dop}}} = 1.1 \times 10^{21}$ cm^{-3}. (b) Spectres d'absorption associés à chacune des configurations. (c) Partie réelle du champ dans la structure, aux résonances (cf. points de couleurs en (b)).

3.3 Conclusion et Perspectives

Dans ce chapitre, nous avons étudié l'interaction lumière/nanostructures de silicium dopé phosphore.

Nous avons montré que ces propriétés peuvent être ajustées sur des gammes spectrales allant du MIR au NIR en modifiant la taille et la forme de la nanostructure et la concentration de dopants. De plus, la modification du rapport d'aspect conduit à deux modes transversal et longitudinal distincts en levant la dégénérescence du mode plasmon. Tous les résultats liés à la forme de l'objet sont semblables à ceux qui ont été obtenus en plasmonique standard avec les métaux nobles durant les trente dernières années. Néanmoins, il persiste un paramètre nouveau qui est la concentration de dopants et sa répartition dans la structure. Nous avons notamment vu que la réponse plasmonique perd en qualité si les dopants ne sont pas uniformément répartis dans cette dernière.

Nos résultats fournissent un outil utile pour la mesure de la concentration de dopants actifs dans des nanostructures de semi-conducteurs dopés à l'aide d'expériences d'absorption infrarouge et pour la modélisation de l'imagerie en champ proche dans cette même gamme de fréquences. Dans le chapitre suivant, nous allons appliquer ce modèle à notre système d'étude, constitué de nano-disques de Si hyperdopé réalisés par lithographie électronique à partir de substrats SOI.

Chapitre 4

Étude expérimentale du spectre d'extinction de nano-disques de Si dopé et comparaison avec la GDM

Les trois chapitres précédents condensent nos différents travaux pour modéliser, à l'aide de la GDM, des métasurfaces de nanostructures de Si dopé. Le formalisme étant pleinement établi, nous présentons dans ce chapitre les propriétés plasmoniques de métasurfaces, pour le NIR/MIR, composées d'un réseau dense de nano-disques en silicium monocristallin fortement dopé, obtenus à partir de la couche supérieure d'une plaquette de SOI. Les résultats expérimentaux sont comparés à nos simulations numériques GDM, d'abord sur un disque unique puis sur une assemblée, nous permettant ainsi d'appréhender l'impact de plusieurs paramètres sur la LSPR, comme la forme 3D réelle des nanoantennes Si (nano-cônes tronqués), le substrat, ainsi que les effets de couplage entre nano-disques au sein d'une métasurface. Ce chapitre est basé en partie sur la publication [219].

4.1 Fabrication et caractérisation structurale et optique de métasurfaces par spectroscopie IR

4.1.1 Étapes de fabrication

Nos substrats de départ sont des plaquettes SOI (001). Nous représentons sur la figure 4.1 un schéma de la structure et son image réelle en vue sur la tranche obtenue avec un microscope électronique en transmission (MET). Une couche de silicium de hauteur 23 ± 2 nm repose sur une fine lamelle de silice SiO_2 d'épaisseur 20 nm (BOx pour Burried Oxide), le tout sur un substrat de Si intrinsèque.

Nous utilisons une approche top-down qui évite une distribution statistique de la concentration de dopants et de la taille des nanostructures de Si hyperdopé. Cette approche permet d'avoir des structures qui ont des tailles plus grandes que celles obtenues avec des méthodes bottom-up. Sur les figures 4.2 et 4.4, nous avons représenté les étapes de fabrication structurale. La première est schématique et la seconde est l'équivalent expérimental avec des images MET sur lesquelles nous avons superposé les distributions de phosphore mesurées en STEM-EDX. Elles sont complémentaires sur certains points, par conséquent nous jonglerons entre les deux figures durant les explications à venir.

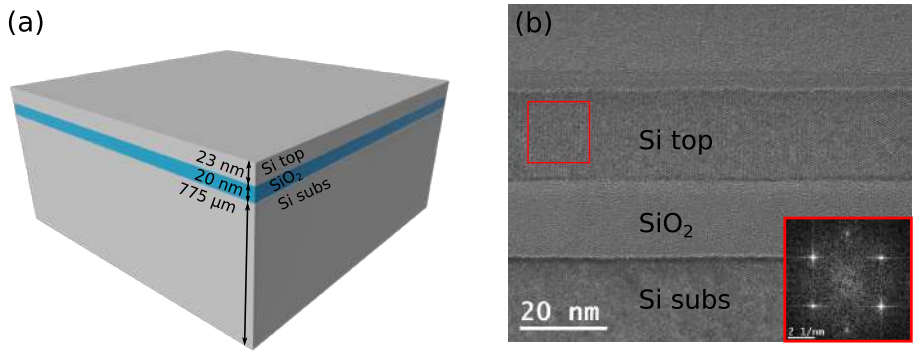

FIGURE 4.1 – (a) Schéma de synthèse de la plaquette de SOI. La couche supérieure monocristalline de silicium intrinsèque de hauteur 23 nm est représentée en gris, comme le substrat d'épaisseur 775 µm. La fine couche bleue correspond à la silice de hauteur 20 nm. (b) Image MET du système tri-couches observé en vue sur la tranche (cross-section).

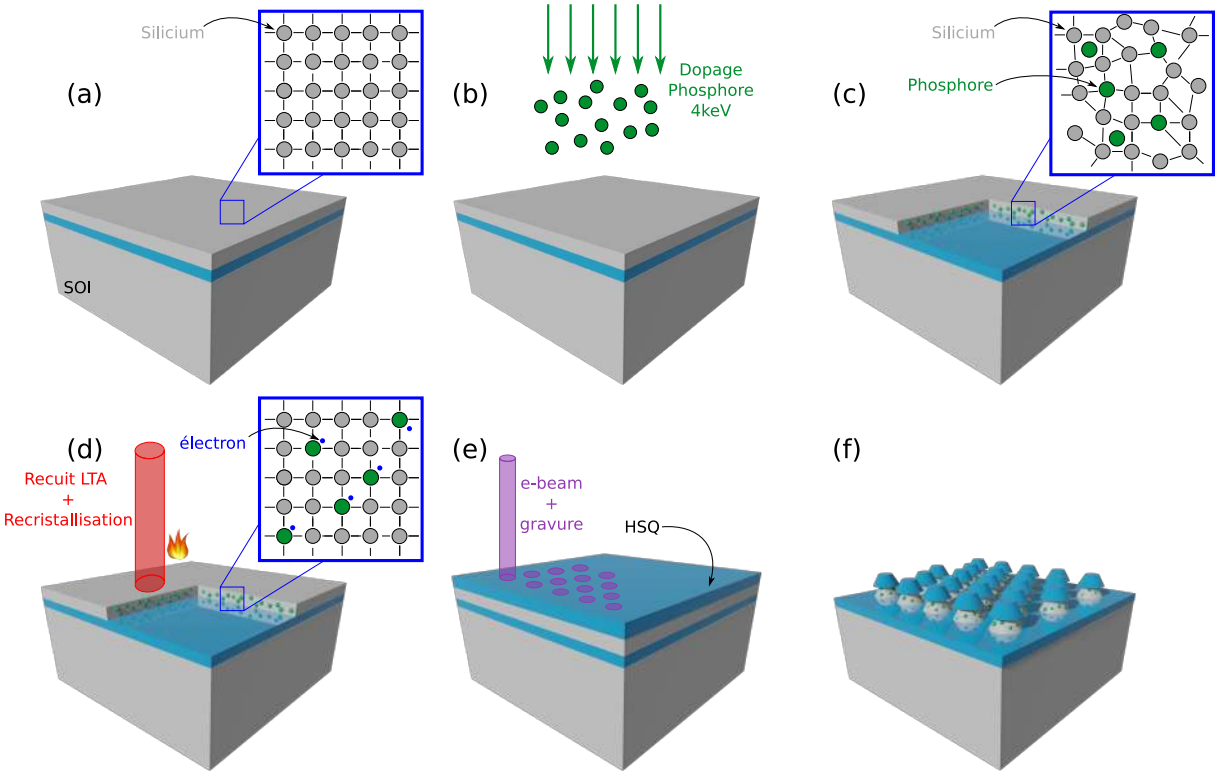

FIGURE 4.2 – Processus de fabrication des structures lithographiées. (a) Structure SOI avec une couche supérieure cristalline de Si de hauteur 23 nm et une fine lamelle de silice SiO_2 d'épaisseur 20 nm. (b) Introduction des atomes de phosphore par implantation ionique à basse énergie (4 keV). (c) Structure amorphe d'une partie de la couche de silicium dopé. (d) Étape de recuit laser et recristallisation de la couche de silicium. (e) Gravure de la couche supérieure par lithographie électronique. (f) Schéma de l'assemblée de nano-disques de diamètre $d = 100$ nm et hauteur $h = 22 \pm 1$ nm, répartis sur un réseau hexagonal avec une périodicité $p = 150$ nm.

4.1.1.1 Dopage à basse énergie

Nous repartons de la plaque de SOI décrite à l'instant (Fig. 4.1a) dans laquelle nous implantons du phosphore à basse énergie (4 keV) afin de doper la couche supérieure de Si (voir Fig. 4.2b). Le profil d'implantation, calculé avec le logiciel TRIM, est représenté sur la figure 4.3b.

Les simulations prédisent le profil tel qu'il est implanté, c'est-à-dire avant tout processus thermique et la redistribution du phosphore qui y est liée (déterminée par diffusion et/ou ségrégation).

Les doses implantées dans nos quatre échantillons sont regroupées dans le tableau 4.1. Ces fortes doses conduisent à l'amorphisation d'une partie de la couche de Si (voir Fig. 4.3a). L'épaisseur de cette couche amorphisée augmente avec la dose implantée et est comprise entre 15 nm pour P_1 et 18 nm pour P_4. Les atomes de phosphore se positionnent aléatoirement dans le solide amorphe (cf. Fig. 4.2c), par conséquent ceux-ci ne sont pas activés et ne fournissent pas de porteurs au gaz d'électrons libres.

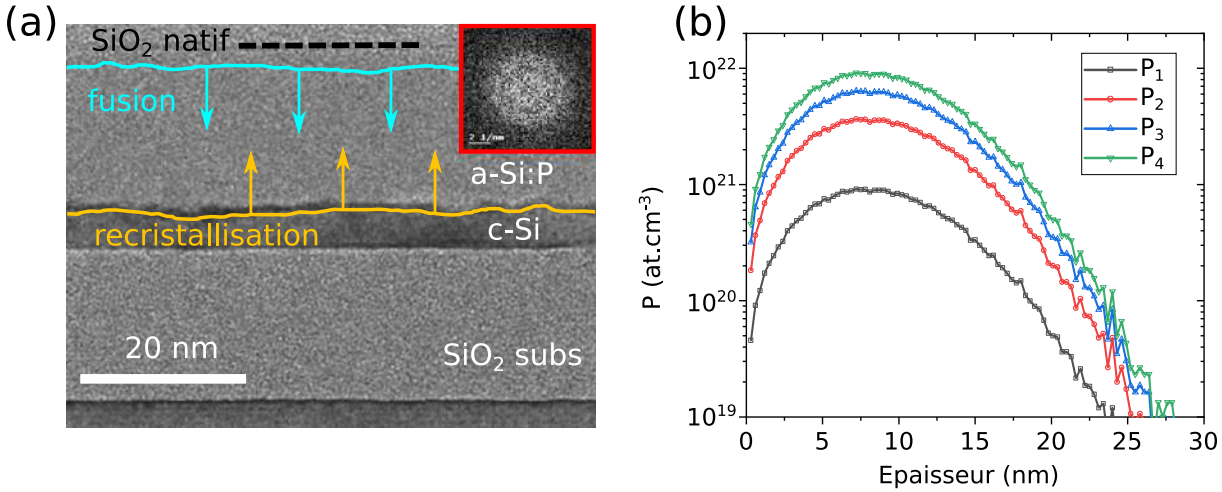

FIGURE 4.3 – (a) Image en Microscopie Électronique en Haute Résolution (MEHR) du SOI implanté P à 4 keV avec la plus forte dose (10^{16} cm^{-2}), avant recuit laser. Les flèches bleues indiquent le sens du front de fusion et les flèches jaunes celles du front de recristallisation. (b) Profils d'implantation simulés par le logiciel TRIM pour le P à 4 keV et des doses de 1×10^{15} cm^{-2} (P_1), 4×10^{15} cm^{-2} (P_2), 7×10^{15} cm^{-2} (P_3) et 1×10^{16} cm^{-2} (P_4).

4.1.1.2 Recuit thermique par laser

Afin de permettre l'activation du plus grand nombre possible d'atomes et la recristallisation de la couche amorphisée (cf. Fig. 4.2d), il faut réaliser un recuit thermique au laser pulsé (LTA), méthode qui a gagné un intérêt considérable en microélectronique [139, 220]. Le recuit LTA permet de réduire le temps de recuit à quelques dizaines de nanosecondes en atteignant le seuil de fusion. Dans de telles conditions, fortement hors-équilibres, la recristallisation a lieu par épitaxie en phase liquide et des concentrations de dopants électriquement actifs au-delà de la limite de solubilité solide à l'équilibre peuvent être atteintes dans des régions localisées, tandis que l'intégrité des zones environnantes est préservée [139]. Les recuits LTA ont été effectués avec un laser UV nanoseconde ($\lambda_0 = 308$ nm, fréquence de 4 Hz) et une durée

d'impulsion de 160 ns, pour des densités d'énergie variant entre 1 J.cm^{-2} et 1.8 J.cm^{-2}. Les processus de fusion et de recristallisation du SOI ainsi que les phénomènes de redistribution et d'activation du dopant ont été systématiquement étudiés au sein de l'équipe en couplant des études structurale (en Microscopie Electronique à Transmission) et électrique (par effet Hall).

Échantillon	Dose Nominale D (cm^{-2})	Densité E optimale (J.cm^{-2})	Concentration Nominale (cm^{-3})	Densité porteurs libres N_{dop} (cm^{-3})	Temps de diffusion τ (fs)
P_1	1×10^{15}	1.60	9×10^{20} (1.8 at.%)	3.5×10^{20} – 3.05×10^{20}	6.15 – 9.22
P_2	4×10^{15}	1.50	3.6×10^{21} (7.2 at.%)	9.2×10^{20} – 7.3×10^{20}	4.27 – 5.64
P_3	7×10^{15}	1.45	6.6×10^{21} (12.5 at.%)	1.41×10^{21} – 1.1×10^{21}	3.33 – 4.61
P_4	1×10^{16}	1.40	9×10^{21} (18 at.%)	1.6×10^{21} – 8.4×10^{20}	2.82 – 3.92

TABLE 4.1 – Conditions d'implantation : doses nominales d'implantation de phosphore (D) à 4 keV pour les échantillons P_1, P_2, P_3 et P_4 et les concentrations correspondant au maximum des profils implantés, prévu par les calculs TRIM. La troisième colonne correspond aux densités d'énergie optimales du LTA (en J.cm^{-2}) permettant de fondre entièrement la couche amorphisée par l'implantation ionique de tous les échantillons, et amenant à une parfaite recristallisation monocristalline. La quatrième colonne contient les doses nominales de chacun des échantillons. Les cinquième et sixième colonnes donnent les densités de porteurs libres (N_{dop}) et les temps de diffusion (τ), déduits par mesures FTIR sur les couches SOI non gravées. En noir : valeurs moyennes mesurées sur une surface de 1 mm^2 (données tracées sur la figure 4.6b). En bleu : valeurs locales mesurées sur 50×50 μm^2 dans le voisinage de la zone gravée, utilisées pour les simulations de la figure 4.7.

Les conditions optimales de recuit laser (densité d'énergie), afin d'avoir le meilleur taux d'activation possible tout en préservant la parfaite cristallinité de la couche, sont données dans le tableau 4.1 (colonne 3). Ces conditions, qui varient pour chaque dose implantée de phosphore (cf. colonne 2 tableau 4.1), conduisent à la fusion complète de la couche amorphisée. Dans cette configuration, la mince région cristalline conservée, entre la couche amorphe et la silice, agit comme un germe cristallin qui déclenche la parfaite recristallisation de la couche dopée (cf. Fig. 4.4a). Cette dernière a lieu en phase liquide après avoir arrêté le laser.

L'évolution, après recuit laser, du profil de P implanté est mesurée en STEM-EDX. Le profil de P après recuit (ligne rouge sur la figure 4.4a) est très différent du profil implanté (avant recuit) prédit par TRIM (cf. Fig. 4.3b). En effet, durant la recristallisation, au cours de l'épitaxie en phase liquide de la couche de silicium amorphisée, il se produit une accumulation de phosphore à la surface de la couche SOI. Cette accumulation est due à deux phénomènes. Premièrement, lors de la fusion, en raison de la diffusivité des dopants 10^8 fois plus grande dans le silicium liquide que dans le silicium solide, les dopants implantés se redistribuent rapidement dans la couche fondue, de sorte que la distribution gaussienne initiale se transforme en une distribution beaucoup plus plate (cf. Fig. 4.3a). Ensuite, durant la solidification, en raison de la solubilité plus faible du phosphore dans le silicium solide que dans le silicium liquide, les atomes de P sont poussés vers la zone fondue de l'interface solide/liquide, c'est-à-dire vers la surface [221, 222]. Ce mécanisme implique un rejet continu des impuretés du côté liquide de l'interface mobile jusqu'à, quand la solidification totale est accomplie, avoir une fraction substantielle de la quantité totale d'impuretés accumulée sur la surface de l'échantillon. Le profil de dopage après recuit LTA est représenté par la courbe rouge sur la figure 4.4a.

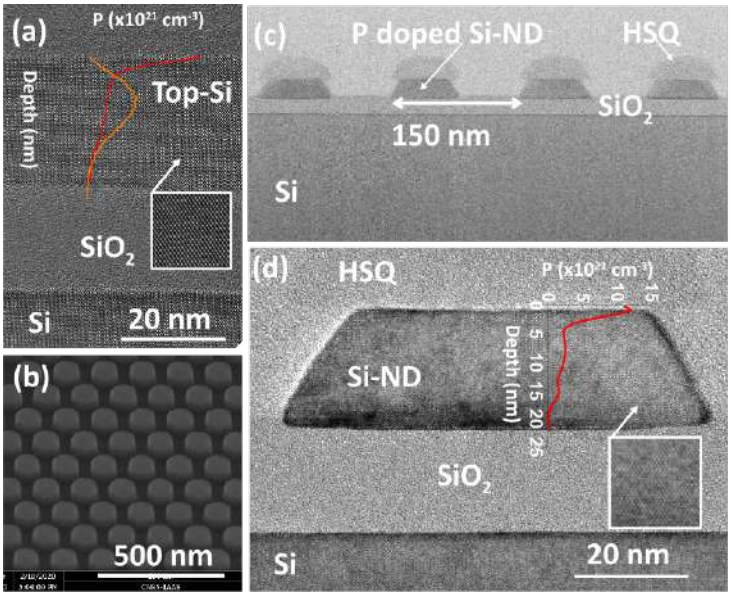

FIGURE 4.4 – Images MET et MEB reprenant les différentes étapes de fabrication avec (a) le dopage d'une fine couche de SOI par implantation phosphore et recuit LTA, illustré par une image MEHR d'une coupe transverse, après implantation avec du phosphore à 4 keV avec une dose de 7×10^{15} cm^{-2} et recuit LTA à 1.45 J/cm^2. Le profil d'implantation (courbe orange) prédit par simulation TRIM [223] et le profil mesuré après LTA (courbe rouge) sont tracés sur la structure avec un zoom sur les plans cristallins de la couche supérieure de Si. (b), (c) et (d) illustrent l'aspect nanostructuration de nos couches continues dopées par lithographie électronique et gravure ionique réactive (Reactive Ion Etching (RIE) en anglais), avec (b) une image MEB du réseau hexagonal, (c) une image haute résolution en champ clair d'une coupe transverse des nanostructures et (d) un zoom en MEHR sur un plot unique. La ligne rouge est le profil de concentration de dopants mesuré en STEM-EDX sur ce disque. Cette figure est extraite de la référence [219].

Pour chaque dose, seuls les échantillons correspondant aux conditions LTA optimales, c'est-à-dire présentant une couche supérieure de Si dopé P monocristalline sans défaut, seront considérés pour les étapes suivantes du procédé de fabrication.

4.1.1.3 Lithographie électronique

A partir de ces couches, nous fabriquons, par lithographie électronique (e-beam) à basse énergie et gravure ionique réactive (Reactive Ion Etching (RIE) en anglais) [224], une assemblée périodique de nano-disques de diamètre $d = 100$ nm et hauteur $h = 22 \pm 1$ nm, voir figures 4.2e-f. Les structures sont arrangées sur une grille hexagonale compacte ayant une périodicité $p = 150$ nm, couvrant une zone carrée de superficie 50×50 µm^2 (cf. Fig. 4.4b). Comme montré sur l'image de microscopie électronique à balayage (MEB), le diamètre du disque et la périodicité du réseau ont été choisis pour maximiser le facteur de remplissage de la métasurface (Taux de couverture (Filling Factor en anglais) $FF = 0.4$), maximisant ainsi l'interaction lumière-matière pour les mesures optiques. L'image MET en champ clair d'une coupe transverse (voir Fig. 4.4c) montre que leur forme et leur dimension sont identiques, et

qu'une sous-gravure provoque une forme de cône tronqué des objets. Ils sont recouverts d'un capuchon de 20 nm d'hydrogène silsesquioxane (HSQ), conduisant à une sorte de forme en champignon. Le capuchon résistant de HSQ est un résidu du masque RIE que nous ne retirons pas pour éviter le décollage accidentel des plots de silicium. Nous remarquons, sur les images TEM, que les diamètres des plots semblent plus petits que 100 nm. Ceci est dû à un artefact de préparation des échantillons, en couche mince pour les études TEM, les plots n'étant pas coupés exactement au niveau de leur diamètre. Par ailleurs, l'image de microscopie électronique haute résolution (MEHR) réalisée sur un plot unique (cf. Fig. 4.4d) confirme la sous-gravure des flancs et montre qu'il est parfaitement monocristallin, attestant que la nanostructuration ne crée pas de défaut cristallin.

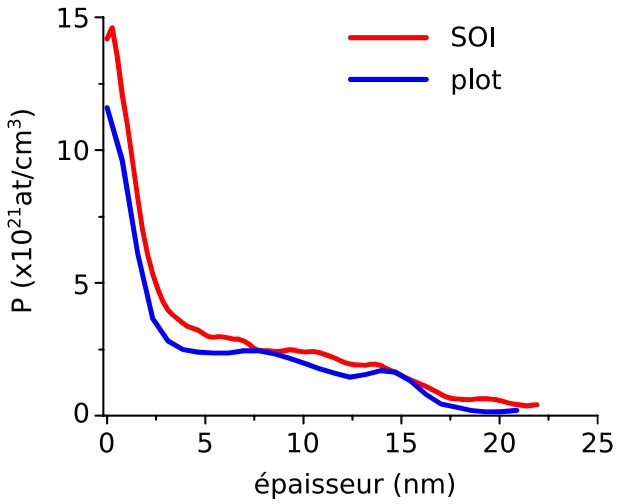

FIGURE 4.5 – Profils d'implantation de phosphore mesurés sur l'échantillon P_3 après recuit LTA par STEM-EDX, avant (rouge) et après (bleu) la nanostructuration.

Des mesures STEM-EDX (Scanning TEM - Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy) de la redistribution des atomes de phosphore par recuit LTA, réalisées sur plusieurs disques (voir la concentration de dopants (courbe rouge) sur la figure 4.4d), montrent que tous les disques sont identiques en terme de dopage. De plus, sur la figure 4.5, nous avons superposé le profil EDX mesuré sur un plot et celui mesuré dans la même couche avant la nanostructuration. Les deux profils sont semblables, indiquant que la structuration ne modifie pas cette distribution. Les petites différences entre les deux profils sont dues aux fluctuations statistiques de la redistribution de phosphore cumulées à la barre d'erreur de 10% sur la mesure STEM-EDX.

Tout comme dans la couche mince, une redistribution homogène de phosphore (plateau) est observée dans le volume des nano-disques et on retrouve l'accumulation des atomes P à l'interface entre le disque et la couche de HSQ. La teneur en P dans le volume du disque (plateau) croît avec la dose implantée, atteignant une valeur de saturation de 2.5×10^{21} cm^{-3} (5 at. %). Ces valeurs sont identiques à celles mesurées dans la couche continue de Si, avant la nanostructuration. Cette valeur de saturation dépasse largement la limite de solubilité solide du phosphore dans le Si massif à l'équilibre thermodynamique [225].

4.1.2 Mesures optiques par spectroscopie IR et comparaison expérience/théorie

4.1.2.1 Mesures sur une couche continue

La spectroscopie IR que nous utiliserons pour mesurer les LSPR de nos nano-disques de Si hyperdopé, permet également de mesurer de manière non destructive les densités de porteurs et leur mobilité dans les couches avant nanostructuration. Les spectres infrarouges de transmission et de réflexion, pour quantifier l'absorption des porteurs libres, ont été mesurés à température ambiante en utilisant un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier (FTIR). La lumière large bande et incohérente est focalisée sur l'échantillon à l'aide d'un microscope Cassegrain (objectif $\times 50$). Contrairement à un montage expérimental utilisant une source de lumière cohérente (laser), la source de lumière (globar) utilisée ici ne peut pas être focalisée sous la forme d'un faisceau gaussien de petite taille, et une ouverture assez grande doit être utilisée pour illuminer la zone d'étude.

La figure 4.6a montre les spectres de transmittance et de réflectance, mesurés sur les couches dopées continues pour les trois concentrations de dopant implantées P_1, P_2 et P_3 (voir Tableau 4.1). Les spectres de transmittance sont normalisés à l'aide d'une référence, pour laquelle la couche supérieure de Si dopé de 23 nm a été complètement enlevée ($T = T_s/T_{ref}$), permettant de déterminer l'impact de cette dernière. Les données de réflectance, quant à elles, sont normalisées avec une fine zone d'or pulvérisé sur le même substrat ($R = R_s/R_{Au}$). Les courbes de transmittance normalisées affichent une valeur proche de l'unité aux hautes fréquences, qui décroît fortement aux basses fréquences (en dessous de ≈ 3000 cm^{-1}). Cette transmission réduite est liée à l'absorption lumineuse par les électrons libres de la couche dopée n, et comme attendu, cette réduction est associée à une augmentation simultanée de la réflectance. Au fur et à mesure que la densité de porteurs libres augmente, évidemment liée à une concentration croissante d'atomes de phosphore, il est clair que le minimum de transmittance (respectivement maximum de réflectance) aux faibles fréquences est plus prononcé. La transmittance chute à des valeurs aussi basses que $\approx 35\%$ pour l'échantillon avec la plus grande concentration (P_3).

Pour extraire des informations quantitatives supplémentaires à partir de nos mesures optiques, nous modélisons, à l'aide du logiciel RefFIT [226], les propriétés de réflexion et transmission de notre structure multi-couches (Simulations de la figure 4.6a). Le logiciel RefFit utilise l'indice de réfraction complexe $n = n' + in'' = \sqrt{\epsilon}$ pour calculer la réflectivité et la transmissivité complexes pour chacune des interfaces. Pour ce calcul nous avons supposé que le substrat de silicium est infini, par conséquent le modèle tient compte de la réflexion du champ à l'interface Si/SiO_2, uniquement. Les constantes diélectriques de la silice et du silicium intrinsèque sont prises des références [116, 117, 142]. Pour finir, la fonction diélectrique du silicium dopé est définie avec le modèle de Drude (Eq. (2.14)). Les paramètres libres utilisés pour fitter les données expérimentales sont uniquement la densité de porteurs N_{dop} et le temps moyen entre deux collisions τ (on rappelle $\gamma = 1/\tau$), les autres paramètres étant fixes et définis dans le chapitre 2. Pour une dose donnée de phosphore, les paramètres d'ajustement sont déterminés en réalisant un fit simultanément sur R et T. Pour une dose donnée de phosphore, R et T sont ajustés simultanément, donnant un ensemble de paramètres d'ajustement.

Les lignes pointillées noires sur la figure 4.6a correspondent au meilleur fit pour chaque dose. Nous voyons que le fit des données est correct car ces courbes noires sont presque indiscernables des courbes expérimentales, et cela pour toutes les doses. Cet excellent accord entre

l'expérience et le modèle, ne prenant en compte qu'un seul terme de Drude combiné avec le profil EDX représenté sur la figure 4.4d, suggère que le taux de diffusion du dopant actif (et donc la concentration) est majoritairement homogène (sans gradient significatif de dopage), contrairement à ce qui a été rapporté sur des couches épaisses de silicium dopé [227]. Cette méthode d'ajustement permet une détermination de la densité de porteurs relativement précise (de l'ordre de quelques %), tandis que la précision sur la détermination de la mobilité est de l'ordre de 10%.

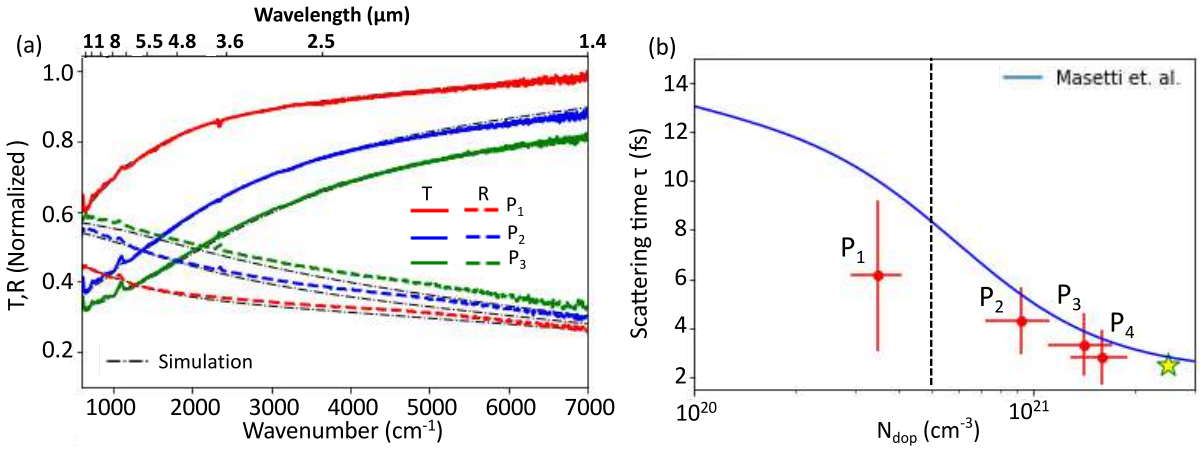

FIGURE 4.6 – (a) Données normalisées de transmittance et de réflectance. Les lignes continues correspondent aux mesures sur des couches de Si non gravées. Les lignes pointillées sont les courbes simulées utilisant le modèle présenté dans le texte. (b) Temps entre deux collisions en fonction de la densité de porteurs libres à partir de l'ajustement des courbes. La ligne bleue est le modèle développé dans la référence [138] pour du silicium dopé avec du phosphore. La ligne pointillée verticale indique l'activation électrique maximale de P dans du Si massif à l'équilibre thermique et le symbole en étoile indique la valeur la plus élevée mesurée dans la littérature pour l'activation de phosphore dans du silicium massif, obtenue après recuit laser [139]. Cette figure est extraite de la référence [219]

Les densités de porteurs libres extraites et regroupées dans le tableau 4.1 s'étendent de 3.5×10^{20} cm^{-3} pour P_1 jusqu'à 1.6×10^{21} cm^{-3} pour P_4, dépassant la limite de solubilité solide (pour P_3 et P_4) et surtout la concentration de P électriquement actif dans le silicium massif à l'équilibre thermodynamique (ligne pointillée verticale sur la figure 4.6b) [225]. Notre meilleure valeur est proche de la concentration de P actif la plus élevée rapportée dans le Si massif, obtenue après recuit laser pulsé, avec des mobilités comparables (symbole en étoile sur la figure 4.6b) [139]. A partir des densités de porteurs libres, nous avons déduit des taux d'activation des ions P implantés de 70% pour P_1, 46% pour P_2, 40% pour P_3 et 32% pour P_4, obtenus en divisant la concentration de porteurs par l'épaisseur de la couche implantée et en faisant le rapport de cette dose active sur la dose nominale. Nous pouvons voir que non seulement une grande partie de P ne contribue pas à la densité d'électrons libres, mais aussi que le taux d'activation diminue lorsque la concentration de P augmente.

Pour déterminer l'impact de la fraction de P non activée sur les propriétés électroniques, nous comparons, sur la figure 4.6b, nos valeurs de $\tau(N_{\text{dop}})$ avec la fonction modèle développée par Masetti et al.[138] pour des échantillons idéaux recuits en équilibre thermodynamique et présentant une activation de dopants de 100%. Le très bon accord suggère que notre processus

d'activation du dopant, tout en atteignant les meilleurs taux de dopage de la littérature, ne détériore pas considérablement la mobilité électronique et que la plupart, sinon la totalité, des atomes de P en excès forment des précipités électriquement inactifs [228]. Notons que les barres d'erreur de la figure 4.6b représentent les variations de mobilité et de densité qui peuvent être mesurées sur la zone recuite par laser. A contrario, l'incertitude due à la procédure d'ajustement de la courbe de la figure 4.6a est nettement plus faible.

Les taux d'activation et les mobilités déduits des mesures FTIR sur les couches continues optimisées peuvent être comparés à ceux mesurés sur les mêmes couches par effet Hall. Les valeurs pour les deux types de mesures sont regroupées dans le tableau 4.2. L'évolution des valeurs en fonction du dopage suit la même tendance pour les deux techniques, mais les mesures par effet Hall donnent des taux d'activation plus élevés (associés à des mobilités plus faibles). Ces différences peuvent être attribuées en premier lieu aux erreurs expérimentales associées à chaque technique. Elles peuvent également être dues aux hypothèses faites dans le modèle de détermination par FTIR du taux d'activation et des mobilités des porteurs. Enfin, même si les doses de Hall et les mobilités sont directement mesurées, la détermination du taux d'activation fait intervenir une hypothèse quant au facteur de diffusion de Hall, que nous avons pris égal à 0.9 [229].

Échantillon	Dose Hall D_{Hall} (cm^{-2})	Dose FTIR D_{FTIR} (cm^{-2})	Mobilité Hall μ_{Hall} ($cm^2.V^{-1}.s^{-1}$)	Mobilité FTIR μ_{FTIR} ($cm^2.V^{-1}.s^{-1}$)
P_1	10^{15} (90% ± 13)	7×10^{14} (70% ± 10)	25.5	39
P_2	3.2×10^{15} (72% ± 11)	1.84×10^{15} (46% ± 10)	15.5	25.2
P_3	4.1×10^{15} (53% ± 8)	2.82×10^{15} (40% ± 9)	12	16.6
P_4	4.1×10^{15} (37% ± 6)	3.2×10^{15} (32% ± 15)	13	19.4

TABLE 4.2 – Taux d'activation et mobilités déduits des mesures FTIR et des mesures Hall sur les couches continues pour les quatre doses d'implantation. Les valeurs en bleu correspondent aux taux d'activation (en %) avec les barres d'erreurs, dues à la précision des mesures.

4.1.2.2 Mesures sur la couche nanostructurée

Nous étudions maintenant les métasurfaces de nano-cônes dopés avec les quatre différentes concentrations de P. Les figures 4.7a-b montrent les spectres de réflectance et de transmittance associés à chacun des échantillons. Le minimum de transmittance (respectivement maximum de réflectance) se déplace vers les hautes fréquences lorsque la densité de porteurs libres augmente, prouvant sans ambiguïté que les plots dopés donnent lieu à une LSPR. La variation de la fréquence plasmon (maximum du pic de réflectance) déduite des mesures FTIR est tracée (symboles) en encart de la figure 4.7a, en fonction de la densité de porteurs. Ces densités correspondent aux valeurs de la colonne 5 du tableau 4.1, déduites par mesures FTIR sur les couches continues avant nanostructuration. Pour les quatre échantillons, la fréquence plasmon coïncide bien avec la courbe théorique analytique (trait plein), déduite de la loi de Drude pour une petite particule sphérique (cf. Chap. 2)

$$\omega_{sp} = \sqrt{\frac{4\pi N_{dop} e^2}{m^*(\epsilon_\infty^{Si} + 2\epsilon_{env})}}, \tag{4.1}$$

où ϵ_{env} est la constante diélectrique du milieu environnant. Comme nos structures sont sur un substrat de silice et qu'elles sont recouvertes d'un capuchon de HSQ, assimilable à de la silice, nous avons fixé $\epsilon_{\text{env}} = 2.25$.

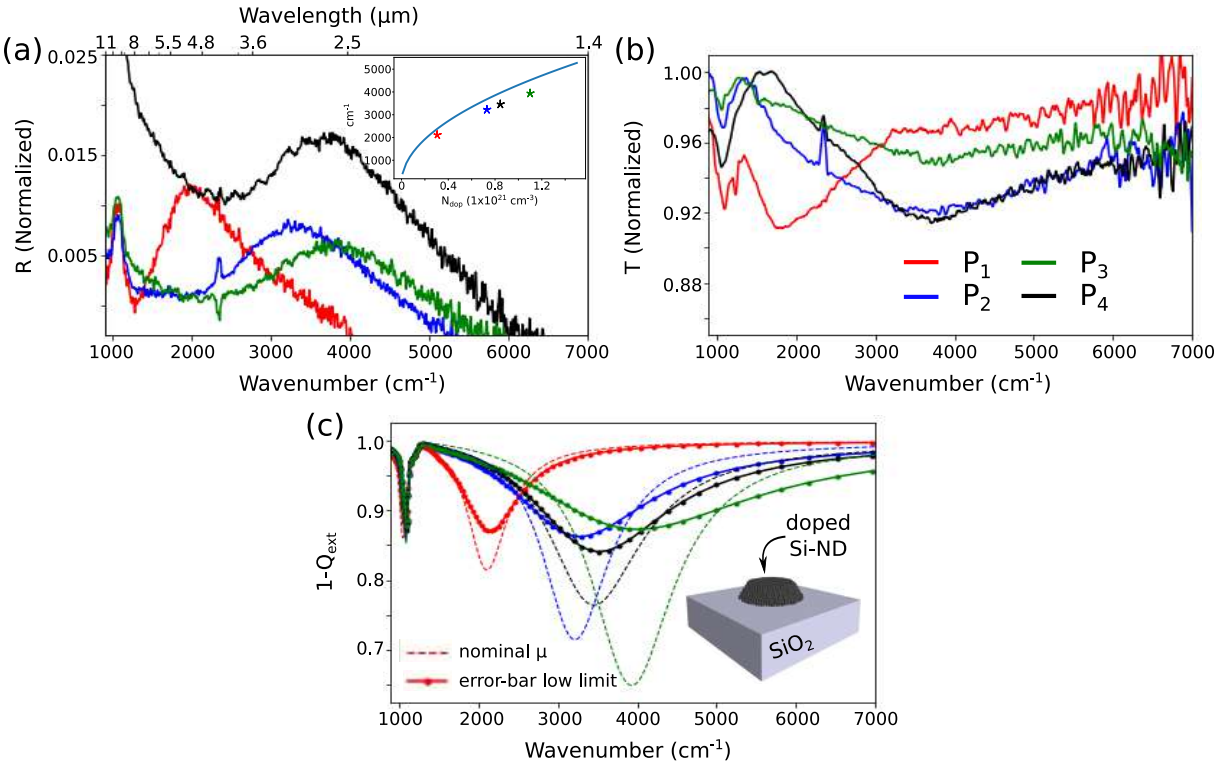

FIGURE 4.7 – (a) Réflectance normalisée obtenue sur les réseaux de structures fortement dopées. Encart : maximum de l'efficacité d'extinction en fonction de la densité de porteurs libres (symboles), modèle de Drude-Lorentz (ligne bleue). (b) Transmittance normalisée obtenue sur les réseaux hexagonaux de nano-cônes. (c) Spectres d'efficacité d'extinction simulés (section efficace d'extinction divisée par la section géométrique $S = \pi(d/2)^2$) d'un cône tronqué en Si fortement dopé reposant sur un substrat de SiO_2 (voir encadré). Les lignes pointillées utilisent les temps τ obtenus par l'expérience et les lignes pleines les valeurs minimales des intervalles de confiance. Toutes sont tracées sur une échelle inversée pour simplifier la comparaison qualitative avec les spectres expérimentaux de transmittance (b). Cette figure est extraite de la référence [219].

La plage de dopage que nous avons réussi à introduire dans nos disques permet d'interagir efficacement avec la lumière infrarouge sur une large plage spectrale allant de 5.5 à 2.5 µm. Pour P_1, la LSPR est observée à 1900 cm^{-1}, correspondant à $\lambda_{\text{sp}} \approx 5.3$ μm. Le degré de confinement du champ optique $\lambda_{\text{sp}}/2d = 26.5$, où d est le diamètre des disques, est comparable, à la même longueur d'onde, à la réduction de la longueur d'onde du plasmon dans le graphène [230, 231]. C'est également bien meilleur que ce qui peut être obtenu, dans cette gamme spectrale, en utilisant des métaux nobles. Pour qu'une structure en or puisse générer une LSPR à la même fréquence, il faudrait qu'elle soit de taille micrométrique [15, 133], conduisant à une dissipation thermique supplémentaire importante en raison de la longue longueur de propagation du plasmon localisé. Ainsi, malgré la différence de taille entre la longueur d'onde et

les disques, la métasurface est capable de bloquer environ 10 % de la lumière entrante à la fréquence du plasmon (voir Fig. 4.7b).

Notons ici l'importance de la forte densité de disques dopés sur notre métasurface, dont le rayon $R = 50$ nm, le maillage hexagonal, et la périodicité $p = 150$ nm permettent un taux de couverture de l'ordre de 40%. Sur un second échantillon, avec des disques de rayon $R = 10$ nm régulièrement espacés d'une périodicité $p = 200$ nm sur une grille carrée, nous n'avons pas réussi à observer de LSPR.

Pour modéliser nos résultats expérimentaux, nous avons effectué des simulations numériques sur un objet unique, basées sur la GDM présentée dans le chapitre 1.

Ces simulations sont la continuité des travaux présentés dans le chapitre 3 [172], appliquées cette fois à notre système expérimental. Par conséquent, nous tenons compte de l'indice réel du substrat de silice SiO_2 défini dans la section 2.3.2. De plus, nous considérons la forme exacte de l'objet, à savoir un cône tronqué avec un diamètre, à la base, de 100 nm et un diamètre supérieur de 65 nm, comme représenté dans l'encart de la figure 4.7c. Afin de décrire correctement la forme des nano-disques, et plus spécifiquement les bords inclinés, le pas de discrétisation doit être petit, ainsi nous discrétisons en 2454 dipôles répartis sur un maillage hexagonal.

Pour retranscrire au mieux la géométrie, nous aurions pu ajouter le capuchon de HSQ au-dessus du nano-cône. Cependant, nous constatons que ce capuchon n'a pas d'influence significative sur le spectre (cf. Fig. 4.8).

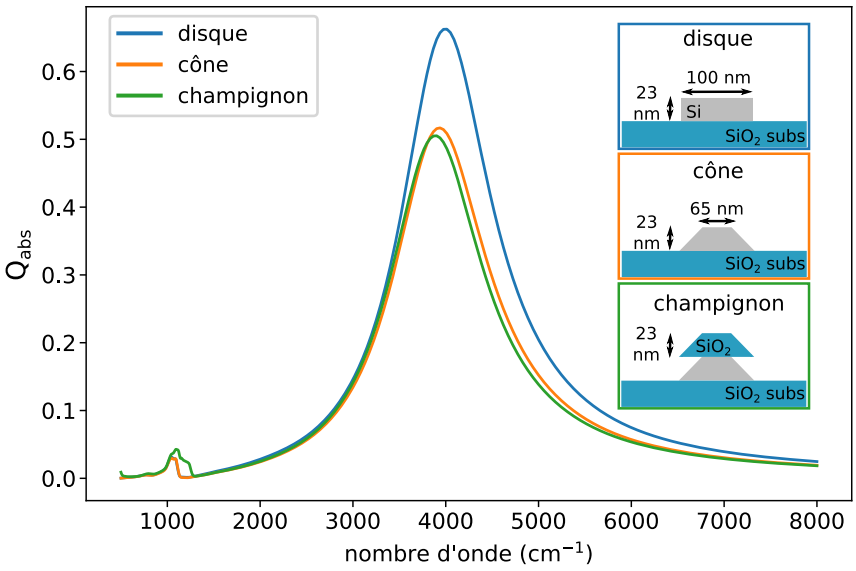

FIGURE 4.8 – Comparaison des efficacités d'absorption pour un disque parfait de rayon $R = 50$ nm et hauteur $H = 23$ nm reposant sur un substrat de silice, un cône tronqué avec un diamètre supérieur de 65 nm et du même cône tronqué avec au-dessus un capuchon de silice. Les configurations sont synthétisées dans l'encart de la figure.

Nous nous sommes également intéressés à l'effet de la pente sur la réponse de l'objet, et il s'avère que le passage d'une géométrie cylindrique parfaite à un cône tronqué entraîne un décalage de la LSPR vers le rouge d'environ 2% seulement (cf. Fig. 4.8). Néanmoins, cette modification de la géométrie entraîne une réduction de $\sim 15\%$ de Q_{abs}. Même si l'hypothèse d'un simple disque peut être une bonne approximation dans nos simulations, nous avons choisi de les réaliser en considérant une forme conique, plus proche de la réalité.

La figure 4.7c présente l'efficacité d'extinction des nano-cônes sur un substrat de SiO_2, en utilisant les valeurs expérimentales moyennes pour le temps τ (lignes pointillées), ou leurs limites inférieures de l'intervalle de confiance (lignes pleines, voir Fig. 4.6b). Les simulations de l'efficacité d'extinction sont assez similaires aux LSPR mesurées expérimentalement, reproduisant précisément le décalage de la résonance en fonction de la concentration de porteurs libres. Cependant, alors que la concentration de porteurs libres détermine la position spectrale de la LSPR, la largeur de la résonance est proportionnelle à l'amortissement γ ($\gamma \propto 1/\tau$). Comme nous pouvons le voir, les limites inférieures de la mobilité décrivent l'élargissement du LSPR avec beaucoup plus de précision. Cela pourrait être une indication que le processus de formation des structures par lithographie a réduit la mobilité des électrons dans les plots, ce qui n'est pas surprenant car l'étape RIE peut créer des défauts au niveau des surfaces de ces derniers.

La simulation pour une particule seule, représentée sur la figure 4.7c, reproduit qualitativement l'extinction avec l'ordre de grandeur qui est compatible avec la transmission de 90%, pour un taux de recouvrement de 40%. D'autre part, les efficacités de diffusion Q_{scat} simulées sont vraiment faibles (4-5 ordres de grandeur inférieur à Q_{ext}), ce qui n'est pas en accord avec la réflectance mesurée (de l'ordre de $0.5 - 1.5$ %).

Pour comprendre l'émergence de cette réflectance relativement prononcée, alors que la section efficace de diffusion d'un cône unique est très faible, nous devons modéliser la réponse optique d'une grande assemblée de disques. Cette étude est indispensable pour comprendre comment les structures répondent collectivement à l'illumination, engendrant cette rétro-diffusion de la lumière. Une telle métasurface ne peut pas être modélisée par la GDM conventionnelle. Nous avons donc besoin d'utiliser notre modèle de polarisabilités pour simuler la réponse d'une assemblée de disques. Du fait de la périodicité de nos métasurfaces, nous aurions pu simuler leurs réponses optiques à l'aide de tenseurs de Green périodiques [232, 233].

4.1.3 Comparaison du modèle de polarisabilités pour une métasurface avec les mesures expérimentales

Dans cette section, nous implémentons et discutons un modèle numérique décrivant la métasurface et toutes les interactions optiques entre les nano-disques. Pour cela, nous avons simulé une grille compacte hexagonale de 80×80 objets, de périodicité $p = 150$ nm, correspondant à la distribution des nano-cônes sur notre échantillon (voir encadré Fig. 4.9c). La polarisabilité effective de nos cônes tronqués (cf. Fig. 4.4) est extraite en utilisant la procédure décrite à la fin du chapitre 2, et réinjectée dans la GDM (Eq. (1.39)) afin de calculer la réponse optique de la métasurface illuminée par une onde plane. Dans ce cas, on ne calcule plus les grandeurs microscopiques pour un seul objet, que sont les sections efficaces, mais on modélise la transmittance et la réflectance de la metasurface dans sa globalité. Les lignes continues sur les figures 4.9a-b montrent les spectres calculés de réflectance et de transmittance, obtenus par intégration du flux d'énergie à travers une surface plane au-dessus et au-dessous de la métasurface, normalisés par le flux d'énergie de l'onde plane incidente dans l'environnement vide (sans métasurface), voir section 5.6.1. Les simulations sont quantitativement en accord avec les données expérimentales (cf. Fig. 4.7).

Pour étudier les couplages en champ proche et les réflexions multiples entre les structures du réseau dense, nous avons désactivé artificiellement, dans la simulation, les interactions optiques en champ proche entre les objets (courbes pointillées sur les figures 4.9a-b). Nous consta-

tons que la transmittance (respectivement réflectance) est atténuée (respectivement exaltée), dû au couplage en champ proche, d'environ 20% proche de la fréquence LSPR. Dans le même temps, la résonance subit un léger décalage vers le rouge.

Sur les figures 4.9c-d, nous avons également montré l'effet de la périodicité du réseau (espacement entre les nano-cônes) sur la réflectance et l'absorbance à la résonance plasmon, divisées par la surface recouverte par l'ensemble des structures. Les valeurs sont normalisées de telle sorte que la valeur physiquement correcte soit affichée pour un espacement (gap) de 50 nm. Alors que l'absorbance reste à peu près constante et n'augmente que pour de très petits espaces $\lesssim 50$ nm, la réflectance augmente fortement avec la diminution de l'espacement. Nous observons que la réflectance de la zone couverte de plots augmente d'un facteur 10 lorsque l'espacement inter-plots passe de 500 nm à 50 nm. Puisque le couplage en champ proche provoque une augmentation d'à peine 20% de la réflectance pour le même espacement de 50 nm (Fig. 4.9a), nous attribuons l'exaltation de cette dernière à l'interférence constructive de la lumière diffusée par les cônes. Cet effet cohérent offre un paramètre réglable supplémentaire pour contrôler les propriétés optiques de la métasurface, puisque le réglage fin de la périodicité du réseau permet d'ajuster indépendamment l'absorbance et la réflectance.

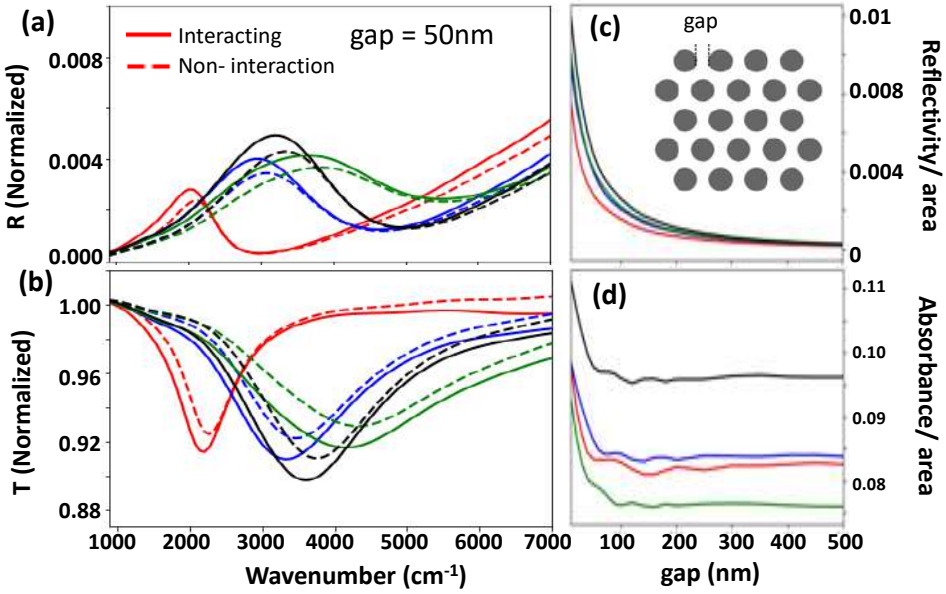

FIGURE 4.9 – (a) Réflectance simulée d'une métasurface à motif hexagonal dont l'espacement entre objets est de 50 nm (voir l'encart dans 4.9c). Les simulations sont réalisées avec (lignes pleines) ou sans interactions optiques en champ proche (lignes pointillées). Un schéma de la cellule élémentaire est représenté dans l'encart de la figure 4.7c. (b) Transmittance pour les mêmes simulations que dans (a). (c) Réflectance divisée par la surface couverte en fonction de l'espace entre les nano-cônes. (d) Absorbance par unité d'aire en fonction de l'espacement entre objets. Les paramètres correspondant aux échantillons P_1 à P_4 sont indiqués par le même code couleur que sur la figure 4.6. Cette figure est extraite de la référence [219].

Pour finir, nous montrons sur la figure 4.10 le facteur de qualité $Q = -\epsilon'/\epsilon''$ de la LSPR, obtenu pour nos quatre dopages. Cette grandeur, généralement utilisée pour comparer les performances des différents systèmes donnant lieu à une LSPR, a été calculée à partir de la

formule (2.14) dans laquelle nous avons introduit nos valeurs expérimentales de dopage et de facteur d'amortissement. Nous comparons nos résultats (courbes continues rouge, bleue, verte et noire) avec celles de la référence [234], où M. G. Blaber et al. ont calculé le facteur de qualité plasmonique pour des matériaux massifs tel que l'or, l'argent ou des matériaux inter-métalliques comme du LiAg, LiAu, NaAu et KAu. Nous constatons que nos facteurs de qualité sont environ 5-6 fois inférieurs à ceux des matériaux inter-métalliques et environ 10 fois inférieur à celui de l'or. L'argent présente des plasmons de meilleure qualité, mais est rarement utilisé en pratique car sa réponse plasmonique se dégrade très rapidement en raison de sa forte oxydation.

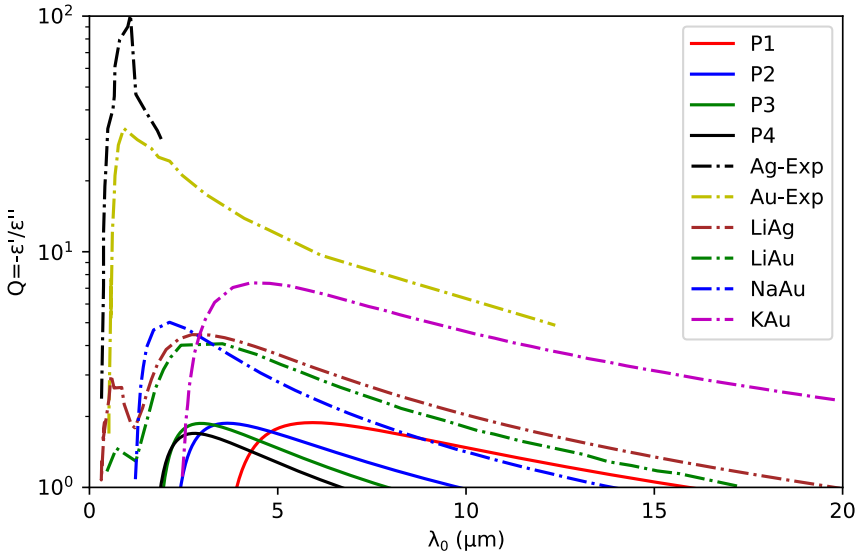

FIGURE 4.10 – Comparaison des facteurs de qualité des LSPR mesurées sur nos échantillons avec ceux de l'or et de l'argent (métaux nobles) ainsi que des matériaux inter-métalliques alcalins-métaux nobles. Les courbes pour nos quatre échantillons P_1, P_2, P_3 et P_4 sont continues et respectivement en rouge, bleue, verte et noire. Les courbes pour les autres matériaux sont extraites de la figure 2 de la référence [234], en gardant le même code couleurs que celui utilisé par les auteurs.

4.2 Conclusion et Perspectives

Pour conclure, en nanostructurant la couche supérieure d'un substrat de SOI préalablement dopée, nous avons réalisé des métasurfaces plasmoniques à base de silicium dopé, formées par de petits nano-cônes submicrométriques. Nous avons démontré que de telles nanostructures supportent des LSPR dans l'IR, accordables via la densité de porteurs libres introduite dans le silicium par le dopage. Des densités de dopants supérieures à 10^{21} cm^{-3} permettent d'atteindre la gamme du NIR. Malgré un gros écart entre la longueur d'onde d'illumination (2-5 µm) et le diamètre de la structure (100 nm), la LSPR permet une forte interaction avec la lumière infrarouge, entraînant une baisse de la transmittance jusqu'à 10% à la résonance. Grâce à nos simulations numériques, nous avons étudié dans un premier temps les propriétés optiques d'un seul nano-cône, puis, à l'aide du formalisme des polarisabilités effectives, la métasurface complète. Nous avons pu identifier des effets collectifs et le couplage en champ proche

dans la métasurface, expliquant également sa réflectance distincte, ce qui n'était pas possible avec une simulation GDM “classique". Leur adaptabilité et leur absorption élevée rendent les métasurfaces plasmoniques entièrement à base de silicium, très attrayantes pour les applications nécessitant des dispositifs de détection IR à large bande et haute résolution, tels que les bolomètres micro-intégrés ou les caméras infrarouges miniaturisées.

Chapitre 5

Deep Learning pour la prédiction de polarisabilités habillées

Tout le long de cette thèse, nous avons évoqué l'impossibilité de calculer, en utilisant la GDM, la réponse optique d'une grande assemblée apériodique de structures. En effet, le temps numérique d'inversion du tenseur, requis pour calculer le propagateur généralisé, croît comme la puissance cubique du nombre de cellules utilisées pour la discrétisation de nos objets.

Afin de contourner ce problème et rendre le calcul réalisable, nous avons présenté dans le chapitre 2 une approximation dipolaire basée sur le calcul des tenseurs de polarisabilité effective, à partir du super-propagateur généralisé. Dans le cas de la polarisabilité statique (Eq. (2.35) sans le terme de phase), cette approche présente deux avantages. Tout d'abord, nous considérons une structure de forme complexe comme un dipôle ponctuel, pour lequel l'information sur la réponse optique de la géométrie est comprise dans le tenseur de polarisabilité, ce qui nous permet de recoupler entre elles, via la GDM, une large assemblée de structures. Puis, lorsque la polarisabilité est connue, nous pouvons calculer la réponse optique pour une illumination quelconque en utilisant la formule (2.34), et cela par un simple produit vecteur-matrice, peu coûteux numériquement.

Néanmoins, pour plusieurs milliers d'objets, notre approximation présente la même limite que la GDM car elle repose sur le calcul du propagateur généralisé. Pour pallier ce problème, nous avons eu l'idée d'utiliser des méthodes numériques actuelles en couplant le concept de polarisabilité habillée avec un programme de *Deep Learning* (nous favorisons le terme anglais au terme français d'apprentissage profond). Notre objectif est de montrer à un réseau neuronal un très grand ensemble de métasurfaces, avec des couplages différents entre les structures, afin qu'il puisse rapidement prédire les interactions entres les objets d'une métasurface. Ainsi, nous pourrons réutiliser le réseau neuronal entrainé pour simuler le couplage au sein d'une très grande métasurface, dont la réponse optique ne peut être simulée avec la GDM.

Dans ce chapitre, nous introduisons dans un premier temps le concept de polarisabilité habillée, puis pour familiariser le lecteur avec le Deep Learning, nous en présentons les bases. Enfin, lorsque tous les pré-requis théoriques auront été introduits, nous développerons et testerons notre modèle sur des nanostructures d'or, dont les propriétés optiques sont bien connues, avant de l'appliquer à une métasurface formée de structures de silicium dopé.

Ce chapitre est basé en partie sur la publication [235].

5.1 Concept de polarisabilité habillée

5.1.1 Polarisabilité classique

Comme représenté sur la figure 5.1c, la polarisabilité effective $\alpha^{\mathrm{EE}}(\omega)$ permet, en première approximation, de décrire la réponse optique d'une nanostructure par la polarisation électrique $\mathbf{p}$ d'un dipôle effectif, sous illumination par un champ électrique local $\mathbf{E}_{\mathrm{loc}}$ [39]

$$\mathbf{p} = \alpha^{\mathrm{EE}}(\omega) \cdot \mathbf{E}_{\mathrm{loc}}(\omega)\,. \tag{5.1}$$

Nous avons vu dans le chapitre 2 que dans la limite électrostatique, autrement dit lorsque la structure est petite par rapport à la longueur d'onde, la polarisabilité d'une petite particule sphérique de rayon a peut être décrite par la permittivité ϵ_{p} du matériau d'après la relation de Clausius-Mossotti [1]

$$\alpha^{\mathrm{EE}}(\omega) = a^3\,\frac{\epsilon_{\mathrm{p}}(\omega) - 1}{\epsilon_{\mathrm{p}}(\omega) + 2}\,. \tag{5.2}$$

Alors que ce concept est rigoureusement valable uniquement dans le régime électrostatique, la polarisabilité effective peut encore être une bonne approximation pour des structures de tailles intermédiaires (mais toujours plus petites que la longueur d'onde) [39]. Cela est vrai, en particulier, pour les observables en champ lointain, car contrairement aux modes d'ordres supérieurs, le mode dipolaire se couple très efficacement au rayonnement en champ lointain et domine donc souvent la diffusion ou l'extinction. De plus, ce formalisme est toujours valide pour une nanostructure anisotrope. Dans le cas de nanostructures de formes arbitraires, la polarisabilité prend la forme d'un tenseur de rang 2. Nous avons vu sur la figure 2.10 que pour des géométries complexes, les termes hors-diagonaux deviennent importants, traduisant des phénomènes de conversion de polarisation. Selon la forme de la nanostructure, la polarisabilité peut être extraite avec des méthodes analytiques ou numériques [39, 158, 162], comme celle présentée dans le chapitre 2.

5.1.2 Polarisabilité habillée

Pour une structure isolée, le champ local $\mathbf{E}_{\mathrm{loc}}$ correspond au champ d'illumination $\mathbf{E}_0$ qui est connu, et nous appliquons tout simplement la formule (5.1). Pour un environnement complexe, le champ local peut être plus ou moins fortement perturbé, notamment à cause d'interfaces, c'est-à-dire en présence d'un substrat ou de structures voisines. La réflexion ou la diffusion du champ par ces éléments perturbateurs s'ajoute au champ d'illumination $\mathbf{E}_0$

$$\mathbf{E}_{\mathrm{loc}} = \mathbf{E}_0 + \mathbf{E}_{\mathrm{perturbations}}\,. \tag{5.3}$$

Un exemple simple est présenté sur la figure 5.1b, où un nano-bâtonnet d'or est situé très près d'un deuxième bâtonnet de même dimension. La figure 5.1c représente les moments dipolaires induits dans les structures pour une illumination à la longueur d'onde $\lambda_0 = 635$ nm, qui correspond à la résonance d'un bâtonnet seul. Nous constatons que les moments dipolaires effectifs changent de signe par rapport à celui d'un objet unique, mais aussi que leur position relative introduit une composante normale à la polarisation de l'onde incidente. La figure 5.1d démontre que la résonance du bâtonnet est également fortement influencée par l'environnement. Tout d'abord, à cause de l'interaction avec un substrat de verre, elle subit un

décalage vers le rouge, et ce dernier s'accroît avec un second bâtonnet. Nous observons également, dans les panneaux de droite, l'apparition de la composante tensorielle hors-diagonale $\alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{xy}}$, due à l'alignement diagonal du second bâtonnet. Les composantes tensorielles non nulles et leurs magnitudes sont illustrées par les grilles 3×3 de la figure 5.1e, montrées à la longueur d'onde de résonance de chaque configuration.

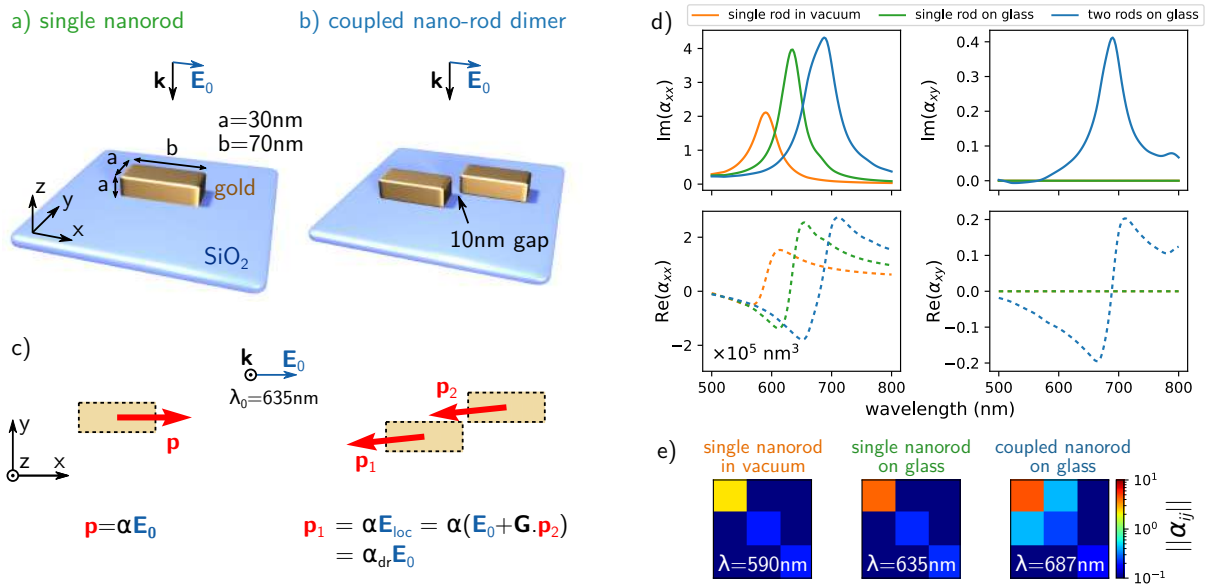

FIGURE 5.1 – Polarisabilités habillées : illustration de l'impact de l'environnement local sur le dipôle électrique induit dans un nano-bâtonnet d'or. a) Croquis d'un nano-bâtonnet d'or unique de taille $70 \times 30 \times 30$ nm^3 reposant sur un substrat diélectrique d'indice de réfraction $n_{\mathrm{subst}} = 1.45$. b) Croquis de deux nano-bâtonnets d'or, sur ce même substrat de verre, séparés par un espace de 10 nm entre les coins. c) Moments dipolaires électriques (partie réelle) induits dans les bâtonnets d'or représentés sur a) et b). La présence du deuxième objet, à faible distance du premier, a un impact important sur la réponse optique, dû au champ diffusé par ce dernier. La modification de la réponse peut être décrite par un tenseur de polarisabilité habillée $\alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{dr}}$. d) Spectres des composantes $\alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{xx}}$ (colonne de gauche) et $\alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{xy}}$ (colonne de droite) d'un bâtonnet d'or individuel dans le vide (lignes oranges), sur un substrat de verre (lignes vertes) et sur du verre à côté d'un second bâtonnet de mêmes dimensions (lignes bleues). En haut : parties imaginaires (lignes solides) et en bas : parties réelles (lignes pointillées). e) Normes des composantes de la polarisabilité habillée à la longueur d'onde de résonance de $\mathrm{Im}(\alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{xx}})$.

Dans un environnement complexe, le champ local et son interaction avec un nano-diffuseur ne sont pas facilement connus. Leurs déterminations requièrent des simulations numériques sophistiquées, comme par exemple la GDM [38]. En présence de nombreuses structures voisines, les simulations numériques comme la GDM peuvent être très lentes et un modèle dipolaire tel que l'approximation basée sur les polarisabilités effectives, semble être une approche intéressante. En effet, il est possible de définir un tenseur de polarisabilité habillée $\alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{dr}}(\omega)$, en incluant la contribution $\mathbf{E}_{\mathrm{perturbations}}$ de l'environnement, au champ local, dans le tenseur de polarisabilité de chaque nano-diffuseur. Cela nécessite de résoudre le champ électromagnétique à l'emplacement de la nanostructure, pour des éclairements arbitraires, de sorte que la

contribution de l'environnement au champ local puisse être séparée de l'illumination. La polarisation électrique du dipôle effectif peut, en conséquence, être écrite en fonction du champ incident non perturbé

$$\begin{aligned}\mathbf{p}(\omega) &= \alpha^{\mathrm{EE}}(\omega) \cdot \mathbf{E}_{\mathrm{loc}}(\omega) \\ &= \alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{dr}}(\omega) \cdot \mathbf{E}_0(\omega)\,.\end{aligned} \tag{5.4}$$

Nous voyons qu'une fois que les polarisabilités habillées de toutes les nanostructures de l'arrangement complexe sont connues, aucun système d'équations ne doit être résolu. En effet, le résultat de l'interaction rayonnement-matière est obtenu instantanément, pour des conditions arbitraires d'illumination, par un simple produit vectoriel du champ incident (non perturbé !) avec les tenseurs de polarisabilités habillées des nanostructures.

Les polarisabilités habillées ont déjà été utilisées pour déterminer les permittivités effectives de couches périodiques de nanostructures [236, 237]. La polarisabilité de la nanostructure peut être extraite à partir de la discrétisation en volume présentée dans le chapitre 2, qui utilise le concept de propagateur généralisé $\mathbf{K}^{\mathrm{EE}}$ (cf. Chap. 1)

$$\alpha^{\mathrm{EE}}_{\mathrm{dr}}(\omega) = V^2_{\mathrm{cell}}(\omega) \sum_{i}^{\mathrm{NS}} \sum_{j}^{\mathrm{ensemble}} \chi_{\mathrm{e}}(\mathbf{r}_j, \omega)\, \mathbf{K}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_j, \omega) \tag{5.5}$$

où la somme sur l'indice j s'étend sur tout l'ensemble, incluant ainsi toutes les structures voisines. La somme sur i ne comprend que les points de maillage de la nanostructure habillée ("NS"), χ_{e} est la susceptibilité électrique du matériau et $\mathbf{K}^{\mathrm{EE}}$ est le propagateur généralisé décrivant le couplage électrique-électrique dans la nanostructure [27, 29, 30, 38, 45].

5.2 Introduction au Deep Learning

Avant de pouvoir présenter nos résultats de prédiction de polarisabilités habillées sur des systèmes couplés, avec du Deep Learning, nous devons introduire quelques concepts de base. Le Deep Learning est une sous-famille du *machine learning*, qui est lui-même un sous-champ de l'intelligence artificielle. Ce qui différencie un programme de machine learning d'un programme informatique classique est le rapport aux données. En programmation classique, lorsque nous écrivons nos codes, nous implémentons les différentes variables d'entrée du problème et la fonction (loi) qui calcule les solutions de notre problème. En machine learning, il s'agit d'une analyse statistique. Nous présentons à un réseau de neurones artificiels à la fois les variables d'entrée et les solutions attendues du problème, dans le but qu'il "apprenne" la loi implicite qui lie les variables d'entrée aux résultats. Pour établir cette loi, il faut montrer un grand ensemble de données au réseau, puis lorsque le réseau contient l'information sur cette règle nous pouvons l'utiliser sur des exemples inconnus et prédire rapidement les solutions [238]. Le terme *deep* dans Deep Learning signifie que le réseau neuronal est constitué de plusieurs couches successives de neurones artificiels. Bien évidemment, il n'existe pas un seul type de réseau neuronal, la forme à lui donner dépend de l'application que nous voulons en faire, mais leur principe de fonctionnement est très similaire.

Dans la suite, nous allons brièvement détailler comment sont construits les réseaux neuronaux, et ce que signifie l'apprentissage, le tout d'un point de vue mathématique. Pour une présentation plus complète et détaillée du Deep Learning et son fonctionnement, nous renvoyons le lecteur à la littérature, e.g. Refs. [238, 239].

5.2.1 Présentation du modèle

5.2.1.1 Neurone artificiel et réseau neuronal

La brique élémentaire de tous les réseaux neuronaux artificiels est ce qu'on appelle un neurone artificiel, par son comportement analogue à celui d'un neurone biologique. Il s'agit d'une fonction mathématique possédant une liste de variables d'entrée $\mathbf{x} = (x_1, \ldots, x_n)$ et une seule variable de sortie y. Si le signal d'entrée est faible, le signal de sortie le sera également, on dit que le neurone est inactif. A contrario, si le signal d'entrée est suffisamment important, alors la valeur retournée par le neurone sera grande, le neurone est stimulé.

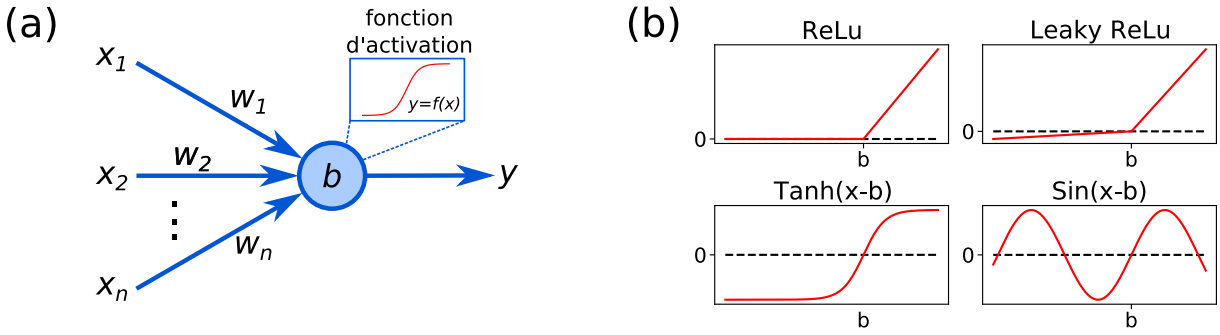

FIGURE 5.2 – (a) Schéma d'un neurone artificiel avec les différentes grandeurs associées. Les termes x_i sont les variables d'entrée, et y la variable de sortie du neurone. Les poids synaptiques, associés à chacune des entrées, sont les éléments w_i, b est le seuil d'activation et f est la fonction d'activation du neurone. (b) Quatre exemples de fonctions d'activation : dans l'ordre sont représentées les fonctions ReLu, Leaky ReLu, tangente hyperbolique et sinus.

Un neurone artificiel est défini par trois types de grandeurs : un ensemble de poids synaptiques $\mathbf{w} = (w_1, \ldots, w_n)$ (un pour chaque variable d'entrée x_i), un paramètre de seuil d'activation b (appelé *bias*) et une fonction d'activation f. Les poids synaptiques permettent de quantifier l'importance des différentes variables d'entrée sur l'activation du neurone, et le bias est la valeur seuil à partir de laquelle le neurone retourne un signal. La troisième grandeur est la fonction d'activation f, qui définit le signal $y = f(\mathbf{x})$ renvoyé par le neurone en fonction du vecteur $\mathbf{x}$ en entrée. Schématiquement, nous représentons le neurone et son action sur la figure 5.2a.

Il existe un grand nombre de fonctions d'activation simulant le comportement d'un neurone biologique [240, 241]. Une fonction très robuste, qui est un très bon choix dans un grand nombre de situations, est la fonction Unité Linéaire Rectifiée (ou Rectified Linear Unit (*ReLU*) en anglais), ou une variante de cette dernière telle que la fonction *Leaky ReLU* [242]. La fonction d'activation ReLU est linéaire si le produit scalaire $\mathbf{w} \cdot \mathbf{x}$ est supérieur au seuil d'activation, sinon il vaut zéro

$$y(\mathbf{x}) = \begin{cases} 0 & \text{si } \mathbf{w} \cdot \mathbf{x} \leq b \\ \mathbf{w} \cdot \mathbf{x} - b & \text{si } \mathbf{w} \cdot \mathbf{x} > b \end{cases} \tag{5.6}$$

Nous avons représenté cette fonction d'activation sur la figure 5.2b, ainsi que trois autres exemples. Toutes ces fonctions sont non-linéaires, car c'est cette caractéristique qui va permettre aux réseaux neuronaux de déduire des corrélations complexes dans les caractéristiques des variables d'entrée.

Par analogie avec le cerveau humain, un réseau neuronal est un agencement de neurones artificiels connectés, souvent en forme de couches. Afin de faciliter les discussions à venir, et pour offrir un élément de réponse au débat pain au chocolat/chocolatine qui divise la France entière, nous avons représenté un exemple simple de réseau de Deep Learning sur la figure 5.3.

Nous souhaitons que ce réseau puisse classifier des images de viennoiseries, c'est-à-dire qu'il puisse associer une liste de caractères (variable de sortie), correspondant au nom de la viennoiserie, à son image 2D (variable d'entrée). Nous utiliserons cet exemple pour détailler le vocabulaire autour du Deep Learning ainsi que la procédure pour l'entraînement du réseau.

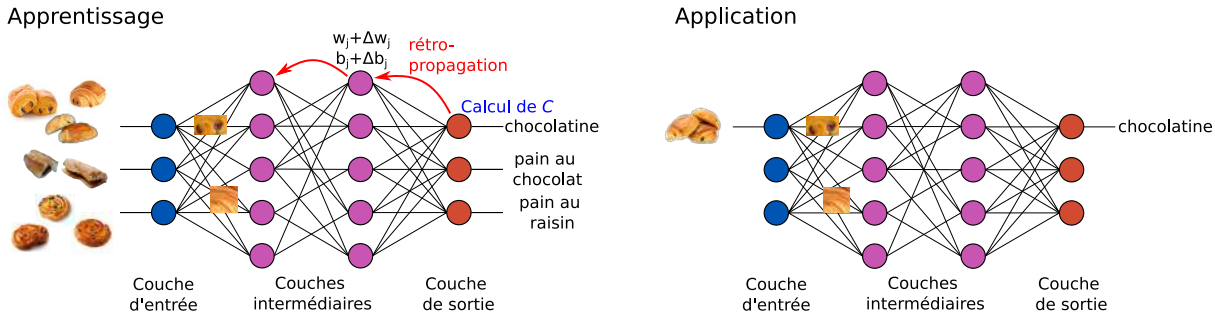

FIGURE 5.3 – Figure explicative, de l'entraînement d'un réseau de Deep Learning, sur un exemple simple de classification de viennoiseries.

Les couches d'un réseau sont regroupées en trois catégories : la couche d'entrée (en bleu sur la figure), les couches intermédiaires (en rose) et la couche de sortie (en orange). La première permet de récupérer les informations sur les variables d'entrées du réseau, les couches en profondeur réalisent le traitement d'informations et la couche de sortie sert à transmettre le résultat prédit par le réseau. Dans cette configuration, les sorties des neurones d'une couche correspondent aux entrées de la couche suivante et ainsi de suite jusqu'à atteindre la couche de sortie. Au fur et à mesure que l'on s'enfonce dans le réseau, les caractéristiques extraites et décryptées sur les données d'entrée, par les neurones, sont de plus en plus complexes. Dans notre cas, la première couche intermédiaire peut servir à "comprendre" les formes (rond/droit), les couleurs (chocolat/pâte), puis la seconde sert à trouver la position relative des formes, du chocolat, et ainsi de suite jusqu'à ce qu'il puisse faire le lien entre une image de chocolatine et la liste de caractères "chocolatine". Au moment de l'initialisation du réseau, les poids synaptiques w_j et les seuils d'activation b_j de tous les neurones du réseau sont initialisés aléatoirement.

5.2.1.2 Entraînement du réseau neuronal

L'apprentissage, ou l'entraînement, d'un réseau neuronal vise à optimiser les paramètres évoqués à l'instant. Il s'agit d'une procédure statistique qui requiert une importante base de données exclusivement dédiée à l'entraînement. Cette base de données correspond aux variables d'entrée $\mathbf{x}_i$, ainsi que les variables de sortie exactes $y_{\text{exact},i}$ associées. Cette méthode d'apprentissage est dite supervisée, et c'est elle que nous utiliserons dans la suite. Pour plus de détails, nous renvoyons le lecteur à la littérature [243].

Parmi cet ensemble d'entraînement, nous tirons aléatoirement un sous-ensemble N_{batch} de données $\mathbf{x}_i$, à présenter au réseau, afin qu'il retourne des valeurs prédites $y_{\text{pred},i}$ (cf. Fig. 5.3). Le tirage stochastique permet d'avoir un échantillon représentatif des exemples que peut ren-

contrer le réseau. De plus, cette procédure permet de ne pas être bloqué dans un minimum local de la fonction.

Dans un second temps, nous réalisons une évaluation statistique, à l'aide d'une fonction de coût C, qui mesure l'erreur entre les valeurs prédites $y_{\text{pred},i}$ et les valeurs exactes $y_{\text{exact},i}$. Comme pour les fonctions d'activation, il n'existe pas de fonction de coût universelle, applicable dans toutes les situations. Pour des problèmes de classification, comme c'est le cas dans notre exemple de viennoiseries, la fonction la plus communément utilisée est l'entropie croisée [239]

$$C = -\frac{1}{N_{\text{batch}}} \sum_{i}^{N_{\text{batch}}} y_{\text{exact},i} \log(y_{\text{pred},i}(\mathbf{x}_i)) \,. \tag{5.7}$$

Pour des tâches de régression (ce qui sera le cas sur notre exemple de polarisabilités habillées), la fonction de coût la plus adaptée est l'erreur quadratique moyenne [239]

$$C = \frac{1}{N_{\text{batch}}} \sum_{i}^{N_{\text{batch}}} |y_{\text{exact},i} - y_{\text{pred},i}(\mathbf{x}_i)|^2 \,. \tag{5.8}$$

Cette dernière fonction présente l'avantage de croître très rapidement dès lors que la différence entre les valeurs attendues et prédites augmente.

L'objectif est de minimiser la fonction C, et pour y parvenir il faut utiliser un algorithme de gradient de descente. Le point clef, qui n'est pas forcément évident, est que la valeur prédite $y_{\text{pred},i}$ est liée à $\mathbf{x}_i$ par les opérations réalisées, couche après couche, avec les paramètres w_j et b_j de chaque neurone. Par conséquent, la fonction de coût dépend implicitement des w_j et b_j. Ceci permet d'établir une relation entre les variations Δw_j et Δb_j, à appliquer aux variables w_j et b_j, et les dérivées partielles $\partial C/\partial w_j$ et $\partial C/\partial b_j$. C'est ce qui est appelé la rétropropagation du gradient (cf. Fig. 5.3).

Enfin, nous pouvons appliquer toute cette procédure de manière itérative sur de nouveaux lots tirés aléatoirement, et arrêter la procédure lorsque l'erreur sur la prédiction nous paraît raisonnablement faible. Puis, lorsque le réseau est paramétré convenablement, nous l'utilisons sur les configurations qui nous intéressent, totalement inconnues du réseau (cf. Fig. 5.3).

5.2.2 Quelques exemples d'applications

5.2.2.1 Dans la vie de tous les jours

De part la généralité de cette approche, les capacités de calculs actuelles et la richesse des banques de données à travers le monde, l'usage du Deep Learning s'est fortement développé durant les dix-quinze dernières années, et a pris une place importante dans notre quotidien.

En effet, dès qu'une tâche d'analyse de vidéos ou d'images peut être automatisée, il est possible de développer un réseau neuronal pour le faire, par exemple pour déceler et classifier tous types d'objets [238, 244]. Le Deep Learning est applicable dans des domaines divers et variés, allant de la détection de maladies à partir d'images médicales [245] à la traduction automatique de planches de mangas [246], en passant par la perception de l'environnement pour des voitures autonomes [247], mais aussi pour la reconnaissance faciale [248] ...

5.2.2.2 En nanophotonique

Durant les cinq dernières années, l'utilisation du Deep Learning s'est également fortement développée dans le domaine de la nano-optique, dans le but de rapidement prédire l'interaction rayonnement-matière, ou les propriétés optiques, de nano-systèmes. Par exemple, des réseaux ont été développés pour prédire la section efficace d'extinction de sphères multi-couches [249], ou afin d'établir un modèle d'oscillateurs pour prédire le spectre d'un réseau périodique de fil infini [250]. Tout dernièrement, S. An et al. ont développé un modèle de réseau neuronal pour prédire le couplage optique entre objets d'une méta-cellule d'une métasurface périodique [251].

D'autre part, les réseaux neuronaux artificiels se révèlent intéressants pour des problèmes de conception inversée ("inverse design", en anglais). Dans ce type de projet, l'idée est de créer un réseau neuronal capable de prédire une géométrie correspondant à une propriété physique donnée [252-255].

5.3 Prédictions de polarisabilités habillées pour des structures aléatoirement réparties sur un substrat

Comme discuté dans la section 5.1, l'extraction des polarisabilités habillées requiert un effort numérique similaire à celui de la simulation complète, mais au prix d'une précision moindre, due à l'approximation dipolaire pour chaque nanostructure. De plus, contrairement aux polarisabilités conventionnelles, leurs équivalents habillés ne sont valables que pour un seul arrangement de nanostructures. Un petit changement dans la distribution des objets modifie les polarisabilités habillées de l'ensemble des nanostructures de l'arrangement et nécessite de refaire le calcul. Par conséquent, les polarisabilités habillées n'ont été utilisées qu'occasionnellement, par exemple dans des environnements très simples [256], ou pour déterminer les permittivités effectives de couches périodiques de nanostructures [236, 237]. Dans ce dernier scénario, la périodicité est naturellement imposée au champ local, et donc chaque diffuseur a le même tenseur habillé $\alpha_{\mathrm{dr}}^{\mathrm{EE}}$. En conséquence, l'effort de calcul est limité à un seul constituant et la polarisabilité habillée peut alors être utilisée pour extraire un indice effectif de la couche périodique via la théorie de Maxwell-Garnett [257, 258].

En revanche, pour de grandes assemblées apériodiques de nanostructures, le concept de polarisabilité habillée semble moins utile, principalement en raison de l'effort de calcul considérable. Pour surmonter cette limitation, nous présentons ici un concept qui permet d'évaluer, à l'aide d'une approche de Deep Learning, les polarisabitilés habillées de nombreuses nanostructures dans des assemblages complexes, et cela pour un coût de calcul presque nul. Cette technique est plus rapide, de plusieurs ordres de grandeurs, que le calcul conventionnel complet de polarisabilité habillée, présenté dans la section 5.1.

5.3.1 Structuration du réseau

Comme illustré sur la figure 5.4a, notre concept est basé sur un réseau de neurones convolutif 2D suivant l'architecture U-Net [259]. Le U-Net est composé de blocs résiduels [260, 261], chacun d'entre eux mettant en œuvre une série de 4 couches de convolution avec une connexion résiduelle de saut à travers une couche de convolution supplémentaire.

Les connexions résiduelles consistent à créer des connexions entre des couches du réseau qui de base ne sont pas directement liées (cf. flèches oranges sur la figure 5.4a). Cette approche est intéressante pour de très grands réseaux, car la rétro-propagation du gradient s'atténue fortement au fil des couches. Par conséquent, sauter des connexions permet de propager des gradients plus importants jusqu'à l'entrée du réseau, rendant alors possible la réalisation de réseaux plus profonds [262].

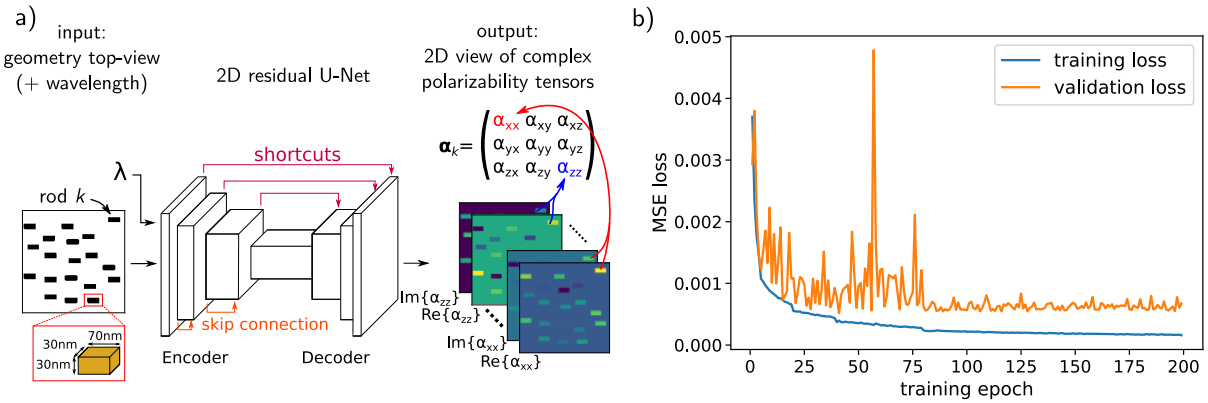

FIGURE 5.4 – a) Schéma du modèle de réseau neuronal. Le réseau est basé sur un U-Net 2D symétrique, construit à partir de blocs résiduels de 4 couches convolutives. L'encodeur prend comme entrée une vue de dessus 2D (carte binaire) de la disposition des nano-bâtonnets (à gauche de l'image), chaque pixel de l'image d'entrée correspond à un pas de 10 nm. Dans un deuxième canal d'entrée, la longueur d'onde d'évaluation est introduite dans le réseau. Elle remplit, en unités de µm, une couche de même dimension (carte 2D) que l'entrée de la géométrie. La sortie du réseau est la vue supérieure 2D des polarisations habillées pour chaque structure (à droite). Puisque chaque polarisabilité est décrite par un tenseur complexe 3×3, la sortie du réseau consiste en 18 canaux, 9 pour les parties réelles et 9 pour les parties imaginaires de chaque composante du tenseur. b) Convergence durant l'apprentissage. La perte sur l'ensemble de validation (courbe orange) est bruitée car la validation du modèle est réalisée sur un petit ensemble de 1 000 échantillons seulement (contre 65 000 échantillons pour l'apprentissage). Cependant, nous n'observons aucun surapprentissage du réseau.

Les couches de convolution servent à repérer des caractéristiques au sein d'une image, par exemple des formes spécifiques. La convolution consiste à balayer une fenêtre de filtre par-dessus l'image d'entrée et d'extraire des sous-fenêtres, auxquelles nous appliquons un produit de convolution avec la même matrice [238]. Chaque convolution est suivie par une normalisation par lots ("batch normalization" en anglais) [263], et une activation ReLU [242]. La couche centrale du réseau est entourée par 3 blocs de sous-échantillonnage et de 3 blocs de sur-échantillonnage, qui diminuent, respectivement augmentent, la dimension de l'image, chacun par un facteur 2. Le sous-échantillonnage est effectué avec du max pooling, et le sur-échantillonnage par répétition. Les blocs de sous- et sur-échantillonnage sont reliés par des "shortcuts connections" afin de reconstruire plus efficacement les détails dans la prédiction [259].

L'entrée du réseau est composée de deux canaux. Le premier canal décrit la distribution spatiale des nano-diffuseurs, reposant sur un substrat plan, dans une projection 2D ("vue de

dessus"). Dans notre démonstration, nous discrétisons les diffuseurs et leurs positions sur une grille de pas 10 nm. La deuxième couche d'entrée contient la longueur d'onde d'illumination, comme représentée sur la gauche de la figure 5.4a.

La couche de sortie du réseau a la même dimension spatiale 2D que l'entrée et se compose de 18 canaux, dont 9 pour la partie réelle et 9 pour la partie imaginaire des tenseurs 3×3 de polarisabilité habillée (voir la partie droite de la figure 5.4a). En sortie du réseau, les composantes du tenseur de polarisabilité d'une nanostructure sont copiées sur chaque pixel, couvert par la géométrie, sur l'image vue de dessus. Nous utilisons comme tenseur de polarisabilité, dans les prédictions, la moyenne de tous les pixels de la structure.

5.3.2 Préparation des données

De manière générale, notre modèle n'est pas restreint à un type particulier de nanostructures. Dans les limites imposées par la discrétisation des couches d'entrée et de sortie du réseau, il peut traiter des nano-diffuseurs de n'importe quelle géométrie. Cependant, pour les besoins de cette démonstration, nous utilisons des structures composées de nano-bâtonnets d'or, tous identiques, de volume $70 \times 30 \times 30\,\mathrm{nm}^3$ (couvrant 7×3 pixels dans les images en vue de dessus), avec leur grand axe selon la direction Ox.

L'utilisation d'une géométrie fixe pour tous les constituants nous permet de déterminer plus facilement l'impact des interactions optiques et du couplage en champ proche. Notons que la hauteur des structures doit être constante avec le type de réseau choisi. En utilisant un réseau convolutif 3D, nous pourrions tenir compte d'une hauteur variable, et cela en modifiant légèrement la procédure [264].

Comme nous l'avons expliqué dans la section 5.2.1.2, nous devons générer un grand ensemble de données pour entraîner le réseau à prédire les polarisabilités habillées. Pour la génération des métasurfaces, nous partons d'une grille parfaite constituée d'une soixantaine de bâtonnets (cf. Fig. 5.5a). Nous déplaçons aléatoirement chacun de ces bâtonnets et lorsque deux d'entre eux se chevauchent, nous les enlevons. Nous créons des cartes "complètement remplies" du même type que la vue de dessus A sur la figure 5.5b. En moyenne, le nombre de structures sur ce type de cartes est de 55 ± 6.

Pour simuler un remplissage partiel de la zone d'apprentissage, nous avons constitué des structures tronquées où les nano-bâtonnets sont retirés sur un ou plusieurs côtés de la zone (3 exemples de zones retirées sont représentés en rouge sur la figure 5.5b). Nous aurons besoin de ce type de données pour l'approximation des plus proches voisins, qui sera présentée dans la section 5.5.

Pour l'entraînement du réseau neuronal, nous avons généré 65 000 arrangements aléatoires : 50 000 avec des zones complètement remplies et les 15 000 restantes correspondant à des structures tronquées. La génération des données prend environ une semaine sur un PC équipé d'un processeur intel i7 de 8ème génération, avec 64 Go de RAM et une carte graphique (GPU) Nvidia RTX 2060 SUPER, en utilisant CUDA pour accélérer l'extraction, par la GPU, des polarisabilités habillées calculées par le biais de simulations GDM [64].

Avant d'utiliser les données pour l'apprentissage, nous normalisons les polarisabilités par la norme tensorielle maximale de l'ensemble des données, puisque le réseau ne peut pas faire face aux grandes valeurs (en unités de nm^3) des polarisabilités [238]. Nous ne centrons pas les données autour de la moyenne, car le fond des cartes prédites correspond à une polarisabilité nulle. Le centrage des données autour de la valeur moyenne exige que le réseau apprenne la

valeur moyenne de l'ensemble des données, alors que, premièrement, ce n'est pas une information utile, et deuxièmement, nous avons constaté qu'elle réduit la fidélité de la prédiction.

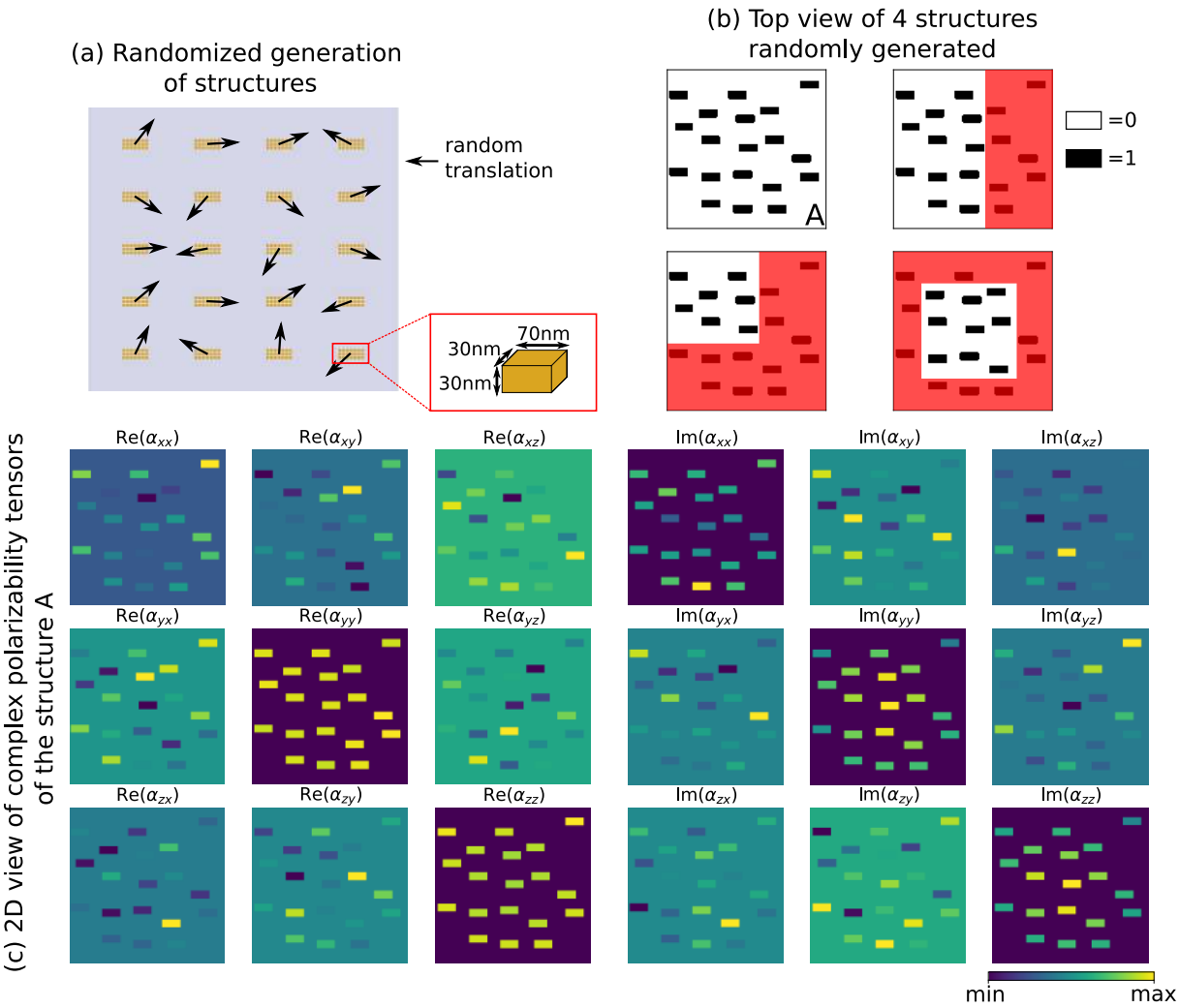

FIGURE 5.5 – Figure résumant le processus de fabrication des données pour l'apprentissage du réseau. (a) Vue du dessus de la grille parfaite, le déplacement aléatoire des structures est représenté à l'aide des flèches noires. (b) Cartes binaires données en entrée du réseau, la valeur 0 correspond à l'extérieur des objets et 1 à la position des bâtonnets. (c) Les cartes des 18 composantes, réelles et imaginaires, des tenseurs de polarisabilité associés à la géométrie A.

5.3.3 Entraînement du réseau et statistiques

Nous entraînons le réseau de la figure 5.4a en utilisant l'algorithme Adam avec un taux d'apprentissage de départ de 0.0001 et des lots de taille 16. Cet algorithme sert à l'optimisation par gradient de descente [265]. Nous utilisons un protocole d'entraînement qui consiste à accroître consécutivement la taille des lots, ce qui équivaut à réduire progressivement le taux d'apprentissage. Nous entraînons le réseau pendant 200 époques, ce qui prend environ 20 heures sur notre carte graphique Nvidia RTX 2060 SUPER. La convergence durant l'entraînement est illustrée sur la figure 5.4b. Une fois l'entraînement terminé, une prédiction prend

environ 2 millisecondes, sur la même GPU, alors que la simulation demande entre 5 et 60 secondes, en fonction du nombre de bâtonnets.

Après l'entraînement, nous effectuons une évaluation de la précision de prédiction sur un ensemble test de 1 000 géométries, générées de la même manière que les données d'apprentissage. Les statistiques de prédiction sur les composantes du tenseur de polarisabilité, de ces nano-bâtonnets, sont représentées sur la figure 5.6a. L'écart interquartile s'étend sur une gamme d'erreurs inférieure à 3%, ce qui est du même ordre de grandeur que l'erreur due à l'approximation dipolaire de polarisabilité effective utilisée pour notre bâtonnet d'or.

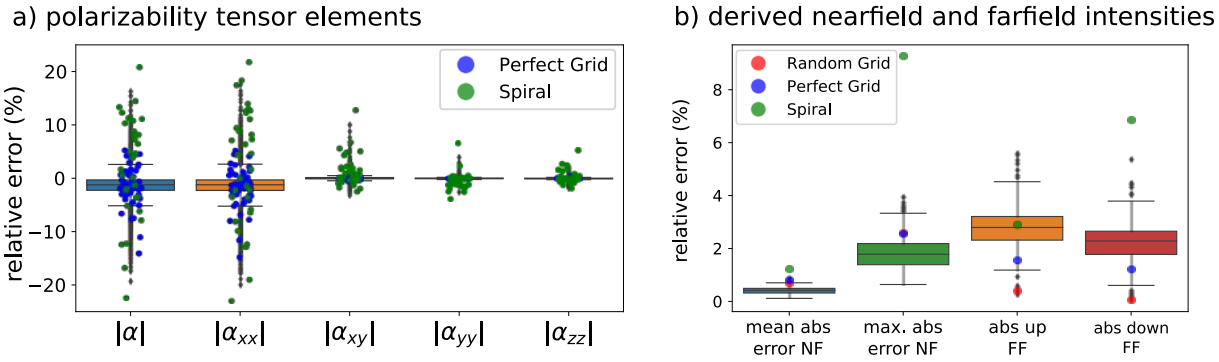

FIGURE 5.6 – Statistiques sur la précision de la prédiction. a) Diagrammes en boîte montrant la statistique sur l'erreur de prédiction des composants du tenseur de polarisabilité. Les statistiques sont basées sur un ensemble test de 1 000 échantillons contenant, au total, environ 45 000 nano-bâtonnets. Les erreurs sont relatives à la norme de Frobenius pour chaque tenseur de polarisabilité. Les points bleus, respectivement verts, montrent les erreurs des bâtonnets individuels de l'exemple présenté sur la figure 5.7b, respectivement 5.7c. b) Diagrammes en boîte de la précision de prédiction des observables dérivées (intensités du champ proche et du champ lointain) pour les mêmes 1 000 géométries de test. De gauche à droite, sont représentés l'erreur moyenne et l'erreur maximale de l'intensité du champ proche, dans un plan situé à 150 nm au-dessus du substrat, ainsi que l'erreur de l'intensité du champ lointain dans l'hémisphère supérieur (diffusion vers l'air) et dans l'hémisphère inférieur (rétro-diffusion dans le substrat). Toutes les erreurs sont relatives aux résultats simulés. Les marqueurs ronds colorés correspondent aux précisions des exemples de la figure 5.7.

Puisque les bâtonnets sont orientés selon la direction Ox, la composante α_{xx}^{EE} prédomine (cf. Fig. 5.1e), et c'est également la composante prédite avec la plus grande incertitude. Nous avons constaté que quelques valeurs aberrantes présentent des erreurs allant jusqu'à environ 15% (marqueurs en forme de diamant noir) et affectent environ 5% des bâtonnets.

Dans notre configuration, les éléments hors diagonaux des polarisabilités habillées sont considérablement plus faibles (au moins un ordre de grandeur plus faible), et les erreurs de prédiction sur ces derniers, par rapport à la norme tensorielle, sont donc plus faibles. Nous ne montrons pas les termes hors-diagonaux α_{xz}^{EE} et α_{yz}^{EE}, qui sont généralement très faibles pour une assemblée de structures dans le plan xOy. Ils ont des erreurs aussi faibles que la composante α_{zz}^{EE}.

La figure 5.6b montre la précision sur les intensités de champ proche et de champ lointain obtenues avec nos polarisabilités prédites. Celles-ci sont obtenues via la repropagation des moments dipolaires induits par une onde polarisée circulaire gauche ayant une incidence normale, et se propageant du bas vers le haut (cf. Eq. (1.39)).

Le champ proche est calculé à la hauteur $z = 150$ nm au-dessus du substrat, où nous trouvons des erreurs moyennes très faibles, inférieures à 1%. L'erreur maximale de prédiction sur le champ proche pour chaque géométrie de l'ensemble test est aux alentours de 2%.

Le champ lointain est intégré sur une sphère autour de l'ensemble des nano-bâtonnets et donne, en moyenne, une précision d'environ 2.5% pour la diffusion dans l'air ("up FF"), et respectivement 2% pour la rétro-diffusion dans le substrat ("down FF"). Les statistiques sur les champs présentent également moins de valeurs aberrantes, de l'ordre de 1% ou moins. Les erreurs sur les valeurs dérivées sont généralement plus petites que celles sur les prédictions sous-jacentes des composantes du tenseur de polarisabilité habillée. Nous attribuons cette constatation à l'effet de moyenne du calcul d'une quantité physique dérivée, comme l'intensité du champ proche à partir d'un ensemble de diffuseurs multiples. En raison de leurs signes variables, les erreurs des polarisabilités habillées s'annulent partiellement. Dans les calculs de champ lointain, les erreurs sont proportionnelles à l'erreur maximale en champ proche, ce que nous attribuons au fait que les quelques dipôles les plus forts dominent la diffusion dans le champ lointain, donc l'effet de moyenne est moins prononcé dans ce régime qu'en champ proche.

5.3.4 Comparaison prédiction/simulation pour des géométries spécifiques

Sur la figure 5.7, nous montrons trois exemples spécifiques de structures prédites et nous les comparons à des simulations utilisant la GDM. La figure 5.7a correspond à une structure de l'ensemble des 1 000 géométries test utilisées dans l'étude statistique de la section précédente. Sur les figures 5.7b et 5.7c, nous étudions une grille parfaitement ordonnée de 7×7 bâtonnets et une spire formée à partir de ces mêmes bâtonnets. Cette dernière correspond à une géométrie ordonnée sans périodicité. Les deux colonnes de gauche comparent la composante prédite α_{xx}^{EE} (colonne la plus à gauche) avec les valeurs extraites des simulations (deuxième panneau de gauche). Les deux colonnes centrales comparent, de la même manière, la composante α_{xy}^{EE}, qui est nulle dans le cas du bâtonnet isolé. Cette grandeur est donc purement le résultat des interactions optiques. Sur les deux colonnes de droite, nous comparons l'intensité du champ proche dans un plan, 150 nm au-dessus du substrat, pour une illumination avec une onde plane d'incidence normale arrivant de l'intérieur du substrat et polarisée circulaire gauche. La longueur d'onde est de $\lambda_0 = 635$ nm, correspondant à la condition de résonance pour un bâtonnet isolé. Pour tous les exemples, nous trouvons un excellent accord avec les simulations.

Pour évaluer la fidélité quantitative, nous comparons les erreurs sur ces trois exemples avec les diagrammes en boîte de la figure 5.6. Les cercles rouge, bleu et vert sur cette figure indiquent, respectivement, les erreurs pour la grille aléatoire (Fig. 5.7a), la grille parfaite (Fig. 5.7b) et pour la structure en spire (Fig. 5.7c). Nous constatons que les deux exemples ordonnés ont une marge d'erreur plus grande par rapport à la structure aléatoire, cette dernière étant semblable aux géométries de l'ensemble utilisé pour l'apprentissage. Ceci est dû à l'absence de telles géométries ordonnées dans les données d'apprentissage, mais le bon accord indique que le réseau neuronal parvient à généraliser aux géométries avec un ordre structurel et pour

des densités de bâtonnets différentes de celle utilisée durant l'apprentissage. Des cartes 2D des erreurs du réseau, relatives aux simulations, sont représentées dans l'annexe de la référence [235].

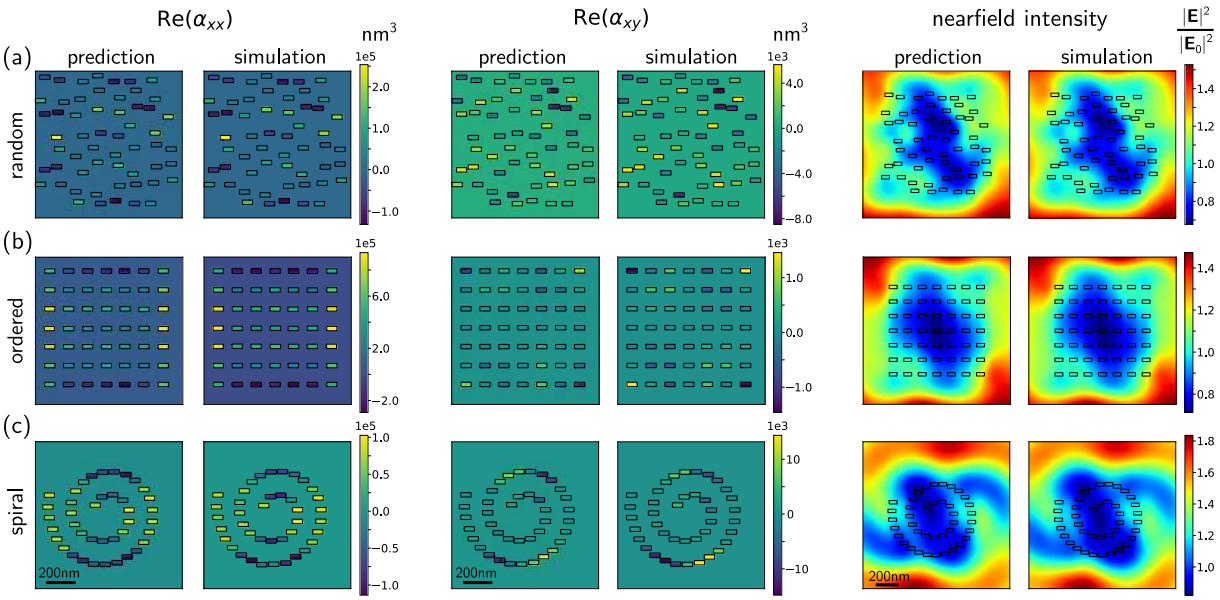

FIGURE 5.7 – Prédictions de polarisabilités habillées comparées aux simulations. a) Distribution aléatoire de bâtonnets, comme celles utilisées pour les échantillons d'apprentissage et de test. b) Grille 2D parfaitement ordonnée de bâtonnets. c) Spire comme exemple d'arrangement ordonné non périodique de bâtonnets. Les cartes des composantes α_{xx}^{EE} (deux colonnes de gauche) et α_{xy}^{EE} (deux colonnes centrales) montrent des zones de 1×1 µm^2. Les cartes de champ proche (deux colonnes de droite) sont calculées 150 nm au-dessus du substrat. Le système est illuminé par une onde plane de longueur d'onde $\lambda_0 = 635$ nm polarisée circulaire gauche, se propageant du bas vers le haut. La zone d'étude est de 1.3×1.3 µm^2. Les barres d'échelle correspondent à 200 nm.

5.4 Prédictions spectrales

Comme le montre la figure 5.4, notre modèle de réseau neuronal possède une couche d'entrée pour la longueur d'onde de la réponse optique. Afin de tester la capacité du modèle pour les prédictions spectrales, nous entraînons le réseau neuronal sur un deuxième ensemble de données, pour lequel nous calculons les polarisabilités habillées à différentes longueurs d'onde entre $\lambda_0 = 600$ nm et $\lambda_0 = 800$ nm, variant par pas de 10 nm. Durant le processus de génération de données, nous avons choisi la longueur d'onde d'évaluation au hasard pour chaque géométrie. Notre ensemble d'entraînement spectral se compose de 150 000 échantillons. Pour maintenir des temps de génération de données et d'apprentissage du réseau raisonnables, l'ensemble des données spectrales est réalisé sur une surface plus petite de 600×600 nm^2 (comparé au 1×1 µm^2 pour le réseau travaillant à $\lambda_0 = 635$ nm, exclusivement).

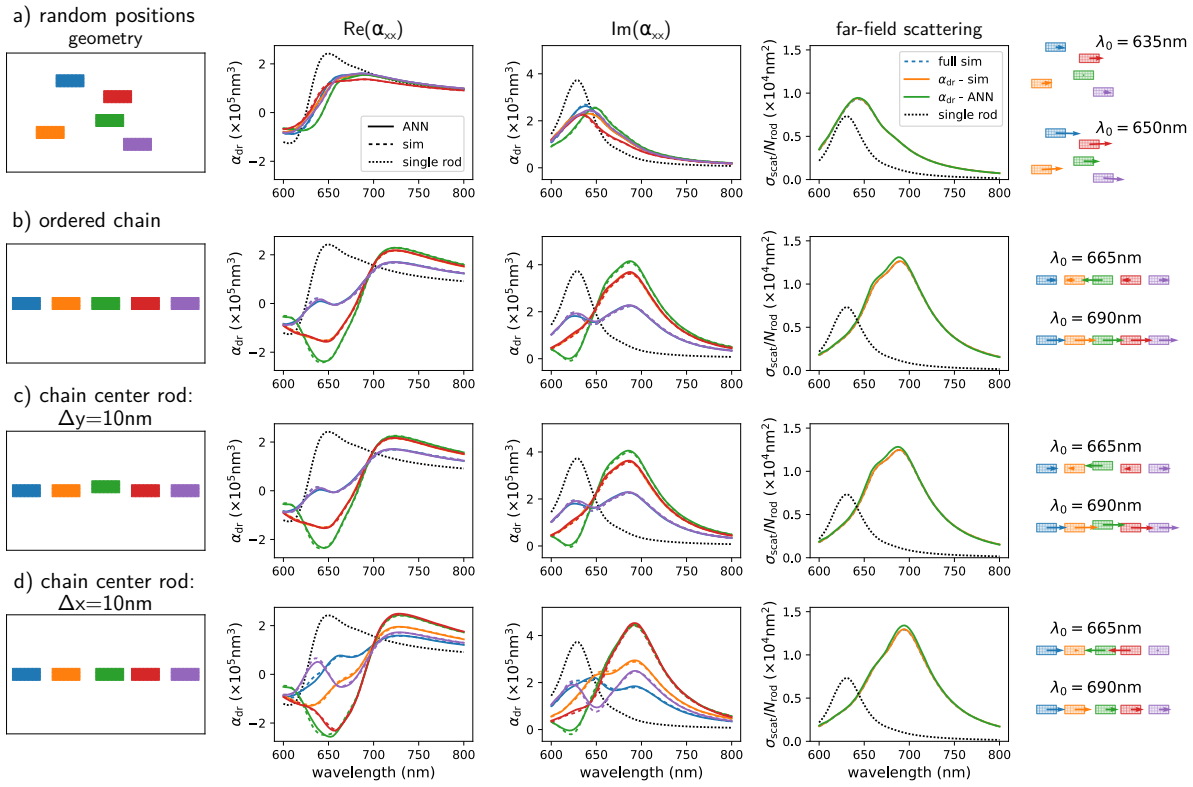

FIGURE 5.8 – Prédictions spectrales de polarisabilités habillées comparées aux simulations. a) Distribution aléatoire de 5 bâtonnets d'or. b) Chaîne ordonnée de 5 bâtonnets d'or régulièrement espacés de 20 nm. c) Même chaîne qu'en b) mais le bâtonnet central est déplacé de 10 nm en dehors de la chaîne. d) Même chaîne qu'en b) mais le bâtonnet central est déplacé de 10 nm vers la droite, selon l'axe de la chaîne. Les cadres montrant les géométries correspondent à une taille de 500×300 nm^2. La deuxième colonne de gauche montre la partie réelle de la composante α_{xx}^{EE}, la colonne suivante la partie imaginaire respective. Le code couleurs sur ces graphes correspond aux couleurs des bâtonnets sur les cartes 2D. Les lignes pleines correspondent aux prédictions du réseau, et les lignes pointillées aux simulations. Sur la deuxième colonne en partant de la droite, nous montrons les spectres de la section efficace de diffusion divisés par le nombre de bâtonnets, calculés avec une onde plane ayant une incidence normale et polarisée selon la direction Ox. Les courbes bleues en pointillés correspondent à une simulation complète avec la GDM, les courbes continues oranges correspondent aux calculs avec les α_{dr}^{EE} simulées et les courbes vertes aux calculs avec les polarisabilités habillées prédites. A titre comparatif, les résultats pour un bâtonnet isolé sont représentés, dans tous les graphiques, par une ligne pointillée noire. Sur la dernière colonne, les parties réelles des moments dipolaires électriques effectifs sont montrées à des longueurs d'onde sélectionnées, comme indiqué en légende. Cette figure est extraite de la référence [235].

Nous observons une erreur de précision d'environ 0.5% pour les tenseurs de polarisabilité, et des erreurs moyennes (respectivement maximales) de 0.2% (respectivement 0.8%) sur l'intensité du champ proche (150 nm au-dessus du substrat). L'erreur sur le champ lointain dans

l'hémisphère inférieur (respectivement supérieur) est de 0.8% (respectivement 0.2%). Tous les pourcentages indiquent la limite supérieure de l'écart interquartile. Les diagrammes en boîte de ce réseau spectral sont représentés dans l'annexe de la référence [235].

Afin de déterminer pourquoi le réseau spectral est bien plus performant que celui à une seule longueur d'onde, nous avons entraîné un réseau supplémentaire sur un ensemble de 60 000 données de même surface que celle utilisée pour le travail spectral (600×600 nm^2), mais limité à la longueur d'onde de résonance $\lambda_0 = 635$ nm d'un seul bâtonnet sur un substrat de verre. Avec ces données, nous trouvons une précision de prédiction du même ordre de grandeur que celle sur l'ensemble des données spectrales. Nous concluons donc que la taille réduite de la zone de prédiction a un impact plus fort sur la fidélité de la prédiction que l'ajout de la longueur d'onde comme degré de liberté supplémentaire.

Sur la figure 5.8, nous montrons des exemples de prédictions spectrales pour différents arrangements de cinq nano-bâtonnets d'or identiques. La colonne de gauche montre l'arrangement périodique dans le plan xOy. La deuxième colonne et la colonne centrale représentent respectivement la partie réelle et imaginaire de α_{xx}^{EE}. La deuxième colonne de droite montre la section efficace de diffusion en champ lointain, obtenue par la repropagation des moments dipolaires électriques des cinq diffuseurs, après illumination par une onde plane d'incidence normale et polarisée selon Ox. Tout à droite, les moments dipolaires effectifs des bâtonnets, sous une illumination polarisée X, sont indiqués par de petites flèches pour certaines longueurs d'onde. Les couleurs des courbes et des flèches correspondent au code couleur défini dans la colonne de gauche, représentant les géométries. Les courbes continues indiquent la prédiction du réseau, les lignes pointillées montrent les résultats simulés. Pour comparaison, la réponse d'un bâtonnet d'or isolé est indiquée par des lignes pointillées noires dans toutes les figures.

Sur la figure 5.8a est représentée la distribution aléatoire des cinq bâtonnets, semblable aux structures des données d'entraînement. La distribution aléatoire entraîne une modification relativement faible des polarisabilités habillées de chacune des structures. Les principales observations sont un élargissement, et un décalage vers le rouge, de la résonance plasmonique localisée, ce qui est particulièrement visible sur les spectres de diffusion en champ lointain (cf. quatrième colonne). Ce décalage vers le rouge peut être expliqué avec un modèle d'indice effectif moyen, avec la présence des bâtonnets voisins qui accroît l'indice effectif local [266]. L'arrangement désordonné empêche un couplage optique efficace des bâtonnets.

La figure 5.8b montre une configuration totalement différente, où les cinq bâtonnets sont alignés comme une chaîne, avec un espacement entre structures de 20 nm. Dans ce cas, la polarisabilité habillée a une évolution spectrale significativement différente.

A la longueur d'onde de résonance du nano-bâtonnet isolé, la phase du moment dipolaire a changé de signe (cf. Re(α_{xx}^{EE})) et le pic de la résonance s'est déplacé de manière assez radicale vers la longueur d'onde $\lambda_0 = 690$ nm (cf. Im(α_{xx}^{EE})). Nous observons, en outre, une augmentation significative de l'efficacité de diffusion à cette longueur d'onde, qui est environ deux fois plus élevée (par nano-bâtonnet), par rapport à la diffusion unique. Ceci est le résultat de l'excitation collective et résonante des cinq structures, comme nous pouvons le voir sur le croquis de droite. De plus, nous observons un deuxième petit pic dans la diffusion en champ lointain autour de $\lambda_0 = 675$ nm. Une inspection plus approfondie de la distribution des moments dipolaires effectifs, dans les bâtonnets, révèle que cette deuxième résonance correspond à un mode "anti-bonding", avec une oscillation dans les bâtonnets du bord en opposition de phase avec ceux du centre (cf. schéma tout à droite).

Sur les figures 5.8c-d, nous étudions maintenant l'impact d'une petite distorsion dans la chaîne sur la réponse optique de cette dernière [267]. La figure 5.8c montre les polarisabilités et la diffusion pour la même chaîne que sur la figure 5.8b, à la différence que la structure centrale a été déplacée de 10 nm perpendiculairement à l'axe de la chaîne. Nous constatons sur l'analyse des polarisabilités habillées, ainsi que sur celle du spectre de champ lointain, que cette distorsion n'a pas d'effet significatif sur la réponse optique. A contrario, si nous déplaçons le même bâtonnet de 10 nm selon le grand axe de la chaîne (selon les X positifs, représenté sur la figure 5.8d), l'effet est plus conséquent. Ce petit changement géométrique modifie fortement les polarisabilités habillées des structures. Il rompt la symétrie des paires de bâtonnets, autrefois identique sur la gauche et la droite de la chaîne. Cette variation accroît, dans le champ lointain, le décalage vers le rouge de la résonance, tandis que le double pic qui était présent dans l'exemple 5.8b disparaît. Une analyse des moments dipolaires effectifs à la longueur d'onde de l'ancien mode "anti-bonding" ($\lambda_0 = 665$ nm) révèle que l'excitation asymétrique conduit à une exaltation du moment dipolaire du bâtonnet décalé (en vert), ainsi que de son voisin le plus proche (en rouge), ce qui rompt la symétrie du mode "anti-bonding". En contre-partie, au pic de résonance, autour de $\lambda_0 = 690$ nm, les bâtonnets oscillent tous en phase, ce qui entraîne une diffusion efficace en champ lointain.

5.5 Approximation des plus proches voisins pour de très grandes métasurfaces apériodiques

Dans cette section, nous démontrons comment les polarisabilités habillées prédites par le réseau neuronal peuvent être utilisées pour décrire la réponse optique d'une métasurface plasmonique apériodique de taille arbitrairement grande. A cette fin, nous appliquons une deuxième approximation que nous appelons l'*approximation locale* [251]. Nous supposons que la polarisabilité habillée d'une nanostructure est principalement définie par son voisinage proche. En d'autres termes, nous supposons que les nanostructures situées à de plus grandes distances ont peu, ou pas, d'impact sur le champ optique local. Cette hypothèse est sans aucun doute fausse dans le cas d'une onde se propageant dans le plan des nanostructures. En revanche, en incidence normale, notre hypothèse est probablement justifiée. Lors de tests antérieurs, nous avons constaté qu'une gamme d'interaction de ± 500 nm, à une longueur d'onde $\lambda_0 = 635$ nm, conduit à de bons résultats avec des erreurs moyennes de précisions d'environ 2 à 3%. Pour une taille plus petite de ± 300 nm, comme utilisée pour le réseau spectral, l'erreur est plutôt autour de 6% lorsqu'elle est utilisée dans l'approximation locale pour de larges métasurfaces. C'est la raison pour laquelle nous avons choisi une taille de fenêtre de 1×1 µm^2 pour le réseau neuronal à une seule longueur d'onde. Une analyse de la précision de l'approximation locale en fonction de la plage d'interaction est donnée dans l'annexe de la référence [235].

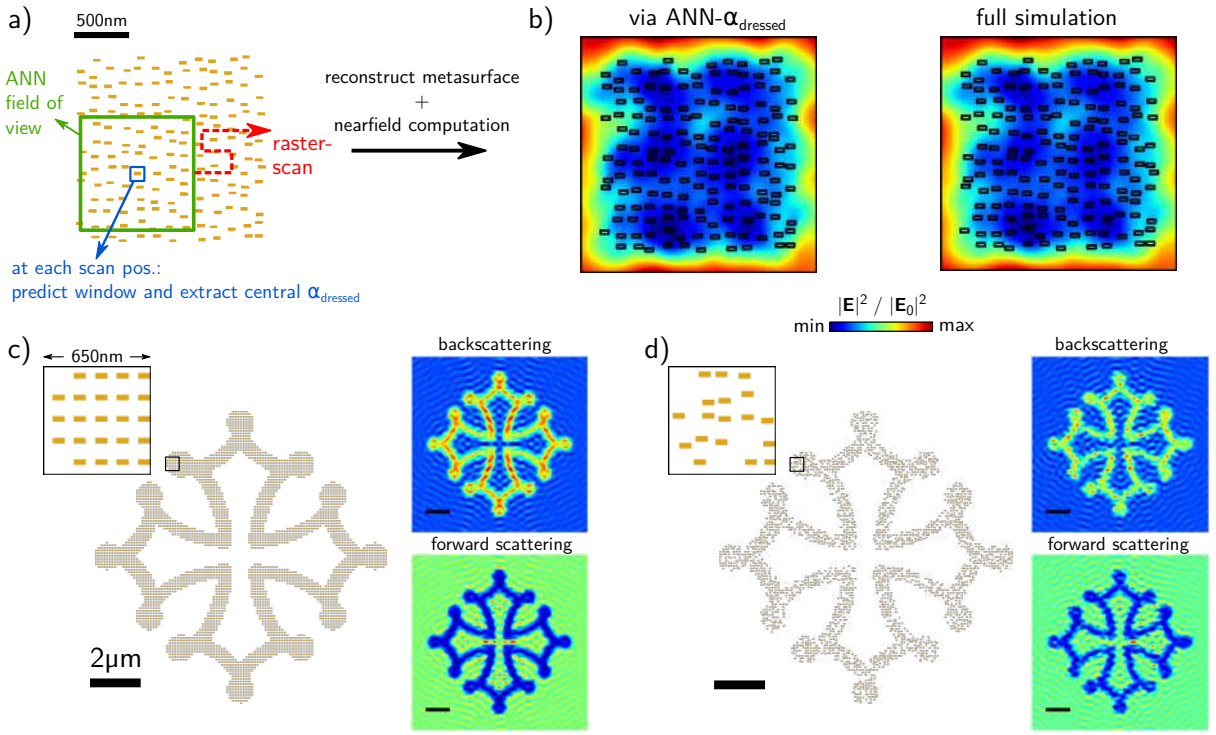

FIGURE 5.9 – Approximation des plus proches voisins. a) Illustration de la procédure d'approximation. Une zone de la taille du champ d'entrée du réseau est balayée sur une grande structure, en étant itérativement centrée sur chaque bâtonnet. A chaque position, nous faisons prédire le réseau, et uniquement la polarisabilité habillée du bâtonnet central est conservée. b) Test de la méthode. Carte de champ proche, calculée 150 nm au-dessus du substrat. Les conditions d'illumination sont les mêmes que pour la figure 5.7. La carte de gauche correspond au calcul basé sur les prédictions du réseau neuronal en utilisant la fenêtre balayée. La carte de droite correspond à la simulation complète avec la GDM. L'exemple représenté contient 160 nano-bâtonnets, sa taille est proche de la limite de ce qui est simulable avec la GDM. c) Exemple d'une grande assemblée non périodique de plots d'or, les bâtonnets constituant la structure sont distribués de manière équidistante. La structure est constituée de 3 016 objets. d) Identique à c) mais avec une disposition aléatoire des plots, ceux qui se chevauchent sont retirés. La structure désordonnée est constituée de 2 262 bâtonnets. Les panneaux à droite de c) et d) montrent des cartes d'intensité de champ à 150 nm au-dessus de la géométrie pour une illumination par dessus (rétro-diffusion), respectivement par dessous (propagation directe). Les nano-bâtonnets, dans tous les exemples, reposent sur un substrat de verre ($n_{\text{subst}} = 1.45$) et sont éclairés en incidence normale à la longueur d'onde $\lambda_0 = 635$ nm, avec une polarisation selon le grand axe des bâtonnets. Sauf indication contraire, les barres d'échelles correspondent à 2 µm, les inserts en c) et d) montrent des zones de 650×650 nm^2, indiquées par des petites boîtes noires.

Dans l'approximation locale, nous extrayons la polarisabilité habillée de chaque nanostructure dans une procédure de type balayage. Nous positionnons consécutivement chaque nanostructure de l'ensemble au centre de la zone d'entrée du réseau. Nous éliminons toutes les structures situées en dehors du champ de vision du réseau et nous introduisons la zone

préservée dans le réseau neuronal pour réaliser la prédiction. De toutes les polarisabilités habillées prédites pour la scène locale, nous conservons uniquement la valeur de la structure centrale, puisqu'elle est la moins sensible à l'erreur induite par l'élimination des structures en dehors de la zone de balayage. Ainsi, nous devons effectuer cette procédure pour prédire la polarisabilité habillée de chaque structure de la grande métasurface apériodique. Le schéma d'extraction est illustré sur la figure 5.9a. Une fois que toutes les polarisabilités sont obtenues, nous reconstituons la métasurface complète en attribuant les $\alpha_{\mathrm{dr}}^{\mathrm{EE}}(\omega)$ prédites aux positions des nano-bâtonnets qui leurs sont associés, respectivement. Nous pouvons maintenant éclairer les polarisabilités avec une onde plane, ce qui donne la distribution des moments dipolaires électriques effectifs, qui peuvent être à leur tour repropagés pour calculer les champs proches et lointains. La figure 5.9b représente la carte d'intensité du champ proche, calculée 150 nm au-dessus du substrat. Le système est éclairé par une onde polarisée circulaire gauche, en incidence normale et se propageant du bas vers le haut. La carte de gauche montre la carte calculée en utilisant le réseau neuronal dans l'approximation locale, celle de droite correspond au calcul exact avec la GDM. L'accord visuel entre les deux cartes est très bon. L'approximation locale ajoute une erreur supplémentaire autour de $2-3\%$, dû à l'omission des voisins lointains (cf. Annexe [235]).

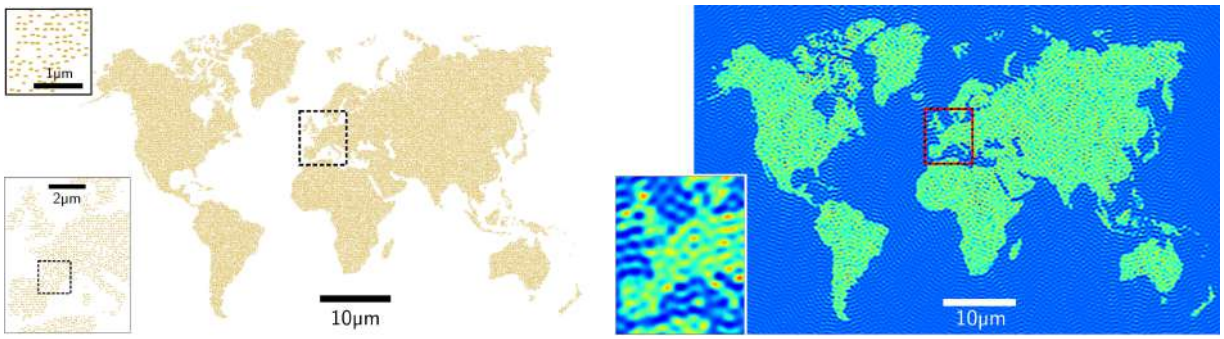

FIGURE 5.10 – Approximation des plus proches voisins. Gauche : Très grande géométrie planaire formée d'environ 55 000 nano-bâtonnets désordonnés reposant sur un substrat de verre. La métasurface couvre une aire d'environ 80×50 µm^2. Droite : Carte de l'intensité de champ proche à une hauteur de 250 nm au-dessus du plan des bâtonnets d'or, illuminés par une onde plane polarisée linéairement de longueur d'onde $\lambda_0 = 635$ nm, provenant du haut. Les encarts à gauche montrent des zooms de la région centrale indiquée, qui s'étendent sur une aire 6.5×8 µm^2. L'encart dans le coin supérieur gauche montre une aire de taille 1.7×1.7 µm^2 (zone spécifiée dans l'encart inférieur gauche).

L'approximation locale permet de simuler des assemblées de nano-structures, ici des nano-bâtonnets, de taille arbitraire. Le coût de la simulation croît linéairement avec le nombre de diffuseurs et l'estimation de chaque polarisabilité habillée requiert environ 2 millisecondes sur notre matériel informatique (voir plus haut). L'échelle linéaire peut encore sembler défavorable, mais comparée à de nombreuses autres techniques telle que la GDM [45], la méthode de Galerkine discontinue [268], méthode des éléments finis de frontière [269], ou les éléments finis [270], elle est en réalité très attractive. A titre de démonstration, nous montrons sur la figure 5.9c, une grande structure planaire, constituée de 3 016 bâtonnets d'or. La structure a une

extension d'environ 12×12 µm^2, les zones remplies sont occupées par des bâtonnets d'or, de taille $70 \times 70 \times 30$ nm^3, régulièrement espacés sur une grille périodique de périodicité 120 nm. Nous calculons l'intensité du champ proche dans un plan parallèle à la hauteur 150 nm, au-dessus du substrat, sous un éclairage par une onde plane en incidence normale et polarisée selon Ox. Le calcul est réalisé pour une illumination venant du haut ("backscattering"), ou du bas ("forward scattering"). Nous constatons, comme attendu, que l'approximation locale, basée sur notre réseau neuronal, donne des cartes d'intensité symétriques, pour un remplissage périodique par des nano-bâtonnets. Dans une seconde simulation, illustrée 5.9d, nous perturbons la disposition des bâtonnets, avec un décalage aléatoire de 10 ou 20 nm dans des directions aléatoires. Lorsque deux bâtonnets se chevauchent, nous en supprimons un de la simulation. La géométrie résultante est accompagnée des cartes d'intensité de champ proche simulées. Comme prévu, l'introduction de l'aléatoire rompt le caractère régulier de la distribution du champ proche.

Comme démonstration visuelle de la capacité à simuler de très grandes métasurfaces, totalement non-périodiques, nous montrons sur la figure 5.10 l'intensité du champ proche, après illumination par une onde plane, très proche d'une très grande assemblée de 55 000 bâtonnets d'or. Cette structure s'étend sur une aire d'environ 80×50 µm^2, et a été générée avec la même procédure aléatoire que pour la figure 5.9d. La répartition des bâtonnets est donc très dense et les interactions en champ proche ne peuvent être négligées. La prédiction des polarisabilités habillées prend environ 2 minutes, alors qu'un calcul avec la même approximation locale, mais en utilisant des simulations conventionnelles, nécessiterait environ 3 semaines de temps de calcul, sur le même matériel.

5.6 Application de cette approche de Deep Learning à une métasurface en silicium dopé et théorie des milieux effectifs

Comme nous l'avons mentionné dans les sections précédentes, la simulation de la réponse optique d'une métasurface désordonnée est un vrai challenge. Des théories ont montré qu'il est possible d'y arriver, dans une certaine mesure, en approximant un milieu hétérogène par un milieu homogène équivalent, pour lequel nous associons un indice optique effectif [258, 266, 271]. Cette approximation est valide uniquement si la distance moyenne d entre nano-diffuseurs est bien plus petite que la longueur d'onde d'illumination λ, autrement dit si [271]

$$kd \ll 1 \tag{5.9}$$

où $k = 2\pi/\lambda$ est le vecteur d'onde.

De plus, il faut que l'évaluation des propriétés optiques se fasse à longues distances, dans une zone de l'espace où nous ne pouvons pas distinguer les effets individuels de chaque diffuseur. Cette approche permet donc de définir et de calculer des grandeurs macroscopiques telles que la réflectance, la transmittance et l'absorbance d'une métasurface.

Dans cette section, nous montrons que nous sommes capables d'extraire un indice effectif, associé à une métasurface de silicium dopé, à partir de spectres de réflectance et de transmittance, obtenus à l'aide de notre modèle de polarisabilité habillée prédite par un réseau neuronal. Nous démontrons cette approche avec une brève étude sur l'effet du désordre, au sein d'une métasurface, sur l'indice effectif n_{eff}.

5.6.1 Calcul de la réflectance et de la transmittance et détermination de l'indice effectif n_{eff}

Afin de calculer la réflectance et la transmittance associées à la métasurface, nous utilisons la conservation du flux d'énergie de la lumière. La quantité qui représente le flux d'énergie est la moyenne temporelle du vecteur de Poynting $\langle \mathbf{S} \rangle$. Pour l'onde incidente $\mathbf{F}_0(\mathbf{r}, \omega) = \{\mathbf{E}_0(\mathbf{r}, \omega), \mathbf{H}_0(\mathbf{r}, \omega)\}$, la moyenne vectorielle du vecteur de Poynting est définie d'après [43, 74]

$$\langle \mathbf{S}_0 \rangle = \frac{1}{2} \mathrm{Re} \left(\mathbf{E}_0 \times \mathbf{H}_0^* \right) . \tag{5.10}$$

où * représente le complexe conjugué.

Lorsque l'onde lumineuse rencontre la métasurface, elle peut être absorbée, réfléchie, ou encore transmise. Comme pour l'onde incidente, nous pouvons calculer le flux d'énergie $\langle \mathbf{S}_\mathrm{t} \rangle$, respectivement $\langle \mathbf{S}_\mathrm{r} \rangle$, pour le rayonnement transmis $\{\mathbf{E}_\mathrm{t}(\mathbf{r}, \omega), \mathbf{H}_\mathrm{t}(\mathbf{r}, \omega)\}$, respectivement réfléchi $\{\mathbf{E}_\mathrm{r}(\mathbf{r}, \omega), \mathbf{H}_\mathrm{r}(\mathbf{r}, \omega)\}$, par la métasurface

$$\langle \mathbf{S}_\mathrm{t} \rangle = \frac{1}{2} \mathrm{Re} \left(\mathbf{E}_\mathrm{t} \times \mathbf{H}_\mathrm{t}^* \right) \quad , \quad \langle \mathbf{S}_\mathrm{r} \rangle = \frac{1}{2} \mathrm{Re} \left(\mathbf{E}_\mathrm{r} \times \mathbf{H}_\mathrm{r}^* \right) . \tag{5.11}$$

Dans notre cas, la surface est une métasurface, qui plus est non périodique, donc nous devons intégrer $\langle \mathbf{S} \rangle$ sur un plan à travers lequel on "mesure" le flux d'énergie moyen. Cette grandeur est la puissance électromagnétique $\mathcal{P}$ traversant ce plan, définie d'après [43]

$$\mathcal{P} = \int_s \langle \mathbf{S} \rangle \mathrm{d}\mathbf{s} \tag{5.12}$$

où s est un plan au-dessus, ou en dessous, de la métasurface.

Pour calculer la réflectance R, nous devons sommer uniquement le champ diffusé par la métasurface dans le plan d'intégration et l'on obtient la puissance réfléchie $\mathcal{P}_\mathrm{r}$. Pour calculer la transmittance T, nous intégrons le champ total (diffusé+incident), et nous obtenons la puissance transmise $\mathcal{P}_\mathrm{t}$. Enfin, nous faisons cette même intégration pour le champ incident $\{\mathbf{E}_0(\mathbf{r}, \omega), \mathbf{H}_0(\mathbf{r}, \omega)\}$, et nous normalisons par ce flux d'énergie $\mathcal{P}_0$ pour obtenir T et R

$$T = \left| \frac{\mathcal{P}_\mathrm{t}}{\mathcal{P}_0} \right| \quad , \quad R = \left| \frac{\mathcal{P}_\mathrm{r}}{\mathcal{P}_0} \right| . \tag{5.13}$$

Par conservation de l'énergie, l'absorbance A de la métasurface vaut $A = 1 - T - R$.

En changeant la longueur d'onde d'illumination, nous pouvons réaliser une étude spectrale de R et T, dont les courbes nous permettront de déterminer l'indice effectif n_{eff} associé à la métasurface. Pour cela, nous utilisons le modèle de l'annexe A, basé sur les coefficients de Fresnel, pour fitter les courbes de R et de T obtenues d'après la conservation de l'énergie, afin d'extraire l'indice effectif n_{eff}.

5.6.2 Effet du désordre sur l'indice effectif d'une métasurface en silicium dopé

Dans un premier temps, nous avons évalué le couplage optique entre des nano-bâtonnets de silicium dopé de volume $70 \times 30 \times 30$ nm^3, comme ceux utilisés dans les sections précédentes, où le matériau était de l'or. Ces plots reposent sur un substrat d'indice $n_{\text{subst}} = 1.45$. Les

paramètres de dopage (la densité de porteurs libres N_{dop} et l'amortissement γ) sont les mêmes que ceux de notre échantillon P_3 (cf. Chap. 4). Dans cette configuration, le couplage entre nanostructures est faible, et cela même à courtes distances ($d \gtrsim 100$ nm) [219]. Par conséquent, l'utilisation des polarisabilités habillées n'est pas indispensable, car la réponse optique dans une approximation sans interaction optique est suffisamment exacte.

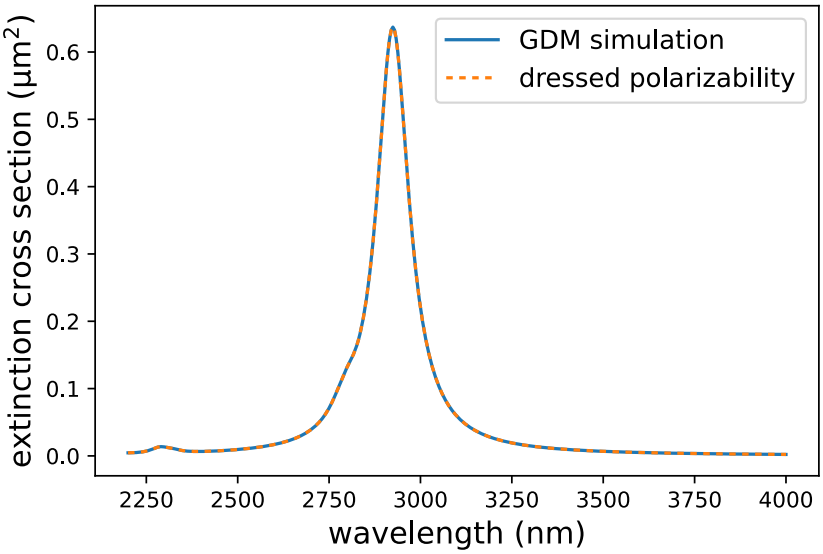

FIGURE 5.11 – Spectre d'extinction d'une structure de silicium hyperdopé de taille $200 \times 200 \times 40$ nm^3, reposant sur un substrat d'indice $n_{\text{subst}} = 1.45$. La densité de porteurs libres N_{dop} introduite par dopage est la même que celle de notre échantillon P_3 du chapitre 4. Néanmoins, nous avons arbitrairement augmenté la mobilité des porteurs libres d'un facteur 10.

Un des buts dans la suite du développement des matériaux hyper-dopés, pour la plasmonique dans le proche infrarouge, sera d'optimiser la réponse plasmonique en augmentant les facteurs de qualité des résonances. Le paramètre principal pour atteindre cet objectif est la mobilité des porteurs, qui doit être élevée afin de réduire les pertes et permettre de fortes résonances plasmoniques localisées. Il existe différentes possibilités, la première étant de contraindre le silicium, par exemple par un dépôt de germanium [272]. La seconde alternative serait de passer aux semi-conducteurs III-V comme le GaAs ou le InAs, qui, même pour de forts dopages, offrent des mobilités de 2-3 ordres de grandeurs supérieures à celle du Si [273]. Nous supposons dans la suite que nous arrivons à augmenter la mobilité des électrons dans le Si hyperdopé par un facteur 10. Ce dernier point permet d'avoir des résonances, autour de $\lambda_0 = 3000$ nm, de meilleures qualités, ce qui induit comme effet secondaire de fortes interactions optiques dans le champ proche. Par conséquent, une optimisation des propriétés plasmoniques des semi-conducteurs hyperdopés rend nécessaire l'inclusion des effets de couplage optique dans la modélisation, ce que nous démontrons dans la suite. En plus de changer la mobilité, nous avons considéré des structures plus grandes ($200 \times 200 \times 40$ nm^3 au lieu de $70 \times 30 \times 30$ nm^3). Le spectre d'extinction d'une telle structure hyperdopée isolée, et déposée sur un substrat de verre $n_{\text{subst}} = 1.45$, est représenté sur la figure 5.11

5.6.2.1 Entraînement du réseau neuronal

Afin de simuler les interactions au sein de la métasurface, nous avons besoin de développer un nouveau réseau neuronal, adapté à ce nouveau matériau et cette nouvelle géométrie. Nous générons des simulations sur une gamme spectrale de 2500 nm à 3500 nm avec des densités de nanostructures aléatoires, entre 10 et 75 structures par zone de 4×4 µm^2. Chaque pixel des cartes 2D générées correspond à un pas de 40 nm (pas de discrétisation de nos nanostructures).

Comme dans la section 5.4, nous souhaitons faire une évaluation spectrale du couplage optique entre méta-atomes. Par conséquent, nous avons besoin d'un large ensemble d'entraînement afin que le réseau neuronal apprenne convenablement. Ici, nous utiliserons 100 000 simulations, ce qui suffit pour que le réseau présente des qualités de prédiction du même ordre de grandeur que celles générées pour l'or.

Nous démontrons qualitativement la fidélité du réseau de neurones par une comparaison entre simulation GDM et prédiction de la polarisabilité habillée d'une structure en forme de spire, constituée de cubes de Si hyperdopé. Sur la figure 5.12a, nous représentons la carte de l'intensité du champ électrique calculée 200 nm au-dessus de la spire. Sur la figure 5.12b, nous montrons l'intensité du champ magnétique, calculée avec l'équation (1.40). Comme pour la spire de bâtonnets d'or, le réseau arrive à prédire la réponse optique de cette structure ordonnée, malgré le fait que l'ensemble d'apprentissage contient uniquement des assemblés aléatoires.

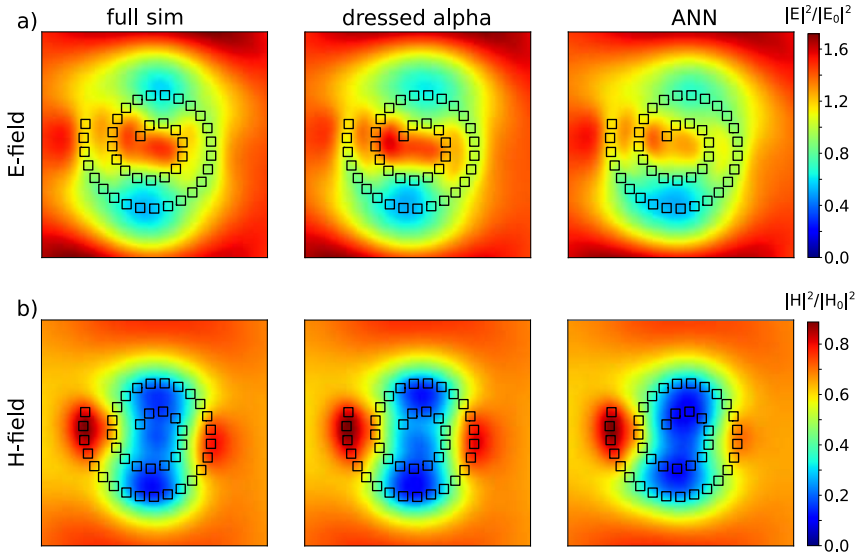

FIGURE 5.12 – Cartes de champ proche électrique et magnétique 200 nm au-dessus du substrat, d'indice $n_{\text{subst}} = 1.45$, supportant une spire en silicium dopé. La colonne de gauche correspond à une simulation complète avec la GDM. La colonne au centre illustre une simulation avec les polarisabilités habillées calculées numériquement, et celle de droite une simulation avec les polarisabilités habillées prédites par le réseau neuronal.

5.6.2.2 Prédictions de polarisabilités habillées, propriétés optiques et indices effectifs de métasurfaces

Maintenant que le réseau est entraîné, nous prédisons, en appliquant l'approximation locale vu précédemment, les polarisabilités habillées de métasurfaces de taille 25×25 µm^2, comme celles représentées sur les figures 5.13a-c. La figure 5.13a correspond à une grille parfaite avec un espacement périodique de 640 nm. Les figures 5.13b et 5.13c correspondent à des métasurfaces de même taille, avec un positionnement aléatoire des plots, réduisant la distance minimale entre les objets et augmentant le désordre de la métasurface.

A partir des polarisabilités habillées, nous calculons dans le plan 1000 nm au-dessous (respectivement au-dessus) de la métasurface, les champs électrique et magnétique transmis (respectivement réfléchis) par cette dernière. Pour ce calcul, nous supposons une illumination par une onde plane se propageant du bas vers le haut et polarisée linéairement selon l'axe Ox. En intégrant le vecteur de Poynting sur ces plans, nous déterminons les flux d'énergie totaux transmis et réfléchis et pouvons ainsi remonter à la réflectance R et la transmittance T en utilisant l'équation (5.13).

Sur la figure 5.13d, nous représentons les spectres de R et T pour la grille parfaite 5.13a et pour la grille la plus désordonnée 5.13c. Nous voyons que le désordre réduit l'absorbance (courbes vertes) et augmente la réflectance (courbes bleues) de quelques pourcents. Ces variations entraînent une baisse de la transmittance (courbes oranges). Nous supposons que le rayonnement augmente lorsque des dimères sont créés, pour lesquels le champ électrique est fortement exalté entre les plots avant d'être ré-émis en champ lointain.

Pour finir, nous augmentons progressivement le désordre dans la métasurface et partons ainsi de la configuration 5.13a, jusqu'à atteindre la conformation 5.13c, en passant par 5.13b. Pour chaque degré de désordre, nous calculons les spectres de A, R et T, que nous fittons pour extraire l'indice effectif de chaque métasurface en la représentant par une couche continue d'épaisseur 40 nm (la hauteur des nanostructures). Nous traçons les parties réelles et imaginaires des n_{eff} sur la figure 5.13e. L'intensité des courbes (en terme de couleur) croît avec le désordre, par conséquent les courbes les plus claires correspondent à un désordre plus faible (grille parfaite). Nous constatons que la résonance plasmonique est bien retranscrite, avec un pic de la partie imaginaire autour de la résonance, à 2900 µm. De plus, le désordre modifie nettement le spectre de la partie réelle, alors que la partie imaginaire est relativement insensible, ce qui reflète l'observation discutée plus haut, à savoir que la réflectivité augmente légèrement en ajoutant du désordre, pendant que l'absorption diminue. Nous remarquons également que la réponse de la métasurface désordonnée est assez fortement élargie spectralement. En conclusion, le désordre peut servir de paramètre libre supplémentaire pour ajuster la largeur spectrale et le ratio entre réflectance et absorbance d'une métasurface plasmonique dans l'infrarouge. Nous notons que ce modèle d'homogénéisation est un modèle purement empirique qui ne tient pas compte des conditions de causalité représentées par les relations de Kramers-Kronig [274].

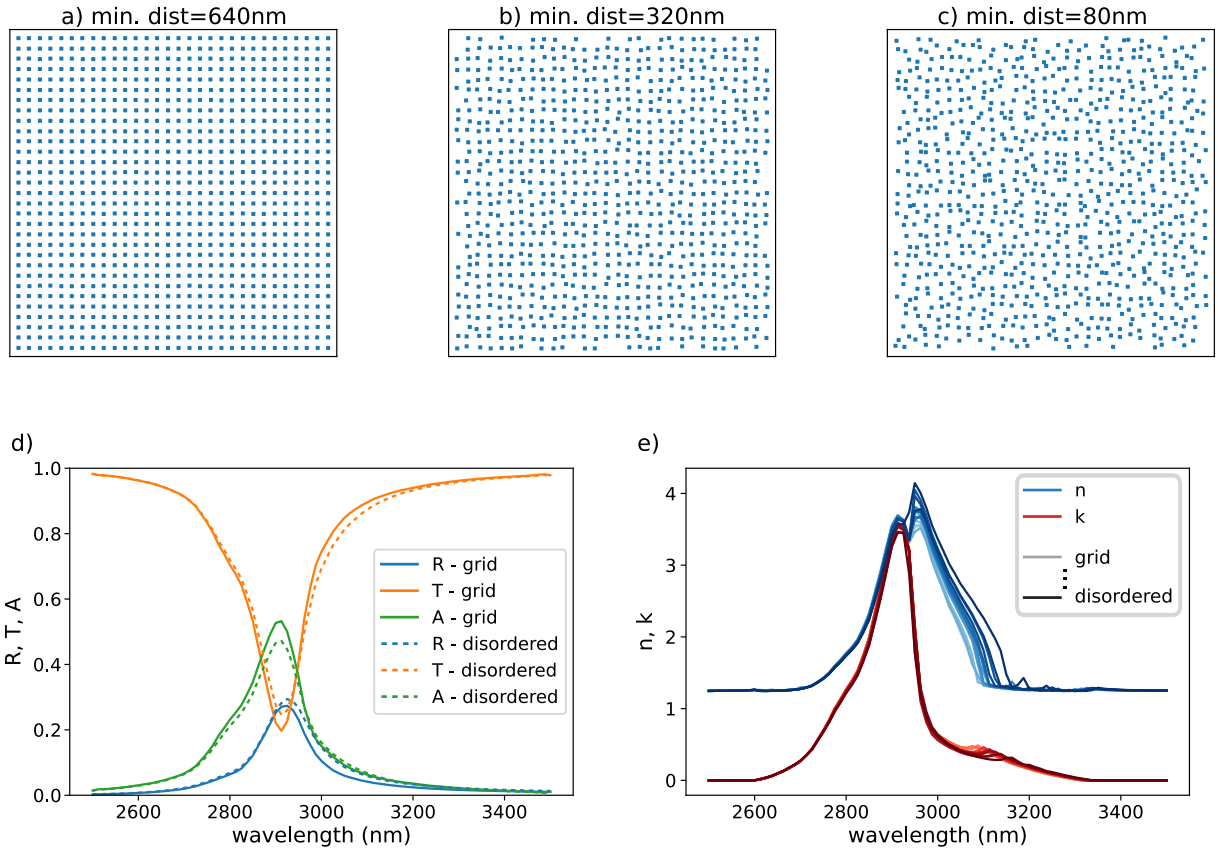

FIGURE 5.13 – Évolution de l'indice de réfraction effectif avec le désordre. a) Grille parfaite de plots de silicium dopé de taille $200 \times 200 \times 40$ nm^3, reposant sur un substrat $n_{\text{subst}} = 1.45$. La grille couvre une surface de 25×25 µm^2, et l'espacement entre plots est de 640 nm. b) Même grille qu'en a) mais nous introduisons du désordre, la distance minimale entre objets est de 320 nm. c) Le désordre au sein de la grille est encore accru, la distance minimale est de 80 nm. d) Calcul de la réflectance (courbes bleues), transmittance (courbes oranges) et absorbance (courbes vertes). Les courbes continues correspondent à la simulation de la grille parfaite en a), et les courbes en pointillés à la simulation de la grille en c). e) Évolution des parties réelle (en bleu) et imaginaire (en rouge) de l'indice de réfraction d'une couche continue de 40 nm, équivalente à la métasurface, en fonction du désordre introduit dans cette dernière. Le code couleur des courbes indique une augmentation du désordre proportionnelle à l'intensité de la couleur de la ligne. La courbe la plus claire correspond à la métasurface en a) et la plus foncée à la métasurface en c).

5.7 Conclusion

En conclusion, nous avons développé une technique basée sur du Deep Learning, couplée à un modèle de polarisabilités habillées, pour prédire la réponse optique de grandes assemblées denses, et non ordonnées, de nanostructures plasmoniques en interaction. La méthode est capable de réduire de cinq ordres de grandeur le coût de calcul élevé requis pour calculer les interactions complexes dans de larges métasurfaces plasmoniques apériodiques. Nous

avons montré que le modèle peut être appliqué efficacement pour décrire la réponse spectrale de matériaux dispersifs (dans notre cas, l'or). Dans les limites d'une approximation locale supplémentaire, qui néglige les interactions optiques à longue portée, nous avons démontré que la méthode peut être utilisée pour décrire très efficacement la réponse optique d'assemblages planaires de nanostructures de pratiquement n'importe quelle taille.

Notre approche peut être directement généralisée à des nanostructures de formes arbitraires, via la discrétisation en vue de dessus, ou à des matériaux multiples, en utilisant la distribution spatiale de la permittivité complexe comme entrée pour le réseau neuronal. L'indice de réfraction de l'environnement, du substrat ou éventuellement d'un système multicouches pourrait également être inclus dans le modèle comme paramètre d'entrée supplémentaire. Comme nous l'avons montré, la méthode sera utile pour l'homogénéisation de structures totalement désordonnées ou de métasurfaces apériodiques, mais aussi de géométries ordonnées avec une périodicité à grande échelle ou sans périodicité, permettant l'extraction des propriétés effectives du milieu. La grande efficacité de calcul rend l'approche attrayante pour une application dans des schémas d'optimisation itératifs. Ce serait le cas, par exemple, pour adapter l'indice de réfraction effectif d'une couche nanostructurée, ou encore pour une mise en forme du front d'onde à l'échelle micrométrique, capable de prendre en compte les effets de couplage local et d'interaction optique à l'intérieur du milieu nanostructuré. Nous pensons que notre concept revêt un intérêt certain pour un large public dans le domaine de la photonique et de la nano-optique, et en particulier pour la conception et la description de métasurfaces, où les calculs rigoureux des interactions optiques dans des structures complexes restent un défi important.

Conclusion générale

L'objectif principal de cette thèse était de prédire la réponse plasmonique de systèmes modèles constitués de nanostructures de silicium dopé pour la plasmonique infrarouge. Les nanostructures ont été obtenues à partir d'un substrat de SOI, dont la couche supérieure a été préalablement dopée, avant d'être nanostructurée par lithographie électronique.

Au cours de ces trois années, nous avons élaboré le formalisme théorique pour simuler ces systèmes. La Méthode Dyadique de Green conventionnelle, qui est adaptée à l'objet unique, fut notre point de départ. Notre première réflexion a porté sur les constantes diélectriques à utiliser dans ce modèle, développé dans le chapitre 1. En effet, dans la gamme infrarouge le substrat de silice présente des modes phonons, qui peuvent se coupler avec le mode plasmon de nos structures dopées. Par conséquent, il était nécessaire d'incorporer cette dispersion dans nos simulations. D'autre part, il nous a fallu modifier la constante diélectrique du silicium intrinsèque pour traduire la présence et le comportement des porteurs libres introduits par le dopage. Il s'avère qu'un simple modèle de Drude-Lorentz permet de retranscrire convenablement la réponse optique d'une nanostructure en silicium dopé. Comme attendu, et montré dans le chapitre 3, le dopage joue un rôle non négligeable, au même titre que la forme, sur la réponse optique d'une nanostructure. De plus, notre approche numérique, basée sur une discrétisation volumique, nous a permis d'observer que la distribution de dopants influence la qualité de la résonance plasmon.

Afin d'aller plus loin et pouvoir simuler une métasurface dans son ensemble, nous avons élaboré dans le chapitre 2 un formalisme qui repose sur une approximation dipolaire. Nous supposons que nous pouvons associer à une structure, petite par rapport à la longueur d'onde, une polarisabilité effective qui contient l'information sur la réponse optique de la géométrie. Cette grandeur, qui est un tenseur dyadique 3×3, nous permet d'approximer une structure de forme complexe par un dipôle unique. Ainsi, nous sommes capables de coupler les objets d'une métasurface et de simuler la réponse optique d'un système dans sa globalité.

Dans le chapitre 4, nous avons démontré expérimentalement la résonance plasmon dans des métasurfaces constituées de nanostructures de Si dopé. Nous avons mis en évidence la possibilité d'accorder la résonance plasmonique via le taux de dopage. Nous avons atteint des taux parmi les meilleurs répertoriés dans la littérature pour du silicium massif, donnant lieu à des plasmons de surface localisés dans le proche infrarouge (2-5 µm). Cette résonance plasmonique de surface dans nos nano-cylindres permet d'accroître l'interaction avec la lumière infrarouge. A la résonance, notre métasurface peut réduire la transmission jusqu'à 10% de la lumière incidente. Nos simulations sur l'objet unique et sur la métasurface dans son ensemble, nous ont permis d'identifier des effets collectifs au sein de la métasurface. Grâce à cette étude, nous avons trouvé que l'absorbance de la métasurface est liée aux propriétés plasmoniques de l'objet unique, alors que la réflectance est liée aux interférences constructives de la lumière diffusée par les nanostructures.

La dernière partie a été consacrée au développement d'une approche de Deep Learning, couplée à un modèle de polarisabilités habillées, pour prédire le couplage optique entre les

objets d'une métasurface. L'étude préliminaire, réalisée dans le chapitre 5 sur des structures d'or, nous a permis de calculer la distribution de champ proche pour des assemblées d'objets qui ne peuvent être simulées avec la GDM classique. De plus, nous avons adapté ce modèle pour simuler des métasurfaces apériodiques de cuboïdes de silicium fortement dopé afin d'extraire l'indice optique effectif d'une métasurface désordonnée.

De par leur forte absorption, les nanostructures de silicium dopé peuvent être envisagées pour de la thermoplasmonique dans la gamme spectrale de l'infrarouge [275]. De plus, les méthodes numériques actuelles, telles que le Deep Learning, couplées à des puissances de calculs qui ne cessent de croître, offrent de grandes opportunités pour la recherche, notamment en terme d'optimisation de systèmes physiques. Tout cela laisse entrevoir des possibilités de fabrication de dispositifs plasmoniques, à base de silicium dopé, dans les années à venir.

Annexe A

Illumination d'une couche mince par une onde plane

Lorsqu'une onde lumineuse change de milieu de propagation, une partie du rayonnement traverse l'interface et se propage avec une direction différente de l'onde incidente. On parle de rayon réfracté par la surface. D'autre part, une partie du rayonnement est réfléchie et se propage dans le milieu d'origine. Nous considérons une interface plane dans le plan xOy, séparant deux milieux d'indice n_1 et n_2, et une onde plane se propageant dans le milieu d'indice n_1 selon la direction $\mathbf{k}_{\text{i,1}}$, faisant un angle θ_1 avec l'axe z. L'onde est polarisée de sorte à ce que son champ électrique $\mathbf{E}_{\text{i,1}}$ soit inclus dans le plan d'incidence xOz (cf. Fig. A.1a). D'après la loi de Snell-Descartes, le rayon réfracté se propage dans le milieu d'indice n_2 selon la direction $\mathbf{k}_{\text{t,2}}$ faisant un angle θ_2 avec la normale à l'interface, tel que $n_1 \sin\theta_1 = n_2 \sin\theta_2$. Le rayon réfléchi, quant à lui, a un vecteur d'onde $\mathbf{k}_{\text{r,1}}$ dont l'angle par rapport à la normale vaut $-\theta_1$.
La loi de Snell-Descartes impose que la composante parallèle de ces trois vecteurs d'onde soit identique

$$\mathbf{k}_{\text{i,1x}} = \mathbf{k}_{\text{r,1x}} = \mathbf{k}_{\text{t,2x}} = n_1 k_0 \sin\theta_1 \tag{A.1}$$

où k_0 est le vecteur d'onde dans le vide et $\mathbf{k}_{\text{i,1}} = (n_1 k_0 \sin\theta_1,\ 0,\ n_1 k_0 \cos\theta_1)$. Connaissant le vecteur $\mathbf{k}_{\text{i,1}}$, nous pouvons établir les composantes selon z des trois vecteurs d'onde en utilisant la définition de la norme

$$\begin{aligned} k_{j,m} &= \sqrt{k_{j,mx}^2 + k_{j,mz}^2} \\ &= \sqrt{n_m^2 k_0^2 \sin^2\theta_m + n_m^2 k_0^2 \cos^2\theta_m} \\ &= n_m^2 k_0^2 \end{aligned} \tag{A.2}$$

où $j =$ i,r ou t et $m = 1, 2$.
En utilisant les équations (A.1) et (A.2), nous déduisons les expressions des vecteurs $\mathbf{k}_{\text{r,1}}$ et $\mathbf{k}_{\text{t,2}}$

$$\begin{aligned} \mathbf{k}_{\text{r,1}} &= (n_1 k_0 \sin\theta_1,\ 0,\ -n_1 k_0 \cos\theta_1) \\ \mathbf{k}_{\text{t,2}} &= (n_1 k_0 \sin\theta_1,\ 0,\ k_0(\epsilon_2 - \epsilon_1 \sin^2\theta_1)^{\frac{1}{2}})\,. \end{aligned} \tag{A.3}$$

Dans le cas d'une couche mince d'épaisseur d selon la direction Oz, comprise entre deux milieux semi-infinis (cf. Fig. A.1b), nous appliquons exactement le même raisonnement. En effet, la continuité de la composante parallèle des différents vecteurs d'onde doit être respectée à chacune des interfaces. Concrètement, il nous suffit de définir deux nouveaux vecteurs d'onde, décrivant respectivement la réflexion et la transmission à l'interface en z_{u}

$$\begin{aligned} \mathbf{k}_{\text{r,2}} &= (n_1 k_0 \sin\theta_1,\ 0,\ -k_0(\epsilon_2 - \epsilon_1 \sin^2\theta_1)^{\frac{1}{2}}) \\ \mathbf{k}_{\text{t,3}} &= (n_1 k_0 \sin\theta_1,\ 0,\ k_0(\epsilon_3 - \epsilon_1 \sin^2\theta_1)^{\frac{1}{2}}) \end{aligned} \tag{A.4}$$

En s'intéressant aux vecteurs d'onde, nous avons regardé les propriétés cinématiques des ondes (relations entre les angles d'incidence, de réfraction et de réflexion). Cependant, il nous manque de l'information sur le comportement de la lumière à l'interface. En effet, nous ne savons pas comment l'intensité et la phase sont modifiées lorsque l'onde traverse l'interface ou lorsqu'elle est réfléchie. C'est ce que l'on appelle les propriétés dynamiques de l'onde, qui se traduisent par les conditions aux limites à l'interface.

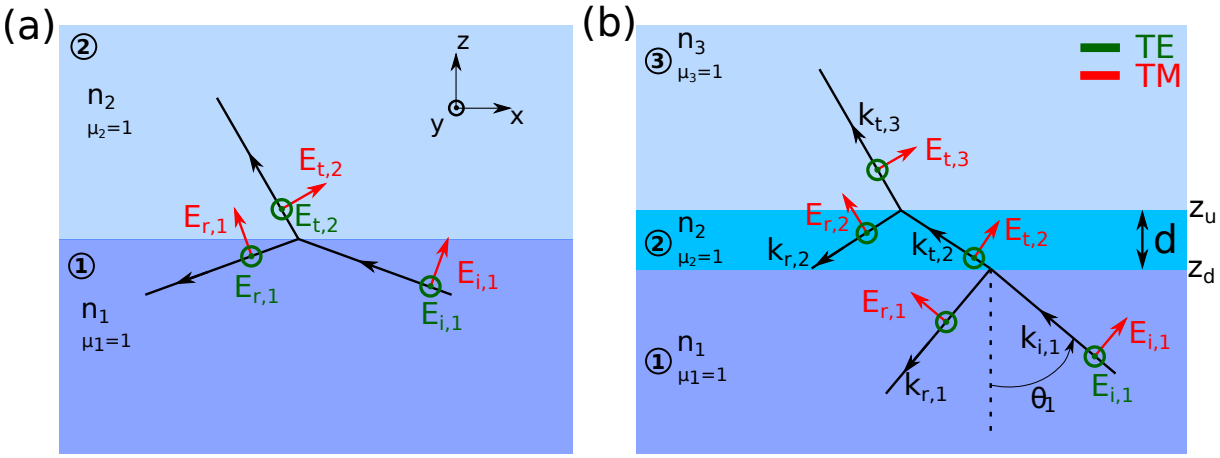

FIGURE A.1 – Réflexion et réfraction d'une onde polarisée transverse électrique TE (en vert) et d'une onde polarisée transverse magnétique TM (en rouge). (a) Configuration avec une seule interface séparant deux milieux diélectriques infinis selon Ox et Oy et semi-infinis selon la direction Oz. (b) Configuration avec une couche mince d'épaisseur d séparant deux milieux diélectriques semi-infinis selon l'axe Oz. L'onde plane incidente se propage des z négatifs vers les z positifs en faisant un angle θ_1 avec la normale.

A.1 Conditions aux limites

Les conditions aux limites sont au nombre de quatre : la continuité des composantes normales de $\mathbf{D}$ et de $\mathbf{B}$ et celle des composantes tangentielles de $\mathbf{E}$ et de $\mathbf{H}$. Pour une seule interface entre deux milieux non magnétiques, $\mu_1 = \mu_2 = 1$, cela se traduit par

$$[\epsilon_1(\mathbf{E}_{i,1} + \mathbf{E}_{r,1}) - \epsilon_2\mathbf{E}_{t,2}] \cdot \mathbf{n} = 0 \tag{A.5a}$$

$$[\mathbf{k}_{i,1} \wedge \mathbf{E}_{i,1} + \mathbf{k}_{r,1} \wedge \mathbf{E}_{r,1} - \mathbf{k}_{t,2} \wedge \mathbf{E}_{t,2}] \cdot \mathbf{n} = 0 \tag{A.5b}$$

$$[\mathbf{E}_{i,1} + \mathbf{E}_{r,1} - \mathbf{E}_{t,2}] \wedge \mathbf{n} = \mathbf{0} \tag{A.5c}$$

$$[\mathbf{k}_{i,1} \wedge \mathbf{E}_{i,1} + \mathbf{k}_{r,1} \wedge \mathbf{E}_{r,1} - \mathbf{k}_{t,2} \wedge \mathbf{E}_{t,2}] \wedge \mathbf{n} = \mathbf{0} \tag{A.5d}$$

où $\mathbf{n}$ représente la normale à l'interface et $\mathbf{E}_{i,1}$, $\mathbf{E}_{r,1}$ et $\mathbf{E}_{t,2}$ sont respectivement les champs électriques incident, réfléchi et réfracté à l'interface.
Comme mentionné plus haut, la situation qui nous intéresse est celle où deux interfaces planes espacées d'une distance d séparent trois milieux purement diélectriques de constante diélectrique $\epsilon_1 \neq \epsilon_2 \neq \epsilon_3$ (cf. Fig. A.1b). Nous supposerons l'onde incidente comme étant plane, c'est-à-dire de la forme

$$\mathcal{E}_{i,1}(\mathbf{r}, \omega) = \mathbf{E}_{i,1} e^{-i\omega t} e^{i\mathbf{k}_{i,1}\cdot\mathbf{r}}. \tag{A.6}$$

Lorsque l'onde rencontre les interfaces, sa nature n'est pas modifiée, c'est-à-dire que les ondes réfléchies et transmises seront également planes et seules les intensités et les phases seront affectées. Maintenant que nous connaissons tous les vecteurs d'ondes du problème, nous voulons établir les amplitudes des différents champs réfractés et réfléchis. Dans la suite, pour des soucis de lisibilité, nous ne tiendrons pas compte de la dépendance temporelle, par conséquent nous prendrons t=0. Nous traiterons les cas simples d'ondes polarisées linéairement *p* (champ électrique compris dans le plan d'incidence, aussi appelé polarisation TM) ou *s* (champ électrique perpendiculaire au plan d'incidence, polarisation TE).

Le cas à une seule interface est traité dans de nombreux ouvrages [43], nous nous intéresserons ici au problème à trois milieux. La démarche est identique sauf qu'il faut appliquer les conditions aux limites (A.5) pour chacune des interfaces. Cela conduit à résoudre un problème à quatre inconnues au lieu de deux.

A.1.1 Solution pour une couche mince d'épaisseur *d* illuminée par-dessous

Dans un premier temps, nous nous plaçons dans le cas d'un éclairage par dessous avec une onde polarisée *s* ($\mathbf{E}_{\mathrm{i},1} = E_{\mathrm{i},1}\mathbf{e}_{\mathrm{y}}$), illuminant deux interfaces positionnées en z_{u} et z_{d} espacées d'une distance $d = z_{\mathrm{u}} - z_{\mathrm{d}}$. Dans nos calculs, l'éclairage par le bas correspond à des angles d'illumination $\theta_1 \in [0, \frac{\pi}{2}[\cup]\frac{3\pi}{2}, 2\pi]$. Par analogie, dans la section A.1.2 nous traiterons une illumination descendante. Les conditions aux limites (A.5c) et (A.5d) conduisent, pour l'interface entre le milieu 1 et le milieu 2, aux deux équations

$$\begin{aligned} E_{\mathrm{i},1}e^{\mathrm{i}k_{\mathrm{i},1\mathrm{z}}z_{\mathrm{d}}} + E_{\mathrm{r},1}e^{\mathrm{i}k_{\mathrm{r},1\mathrm{z}}z_{\mathrm{d}}} &= E_{\mathrm{t},2}e^{\mathrm{i}k_{\mathrm{t},2\mathrm{z}}z_{\mathrm{d}}} + E_{\mathrm{r},2}e^{\mathrm{i}k_{\mathrm{r},2\mathrm{z}}z_{\mathrm{d}}} \\ E_{\mathrm{i},1}k_{\mathrm{i},1\mathrm{z}}e^{\mathrm{i}k_{\mathrm{i},1\mathrm{z}}z_{\mathrm{d}}} + E_{\mathrm{r},1}k_{\mathrm{r},1\mathrm{z}}e^{\mathrm{i}k_{\mathrm{r},1\mathrm{z}}z_{\mathrm{d}}} &= E_{\mathrm{t},2}k_{\mathrm{t},2\mathrm{z}}e^{\mathrm{i}k_{\mathrm{t},2\mathrm{z}}z_{\mathrm{d}}} + E_{\mathrm{r},2}k_{\mathrm{r},2\mathrm{z}}e^{\mathrm{i}k_{\mathrm{r},2\mathrm{z}}z_{\mathrm{d}}} \end{aligned}, \tag{A.7}$$

et pour la seconde interface, nous obtenons

$$\begin{aligned} E_{\mathrm{t},2}e^{\mathrm{i}k_{\mathrm{t},2\mathrm{z}}z_{\mathrm{u}}} + E_{\mathrm{r},2}e^{\mathrm{i}k_{\mathrm{r},2\mathrm{z}}z_{\mathrm{u}}} &= E_{\mathrm{t},3}e^{\mathrm{i}k_{\mathrm{t},3\mathrm{z}}z_{\mathrm{u}}} \\ E_{\mathrm{t},2}k_{\mathrm{t},2\mathrm{z}}e^{\mathrm{i}k_{\mathrm{t},2\mathrm{z}}z_{\mathrm{u}}} + E_{\mathrm{r},2}k_{\mathrm{r},2\mathrm{z}}e^{\mathrm{i}k_{\mathrm{r},2\mathrm{z}}z_{\mathrm{u}}} &= E_{\mathrm{t},3}k_{\mathrm{t},3\mathrm{z}}e^{\mathrm{i}k_{\mathrm{t},3\mathrm{z}}z_{\mathrm{u}}} \end{aligned}. \tag{A.8}$$

Ces conditions doivent être respectées en tout point de l'interface. Par conséquent, pour des raisons de symétries (plans infinis dans les directions Ox et Oy), les dépendances en x et en y disparaissent des équations.

D'après les équations (A.3) et (A.4) et la définition de $\mathbf{k}_{\mathrm{i},1}$, nous déduisons $k_{\mathrm{i},1\mathrm{z}} = -k_{\mathrm{r},1\mathrm{z}}$ et $k_{\mathrm{t},2\mathrm{z}} = -k_{\mathrm{r},2\mathrm{z}}$. Pour simplifier les notations, on pose $k_{\mathrm{i},1\mathrm{z}} = -k_{\mathrm{r},1\mathrm{z}} = k_{1\mathrm{z}}$, $k_{\mathrm{t},2\mathrm{z}} = -k_{\mathrm{r},2\mathrm{z}} = k_{2\mathrm{z}}$ et $k_{\mathrm{t},3\mathrm{z}} = k_{3\mathrm{z}}$. Puis, nous appliquons les changements de variables suivants

$$\begin{aligned} \alpha_1 &= k_{1\mathrm{z}}z_{\mathrm{d}} \quad \alpha_2 = k_{2\mathrm{z}}z_{\mathrm{d}} \\ \alpha'_2 &= k_{2\mathrm{z}}z_{\mathrm{u}} \quad \alpha'_3 = k_{3\mathrm{z}}z_{\mathrm{u}} \end{aligned} \tag{A.9}$$

En injectant ces expressions dans les termes de phase des équations (A.7) et (A.8), le système d'équations s'écrit

$$\begin{aligned} E_{\mathrm{i},1}e^{\mathrm{i}\alpha_1} + E_{\mathrm{r},1}e^{-\mathrm{i}\alpha_1} &= E_{\mathrm{t},2}e^{\mathrm{i}\alpha_2} + E_{\mathrm{r},2}e^{-\mathrm{i}\alpha_2} \\ E_{\mathrm{i},1}k_{1\mathrm{z}}e^{\mathrm{i}\alpha_1} - E_{\mathrm{r},1}k_{1\mathrm{z}}e^{-\mathrm{i}\alpha_1} &= E_{\mathrm{t},2}k_{2\mathrm{z}}e^{\mathrm{i}\alpha_2} - E_{\mathrm{r},2}k_{2\mathrm{z}}e^{-\mathrm{i}\alpha_2} \\ E_{\mathrm{t},2}e^{\mathrm{i}\alpha'_2} + E_{\mathrm{r},2}e^{-\mathrm{i}\alpha'_2} &= E_{\mathrm{t},3}e^{\mathrm{i}\alpha'_3} \\ E_{\mathrm{t},2}k_{2\mathrm{z}}e^{\mathrm{i}\alpha'_2} - E_{\mathrm{r},2}k_{2\mathrm{z}}e^{-\mathrm{i}\alpha'_2} &= E_{\mathrm{t},3}k_{3\mathrm{z}}e^{\mathrm{i}\alpha'_3} \end{aligned} \tag{A.10}$$

Les inconnues de ce système sont les amplitudes des différents champs, que nous chercherons à exprimer en fonction du champ d'illumination $\mathbf{E}_{\mathrm{i},1}$. Nous isolons le champ d'illumination des autres termes et écrivons ce système sous forme matricielle

$$\begin{pmatrix} -e^{-\mathrm{i}\alpha_1} & e^{\mathrm{i}\alpha_2} & e^{-\mathrm{i}\alpha_2} & 0 \\ k_{1\mathrm{z}}e^{-\mathrm{i}\alpha_1} & k_{2\mathrm{z}}e^{\mathrm{i}\alpha_2} & -k_{2\mathrm{z}}e^{-\mathrm{i}\alpha_2} & 0 \\ 0 & -e^{\mathrm{i}\alpha'_2} & -e^{-\mathrm{i}\alpha'_2} & e^{\mathrm{i}\alpha'_3} \\ 0 & -k_{2\mathrm{z}}e^{\mathrm{i}\alpha'_2} & k_{2\mathrm{z}}e^{-\mathrm{i}\alpha'_2} & k_{3\mathrm{z}}e^{\mathrm{i}\alpha'_3} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} E_{\mathrm{r},1} \\ E_{\mathrm{t},2} \\ E_{\mathrm{r},2} \\ E_{\mathrm{t},3} \end{pmatrix} = E_{\mathrm{i},1} \begin{pmatrix} e^{\mathrm{i}\alpha_1} \\ k_{1\mathrm{z}}e^{\mathrm{i}\alpha_1} \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} . \tag{A.11}$$

C'est un système de Cramer de la forme

$$\begin{pmatrix} a_{1,1} & a_{1,2} & \cdots & a_{1,n} \\ a_{2,1} & a_{2,2} & \cdots & a_{2,n} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ a_{n,1} & a_{n,2} & \cdots & a_{n,n} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} x_1 \\ x_2 \\ \vdots \\ x_n \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \lambda_1 \\ \lambda_2 \\ \vdots \\ \lambda_n \end{pmatrix} \Leftrightarrow A \cdot X = \Lambda, \tag{A.12}$$

où le vecteur colonne X regroupe autant d'inconnues qu'il y a d'équations.

Pour résoudre un tel système, nous utilisons la méthode de Cramer dont les solutions s'expriment d'après

$$x_i = \frac{\det(A_i)}{\det(A)} \quad \text{avec} \quad i = 1, \ldots, n. \tag{A.13}$$

où $\det$ est le déterminant et A_i est la matrice A dans laquelle on a remplacé la colonne i par le vecteur Λ. Pour utiliser cette méthode, il faut s'assurer que $\det(A) \neq 0$. Si nous appliquons la formule (A.13) au système (A.11), nous obtenons les valeurs suivantes des déterminants

$$\begin{aligned}
\Delta &= e^{\mathrm{i}\alpha'_3}e^{-\mathrm{i}\alpha_1}\left\{e^{\mathrm{i}(\alpha_2-\alpha'_2)}\left[k_{1\mathrm{z}}k_{2\mathrm{z}} + k_{1\mathrm{z}}k_{3\mathrm{z}} + k_{2\mathrm{z}}^2 + k_{2\mathrm{z}}k_{3\mathrm{z}}\right] + e^{\mathrm{i}(\alpha'_2-\alpha_2)}\left[k_{1\mathrm{z}}k_{2\mathrm{z}} - k_{1\mathrm{z}}k_{3\mathrm{z}} - k_{2\mathrm{z}}^2 + k_{2\mathrm{z}}k_{3\mathrm{z}}\right]\right\} \\
\Delta_{1\mathrm{r}} &= e^{\mathrm{i}\alpha'_3}e^{\mathrm{i}\alpha_1}\left\{e^{\mathrm{i}(\alpha_2-\alpha'_2)}\left[k_{1\mathrm{z}}k_{2\mathrm{z}} + k_{1\mathrm{z}}k_{3\mathrm{z}} - k_{2\mathrm{z}}^2 - k_{2\mathrm{z}}k_{3\mathrm{z}}\right] + e^{\mathrm{i}(\alpha'_2-\alpha_2)}\left[k_{1\mathrm{z}}k_{2\mathrm{z}} - k_{1\mathrm{z}}k_{3\mathrm{z}} + k_{2\mathrm{z}}^2 - k_{2\mathrm{z}}k_{3\mathrm{z}}\right]\right\} \\
\Delta_2 &= 2e^{\mathrm{i}\alpha'_3}e^{-\mathrm{i}\alpha'_2}(k_{1\mathrm{z}}k_{2\mathrm{z}} + k_{1\mathrm{z}}k_{3\mathrm{z}}) \\
\Delta_{2\mathrm{r}} &= 2e^{\mathrm{i}\alpha'_3}e^{\mathrm{i}\alpha'_2}(k_{1\mathrm{z}}k_{2\mathrm{z}} - k_{1\mathrm{z}}k_{3\mathrm{z}}) \\
\Delta_3 &= 4k_{1\mathrm{z}}k_{2\mathrm{z}}
\end{aligned} \tag{A.14}$$

Nous exprimons les amplitudes des différents champs à partir de ces déterminants

$$\begin{aligned}
E_{\mathrm{r},1} &= \frac{\Delta_{1\mathrm{r}}}{\Delta}E_{\mathrm{i},1} = r_1 E_{\mathrm{i},1} \\
E_{\mathrm{t},2} &= \frac{\Delta_2}{\Delta}E_{\mathrm{i},1} = t_1 E_{\mathrm{i},1} \\
E_{\mathrm{r},2} &= \frac{\Delta_{2\mathrm{r}}}{\Delta}E_{\mathrm{i},1} = r_2 E_{\mathrm{i},1} \\
E_{\mathrm{t},3} &= \frac{\Delta_3}{\Delta}E_{\mathrm{i},1} = t_2 E_{\mathrm{i},1}
\end{aligned} \tag{A.15}$$

ce qui nous permet de calculer les champs électriques $\mathbf{E}_1(\mathbf{r},\omega)$, $\mathbf{E}_2(\mathbf{r},\omega)$ et $\mathbf{E}_3(\mathbf{r},\omega)$ dans les trois environnements

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}_1(\mathbf{r},\omega) &= E_{\mathrm{i},1}(e^{\mathrm{i}\mathbf{k}_{\mathrm{i},1}\cdot\mathbf{r}} + r_1 e^{\mathrm{i}\mathbf{k}_{\mathrm{r},1}\cdot\mathbf{r}})e^{-\mathrm{i}\omega t} \\
\mathbf{E}_2(\mathbf{r},\omega) &= E_{\mathrm{i},1}(t_1 e^{\mathrm{i}\mathbf{k}_{\mathrm{t},2}\cdot\mathbf{r}} + r_2 e^{\mathrm{i}\mathbf{k}_{\mathrm{r},2}\cdot\mathbf{r}})e^{-\mathrm{i}\omega t}. \\
\mathbf{E}_3(\mathbf{r},\omega) &= E_{\mathrm{i},1}t_2 e^{\mathrm{i}\mathbf{k}_{\mathrm{t},3}\cdot\mathbf{r}}e^{-\mathrm{i}\omega t}
\end{aligned} \tag{A.16}$$

Les champs magnétiques associés sont calculés assez facilement en utilisant l'équation de Maxwell-Faraday dans l'espace de Fourier

$$\mathbf{H}_\beta(\mathbf{r},\omega) = \frac{\mathbf{k} \wedge \mathbf{E}_\beta(\mathbf{r},\omega)}{k_0}. \tag{A.17}$$

avec $\beta = 1$, 2 ou 3, étant l'indice représentant le milieu auquel on s'intéresse. Si maintenant on considère une onde polarisée p ($\mathbf{H}_{\mathrm{i},1} = H_{\mathrm{i},1}\mathbf{e}_\mathrm{y}$), nous traitons le problème exactement de la même façon sauf qu'ici, on s'assure de la continuité de la composante parallèle du champ magnétique. Les déterminants qui sont obtenus sont identiques à ceux de l'équation (A.14), à l'exception que dans les sommes il faut remplacer les termes $k_{\beta\mathrm{z}}$ par les fractions $\frac{k_{\beta\mathrm{z}}}{\epsilon_\beta}$. Hormis ce changement, les différents coefficients de réflexion et de transmission entre le champ magnétique incident $\mathbf{H}_{\mathrm{i},1}$ et les champs réfractés et transmis sont en tout point identiques à ceux définis dans l'équation (A.15). Puis, pareillement à l'équation (A.17), nous déduisons le champ électrique à partir du champ magnétique, mais en utilisant l'équation de Maxwell-Ampère

$$\mathbf{E}_\beta(\mathbf{r},\omega) = -\frac{\mathbf{k} \wedge \mathbf{H}_\beta(\mathbf{r},\omega)}{\epsilon_\beta k_0}. \tag{A.18}$$

A.1.2 Solution pour une couche mince d'épaisseur *d* illuminée par-dessus

Si maintenant la source lumineuse est localisée dans le milieu 3, la propagation se fait des z positifs vers les z négatifs et les champs réfléchis se situeront dans les milieux 3 et 2, alors que pour une illumination venant du bas les rayons étaient réfléchis dans les milieux 1 et 2. Dans le cas présent, afin de respecter une propagation du haut vers le bas, les différents vecteurs d'ondes sont de la forme

$$\begin{aligned}
\mathbf{k}_{\mathrm{i},3} &= (-n_3 k_0 \sin\theta_1,\ 0,\ n_3 k_0 \cos\theta_1)\\
\mathbf{k}_{\mathrm{r},3} &= (-n_3 k_0 \sin\theta_1,\ 0,\ -n_3 k_0 \cos\theta_1)\\
\mathbf{k}_{\mathrm{t},2} &= (-n_3 k_0 \sin\theta_1,\ 0,\ -k_0(\epsilon_2 - \epsilon_3 \sin^2\theta_1)^{\frac{1}{2}})\\
\mathbf{k}_{\mathrm{r},2} &= (-n_3 k_0 \sin\theta_1,\ 0,\ k_0(\epsilon_2 - \epsilon_3 \sin^2\theta_1)^{\frac{1}{2}})\\
\mathbf{k}_{\mathrm{t},1} &= (-n_3 k_0 \sin\theta_1,\ 0,\ -k_0(\epsilon_1 - \epsilon_3 \sin^2\theta_1)^{\frac{1}{2}})
\end{aligned} \tag{A.19}$$

avec l'angle d'incidence $\theta_1 \in]\frac{\pi}{2}, \frac{3\pi}{2}[$. L'incidence est normale descendante si $\theta_1 = \pi$.

Comme précédemment, nous simplifions les notations en remplaçant $k_{\mathrm{i},3\mathrm{z}} = -k_{\mathrm{r},3\mathrm{z}} = k_{3\mathrm{z}}$, $k_{\mathrm{t},2\mathrm{z}} = -k_{\mathrm{r},2\mathrm{z}} = k_{2\mathrm{z}}$ et $k_{\mathrm{t},1\mathrm{z}} = k_{1\mathrm{z}}$, puis nous appliquons les changements de variables

$$\begin{aligned}
\alpha_1 &= k_{1\mathrm{z}} z_\mathrm{d} \quad & \alpha_2 &= k_{2\mathrm{z}} z_\mathrm{d}\\
\alpha_2' &= k_{2\mathrm{z}} z_\mathrm{u} \quad & \alpha_3' &= k_{3\mathrm{z}} z_\mathrm{u}
\end{aligned} \tag{A.20}$$

En appliquant les conditions aux limites à chacune des interfaces, nous obtenons le système suivant à résoudre

$$\begin{pmatrix}
-e^{-\mathrm{i}\alpha_3'} & e^{\mathrm{i}\alpha_2'} & e^{-\mathrm{i}\alpha_2'} & 0\\
k_{3\mathrm{z}} e^{-\mathrm{i}\alpha_3'} & k_{2\mathrm{z}} e^{\mathrm{i}\alpha_2'} & -k_{2\mathrm{z}} e^{-\mathrm{i}\alpha_2'} & 0\\
0 & -e^{\mathrm{i}\alpha_2} & -e^{-\mathrm{i}\alpha_2} & e^{\mathrm{i}\alpha_1}\\
0 & -k_{2\mathrm{z}} e^{\mathrm{i}\alpha_2} & k_{2\mathrm{z}} e^{-\mathrm{i}\alpha_2} & k_{3\mathrm{z}} e^{\mathrm{i}\alpha_1}
\end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} E_{\mathrm{r},1}\\ E_{\mathrm{t},2}\\ E_{\mathrm{r},2}\\ E_{\mathrm{t},3} \end{pmatrix} = E_{\mathrm{i},3} \begin{pmatrix} e^{\mathrm{i}\alpha_3'}\\ k_{3\mathrm{z}} e^{\mathrm{i}\alpha_3'}\\ 0\\ 0 \end{pmatrix} \tag{A.21}$$

En comparant ce système avec celui défini en (A.11), nous déduisons assez facilement que la solution sera semblable. Plus précisément, il faut prendre l'équation (A.14) et remplacer dans les termes de phases α'_3 par α_1 et α_2 par α'_2, de plus il faut remplacer dans les sommes les termes k_{3z} par k_{1z}, et inversement. Ce qui revient à

$$
\begin{aligned}
\Delta &= e^{i\alpha_1}e^{-i\alpha'_3}\left\{e^{i(\alpha'_2-\alpha_2)}\left[k_{1z}k_{2z}+k_{1z}k_{3z}+k_{2z}^2+k_{2z}k_{3z}\right]+e^{i(\alpha_2-\alpha'_2)}\left[k_{3z}k_{2z}-k_{1z}k_{3z}-k_{2z}^2+k_{2z}k_{1z}\right]\right\}\\
\Delta_{3r} &= e^{i\alpha'_3}e^{i\alpha_1}\left\{e^{i(\alpha'_2-\alpha_2)}\left[k_{3z}k_{2z}+k_{1z}k_{3z}-k_{2z}^2-k_{2z}k_{1z}\right]+e^{i(\alpha_2-\alpha'_2)}\left[k_{3z}k_{2z}-k_{1z}k_{3z}+k_{2z}^2-k_{2z}k_{1z}\right]\right\}\\
\Delta_2 &= 2e^{i\alpha_1}e^{-i\alpha_2}(k_{3z}k_{2z}+k_{1z}k_{3z})\\
\Delta_{2r} &= 2e^{i\alpha_1}e^{i\alpha_2}(k_{3z}k_{2z}-k_{1z}k_{3z})\\
\Delta_1 &= 4k_{3z}k_{2z}
\end{aligned}
\tag{A.22}
$$

La détermination des différents champs électriques et magnétiques se réalise avec la même méthode utilisée pour une illumination par dessous (voir procédure de l'équation (A.15) jusqu'à la fin de la section A.1.1)).

Ce n'est pas développé ici mais le calcul peut être généralisé, de manière itérative, à un système multi-couches [74].

Annexe B

Calculs de quatre susceptibilités du champ électromagnétique en présence d'une interface plane

B.1 Représentation de Weyl des susceptibilités du champ

Dans la section B.4, nous voudrons déterminer les susceptibilités du champ associées à une interface plane entre deux milieux diélectriques. Pour cela, nous appliquerons les conditions aux limites sur les composantes parallèles des champs électrique et magnétique au niveau de l'interface. La forme cartésienne des susceptibilités introduites dans la section 1.1.3 est certes exacte mais très peu pratique pour notre problème de conditions aux limites. Pour se faciliter la tâche, nous développons la fonction de Green $G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ sur la base des ondes planes à l'aide de la représentation de Weyl. Dans ce cas, les susceptibilités $\mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ et $\mathbf{S}_0^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ s'écrivent :

$$\begin{aligned} \mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) &= \left[\frac{\nabla\nabla}{\epsilon_2} + k_0^2\mathbf{I}\right] \frac{e^{\mathrm{i}k_2|\mathbf{r}-\mathbf{r}_0|}}{|\,\mathbf{r}-\mathbf{r}_0\,|} \\ &= \left[\frac{\nabla\nabla}{\epsilon_2} + k_0^2\mathbf{I}\right] \frac{\mathrm{i}}{2\pi} \int \mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel \frac{e^{\mathrm{i}\mathbf{K}_2\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0)}}{K_{2,\mathrm{z}}} \end{aligned} \tag{B.1}$$

et

$$\mathbf{S}_0^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \left[\nabla\nabla + \epsilon_2 k_0^2\mathbf{I}\right] \frac{\mathrm{i}}{2\pi} \int \mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel \frac{e^{\mathrm{i}\mathbf{K}_2\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0)}}{K_{2,\mathrm{z}}} \tag{B.2}$$

avec $\mathbf{K}_2$ un vecteur tel que $\mathbf{K}_2 = (\mathbf{k}_\parallel, K_{2,\mathrm{z}})$ et $\mathbf{k}_\parallel = (u, v)$. Par conséquent

$$\mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \frac{\mathrm{i}}{2\pi} \int \mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel \left[\mathbf{I}k_0^2 - \frac{\mathbf{K}_2\mathbf{K}_2}{\epsilon_2}\right] \frac{e^{\mathrm{i}\mathbf{K}_2\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0)}}{K_{2,\mathrm{z}}} \tag{B.3}$$

et

$$\mathbf{S}_0^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \frac{\mathrm{i}}{2\pi} \int \mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel \left[\epsilon_2\mathbf{I}k_0^2 - \mathbf{K}_2\mathbf{K}_2\right] \frac{e^{\mathrm{i}\mathbf{K}_2\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0)}}{K_{2,\mathrm{z}}}. \tag{B.4}$$

Nous pouvons déduire de ces deux expressions (B.3) et (B.4) celles des susceptibilités mixtes $\mathbf{S}_0^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ et $\mathbf{S}_0^{\mathrm{EH}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$. En effet, à partir des relations de Maxwell dans l'espace de Fourier, sans terme de polarisation électrique et magnétique, nous déduisons une relation entre

les champs électrique et magnétique lorsque $\mu_2 = 1$:

$$\begin{aligned}\mathbf{H}(\mathbf{r},\omega) &= \frac{1}{\mathrm{i}k_0}\nabla\wedge\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega)\\ \mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) &= -\frac{1}{\mathrm{i}k_0\epsilon_2}\nabla\wedge\mathbf{H}(\mathbf{r},\omega)\end{aligned} \tag{B.5}$$

Si l'on considère le champ électrique $\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega)$ généré par un dipôle électrique $\mathbf{p}(\omega)$ uniquement, d'après (1.7) et (B.3), nous avons en représentation de Weyl

$$\begin{aligned}\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) &= \mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)\cdot\mathbf{p}(\omega)\\ &= \left\{\frac{\mathrm{i}}{2\pi}\int\frac{\mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel}{K_{2,\mathrm{z}}}\left[\mathbf{I}k_0^2-\frac{\mathbf{K_2}\mathbf{K_2}}{\epsilon_2}\right]e^{\mathrm{i}\mathbf{K_2}\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0)}\right\}\cdot\mathbf{p}(\omega).\end{aligned} \tag{B.6}$$

En utilisant l'équation (B.5), nous déduisons le champ magnétique produit par ce même dipôle électrique

$$\begin{aligned}\mathbf{H}(\mathbf{r},\omega) &= \left\{\frac{\mathrm{i}}{2\pi k_0}\int\frac{\mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel}{K_{2,\mathrm{z}}}\mathbf{K_2}\wedge\left[\mathbf{I}k_0^2-\frac{\mathbf{K_2}\mathbf{K_2}}{\epsilon_2}\right]e^{\mathrm{i}\mathbf{K_2}\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0)}\right\}\cdot\mathbf{p}(\omega)\\ &= \mathbf{S}_0^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)\cdot\mathbf{p}(\omega)\end{aligned} \tag{B.7}$$

En procédant de la même façon avec un dipôle magnétique $\mathbf{m}(\omega)$, nous obtenons

$$\begin{aligned}\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) &= -\left\{\frac{\mathrm{i}}{2\pi k_0}\int\frac{\mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel}{K_{2,\mathrm{z}}}\mathbf{K_2}\wedge\left[\mathbf{I}k_0^2-\frac{\mathbf{K_2}\mathbf{K_2}}{\epsilon_2}\right]e^{\mathrm{i}\mathbf{K_2}\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0)}\right\}\cdot\mathbf{m}(\omega)\\ &= \mathbf{S}_0^{\mathrm{EH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)\cdot\mathbf{m}(\omega)\\ &= -\mathbf{S}_0^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)\cdot\mathbf{m}(\omega)\end{aligned} \tag{B.8}$$

En synthèse de cette section, en représentation de Weyl, les quatre susceptibilités s'écrivent comme

$$\begin{aligned}\mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) &= \frac{\mathrm{i}}{2\pi}\int\frac{\mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel}{K_{2,\mathrm{z}}}\left[\mathbf{I}k_0^2-\frac{\mathbf{K_2}\mathbf{K_2}}{\epsilon_2}\right]e^{\mathrm{i}\mathbf{K_2}\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0)}\\ \mathbf{S}_0^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) &= \frac{\mathrm{i}}{2\pi k_0}\int\frac{\mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel}{K_{2,\mathrm{z}}}\mathbf{K_2}\wedge\left[\mathbf{I}k_0^2-\frac{\mathbf{K_2}\mathbf{K_2}}{\epsilon_2}\right]e^{\mathrm{i}\mathbf{K_2}\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0)}\\ \mathbf{S}_0^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) &= \frac{\mathrm{i}}{2\pi}\int\frac{\mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel}{K_{2,\mathrm{z}}}\left[\epsilon_2\mathbf{I}k_0^2-\mathbf{K_2}\mathbf{K_2}\right]e^{\mathrm{i}\mathbf{K_2}\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0)} = \epsilon_2\mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)\\ \mathbf{S}_0^{\mathrm{EH}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) &= -\frac{\mathrm{i}}{2\pi k_0}\int\frac{\mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel}{K_{2,\mathrm{z}}}\mathbf{K_2}\wedge\left[\mathbf{I}k_0^2-\frac{\mathbf{K_2}\mathbf{K_2}}{\epsilon_2}\right]e^{\mathrm{i}\mathbf{K_2}\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}_0)} = -\mathbf{S}_0^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)\end{aligned} \tag{B.9}$$

B.2 Formes non-retardées et limite électrostatique

Lorsque l'on est dans la zone de champ proche, la distance du point d'observation au dipôle est petite devant la longueur d'onde d'illumination, ce qui fait disparaître les effets de retard. Cela revient à se placer dans la limite électrostatique ($c \longrightarrow \infty$). Dans ce cas, le vecteur d'onde

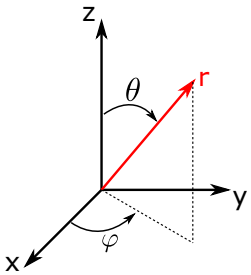

FIGURE B.1 – Représentation du point d'observation en coordonnées sphériques (r, θ, φ).

dans le vide $k_0 = \dfrac{\omega}{c} \longrightarrow 0$. Pour les susceptibilités directes $\mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ et $\mathbf{S}_0^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$, le terme $\mathbf{T}_3(\mathbf{R})$ décrit le champ proche, donc d'après (1.16a) et (1.16b)

$$\begin{aligned} \mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}^{\mathrm{stat}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) &= \frac{\mathbf{T}_3(\mathbf{R})}{\epsilon_2} \\ \mathbf{S}_0^{\mathrm{HH}^{\mathrm{stat}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) &= \mathbf{T}_3(\mathbf{R}) \end{aligned} \tag{B.10}$$

Pour les susceptibilités mixtes, les formes (1.15b) et (1.15d) s'écrivent comme k_0 fois un terme. De ce fait, en limite électrostatique (lorsque $k_0 \longrightarrow 0$), nous avons

$$\begin{aligned} \mathbf{S}_0^{\mathrm{HE}^{\mathrm{stat}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) &= 0 \\ \mathbf{S}_0^{\mathrm{EH}^{\mathrm{stat}}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) &= 0 \end{aligned} \tag{B.11}$$

B.3 Formes asymptotiques retardées

A contrario, si $\mathbf{r}$ devient très grand devant la longueur d'onde, la susceptibilité $\mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ s'exprime uniquement en fonction du terme $\mathbf{T}_1(\mathbf{R})$ qui rayonne l'énergie du dipôle [276]. Lorsque $\mathbf{r} \gg \mathbf{r}_0$, nous faisons l'approximation $\mathbf{R} = \mathbf{r} - \mathbf{r}_0 \approx r - \mathbf{n}_r \cdot \mathbf{r}_0$ (ici $\mathbf{n}_r$ est le vecteur unitaire associé à $\mathbf{r} = r\mathbf{n}_r$). De plus, dans la matrice $\mathbf{T}_1(\mathbf{R})$, nous remplaçons les coordonnées cartésiennes (x, y, z) par les coordonnées sphériques (r, θ, ϕ) correspondantes (Fig. B.1), ce qui donne

$$\begin{aligned} &\mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}^{+\infty}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = -k_0^2 \mathbf{T}_1(\mathbf{R}) e^{\mathrm{i}k_2 R}, \\ &= k_0^2 \frac{e^{\mathrm{i}k_2 r}}{r} e^{-\mathrm{i}k_2 \mathbf{n}_r \cdot \mathbf{r}_0} \times \begin{bmatrix} 1 - \sin^2\theta\cos^2\varphi & -\sin^2\theta\cos\varphi\sin\varphi & -\cos\theta\sin\theta\cos\varphi \\ -\sin^2\theta\cos\varphi\sin\varphi & 1 - \sin^2\theta\sin^2\varphi & -\cos\theta\sin\theta\sin\varphi \\ -\cos\theta\sin\theta\cos\varphi & -\cos\theta\sin\theta\sin\varphi & \sin^2\theta \end{bmatrix}. \end{aligned} \tag{B.12}$$

Comme nous l'avons vu précédemment, $\mathbf{S}_0^{\mathrm{HH}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \epsilon_2 \mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$, cette expression étant valable même à grande distance, alors $\mathbf{S}_0^{\mathrm{HH}^{+\infty}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \epsilon_2 \mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}^{+\infty}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$. Pour la susceptibilité mixte $\mathbf{S}_0^{\mathrm{HE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$, nous cherchons à mettre son expression (B.9) sous une forme identique

à (B.12). Après calcul, nous obtenons

$$\mathbf{S}_0^{\mathrm{HE}^{+\infty}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) = n_2 k_0^2 \frac{e^{\mathrm{i}k_2 r}}{r} e^{-\mathrm{i}k_2 \mathbf{n}_r\cdot\mathbf{r}_0} \times \begin{bmatrix} 0 & \cos\theta & -\sin\theta\sin\varphi \\ -\cos\theta & 0 & \sin\theta\cos\varphi \\ \sin\theta\sin\varphi & -\sin\theta\cos\varphi & 0 \end{bmatrix} \tag{B.13}$$

$$= -\mathbf{S}_0^{\mathrm{EH}^{+\infty}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$$

B.4 Susceptibilité $\mathbf{S}^{\mathbf{EE}}$ du champ en présence d'une surface

Si maintenant le dipôle $\mathbf{p}(\omega)$ positionné en $\mathbf{r}_0 = (\mathbf{l}_0, z_0)$ est au voisinage d'une surface dans tout le demi-espace z<0 (cf. Fig. B.2), il faut modifier l'équation (B.6) afin de tenir compte de cette surface. Le champ électrique peut être déterminé en tout point $\mathbf{r}$ de l'espace en calculant les susceptibilités du champ associées à la surface. Cependant, ces susceptibilités font intervenir des fonctions de Bessel, qui sont très lourdes numériquement [48]. Néanmoins, des expressions analytiques de ces tenseurs existent lorsque l'on s'intéresse à une zone très proche de l'interface ou, a contrario, très lointaine. Pour la zone de champ proche, la réponse non-retardée de la surface à ce dipôle oscillant $\mathbf{p}(\omega)$ est calculée en se plaçant dans la limite électrostatique ou en utilisant la théorie des dipôles images [43]. Cette théorie dit que, pour que le champ électrique soit continu à travers l'interface, nous imaginons que la réponse de la surface est totalement décrite par un dipôle fictif $\mathbf{p}'(\omega)$ induit par $\mathbf{p}(\omega)$ (cf. Fig. B.2). Ce dipôle est positionné symétriquement par rapport à l'interface et les charges sont opposées au dipôle source $\mathbf{p}(\omega)$. Dans la zone de champ lointain, nous utilisons la méthode de calcul décrite par G. S. Agarwal en 1975 [31]. Il utilise la décomposition en onde plane des champs électrique et magnétique ainsi que les conditions aux limites des composantes tangentielles des champs à l'interface pour calculer, via une limite asymptotique, la forme retardée de la susceptibilité $\mathbf{S}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$ telle que

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},\omega) = \mathbf{S}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)\cdot\mathbf{p}(\omega). \tag{B.14}$$

B.4.1 Le champ électrique total transmis dans le milieu 1

Dans le demi-espace z<0, le champ électrique de réponse $\mathbf{E}^{(1)}(\mathbf{r},\omega)$ peut être écrit dans l'espace de Fourier afin d'étudier les conditions aux limites à l'interface :

$$\mathbf{E}^{(1)}(\mathbf{r},\omega) = \int \mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel \mathcal{E}^{(1)}(\mathbf{k}_\parallel) e^{\mathrm{i}\mathbf{K}_1'\cdot\mathbf{r}} \tag{B.15}$$

avec, d'après l'équation de Maxwell-Gauss, $\mathbf{K}_1'\cdot\mathcal{E}^{(1)}(\mathbf{k}_\parallel) = 0$ où $\mathbf{K}_1' = (u, v, -K_{1,\mathrm{z}}) = (\mathbf{k}_\parallel, -K_{1,\mathrm{z}})$, $K_{1,\mathrm{z}}^2 = \epsilon_1 k_0^2 - k_\parallel^2$ et $\mathrm{Im}(K_{1,\mathrm{z}}) \geq 0$. Le champ $\mathcal{E}^{(1)}(\mathbf{k}_\parallel)$ est la composante, dans l'espace de Fourier, du champ électrique dans le milieu 1. En utilisant l'équation de Maxwell-Faraday, on obtient le champ magnétique dans le milieu 1

$$\begin{aligned} \mathbf{B}^{(1)}(\mathbf{r},\omega) &= \frac{1}{\mathrm{i}k_0}\nabla\wedge\mathbf{E}^{(1)}(\mathbf{r},\omega) \\ &= \int \frac{\mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel}{k_0}\mathbf{K}_1'\wedge\mathcal{E}^{(1)}(\mathbf{k}_\parallel)e^{\mathrm{i}\mathbf{K}_1'\cdot\mathbf{r}} \end{aligned} \tag{B.16}$$

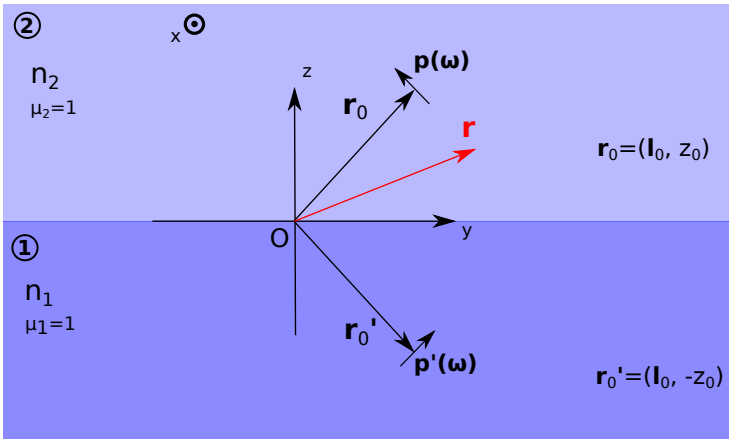

FIGURE B.2 – Représentation schématique d'un dipôle électrique oscillant $\mathbf{p}(\omega)$ situé en $\mathbf{r}_0 = (\mathbf{l}_0, z_0)$ dans un environnement d'indice n_2 en présence d'une surface de constante diélectrique $\epsilon_1 = n_1^2$. La perméabilité magnétique est partout supposée égale à l'unité ($\mu_1 = \mu_2 = 1$). Le dipôle $\mathbf{p}'(\omega)$ positionné en $\mathbf{r}'_0 = (\mathbf{l}_0, -z_0)$ est le dipôle image associé au dipôle $\mathbf{p}(\omega)$.

B.4.2 Le champ électrique total transmis dans le milieu 2

De la même manière, pour le demi-espace supérieur, il est possible d'écrire les champs électrique et magnétique en fonction de la composante de Fourier $\mathcal{E}^{(2)}(\mathbf{k}_\parallel)$ du champ électrique $\mathbf{E}^{(2)}(\mathbf{r}, \omega)$. Le champ électrique est donné par

$$\begin{aligned} &\mathbf{E}^{(2)}(\mathbf{r}, \omega) = \int \mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel \mathcal{E}^{(2)}(\mathbf{k}_\parallel) e^{\mathrm{i}\mathbf{K}_2 \cdot \mathbf{r}} + \mathbf{E}_\mathrm{p}(\mathbf{r}, \omega), \\ &\mathbf{K}_2 \cdot \mathcal{E}^{(2)}(\mathbf{k}_\parallel) = 0, \ \mathbf{K}_2 = (\mathbf{k}_\parallel, K_{2,\mathrm{z}}), \ K_{2,\mathrm{z}}^2 = \epsilon_2 k_0^2 - k_\parallel^2, \ \mathrm{Im}(K_{2,\mathrm{z}}) \geq 0. \end{aligned} \tag{B.17}$$

Dans cette dernière équation, $\mathbf{E}_\mathrm{p}(\mathbf{r}, \omega)$ représente le champ dipolaire dans le milieu d'indice n_2 (cf. Eq. (B.6))

$$\mathbf{E}_\mathrm{p}(\mathbf{r}, \omega) = \mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) \cdot \mathbf{p}(\omega). \tag{B.18}$$

Afin de poursuivre le calcul, il faut décomposer le champ $\mathbf{E}_\mathrm{p}(\mathbf{r}, \omega)$ sur la base des ondes planes. Pour cela, on introduit la représentation de Weyl de la susceptibilité du champ dans un milieu d'indice n_2 (Eq. B.3)

$$\begin{aligned} &\mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \frac{\mathrm{i}}{2\pi} \int \frac{\mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel}{K_{2,\mathrm{z}}} \left[\mathbf{I} k_0^2 - \frac{\mathbf{K}'_2 \mathbf{K}'_2}{\epsilon_2} \right] e^{\mathrm{i}\mathbf{K}'_2 \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)}, \ \mathbf{K}'_2 = (\mathbf{k}_\parallel, K_{2,\mathrm{z}} \, \mathrm{signe}(z - z_0)), \\ &\text{et } \mathbf{E}_\mathrm{p}(\mathbf{r}, \omega) = \frac{\mathrm{i}}{2\pi} \int \frac{\mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel}{\epsilon_2 K_{2,\mathrm{z}}} \left[-\mathbf{K}'_2 \wedge (\mathbf{K}'_2 \wedge \mathbf{p}(\omega)) \right] e^{\mathrm{i}\mathbf{K}'_2 \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)}. \end{aligned} \tag{B.19}$$

Comme pour le milieu 1, on utilise l'équation de Maxwell-Faraday pour obtenir le champ magnétique

$$\mathbf{B}^{(2)}(\mathbf{r}, \omega) = \int \frac{\mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel}{k_0} \mathbf{K}_2 \wedge \mathcal{E}^{(2)}(\mathbf{k}_\parallel) e^{\mathrm{i}\mathbf{K}_2 \cdot \mathbf{r}} + \frac{\mathrm{i}k_0}{2\pi} \int \frac{\mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel}{K_{2,\mathrm{z}}} \mathbf{K}'_2 \wedge \mathbf{p}(\omega) e^{\mathrm{i}\mathbf{K}'_2 \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)}. \tag{B.20}$$

B.4.3 Conditions aux limites

Afin de déterminer les amplitudes des champs électrique et magnétique dans le milieu 2, nous appliquons les conditions aux limites à l'interface $z = 0$. La continuité de la composante parallèle du champ électrique et du champ magnétique (milieux non magnétiques) s'écrit

$$\mathcal{E}_{\parallel}^{(1)} = \mathcal{E}_{\parallel}^{(2)} - \frac{\nu(\mathbf{r}_0)}{\epsilon_2} \left[\mathbf{K}_2' \wedge (\mathbf{K}_2' \wedge \mathbf{p}(\omega))\right]_{\parallel}, \text{ et} \tag{B.21a}$$

$$\mathbf{K}_1' \wedge \mathcal{E}^{(1)} = \mathbf{K}_2 \wedge \mathcal{E}^{(2)} + \nu(\mathbf{r}_0) k_0^2 \mathbf{K}_2' \wedge \mathbf{p}(\omega) \tag{B.21b}$$

avec $\nu(\mathbf{r}_0) = \dfrac{\mathrm{i}}{2\pi K_{2,\mathrm{z}}} e^{\mathrm{i}\mathbf{K}_2' \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)}$. Pour une meilleure lisibilité, la dépendance en $(\mathbf{k}_{\parallel})$ des termes $\mathcal{E}^{(1)}$ et $\mathcal{E}^{(2)}$ a été omise.
Maintenant, nous allons projeter l'équation (B.21b) dans le plan (xOy). Pour y parvenir, on multiplie cette équation par $\mathbf{K}_1' \wedge$ et on applique l'identité du double produit vectoriel, sachant que $\mathbf{K}_1' \cdot \mathcal{E}^{(1)} = 0$. Par conséquent, on obtient

$$\epsilon_1 k_0^2 \mathcal{E}^{(1)} = (\mathbf{K}_1' \cdot \mathbf{K}_2)\mathcal{E}^{(2)} - (\mathbf{K}_1' \cdot \mathcal{E}^{(2)})\mathbf{K}_2 - \nu(\mathbf{r}_0) k_0^2 \left[\mathbf{K}_1' \wedge (\mathbf{K}_2' \wedge \mathbf{p}(\omega))\right] \tag{B.22}$$

Afin de reformuler l'expression précédente, nous utilisons le fait que $\mathbf{K}_2 \cdot \mathcal{E}^{(2)} = 0$, ce qui permet d'écrire

$$\mathbf{K}_1' \cdot \mathcal{E}^{(2)} = u\mathcal{E}_x^{(2)} + v\mathcal{E}_y^{(2)} - K_{1,\mathrm{z}}\mathcal{E}_z^{(2)} = (\mathbf{k}_{\parallel} \cdot \mathcal{E}_{\parallel}^{(2)})(1 + \frac{K_{1,\mathrm{z}}}{K_{2,\mathrm{z}}}). \tag{B.23}$$

En introduisant cette expression dans (B.22) et en projetant dans le plan (xOy), nous obtenons

$$\epsilon_1 k_0^2 \mathcal{E}_{\parallel}^{(1)} = (\mathbf{K}_1' \cdot \mathbf{K}_2)\mathcal{E}_{\parallel}^{(2)} - (1 + \frac{K_{1,\mathrm{z}}}{K_{2,\mathrm{z}}})(\mathbf{k}_{\parallel} \cdot \mathcal{E}_{\parallel}^{(2)})\mathbf{k}_{\parallel} - \nu(\mathbf{r}_0) k_0^2 \left[\mathbf{K}_1' \wedge (\mathbf{K}_2' \wedge \mathbf{p}(\omega))\right]_{\parallel}. \tag{B.24}$$

B.4.4 Champ électrique au-dessus de la surface

On injecte (B.21a) dans l'équation (B.24) pour garder uniquement les termes en $\mathcal{E}_{\parallel}^{(2)}$

$$\begin{aligned} \left[\epsilon_1 k_0^2 - \mathbf{K}_1' \cdot \mathbf{K}_2\right]\mathcal{E}_{\parallel}^{(2)} + (1 + \frac{K_{1,\mathrm{z}}}{K_{2,\mathrm{z}}})(\mathbf{k}_{\parallel} \cdot \mathcal{E}_{\parallel}^{(2)})\mathbf{k}_{\parallel} = \\ \nu(\mathbf{r}_0) k_0^2 \left\{ \frac{\epsilon_1}{\epsilon_2} \left[\mathbf{K}_2' \wedge (\mathbf{K}_2' \wedge \mathbf{p}(\omega))\right]_{\parallel} - \left[\mathbf{K}_1' \wedge (\mathbf{K}_2' \wedge \mathbf{p}(\omega))\right]_{\parallel} \right\} \end{aligned} \tag{B.25}$$

En effectuant respectivement le produit scalaire et le produit vectoriel de la composante $\mathbf{k}_\parallel = (u, v, 0)$ avec l'équation (B.25), nous obtenons les deux équations suivantes :

$$\begin{aligned}\left[\epsilon_1 k_0^2 - \mathbf{K}_1' \cdot \mathbf{K}_2 + (1 + \frac{K_{1,\mathrm{z}}}{K_{2,\mathrm{z}}}) k_\parallel^2\right] \mathbf{k}_\parallel \cdot \mathcal{E}_\parallel^{(2)} = \\ \frac{\nu(\mathbf{r}_0) k_0^2}{\epsilon_2} (K_{1,\mathrm{z}}\epsilon_2 - K_{2,\mathrm{z}}\epsilon_1) \left\{K_{2,\mathrm{z}} \mathbf{k}_\parallel \cdot \mathbf{p}_\parallel(\omega) + k_\parallel^2 \mathbf{p}_z(\omega)\right\}\end{aligned} \tag{B.26a}$$

$$\left[\epsilon_1 k_0^2 - \mathbf{K}_1' \cdot \mathbf{K}_2\right] \mathbf{k}_\parallel \wedge \mathcal{E}_\parallel^{(2)} = \nu(\mathbf{r}_0) k_0^2 (k_\parallel^2 + K_{1,\mathrm{z}} K_{2,\mathrm{z}} - \epsilon_1 k_0^2) \mathbf{k}_\parallel \wedge \mathbf{p}_\parallel(\omega) \tag{B.26b}$$

Pour simplifier ce système d'équations, nous utilisons l'identité $k_\parallel^2 = \epsilon_2 k_0^2 - K_{2,\mathrm{z}}^2 = \epsilon_1 k_0^2 - K_{1,\mathrm{z}}^2$ qui permet d'écrire

$$k_0^2 = \frac{K_{1,\mathrm{z}}^2 - K_{2,\mathrm{z}}^2}{\epsilon_1 - \epsilon_2}, \text{ et } k_\parallel^2 + K_{1,\mathrm{z}} K_{2,\mathrm{z}} = \frac{(\epsilon_2 K_{1,\mathrm{z}} + \epsilon_1 K_{2,\mathrm{z}})(K_{1,\mathrm{z}} - K_{2,\mathrm{z}})}{\epsilon_1 - \epsilon_2} \tag{B.27}$$

De plus

$$\epsilon_1 k_0^2 - \mathbf{K}_1' \cdot \mathbf{K}_2 + k_\parallel^2 (1 + \frac{K_{1,\mathrm{z}}}{K_{2,\mathrm{z}}}) = (1 + \frac{K_{1,\mathrm{z}}}{K_{2,\mathrm{z}}})(k_\parallel^2 + K_{1,\mathrm{z}} K_{2,\mathrm{z}}), \tag{B.28}$$

ainsi, le système d'équations (B.26) se réduit à

$$\begin{aligned}\mathbf{k}_\parallel \cdot \mathcal{E}_\parallel^{(2)} &= \frac{\nu(\mathbf{r}_0) K_{2,\mathrm{z}}}{\epsilon_2} \Delta_\mathrm{p} \left\{K_{2,\mathrm{z}} \mathbf{k}_\parallel \cdot \mathbf{p}_\parallel(\omega) + k_\parallel^2 \mathbf{p}_z(\omega)\right\}, \\ \mathbf{k}_\parallel \wedge \mathcal{E}_\parallel^{(2)} &= -\nu(\mathbf{r}_0) k_0^2 \Delta_\mathrm{s} \mathbf{k}_\parallel \wedge \mathbf{p}_\parallel(\omega)\end{aligned} \tag{B.29}$$

avec

$$\Delta_\mathrm{p} = \frac{\epsilon_2 K_{1,\mathrm{z}} - \epsilon_1 K_{2,\mathrm{z}}}{\epsilon_2 K_{1,\mathrm{z}} + \epsilon_1 K_{2,\mathrm{z}}}, \text{ et } \Delta_\mathrm{s} = \frac{K_{1,\mathrm{z}} - K_{2,\mathrm{z}}}{K_{1,\mathrm{z}} + K_{2,\mathrm{z}}}. \tag{B.30}$$

Les vecteurs $k_\parallel = (u, v, 0)$ et $\mathcal{E}_\parallel^{(2)} = (\mathcal{E}_\mathrm{x}^{(2)}, \mathcal{E}_\mathrm{y}^{(2)}, 0)$ sont des vecteurs dont la composante selon z est nulle (inclus dans le plan xOy). Le produit scalaire est donc égal à $k_\parallel \cdot \mathcal{E}_\parallel^{(2)} = u\mathcal{E}_\mathrm{x}^{(2)} + v\mathcal{E}_\mathrm{y}^{(2)}$ et $\mathbf{k}_\parallel \wedge \mathcal{E}_\parallel^{(2)} = (0, 0, u\mathcal{E}_\mathrm{y}^{(2)} - v\mathcal{E}_\mathrm{x}^{(2)})$. Par abus de notation, nous associons à ce produit vectoriel la composante selon z du vecteur qui en résulte. Dans la suite, pour être plus rigoureux, nous noterons $\mathbf{k}_\parallel \wedge \mathcal{E}_\parallel^{(2)} = (\mathbf{k}_\parallel \wedge \mathcal{E}_\parallel^{(2)})_\mathrm{z}$.
Il est possible d'écrire les composantes du champ électrique au-dessus de la surface à l'aide de ces trois expressions

$$\begin{aligned}\mathcal{E}_\mathrm{x}^{(2)} &= \frac{u(\mathbf{k}_\parallel \cdot \mathcal{E}_\parallel^{(2)}) - v(\mathbf{k}_\parallel \wedge \mathcal{E}_\parallel^{(2)})_\mathrm{z}}{\mathbf{k}_\parallel^2} \\ \mathcal{E}_\mathrm{y}^{(2)} &= \frac{u(\mathbf{k}_\parallel \wedge \mathcal{E}_\parallel^{(2)})_\mathrm{z} + v(\mathbf{k}_\parallel \cdot \mathcal{E}_\parallel^{(2)})}{\mathbf{k}_\parallel^2} \\ \mathcal{E}_\mathrm{z}^{(2)} &= -\frac{1}{K_{2,\mathrm{z}}}(u\mathcal{E}_\mathrm{x}^{(2)} + v\mathcal{E}_\mathrm{y}^{(2)}).\end{aligned} \tag{B.31}$$

Au bout du compte, le champ électrique $\mathbf{E}^{(2)}(\mathbf{r}, \omega)$ créé par le dipôle électrique $\mathbf{p}(\omega)$ au-dessus de la surface s'écrit

$$\begin{aligned}\mathbf{E}^{(2)}(\mathbf{r}, \omega) &= \mathbf{S}^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) \cdot \mathbf{p}(\omega) \\ &= \left[\mathbf{S}_0^{\mathrm{EE}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) + \mathbf{S}_\mathrm{s}^{\mathrm{EE}^+}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)\right] \cdot \mathbf{p}(\omega).\end{aligned} \tag{B.32}$$

Pour remonter à l'expression de la contribution de la surface $\mathbf{S}_{\mathrm{s}}^{\mathrm{EE}^+}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$, pour $z>0$, nous développons le système d'équations (B.31) afin d'écrire les trois composantes du champ $\mathcal{E}^{(2)}$ en fonction des composantes du dipôle. En faisant cela, nous voyons que $\mathbf{S}_{\mathrm{s}}^{\mathrm{EE}^+}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)$ s'exprime comme

$$\mathbf{S}_{\mathrm{s}}^{\mathrm{EE}^+}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)=\frac{\mathrm{i}}{2\pi}\int \mathrm{d}\mathbf{k}_{\parallel}e^{\mathrm{i}[u(x-x_0)+v(y-y_0)+K_{2,\mathrm{z}}(z+z_0)]}\mathbf{N}_{\mathrm{E_s}}^{+}(\mathbf{k}_{\parallel}) \tag{B.33}$$

avec

$$\mathbf{N}_{\mathrm{E_s}}^{+}(\mathbf{k}_{\parallel})=\begin{bmatrix} \Delta_{\mathrm{p}}K_{2,\mathrm{z}}\dfrac{u^2}{k_{\parallel}^2\epsilon_2}-\Delta_{\mathrm{s}}\dfrac{k_0^2v^2}{K_{2,\mathrm{z}}k_{\parallel}^2} & \Delta_{\mathrm{p}}K_{2,\mathrm{z}}\dfrac{uv}{k_{\parallel}^2\epsilon_2}+\Delta_{\mathrm{s}}\dfrac{k_0^2uv}{K_{2,\mathrm{z}}k_{\parallel}^2} & \Delta_{\mathrm{p}}\dfrac{u}{\epsilon_2} \\ \Delta_{\mathrm{p}}K_{2,\mathrm{z}}\dfrac{uv}{k_{\parallel}^2\epsilon_2}+\Delta_{\mathrm{s}}\dfrac{k_0^2uv}{K_{2,\mathrm{z}}k_{\parallel}^2} & \Delta_{\mathrm{p}}K_{2,\mathrm{z}}\dfrac{v^2}{k_{\parallel}^2\epsilon_2}-\Delta_{\mathrm{s}}\dfrac{k_0^2u^2}{K_{2,\mathrm{z}}k_{\parallel}^2} & \Delta_{\mathrm{p}}\dfrac{v}{\epsilon_2} \\ -\Delta_{\mathrm{p}}\dfrac{u}{\epsilon_2} & -\Delta_{\mathrm{p}}\dfrac{v}{\epsilon_2} & -\Delta_{\mathrm{p}}\dfrac{k_{\parallel}^2}{K_{2,\mathrm{z}}\epsilon_2} \end{bmatrix} \tag{B.34}$$

où $K_{1,\mathrm{z}}^2=\epsilon_1k_0^2-k_{\parallel}^2$, $K_{2,\mathrm{z}}^2=\epsilon_2k_0^2-k_{\parallel}^2$, $\Delta_{\mathrm{p}}=\dfrac{\epsilon_2K_{1,\mathrm{z}}-\epsilon_1K_{2,\mathrm{z}}}{\epsilon_2K_{1,\mathrm{z}}+\epsilon_1K_{2,\mathrm{z}}}$ et $\Delta_{\mathrm{s}}=\dfrac{K_{1,\mathrm{z}}-K_{2,\mathrm{z}}}{K_{1,\mathrm{z}}+K_{2,\mathrm{z}}}$.
Si nous effectuons le changement de variables $u=k_{\parallel}\cos\alpha$, $v=k_{\parallel}\sin\alpha$, alors

$$\begin{aligned}\mathbf{S}_{\mathrm{s}}^{\mathrm{EE}^+}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)=\frac{\mathrm{i}}{2\pi}\int_0^{+\infty}\mathrm{d}k_{\parallel}k_{\parallel}\int_0^{2\pi}\mathrm{d}\alpha e^{\mathrm{i}k_{\parallel}[\cos\alpha(x-x_0)+\sin\alpha(y-y_0)]}e^{\mathrm{i}K_{2,\mathrm{z}}(z+z_0)}\times\\ \begin{bmatrix} \dfrac{\Delta_{\mathrm{p}}K_{2,\mathrm{z}}}{\epsilon_2}\cos^2\alpha-\Delta_{\mathrm{s}}\dfrac{k_0^2}{K_{2,\mathrm{z}}}\sin^2\alpha & (\dfrac{\Delta_{\mathrm{p}}K_{2,\mathrm{z}}}{\epsilon_2}+\Delta_{\mathrm{s}}\dfrac{k_0^2}{K_{2,\mathrm{z}}})\cos\alpha\sin\alpha & \dfrac{\Delta_{\mathrm{p}}}{\epsilon_2}k_{\parallel}\cos\alpha \\ (\dfrac{\Delta_{\mathrm{p}}K_{2,\mathrm{z}}}{\epsilon_2}+\Delta_{\mathrm{s}}\dfrac{k_0^2}{K_{2,\mathrm{z}}})\cos\alpha\sin\alpha & \dfrac{\Delta_{\mathrm{p}}K_{2,\mathrm{z}}}{\epsilon_2}\sin^2\alpha-\Delta_{\mathrm{s}}\dfrac{k_0^2}{K_{2,\mathrm{z}}}\cos^2\alpha & \dfrac{\Delta_{\mathrm{p}}}{\epsilon_2}k_{\parallel}\sin\alpha \\ -\dfrac{\Delta_{\mathrm{p}}}{\epsilon_2}k_{\parallel}\cos\alpha & -\dfrac{\Delta_{\mathrm{p}}}{\epsilon_2}k_{\parallel}\sin\alpha & -\dfrac{\Delta_{\mathrm{p}}}{\epsilon_2}\dfrac{k_{\parallel}^2}{K_{2,\mathrm{z}}} \end{bmatrix}\end{aligned} \tag{B.35}$$

B.4.5 Champ électrique au-dessous de la surface

En remplaçant dans (B.21a) les composantes $\mathcal{E}_{\mathrm{x}}^{(2)}$ et $\mathcal{E}_{\mathrm{y}}^{(2)}$ déterminées à partir de (B.31), il est possible de calculer les composantes $\mathcal{E}_{\mathrm{x}}^{(1)}$ et $\mathcal{E}_{\mathrm{y}}^{(1)}$ du champ dans le milieu 1. Comme l'on se situe sous la surface, $\mathbf{K}_2'=(\mathbf{k}_{\parallel},-K_{2,\mathrm{z}})$ car $z_0>0$ et $z<0$. De plus, si l'on pose $\mathbf{p}_{\parallel}(\omega)=(p_{\mathrm{x}}(\omega),p_{\mathrm{y}}(\omega),0)$

$$\begin{aligned}\mathcal{E}_{\mathrm{x}}^{(1)}&=\mathcal{E}_{\mathrm{x}}^{(2)}-\nu(\mathbf{r}_0)\left[u^2p_{\mathrm{x}}+uvp_{\mathrm{y}}-K_{2,\mathrm{z}}up_{\mathrm{z}}-\epsilon_2k_0^2p_{\mathrm{x}}\right]\\ \mathcal{E}_{\mathrm{y}}^{(1)}&=\mathcal{E}_{\mathrm{y}}^{(2)}-\nu(\mathbf{r}_0)\left[uvp_{\mathrm{x}}+v^2p_{\mathrm{y}}-K_{2,\mathrm{z}}vp_{\mathrm{z}}-\epsilon_2k_0^2p_{\mathrm{y}}\right]\end{aligned} \tag{B.36}$$

Si l'on remplace les composantes du champ $\mathcal{E}^{(2)}$ par leurs expressions, on trouve

$$\begin{aligned}\mathcal{E}_{\mathrm{x}}^{(1)} =&\nu(\mathbf{r}_0)K_{2,\mathrm{z}}\Bigg\{\left(\frac{\Delta_{\mathrm{p}}u^2K_{2,\mathrm{z}}}{k_\parallel^2\epsilon_2}-\frac{\Delta_{\mathrm{s}}v^2k_0^2}{K_{2,\mathrm{z}}k_\parallel^2}-\frac{u^2}{K_{2,\mathrm{z}}\epsilon_2}+\frac{k_0^2}{K_{2,\mathrm{z}}}\right)p_{\mathrm{x}}\\&+\left(\frac{\Delta_{\mathrm{p}}uvK_{2,\mathrm{z}}}{k_\parallel^2\epsilon_2}+\frac{\Delta_{\mathrm{s}}uvk_0^2}{K_{2,\mathrm{z}}k_\parallel^2}-\frac{uv}{\epsilon_2K_{2,\mathrm{z}}}\right)p_{\mathrm{y}}+(\Delta_{\mathrm{p}}+1)\frac{u}{\epsilon_2}p_{\mathrm{z}}\Bigg\},\quad\text{et}\end{aligned}\tag{B.37a}$$

$$\begin{aligned}\mathcal{E}_{\mathrm{y}}^{(1)} =&\nu(\mathbf{r}_0)K_{2,\mathrm{z}}\Bigg\{\left(\frac{\Delta_{\mathrm{p}}uvK_{2,\mathrm{z}}}{k_\parallel^2\epsilon_2}+\frac{\Delta_{\mathrm{s}}uvk_0^2}{K_{2,\mathrm{z}}k_\parallel^2}-\frac{uv}{K_{2,\mathrm{z}}\epsilon_2}\right)p_{\mathrm{x}}\\&+\left(\frac{\Delta_{\mathrm{p}}v^2K_{2,\mathrm{z}}}{k_\parallel^2\epsilon_2}-\frac{\Delta_{\mathrm{s}}u^2k_0^2}{K_{2,\mathrm{z}}k_\parallel^2}-\frac{v^2}{\epsilon_2K_{2,\mathrm{z}}}+\frac{k_0^2}{K_{2,\mathrm{z}}}\right)p_{\mathrm{y}}+\left(\Delta_{\mathrm{p}}+1\right)\frac{v}{\epsilon_2}p_{\mathrm{z}}\Bigg\}.\end{aligned}\tag{B.37b}$$

Pour déterminer $\mathcal{E}_{\mathrm{z}}^{(1)}$, on utilise le fait que $\mathbf{K}_1'\cdot\mathcal{E}^{(1)}=0$. Par conséquent

$$\mathcal{E}_{\mathrm{z}}^{(1)}=\frac{u\mathcal{E}_{\mathrm{x}}^{(1)}+v\mathcal{E}_{\mathrm{y}}^{(1)}}{K_{1,\mathrm{z}}}.\tag{B.38}$$

Après simplification, on trouve que

$$\mathcal{E}_{\mathrm{z}}^{(1)}=\nu(\mathbf{r}_0)K_{2,\mathrm{z}}\left\{\left(\Delta_{\mathrm{p}}+1\right)\frac{K_{2,\mathrm{z}}u}{K_{1,\mathrm{z}}\epsilon_2}p_{\mathrm{x}}+\left(\Delta_{\mathrm{p}}+1\right)\frac{K_{2,\mathrm{z}}v}{K_{1,\mathrm{z}}\epsilon_2}p_{\mathrm{y}}+\left(\Delta_{\mathrm{p}}+1\right)\frac{k_\parallel^2}{K_{1,\mathrm{z}}\epsilon_2}p_{\mathrm{z}}\right\}.\tag{B.39}$$

La susceptibilité du champ sous la surface s'écrit donc

$$\begin{aligned}\mathbf{S}_{\mathrm{s}}^{\mathrm{EE}^-}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)=&\frac{\mathrm{i}}{2\pi}\int\mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel e^{\mathrm{i}[u(x-x_0)+v(y-y_0)-(K_{1,\mathrm{z}}z-K_{2,\mathrm{z}}z_0)]}\\&\times\begin{bmatrix}\dfrac{\Delta_{\mathrm{p}}u^2K_{2,\mathrm{z}}}{\epsilon_2k_\parallel^2}-\dfrac{\Delta_{\mathrm{s}}v^2k_0^2}{K_{2,\mathrm{z}}k_\parallel^2} & \dfrac{\Delta_{\mathrm{p}}uvK_{2,\mathrm{z}}}{\epsilon_2k_\parallel^2}+\dfrac{\Delta_{\mathrm{s}}uvk_0^2}{K_{2,\mathrm{z}}k_\parallel^2} & \left(\Delta_{\mathrm{p}}+1\right)\dfrac{u}{\epsilon_2}\\ -\dfrac{u^2}{\epsilon_2K_{2,\mathrm{z}}}+\dfrac{k_0^2}{K_{2,\mathrm{z}}} & -\dfrac{uv}{\epsilon_2K_{2,\mathrm{z}}} & \\ \dfrac{\Delta_{\mathrm{p}}uvK_{2,\mathrm{z}}}{\epsilon_2k_\parallel^2}+\dfrac{\Delta_{\mathrm{s}}uvk_0^2}{K_{2,\mathrm{z}}k_\parallel^2} & \dfrac{\Delta_{\mathrm{p}}v^2K_{2,\mathrm{z}}}{\epsilon_2k_\parallel^2}-\dfrac{\Delta_{\mathrm{s}}u^2k_0^2}{K_{2,\mathrm{z}}k_\parallel^2} & \left(\Delta_{\mathrm{p}}+1\right)\dfrac{v}{\epsilon_2}\\ -\dfrac{uv}{\epsilon_2K_{2,\mathrm{z}}} & -\dfrac{v^2}{\epsilon_2K_{2,\mathrm{z}}}+\dfrac{k_0^2}{K_{2,\mathrm{z}}} & \\ \left(\Delta_{\mathrm{p}}+1\right)\dfrac{K_{2,\mathrm{z}}u}{K_{1,\mathrm{z}}\epsilon_2} & \left(\Delta_{\mathrm{p}}+1\right)\dfrac{K_{2,\mathrm{z}}v}{K_{1,\mathrm{z}}\epsilon_2} & \left(\Delta_{\mathrm{p}}+1\right)\dfrac{k_\parallel^2}{K_{1,\mathrm{z}}\epsilon_2}\end{bmatrix}.\end{aligned}\tag{B.40}$$

autrement dit

$$\mathbf{S}_{\mathrm{s}}^{\mathrm{EE}^-}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega)=\frac{\mathrm{i}}{2\pi}\int\mathrm{d}\mathbf{k}_\parallel e^{\mathrm{i}[u(x-x_0)+v(y-y_0)-(K_{1,\mathrm{z}}z-K_{2,\mathrm{z}}z_0)]}\mathbf{N}_{\mathrm{E_s}}^-(\mathbf{k}_\parallel)\tag{B.41}$$

B.4.6 Formes non-retardées et limite électrostatique

Il est maintenant possible de déterminer les expressions du champ électrique dans la zone de champ proche au-dessus et en dessous de l'interface entre les deux milieux. Pour cela, on prend la limite électrostatique ($c \to \infty$) des équations (B.33) et (B.40).

B.4.6.1 Au-dessus de l'interface

Dans un premier temps, nous calculons l'expression du propagateur $\mathbf{S}_{\mathrm{s}}^{\mathrm{EE}^+}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ lorsque $c \to \infty$. Nous rappelons que cela implique $k_0 = \dfrac{\omega}{c} \to 0$ et $K_{2,\mathrm{z}} = \mathrm{i}k_{\parallel} = K_{1,\mathrm{z}}$ ainsi $\Delta_{\mathrm{p}} = \dfrac{\epsilon_2 - \epsilon_1}{\epsilon_2 + \epsilon_1}$ et $\Delta_{\mathrm{s}} = 0$. Par conséquent, le tenseur $\mathbf{N}_{\mathrm{E_s}}^{+}(\mathbf{k}_{\parallel})$ se réduit simplement à

$$\mathbf{N}_{\mathrm{E_s}}^{+}(\mathbf{k}_{\parallel}) = \begin{bmatrix} \mathrm{i}\Delta_{\mathrm{p}} \dfrac{u^2}{\epsilon_2 k_{\parallel}} & \mathrm{i}\Delta_{\mathrm{p}} \dfrac{uv}{\epsilon_2 k_{\parallel}} & \dfrac{\Delta_{\mathrm{p}} u}{\epsilon_2} \\ \mathrm{i}\Delta_{\mathrm{p}} \dfrac{uv}{\epsilon_2 k_{\parallel}} & \mathrm{i}\Delta_{\mathrm{p}} \dfrac{v^2}{\epsilon_2 k_{\parallel}} & \dfrac{\Delta_{\mathrm{p}} v}{\epsilon_2} \\ -\dfrac{\Delta_{\mathrm{p}} u}{\epsilon_2} & -\dfrac{\Delta_{\mathrm{p}} v}{\epsilon_2} & -\Delta_{\mathrm{p}} \dfrac{k_{\parallel}^2}{\epsilon_2 K_{2,\mathrm{z}}} \end{bmatrix} \tag{B.42}$$

La décomposition en série de Weyl de $\dfrac{1}{|\,\mathbf{r} - \mathbf{r}_0\,|}$ s'écrit

$$\frac{1}{|\,\mathbf{r} - \mathbf{r}_0\,|} = \frac{\mathrm{i}}{2\pi} \int \frac{\mathrm{d}\mathbf{k}_{\parallel}}{K_{2,\mathrm{z}}} e^{\mathrm{i}[u(x-x_0) + v(y-y_0) + K_{2,\mathrm{z}}(z+z_0)]}. \tag{B.43}$$

En utilisant cette équation, nous pouvons voir que le propagateur $\mathbf{S}_{\mathrm{s}}^{\mathrm{EE}^+}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ est proportionnel au tenseur dyadique $\mathbf{T}_3(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)$. En effet, dans (B.42), les différentes composantes de $\mathbf{S}_{\mathrm{s}}^{\mathrm{EE}^+}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ correspondent aux différentes dérivées secondes partielles de $\dfrac{1}{|\,\mathbf{r} - \mathbf{r}_0\,|}$

$$\mathbf{S}_{\mathrm{s}}^{\mathrm{EE}^+}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \begin{bmatrix} -\dfrac{\partial^2}{\partial x^2} & -\dfrac{\partial^2}{\partial x \partial y} & \dfrac{\partial^2}{\partial x \partial z} \\ -\dfrac{\partial^2}{\partial x \partial y} & -\dfrac{\partial^2}{\partial y^2} & \dfrac{\partial^2}{\partial y \partial z} \\ -\dfrac{\partial^2}{\partial x \partial z} & -\dfrac{\partial^2}{\partial y \partial z} & \dfrac{\partial^2}{\partial z^2} \end{bmatrix} \frac{1}{\epsilon_2} \frac{\Delta_{\mathrm{surf}}^{+}}{|\,\mathbf{r} - \mathbf{r}_0\,|} \tag{B.44}$$

avec $\Delta_{\mathrm{surf}}^{+} = \dfrac{\epsilon_1 - \epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2} = -\Delta_{\mathrm{p}}$.

Or $\mathbf{T}_3(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) = \nabla\nabla \dfrac{1}{|\,\mathbf{r} - \mathbf{r}_0\,|}$, donc lorsque la distance à la surface est très petite devant la longueur d'onde et que les effets de retard disparaissent, on a

$$\mathbf{S}_{\mathrm{s}}^{\mathrm{EE}^+}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \Delta_{\mathrm{surf}}^{+} \frac{\mathbf{T}_3(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)}{\epsilon_2} \begin{pmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}. \tag{B.45}$$

Nous aurions pu retrouver cette expression en utilisant la théorie du dipôle image [43].

B.4.6.2 Au-dessous de l'interface

En utilisant la même méthode pour le tenseur $\mathbf{S}_{\text{s}}^{\text{EE}^-}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega)$ (B.40), nous pouvons voir que celui-ci est aussi proportionnel au tenseur dyadique non-retardé $\mathbf{T}_3(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)$

$$\mathbf{S}_{\text{s}}^{\text{EE}^-}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \Delta_{\text{surf}}^{-}\mathbf{T}_3(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \tag{B.46}$$

avec $\Delta_{\text{surf}}^{-} = \dfrac{2}{\epsilon_1 + \epsilon_2}$.

B.4.7 Formes asymptotiques retardées

B.4.7.1 Au-dessus de la surface

Pour une meilleure lisibilité, dans la suite des calculs, nous remplaçons le terme $k_{\|}$ simplement par k. De plus, nous utilisons les composantes du point d'observation $\mathbf{r}$ en coordonnées sphériques (cf. figure B.1)

$$\begin{aligned} x &= r\sin\theta\cos\varphi \\ y &= r\sin\theta\sin\varphi \\ z &= r\cos\theta \end{aligned} \tag{B.47}$$

Ainsi, l'expression (B.35) s'écrit

$$\mathbf{S}_{\text{s}}^{\text{EE}^+}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \frac{\mathrm{i}}{2\pi}\int_0^{+\infty} k\mathrm{d}k \int_0^{2\pi} \mathrm{d}\alpha e^{\mathrm{i}r[k\sin\theta\cos(\alpha-\varphi)+K_{2,\text{z}}\cos\theta]} e^{-\mathrm{i}[kx_0\cos\alpha + ky_0\sin\alpha - K_{2,\text{z}}z_0]}\mathbf{N}_{\text{E}_\text{s}}^{+}(\mathbf{k}_{\|}) \tag{B.48}$$

On voit ainsi que les différentes composantes de la matrice s'écrivent sous la forme

$$G_{\text{s}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) = \frac{\mathrm{i}}{2\pi}\int_0^{+\infty}\mathrm{d}k\int_0^{2\pi}\mathrm{d}\alpha g(k,\alpha)e^{\mathrm{i}rf(k,\alpha)} \tag{B.49}$$

avec $f(k,\alpha) = k\sin\theta\cos(\alpha-\varphi) + K_{2,\text{z}}\cos\theta$.

Pour les grandes valeurs de r, des intégrales de cette forme admettent la limite asymptotique suivante [277] :

$$G_{\text{s}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_0, \omega) \sim_{\infty} \frac{1}{|\tan\theta|} g(\tilde{k}, \tilde{\alpha}) \frac{e^{\mathrm{i}n_i k_0 r}}{r} \tag{B.50}$$

avec $n_{\text{ß}}$ l'indice optique du milieu (1 ou 2), et le couple de valeur $(\tilde{k}, \tilde{\alpha})$ définit le point selle de la fonction f

$$\frac{\partial f}{\partial k}(\tilde{k}, \tilde{\alpha}) = 0\ ,\ \frac{\partial f}{\partial \alpha}(\tilde{k}, \tilde{\alpha}) = 0. \tag{B.51}$$

Au-dessus de la surface, ces deux conditions sur les dérivées partielles conduisent à $\tilde{k} = n_2 k_0 \sin\theta$ et $\tilde{\alpha} = \varphi$. Par conséquent, en remplaçant $\tilde{k}$ par son expression, on obtient $K_{2,\text{z}} = n_2 k_0 \cos\theta$ et $K_{1,\text{z}} = k_0(\epsilon_1 - \epsilon_2\sin^2\theta)^{1/2}$.

En appliquant la forme asymptotique (B.50) à chaque élément de la matrice, nous obtenons [46, 74]

$$\mathbf{S}_{\mathrm{s}}^{\mathrm{EE}^{+\infty}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) = -k_0^2\frac{e^{in_2k_0r}}{r}e^{-in_2k_0\sin\theta(x_0\cos\varphi+y_0\sin\varphi)}e^{in_2k_0\cos\theta z_0}$$
$$\times\begin{bmatrix} r_{\mathrm{p}}\cos^2\theta\cos^2\varphi - r_{\mathrm{s}}\sin^2\varphi & (r_{\mathrm{p}}\cos^2\theta + r_{\mathrm{s}})\cos\varphi\sin\varphi & r_{\mathrm{p}}\sin\theta\cos\theta\cos\varphi \\ (r_{\mathrm{p}}\cos^2\theta + r_{\mathrm{s}})\cos\varphi\sin\varphi & r_{\mathrm{p}}\cos^2\theta\sin^2\varphi - r_{\mathrm{s}}\cos^2\varphi & r_{\mathrm{p}}\sin\theta\cos\theta\sin\varphi \\ -r_{\mathrm{p}}\sin\theta\cos\theta\cos\varphi & -r_{\mathrm{p}}\sin\theta\cos\theta\sin\varphi & -r_{\mathrm{p}}\sin^2\theta \end{bmatrix} \tag{B.52}$$

avec r_{p} et r_{s} les coefficients de réflexion donnés par [46, 74] :

$$\begin{aligned} r_{\mathrm{p}} &= \frac{\epsilon_1 n_2\cos\theta - \epsilon_2(\epsilon_1 - \epsilon_2\sin^2\theta)^{1/2}}{\epsilon_1 n_2\cos\theta + \epsilon_2(\epsilon_1 - \epsilon_2\sin^2\theta)^{1/2}}, \text{ et} \\ r_{\mathrm{s}} &= \frac{n_2\cos\theta - (\epsilon_1 - \epsilon_2\sin^2\theta)^{1/2}}{n_2\cos\theta + (\epsilon_1 - \epsilon_2\sin^2\theta)^{1/2}}. \end{aligned} \tag{B.53}$$

avec $n_2 = \sqrt{\epsilon_2}$ l'indice optique du demi-espace z>0.

B.4.7.2 Au-dessous de la surface

Si l'on applique exactement la même méthode pour la susceptibilité en dessous de la surface (B.40), on arrive à l'expression suivante [46, 74]

$$\mathbf{S}_{\mathrm{s}}^{\mathrm{EE}^{-\infty}}(\mathbf{r},\mathbf{r}_0,\omega) = k_0^2\frac{e^{in_1k_0r}}{r}e^{-in_1k_0\sin\theta(x_0\cos\varphi+y_0\sin\varphi)}e^{ik_0(\epsilon_2-\epsilon_1\sin^2\theta)^{1/2}z_0}$$
$$\times\begin{bmatrix} (\frac{\Phi_{\mathrm{p}}}{\epsilon_2}\cos^2\varphi + \Phi_{\mathrm{s}}\sin^2\varphi)\cos\theta & (\frac{\Phi_{\mathrm{p}}}{\epsilon_2} - \Phi_{\mathrm{s}})\cos\theta\sin\varphi\cos\varphi & \tau_{\mathrm{p}}\frac{\epsilon_1}{\epsilon_2}\sin\theta\cos\theta\cos\varphi \\ (\frac{\Phi_{\mathrm{p}}}{\epsilon_2} - \Phi_{\mathrm{s}})\cos\theta\sin\varphi\cos\varphi & (\frac{\Phi_{\mathrm{p}}}{\epsilon_2}\sin^2\varphi + \Phi_{\mathrm{s}}\cos^2\varphi)\cos\theta & \tau_{\mathrm{p}}\frac{\epsilon_1}{\epsilon_2}\sin\theta\cos\theta\sin\varphi \\ -\frac{\Phi_{\mathrm{p}}}{\epsilon_2}\sin\theta\cos\varphi & -\frac{\Phi_{\mathrm{p}}}{\epsilon_2}\sin\theta\sin\varphi & -\tau_{\mathrm{p}}\frac{\epsilon_1}{\epsilon_2}\sin^2\theta \end{bmatrix} \tag{B.54}$$

avec $n_1 = \sqrt{\epsilon_1}$ l'indice optique du demi-espace z<0 et

$$\begin{aligned} \Phi_{\mathrm{s}} &= \frac{n_1\tau_{\mathrm{s}}}{(\epsilon_2 - \epsilon_1\sin^2\theta)^{1/2}},\ \tau_{\mathrm{s}} = 1 - \Delta_{\mathrm{s}}, \\ \Phi_{\mathrm{p}} &= n_1\tau_{\mathrm{p}}(\epsilon_2 - \epsilon_1\sin^2\theta)^{1/2},\ \tau_{\mathrm{p}} = \Delta_{\mathrm{p}} + 1 \end{aligned} \tag{B.55}$$

où

$$\begin{aligned} \Delta_{\mathrm{p}} &= \frac{-n_1\epsilon_2\cos\theta - \epsilon_1(\epsilon_2 - \epsilon_1\sin^2\theta)^{1/2}}{-n_1\epsilon_2\cos\theta + \epsilon_1(\epsilon_2 - \epsilon_1\sin^2\theta)^{1/2}} \\ \Delta_{\mathrm{s}} &= \frac{-n_1\cos\theta - (\epsilon_2 - \epsilon_1\sin^2\theta)^{1/2}}{-n_1\cos\theta + (\epsilon_2 - \epsilon_1\sin^2\theta)^{1/2}}. \end{aligned} \tag{B.56}$$

Annexe C

Tableau de conversion SI-CGS

Quantité	Symbole	Unité SI	Facteur	Unité CGS
Longueur	l	m	10^2	cm
Masse	m	kg	10^3	g
Temps	t	s	1	s
Fréquence	ν	Hz	1	1/s
Force	F	(N)ewton	10^5	dyne ($g{\cdot}cm{\cdot}s^{-2}$)
Énergie	W	(J)oule	10^7	erg ($g{\cdot}cm^2{\cdot}s^{-2}$)
Puissance	P	(W)att	10^7	erg/s ($g{\cdot}cm^2{\cdot}s^{-3}$)
Charge	q	(C)oulomb	$"3"\times10^9$	statcoul ($g^{1/2}{\cdot}cm^{3/2}{\cdot}s^{-1}$)
Densité de charge	ρ	$C{\cdot}m^{-3}$	$"3"\times10^9$	$statcoul{\cdot}cm^{-3}$
Courant	I	(A)mpère	$"3"\times10^9$	statamp ($g^{1/2}{\cdot}cm^{3/2}{\cdot}s^{-2}$)
Densité de courant	J	$A{\cdot}m^{-2}$	$"3"\times10^5$	$statamp{\cdot}cm^{-2}$
Potentiel électrique	V	(V)olt	$10^{-2}/"3"$	statvolt ($g^{1/2}{\cdot}cm^{1/2}{\cdot}s^{-1}$)
Champ électrique	E	$V{\cdot}m^{-1}$	$10^{-4}/"3"$	$statvolt{\cdot}cm^{-1}$
Polarisation	P	$C{\cdot}m^{-2}$	$"3"\times10^5$	$dip{\cdot}mom{\cdot}cm^{-3}$
Déplacement Électrique	D	$c{\cdot}m^{-2}$	$4\pi\times"3"\times10^5$	$statvolt{\cdot}cm^{-1}$
Conductivité	σ	$ohm{\cdot}m^{-1}$	$"3"\times"3"\times10^9$	$s{\cdot}cm^{-1}$
Résistance	R	ohm (Ω)	$10^{-11}/("3"\times"3")$	$s{\cdot}cm^{-1}$
Capacitance	C	(F)arad	$("3"\times"3")\times10^{11}$	cm
Induction magnétique	B	(T)esla	10^4	gauss
Flux magnétique	ϕ	weber(Wb)	10^8	$gauss{\cdot}cm^2$
Champ magnétique	H	$A{\cdot}turn{\cdot}m^{-1}$	$4\pi\times10^{-3}$	oersted
Magnétisation	M	$A{\cdot}m^{-1}$	10^{-3}	$mag{\cdot}mom{\cdot}cm^{-3}$
Inductance	L	(H)enry	$10^{-11}/("3"\times"3")$	Gaussian e.s.u.

TABLE C.1 – Tableau récapitulatif de conversion SI-CGS, $"3"\approx2.99792458\times10^8$. Ce tableau est extrait du cours de R. Talman "Classical Mechanics and Electromagnetism in Accelerators and Beams".

Liste des abréviations

A

ATO Antimony Doped Tin Oxide
AZO Aluminum-doped Zinc Oxide

B

BC Bande de Conduction
BOx Burried Oxyde
BV Bande de Valence

C

CEMES Centre d'élaboration de matériaux et d'études structurales
CGS Centimètre-Gramme-Seconde
CMOS Complementary Metal Oxide Semiconductor

D

DDA Discrete Dipole Approximation
DFT Density Functional Theory
DTG Differential Theory of Gratings

E

EDX Energy-dispersive X-ray spectroscopy

F

FDTD Finite Difference Time Domain
FIR Far-Infrared (Infrarouge lointain)
FTIR Fourier Transform InfraRed spectroscopy
FWHM Full-width at half-maximum

G

GDM Green Dyadic Method (Méthode Dyadique de Green)
GeZO Germanium doped Zinc Oxide
GPU Graphics Processing Unit
GZO Gallium doped Zinc Oxide

H

HSQ Hydrogène Silsesquioxane

I

IR Infrared (Infrarouge)
ITO Indium Tin Oxide

L

LDOS Local Density of States
LSPR Localized Surface Plasmon Resonance
LTA Laser Thermal Annealing

M

MEB Microscopie Électronique en Balayage
MEHR Microscopie Électronique à Haute Résolution
MET Microscopie Électronique en Transmission (TEM en anglais)
MIR Mid-Infrared (Infrarouge moyen)

S

Si-NC Nanocristaux de Silicium
Si-NS Nanostructure de Silicium
Si-NP Nanoparticule de Silicium

N

NIR Near-Infrared (Infrarouge proche)

P

PSTM Photon Scanning Tunneling Microscope

R

RAM Random Access Memory
ReLU Rectified Linear Unit
RIE Reactive Ion Etching

S

SERS Surface Enhanced Raman Scattering
SI Système International
SOI Silicon on Insulator
SNOM Scanning Nearfield Optical Microscope
STEM-EDX Scanning TEM - Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy

T

TE / TM Transverse Électrique / Transverse Magnétique
TDLDA Time Dependent Local Density Approximation
TF Transformée de Fourier

U

UV Ultraviolet

Publications durant la thèse

Liste des publications

[1] Peter R. Wiecha, **Clément Majorel**, Christian Girard, Aurélien Cuche, Vincent Paillard, Otto L. Muskens et Arnaud Arbouet. « Design of plasmonic directional antennas via evolutionary optimization ». *Optics Express* 27.20 (sept. 2019), p. 29069-29081.

[2] Adelin Patoux, **Clément Majorel**, Peter R. Wiecha, Aurélien Cuche, Otto L. Muskens, Christian Girard et Arnaud Arbouet. « Polarizabilities of complex individual dielectric or plasmonic nanostructures ». *Physical Review B* 101.23 (juin 2020), p. 235418.

[3] Peter R. Wiecha, **Clément Majorel**, Arnaud Arbouet, Adelin Patoux, Yoann Brûlé, Gérard Colas des Francs et Christian Girard. « "pyGDM" - new functionalities and major improvements to the python toolkit for nano-optics full-field simulations ». *Computer Physics Communications* (août 2021), p. 108142.

[4] Peter R. Wiecha, **Clément Majorel**, Christian Girard, Arnaud Arbouet, Bruno Masenelli, Olivier Boisron, Aurélie Lecestre, Guilhem Larrieu, Vincent Paillard et Aurélien Cuche. « Enhancement of electric and magnetic dipole transition of rare-earth-doped thin films tailored by high-index dielectric nanostructures ». *Applied Optics* 58.7 (mars 2019), p. 1682-1690.

[5] **Clément Majorel**, Christian Girard, Aurélien Cuche, Arnaud Arbouet et Peter R. Wiecha. « Quantum theory of near-field optical imaging with rare-earth atomic clusters ». *JOSA B* 37.5 (mai 2020), p. 1474-1484.

[6] **Clément Majorel**, Vincent Paillard, Adelin Patoux, Peter R. Wiecha, Aurélien Cuche, Arnaud Arbouet, Caroline Bonafos et Christian Girard. « Theory of plasmonic properties of hyper-doped silicon nanostructures ». *Optics Communications* 453 (déc. 2019), p. 124336.

[7] Jean-Marie Poumirol, **Clément Majorel**, Nicolas Chery, Christian Girard, Peter R. Wiecha, Nicolas Mallet, Richard Monflier, Guilhem Larrieu, Filadelfo Cristiano, Anne-Sophie Royet, Pablo Acosta Alba, Sébastien Kerdiles, Vincent Paillard et Caroline Bonafos. « Hyper-Doped Silicon Nanoantennas and Metasurfaces for Tunable Infrared Plasmonics ». *ACS Photonics* 8.5 (mai 2021), p. 1393-1399.

[8] **Clément Majorel**, Christian Girard, Arnaud Arbouet, Otto L. Muskens et Peter R. Wiecha. « Deep learning enabled strategies for modelling of complex aperiodic plasmonic metasurfaces of arbitrary size ». *arXiv:2110.02109 [cond-mat, physics:physics]* (oct. 2021). arXiv: 2110.02109.

Résumé article "Quantum theory of near-field optical imaging with rare-earth atomic clusters"

Durant la thèse, nous avons travaillé sur une théorie quantique pour décrire l'interaction entre un système quantique et une structure nanométrique. Ces travaux ont conduit à la publication page suivante, dont les résultats n'ont pas été détaillés dans ce manuscrit.

Dans cette publication, nous couplons la GDM avec les équations de type Bloch optique, afin de décrire la photodynamique dans des atomes de terres rares, présentant des transitions dipolaires électrique et magnétique d'intensités comparables. Cette approche nous permet d'accéder à la population des niveaux émetteurs d'ions terres rares piégés à l'extrémité d'une pointe SNOM. Nous nous sommes focalisés sur les ions d'europium. Lorsque les niveaux électroniques de ces ions sont excités à saturation, à l'aide d'une onde lumineuse, ces derniers permettent d'imager en même temps la LDOS électrique et magnétique au voisinage de nanostructures.

Grâce à notre schéma de discrétisation numérique, notre méthode peut être appliquée à des nanostructures de formes et de matériaux arbitraires, reposant éventuellement sur un substrat. De plus, nous avons montré que ce formalisme est adapté à diverses configurations SNOM.

Journal of the Optical Society of America B
OPTICAL PHYSICS

Quantum theory of near-field optical imaging with rare-earth atomic clusters

Clément Majorel,[1] Christian Girard,[1,3] Aurélien Cuche,[1] Arnaud Arbouet,[1] and Peter R. Wiecha[1,2,4]

[1]CEMES-CNRS, Université de Toulouse, CNRS, Toulouse, France
[2]Physics and Astronomy, Faculty of Engineering and Physical Sciences, University of Southampton, Southampton, UK
[3]e-mail: girard@cemes.fr
[4]e-mail: p.wiecha@soton.ac.uk

Received 16 December 2019; revised 30 March 2020; accepted 30 March 2020; posted 30 March 2020 (Doc. ID 385918); published 23 April 2020

Scanning near-field optical microscopy (SNOM) using local active probes provides general images of the electric part of the photonic local density of states. However, certain atomic clusters can supply more information by simultaneously revealing both the magnetic and the electric local density of states in the optical range. For example, nanoparticles doped with rare-earth elements like europium or terbium provide both electric dipolar (ED) and magnetic dipolar (MD) transitions. In this theoretical paper, we develop a quantum description of active systems (rare-earth ions) coupled to a photonic nanostructure by solving the optical Bloch equations together with Maxwell's equations. This approach allows us to access the population of the emitting energy levels for all atoms excited by the incident light, degenerated at the extremity of the tip of a near-field optical microscope. We show that it is possible to describe the collected light intensity due to ED and MD transitions in a scanning configuration. By carrying out simulations on different experimentally interesting systems, we demonstrate that our formalism can be of great value for the interpretation of experimental configurations, including various external parameters such as the laser intensity, the polarization and wavelength, the SNOM probe size, and the nature of the sample. © 2020 Optical Society of America

https://doi.org/10.1364/JOSAB.385918

1. INTRODUCTION

Several experimental methods are able to access the optical local density of states (LDOS), shaped by nanostructures integrated in coplanar environments [1]. From a historical point of view, it was the local probe method that provided the first images of both electronic LDOS [2,3] and photonic LDOS [4–8]. In the case of optical experiments, an extremely sharp tip that behaves like a dipolar source of light was brought close to the surface of the sample. When equipped with a parabolic mirror with a large collection angle, such local probes have been used to measure the photonic eigenmodes tailored by the nanostructures on the surface. Under these specific detection conditions, it was theoretically demonstrated that the signals delivered in this configuration of a scanning near-field optical microscope (SNOM) are proportional to the electric part of the photonic LDOS at the scanned positions of the point-like light source [9]. Note that we are leaving aside here electron microscopy tools like the electron energy loss spectroscopy (EELS), which also are able to access the photonic LDOS on a subwavelength spatial resolution [10–12].

In a second step, this technique has been considerably improved by using fluorescing molecules, rare-earth atoms, or nitrogen-vacancy (NV) color centers, embedded in nanometric beads or crystals and glued at the apex of a sharpened optical fiber [13–15]. Dependent on the actual size of the doped nanocrystal, the size of such probe can be viewed as actually point-like, compared to the length-scale of the variations of the optical fields. A physical interpretation of the mechanism causing the imaging process, has highlighted the role of the electric part of the photonic local density of states (e-LDOS) at the emitter position [16]. Recently, delicate experiments have addressed light emission from rare-earth-doped emitters that support both strong electric and magnetic dipolar transitions[17–20]. While we consider incoherent SNOM with active probes, we note that dielectric resonators also have been proposed recently as coherent SNOM probes to access the magnetic part of the optical near field [21].

The main objective of this paper is to extend the formalism described in [22] to the case of dipolar magnetic transitions to analyze a large class of experimental configurations where magnetic and electric photophysical processes are induced

by highly confined optical fields in the vicinity of complex environments. As previously detailed in [22], we apply a combination of the Green's dyadic method (GDM) with the optical Bloch equations used in atomic physics. GDM supplies a precise electromagnetic description of the system by providing maps of both e-LDOS and m-LDOS [23]. These data are then introduced into the Maxwell–Bloch equations to obtain the population evolution of the molecular energy levels and to deduce the atomic emission signals. Using our extensive formalism for incoherent, quantum-emitter-probe SNOM with electric and magnetic dipole transitions, we discuss several examples involving typical problems and practical SNOM scenarios.

2. GENERAL CONCEPTS

As illustrated in Fig. 1, to establish the main features of our model, we consider a set of N_q quantum systems, located at positions $\mathbf{r}_i$ from the center $\mathbf{R}$ of a dielectric sphere, which is attached to a SNOM tip.

A. Local Mean Electric Field Illuminating the Quantum Systems

We will discuss other typical configurations later in this paper, but for the first demonstration of our approach, we consider an "apertureless" SNOM [24–26], where the bead containing the quantum structures is illuminated by a monochromatic external plane wave of frequency ω_0, as illustrated in Fig. 1. This excitation field will induce an electric polarization in the nanobead, which we describe by an isotropic dipolar polarizability $\alpha_{\text{bead}}(\omega)$ via the Clausius–Mossotti relation applied to a spherical volume [see Eq. (30) below]. The nanostructures, which are deposited on a dielectric substrate, are consequently illuminated by $\mathbf{E}_0(\mathbf{r}, t)$, the superposition of the plane wave and the scattering of the plane wave at the SNOM tip nanobead. Finally, the total local field $\mathbf{E}(\mathbf{R}, t)$ that drives the emitters in the SNOM tip bead is the superposition of fundamental field and light backscattered from the nanostructures. For structures of arbitrary shape and/or materials, $\mathbf{E}(\mathbf{R}, t)$ is obtained numerically. To this end, here we use Green's dyadic method (GDM)

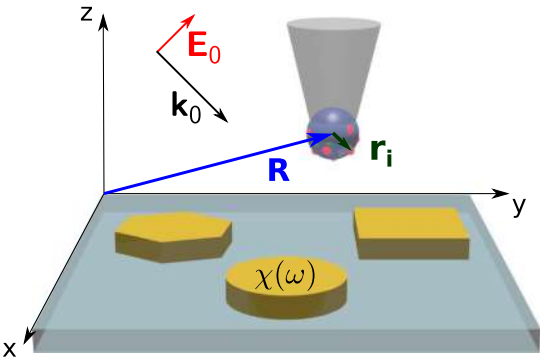

Fig. 1. General geometry of a quantum near-field microscope in which an europium-doped nanobead raster scans a transparent sample supporting arbitrary photonic nanostructures. The blue arrow represents the location $\mathbf{R}$ of the tip extremity, the vectors $\mathbf{r}_i$ define the positions of the europium atoms inside the bead, and $\chi(\omega)$ labels the local optical response function of the nanostructures.

to calculate the Fourier transform $\mathbf{E}(\mathbf{R}, \omega)$ of $\mathbf{E}(\mathbf{R}, t)$. GDM is a frequency domain approach based on the idea of a generalized propagator $\mathbf{K}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ [27], which contains the response of the nanostructure to any illumination at the frequency ω,

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}_{\text{source}}, \omega) = \int_{V_s} \mathbf{K}(\mathbf{r}_{\text{source}}, \mathbf{r}', \omega) \cdot \mathbf{E}_0(\mathbf{r}', \omega) \mathrm{d}\mathbf{r}', \quad (1)$$

where the integral runs over the volume of the nanostructure V_s, which is also called the "source region" and $\mathbf{r}_{\text{source}}$ is a location inside the nanostructure. Through a volume discretization of the source region, the integral in Eq. (1) becomes a sum over N discrete mesh-cells, defining a system of $3N$ coupled equations [1], which can be solved by numerical inversion [28]. After solving Eq. (1), the field inside the source region upon external illumination is known and can be used to calculate the fields at any location outside the nanostructure. This is done via re-propagation of the field inside the nanostructure using the appropriate Green's tensor $\mathbf{S}_{\text{env}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ for the chosen reference system (here, air $n_{\text{env}} = 1$ above a planar dielectric substrate of index $n_s = 1.5$):

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}, \omega) + \int_{V_s} \mathbf{S}_{\text{env}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \cdot \chi(\mathbf{r}', \omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}', \omega) \mathrm{d}\mathbf{r}'. \quad (2)$$

B. Near-Field Coupling with Quantum Systems

Our goal is to describe the photodynamics in rare-earth atoms, featuring electric dipole (ED) and magnetic dipole (MD) transitions of similar strength. We will use europium as emitter element throughout this work, but our scheme can be applied likewise to any other ED and/or MD transition, not limited to rare-earth elements. For both ED and MD transitions the europium photodynamics can be described as a three-level quantum system [29] (see Fig. 2). We determine the europium levels that play a role in the photodynamics process from [30,31] and use their relative decay rates Γ_i, which depend on the environment, as will be further detailed below. Hence, in the following, the level $|1\rangle$ will correspond to the europium energy level $^7F_2$ in the case of the ED transition, and to $^7F_1$ in the case of the MD transition. In both, the electric and the magnetic dipole cases, $|2\rangle$ and $|3\rangle$ correspond to levels $^5D_1$ and $^5D_0$, respectively. Throughout this paper we deliberately choose a slightly higher transition energy between the ground level and $^5D_1$ ($\lambda = 527$ nm) to avoid resonant driving with our $\lambda_0 = 532$ nm illumination. This choice is solely made to guarantuee numerical stability of the formalism and has no impact on the physical mechanisms and interpretation.

The derivation below essentially follows previous work [22], which we extend here to ED and MD transitions and whose implications to typical SNOM configurations will be analyzed in detail. The dipolar coupling Hamiltonian,

$$W(t) = -\widehat{\boldsymbol{\mu}} \cdot \mathbf{E}(\mathbf{R}_i, t), \quad (3)$$

between the local electric field $\mathbf{E}(\mathbf{R}_i, t)$ and a single europium of dipole moment $\widehat{\mu}$, located at the position $\mathbf{R}_i = \mathbf{R} + \mathbf{r}_i$ relative to the dielectric structure, can be calculated with GDM

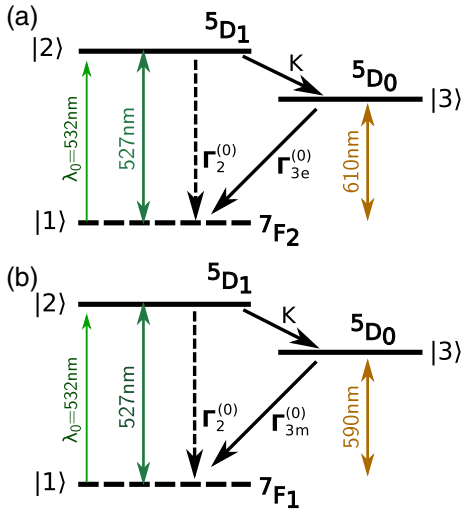

Fig. 2. Diagram of the Eu^{3+} ion levels used to establish the three-level quantum system for (a) ED and (b) MD transitions. $\Gamma_2^{(0)}$ represents the decay rate between $^5D_1$ and $^7F_2$ ($^7F_1$) states for the ED transition (MD transition), $\Gamma_{3e}^{(0)}$ (MD: $\Gamma_{3m}^{(0)}$) the decay rate between $^5D_0$ and $^7F_2$ (MD: $^7F_1$), and K between $^5D_1$ and $^5D_0$. We probe the photons emitted by the $\Gamma_{3e/m}^{(0)}$ transitions. The laser wavelength is slightly detuned with respect to the excitation transition energy to avoid resonant driving. The $^5D_1$ level can nevertheless be excited due to the finite lifetime $\Gamma_2^{(0)}$.

[Eq. (2)]. Using the rotating wave approximation (neglecting nonresonant terms in the interaction [32]), we then have (with $k_0 = \omega_0/c$)

$$W(t) = \sum_\alpha \frac{\hbar\Omega_\alpha(\mathbf{R}_i, k_0)}{2}\left\{e^{\mathrm{i}(\omega_0 t+\phi_\alpha(\mathbf{R}_i,k_0))}|1\rangle\langle 2| + \text{C.C.}\right\}. \tag{4}$$

The phase factors ϕ_α correspond to the phase of the frequency dependent, complex electric field amplitude components $E_\alpha(\mathbf{R}_i, \omega)$ from the field in Eq. (2), where α is one of x, y, or z. $\Omega_\alpha(\mathbf{R}_i, k_0)$ is the α-component of the vectorial Rabi frequency correlated to the α-component of the absorption transition dipole μ_{12}^α (i.e., the strength of the emitter excitation):

$$\Omega_\alpha(\mathbf{R}_i, k_0) = -\frac{\mu_{12}^\alpha E_\alpha(\mathbf{R}_i, k_0)}{\hbar}, \tag{5}$$

where

$$E_\alpha(\mathbf{R}_i, k_0) = \left|\sum_\beta \int K_{\alpha\beta}(\mathbf{R}_i, \mathbf{r}', -\omega_0)e^{-\mathrm{i}k_0\mathbf{r}'}\mathrm{d}\mathbf{r}' E_{0,\beta}\right|. \tag{6}$$

In the latter equation, $K_{\alpha\beta}$ is the $\alpha\beta$ component of the generalized propagator $\mathbf{K}$ given in Eq. (1) and a summation is performed over $\beta \in \{x, y, z\}$.

We can now use Liouville's equation that governs the density matrix evolution of the i-th rare-earth atom [32],

$$\dot\rho(t) = \frac{1}{\mathrm{i}\hbar}\{H_0(t) + W(t), \rho(t)\} + \mathcal{R}_{\text{spont}}\rho(t), \tag{7}$$

where $\dot\rho(t) = \partial\rho(t)/\partial t$ is the time derivative of the density matrix, $\{\ldots\}$ is the Poisson bracket, and the Redfield operator $\mathcal{R}_{\text{spont}}$ describes the coupling with the photon bath. In our optical problem, only the populations of the excited levels ($|2\rangle$ and $|3\rangle$) must be considered (see Fig. 2). Consequently, we focus on this coupled system of four optical Bloch equations [22],

$$\dot\rho_{33}(t) = K\rho_{22}(t) - \Gamma_{3m/e}\rho_{33}(t), \tag{8a}$$

$$\dot\rho_{22}(t) = -(K+\Gamma_2)\rho_{22}(t) - \mathrm{i}\left(\Omega^- e^{-\mathrm{i}\omega_0 t}\rho_{12}(t) - \Omega^+ e^{\mathrm{i}\omega_0 t}\rho_{21}(t)\right), \tag{8b}$$

$$\dot\rho_{12}(t) = -\frac{\Gamma_2}{2}\rho_{12}(t) + \mathrm{i}\omega_{21}\rho_{12}(t) - \mathrm{i}\Omega^+ e^{\mathrm{i}\omega_0 t}(2\rho_{22}(t) + \rho_{33}(t) - 1), \tag{8c}$$

$$\dot\rho_{21}(t) = -\frac{\Gamma_2}{2}\rho_{21}(t) - \mathrm{i}\omega_{21}\rho_{21}(t) + \mathrm{i}\Omega^- e^{-\mathrm{i}\omega_0 t}(2\rho_{22}(t) + \rho_{33}(t) - 1), \tag{8d}$$

with

$$\Omega^\pm = \sum_\alpha \frac{\Omega_\alpha(\mathbf{R}_i, k_0)}{2}e^{\pm\mathrm{i}\phi_\alpha(\mathbf{R}_i,k_0)}. \tag{9}$$

Now, we will use the approximation that the phase factors $\phi_\alpha(\mathbf{R}_i, k_0)$ don't vary significantly between the three field components; hence, $\phi_\alpha(\mathbf{r}_i, k_0) = \phi(\mathbf{r}_i, k_0)$. According to this approximation $\Omega^- = (\Omega^+)^*$. We also apply a change of variables to remove the phase terms $e^{\pm i\omega_0 t}$, and we obtain the system

$$\dot{\widehat{\rho_{33}}} = K\widehat{\rho_{22}} - \Gamma_{3m/e}\widehat{\rho_{33}}, \tag{10a}$$

$$\dot{\widehat{\rho_{22}}} = -(K+\Gamma_2)\widehat{\rho_{22}} - \mathrm{i}\Omega^-\widehat{\rho_{12}} + \mathrm{i}\Omega^+\widehat{\rho_{21}}, \tag{10b}$$

$$\dot{\widehat{\rho_{12}}} = \mathrm{i}\delta_L\widehat{\rho_{12}} - \frac{\Gamma_2}{2}\widehat{\rho_{12}} - \mathrm{i}\Omega^+(\widehat{\rho_{22}} - \widehat{\rho_{11}}), \tag{10c}$$

$$\dot{\widehat{\rho_{21}}} = -\mathrm{i}\delta_L\widehat{\rho_{21}} - \frac{\Gamma_2}{2}\widehat{\rho_{21}} + \mathrm{i}\Omega^-(\widehat{\rho_{22}} - \widehat{\rho_{11}}), \tag{10d}$$

where $\delta_L = \omega_{21} - \omega_0$ represents the detuning in frequency between the incident field and the resonant absorption transition between the ^7F levels and $^5D_1$. K is the relaxation constant between $^5D_1$ and $^5D_0$, and Γ_2 and $\Gamma_{3m/e}$ are the two radiative decay rates.

We now place ourselves in the stationary regime where all the temporal derivatives equal zero. After solving the system of coupled equations, we obtain the population of level $|3\rangle$,

$$\widehat{\rho_{33}}(\mathbf{R}_i) = \frac{1}{1 + (A_1 + A_2(\mathbf{R}_i) + A_3(\mathbf{R}_i))\,\Gamma_{3m/e}(\mathbf{R}_i)}, \tag{11}$$

with

$$A_1 = \frac{2}{K}, \tag{12a}$$

$$A_2(\mathbf{R}_i) = \frac{\delta_L^2}{\Omega^+(\mathbf{R}_i)\,\Omega^-(\mathbf{R}_i)\,\Gamma_2} + \frac{\delta_L^2}{\Omega^+(\mathbf{R}_i)\,\Omega^-(\mathbf{R}_i)\,K}, \tag{12b}$$

$$A_3(\mathbf{R}_i) = \frac{\Gamma_2}{4\Omega^+(\mathbf{R}_i)\,\Omega^-(\mathbf{R}_i)} + \frac{\Gamma_2^2}{4\Omega^+(\mathbf{R}_i)\,\Omega^-(\mathbf{R}_i)\,K}. \tag{12c}$$

For a single europium located at the position $\mathbf{R}_i$, the fluorescence signal emitted by this system is [22]

$$I^{m/e}(\mathbf{R}_i) = \hbar\omega_{31}\widehat{\rho_{33}}(\mathbf{R}_i)\,\Gamma_{3m/e}(\mathbf{R}_i). \tag{13}$$

To consider the emission of all europium atoms at the apex of the SNOM tip, we will neglect any optical coupling between the emitters. In this case, the fluorescence signal of the entire quantum system is simply the sum of the individual europium emitters,

$$I_{\text{tot}}^{m/e} = \sum_{i=1}^{N_q} I^{m/e}(\mathbf{R}_i), \tag{14}$$

with N_q the number of europium atoms embedded in the dielectric nanobead. For a small tip $\mathbf{r}_i \ll \mathbf{R}$, the total signal can be approximated by $I_{\text{tot}}^{m/e} \approx N_q I^{m/e}(\mathbf{R})$.

C. Electric and Magnetic LDOS of Photonic Nanostructures

To evaluate the fluorescence signal Eq. (13), we need to know the (relative) decay rates for all optical transitions involved in the excitation/emission process (see Fig. 2). To demonstrate the general approach to calculate these decay rates, we consider the vacuum decay rates associated with the MD ($\Gamma_{3m}^{(0)}$) and ED ($\Gamma_{3e}^{(0)}$) transitions that are depicted in Fig. 2. These decay rates are modified in the presence of a photonic nanostructure [33–38],

$$\Gamma_{3m/e}(\mathbf{R}_i) = \frac{2\left(\mu_{31}^{m/e}\right)^2}{\hbar}\text{Im}\left\{\mathbf{S}^{HH/EE}(\mathbf{R}_i,\mathbf{R}_i,\omega_{31}):\mathbf{uu}\right\}, \tag{15}$$

where μ_{31}^m (μ_{31}^e) is the magnetic (electric) transition dipole amplitude, ω_{31} is the frequency associated with the transition, and $\mathbf{u}$ is the unit vector along its orientation. $\mathbf{S}^{HH}$ is the magnetic field susceptibility tensor associated with the MD transition of the europium and $\mathbf{S}^{EE}$ corresponds to the electric field susceptibility tensor related to the ED transition. Whatever the nature of the transition, the field susceptibility can be developed as the sum of two tensors,

$$\mathbf{S}^{HH/EE}(\mathbf{R}_i,\mathbf{R}_i,\omega_{31}) = \mathbf{S}_0^{HH/EE}(\mathbf{R}_i,\mathbf{R}_i,\omega_{31}) + \mathbf{S}_p^{HH/EE}(\mathbf{R}_i,\mathbf{R}_i,\omega_{31}), \tag{16}$$

where the tensor $\mathbf{S}_0^{HH/EE}(\mathbf{R}_i,\mathbf{R}_i,\omega_{31})$ represents the response function of vacuum (in general, this can be replaced by a field susceptibility describing the environment, including the substrate, without perturbation), and $\mathbf{S}_p^{HH/EE}(\mathbf{R}_i,\mathbf{R}_i,\omega_{31})$ is the response associated with the nanostructure. In the case of the magnetic decay rate, replacing the $\mathbf{S}^{HH}(\mathbf{R}_i,\mathbf{R}_i,\omega_{31})$ term in Eq. (15) by its developed expression [Eq. (16)] leads to [36]

$$\Gamma_{3m}(\mathbf{R}_i) = \Gamma_{3m}^{(0)} + \frac{2\left(\mu_{31}^m\right)^2}{\hbar}\text{Im}\left\{\mathbf{S}_p^{HH}(\mathbf{R}_i,\mathbf{R}_i,\omega_{31}):\mathbf{uu}\right\}, \tag{17}$$

where the superscript "(0)" in $\Gamma_{3m}^{(0)}$ refers to the spontaneous decay rate of the isolated emitter(s), without the presence of the perturbation. In the electric case, we have a similar expression of the decay rate [22]. Now, if the dipole is along a specific direction $\alpha \in \{x, y, z\}$, we can reformulate the Eq. (17) by introducing the partial, magnetic photonic LDOS $n_\alpha^H(\mathbf{R}_i,\omega_{31})$ [23],

$$n_\alpha^H(\mathbf{R}_i,\omega_{31}) = \frac{1}{2\pi^2\omega_{31}}\text{Im}\left\{\mathbf{S}_{p\alpha\alpha}^{HH}(\mathbf{R}_i,\mathbf{R}_i,\omega_{31})\right\}. \tag{18}$$

Finally, if we introduce Eq. (18) in Eq. (17), we obtain the partial decay rate for an emitter with orientation along direction α, as

$$\Gamma_{3m}^\alpha(\mathbf{r_m}) = \Gamma_{3m}^{(0)} + \frac{4\pi^2\omega_{31}\left(\mu_{31}^m\right)^2}{\hbar}n_\alpha^H(\mathbf{R}_i,\omega_{31}). \tag{19}$$

Analogously the LDOS can be calculated for an ED transition.

D. Simple Analytical Model

The partial LDOS introduced above and the decay rates for the electric and magnetic transitions can be obtained using a volume discretization scheme [28,36] for arbitrarily oriented emitters and for arbitrary illumination conditions on arbitrary nanostructures. Before we analyze the general case for several typical SNOM configurations, we first want to assess the behavior of the signal from the europium-doped SNOM tip using a simplified, analytical model example.

As schematically depicted in Fig. 3, we consider a SNOM tip with a single Eu^{3+} emitter, which is raster scanned along a line above a very small nanoparticle placed in vacuum. The system is illuminated by a plane wave of wavelength $\lambda_0 = 532$ nm at normal incidence and with linear polarization (along OY). We

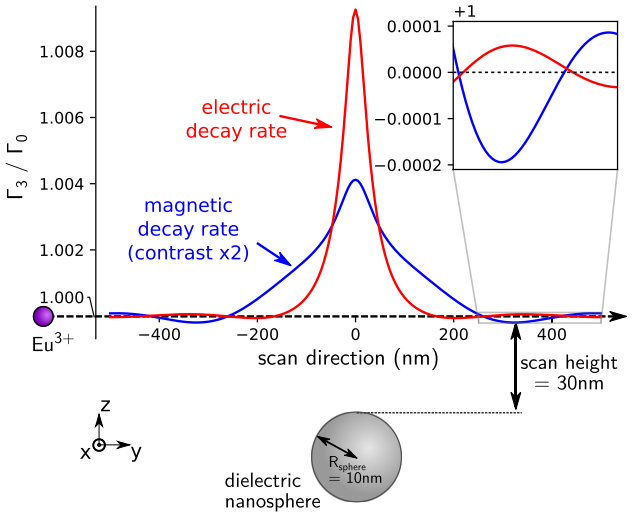

Fig. 3. Decay rate of a single electric (red, $\lambda_{ED} = 610$ nm) and magnetic (blue, $\lambda_{MD} = 590$ nm) dipole transition (orientation averaged, relative to an isolated emitter), scanned at a fixed height (30 nm) above the surface of a silicon nanosphere of radius $R_{\text{sphere}} = 10$ nm placed in a vacuum. The sphere lies at the center of the coordinate system.

will also assume for the moment that the SNOM tip is interacting only weakly with the plane wave, so we neglect its optical scattering.

While our formalism allows us to treat emitters of specific orientation without further modification [using the partial LDOS, e.g., Eq. (18) for the magnetic case; see also Appendix A], in practical cases the SNOM tip is usually doped by a large number of rare-earth emitters, where effectively an average of many orientations is recorded. The orientation-averaged magnetic LDOS $n^H(\mathbf{r}, \omega)$, influencing the MD transition, is written as

$$n^H(\mathbf{r}, \omega) = n^{(0)}(\mathbf{r}, \omega) + \frac{1}{2\pi^2\omega}\mathrm{Im}\left[\mathrm{Tr}\left(\mathbf{S}_p^{HH}(\mathbf{r}, \mathbf{r}, \omega)\right)\right], \tag{20}$$

where the field susceptibility $\mathbf{S}_p^{HH}(\mathbf{r}, \mathbf{r}, \omega)$ is defined as [36]

$$\mathbf{S}_p^{HH}(\mathbf{r}, \mathbf{r}, \omega) = \alpha(\omega)\mathbf{S}_0^{HE}(\mathbf{r}, 0, \omega) \cdot \mathbf{S}_0^{EH}(0, \mathbf{r}, \omega). \tag{21}$$

Here α is the polarizability of the observed nanosphere, ω the angular frequency of the illumination, and R_{sphere} its radius [39]:

$$\alpha(\omega) = R_{\mathrm{sphere}}^3 \frac{\varepsilon(\omega) - 1}{\varepsilon(\omega) + 2}. \tag{22}$$

The mixed field susceptibility is [40–42]

$$\mathbf{S}_0^{EH}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = ik_0 \nabla \wedge \mathbf{G}_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \mathbf{S}_0^{HE}(\mathbf{r}', \mathbf{r}, \omega), \tag{23}$$

where $\mathbf{G}_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ is the vacuum Green's tensor (e.g., see [33] or [36]). Developing the tensor product in Eq. (21) while assuming an emitter in the plane $\mathbf{r}_0 = (0, y_0, z_0)$ simplifies the expression for $\mathbf{S}_p^{HH}$ such that the different contributions to the *magnetic* LDOS in the near field and far field become easily discernible,

$$\mathbf{S}_p^{HH}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0, \omega) = \alpha(\omega) C e^{2ik_0 r_0} \left\{ -\frac{k_0^4}{r_0^4} - \frac{2ik_0^3}{r_0^5} + \frac{k_0^2}{r_0^6} \right\}, \tag{24}$$

where the matrix C is

$$C = \begin{pmatrix} z_0^2 + y_0^2 & 0 & 0 \\ 0 & z_0^2 & -z_0 y_0 \\ 0 & -z_0 y_0 & y_0^2 \end{pmatrix}. \tag{25}$$

We can do the same with the orientation-averaged electric LDOS,

$$n^E(\mathbf{r}, \omega) = n^{(0)}(\mathbf{r}, \omega) + \frac{1}{2\pi^2\omega}\mathrm{Im}\left[\mathrm{Tr}(\mathbf{S}_p^{EE}(\mathbf{r}, \mathbf{r}, \omega))\right]. \tag{26}$$

The electric–electric field susceptibility $\mathbf{S}_p^{EE}(\mathbf{r}, \mathbf{r}, \omega)$ is given by

$$\mathbf{S}_p^{EE}(\mathbf{r}, \mathbf{r}, \omega) = \alpha(\omega)\mathbf{S}_0^{EE}(\mathbf{r}, 0, \omega) \cdot \mathbf{S}_0^{EE}(0, \mathbf{r}, \omega), \tag{27}$$

where, using the notation of [1], the vacuum field susceptibility is written as

$$\mathbf{S}_0^{EE}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = [-k_0^2\mathbf{T}_1(\mathbf{r} - \mathbf{r}') - ik_0\mathbf{T}_2(\mathbf{r} - \mathbf{r}') + \mathbf{T}_3(\mathbf{r} - \mathbf{r}')]e^{ik_0|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}, \tag{28}$$

with

$$\mathbf{T}_1(\mathbf{r} - \mathbf{r}') = \frac{(\mathbf{r} - \mathbf{r}')(\mathbf{r} - \mathbf{r}') - \mathbf{I}|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^2}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^3}, \tag{29}$$

$$\mathbf{T}_2(\mathbf{r} - \mathbf{r}') = \frac{3(\mathbf{r} - \mathbf{r}')(\mathbf{r} - \mathbf{r}') - \mathbf{I}|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^2}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^4}, \tag{30}$$

$$\mathbf{T}_3(\mathbf{r} - \mathbf{r}') = \frac{3(\mathbf{r} - \mathbf{r}')(\mathbf{r} - \mathbf{r}') - \mathbf{I}|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^2}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|^5}, \tag{31}$$

where $\mathbf{I}$ is the identity matrix. The three dyadic tensors $\mathbf{T}_3$, $\mathbf{T}_2$, and $\mathbf{T}_1$ describe effects from the near field to the far field. Explicitly, this gives

$$\mathbf{S}_p^{EE}(\mathbf{r}, \mathbf{r}, \omega) = \alpha(\omega)e^{2ik_0 r}[k_0^4\mathbf{T}_1 \cdot \mathbf{T}_1 + 2ik_0^3\mathbf{T}_1 \cdot \mathbf{T}_2 - 2k_0^2\mathbf{T}_1 \cdot \mathbf{T}_3 - 2ik_0\mathbf{T}_2 \cdot \mathbf{T}_3 - k_0^2\mathbf{T}_2 \cdot \mathbf{T}_2 + \mathbf{T}_3 \cdot \mathbf{T}_3]. \tag{32}$$

By performing the tensor products and once more assuming a dipole at a location in the plane $\mathbf{r}_0 = (0, y_0, z_0)$, we obtain an expression in which we can identify the different near- and far-field contributions to the electric LDOS as

$$\mathbf{S}_p^{EE}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_0, \omega) = \alpha(\omega)e^{2ik_0 r_0}\left[\left\{\frac{k_0^4}{r_0^4} + \frac{2ik_0^3}{r_0^5} - \frac{2k_0^2}{r_0^6}\right\}A + \left\{\frac{1}{r_0^8} - \frac{2ik_0}{r_0^7} - \frac{k_0^2}{r_0^6}\right\}B\right], \tag{33}$$

with

$$A = \begin{pmatrix} z_0^2 + y_0^2 & 0 & 0 \\ 0 & z_0^2 & -y_0 z_0 \\ 0 & -y_0 z_0 & y_0^2 \end{pmatrix} \tag{34}$$

and

$$B = \begin{pmatrix} z_0^2 + y_0^2 & 0 & 0 \\ 0 & 4y_0^2 + z_0^2 & 3y_0 z_0 \\ 0 & 3y_0 z_0 & 4z_0^2 + y_0^2 \end{pmatrix}. \tag{35}$$

Figure 3 shows the orientation-averaged electric (red) and magnetic (blue) decay rates above a silicon nanosphere of a 10 nm radius, raster scanned by a single europium atom at a height of 30 nm. We observe that, while at short distances to the nanosphere, the electric and magnetic decay rates have the same positive sign. At the transition to the far field, an inversion in the contrast between Γ_e and Γ_m occurs [38]. This reflects the opposite signs in the r^{-4} and r^{-5} terms of Eqs. (24) and (33).

3. FROM A POINT-LIKE EUROPIUM EMITTER TO A DOPED SNOM TIP

We now want to analyze the influence of the excitation light intensity (i.e., the Rabi frequency Ω) on the SNOM signal. We can use the calculated decay rates together with the self-consistent electric field at the location of the europium atoms to obtain the population $\widehat{\rho_{33}}$ of the light-emitting Eu^{3+} energy level $^5D_0$ and finally the signal Eq. (13), emitted by the europium ion. We determine these via a volume discretization [1], implemented in our homemade python toolkit "pyGDM" [28]. Since the rates depend on several factors that include the

Table 1. Decay Rates of the Considered Transitions in Our Numerical Examples[a]

Transition	Corresponding Levels	Decay Rate (ms^{-1})
$\Gamma_2^{(0)}$	${}^5D_1 \rightarrow {}^7F_1/{}^7F_2$	1000
$K^{(0)}$	${}^5D_1 \rightarrow {}^5D_0$	10000
$\Gamma_{3m/e}^{(0)}$	${}^5D_0 \rightarrow {}^7F_1/{}^7F_2$	1

[a]The first column represents the transition, the second gives its initial and final energy level. The decay rate of the isolated emitter (without nanostructure) is given in the third column.

embedding polymer [43], we choose a value of 1 ms^{-1} for the decay rates $\Gamma_{3e/m}^{(0)}$ of the metastable electric and magnetic energy levels $|3\rangle$. Relative to the $\Gamma_{3e/m}$ transitions, we chose the Γ_2 transition to be $\times 10^3$ faster and the K transition to decay an additional order of magnitude faster (see Table 1). We emphasize that this is an arbitrary choice of the decay rates for our numerical demonstration. In simulations aiming at the comparison to measurements, experimentally determined values for the decay rates of the employed probe should be used.

A. Point-like, Single Europium Emitter

We show in Fig. 4(a) the electric field intensity in a plane at a distance $\Delta z = 60$ nm above the surface of the $R_{\text{sphere}} = 10$ nm silicon nanosphere illuminated by a plane wave of wavelength $\lambda_0 = 532$ nm under normal incidence (linear polarization along Y). Figures 4(b)–4(d) show maps of the (orientation-averaged) decay rates Γ_2, Γ_{3e}, and Γ_{3m}.

We use these quantities to calculate after Eq. (13) the signal of the europium atom at every position of the scanned area. The signal due to the electric and due to the magnetic transition is plotted in Figs. 4(e) and 4(f), respectively, for increasing intensities of the illuminating light. The illumination intensities are indicated by colored markers in Fig. 4(g), which shows the population $\widehat{\rho_{33}}$ of the emitting energy level as function of the excitation intensity. For the calculation of $\widehat{\rho_{33}}$ in Fig. 4(g), the europium atom is centered on top of the silicon sphere. We see that in the case of an illumination below saturation [purple marker in Fig. 4(g)], both the MD and the ED transition signals correspond to the near-field intensity distribution. On the other hand, if the energy-level $|3\rangle$ is saturated due to a strong illumination intensity, the recorded signal is proportional to the local decay rate $\Gamma_{3e/m}$; hence, to the relative electric (using the ED transition) or magnetic (using the MD transition) LDOS. For intermediate light intensities, the maps undergo a transition between near-field distribution and LDOS. We note that almost full saturation [$\gtrsim 0.9$ in Fig. 4(g)] is required to yield a signal proportional to the LDOS.

B. Large Probes with Inhomogeneous Emitter Density

So far we considered a single europium emitter as a SNOM probe. However, in realistic cases, active SNOM probes are usually rather large, polymer-based or other dielectric nanoparticles with diameters of at least around 100 nm [13–15,17,19,44]. We therefore use our method in the following to assess the impact of a larger detection volume, in which emitters might

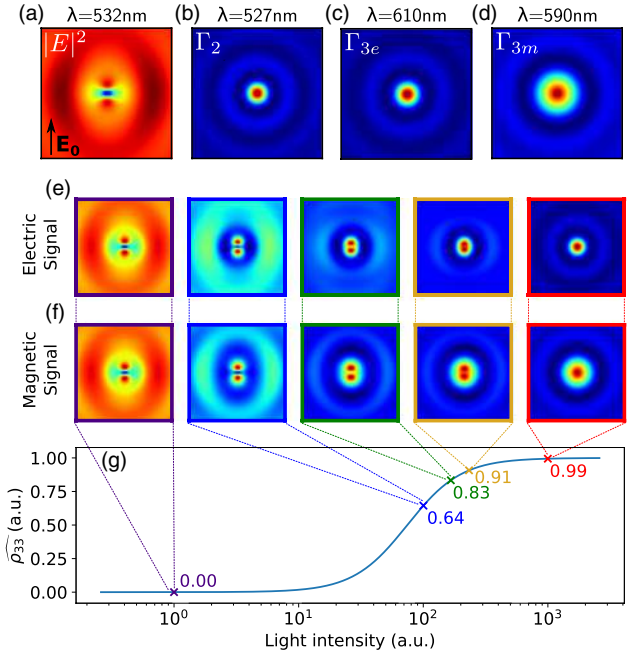

Fig. 4. Evolution of the simulated electric and magnetic signal to increase illumination intensity, calculated for a single europium atom, raster scanned above a plane-wave-illuminated silicon nanosphere ($R_{\text{sphere}} = 10$ nm) in a vacuum. The atom is raster scanned at a fixed height $\Delta z = 60$ nm above the top surface of the Si sphere. (a) Near-field map at $\lambda_0 = 532$ nm. (b) and (c) Electric decay rate maps at $\lambda_{\text{ED}} = 527$ nm and $\lambda_{\text{ED}} = 610$ nm. (d) Magnetic decay rate map at $\lambda_{\text{MD}} = 590$ nm in the plane defined by $\Delta z = 60$ nm. (e) Electric and (f) magnetic europium signal maps. Each map is related to the population specified with the same color of the marker as used for the frame around the map. (g) Semilogarithmic representation of the saturation curve of the active level $\widehat{\rho_{33}}$ as a function of the laser intensity, when the atom is centered above the sphere. The maps show areas of 1200×1200 nm^2.

be dispersed with an inhomogeneous density distribution. To simulate such inhomogeneous emitter densities, we randomly distribute $N_q = 20$ europium atoms in a spherical volume of radius R_{tip}, which represents the emitter-doped bead at the SNOM tip apex. In the inset of Fig. 5(a) we show a sketch of this numerical model. We now raster scan the assembly of 20 europium atoms on a line at constant height defined by a fixed spacing of $H = 20$ nm between the SNOM tip and the nano-object, as illustrated in the inset of Fig. 5(b). The imaged object is again a silicon nanosphere of radius $R_{\text{sphere}} = 10$ nm. At each tip position we calculate the signal of the ensemble of emitters via Eq. (14).

For nonsaturated illumination [Fig. 5(a)], we found earlier that the signal of each Eu^{3+} ion is proportional to the local near-field intensity. Since we now calculate the sum of signals from different locations, we expect to obtain some broadening if the SNOM tip increases in size. For a small active volume, the spatial near-field distribution is reproduced quite accurately. The signal from larger tip beads, however, broadens and the intensity decreases [light green lines in Fig. 5(a)]. The decrease of the signal is due to the fixed amount of europium emitters in our model. To reflect constant emitter density, it could be multiplied by a volume-scaling factor, but that is not the main point here.

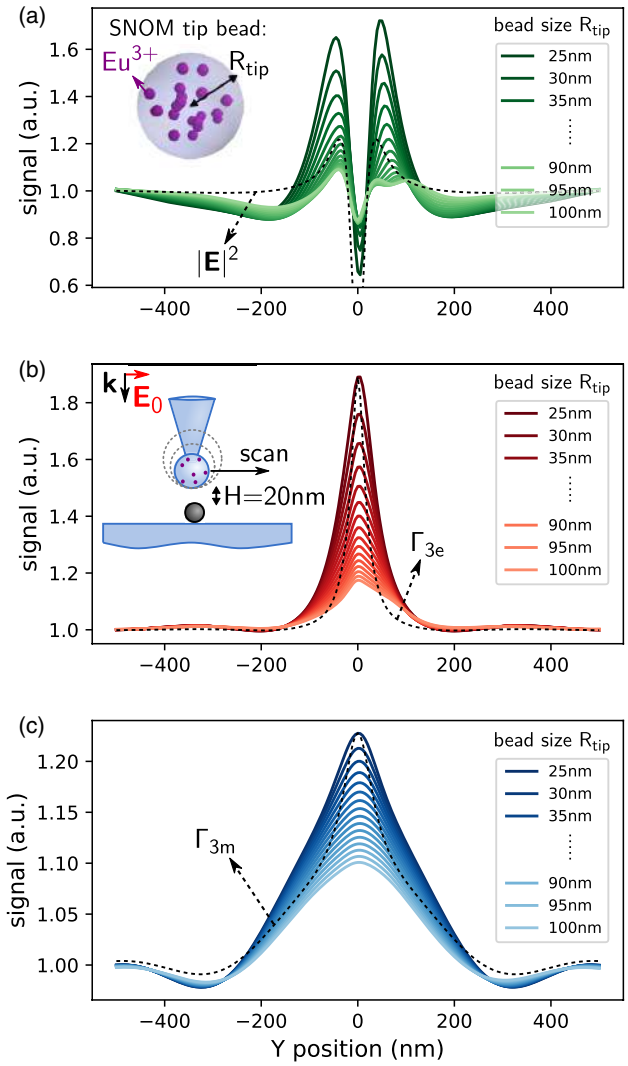

Fig. 5. Influence of the SNOM tip size (increasing radius R_{tip} of Eu^{3+}-doped bead) on the recorded SNOM signal. The SNOM tip is doped by 20 randomly distributed Eu^{3+} emitters [see inset in (a)]. As illustrated in the inset in (b), the tip is scanned above a spherical silicon particle (sphere of radius 10 nm), lying on a dielectric substrate ($n_s = 1.5$) in air ($n_{env} = 1$). The scanning plane height is fixed at $H = 20$ nm above the surface of the silicon sphere (distance: tip bead bottom surface to Si sphere top surface). The figures show the signal of the electric transition Γ_{3e} under (a) nonsaturated and (b) saturated excitation and of (c) the magnetic europium transition Γ_{3m} under saturation for increasing SNOM bead size. Dashed black lines indicate (a) the near-field intensity, (b) the electric decay rate Γ_{3e}, and (c) the magnetic decay rate Γ_{3m} at the bottom surface of the probe. The data are re-normalized to the scale of the signal. (b) and (c) Signals plotted on the same scale, but the signal in (a) is several orders of magnitude weaker and normalized separately. This random arrangement of the emitters causes a slight asymmetry in the signal profiles.

More importantly, since some emitters of the random Eu^{3+} distribution are now much closer to the probed object than others, the closest near-field zone with usually strongest intensity enhancement is probed by only a few, randomly distributed europium atoms. The random distribution finally leads to some nonsymmetric features in the recorded signal.

In the case of saturation, shown in Figs. 5(b) and 5(c), an increase of the SNOM bead size leads again to a broadening of the signal, which can be observed in the case of the electric transition [Fig. 5(b)] as well as the magnetic transition [Fig. 5(c)]. The ED signal is proportional to Γ_{3e}, which we found to strongly increase in close proximity to a nanostructure due to the near-field term $\mathbf{T}_3$ [see Eq. (33) and Fig. 3]. Consequently, in a large SNOM tip, a few emitters in the SNOM bead that are closest to the probed nanostructure now contribute particularly strongly to the full signal. The random distribution of emitters furthermore leads to an offset in the peak intensity and to an asymmetric line shape.

In summary, while we find that SNOM tip volumes of an important size also lead to signals that are proportional to the near-field intensity (under nonsaturated excitation) or to the electric or magnetic LDOS (in the saturated regime), spatial features are broadened with the increasing probe size, which reduces the spatial resolution of the SNOM. Furthermore, inhomogeneous emitter distributions in the active volume can distort the signals and may lead to asymmetric and shifted features in the spatial signal profiles. In conclusion, as active SNOM probes are usually of relatively large size, a careful interpretation is crucial in the analysis of the experimental data. On the other hand, using specifically designed calibration samples, the distortion effects described above may, to some extent, be taken into account in data post-processing.

C. Several Typical SNOM Configurations

Finally, we want to compare and analyze the expected signal in several typical, realistic SNOM configurations. In this analysis we again assume a single point-like emitter in the SNOM bead. Of course, the above findings for large probes also apply here. To further demonstrate the capability of our formalism to also calculate signals for nonspherical nanostructures, we use an equilateral triangular silicon nanoprism for our demonstration, as depicted in Fig. 6(a). Thanks to the concept of a generalized propagator [1,27], and also in the case of such arbitrarily shaped particles, the e-/m-LDOS as well as the total field intensity at the location of the europium atom can be calculated very efficiently at the different probe positions [45]. The mappings of the optical transition decay rates in the scanning plane are depicted in Fig. 6(b). The illumination electric field intensity distributions for the respective SNOM configurations are shown in the insets in the SNOM schematics at the tops of Figs. 6(c) and 6(d).

Figure 6(c) shows the case of a scattering-type ("apertureless") SNOM, which corresponds essentially to the configuration that we considered until now. The only difference is that here we consider an illumination at a 45° oblique angle of incidence (shown: "p" polarization). As expected, at low intensities [top panels just below the illustration in Fig. 6(c)] the signal of both ED and MD transitions correspond to the electric field intensity distribution. On the other hand, in the saturated scenario, according to the observed quantum transition, we obtain a mapping of either the electric or the magnetic LDOS.

In another typical type of SNOM, the illumination is established via total internal reflection, in which case the sample is deposited on a dielectric prism, whose surface is illuminated from below at a critical angle. This is schematically shown at

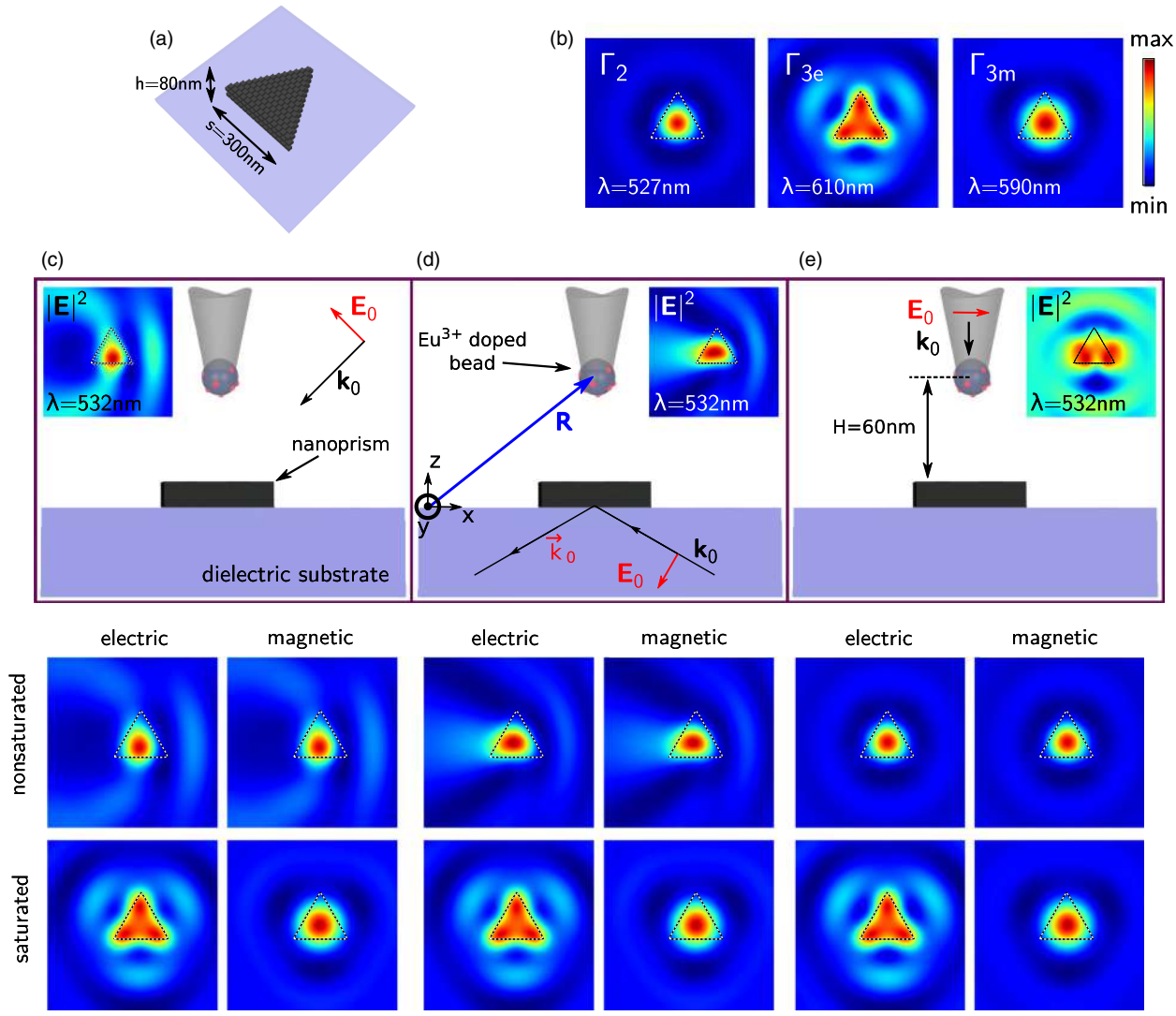

Fig. 6. SNOM signal from raster scanning a $R_{tip} = 50$ nm large Eu^{3+}-doped nanobead above a equilateral triangular silicon nanoprism of uniform side lengths $s = 300$ nm and height $h = 80$ nm, lying on a dielectric substrate ($n_s = 1.5$) surrounded by air. The scanning plane is parallel to the substrate, the center of the SNOM bead being at a height $H = 60$ nm above the nanoprism's top surface. (a) Geometry of the nanoprism and its dimensions. (b) Scanning plane mappings of the decay rates that contribute to the SNOM image formation. (c)–(e) Different SNOM configurations. Top subplots: Illustration of the considered optical setup. Bottom plots: Signal from the europium ED (left column) and MD (right column) transition under nonsaturated (top row) and saturated (bottom row) excitation. (c) Scattering type SNOM illuminated with a p-polarized plane wave at 40° angle of incidence. (d) Total internal reflection SNOM, illuminated with a p-polarized plane wave from below at the critical angle (−45°). (e) Fiber-illuminated (apertured) SNOM. Linear (x-) polarized illumination of the bead through a fiber. Incident wavelength is $\lambda_0 = 532$ nm. All color maps show areas of $1 \times 1\ \mu m^2$.

the top of Fig. 6(d). If the illumination is kept at a low intensity, again the near-field intensity distribution is detected by the raster-scanned SNOM probe (cf. inset in illustration). Likewise, when the energy level $|3\rangle$ is saturated, a map of part of the LDOS is obtained that corresponds to the observed optical transition. The main difference here is that the excitation is now due to an evanescent field at the substrate interface, leading to a different near-field distribution at the sample.

Finally, we consider the case of a fiber-illuminated SNOM [Fig. 6(e)]. Here the Eu^{3+} doped nanobead is attached to an optical fiber through which it is illuminated by a laser. We model the illumination by a plane wave at the position of the nanobead, but which elsewhere is zero. Only indirectly, a small portion of the laser light reaches the sample after scattering at the SNOM tip. In the case of high laser intensity, when saturating the emitters, this configuration is again capable of detecting the electric and magnetic parts of the photonic LDOS. However, at low intensities where the other configurations are sensitive to the local field, the situation is more complex. As mentioned above, the nanostructure is illuminated by the scattered laser light at the SNOM apex nanobead. This corresponds to illuminating the system by a (weak) dipolar source. The total field intensity at the nanobead location [inset in the illustration in Fig. 6(e)] is now a superposition of the laser illumination arriving through the fiber and the comparatively very weak backscattering by the nanostructure. Compared to the backscattering from the nanostructure, the contribution of the laser is strong; hence, the field variations due to scattering at the nanostructure are

very weak. Consequently, other contributions to the population density of the emitting energy level Eq. (17) may become visible. Indeed, here we obtain a mapping that resembles the LDOS at the wavelength of the excitation transition Γ_2. In our model, the transition $|1\rangle \rightarrow |2\rangle$ is of electric dipolar nature in both the ED and the MD emission cases. Hence, the low-intensity signal is identical for the electric and the magnetic transitions. We note that this behavior is dependent on the relative decay rates in the three-level quantum system. For instance, in an emitter system with much higher decay rate Γ_2, the signal under nonsaturated excitation corresponds again to the electric field intensity distribution, rather than to Γ_2. When interpreting experimental data of such a SNOM system, it is therefore important to carefully choose the relative decay rates of the employed quantum system.

We finally note that the signal here is entirely shaped by the near-field interaction and photodynamics in the electronic three-level system of the europium. While in SNOM configurations with a passive probe, a large solid angle of detection is required to get access to the photonic LDOS [9], this limitation does not affect active SNOM probes, which facilitates the implementation of the detection scheme in these experiments.

4. CONCLUSIONS

In conclusion, we presented a quantum theory that fully describes the optical interactions and photodynamics in SNOM using rare-earth ions as active quantum probes. Such a SNOM configuration allows the electric and *magnetic* parts of the photonic LDOS to be probed separately. Our approach not only allows theoretically modeling of the SNOM image formation associated to these two parts of the LDOS, it also is able to fully describe the transition from the nonsaturated to the saturated excitation regime. We find that while low excitation intensity generally results in SNOM signals proportional to the electric near-field intensity, saturated emitters yield a signal corresponding to the electric or magnetic LDOS, depending on the detected quantum transition (ED or MD). Together with a numerical discretization scheme, our method can be applied to nanostructures of arbitrary shape and material, and a substrate can be included without any effort. Moreover, we demonstrated that the method can be easily adapted to various SNOM configurations. We foresee that by using experimental constants for the energy levels and decay rates of the concerned quantum transitions, our theory will be very useful to interpret active-probe SNOM images and to estimate in which regime (saturation or not) the SNOM data are recorded. Our model can be directly adapted to the case of resonant driving of a magnetic transition at the excitation using focused vector beams [46], in which case an active SNOM probe might be rendered sensitive also to the intensity distribution of the optical magnetic field. Finally, the approach is not limited to rare-earth elements and also can be applied to other types of quantum emitter systems.

APPENDIX A: EMITTER ORIENTATION DEPENDENCE OF SNOM SIGNAL

In practical situations, a europium SNOM tip usually contains a large number of rare-earth atoms, so the average orientation of the quantum emitters is arbitrary. To simulate this situation, we take a trace of the field susceptibility [Eqs. (20) and (26)]. Our formalism is, however, not restricted to using the orientation-average of the emitters. By using the *partial* LDOS [see Eq. (18)] instead of the trace, we obtain the SNOM signal due to an emitter of a specific orientation. In cases where a preferential orientation of the dipole moments occurs, it can have a significant impact on the recorded signal, which is demonstrated in Fig. 7 as an example of the SNOM signal due to an electric dipole transition. Figures 7(a)–7(c) show the case of the nonsaturated excitation of a single quantum emitter, raster scanned on top of a small dielectric sphere. Figures 7(d)–7(f) show the same raster scan in the case of saturated excitation. The geometry and illumination conditions are identical to Fig. 4. The nonsaturated and saturated excitations correspond to the light intensities 10^0 and 10^3 (a.u.) in Fig. 4, respectively.

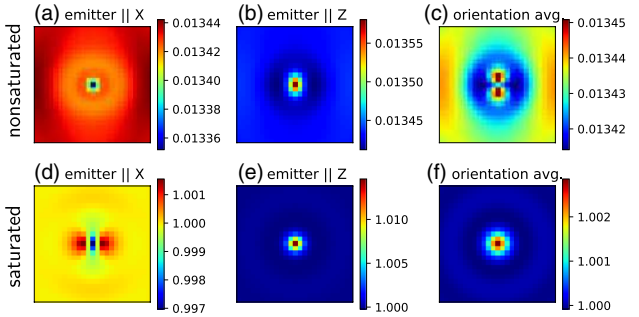

Fig. 7. Same simulation as in Fig. 4(e), but using a dipole of specific orientation. (a) and (d) Electric dipole signal for an emitter along X. (b) and (e) ED transition along Z. (c) and (f) ED transition orientation averaged; hence, same situation as in Fig. 4(e), left-most and right-most panels. Normally incident plane wave with $\lambda_0 = 532$ nm, emitter atom scanned in a plane at $\Delta z = 60$ nm above the top surface of a silicon sphere of 10 nm radius, lying on an $n_s = 1.45$ substrate. (a)–(c) Correspond to nonsaturated and (d)–(f) correspond to saturated excitation. Color scale corresponds to the SNOM emitter signal in arbitrary units. Shown areas are 800×800 nm^2.

APPENDIX B: INFLUENCE OF A LARGE SNOM TIP ON RECORDED SNOM SIGNAL

The LDOS inside a (dielectric) nanosphere depends strongly on the size and supported modes of the particle [47]. In the main text, we approximated the optical contribution of the doped SNOM-tip material by a point–dipole model. To justify this approximation, we want to assess the impact of an actual sphere on the photonic LDOS at the location of the probe emitters. To this end, we show in Fig. 8(a) the LDOS at a height $H = 65$ nm above the top surface of a small dielectric sphere ($n_{\text{sphere}} = 2$, $R_{\text{sphere}} = 30$ nm), deposited on a glass substrate ($n_s = 1.45$). This situation corresponds to the model used throughout this paper, where the SNOM tip was approximated as a point–dipole. This approximation takes into account only scattering of the illumination, but is neglecting the SNOM tip's influence on the relative LDOS at the emitter position. Figure 8(b) shows a raster-scan simulation, in which the SNOM sphere was modeled with the same discretization as the probed object. The SNOM sphere is of the same material ($n_{\text{SNOM}} = 2$), and discretized with the same step-size ($s = 15$; nm) but is of

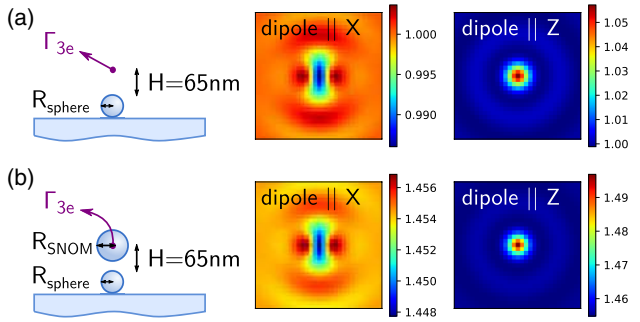

Fig. 8. Relative electric decay rate at $\lambda_{ED} = 527$ nm calculated at $H = 65$ nm above the top surface of a small dielectric sphere of radius $R_{sphere} = 30$ nm (a) in vacuum and (b) at the center inside an actually simulated dielectric sphere, representing the doped SNOM tip ($R_{SNOM} = 50$ nm). Material of sphere and SNOM tip are identical ($n_{sphere} = 2$), and the sphere is lying on a glass substrate ($n_s = 1.45$). Shown areas are 800×800 nm^2. The slight color difference in X-orientation is mainly due to a small shift in the color-range autoscaling of our plotting software.

a larger size ($R_{SNOM} = 50$ nm). We calculate the LDOS *inside* the discretized SNOM-tip sphere at the location of the centre mesh cell as described in Section 4.3.2 of [28]. We note that here we consider an extreme case, where the SNOM tip is larger than the probed object. We find that, except for a global offset in the decay rate and a small scaling correction, the images in both cases (isolated emitter, emitter inside SNOM tip) are actually quasi-identical. Our model allows the incorporation of the LDOS offset due to the material of the SNOM tip in the Γ_0 values. In conclusion, we find that the presence of the SNOM tip can be included in a good approximation by a point–dipole model.

Funding. Deutsche Forschungsgemeinschaft (WI 5261/1-1); French Programme Investissements d'Avenir (ANR-11-IDEX-0002-02, reference ANR-10-LABX-0037-NEXT).

Acknowledgment. The authors thank G. Colas des Francs for fruitful discussions. Peter R. Wiecha acknowledges support by the German Research Foundation (DFG) through a research fellowship. Aurélien Cuche acknowledges funding from the French Programme Investissements d'Avenir. This work was supported by the computing center CALMIP in Toulouse. All data supporting this study are openly available from the University of Southampton repository (DOI: 10.5258/SOTON/D1176).

Disclosures. The authors declare no conflicts of interest.

REFERENCES

1. C. Girard, "Near fields in nanostructures," Rep. Prog. Phys. **68**, 1883–1933 (2005).
2. M. F. Crommie, C. P. Lutz, and D. M. Eigler, "Confinement of electrons to quantum corrals on a metal surface," Science **262**, 218–220 (1993).
3. S. Crampin and O. R. Bryant, "Fully three-dimensional scattering calculations of standing electron waves in quantum nanostructures: The importance of quasiparticle interactions," Phys. Rev. B **54**, R17369–R17370 (1996).
4. C. Chicanne, T. David, R. Quidant, J. Weeber, Y. Lacroute, E. Bourillot, A. Dereux, G. Colas des Francs, and C. Girard, "Imaging the local density of states of optical corrals," Phys. Rev. Lett. **88**, 097402 (2002).
5. A. Dereux, C. Girard, C. Chicanne, G. C. des Francs, T. David, E. Bourillot, Y. Lacroute, and J. C. Weeber, "Subwavelength mapping of surface photonic states," Nanotechnology **14**, 935–938 (2003).
6. Y. Babayan, J. M. McMahon, S. Li, S. K. Gray, G. C. Schatz, and T. W. Odom, "Confining standing waves in optical corrals," ACS Nano **3**, 615–620 (2009).
7. R. Carminati, A. Cazé, D. Cao, F. Peragut, V. Krachmalnicoff, R. Pierrat, and Y. De Wilde, "Electromagnetic density of states in complex plasmonic systems," Surf. Sci. Rep. **70**, 1–41 (2015).
8. J.-J. Greffet and R. Carminati, "Image formation in near-field optics," Prog. Surf. Sci. **56**, 133–237 (1997).
9. G. Colas des Francs, C. Girard, J.-C. Weeber, and A. Dereux, "Relationship between scanning near-field optical images and local density of photonic states," Chem. Phys. Lett. **345**, 512–516 (2001).
10. F. J. García de Abajo, "Optical excitations in electron microscopy," Rev. Mod. Phys. **82**, 209–275 (2010).
11. A. Arbouet, A. Mlayah, C. Girard, and G. Colas des Francs, "Electron energy losses and cathodoluminescence from complex plasmonic nanostructures: spectra, maps and radiation patterns from a generalized field propagator," New J. Phys. **16**, 113012 (2014).
12. A. Losquin and M. Kociak, "Link between cathodoluminescence and electron energy loss spectroscopy and the radiative and full electromagnetic local density of states," ACS Photon. **2**, 1619–1627 (2015).
13. J. Michaelis, C. Hettich, J. Mlynek, and V. Sandoghdar, "Optical microscopy using a single-molecule light source," Nature **405**, 325–328 (2000).
14. A. Cuche, B. Masenelli, G. Ledoux, D. Amans, C. Dujardin, Y. Sonnefraud, P. Mélinon, and S. Huant, "Fluorescent oxide nanoparticles adapted to active tips for near-field optics," Nanotechnology **20**, 015603 (2009).
15. A. Cuche, M. Berthel, U. Kumar, G. Colas des Francs, S. Huant, E. Dujardin, C. Girard, and A. Drezet, "Near-field hyperspectral quantum probing of multimodal plasmonic resonators," Phys. Rev. B **95**, 121402 (2017).
16. G. Colas des Francs, C. Girard, and A. Dereux, "Theory of near–field optical imaging with a single molecule as light source," J. Chem. Phys. **117**, 4659–4665 (2002).
17. L. Aigouy, A. Cazé, P. Gredin, M. Mortier, and R. Carminati, "Mapping and quantifying electric and magnetic dipole luminescence at the nanoscale," Phys. Rev. Lett. **113**, 076101 (2014).
18. B. Choi, M. Iwanaga, Y. Sugimoto, K. Sakoda, and H. T. Miyazaki, "Selective plasmonic enhancement of electric- and magnetic-dipole radiations of Er ions," Nano Lett. **16**, 5191–5196 (2016).
19. C. Ernandes, H.-J. Lin, M. Mortier, P. Gredin, M. Mivelle, and L. Aigouy, "Exploring the magnetic and electric side of light through plasmonic nanocavities," Nano Lett. **18**, 5098–5103 (2018).
20. P. R. Wiecha, C. Majorel, C. Girard, A. Arbouet, B. Masenelli, O. Boisron, A. Lecestre, G. Larrieu, V. Paillard, and A. Cuche, "Enhancement of electric and magnetic dipole transition of rare-earth-doped thin films tailored by high-index dielectric nanostructures," Appl. Opt. **58**, 1682–1690 (2019).
21. L. Sun, B. Bai, and J. Wang, "Probing vectorial near field of light: imaging theory and design principles of nanoprobes," Opt. Express **26**, 18644–18663 (2018).
22. C. Girard, O. J. F. Martin, G. Lévèque, G. C. des Francs, and A. Dereux, "Generalized Bloch equations for optical interactions in confined geometries," Chem. Phys. Lett. **404**, 44–48 (2005).
23. G. Colas des Francs, C. Girard, J. Weeber, C. Chicane, T. David, A. Dereux, and D. Peyrade, "Optical analogy to electronic quantum corrals," Phys. Rev. Lett. **86**, 4950–4953 (2001).
24. R. Hillenbrand, B. Knoll, and F. Keilmann, "Pure optical contrast in scattering-type scanning near-field microscopy," J. Microsc. **202**, 77–83 (2001).
25. F. Huth, A. Govyadinov, S. Amarie, W. Nuansing, F. Keilmann, and R. Hillenbrand, "Nano-FTIR absorption spectroscopy of molecular

fingerprints at 20 nm spatial resolution," Nano Lett. **12**, 3973–3978 (2012).
26. J. A. Porto, R. Carminati, and J.-J. Greffet, "Theory of electromagnetic field imaging and spectroscopy in scanning near-field optical microscopy," J. Appl. Phys. **88**, 4845–4850 (2000).
27. O. J. F. Martin, C. Girard, and A. Dereux, "Generalized field propagator for electromagnetic scattering and light confinement," Phys. Rev. Lett. **74**, 526–529 (1995).
28. P. R. Wiecha, "pyGDM—A python toolkit for full-field electrodynamical simulations and evolutionary optimization of nanostructures," Comput. Phys. Commun. **233**, 167–192 (2018).
29. G. Colas des Francs, C. Girard, T. Laroche, G. Lévèque, and O. J. F. Martin, "Theory of molecular excitation and relaxation near a plasmonic device," J. Chem. Phys. **127**, 034701 (2007).
30. K. Binnemans, "Interpretation of europium(III) spectra," Coord. Chem. Rev. **295**, 1–45 (2015).
31. N. Noginova, G. Zhu, M. Mavy, and M. A. Noginov, "Magnetic dipole based systems for probing optical magnetism," J. Appl. Phys. **103**, 07E901 (2008).
32. C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg, *Optical Bloch Equations* (Wiley, 2008), Chap. 5, pp. 353–405.
33. G. S. Agarwal, "Quantum electrodynamics in the presence of dielectrics and conductors. I. Electromagnetic-field response functions and black-body fluctuations in finite geometries," Phys. Rev. A **11**, 230–242 (1975).
34. A. Kwadrin and A. F. Koenderink, "Probing the electrodynamic local density of states with magnetoelectric point scatterers," Phys. Rev. B **87**, 125123 (2013).
35. D. G. Baranov, R. S. Savelev, S. V. Li, A. E. Krasnok, and A. Alù, "Modifying magnetic dipole spontaneous emission with nanophotonic structures," Laser Photon. Rev. **11**, 1600268 (2017).
36. P. R. Wiecha, A. Arbouet, A. Cuche, V. Paillard, and C. Girard, "Decay rate of magnetic dipoles near non-magnetic nanostructures," Phys. Rev. B **97**, 085411 (2018).
37. B. Rolly, B. Bebey, S. Bidault, B. Stout, and N. Bonod, "Promoting magnetic dipolar transition in trivalent lanthanide ions with lossless Mie resonances," Phys. Rev. B **85**, 245432 (2012).
38. P. Lunnemann and A. F. Koenderink, "The local density of optical states of a metasurface," Sci. Rep. **6**, srep20655 (2016).
39. B. T. Draine, "The discrete-dipole approximation and its application to interstellar graphite grains," Astrophys. J. **333**, 848–872 (1988).
40. I. Sersic, C. Tuambilangana, T. Kampfrath, and A. F. Koenderink, "Magnetoelectric point scattering theory for metamaterial scatterers," Phys. Rev. B **83**, 245102 (2011).
41. U. Schröter, "Modelling of magnetic effects in near-field optics," Eur. Phys. J. B **33**, 297–310 (2003).
42. C. Girard, J.-C. Weeber, A. Dereux, O. J. F. Martin, and J.-P. Goudonnet, "Optical magnetic near-field intensities around nanometer-scale surface structures," Phys. Rev. B **55**, 16487–16497 (1997).
43. N. M. Shavaleev, S. V. Eliseeva, R. Scopelliti, and J.-C. G. Bünzli, "Influence of symmetry on the luminescence and radiative lifetime of nine-coordinate europium complexes," Inorg. Chem. **54**, 9166–9173 (2015).
44. M. Sanz-Paz, C. Ernandes, J. U. Esparza, G. W. Burr, N. F. van Hulst, A. Maitre, L. Aigouy, T. Gacoin, N. Bonod, M. F. Garcia-Parajo, S. Bidault, and M. Mivelle, "Enhancing magnetic light emission with all-dielectric optical nanoantennas," Nano Lett. **18**, 3481–3487 (2018).
45. A. Teulle, R. Marty, S. Viarbitskaya, A. Arbouet, E. Dujardin, C. Girard, and G. Colas des Francs, "Scanning optical microscopy modeling in nanoplasmonics," J. Opt. Soc. Am. B **29**, 2431–2437 (2012).
46. M. Kasperczyk, S. Person, D. Ananias, L. D. Carlos, and L. Novotny, "Excitation of magnetic dipole transitions at optical frequencies," Phys. Rev. Lett. **114**, 163903 (2015).
47. H. Schniepp and V. Sandoghdar, "Spontaneous emission of europium ions embedded in dielectric nanospheres," Phys. Rev. Lett. **89**, 257403 (2002).

Résumé article "Design of plasmonic directional antennas via evolutionary optimization"

Un autre projet réalisé au cours de la thèse, et qui n'a pas été développé dans ce manuscrit, concerne la conception d'antenne plasmonique directionnelle à l'aide d'algorithme évolutionniste. Ces travaux ont conduit à la publication page suivante.

Dans cet article, nous cherchons à optimiser l'arrangement d'une assemblée de plots plasmoniques afin d'avoir la diffusion la plus directionnelle possible. Notre méthode est basée sur une combinaison de simulations électrodynamiques plein champ via la GDM et d'optimisation évolutionniste. Nous avons montré que les structures obtenues par optimisation fonctionnent sur les mêmes principes que les antennes radiofréquences. Nous démontrons la polyvalence de notre approche en concevant diverses antennes optiques directionnelles pour différents problèmes de diffusion.

Les antennes conçues à partir de tels algorithmes sont intéressantes pour de nombreuses applications. Ces dernières sont totalement différentes de structures simples qui sont envisagées en se basant sur des propriétés géométriques basiques. Par conséquent, l'optimisation évolutionniste pourrait permettre de comprendre les limitations physiques intrinsèques des dispositifs conventionnels utilisés en nano-optique.

Research Article | Vol. 27, No. 20 / 30 September 2019 / Optics Express 29069
Optics EXPRESS

Design of plasmonic directional antennas via evolutionary optimization

PETER R. WIECHA,[1,2,*] CLÉMENT MAJOREL,[2] CHRISTIAN GIRARD,[2] AURÉLIEN CUCHE,[2] VINCENT PAILLARD,[2] OTTO L. MUSKENS,[1] AND ARNAUD ARBOUET[2]

[1] *Physics and Astronomy, Faculty of Engineering and Physical Sciences, University of Southampton, Southampton, UK*
[2] *CEMES-CNRS, Université de Toulouse, CNRS, UPS, Toulouse, France*
[*] *p.wiecha@soton.ac.uk*

Abstract: We demonstrate inverse design of plasmonic nanoantennas for directional light scattering. Our method is based on a combination of full-field electrodynamical simulations via the Green dyadic method and evolutionary optimization (EO). Without any initial bias, we find that the geometries reproducibly found by EO work on the same principles as radio-frequency antennas. We demonstrate the versatility of our approach by designing various directional optical antennas for different scattering problems. EO-based nanoantenna design has tremendous potential for a multitude of applications like nano-scale information routing and processing or single-molecule spectroscopy. Furthermore, EO can help to derive general design rules and to identify inherent physical limitations for photonic nanoparticles and metasurfaces.

Published by The Optical Society under the terms of the Creative Commons Attribution 4.0 License. Further distribution of this work must maintain attribution to the author(s) and the published article's title, journal citation, and DOI.

1. Introduction

The vast opportunities of light-based nanotechnology lead to tremendous research efforts on light-matter interaction at sub-wavelength scales, and in particular gave rise to the broad field of plasmonics, as localized surface plasmon-polariton (LSP) resonances in metallic nanostructures can strongly confine far-field radiation [1]. By variations of the particle geometry or its material it is possible to tailor manifold optical properties like resonance positions [2], polarization conversion [3], optical chirality [4], localized heat generation [5,6] or nonlinear optical effects [7,8] with many applications like field enhanced spectroscopy [9] or refractive index sensing [8,10].

Another optical functionality that is in the focus of the plasmonics community is the directional routing of light. Not only individual nanostructures were demonstrated for directional scattering of far-field light [11–13], color-routing [14], quantum emitter radiation steering [9,15–19], electro-luminescence [20,21] or directional non-linear emission [22]. Also metasurfaces for directional scattering and color-routing have been proposed [23,24]. Such photonic devices imply applications like on-chip light routing and de-multiplexing [25] or sensing [9,10].

To obtain functionalities such as directional scattering of light, a careful design of the nano-antenna is crucial. In the conventional approach a reference geometry is chosen from qualitative considerations whose properties are subsequently studied systematically. However, imposing a geometry from the start risks excluding interesting solutions to the problem. A promising alternative can be evolutionary optimization (EO) strategies. By mimicking natural selection through a cycle of reproduction, evaluation and selection (see Fig. 1(a)), EO is able to find global optima for complex non-analytical problems [26]. EO has recently been applied very successfully to various problems in nano-optics like maximization of local field enhancement [27–29] or of optical resonances and structural color [6,30–34]. Other applications include the

#371265 https://doi.org/10.1364/OE.27.029069
Journal © 2019 Received 28 Jun 2019; revised 5 Aug 2019; accepted 8 Aug 2019; published 25 Sep 2019

Optics EXPRESS

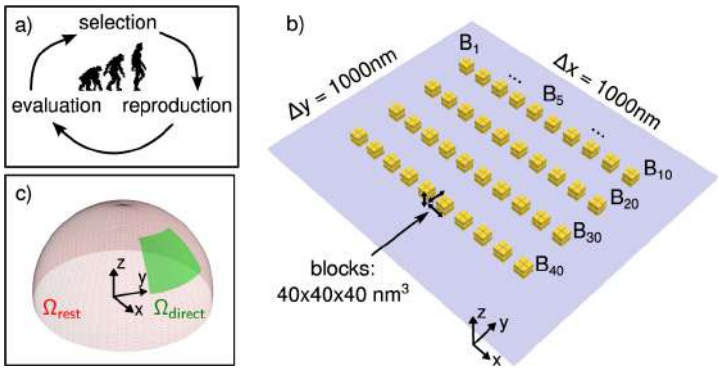

Fig. 1. (a) Scheme illustrating evolutionary optimization. (b) Plasmonic antenna structure model for EO of directional scattering. 40 gold-blocks (B_i), each $40 \times 40 \times 40\,\mathrm{nm}^3$ large are placed on a $n_s = 1.5$ substrate (in the XY plane) within an area of $1 \times 1\,\mu\mathrm{m}^2$. Plane wave illumination at normal incidence ($\mathbf{k}$ along $-z$), with $\lambda_0 = 800\,\mathrm{nm}$, linearly polarized along OX. (c) Sketch of the directionality problem: Maximize the ratio of scattered intensity through a narrow window (green) and scattering to the remaining solid angle (red).

design of carbon nanotube field-emission sources [35], dielectric anti-reflection coatings [36], optical cloaking [37], multi focal-spot flat lenses [38] or photonic power-splitters [39].

In this paper we use EO to design directional optical antennas. We couple an evolutionary algorithm to full-field electro-dynamical simulations using the Green dyadic method (GDM). With a randomly initialized and almost unconstrained geometric model, our approach reproducibly yields antennas resembling the classical radio-frequency (RF) Yagi-Uda layout [40]. We find, that the working principle of these plasmonic antennas is indeed equivalent to their RF counter-parts. We demonstrate the versatility of our method on different directional scattering problems such as varying angles of scattering, double-focusing, or quantum emitter steering. We finally show that evolutionary optimization can yield general design rules and furthermore can be used to identify and analyze physical limitations in nanoantenna design.

2. Optimization method, model and problem

Evolutionary optimization is a heuristic approach to search for an optimum solution of a complex problem, which cannot be optimized by classical means such as steepest descent methods. EO considers a certain number of randomly generated parametersets describing a problem. Parameters may be for instance the positions or sizes of sub-constituents of a nanostructure. The ensemble of parametersets is called the *population*. In a first step, each parameterset (also called an *individual*) is evaluated, in our case through a numerical simulation of the optical scattering (more details below). The evaluation criterion is in general referred to as the *fitness function*. In a *selection* step, the best solutions of the population (*i.e.* with the highest fitness values) are chosen for the following *reproduction* step. Therein, randomly chosen parameters are mutated (randomly modified) and interchanged between individuals, mimicking evolutionary processes in nature and yielding a new population of parametersets. This cyclic process is repeated multiple times (see Fig. 1(a)) until some stop criterion like a timelimit is met, leading to a close-to-optimum solution to the problem.

As EO algorithm we use the implementation of self-adaptive differential evolution ("jDE") in the "pyGMO" toolkit [41]. It takes as input the directionality of scattering, calculated using "pyGDM" [42], our own python implementation of the Green Dyadic Method (GDM) [43]. By including a surface propagator we can take into account a glass substrate [44]. Details on

Optics EXPRESS

our EO-GDM technique can be found elsewhere [33,42]. We want to note, that any numerical approach for solving Maxwell's equations can be used together with EO (possible other methods are for example finite difference time domain [28] or mode expansion techniques [32]). With the GDM, we use a volume integral method which is particularly convenient when a relatively small nanostructure is placed in a large domain, where the GDM provides fast convergence.

A scheme of the geometric model to be optimized is shown in Fig. 1(b). 40 gold blocks B_i, each $40 \times 40 \times 40\,\mathrm{nm}^3$ in size, are placed in air ($n_{\mathrm{env}} = 1$) on a glass substrate ($n_{\mathrm{s}} = 1.5$). For gold, we use the tabulated dispersion from Ref. [45]. Each of the blocks are modeled by $2 \times 2 \times 2$ dipoles. A discussion on the discretization step and the elementary block size and shape can be found in the appendix (Fig. 9). The optimization target parameters are the positions (x_i, y_i) of the blocks, which are bound to an area of $1 \times 1\,\mu\mathrm{m}^2$. Additionally, the positions of the blocks are constrained to lie on a grid with steps of the block-size (40 nm), to avoid the problem of partially overlapping elements. This results in a total of 25×25 possible positions. We note that blocks with identical positions are treated as a single block, hence the amount of material is not strictly constant. With 40 gold blocks, we have 80 free parameters and $(25 \times 25)!/(25 \times 25 - 40)! \approx 10^{111}$ possible arrangements.

A plane wave with $\lambda_0 = 800\,\mathrm{nm}$, linearly polarized along OX, is normally incident onto the gold blocks. Using the GDM, we calculate at first the average intensity per solid angle I_{direct}, scattered through a solid angle Ω_{direct} of polar and azimuthal dimensions $\Delta\varphi = 30\,^\circ$ and $\Delta\theta = 45\,^\circ$, centered at $\varphi = 45\,^\circ$ and $\theta = 0\,^\circ$ (diagonal between X and Z axis), as illustrated by the green window in Fig. 1(c). Second we calculate I_{rest}, the average intensity per solid angle, scattered towards the remaining hemisphere (Ω_{rest}, red in Fig. 1(c)). The goal of the EO is to maximize the ratio between scattering per solid angle to the target "window" and to the rest of the hemisphere:

$$R_{\mathrm{direct}} = \frac{\left(\int_{\Omega_{\mathrm{direct}}} I(\Omega)\,\mathrm{d}\Omega\right)/\Omega_{\mathrm{direct}}}{\left(\int_{\Omega_{\mathrm{rest}}} I(\Omega)\,\mathrm{d}\Omega\right)/\Omega_{\mathrm{rest}}} = \frac{I_{\mathrm{direct}}}{I_{\mathrm{rest}}}\,. \tag{1}$$

3. Directional scattering of a plane wave

We found that for small populations ($N_{\mathrm{pop}} \ll 100$), the optimization does not always converge to the best observed directionality ratio of $R_{\mathrm{direct}} \approx 12$ (10.8 dB). Small populations seem to offer insufficient genetic diversity and tend to get stuck in local extrema. The improvement during 50 generations of an evolution with a population size of $N_{\mathrm{pop}} = 500$ is shown in Fig. 2(a). Blue dots correspond to the fitness of the individuals, the green and red lines indicate the best and average fitness, respectively. The best solutions during successive iterations and their far-field backscattering patterns are shown in Fig. 2(b)–2(g) and Fig. 2(h) shows the best solution after the 50^{th} generation. To verify the convergence and reproducibility, we repeated the same optimization with random initial populations, yielding always similar antenna morphologies with directionality ratios $R_{\mathrm{direct}} \approx 10.8\,\mathrm{dB}$ (see Appendix, Fig. 7).

At first sight we observe that the optimized nano-antenna visually resembles a Yagi-Uda RF antenna [40]. An analysis of the phase of the electric field E_x component reveals a difference of π between the central and the outer parts of the nanostructure (Fig. 2(i)). We identify three main functional elements, as shown in Fig. 2(j): A driving feed in the antenna center (blue), a reflector on the left (green) and a director on the right (red). As we explain in more detail in the appendix (see also Fig. 8), we want to note that this is not a categorical analogy to RF antenna design, but rather a simplified picture giving an idea about the roles of the different parts of the structure.

The intrinsic phase differences from resonance de-tuning of the elements in combination with the adequate distances between reflector, feed and director, result in cancellation of the scattered fields in backward direction and in constructive interference in forward direction. In fact, this working principle is equivalent to the RF Yagi-Uda antenna, except that in our case the scattering

Optics EXPRESS

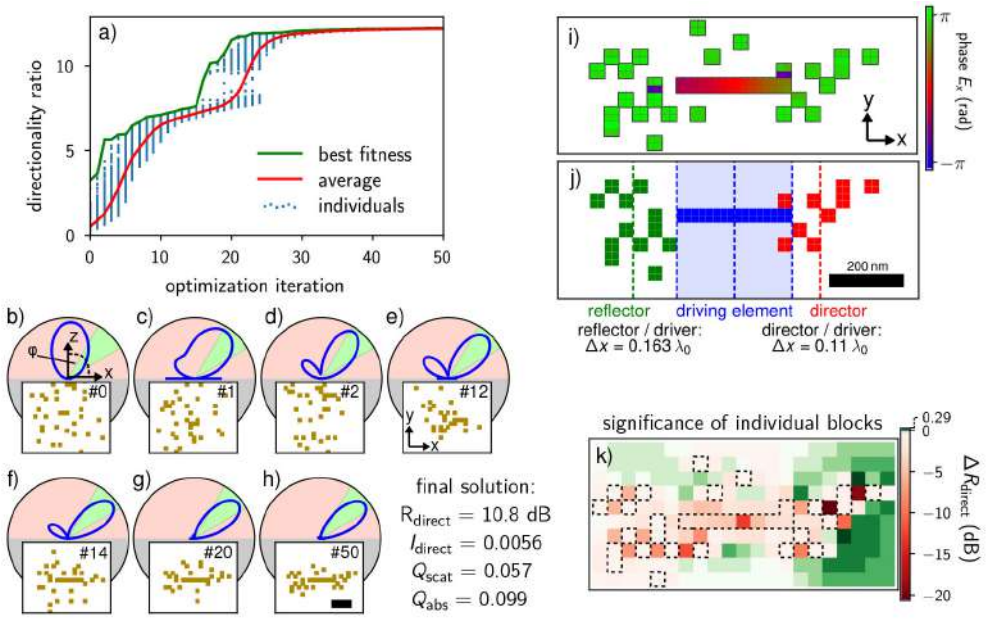

Fig. 2. (a) Fitness vs. EO iteration with a population of $N_{pop} = 500$ individuals. Best and average fitness are indicated by a green, respectively red line. (b-h) Best solutions at selected iterations between random initialization (b) and final solution (h). Iteration numbers are indicated at the upper right. Scattering patterns in *XZ*-plane are shown in the top panels by blue lines, a green segment indicates the optimization target. The corresponding gold cube arrangements are shown in the panels below. (i) Phase of the electric field *X* component relative to the driving element's center. (j) Functional components: feed (blue), reflector (green) and director (red). The distances between the centers of gravity (dashed lines) are indicated at the top. (k) Impact on the directionality ratio in decibel ($10\log_{10}(R_{direct})$) when each block is toggled (gold block ↔ no gold block). Scale bars are 200 nm.

is occurring at an angle with respect to the antenna axis. Actually it has been shown earlier, that RF antenna concepts can work also at optical frequencies, despite large plasmonic losses [46,47].

Nano Yagi-Uda antennas have been demonstrated at several occasions [15,19,22]. Through an analysis of the impact of a removal or insertion of a gold block at every possible position (Fig. 2(k)) we find that the possible further increase in directionality is small. Furthermore we observe that fusing single blocks in the reflector and director, or cutting through the feed element kills the directionality. This is because changing the length of an element would result in a spectral shift of its LSP resonance, which would break the correct relative phases and scattered field amplitudes required for directional scattering.

3.1. *Different directional scattering objectives*

In a second step, we run several optimizations for directional scattering problems, shown in Fig. 3. The top row polar plots indicate the target solid angles Ω_{direct} by green color, which are of varying size and position. The bottom plots show top views of the optimized gold block arrangements. The center plots show the scattering radiation patterns of the optimization outcome. In order to demonstrate that directionality is not obtained mainly through the index contrast at the substrate, we also show optimizations with different target solid angles for a vacuum environment ($n_{env} = 1$, Figs. 3(a)–3(d)). Figures 2, 3(e) and 3(f) show optimizations for plasmonic structures on a

Optics EXPRESS

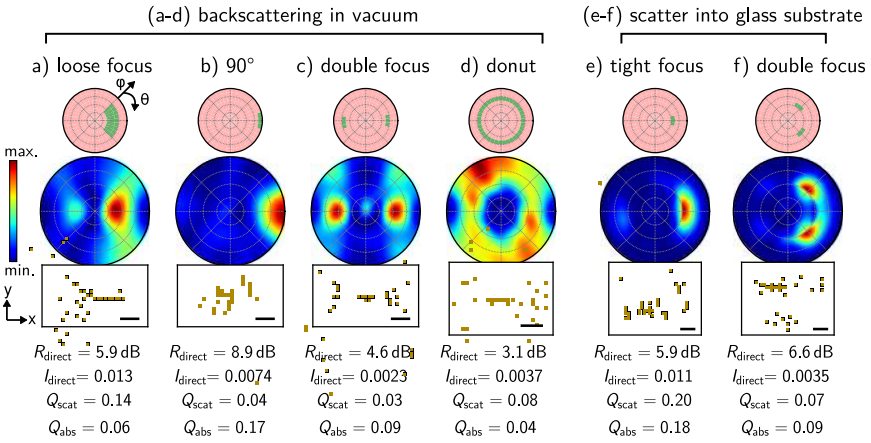

Fig. 3. Examples of directional EO (maximize R_{direct}) for various target solid angles (green areas in top plots). Bottom plots show top views of the optimized geometries, where scale bars are 200 nm. Center plots show scattering patterns for the full hemisphere of a normally incident plane wave at $\lambda_0 = 800$ nm, linearly X-polarized. (a) towards a loose focal area, (b) towards 90°, (c) bidirectionally and (d) towards a "donut" target area. (a-d) are set in a vacuum environment and show backscattering. (e-f) are set on an $n_s = 1.5$ dielectric, hemispherical substrate in order to reflect the conditions in oil immersion microscopy. In these two cases, forward scattering into the glass substrate is maximized for areas at the critical angle.

dielectric substrate ($n_s = 1.5$), where in 3(e) and 3(f) furthermore scattering into the substrate was maximized. In all other cases scattering goes towards the air hemisphere.

While EO yields good directionality ratios in all cases, we observe that the scattering intensity and scattering efficiency Q_{scat} (ratio of scattering and geometric cross sections) are generally very low. The highest scattering intensities are obtained for large target solid angles and small deflection angles (Fig. 3(a)) or for scattering into a substrate at the critical angle (Fig. 3(e)). But even those cases have very small scattering efficiencies well below 1. As a first conclusion we record that it is a physically demanding task to steer an incident plane wave unidirectionally at large angles via a planar gold nanostructure.

For comparison we ran EOs maximizing the absolute backscattered intensity I_{direct} towards polar angles of 45° and 90°, shown in Figs. 4(a) and 4(b), respectively. In both cases, the largest absolute scattered intensity towards the target solid angle is found for a structure built of several resonant gold elements, giving 2-3 orders of magnitude higher overall scattering efficiencies. But most of the light is backscattered with no deflection, directionality is completely lost. Still, the scattered intensity I_{direct} towards the target solid angles in Fig. 4 is several times higher compared to Fig. 2 and Fig. 3(b), where the ratio R_{direct} was maximized. The latter antennas are built from detuned elements, resulting in a very weak absolute scattering. This supports our conclusion that using planar plasmonic nanostructures, it is physically almost impossible to redirect a normally incident plane wave towards the direction of its linear polarization. Large scattering intensities seem to imply that almost no directionality is obtained.

We note that Fig. 4 shows structures on a substrate. We also performed the same optimization in a vacuum environment, yielding similar results.

We provide a visualization online (Visualization 1), showing the progress of EO of a large-area ($5 \times 5\,\mu\text{m}^2$), intensity optimized scatterer (analog to Fig. 4(a)). It results in an assembly of several resonant nanoantennas, arranged in a grating-like way. Despite the large allowed area

Optics EXPRESS

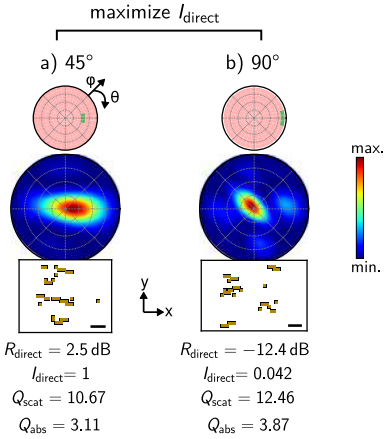

Fig. 4. EO for maximization of the absolute backscattered intensity I_{direct} to the target solid angle centered at a polar angle of (a) 45° and (b) 90°. Target solid angles, backscattering radiation patterns and top views of the optimized geometries are shown respectively from top to bottom. Scale bars are 200 nm. Normally incident plane wave, linearly X-polarized with $\lambda_0 = 800$ nm, the structures lie in vacuum on an $n = 1.5$ substrate. A visualization of the optimization convergence for case (a) can be found online (Visualization 1).

and consequently much more degrees of freedom, also this optimization fails to combine a good directionality ratio with high scattering intensity.

3.2. *Discussion: Weak scattering due to phase difference requirement*

The weak scattering at high deflection angles is a direct result of the physical properties of the plane wave illumination. The phase of the illumination field is constant across the entire planar structure, which means that it is not possible to obtain phase differences only through positioning of plasmonic elements. On the other hand, the directional antenna requires a proper phase difference between antenna feed and director elements. To achieve this, the EO algorithm choses very small blocks as director elements, which are driven by the plane wave below resonance ($\omega_{res} \gg \omega_0$), resulting in a phase of $-\pi/2$ between illumination and response. As driving feed the optimizer choses a large rod having its LSP resonance in the infrared ($\omega_{res} \ll \omega_0$), which gives a phase of $+\pi/2$ with respect to the driving plane wave. In consequence, the feed and director structures have a relative phase of π with respect to each other but are also entirely off-resonance and thus scatter only very weakly. This results in an overall small scattering intensity, so most of the incident light passes just through the plasmonic structure without interaction. The weak interaction with the incident plane wave is confirmed by the very low absorption efficiencies of the optimized antennas in Figs. 2 and 3.

As we see in Figs. 4(a) and 4(b), if the intensity is target of the optimization, the resulting structures look fundamentally different: The dispersed small blocks, that give the directionality-optimized antennas the fragmented look, disappear. The EO algorithm now uses all the available material to construct as many resonant nano-rods as possible, yielding a strong scattering cross section but very weak directionality.

We finally want to note, that a drawback of the GDM with regards to fabrication robustness is, that diagonally neighboring metallic blocks are electrically isolated in the simulations. In an actual sample however, there are high chances that diagonal neighbor blocks are electrically connected at their touching point due to unavoidable imperfections in the fabrication process. Such electric connections can have a significant impact on localized surface plasmon resonances

Optics EXPRESS

and in consquence have the potential to change the optical response of the structure. To assess the robustness of our results against fabricational imperfections, we ran simulations, connecting diagonally touching elements in the optimized antennas using additional dipoles, which didn't have a severe impact in these cases. To generally overcome this shortcoming, dielectric / plasmonic hybrid structures may be designed which can yield inherent phase differences without requiring precise tailoring of the relative LSP resonances [48].

4. Quantum emitter directional antenna

As found above, plane wave directional scattering at high scattering efficiency is physically difficult to obtain. On the other hand, it has been demonstrated that plasmonic nanostructures can be used as efficient directional antennas for quantum emitters, being also able to boost the decay of a quantum transition thanks to the Purcell effect [9,15–17,49]. In fact, in the case of a local dipole transition as light source, there is not the problem that the illumination excites every part of the antenna simultaneously and with constant phase. This makes it significantly easier to find a solution.

Following the configuration reported in [15], we replace the plane wave illumination by a dipole transition along OY, oscillating at $\lambda_0 = 800\,\text{nm}$, positioned at the origin of the coordinate system. We prohibit the EO algorithm to put a gold block at this location, which results in a minimum distance of 20 nm between gold and emitter. The emission is to be maximized towards OX along the critical angle into the $n_s = 1.5$ substrate. The EO converges towards an antenna with a directionality ratio as high as $R_{\text{direct}} \approx 13.9\,\text{dB}$, shown in Fig. 5(a). Reference [15] uses a slightly different definition of directionality, therefore we simulate the antenna "YU145" of Ref. [15] with the GDM, using the same emitter-feed distance of 20 nm as for the EO. We find a directionality of $R_{\text{direct, ref.}} \approx 9.2\,\text{dB}$ (Fig. 5(c)). While this is lower compared to the optimized antenna, we see in Fig. 5(d) that the emission intensity of the optimized antenna is around two orders of magnitude weaker. We re-run the EO using as optimization target the absolute intensity of directed emission (Fig. 5(b)). While directionality is moderately reduced to 11.9 dB, the signal from the intensity-optimized directional nanoantenna (orange line in Fig. 5(d)) is now almost one order of magnitude higher than that of the reference. Having a closer look at the geometry in Fig. 5(b), we observe that the EO algorithm designed the antenna such that the emitter is surrounded by gold to maximize the Purcell effect, which strongly boosts the emitted intensity. Finally we find that an increased directionality comes at the cost of a reduced spectral full width at half maximum (FWHM) of R_{direct}, hence leads to a narrower operation window (see inset Fig. 5(d)).

4.1. Dipole emitter orientation

To study the role of the orientation of the quantum emitter's transition dipole, we run antenna optimizations for X, Y and Z oriented dipoles, shown in Figs. 6(a)–6(c). To keep the symmetry of the system as high as possible, we assume a vacuum environment and maximize scattering towards OX (solid angle as used in Fig. 3(b)). In case of X- and Y-oriented dipoles (Figs. 6(a)–6(b)), the optimization organizes the gold blocks in a compact arrangement, forming a strongly directional antenna. On the other hand, for a dipole pointing out of the structure plane (Z direction), the limited height of the planar gold structure ($H = 40\,\text{nm}$) impedes obtaining a significant optical response of the gold blocks at the emission wavelength of $\lambda_0 = 800\,\text{nm}$, hence directionality remains weak (Fig. 6(c)).

4.2. Antenna symmetry

In contrast to the intuitive expectation that symmetric antennas should perform best, EO finds mostly rather fragmented antennas of low symmetry. To assess the role of symmetry, we re-run the quantum emitter antenna optimizations for different dipole-orientation (Figs. 6(a)–6(c)),

Optics EXPRESS

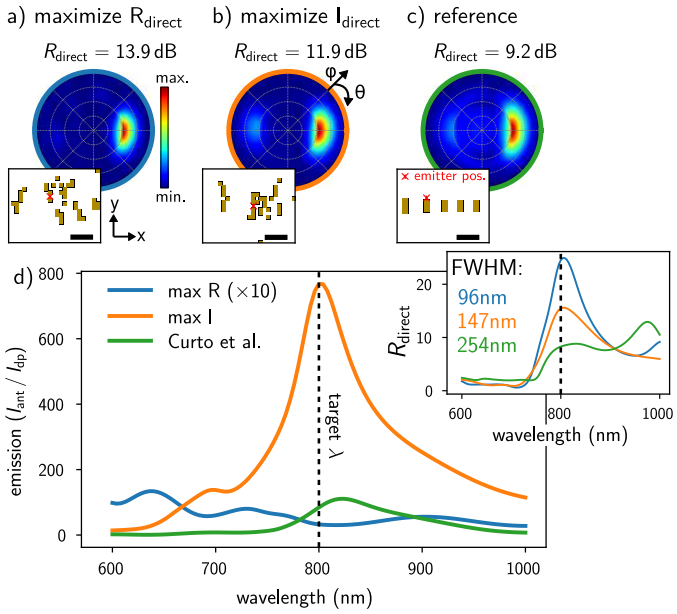

Fig. 5. Optimized antennas for dipole emitter directional emission. The quantum emitter is oriented along OY, radiates at $\lambda_0 = 800$ nm and has a minimum distance to the gold structure of 20 nm. Emission is maximized at the critical angle of scattering inside the $n_s = 1.5$ substrate. (a) maximize directionality ratio R_{direct}. (b) maximize absolute intensity I_{direct} at target solid angle. (c) simulation of reference antenna from Ref. [15]. (d) spectrum of total dipole emission intensity, normalized to the intensity I_{dp} of an isolated dipole emitter (no antenna). The inset shows directionality spectra for the three antennas. Radiation patterns are evaluated on a hemispherical screen inside the substrate. Scale bars are 200 nm.

imposing a mirror symmetry around the X axis. The results shown in Figs. 6(d)–6(f) suggest, that symmetric antennas give a similar performance in the cases of dipole transitions aligned along Y and Z, as depicted in Fig. 6(e), respectively (f), even though the symmetric designs do not yield noticeable improvement over an unconstrained geometric model.

In the case of an X-oriented dipole however, the symmetric EO completely fails to design a directional antenna (Fig. 6(d)). By inspecting the antenna in Fig. 6(a), we notice that it is designed such that the polarization of the X-oriented dipole emitter is converted by a gold element to a plasmonic current along Y, effectively generating an accordingly oriented plasmonic dipole emitter. The scattered light of this LSP dipolar resonance is then guided towards the target solid angle via a Yagi-Uda-type assembly of structures around the feed. By imposing an axial symmetry at the dipole position, this local polarization conversion is physically impossible. Instead, in Fig. 6(d) the EO algorithm designs a quadrupolar feed element, directing the light close to the desired solid angle. However, due to symmetry, emission is zero towards X.

Optics EXPRESS

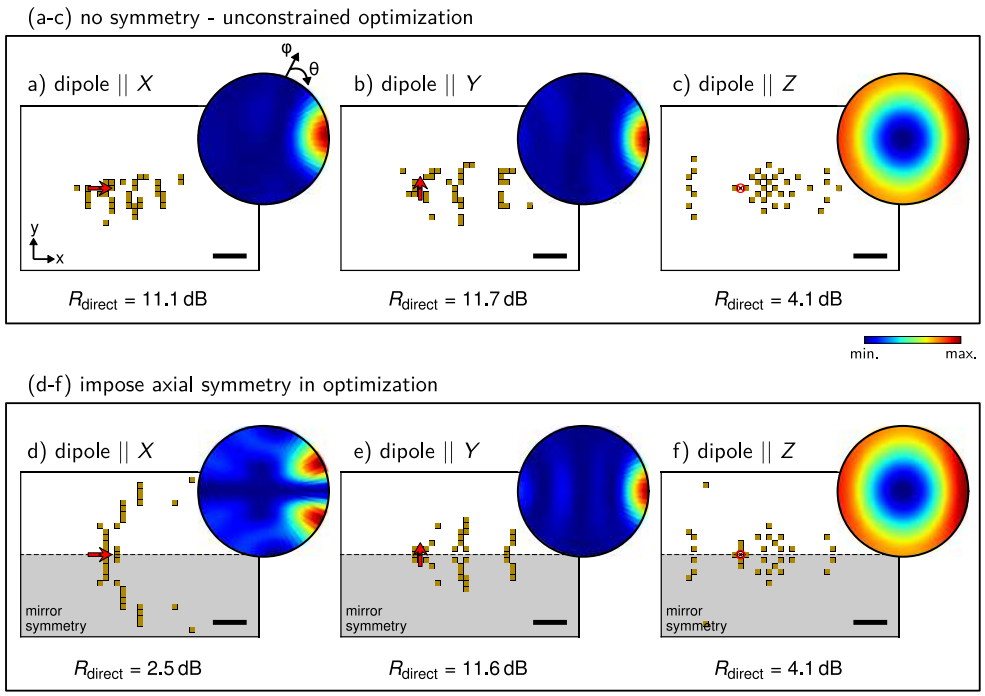

Fig. 6. Symmetry analysis, showing optimization results of directional quantum emitter gold antennas in vacuum environment ($n_{\text{env}} = 1$) for different orientations of the dipole transition. (a) and (d): dipole emitter along OX, (b) and (e): dipole emitter along OY, (c) and (f): dipole emitter along OZ. In (a-c), the geometry is unconstrained, in (d-f), the same optimizations were repeated, imposing an axial mirror symmetry at the x-axis for the geometry of the antenna. Emitter placed at ($x = 0\,\text{nm}, y = 0\,\text{nm}, z = 20\,\text{nm}$), indicated by a red arrow. Scale bars are 200 nm.

5. Conclusions

In conclusion, we demonstrated how evolutionary optimization can be used to design directional plasmonic nanoantennas. In our approach, within the limits of possible geometries built with 40 equal gold blocks, the design of the structures is completely free. We showed, that EO automatically finds a nanostructure layout which corresponds to well known design-principles from radio-frequency antennas. By comparing the performance of directionality- and intensity-optimized planar gold nanostructures, we found that high directionality ratios for scattering of normal incidence plane waves to large angles comes necessarily at the cost of weak scattering intensities. We demonstrated that in contrast to weak directional plane wave scattering, EO can design very efficient directional nanoantennas for quantum emitters. Via an appropriate fitness function, EO finds an antenna which not only yields very good directionality but also exploits at best the Purcell effect for quantum emitter signal enhancement. Through an analysis of the EO results for different fitness functions we furthermore found, that high directionality ratios come at the cost of spectrally less broadband working windows. Finally, through an EO-based analysis of symmetry conditions we found that, dependent on the orientation of the quantum emitter dipole transition, it can be necessary to design and asymmetric nano-antenna for good performance.

We conclude, that from the results of EO general design rules can be derived for the tailoring of photonic nanostructures. EO can also be used as a benchmark tool in nano-photonic design

Optics EXPRESS

and can reveal intrinsic physical limitations of nano-optical configurations. We foresee that EO has manifold further promising applications beyond directional scattering, for examples in field enhanced spectroscopy or non-linear nanophotonics.

Appendix

Reproducibility

To test the convergence and the reproducibility of the EO, we re-run the optimization shown in main text Fig. 2 several times with different, randomly initialized starting populations. As shown in Fig. 7, the final antennas converge always to the same maximum directionality ratio of $R_{\text{direct}} \approx 12$. The geometries of the solutions are in all cases similar, leading to the same phase distribution.

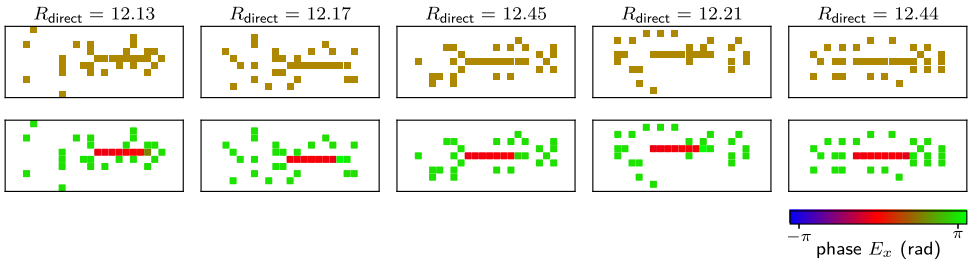

Fig. 7. Demonstration of reproducibility and convergence: Top row shows antenna geometries and their directivity ratios for 5 independent runs of the same optimization, with random initial EO populations. Bottom row shows the relative phase of the E_x field component.

Functional elements of plane wave directional antenna

It is clear that the parasitic elements around the feed lead to the directional scattering effect in the plane-wave antennas (as demonstrated in Figs. 8(a) and 8(b) below). On the other hand it is difficult to ascribe to specific clusters of parasitic elements the unambiguous role of a "reflector" or a "director". To assess whether it is justified to call the agglomeration of blocks on the left of the feed in Fig. 2 an equivalent of a "reflector" and the agglomeration of blocks on the right a "director", we simulated the feed alone, the feed + "reflector" and the feed + "director", shown in Figs. 8(b)–8(d).

While we observe no directional scattering for the isolated feed (Fig. 8(b)), the reflector as well as director alone suffice to impose a directional effect on the feed element (Figs. 8(c)–8(d)), in analogy to what would be expected in an RF Yagi-Uda antenna. On the other hand, if only a part of for example the reflector cluster is used, the direction of scattering becomes tilted with respect to the target angle (Fig. 8(e)). The full ensemble of "reflector" blocks is necessary to obtain the desired scattering effect. We conclude that it is adequate to consider the left and right agglomerations of parasitic elements equivalent to a "reflector" and a "director".

As a final note, we want to stress that this is not a categorical analogy. A direct adaptation of the structure to RF antennas is not easily possible, we rather consider our analogy a simplified description of the role of the complex arrangements of parasitic elements.

Optics EXPRESS

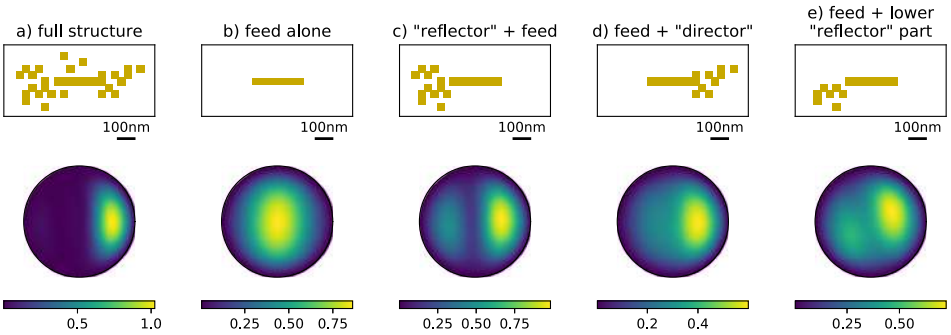

Fig. 8. Analysis of functional elements for the antenna in Fig. 2. Top row: Top view of the considered sub-part of the full antenna geometry. Bottom row: backscattering pattern. Scale bars are 100 nm, the colorscale represents the scattering intensity in arbitrary units (normalized to the peak intensity of the full structure).

Discretization, size and shape of elementary blocks

In principle any kind of constituents can be used with the EO-GDM method to compose the structure. However, larger building blocks or elementary blocks of some complex shape constrain the generality of possible geometries. On the other hand, small blocks allow to perform a more complete search of the solution space, but at the cost of slower convergence. The choice of size (and shape) of the elementary blocks is therefore always a compromise between how flexible the geometric model should be and the speed of convergence of the optimization. If constraints to the attainable diversity of geometries are acceptable, only few but larger building blocks and/or blocks of more specific shape like cuboids, rods or polygonal structures might be chosen as elementary unit. In view of a possible experimental realization of the structures, it makes also sense to use building blocks which are not smaller then the structural resolution that can be obtained in fabrication.

Concerning the discretization, we used steps of 20 nm which gives good optimization speed because the full structure consists of only $40 \times 2 \times 2 \times 2 = 320$ dipoles. In order to verify that this rather coarse discretization is a good approximation, we re-calculated the structure shown in Fig. 2 with finer step-sizes. As shown in Fig. 9, simulations with steps of 20 nm ($2 \times 2 \times 2$ dipoles per block), 10 nm ($4 \times 4 \times 4$ dipoles per block) and 6.67 nm ($6 \times 6 \times 6$ dipoles per block) yield very similar results, so our approximation using steps of 20 nm is good.

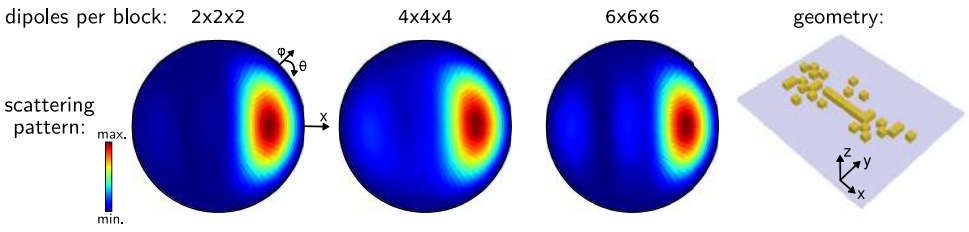

Fig. 9. Backscattering patterns of an identical gold nanostructure but using different discretization steps (geometry shown on the right, same as in Fig. 2). $\lambda = 800$ nm plane wave illumination from the top, linear polarized along X. Each elementary block in the structure was discretized from left to right by $2 \times 2 \times 2$ dipoles with 20 nm step, $4 \times 4 \times 4$ dipoles with 10 nm step and $6 \times 6 \times 6$ dipoles with 6.67 nm step. The results are very similar, hence we can conclude that a step of 20 nm is a good approximation.

Optics EXPRESS

Funding

Agence Nationale de la Recherche (ANR-10-LABX-0037-NEXT, ANR-11-IDEX-0002-02); CALMIP (P12167); Deutsche Forschungsgemeinschaft (WI 5261/1-1); Engineering and Physical Sciences Research Council (EP/M009122/1).

Acknowledgments

We gratefully thank N. Bonod for fruitful discussions. All data supporting this study are openly available from the University of Southampton repository (DOI: 10.5258/SOTON/D0992).

References

1. P. Mühlschlegel, H.-J. Eisler, O. J. F. Martin, B. Hecht, and D. W. Pohl, "Resonant Optical Antennas," Science **308**(5728), 1607–1609 (2005).
2. S. J. Tan, L. Zhang, D. Zhu, X. M. Goh, Y. M. Wang, K. Kumar, C.-W. Qiu, and J. K. W. Yang, "Plasmonic Color Palettes for Photorealistic Printing with Aluminum Nanostructures," Nano Lett. **14**(7), 4023–4029 (2014).
3. P. R. Wiecha, L.-J. Black, Y. Wang, V. Paillard, C. Girard, O. L. Muskens, and A. Arbouet, "Polarization conversion in plasmonic nanoantennas for metasurfaces using structural asymmetry and mode hybridization," Sci. Rep. **7**(1), 40906 (2017).
4. V. K. Valev, J. J. Baumberg, C. Sibilia, and T. Verbiest, "Chirality and Chiroptical Effects in Plasmonic Nanostructures: Fundamentals, Recent Progress, and Outlook," Adv. Mater. **25**(18), 2517–2534 (2013).
5. G. Baffou, R. Quidant, and C. Girard, "Heat generation in plasmonic nanostructures: Influence of morphology," Appl. Phys. Lett. **94**(15), 153109 (2009).
6. C. Girard, P. R. Wiecha, A. Cuche, and E. Dujardin, "Designing thermoplasmonic properties of metallic metasurfaces," J. Opt. **20**(7), 075004 (2018).
7. M. Kauranen and A. V. Zayats, "Nonlinear plasmonics," Nat. Photonics **6**(11), 737–748 (2012).
8. M. Mesch, B. Metzger, M. Hentschel, and H. Giessen, "Nonlinear Plasmonic Sensing," Nano Lett. **16**(5), 3155–3159 (2016).
9. D. Vercruysse, X. Zheng, Y. Sonnefraud, N. Verellen, G. Di Martino, L. Lagae, G. A. E. Vandenbosch, V. V. Moshchalkov, S. A. Maier, and P. Van Dorpe, "Directional Fluorescence Emission by Individual V-Antennas Explained by Mode Expansion," ACS Nano **8**(8), 8232–8241 (2014).
10. M. Wersäll, R. Verre, M. Svedendahl, P. Johansson, M. Käll, and T. Shegai, "Directional Nanoplasmonic Antennas for Self-Referenced Refractometric Molecular Analysis," J. Phys. Chem. C **118**(36), 21075–21080 (2014).
11. D. Vercruysse, Y. Sonnefraud, N. Verellen, F. B. Fuchs, G. Di Martino, L. Lagae, V. V. Moshchalkov, S. A. Maier, and P. Van Dorpe, "Unidirectional Side Scattering of Light by a Single-Element Nanoantenna," Nano Lett. **13**(8), 3843–3849 (2013).
12. A. Abass, P. Gutsche, B. Maes, C. Rockstuhl, and E. R. Martins, "Insights into directional scattering: From coupled dipoles to asymmetric dimer nanoantennas," Opt. Express **24**(17), 19638 (2016).
13. K. Yao and Y. Liu, "Controlling electric and magnetic resonances for ultracompact nanoantennas with tunable directionality," ACS Photonics **3**(6), 953–963 (2016).
14. T. Shegai, S. Chen, V. D. Miljković, G. Zengin, P. Johansson, and M. Käll, "A bimetallic nanoantenna for directional colour routing," Nat. Commun. **2**(1), 481 (2011).
15. A. G. Curto, G. Volpe, T. H. Taminiau, M. P. Kreuzer, R. Quidant, and N. F. van Hulst, "Unidirectional Emission of a Quantum Dot Coupled to a Nanoantenna," Science **329**(5994), 930–933 (2010).
16. I. S. Maksymov, I. Staude, A. E. Miroshnichenko, and Y. S. Kivshar, "Optical Yagi-Uda nanoantennas," Nanophotonics **1**(1), 65–81 (2012).
17. I. M. Hancu, A. G. Curto, M. Castro-López, M. Kuttge, and N. F. van Hulst, "Multipolar Interference for Directed Light Emission," Nano Lett. **14**(1), 166–171 (2014).
18. D. Dregely, K. Lindfors, M. Lippitz, N. Engheta, M. Totzeck, and H. Giessen, "Imaging and steering an optical wireless nanoantenna link," Nat. Commun. **5**(1), 4354 (2014).
19. M. Ramezani, A. Casadei, G. Grzela, F. Matteini, G. Tütüncüoglu, D. Rüffer, A. Fontcuberta i Morral, and J. Gómez Rivas, "Hybrid Semiconductor Nanowire–Metallic Yagi-Uda Antennas," Nano Lett. **15**(8), 4889–4895 (2015).
20. S. P. Gurunarayanan, N. Verellen, V. S. Zharinov, F. James Shirley, V. V. Moshchalkov, M. Heyns, J. Van de Vondel, I. P. Radu, and P. Van Dorpe, "Electrically Driven Unidirectional Optical Nanoantennas," Nano Lett. **17**(12), 7433–7439 (2017).
21. R. Kullock, P. Grimm, M. Ochs, and B. Hecht, "Directed emission by electrically driven optical antennas," Proc. SPIE **10540**, 1054012 (2018).
22. X. Y. Z. Xiong, L. J. Jiang, W. E. I. Sha, Y. H. Lo, and W. C. Chew, "Compact Nonlinear Yagi-Uda Nanoantennas," Sci. Rep. **6**(1), 18872 (2016).
23. K. Lindfors, D. Dregely, M. Lippitz, N. Engheta, M. Totzeck, and H. Giessen, "Imaging and Steering Unidirectional Emission from Nanoantenna Array Metasurfaces," ACS Photonics **3**(2), 286–292 (2016).

Optics EXPRESS

24. C. Yan, K.-Y. Yang, and O. J. F. Martin, "Fano-resonance-assisted metasurface for color routing," Light: Sci. Appl. **6**(7), e17017 (2017).
25. R. Guo, M. Decker, F. Setzpfandt, X. Gai, D.-Y. Choi, R. Kiselev, A. Chipouline, I. Staude, T. Pertsch, D. N. Neshev, and Y. S. Kivshar, "High–bit rate ultra-compact light routing with mode-selective on-chip nanoantennas," Sci. Adv. **3**(7), e1700007 (2017).
26. S. Sivanandam and S. Deepa, *Introduction to Genetic Algorithms* (Springer, Heidelberg, 2008).
27. C. Forestiere, M. Donelli, G. F. Walsh, E. Zeni, G. Miano, and L. Dal Negro, "Particle-swarm optimization of broadband nanoplasmonic arrays," Opt. Lett. **35**(2), 133 (2010).
28. T. Feichtner, O. Selig, M. Kiunke, and B. Hecht, "Evolutionary Optimization of Optical Antennas," Phys. Rev. Lett. **109**(12), 127701 (2012).
29. C. Forestiere, Y. He, R. Wang, R. M. Kirby, and L. Dal Negro, "Inverse Design of Metal Nanoparticles' Morphology," ACS Photonics **3**(1), 68–78 (2016).
30. P. Ginzburg, N. Berkovitch, A. Nevet, I. Shor, and M. Orenstein, "Resonances On-Demand for Plasmonic Nano-Particles," Nano Lett. **11**(6), 2329–2333 (2011).
31. F. Bigourdan, F. Marquier, J.-P. Hugonin, and J.-J. Greffet, "Design of highly efficient metallo-dielectric patch antennas for single-photon emission," Opt. Express **22**(3), 2337 (2014).
32. A. Mirzaei, A. E. Miroshnichenko, I. V. Shadrivov, and Y. S. Kivshar, "Superscattering of light optimized by a genetic algorithm," Appl. Phys. Lett. **105**(1), 011109 (2014).
33. P. R. Wiecha, A. Arbouet, C. Girard, A. Lecestre, G. Larrieu, and V. Paillard, "Evolutionary multi-objective optimization of colour pixels based on dielectric nanoantennas," Nat. Nanotechnol. **12**(2), 163–169 (2017).
34. A. K. González-Alcalde, R. Salas-Montiel, H. Mohamad, A. Morand, S. Blaize, and D. Macías, "Optimization of all-dielectric structures for color generation," Appl. Opt. **57**(14), 3959–3967 (2018).
35. P. Y. Chen, C. H. Chen, J. S. Wu, H. C. Wen, and W. P. Wang, "Optimal design of integrally gated CNT field-emission devices using a genetic algorithm," Nanotechnology **18**(39), 395203 (2007).
36. B. L. Good, S. Simmons, and M. Mirotznik, "General optimization of tapered anti-reflective coatings," Opt. Express **24**(15), 16618 (2016).
37. A. Mirzaei, A. E. Miroshnichenko, I. V. Shadrivov, and Y. S. Kivshar, "All-Dielectric Multilayer Cylindrical Structures for Invisibility Cloaking," Sci. Rep. **5**(1), 9574 (2015).
38. J. Hu, X. Ren, A. N. Reed, T. Reese, D. Rhee, B. Howe, L. J. Lauhon, A. M. Urbas, and T. W. Odom, "Evolutionary Design and Prototyping of Single Crystalline Titanium Nitride Lattice Optics," ACS Photonics **4**(3), 606–612 (2017).
39. S. Molesky, Z. Lin, A. Y. Piggott, W. Jin, J. Vucković, and A. W. Rodriguez, "Inverse design in nanophotonics," Nat. Photonics **12**(11), 659–670 (2018).
40. H. Yagi, "Beam Transmission of Ultra Short Waves," Proc. IRE **16**(6), 715–740 (1928).
41. F. Biscani, D. Izzo, and C. H. Yam, "A Global Optimisation Toolbox for Massively Parallel Engineering Optimisation," arXiv:1004.3824 [cs, math] (2010).
42. P. R. Wiecha, "pyGDM—A python toolkit for full-field electro-dynamical simulations and evolutionary optimization of nanostructures," Comput. Phys. Commun. **233**, 167–192 (2018).
43. C. Girard, E. Dujardin, G. Baffou, and R. Quidant, "Shaping and manipulation of light fields with bottom-up plasmonic structures," New J. Phys. **10**(10), 105016 (2008).
44. C. Girard, A. Dereux, O. J. F. Martin, and M. Devel, "Generation of optical standing waves around mesoscopic surface structures: Scattering and light confinement," Phys. Rev. B **52**(4), 2889–2898 (1995).
45. P. B. Johnson and R. W. Christy, "Optical Constants of the Noble Metals," Phys. Rev. B **6**(12), 4370–4379 (1972).
46. H. F. Hofmann, T. Kosako, and Y. Kadoya, "Design parameters for a nano-optical Yagi–Uda antenna," New J. Phys. **9**(7), 217 (2007).
47. L. Novotny, "Effective Wavelength Scaling for Optical Antennas," Phys. Rev. Lett. **98**(26), 266802 (2007).
48. T. Zhang, J. Xu, Z.-L. Deng, D. Hu, F. Qin, and X. Li, "Unidirectional Enhanced Dipolar Emission with an Individual Dielectric Nanoantenna," Nanomaterials **9**(4), 629 (2019).
49. G. C. des Francs, J. Barthes, A. Bouhelier, J. C. Weeber, A. Dereux, A. Cuche, and C. Girard, "Plasmonic Purcell factor and coupling efficiency to surface plasmons. Implications for addressing and controlling optical nanosources," J. Opt. **18**(9), 094005 (2016).

Bibliographie

[1] S. A. Maier. *Plasmonics : Fundamentals and Applications*. Springer US, 2007.

[2] S. L. Teo et al. « Gold nanoring trimers : a versatile structure for infrared sensing ». *Optics Express* 18.21 (oct. 2010), p. 22271-22282.

[3] M. Li, S. K. Cushing et N. Wu. « Plasmon-enhanced optical sensors : a review ». *Analyst* 140.2 (2015), p. 386-406.

[4] G. Barbillon et al. « Biological and chemical gold nanosensors based on localized surface plasmon resonance ». *Gold Bulletin* 40.3 (sept. 2007), p. 240-244.

[5] K. Kneipp, M. Moskovits et H. Kneipp. *Surface-Enhanced Raman Scattering : Physics and Applications*. Topics in Applied Physics. Springer Berlin Heidelberg, 2006.

[6] H. A. Atwater et A. Polman. « Plasmonics for improved photovoltaic devices ». *Nature Materials* 9.3 (mars 2010), p. 205-213.

[7] Y. Salamin et al. « 100 GHz Plasmonic Photodetector ». *ACS Photonics* 5.8 (août 2018), p. 3291-3297.

[8] S. Kawata, Y. Inouye et P. Verma. « Plasmonics for near-field nano-imaging and superlensing ». *Nature Photonics* 3.7 (juill. 2009), p. 388-394.

[9] S. Link et M. A. El-Sayed. « Size and Temperature Dependence of the Plasmon Absorption of Colloidal Gold Nanoparticles ». *The Journal of Physical Chemistry B* 103.21 (mai 1999), p. 4212-4217.

[10] S. Link et M. A. El-Sayed. « Shape and size dependence of radiative, non-radiative and photothermal properties of gold nanocrystals ». *International Reviews in Physical Chemistry* 19.3 (juill. 2000), p. 409-453.

[11] J. J. Mock et al. « Shape effects in plasmon resonance of individual colloidal silver nanoparticles ». *The Journal of Chemical Physics* 116.15 (2002), p. 6755-6759.

[12] A. Lalisse et al. « Quantifying the Efficiency of Plasmonic Materials for Near-Field Enhancement and Photothermal Conversion ». *The Journal of Physical Chemistry C* 119.45 (nov. 2015), p. 25518-25528.

[13] L. Bois et al. « Silver nanoparticles growth in a mesoporous silica film templated with the F127 triblock copolymer ». *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 325.1 (juill. 2008), p. 86-92.

[14] S. Bakhti, N. Destouches et A. V. Tishchenko. « Analysis of plasmon resonances on a metal particle ». *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*. Electromagnetic and Light Scattering by Nonspherical Particles XIV 146 (oct. 2014), p. 113-122.

[15] S. Law, V. Podolskiy et D. Wasserman. « Towards Nano-Scale Photonics with Micro-Scale Photons : The Opportunities and Challenges of Mid-Infrared Plasmonics ». *Nanophotonics* 2.2 (avr. 2013), p. 103-130.

[16] J. M. Luther et al. « Localized surface plasmon resonances arising from free carriers in doped quantum dots ». *Nature Materials* 10.5 (mai 2011), p. 361-366.

[17] G. V. Naik, V. M. Shalaev et A. Boltasseva. « Alternative Plasmonic Materials : Beyond Gold and Silver ». *Advanced Materials* 25.24 (juin 2013), p. 3264-3294.

[18] T. Taliercio et P. Biagioni. « Semiconductor infrared plasmonics ». *Nanophotonics* 8.6 (mai 2019), p. 949-990.

[19] S. Law et al. « All-Semiconductor Plasmonic Nanoantennas for Infrared Sensing ». *Nano Letters* 13.9 (sept. 2013), p. 4569-4574.

[20] L. Baldassarre et al. « Midinfrared Plasmon-Enhanced Spectroscopy with Germanium Antennas on Silicon Substrates ». *Nano Letters* 15.11 (nov. 2015), p. 7225-7231.

[21] D. J. Rowe et al. « Phosphorus-Doped Silicon Nanocrystals Exhibiting Mid-Infrared Localized Surface Plasmon Resonance ». *Nano Letters* 13.3 (mars 2013), p. 1317-1322.

[22] N. J. Kramer, K. S. Schramke et U. R. Kortshagen. « Plasmonic Properties of Silicon Nanocrystals Doped with Boron and Phosphorus ». *Nano Letters* 15.8 (août 2015), p. 5597-5603.

[23] S. Zhou et al. « Comparative Study on the Localized Surface Plasmon Resonance of Boron- and Phosphorus-Doped Silicon Nanocrystals ». *ACS Nano* 9.1 (jan. 2015), p. 378-386.

[24] B. T. Draine. « The discrete-dipole approximation and its application to interstellar graphite grains ». *The Astrophysical Journal* 333 (oct. 1988), p. 848-872.

[25] A. Taflove. *Computational Electrodynamics : The Finite-difference Time-domain Method*. Antennas and Propagation Library. Artech House, 1995.

[26] R. Petit et L. Botten. *Electromagnetic Theory of Gratings*. Topics in Applied Physics. Springer-Verlag, 1980.

[27] O. J. F. Martin, C. Girard et A. Dereux. « Generalized Field Propagator for Electromagnetic Scattering and Light Confinement ». *Physical Review Letters* 74.4 (jan. 1995), p. 526-529.

[28] G. Colas des Francs. « Optique sub-longueur d'onde et fluorescence moléculaire perturbée ». These de doctorat. Toulouse 3, jan. 2002.

[29] R. Marty. « Réponse optique de nanostructures plasmoniques complexes ». phd. Université de Toulouse, Université Toulouse III - Paul Sabatier, sept. 2011.

[30] P. R. Wiecha. « Linear and nonlinear optical properties of high refractive index dielectric nanostructures ». phd. Université de Toulouse, Université Toulouse III - Paul Sabatier, sept. 2016.

[31] G. S. Agarwal. « Quantum electrodynamics in the presence of dielectrics and conductors. I. Electromagnetic-field response functions and black-body fluctuations in finite geometries ». *Physical Review A* 11.1 (jan. 1975), p. 230-242.

[32] O. J. F. Martin et N. B. Piller. « Electromagnetic Scattering in Polarizable Backgrounds ». *Physical Review E* 58.3 (sept. 1998), p. 3909-3915.

[33] D. Barchiesi et al. « Computing the optical near-field distributions around complex subwavelength surface structures : A comparative study of different methods ». *Physical Review E* 54.4 (oct. 1996), p. 4285-4292.

[34] C. Girard et al. « Shaping and manipulation of light fields with bottom-up plasmonic structures ». *New Journal of Physics* 10.10 (oct. 2008), p. 105016.

[35] C. Girard et al. « Optical magnetic near-field intensities around nanometer-scale surface structures ». *Physical Review B* 55.24 (juin 1997), p. 16487-16497.

[36] R. Quidant et al. « Near-field observation of evanescent light wave coupling in subwavelength optical waveguides ». *EPL (Europhysics Letters)* 57.2 (jan. 2002), p. 191.

[37] P. R. Wiecha et al. « Design of plasmonic directional antennas via evolutionary optimization ». *Optics Express* 27.20 (sept. 2019), p. 29069-29081.

[38] C. Girard. « Near fields in nanostructures ». *Reports on Progress in Physics* 68.8 (2005), p. 1883.

[39] A. Patoux et al. « Polarizabilities of complex individual dielectric or plasmonic nanostructures ». *Physical Review B* 101.23 (juin 2020), p. 235418.

[40] U. Schröter. « Modelling of magnetic effects in near-field optics ». *The European Physical Journal B - Condensed Matter and Complex Systems* 33.3 (juin 2003), p. 297-310.

[41] P. C. Chaumet et A. Rahmani. « Coupled-dipole method for magnetic and negative-refraction materials ». *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 110.1 (jan. 2009), p. 22-29.

[42] J. B. Pendry. « Negative Refraction Makes a Perfect Lens ». *Physical Review Letters* 85.18 (oct. 2000), p. 3966-3969.

[43] J. D. Jackson. *Classical Electrodynamics, 3RD ED.* Wiley India Pvt. Limited, 2007.

[44] H. Giessen et R. Vogelgesang. « Glimpsing the Weak Magnetic Field of Light ». *Science* 326.5952 (oct. 2009), p. 529-530.

[45] P. R. Wiecha. « pyGDM—A Python Toolkit for Full-Field Electro-Dynamical Simulations and Evolutionary Optimization of Nanostructures ». *Computer Physics Communications* 233 (déc. 2018), p. 167-192.

[46] G. Colas des Francs, C. Girard et A. Dereux. « Theory of near-field optical imaging with a single molecule as light source ». *The Journal of Chemical Physics* 117.10 (août 2002), p. 4659-4666.

[47] M. Paulus et O. J. F. Martin. « Light propagation and scattering in stratified media : a Green's tensor approach ». *JOSA A* 18.4 (avr. 2001), p. 854-861.

[48] M. Paulus, P. Gay-Balmaz et O. J. F. Martin. « Accurate and Efficient Computation of the Green's Tensor for Stratified Media ». *Physical Review E* 62.4 (oct. 2000), p. 5797-5807.

[49] L. Langhammer et al. « Glacier bed surveying with helicopter-borne dual-polari-zation ground-penetrating radar ». *Journal of Glaciology* 65.249 (fév. 2019), p. 123-135.

[50] L. Luan, P. R. Sievert et J. B. Ketterson. « Near-field and far-field electric dipole radiation in the vicinity of a planar dielectric half space ». *New Journal of Physics* 8.11 (nov. 2006), p. 264-264.

[51] W. Lukosz et R. E. Kunz. « Light emission by magnetic and electric dipoles close to a plane interface. I. Total radiated power ». *JOSA* 67.12 (déc. 1977), p. 1607-1615.

[52] W. Cai et T. Yu. « Fast Calculations of Dyadic Green's Functions for Electromagnetic Scattering in a Multilayered Medium ». *Journal of Computational Physics* 165.1 (nov. 2000), p. 1-21.

[53] Y. Ould Agha et al. « Near-Field Properties of Plasmonic Nanostructures with High Aspect Ratio ». *Progress In Electromagnetics Research* 146 (2014), p. 77-88.

[54] J. P. Kottmann et O. J. F. Martin. « Accurate solution of the volume integral equation for high-permittivity scatterers ». *IEEE Transactions on Antennas and Propagation* 48.11 (nov. 2000), p. 1719-1726.

[55] F. Pincemin, A. Sentenac et J.-J. Greffet. « Near field scattered by a dielectric rod below a metallic surface ». *JOSA A* 11.3 (mars 1994), p. 1117-1127.

[56] M. Paulus et O. J. F. Martin. « Green's tensor technique for scattering in two-dimensional stratified media ». *Physical Review E* 63.6 (mai 2001), p. 066615.

[57] I. S. Gradshteyn et I. M. Ryzhik. *Table of Integrals, Series, and Products*. Seventh. Elsevier/Academic Press, Amsterdam, 2007.

[58] D. R. Smith, J. B. Pendry et M. C. K. Wiltshire. « Metamaterials and Negative Refractive Index ». *Science* 305.5685 (août 2004), p. 788-792.

[59] N. Katsarakis et al. « Magnetic response of split-ring resonators in the far-infrared frequency regime ». *Optics Letters* 30.11 (juin 2005), p. 1348-1350.

[60] A. D. Yaghjian. « Electric dyadic Green's functions in the source region ». *Proceedings of the IEEE* 68.2 (fév. 1980), p. 248-263.

[61] T. H. Cormen et al. *Introduction To Algorithms*. MIT Press, 2001.

[62] B. T. Draine et P. J. Flatau. « User Guide for the Discrete Dipole Approximation Code DDSCAT.6.0 ». *arXiv:astro-ph/0309069* (sept. 2003). arXiv: astro-ph/0309069.

[63] C. C. Katsidis et D. I. Siapkas. « General transfer-matrix method for optical multilayer systems with coherent, partially coherent, and incoherent interference ». *Applied Optics* 41.19 (juill. 2002), p. 3978-3987.

[64] P. R. Wiecha et al. « "pyGDM" - new functionalities and major improvements to the python toolkit for nano-optics full-field simulations ». *Computer Physics Communications* (août 2021), p. 108142.

[65] C. F. Bohren. « Particles Small Compared with the Wavelength ». *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. John Wiley & Sons, Ltd, 2007, p. 130-157.

[66] P. K. Jain et al. « Calculated Absorption and Scattering Properties of Gold Nanoparticles of Different Size, Shape, and Composition : Applications in Biological Imaging and Biomedicine ». *The Journal of Physical Chemistry B* 110.14 (avr. 2006), p. 7238-7248.

[67] R. M. Bakker et al. « Magnetic and Electric Hotspots with Silicon Nanodimers ». *Nano Letters* 15.3 (mars 2015), p. 2137-2142.

[68] M. Decker et I. Staude. « Resonant Dielectric Nanostructures : A Low-Loss Platform for Functional Nanophotonics ». *Journal of Optics* 18.10 (2016), p. 103001.

[69] A. Abass et al. « Insights into directional scattering : from coupled dipoles to asymmetric dimer nanoantennas ». *Optics Express* 24.17 (août 2016), p. 19638-19650.

[70] A. G. Curto et al. « Unidirectional Emission of a Quantum Dot Coupled to a Nanoantenna ». *Science* 329.5994 (août 2010), p. 930-933.

[71] D. Vercruysse et al. « Unidirectional Side Scattering of Light by a Single-Element Nanoantenna ». *Nano Letters* 13.8 (août 2013), p. 3843-3849.

[72] K. Yao et Y. Liu. « Controlling Electric and Magnetic Resonances for Ultracompact Nanoantennas with Tunable Directionality ». *ACS Photonics* 3.6 (juin 2016), p. 953-963.

[73] P. Biagioni, J.-S. Huang et B. Hecht. « Nanoantennas for visible and infrared radiation ». *Reports on Progress in Physics* 75.2 (jan. 2012), p. 024402.

[74] L. Novotny et B. Hecht. *Principles of Nano-Optics*. Cambridge University Press, sept. 2012.

[75] P. Bharadwaj, B. Deutsch et L. Novotny. « Optical Antennas ». *Advances in Optics and Photonics* 1.3 (nov. 2009), p. 438-483.

[76] L. Novotny. « Effective Wavelength Scaling for Optical Antennas ». *Physical Review Letters* 98.26 (juin 2007), p. 266802.

[77] J. Li. « Shaping light beams in the nanometer scale : A Yagi-Uda nanoantenna in the optical domain ». *Physical Review B* 76.24 (2007).

[78] T. H. Taminiau, F. D. Stefani et N. F. v. Hulst. « Enhanced directional excitation and emission of single emitters by a nano-optical Yagi-Uda antenna ». *Optics Express* 16.14 (juill. 2008), p. 10858-10866.

[79] I. S. Maksymov et al. « Optical Yagi-Uda nanoantennas ». *Nanophotonics* 1.1 (juill. 2012), p. 65-81.

[80] J. R. Krenn. « Direct observation of localized surface plasmon coupling ». *Physical Review B* 60.7 (1999), p. 5029-5033.

[81] G. Lévêque et al. « Polarization state of the optical near field ». *Physical Review E* 65.3 (fév. 2002). Publisher: American Physical Society, p. 036701.

[82] J.-C. Weeber et al. « Observation of Light Confinement Effects with a Near-Field Optical Microscope ». *Physical Review Letters* 77.27 (déc. 1996), p. 5332-5335.

[83] R. Hillenbrand, B. Knoll et F. Keilmann. « Pure Optical Contrast in Scattering-Type Scanning near-Field Microscopy ». *Journal of Microscopy* 202.1 (2001), p. 77-83.

[84] F. Huth et al. « Nano-FTIR Absorption Spectroscopy of Molecular Fingerprints at 20 nm Spatial Resolution ». *Nano Letters* 12.8 (août 2012), p. 3973-3978.

[85] J. A. Porto, R. Carminati et J.-J. Greffet. « Theory of Electromagnetic Field Imaging and Spectroscopy in Scanning Near-Field Optical Microscopy ». *Journal of Applied Physics* 88.8 (oct. 2000), p. 4845-4850.

[86] F. Huth et al. « Infrared-spectroscopic nanoimaging with a thermal source ». *Nature Materials* 10.5 (mai 2011), p. 352-356.

[87] C. Girard et A. Dereux. « Near-field optics theories ». *Reports on Progress in Physics* 59.5 (mai 1996), p. 657.

[88] A. Teulle et al. « Visibility of plasmonic particles embedded in transparent materials ». *Optics Communications* 291 (mars 2013), p. 412-415.

[89] F. A. Johnson. « Lattice Absorption Bands in Silicon ». *Proceedings of the Physical Society* 73.2 (fév. 1959), p. 265-272.

[90] I. H. Malitson. « Interspecimen Comparison of the Refractive Index of Fused Silica*,† ». *JOSA* 55.10 (oct. 1965), p. 1205-1209.

[91] M. Ikezawa et M. Ishigame. « Far-Infrared Absorption Due to the Two-Phonon Difference Process in Si ». *Journal of the Physical Society of Japan* 50.11 (nov. 1981), p. 3734-3738.

[92] C. Girard et al. « Manipulating and squeezing the photon local density of states with plasmonic nanoparticle networks ». *Physical Review B* 81.15 (avr. 2010), p. 153412.

[93] C. Chicanne et al. « Imaging the Local Density of States of Optical Corrals ». *Physical Review Letters* 88.9 (fév. 2002), p. 097402.

[94] P. R. Wiecha et al. « Enhancement of electric and magnetic dipole transition of rare-earth-doped thin films tailored by high-index dielectric nanostructures ». *Applied Optics* 58.7 (mars 2019), p. 1682-1690.

[95] A. Cuche et al. « Fluorescent oxide nanoparticles adapted to active tips for near-field optics ». *Nanotechnology* 20.1 (2009), p. 015603.

[96] A. Cuche et al. « Near-field hyperspectral quantum probing of multimodal plasmonic resonators ». *Physical Review B* 95.12 (mars 2017), p. 121402.

[97] J. Michaelis et al. « Optical Microscopy Using a Single-Molecule Light Source ». *Nature* 405.6784 (mai 2000), p. 325-328.

[98] K. Binnemans. « Interpretation of europium(III) spectra ». *Coordination Chemistry Reviews* 295 (juill. 2015), p. 1-45.

[99] N. Noginova et al. « Magnetic Dipole Based Systems for Probing Optical Magnetism ». *Journal of Applied Physics* 103.7 (jan. 2008), 07E901.

[100] C. Majorel et al. « Quantum theory of near-field optical imaging with rare-earth atomic clusters ». *JOSA B* 37.5 (mai 2020), p. 1474-1484.

[101] G. C. d. Francs et al. « Relationship between scanning near-field optical images and local density of photonic states ». *Chemical Physics Letters* 345.5 (2001), p. 512 -516.

[102] P. R. Wiecha et al. « Decay rate of magnetic dipoles near nonmagnetic nanostructures ». *Physical Review B* 97.8 (fév. 2018), p. 085411.

[103] C. Girard et al. « Generalized bloch equations for optical interactions in confined geometries ». *Chemical Physics Letters* 404.1 (mars 2005), p. 44-48.

[104] N. W. Ashcroft et N. D. Mermin. *Solid State Physics*. HRW international editions. Holt, Rinehart et Winston, 1976.

[105] M. A. Omar. *Elementary Solid State Physics : Principles and Applications*. Addison-Wesley series in solid state sciences. Addison-Wesley, 1975.

[106] C. Kittel. *Introduction to Solid State Physics*. Wiley, 2004.

[107] M. Grundmann. *The Physics of Semiconductors : An Introduction Including Devices and Nanophysics*. Springer Berlin Heidelberg, 2006.

[108] P. B. Johnson. « Optical Constants of the Noble Metals ». *Physical Review B* 6.12 (1972), p. 4370-4379.

[109] K. Kolwas et A. Derkachova. « Impact of the Interband Transitions in Gold and Silver on the Dynamics of Propagating and Localized Surface Plasmons ». *Nanomaterials* 10.7 (juill. 2020).

[110] A. Arbouet. « Réponse optiqe ultrarapide de nano-objets métalliques : effets de taille ». Thèse de doct. Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, juin 2004.

[111] D. Courjon et C. Bainier. *Le champ proche optique. Théorie et applications*. Collection technique et scientifique des télécommunications. Springer-Verlag France et France Télécom R&D, 2001.

[112] H. Raether. *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings*. Lecture Notes in Control and Information Sciences. Springer-Verlag, 1988.

[113] E. Kretschmann et H. Raether. « Radiative Decay of Non Radiative Surface Plasmons Excited by Light ». *Zeitschrift für Naturforschung A* 23.12 (déc. 1968), p. 2135-2136.

[114] A. Otto. « Excitation of nonradiative surface plasma waves in silver by the method of frustrated total reflection ». *Zeitschrift für Physik A Hadrons and nuclei* 216.4 (août 1968), p. 398-410.

[115] S. Park et al. « Resonant coupling of surface plasmons to radiation modes by use of dielectric gratings ». *Optics Letters* 28.20 (oct. 2003), p. 1870-1872.

[116] E. D. Palik. *Handbook of Optical Constants of Solids, Five-Volume Set : Handbook of Thermo-Optic Coefficients of Optical Materials with Applications*. Elsevier, déc. 1997.

[117] D. Chandler-Horowitz et P. M. Amirtharaj. « High-accuracy, midinfrared (450cm-1≤ω≤4000cm-1) refractive index values of silicon ». *Journal of Applied Physics* 97.12 (juin 2005), p. 123526.

[118] A. I. Kuznetsov et al. « Magnetic light ». *Scientific Reports* 2.1 (juill. 2012), p. 492.

[119] A. I. Kuznetsov et al. « Optically resonant dielectric nanostructures ». *Science* 354.6314 (nov. 2016).

[120] L. Tong, J. Lou et E. Mazur. « Single-mode guiding properties of subwave-length-diameter silica and silicon wire waveguides ». *Optics Express* 12.6 (mars 2004), p. 1025-1035.

[121] F. D. Leonardis et al. « Investigation of mid-infrared second harmonic generation in strained germanium waveguides ». *Optics Express* 24.10 (mai 2016), p. 11126-11144.

[122] N. Bonod. « Large-scale dielectric metasurfaces ». *Nature Materials* 14.7 (juill. 2015), p. 664-665.

[123] S. M. Kamali et al. « A review of dielectric optical metasurfaces for wavefront control ». *Nanophotonics* 7.6 (juin 2018), p. 1041-1068.

[124] S. M. Kamali et al. « Decoupling optical function and geometrical form using conformal flexible dielectric metasurfaces ». *Nature Communications* 7.1 (mai 2016), p. 11618.

[125] Z. Zhou et al. « Efficient Silicon Metasurfaces for Visible Light ». *ACS Photonics* 4.3 (mars 2017), p. 544-551.

[126] G. Mie. « Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen ». *Annalen der Physik* 330.3 (1908), p. 377-445.

[127] P. A. Bobbert et J. Vlieger. « Light scattering by a sphere on a substrate ». *Physica A: Statistical Mechanics and its Applications* 137.1 (juill. 1986), p. 209-242.

[128] Q. Zhao et al. « Mie resonance-based dielectric metamaterials ». *Materials Today* 12.12 (déc. 2009), p. 60-69.

[129] J. Proust et al. « All-Dielectric Colored Metasurfaces with Silicon Mie Resonators ». *ACS Nano* 10.8 (août 2016), p. 7761-7767.

[130] R. Colom. « Etude théorique et expérimentale des résonances optiques des résonateurs de Mie diélectriques pour exalter les interactions lumière-matière ». These de doctorat. Aix-Marseille, jan. 2018.

[131] A. Krasnok et al. « Spectroscopy and Biosensing with Optically Resonant Dielectric Nanostructures ». *Advanced Optical Materials* 6.5 (2018), p. 1701094.

[132] A. B. Evlyukhin, C. Reinhardt et B. N. Chichkov. « Multipole light scattering by nonspherical nanoparticles in the discrete dipole approximation ». *Physical Review B* 84.23 (déc. 2011), p. 235429.

[133] X. Liu et al. « Taming the Blackbody with Infrared Metamaterials as Selective Thermal Emitters ». *Physical Review Letters* 107.4 (juill. 2011), p. 045901.

[134] R. Dharmavarapu et al. « Dielectric cross-shaped-resonator-based metasurface for vortex beam generation at mid-IR and THz wavelengths ». *Nanophotonics* 8.7 (juill. 2019), p. 1263-1270.

[135] Z. O. Dombrovskaya et al. « All-dielectric metasurface filters for mid-infrared range ». *Journal of Physics: Conference Series* 1092 (sept. 2018), p. 012023.

[136] J. A. Faucheaux, A. L. D. Stanton et P. K. Jain. « Plasmon Resonances of Semiconductor Nanocrystals : Physical Principles and New Opportunities ». *The Journal of Physical Chemistry Letters* 5.6 (mars 2014), p. 976-985.

[137] I. Kriegel, F. Scotognella et L. Manna. « Plasmonic doped semiconductor nanocrystals : Properties, fabrication, applications and perspectives ». *Physics Reports* 674 (fév. 2017), p. 1-52.

[138] G. Masetti, M. Severi et S. Solmi. « Modeling of carrier mobility against carrier concentration in arsenic-, phosphorus-, and boron-doped silicon ». *IEEE Transactions on Electron Devices* 30.7 (juill. 1983), p. 764-769.

[139] K. Huet et al. « Doping of semiconductor devices by Laser Thermal Annealing ». *Materials Science in Semiconductor Processing* 62 (mai 2017), p. 92-102.

[140] W. T. Hsieh et al. « Comparative Analysis of Metals and Alternative Infrared Plasmonic Materials ». *ACS Photonics* 5.7 (juill. 2018), p. 2541-2548.

[141] M. K. Gunde. « Vibrational modes in amorphous silicon dioxide ». *Physica B: Condensed Matter* 292.3 (nov. 2000), p. 286-295.

[142] R. Kitamura, L. Pilon et M. Jonasz. « Optical constants of silica glass from extreme ultraviolet to far infrared at near room temperature ». 46.33 (nov. 2007), p. 8118-8133.

[143] D. Franta et al. « Dispersion model of two-phonon absorption : application to c-Si ». *Optical Materials Express* 4.8 (août 2014), p. 1641-1656.

[144] M. Bass et al. *Handbook of Optics Volume II Devices, Measurements, and Properties 2nd edition.* 1995.

[145] R. Marty et al. « Plasphonics : local hybridization of plasmons and phonons ». *Optics Express* 21.4 (fév. 2013), p. 4551-4559.

[146] R. Hillenbrand, T. Taubner et F. Keilmann. « Phonon-enhanced light–matter interaction at the nanometre scale ». *Nature* 418.6894 (juill. 2002), p. 159-162.

[147] M. S. Anderson. « Surface enhanced infrared absorption by coupling phonon and plasma resonance ». *Applied Physics Letters* 87.14 (sept. 2005), p. 144102.

[148] C. Girard et al. « Effective Polarizability of Two Interacting Adsorbed Atoms ». *Chemical Physics* 114.2 (juin 1987), p. 209-220.

[149] C. Girard et F. Hache. « Effective Polarizability of a Molecule Physisorbed on a Spherical Metal Particle : Nonlocal Effects ». *Chemical Physics* 118.2 (déc. 1987), p. 249-264.

[150] A. D. Buckingham. « Intermolecular Forces ». *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series B, Biological Sciences* 272.915 (1975), p. 5-12.

[151] A. D. Buckingham. « The Polarizability of a Pair of Interacting Atoms ». *Transactions of the Faraday Society* 52.0 (jan. 1956), p. 1035-1041.

[152] A. D. Buckingham. « Permanent and Induced Molecular Moments and Long-Range Intermolecular Forces ». *Advances in Chemical Physics: Intermolecular Forces* 12 (1967), p. 107-142.

[153] L. D. Barron et A. D. Buckingham. « Rayleigh and Raman Optical Activity ». *Annual Review of Physical Chemistry* 26.1 (1975), p. 381-396.

[154] A. D. Buckingham et D. A. Long. « Polarizability and Hyperpolarizability [and Discussion] ». *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* 293.1402 (1979), p. 239-248.

[155] A. B. Evlyukhin et al. « Optical Response Features of Si-Nanoparticle Arrays ». *Physical Review B* 82.4 (juill. 2010), p. 045404.

[156] I. Sersic et al. « Magnetoelectric Point Scattering Theory for Metamaterial Scatterers ». *Physical Review B* 83.24 (juin 2011), p. 245102.

[157] P. T. Bowen et al. « Using a Discrete Dipole Approximation to Predict Complete Scattering of Complicated Metamaterials ». *New Journal of Physics* 14.3 (mars 2012), p. 033038.

[158] F. B. Arango et A. F. Koenderink. « Polarizability Tensor Retrieval for Magnetic and Plasmonic Antenna Design ». *New Journal of Physics* 15.7 (juill. 2013), p. 073023.

[159] F. Bernal Arango, T. Coenen et A. F. Koenderink. « Underpinning Hybridization Intuition for Complex Nanoantennas by Magnetoelectric Quadrupolar Polarizability Retrieval ». *ACS Photonics* 1.5 (mai 2014), p. 444-453.

[160] V. S. Asadchy, A. Díaz-Rubio et S. A. Tretyakov. « Bianisotropic Metasurfaces : Physics and Applications ». *Nanophotonics* 7.6 (2018), p. 1069-1094.

[161] M. Bertrand et al. « Global polarizability matrix method for efficient modeling of light scattering by dense ensembles of non-spherical particles in stratified media ». *JOSA A* 37.1 (jan. 2020), p. 70-83.

[162] A. Moroz. « Depolarization Field of Spheroidal Particles ». *JOSA B* 26.3 (mars 2009), p. 517-527.

[163] A. H. Sihvola et al. *Electromagnetic Waves in Chiral and Bi-Isotropic Media*. Boston : Artech Print on Demand, mai 1994.

[164] A. Alù. « First-Principles Homogenization Theory for Periodic Metamaterials ». *Physical Review B* 84.7 (août 2011), p. 075153.

[165] A. Ciattoni et C. Rizza. « Nonlocal Homogenization Theory in Metamaterials : Effective Electromagnetic Spatial Dispersion and Artificial Chirality ». *Physical Review B* 91.18 (mai 2015), p. 184207.

[166] V. Amendola et al. « Surface Plasmon Resonance in Gold Nanoparticles : A Review ». *Journal of Physics: Condensed Matter* 29.20 (avr. 2017), p. 203002.

[167] P. Gay-Balmaz et O. J. F. Martin. « Validity Domain and Limitation of Non-Retarded Green's Tensor for Electromagnetic Scattering at Surfaces ». *Optics Communications* 184.1 (oct. 2000), p. 37-47.

[168] M. A. Kats et al. « Giant Birefringence in Optical Antenna Arrays with Widely Tailorable Optical Anisotropy ». *Proceedings of the National Academy of Sciences* 109.31 (juill. 2012), p. 12364-12368.

[169] P. R. Wiecha et al. « Polarization Conversion in Plasmonic Nanoantennas for Metasurfaces Using Structural Asymmetry and Mode Hybridization ». *Scientific Reports* 7 (jan. 2017), p. 40906.

[170] S. Panaro et al. « Dark to Bright Mode Conversion on Dipolar Nanoantennas : A Symmetry-Breaking Approach ». *ACS Photonics* 1.4 (avr. 2014), p. 310-314.

[171] L.-J. Black et al. « Optimal Polarization Conversion in Coupled Dimer Plasmonic Nanoantennas for Metasurfaces ». *ACS Nano* 8.6 (juin 2014), p. 6390-6399.

[172] C. Majorel et al. « Theory of plasmonic properties of hyper-doped silicon nanostructures ». *Optics Communications* 453 (déc. 2019), p. 124336.

[173] S. A. Maier et al. « Local detection of electromagnetic energy transport below the diffraction limit in metal nanoparticle plasmon waveguides ». *Nature Materials* 2.4 (avr. 2003), p. 229-232.

[174] P. Genevet et al. « Recent advances in planar optics : from plasmonic to dielectric metasurfaces ». *Optica* 4.1 (jan. 2017), p. 139.

[175] A. Boltasseva et H. A. Atwater. « Low-Loss Plasmonic Metamaterials ». *Science* 331.6015 (jan. 2011), p. 290-291.

[176] A. Tittl et al. « A Switchable Mid-Infrared Plasmonic Perfect Absorber with Multispectral Thermal Imaging Capability ». *Advanced Materials* 27.31 (août 2015), p. 4597-4603.

[177] N. J. Bareza et al. « Mid-infrared Gas Sensing Using Graphene Plasmons Tuned by Reversible Chemical Doping ». *ACS Photonics* 7.4 (avr. 2020), p. 879-884.

[178] D. Li et C. Z. Ning. « All-semiconductor active plasmonic system in mid-infrared wavelengths ». *Optics Express* 19.15 (juill. 2011), p. 14594.

[179] R. Buonsanti et al. « Tunable Infrared Absorption and Visible Transparency of Colloidal Aluminum-Doped Zinc Oxide Nanocrystals ». *Nano Letters* 11.11 (nov. 2011), p. 4706-4710.

[180] B. L. Greenberg et al. « Nonequilibrium-Plasma-Synthesized ZnO Nanocrystals with Plasmon Resonance Tunable via Al Doping and Quantum Confinement ». *Nano Letters* 15.12 (déc. 2015), p. 8162-8169.

[181] E. Della Gaspera et al. « Non-injection Synthesis of Doped Zinc Oxide Plasmonic Nanocrystals ». *ACS Nano* 8.9 (sept. 2014), p. 9154-9163.

[182] E. Della Gaspera et al. « Plasmonic Ge-doped ZnO nanocrystals ». *Chem. Commun.* 51.62 (2015), p. 12369-12372.

[183] M. Kanehara et al. « Indium Tin Oxide Nanoparticles with Compositionally Tunable Surface Plasmon Resonance Frequencies in the Near-IR Region ». *Journal of the American Chemical Society* 131.49 (déc. 2009), p. 17736-17737.

[184] T. Wang et P. V. Radovanovic. « Free Electron Concentration in Colloidal Indium Tin Oxide Nanocrystals Determined by Their Size and Structure ». *The Journal of Physical Chemistry C* 115.2 (jan. 2011), p. 406-413.

[185] G. Garcia et al. « Dynamically Modulating the Surface Plasmon Resonance of Doped Semiconductor Nanocrystals ». *Nano Letters* 11.10 (oct. 2011), p. 4415-4420.

[186] M. Jagadeeswararao et al. « Electrical and Plasmonic Properties of Ligand-Free Sn4+-Doped In2O3 (ITO) Nanocrystals ». *ChemPhysChem* 17.5 (2016), p. 710-716.

[187] Y. Li et al. « Tunable Solar-Heat Shielding Property of Transparent Films Based on Mesoporous Sb-Doped SnO2 Microspheres ». *ACS Applied Materials & Interfaces* 7.12 (avr. 2015), p. 6574-6583.

[188] S. D. Lounis et al. « Defect Chemistry and Plasmon Physics of Colloidal Metal Oxide Nanocrystals ». *The Journal of Physical Chemistry Letters* 5.9 (mai 2014), p. 1564-1574.

[189] E. L. Runnerstrom et al. « Nanostructured electrochromic smart windows : traditional materials and NIR-selective plasmonic nanocrystals ». *Chem. Commun.* 50.73 (2014), p. 10555-10572.

[190] I. Kriegel et al. « Tuning the Excitonic and Plasmonic Properties of Copper Chalcogenide Nanocrystals ». *Journal of the American Chemical Society* 134.3 (jan. 2012), p. 1583-1590.

[191] S. Zhou et al. « Ligand-Free, Colloidal, and Plasmonic Silicon Nanocrystals Heavily Doped with Boron ». *ACS Photonics* 3.3 (mars 2016), p. 415-422.

[192] X. Pi et C. Delerue. « Tight-Binding Calculations of the Optical Response of Optimally P-Doped Si Nanocrystals : A Model for Localized Surface Plasmon Resonance ». *Physical Review Letters* 111.17 (oct. 2013), p. 177402.

[193] P. Rohani et al. « Synthesis and Properties of Plasmonic Boron-Hyperdoped Silicon Nanoparticles ». *Advanced Functional Materials* 29.8 (2019), p. 1807788.

[194] R. Khelifi et al. « Efficient n-type doping of Si nanocrystals embedded in SiO2 by ion beam synthesis ». *Applied Physics Letters* 102.1 (jan. 2013), p. 013116.

[195] R. Demoulin et al. « Atomic-Scale Characterization of N-Doped Si Nanocrystals Embedded in SiO2 by Atom Probe Tomography ». *The Journal of Physical Chemistry C* 123.12 (mars 2019), p. 7381-7389.

[196] J. P. Petropoulos et al. « A simple thermodynamic model for the doping and alloying of nanoparticles ». *Nanotechnology* 22.24 (avr. 2011), p. 245704.

[197] A. Teulle et al. « Multimodal plasmonics in fused colloidal networks ». *Nature Materials* 14.1 (jan. 2015), p. 87-94.

[198] M. K. Hamza et al. « Tunable mid IR plasmon in GZO nanocrystals ». *Nanoscale* 7.28 (juill. 2015), p. 12030-12037.

[199] J. C. Ginn et al. « Infrared plasmons on heavily-doped silicon ». *Journal of Applied Physics* 110.4 (août 2011), p. 043110.

[200] M. Shahzad et al. « Infrared surface plasmons on heavily doped silicon ». *Journal of Applied Physics* 110.12 (déc. 2011), p. 123105.

[201] F. Della Sala et al. « Ab Initio Plasmonics of Externally Doped Silicon Nanocrystals ». *ACS Photonics* (avr. 2019).

[202] R. Guerra et S. Ossicini. « Preferential Positioning of Dopants and Co-Dopants in Embedded and Freestanding Si Nanocrystals ». *Journal of the American Chemical Society* 136.11 (mars 2014), p. 4404-4409.

[203] I. Marri et al. « First Principles Modeling of Si/Ge Nanostructures for Photovoltaic and Optoelectronic Applications ». *physica status solidi (b)* 255.10 (2018), p. 1700627.

[204] I. Marri, E. Degoli et S. Ossicini. « Doped and codoped silicon nanocrystals : The role of surfaces and interfaces ». *Progress in Surface Science* 92.4 (déc. 2017), p. 375-408.

[205] I. Marri, E. Degoli et S. Ossicini. « First Principle Studies of B and P Doped Si Nanocrystals ». *physica status solidi (a)* 215.3 (fév. 2018), p. 1700414.

[206] C. Delerue. « Minimum Line Width of Surface Plasmon Resonance in Doped ZnO Nanocrystals ». *Nano Letters* 17.12 (déc. 2017), p. 7599-7605.

[207] H. Zhang et al. « Doped Silicon Nanocrystal Plasmonics ». *ACS Photonics* 4.4 (avr. 2017), p. 963-970.

[208] P. Acosta Alba et al. « Nanosecond Laser Annealing for Phosphorous Activation in Ultra-Thin Implanted Silicon-On-Insulator Substrates ». *2016 21st International Conference on Ion Implantation Technology (IIT)*. Tainan, Taiwan : IEEE, sept. 2016, p. 1-4.

[209] P. R. Wiecha et al. « Evolutionary multi-objective optimization of colour pixels based on dielectric nanoantennas ». *Nature Nanotechnology* 12.2 (fév. 2017), p. 163-169.

[210] R. Marty et al. « Charge distribution induced inside complex plasmonic nanoparticles ». *Optics Express* 18.3 (fév. 2010), p. 3035-3044.

[211] A. M. Dibos et al. « Atomic Source of Single Photons in the Telecom Band ». *Physical Review Letters* 120.24 (juin 2018).

[212] S. Link et M. A. El-Sayed. « Spectral Properties and Relaxation Dynamics of Surface Plasmon Electronic Oscillations in Gold and Silver Nanodots and Nanorods ». *The Journal of Physical Chemistry B* 103.40 (oct. 1999), p. 8410-8426.

[213] G. S. Kino et al. « Optical Field Enhancement with Plasmon Resonant Bowtie Nanoantennas ». *Surface Plasmon Nanophotonics*. Springer Series in Optical Sciences. Dordrecht : Springer Netherlands, 2007, p. 125-137.

[214] J. R. Krenn et al. « Squeezing the Optical Near-Field Zone by Plasmon Coupling of Metallic Nanoparticles ». *Physical Review Letters* 82.12 (mars 1999), p. 2590-2593.

[215] M. Lequeux et al. « Plasmonic Properties of Gold Nanostructures on Gold Film ». *Plasmonics* 15.6 (déc. 2020), p. 1653-1660.

[216] S. Dodson et al. « Optimizing Electromagnetic Hotspots in Plasmonic Bowtie Nanoantennae ». *The Journal of Physical Chemistry Letters* 4.3 (fév. 2013), p. 496-501.

[217] C. Girard et al. « Importance of confined fields in near-field optical imaging of subwavelength objects ». *Phys. Rev. B* 50.19 (nov. 1994), p. 14467-14473.

[218] D. K. Gramotnev et M. W. Vogel. « Ultimate capabilities of sharp metal tips for plasmon nanofocusing, near-field trapping and sensing ». *Physics Letters A* 375.39 (sept. 2011), p. 3464-3468.

[219] J.-M. Poumirol et al. « Hyper-Doped Silicon Nanoantennas and Metasurfaces for Tunable Infrared Plasmonics ». *ACS Photonics* 8.5 (mai 2021), p. 1393-1399.

[220] F. Cristiano et al. « Defect evolution and dopant activation in laser annealed Si and Ge ». *Materials Science in Semiconductor Processing* 42 (fév. 2016), p. 188-195.

[221] P. Baeri et E. Rimini. « Laser annealing of silicon ». *Materials Chemistry and Physics* 46.2 (nov. 1996), p. 169-177.

[222] R. Reitano, P. M. Smith et M. J. Aziz. « Solute trapping of group III, IV, and V elements in silicon by an aperiodic stepwise growth mechanism ». *Journal of Applied Physics* 76.3 (1994), p. 1518-1529.

[223] J. F. Ziegler. « SRIM-2003 ». *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 219-220 (juin 2004), p. 1027-1036.

[224] Y. Guerfi, F. Carcenac et G. Larrieu. « High resolution HSQ nanopillar arrays with low energy electron beam lithography ». *Microelectronic Engineering* 110 (oct. 2013), p. 173-176.

[225] P. Pichler. *Intrinsic Point Defects, Impurities, and Their Diffusion in Silicon*. Computational Microelectronics. Vienna : Springer Vienna, 2004.

[226] A. B. Kuzmenko. « Kramers–Kronig constrained variational analysis of optical spectra ». *Review of Scientific Instruments* 76.8 (juill. 2005), p. 083108.

[227] S. Basu, B. J. Lee et Z. M. Zhang. « Infrared Radiative Properties of Heavily Doped Silicon at Room Temperature ». *Journal of Heat Transfer* 132.2 (fév. 2010).

[228] D. Nobili et al. « Precipitation as the phenomenon responsible for the electrically inactive phosphorus in silicon ». *Journal of Applied Physics* 53.3 (mars 1982), p. 1484-1491.

[229] J. A. del Alamo et R. M. Swanson. « Measurement of Hall scattering factor in phosphorus-doped silicon ». *Journal of Applied Physics* 57.6 (mars 1985), p. 2314-2317.

[230] J. M. Poumirol et al. « Magnetoplasmons in Quasineutral Epitaxial Graphene Nanoribbons ». *Physical Review Letters* 110.24 (juin 2013), p. 246803.

[231] M. Tamagnone et al. « Magnetoplasmonic enhancement of Faraday rotation in patterned graphene metasurfaces ». *Physical Review B* 97.24 (juin 2018), p. 241410.

[232] B. T. Draine et P. J. Flatau. « Discrete-dipole approximation for periodic targets : theory and tests ». *JOSA A* 25.11 (nov. 2008), p. 2693-2703.

[233] P. C. Chaumet, A. Rahmani et G. W. Bryant. « Generalization of the coupled dipole method to periodic structures ». *Physical Review B* 67.16 (avr. 2003), p. 165404.

[234] M. G. Blaber, M. D. Arnold et M. J. Ford. « A review of the optical properties of alloys and intermetallics for plasmonics ». *Journal of Physics: Condensed Matter* 22.14 (mars 2010), p. 143201.

[235] C. Majorel et al. « Deep learning enabled strategies for modelling of complex aperiodic plasmonic metasurfaces of arbitrary size ». *arXiv:2110.02109 [cond-mat, physics:physics]* (oct. 2021). arXiv: 2110.02109.

[236] C. M. J. Wijers, J.-H. Chu et O. Voskoboynikov. « Optics of embedded semiconductor nano-objects using a hybrid model : bare versus dressed polarizabilities ». *The European Physical Journal B* 54.2 (nov. 2006), p. 225-241.

[237] S. Yoo et Q.-H. Park. « Effective permittivity for resonant plasmonic nanoparticle systems via dressed polarizability ». *Optics Express* 20.15 (juill. 2012), p. 16480-16489.

[238] F. Chollet. *Deep Learning with Python, Second Edition*. Manning Publications, 2021.

[239] M. A. Nielsen. « Neural Networks and Deep Learning ». (2015). Publisher: Determination Press.

[240] B. Ding, H. Qian et J. Zhou. « Activation functions and their characteristics in deep neural networks ». *2018 Chinese Control And Decision Conference (CCDC)*. 2018, p. 1836-1841.

[241] C. Nwankpa et al. « Activation Functions : Comparison of trends in Practice and Research for Deep Learning ». *arXiv:1811.03378 [cs]* (nov. 2018).

[242] A. L. Maas, A. Y. Hannun et A. Y. Ng. « Rectifier Nonlinearities Improve Neural Network Acoustic Models ». *Proceedings of the 30th International Conference on Machine Learning*. Atlanta, USA : Citeseer, 2013.

[243] I. Goodfellow, Y. Bengio et A. Courville. *Deep Learning*. MIT Press, 2016.

[244] Z.-Q. Zhao et al. « Object Detection With Deep Learning : A Review ». *IEEE Transactions on Neural Networks and Learning Systems* 30.11 (nov. 2019), p. 3212-3232.

[245] A. S. Lundervold et A. Lundervold. « An overview of deep learning in medical imaging focusing on MRI ». *Zeitschrift für Medizinische Physik* 29.2 (mai 2019), p. 102-127.

[246] R. Hinami et al. « Towards Fully Automated Manga Translation ». *arXiv:2012.14271* (jan. 2021).

[247] C. Chen et al. « DeepDriving : Learning Affordance for Direct Perception in Autonomous Driving ». *arXiv:1505.00256* (sept. 2015).

[248] X. Sun, P. Wu et S. C. H. Hoi. « Face detection using deep learning : An improved faster RCNN approach ». *Neurocomputing* 299 (juill. 2018), p. 42-50.

[249] S. So, J. Mun et J. Rho. « Simultaneous Inverse Design of Materials and Structures via Deep Learning : Demonstration of Dipole Resonance Engineering Using Core–Shell Nanoparticles ». *ACS Applied Materials & Interfaces* 11.27 (juill. 2019), p. 24264-24268.

[250] A.-P. Blanchard-Dionne et O. J. F. Martin. « Teaching optics to a machine learning network ». *Optics Letters* 45.10 (mai 2020), p. 2922-2925.

[251] S. An et al. « Deep Convolutional Neural Networks to Predict Mutual Coupling Effects in Metasurfaces ». *arXiv:2102.01761* (fév. 2021).

[252] J. Peurifoy et al. « Nanophotonic particle simulation and inverse design using artificial neural networks ». *Science Advances* 4.6 (juin 2018).

[253] I. Malkiel et al. « Plasmonic nanostructure design and characterization via Deep Learning ». *Light: Science & Applications* 7.1 (sept. 2018), p. 60.

[254] D. Liu et al. « Training Deep Neural Networks for the Inverse Design of Nanophotonic Structures ». *ACS Photonics* 5.4 (avr. 2018), p. 1365-1369.

[255] P. R. Wiecha et al. « Deep learning in nano-photonics : inverse design and beyond ». *Photonics Research* 9.5 (mai 2021), B182-B200.

[256] E. Castanié et al. « Absorption by an Optical Dipole Antenna in a Structured Environment ». *International Journal of Optics* 2012 (mars 2012), p. 452047.

[257] O. Levy et D. Stroud. « Maxwell Garnett theory for mixtures of anisotropic inclusions : Application to conducting polymers ». *Physical Review B* 56.13 (oct. 1997), p. 8035-8046.

[258] V. A. Markel. « Introduction to the Maxwell Garnett approximation : tutorial ». *JOSA A* 33.7 (juill. 2016), p. 1244-1256.

[259] O. Ronneberger, P. Fischer et T. Brox. « U-Net : Convolutional Networks for Biomedical Image Segmentation ». *arXiv:1505.04597* (mai 2015).

[260] K. He et al. « Deep Residual Learning for Image Recognition ». *arXiv:1512.03385* (déc. 2015).

[261] C. Szegedy et al. « Inception-v4, Inception-ResNet and the Impact of Residual Connections on Learning ». *Proceedings of the Thirty-First AAAI Conference on Artificial Intelligence* (fév. 2016), p. 4278-4284.

[262] S. Zagoruyko et N. Komodakis. « Wide Residual Networks ». *arXiv:1605.07146* (juin 2017).

[263] S. Ioffe et C. Szegedy. « Batch Normalization : Accelerating Deep Network Training by Reducing Internal Covariate Shift ». *arXiv:1502.03167* (fév. 2015).

[264] P. R. Wiecha et O. L. Muskens. « Deep Learning Meets Nanophotonics : A Generalized Accurate Predictor for Near Fields and Far Fields of Arbitrary 3D Nanostructures ». *Nano Letters* 20.1 (jan. 2020), p. 329-338.

[265] D. P. Kingma et J. Ba. « Adam : A Method for Stochastic Optimization ». *arXiv:1412.6980* (jan. 2017). arXiv: 1412.6980.

[266] D. Werdehausen et al. « Modeling Optical Materials at the Single Scatterer Level : The Transition from Homogeneous to Heterogeneous Materials ». *Advanced Theory and Simulations* 3.11 (2020), p. 2000192.

[267] P. K. Jain et M. A. El-Sayed. « Plasmonic coupling in noble metal nanostructures ». *Chemical Physics Letters* 487.4 (mars 2010), p. 153-164.

[268] L. Fezoui et al. « Convergence and stability of a discontinuous Galerkin time-domain method for the 3D heterogeneous Maxwell equations on unstructured meshes ». *ESAIM: Mathematical Modelling and Numerical Analysis* 39.6 (nov. 2005), p. 1149-1176.

[269] U. Hohenester et A. Trügler. « MNPBEM – A Matlab toolbox for the simulation of plasmonic nanoparticles ». *Computer Physics Communications* 183.2 (fév. 2012), p. 370-381.

[270] B. Gallinet, J. Butet et O. J. F. Martin. « Numerical methods for nanophotonics : standard problems and future challenges ». *Laser & Photonics Reviews* 9.6 (2015), p. 577-603.

[271] K. Pham, A. Maurel et J.-J. Marigo. « Two scale homogenization of a row of locally resonant inclusions - the case of anti-plane shear waves ». *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 106 (sept. 2017), p. 80-94.

[272] M. L. Lee et al. « Strained Si, SiGe, and Ge channels for high-mobility metal-oxide-semiconductor field-effect transistors ». *Journal of Applied Physics* 97.1 (jan. 2005), p. 011101.

[273] M. Cada et al. « Theoretical and experimental study of plasmonic effects in heavily doped gallium arsenide and indium phosphide ». *Optical Materials Express* 5.2 (fév. 2015), p. 340-352.

[274] A. Alù et al. « Causality relations in the homogenization of metamaterials ». *Physical Review B* 84.5 (août 2011), p. 054305.

[275] G. Baffou, C. Girard et R. Quidant. « Mapping Heat Origin in Plasmonic Structures ». *Physical Review Letters* 104.13 (avr. 2010), p. 136805.

[276] L. Novotny. « Allowed and forbidden light in near-field optics. I. A single dipolar light source ». *JOSA A* 14.1 (jan. 1997), p. 91-104.

[277] M. Born et E. Wolf. *Principles of Optics : Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light*. Elsevier, juin 2013.

Résumé/Abstract

Résumé

Les métaux et les diélectriques à fort indice optique constituent les deux principales familles de matériaux utilisées en nano-optique. Les nanostructures fabriquées à partir de ces matériaux donnent lieu à des résonances optiques, c'est-à-dire une exaltation de l'interaction rayonnement-matière. Pour les métaux, la résonance provient de propriétés plasmoniques, alors que pour les diélectriques, les résonances sont de type Mie, dû à leur indice élevé. En jouant sur les dimensions des nanostructures, ces résonances peuvent être ajustées jusque dans la gamme proche infrarouge pour des objets de grandes tailles. Depuis une quinzaine d'années, les matériaux semiconducteurs dopés ont été envisagés, du fait de leur plus faible densité de porteurs libres, pour obtenir des résonances plasmoniques dans l'infrarouge moyen, et cela, même pour de petits objets. Durant cette thèse, nous avons étudié des systèmes modèles constitués d'une assemblée de nanostructures de silicium hyperdopé, obtenues à partir de la couche supérieure d'un substrat de silicium sur isolant (SOI) par une technique top-down. Les nanostructures de la métasurface ont ainsi toutes la même taille et la même quantité de dopants. La réponse plasmonique de la structure unique a été simulée à l'aide de la méthode dyadique de Green (GDM), qui repose sur la discrétisation en volume de la nanostructure, que nous avons adaptée au cas des semiconducteurs dopés. Nous avons confronté nos simulations avec des mesures expérimentales réalisées à l'aide d'un dispositif de spectroscopie infrarouge à Transformée de Fourier (FTIR). En parallèle à ces travaux nous avons développé un modèle de polarisabilité effective pour approximer une structure de forme complexe par un dipôle unique. Cette approximation nous permet de coupler un grand nombre de nanostructures entre elles, afin de simuler l'assemblée d'objets dans son ensemble. Pour finir nous avons utilisé une approche de deep learning, couplée à un modèle de polarisabilités habillées, afin de prédire rapidement le couplage optique au sein d'une métasurface plasmonique apériodique et dépasser les limites actuelles de calcul pour simuler la réponse optique de métasurfaces de très grandes tailles.

Abstract

Metals and high refractive index dielectrics are the two main families of materials used in nano-optics. Nanostructures made from these materials give rise to optical resonances, i.e. an exaltation of the light-matter interaction. For metals, the resonance comes from plasmonic properties, whereas for dielectrics, they are Mie-type resonances, due to their high index. By adjusting the dimensions of the nanostructures, these resonances can be tuned down to the near infrared range for very large objects. For the last fifteen years, doped semiconducting materials have been considered, due to their low density of free carriers, to obtain plasmonic resonances in the mid-infrared, even for small objects. During this thesis, we studied model systems made of an assembly of hyperdoped silicon nanostructures, obtained from the top layer of silicon-on-insulator (SOI) substrate, by a top-down technique. The nanostructures of the metasurface thus all have the same size and the same amount of dopants. The response of the single structure was simulated using the Green Dyadic Method (GDM), which is based on the volume discretization of the nanostructure, that we adapted to the case of doped semiconductors. In parallel to this work, we have developed an effective polarizability model to approximate a complex shaped structure by a single dipole. This approximation allows us to couple a large number of nanostructures , so that we can simulate an assembly of objects in its entirety. Finally, we used a deep learning approach, coupled with a model of dressed polarizabilities, for a fast prediction of the optical coupling within an aperiodic plasmonic metasurface, in order to overcome current computational limitations and simulate the optical response of very large metasurfaces.