



HAL
open science

Ingénierie du désordre pour les métasurfaces absorbantes dans l'infrarouge

Denis Langevin

► **To cite this version:**

Denis Langevin. Ingénierie du désordre pour les métasurfaces absorbantes dans l'infrarouge. Optique [physics.optics]. Institut Polytechnique de Paris, 2022. Français. ⟨NNT : 2022IPPAX077⟩. ⟨tel-04102598⟩

HAL Id: tel-04102598

<https://theses.hal.science/tel-04102598v1>

Submitted on 22 May 2023

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.



HAL Authorization



INSTITUT
POLYTECHNIQUE
DE PARIS

NNT : 2022IPPAX077

Thèse de doctorat



Ingénierie du désordre pour les métasurfaces absorbantes dans l'infrarouge

Thèse de doctorat de l'Institut Polytechnique de Paris
préparée à l'École polytechnique

École doctorale n°626 École doctorale de l'Institut Polytechnique de Paris (EDIPP)
Spécialité de doctorat : Physique

Thèse présentée et soutenue à Palaiseau, le 21 octobre 2022, par

DENIS LANGEVIN

Composition du Jury :

Agnès Maitre Professeure, Sorbonne Université (INSP)	Rapporteuse
Antoine Moreau Maître de conférences, Institut Pascal	Rapporteur
Femius Koenderink Professeur, AMOLF Institute, Center for Nanophotonics	Examineur
Rémi Carminati Professeur, Institut d'Optique Graduate School (IOGS)	Président du jury
Riad Haïdar Directeur de recherche, ONERA (DSG)	Directeur de thèse
Patrick Bouchon Directeur de recherche, ONERA (DOTA)	Directeur de thèse
Julien Jaeck Maître de recherche, ONERA (DOTA)	Invité
Rose-Marie Sauvage Responsable du domaine scientifique Nanotechnologies, capteurs et composants, Agence Innovation Défense (AID)	Invitée

Remerciements

D'abord, merci aux personnes qui ont permis de mettre un point final au travail que représente ce manuscrit : le jury de ma thèse. Merci à tou-tes pour votre intérêt, vos questions, nos discussions. Le jour de ma soutenance fut (a posteriori, mais pas que) un très bon moment, en grande partie grâce à vous.

Mention spéciale à Antoine Moreau pour avoir, il y a plus d'un an déjà, manifesté ton intérêt pour me faire venir dans ton équipe à la fin de ma thèse. Savoir où j'allais m'a donné beaucoup de force et de motivation pour la préparation du manuscrit et de la soutenance, parce que cela devenait non plus la fin de quelque chose mais simplement une étape entre deux moments. J'écris donc ces lignes depuis Clermont, où je retrouve enfin ce qui m'a le plus manqué pendant mon séjour palaisien, la montagne et la forêt!

Ensuite, au trio de choc qui a encadré mon travail, merci de m'avoir fait confiance du début à la fin, de m'avoir poussé à donner le meilleur de moi-même et de m'avoir fait viser toujours plus haut. Merci également pour votre vision plus globale et long terme de la recherche, qui m'a permis de garder à la fois la tête sur les épaules et les idées claires sur pourquoi on faisait tout ça.

Plus précisément, merci à Riad pour la découverte de la plasmonique et de l'ONERA, pour ta motivation permanente, et pour ta disponibilité malgré tes responsabilités.

Merci à Julien pour les discussions diverses, parfois bien concrètes, parfois à refaire le monde, souvent autour de la SF ou du jeu de rôle. Merci aussi pour ton soutien et tes encouragements tout au long de mon travail.

Merci à Patrick pour ton soutien et ta bienveillance. Ces trois années ont été assez chargées et compliquées (pas seulement à cause du covid mais ça n'a pas aidé), et tu as toujours fait preuve d'une écoute et d'une compréhension sans faille.

À tou-tes les collègues de l'équipe CIO, merci pour votre enthousiasme, pour l'ambiance détendue, pour les jeux réguliers, pour la bonne humeur générale.

Merci à ceux qui étaient là avant moi : Baptiste, Clément, Léna, Micke, Eslam, Hasnaa, Arthur, Audrey, Claire, l'autre Clément. Vous m'avez accueilli et m'avez fait me sentir à ma place immédiatement, c'était trop cool.

Merci à ceux qui ont été là en même temps que moi : Cyprien et Loubnan. On a traversé le confinement total du début de Covid, on a sué ensemble sur nos articles, sur nos manuscrits, sur nos manip's (et sous le soleil, un peu, aussi), et malgré tout on s'en sort. Bon courage pour la dernière ligne droite!

Merci à ceux qui seront là après moi : l'autre autre Clément, Tomasz, Cécile, Thomas, Jules, Benoît, ceux que je ne connais pas encore. Votre fraîche motivation a souvent redonné de l'élan au vieux docteur que j'étais. Amusez-vous bien pour la suite, place aux jeunes!

Et merci à toutes les personnes qui ont été là temporairement, notamment les stagiaires qui ont eu la gentillesse de nous rappeler par leur présence que le monde extérieur existait encore, et ont toutes fait du super boulot (enfin il paraît, j'ai jamais eu de stagiaire qui bossait sur mon sujet, snif).

Mentions spéciales à mes joyeux drilles de co-bureau :

Merci Alice pour ton écoute, ta bienveillance et ton enthousiasme contagieux.

Merci Maxence pour les fou rires inopinés et pour ta détermination.

Merci Claire pour les discussions littéraires ou féministes à l'improviste.

Merci Laura pour ton énergie, ta gentillesse et ton canapé (un jour je récupérerai mon sac de couchage, un jour promis).

À toutes les autres ami-es avec qui la vie m'a permis de garder ou nouer contact pendant ces années palaisiennes, merci d'avoir fait l'effort de combiner nos emplois du temps d'adultes pour réussir à nous voir!

Priorité aux anciens : Merci Simon de ne pas m'avoir oublié après tout ce temps et de continuer d'être une personne avec qui je suis spontanément à l'aise, même si on ne se voit pas pendant 5 ans. Merci Paul de l'intérêt que tu portes à ce que je fais et pour nos interminables discussions à refaire le monde.

Merci Célia pour toutes les soirées jeu passées ensemble, que ce soit chez nous ou à distance. Et merci d'avoir fait tout le chemin pour venir à Palaiseau le soir de ma soutenance! Merci Élo pour les pauses café à l'improviste, pour les moments partagés à Rome, et pour ton honnêteté.

Merci Vincent et Tristan de la ludothèque la Souris Verte, mon temps libre a été bien mieux rempli grâce à vous. Et merci de m'avoir fait confiance pour la Fête du Jeu!

Merci Djibril, d'abord pour m'avoir entraîné à l'orchestre, puis pour m'avoir appris la clarinette, et enfin pour avoir partagé tant de moments de jeu. Merci enfin pour tous les précieux moments qu'on a partagés, qu'on continue de partager. Force à toi pour tes études!

Merci enfin à toutes les personnes du quartier de la Bourbillère, la vie quotidienne aurait été vraiment moins joyeuse sans vous. En vrac, merci à Sam, Pierre, Fabienne, Christopher, Bernard, Claire, Renaud, Jacqueline, Madeleine, Pierre, Olivier, Isa et Laurence. Restez comme vous êtes, et venez donc nous voir à Clermont!

À mes parents, merci de m'avoir encouragé dans mes choix et d'avoir toujours nourri et attisé ma curiosité. Votre ouverture d'esprit et votre bienveillance continuent d'être mes guides. Merci aussi pour votre soutien constant, aussi bien émotionnel que pratico-pratique, c'est en grande partie grâce à vous si je suis devenu l'adulte (à peu près) fonctionnel que je suis aujourd'hui.

À ma famille, et notamment à Nico, Flavie, Nat', Mamie, Jean-Claude, Solange, Aude et Alexia, merci pour des parenthèses familiales précieuses pendant ces longues années.

Enfin, à toi, Lorraine, merci pour avoir été là depuis avant même le début de cette aventure. Merci pour ces 3 ans et demi de soutien mutuel, de découvertes, de jeux, de discussions enflammées. Merci aussi d'avoir fait entrer un chat dans nos vies, merci d'avoir été là quand j'en ai eu besoin et de m'avoir laissé être là quand tu en avais besoin. Merci d'avoir accompagné mes changements, mes réflexions, mes doutes. À tes côtés, j'en ai probablement plus appris sur la vie que je n'en ai appris sur la physique en 8 ans d'études supérieures. Merci de continuer à regarder ensemble dans la même direction, quoique nous apporte le futur.

Table des matières

Remerciements	i
Introduction	1
I Métsurfaces métalliques désordonnées	5
1 Métsurfaces métalliques pour le contrôle de comportements optiques	7
1.1 Optique aux interfaces	7
1.2 Structures métalliques	8
1.2.1 Plasmonique	9
1.2.2 Applications des structures plasmoniques	10
1.3 Résonateurs Métal-Isolant-Métal	12
2 Ingénierie de désordre corrélé	15
2.1 Diffusion de la lumière par des particules	15
2.1.1 Diffusion de Rayleigh	17
2.1.2 Approximation dipolaire	18
2.1.3 Applications de la diffusion de particules	19
2.2 Diffusion de la lumière par un ensemble de particules	20
2.2.1 Désordre corrélé	20
2.2.2 Ingénierie de désordre	23
2.3 Désordre de structures métalliques	25
2.3.1 Applications des métsurfaces métalliques désordonnées	25
2.3.2 Diffusion dans les métsurfaces métalliques désordonnées	26
II Modélisation d'ensembles désordonnés de nano-résonateurs Fabry-Perot verticaux 1D	29
3 Méthode analytique pour la simulation de réseaux de résonateurs monomodes	31
3.1 Simulation de réseaux de résonateurs monomodes	32

3.1.1	Définition du modèle analytique	32
3.1.2	Vecteurs d'onde du mode des sillons	34
3.1.3	Méthode de résolution	35
3.2	Extensions possibles du modèle	37
3.2.1	Extension à des structures en transmission	37
3.2.2	Difficultés d'extension à des structures 2D	38
3.3	Validation du modèle	39
3.3.1	Structures tests	40
3.3.2	Étude de la précision du modèle	41
4	Étude numérique de l'effet du désordre sur le comportement des réseaux de sillons métalliques	45
4.1	Définitions préalables	45
4.1.1	Quantification du désordre	45
4.1.2	Super-période des structures désordonnées	46
4.2	Étude de la répartition de l'énergie pour un réseau de sillons désordonnés	47
4.2.1	Répartition spectrale de l'énergie	47
4.2.2	Répartition angulaire de l'énergie réfléchie	50
4.3	Étude d'un réseau de fentes désordonné	52
4.3.1	Transmission Optique Extraordinaire	52
4.3.2	Répartition spectrale de l'énergie	53
4.4	Proposition de structure très diffusante	55
4.4.1	Structure proposée	55
4.4.2	Comportement désordonné	56
III	Étude expérimentale de désordres hyperuniformes de nano-résonateurs Fabry-Perot horizontaux	59
5	Mesure de la diffusion	61
5.1	Système physique étudié	61
5.1.1	Résonateur étudié	61
5.1.2	Distribution désordonnée des résonateurs	63
5.1.3	Définition d'une période équivalente	65
5.2	Mesure de la réflectivité	65
5.2.1	Montage et variation avec l'angle d'incidence	65
5.2.2	Influence de la taille des résonateurs	67
5.3	Mesure de l'absorption	67
5.3.1	Principe de mesure	68
5.3.2	Preuve de concept et premiers résultats	69
5.3.3	Sources de bruit et optimisation	70
6	Mesure des sections efficaces	75
6.1	Mesure des sections efficaces	75
6.1.1	Preuve de concept	75
6.1.2	Évolution non-linéaire de la réponse optique	77
6.2	Comparaison à des simulations numériques 2D	80
6.3	Influence des paramètres géométriques	82
6.3.1	Résonateurs carrés	82

6.3.2	Sillons métalliques 1D	84
6.3.3	Résonateurs rectangulaires	85
7	Influence de la combinaison de plusieurs résonateurs	89
7.1	Comparaison sections efficaces mono- et bi-résonateurs	89
7.1.1	Sections efficaces de bi-résonateurs	89
7.1.2	Influence de la proximité spectrale des résonances	91
7.1.3	Modélisation lorentzienne des résonances	92
7.1.4	Influence de la densité	93
7.2	Vérification avec le modèle analytique	94
7.2.1	Objet d'étude : Réseau de bi-sillons	94
7.2.2	Spectres de sillons non couplés	94
7.2.3	Modélisation simplifiée	96
7.2.4	Cas de sillons spectralement proches	97
	Conclusion et perspectives	101
A	Annexe : Méthode modale de simulation 2D	107
A.1	Les bases de BMM 1D	107
A.2	BMM 2D	109
A.2.1	Le casse-tête du passage en 2D	109
A.2.2	Une idée : les T-Splines	110
A.2.3	Relations de continuité et de périodicité	111
	Bibliographie	112

Introduction

Cette thèse, co-financée par l'Agence Innovation Défense (AID) et l'ONERA, s'est déroulée dans l'équipe Composants et Instruments Optroniques (CIO) du Département d'Optique et Techniques Associées (DOTA) de l'ONERA. Les recherches menées au sein de l'équipe CIO concernent principalement l'étude et le développement de capteurs et d'émetteurs infrarouge, notamment basés sur des ensembles de résonateurs métalliques de dimensions sub-longueur d'onde. Ces résonateurs permettent le contrôle local des propriétés du champ électromagnétique pour l'ingénierie des phénomènes optiques, tels que l'exaltation de l'absorption optique par de faibles concentrations de molécules ou d'effets optiques non-linéaires pour la génération de longueurs d'onde. Pour la conception de ces ensembles de résonateurs, l'équipe possède de nombreux moyens de caractérisation expérimentale (ellipsométrie, interférométrie, mesures de champ proche optique, etc.) et de simulations numériques permettant d'étudier leur comportement optique. Pendant ma thèse, une convention d'accueil a été établie entre le DOTA et le Centre de Nanosciences et Technologies (C2N) voisin, pour l'utilisation des salles blanches et la fabrication des échantillons conçus au sein de l'équipe. Cette thèse aborde, tant du point de vue expérimental que numérique, l'étude de l'interaction entre le champ électromagnétique et des ensembles désordonnés de nano-résonateurs métalliques.

Objectifs et enjeux de ce travail

Avec la maturation et l'optimisation des processus de fabrication de structures micro- et nanométriques, notamment les résonateurs métalliques étudiés à CIO, les possibilités pour contrôler la propagation et l'absorption du champ électromagnétique infrarouge se sont décuplées. Parmi les travaux sur ces résonateurs, une grande majorité s'intéresse à des structurations périodiques, à la fois parce qu'elles ont des propriétés optiques très intéressantes et parce que cela simplifie grandement la modélisation du problème physique. Toutefois, les ensembles de résonateurs désordonnés suscitent un intérêt croissant parce qu'ils ouvrent de nouvelles perspectives grâce à l'ajout de degrés de liberté. Au sein de l'équipe CIO, deux thèses ont déjà abordé le sujet des ensembles désordonnés de résonateurs métalliques. D'abord celle de Paul Chevalier^[1] dont ce n'était pas le sujet principal, qui s'est servi de structures désordonnées pour annuler les effets de périodicité (la diffraction). La seconde est celle d'Eslam El Shamy^[2] dédiée à l'étude de l'influence du désordre sur la réponse optique d'ensembles de résonateurs, et qui a montré notamment comment la perturbation

¹ CHEVALIER, « Hyperfocalisation de la lumière par structuration sub-longueur d'onde »

² EL SHAMY, « Ingénierie de métasurfaces désordonnées pour le contrôle de propriétés optiques »

progressive d'une structure périodique convertissait l'énergie diffractée en énergie diffusée de manière résonante.

À la suite de ces travaux, l'objectif de ma thèse a été de modéliser et caractériser expérimentalement la modification des comportements optiques lors de l'ajout de désordre dans ces ensembles de résonateurs métalliques. La motivation à cela est avant tout de pouvoir exploiter les effets spécifiques aux structures désordonnées, rendus possibles par l'augmentation du nombre de degrés de liberté d'optimisation lors de la levée de la contrainte de périodicité. Par ailleurs, il peut être plus facile de fabriquer des structures désordonnées à l'aide de méthodes de fabrication rapides et peu onéreuses, comme l'auto-assemblage de nanoparticules, et il est donc important de savoir quels sont les comportements physiques, connus dans les structures périodiques, qui sont résistants au désordre et permettront l'utilisation de ces méthodes de fabrication.

Les deux thèses qui m'ont précédé ont montré le besoin de développer des méthodes, à la fois numériques et expérimentales, permettant d'étudier les particularités des structures désordonnées. Ma thèse a donc eu pour ambition de répondre à ces deux besoins, et d'exploiter les nouvelles méthodes développées. Ainsi, il m'a fallu implémenter une nouvelle méthode de simulation pour pouvoir étudier des grands ensembles non périodiques de résonateurs. De même, la caractérisation expérimentale complète des structures désordonnées est limitée par le besoin de détecter la lumière que la surface diffuse, dans toutes les directions possibles, ce qui nécessite des méthodes de détection à la fois sensibles (il y a peu de lumière dans une direction donnée) et "agiles" (il faut pouvoir placer un détecteur n'importe où par rapport à la surface). J'ai donc proposé un protocole expérimental, commençant dès la conception de l'échantillon, permettant de contourner ce problème et d'accéder à l'ensemble des propriétés de la structure, notamment la contribution de chaque résonateur unique.

Organisation du manuscrit

Ce manuscrit est organisé en trois parties. La première est une présentation des propriétés générales des résonateurs métalliques d'une part, et des structures désordonnées d'autre part. Les deux parties suivantes s'intéressent chacune à un des deux axes de développement présentés précédemment. La deuxième partie présente ainsi la méthode de simulation numérique développée pour l'étude de structures désordonnées et quelques cas d'applications, tandis que la troisième partie présente le protocole expérimental développé et les résultats obtenus.

Première partie

La première partie de ce manuscrit introduit succinctement les domaines de la plasmonique et des métasurfaces désordonnées, afin de replacer mon travail de thèse dans son contexte scientifique et de donner les clés de compréhension nécessaires. Elle présente ainsi les caractéristiques des structures métalliques de dimensions sub-longueur d'onde permettant le contrôle et l'exaltation locale du champ électromagnétique, notamment par le biais des plasmons, modes d'oscillation des électrons à la surface des métaux. Les propriétés importantes des structures désordonnées y sont ensuite exposées, notamment leur capacité à contrôler la répartition spatiale de l'énergie lumineuse, et plus particulièrement l'importance des désordres corrélés pour l'ingénierie de réponses optiques. À l'intersection de ces deux domaines se trouvent les structures métalliques désordonnées, qui font l'objet d'étude très prometteuses par le contrôle à la fois spectral et spatial de la lumière qu'elles permettent. Les travaux sur ce sujet sont présentés, notamment ceux réalisés par mes prédécesseurs au sein de l'équipe où j'ai effectué cette thèse.

Deuxième partie

La deuxième partie de ce manuscrit se concentre sur l'étude numérique de l'effet du désordre sur la réponse optique de réseaux de résonateurs métalliques monomodes. Je montre tout d'abord dans le Chapitre 3 le besoin de méthodes de simulation rapides, optimisées pour les caractéristiques des structures désordonnées. Je détaille alors le modèle analytique que j'ai développé, ainsi que les vérifications et limites de sa validité. Pour cette méthode de simulation, des hypothèses fortes sont faites sur le type de résonateur qu'elle peut modéliser, nécessitant de trouver un compromis entre rapidité et polyvalence. Ce sont des sillons métalliques qui sont choisis, car leur comportement optique est à la fois simple tout en restant proche de celui de résonateurs plus complexes.

Je présente ensuite, dans le Chapitre 4, l'exploitation de cette méthode de simulation pour la caractérisation précise de l'effet du désordre sur la réponse spectrale et spatiale d'ensembles de sillons et de fentes métalliques, donc à la fois en réflexion et en transmission. La conversion de l'énergie diffractée par une structure périodique en énergie diffusée lors de l'ajout du désordre est ainsi retrouvée pour des ensembles de sillons métalliques. L'étude des ensembles de fentes métalliques de largeur sub-longueur d'onde permet d'analyser l'effet du désordre sur le phénomène de transmission extraordinaire. Enfin, une structure très diffusante, optimisée grâce à cette nouvelle méthode de calcul et la compréhension qu'elle apporte, est proposée et décrite en exemple.

Troisième partie

La troisième partie de ce manuscrit se concentre sur l'étude expérimentale d'échantillons 2D désordonnés. Le but est notamment d'accéder aux propriétés des résonateurs uniques à partir de mesures de la réponse optique de grands ensembles de résonateurs. Cela constitue une simplification considérable pour la caractérisation de résonateurs uniques. Pour ce faire, le Chapitre 5 présente le protocole de conception et de caractérisation des échantillons. La conception est importante puisqu'il s'agit de fabriquer des échantillons ne présentant aucune diffraction. La caractérisation nécessite alors une mesure de réflectivité et une mesure d'émissivité thermique pour connaître complètement la répartition de l'énergie lumineuse dans la structure, selon les deux canaux possibles (absorption et diffusion).

Le Chapitre 6 donne alors les résultats de ces mesures, et montre que l'on peut ainsi obtenir une valeur des sections efficaces des résonateurs uniques, à partir de la mesure des sections efficaces d'ensembles de résonateurs de densités différentes. Des ordres de grandeur des sections efficaces d'absorption et de diffusion sont ainsi mis en avant, puis l'influence des différents paramètres géométriques (dimensions des résonateurs, densités) est étudiée.

Enfin, le Chapitre 7 s'intéresse à la combinaison de plusieurs résonateurs de tailles différentes. J'y prouve d'abord la possibilité d'utiliser le même protocole de caractérisation pour mesurer les sections efficaces de chaque type de résonateur indépendamment. La comparaison à des simulation d'ensembles de sillons de plusieurs dimensions différentes montre la sélectivité spectrale des effets du désordre, outil puissant pour l'optimisation de la réponse optique d'ensembles de résonateurs. Enfin, je propose une modélisation simplifiée du couplage aux différents canaux de pertes radiatifs et non-radiatifs pour des ensembles de résonateurs différents, nécessitant seulement la connaissance de la réponse optique de chaque résonateur indépendant.

Première partie

Métasurfaces métalliques désordonnées

Chapitre 1

Métasurfaces métalliques pour le contrôle de comportements optiques

Sommaire

1.1 Optique aux interfaces	7
1.2 Structures métalliques	8
1.2.1 Plasmonique	9
1.2.2 Applications des structures plasmoniques	10
1.3 Résonateurs Métal-Isolant-Métal	12

En électromagnétisme, le terme de "métasurface" désigne des objets d'une épaisseur petite par rapport à la longueur d'onde avec laquelle ils sont illuminés, et qui comportent des structures géométriques sub-longueur d'onde à leur surface. Ces structures permettent à ces objets d'épaisseur très faible de se comporter comme des interfaces à la réponse optique complexe, modifiant la propagation du champ électromagnétique. Les progrès récents en nano-fabrication ont rendu possible et fiable la production de ces objets, motivant ainsi de nombreux travaux pour leur compréhension et leur optimisation.

1.1 Optique aux interfaces

L'étude de la propagation des rayons lumineux est un sujet remontant à l'antiquité, avec la conception des premiers miroirs et lentilles convergentes. De manière plus moderne, on peut considérer que la première étape dans la compréhension physique de ces phénomènes a été la formulation de la loi de Snell-Descartes sur la réfraction d'un faisceau lumineux à l'interface entre deux milieux transparents. Du côté expérimental, on peut noter la décomposition du spectre de la lumière blanche avec un prisme par Newton, exploitant la dépendance en longueur d'onde des indices optiques. Cela fondait une discipline fondamentale dans la science moderne, la spectroscopie.

Cet étalement spatial des longueurs d'onde composant la lumière est également une caractéristique des réseaux de diffraction, structures périodiques en transmission ou en réflexion étudiées par Rittenhaus dès 1786^[1] et notamment utilisés par Fraunhofer pour l'étude du spectre du soleil^[2]. En plus de cette décomposition spectrale, la diffraction est une séparation de la lumière transmise ou réfléchie en plusieurs faisceaux de directions différentes. L'étalement spectral est un effet secondaire, lié à la dépendance en longueur d'onde de l'angle de diffraction. Ce phénomène est dû à l'interférence constructive entre les ondes sphériques réémises à chaque période du réseau. Il peut, de manière équivalente, être représenté schématiquement par une vision purement vectorielle, où le vecteur d'onde de la périodicité du réseau vient s'ajouter au vecteur d'onde de la lumière, comme sur la Fig. 1.1.

Pour une direction d'incidence \vec{k} et un réseau de période L_x , les directions de diffraction sont ainsi contrôlées par $k_x + nk_{xT}$, où $k_{xT} = 2\pi/L_x$ et n est un entier tel que $k_x + nk_{xT} < |\vec{k}|$. Le demi-cercle en pointillé sur la Fig. 1.1 correspond à la norme $|\vec{k}|$. En suivant ces règles de construction, sont représentés \vec{k}_0 le vecteur d'onde de la réflexion spéculaire, et \vec{k}_1 et \vec{k}_2 ceux de deux ordres diffractés.

¹HOPKINSON et al., « An optical problem, proposed by Mr. Hopkinson, and solved by Mr. Rittenhouse »

²FRAUNHOFER, *Neue Modifikation des Lichtes durch gegenseitige Einwirkung und Beugung der Strahlen, und Gesetze derselben*.

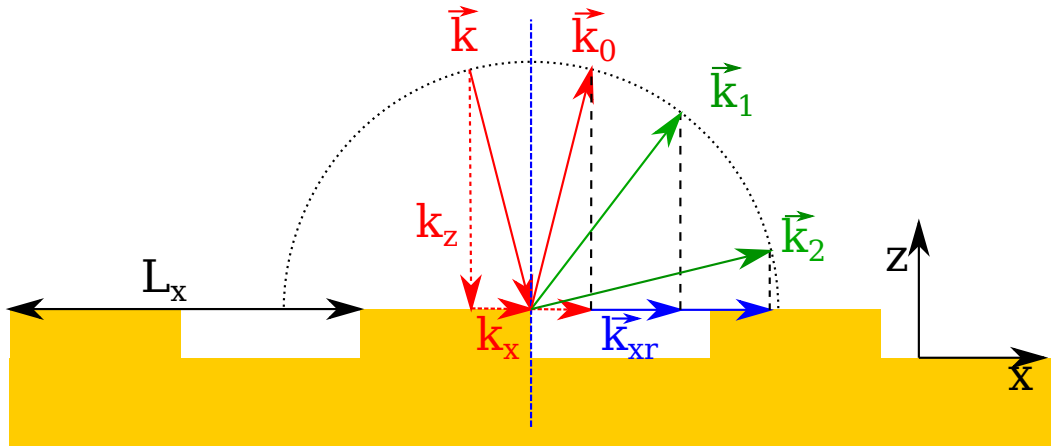


FIGURE 1.1 – Représentation schématique des ordres de diffraction accessibles grâce à la périodicité du réseau. \vec{k} représente le vecteur d'onde incident, se décomposant en k_x et k_z . $k_{xr} = 2\pi/L_x$ est le vecteur d'onde du réseau.

La notion de diffraction désigne aussi l'élargissement d'un faisceau lumineux quand il passe à travers une fente de taille comparable à la longueur d'onde, parce que le phénomène physique sous-jacent est fondamentalement le même (interférences d'ondes sphériques). Cependant, dans toute la suite de ce manuscrit, "diffraction" désignera bien la déviation de rayons lumineux à des angles différents de la réflexion simple, dite spéculaire, par un effet de périodicité.

Le réseau de diffraction a été beaucoup étudié et perfectionné depuis sa découverte, d'une part parce qu'il permet de contrôler la direction de la lumière, et d'autre part parce que cet effet est dû à la géométrie de la surface plutôt qu'à des propriétés intrinsèques des matériaux. C'est d'ailleurs un des premiers objets aux dimensions nanométriques à avoir été compris et fabriqué, et il est maintenant partout autour de nous. En effet, en plus des applications en spectroscopie qui restent fondamentales, les réseaux de diffraction ont permis des avancées spectaculaires dans le domaine des LASER, avec notamment la technique de Chirped Pulse Amplification, récompensée par le prix Nobel en 2018³ ou la réalisation de cavités accordables en longueur d'onde⁴. Par ailleurs, les réseaux de diffraction sont très utilisés dans les technologies des télécommunications, mais aussi d'autres domaines plus fondamentaux comme l'holographie ou les cristaux photoniques⁵.

1.2 Structures métalliques

Le développement des métasurfaces métalliques doit beaucoup aux réseaux de diffraction présentés ci-dessus. D'une part, parce que le réseau de diffraction est, comme mentionné précédemment, le premier type d'objet dont la structure géométrique a été conçue pour ses propriétés optiques. D'autre part, parce qu'il est un moyen très efficace de générer des plasmons, qui sont très importants dans les métasurfaces métalliques.

³OUTREACH, [The Nobel Prize in Physics 2018](#)

⁴BONOD et al., « [Diffraction gratings: from principles to applications in high-intensity lasers](#) »

⁵PALMER et al., « [Diffraction grating handbook](#) »; POPOV, [Introduction to diffraction gratings: summary of applications](#).

1.2.1 Plasmonique

Les plasmons sont des oscillations collectives des électrons présents dans un métal.⁶ Ils doivent leur nom au fait que les métaux comportent beaucoup d'électrons libres dans leur bande de conduction, qui peuvent être modélisés comme un gaz d'électrons, c'est-à-dire un plasma. Ces modes d'oscillation particuliers, propres aux métaux, ont justement été découverts lors de l'étude de réseaux de diffractions métalliques. En effet, Wood constate en 1902 que les spectres qu'il obtient par ses réseaux de diffraction métalliques comportent des anomalies, certaines longueurs d'onde étant absentes des ordres diffractés.⁷ Rayleigh remarque en 1907 que ces anomalies correspondent aux cas où un des ordres de diffraction est parallèle à la surface.⁸ Ces anomalies, qui porteront donc les noms de leurs deux découvreurs, correspondent à la situation où, une partie de la lumière étant diffractée parallèlement à la surface, celle-ci vient faire osciller les électrons du métal, c'est-à-dire exciter un plasmon.⁹ La Fig. 1.2 vient représenter schématiquement cette situation de diffraction tangente à la surface. Elle met également en évidence le fait qu'un plasmon est une onde propagative dans le plan de la surface (ici l'axe x) et évanescence dans l'axe normal à la surface (ici l'axe z).

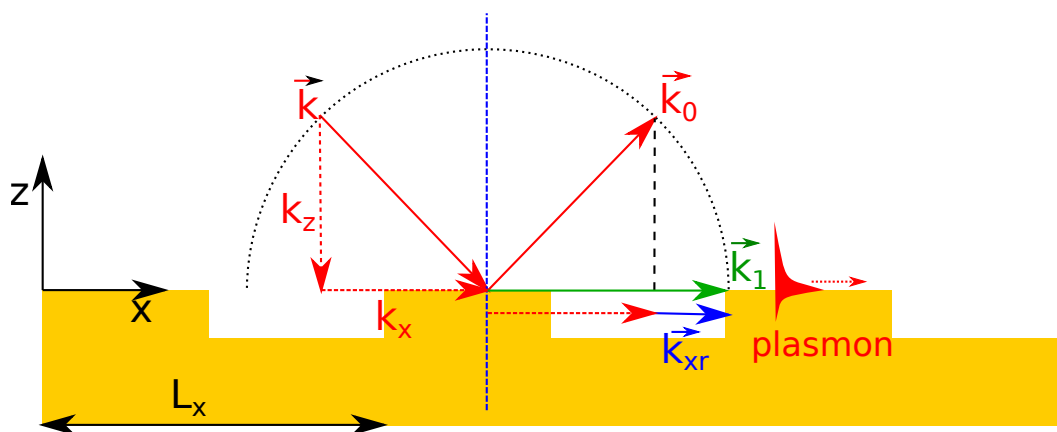


FIGURE 1.2 – Représentation schématique de l'excitation d'un plasmon par la diffraction de la lumière incidente. La flèche en pointillés représente la direction de propagation du plasmon, et la zone rouge représente le volume dans lequel les électrons proches de la surface sont excités.

La structuration d'objets métalliques pour exploiter les plasmons est une discipline très active ces dernières années, la plasmonique, rendue possible par le développement de méthodes de fabrication toujours plus précises. Ces plasmons ont en effet comme propriété de confiner le champ électromagnétique dans des volumes beaucoup plus petits que ce que permet l'optique classique et de modifier l'indice optique que la lumière perçoit. En contrepartie, parce que l'excitation des électrons est dissipée en partie par effet Joule dans le métal, les plasmons entraînent une absorption de l'énergie lumineuse.¹⁰

1.2.2 Applications des structures plasmoniques

La plasmonique correspond donc à l'ensemble des phénomènes physiques dans lesquels des plasmons interviennent, ce qui regroupe de nombreux types de structures différents. Je présente dans ce qui suit un bref panorama de structures utilisant ces plasmons, avec leurs propriétés et leurs intérêts.

⁶ PINES et al., « A collective description of electron interactions: II. Collective vs individual particle aspects of the interactions »; RITCHIE, « Plasma losses by fast electrons in thin films »; RITCHIE, « Surface plasmons in solids ».

⁷ WOOD, « XLII. On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum ».

⁸ RAYLEIGH, « III. Note on the remarkable case of diffraction spectra described by Prof. Wood ».

⁹ WOOD, « Anomalous diffraction gratings ».

¹⁰ ZHONG et al., « Review of mid-infrared plasmonic materials ».

Il y a d'abord des structures non-périodiques pouvant présenter des plasmons, utilisant les conditions de réflexion totale à l'interface entre deux milieux séparés par une fine épaisseur de métal, une configuration dite de Kretschmann telle que présentée sur la Fig. 1.3a).

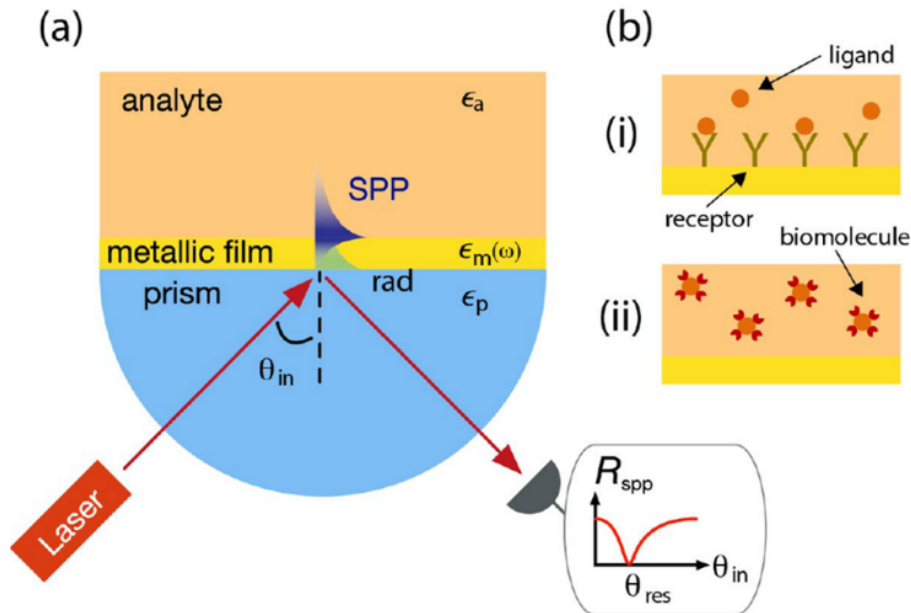


FIGURE 1.3 – Exemple de l'utilisation de l'excitation de plasmons de surface pour mesurer l'indice d'un milieu, en configuration dite de Kretschmann¹¹

Dans cette configuration, la possibilité pour le champ incident d'exciter un plasmon dépend de trois paramètres principaux, à savoir la longueur d'onde, l'angle d'incidence, et l'indice du milieu supérieur. Ainsi, pour un indice et une longueur d'onde données, il existe un unique angle pour lequel la lumière incidente peut exciter des plasmons, détectable par une diminution de la réflectivité, comme présenté dans l'encart en bas de la Fig. 1.3. En connaissant précisément la longueur d'onde de la lumière incidente, la mesure de cet angle d'excitation du plasmon permet donc la mesure précise de l'indice du milieu supérieur.

Ce principe de mesure est notamment utilisé, avec un milieu supérieur liquide, pour la détection de molécules pouvant se placer à la surface supérieure du métal et modifier localement l'indice, comme présenté sur la Fig. 1.3b). De manière plus générale, l'utilisation du décalage spectral des résonances de plasmons de surface (*Surface Plasmon Resonance*, SPR) est une technique courante pour la mesure d'indice et la détection de molécules, que ces plasmons soient liés à une réflexion totale interne comme ici¹² ou présents dans des guides d'ondes¹³ ou des structurations métalliques.¹⁴

Ensuite, les métasurfaces métalliques sont beaucoup utilisées pour le déphasage qu'une structure plasmonique induit localement sur le champ électromagnétique. Cela permet, en plaçant des structures de formes différentes sur une surface, comme présenté sur la Fig. 1.4a), de contrôler la direction du faisceau réfléchi par la surface, par exemple. En effet, chaque structuration correspond localement à une phase différente, induisant un déphasage entre les faisceaux réfléchis, exactement comme si on avait placé un objet d'indice n d'épaisseur variable. Ce profil de phase contrôlé par les formes des structurations peut agir de nombreuses manières différentes, par exemple comme une lentille¹⁶ ou, comme montré sur la Fig. 1.4b),

¹¹ LEE et al., « Quantum plasmonic sensors »

¹² PANDEY et al., « Recent advances in two-dimensional materials-based Kretschmann configuration for SPR sensors: A review »

¹³ PRABOWO et al., « Surface plasmon resonance optical sensor: A review on light source technology »

¹⁴ ROH et al., « Overview of the characteristics of micro- and nano-structured surface plasmon resonance sensors »

¹⁵ CHEN et al., « A review of metasurfaces: physics and applications »

¹⁶ HSIAO et al., « Fundamentals and applications of metasurfaces »

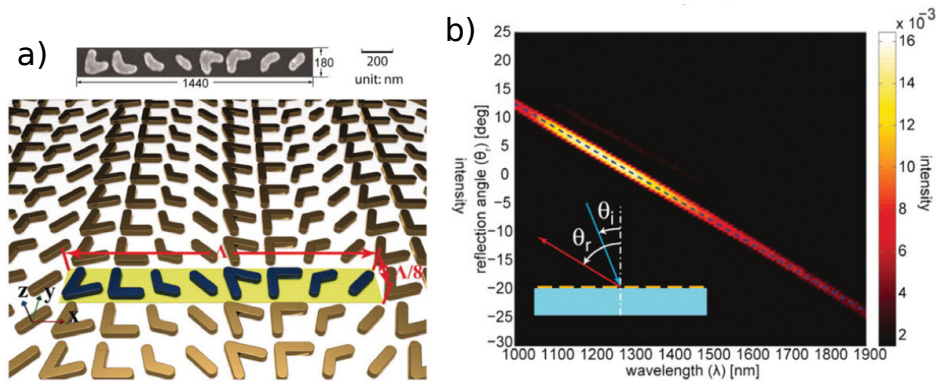


FIGURE 1.4 – Exemple de l'utilisation de métasurfaces pour le contrôle de la réflexion avec la phase de Pancharatnam-Berry. a) Structure périodique utilisée. b) Dépendance spectrale et angulaire de la réflexion.¹⁵

comme un prisme venant dévier la lumière réfléchi.¹⁷

De même que les structures plasmoniques peuvent permettre le contrôle de la phase, certaines permettent le contrôle de la polarisation, comme présenté sur la Fig. 1.5. La Fig. 1.5a) présente une structure qui réfléchit la lumière dans une polarisation différente de celle avec laquelle elle est éclairée. Pour ce faire, elle est orientée à 45° par rapport aux axes de polarisation linéaires entre lesquels on souhaite effectuer la conversion. Ce type de structure permet de ne pas dépendre des propriétés chirales intrinsèques de matériaux, et donc de pouvoir plus facilement ajuster la longueur d'onde et les polarisations souhaitées, par exemple. La Fig. 1.5b) montre l'évolution des polarisations en fonction de la longueur d'onde, montrant une modification de la polarisation du champ sortant pour certaines longueurs d'onde.¹⁸

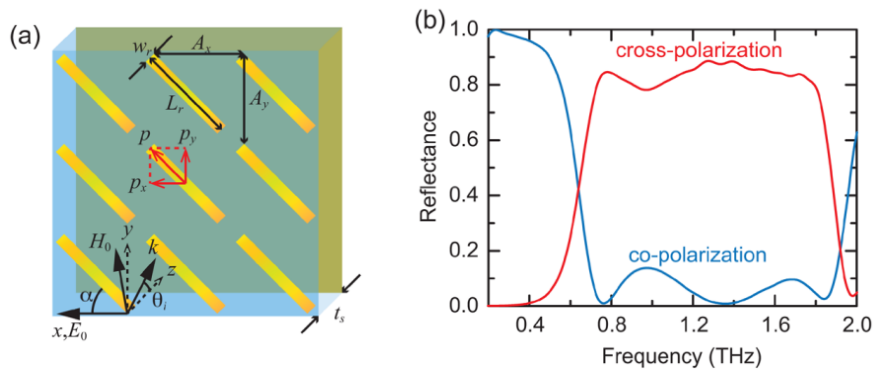


FIGURE 1.5 – Exemple de l'utilisation de métasurfaces pour le contrôle de la polarisation. a) Structure périodique utilisée. b) Spectre de polarisation.¹⁹

Enfin, en dehors des structures périodiques, on trouve les résonateurs métalliques seuls, appelés souvent nano-particules, utilisés pour l'exaltation locale du champ qu'ils permettent.²⁰ Cette exaltation est permise par le confinement du champ électromagnétique proche de la particule par la résonance plasmonique, et peut être utilisée dans de nombreuses applications présentées plus loin. Un exemple est d'exalter la fluorescence d'un émetteur en lui donnant localement accès à plus de modes électromagnétiques vers

¹⁷ TYMCHENKO et al., « Gradient nonlinear pancharatnam-berry metasurfaces »

¹⁸ DING et al., « Metasurface-based polarimeters »

¹⁹ CHEN et al., « A review of metasurfaces: physics and applications »

²⁰ GONÇALVES et al., « Plasmonic resonators: fundamental properties and applications »; KELLY et al., « The optical properties of metal nanoparticles: the influence of size, shape, and dielectric environment »; KOENDERINK, « On the use of Purcell factors for plasmon antennas ».

lesquels se désexcitent. La Fig. 1.6 présente ce cas, avec en Fig. 1.6a) la structure plasmonique utilisée, à savoir un nano-disque d'or à proximité duquel on vient placer un émetteur, et séparé d'un miroir d'or par une fine couche de silice. La Fig. 1.6b) présente une mesure de fluorescence des émetteurs. En noir on trouve l'évolution en fonction du temps de la fluorescence des émetteurs seuls, utilisés comme référence, et les courbes numérotées 1 à 3 montrent l'évolution en présence des nano-disques. On voit clairement l'augmentation forte du taux de fluorescence permise par les nano-disques.

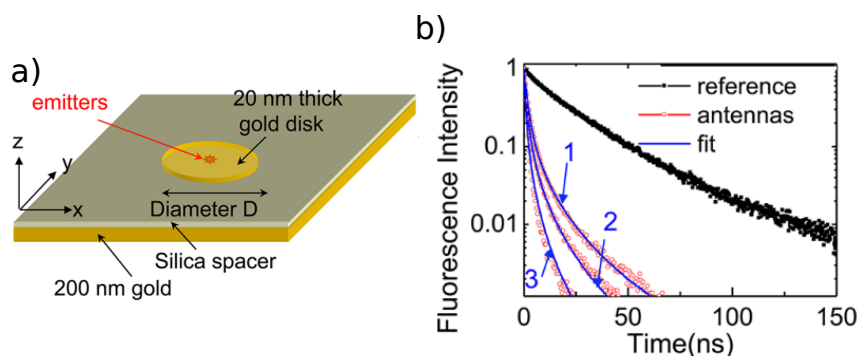


FIGURE 1.6 – Exemple de l'utilisation de structures métalliques pour l'exaltation de la fluorescence. a) Structure en nano-disque utilisée. b) Évolution temporelle de la fluorescence d'un émetteur seul (noir) ou couplé à un nano-résonateur (courbes 1-3) ²¹

Les structures présentant des plasmons sont donc utilisées dans de nombreuses applications pour leurs propriétés électromagnétiques uniques (exaltation locale du champ, dépendance forte en l'indice, contrôle local de la phase et de la polarisation du champ) ²² Parmi ces structures plasmoniques, j'ai travaillé sur un type précis, utilisé pour ses propriétés de résonances très facilement accordables, les résonateurs Métal-Isolant-Métal.

1.3 Résonateurs Métal-Isolant-Métal

Une propriété importante des métaux, en plus de leur capacité à héberger des plasmons, est leur haute réflectivité, permettant d'en faire des miroirs efficaces. Or, avec deux miroirs mis face à face on obtient une cavité pouvant piéger la lumière, dite cavité Fabry-Perot. La propriété principale d'une cavité Fabry-Perot est de piéger la lumière à condition que celle-ci soit à une longueur d'onde lui permettant d'interférer constructivement avec elle-même à chaque aller-retour entre les deux miroirs. Ce sont ces cavités et leur sélectivité spectrale qui permettent l'existence des LASER, notamment.

Une des briques de base des métasurfaces métalliques que je vais étudier dans ma thèse est donc une cavité Fabry-Perot miniaturisée, réalisée par deux interfaces métalliques parallèles. Ces structures élémentaires sont également souvent appelées résonateurs Métal-Isolant-Métal, ou MIM, puisqu'il s'agit de juxtaposer ces trois types de matériaux, dans cet ordre. La Fig. 1.7 présente deux formes simples de résonateurs MIM, structurés dans le plan du schéma et invariants dans la direction perpendiculaire au plan du schéma. Les structures présentées sont les mailles élémentaires, répétées périodiquement pour obtenir la structure complète. On remarquera que les résonateurs MIM présentés sont constitués de deux cavités confinant le champ dans les deux directions de structuration (la dernière étant invariante) : une cavité Fabry-Perot "parfaite", constituée par deux interfaces métalliques parallèles, venant sélectionner les modes de résonance possibles; un confinement perpendiculairement à cette cavité, due à sa petite taille par rapport à la

²¹ BELACEL et al., « Controlling spontaneous emission with plasmonic optical patch antennas »

²² MEINZER et al., « Plasmonic meta-atoms and metasurfaces »

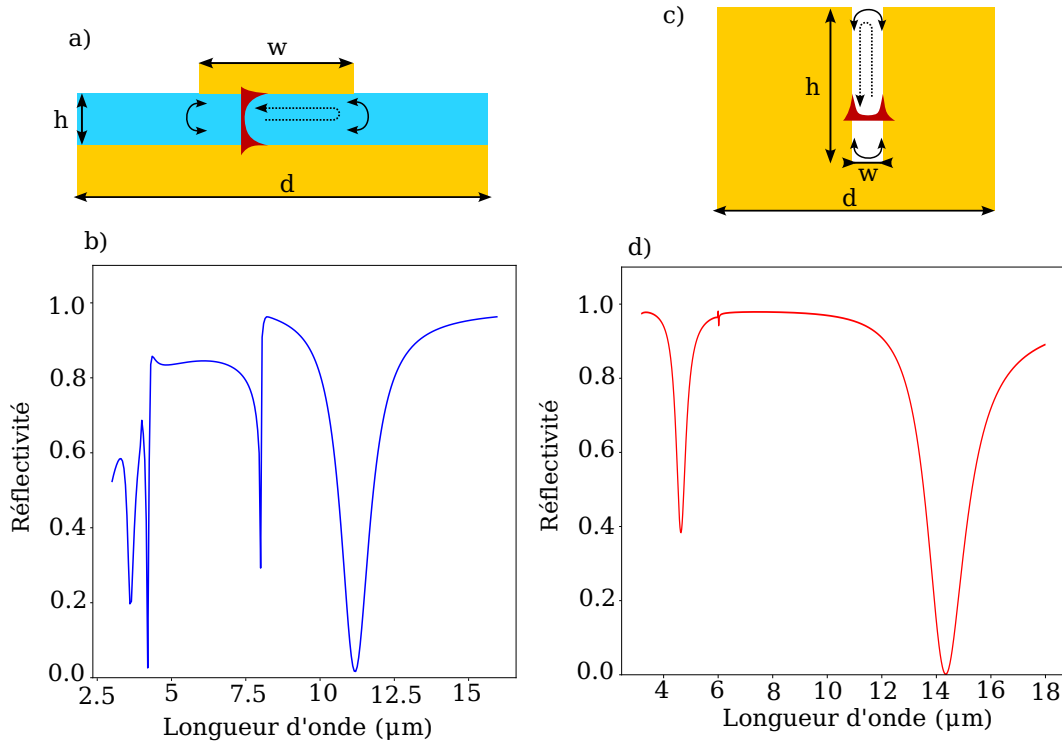


FIGURE 1.7 – Présentation des résonateurs Métal/Isolant/Métal (MIM). a) Schéma de principe d'un MIM horizontal, ou ruban. b) Spectre en réflectivité d'un MIM horizontal avec $h = 280 \text{ nm}$ et $w = 3 \mu\text{m}$, $d = 8 \mu\text{m}$, et diélectrique d'indice 2.2. c) Schéma de principe d'un MIM vertical, ou sillon. d) Spectre en réflectivité d'un MIM vertical avec $h = 3 \mu\text{m}$, $w = 250 \text{ nm}$ et $d = 6 \mu\text{m}$.

longueur d'onde, entraînant une différence d'impédance entre la cavité et l'extérieur. Sur la Fig. 1.7 le premier confinement est représenté par la forme du champ en rouge, tandis que le deuxième est représenté par les flèches montrant la réflexion aux bords de la cavité.

La Fig. 1.7a) représente schématiquement un MIM horizontal, dit MIM "ruban", où la cavité est constituée d'un miroir métallique continu et d'un ruban métallique de taille finie entourant un diélectrique d'épaisseur sub-longueur d'onde. La Fig. 1.7b) présente le spectre en réflexion d'un MIM ruban de dimensions $h = 280 \text{ nm}$ et $w = 3 \mu\text{m}$, et où le diélectrique est du ZnS d'indice $n = 2.2$. On y voit le mode fondamental de la résonance à $\lambda = 11 \mu\text{m} \sim 2nw$, ainsi que des résonances d'ordres supérieurs à des longueurs d'onde plus faibles. Le pic à $8 \mu\text{m}$ correspond à une anomalie de Rayleigh, c'est-à-dire l'apparition du premier ordre de diffraction. La Fig. 1.7c) représente schématiquement un MIM vertical, dit "sillon", constitué d'une cavité gravée dans une couche métallique uniforme. La Fig. 1.7d) présente le spectre en réflexion d'un sillon métallique de dimensions $h = 3 \mu\text{m}$ et $w = 250 \text{ nm}$. La partie creuse du sillon est présentée ici vide, mais se comportera pour le champ comme s'il était rempli d'un matériau d'indice $n_{\text{eff}} > 1$ à cause du débordement du champ dans le métal. On y voit le mode fondamental de la résonance à $\lambda = 14.2 \mu\text{m} \sim 4n_{\text{eff}}h$, et le premier harmonique impair à $\lambda = 4.65 \mu\text{m}$. Le fait que la cavité soit asymétrique (miroir métallique en bas, ouverture en haut), empêche l'existence des harmoniques paires.

Ces résonateurs MIM sont très utilisés pour leur sélectivité spectrale²³, leur confinement du champ électromagnétique²⁴, leur stabilité angulaire²⁵ ou leur absorption²⁶. Leur forte concentration du champ

²³FIX et al., « High Q-factor coupled Fabry-Perot plasmonic nanoresonator »

²⁴CHEVALIER, « Hyperfocalisation de la lumière par structuration sub-longueur d'onde »

²⁵BOUCHON, « Ingénierie d'indice optique à base de nanostructures métalliques »

²⁶KOECHLIN et al., « Total routing and absorption of photons in dual color plasmonic antennas »

permet en plus d'assister les processus non-linéaires²⁷ ou l'absorption exaltée de surface²⁸. Leur sélectivité spectrale permet de contrôler leur émission thermique et de faire des émetteurs thermiques à haut facteur de qualité.²⁹ Leur faible encombrement spatial permet par ailleurs de leur donner des formes très diverses, par exemple des "coudes" qui modifient la polarisation du champ réfléchi.³⁰ Leur caractéristique résonante induit enfin un saut de phase dans le champ réfléchi, ce qui ouvre la porte à la conception de masques de phase accordables à souhait, permettant notamment l'ingénierie d'optiques planes aux fonctions complexes.³¹

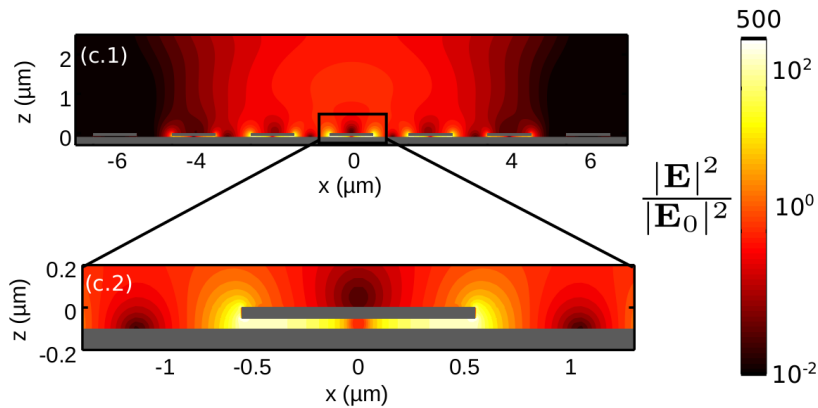


FIGURE 1.8 – Cartographie du champ électrique dans un MIM ruban de dimensions $w = 1.1 \mu\text{m}$, $h = 50 \text{ nm}$, $d = 2.5 \mu\text{m}$ et d'indice de diélectrique $n = 2.2$, à sa résonance $\lambda = 5 \mu\text{m}$.³²

La Fig. 1.8 met en évidence l'effet de confinement du champ dans un MIM ruban à sa résonance. On voit ainsi que le champ électrique du mode de résonance du MIM ruban est 500 fois plus intense que le champ incident. C'est ce phénomène qui permet d'exalter tous les effets dépendant de l'intensité du champ, comme les processus non-linéaires ou l'absorption de surface. On observe également que dans la zone sous le ruban métallique, le champ varie peu selon z (mode fondamental du Fabry-Perot vertical), tandis qu'il présente deux maxima et un minimum selon x (mode fondamental du Fabry-Perot horizontal). Ce profil entraîne une exaltation du champ particulièrement forte au niveau des bords de la structure.

Ainsi, une structure métallique périodique composée de résonateurs MIM possède une réponse spectralement complexe, combinaison de résonances plasmoniques et Fabry-Perot. Ces propriétés ont motivé leur optimisation pour en faire des composants optiques très divers.

²⁷ SOUN et al., « Experimental demonstration of second-harmonic generation in high χ^2 metasurfaces ».

²⁸ FABAS, « Résonateurs de Helmholtz optiques simplifiés pour la détection de molécules ».

²⁹ COSTANTINI et al., « Plasmonic metasurface for directional and frequency-selective thermal emission »; MAKHSIYAN, « Nano-émetteurs thermiques multi-spectraux »; MAKHSIYAN et al., « Shaping the spatial and spectral emissivity at the diffraction limit ».

³⁰ LÉVESQUE et al., « Plasmonic planar antenna for wideband and efficient linear polarization conversion ».

³¹ BOHER et al., « Spectrally exclusive phase masks for wavefront coding ».

³² CHEVALIER, « Hyperfocalisation de la lumière par structuration sub-longueur d'onde ».

Chapitre

2

Ingénierie de désordre corrélé

Sommaire

2.1 Diffusion de la lumière par des particules	15
2.1.1 Diffusion de Rayleigh	17
2.1.2 Approximation dipolaire	18
2.1.3 Applications de la diffusion de particules	19
2.2 Diffusion de la lumière par un ensemble de particules	20
2.2.1 Désordre corrélé	20
2.2.2 Ingénierie de désordre	23
2.3 Désordre de structures métalliques	25
2.3.1 Applications des métasurfaces métalliques désordonnées	25
2.3.2 Diffusion dans les métasurfaces métalliques désordonnées	26

La notion de "désordre", fondamentale dans cette thèse, peut être entendue comme le relâchement de contraintes sur des degrés de liberté structurels. Par exemple, un ensemble d'objets placés de manière périodique a une contrainte de position (la périodicité), qui peut être relâchée en désordonnant les positions. Le "désordre" est donc avant tout défini négativement, ce qui nécessite quelques précautions. Dans la majorité de cette thèse, le terme de structure ou de réseau désordonné sera utilisé pour signifier que les objets dont il est question ne sont pas périodiques, c'est-à-dire un désordre de position. Mais dans d'autres publications, on trouvera par exemple des désordres d'orientation (objets potentiellement périodiques, mais tournés les uns par rapport aux autres)¹, des désordres de géométrie (objets de tailles variables)² ou des combinaisons de tous ces types de désordre.

L'étude de structures optiques désordonnées est un sujet plus complexe que l'étude de structures périodiques. En effet, l'optique s'associe facilement avec les structures périodiques, puisque la lumière est très souvent représentée par une somme d'ondes périodiques. La périodicité d'une structure permet donc de simplifier fortement sa modélisation. Mais les objets désordonnés ont de nombreuses propriétés uniques qu'il est intéressant d'étudier. Par ailleurs, dans le monde naturel, les structures périodiques sont plutôt l'exception, les objets biologiques (tissus par exemple), ou physiques (états fluides de la matière et solides amorphes) étant majoritairement désordonnés.

2.1 Diffusion de la lumière par des particules

Quand une surface est éclairée par de la lumière, cette dernière peut être soit transmise, soit réfléchie, soit absorbée, comme illustré sur la Fig. 2.1. Plus précisément, la transmission correspond au cas où la lumière passe de l'autre côté de la surface (en pointillé Fig. 2.1), la réflexion au cas où la lumière retourne dans le milieu d'où elle vient (en trait plein Fig. 2.1), et l'absorption au cas où la lumière est transformée en une autre forme d'énergie au sein du matériau (non représentée Fig. 2.1). Ensuite, la transmission et la réflexion

¹ FASOLD et al., « Disorder-enabled pure chirality in bilayer plasmonic metasurfaces »

² E. ZHANG et al., « Influence of order-to-disorder transitions on the optical properties of the aluminum plasmonic metasurface »

peuvent être également séparées entre le spéculaire, la diffraction, et la diffusion. La transmission et la réflexion spéculaires correspondent aux directions données par la loi de Snell-Descartes déjà mentionnée au chapitre précédent, donc une réflexion symétrique de l'incidence par rapport à la normale à la surface, et une transmission réfractée (en bleu Fig. 2.1). La transmission et la réflexion diffractées correspondent aux directions accessibles grâce à une périodicité présente à la surface, tel qu'expliqué au chapitre précédent (en vert Fig. 2.1). Enfin, la transmission et la réflexion diffuses correspondent à l'ensemble des autres directions de propagation pour la lumière (en rouge Fig. 2.1). La diffusion et la diffraction sont des phénomènes analogues, d'abord parce que les deux correspondent à une modification de la direction de propagation, et ensuite parce que la diffraction est l'équivalent cohérent de la diffusion.

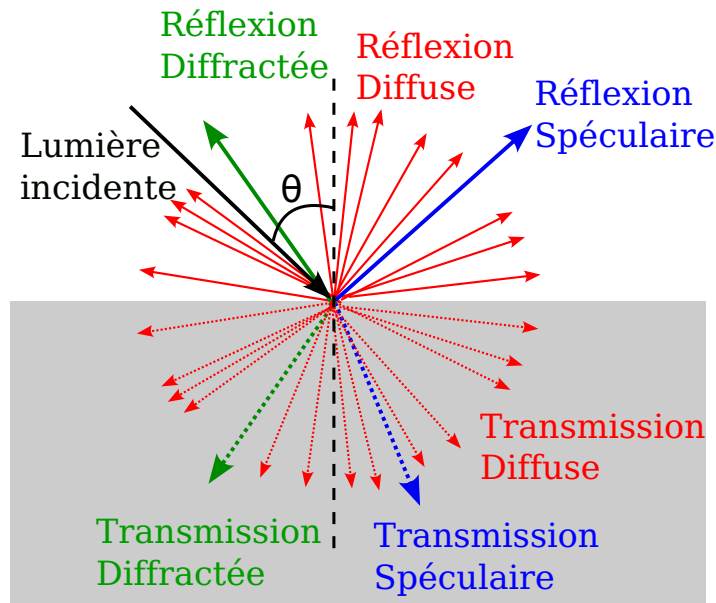


FIGURE 2.1 – Définition des différentes directions de propagation de l'énergie à une interface.

Une majeure partie de ce que nous percevons tous les jours est due à la réflexion diffuse de la lumière par les objets autour de nous, mais il a fallu attendre plus longtemps que les autres phénomènes pour qu'elle soit modélisée physiquement. Ainsi, la diffusion par des sphères de taille quelconque a été modélisée dans les travaux de Mie.³ Le formalisme de Mie calcule le champ diffusé en fonction du champ incident sous forme de séries infinies d'harmoniques sphériques, qui sont certes calculables analytiquement mais tout de même loin d'être agréables à manipuler. C'est pourquoi il existe plusieurs simplifications courantes.⁴

- Plus la sphère est petite, plus les modes d'ordres supérieurs sont négligeables. Il est donc possible de modéliser une sphère de petite taille (comparée à la longueur d'onde) par un nombre fini d'harmoniques sphériques.
- Si la sphère est assez petite pour négliger la variation du champ incident en son sein, *i.e.*, $rn/\lambda \ll 1$ avec r le rayon de la sphère, λ la longueur d'onde dans le vide et n l'indice de la sphère, il est possible d'appliquer une approximation électrostatique. On peut alors modéliser la sphère par un dipôle de polarisabilité $\alpha = 4\pi r^3 \frac{n^2 - 1}{n^2 + 2}$. C'est un cas particulier de la diffusion dite de Rayleigh.
- Un objet de forme arbitraire mais assez petit pour que l'approximation électrostatique soit valable peut également être modélisé par un dipôle dont la polarisabilité peut être obtenue par un calcul électrostatique. C'est le cas général de la diffusion de Rayleigh.

³MIE, « Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen »

⁴BOHREN et al., *Absorption and scattering of light by small particles*

2.1 Diffusion de la lumière par des particules

- Un objet de forme et de taille arbitraires dont l'indice est très proche de celui du milieu extérieur ($r|n-1|/\lambda \ll 1$ pour un objet placé dans le vide) peut être représenté par la somme de dipôles unitaires indépendants, approximation dite de Rayleigh-Gans.
- Enfin, des objets très grands devant la longueur d'onde peuvent être modélisés par les lois de l'optique géométrique, tant que l'on ne s'intéresse qu'à ce qu'il se passe en champ lointain.

La diffusion par des objets de formes et indices arbitraires n'a pas d'expression analytique en général, et il est alors nécessaire de passer par des méthodes de calcul numérique approchées.⁵ Dans notre cas, les indices impliqués seront souvent significativement différents de 1, donc la diffusion de Rayleigh-Gans ne pourra pas être utilisée. Cependant, étant donné les petites tailles des résonateurs, nous utiliserons parfois l'approximation de Rayleigh pour donner une modélisation simplifiée de nos objets étudiés.

2.1.1 Diffusion de Rayleigh

Le formalisme de la diffusion de Rayleigh pour une sphère est une approximation au premier ordre de la diffusion d'une lumière incidente de longueur d'onde $\lambda = 2\pi/k$ et d'intensité I_0 éclairant une sphère d'indice optique n et de rayon $r \ll \lambda$. L'intensité diffusée par la sphère à une distance R et dans la direction θ par rapport à la direction d'incidence s'écrit alors ⁶

$$I(R, \theta) = I_0 k^4 r^6 \left(\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \right)^2 \left(\frac{1 + \cos^2 \theta}{2R^2} \right). \quad (2.1)$$

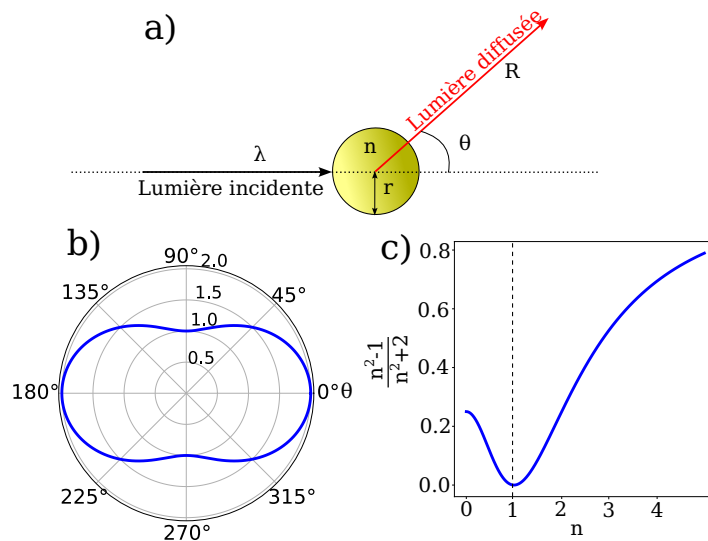


FIGURE 2.2 – a) Schéma d'un événement de diffusion de la lumière par une particule définissant les grandeurs associées. b) Évolution de l'intensité diffusée en fonction de l'angle θ par rapport à la direction de propagation. c) Évolution de l'intensité diffusée en fonction de l'indice de la particule. Les indices $n < 1$ ne sont accessibles qu'avec des matériaux structurés.

Beaucoup d'informations se trouvent dans cette formule. D'abord, on a une évolution en $r^6 k^4 \sim r^6 / \lambda^4$, justifiant que des particules plus grosses (mais toujours très petites devant la longueur d'onde) diffuseront beaucoup plus. Cette croissance de la diffusion est d'ailleurs beaucoup plus rapide que celle du volume des particules. De plus, les grandes longueurs d'onde sont beaucoup moins diffusées que les petites. C'est notamment la raison pour laquelle la diffusion de la lumière du soleil par les particules en suspension dans

⁵YURKIN et al., « The discrete dipole approximation: an overview and recent developments »

⁶BOHREN et al., « Absorption and scattering of light by small particles »

l'atmosphère donne une couleur bleu au ciel, les longueurs d'ondes plus grandes étant beaucoup moins diffusées et gardant donc leur direction de propagation. Cette variation en $1/\lambda^4$ n'est toutefois valable que si l'indice varie peu avec la longueur d'onde, ce qui n'est pas du tout le cas des métaux que nous utiliserons par la suite, par exemple.⁷

Ensuite, la formule montre clairement l'anisotropie de la diffusion, puisque la lumière réémise dans la direction de propagation de la lumière, et dans la direction directement opposée est deux fois plus élevée que la diffusion orthogonale à la direction de propagation, comme visible sur la Fig. 2.2b). Il est à noter que la symétrie entre la diffusion vers l'avant et vers l'arrière (*i.e.*, symétrie autour de $\theta = 90^\circ$) est une caractéristique spécifique des petites sphères. Des sphères plus grandes, dans lesquelles des moments électriques et magnétiques d'ordre plus élevés peuvent être excités, pourront avoir un profil très asymétrique.

L'intégration sur l'ensemble des directions de diffusion donne également la section efficace totale de diffusion de la particule :

$$\sigma_{\text{diff}} = \frac{8\pi}{3} r^6 k^4 \left(\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \right)^2. \quad (2.2)$$

Cette section efficace totale permet de connaître l'ordre de grandeur de la lumière diffusée par un ensemble de particules de densité connue, typiquement un gaz. Elle ne doit pas être confondue avec la section efficace différentielle, $\frac{d\sigma}{d\cos(\theta)}$, qui dépend de l'angle de diffusion et peut être calculée avec des méthodes semblables dans le cadre de la diffusion de Rayleigh.⁸

Par ailleurs, on peut voir que l'intensité de diffusion est croissante avec l'indice de la particule, justifiant l'utilisation de matériaux diélectriques à fort indice quand on souhaite optimiser la diffusion. Cette évolution est représentée sur la Fig. 2.2c), mettant en évidence la croissance rapide de la diffusion pour des indices plus grands que 1. Certains matériaux structurés pouvant présenter des indices proches de 0, les valeurs du terme $\frac{n^2-1}{n^2+2}$ correspondantes sont également représentées, bien qu'il ne s'agisse alors pas d'une sphère homogène à proprement parler.

Enfin, comme mentionné précédemment, l'indice et la taille de la particule pouvant être reliées à sa polarisabilité $\alpha = 4\pi r^3 \frac{n-1}{n+2}$, il est possible d'écrire l'intensité diffusée en fonction de cette dernière :

$$I = I_0 |\alpha|^2 \frac{k^4}{16\pi^2} \frac{1 + \cos^2 \theta}{2R^2}, \quad (2.3)$$

et la section efficace :

$$\sigma_{\text{diff}} = \frac{|\alpha|^2}{6\pi} k^4. \quad (2.4)$$

2.1.2 Approximation dipolaire

Cette modélisation de la diffusion de Rayleigh pour les petites sphères peut être étendue à une particule diffusante de forme arbitraire, modélisée par un unique dipôle électrique. Cela revient à négliger tous les moments électriques d'ordres supérieurs intervenant dans le formalisme complet de la diffusion de Mie, ainsi que l'ensemble des moments magnétiques.

La grandeur importante est alors la polarisabilité de ce dipôle, $\alpha = E/p$, dépendant de l'indice et de la forme de l'objet diffusant.⁹ Celle-ci est complexe dans le cas général, et la calculer permet d'écrire la section efficace de diffusion totale comme précédemment :

$$\sigma_{\text{diff}} = \frac{|\alpha|^2}{6\pi} k^4. \quad (2.5)$$

⁷ PALIK, *Handbook of optical constants of solids*.

⁸ HAHN, « Light scattering theory ».

⁹ RAMM, *Wave scattering by small bodies of arbitrary shapes*.

2.1 Diffusion de la lumière par des particules

On y retrouve notamment bien l'évolution en $1/\lambda^4$ et la dépendance en $|\alpha|^2$ mentionnée précédemment.

L'intérêt de l'approximation dipolaire est qu'elle permet également de calculer l'extinction totale, donc d'avoir une formule pour la section efficace d'extinction :

$$\sigma_{\text{ext}} = k\text{Im}(\alpha). \quad (2.6)$$

L'extinction évolue donc très différemment de la diffusion. En effet, la dépendance en longueur d'onde est ici en $1/\lambda$, et seule la partie imaginaire de la polarisabilité intervient.

On a alors, pour la section efficace d'absorption, une formule que l'on peut calculer par différence ^[10]

$$\sigma_{\text{abs}} = k\text{Im}(\alpha) - \frac{|\alpha|^2}{6\pi} k^4 \quad (2.7)$$

Ainsi, une particule plus polarisable (soit parce qu'elle est plus grande, soit parce que sa forme est mieux orientée dans le sens du champ électromagnétique), mais du même matériau (pour que $\text{Im}(\alpha)/|\alpha|$ soit le même) va voir sa part d'absorption diminuer, et sa part de diffusion augmenter. De même, pour des longueurs d'onde plus grandes, une même particule va avoir une plus faible extinction totale, mais surtout une part de diffusion plus faible au sein de cette extinction. Toutes ces tendances seront importantes à prendre en compte pour la conception de structures diffusantes, que ce soit pour maximiser ou minimiser la diffusion.

2.1.3 Applications de la diffusion de particules

La modélisation précise de la diffusion par des particules a permis le développement de plusieurs applications, en plus de la compréhension de phénomènes physiques utiles.

Ainsi, en plus de nous expliquer pourquoi le ciel est bleu en journée, mais rouge aux lever et coucher du soleil, la variation de l'efficacité de la diffusion en fonction de la longueur d'onde et de la taille des particules permet d'estimer les tailles de particules constituant des nuages de poussière cosmiques à partir de la modification par la diffusion du spectre de la lumière les traversant, par exemple ^[11]. De plus, la compréhension de la dépendance angulaire de la diffusion d'un dipôle a été nécessaire au développement des antennes dites Yagi-Uda (ou antennes râteau), omniprésentes dans les radiocommunications notamment ^[12].

Un pas important supplémentaire a été la réalisation en optique des effets de localisation, découverts par Anderson pour le cas de la propagation d'électrons ^[13]. La localisation désigne la situation où des diffusions successives dans un milieu désordonné permettent la formation de cavités piégeant la lumière (ou les électrons), dont les premières réalisations ont donné un grand entrain à l'étude de la propagation lumineuse dans des structures désordonnées ^[14]. Cette localisation est toutefois un effet de diffusions multiples, qui n'a pas été recherché pour les structures de résonateurs indépendants étudiés dans cette thèse.

En somme, la diffusion est un phénomène de redirection de la lumière par des obstacles se trouvant sur son chemin. Si le traitement rapide qui en a été fait ici se place d'un point de vue particulière, l'interaction entre la lumière et une interface est un problème encore plus complexe à traiter exactement. Des modélisations simplifiées, utilisées pour la génération d'images par ordinateur, impliquent notamment l'utilisation de la BRDF (*Bidirectional Reflectance Distribution Function*), fonction qui représente la répartition angulaire de l'énergie réfléchiée par une surface en fonction de l'angle d'incidence ^[15]. Dans cette thèse, nous

¹⁰ BOHREN et al., *Absorption and scattering of light by small particles*

¹¹ NEY et al., « Comet West and the scattering function of cometary dust »

¹² MAKSYMOW et al., « Optical yagi-uda nanoantennas »

¹³ ANDERSON, « Absence of diffusion in certain random lattices »

¹⁴ GREDESKUL et al., « Anderson localization in metamaterials and other complex media »; SEGEV et al., « Anderson localization of light »

¹⁵ MONTES et al., « An overview of BRDF models »

n'utiliserons pas cette notion, puisque tout calcul de la diffusion par une surface se fera par une résolution du champ électromagnétique. Nous étudierons toutefois la diffusion de la lumière par un ensemble de résonateurs, qui nécessite des précautions particulières.

2.2 Diffusion de la lumière par un ensemble de particules

La combinaison de plusieurs particules diffusantes entraîne des phénomènes plus complexes. En effet, les positions relatives des particules sont importantes, ce qui nécessite de connaître le facteur de structure $S(\vec{q})$ de la distribution de particules, qui peut se définir comme suit :

$$S(\vec{q}) = \left| \frac{1}{N} \sum_j e^{-i\vec{r}_j \cdot \vec{q}} \right|^2, \quad (2.8)$$

où \vec{r}_j est la position de chaque particule dans la structure. Ce facteur de structure représente les fréquences spatiales présentes dans les positions de l'échantillon. En ce sens, c'est aussi l'amplitude de la transformée de Fourier discrète des positions de la structure.

Dans le cadre de l'étude de la diffusion, les structures étudiées sont généralement des assemblages 3D que la lumière traverse,¹⁶ tandis que nous étudierons majoritairement des structures en réflexion, où tous les résonateurs sont dans le même plan. Cela simplifie la situation, notamment en rendant négligeable tout phénomène de diffusions multiples, pour lesquels le lien entre facteur de structure et diffusion est complexe. Dans un régime de diffusion simple, l'intensité diffusée dans la direction \vec{k}_d est donnée par :

$$I_{\text{diff}}(\vec{k}_d) \sim S(\vec{k}_d - \vec{k}_i), \quad (2.9)$$

où \vec{k}_i est le vecteur d'onde de la lumière incidente.¹⁷ C'est pourquoi le facteur de structure de la distribution est une grandeur fondamentale pour le contrôle de la diffusion.

Le contrôle de la diffusion d'ensembles de résonateurs passe donc non seulement par le contrôle de la diffusion des résonateurs individuels, mais également par l'ingénierie et l'optimisation de leurs positions. Pour cela, les notions d'ordre partiel et de corrélations entre les positions sont fondamentales.

2.2.1 Désordre corrélé

Comme il a déjà été annoncé, dans cette thèse, toutes les structures considérées seront désordonnées en position, les résonateurs étant identiques les uns aux autres. Par ailleurs, la diffusion étudiée sera la somme en champ lointain d'événements de diffusions uniques, sans diffusion multiple. On n'aura donc notamment aucun effet de localisation, comme dit précédemment. Enfin, tous les désordres de position étudiés sont des désordres corrélés, c'est-à-dire pour lesquelles les positions des résonateurs ne sont pas complètement indépendantes. En effet, les résonateurs ne peuvent pas se chevaucher spatialement ni être trop proches, induisant de fait une corrélation négative à courte-distance entre leurs positions. De plus, il sera question de perturbations de mailles périodiques, pour lesquelles les corrélations entre les positions des résonateurs restent élevées.

La Fig. 2.3 présente un exemple de distributions de positions plus ou moins corrélées. Ainsi, la rangée du haut correspond à la perturbation d'une maille périodique, chaque point étant décalé d'une longueur contrôlée par la grandeur s_d . La corrélation entre les positions diminue à mesure que la perturbation appliquée augmente. La rangée du haut correspond à une perturbation semblable, à laquelle on rajoute de

¹⁶VYNCK et al., « Light in correlated disordered media »

¹⁷WARREN, *X-ray Diffraction*

¹⁸STERL et al., « Shaping the color and angular appearance of plasmonic metasurfaces with tailored disorder »

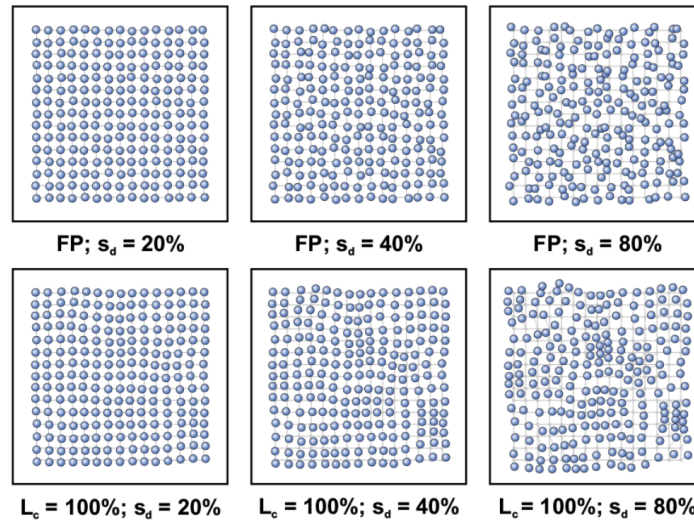


FIGURE 2.3 – Exemple de structures désordonnées par une perturbation de maille périodique simple (haut) ou à laquelle on rajoute des corrélations (bas). s_d représente la distance de décalage par rapport aux positions périodiques.¹⁸

la corrélation entre les positions par l'introduction d'une force de rappel entre les points. Cela permet de produire une distribution beaucoup plus corrélée, ayant des propriétés optiques différentes.¹⁹

Ces positions corrélées mais désordonnées ont des effets très importants sur la diffusion par le biais d'une forte modification du facteur de structure, car elles présentent des caractéristiques mélangeant des propriétés de structures désordonnées et d'autres de structures ordonnées, comme il sera détaillé dans la section suivante. Ces ensembles sont donc dans un régime d'ordre partiel, où il est possible de calculer un degré de corrélation χ entre les positions, défini comme le ratio entre le nombre de degrés de liberté contraints sur le nombre de degré de liberté totaux.²⁰ $\chi = 0$ correspond à une indépendance totale entre les positions, $\chi = 1$ à un ensemble où toutes les positions sont choisies complètement, ce qui est notamment le cas des ensemble périodiques. Entre les deux se trouve le régime d'ordre partiel, dont le coefficient χ est facile à calculer dans le cas où la structure est conçue à l'aide de contraintes structurelles précises.²¹ Pour les autres types de structures, on utilisera le facteur de structure $S(k)$ complet pour caractériser la distribution des positions.

Un grand type de structures désordonnées corrélées, dont le comportement optique permet de nombreuses applications, sont les structures dites hyperuniformes.²² Celles-ci peuvent être définies comme l'ensemble des distributions dont le facteur de structure $S(\vec{k}) \rightarrow 0$ pour les petites valeurs de $|k|$. Ces structures, appelées hyperuniformes parce que la densité de résonateurs est uniforme à toutes les échelles, comme pour une structure périodique, ont des propriétés assez inattendues, exaltant par exemple l'absorption²³ ou la transmission.²⁴ C'est notamment le cas des structures pour lesquelles chaque résonateur est entouré d'une zone d'exclusion dans laquelle il ne peut y avoir aucun autre résonateur, dont il sera question dans ma thèse.

La Fig. 2.4 présente une classification des structures désordonnées en position, allant de la périodicité totale d'un cristal parfait au désordre complet des structures sans aucune corrélation. Le facteur de struc-

¹⁹ Ibid.

²⁰ BATTEN et al., « Classical disordered ground states: Super-ideal gases and stealth and equi-luminous materials »

²¹ UCHE et al., « Collective coordinate control of density distributions »

²² TORQUATO et al., « Ensemble theory for stealthy hyperuniform disordered ground states »

²³ BIGOURDAN et al., « Enhanced absorption of waves in stealth hyperuniform disordered media »

²⁴ LESEUR et al., « High-density hyperuniform materials can be transparent »

²⁵ YU et al., « Engineered disorder in photonics »

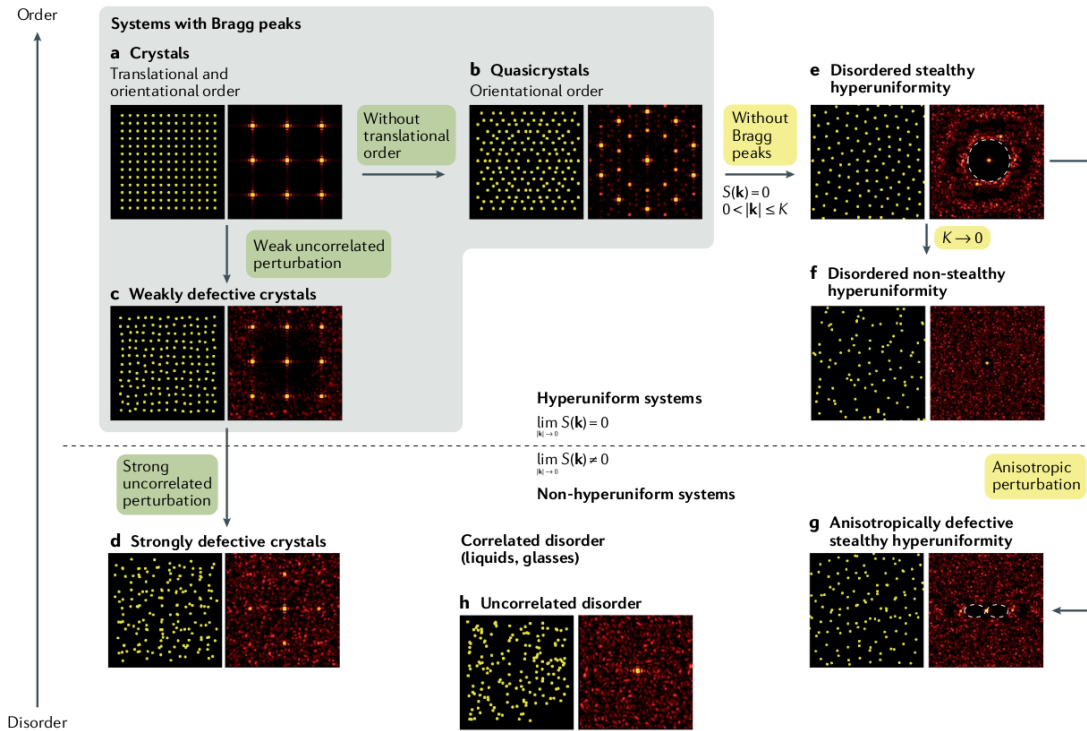


FIGURE 2.4 – Classification de différents types de désordres. Pour chaque type, à gauche en jaune, distribution des positions, et à droite en rouge, facteur de structure $S(\vec{k})$ des positions²⁵

ture $S(k)$ des positions est présenté car il permet de voir la présence ou non de pics de diffraction, signes d'une forte corrélation entre les positions dans la structure.

Ainsi, la Fig. 2.4a) présente le cas d'un cristal parfait, où les positions sont parfaitement périodiques. Le facteur de structure correspondant est un ensemble de pics de Bragg périodiques eux aussi, correspondant aux ordres de diffraction. La Fig. 2.4b) présente le cas d'un quasi-cristal, structure sans périodicité mais ici symétrique par rotation, et dont le facteur de structure présente également de nombreux pics de diffraction bien définis, dans des directions plus diverses que pour le cristal. La Fig. 2.4c) présente une dernière structure diffractante, qui est un cristal avec des défauts, visibles par un décalage des positions par rapport aux positions périodiques. Le facteur de structure montre alors des pics de diffraction encore bien définis, mais auxquels s'ajoutent un fond bruité, signe de l'émergence de diffusion.

La Fig. 2.4e) présente une forme de structure très particulière, dite hyperuniforme furtive, dont les positions apparaissent très ordonnées mais qui n'ont pas de corrélation à longue distance, visible dans l'absence de pics de diffraction dans le facteur de structure. Le critère d'hyperuniformité, qui sépare en deux familles distinctes toutes ces structures, est clairement visible sur les représentations de $S(\vec{k})$ par les cercles de valeurs nulles centrés sur le terme de fréquence nulle. Sur les distributions des positions, on voit que cela correspond également à une distance minimale d'exclusion à respecter entre les positions, plus généralement une force de répulsion entre les positions voisines.²⁶

La Fig. 2.4f) présente le cas limite de l'hyperuniformité, où la taille du cercle de facteur de structure nul est réduite à zéro.

Pour les structures non-hyperuniformes, on a la Fig. 2.4d), un cristal suffisamment perturbé pour que les positions puissent se chevaucher. Son facteur de structure présente encore quelques pics plus brillants, mais ils sont noyés dans un fond de diffusion élevée. La Fig. 2.4g) est un cas particulier où les positions sont

²⁶TORQUATO, « Hyperuniform states of matter »

toujours éloignées selon une certaine direction mais pas selon l'autre, transformant le cercle de facteur de structure nul en une sorte d'ellipse. Enfin, la Fig. 2.4h) présente le cas d'un désordre où toutes les positions sont mutuellement indépendantes, dont le facteur de structure ne présente que le pic de réflexion et un fond de diffusion non uniforme.

2.2.2 Ingénierie de désordre

Le désordre corrélé a été très étudié récemment, non seulement parce qu'il donne plus de contrôle sur les degrés de liberté qu'un désordre complet, mais aussi parce qu'il permet des réponses spectrales et angulaires originales.²⁷ La classification et la compréhension des propriétés du désordre permet ainsi l'ingénierie de surfaces désordonnées ayant des propriétés choisies. Notamment, les désordres corrélés permettent de concevoir des structures combinant des propriétés de structures ordonnées et d'autres de structures désordonnées.²⁸

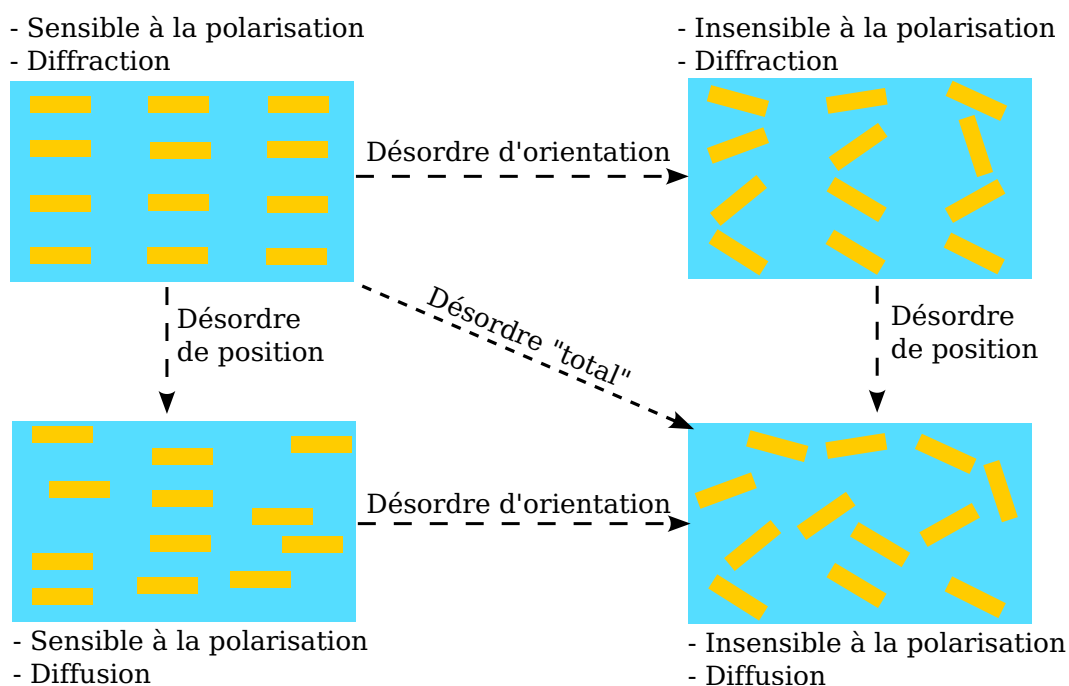


FIGURE 2.5 – Schéma de principe de la modification des propriétés d'une structure en fonction du désordre corrélé appliqué.

La Fig. 2.5 donne un exemple simple de ce concept d'ingénierie du désordre : on part ici d'une structure totalement ordonnée de MIM orientés parallèlement, donc sensibles à la polarisation. Si on désordonne les positions, la diffraction va devenir de la diffusion. Si on désordonne les orientations, la structure va devenir insensible à la polarisation. Il est possible de désordonner chacun de ces paramètres indépendamment ou ensemble, tirant ainsi parti des propriétés qui nous intéressent dans chaque cas d'application. Une autre possibilité très importante est de désordonner de manière contrôlée des positions périodiques, pour avoir une structure hyperuniforme, typiquement.²⁹ Ces possibilités de structuration sont notamment rendues possibles par les très bonnes capacités de nano-fabrication développées depuis l'essor de la microélectronique.

²⁷ VYNCK et al., « Light in correlated disordered media »; VYNCK et al., « Stunning visual appearances of disordered optical metasurfaces »

²⁸ YU et al., « Engineered disorder in photonics »

²⁹ STERL et al., « Shaping the color and angular appearance of plasmonic metasurfaces with tailored disorder »

Un enjeu majeur de l'étude des structures désordonnées est le contrôle de la diffusion, et plus généralement de la répartition spatiale de l'énergie.³⁰ Ce contrôle spatial de la diffusion est rendu possible par la relation $I(\vec{k}) \sim S(\vec{k} - \vec{k}_i)$ présentée précédemment. En effet, pour revenir à l'exemple d'une structure hyper-uniforme, $S(\vec{k}) \rightarrow 0$ implique une diffusion très faible pour $\vec{k} - \vec{k}_i$ proche de 0. Des structures optimisées pour contrôler les directions de propagation de la lumière sont ainsi développées, avec par exemple des structures diffusantes en réflexion et non en transmission.³¹ Des structures diffusant assez peu pour garder une partie de l'information sur la directivité de la lumière incidente sont également étudiées pour servir de focaliseurs accordables³² ou de calculateurs optiques.³³

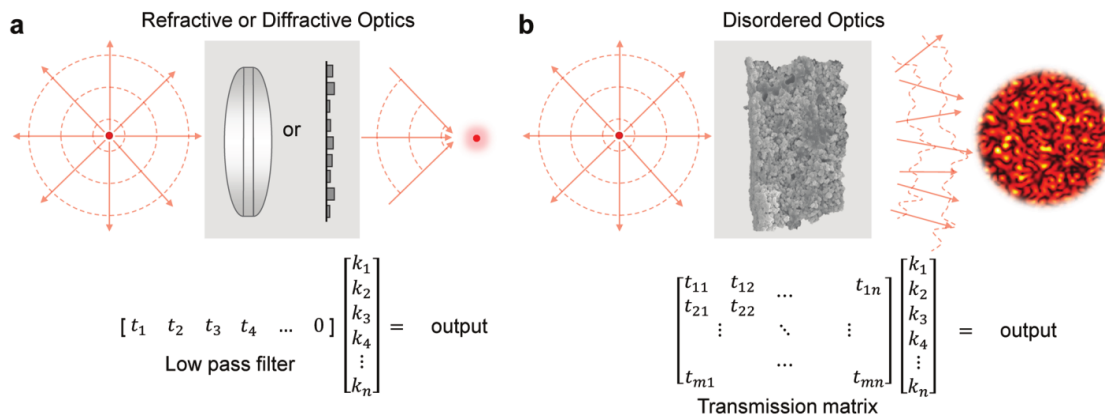


FIGURE 2.6 – Présentation du concept d'optiques diffusantes, et comparaison avec les optiques réfractives classiques. a) Schéma d'une lentille ou méta-lentille, focalisant la lumière en un seul point. b) Schéma d'une optique désordonnée diffusante, formant un motif de speckle.³⁴

La Fig. 2.6 présente un concept de base de l'ingénierie d'optiques désordonnées. Le motif de speckle produit par une structure légèrement diffusante correspond à la focalisation de la lumière incidente dans de nombreuses directions et selon une géométrie complexe. La présence d'un speckle signifie que la lumière transmise reste cohérente, puisque c'est un motif d'interférences. Il est donc possible d'optimiser les différents chemins de diffusion, ou au moins de les caractériser complètement, et ainsi connaître la "matrice de transmission" du système.³⁵ Cela permet alors, en contrôlant la lumière incidente, par exemple grâce à un modulateur spatial de la lumière (*Spatial Light Modulator*, SLM), de choisir complètement la forme du speckle, pour avoir plusieurs points de focalisation par exemple.³⁶

Cependant, toutes ces études se sont massivement concentrées sur les structures diélectriques, ne comportant pas de résonances spectrales ni de confinement du champ électromagnétique. Les structures métalliques désordonnées combinent une réponse spectrale complexe à la diversité des réponses spatiales permises par le désordre et nécessitent donc des études spécifiques.

³⁰J.-H. PARK et al., « Disordered optics: Exploiting multiple light scattering and wavefront shaping for nonconventional optical elements »; YU et al., « Engineered disorder in photonics ».

³¹CHU et al., « Diffuse reflection and reciprocity-protected transmission via a random-flip metasurface ».

³²JANG et al., « Wavefront shaping with disorder-engineered metasurfaces »; VELLEKOOP et al., « Focusing coherent light through opaque strongly scattering media ».

³³PIERANGELI et al., « Scalable spin-glass optical simulator ».

³⁴J.-H. PARK et al., « Disordered optics: Exploiting multiple light scattering and wavefront shaping for nonconventional optical elements ».

³⁵Ibid.

³⁶J. PARK et al., « Ultrathin wide-angle large-area digital 3D holographic display using a non-periodic photon sieve ».

2.3 Désordre de structures métalliques

L'idée d'étudier des structures métalliques désordonnées pour l'optique commence à prendre de l'ampleur. Une des premières études sur le sujet a été la réponse d'un ensemble de cubes d'argent répandus aléatoirement au dessus d'une couche de diélectrique, elle-même au dessus d'une couche métallique, constituant un ensemble de résonateurs MIM désordonné. Cette étude a montré que l'ensemble désordonné gardait les mêmes propriétés spectrales qu'un réseau périodique des mêmes résonateurs, à l'exception de l'apparition de la diffusion.³⁷ Cela a prouvé que les structures plasmoniques pouvaient avoir des réponses spectrales ne dépendant pas de la disposition des résonateurs, donc qu'il était possible de s'affranchir de la périodicité.

Les différences majeures avec les métasurfaces diélectriques désordonnées sont les suivantes. D'une part, comme mentionné précédemment, le caractère résonant des structures métalliques influence grandement le comportement spectral de la structure, là où les métasurfaces diélectriques dépendent principalement des indices des matériaux. D'autre part, le champ diffusé par une métasurface diélectrique peut avoir subi plusieurs événements de diffusion avant d'être réémis, alors que les résonateurs d'une métasurface métallique sont des diffuseurs indépendants. Cela signifie entre autres qu'on ne peut pas y observer d'effets de localisation. Cela est à distinguer du cas des nano-particules métalliques, pouvant être le siège de diffusions multiples.³⁸

2.3.1 Applications des métasurfaces métalliques désordonnées

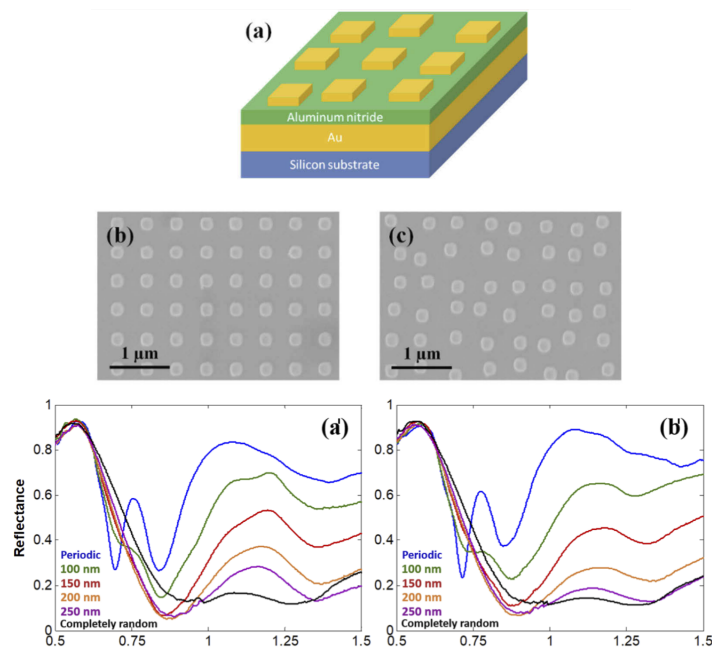


FIGURE 2.7 – a) Schéma de principe de la structure de MIM (Au/AlN/Au) désordonnée. b) Image MEB de la structure périodique. c) Image MEB d'une structure désordonnée hyperuniforme. a'-b') Spectres de réflectivité pour des structures périodiques (bleu), aléatoires (noir), et désordonnées hyperuniformes (autres couleurs).³⁹

Les études sur les métasurfaces métalliques ont par exemple mis en évidence la possibilité d'optimiser les positions et dimensions des résonateurs pour s'affranchir de toute diffraction tout en gardant un

³⁷ MOREAU et al., « Controlled-reflectance surfaces with film-coupled colloidal nanoantennas »

³⁸ YANNOPAPAS et al., « Layer-multiple-scattering theory for metamaterials made from clusters of nanoparticles »

³⁹ W. KIM et al., « Hyperuniform disordered metal-insulator-metal gap plasmon metasurface near perfect light absorber »

contrôle sur la dépendance spectrale de la transmission.⁴⁰ Des techniques de fabrication optimisées pour des structures métalliques désordonnées ont été développées pour gagner précision et efficacité.⁴¹ Il a été montré que des réseaux hyperuniformes de résonateurs MIM peuvent être des absorbeurs très large bande.⁴²

La Fig. 2.7 présente ainsi un exemple de spectres de réflexion pour des structures MIM (Or/AlN/Or), allant de périodiques à complètement désordonnées en passant par un désordre uniforme correspondant à une perturbation du réseau périodique. On y voit que des structures hyperuniformes peuvent présenter un spectre très proches des structures sans corrélation, tout en conservant une réponse spatialement uniforme.

D'autres études s'intéressent à la démonstration du contrôle spatial de la lumière réfléchie ou transmise avec des structures métalliques, comme pour les structures diélectriques. Par exemple, des métasurfaces hyperuniformes ont été utilisées pour diminuer la diffusion,⁴³ d'autres pour optimiser la transmission de lumière à des longueurs d'ondes précises.⁴⁴ Enfin, l'utilisation de structures métalliques désordonnées pour le contrôle de front d'onde, intérêt majeur des structures désordonnées présentées Fig. 2.5, est aussi étudiée.⁴⁵

2.3.2 Diffusion dans les métasurfaces métalliques désordonnées

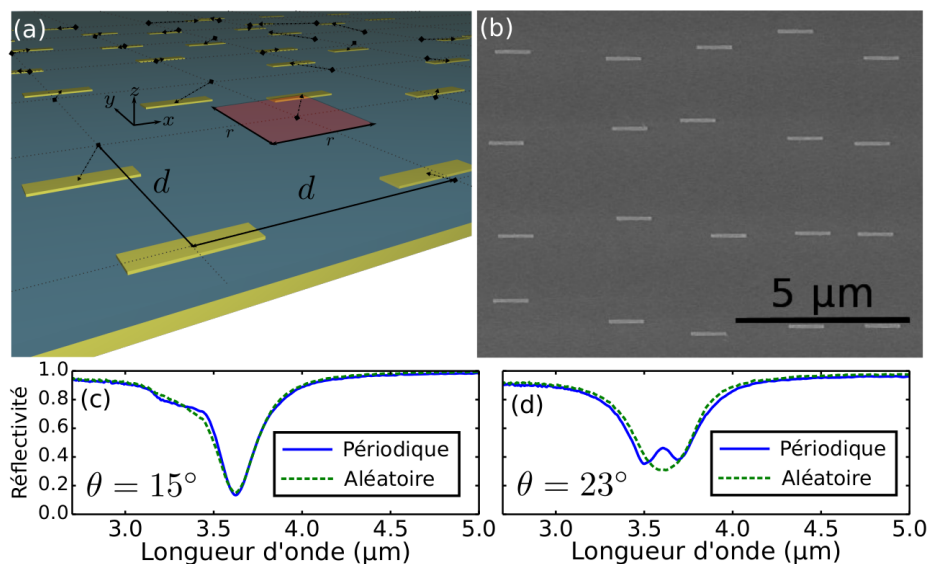


FIGURE 2.8 – Présentation d'une structure métallique désordonnée. a) Schéma de principe du réseau perturbé de MIM bâtonnets. La flèche sur chaque résonateur représente son décalage par rapport à la position périodique. b) Image MEB d'un réseau de MIM bâtonnets désordonné. c-d) Spectres de réflectivité des réseaux périodiques et perturbés de MIM bâtonnets de dimensions latérales $w = 100\text{nm}$ et $l = 1\ \mu\text{m}$, et d'épaisseur de diélectrique $h=220\text{nm}$, pour un angle d'incidence de c) 15° et d) 23° .⁴⁶

Dans l'équipe où j'ai effectué ma thèse, l'étude de structures métalliques désordonnées a déjà fait l'objet de travaux, réparties sur deux thèses principalement. Des ensembles désordonnés de MIM batonnets

⁴⁰BERTIN et al., « Correlated disordered plasmonic nanostructures arrays for augmented reality »

⁴¹S. LI et al., « Regulating disordered plasmonic nanoparticles into polarization sensitive metasurfaces »

⁴²W. KIM et al., « Hyperuniform disordered metal-insulator-metal gap plasmon metasurface near perfect light absorber »

⁴³H. ZHANG et al., « Hyperuniform disordered distribution metasurface for scattering reduction »

⁴⁴MAO et al., « Single-step-fabricated disordered metasurfaces for enhanced light extraction from LEDs »

⁴⁵ROUBAUD et al., « Far-field wavefront control of nonlinear luminescence in disordered gold metasurfaces »; ROUBAUD et al., « Statistical nonlinear optical mapping of localized and delocalized plasmonic modes in disordered gold metasurfaces »

⁴⁶CHEVALIER, « Hyperfocalisation de la lumière par structuration sub-longueur d'onde »

ont d'abord été étudiées pour se débarrasser de la diffraction, afin d'avoir une meilleure extinction.⁴⁷ La Fig 2.8 présente ainsi les échantillons conçus et fabriqués, et les spectres de réflectivité obtenus pour des réseaux périodiques et désordonnés. On peut voir que le spectre de réflectivité varie très peu entre les deux types de réseau, permettant donc une surface désordonnée résonante. Le cas avec angle d'incidence de 23° montre également la disparition pour le cas désordonné de l'anomalie de Rayleigh qui venait perturber la résonance dans le cas périodique, signe de l'absence de diffraction.

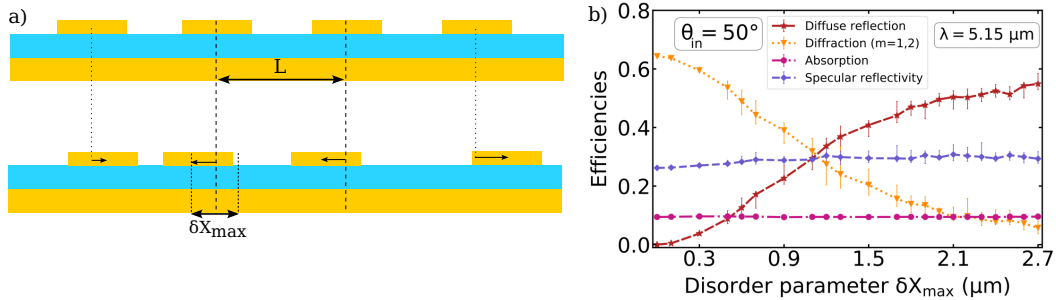


FIGURE 2.9 – a) Définition et exemple de δX_{\max} , la quantification de la perturbation de la position de MIM rubans. b) Évolution de la répartition de l'énergie en fonction de δX_{\max} pour un réseau de MIM rubans de largeur $w = 1.35 \mu\text{m}$ et d'épaisseur de diélectrique $h = 0.3 \mu\text{m}$, à la longueur d'onde de résonance $\lambda = 5.15 \mu\text{m}$.⁴⁸

Ensuite, une étude de la répartition de l'énergie dans les résonances, permettant de quantifier expérimentalement la part d'absorption et de diffusion, a été menée sur des réseaux de MIM rubans 1D.⁴⁹ La Fig. 2.9 présente cette étude, dont le résultat majeur est l'échange entre diffraction et diffusion lors de la perturbation de la structure, mis en évidence sur la Fig. 2.9c). Cela signifie notamment que l'absorption est la même pour une structure périodique et pour une structure désordonnée, ce qui n'est pas évident a priori. En effet, la diffusion étant plus difficile à détecter que la diffraction, on peut avoir l'idée que la diminution de la diffraction va de paire avec l'augmentation de l'absorption. Toutefois, ceci revient à confondre l'absorption (lumière piégée par la surface) et l'extinction (absorption + diffusion), ce que ces résultats viennent clairement réfuter.

Ma thèse prend donc la suite de ces travaux, notamment en proposant des méthodes de simulation compatibles avec des structures désordonnées, mais aussi en étendant les études expérimentales quantitatives de la diffusion à des résonateurs 2D.

Conclusion

J'ai présenté dans cette partie le contexte scientifique dans lequel s'inscrit ma thèse. Pour cela, les propriétés particulières des structures métalliques de dimensions sub-longueur d'onde ont été introduites, avec notamment le domaine de la plasmonique et des résonateurs Métal-Isolant-Métal dont il sera question tout au long de ce manuscrit. De même, un panorama des comportements optiques des structures désordonnées a été donné, avec les particularités des désordres corrélés et notamment les structures hyperuniformes. Enfin, les travaux à l'intersection de ces deux domaines, portant donc sur les structures métalliques désordonnées, ont été détaillé afin de replacer ma thèse dans l'état de l'art.

Dans la suite de ce manuscrit, je présenterai comment j'ai étudié ces structures, à la fois numériquement et expérimentalement, pour caractériser complètement leur comportement optique en fonction de

⁴⁷CHEVALIER et al., « Absorbing metasurface created by diffractionless disordered arrays of nanoantennas »

⁴⁸EL SHAMY et al., « Light scattering by correlated disordered assemblies of nanoantennas »

⁴⁹Ibid.

nombreux paramètres géométriques et physiques. Une thématique qui traverse toute ma thèse est celle de la répartition de l'énergie électromagnétique incidente entre les différents canaux de pertes radiatifs et non-radiatifs, car la bonne compréhension de cette répartition et des paramètres qui la contrôlent est nécessaire à l'optimisation de structures devant répondre à des besoin précis.

Deuxième partie

**Modélisation d'ensembles désordonnés
de nano-résonateurs Fabry-Perot
verticaux 1D**

Chapitre 3

Méthode analytique pour la simulation de réseaux de résonateurs monomodes

Sommaire

3.1 Simulation de réseaux de résonateurs monomodes	32
3.1.1 Définition du modèle analytique	32
3.1.2 Vecteurs d'onde du mode des sillons	34
3.1.3 Méthode de résolution	35
3.2 Extensions possibles du modèle	37
3.2.1 Extension à des structures en transmission	37
3.2.2 Difficultés d'extension à des structures 2D	38
3.3 Validation du modèle	39
3.3.1 Structures tests	40
3.3.2 Étude de la précision du modèle	41

La compréhension des phénomènes physiques complexes intervenant lors de l'interaction entre une surface et des ondes électromagnétiques nécessite d'étudier finement l'évolution temporelle et la répartition spatiale du champ électromagnétique. Pour ce faire, de nombreuses techniques expérimentales sont développées et sans cesse perfectionnées pour venir sonder le comportement des composants physiques, permettant des résolutions spectrales, temporelles, et spatiales toujours meilleures. Toutefois, une limite commune à toutes ces méthodes expérimentales est le temps (et le coût) qu'elles nécessitent, et l'expertise qu'elles requièrent pour être mises en place.

Les méthodes de simulation numérique sont un autre chemin vers une meilleure compréhension des phénomènes physiques, avec des atouts et limites très différentes. Elles sont en effet souvent plus rapides et faciles à mettre en œuvre, tout en donnant accès plus directement aux effets physiques importants. En contrepartie, elles requièrent une grande précaution lors de l'exploitation de leurs résultats, puisque ceux-ci ne sont pas extraits d'un système physique réel.

La simulation de structures désordonnées est malgré tout très gourmande en capacités de calcul, parce qu'il n'est pas possible d'utiliser la périodicité de la structure pour simplifier le problème. De plus, la conception de structures désordonnées passe généralement par le tirage aléatoire de certaines caractéristiques géométriques, qu'il est souhaitable de répéter plusieurs fois pour connaître le comportement en moyenne. Je présente donc dans ce chapitre la méthode de simulation numérique optimisée pour le calcul de structures désordonnées que j'ai développée pendant ma thèse.¹

¹ LANGEVIN et al., « Study of disordered metallic groove arrays with a one-mode analytical model »

3.1 Simulation de réseaux de résonateurs monomodes

Les méthodes de simulations les plus utilisées actuellement se décomposent principalement entre : les méthodes modales², les méthodes de différences finies (FDTD)³ ou d'éléments finis (FEM)⁴ et les méthodes analytiques⁵. Les méthodes modales utilisent des techniques d'interpolation pour calculer les modes propres du champ électromagnétique, tandis que les méthodes FDTD/FEM résolvent localement les équations de Maxwell pour déterminer la réponse globale de la structure. Ces méthodes sont dites exactes, au sens où l'augmentation de la précision demandée sur les calculs fait converger les résultats vers la physique réelle de l'objet étudié.

Les méthodes analytiques, elles, se basent sur une simplification du problème physique permettant de le ramener à un nombre réduit d'équations. Elles sont moins polyvalentes, car spécifiques à l'étude des systèmes physiques simplifiés pour lesquels elles sont construites, mais sont en contrepartie plus rapides. Nous avons accès à plusieurs méthodes de simulation exactes dans l'équipe où j'ai effectué ma thèse, mais la complexité des structures désordonnées que je devais étudier justifiait le développement d'un code spécifique plus rapide. La méthode de simulation que je présente ici est donc une méthode analytique.

3.1.1 Définition du modèle analytique

Les systèmes physiques auxquels s'applique la méthode analytique que j'ai développée sont des ensembles de résonateurs monomodes. Cette contrainte d'étudier des résonateurs hébergeant un seul mode électromagnétique a une double motivation. D'une part, numériquement, cela permet de simplifier les calculs effectués, donc de gagner du temps de calcul, précieux dans l'étude des structures désordonnées. D'autre part, physiquement, cela garantit que les phénomènes physiques sous-jacents seront simples, afin de pouvoir plus facilement développer le modèle puis interpréter les comportements observés.

Le système d'étude choisi est le réseau de sillons gravés dans une surface métallique, comme présenté Fig. 3.1. Ce sont des résonateurs Métal-Isolant-Métal comme introduits dans le Chapitre 1. Ce type de structure a été choisi car, sous certaines conditions présentées ci-après, ces sillons ne peuvent effectivement héberger qu'un seul mode du champ électromagnétique. Nous verrons que ces conditions ne sont pas trop restrictives, justifiant l'intérêt de ce modèle analytique. De plus, ces sillons sont considérés invariants (infinis) dans une direction, ou 1D, simplifiant encore plus le problème.

L'idée d'étudier des réseaux métalliques 1D par une approche monomode n'est pas nouvelle⁶ et une généralisation à des structures combinant des sillons de différentes positions et géométries avait été proposée dans l'équipe où j'ai mené ma thèse⁷. J'ai donc implémenté une méthode de simulation de réseaux de sillons métalliques monomodes 1D. Un schéma du type de structure étudié est montré sur la Fig. 3.1. Elle est constituée d'une maille périodique de n_S sillons gravés dans une couche de métal, chaque sillon étant défini par sa position $x_c^{(j)}$, largeur $w^{(j)}$ et hauteur $h^{(j)}$. L'ensemble des n_S structurations est répété avec une période L_x .

Le champ électromagnétique incident a un angle θ par rapport à la normale et un vecteur d'onde \vec{k} . Il est également polarisé transverse magnétique (TM) pour pouvoir exciter les résonances plasmoniques du métal, c'est-à-dire ici $H = H_y$. Par ailleurs, les dimensions des sillons, détaillées plus loin, sont telles qu'aucun mode transverse électrique ne peut s'y coupler. Pour toute la suite, on se ramènera à des champs monochromatiques de pulsation ω pour lesquels le terme d'évolution temporelle $e^{-i\omega t}$ est implicite.

²Jean Paul HUGONIN et al., « Reticolo software for grating analysis »; LALANNE et al., « Fourier-modal methods applied to waveguide computational problems »; L. LI, « Multilayer modal method for diffraction gratings of arbitrary profile, depth, and permittivity »

³SHIBAYAMA et al., « Performance evaluation of several implicit FDTD methods for optical waveguide analyses »

⁴LALANNE et al., « Numerical analysis of a slit-groove diffraction problem »

⁵LALANNE et al., « One-mode model and Airy-like formulae for one-dimensional metallic gratings »

⁶Ibid.

⁷BOUCHON, « Ingénierie d'indice optique à base de nanostructures métalliques »

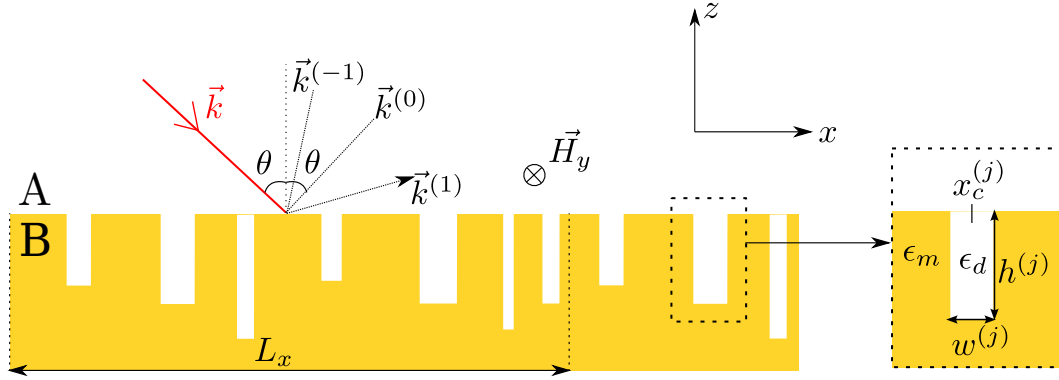


FIGURE 3.1 – Schéma d'une structure périodique multi-sillon (période L_x). Chaque sillon est défini par sa position $x_c^{(j)}$, sa largeur $w^{(j)}$ et sa profondeur $h^{(j)}$. Les sillons sont gravés dans une couche métallique. ϵ_d et ϵ_m sont les permittivités des milieux dans les sillons et du métal. Les $\vec{k}^{(i)}$ représentent les différents ordres de diffractions dus à la périodicité de la structure.

Le cœur de cette méthode est l'expression du champ magnétique dans chaque sillon (zone B de la Fig. 3.1) par une combinaison d'un unique mode propagatif horizontal et de modes propagatifs verticaux⁸:

$$H_{y,B}^{(j)}(x, z) = X_0^{(j)}(x) \left(A_0^{(j)} e^{ik_{z,d}^{(j)}(z+h^{(j)})} + B_0^{(j)} e^{-ik_{z,d}^{(j)}z} \right), \quad (3.1)$$

où $X_0^{(j)}(x) = \cos(k_{x,d}^{(j)}(x - x_c^{(j)}))$ est l'enveloppe du seul mode horizontal, et $A_0^{(j)}$ (resp. $B_0^{(j)}$) est l'amplitude du mode vertical se propageant vers le haut (resp. vers le bas). Ces modes sont associés aux vecteurs d'ondes $k_{z,d}^{(j)}$ et $k_{x,d}^{(j)}$, dont les définitions dépendent uniquement des dimensions du sillon et du vecteur d'onde d'incidence, et seront données ultérieurement.

Cette description monomode peut être considérée comme valide sous les hypothèses suivantes :

- Hyp. 1) Les largeurs des sillons sont suffisamment petites par rapport à la longueur d'onde pour que seul un mode propagatif horizontal y existe :

$$\forall j \in [1, n_s], w^{(j)} \ll \frac{\lambda}{2\sqrt{\epsilon_d}}, \quad (3.2)$$

- Hyp. 2) Les sillons sont assez profonds par rapport à l'épaisseur de peau du métal d_m pour négliger la contribution des modes évanescents (plasmons de surface) :

$$\forall j \in [1, n_s], h^{(j)} \gg d_m, \quad (3.3)$$

- Hyp. 3) Les sillons sont suffisamment éloignés les uns des autres par rapport à l'épaisseur de peau du métal pour éviter tout couplage direct :

$$\forall j \in [2, n_s], x_c^{(j)} - x_c^{(j-1)} - \frac{w^{(j)} + w^{(j-1)}}{2} \gg d_m. \quad (3.4)$$

Par la suite, les hypothèses 2) et 3) seront toujours respectées. En effet, comme la profondeur des sillons détermine leurs longueurs d'onde de résonance, choisir des sillons résonants dans l'infrarouge moyen ou lointain, les gammes de fréquence d'intérêt pour ma thèse, nécessite $h^{(j)} \geq 1 \mu\text{m} \gg d_m$, assurant l'Hyp. 2).

⁸LALANNE et al., « One-mode model and Airy-like formulae for one-dimensional metallic gratings »

D'autre part, le but n'étant pas d'étudier le couplage direct entre des sillons, les structures étudiées seront toujours conçues pour vérifier l'Hyp. 3). La stabilité du modèle en fonction de la validité de l'Hyp. 1) sera étudiée ultérieurement.

Il reste à prendre en compte le champ magnétique dans le milieu supérieur (zone A de Fig. 3.1) pour décrire pleinement la physique de la structure, puisque le champ dans la couche métallique n'est jamais calculé explicitement. Ce champ incident est décrit par la décomposition de Rayleigh due à la périodicité de la structure :

$$H_{y,A}(x, z) = e^{i(k_x^{(0)}x - k_z^{(0)}z)} + \sum_{n \in \mathbb{Z}} R_n e^{i(k_x^{(n)}x + k_z^{(n)}z)}, \quad (3.5)$$

où les R_n sont les amplitudes de chaque mode réfléchi n , et les vecteurs d'ondes sont :

$$k_x^{(n)} = k_x^{(0)} + n \frac{2\pi}{L_x}, \quad (3.6)$$

$$k_z^{(n)} = \sqrt{k_0^2 - (k_x^{(n)})^2}. \quad (3.7)$$

Parmi ces modes réfléchis, un certain nombre sont propagatifs, d'autres sont évanescents. Les modes propagatifs sont ceux pour lesquels $k_z^{(n)}$ est réel, *i.e.* pour lesquels $|k_x^{(n)}| < k_0$.

Afin de calculer la réponse optique du réseau de sillons, les amplitudes réfléchies R_n sont liées aux amplitudes des sillons $A_0^{(j)}$ et $B_0^{(j)}$ grâce aux conditions de continuité du champ électromagnétique aux interfaces. Par ailleurs, les vecteurs d'onde $k_{z,d}^{(j)}$ et $k_{x,d}^{(j)}$ sont calculés à partir des dimensions du sillon, des permittivités du milieu dans le sillon ϵ_d et du métal ϵ_m , et du vecteur d'onde incident⁹

3.1.2 Vecteurs d'onde du mode des sillons

Un sillon peut être étudié comme un empilement Métal-Isolant-Métal (MIM) qui se comporte comme un résonateur de Fabry-Perot. Afin que l'expression 3.1 corresponde bien à un mode hébergé par le sillon, le vecteur d'onde horizontal $k_{x,d}^{(j)}$ doit correspondre à une longueur d'onde permettant des interférences constructives pour chaque aller-retour dans le sillon, soit :

$$(r_{d,m})^2 e^{2ik_{x,d}^{(j)}w^{(j)}} = 1, \quad (3.8)$$

où $r_{d,m}$ est le coefficient de réflexion TM entre le diélectrique dans le sillon et les murs métalliques s'écrivant :

$$r_{d,m} = \frac{k_{x,d}/\epsilon_d - k_{x,m}/\epsilon_m}{k_{x,d}/\epsilon_d + k_{x,m}/\epsilon_m}. \quad (3.9)$$

La Fig. 3.2 représente schématiquement les variables mises en jeu dans le calcul des vecteurs d'onde du mode unique d'un sillon (j). Elle met aussi en avant le fait que la profondeur du sillon n'intervient pas dans l'expression du mode horizontal. Ainsi, la largeur $w^{(j)}$ du sillon détermine entièrement le mode unique horizontal, en fonction de la longueur d'onde d'incidence (à travers k_0). La profondeur du sillon vient, ensuite seulement, déterminer si le sillon peut se coupler à la lumière incidente, en fonction notamment de la phase accumulée pour un aller-retour vertical.

L'Hyp. 1) des largeurs petites devant la longueur d'onde (Eq. 3.2) entraîne $k_{x,d}^{(j)}w^{(j)} \ll 1$, permettant de réécrire la condition d'interférence constructive avec un développement limité de l'exponentielle. Une

⁹BOUCHON, « Ingénierie d'indice optique à base de nanostructures métalliques »

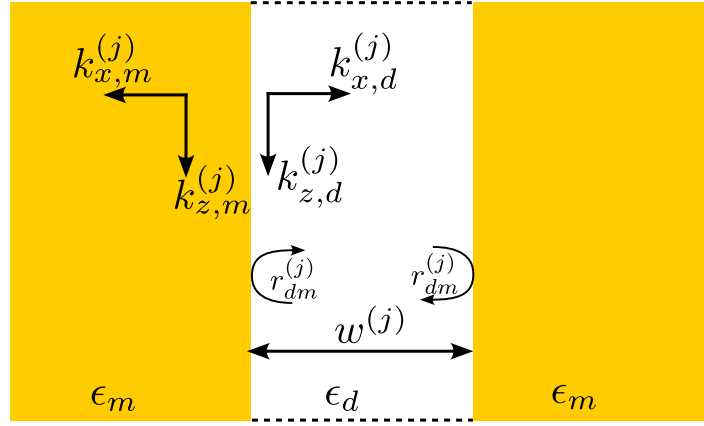


FIGURE 3.2 – Schéma de principe du modèle de sillon monomode, pour le sillon (j) . Les permittivités ϵ_m et ϵ_d des matériaux, les vecteurs d'onde k_x et k_z dans chaque matériau, ainsi que les coefficients de réflexion $r_{dm}^{(j)}$ sont représentés.

condition suffisante pour assurer l'équation (3.8) est alors :

$$\begin{aligned} \frac{k_{x,d}/\epsilon_d - k_{x,m}/\epsilon_m}{k_{x,d}/\epsilon_d + k_{x,m}/\epsilon_m} (1 + i k_{x,d}^{(j)} w^{(j)}) &= 1 \\ \Rightarrow (k_{x,d}/\epsilon_d - k_{x,m}/\epsilon_m) (1 + i k_{x,d}^{(j)} w^{(j)}) &= k_{x,d}/\epsilon_d + k_{x,m}/\epsilon_m \\ \Rightarrow (k_{x,d}/\epsilon_d - k_{x,m}/\epsilon_m) i k_{x,d}^{(j)} w^{(j)} &= 2 k_{x,m}/\epsilon_m. \end{aligned}$$

En réutilisant $k_{x,d}^{(j)} w^{(j)} \ll 1$, on obtient l'équation non-linéaire suivante :

$$\frac{k_{x,m}^{(j)}}{\epsilon_m} = \frac{k_{x,d}^{(j)}}{\epsilon_d} \left(i \frac{k_{x,d}^{(j)} w^{(j)}}{2} \right). \quad (3.10)$$

En utilisant la continuité de la composante tangentielle des vecteurs d'ondes, $k_{z,d}^{(j)} = k_{z,m}^{(j)}$, l'équation (3.10) devient :

$$(k_{x,d}^{(j)})^2 \left[1 + (k_{x,d}^{(j)})^2 \left(\frac{\epsilon_m}{\epsilon_d} \right)^2 \frac{w^{(j)2}}{4} \right] = (\epsilon_d - \epsilon_m) k_0^2. \quad (3.11)$$

Comme on a $|\epsilon_m| \gg |\epsilon_d|$, l'équation donne les expressions approchées suivantes pour les vecteurs d'ondes¹⁰ :

$$\begin{cases} k_{x,d}^{(j)} = \sqrt{\epsilon_d} k_0 \sqrt{\frac{-2i}{w^{(j)} k_0 \sqrt{\epsilon_m}}}, \\ k_{z,d}^{(j)} = \sqrt{\epsilon_d} k_0 \sqrt{1 + \frac{2i}{w^{(j)} k_0 \sqrt{\epsilon_m}}}. \end{cases} \quad (3.12)$$

3.1.3 Méthode de résolution

À partir de maintenant, toutes les variables nécessaires à la résolution ont été présentées. Les inconnues sont les amplitudes des champs réfléchis R_n , et celles des modes des sillons $A_0^{(j)}$ et $B_0^{(j)}$. Grâce aux conditions de continuité entre le champ incident, le champ réfléchi, et les modes dans les sillons, il est possible d'exprimer les R_n en fonction des $A_0^{(j)}$ et $B_0^{(j)}$, ou vice-versa.

¹⁰ COLLIN et al., « Waveguiding in nanoscale metallic apertures ».

Au niveau de l'ouverture des sillons, les composantes tangentielles du champ électromagnétique (H_y et E_x) sont continues. La continuité de E_x entraîne celle de la dérivée $\frac{\partial_z H_y}{\epsilon}$, car l'équation de Maxwell-Ampère pour notre système s'écrit $E_x = \frac{\partial_z H_y}{\omega \epsilon}$.

Ensuite, à l'interface entre un diélectrique et un métal, une condition d'impédance de surface est utilisée pour éviter de calculer le champ dans les zones métalliques. Cette condition s'écrit¹¹:

$$\partial_z H_{y,A}(x, z = 0) = \eta_A H_{y,A}(x, z = 0), \quad (3.13)$$

avec $\eta_A = \frac{\epsilon_A k_0}{i\sqrt{\epsilon_m}}$.

La première étape de la résolution est donc d'exprimer chaque amplitude de la décomposition de Rayleigh R_n dans l'équation 3.5 en fonction des amplitudes des modes dans les sillons $A_0^{(j)}$ et $B_0^{(j)}$. Pour ce faire, on projette le champ $H_{y,A}$ sur un unique mode n_0 :

$$\int_0^{L_x} H_{y,A}(x, z) e^{-ik_x^{(n_0)} x} dx = \delta_0^{n_0} L_x e^{-ik_z^{(n_0)} z} + R_{n_0} e^{ik_z^{(n_0)} z}, \quad (3.14)$$

où δ est le symbole de Kronecker.

Pour écrire la contribution des sillons à la même intégrale, les notations suivantes sont utiles :

$$\beta_{\pm}^{(n)} = 1 \pm \frac{ik_z^{(n)}}{\eta_A}, \quad (3.15)$$

$$\alpha_{\pm}^{(j)} = 1 \pm \frac{ik_{z,d}^{(j)} \epsilon_A}{\eta_A \epsilon_d}, \quad (3.16)$$

$$\gamma^{(j)} = \frac{ik_{z,d}^{(j)} - \eta_B}{ik_{z,d}^{(j)} + \eta_B}. \quad (3.17)$$

Les intégrales suivantes sont également définies sur la largeur $w^{(j)}$ de chaque sillon (j) :

$$I^{(n,j)} = \int_j e^{ik_x^{(n)} x} dx, \quad (3.18)$$

$$\text{Int}^{(n,j)} = \int_j \cos(k_{x,d}^{(j)}(x - x_c^{(j)})) e^{-ik_x^{(n)} x} dx, \quad (3.19)$$

$$K^{(j)} = \int_j \cos(k_{x,d}^{(j)}(x - x_c^{(j)})) dx. \quad (3.20)$$

La condition d'impédance de surface au fond du sillon (j) relie les amplitudes des modes se propageant vers le haut et le bas et permet d'exprimer $B_0^{(j)}$ en fonction de $A_0^{(j)}$:

$$B_0^{(j)} = A_0^{(j)} \gamma^{(j)} e^{-ik_{z,d}^{(j)} h^{(j)}}. \quad (3.21)$$

Ainsi, projeter le champ $H_{y,A}$ sur le mode $e^{-ik_x^{(n_0)} x}$ et utiliser les conditions aux interfaces en $z = 0$ donne une expression de chaque R_{n_0} en fonction des modes des sillons :

$$R_{n_0} = -\frac{\beta_+^{(0)}}{\beta_-^{(0)}} \delta_0^{n_0} + \frac{1}{L_x \beta_-^{(n_0)}} \sum_{j=1}^{n_s} A_0^{(j)} \left(\alpha_-^{(j)} e^{ik_{z,d}^{(j)} h^{(j)}} + \alpha_+^{(j)} \gamma^{(j)} e^{-ik_{z,d}^{(j)} h^{(j)}} \right) \text{Int}^{(n_0,j)}. \quad (3.22)$$

¹¹DEPINE et al., « Surface impedance boundary condition for metallic diffraction gratings in the optical and infrared range ».

3.2 Extensions possibles du modèle

La deuxième étape de la résolution est d'intégrer les mêmes conditions de continuité aux interfaces sur l'ouverture d'un unique sillon (j_0), afin d'exprimer l'amplitude du mode de ce sillon $A_0^{(j_0)}$ en fonction des amplitudes de la décomposition de Rayleigh R_n :

$$K^{(j_0)} A_0^{(j_0)} \left(e^{ik_{z,d}^{(j_0)} h^{(j_0)}} + \gamma^{(j_0)} e^{-ik_{z,d}^{(j_0)} h^{(j_0)}} \right) = I^{(0,j_0)} + \sum_{n \in \mathbb{Z}} R_n I^{(n,j_0)}. \quad (3.23)$$

En injectant l'équation (3.22) dans l'équation (3.23), on obtient un système linéaire sur les amplitudes $A_0^{(j)}$ qui peut être formulé comme une équation matricielle :

$$M_A \mathbf{A}_0 = \mathbf{I}_A. \quad (3.24)$$

M_A et \mathbf{I}_A ont les coefficients suivants :

$$(M_A)_{j_1, j_2} = \delta_{j_2}^{j_1} K^{(j_1)} \left(e^{ik_{z,d}^{(j_1)} h^{(j_1)}} + \gamma^{(j_1)} e^{-ik_{z,d}^{(j_1)} h^{(j_1)}} \right) \quad (3.25)$$

$$- \sum_{n \in \mathbb{Z}} \frac{I^{(n,j_1)} I n t^{(n,j_2)}}{L_x \beta_{\pm}^{(n)}} \left(\alpha_{-}^{(j_2)} e^{ik_{z,d}^{(j_2)} h^{(j_2)}} + \alpha_{+}^{(j_2)} \gamma^{(j_2)} e^{-ik_{z,d}^{(j_2)} h^{(j_2)}} \right), \quad (3.26)$$

$$(I_A)_{j_1} = I^{(0,j_1)} \left(1 - \frac{\beta_{+}^{(0)}}{\beta_{-}^{(0)}} \right). \quad (3.27)$$

où j_1 est l'indice de ligne et j_2 l'indice de colonne. L'équation étant sur les $A_0^{(j)}$, le système est de dimension n_s le nombre de sillons.

Pour résoudre ce système, la somme sur tous les modes de la décomposition de Rayleigh est tronquée aux modes $\pm N$. La valeur des amplitudes des modes de sillon $A_0^{(j)}$ et des modes réfléchis R_n sont alors obtenus, et la réflectivité totale de la surface peut être calculée comme la somme de l'énergie dans chaque mode propagatif :

$$R_{\text{tot}} = \sum_{n=-N}^N |R_n|^2 \frac{\Re(k_z^{(n)})}{k_z^{(0)}} \quad (3.28)$$

La résolution de ce système peut être confiée à n'importe quel langage de programmation. Dans mon cas, je me suis servi du langage Python, parce que sa facilité d'accès et ses outils de calcul numérique déjà disponibles minimisent l'effort nécessaire à l'implémentation, laissant plus de temps pour la validation, l'optimisation et l'exploitation.

3.2 Extensions possibles du modèle

3.2.1 Extension à des structures en transmission

Le modèle que j'ai développé ici peut facilement être adapté à des structures présentant une combinaison de sillons en réflexion et de fentes en transmission, comme représentée Fig. 3.3. Cela permet d'étudier des structures combinant à la fois réflexion et transmission. Les fentes peuvent être traitées comme des sillons à quelques exceptions près :

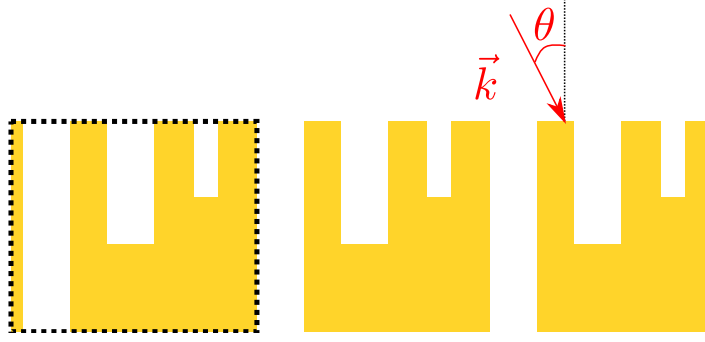


FIGURE 3.3 – Schéma de principe d'une structure combinant des sillons et des fentes.

- la présence d'au moins une fente implique la prise en compte du champ transmis $H_{y,C}$:

$$H_{y,C} = \sum_{m \in \mathbb{Z}} T_m e^{i(k_x^{(m)} x - k_z^{(m)} z)}, \quad (3.29)$$

- l'ouverture inférieure des fentes retire la condition d'impédance de surface reliant $A_0^{(j)}$ et $B_0^{(j)}$ comme au fond des sillons,
- les conditions de continuité sur toute la face arrière permettent de relier les composantes de $H_{y,C}$ aux $A_0^{(j)}$ et $B_0^{(j)}$ des fentes,
- les conditions de continuité à la sortie de chaque fente permettent de relier chaque $A_0^{(j)}$ au $B_0^{(j)}$ de la même fente, caractérisant ainsi complètement le système.

Le système d'équations décrivant la physique du réseau de fentes et de sillons devient alors un système sur les A_0 des sillons, et les A_0 et B_0 des fentes. Sa résolution peut s'écrire de manière similaire au cas en réflexion¹²:

$$M'_A \begin{pmatrix} A_0^{sillon} \\ A_0^{fente} \\ B_0^{fente} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1_{sillon} \\ 1_A^{fente} \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (3.30)$$

3.2.2 Difficultés d'extension à des structures 2D

Une autre extension de ce modèle qui pourrait paraître immédiate est le calcul de la réponse de sillons croisés, c'est-à-dire des réseaux de sillons gravés selon deux axes perpendiculaires x et y . Cela implique un champ dans la zone supérieure de la structure s'écrivant :

$$H_A(x, y, z) = H_{x,A}(x, y, z) + H_{y,A}(x, y, z), \quad (3.31)$$

$$\begin{cases} H_{x,A} = e^{i(k_x^{(0)} x + k_y^{(0)} y - k_z^{(0)} z)} H_{x,A}^{(0)} + \sum_{n,m \in \mathbb{Z}^2} R_{nm}^x e^{i(k_x^{(n)} x + k_y^{(m)} y + k_z^{(n,m)} z)}, \\ H_{y,A} = e^{i(k_x^{(0)} x + k_y^{(0)} y - k_z^{(0)} z)} H_{y,A}^{(0)} + \sum_{n,m \in \mathbb{Z}^2} R_{nm}^y e^{i(k_x^{(n)} x + k_y^{(m)} y + k_z^{(n,m)} z)}. \end{cases} \quad (3.32)$$

où les $k_x^{(n)}$ (resp. $k_y^{(m)}$) sont donnés par le vecteur d'onde incident et la périodicité en x (resp. y).

¹²BOUCHON, « Ingénierie d'indice optique à base de nanostructures métalliques ».

3.3 Validation du modèle

Cependant, pour rester dans un cadre proche de celui du modèle présenté jusqu'ici, il faut conserver l'idée de sillons monomodes. Une hypothèse raisonnable permettant d'assurer ceci est que les sillons gravés dans une direction ne peuvent se coupler qu'avec le champ magnétique oscillant dans cette même direction. Dit autrement, le mode des sillons infinis selon y (resp. x) ne contient que du H_y (resp. H_x) et garde donc la même expression que Eq. 3.1

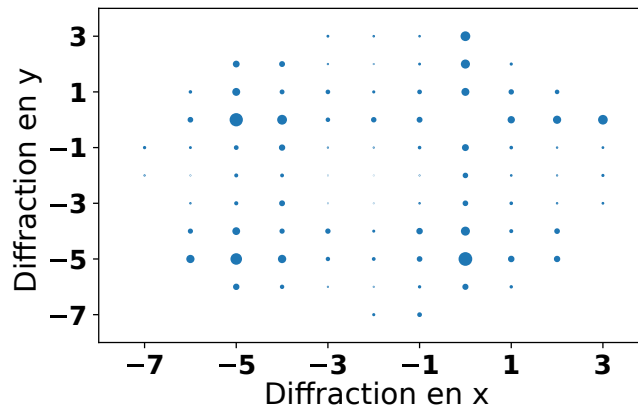


FIGURE 3.4 – Intensité des ordres de diffraction pour une structure composée de sillons croisés, calculée par une méthode de simulation exacte [3]. Le spéculaire (0,0) est retiré pour pouvoir mettre les autres intensités à l'échelle.

Une conséquence potentiellement problématique de cette hypothèse est qu'alors la structure découple complètement le comportement selon H_x et selon H_y , puisqu'ils n'interagissent pas avec les mêmes sillons. Par ailleurs, quelques étapes de calcul permettent de montrer que cette hypothèse de sillons indépendants entraîne $R_{nm}^\alpha \neq 0 \Rightarrow n = 0$ ou $m = 0$ pour $\alpha \in \{x, y\}$, correspondant à une diffraction seulement en croix autour du spéculaire.

Pour vérifier si cette diffraction en croix est physiquement valide ou non, une étude avec une méthode exacte est présentée Fig. 3.4. Elle montre qu'une structure avec des sillons croisés diffracte le champ incident dans toutes les directions. La simulation de réseaux de sillons 2D ne peut donc pas se faire avec une extension aussi simple du modèle présenté jusqu'à présent. Il n'est probablement pas impossible de trouver une expression valide pour des sillons monomodes 2D, dont le mode serait une combinaison de H_x et de H_y . Cependant, je n'ai pas poursuivi les investigations dans cette direction, me concentrant sur l'exploitation du modèle 1D.

3.3 Validation du modèle

Comme dit au début de ce chapitre, les résultats de méthodes de simulation comportant des approximations doivent être pris avec du recul pour deux raisons. D'une part, en tant que méthode de simulation, elles peuvent comporter des erreurs numériques entraînant des résultats non-physiques. D'autre part, en tant que méthode comprenant des approximations, il est nécessaire de vérifier que la structure respecte suffisamment les hypothèses pour que les approximations faites soient valables.

Il est donc nécessaire de valider les résultats obtenus par cette méthode analytique avant de s'en servir, afin de quantifier les potentielles erreurs numériques. Il faut également s'assurer, pour chaque nouvelle structure étudiée, qu'elle reste dans le domaine des approximations faites.

3.3.1 Structures tests

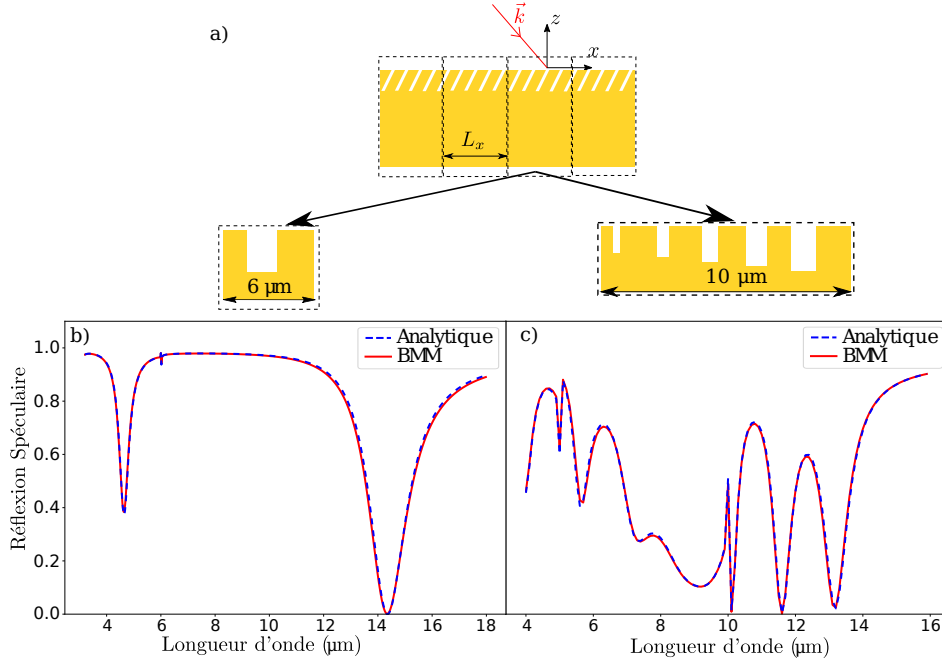


FIGURE 3.5 – Étude de la réflexion spéculaire de deux structures périodiques différentes, *i.e.*, un réseau dont la maille élémentaire est constituée d'un seul sillon, et un autre de cinq sillons différents, comme présenté en a). b) Comparaison entre la réflexion spéculaire donnée par le modèle analytique et l'outil de simulation BMM utilisé comme référence : la maille élémentaire est répétée tous les 6 μm et est constituée d'un seul sillon de largeur $w = 0.25 \mu\text{m}$ et profondeur $h = 3 \mu\text{m}$ c) Même comparaison pour un réseau de maille élémentaire répétée tous les 10 μm et constituée de cinq sillons de largeurs et profondeurs différentes, telles que $w^{(j+1)} > w^{(j)}$ et $h^{(j+1)} > h^{(j)}$, variant linéairement de $w^{(1)} = 100 \text{ nm}$ à $w^{(5)} = 500 \text{ nm}$, et de $h^{(1)} = 1 \mu\text{m}$, à $h^{(5)} = 2.6 \mu\text{m}$.

Ainsi, à titre de validation, j'ai comparé ce modèle à une méthode modale exacte résolvant les équations de Maxwell, la B-spline Modal Method (BMM)¹⁴. Un système simple, un réseau composé d'un seul type de sillon présenté à gauche de la Fig. 3.5(a), est d'abord utilisé. Le sillon est de dimension sub-longueur d'onde avec une largeur $w^{(1)} = 0.25 \mu\text{m}$, profondeur $h^{(1)} = 3 \mu\text{m}$ et est répété avec une période de $L_x = 6 \mu\text{m}$. Les parties métalliques sont en or (Au) et sa permittivité est modélisée selon un modèle de Drude validé expérimentalement pour l'infrarouge¹⁵ : $\epsilon_{\text{Au}}(\lambda) = 1 - 1/(\lambda_p/\lambda(\lambda_p/\lambda + i\gamma))$ où $\lambda_p = 159 \text{ nm}$ et $\gamma = 0.0075$. Ainsi, l'épaisseur de peau d_m est de l'ordre de 20 nm dans le moyen infrarouge.

La Figure 3.5(b) montre le spectre de réflexion spéculaire calculé par le modèle analytique détaillé ci-dessus (pointillés bleus) et la méthode BMM (traits pleins rouges) pour la structure présentée dans la partie gauche de Fig. 3.5(a). La lumière est en incidence normale par rapport à la surface et en polarisation TM. Comme attendu, la structure présente une résonance Fabry-Perot à la longueur d'onde fondamentale du sillon $\lambda_1 = 14.2 \mu\text{m} \sim 4n_{\text{eff}}h$, et à la première harmonique impaire $\lambda_3 = 4.65 \mu\text{m} = \lambda_1/3$. La position et l'intensité des résonances sont calculées avec une précision satisfaisante, ce qui confirme que la réponse optique de la structure est majoritairement déterminée par le mode fondamental du sillon, et que notre méthode ne comporte pas d'erreur.

La Figure 3.5(c) montre le spectre de réflexion spéculaire en incidence normale calculé par le modèle analytique détaillé ci-dessus (pointillés bleus) et la méthode BMM (traits pleins rouges) pour la structure

¹⁴BOUCHON et al., « Fast modal method for subwavelength gratings based on B-spline formulation ».

¹⁵LYNCH et al., « Comments on the optical constants of metals and an introduction to the data for several metals ».

présentée dans la partie droite de la Fig. 3.5(a). La structure est bien plus complexe que celle utilisée pour la Fig. 3.5(b), puisqu'elle consiste en une combinaison de cinq sillons différents, et sa réponse optique est ainsi beaucoup moins évidente à interpréter. Toutefois, des résonances Fabry-Perot correspondant aux modes fondamentaux des trois sillons les plus profonds sont identifiables à $\lambda = 10.1 \mu\text{m}$, $\lambda = 11.8 \mu\text{m}$ et $\lambda = 13.3 \mu\text{m}$. Pour cette structure également, malgré sa complexité, la méthode BMM est en très bon accord avec le modèle analytique, confirmant qu'ici aussi la réponse de la structure est majoritairement contrôlée par les modes fondamentaux des sillons.

Cette première validation qualitative effectuée, nous allons quantifier précisément l'écart entre les deux méthodes, notamment en fonction du nombre de modes réfléchis R_n calculés par la méthode analytique, seule variable jouant sur la précision des résultats, et en fonction de la validité de l'Hyp. 1) sur la largeur des sillons.

3.3.2 Étude de la précision du modèle

La Fig. 3.6(a) présente d'abord l'écart absolu entre les réflectivités calculées. L'écart absolu est utilisé plutôt que l'erreur relative, car la réflectivité pouvant être nulle, l'erreur relative deviendrait infinie. La Fig. 3.6(b) montre que l'erreur est de l'ordre du pourcent, et maximale au niveau des résonances. Cela est attendu puisque c'est non seulement là où les variations sont les plus fortes, mais aussi là où la physique est la plus complexe. Par ailleurs, une erreur maximale de 2% est tout à fait acceptable à mon sens, puisque les imprécisions dans les processus technologiques de nano-fabrication, associées aux incertitudes de mesures, entraînent une erreur expérimentale généralement comparable.

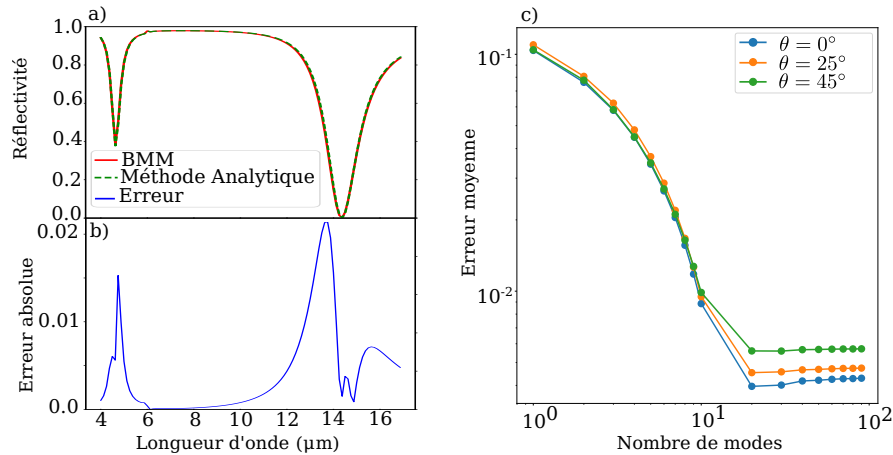


FIGURE 3.6 – Erreur absolue en réflectivité entre le modèle analytique et la méthode BMM, pour la structure simple. a) Spectres calculés par les deux méthodes. b) Écart, pour un calcul de $N = 50$ modes réfléchis. c) Moyenne de l'erreur sur un spectre de 4 à 16 μm , pour différents angles d'incidence.

La Fig. 3.6(c) représente ensuite l'évolution de l'écart entre le modèle analytique et la méthode BMM en fonction du nombre N de modes diffractés R_n calculés. L'erreur représentée est la moyenne sur le spectre de 4 à 16 μm de la valeur absolue de l'écart entre les simulations, représentée pour différentes valeurs d'angles d'incidences. Une échelle logarithmique est utilisée, pour rendre plus facile la lecture de l'ordre de grandeur de l'erreur. On voit que l'erreur moyenne devient de l'ordre de 10^{-2} à partir de $N \sim 10$ modes, et est stable au-delà de $N = 20$ modes diffractés calculés. On note également que l'erreur finale augmente avec l'angle d'incidence, mais reste inférieure à 10^{-2} en moyenne.

Tout cela permet de s'assurer que dans un cas très clairement monomode, *i.e.*, vérifiant l'Hypothèse 1) ($w^{(j)} \ll \lambda$), le modèle développé donne des résultats physiquement corrects. La question maintenant est de savoir comment cette précision est conservée dans le cas où on s'éloigne de cette hypothèse.

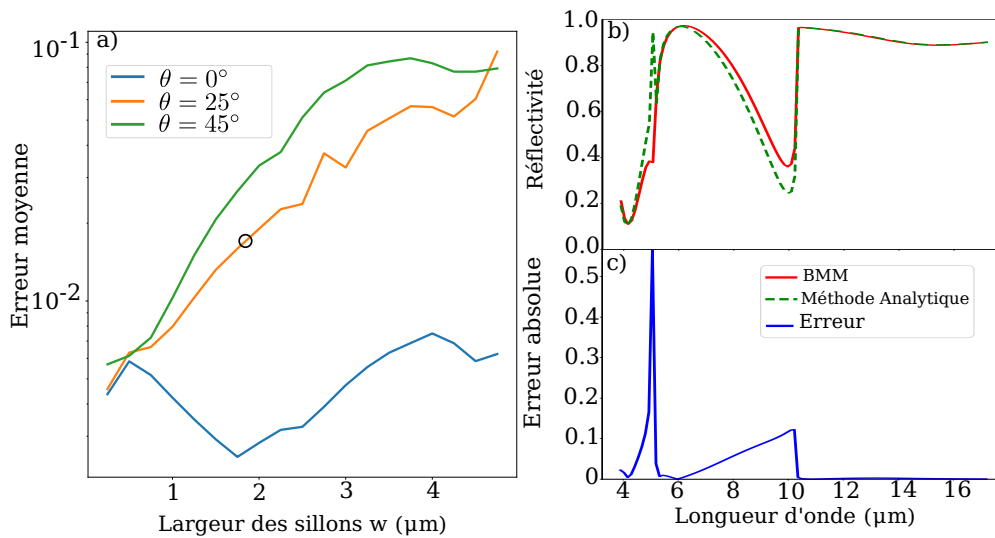


FIGURE 3.7 – a) Erreur absolue moyenne en réflectivité entre le modèle analytique et la méthode BMM, pour la structure simple, en fonction de la largeur du sillon. b) Spectre présentant une erreur significative, pour un sillon de largeur $w = 1.75 \mu\text{m}$ et un angle d'incidence de 25° . c) Erreur associée à ce spectre.

Pour ce faire, la Fig. 3.7a) représente l'évolution de l'erreur moyenne entre les deux méthodes pour différentes valeurs d'incidences, en fonction de la largeur du sillon étudié. D'abord, dans le cas de l'incidence normale, l'erreur moyenne reste inférieure au pourcent. Néanmoins, pour une incidence oblique, l'erreur moyenne augmente drastiquement avec la largeur des sillons. Il est donc probable que les autres modes du sillon deviennent plus importants dans la réponse de la structure. La Fig. 3.7b) montre un exemple de spectre correspondant à une erreur importante dans la Fig. 3.7a). On peut y voir que c'est l'erreur à la résonance, plus précisément la sur-estimation de l'extinction par le modèle analytique, qui entraîne l'erreur. La position de la résonance, elle, est bien calculée.

Les calculs pour le reste de ma thèse seront donc effectués pour des sillons de largeur $w^{(j)} \leq 1 \mu\text{m}$, et pour un nombre de modes diffractés $N > 20$. Cela permet de s'assurer d'être dans la situation où l'erreur moyenne reste inférieure au pourcent, et peu sensible à l'angle d'incidence.

La Fig. 3.8a) représente l'évolution du temps nécessaire au modèle analytique pour calculer la réponse optique de la structure pour unique jeu de paramètres (λ, θ), en fonction du nombre N de modes diffractés calculés. La droite de la méthode BMM représente le temps nécessaire pour un calcul avec une précision assurant la convergence. On constate que le modèle analytique est plus que trente fois plus rapide pour $N = 20$, à partir duquel on a montré que l'augmentation du nombre de modes calculés n'améliore pas la précision.

Par la suite, je vais vouloir modéliser des structures comportant plusieurs sillons, afin d'avoir des ensembles désordonnés. La Fig. 3.8b) présente l'évolution du temps de calcul en fonction du nombre de sillons modélisés, pour le modèle analytique et la méthode BMM. Ces résultats montrent très clairement le gain en rapidité que permet le modèle analytique. En effet, pour modéliser 20 sillons (qui sera démontré comme un minimum dans le chapitre suivant), le modèle développé est plus rapide d'un facteur 500.

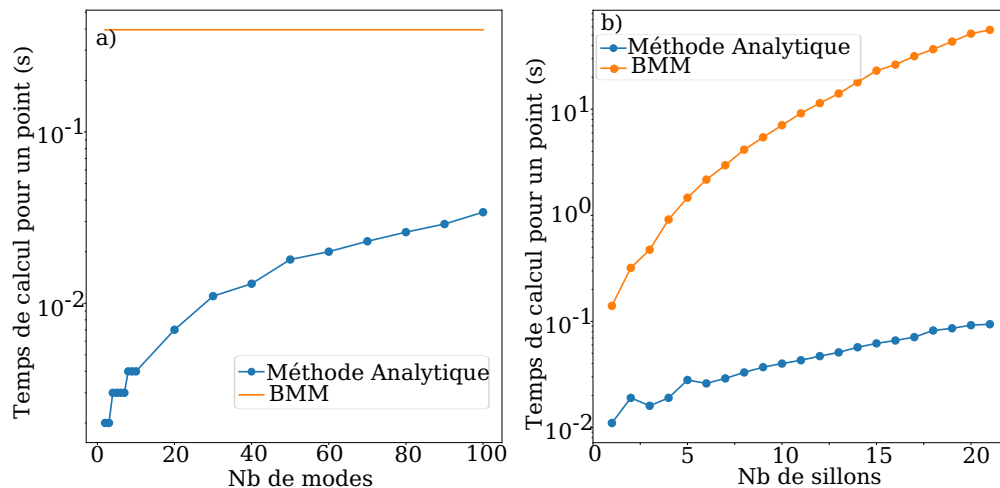


FIGURE 3.8 – Comparaison du temps de calcul entre le modèle analytique et la méthode BMM. a) Temps de calcul pour différents nombres de modes utilisés dans le modèle analytique, pour une structure composée d'un seul sillon. b) Temps de calcul pour des structures dont le nombre de sillons varie, avec $N = 25$ pour le modèle analytique. (Matériel utilisé : processeur 4 cœurs Intel® Core™ i3-7100U CPU 2.40GHz, RAM 3.6GB)

Conclusion

Une méthode de simulation de la réponse optique de réseaux de sillons métalliques a été détaillée. Elle se base sur l'hypothèse que les sillons ne peuvent héberger qu'un seul mode électromagnétique, qui permet de simplifier grandement les calculs. La possibilité d'étendre cette méthode à des combinaisons de sillons et de fentes a été brièvement évoquée, et les difficultés de la simulation de réseaux de sillons croisés ont été mentionnées.

La méthode analytique présentée a été testée et validée par la comparaison à la méthode BMM prise comme référence. Il a été montré que dans le cadre des hypothèses justifiant l'utilisation du modèle monomode, la méthode développée est suffisamment précise, tout en étant beaucoup plus rapide.

La principale précaution à prendre est la largeur des sillons, puisqu'elle influe directement sur la validité de l'hypothèse monomode. Il a également été mis en évidence que le cas d'une incidence normale était plus stable qu'une incidence oblique, cette dernière se couplant plus facilement aux autres modes du sillon. Il est nécessaire de s'assurer de la validité des calculs effectués par la suite, pour l'ensemble des paramètres d'intérêt (λ, θ). Pour ce faire, toutes les structures utilisées comporteront des sillons ou des fentes de largeur $w^{(j)} < 1 \mu\text{m}$, et les simulations seront effectuées pour un nombre de modes diffractés $N > 20$.

Cette méthode va donc pouvoir être utilisée pour l'étude détaillée de réseaux désordonnés de sillons monomodes, pour lesquels la méthode BMM est trop lente.

Chapitre 4 Étude numérique de l'effet du désordre sur le comportement des réseaux de sillons métalliques

Sommaire

4.1 Définitions préalables	45
4.1.1 Quantification du désordre	45
4.1.2 Super-période des structures désordonnées	46
4.2 Étude de la répartition de l'énergie pour un réseau de sillons désordonnés	47
4.2.1 Répartition spectrale de l'énergie	47
4.2.2 Répartition angulaire de l'énergie réfléchie	50
4.3 Étude d'un réseau de fentes désordonné	52
4.3.1 Transmission Optique Extraordinaire	52
4.3.2 Répartition spectrale de l'énergie	53
4.4 Proposition de structure très diffusante	55
4.4.1 Structure proposée	55
4.4.2 Comportement désordonné	56

Quand la lumière interagit avec une métasurface métallique, de nombreux effets se combinent. D'une part, parce qu'elle interagit avec une surface structurée, des effets de diffraction et de diffusion ont lieu en plus de la réfraction et réflexion présentes à toute interface. D'autre part, parce que cette structure est résonante, des effets de confinement du champ et d'absorption viennent s'ajouter.

La répartition spatiale de l'énergie en fonction de la géométrie d'une surface non-absorbante (typiquement, diélectrique) commence à être bien connue, y compris pour des structures non périodiques, comme présenté Chapitre 2. De même, l'influence d'une structure métallique périodique sur le spectre de réflexion ou d'absorption d'une surface a beaucoup été étudié dans le domaine de la plasmonique, comme présenté Chapitre 1.

Grâce à l'outil de simulation rapide présenté au chapitre précédent, il est possible de calculer la réponse optique de structures métalliques désordonnées. Cela permet d'étudier l'interaction entre les effets des résonances et ceux du désordre, ce qui a encore assez peu été réalisé.

4.1 Définitions préalables

4.1.1 Quantification du désordre

La structure étudiée est un réseau de sillons métalliques, modélisé par la méthode analytique présentée au chapitre précédent. Afin de mieux étudier les effets du désordre, il est intéressant de définir une métrique permettant de quantifier le désordre ajouté à la structure.¹ C'est pourquoi le type de désordre étudié est une perturbation d'une maille périodique, *i.e.*, le décalage aléatoire des positions des sillons par rapport à une

¹Yu et al., « Engineered disorder in photonics »

position initiale périodique. En effet, ce type de désordre est facile à quantifier, notamment par rapport aux autres désordres présentés Chapitre 2

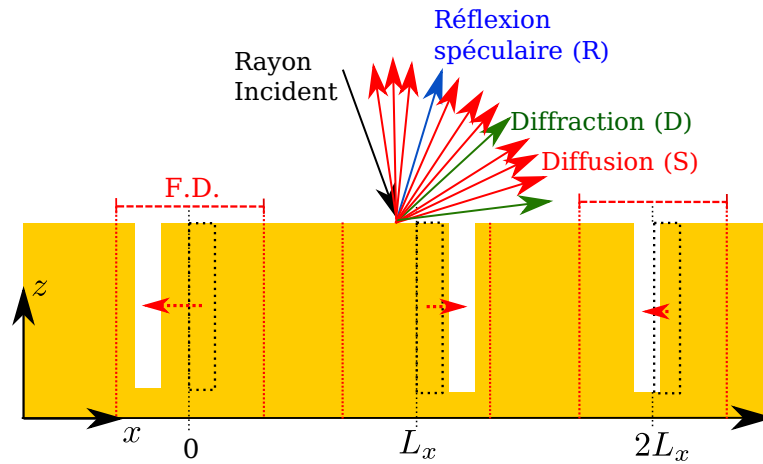


FIGURE 4.1 – Définition géométrique du Facteur de Désordre (FD), et représentation schématique des différents modes propagatifs dans le champ sortant.

J'introduis donc un Facteur de Désordre (FD), défini comme le décalage maximal des sillons par rapport à leurs positions périodiques, le décalage pour chaque sillon étant tiré uniformément entre $-FD/2$ et $+FD/2$, tel que montré sur la Fig. 4.1. Ce type de désordre ne modifie pas la densité locale de sillons, et fait ainsi parti des désordres corrélés hyperuniformes². Le cas $FD = 0$ correspond à la distribution périodique, et $FD = L_x - d_m$ à la distribution la plus désordonnée assurant la validité de l'Hyp. 3) de non-couplage donnée par Eq. 3.4.

4.1.2 Super-période des structures désordonnées

Le modèle analytique utilisé requiert des conditions aux bords périodiques. Pour l'appliquer à des réseaux désordonnés, il est donc nécessaire de choisir un nombre m de sillons dont les positions seront désordonnées, puis de répéter périodiquement l'ensemble avec une super-période mL_x . Le choix de m doit se faire tel qu'il n'affecte pas la réponse optique calculée, *i.e.*, le fait de répéter périodiquement les m sillons désordonnés donne le même résultat qu'un réseau complètement désordonné.

La Fig. 4.2a) présente le spectre de réflexion et diffraction du réseau de sillon simple étudié dans le chapitre précédent, c'est-à-dire $h = 3 \mu\text{m}$, $w = 0.25 \mu\text{m}$ et $L_x = 6 \mu\text{m}$. Sur ce spectre, on identifie trois longueurs d'onde intéressantes : $\lambda_3 = 4.65 \mu\text{m}$ pour avoir une résonance diffractante, $\lambda_1 = 14.2 \mu\text{m}$ pour avoir une résonance plus grande que la période, et entre les deux, $\lambda = 13.5 \mu\text{m}$ pour être au bord d'une résonance, où la réponse optique varie rapidement avec la longueur d'onde.

Les Fig. 4.2b-d) présentent les valeurs calculées en réflexion, diffraction et diffusion à ces trois longueurs d'onde, pour un ensemble de m sillons désordonnés en fonction du m choisi. Cette étude montre une convergence à partir de $m = 20$. Dans la suite, la valeur de m est donc choisie entre 20 et 30, comme bon compromis entre désordre et temps de calcul.

Par ailleurs, la super-période donne accès à plus d'angles réfléchis θ dans la décomposition de Rayleigh écrite en Eq. 3.5. Ainsi, les R_n représentent toutes les directions possibles pour le champ réfléchi, à savoir la réflexion spéculaire ($n = 0$), les ordres diffractés par le réseau périodique ($n = mk, k \in \mathbb{Z}^*$) et la diffusion ($n \in [mk + 1; m(k + 1) - 1], k \in \mathbb{Z}$). Le tout est résumé dans les variables suivantes :

²TORQUATO et al., « Ensemble theory for stealthy hyperuniform disordered ground states ».

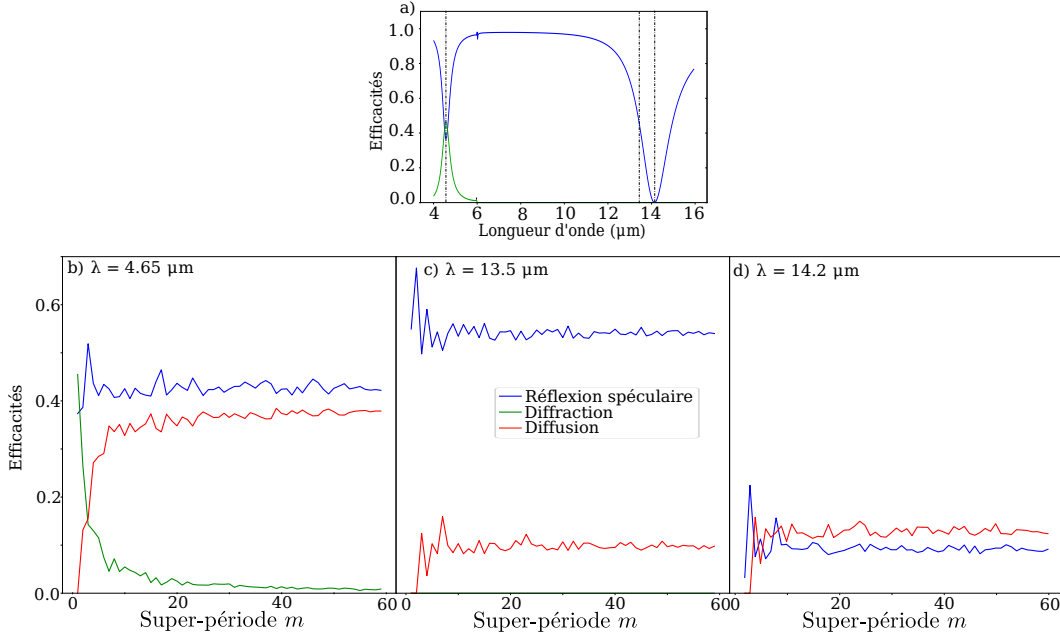


FIGURE 4.2 – Évolution de la réponse calculée en fonction de la super-période m , pour la structure présentée Fig. 3.5a), avec $FD = 6 \mu\text{m}$. Moyenne sur 20 tirages, $FD = 6 \mu\text{m}$. a) Rappel du spectre de la structure. b) Cas diffractant à $\lambda = 4.65 \mu\text{m}$. c) Cas sub-longueur d'onde à $\lambda = 13.5 \mu\text{m}$. d) Cas absorption totale à $\lambda = 14.2 \mu\text{m}$.

$$R_{\text{tot}} = \sum_{n=-mN}^{mN} |R_n|^2 \frac{\Re(k_z^{(n)})}{k_z^{(0)}}, \quad (4.1)$$

$$R = |R_0|^2 \frac{\Re(k_z^{(0)})}{k_z^{(0)}}, \quad (4.2)$$

$$D = \sum_{\substack{p=-N \\ p \neq 0}}^N |R_{pm}|^2 \frac{\Re(k_z^{(pm)})}{k_z^{(0)}} - R, \quad (4.3)$$

$$S = R_{\text{tot}} - R - D, \quad (4.4)$$

$$A = 1 - (R + S + D). \quad (4.5)$$

où R , la réflexion spéculaire, est tout simplement l'ordre zéro de diffraction; D , la somme sur les ordres diffractés, est l'ensemble des modes accessibles au réseau périodique; S , la diffusion (*scattering* en anglais), est le reste de l'énergie réfléchie; A , l'absorption, est l'énergie perdue sous forme d'échauffement de la couche métallique. L'augmentation de m permet donc de calculer plus finement la répartition spatiale de l'énergie diffusée.

4.2 Étude de la répartition de l'énergie pour un réseau de sillons désordonnés

Maintenant que le Facteur de Désordre (FD) et la super-période (m) ont été définies, il est possible d'étudier l'influence du désordre sur la réponse optique d'un réseau de sillons.

4.2.1 Répartition spectrale de l'énergie

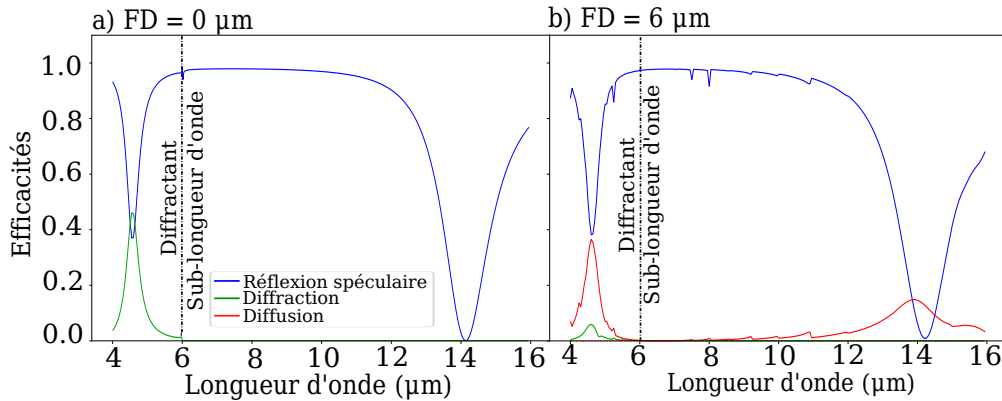


FIGURE 4.3 – Spectres de réflexion spéculaire, diffractée et diffuse calculés pour le réseau de sillons simples ($h = 3 \mu\text{m}$, $w = 0.25 \mu\text{m}$ et $L_x = 6 \mu\text{m}$). La droite verticale pointillée note la longueur d'onde qui est égale à la période. Calculs effectués par le modèle analytique pour $m = 20$. a) Spectre de la structure périodique, $FD = 0 \mu\text{m}$. b) Spectre de la structure désordonnée avec $FD = 6 \mu\text{m}$.

La Fig. 4.3 montre le spectre complet de la structure étudiée, à savoir un réseau de sillons de largeur $w = 0.25 \mu\text{m}$ et profondeur $h = 3 \mu\text{m}$, dont la période est $L_x = 6 \mu\text{m}$, déjà étudié pour la Fig. 3.5b). La Fig. 4.3a) présente le spectre dans le cas périodique ($FD = 0 \mu\text{m}$). La structure présente deux résonances, une à $\lambda_1 = 14.2 \mu\text{m}$ correspondant au mode fondamental du sillon, et une à $\lambda_3 = 4.65 \mu\text{m}$ correspondant à la première harmonique impaire. Dans le cas de la résonance de longueur d'onde $\lambda_3 = 4.65 \mu\text{m}$, inférieure à la période, une partie de l'énergie est diffractée. À l'inverse, l'autre résonance est à une longueur d'onde plus grande que la période, donc aucun ordre diffracté ne peut exister. Comme la réflexion est également nulle, toute l'énergie est absorbée dans les sillons. En dehors des résonances, le sillon n'interagit pas avec la lumière incidente, et la surface se comporte comme un miroir presque parfait.

La Fig. 4.3b) présente le spectre de la structure pour $FD = L_x = 6 \mu\text{m}$, donc très désordonnée. On observe que de la diffusion apparaît, mais seulement aux gammes de longueurs d'onde correspondant à des résonances de la structure. La diffraction, elle, a fortement diminué, ce qui est attendu d'une structure non-périodique. Cette sélectivité spectrale fine de la diffusion est une caractéristique peu commune, due ici à la combinaison de la réponse angulaire d'une structure désordonnée avec la réponse spectrale d'une structure métallique résonante.

Ces effets généraux étant identifiés, nous pouvons utiliser la quantification du désordre à son plein potentiel, afin d'étudier l'évolution du spectre en fonction du niveau de désordre.

La Figure 4.4 montre l'effet du désordre sur le réseau de sillons étudié précédemment pour deux cas de figures différents : le premier est pour la résonance diffractante à $\lambda_3 = 4.65 \mu\text{m} < L_x$ (Fig. 4.4a)) et le second pour une résonance à $\lambda_1 = 14.2 \mu\text{m} > L_x$ (Fig. 4.4b)).

Pour cette étude, le Facteur de Désordre (FD) est augmenté progressivement, en partant d'un réseau périodique ($FD = 0 \mu\text{m}$). Pour chaque valeur de FD, 20 tirages aléatoires des positions sont effectués. Les traits pleins représentent les valeurs moyennes, et les barres d'erreur correspondent aux minima et maxima obtenus sur les 20 structures.

Alors que le désordre augmente, les deux cas (diffractant et non-diffractant) voient une augmentation de la diffusion (S), comme identifié sur Fig. 4.3. Dans le cas diffractant, on observe un échange entre l'énergie diffractée et l'énergie diffusée, tandis que l'absorption et la réflectivité restent constantes. À l'inverse, dans le cas non-diffractant, comme la structure était parfaitement absorbante, l'augmentation de la diffusion va nécessairement de pair avec une diminution de l'absorption. L'ajout de désordre vient donc faire perdre le

4.2 Étude de la répartition de l'énergie pour un réseau de sillons désordonnés

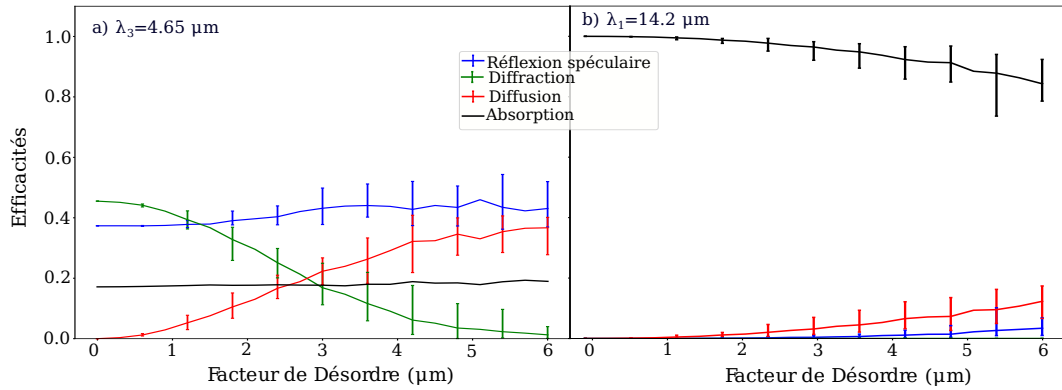


FIGURE 4.4 – Évolution de la répartition de l'énergie absorbée, réfléchie, diffractée et diffusée en fonction du Facteur de Désordre. Les traits pleins sont les moyennes sur 20 tirages, et les barres d'erreur correspondent aux valeurs maximales et minimales obtenues pour chaque FD. a) Cas d'une résonance diffractante, λ_3 . b) Cas d'une résonance sub-longueur d'onde, λ_1 .

couplage critique à la structure, sans pour autant augmenter significativement sa réflectivité.

Le cas diffractant est particulièrement intéressant, puisqu'il montre que pour ce type de désordre (perturbation d'une maille périodique, résonateurs monomodes découplés), la proportion d'énergie diffusée par le réseau désordonné est celle qui est diffractée par le réseau ordonné. Cela est une bonne règle de conception pour des structures très diffusantes, puisqu'il suffit de trouver une structure périodique (donc plus facile à modéliser et optimiser) très diffractante.

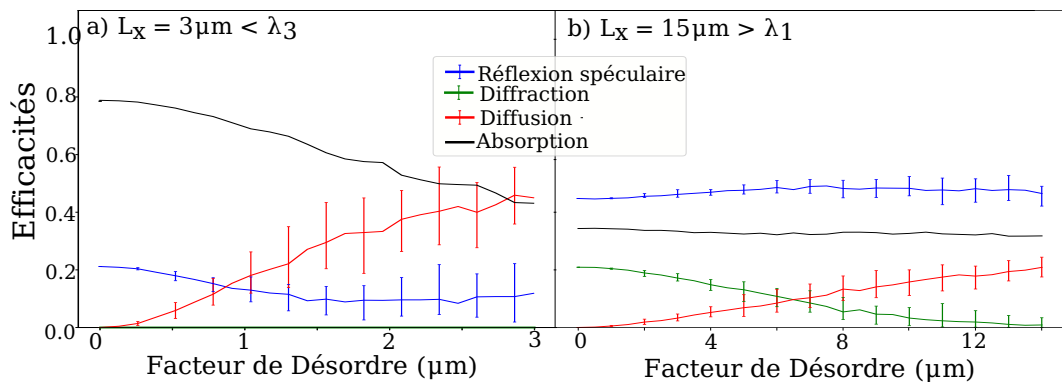


FIGURE 4.5 – Évolution de la répartition de l'énergie absorbée, réfléchie, diffractée et diffusée en fonction du Facteur de Désordre, pour la structure avec un seul sillon utilisée précédemment, mais dont la période est modifiée. a) Cas d'une résonance sub-longueur d'onde avec $\lambda_3 > L_x = 3 \mu\text{m}$ en incidence normale. b) Cas d'une résonance diffractante avec $\lambda_1 < L_x = 15 \mu\text{m}$ et une incidence de 10° . Les traits pleins sont les moyennes sur 20 tirages, et les barres d'erreur correspondent aux valeurs maximales et minimales obtenues pour chaque FD.

On veut confirmer la généralité des observations faites, et notamment vérifier que le caractère diffractant ou non de la structure est le point clé, plutôt qu'une différence entre le mode fondamental et la première harmonique du sillon. Pour ce faire, la Fig. 4.5 présente l'évolution de la réponse spectrale en fonction du FD pour deux réseaux constitués du même sillon ($w = 0.25 \mu\text{m}$, $h = 3 \mu\text{m}$) mais de périodes différentes. D'une part, Fig. 4.5a) correspond à $L_x = 3 \mu\text{m} < \lambda_3$, donc un cas non diffractant pour la première harmonique, où on retrouve bien la diminution de l'absorption, même si la situation initiale n'est pas parfaitement absorbante. D'autre part, Fig. 4.5b) présente le cas $L_x = 15 \mu\text{m} > \lambda_1$, donc un cas diffractant pour le mode fondamental, où on observe bien l'échange entre diffraction et diffusion. Il est à noter que ce dernier cas

est présenté pour une incidence de 10° et non normale, simplement pour éviter d'avoir une anomalie de Rayleigh au niveau de la résonance.

Pour résumer, on a montré que pour les résonances diffractantes, le désordre convertit complètement l'énergie diffractée en énergie diffusée, en modifiant peu la réflexion et l'absorption. Cela permet, comme déjà signalé, d'estimer facilement la proportion d'énergie diffusée par un réseau désordonné, puisqu'il s'agit de la proportion d'énergie diffractée par le réseau périodique, rapide à calculer. De plus, au niveau des résonances aux longueurs d'onde plus grandes que la période, le désordre convertit une partie de l'absorption en diffusion. Cela peut-être un effet délétère pour les applications où l'absorption maximale est recherchée, par exemple en détection. Enfin, en dehors des résonances, la couche métallique se comporte comme un miroir, qu'elle soit périodique ou désordonnée.

4.2.2 Répartition angulaire de l'énergie réfléchie

L'étude spectrale de la diffusion et de la diffraction apporte déjà beaucoup d'informations sur le comportement de la structure. Toutefois, aussi bien la diffraction que la diffusion correspondent à plusieurs directions de ré-émission de l'énergie, et il est donc intéressant d'étudier la répartition spatiale (c'est-à-dire ici angulaire) de l'énergie diffractée et diffusée.

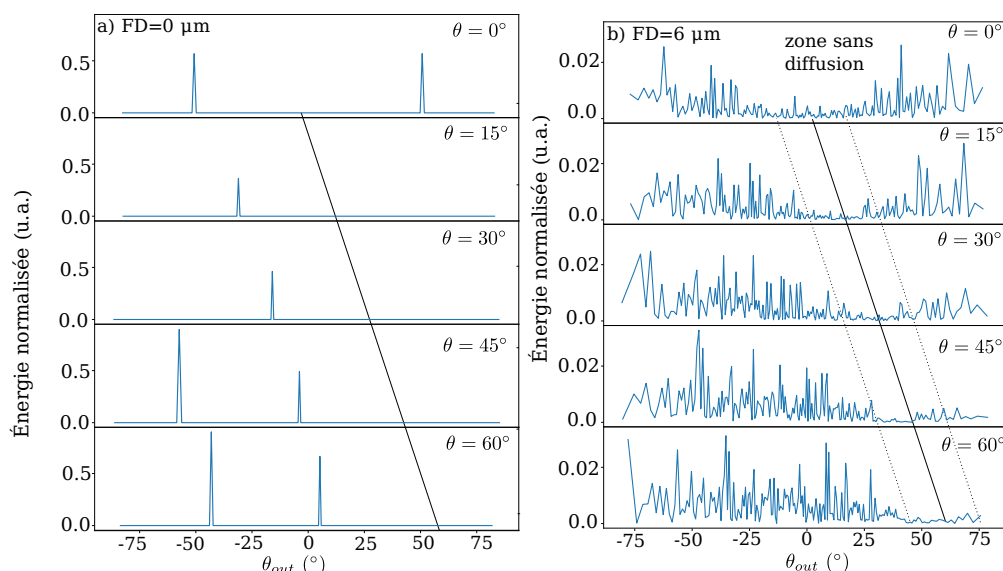


FIGURE 4.6 – Répartition angulaire de l'énergie réfléchie par le réseau de sillons, sans la réflexion spéculaire.
a) Cas de la structure périodique. b) Cas pour $FD = 6 \mu\text{m}$. Le trait plein noir indique la position du spéculaire pour chaque angle d'incidence.

La Fig. 4.6 présente la répartition de l'énergie diffractée et diffusée, en fonction de l'angle d'incidence. La structure utilisée est toujours le même réseau de sillons, et ces calculs ont été faits pour $\lambda = 4.65 \mu\text{m}$, la longueur d'onde de résonance diffractante de la structure. Le pic de réflexion spéculaire a été retiré pour une meilleure lisibilité.

La Fig. 4.6a) présente le cas périodique, où on peut voir les différents ordres de diffraction se décaler avec l'angle d'incidence. Par ailleurs, en dehors de l'incidence normale, une quantité d'énergie différente est envoyée dans chaque ordre de diffraction. Cette différence entre les ordres de diffraction est une caractéristique courante, qui peut donner lieu à une optimisation pour renvoyer un maximum d'énergie dans un ou plusieurs ordres de diffraction choisis³

³DENG et al., « A facile grating approach towards broadband, wide-angle and high-efficiency holographic metasurfaces »; RA'DI et al., « Metagratings: Beyond the limits of graded metasurfaces for wave front control »

La Fig. 4.6b) présente le cas de la structure désordonnée avec un FD de 6 μm , pour lequel on a vu que toute la diffraction avait été convertie en diffusion. On observe d'abord l'absence de pics de diffraction, comme attendu, et une répartition de la diffusion dans presque toutes les directions. On peut également voir une gamme d'angles, centrée pour chaque incidence sur le spéculaire correspondant et allant de -20° à $+20^\circ$, où la diffusion est significativement plus faible que dans le reste des directions.

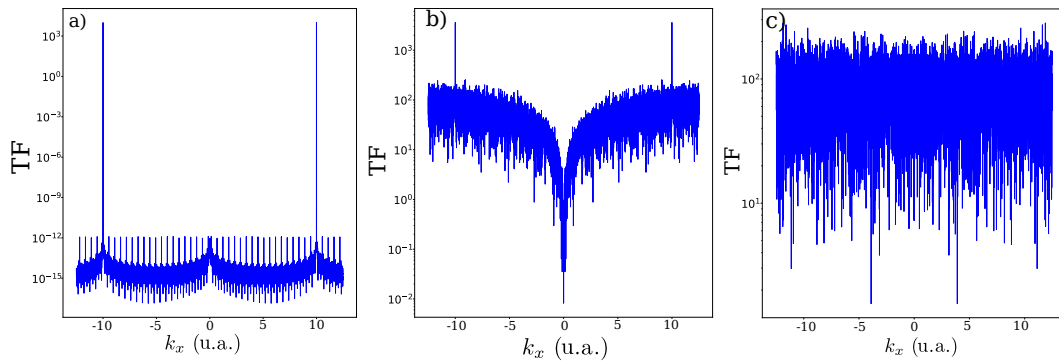


FIGURE 4.7 – Transformées de Fourier des positions d'ensembles 1D de points. a) Cas pour une structure périodique. b) Cas pour une maille périodique perturbée. c) Cas pour une structure désordonnée non corrélée.

Il se trouve que cette zone angulaire d'exclusion de la diffusion est caractéristique des structures hyperuniformes,⁴ comme présenté Chapitre 2. Le type de désordre que j'ai utilisé dans ce chapitre, une perturbation d'une maille périodique où les résonateurs ne peuvent pas être plus proches que l'épaisseur de peau du métal, est un désordre corrélé hyperuniforme.

Une façon de mieux comprendre le lien entre les positions des résonateurs et cette anisotropie de la diffusion est de s'intéresser à la transformée de Fourier des positions de la structure. En effet, il y a un lien direct entre les fréquences spatiales présentes au sein de l'échantillon et celles qu'un détecteur, placé dans le plan de Fourier, pourrait mesurer.

La Fig. 4.7 présente ainsi la transformée de Fourier des positions d'ensemble de résonateurs dans trois cas différents. À chaque fois, le spéculaire est retiré pour améliorer la lisibilité. D'une part, la Fig. 4.7a) montre la transformée de Fourier d'une structure périodique. Ensuite, la Fig. 4.7b) montre la transformée de Fourier d'une structure comme celle étudiée dans ce chapitre, c'est-à-dire pour laquelle les positions sont des perturbations d'une maille périodique. Enfin, la Fig. 4.7c) montre la transformée de Fourier d'une structure où toutes les positions sont tirées aléatoirement et indépendamment, n'importe où sur la surface.

La comparaison de la Fig. 4.7b) et de la Fig. 4.7c) montre clairement l'apparition de cette gamme de fréquences spatiales où la transformée de Fourier est très faible autour du spéculaire, absente dans le cas aléatoire pur. Ceci se traduit par la gamme d'angles sans diffusion de la Fig. 4.6b). À strictement parler, dans le cas périodique présenté sur la Fig. 4.7a), on a aussi une zone où l'énergie émise est négligeable, puisque les seules directions disponibles sont les ordres diffractés. C'est pourquoi les structures périodiques font partie des structures corrélées hyperuniformes, bien que cette terminologie soit peu utilisée, étant donné que la périodicité est une contrainte beaucoup plus forte sur la géométrie de la structure.

Cette étude montre la richesse du comportement spectral et angulaire d'un ensemble désordonné de sillons métalliques. Cela a notamment permis de montrer la généralité des résultats trouvés sur des MIM rubans par mon prédécesseur dans l'équipe,⁵ à savoir la conversion entre diffraction et diffusion. J'ai aussi pu mettre en avant la perte avec le désordre de l'absorption totale dans le cas de résonances plus grandes que la période.

⁴VYNCK et al., « Light in correlated disordered media »

⁵elshamy2019light.

Pour aller plus loin, le modèle de simulation de sillons utilisé peut facilement être adapté pour la simulation de réseaux de fentes métalliques. J'ai donc décidé de compléter cette étude en réflexion avec des sillons par une étude en transmission avec des fentes.

4.3 Étude d'un réseau de fentes désordonné

4.3.1 Transmission Optique Extraordinaire

Dans une situation classique, la lumière ne peut pas traverser une ouverture métallique plus petite que la longueur d'onde. Néanmoins, il a été découvert il y a un peu plus de 20 ans que la lumière pouvait traverser une surface ayant un réseau périodique d'ouvertures de dimension sub-longueur d'onde, ce qui a été nommé effet de transmission optique extraordinaire.⁶ Cet effet peut être expliqué par la combinaison cohérente d'ondes de surface, que ce soit des plasmons de surface propagatifs causés par la diffraction ou des plasmons de surface localisés émis par chaque ouverture.⁷

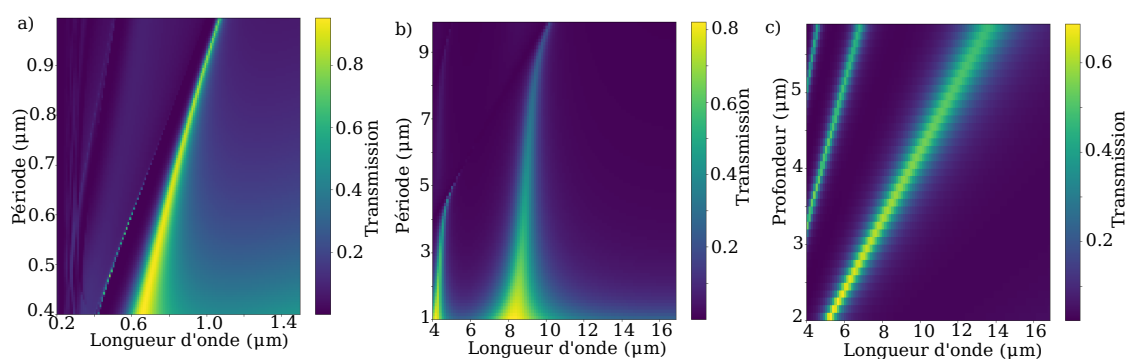


FIGURE 4.8 – Spectres de transmission extraordinaire à travers un réseau de fentes métalliques périodiques, en fonction des paramètres de la structure. a) Structure $w = 150$ nm, $h = 200$ nm, cas non résonant, variation de la période. Calcul effectué avec une méthode exacte. b) Structure $w = 0.8$ μm , $h = 3.6$ μm , cas résonant, variation de la période. c) Structure résonante $w = 0.8$ μm , $L_x = 3$ μm , variation de la profondeur.

Ainsi, dans un cas où les ouvertures sont trop peu profondes pour héberger un mode propagatif, donc pour exalter localement le champ, ce sont plutôt les plasmons propagatifs qui interviennent, et la position du pic de transmission est contrôlée par la période du réseau. Ce cas est présenté dans la Fig. 4.8a), où le réseau de fente est plutôt un réseau de trou, puisque la profondeur $h = 200$ nm est à peine plus grande que la largeur $w = 150$ nm. Le résultat est une structure non-résonante, simulée donc avec une méthode exacte plutôt que le modèle analytique, et où on observe bien la variation de la résonance avec la période. À l'inverse, si les ouvertures dans la couche métallique deviennent plus profondes, *i.e.* des fentes, c'est la résonance du mode qu'elles hébergent qui déterminera la position de la résonance.⁸ Ce cas est présenté dans la Fig. 4.8b-c), où on observe bien que la résonance est peu dépendante de la période (Fig. 4.8b)), mais varie linéairement avec la profondeur de la fente (Fig. 4.8c))

Ce lien avec les plasmons de surface a permis la conception de structures toujours plus variées reposant sur cet effet. Par exemple, une structure avec une fente unique mais encadrée par un réseau de sillons propageant des plasmons de surface a été conçue pour optimiser la transmission de la fente.⁹ Des applications

⁶EBBESEN et al., « Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays »

⁷MARTIN-MORENO et al., « Theory of extraordinary optical transmission through subwavelength hole arrays »

⁸LIU et al., « Microscopic theory of the extraordinary optical transmission »

⁹DUNBAR et al., « Enhanced transmission from a single subwavelength slit aperture surrounded by grooves on a standard detector »

au guidage d'onde et à la filtration ont également été développées.¹⁰ Les formes des ouvertures n'étant pas déterminantes dans la possibilité d'avoir cet effet, des structures avec des ouvertures aux formes optimisées pour diverses fonctions ont été proposées.¹¹ Enfin, une des caractéristiques importantes est la stabilité angulaire du spectre de transmission obtenu, quand des plasmons localisés, indépendants de l'angle d'incidence, sont utilisés.¹²

Toutes ces applications font des réseaux de fente métalliques des objets d'étude très pertinents à la fois théoriquement et dans la pratique.

4.3.2 Répartition spectrale de l'énergie

Comme le modèle analytique présenté au chapitre précédent peut être appliqué à des réseaux de fentes, il est intéressant d'étudier l'effet d'un désordre corrélé sur l'effet de transmission extraordinaire présenté par une structure périodique. En effet, cela permet notamment de distinguer la contribution de plasmons de surface propagatifs, nécessitant une structure périodique, de la contribution d'ondes de surface locales, qui devrait encore contribuer dans une structure désordonnée.

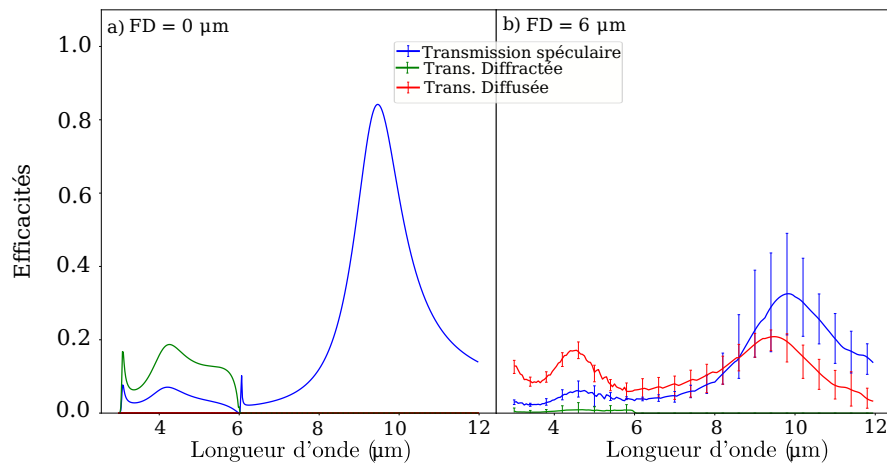


FIGURE 4.9 – Spectres de transmission spéculaire, diffractée et diffuse, pour un réseau de fentes de largeur $w = 0.8 \mu\text{m}$, profondeur $h = 3.6 \mu\text{m}$ et dont la période est $L_x = 6 \mu\text{m}$. a) $FD = 0 \mu\text{m}$. b) $FD = 6 \mu\text{m}$.

La Fig. 4.9a) présente les spectres en transmission spéculaire, diffractée et diffuse d'une structure avec un réseau périodique de fentes de largeur $w = 0.8 \mu\text{m}$, profondeur $h = 3.6 \mu\text{m}$ et de période $L_x = 6 \mu\text{m}$. Le phénomène de transmission extraordinaire est très clairement visible dans la transmission supérieure à 90% à $\lambda = 9.5 \mu\text{m} \gg w = 0.8 \mu\text{m}$. Puisque la structure est un réseau de fentes assez profondes pour héberger un mode propagatif vertical, ce pic de transmission correspond à la longueur d'onde de résonance de la fente, et non à une longueur d'onde de couplage avec des plasmons de surface propagatifs.

La Fig. 4.9b) présente les spectres de la même structure, une fois désordonnée avec un FD de $6 \mu\text{m}$. On y observe, comme pour le cas des sillons en réflexion, l'apparition de diffusion aux niveaux des résonances. La différence principale avec le cas en réflexion réside dans la diminution radicale de la transmission spéculaire avec le désordre. Cela montre que même si la transmission extraordinaire est contrôlée par la résonance de la fente, il y a une contribution de la périodicité par le biais de plasmons de surfaces, perdue à l'ajout de désordre.

¹⁰ LU et al., « Tunable band-pass plasmonic waveguide filters with nanodisk resonators »

¹¹ JANKOVIC et al., « High-resolution plasmonic filter and refractive index sensor based on perturbed square cavity with slits and orthogonal feeding scheme »

¹² AVRUTSKY et al., « Angle-and polarization-independent mid-infrared narrowband optical filters using dense arrays of resonant cavities »; LIN et al., « Angle-robust resonances in cross-shaped aperture arrays »; WANG et al., « Angle-independent infrared filter assisted by localized surface plasmon polariton »

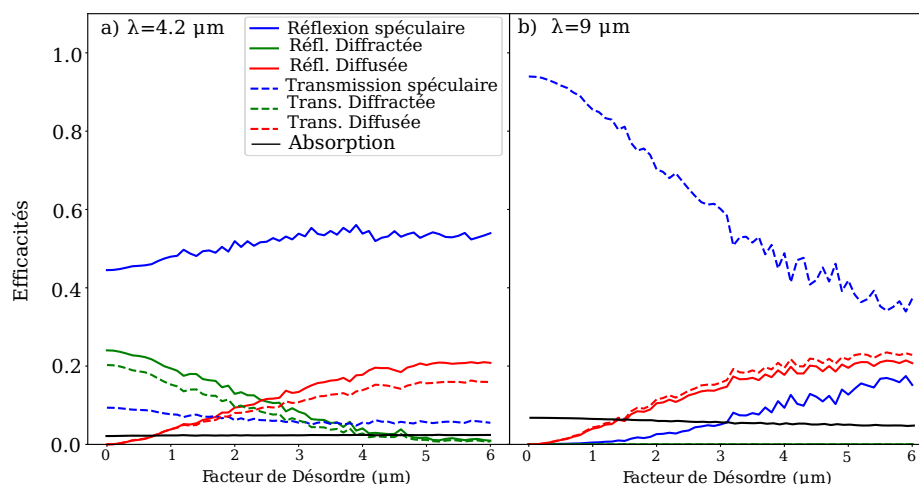


FIGURE 4.10 – Évolution de la répartition spectrale de l'énergie pour un réseau de fentes métalliques de dimensions $h = 3.6 \mu\text{m}$, $w = 0.8 \mu\text{m}$ et $L_x = 6 \mu\text{m}$ en fonction du FD. a) Cas diffractant à $\lambda = 4.2 \mu\text{m}$. b) Cas sub-longueur d'onde à $\lambda = 9.5 \mu\text{m}$.

Cette modification de l'effet de transmission optique extraordinaire est mieux mise en évidence dans la Fig. 4.10. Celle-ci présente l'évolution de la réponse spectrale avec l'augmentation du FD. On y voit clairement la diminution de la transmission dans le cas sub-longueur d'onde en Fig. 4.10b), mais on y observe également plusieurs autres effets intéressants.

Dans le cas diffractant présenté Fig. 4.10a), on retrouve l'échange diffraction-diffusion déjà identifié précédemment, avec une absorption constante, et une réflexion et une transmission spéculaires peu modifiées. La situation est donc tout à fait analogue à un réseau de sillons.

À la longueur d'onde plus grande que la période, présenté Fig. 4.10b), on observe la diminution de la transmission soulignée précédemment, et une absorption constante, ce qui est très différent de ce qui a été identifié pour les sillons en réflexion. La réflexion spéculaire reste d'ailleurs assez faible, quoiqu'elle augmente plus que dans le cas des sillons.

Le cas des fentes rajoute un aspect important, à savoir la répartition entre la transmission et la réflexion. On constate ici que l'énergie diffusée en réflexion et en transmission sont du même ordre de grandeur, aussi bien dans le cas diffractant que dans le cas sub-longueur d'onde.

C'est là qu'il est intéressant de distinguer les effets des plasmons de surface propagatifs, nécessitant la périodicité, des effets des ondes de surface localisées. En effet, le cas désordonné correspond à un cas sans plasmons de surface propagatifs, et on constate qu'on a alors autant de diffusion en réflexion qu'en transmission. Par ailleurs, la structure présente environ 40% de transmission au niveau d'une fente optimisée. Ensuite, le cas périodique montre la réponse de la structure quand on a à la fois des ondes de surface localisées et propagatives. On observe ainsi que la diffusion des fentes devient une diffraction aux directions bien quantifiées par les conditions d'interférence constructives du réseau, et que la transmission spéculaire dépasse 80% dans le cas sub-longueur d'onde. De plus, dans tous les cas, l'énergie diffractée et diffusée est équivalente en réflexion et en diffusion, alors que la réflexion et la transmission spéculaires peuvent être très différentes.

Ces effets originaux méritent une analyse plus complète, pour vérifier que la structure présentée n'est pas une exception et ainsi pouvoir généraliser les observations effectuées. Cela ouvrirait alors la porte à la conception de surfaces aux propriétés de transmission contrôlées aussi bien spectralement que spatialement, grâce à des structures résonantes optimisées.

4.4 Proposition de structure très diffusante

Une des applications de cette nouvelle compréhension des phénomènes de diffraction et de diffusion est l'ingénierie de structures très diffusantes, un sujet très actif pour des applications en furtivité¹³ et en refroidissement radiatif¹⁴. En effet, l'échange d'énergie entre diffraction et diffusion mis en évidence signifie qu'une structure périodique très diffractante est une très bonne piste pour faire une structure très diffusante. Le calcul de la réponse optique d'une structure périodique étant beaucoup plus rapide que pour une structure désordonnée, le gain de temps est significatif.

4.4.1 Structure proposée

Je propose donc ici un exemple de structure très diffusante que la rapidité de la méthode présentée précédemment a permis d'optimiser. Le haut de la Fig. 4.11 présente les dimensions géométriques du réseau de sillons proposé, à savoir $w = 0.5 \mu\text{m}$, $h = 2 \mu\text{m}$ et $L_x = 15 \mu\text{m}$. Ces dimensions ont été optimisées pour avoir une résonance diffractante en bande III (8-12 μm), et vérifient tout à fait les hypothèses du modèle analytique.

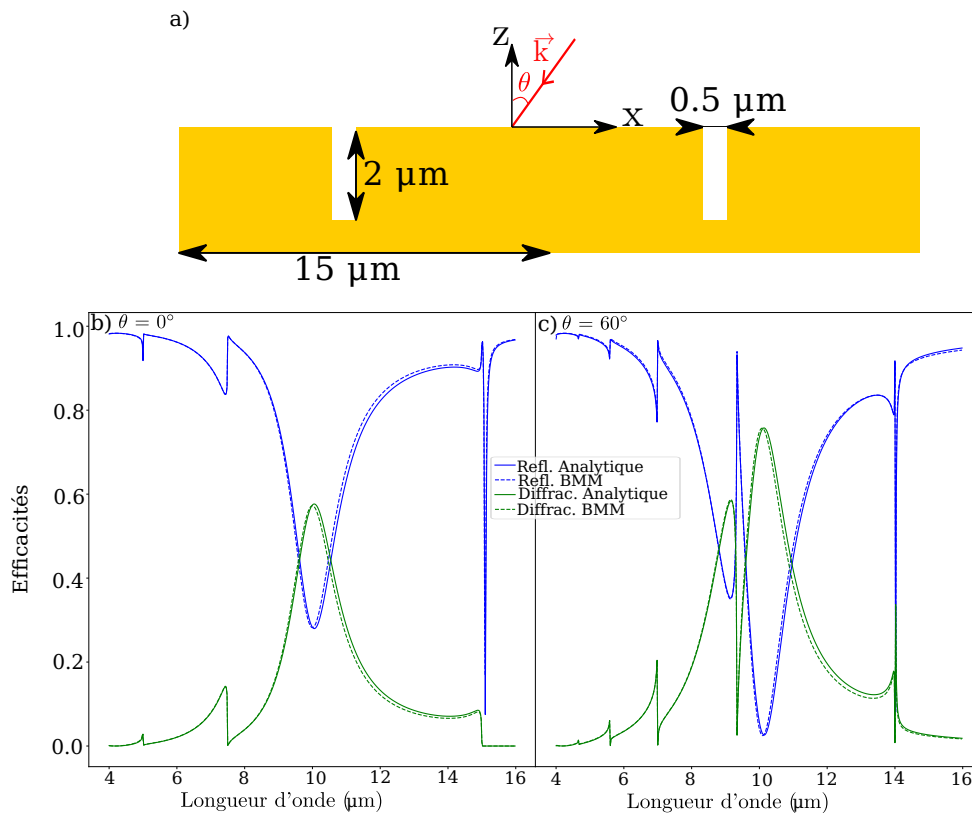


FIGURE 4.11 – Comparaison des spectres calculés par la méthode BMM et le modèle analytique pour la structure définie en a). b) Incidence normale. c) Incidence 60° .

La Figure 4.11 montre ainsi la réponse optique de la structure optimisée pour une incidence normale et une incidence de 60° . On observe bien une résonance de faible facteur de qualité ($Q \approx 1/10$) centrée sur $10 \mu\text{m}$, perturbée par des anomalies de Rayleigh pour l'incidence oblique. Pour s'assurer de la validité des

¹³H.-X. XU et al., «Deterministic approach to achieve broadband polarization-independent diffusive scatterings based on metasurfaces»

¹⁴H. KIM et al., «Selectively enhancing solar scattering for direct radiative cooling through control of polymer nanofiber morphology»

résultats obtenus, les spectres de réflexion et de diffraction calculés par la méthode exacte BMM sont aussi représentés Fig. 4.11. Ces derniers sont en bon accord avec ceux obtenus par le modèle analytique.

Cette vérification a été étendue à toute la gamme d'angles d'incidence entre 0 et 60° par rapport à la normale. L'erreur moyenne étant toujours en deçà du pourcent, les résultats confirment que le comportement optique de la structure est bien décrit par l'approximation monomode, et ce quel que soit l'angle d'incidence. On constate, par ailleurs, que la résonance est mieux couplée pour l'angle d'incidence oblique, et plus diffractante. Nous y reviendrons juste après avec la structure désordonnée.

4.4.2 Comportement désordonné

La Fig. 4.12 présente l'évolution de la réponse optique avec le désordre. La Fig. 4.12a) présente le spectre de la structure périodique et la Fig. 4.12b) le spectre de la structure désordonnée avec $FD = 14 \mu\text{m}$. La structure devient ainsi largement diffusante, ce qui était attendu.

Sur la Fig. 4.12c) est représentée l'évolution des spectres pour la longueur d'onde au centre de la résonance. On observe le même échange diffraction - diffusion que dans la structure test. Étant donné le taux de diffraction supérieur à 60% de l'énergie incidente dans le cas périodique, on obtient des taux de diffusion du même ordre de grandeur pour les structures très désordonnées, en gardant une réflexion et une absorption équivalentes au cas périodique.

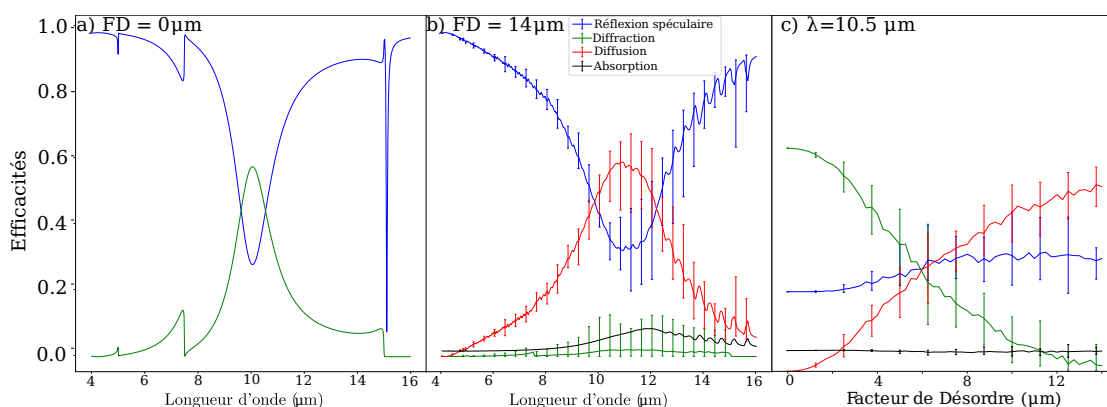


FIGURE 4.12 – a-b) Étude de la résonance décrite sur la Figure 4.11 calculée par le modèle analytique. Comme dans les figures précédentes, la super-période est de 20 sillons et les résultats sont moyennés sur 20 tirages. a) $FD = 0 \mu\text{m}$ b) $FD = 14 \mu\text{m}$. c) Évolution de la réponse spectrale avec l'augmentation du FD.

Ces résultats montrent que la diffusion a bien un comportement résonant, tel que sa largeur spectrale soit la même que la résonance en réflexion spéculaire. La largeur à mi-hauteur est presque de $2 \mu\text{m}$, et donne donc une structure diffusant une grande partie ($>40\%$) de l'énergie incidente, sur une bande de longueur d'onde choisie.

La Fig. 4.13 présente l'évolution de la réflexion spéculaire et diffusée à $\lambda = 10 \mu\text{m}$ en fonction du désordre et de l'angle d'incidence. On y retrouve l'augmentation de la diffusion avec le FD, et ainsi que l'apparition d'une perturbation du spectre due à une anomalie de Rayleigh. Celle-ci découple le sillon du champ incident quand l'incidence est de 20°, et donne donc un pic local de réflexion. Ce pic disparaît quand le désordre augmente, puisque l'anomalie est due au couplage entre les sillons et un ordre diffracté qui disparaît quand le désordre est augmenté. C'est le seul cas où le rajout de désordre vient modifier fortement la réflexion spéculaire d'une structure.

J'ai donc étudié le comportement spectral et angulaire d'un réseau de sillons et d'un réseau de fentes désordonnés. Des études expérimentales présentées plus loin consolideront les conclusions pour le com-

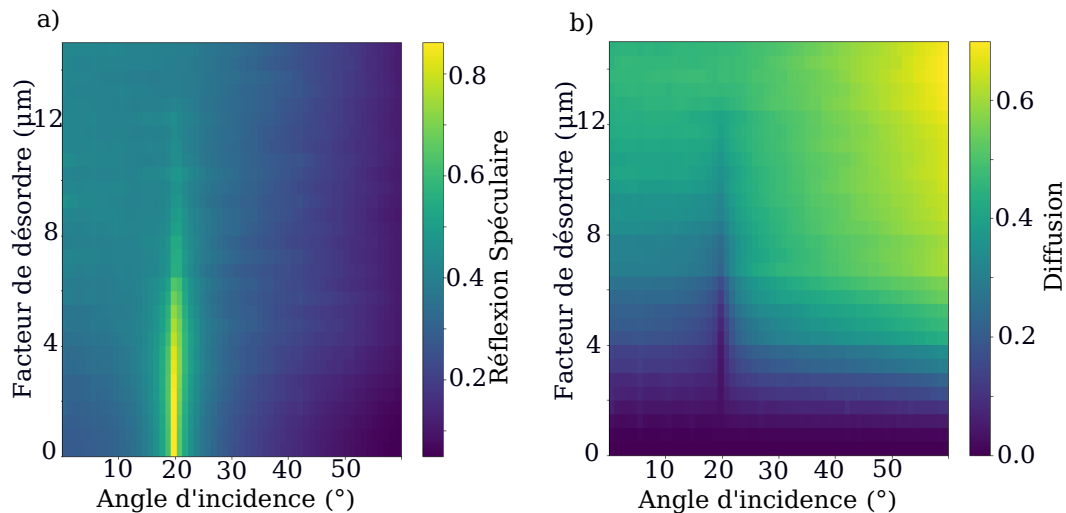


FIGURE 4.13 – Evolution de la réponse spectrale en fonction du FD et de l'angle d'incidence pour la structure optimisée, à $\lambda = 10 \mu\text{m}$. a) Réflexion spéculaire. b) Diffusion.

portement spectral. L'ingénierie de structures pour le contrôle de la répartition de l'énergie entre les différents ordres de diffraction a fait l'objet de travaux récents¹⁵ mais demeure, à ma connaissance, basé sur des structures périodiques. Comme mentionné au Chapitre 2, la directionnalité de la diffusion des structures désordonnées diélectriques est également un sujet important. Par ailleurs, le modèle du dipôle résonant et son profil de diffusion, pour des objets métalliques isolés, est connu depuis les travaux fondateurs de Mie¹⁶ Il serait donc intéressant d'étudier quantitativement la répartition de la diffusion pour les structures désordonnées métalliques, afin de savoir comment toutes ces contributions (désordre, dipôle, multi-résonateurs) s'additionnent.

Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai utilisé le modèle analytique présenté au chapitre précédent pour étudier l'effet du désordre sur le comportement optique de réseaux de structures métalliques. Des effets fondamentaux, notamment l'échange équivalent entre la diffraction et la diffusion, ont été montrés pour toutes les structures utilisées. Des caractéristiques connues pour les surfaces diélectriques désordonnées ont été retrouvées, dont notamment l'anisotropie de la diffusion des structures hyperuniformes.

Le cas d'un réseau de fentes a permis d'étudier l'effet de transmission optique extraordinaire, et d'estimer les contributions locales et périodiques à cet effet. Il a ainsi été mis en évidence que pour une fente résonante, même si la longueur d'onde du pic de transmission est contrôlée presque exclusivement par la dimension de la fente, la périodicité contribue à augmenter la transmission, ici par un facteur 2. Des analyses plus poussées de ce phénomène, faisant notamment varier tous les paramètres de ces réseaux de fente, combinant plusieurs fentes de dimensions différentes, et incluant des cartographies du champ, permettrait de consolider ces premiers résultats.

Enfin, fort de cette compréhension nouvelle, une structure métallique très diffusante a été proposée. Pour ce faire, un réseau de sillons périodique a été optimisé pour être très diffractant à une longueur d'onde donnée. La structure très diffusante est simplement un ensemble désordonné des mêmes sillons. Sa gamme de longueur d'onde de diffusion peut être contrôlée par les dimensions des sillons utilisés, et probablement

¹⁵DENG et al., «A facile grating approach towards broadband, wide-angle and high-efficiency holographic metasurfaces»; RA'DI et al., «Metagratings: Beyond the limits of graded metasurfaces for wave front control»

¹⁶MIE, «Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen»

agrandie en utilisant des sillons de plusieurs dimensions. Cette structure montre qu'il est possible d'utiliser des structures résonantes métalliques, connues pour leurs pertes non-radiatives dans l'infrarouge, pour optimiser leurs pertes radiatives.

Troisième partie

**Étude expérimentale de désordres
hyperuniformes de nano-résonateurs
Fabry-Perot horizontaux**

Chapitre

5

Mesure de la diffusion

Sommaire

5.1 Système physique étudié	61
5.1.1 Résonateur étudié	61
5.1.2 Distribution désordonnée des résonateurs	63
5.1.3 Définition d'une période équivalente	65
5.2 Mesure de la réflectivité	65
5.2.1 Montage et variation avec l'angle d'incidence	65
5.2.2 Influence de la taille des résonateurs	67
5.3 Mesure de l'absorption	67
5.3.1 Principe de mesure	68
5.3.2 Preuve de concept et premiers résultats	69
5.3.3 Sources de bruit et optimisation	70

L'étude de la diffusion de manière expérimentale est un exercice complexe, car détecter la réflexion de la lumière incidente dans toutes les directions nécessite des appareils très sensibles. Pour des surfaces structurées sur une seule dimension (1D), la diffusion reste encore relativement concentrée, car localisée dans le plan orthogonal à ces structurations. Des mesures de diffusion sur des échantillons 1D ont d'ailleurs déjà été réalisées par le doctorant me précédant dans l'équipe.^[1] Cependant, pour des surfaces structurées selon les deux directions (2D), la diffusion devient trop peu intense pour être mesurée, en particulier dans l'infrarouge et avec une source incohérente.

Néanmoins, la simulation efficace de structures 2D désordonnées est plus complexe que leur caractérisation expérimentale, puisque le temps de calcul est beaucoup plus grand que pour des structures 1D. En parallèle de tentatives infructueuses de développement d'outils de simulation 2D, j'ai donc développé un protocole expérimental permettant des mesures de diffusion pour des échantillons 2D.

Pour ce faire, l'idée principale a été de l'identification précise des canaux de pertes d'une surface structurée : réflexion (spéculaire, diffractive et diffusive), et absorption. Pour des structures apériodiques, la diffraction est absente, ne laissant que trois composantes, dont on sait que la somme doit être égale à l'énergie incidente. J'ai donc combiné des mesures en émission thermique et des mesures en réflectivité afin de caractériser complètement les structures que j'étudiais.

5.1 Système physique étudié

5.1.1 Résonateur étudié

Le type de résonateur avec lequel j'ai travaillé est l'empilement Métal-Isolant-Métal (MIM), tel que présenté sur la Fig. 5.1. Ces résonateurs sont assez simples et fonctionnent sur un principe de résonances

¹EL SHAMY et al., « Light scattering by correlated disordered assemblies of nanoantennas »

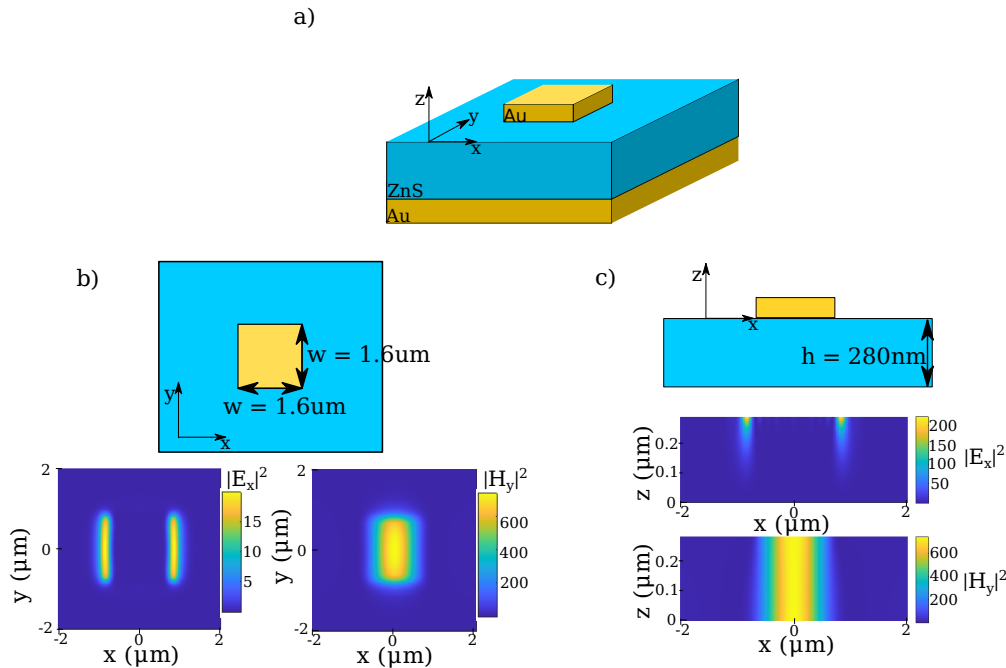


FIGURE 5.1 – Schéma du résonateur étudié et cartographies des champs E_x et H_y à $8.5 \mu\text{m}$. a) Vue 3D avec définition des matériaux (Au et ZnS) constituant le MIM. b) Vue du dessus, avec les dimensions latérales $w = 1.6 \mu\text{m}$ du MIM et cartographie à mi-hauteur du diélectrique. c) Vue en coupe, et cartographie au centre de la structure

Fabry-Perot dont la longueur d'onde de résonance dépend des dimensions géométriques de l'antenne métallique. Leur comportement est très similaire aux sillons présentés dans la partie précédente, car les phénomènes de résonance sont directement analogues. Il se trouve que là où le sillon est facile à modéliser avec une méthode monomode mais difficile à fabriquer, surtout dans une couche métallique, il est au contraire difficile de trouver une modélisation simplifiée d'un MIM, tandis que leur fabrication est bien maîtrisée.

J'ai donc d'abord choisi les dimensions de mes résonateurs en fonction de la longueur d'onde de résonance souhaitée. Pour ce faire, j'ai utilisé une méthode de simulation exacte 2D pour des MIM périodiques, en faisant l'hypothèse que la longueur d'onde de résonance de MIM périodiques serait très proche de celle de MIM identiques mais désordonnés². L'équipe disposait de couches de ZnS de 280 nm déjà déposées sur un miroir d'or, j'ai donc uniquement dimensionné les antennes composant la dernière partie du MIM. Une résonance dans le lointain infrarouge (8-12 μm) a été choisie, à la fois pour avoir des résonateurs plus larges et potentiellement plus émissifs, et pour montrer que notre principe de mesure de l'émission thermique marche également dans cette gamme de longueur d'onde. Les dimensions des antennes, $w = 1.6 \mu\text{m}$, sont identiques dans les deux directions de la surface, afin de s'affranchir de toute dépendance en polarisation, et leur épaisseur $h_{\text{Or,antenne}} = 40 \text{ nm}$ a été choisie pour être supérieure à l'épaisseur de peau du métal dans cette gamme de longueur d'onde.

La Fig. 5.1 présente le schéma des résonateurs étudiés, ainsi que la répartition des champs H_y et E_x à la longueur d'onde de résonance, dans le cas d'un champ incident tel que $H = H_y$. On y voit que le champ E_x est confiné juste en dessous des bords parallèles à l'axe y de l'antenne, tandis que le champ H_y est réparti de manière quasi uniforme sur toute l'épaisseur de diélectrique et toute la largeur de l'antenne.

Les dimensions ont également été optimisées pour avoir une extinction aussi bonne que possible à la résonance, afin de maximiser l'absorption et la diffusion. La Fig. 5.2a présente le spectre d'un réseau périodique (de période $5 \mu\text{m}$) de ces résonateurs MIM. On y voit une résonance entre 8 et 9 μm , presque

²Jean Paul HUGONIN et al., « Reticolo software for grating analysis »

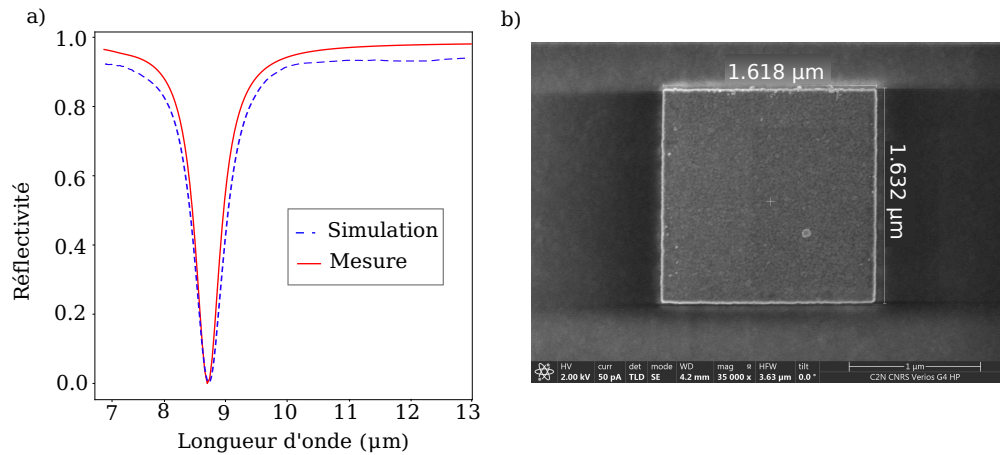


FIGURE 5.2 – a) Spectres de réflectivité calculés avec une méthode exacte et mesurés pour un réseau périodique de MIM présentés Fig. 5.1 b) Image MEB vue du dessus d'un MIM fabriqué, avec la mesure des dimensions obtenues.

totale absorbante puisque la réflectivité spéculaire mesurée est presque nulle, à une longueur d'onde plus grande que la période (pas de diffraction) et que la structure simulée est périodique (pas de diffusion). Ce couplage optimal permettant l'absorption totale est probablement dépendant de la nature périodique de la surface, ce que notre étude permettra de vérifier.

La Fig. 5.2a) présente également une mesure du spectre de réflectivité de l'échantillon périodique fabriqué, montrant un très bon accord avec les simulations numériques effectuées. Les dimensions des échantillons fabriqués sont donc conformes aux dimensions choisies, ce que confirme également l'image MEB présentée Fig. 5.2b).

5.1.2 Distribution désordonnée des résonateurs

Le type de désordre utilisé pour l'étude de ces ensembles de résonateurs est une distribution de Poisson-disque hiérarchique.³ C'est un désordre hyperuniforme, comme la perturbation d'une maille périodique 1D présentée Partie III, mais qui ne se base pas sur une structure périodique. En effet, les positions sont tirées au hasard successivement, en assurant simplement une zone d'exclusion entre les résonateurs, comme pour un Remplissage Aléatoire Séquentiel (ou Random Sequential Adsorption⁴).

Le choix de cette distribution a une double motivation. D'une part, comme dit en introduction de ce chapitre, nous voulons avoir une structure dont nous connaissons parfaitement les canaux de pertes. Notamment, nous voulons que la diffraction soit nulle, pour que les seuls canaux radiatifs soient la réflexion spéculaire (mesurable) et diffuse, afin que la mesure de l'absorption et de la réflexion spéculaire caractérise complètement l'échantillon. Or nous avons vu dans la Partie II que la perturbation d'une maille périodique diminuait la diffraction mais ne l'annulait pas complètement. Nous avons donc besoin d'une distribution aperiodique, où les positions sont choisies sans l'influence d'une maille périodique. D'autre part, le caractère hiérarchique de la distribution, détaillé ci-dessous, permet de concevoir des échantillons de densités de résonateurs différentes, ce qui sera utile ultérieurement.

La différence entre l'algorithme de RSA et celui de Poisson-disque hiérarchique est que dans le second cas, la zone d'exclusion varie au cours du temps. Ainsi, l'algorithme commence avec une très large zone d'exclusion, répartissant les points au mieux sur toute la surface, puis diminue progressivement la zone d'exclusion pour combler la place laissée entre les premières positions. L'avantage principal de cette mé-

³McCOOL et al., « Hierarchical Poisson disk sampling distributions »

⁴FEDER, « Random sequential adsorption »

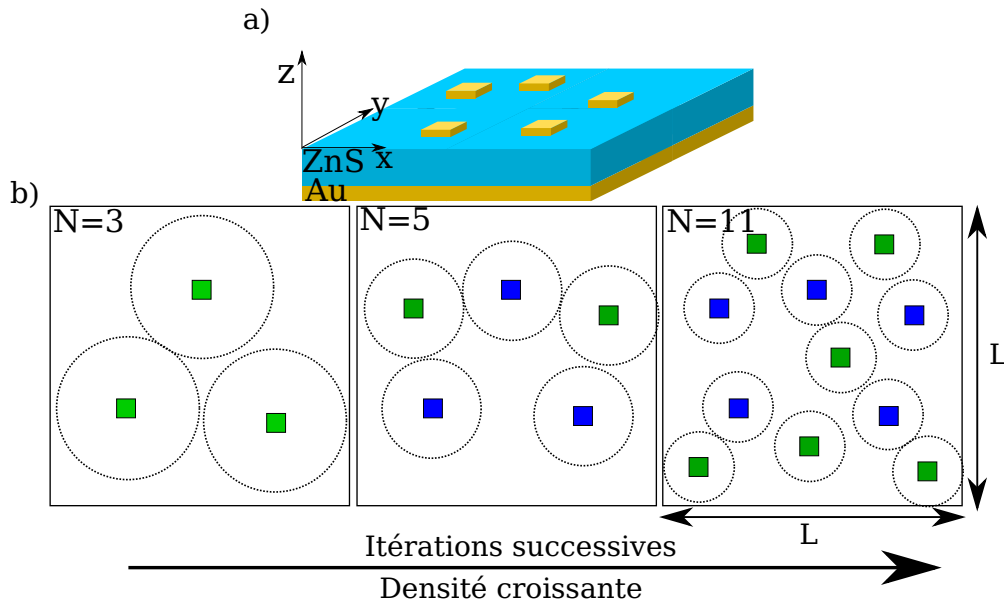


FIGURE 5.3 – a) Représentation schématique de la distribution de Poisson-disque hiérarchique de résonateurs métalliques utilisée pour les échantillons, correspondant à l'étape N=5 présentée en dessous. b) Représentation de l'évolution de la répartition des résonateurs à plusieurs étapes de l'algorithme de Poisson-disque hiérarchique. Les carrés verts représentent les résonateurs qui viennent d'être ajoutés à la distribution.

thode est le fait que la distribution ainsi produite est hyperuniforme à n'importe quelle étape. C'est ce qui lui donne son nom de hiérarchique, et qui va nous permettre de faire varier la densité de résonateurs de nos échantillons en changeant le minimum de paramètres. En effet, nous allons sélectionner l'étape de construction de la distribution comprenant le bon nombre de résonateurs pour la densité voulue. Les distributions moins denses sont donc des sous-ensembles des distributions plus denses.

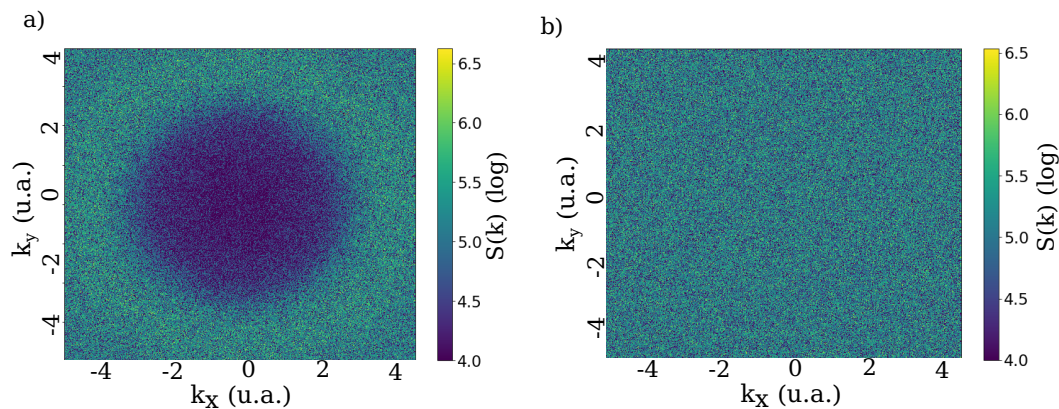


FIGURE 5.4 – Transformée de Fourier des positions des distributions utilisées. a) Pour la distribution de Poisson-disque. b) Pour une distribution aléatoire non corrélée de même densité.

La Fig. 5.3 montre un exemple de la construction de ces distributions, avec trois étapes différentes. Les cercles pointillés représentent les zones d'exclusion se réduisant entre chaque étape, et la couleur des résonateurs est là pour distinguer ceux qui faisaient déjà partie de la distribution aux étapes précédentes (bleus) de ceux qui ont été rajoutés (verts).

La Fig. 5.4 met en évidence le caractère hyperuniforme des distributions obtenues par la méthode Poisson-disque hiérarchique, en montrant la transformée de Fourier de la structure (sans le terme de fré-

quence nulle), et celle d'une distribution complètement aléatoire. Le cercle sombre centré autour de l'origine, visible Fig. 5.4a) et non Fig. 5.4b), est la marque de cette hyperuniformité.

Les différents échantillons conçus et fabriqués sont donc des réseaux en réflexion de MIM (Or/ZnS/Or, $h_{\text{ZnS}} = 280 \text{ nm}$, $h_{\text{Or,antenne}} = 40 \text{ nm}$), de largeurs variables ($w \in [1.6, 2.6] \mu\text{m}$), périodiques ou désordonnés hyperuniformes, et de densités de résonateurs variables ($D \sim 0.01 \mu\text{m}^{-2}$).

5.1.3 Définition d'une période équivalente

La notion de densité de résonateurs présente un problème important, qui est qu'il est peu aisé de se représenter des distributions en termes de densité pour des personnes habituées à travailler sur des systèmes périodiques. Il a donc paru assez vite nécessaire de trouver une grandeur permettant de faire une analogie avec les systèmes périodiques.

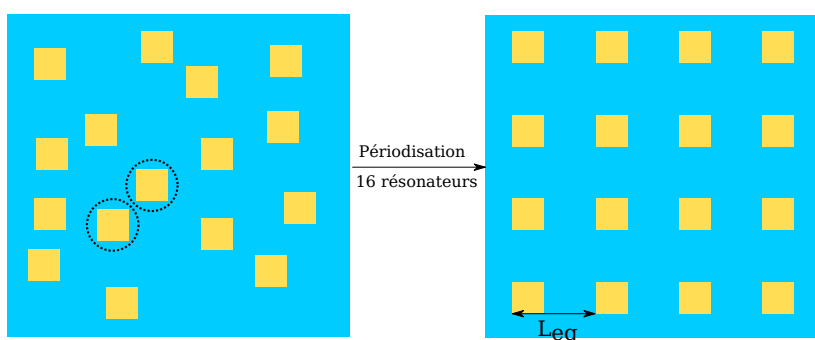


FIGURE 5.5 – Exemple de la notion de période équivalente avec une distribution de 16 résonateurs. Les cercles pointillés à gauche montrent la zone d'exclusion finale de l'algorithme de Poisson-disque hiérarchique.

Pour ce faire, j'utiliserai la notion de période équivalente, notée $L_{\text{eq}} = 1/\sqrt{D}$. Celle-ci correspond, pour une distribution de densité D , à la période qu'aurait une distribution périodique de même densité. La Fig. 5.5 donne un exemple concret de cette notion. Elle souligne également la différence avec la distance d'exclusion utilisée par l'algorithme de Poisson-disque hiérarchique. En effet, cette dernière est toujours plus petite que L_{eq} , puisque la distribution périodique est le cas optimal, correspondant à l'égalité entre L_{eq} et la distance d'exclusion pour la densité D .

J'utiliserai par la suite, de manière abusive, la notion de L_{eq} comme si c'était une densité, la densité correspondante étant $D = 1/L_{\text{eq}}^2$. Les densités utilisées varient donc entre $L_{\text{eq}} = 5 \mu\text{m}$ et $L_{\text{eq}} = 30 \mu\text{m}$, balayant un facteur 6 sur les périodes équivalentes, donc un facteur 36 sur les densités des distributions.

5.2 Mesure de la réflectivité

5.2.1 Montage et variation avec l'angle d'incidence

Il existe de très nombreuses méthodes pour mesurer la réflectivité d'une structure. Au cours de ma thèse, j'ai pu me servir d'un spectromètre à transformée de Fourier infrarouge (FTIR), dont le schéma de principe est présenté Fig. 5.6. Celui-ci envoie un interférogramme connu sur la surface à étudier, et récupère le signal déformé par la réflectivité de l'échantillon. La différence entre la transformée de Fourier de ce signal et l'interférogramme de référence donne le spectre de réflexion de l'échantillon. Dans mon cas, cet interféromètre disposait également d'un module avec une paire supplémentaire de miroirs mobiles autour de l'échantillon, permettant de mesurer la réflectivité en fonction de l'angle d'incidence.

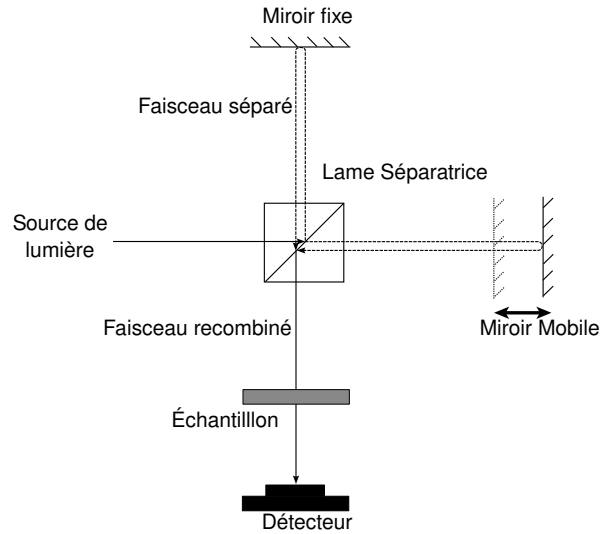


FIGURE 5.6 – Schéma de principe d'un interféromètre à transformée de Fourier. Adapté de la version de Petergans sur Wikimedia Commons.

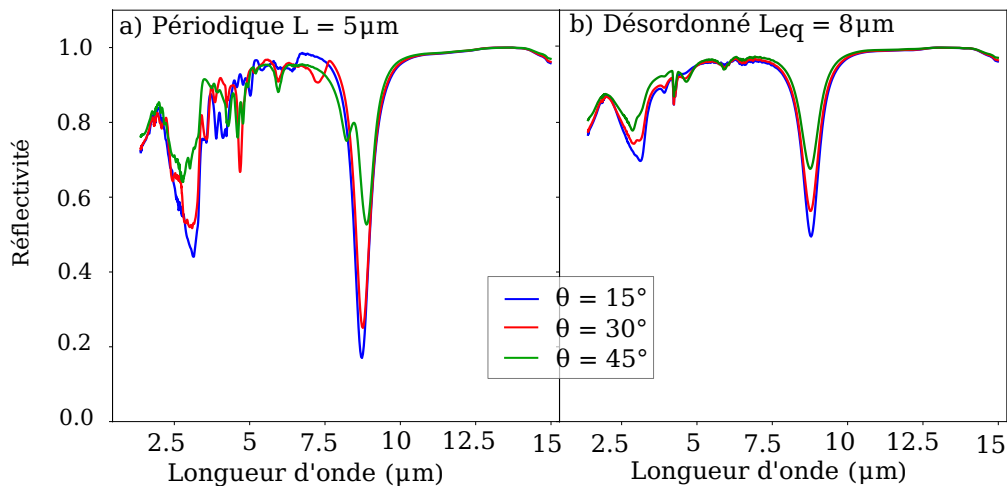


FIGURE 5.7 – a) Spectres de réflectivité pour un échantillon périodique de période $L = 5 \mu\text{m}$, pour plusieurs valeurs d'angle d'incidence. b) Spectres de réflectivité pour un échantillon désordonné de période équivalente $L_{\text{eq}} = 8 \mu\text{m}$, pour plusieurs valeurs d'angle d'incidence. Les mesures ont été effectuées en configuration transverse magnétique.

La Fig. 5.7a) présente les spectres de réflexion spéculaire d'une structure périodique mesurés pour différents angles d'incidence. On constate d'abord que la variation de l'angle d'incidence n'influence pas la longueur d'onde de résonance, et diminue seulement le couplage avec la surface. De plus, au-delà d'un certain angle, ici entre 30° et 45° , la résonance est perturbée par l'apparition d'ordres de diffraction. Cela s'ajoute à la perte de couplage due à l'angle d'incidence, et induit des maxima locaux aux longueurs d'onde d'apparition de ces ordres diffractés, pouvant décaler la longueur d'onde apparente du minimum de réflectivité.

La Fig. 5.7b) montre les spectres de réflexion spéculaire mesurés pour différents angles d'incidence, cette fois-ci sur une structure désordonnée. On note ici que le seul effet de l'angle est de diminuer l'extinction, en diminuant le couplage entre la lumière incidente et les résonateurs. Cela est déjà un intérêt d'une structure désordonnée sur une périodique : l'angle d'incidence n'a pas d'influence sur la forme des résonances. Pour pouvoir comparer des situations physiques équivalentes, toutes les mesures de réflectivité se

feront par la suite au même angle d'incidence, à savoir le plus proche de la normale permis par le montage, c'est-à-dire 13° .

5.2.2 Influence de la taille des résonateurs

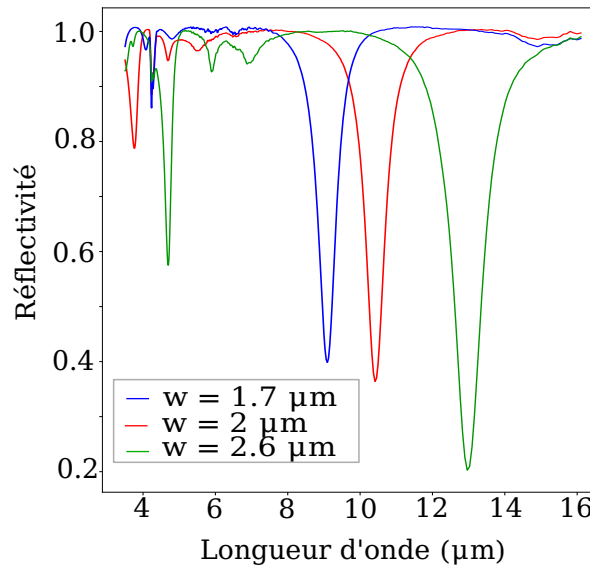


FIGURE 5.8 – Spectres de réflectivité pour des résonateurs de largeur $w = 1.7 \mu\text{m}$, $w = 2 \mu\text{m}$ et $w = 2.6 \mu\text{m}$ ($n_{\text{ZnS}} = 280 \text{ nm}$ et $L_{\text{eq}} = 8 \mu\text{m}$)

La Fig. 5.8 présente le spectre de réflectivité de résonateurs MIM désordonnés de différentes dimensions latérales w . La longueur d'onde de résonance observée varie avec la dimension du résonateur, comme attendu de la part d'un résonateur Fabry-Perot. Plus précisément, le résonateur de taille $w = 1.7 \mu\text{m}$ résonne à $\lambda = 9.1 \mu\text{m}$, celui de $w = 2 \mu\text{m}$ à $\lambda = 10.4 \mu\text{m}$ et celui de $w = 2.6 \mu\text{m}$ à $\lambda = 13 \mu\text{m}$. Cela permet de confirmer un ordre de grandeur de la longueur d'onde de résonance d'un MIM dont on connaît la dimension w , à savoir $\lambda \sim 5w \sim 2 * n_{\text{ZnS}} w$. L'existence d'un tel coefficient de proportionnalité est quelque chose d'assez générale, mais sa valeur dépend bien sûr des indices des matériaux matériaux, mais aussi de l'épaisseur du milieu diélectrique. En effet, il va dépendre de l'indice effectif du résonateur, qui dépend de l'indice réel du milieu diélectrique et du niveau de confinement du champ.

On constate également que la qualité du couplage n'est pas la même pour les différents résonateurs, puisque le minimum de réflectivité n'est pas le même à chaque fois. Le résonateur le plus grand est ainsi significativement mieux couplé, *i.e.* sa résonance est plus intense, que les résonateurs plus petits. Cela pourrait être compensé par un ajustement de l'épaisseur de diélectrique, qui est ici la même pour les trois. Cependant, nous verrons plus loin que ce n'est pas le seul phénomène mis en jeu. Par ailleurs, les distributions des résonateurs à la surface des échantillons sont identiques pour les différentes densités. Cela permet de s'assurer qu'il n'y a pas de variations de couplage due à des positions différentes, qui pourraient créer des effets locaux dans certaines surfaces et non les autres.

5.3 Mesure de l'absorption

Au premier abord, la mesure de l'absorption dans une structure peut paraître encore plus complexe que la mesure de la diffusion. Pour la mesurer directement, en effet, il faudrait connaître les capacités thermiques de tous les matériaux, ainsi que l'échauffement en tout point de la structure. Et même si c'est ainsi

que l'absorptivité d'une structure peut être calculée numériquement, cela n'est pas possible expérimentalement. La meilleure alliée dans ce contexte est la loi de Kirchhoff sur l'équivalence entre émissivité et absorptivité. En effet, cette loi, valable pour toutes les surfaces, aussi complexes soient elles, nous dit que l'absorptivité $\alpha(\lambda, \theta)$ est égale à l'émissivité $\epsilon(\lambda, \theta)$. Ainsi, il est possible de connaître le spectre d'absorption d'une structure par la mesure de son spectre d'émission.

Malgré tout, la mesure de l'émissivité thermique d'une structure soulève plusieurs difficultés. D'abord, les flux lumineux émis peuvent être assez faibles dans l'infrarouge, et le sont d'autant plus pour des grandes longueurs d'onde. Ensuite, chauffer l'échantillon pour compenser ce faible flux requiert non seulement un contrôle de température, mais aussi un échantillon qui puisse supporter les températures souhaitées. Les matériaux utilisés (Or, ZnS) sont assez résistants pour être chauffés à des températures de l'ordre de 100 ~ 200°C, car ils ne s'oxydent pas. Enfin, l'émissivité d'un objet se définit comme le rapport entre son émission thermique et celle d'un corps noir. Il faut donc pouvoir étalonner la mesure à l'aide d'un corps noir, ou au moins d'un objet dont l'émissivité est connue.

J'ai donc utilisé et adapté à mes besoins un montage d'émission thermique développé par une autre doctorant de l'équipe⁵ et l'ai exploité pour la mesure d'émissivité d'échantillons 2D désordonnés, dans le lointain infrarouge.

5.3.1 Principe de mesure

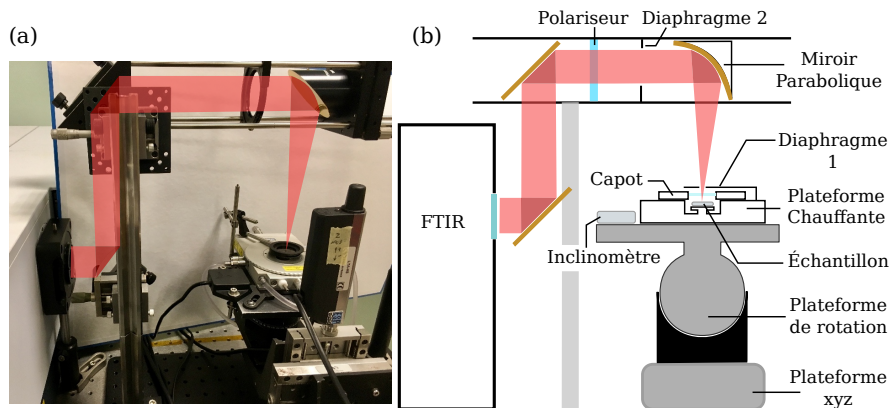


FIGURE 5.9 – (a) Photo du montage utilisé pour mesurer l'émission thermique. (b) Schéma de principe du montage avec toutes les différentes pièces. Pour mes mesures, la plateforme de rotation, l'inclinomètre et le polariseur n'ont pas été utilisés.

Le principe de mesure, présenté Fig. 5.9, est le suivant : l'échantillon est placé sur une plaque chauffante dont on contrôle la température, puis le signal d'émission thermique de l'échantillon chauffé S_{ech} est collectée autour de l'incidence normale par un miroir parabolique, qui redirige ce signal dans un interféromètre à transformée de Fourier. Ensuite, le bruit de fond thermique S_{bruit} est quantifié en remplaçant l'échantillon par un miroir (substrat d'or) sur la plaque chauffante, afin d'obtenir le vrai spectre d'émission thermique. Enfin, le signal d'émission thermique d'un matériau de référence S_{ref} est mesuré de la même manière, afin de calculer le spectre d'émissivité de l'échantillon. L'émissivité $\epsilon(\lambda, \theta = 0^\circ)$ s'écrit donc :

$$\epsilon = \frac{S_{ech} - S_{bruit}}{S_{ref} - S_{bruit}}. \quad (5.1)$$

L'émetteur thermique utilisé en référence est un dépôt de particules de suies, nommé Black Carbon

⁵VERLHAC, « Étude multi physique de nanoobjets et métamatériaux »

5.3 Mesure de l'absorption

pour ses propriétés d'absorption très large spectre [6]. Son émissivité est autour de 0.85 dans les gammes de longueur d'onde étudiées ici.

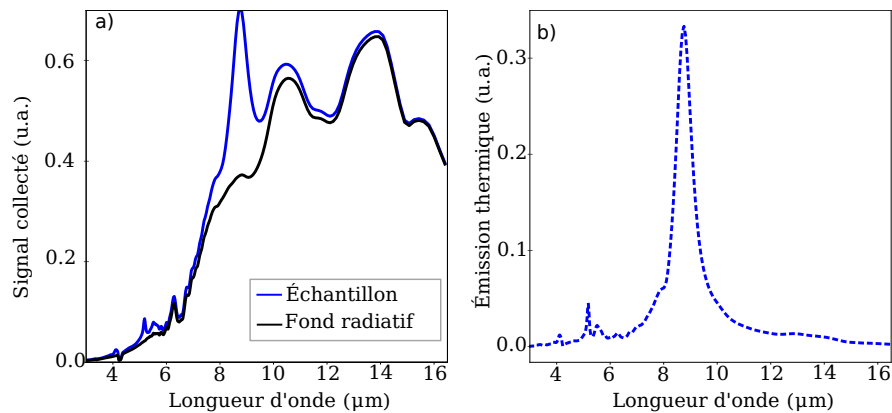


FIGURE 5.10 – Mesure d'émission thermique pour des résonateurs de largeur $w = 1.6 \mu\text{m}$ et de densité $L_{\text{eq}} = 6 \mu\text{m}$, à 250°C . a) Signal collecté lors de la mesure de l'émission thermique. b) Émission thermique mesurée à partir de la différence entre le signal de l'échantillon et le signal du bruit de fond.

Le bruit de fond peut être plus élevé que le signal que nous voulons détecter, comme le montre la Fig. 5.10a). Cela est dû à la fois à l'émission à température ambiante, notamment dans l'interféromètre, et à l'émission de la plaque chauffante et du diaphragme placé à proximité. Ce n'est néanmoins pas un problème puisque ce bruit de fond est stable à l'échelle de la mesure et peut donc être soustrait une fois étalonné. La Fig. 5.10b) montre qu'en chauffant à 250°C , on arrive à avoir un signal d'émission thermique $S_{\text{ech}} - S_{\text{bruit}}$ avec un bon rapport signal/bruit.

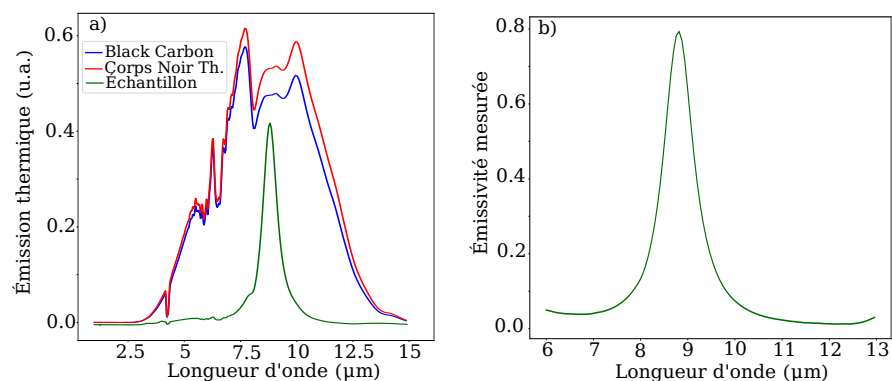


FIGURE 5.11 – a) Signaux d'émission thermique mesurés pour un échantillon $L_{\text{eq}} = 6 \mu\text{m}$, $w = 1.6 \mu\text{m}$, ainsi que pour le matériau utilisé comme référence. Le spectre du corps noir théorique, déduit à partir de celui du Black Carbon, est également représenté. b) Spectre d'émissivité déduit à partir des spectres mesurés en a).

La Fig. 5.11a) présente l'émission thermique mesurée pour le Black Carbon $S_{\text{ref}} - S_{\text{bruit}}$ et l'émission simulée d'un corps noir parfait, et les compare au signal d'un échantillon de densité $L_{\text{eq}} = 6 \mu\text{m}$. Le spectre d'émissivité $\epsilon(\lambda)$ calculé à partir de ces mesures est présenté Fig. 5.11b). L'énergie diffusée peut alors être calculée en soustrayant l'absorptivité à l'extinction totale.

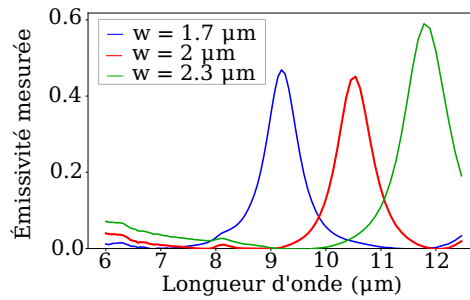


FIGURE 5.12 – Spectres d'émissivité pour des ensembles désordonnés de résonateurs de densité $L_{eq} = 8 \mu\text{m}$, de résonateurs de largeur $w = 1.7 \mu\text{m}$, $w = 2 \mu\text{m}$ et $w = 2.3 \mu\text{m}$.

5.3.2 Preuve de concept et premiers résultats

La Fig. 5.12 présente les spectres d'émissivité thermique mesurés pour différentes dimensions latérales des résonateurs. On y voit que la longueur d'onde de résonance augmente avec la dimension du résonateur, en accord avec ce qui avait été observé Fig. 5.8. Toutefois, là où les résonances en extinction présentaient une augmentation significative de l'intensité de la résonance avec l'augmentation de la taille du résonateur, ce phénomène est moins visible dans le cas de l'émissivité. Il est probable que cela soit principalement dû aux une plus grandes incertitudes entachant la mesure en émission thermique.

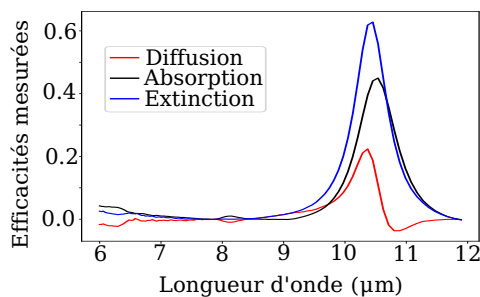


FIGURE 5.13 – Spectres de réflectivité spéculaire, diffuse, et d'absorption pour un ensemble de résonateurs de largeur $w = 2 \mu\text{m}$ et densité $L_{eq} = 8 \mu\text{m}$.

La Fig. 5.13 présente le spectre de diffusion que l'on peut obtenir à partir de cette méthode expérimentale, ainsi que les spectres de réflexion et d'absorption utilisés pour le calculer. On peut y voir que l'absorption représente une part de l'extinction environ deux fois plus grande que la diffusion. On y observe également que les maxima d'absorption et d'extinction ne sont pas mesurés à la même longueur d'onde. Cela peut être un effet de l'échantillonnage spectral de la mesure, mais celui-ci est assez précis, et nous montrerons plus loin que ce décalage entre extinction et absorption n'est pas une exception. Par ailleurs, on peut voir une diffusion calculée négative à un endroit du spectre. Ceci doit être dû à une erreur dans la mesure, probablement une surestimation de l'absorption puisque c'est celle dont la mesure est la moins fiable.

Nous avons donc fourni une preuve de principe de la mesure des spectres d'émissivité et de diffusion d'échantillons désordonnés aperiodiques. La précision spectrale de la mesure est assez bonne, permettant notamment de voir l'évolution de la longueur d'onde de résonance en fonction de la taille des résonateurs. Cependant, les incertitudes sur les mesures sont visiblement assez élevées, et requièrent certaines corrections.

⁶MIZUNO et al., «A black body absorber from vertically aligned single-walled carbon nanotubes».

5.3.3 Sources de bruit et optimisation

La première correction facile à effectuer est une normalisation du signal reçu, basée sur la connaissance a priori des longueurs d'ondes où notre échantillon est susceptible d'émettre de la lumière. En effet, comme on peut voir Fig. 5.10b) et Fig. 5.2) au-delà de la résonance, donc après $10\ \mu\text{m}$ pour l'échantillon de référence, les échantillons utilisés n'émettent plus de signal thermique détectable. Nous savons donc que tout le signal collecté doit correspondre à du bruit de fond, quantifié par la mesure avec un miroir d'or et censé être constant entre les différentes mesures, ce qui nous donne une échelle de normalisation pour le spectre.

Cette étape est importante car beaucoup de paramètres peuvent modifier la mesure par un simple facteur multiplicatif. C'est notamment le cas de la position du diaphragme, dont l'optimisation se fait encore à la main, ou de l'ouverture du diaphragme, qu'on garde théoriquement constante mais qui peut être légèrement modifiée par des vibrations. De même, l'écart entre la température de consigne, appliquée à la plaque chauffante, et la température réelle des résonateurs en surface de l'échantillon, de l'ordre de quelques degrés, peut changer l'émissivité de plusieurs pourcents. Cet écart en température est toutefois normalement assez faible pour négliger la modification de la dépendance spectrale du flux du corps noir théorique.

L'étude de résonateurs de différentes tailles complexifie cette étape de normalisation, puisqu'il faut trouver une gamme de fréquence qui permette de normaliser les spectres qui soit valide pour toutes les résonances considérées. Cela a tendance à repousser les plages de normalisation aux grandes longueurs d'onde (puisque'il y a des résonances d'ordre supérieur aux petites longueurs d'onde), où les détecteurs sont moins précis. Par ailleurs, le détecteur utilisé a une précision qui se dégrade très rapidement au delà de $13.5\ \mu\text{m}$. Cela peut permettre de compenser des décalages en sachant que cette zone doit être nulle, mais entraîne surtout une limite sur la longueur d'onde de résonance des résonateurs étudiés (donc leur taille).

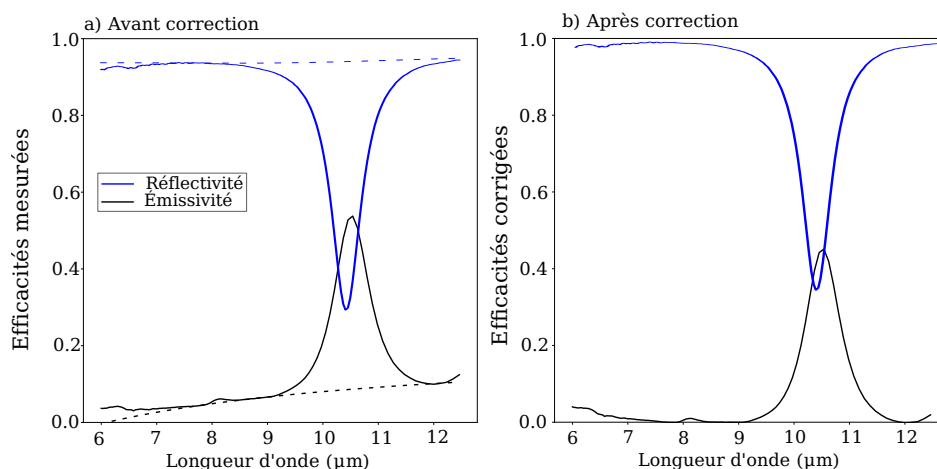


FIGURE 5.14 – Spectres de réflexion et d'absorption d'un ensemble désordonné de densité $L_{\text{eq}} = 8\ \mu\text{m}$ et de largeur de résonateur $w = 2\ \mu\text{m}$. a) Spectres bruts obtenus sans correction de l'offset. b) Spectres corrigés.

Une fois cette normalisation effectuée, il reste plusieurs corrections envisageables pour réduire les incertitudes de mesure.

La Fig. 5.14) donne un exemple de la première correction applicable à tous les spectres, à savoir la compensation de l'offset de la mesure. Ainsi, la Fig. 5.14a) présente les spectres d'un échantillon désordonné de $L_{\text{eq}} = 8\ \mu\text{m}$ non corrigés, et la ligne d'offset telle que calculée avec la méthode ALS (*Asymmetric Least Squares*⁷). La Fig. 5.14b) présente alors les mêmes spectres mais avec cet offset corrigé, pour lesquels en dehors de la résonance, la réflectivité est 1 et l'émissivité 0. Cela compense ainsi une partie des défauts de

⁷EILERS et al., « Baseline correction with asymmetric least squares smoothing »

réflectivité de la surface, ainsi que des sources d'émission autres que les résonateurs. Tous les spectres présentés ultérieurement auront cette correction déjà effectuée.

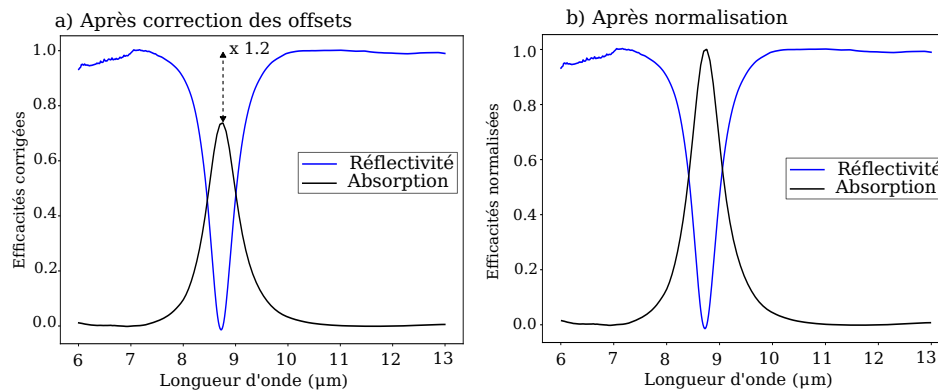


FIGURE 5.15 – Spectres de réflexion et d'absorption d'un ensemble périodique de période $L = 5 \mu\text{m}$ et de largeur de résonateur $w = 2 \mu\text{m}$. a) Spectres bruts obtenus après correction de l'offset. b) Spectres obtenus après normalisation.

La Fig. 5.15a) présente les spectres de réflexion et d'absorption mesurés pour un échantillon périodique. On y vérifie que la réflexion à la résonance est presque nulle, alors que le pic d'absorption atteint tout juste 80%. Comme la structure est périodique, et de période sub-longueur d'onde, l'absorption doit être le complémentaire de la réflexion. On peut donc voir que notre mesure sous-estime l'absorption, mais la comparaison à la valeur de réflexion mesurée permet de trouver un facteur correctif pour la mesure en émission. Ce facteur pourrait être appliqué à toutes les mesures pour compenser la sous-estimation de l'absorption.

En pratique, cette correction n'a pas été utilisée, parce qu'une étape de normalisation est déjà utilisée sur les mesures (le signal hors résonance est le même pour tous les échantillons). Par ailleurs, le détecteur pour la mesure en émission et en réflexion étant le même, un manque de sensibilité se répercuterait sur chaque spectre. Étant donné que la ligne optique n'est pas la même entre les deux types de mesure, il est difficile de quantifier avec exactitude l'influence de la sensibilité du détecteur. Enfin, même si on suppose que ces erreurs sont négligeables, ou qu'on trouve un moyen de les compenser, il reste le problème que chaque échantillon est différent, et donc qu'il sera chauffé différemment (notamment si leur planéité, donc la qualité du contact avec la plaque chauffante, est différente). Pour être certain que les références périodiques sont utilisables, il faudrait qu'un réseau périodique de référence soit placé sur chaque wafer comprenant des échantillons désordonnés.

Enfin, la Fig. 5.16 présente un exemple concret de l'ordre de grandeur des incertitudes de mesure en émission. Sur la Fig. 5.16a) sont représentés deux spectres d'émission mesurés pour le même objet (le dépôt de Black Carbon), dans des conditions théoriquement identiques, mais où les mesures sont différentes d'environ 10%. La Fig. 5.16b) présente les deux signaux de référence mesurés sur le miroir métallique, afin de vérifier si une variation du bruit de fond radiatif explique la différence observée en Fig. 5.16a). Comme les spectres de référence sont identiques, d'autres causes sont à l'origine de cette différence, principalement la qualité de l'alignement et l'hétérogénéité du dépôt de Black Carbon, mais aussi l'environnement (par exemple la température extérieure, les deux mesures ayant été faites à deux moments différents de la journée). Il y a donc, en l'état actuel du protocole de mesure, une incertitude d'au moins 10% sur les mesures d'émission effectuées.

Les sources d'erreurs sont assez nombreuses, mais voici une liste des principales identifiées, avec une proposition d'amélioration ou compensation le cas échéant :

- l'angle de mesure du rayonnement est différent entre la mesure en réflectivité et la mesure en émis-

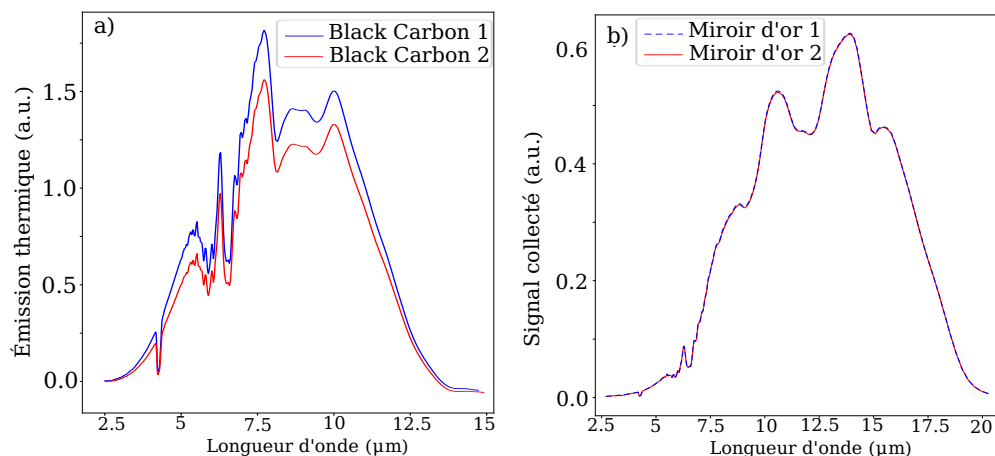


FIGURE 5.16 – Comparaison de mesures faites à deux moments différents sur les mêmes échantillons et théoriquement dans les mêmes conditions. En pratique, alignement/positionnement différents, une mesure le matin et l'autre l'après-midi (différence de température dans la pièce, du détecteur). a) Deux spectres d'émission thermique mesurés pour le corps noir. b) Deux spectres de référence avec le miroir métallique.

sivité. En effet, les mesures en réflectivité sont faites avec un angle d'incidence de 13° , contre une mesure en incidence normale en émissivité. Une compensation possible est de mesurer la réflectivité pour plusieurs angles, afin d'extrapoler le comportement à la normale,

- la température de mesure est différente entre la mesure en réflectivité et la mesure en émissivité. En effet, la mesure en réflectivité est faite à température ambiante, contre des mesures à 250°C pour l'émissivité. Cela peut également dégrader l'échantillon, limitant la possibilité de cumuler les mesures pour diminuer les incertitudes. Il serait possible de modifier le montage de mesure en réflectivité pour pouvoir chauffer l'échantillon et quantifier cette erreur,
- la température à laquelle l'échantillon est chauffé pour les mesures d'émission n'est pas parfaitement contrôlée. En effet, la température de consigne (250°C ici) est celle de la plaque chauffante, et non de la surface de l'échantillon. Des différences de contact entre les échantillons peuvent donc causer des différences de température de plusieurs degrés. Pour corriger cela, il faudrait une mesure directe de la température à la surface de l'échantillon,
- les miroirs d'or pris comme référence ne sont ni parfaits ni nécessairement identiques. Des différences de réflectivité peuvent induire des erreurs dans les spectres déduits des mesures,
- les échantillons, aussi bien les réseaux de résonateurs que les références en Black Carbon et en Or, ne sont pas homogènes. Des différences de positionnement des échantillons par rapport à l'axe optique peuvent donc entraîner des résultats différents. Pour compenser cela, il est possible d'effectuer plusieurs mesures sur le même échantillon.

En résumé, les erreurs estimées sur les mesures, notamment celles d'émission thermique, sont de l'ordre de 10%. Ceci peut paraître élevé, mais on verra par la suite que nous pouvons tout de même déduire des informations intéressantes de ces mesures.

Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai présenté les échantillons conçus et fabriqués, ainsi que le protocole de mesure utilisé pour caractériser complètement leur réponse optique. La combinaison de mesures en émission

thermique et en réflectivité, avec l'utilisation de distributions apériodiques désordonnées permet ainsi de connaître totalement les canaux de pertes des échantillons. Les spectres de réflectivité et d'absorption de ces échantillons ont ainsi été obtenus, et j'ai montré qu'il était théoriquement possible de calculer la diffusion, même si pour le moment je manque de confiance dans la précision de ces résultats pour l'étudier quantitativement.

De plus, ce protocole de mesure étant nouveau, j'ai estimé ses incertitudes (au moins de l'ordre de 10%) et identifié de nombreuses sources d'erreur potentielles. Parmi celles-ci, les plus importantes sont liées à la précision de l'alignement optique du montage, qui pourrait être améliorée dans l'avenir en fixant la position de l'échantillon ou en asservissant la position de tous les éléments encore déplacés à la main, par exemple. J'ai également proposé plusieurs méthodes de correction numériques, afin de diminuer ces incertitudes. Leur implémentation, ainsi que l'amélioration du montage utilisé, n'a pas pu être effectuée pendant la durée de ma thèse, et pourra faire l'objet de travaux futurs.

Malgré ces imprécisions, j'ai pu poser la base de fonctionnement d'une méthode de caractérisation complète des canaux de pertes d'un échantillon, ce qui sera utilisé dans la suite pour faire des mesures qui étaient jusqu'alors beaucoup plus complexes, à savoir la mesure des sections efficaces d'absorption et d'extinction de résonateurs uniques.

Chapitre

6

Mesure des sections efficaces

Sommaire

6.1 Mesure des sections efficaces	75
6.1.1 Preuve de concept	75
6.1.2 Évolution non-linéaire de la réponse optique	77
6.2 Comparaison à des simulations numériques 2D	80
6.3 Influence des paramètres géométriques	82
6.3.1 Résonateurs carrés	82
6.3.2 Sillons métalliques 1D	84
6.3.3 Résonateurs rectangulaires	85

L'interaction entre la lumière et un ensemble d'objets indépendants peut être caractérisée par la section efficace de ces objets. Cela est couramment utilisé dans les gaz, ensembles d'atomes ou de molécules, et peut l'être également pour des surfaces structurées. En effet, la section efficace est un outil pratique pour estimer l'influence de la structure sur la lumière en fonction de la densité moyenne de résonateurs, sans avoir besoin de connaître leurs positions exactes. C'est aussi la grandeur la plus pertinente quand les effets structurels, *i.e.* dus aux positions relatives des résonateurs, notamment la périodicité, sont négligeables.

Cependant, la mesure des sections efficaces d'interaction entre les résonateurs et la lumière se fait souvent sur des résonateurs uniques, nécessitant des appareils de détection très précis et sensibles pour détecter des variations très faibles de signal.^[1]

J'ai donc décidé d'exploiter mon protocole de mesure de l'extinction et de l'absorption des ensembles désordonnés de résonateurs pour accéder à la section efficace de ceux-ci. Pour ce faire, j'ai conçu et fait fabriquer des échantillons de densités différentes afin d'étudier l'évolution de leur réponse en fonction de la densité de résonateurs.

6.1 Mesure des sections efficaces

6.1.1 Preuve de concept

Les échantillons étudiés sont des distributions de Poisson-disque hiérarchique de résonateurs MIM présentés Fig. 5.1. Leur densité varie entre $L_{eq} = 30 \mu\text{m}$ et $L_{eq} = 5 \mu\text{m}$, faisant que les signaux les plus élevés et les plus faibles ont un facteur 36 entre leurs intensités, très grand devant l'erreur de 10% entachant chaque mesure. En effet, concrètement, nous nous attendons à une variation linéaire de la réponse optique en fonction de la densité de résonateurs. On peut d'ailleurs définir, a priori, la section efficace d'absorption équivalente de l'échantillon (resp. d'extinction ou de diffusion) comme le rapport entre l'absorption et la densité de l'échantillon, A/D (resp. $\Delta R/D$ ou S/D).

¹C. LI et al., « Near-field and far-field thermal emission of an individual patch nanoantenna »; PAVLOVETC et al., « Quantitative infrared photothermal microscopy ».

Si la variation de l'intensité des signaux mesurés varie bien linéairement avec la densité des échantillons, *i.e.*, A/D constant pour les différentes densités D , on pourra alors définir la section efficace des résonateurs uniques, comme le coefficient de proportionnalité entre l'absorption (resp. l'extinction ou la diffusion) et la densité. Nous verrons juste après que cette linéarité n'est pas toujours observée, et donc que le lien entre la section efficace équivalente de l'échantillon et la section efficace des résonateurs uniques peut être remis en question dans certains cas.

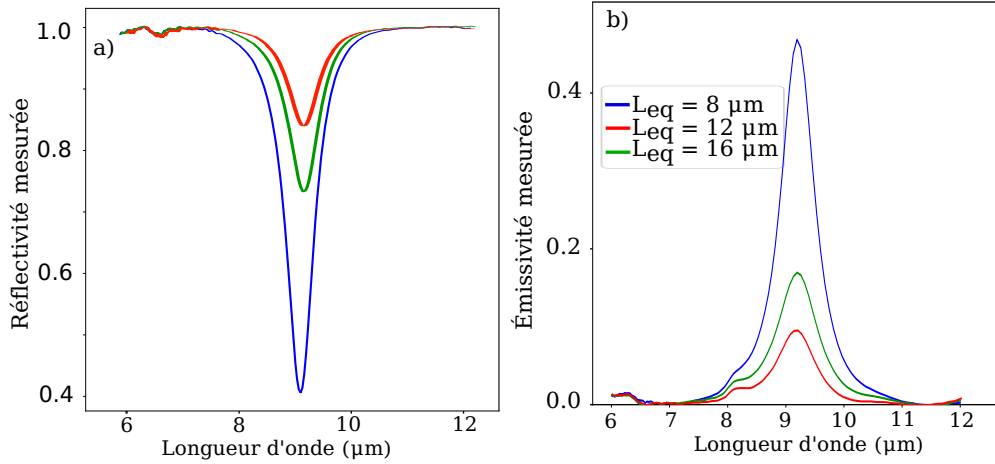


FIGURE 6.1 – a) Spectres de réflexion spéculaire mesurés pour différentes densités de résonateurs. b) Spectres d'émission thermique mesurés à 250°C pour différentes densités de résonateurs.

J'ai d'abord mesuré le spectre de réflexion spéculaire (incidence 13°) d'échantillons de densités D différentes et déduit l'extinction maximale ΔR à la résonance. Pour ce faire, une correction des offsets est d'abord appliquée, pour que le maximum de réflectivité soit à 1, comme présenté Fig. 5.14. Le minimum de réflectivité R_{min} sur la gamme de résonance des MIM est ensuite trouvé, afin de définir $\Delta R = 1 - R_{\text{min}}$. Trois spectres de réflexion sont présentés sur la Fig. 6.1a), montrant la variation de l'extinction avec la densité de résonateurs.

Avec le protocole de mesure d'émissivité présenté au chapitre précédent, les spectres d'émissivité de chaque échantillon sont également mesurés. Comme précisé avec la Fig. 5.14, une correction d'offset permet de ramener l'émissivité à zéro en dehors de la résonance des MIM. La loi de Kirchhoff établit que cette émissivité est égale à l'absorption de la structure. L'absorption maximale est alors mesurée pour calculer la section efficace. Trois spectres d'émission sont présentés sur la Fig. 6.1b).

Pour chaque mesure d'extinction (resp. d'absorption) ainsi obtenue, la section efficace équivalente de l'échantillon se calcule par $\sigma_{\text{ext,ech}}(D) = \Delta R(D)/D$ (resp. $\sigma_{\text{abs,ech}}(D) = A(D)/D$). En théorie, il est possible de définir la section efficace d'extinction des résonateurs si $\exists \sigma, \forall D, \sigma_{\text{ext,ech}}(D) = \sigma$. En effet, on prend alors $\sigma_{\text{ext}} = \sigma$.

Cependant, parce que les incertitudes de mesure empêchent une égalité parfaite entre les différentes mesures, le calcul de section efficace des résonateurs, aussi bien pour l'extinction σ_{ext} que pour l'absorption σ_{abs} , se fait avec une régression linéaire. Ces régressions sont définies avec un seul paramètre libre chacune, σ_{ext} ou σ_{abs} , *i.e.* $\Delta R = \sigma_{\text{ext}}D$ et $A = \sigma_{\text{abs}}D$, car la structure sans résonateur ($D = 0$) se comporte comme un miroir presque parfait dont on attend une extinction et une absorption nulle. Pour la suite, le terme de "section efficace" désignera cette grandeur, correspondant à la section efficace des résonateurs individuels, et j'utiliserai explicitement "section efficace équivalente" pour parler de celle correspondant à un échantillon précis.

La Fig. 6.2a,b) présente ainsi les résultats de ces régressions linéaires, avec les points expérimentaux présentés en bleu et les droites de régression en rouge. Ces mesures expérimentales donnent $\sigma_{\text{abs}} = 23.1 \mu\text{m}^2$,

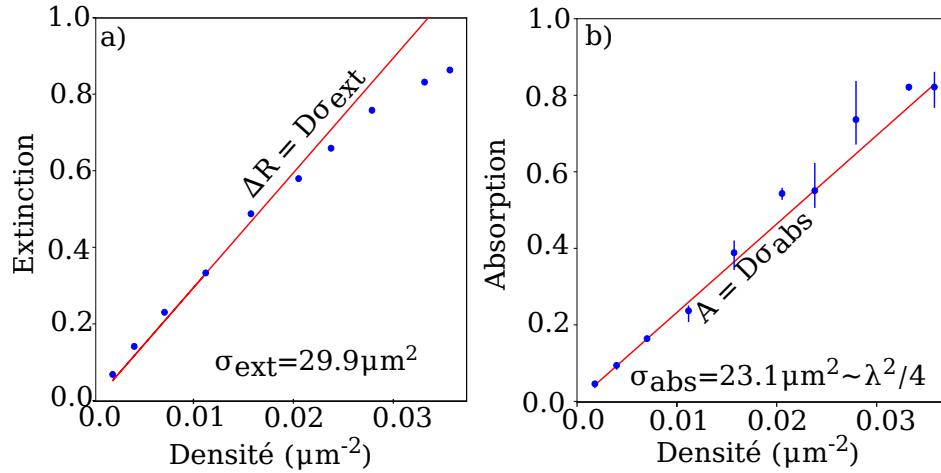


FIGURE 6.2 – a) Extinction mesurée ΔR en fonction de la densité de résonateurs (points bleus) et régression linéaire pour calculer la section efficace d’extinction σ_{ext} . b) Absorption mesurée A en fonction de la densité de résonateurs (points bleus) et régression linéaire pour calculer la section efficace d’absorption σ_{abs} . Les mesures sont faites pour des ensembles désordonnés de résonateurs de largeur $w = 1.6 \mu\text{m}$ à $\lambda = 9.1 \mu\text{m}$.

et $\sigma_{\text{ext}} = 29.9 \mu\text{m}^2$, d’où on peut déduire la section efficace de diffusion $\sigma_{\text{scat}} \sim 6 \mu\text{m}^2$. Cela signifie que σ_{abs} est plus grand mais du même ordre de grandeur que σ_{scat} , donc que les pertes non-radiatives sont plus importantes que les pertes radiatives. Cela confirme l’observation faite au chapitre précédent, qui estimait l’absorption comme plus grande que la diffusion, mais le rapport ici est de l’ordre de 3 ou 4, contre 2 précédemment. On verra néanmoins juste après que la notion de section efficace de diffusion n’est pas toujours valable. Par ailleurs, on constate l’ordre de grandeur $\sigma_{\text{abs}} = 23 \mu\text{m}^2 \sim \frac{\lambda_0^2}{4}$, l’aire de la tache de diffraction, pour la longueur d’onde de résonance de $9.1 \mu\text{m}$.

Les barres d’erreur représentées sur la Fig. 6.2b) correspondent au maximum et minimum mesurés sur 3 mesures indépendantes, dont on voit qu’ils sont cohérents avec les 10% d’erreur estimés dans le chapitre précédent. La régression linéaire effectuée donne une incertitude de l’ordre de $1 \mu\text{m}^2$ sur les valeurs de sections efficaces calculées. On confirme ainsi que le grand écart entre les densités les plus faibles et les plus élevées permet d’avoir une erreur moins grande sur l’estimation de la section efficace que sur les mesures individuelles.

6.1.2 Évolution non-linéaire de la réponse optique

La notion de section efficace indépendante de la densité paraît assez valable, étant donné que les rapports $\Delta R/D$ et A/D semblent à peu près stables. Toutefois, il apparaît clairement sur la Fig. 6.2a) que cette relation linéaire n’est plus valable pour les hautes densités, ce que nous attribuons à un phénomène de saturation.

Notion de saturation

On peut donc observer Fig. 6.2a) que la relation linéaire entre l’extinction et la densité n’est plus valable pour des densités élevées. L’explication la plus simple de ce phénomène est que l’extinction et l’absorption sont nécessairement inférieures à 1, *i.e.*, $D\sigma_{\text{abs}} < 1$ et $D\sigma_{\text{ext}} < 1$. On peut donc définir une densité maximale, par exemple $D_{\text{sat,abs}} = 1/\sigma_{\text{abs}}$, au-delà de laquelle la relation linéaire entre densité et absorption ne peut pas être valable.

Cette estimation de la densité de saturation donne $D_{\text{sat,abs}} = 0.043 \mu\text{m}^{-2}$ et $D_{\text{sat,ext}} = 0.033 \mu\text{m}^{-2}$. Cela concorde avec l’observation de saturation pour l’extinction mais pas pour l’absorption, parce que la densité

maximale utilisée est $D_{\max} = 0.035 \mu\text{m}^{-2}$ ($D_{\text{sat,ext}} < D_{\max} < D_{\text{sat,abs}}$). Néanmoins, l'écart entre la relation linéaire $D\sigma_{\text{ext}}$ et les mesures d'extinction augmente dès $D \sim 0.025 \mu\text{m}^{-2}$. Il faut donc modéliser autrement ce phénomène de saturation.

Malgré tout, La section efficace d'extinction de $30 \mu\text{m}^2$ est un bon ordre de grandeur pour les échantillons présentés, même si les sections efficaces équivalentes pour les échantillons les plus denses peuvent être différentes.

Comparaison à des simulations de sillons métalliques 1D

Pour étudier ce comportement plus en détail, je propose de nous retourner quelques temps vers la simulation numérique pour essayer d'en savoir plus sur la dépendance en densité de la réponse optique de réseaux de résonateurs désordonnés. En l'absence de méthodes de calcul optique 2D suffisamment puissantes pour étudier efficacement des structures désordonnées, nous utiliserons le code de simulation de sillons métalliques 1D ($h = 3 \mu\text{m}$, $w = 0.25 \mu\text{m}$) présenté Partie III. Dans ce cas, bien sûr, la densité D correspond à l'inverse de la période perturbée (plutôt que de l'aire de la maille unitaire 2D), donc est en μm^{-1} (plutôt qu'en μm^{-2}).

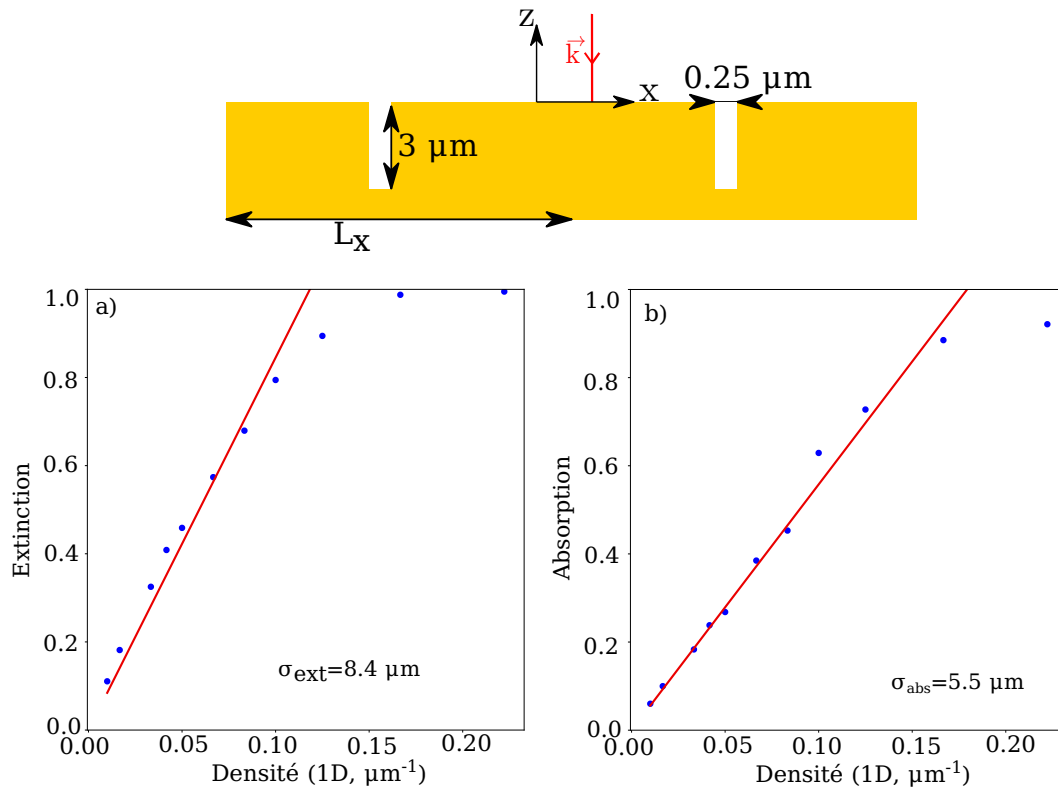


FIGURE 6.3 – Évolution de la réponse de structures de réseaux de sillons ($h = 3 \mu\text{m}$, $w = 0.25 \mu\text{m}$) désordonnés, en fonction de la densité de résonateurs. Calculé avec une super-période $m=30$, un nombre de mode $N=20$. Valeurs données à la résonance $\lambda_1 = 14.2 \mu\text{m}$. a) Extinction b) Absorption

La Fig. 6.3 représente l'évolution des maxima d'extinction et d'absorption calculés à la résonance pour des réseaux de sillons ($h = 3 \mu\text{m}$, $w = 0.25 \mu\text{m}$), en fonction de la densité. La période L_x varie entre 3 et $60 \mu\text{m}$, afin d'avoir plus de points de densité différente, et d'atteindre la saturation y compris pour l'absorption. On confirme d'abord que l'extinction et l'absorption augmentent avec la densité, ce qui est tout à fait rassurant. On constate par ailleurs, surtout pour l'absorption, une relation linéaire avec la densité jusqu'à des densités plutôt élevées, puis une saturation. Cela correspond bien à l'observation que nous avons faite pour des résonateurs 2D précédemment.

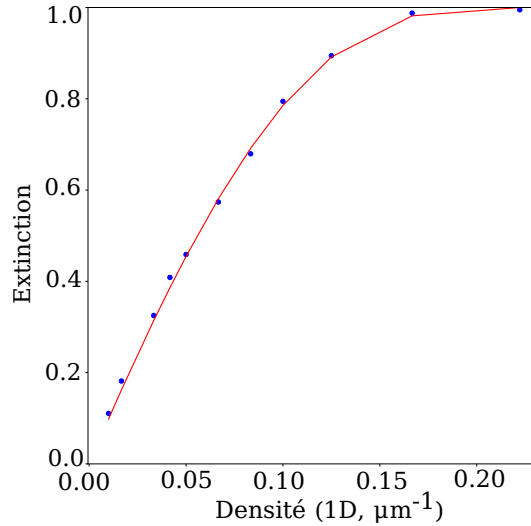


FIGURE 6.4 – Exemple de modélisation non-linéaire de l'évolution de la section efficace d'extinction avec la densité, sous la forme $1 - \exp(-\sigma/(L - L_0))$. Calcul pour un réseau de sillons ($h = 3 \mu\text{m}$, $w = 0.25 \mu\text{m}$) désordonné, à la longueur d'onde de résonance $\lambda_1 = 14.2 \mu\text{m}$.

La relation entre extinction et densité paraît ne pas être aussi bien décrite par une loi linéaire, car l'évolution paraît plutôt concave. Cela est mieux visible sur cette étude numérique que sur les mesures expérimentales, parce qu'il y a plus de points et moins d'incertitude. La Fig. 6.4 représente ainsi une modélisation non-linéaire de l'extinction, avec un modèle de saturation classique $1 - e^{-x}$. Plus précisément, la courbe rouge a pour équation $\Delta R = 1 - \exp(-\sigma/(L - L_0))$, où $L = 1/D$, et $L_0 = 3.5 \mu\text{m}$, $\sigma = 10 \mu\text{m}^{-1}$ ont été choisis pour représenter au mieux les données. Au premier ordre en D , ce modèle donne bien sûr la relation linéaire $\Delta R = \sigma D$, mais la relation en $1 - e^{-x}$ représente beaucoup mieux les données que la régression linéaire de la Fig. 6.3a).

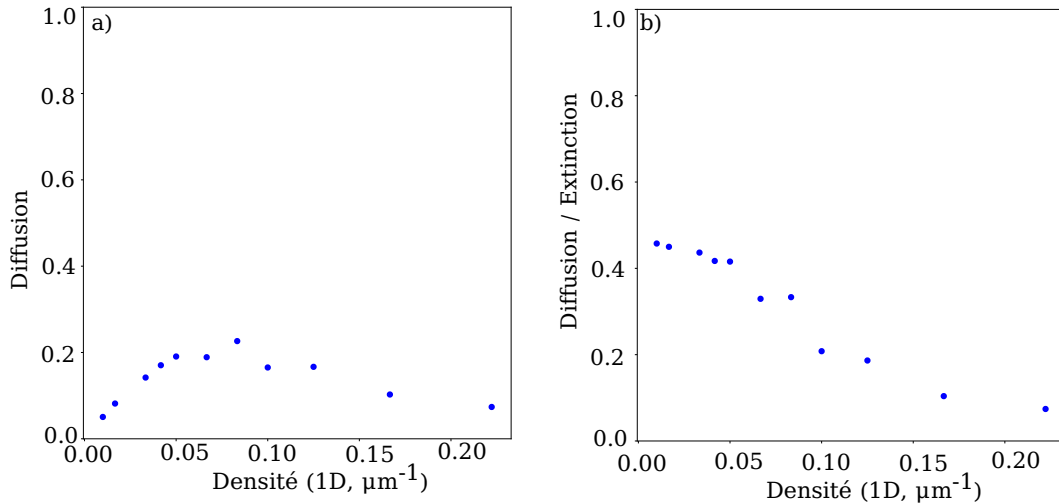


FIGURE 6.5 – Évolution de la diffusion de réseaux de sillons ($h = 3 \mu\text{m}$, $w = 0.25 \mu\text{m}$) désordonné, en fonction de la densité de résonateurs. Calculé avec une super-période $m=30$, un nombre de mode $N=20$, à la longueur d'onde de résonance $\lambda_1 = 14.2 \mu\text{m}$. a) Diffusion totale. b) Proportion de la diffusion dans l'extinction $S/\Delta R$.

Pour étudier plus précisément la contribution de la diffusion à l'extinction, la Fig. 6.5a) représente l'évolution de la diffusion avec la densité de ces réseaux de sillons désordonnés. Ce que l'on observe est très

intéressant : la diffusion n'évolue pas du tout linéairement avec la densité. En effet, elle augmente pour les très faibles densités, puis est maximale pour une densité assez faible, pour laquelle l'extinction n'est que de 40%, avant de diminuer à nouveau. Ainsi, même si l'absorption évolue linéairement avec la densité, l'extinction ne peut pas elle aussi suivre une loi linéaire, à moins d'accepter de larges erreurs ou de négliger la diffusion.

L'évolution non-linéaire de la diffusion est un peu mieux caractérisée avec la Fig. 6.5b), qui présente la proportion d'extinction correspondant à de la diffusion, en fonction de la densité. On constate que la part de diffusion décroît quand la densité augmente, de presque 50% à moins de 10%. Cela explique pourquoi, malgré l'augmentation de l'extinction totale, la diffusion diminue à partir d'une certaine densité.

L'interprétation de cette évolution non linéaire est à faire avec précaution. La diminution de la part de diffusion indique un moins bon couplage de la structure aux canaux de perte radiatifs, qui ne doit pas être compris comme le complémentaire de l'augmentation de l'absorption observée. En effet, cette dernière, étant linéaire par rapport à la densité, correspond à l'augmentation du nombre de structures absorbantes, sans modification de leurs absorptions individuelles, c'est-à-dire sans modification de la section efficace d'absorption. Pour la diffusion, à l'inverse, la section efficace équivalente de diffusion d'un ensemble de sillons varie grandement en fonction de la densité. Le lien entre section efficace équivalente de l'échantillon et section efficace d'un sillon unique est donc moins évident.

Deux explications complémentaires permettent de rendre compte de la diminution de la diffusion avec l'augmentation de la densité. La première est que les distances caractéristiques entre les résonateurs deviennent inférieures à la longueur d'onde. Cela vient rendre d'autant plus improbable les interférences constructives dans d'autres directions que la réflexion spéculaire, tout comme la diffraction devient impossible dans un cas périodique sub-longueur d'onde. Ce qui nous conforte dans cette hypothèse est le fait que la diffusion est justement maximale autour de $D = 0.07 \mu\text{m}^{-1}$, ce qui correspond à une distance moyenne entre les résonateurs de $14.3 \mu\text{m}$, proche de la longueur d'onde de résonance. Une fois les sillons plus proches, cette résonance doit être beaucoup moins diffuse.

La deuxième explication est que l'augmentation de la densité dans une structure désordonnée vient imposer des contraintes plus fortes sur les positions. Ces contraintes forcent la distribution de résonateurs à être plus ordonnée, diminuant la contribution de la diffusion.²

Des études plus poussées, incluant notamment des mesures expérimentales plus précises permettant de quantifier la diffusion et des mesures de champ proche optique, permettraient de confirmer qu'il n'y a pas d'autres phénomènes mis en jeu, comme par exemple des phénomènes de localisation de la lumière qui pourraient apparaître quand les résonateurs sont proches. Il nous faudrait bien sûr également savoir si le comportement observé sur la diffusion des sillons 1D est bien analogue au cas des résonateurs MIM 2D.

6.2 Comparaison à des simulations numériques 2D

Simulation d'ensembles périodiques

Comme mentionné dans la Partie III, ainsi que dans l'Annexe A, la simulation de structures désordonnées est complexe, et nécessite des algorithmes spécifiques pour rester dans des temps de calcul raisonnables. L'étude numérique de structures 2D périodiques peut tout de même nous donner quelques informations supplémentaires.

La Fig. 6.6 présente l'évolution du spectre d'un réseau périodique de résonateurs MIM carrés de largeurs $w = 1.6 \mu\text{m}$, calculé par une méthode de simulation exacte (Reticolo³). L'intensité de la résonance y est minimale pour une période L_x de $5 \mu\text{m}$. À 3 et $4 \mu\text{m}$, on observe un décalage et un élargissement de la

²UCHE et al., « Constraints on collective density variables: Two dimensions »

³Jean Paul HUGONIN et al., « Reticolo software for grating analysis »

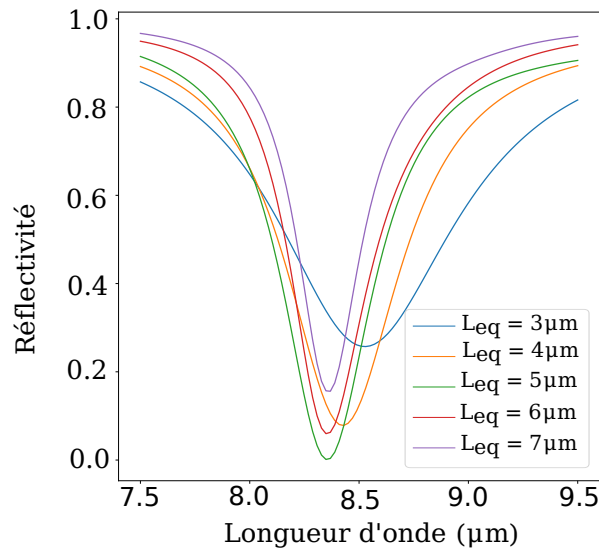


FIGURE 6.6 – Simulation numérique avec une méthode exacte de l'évolution du spectre d'un réseau périodique de résonateurs MIM carrés de largeur $w = 1.6 \mu\text{m}$ en fonction de la période.

résonance, probablement du à un sur-couplage des résonateurs avec le champ incident, *i.e.* un trop bon couplage aux canaux radiatifs, empêchant la lumière de faire beaucoup d'aller-retours dans la cavité et donc d'être absorbée⁴

Il y a également une légère diminution de l'extinction à partir de $L_x = 6 \mu\text{m}$, confirmée à $L_x = 7 \mu\text{m}$. Étant donnée la nature périodique de ce réseau, le lien entre la section efficace équivalente du réseau 2D et la section efficace des résonateurs indépendants n'est pas évident. Néanmoins, il est raisonnable de généraliser la densité de saturation dans le cas périodique, qui est ici de l'ordre de $D_{\text{sat}} \approx 1/6^2 \approx 0.023 \mu\text{m}^{-2}$. On notera que ceci est du même ordre de grandeur que celle de $0.03 \mu\text{m}^{-2}$ trouvée pour le cas désordonné, mais tout de même significativement plus petit. Ceci peut s'expliquer notamment par des effets de la périodicité, permettant un couplage parfait pour des densités plus faibles.

Simulation de résonateurs uniques

Les ensembles périodiques de résonateurs sont assez différents des ensembles désordonnés que j'ai étudiés expérimentalement. En effet, ces études expérimentales sont censées nous donner accès au comportement des résonateurs uniques, ce qu'il peut donc être plus intéressant de modéliser. Des simulations 2D de résonateurs uniques sont possibles là où j'ai effectué ma thèse, à l'aide de l'outil COMSOL multiphysics.⁵ Celui-ci se sert d'une méthode d'éléments finis pour calculer la réponse optique des structures, et permet également de calculer les sections efficaces d'absorption et de diffusion.

La Fig. 6.7 compare les sections efficaces d'absorption obtenues par cette méthode de simulation pour un résonateur unique de largeur $w = 2 \mu\text{m}$, avec la mesure expérimentale de section efficace d'absorption d'un ensemble de résonateurs de même dimension et de densité $L_{\text{eq}} = 8 \mu\text{m}$. Les deux méthodes sont en accord qualitatif sur la valeur de la section efficace (entre 20 et $30 \mu\text{m}^2$), ainsi que sur la longueur d'onde de résonance (entre 10 et $12 \mu\text{m}$). Cependant, les deux courbes sont tout de même assez différentes, et il est probable que le calcul numérique n'ait pas tout à fait convergé ou ait été mal défini. En effet, le logiciel COMSOL est assez complexe et très différent des autres méthodes de simulation dont je me suis servies pendant cette thèse, et je n'ai eu qu'assez peu de temps pour le prendre en main. La raison la plus probable

⁴FABAS, « Résonateurs de Helmholtz optiques simplifiés pour la détection de molécules »

⁵MULTIPHYSICS, « Introduction to COMSOL multiphysics® »

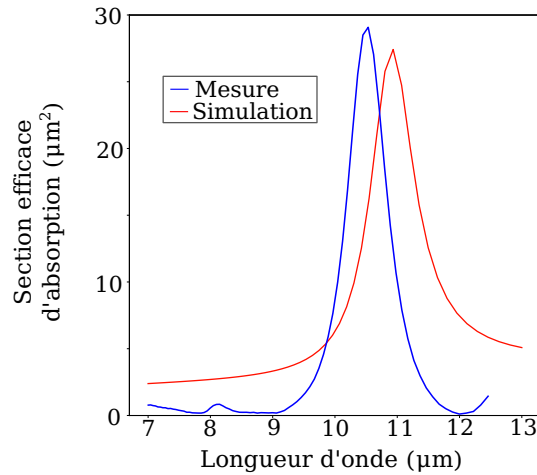


FIGURE 6.7 – Comparaison des sections efficaces d'absorption mesurées et calculées avec COMSOL, pour un résonateur de largeur $w = 2 \mu\text{m}$.

pour l'écart entre les spectres de section efficace mesuré et calculé est donc la combinaison des incertitudes expérimentales et des problèmes de définition ou de convergence numérique.

Une fois ces sources d'erreur réduites et contrôlées, il est malgré tout possible qu'il demeure un écart significatif entre simulation et expérience. Cela pourra alors être interprété comme le fait que la mesure expérimentale du comportement optique de ces ensembles désordonnés ne donne pas accès exactement aux propriétés des résonateurs uniques.

Les deux méthodes de simulation 2D utilisées permettent de nous conforter dans les ordres de grandeur obtenus pour les valeurs de section efficace et de densité de saturation mesurées expérimentalement. Contrairement à l'outil de simulation numérique 1D développé et détaillé dans la Partie III, je n'ai été qu'utilisateur occasionnel des méthodes présentées ici, ce qui limite le niveau de précision que j'ai pu obtenir avec elles. Des études plus détaillées pourraient être réalisées avec une meilleure compréhension de ces outils, permettant d'avoir des résultats quantitatifs et ainsi de déduire l'influence de la périodicité ou au contraire de l'unicité des résonateurs sur leur réponse optique.

6.3 Influence des paramètres géométriques

Nous avons précédemment déduit un ordre de grandeur pour la section efficace d'absorption, $\sigma_{\text{abs}} \sim \frac{\lambda^2}{4}$, qui établit un lien entre section efficace, longueur d'onde de résonance, et section géométrique des résonateurs. L'analyse de ce lien permet de comprendre l'influence des différents paramètres géométriques des résonateurs sur leur réponse optique individuelle. Pour ce faire, une étude de l'évolution de la section efficace de résonateurs MIM en fonction de leurs dimensions latérales a été réalisée. Les autres caractéristiques (matériaux, épaisseurs) sont gardées constantes.

6.3.1 Résonateurs carrés

L'étude des paramètres géométriques des résonateurs MIM commence par la variation de la largeur w de résonateurs carrés, entre $1.7 \mu\text{m}$ et $2.6 \mu\text{m}$. Les spectres d'émission thermique et d'extinction ont été présentés précédemment Fig. 5.8 et Fig. 5.12, montrant que la longueur d'onde de résonance varie avec la largeur des résonateurs.

Pour rappel, on a vu qu'un résonateur de $w = 1.7 \mu\text{m}$ résonne à $9.1 \mu\text{m}$, $w = 2 \mu\text{m}$ résonne à $10.4 \mu\text{m}$, $w = 2.6 \mu\text{m}$ résonne à $13 \mu\text{m}$, correspondant à une évolution linéaire de la longueur d'onde de résonance

6.3 Influence des paramètres géométriques

en fonction de la taille du résonateur. On a également proposé de définir un facteur λ/w , à peu près égal à 5 pour les différents résonateurs présentés.

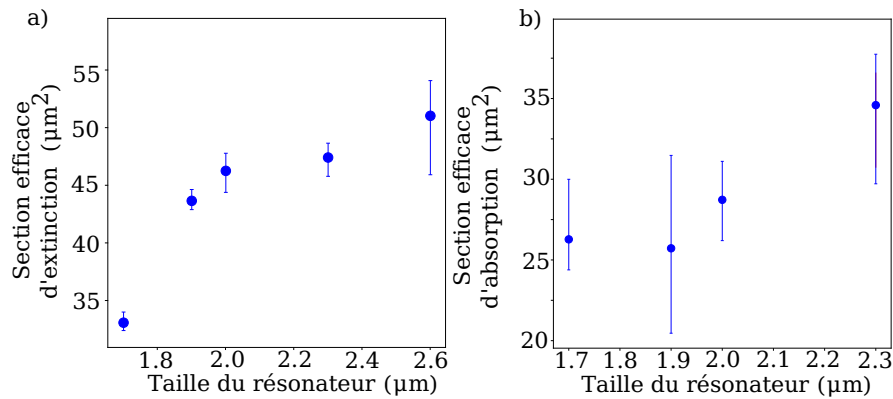


FIGURE 6.8 – Sections efficaces en fonction des tailles de résonateurs, variant de 1.7 μm à 2.6 μm . Les points correspondent à la moyenne des mesures sur des densités de $L = 8, 12, 16 \mu\text{m}$, les barres d'erreur correspondent au maximum et minimum mesurés. a) Sections efficaces d'extinction. b) Sections efficaces d'absorption.

La Fig 6.8 présente alors les sections efficaces d'extinction et d'absorption mesurées de ces résonateurs, grâce à des échantillons de $L_{\text{eq}} = 8, 12$ et $16 \mu\text{m}$. Les incertitudes de mesure sont assez grandes, surtout pour l'absorption, les barres d'erreur représentant le maximum et minimum des sections efficaces mesurées sur ces trois densités. Malgré ces grandes incertitudes, l'augmentation des sections efficaces avec l'augmentation de la dimension des résonateurs est significative. Ainsi, pour les longueurs d'onde de résonance étudiées ici, variant entre $8 \mu\text{m}$ et $13 \mu\text{m}$, $\sigma_{\text{abs}} \sim \lambda^2/4 \sim 6w^2$ est un bon ordre de grandeur.

Pendant, on constate surtout que la variation de la taille des résonateurs ne se fait pas sur une gamme assez large (moins d'un facteur 2), pour pouvoir valider ou infirmer une loi d'évolution. Cette variation est limitée par le lien direct entre taille des résonateurs et longueur d'onde, puisque diviser par deux la taille d'un résonateur qui résonne à $10 \mu\text{m}$ (bande III) en fait un résonateur qui résonne à $5 \mu\text{m}$ (bande II), pour lequel la méthode de détection doit être adaptée (détecteurs et optiques différentes).

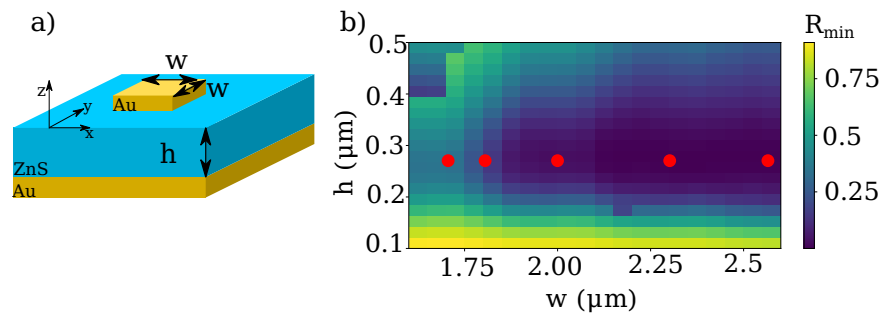


FIGURE 6.9 – a) Rappel des définitions de la largeur w et de l'épaisseur h des MIM carrés. b) Évolution du minimum de réflectivité de réseaux de résonateurs MIM périodiques, de période $L_x = L_y = 5 \mu\text{m}$ en fonction de l'épaisseur h et de la largeur w des MIM. Les points rouges représentent les dimensions des résonateurs fabriqués et étudiés.

Par ailleurs, les sections efficaces dépendent beaucoup de la qualité du couplage entre le résonateur et le champ incident. Pour avoir un couplage identique pour des longueurs d'onde de résonance différentes, il faudrait que toute la géométrie de la structure soit modifiée de manière homothétique. Dans notre cas, les variations de largeur ne sont pas accompagnées de variations d'épaisseurs du diélectrique, on ne peut

donc pas s'attendre à un couplage constant. Il n'est donc pas surprenant que les sections efficaces mesurées ne suivent pas une loi simple. On retiendra alors que dans notre cas (ZnS, bande III), $\lambda^2/4$ est un ordre de grandeur valable.

Pour tenter de quantifier la variation de la qualité du couplage due au fait que l'épaisseur de diélectrique est constante, la Fig. 6.9 présente sommairement l'évolution de la qualité du couplage pour des résonateurs périodiques, en fonction de leurs épaisseurs et largeurs. Cela montre que les résonateurs sont plutôt bien couplés à l'épaisseur de ZnS dont nous disposons, c'est-à-dire 280 nm, à partir de $w = 1.8 \mu\text{m}$. Toutefois, les résonateurs ne sont pas aussi bien couplés quand ils sont de taille 1.7 ou 1.6 μm . Cette perte de couplage peut d'ailleurs être l'explication de la grande différence de section efficace d'extinction mesurée entre les résonateurs de largeur $w = 1.7 \mu\text{m}$ et $w = 1.9 \mu\text{m}$.

Des mesures avec plus de tailles de résonateurs différentes et une meilleure précision permettraient de mieux caractériser l'évolution de la section efficace malgré les limites mentionnées plus haut. Pour changer plus radicalement la section géométrique des résonateurs sans trop modifier leur longueur d'onde de résonance, j'ai étudié des résonateurs rectangulaires. Mais avant cela, il est intéressant de refaire un détour par la simulation numérique de sillons 1D.

6.3.2 Sillons métalliques 1D

Afin de compléter cette étude, nous pouvons de nouveau nous tourner vers les simulations de réseaux de sillons 1D. L'absence de problématiques de détection permet en effet de faire varier leur longueur d'onde de résonance continûment sur une plus grande plage de valeurs. L'équivalent des variations de largeur w des MIM carrés est alors la variation de la profondeur h des sillons.

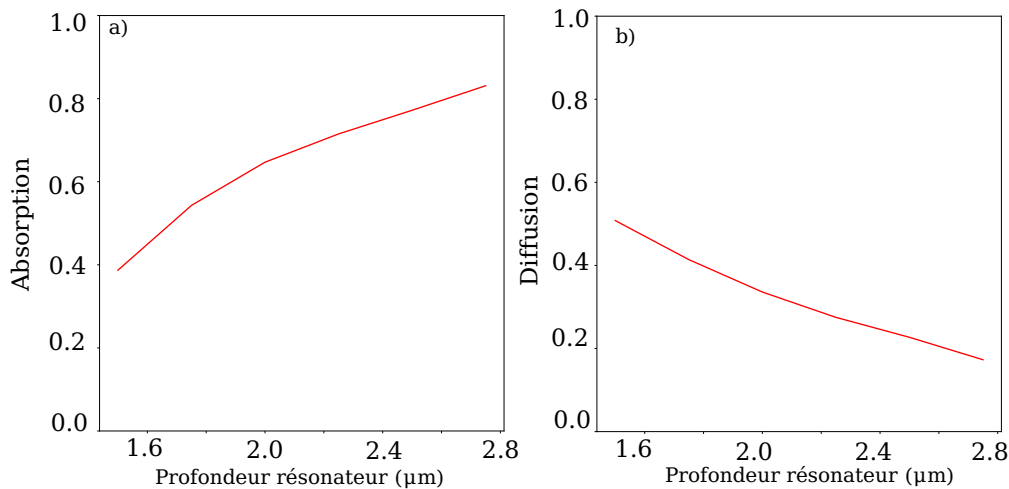


FIGURE 6.10 – Comparaison des maxima de diffusion et d'absorption de réseaux de sillons ($w = 0.25 \mu\text{m}$, $L_x = 6 \mu\text{m}$) désordonnés lors de l'évolution de la profondeur des sillons. a) Absorption b) Diffusion.

La Fig. 6.10 présente ainsi l'évolution des réponses en absorption et en diffusion pour des réseaux de sillons, en fonction de leur profondeur. L'extinction à chaque résonance est par ailleurs presque totale dans chaque cas, c'est pourquoi elle n'est pas représentée.

On y observe que la part d'absorption augmente tandis que la part de diffusion diminue quand le sillon est plus profond. Une interprétation possible est que l'augmentation de la profondeur des sillons augmente les pertes par absorption dans le métal car la lumière piégée par le sillon passe plus de temps à effectuer un aller-retour, donc a plus de chance d'être absorbée avant de pouvoir être re-diffusée. Une façon de compenser ce phénomène serait d'augmenter les pertes radiatives des sillons, ce qui est possible en augmentant leur largeur w , typiquement.

Une autre interprétation (qui n'exclut pas la précédente) est que la diffusion est plus efficace aux petites longueurs d'onde. Comme la longueur d'onde de résonance du sillon est proportionnelle à sa longueur, on a bien ici une augmentation de la part de l'absorption avec la longueur d'onde.

Cette évolution de l'absorption et de la diffusion en fonction de la longueur d'onde peut être retrouvée par la modélisation de la diffusion Rayleigh par des dipôles, qui s'écrit⁶:

$$\sigma_{\text{abs}} \sim \text{Im}(\alpha) / \lambda \quad (6.1)$$

$$\sigma_{\text{scat}} \sim |\alpha|^2 / \lambda^4 \quad (6.2)$$

avec α la polarisabilité de l'objet diffusant, calculable à l'aide d'un modèle électrostatique. Cette modélisation est valide pour des objets très petits devant la longueur d'onde. Dans notre cas, même si les dimensions caractéristiques des résonateurs ne sont qu'à peine un ordre de grandeur plus petites que la longueur d'onde, il peut être intéressant de se servir de ces formules pour en déduire des tendances générales, comme par exemple la diminution de la diffusion et l'augmentation de l'absorption avec l'augmentation de la longueur d'onde.

Concrètement, entre un sillon profond de $1.6 \mu\text{m}$ résonant à $\lambda_{\text{min}} = 9.5 \mu\text{m}$ et un sillon profond de $2.8 \mu\text{m}$ résonant à $\lambda_{\text{max}} = 14.5 \mu\text{m}$, le rapport est de $\lambda_{\text{max}} / \lambda_{\text{min}} = 1.53$, soit, mis au cube pour expliquer la différence entre diffusion et absorption, un rapport de 3.5. Même si la polarisabilité des résonateurs varie également, on s'attend à ce qu'elle varie au plus linéairement avec la dimension du résonateur (dans le cas d'un résonateur 1D comme les sillons), donc cela ne pourra pas compenser cet écart de longueur d'onde, qui peut justifier la modification de la part d'absorption et de diffusion dans l'extinction en fonction de la taille des résonateurs. De plus, l'augmentation de la largeur w soulignée ci-dessus peut aussi être interprétée comme un augmentation de la polarisabilité des sillons, ce qui doit augmenter leur diffusion.

Cette modélisation des sillons par l'approximation dipolaire de la diffusion de Rayleigh semble prometteuse, mais nécessite d'être testée dans des conditions plus diverses, avant de s'en servir pour la conception de nouvelles structures par exemple. La validité des hypothèses de cette approximation, surtout la taille des résonateurs très petites devant la longueur d'onde, est en effet discutable.

6.3.3 Résonateurs rectangulaires

Pour aller plus loin tout en retournant à des mesures expérimentales, il est intéressant de passer à des résonateurs rectangulaires, permettant de faire varier la section géométrique du résonateur sans changer sa longueur d'onde de résonance. Cela donne des résonateurs rectangulaires (dits "bâtonnets") sensibles à la polarisation.

La Fig. 6.11a) est un schéma de ces résonateurs MIM rectangulaires, maintenant définis par leurs largeurs l en plus de leur longueur $w = 2 \mu\text{m}$ qui restera inchangée. La Fig. 6.11b) présente les spectres des échantillons pour des largeurs l de 100, 300 et 600 nm, ainsi que pour un résonateur carré $l = w = 2 \mu\text{m}$. On y constate que la longueur d'onde de résonance de ces bâtonnets varie, mais moins que la largeur qui elle est modifiée d'un facteur 6 (20 par rapport au MIM carré), prouvant que c'est bien principalement la longueur w qui contrôle la résonance. Néanmoins, l'intensité de la résonance est très différente pour des largeurs différentes, venant donc nuancer le résultat $\sigma_{\text{abs}} \sim \lambda^2 / 4$.

Cette différence d'intensité de résonance est mieux résumée avec la Fig. 6.12, présentant les sections efficaces des résonateurs bâtonnets en fonction de leur largeur. On observe l'importante diminution de la section efficace quand la section géométrique est diminuée.

En prenant pour référence les sections efficaces d'absorption et d'extinction des résonateurs de taille $w = 2 \mu\text{m}$ présentées également Fig. 6.12, on peut constater que la diminution de la section géométrique et

⁶BOHREN et al., *Absorption and scattering of light by small particles*

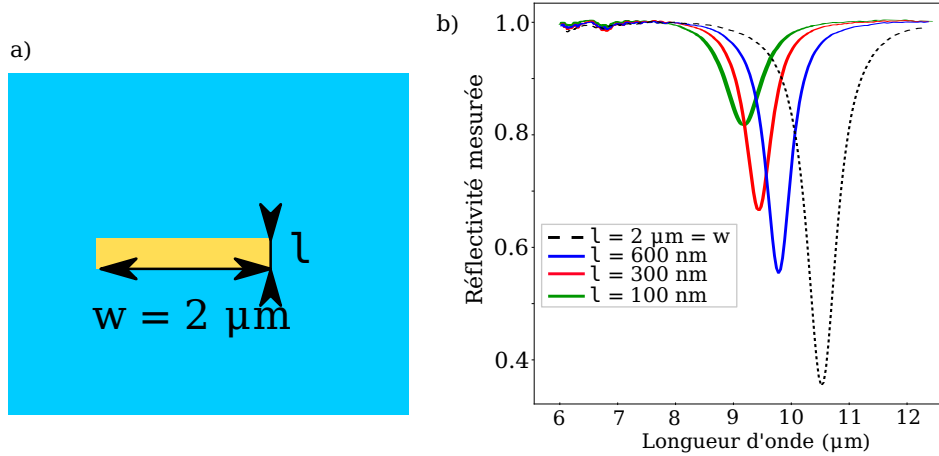


FIGURE 6.11 – a) Schéma vu du dessus d'un MIM bâtonnet. b) Spectres de réflectivité de MIM bâtonnets de longueur $w = 2 \mu\text{m}$ pour différentes largeurs l , pour des ensembles de densité $L_{\text{eq}} = 8 \mu\text{m}$.

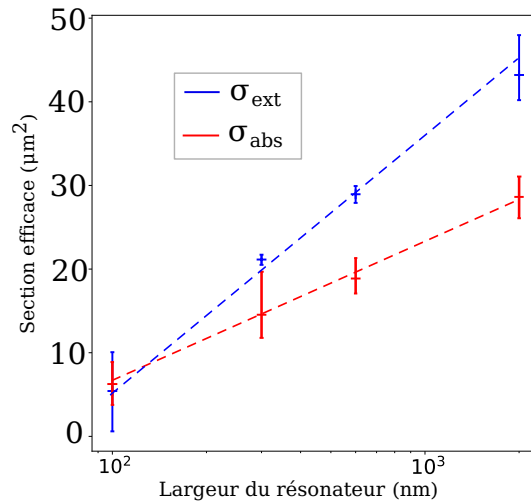


FIGURE 6.12 – Sections efficaces en fonction de la largeur l de MIM bâtonnets, variant de 100 nm à 600 nm, ainsi que pour un MIM carré $l = w = 2 \mu\text{m}$. Les barres d'erreur correspondent aux maximum et minimum obtenus parmi des mesures faites à des densités de $L_{\text{eq}} = 8, 12, 16 \mu\text{m}$

de la section efficace ne sont pas proportionnelles. Au contraire, la représentation en échelle logarithmique de la Fig. 6.12 montre une évolution de type $\sigma \sim \log(l)$, causant une variation rapide de la section efficace pour des petites largeurs, puis une variation plus douce à mesure que l se rapproche de w .

On définit les pentes k_{ext} et k_{abs} et les largeurs caractéristiques $l_{0,\text{ext}}$ et $l_{0,\text{abs}}$ telles que :

$$\sigma_{\text{ext}} = k_{\text{ext}} \log\left(\frac{l}{l_{0,\text{ext}}}\right),$$

$$\sigma_{\text{abs}} = k_{\text{abs}} \log\left(\frac{l}{l_{0,\text{abs}}}\right).$$

On constate avant tout $k_{\text{ext}} > k_{\text{abs}}$. Ceci nécessiterait d'être vérifié avec plus de points de mesure, mais implique que l'extinction augmente plus vite que l'absorption, faisant que la proportion d'énergie absorbée au sein de l'extinction est plus faible pour les plus grands résonateurs.

Plus précisément, une régression avec $\sigma_{\text{ext}} \sim k_{\text{ext}} \log(l/l_{0,\text{ext}})$ donne $k_{\text{ext}} = 30.7 \mu\text{m}^2$ et $l_{0,\text{ext}} = 69 \text{ nm}$. De même, $\sigma_{\text{abs}} \sim k_{\text{abs}} \log(l/l_{0,\text{abs}})$ donne $k_{\text{abs}} = 16.6 \mu\text{m}^2$ et $l_{0,\text{abs}} = 39 \text{ nm}$. Ces régressions sont montrées

Fig. 6.12. On en déduit que la section efficace d'extinction augmente près de deux fois plus vite que la section efficace d'absorption avec la variation de la largeur des bâtonnets.

Plusieurs facteurs complémentaires peuvent jouer dans ce comportement. D'une part, la modification de la largeur du bâtonnet entraîne une modification de la répartition du champ électromagnétique. Plus précisément, pour les bâtonnets plus fins, le champ va plus "déborder" de la structure, et donc plus interagir avec l'air. Cela doit entraîner une diminution de l'indice effectif de la résonance, ce qui peut expliquer la diminution de la longueur d'onde de résonance observée Fig. 6.11

D'autre part, la part d'absorption dans l'extinction dépend fondamentalement de la capacité du résonateur à capter la lumière pour de nombreux aller-retours dans sa cavité, augmentant la probabilité qu'elle soit absorbée avant d'être réémise. Pour le cas des résonateurs rectangulaires, il semble que cette efficacité d'absorption est plus grande pour les résonateurs plus fins, laissant s'échapper peu de lumière sous la forme de diffusion.

Par ailleurs, on peut réutiliser pour les résonateurs bâtonnets le modèle de la diffusion Rayleigh introduit précédemment. Ici, la variation des contributions de l'absorption et de la diffusion ne sont pas un effet de la longueur d'onde de résonance puisque celle-ci varie peu. Toutefois, l'augmentation de la diffusion des bâtonnets peut s'expliquer par l'augmentation de leur polarisabilité avec leur taille, augmentant leur section efficace de diffusion plus vite que celle d'absorption.

Ces différents exemples tendent à confirmer la possibilité de comprendre la réponse optique des résonateurs MIM à l'aide de l'approximation dipolaire de la diffusion de Rayleigh, même si leurs dimensions caractéristiques ne sont pas si éloignées de la longueur d'onde de résonance. Cette compréhension est toutefois qualitative pour le moment, et le restera tant qu'il n'y aura pas de méthode pour le calcul des polarisabilités apparentes des résonateurs MIM. Une étude dédiée, impliquant notamment le calcul des polarisabilités équivalentes des résonateurs afin de vérifier le lien entre celles-ci et leurs dimensions géométriques, permettrait de confirmer la validité de cette modélisation, et surtout de définir ses limites.

Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai proposé une méthode originale de mesure des sections efficaces d'absorption et d'extinction de résonateurs MIM unique, se basant sur des distributions désordonnées de différentes densités de résonateurs. La preuve du fonctionnement de cette méthode a été donnée, et sa capacité à dégager des ordres de grandeur à partir des mesures effectuées a été prouvée. Il reste néanmoins des améliorations possibles, notamment sur la précision des mesures, comme déjà suggéré au chapitre précédent.

De plus, la modélisation des résonateurs MIM par la diffusion de Rayleigh a été proposée car elle semble prédire les bonnes tendances lors de la modification de leurs dimensions géométriques.

Ainsi, l'ordre de grandeur de la section efficace d'absorption mesurée pour les résonateurs MIM carrés étudiés ici est $\sigma_{\text{abs}} \sim \lambda^2/4$. Le lien entre la section efficace équivalente des échantillons et la section efficace des résonateurs indépendants a cependant été remis en question dans le cas de l'extinction. En effet, la section efficace équivalente d'extinction des échantillons n'évolue pas linéairement avec la densité. Ceci est notamment dû à la diffusion, dont l'efficacité varie fortement, et de manière non linéaire, avec la densité.

Par ailleurs, le cas de résonateurs rectangulaires a confirmé qu'il n'y avait pas proportionnalité entre la section géométrique et la section efficace, dans le cas général. Ces résonateurs rectangulaires, ainsi que des simulations numériques de sillons 1D, ont suggéré l'utilisation du modèle de la diffusion de Rayleigh pour expliquer les évolutions relatives des sections efficaces de diffusion et d'absorption en fonction des dimensions des résonateurs.

Une étude expérimentale plus complète des variations des sections efficaces en fonction des paramètres géométriques de ces surfaces, serait ainsi nécessaire pour mieux caractériser leur comportement. Celle-ci

devrait inclure une variation des dimensions géométriques sur des plages de valeurs plus grandes, ainsi qu'une comparaison systématique au modèle dipolaire (notamment par le calcul de polarisabilités "apparentes"). Celle-ci pourrait être complétée par l'étude en champ proche optique de ces résonateurs, notamment dans les cas à haute densité, afin de mieux caractériser la répartition du champ électromagnétique en leur sein.

Chapitre

7

Influence de la combinaison de plusieurs résonateurs

Sommaire

7.1 Comparaison sections efficaces mono- et bi-résonateurs	89
7.1.1 Sections efficaces de bi-résonateurs	89
7.1.2 Influence de la proximité spectrale des résonances	91
7.1.3 Modélisation lorentzienne des résonances	92
7.1.4 Influence de la densité	93
7.2 Vérification avec le modèle analytique	94
7.2.1 Objet d'étude : Réseau de bi-sillons	94
7.2.2 Spectres de sillons non couplés	94
7.2.3 Modélisation simplifiée	96
7.2.4 Cas de sillons spectralement proches	97

La méthode de mesure de section efficace présentée au chapitre précédent est prometteuse pour avoir rapidement un ordre de grandeur de la réponse spectrale de réseaux désordonnés de résonateurs. Elle permet également l'estimation de la densité de saturation, au-delà de laquelle le rajout de résonateurs a un effet moindre sur la réponse optique. Cela est un premier pas important pour l'étude de distributions de résonateurs, mais il reste encore des possibilités intéressantes.

Une possibilité que j'ai explorée pendant ma thèse est le fait d'étudier des réseaux composés de résonateurs MIM de dimensions différentes. En effet, le calcul des sections efficaces se basant sur les résonances mesurées, il doit être aisé de l'appliquer à des résonateurs dont les longueurs d'onde de résonance sont différentes.

Ainsi, dans ce chapitre je propose d'étudier la combinaison de plusieurs types de résonateurs, à la fois de manière expérimentale et en simulation numérique.

7.1 Comparaison sections efficaces mono- et bi-résonateurs

Nous voulons donc étudier l'influence de la présence de plusieurs types de résonateurs sur la réponse de la structure. Pour ce faire, des échantillons comprenant des réseaux composés de deux types de résonateurs ont été conçus et fabriqués. Il est possible d'associer une distribution de densité D_1 d'un premier résonateur à une distribution D_2 d'un deuxième résonateur. Lorsque $D_1 = D_2 = D$, on considérera que la distribution de bi-résonateur a une densité D (et non pas $2D$). Dans la suite, on se place dans cette situation, et je montrerai la pertinence de ce choix pour la comparaison avec les distributions de mono-résonateur étudiées précédemment. Par ailleurs, une autre possibilité de distribution combinant plusieurs résonateurs serait de considérer les deux résonateurs, dans une configuration précise, comme un motif unique, placé ensuite à différentes positions. J'ai préféré garder les positions des résonateurs comme indépendantes et ne me suis donc jamais placé dans ce cas.

La Fig. 7.1 présente une image MEB d'un réseau de bi-résonateurs. Deux résonateurs de largeurs différentes y sont visibles. Par la suite, on appellera toujours w_1 (ici $w_1 = 1.6 \mu\text{m}$) la largeur du petit résonateur

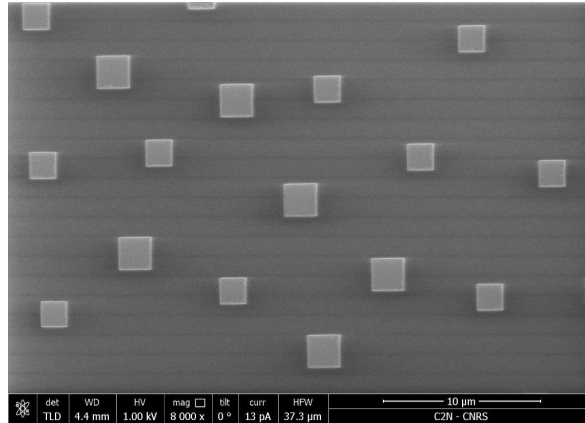


FIGURE 7.1 – Image MEB vue du dessus d’un échantillon composé de deux résonateurs de dimensions différentes, dit ensemble de bi-résonateurs. ($w_1 = 1.6 \mu\text{m}$, $w_2 = 2 \mu\text{m}$, $L_{\text{eq}} = 5 \mu\text{m}$).

et w_2 (ici $w_2 = 2 \mu\text{m}$) la largeur du grand résonateur. Par ailleurs, on observe une haute densité de résonateurs, puisque la densité $L_{\text{eq}} = 5 \mu\text{m}$ de cet échantillon correspond en réalité à une densité de structuration double (et $L_{\text{eq}}/\sqrt{2}$), de par la présence des deux types de résonateurs.

7.1.1 Sections efficaces de bi-résonateurs

La première hypothèse que l’on peut faire sur la combinaison de résonateurs est que celle-ci n’aura pas d’effet sur les sections efficaces puisque les différentes résonances sont indépendantes. De plus, la distance entre les résonateurs à la surface de l’échantillon est choisie assez grande pour éviter des couplages directs, comme expliqué au chapitre précédent. Je vais maintenant utiliser les spectres de section efficace (et plus seulement la section efficace à la résonance), qui s’obtiennent de la même manière : en divisant le spectre par la densité. Cela permettra notamment de mieux visualiser l’écart spectral entre les résonances.

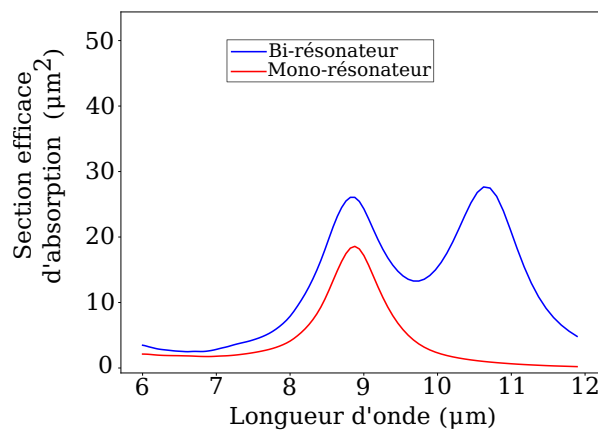


FIGURE 7.2 – Spectres de sections efficaces d’absorption d’échantillons constitués d’un réseau de mono-résonateurs de largeur $w = 1.6 \mu\text{m}$, ou de bi-résonateurs de largeurs $w_1 = 1.6 \mu\text{m}$ et $w_2 = 2 \mu\text{m}$, de période $L_{\text{eq}} = 6.5 \mu\text{m}$.

Pour vérifier rapidement cette hypothèse d’indépendance des sections efficaces, la Fig. 7.2 présente les spectres de section efficace de deux échantillons de densité donnée par $L_{\text{eq}} = 6.5 \mu\text{m}$. Dans un cas, c’est une ensemble de mono-résonateurs de largeur $w = 1.6 \mu\text{m}$, dans l’autre un ensemble de bi-résonateurs de largeurs $w_1 = 1.6 \mu\text{m}$ et $w_2 = 2 \mu\text{m}$. On peut observer sur la Fig. 7.2 que le spectre de section efficace du réseau de bi-résonateur présente deux résonances, dont une est centrée sur la même longueur d’onde

que celle du réseau de mono-résonateurs. Chaque résonance peut donc être identifiée indépendamment, comme correspondant chacune à un type de résonateur. Cela est rassurant sur l'indépendance des résonateurs, puisque cela signifie qu'il n'y a pas de décalage spectral ou de levée de dégénérescence due à la combinaison des modes.

Toutefois, on observe également que la section efficace mesurée à $9\ \mu\text{m}$ est plus faible pour le mono-résonateur que pour le bi-résonateur. Cela signifie que la section efficace d'absorption de l'échantillon, mesurée à la longueur d'onde de résonance du petit résonateur, est plus élevée en présence du deuxième résonateur. Cela nous empêche de considérer les deux résonances comme étant strictement indépendantes, même si aucun effet de couplage n'est observé.

7.1.2 Influence de la proximité spectrale des résonances

L'explication la plus naturelle de ce comportement est que la résonance de chaque résonateur "déborde" spectralement, donc que la section efficace mesurée au niveau d'une résonance est en réalité la somme des deux contributions. Pour vérifier cette hypothèse, des échantillons avec d'autres tailles de résonateurs ont été conçus et fabriqués, afin de voir l'évolution de la section efficace d'une résonance en fonction de la proximité spectrale de l'autre résonance.

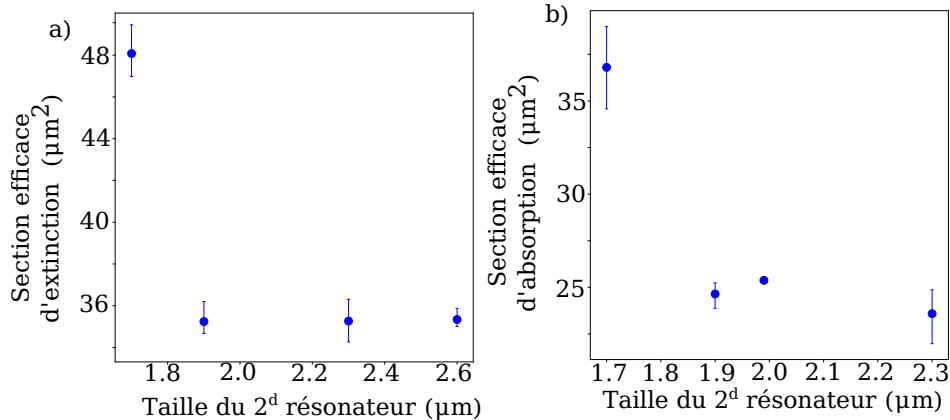


FIGURE 7.3 – Évolution de la section efficace mesurée à $\lambda = 9\ \mu\text{m}$ pour un bi-résonateur, avec un résonateur de largeur $w_1 = 1.6\ \mu\text{m}$, en fonction de la largeur w_2 de l'autre résonateur. a) Sections efficaces d'extinction. b) Sections efficaces d'absorption.

La Fig. 7.3 présente les valeurs des sections efficaces mesurées pour des ensembles de bi-résonateurs avec $w_1 = 1.6\ \mu\text{m}$ constant et w_2 variant de 1.7 à $2.3\ \mu\text{m}$. Les mesures sont effectuées à $\lambda = 9\ \mu\text{m}$, la longueur d'onde de résonance du résonateur de largeur $w_1 = 1.6\ \mu\text{m}$. On peut ainsi mesurer l'influence de la largeur du grand résonateur sur la valeur de la section efficace du petit résonateur. Il y a une nette augmentation de la section efficace mesurée quand les tailles des résonateurs sont proches, confirmant le fait qu'une trop grande proximité spectrale entre résonances entraîne une sur-estimation de la section efficace.

La Fig. 7.4 permet de comparer plus précisément la section efficace d'un ensemble de mono-résonateurs et d'un ensemble de bi-résonateurs. Pour estimer l'erreur sur ces mesures, les sections efficaces sont calculées avec trois densités différentes ($L_{\text{eq}} = 8, 12$ et $16\ \mu\text{m}$). Les barres d'erreur présentes sur la Fig. 7.4 correspondent au maximum et minimum obtenus pour les 3 mesures.

On constate avant tout que les erreurs sur nos mesures sont assez grandes, notamment en absorption, où elles peuvent être supérieures aux 10% estimés au Chapitre 5. Néanmoins, ces mesures confirment que la section efficace du résonateur est significativement plus grande quand il est avec un autre résonateur, dans le cas où les deux sont de tailles très proches. En l'occurrence, la différence $\Delta\lambda$ entre les longueurs d'onde de résonance pour laquelle la section efficace du bi-résonateur est modifiée est estimée à $\Delta\lambda < 1\ \mu\text{m}$. Cela

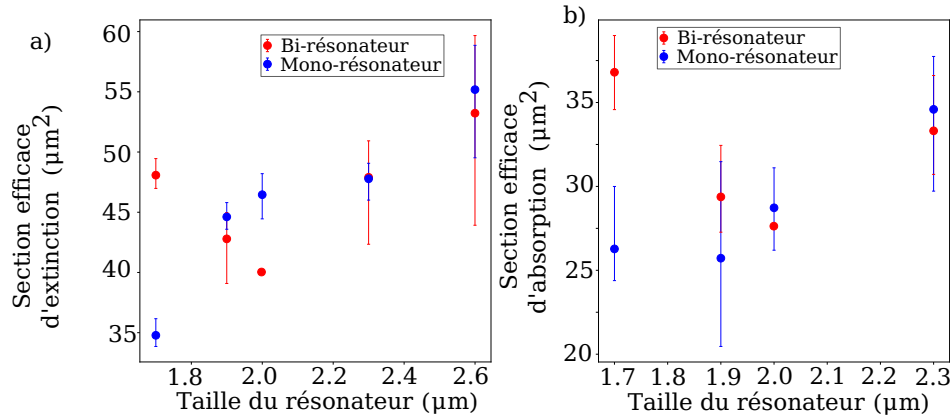


FIGURE 7.4 – Comparaison de la section efficace mesurée pour un ensemble de mono-résonateurs de largeur w variable et pour un ensemble de bi-résonateurs de largeurs $w_2 = w$ variable et $w_1 = 1.6 \mu\text{m}$. Les densités sont $L_{\text{eq}} = 8, 12$ et $16 \mu\text{m}$. a) Sections efficaces d'extinction. b) Sections efficaces d'absorption.

correspond à $\Delta\lambda < \lambda/10$ pour les longueurs d'onde considérées. Pour les autres cas, les sections efficaces du bi-résonateur et du mono-résonateur se trouvent proches l'une de l'autre.

Pour étudier plus précisément ce comportement, une idée est de quantifier le "débordement" de chaque résonance sur l'autre, afin de vérifier qu'il n'y a pas d'effet physique plus complexe. Pour ce faire, il est possible de représenter les résonances par des fonctions lorentziennes dont on ajustera les paramètres pour qu'elles correspondent au mieux aux spectres obtenus. Cette modélisation permettra de quantifier l'influence croisée des résonances.

7.1.3 Modélisation lorentzienne des résonances

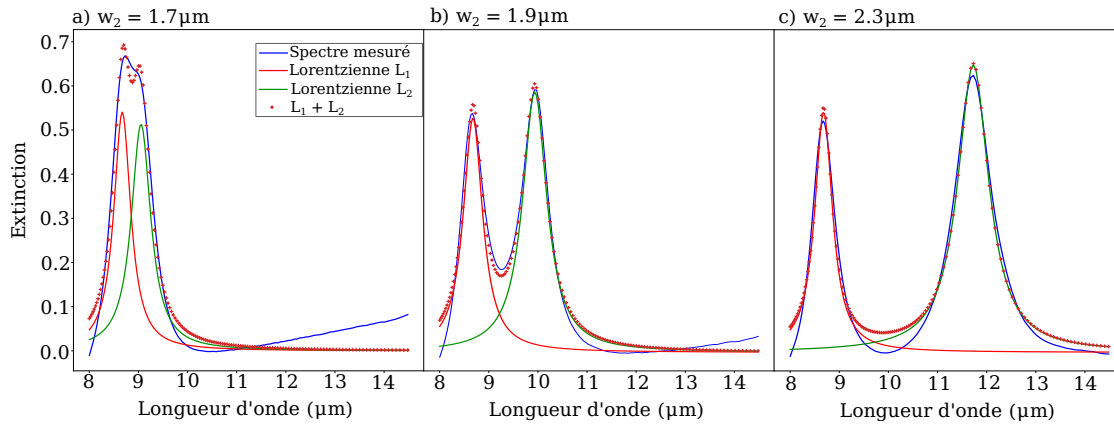


FIGURE 7.5 – Décompositions des spectres de bi-résonateurs de largeurs w_2 variables et $w_1 = 1.6 \mu\text{m}$ à l'aide de fonctions lorentziennes.

Il s'agit ici de calculer le spectre d'un bi-résonateur par la somme de deux résonances indépendantes, dont les pics sont modélisés par deux fonctions lorentziennes. La Fig. 7.5 présente cette modélisation effectuée pour trois bi-résonateurs différents, ayant w_2 valant 1.7, 1.9 et 2.3 μm , avec toujours $w_1 = 1.6 \mu\text{m}$. Les trois échantillons concernés ont tous une densité donnée par $L_{\text{eq}} = 8 \mu\text{m}$. Cette modélisation lorentzienne donne ainsi des résultats assez proches des résonances mesurées expérimentalement.

La Fig. 7.6 rassemble les résultats du calcul des sections efficaces en fonction des tailles des résonateurs grâce à cette décomposition lorentzienne des spectres. On observe les mêmes résultats que sur la Fig. 7.4.

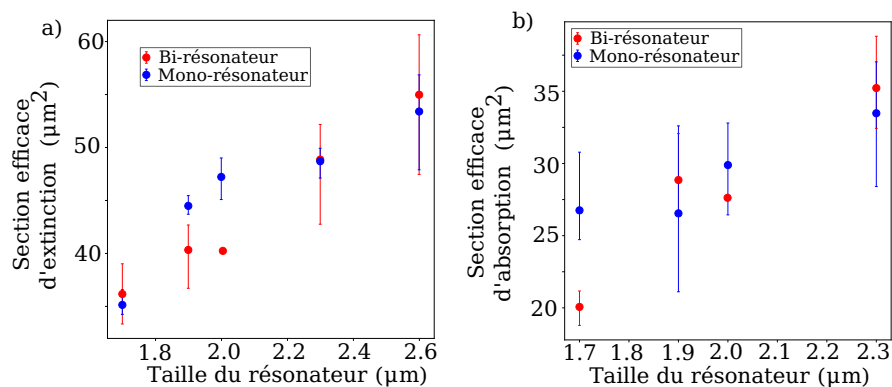


FIGURE 7.6 – Comparaison de la section efficace mesurée par décomposition des résonances pour un ensemble de mono-résonateurs de largeur w variable et pour un ensemble de bi-résonateurs de largeurs $w_2 = w$ variable et $w_1 = 1.6 \mu\text{m}$. ($L_{\text{eq}} = 8, 12$ et $16 \mu\text{m}$) a) Sections efficaces d’extinction. b) Sections efficaces d’absorption.

sans la surestimation de la section efficace des bi-résonateurs proches en dimension et en longueur d’onde de résonance.

Ainsi, la décomposition du spectre sous forme de résonances lorentziennes permet de retrouver la section efficace effective de chaque résonateur au sein d’un ensemble de résonateurs, même quand les résonances sont proches. Cela confirme donc la possibilité de mesurer les sections efficaces de chaque résonateur impliqué dans la combinaison de multi-résonateurs, ce que nous souhaitons avant tout prouver.

7.1.4 Influence de la densité

Les résultats présentés jusque là dans ce chapitre pour la combinaison de résonateurs ont été pour des densités de résonateurs assez faibles, loin de tout couplage potentiel ($L_{\text{eq}} = 16 \mu\text{m}$ à $L_{\text{eq}} = 8 \mu\text{m}$). Parmi les échantillons fabriqués, on a vu au chapitre précédent que certains étaient assez denses pour présenter une saturation, c’est-à-dire une réponse n’évoluant plus linéairement avec la densité. Il se trouve que l’étude de la combinaison de résonateurs donne des résultats inattendus à ces niveaux de densité élevés.

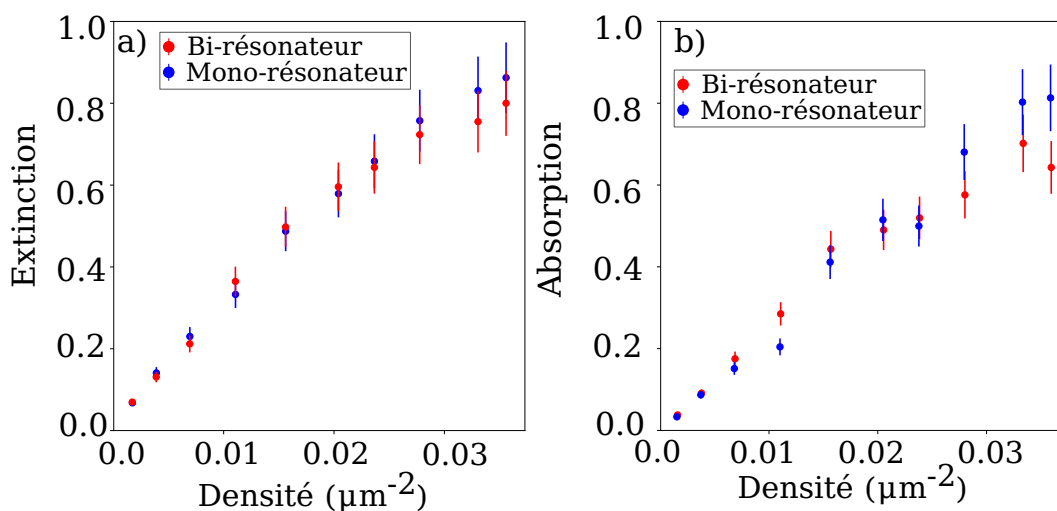


FIGURE 7.7 – Sections efficaces mesurées à $\lambda = 9 \mu\text{m}$ des échantillons de mono-résonateurs de largeur $w = 1.6 \mu\text{m}$ et de bi-résonateurs de largeurs $w_1 = 1.6 \mu\text{m}$ et $w_2 = 2 \mu\text{m}$, en fonction de la densité. Barres d’erreur correspondant à 10% de la valeur mesurée. a) Sections efficaces d’extinction. b) Sections efficaces d’absorption.

Ainsi, la Fig. 7.7b) présente la section efficace d'absorption mesurée pour des échantillons de différentes densités. Les résultats sont présentés pour des résonateurs seuls de $w = 1.6 \mu\text{m}$ et des bi-résonateurs de $w_1 = 1.6 \mu\text{m}$ et $w_2 = 2 \mu\text{m}$. On retrouve à faible densité le comportement linéaire qui valide la notion de section efficace, mais également deux effets intéressants. D'une part, la saturation aux hautes densités est plus marquée pour les bi-résonateurs que pour les mono-résonateurs. D'autre part, pour les densités où il y a saturation, les sections efficaces des bi-résonateurs sont plus faibles que celles des mono-résonateurs, soit le contraire du comportement étudié dans la section précédente.

Il n'est pas évident a priori de savoir comment expliquer ces phénomènes. En effet, jusqu'à présent, la seule influence de la combinaison de résonateurs différents était la somme des contributions des deux résonateurs dans le spectre, entraînant comme on l'a vu l'augmentation des sections efficaces. Ici, nous avons un effet plus complexe, où l'ajout d'un type de résonateur dans un réseau très dense entraîne une saturation, et la diminution de la section efficace d'absorption à la résonance par rapport aux mono-résonateurs. Les incertitudes représentées, toujours de 10% de la valeur de la mesure, sont certes grandes, mais il semble raisonnable de dire que l'écart entre les sections efficaces d'absorption mesurées à la densité maximale est significatif.

La Fig. 7.7a) présente l'évolution de la section efficace d'extinction en fonction de la densité, toujours pour des résonateurs seuls et des combinaisons de résonateurs. L'écart entre les sections efficaces des bi-résonateurs et mono-résonateurs dans les cas de plus hautes densités est plus faible que pour les sections efficaces d'absorption, il n'est donc pas évident que ce soit significatif.

Par ailleurs, il a été montré au chapitre précédent que l'augmentation de la densité faisait diminuer la section efficace de diffusion équivalente d'un ensemble de résonateurs, notamment à cause de l'augmentation de l'ordre qui en découle. Toutefois, le phénomène présenté ici ne peut pas s'expliquer ainsi parce que c'est surtout l'efficacité de l'absorption qui diminue quand on passe de mono-résonateurs à des bi-résonateurs. Nous manquons donc d'une explication satisfaisante à ce phénomène, et des études futures devront s'y atteler. Il serait avant tout nécessaire de faire plus de mesures en absorption, plus précises, avant d'interpréter ces résultats.

7.2 Vérification avec le modèle analytique

La méthode de mesure de sections efficaces proposée précédemment peut donc être étendue à des combinaisons de résonateurs différents. La question de l'effet de la combinaison des résonances a été soulevée, et une solution de décomposition a été proposée pour contourner le problème. Les limites de cette étude sont de ne considérer que des structures hyperuniformes désordonnées, et de manquer de précision pour étudier certains des phénomènes observés. Ici, l'influence du désordre sur la combinaison de résonateurs est étudiée de manière plus précise et plus complète à l'aide du modèle analytique développé et utilisé dans la Partie III.

7.2.1 Objet d'étude : Réseau de bi-sillons

La Fig. 7.8 présente schématiquement le type de structures qui va être étudié pour la combinaison de plusieurs résonateurs. Elle est composée de deux sillons de géométries différentes, répétés d'abord périodiquement puis dont les positions seront perturbées. La perturbation des positions de chaque type de sillon est, comme dans le cas avec un seul sillon, contrôlée par un Facteur de Désordre (FD). La différence fondamentale avec le cas mono-sillon est la possibilité de définir deux FD différents, FD_1 et FD_2 , afin de fixer une valeur différente pour chaque FD et perturber donc de manière différente chaque type de sillons. Cela permet notamment de garder un sillon périodique en désordonnant l'autre, donnant accès à des degrés de liberté non représentés dans l'étude expérimentale.

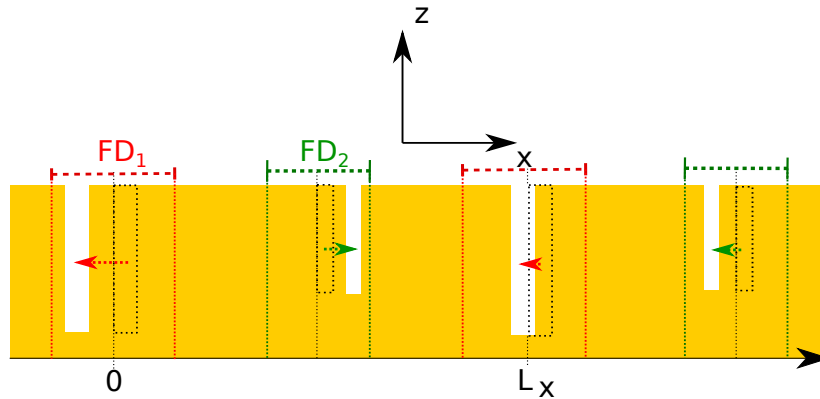


FIGURE 7.8 – Représentation schématique d'un réseau de bisillons, et de la définition de deux facteurs de désordre indépendants, FD_1 et FD_2 .

7.2.2 Spectres de sillons non couplés

La Fig. 7.9 présente la réponse spectrale de la structure de bisillons de dimensions $w^{(1)} = w^{(2)} = 0.25 \mu\text{m}$, $h^{(1)} = 3 \mu\text{m}$, $h^{(2)} = 2 \mu\text{m}$ et $L_x = 6 \mu\text{m}$, dans plusieurs cas. La Fig. 7.9a) présente la situation ordonnée, où on retrouve les résonances du sillon étudié dans le Chapitre 4, y compris la diffraction pour $\lambda_3 = 4.65 \mu\text{m} < L_x$, ainsi qu'une résonance supplémentaire à $10 \mu\text{m}$, provenant du deuxième sillon moins profond. Ces résonances sont éloignées spectralement afin d'assurer leur indépendance. La Fig. 7.9b) présente la situation complètement désordonnée $FD_1 = FD_2 = 6 \mu\text{m}$, où la diffusion apparaît au niveau des résonances et remplace la diffraction quand il y en a, exactement comme dans le cas mono-sillon. Les Fig. 7.9c-d) sont les cas réellement nouveaux, puisqu'on y a désordonné un type de sillon ($FD \neq 0$) et pas l'autre ($FD = 0$). On note alors que la diffusion n'apparaît qu'à certaines résonances, et plus précisément seulement aux résonances du type de sillon qui a été désordonné. Cela signifie que la réponse spectrale d'un réseau de sillons périodique n'est pas modifiée par la présence d'un autre réseau désordonné sur la même surface. On a donc une forme de sélectivité de l'effet du désordre, lié à l'aspect résonant des spectres étudiés.

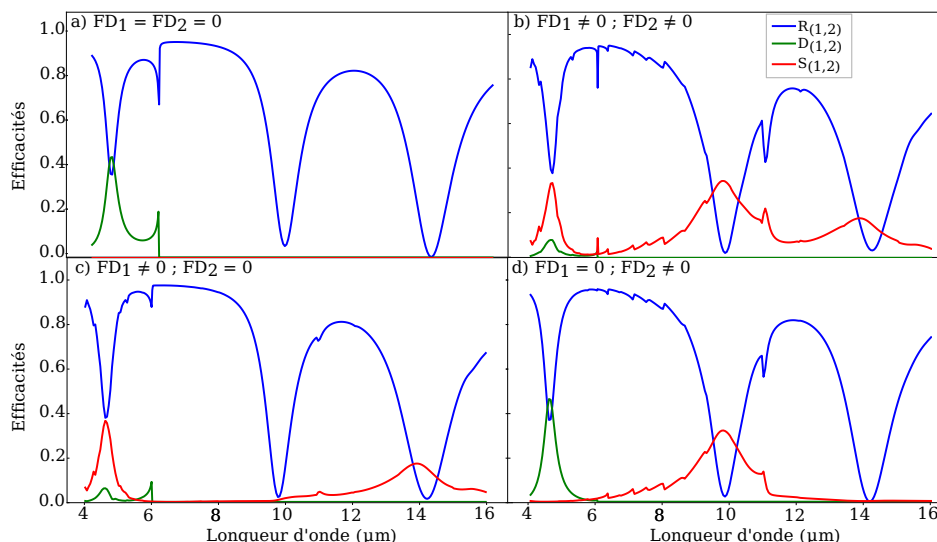


FIGURE 7.9 – Spectres de bi-sillons ($w^{(1)} = w^{(2)} = 0.25 \mu\text{m}$, $h^{(1)} = 3 \mu\text{m}$, $h^{(2)} = 2 \mu\text{m}$, $L_x = 6 \mu\text{m}$) calculés numériquement. a) Cas ordonné. b) Cas désordonné. c) Cas mixte, seul le sillon plus profond est désordonné. d) Cas mixte, seul le sillon moins profond est désordonné.

Cette sélectivité du désordre permet la conception de spectres complexes, présentant une absorption

totale à une longueur d'onde et de la diffusion et/ou de la diffraction à une autre, par exemple. Cela permet de s'affranchir de la limite observée dans la Partie III où nous avons constaté que l'utilisation d'une structure désordonnée empêchait d'avoir une absorption totale. Cela permet également d'avoir des résonances présentant autant de diffraction qu'une structure périodique, comme visible sur Fig. 7.9d). Ce spectre est d'ailleurs un bon exemple de la complexité des réponses qu'il est possible de concevoir, puisqu'il combine absorption totale à 14.2 μm , diffusion à 10 μm et diffraction à 4.65 μm .

7.2.3 Modélisation simplifiée

L'intérêt de la combinaison de plusieurs résonateurs repose donc sur la possibilité d'obtenir des réponses spectrales complexes et ajustables par plusieurs paramètres (la profondeur et le FD de chaque sillon). En contrepartie, l'optimisation d'une telle structure est d'autant plus ardue qu'elle a plus de paramètres libres qui doivent être choisis. C'est pourquoi il peut être intéressant d'essayer de simplifier le problème, en considérant chaque réseau de sillons indépendamment.

En s'appuyant sur l'hypothèse d'indépendance des résonances des sillons, il est possible de calculer la réponse de la combinaison de sillons à partir des réponses des sillons individuels.¹ Une façon intuitive de le justifier est de se placer dans une vision probabiliste du point de vue des photons, et de dire ainsi que la réflectivité de la surface, par exemple, est la probabilité pour un photon d'échapper à l'absorption par chaque sillon, ainsi qu'à la diffraction. C'est donc, en somme, la probabilité qu'il soit réfléchi par les deux sillons, donc le produit des réflectivités de chaque sillon si on considère qu'ils sont indépendants. En étendant cette logique aux différents composants du spectre, cela donne les formules suivantes pour la réflexion, la diffraction, la diffusion et l'absorption d'une combinaison de résonateurs :

$$\begin{aligned} R^{(1,2)} &= R^{(1)}R^{(2)} \\ D^{(1,2)} &= 1 - (1 - D^{(1)})(1 - D^{(2)}) \\ S^{(1,2)} &= 1 - (1 - S^{(1)})(1 - S^{(2)}) \\ A^{(1,2)} &= 1 - (1 - A^{(1)})(1 - A^{(2)}) \end{aligned}$$

où les indices ⁽¹⁾, ⁽²⁾ et ^(1,2) désignent les réponses spectrales des réseaux de sillons 1 seuls, de sillons 2 seuls, et de la combinaison des sillons, respectivement.

On constate, dans cette formulation, une différence fondamentale entre la réflexion et les autres canaux. Cela est dû au fait que la réflexion est le seul cas où les photons doivent, toujours dans notre explication "avec les mains", échapper aux sillons, ce qui est d'autant plus improbable s'il y en a deux. À l'inverse, un photon a d'autant plus de chance d'être absorbé (resp. diffracté ou diffusé) s'il y a plusieurs sillons pouvant l'absorber (resp. le diffracter ou le diffuser). Une façon de se ramener à quatre variables semblables est de parler, comme nous l'avons beaucoup fait jusqu'à présent, en termes d'extinction, $E = 1 - R$. On a alors :

$$E^{(1,2)} = 1 - (1 - E^{(1)})(1 - E^{(2)}) \quad (7.1)$$

$$D^{(1,2)} = 1 - (1 - D^{(1)})(1 - D^{(2)}) \quad (7.2)$$

$$S^{(1,2)} = 1 - (1 - S^{(1)})(1 - S^{(2)}) \quad (7.3)$$

$$A^{(1,2)} = 1 - (1 - A^{(1)})(1 - A^{(2)}) \quad (7.4)$$

¹KOECHLIN et al., «Analytical description of subwavelength plasmonic MIM resonators and of their combination»

7.2 Vérification avec le modèle analytique

Par ailleurs, ces expressions donnent, en négligeant les termes croisés :

$$E^{(1,2)} \simeq E^{(1)} + E^{(2)} \quad (7.5)$$

$$D^{(1,2)} \simeq D^{(1)} + D^{(2)} \quad (7.6)$$

$$S^{(1,2)} \simeq S^{(1)} + S^{(2)} \quad (7.7)$$

$$A^{(1,2)} \simeq A^{(1)} + A^{(2)} \quad (7.8)$$

ce qui correspond à la décomposition du spectre par la somme de deux résonances indépendantes, présentée section 7.1.3.

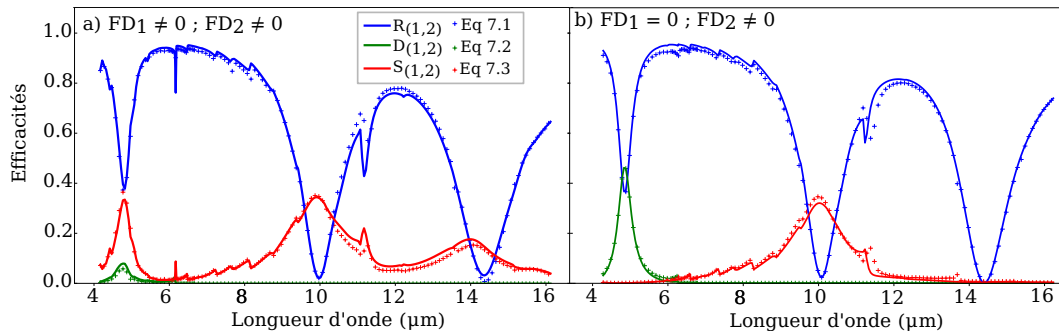


FIGURE 7.10 – Spectres de bi-sillons (traits pleins) et produits des spectres des sillons indépendants selon les Eq. 7.1, 7.2 et 7.3 ($w^{(1)} = w^{(2)} = 0.25 \mu\text{m}$, $h^{(1)} = 3 \mu\text{m}$, $h^{(2)} = 2 \mu\text{m}$, $L_x = 6 \mu\text{m}$), calculés avec la méthode analytique. a) Cas complètement désordonné. b) Cas mixte, seul le sillon le moins profond est désordonné.

La comparaison entre spectre calculé et prédictions des Eq. 7.1, 7.2 et 7.3 est ainsi représentée par des croix sur la Fig. 7.10. On observe un très bon accord entre la prédiction faite à partir des réponses des sillons individuels et la réponse réelle de la combinaison des sillons. Cela signifie qu'il est possible de modéliser avec précision la réponse d'une combinaison de résonateurs à partir des réponses des résonateurs individuels. Cela est un gain considérable, non seulement en temps de calcul puisque la simulation de réseaux de résonateurs uniques est significativement plus rapide que la simulation de combinaison de résonateurs, mais aussi en gymnastique cérébrale puisqu'il est possible d'optimiser les résonateurs indépendamment sans devoir prendre en compte des couplages modifiant leurs réponses.

Toutefois, cela est limité par l'hypothèse d'indépendance des résonances, nécessitant notamment des longueurs d'onde de résonances éloignées spectralement.

7.2.4 Cas de sillons spectralement proches

La suite logique est donc d'étudier des réseaux de bisillons dont les résonances sont plus proches spectralement, afin de tester la robustesse de la modélisation des spectres présentée ci-dessus.

La Fig. 7.11 présente donc la même étude de réseaux de bisillons, cette fois-ci pour deux sillons dont les résonances sont beaucoup plus proches spectralement. En effet, leurs profondeurs respectives sont choisies à $h^{(1)} = 1.9 \mu\text{m}$ et $h^{(2)} = 2.2 \mu\text{m}$, ($w_1 = 0.17 \mu\text{m}$, $w_2 = 0.3 \mu\text{m}$ et $L = 6 \mu\text{m}$), donnant des résonances à $9.5 \mu\text{m}$ et $10.5 \mu\text{m}$. Les largeurs à mi-hauteur des résonances étant de l'ordre du μm , ces résonances se chevauchent assez largement. Les résonateurs, eux, restent à une distance supérieure à l'épaisseur de peau du métal, pour éviter les couplages directs.

Différents spectres utiles à cette étude sont représentés. Les Fig. 7.11a) et b) présentent d'abord les spectres des résonateurs individuels, dans le cas a) ordonné $FD = 0$ et b) désordonné $FD = 6 \mu\text{m}$. On y vérifie que les résonances sont proches spectralement, et qu'il existe donc des longueurs d'onde pour lesquelles

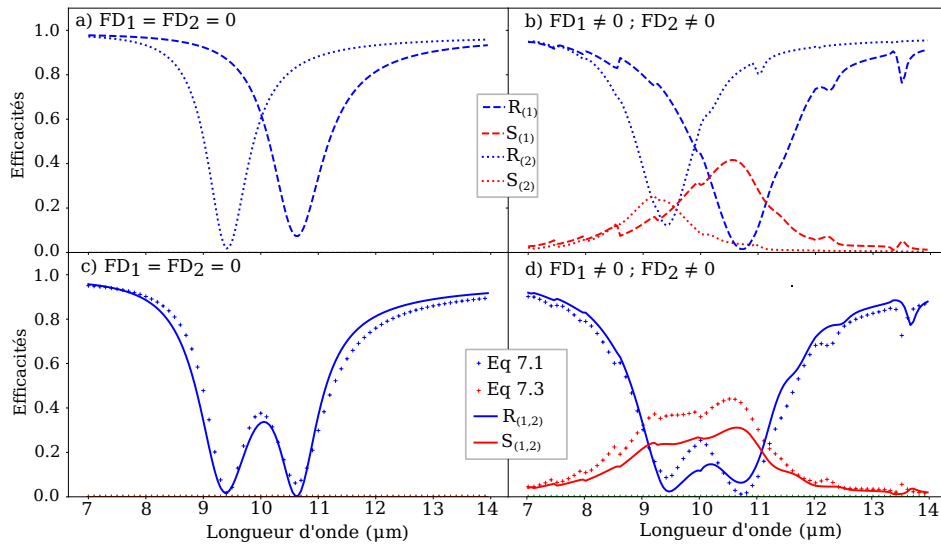


FIGURE 7.11 – Spectre de bi-sillons proches spectralement ($h_1 = 1.9 \mu\text{m}$ et $h_2 = 2.2 \mu\text{m}$, $w_1 = 0.17 \mu\text{m}$ et $w_2 = 0.3 \mu\text{m}$, $L_x = 6 \mu\text{m}$) et produits des réseaux indépendants selon les Eq. 7.1 et 7.3.

les deux sillons résonnent simultanément. Ensuite, les Fig. 7.11c) et d) présentent les spectres calculés des structures de bi-sillons (traits pleins), ainsi que les valeurs des Eq. 7.1 et 7.3 combinant les réponses de réseaux indépendants (croix). Ceci est ici aussi représenté à la fois pour le cas c) ordonné, et d) désordonné. Le spectre ordonné est assez bien prédit par la combinaison de résonateurs indépendants. Cependant, pour le spectre désordonné, la prédiction de la diffusion par l'Eq. 7.3 surestime celle de la combinaison de sillons, et l'accord est de manière général beaucoup moins bon.

Cela signifie que dans ce cas de résonances spectralement proches, les résonances indépendantes ne suffisent plus à prédire le comportement global, surtout dans le cas désordonné. Si l'important est la position des résonances, celles-ci restent bien prédites par la combinaison des résonateurs indépendants, puisqu'elles correspondent aux longueurs d'onde de résonance des sillons individuels. Toutefois, si le but est de quantifier la diffusion ou l'absorption d'une combinaison de résonateurs, l'étude des résonateurs indépendants ne fournira pas d'informations quantitatives.

Une façon d'expliquer cette surestimation de la diffusion est de se rapporter à l'étude effectuée en section 6.1.2, qui montrait que la diffusion diminuait avec la densité de résonateurs. Ici, comme les résonances sont très proches, la lumière "voit" effectivement les deux sillons simultanément, donc l'ajout d'un type de résonateur peut correspondre à une augmentation de la densité apparente de la surface, entraînant une diminution de l'efficacité de la diffusion.

Une question que l'on peut se poser à ce stade, est s'il est malgré tout possible de modéliser le spectre de diffusion obtenu par la somme de deux résonances indépendantes. Si oui, cela signifie que cette décomposition n'implique pas l'indépendance des résonateurs. La Fig. 7.12 présente ainsi la décomposition sous formes de fonctions lorentziennes des spectres présentés Fig. 7.11d). On peut y observer que malgré la perte de l'indépendance des résonateurs, il est toujours possible de trouver des fonctions lorentziennes représentant très fidèlement les résonances.

Cela permet d'une part de déterminer des sections efficaces pour des résonateurs couplés. Par exemple, ici, les sections efficaces d'extinction des deux résonateurs sont proches, mais le résonateur plus profond (résonant à plus grande longueur d'onde), a une plus grande section efficace d'absorption. En contrepartie, le résonateur moins profond a une section efficace de diffusion plus grande. Cela semble aller dans le sens d'une plus grande diffusion pour des longueurs d'onde plus faibles, correspondant au modèle de la diffusion de Rayleigh mentionné précédemment. D'autre part, cela montre que la possibilité de cette dé-

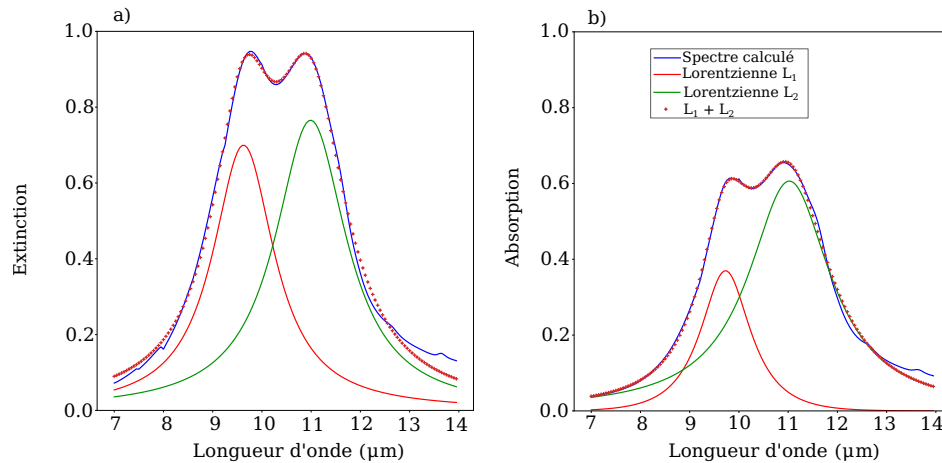


FIGURE 7.12 – Décomposition à l’aide des fonctions lorentziennes du spectre calculé des bi-sillons proches spectralement désordonnés ($h_1 = 1.9 \mu\text{m}$ et $h_2 = 2.2 \mu\text{m}$, $w_1 = 0.17 \mu\text{m}$ et $w_2 = 0.3 \mu\text{m}$, $L_x = 6 \mu\text{m}$). a) Extinction. b) Absorption.

composition n’est pas une garantie d’indépendance des résonances. Les sections efficaces calculées avec cette méthode sont donc potentiellement difficiles à interpréter, puisqu’elles ne correspondent pas nécessairement à la contribution d’un seul des résonateurs.

Ces simulations de bi-sillons montrent que l’étude de structures composant plusieurs résonateurs est complexe et nécessite certaines précautions pour interpréter les mesures expérimentales. La combinaison des réponses individuelles est ainsi un phénomène complexe, même sans couplage direct, qui mériterait d’être étudié plus en détail.

Conclusion

Dans ce chapitre, j’ai présenté les études de combinaison de résonateurs, à la fois par des mesures expérimentales sur des résonateurs MIM 2D et par des simulations numériques de sillons 1D. Il a été montré que dans les cas étudiés ici, la réponse optique d’une combinaison de résonateurs peut se décomposer en la contribution des différents résonateurs.

Il est ainsi possible de modéliser une combinaison de résonateurs à partir des résonateurs individuels, tant que leurs résonances ne sont pas trop proches spectralement ($\Delta\lambda > \lambda/10$). Il a également été relevé, à l’inverse, que des résonateurs dont les résonances sont proches ne sont plus modélisés correctement par une telle combinaison. Cela ouvre malgré tout la porte à la conception de structures combinant plusieurs résonateurs de dimensions différentes, et présentant une réponse optique complexe.

Par ailleurs, il a été montré que la précision spectrale de la mesure de section efficace présentée au chapitre précédent est suffisante pour étudier les contributions de chaque résonateur à la section efficace d’un ensemble de multi-résonateur. Cela renforce l’intérêt de cette méthode de mesure, et en fait un outil utile pour la caractérisation de structures complexes.

Conclusion et perspectives

L'objectif de cette thèse est l'ingénierie du comportement optique de métasurfaces composées de nanostructures métalliques désordonnées dans le domaine infrarouge, et le développement des outils à la fois numériques et expérimentaux nécessaires à leur conception et à leur étude.

Dans la première partie de ce manuscrit, après avoir introduit les notions importantes, des structures métalliques d'abord, puis des structures désordonnées, j'ai présenté comment l'intersection des propriétés résonantes des unes, notamment l'excitation de plasmons, et des propriétés de contrôle de la répartition spatiale de la lumière des autres, peuvent se rejoindre pour fournir assez de degrés de liberté pour contrôler complètement le comportement optique d'une surface. Les travaux récents dans ces domaines ont été exposés, montrant l'entrain qu'ils suscitent et le grand nombre d'applications concrètes permises par l'ingénierie de comportements optiques. Enfin, j'ai présenté les études menées par les doctorants m'ayant précédé au sein de l'équipe où j'ai effectué ma thèse, pour mettre en avant l'état des connaissances au début de mon travail et les axes de recherches à privilégier.

La deuxième partie de ce manuscrit s'est concentrée sur l'étude numérique de réseaux de MIM sillons 1D, et plus précisément sur l'évolution de leur réponse optique lors de l'ajout de désordre au sein d'un réseau périodique. Pour ce faire, une méthode de simulation optimisée pour les ensembles de MIM sillons est détaillée et validée, permettant de réduire la simulation de la réponse optique de la surface à la résolution d'un système d'équations linéaires. Le gain de temps par rapport aux méthodes de calcul utilisées précédemment dans l'équipe, ainsi que le maintien d'une bonne précision dans les résultats, ont été vérifiés. Notamment, un domaine de validité a été établi, concernant des sillons assez fins devant la longueur d'onde. De plus, les valeurs de paramètres importants assurant la validité des résultats (nombre de modes réfléchis calculés, nombres de résonateurs désordonnés) ont été données.

Grâce à cette méthode de simulation rapide, les effets du désordre sur la répartition spatiale et spectrale de l'énergie électromagnétique ont pu être identifiés précisément. J'ai ainsi montré que la conversion de la diffraction en diffusion lors de l'ajout de désordre, connue pour des résonateurs MIM de type patch, était aussi valable pour des MIM sillons. Cela permet ainsi la conception de structures diffusant la majeure partie de l'énergie incidente. La perte d'absorption totale lors de l'ajout de désordre à une structure sub-longueur d'onde a également été montrée, effet jusqu'alors négligé. Le modèle a ensuite été étendu à l'étude de fentes traversant la couche métallique et pouvant donc transmettre la lumière à travers celle-ci. Le phénomène de

transmission optique extraordinaire, où la lumière traverse des fentes de largeur sub-longueur d'onde, a ainsi pu être étudié dans le cas d'ensembles de fentes désordonnés, mettant en lumière la double contribution de la périodicité et du comportement résonant des fentes métalliques.

Les perspectives de cette partie sont avant tout la possibilité d'étudier dans le détail des ensembles désordonnés, et de connaître leur comportement grâce à la méthode de simulation rapide développée. Les MIM sillons, en plus d'être simples à modéliser, peuvent constituer des structures tests fiables car très proches des résonateurs MIM patches utilisés plus couramment. La limite majeure de la méthode de simulation actuelle est sa restriction aux structures 1D, et le manque de méthodes de simulation 2D optimisées pour les structures désordonnées. Des travaux importants de développement d'algorithmes de simulation 2D rapides devront être menés afin de répondre à ce besoin spécifique. L'étude sur la transmission extraordinaire dans les structures désordonnées a ouvert la voie au contrôle complet de la répartition angulaire de l'énergie lumineuse réfléchie et transmise. Une étape future importante serait de faire une étude semblable en deux dimensions, qu'elle soit numérique ou expérimentale, pour avoir un plus grand nombre de degrés de liberté et notamment étudier le comportement en fonction du type de désordre (perturbatif, hyperuniforme, aléatoire).

Enfin, la troisième partie de ce manuscrit s'est concentrée sur la caractérisation expérimentale d'ensembles de résonateurs MIM patches désordonnés. L'enjeu est alors de caractériser complètement le comportement d'un échantillon désordonné, sans avoir besoin de mesurer directement la diffusion. Pour ce faire, j'ai proposé l'utilisation de distributions hyperuniformes de résonateurs, un type de désordre corrélé assurant l'absence de diffraction. Les mesures de la réflectivité et de l'absorption de ces structures suffisent alors pour avoir également accès à la diffusion, par conservation de l'énergie. Le protocole de mesure en réflectivité et émissivité a ensuite été présenté, ainsi que ses sources d'erreur et les pistes d'amélioration possibles. L'ordre de grandeur de l'erreur sur les mesures a été estimé à 10%.

La caractérisation des échantillons désordonnés de différentes densités a ensuite été présentée, afin d'accéder expérimentalement aux sections efficaces d'extinction, d'absorption et de diffusion des résonateurs uniques. Il a été montré notamment que la section efficace d'absorption des résonateurs uniques pouvait se déduire fiablement des mesures d'émissivité d'ensembles désordonnés, et qu'elle était de l'ordre de $\lambda^2/4$, λ étant la longueur d'onde de résonance, dans le cas de résonateurs MIM patches carrés. L'évolution de ces sections efficaces en fonction de différents paramètres géométriques (taille et rapport d'aspect) a été étudiée expérimentalement, et l'ordre de grandeur obtenu a été validé par des simulations numériques de résonateurs uniques. L'influence non triviale de la densité sur la section efficace de diffusion, et donc sur la section efficace d'extinction totale, a également été mise en lumière.

Enfin, des ensembles désordonnés constitués de deux résonateurs de dimensions différentes ont également été caractérisés avec ce même protocole expérimental, afin d'étudier l'influence de la cohabitation de plusieurs résonateurs sur leurs réponses individuelles. Il a été prouvé qu'il était toujours possible de calculer les sections efficaces des résonateurs uniques à partir des mesures, y compris quand les résonateurs avaient des résonances proches. Cette étude a été complétée par l'étude de réseaux 1D constitués de MIM sillons de deux tailles différentes, à l'aide de la méthode numérique développée dans la deuxième partie. Cela a permis de montrer que l'on pouvait mélanger ordre et désordre entre les différents types de résonateurs, afin de tirer parti de la sélectivité spectrale des effets du désordre et donc de concevoir des réponses optiques très complexes, combinant diffusion et diffraction notamment.

Les perspectives sur cette partie de mon travail concernent notamment l'étude de la répartition entre diffusion et absorption, ou entre pertes radiatives et pertes non-radiatives, en fonction des formes et distributions des résonateurs. Ce domaine est important car la conception de nombreuses structures nécessite non seulement le contrôle des positions spectrales et intensités des résonances de ces structures, mais également l'optimisation de la redirection de l'énergie électromagnétique vers l'un ou l'autre de ces canaux.

Conclusion et perspectives

Des études prenant en compte encore plus de paramètres physiques et géométriques, comme l'épaisseur ou l'indice du diélectrique au sein du résonateur MIM, permettraient de trouver des lois d'optimisation. Ensuite, la combinaison de plusieurs résonateurs et la possibilité de mélanger ordre et désordre permettent la conception de structures ayant une réponse optique très variée entre les différentes longueurs d'onde de résonance. Cela est important dans certains domaines comme la furtivité ou le refroidissement radiatif, où on veut avoir des surfaces diffusant certaines longueurs d'onde mais absorbant d'autres par exemple. La vérification expérimentale de ces résultats est prochainement prévue dans l'équipe, permettant d'étudier les différences pouvant exister entre les cas 1D et 2D.

Annexes

Annexe

A

Méthode modale de simulation 2D

Sommaire

A.1 Les bases de BMM 1D	107
A.2 BMM 2D	109
A.2.1 Le casse-tête du passage en 2D	109
A.2.2 Une idée : les T-Splines	110
A.2.3 Relations de continuité et de périodicité	111

Dans le Chapitre 3, le modèle analytique que j'ai développé est comparé à une méthode modale exacte, la B-Spline Modal Method (BMM), pour vérifier que les résultats obtenus sont corrects. Cette méthode BMM est néanmoins elle aussi limitée à des structures 1D, et une des ambitions de ma thèse a été de m'en inspirer pour développer une méthode de simulation 2D.

Les avantages de la méthode BMM 1D sont d'être particulièrement rapide, fiable, polyvalente, et très bien maîtrisée par l'équipe dont j'ai fait partie. Elle s'inscrit dans le cadre de l'analyse iso-géométrique, domaine du calcul numérique se servant de la puissance des méthodes de modélisation utilisées pour l'animation 3D. Cependant, l'extension d'un algorithme 1D à un algorithme 2D n'est pas triviale, comme je vais l'expliquer dans cette annexe.

A.1 Les bases de BMM 1D

Pour comprendre ce que j'ai souhaité faire, il est plus simple de partir de l'algorithme existant pour BMM 1D. Le but de cet algorithme est de calculer la réponse optique d'une métasurface périodique, définie comme un empilement de couches. Dans chaque couche, on utilise une technique d'interpolation pour trouver les modes possibles du champ électromagnétique. Cette interpolation, par exemple pour le champ magnétique H , s'écrit :

$$H(x) = \sum_i N_i(x)P_i,$$

où les $\{N_i(x)\}_i$ sont des fonctions utilisées pour l'interpolation, et les P_i sont les "poids" à attribuer à chacune de ces fonctions pour que le résultat respecte les équations de Maxwell.

Une technique très courante d'interpolation des modes électromagnétiques est la méthode FMM¹ pour Fourier Modal Method, pour laquelle la famille de fonctions $\{N_i(x)\}_i$ d'interpolation est une suite de cos ou de sin de fréquences croissantes. Ce type de méthode est assez utilisé et a donné lieu à des optimisations permettant de contrebalancer leur limite principale : la représentation de champs variant rapidement nécessite des fréquences très élevées, donc un très grand nombre de fonctions, donc une grande complexité de calcul.

BMM signifie B-Splines Modal Method, où "B-Splines" désigne une famille de fonctions très pratique pour pallier ce problème dans le cadre de l'interpolation de grandeurs physiques. En effet, celles-ci sont

¹L. Li, [Fourier modal method](#)

polynomiales (donc faciles à calculer et représenter), définies par morceaux (donc plus flexibles), et surtout, à support local, au sens où elles ne sont non nulles que sur une petite zone de l'espace (donc pouvant varier très vite localement sans que cela se répercute dans tout l'espace de calcul).

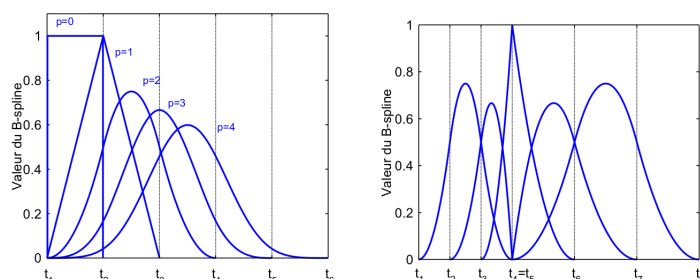


FIGURE A.1 – a) Valeurs de splines en fonction du degré des polynômes utilisés. b) Exemple d'ensemble de splines définies sur un maillage non régulier.

Pour les définir, il suffit de se donner un maillage, c'est-à-dire un ensemble de points $\{x_j\}_j$ espacés régulièrement ou non, répartis dans tout l'espace où on souhaite faire le calcul physique. Il existe alors une relation de récurrence simple permettant de calculer les Splines jusqu'au degré souhaité². La Fig. A.1 présente un exemple de ces fonctions, avec sur la Fig. A.1a) l'évolution des fonctions avec un même maillage mais un degré p variable, et sur la Fig. A.1b) un exemple de fonctions pour un maillage non régulier. On peut noter sur la Fig. A.1b) que la présence d'un point dégénéré (plusieurs points au même endroit) peut entraîner des discontinuités dans les dérivées des fonctions. Cela peut être souhaitable puisqu'à l'interface entre deux milieux, les champs électromagnétiques ne sont pas nécessairement de dérivées continues.

L'interpolation du champ nécessite alors de décider de points d'interpolation $\{t_k\}_k$ qui ne sont pas nécessairement les mêmes que les points de maillage. Le calcul consiste ensuite en la recherche des valeurs P_i telles que $\forall k, H = \sum_i N_i(t_k)P_i$ vérifie les équations de Maxwell.

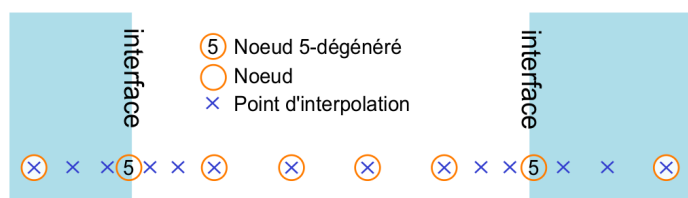


FIGURE A.2 – Exemple de maillage (nœuds) et de points d'interpolation utilisés pour BMM 1D.

Pour résoudre ce problème, il faut donc arriver à trouver un maillage et un ensemble de points d'interpolation pertinents. Cela nécessite d'abord de placer des points de maillage dégénérés là où il y a des interfaces créant des discontinuités dans le champ électromagnétique. Ensuite, il est important de placer plus de points d'interpolation là où la variation du champ électromagnétique sera plus rapide ou plus importante, en général près des interfaces. La Fig. A.2 présente le concept de maillage utilisé pour la méthode BMM 1D utilisée dans l'équipe. Je renvoie au travail de Patrick Bouchon³ pour plus de détails.

Une fois les splines définies par un maillage, et les points d'interpolation choisis, l'étape suivante consiste en la résolution d'une équation aux modes propres obtenue à partir des équations de Maxwell afin de connaître les modes du champ électromagnétique que peut héberger chaque couche. Pour calculer la ré-

²COX, « The numerical evaluation of B-splines »; DE BOOR, « On calculating with B-splines »

³BOUCHON, « Ingénierie d'indice optique à base de nanostructures métalliques »; BOUCHON et al., « Fast modal method for subwavelength gratings based on B-spline formulation »

ponse optique de la surface complète, un calcul de matrices S et les conditions de continuité aux interfaces sont utilisées⁴

A.2 BMM 2D

A.2.1 Le casse-tête du passage en 2D

Maintenant, la difficulté principale de l'adaptation des B-Splines à une méthode de résolution 2D réside dans la façon de mailler notre zone de calcul et de définir les B-Splines sur ce maillage. Les étapes suivantes, à savoir la définition d'une équation aux modes propres à partir des équations de Maxwell, sa résolution, et l'utilisation d'un algorithme de matrice S pour calculer la réponse optique totale, sont plus simples, car relevant directement de la physique des ondes électromagnétiques ou des méthodes de calcul numérique. (À quelques exceptions près que je soulèverai plus loin).

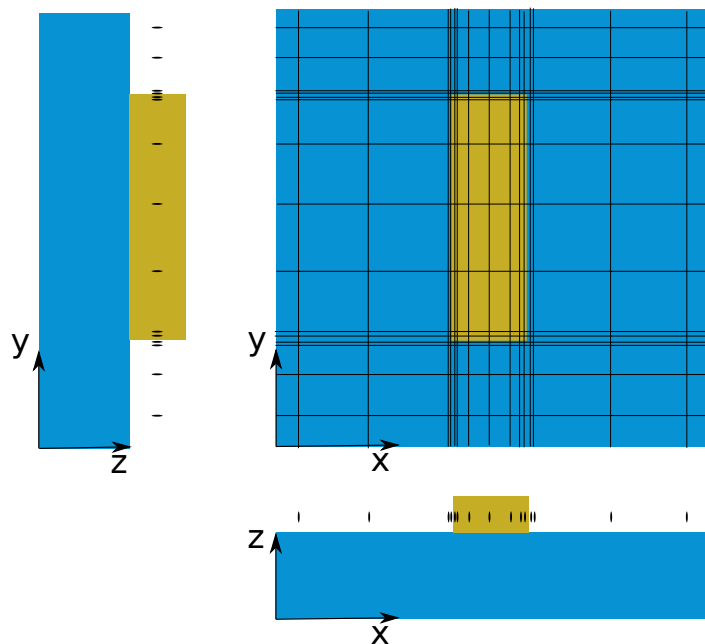


FIGURE A.3 – Exemple de maillage 2D basé sur le croisement de deux maillages 1D.

La définition de notre famille de fonctions est donc la partie la plus difficile pour le passage en 2D. La façon peut-être la plus intuitive d'effectuer ce rajout d'une dimension au problème est de simplement projeter la structure 2D sur deux sous-problèmes 1D orthogonaux, et d'utiliser les méthodes de maillage déjà utilisées en 1D. Ce raisonnement, appliqué à une structure composée d'une couche de diélectrique et d'un bâtonnet métallique rectangulaire, est présenté sur la Fig. A.3, où les deux structures à gauche et en bas représentent les projections dans le plan yOz et xOz de la structure définie au centre. Les petits traits noirs sur ces projections définissent les points du maillage sur lesquels on peut définir les B-Splines 1D.

On aura alors les $N_i(x)$ et les $M_j(y)$ définis par leurs maillages respectifs, et on pourra essayer d'interpoler le champ $H(x, y)$ avec :

$$H(x, y) = \sum_{i,j} N_i(x)M_j(y)P_{i,j}.$$

Le problème avec cette méthode peut se deviner sur le maillage obtenu sur la Fig. A.3 : le fait de considérer le maillage 2D comme le "produit" de deux maillages 1D vient complètement négliger le fait qu'une

⁴L. Li, « Note on the S-matrix propagation algorithm ».

structure 2D possède, entre autres, des coins. Ici, mettre une haute densité de points près des arêtes des projections 1D de la structure, ce qui permet normalement de mieux représenter la physique du système, vient placer de nombreux points loin des bords de la structure 2D, où le système évolue lentement. On aura donc un problème de sur-sensibilité à des zones peu intéressantes, et une sous-sensibilité là où toute la physique a lieu, sans parler du sur-coût en mémoire et temps de calcul.

Pour avoir essayé de l'implémenter, cette méthode ne parvient pas à résoudre les modes électromagnétiques de surfaces non-structurées, c'est-à-dire qu'elle ne retrouve pas les modes de diffraction d'une structure périodique. Il faut donc trouver une méthode plus efficace pour mailler notre domaine de calcul.

A.2.2 Une idée : les T-Splines

Parce que je ne suis pas le seul à avoir identifié ce problème de maillage, une solution permettant de le contourner a été développée : les T-Splines⁵. Elles portent ce nom simplement parce qu'au lieu d'être le produit de B-Splines de deux dimension orthogonales, formant un maillage complet, elles sont définies sur des maillages pouvant avoir des jonctions en "T", comme représenté sur la Fig. A.4

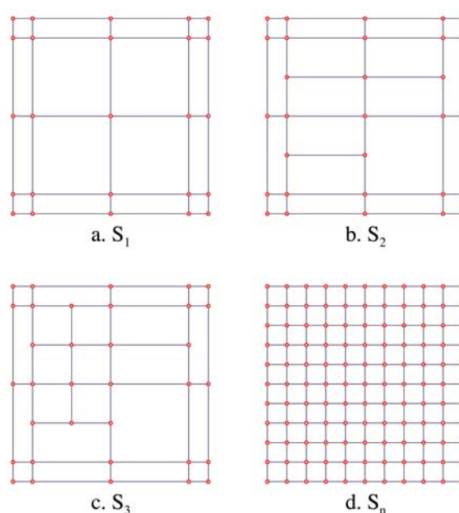


FIGURE A.4 – Exemples de maillages de T splines. a) et d) sont des maillages complets. b) et c) sont des maillages comportant des jonctions en T⁶

Ces T-Splines sont toutefois assez difficiles à prendre en main, d'abord pour toute personne souhaitant s'en servir parce qu'elles doivent répondre à beaucoup de contraintes mathématiques, notamment pour garantir la continuité et la norme des fonctions, mais plus particulièrement pour des physiciens parce que ces fonctions (tout comme les B-Splines) sont majoritairement développées pour la génération d'image 3D. Elles sont donc implémentées dans de nombreux logiciels de traitement d'image (Inkscape pour n'en citer qu'un, sans que cette thèse n'aurait pas vu le jour), mais peu dans des langages de programmation scientifique.

Étant donné la complexité du problème et parce qu'en thèse le temps est précieux, je n'ai pas voulu coder par moi-même un module Python gérant ces T-Splines. C'était peut-être, a posteriori, une mauvaise décision, parce qu'il existe plusieurs articles expliquant comment les implémenter⁷ et que les implémenter par moi-même m'aurait permis d'avoir l'aisance et le recul nécessaire à surmonter les difficultés ultérieures.

⁵ SEDERBERG et al., « T-spline simplification and local refinement »; SEDERBERG et al., « T-splines and T-NURCCs »

⁶ RYPL et al., « Object oriented implementation of the T-spline based isogeometric analysis »

⁷ BAZILEVS et al., « Isogeometric analysis using T-splines »; RYPL et al., « Object oriented implementation of the T-spline based isogeometric analysis »

Heureusement pour moi, une équipe autrichienne a développé une librairie en C, appelée G+Smo (Geometry + Simulation), permettant justement de faire de l'analyse iso-géométrique avec des B-Splines, T-Splines, ou autres familles de fonctions analogues.⁸ Cette librairie est plutôt bien documentée, mais, au moins à l'époque où je m'en suis servi, peu adaptée à la résolution de problèmes périodiques. Je ne suis donc pas parvenu à m'en servir correctement pour la modélisation du problème électromagnétique d'intérêt.

À l'avenir, si quelqu'un souhaite réaliser BMM 2D, et que cette personne se sent suffisamment à l'aise (et a assez de temps), je conseille sincèrement de prendre en main les T-Splines et leur définition, parce que l'effort mis pour cela sera compensé par la maîtrise des objets manipulés par la suite. Ensuite, l'implémentation sera probablement plus simple, mais j'ai déjà identifié quelques points auxquels il faudra faire attention.

A.2.3 Relations de continuité et de périodicité

Parce que les surfaces que nous voulons étudier sont structurées, il est important de prendre en compte des relations de continuité aux interfaces. Parce que les structures que nous voulons simuler sont périodiques, il est important de prendre en compte les conditions de périodicité. Ces deux points sont particulièrement subtils pour la création d'un algorithme BMM 2D, parce qu'ils ne peuvent pas être une directe généralisation de leurs équivalents 1D. En effet, il y a un unique enjeu à l'origine de ces deux difficultés : les structures 2D ont des coins.

Les conditions de continuité, en 1D, sont appliquées à la dérivée du champ magnétique : $\partial_x H_y / \epsilon$ doit être continu à l'interface entre deux milieux de permittivités ϵ différentes. Cela vient ajouter des contraintes aux combinaisons de poids P_i physiquement valables pour représenter le problème. En 2D, à cette continuité de $\partial_x H_y / \epsilon$ se rajoute celle de $\partial_y H_x / \epsilon$, qui est aussi à prendre en compte parce qu'il est nécessaire de calculer les deux champs en même temps pour caractériser complètement la surface. Ainsi, en fonction de comment le maillage est distribué à proximité des coins entre deux milieux, ces relations de continuité sont à prendre avec précaution.

Les conditions de périodicité, en 1D, nécessitent de définir une phase $\phi = 2\pi k_x L$ où k_x est la projection du vecteur d'onde de la lumière incidente et L la période de la structure. Le but est ensuite de forcer mathématiquement $H(x + L) = H(x)\phi$ par la construction du problème. En 2D, il y a deux phases à prendre en compte, ϕ_x et ϕ_y , pour deux conditions de périodicité $H(x + L_x, y) = H(x, y)\phi_x$ et $H(x, y + L_y) = H(x, y)\phi_y$, ce qui n'est pas évident à représenter numériquement.

Il ne me semble pas que ces deux points soient un problème rédhibitoire pour l'extension de BMM 1D, mais il faudra les garder à l'esprit dès le début du développement pour ne pas se faire surprendre.

⁸MANTZAFARIS, «An overview of geometry plus simulation modules»

Bibliographie

- ANDERSON, Philip W. « Absence of diffusion in certain random lattices ». *Physical review* 109.5 (1958), p. 1492 (cf. p. [19](#)).
- AVRUTSKY, Ivan et al. « Angle-and polarization-independent mid-infrared narrowband optical filters using dense arrays of resonant cavities ». *Optics express* 27.26 (2019), p. 37481-37493 (cf. p. [53](#)).
- BATTEN, Robert D et al. « Classical disordered ground states: Super-ideal gases and stealth and equi-luminous materials ». *Journal of Applied Physics* 104.3 (2008), p. 033504 (cf. p. [21](#)).
- BAZILEVS, Yuri et al. « Isogeometric analysis using T-splines ». *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering* 199.5-8 (2010), p. 229-263 (cf. p. [110](#)).
- BELACEL, Cherif et al. « Controlling spontaneous emission with plasmonic optical patch antennas ». *Nano letters* 13.4 (2013), p. 1516-1521 (cf. p. [12](#)).
- BERTIN, Herve et al. « Correlated disordered plasmonic nanostructures arrays for augmented reality ». *ACS photonics* 5.7 (2018), p. 2661-2668 (cf. p. [26](#)).
- BIGOURDAN, Florian et al. « Enhanced absorption of waves in stealth hyperuniform disordered media ». *Optics Express* 27.6 (2019), p. 8666-8682 (cf. p. [21](#)).
- BOHER, Micke et al. « Spectrally exclusive phase masks for wavefront coding ». *Optics Letters* 46.2 (2021), p. 436-439 (cf. p. [14](#)).
- BOHREN, Craig F et al. *Absorption and scattering of light by small particles*. John Wiley & Sons, 2008 (cf. p. [16](#), [17](#), [19](#), [85](#)).
- BONOD, Nicolas et al. « Diffraction gratings: from principles to applications in high-intensity lasers ». *Advances in Optics and Photonics* 8.1 (2016), p. 156-199 (cf. p. [8](#)).
- BOUCHON, Patrick. « Ingénierie d'indice optique à base de nanostructures métalliques ». Thèse de doct. Ecole Polytechnique, 2011 (cf. p. [14](#), [32](#), [34](#), [38](#), [108](#)).
- BOUCHON, Patrick et al. « Fast modal method for subwavelength gratings based on B-spline formulation ». *Journal of the Optical Society of America A* 27.4 (2010), p. 696 (cf. p. [40](#), [108](#)).
- CHEN, Hou-Tong et al. « A review of metasurfaces: physics and applications ». *Reports on progress in physics* 79.7 (2016), p. 076401 (cf. p. [10](#), [11](#)).
- CHEVALIER, Paul. « Hyperfocalisation de la lumière par structuration sub-longueur d'onde ». Thèse de doct. Ecole Polytechnique, 2015 (cf. p. [1](#), [14](#), [26](#)).
- CHEVALIER, Paul et al. « Absorbing metasurface created by diffractionless disordered arrays of nanoantennas ». *Applied Physics Letters* 107.25 (2015), p. 251108 (cf. p. [27](#)).

- CHU, Hongchen et al. « Diffuse reflection and reciprocity-protected transmission via a random-flip meta-surface ». *Science advances* 7.37 (2021), eabj0935 (cf. p. 24).
- COLLIN, Stéphane et al. « Waveguiding in nanoscale metallic apertures ». *Optics Express* 15.7 (2007), p. 4310-4320 (cf. p. 35).
- COSTANTINI, D et al. « Plasmonic metasurface for directional and frequency-selective thermal emission ». *Physical Review Applied* 4.1 (2015), p. 014023 (cf. p. 14).
- COX, Maurice G. « The numerical evaluation of B-splines ». *IMA Journal of Applied mathematics* 10.2 (1972), p. 134-149 (cf. p. 107).
- DE BOOR, Carl. « On calculating with B-splines ». *Journal of Approximation theory* 6.1 (1972), p. 50-62 (cf. p. 107).
- DENG, Zi-Lan et al. « A facile grating approach towards broadband, wide-angle and high-efficiency holographic metasurfaces ». *Nanoscale* 8.3 (2016), p. 1588-1594 (cf. p. 50, 57).
- DEPINE, Ricardo A et al. « Surface impedance boundary condition for metallic diffraction gratings in the optical and infrared range ». *Optica Acta: International Journal of Optics* 30.3 (1983), p. 313-322 (cf. p. 36).
- DING, Fei et al. « Metasurface-based polarimeters ». *Applied Sciences* 8.4 (2018), p. 594 (cf. p. 11).
- DUNBAR, LA et al. « Enhanced transmission from a single subwavelength slit aperture surrounded by grooves on a standard detector ». *Applied physics letters* 95.1 (2009), p. 011113 (cf. p. 52).
- EBBESEN, Thomas W et al. « Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays ». *nature* 391.6668 (1998), p. 667-669 (cf. p. 52).
- EILERS, Paul HC et al. « Baseline correction with asymmetric least squares smoothing ». *Leiden University Medical Centre Report* 1.1 (2005), p. 5 (cf. p. 71).
- EL SHAMY, Eslam. « Ingénierie de métasurfaces désordonnées pour le contrôle de propriétés optiques ». Thèse de doct. Institut Polytechnique de Paris, 2021 (cf. p. 1).
- EL SHAMY, Eslam et al. « Light scattering by correlated disordered assemblies of nanoantennas ». *Applied Physics Letters* 115.4 (2019), p. 041103 (cf. p. 27, 61).
- FABAS, Alice. « Résonateurs de Helmholtz optiques simplifiés pour la détection de molécules ». Thèse de doct. 2021 (cf. p. 14, 81).
- FASOLD, Stefan et al. « Disorder-enabled pure chirality in bilayer plasmonic metasurfaces ». *Acs Photonics* 5.5 (2018), p. 1773-1778 (cf. p. 15).
- FEDER, Jens. « Random sequential adsorption ». *Journal of Theoretical Biology* 87.2 (1980), p. 237-254 (cf. p. 63).
- FIX, Baptiste et al. « High Q-factor coupled Fabry-Perot plasmonic nanoresonator ». *2019 44th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz)*. IEEE. 2019, p. 1-1 (cf. p. 14).
- FRAUNHOFER, Joseph von. *Neue Modifikation des Lichtes durch gegenseitige Einwirkung und Beugung der Strahlen, und Gesetze derselben*. Lentner, 1820 (cf. p. 7).
- GONÇALVES, Manuel R et al. « Plasmonic resonators: fundamental properties and applications ». *Journal of Physics D: Applied Physics* 53.44 (2020), p. 443002 (cf. p. 12).
- GREDESKUL, Sergey A et al. « Anderson localization in metamaterials and other complex media ». *Low Temperature Physics* 38.7 (2012), p. 570-602 (cf. p. 19).
- HAHN, David W. « Light scattering theory ». *Department of Mechanical and Aerospace Engineering, University of Florida* (2009) (cf. p. 18).
- HOPKINSON, Francis et al. « An optical problem, proposed by Mr. Hopkinson, and solved by Mr. Rittenhouse ». *Transactions of the American Philosophical Society* 2 (1786), p. 201-206 (cf. p. 7).
- HSIAO, Hui-Hsin et al. « Fundamentals and applications of metasurfaces ». *Small Methods* 1.4 (2017), p. 1600064 (cf. p. 11).
- HUGONIN, Jean Paul et al. « Reticolo software for grating analysis ». *arXiv preprint arXiv:2101.00901* (2021) (cf. p. 32, 62, 81).

- JANG, Mooseok et al. « Wavefront shaping with disorder-engineered metasurfaces ». *Nature photonics* 12.2 (2018), p. 84-90 (cf. p. [24](#)).
- JANKOVIĆ, Nikolina et al. « High-resolution plasmonic filter and refractive index sensor based on perturbed square cavity with slits and orthogonal feeding scheme ». *Plasmonics* 14.3 (2019), p. 555-560 (cf. p. [52](#)).
- KELLY, K Lance et al. *The optical properties of metal nanoparticles: the influence of size, shape, and dielectric environment*. 2003 (cf. p. [12](#)).
- KIM, Hannah et al. « Selectively enhancing solar scattering for direct radiative cooling through control of polymer nanofiber morphology ». *ACS Applied Materials & Interfaces* 12.39 (2020), p. 43553-43559 (cf. p. [55](#)).
- KIM, Wonkyu et al. « Hyperuniform disordered metal-insulator-metal gap plasmon metasurface near perfect light absorber ». *Optical Materials Express* 11.12 (2021), p. 4083-4092 (cf. p. [25](#), [26](#)).
- KOECHLIN, Charlie et al. « Analytical description of subwavelength plasmonic MIM resonators and of their combination ». *Optics express* 21.6 (2013), p. 7025-7032 (cf. p. [96](#)).
- KOECHLIN, Charlie et al. « Total routing and absorption of photons in dual color plasmonic antennas ». *Applied Physics Letters* 99.24 (2011), p. 241104 (cf. p. [14](#)).
- KOENDERINK, A Femius. « On the use of Purcell factors for plasmon antennas ». *Optics letters* 35.24 (2010), p. 4208-4210 (cf. p. [12](#)).
- LALANNE, Philippe et al. « Fourier-modal methods applied to waveguide computational problems ». *Optics Letters* 25.15 (2000), p. 1092-1094 (cf. p. [32](#)).
- LALANNE, Philippe et al. « Numerical analysis of a slit-groove diffraction problem ». *Journal of the European Optical Society-Rapid Publications* 2 (2007) (cf. p. [32](#)).
- LALANNE, Philippe et al. « One-mode model and Airy-like formulae for one-dimensional metallic gratings ». *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics* 2.1 (2000), p. 48 (cf. p. [32](#), [33](#)).
- LANGEVIN, Denis et al. « Study of disordered metallic groove arrays with a one-mode analytical model ». *Optics Express* 28.15 (2020), p. 22549-22561 (cf. p. [31](#)).
- LEE, Changhyoup et al. « Quantum plasmonic sensors ». *Chemical Reviews* 121.8 (2021), p. 4743-4804 (cf. p. [10](#)).
- LESEUR, Olivier et al. « High-density hyperuniform materials can be transparent ». *Optica* 3.7 (2016), p. 763-767 (cf. p. [21](#)).
- LÉVESQUE, Quentin et al. « Plasmonic planar antenna for wideband and efficient linear polarization conversion ». *Applied Physics Letters* 104.11 (2014), p. 111105 (cf. p. [14](#)).
- LI, Claire et al. « Near-field and far-field thermal emission of an individual patch nanoantenna ». *Physical review letters* 121.24 (2018), p. 243901 (cf. p. [75](#)).
- LI, Lifeng. *Fourier modal method*. 2014 (cf. p. [107](#)).
- « Multilayer modal method for diffraction gratings of arbitrary profile, depth, and permittivity ». *JOSA A* 10.12 (1993), p. 2581-2591 (cf. p. [32](#)).
- « Note on the S-matrix propagation algorithm ». *JOSA A* 20.4 (2003), p. 655-660 (cf. p. [108](#)).
- LI, Shulei et al. « Regulating disordered plasmonic nanoparticles into polarization sensitive metasurfaces ». *Nanophotonics* 10.5 (2021), p. 1553-1563 (cf. p. [26](#)).
- LIN, L et al. « Angle-robust resonances in cross-shaped aperture arrays ». *Applied Physics Letters* 97.6 (2010), p. 061109 (cf. p. [53](#)).
- LIU, Haitao et al. « Microscopic theory of the extraordinary optical transmission ». *Nature* 452.7188 (2008), p. 728-731 (cf. p. [52](#)).
- LU, Hua et al. « Tunable band-pass plasmonic waveguide filters with nanodisk resonators ». *Optics Express* 18.17 (2010), p. 17922-17927 (cf. p. [52](#)).
- LYNCH, David W et al. « Comments on the optical constants of metals and an introduction to the data for several metals ». *Handbook of optical constants of solids*. Elsevier, 1997, p. 275-367 (cf. p. [40](#)).

- MAKHSIYAN, Mathilde. « Nano-émetteurs thermiques multi-spectraux ». 2017SACLX048. Thèse de doct. 2017 (cf. p. [14](#)).
- MAKHSIYAN, Mathilde et al. « Shaping the spatial and spectral emissivity at the diffraction limit ». *Applied Physics Letters* 107.25 (2015), p. 251103 (cf. p. [14](#)).
- MAKSYMOW, Ivan S et al. « Optical yagi-uda nanoantennas ». *Nanophotonics* 1.1 (2012), p. 65-81 (cf. p. [19](#)).
- MANTZAFARIS, Angelos. « An overview of geometry plus simulation modules ». *International Conference on Mathematical Aspects of Computer and Information Sciences*. Springer. 2019, p. 453-456 (cf. p. [110](#)).
- MAO, Peng et al. « Single-step-fabricated disordered metasurfaces for enhanced light extraction from LEDs ». *Light: Science & Applications* 10.1 (2021), p. 1-9 (cf. p. [26](#)).
- MARTIN-MORENO, Luis et al. « Theory of extraordinary optical transmission through subwavelength hole arrays ». *Physical review letters* 86.6 (2001), p. 1114 (cf. p. [52](#)).
- MCCOOL, Michael et al. « Hierarchical Poisson disk sampling distributions ». *Graphics interface*. T. 92. 1. 1992, p. 94-105 (cf. p. [63](#)).
- MEINZER, Nina et al. « Plasmonic meta-atoms and metasurfaces ». *Nature Photonics* 8.12 (2014), p. 889-898 (cf. p. [12](#)).
- MIE, Gustav. « Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen ». *Annalen der physik* 330.3 (1908), p. 377-445 (cf. p. [16](#) [57](#)).
- MIZUNO, Kohei et al. « A black body absorber from vertically aligned single-walled carbon nanotubes ». *Proceedings of the National Academy of Sciences* 106.15 (2009), p. 6044-6047 (cf. p. [68](#)).
- MONTES, Rosana et al. « An overview of BRDF models ». *University of Grenada, Technical Report LSI-2012-001* (2012) (cf. p. [19](#)).
- MOREAU, Antoine et al. « Controlled-reflectance surfaces with film-coupled colloidal nanoantennas ». *Nature* 492.7427 (2012), p. 86-89 (cf. p. [25](#)).
- MULTIPHYSICS, COMSOL. « Introduction to COMSOL multiphysics® ». *COMSOL Multiphysics, Burlington, MA, accessed Feb 9* (1998), p. 2018 (cf. p. [81](#)).
- NEY, Edward P et al. « Comet West and the scattering function of cometary dust ». *Science* 194.4269 (1976), p. 1051-1053 (cf. p. [19](#)).
- OUTREACH, Nobel Prize. *The Nobel Prize in Physics 2018*. 2018. URL : <https://www.nobelprize.org/prizes/physics/2018/summary/> (visité le 15/05/2022) (cf. p. [8](#)).
- PALIK, Edward D. *Handbook of optical constants of solids*. T. 3. Academic press, 1998 (cf. p. [18](#)).
- PALMER, Christopher et al. « Diffraction grating handbook » (2005) (cf. p. [8](#)).
- PANDEY, Purnendu Shekhar et al. « Recent advances in two-dimensional materials-based Kretschmann configuration for SPR sensors: A review ». *IEEE Sensors Journal* (2021) (cf. p. [10](#)).
- PARK, Jongchan et al. « Ultrathin wide-angle large-area digital 3D holographic display using a non-periodic photon sieve ». *Nature communications* 10.1 (2019), p. 1-8 (cf. p. [24](#)).
- PARK, Jung-Hoon et al. « Disordered optics: Exploiting multiple light scattering and wavefront shaping for nonconventional optical elements ». *Advanced Materials* 32.35 (2020), p. 1903457 (cf. p. [24](#)).
- PAVLOVETC, Ilia M et al. « Quantitative infrared photothermal microscopy ». *Single Molecule Spectroscopy and Superresolution Imaging XIII*. T. 11246. SPIE. 2020, p. 126-132 (cf. p. [75](#)).
- PIERANGELI, Davide et al. « Scalable spin-glass optical simulator ». *Physical Review Applied* 15.3 (2021), p. 034087 (cf. p. [24](#)).
- PINES, David et al. « A collective description of electron interactions: II. Collective vs individual particle aspects of the interactions ». *Physical Review* 85.2 (1952), p. 338 (cf. p. [9](#)).
- POPOV, Evgeni. *Introduction to diffraction gratings: summary of applications*. 2012 (cf. p. [8](#)).
- PRABOWO, Brilliant Adhi et al. « Surface plasmon resonance optical sensor: A review on light source technology ». *Biosensors* 8.3 (2018), p. 80 (cf. p. [10](#)).

BIBLIOGRAPHIE

- RA'DI, Younes et al. « Metagratings: Beyond the limits of graded metasurfaces for wave front control ». *Physical review letters* 119.6 (2017), p. 067404 (cf. p. [50](#) [57](#)).
- RAMM, Alexander G. *Wave scattering by small bodies of arbitrary shapes*. Springer, 2005 (cf. p. [18](#)).
- RAYLEIGH, Lord. « III. Note on the remarkable case of diffraction spectra described by Prof. Wood ». *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* 14.79 (1907), p. 60-65 (cf. p. [9](#)).
- RITCHIE, Rufus H. « Plasma losses by fast electrons in thin films ». *Physical review* 106.5 (1957), p. 874 (cf. p. [9](#)).
- « Surface plasmons in solids ». *Surface Science* 34.1 (1973), p. 1-19 (cf. p. [9](#)).
- ROH, Sookyong et al. « Overview of the characteristics of micro- and nano-structured surface plasmon resonance sensors ». *Sensors* 11.2 (2011), p. 1565-1588 (cf. p. [10](#)).
- ROUBAUD, Gauthier et al. « Far-field wavefront control of nonlinear luminescence in disordered gold metasurfaces ». *Nano Letters* 20.5 (2020), p. 3291-3298 (cf. p. [26](#)).
- ROUBAUD, Gauthier et al. « Statistical nonlinear optical mapping of localized and delocalized plasmonic modes in disordered gold metasurfaces ». *ACS photonics* 8.7 (2021), p. 1937-1943 (cf. p. [26](#)).
- RYPL, Daniel et al. « Object oriented implementation of the T-spline based isogeometric analysis ». *Advances in Engineering Software* 50 (2012), p. 137-149 (cf. p. [110](#)).
- SEDERBERG, Thomas W et al. « T-spline simplification and local refinement ». *ACM transactions on graphics (TOG)* 23.3 (2004), p. 276-283 (cf. p. [110](#)).
- SEDERBERG, Thomas W et al. « T-splines and T-NURCCs ». *ACM transactions on graphics (TOG)* 22.3 (2003), p. 477-484 (cf. p. [110](#)).
- SEGEV, Mordechai et al. « Anderson localization of light ». *Nature Photonics* 7.3 (2013), p. 197-204 (cf. p. [19](#)).
- SHIBAYAMA, Jun et al. « Performance evaluation of several implicit FDTD methods for optical waveguide analyses ». *Journal of lightwave technology* 24.6 (2006), p. 2465 (cf. p. [32](#)).
- SOUN, Léna et al. « Experimental demonstration of second-harmonic generation in high χ^2 metasurfaces ». *Optics Letters* 46.6 (2021), p. 1466-1469 (cf. p. [14](#)).
- STERL, Florian et al. « Shaping the color and angular appearance of plasmonic metasurfaces with tailored disorder ». *ACS nano* 15.6 (2021), p. 10318-10327 (cf. p. [20](#) [21](#) [23](#)).
- TORQUATO, Salvatore. « Hyperuniform states of matter ». *Physics Reports* 745 (2018), p. 1-95 (cf. p. [22](#)).
- TORQUATO, Salvatore et al. « Ensemble theory for stealthy hyperuniform disordered ground states ». *Physical Review X* 5.2 (2015), p. 021020 (cf. p. [21](#) [46](#)).
- TYMCHENKO, Mykhailo et al. « Gradient nonlinear pancharatnam-berry metasurfaces ». *Physical review letters* 115.20 (2015), p. 207403 (cf. p. [11](#)).
- UCHE, Obioma U et al. « Collective coordinate control of density distributions ». *Physical Review E* 74.3 (2006), p. 031104 (cf. p. [21](#)).
- UCHE, Obioma U et al. « Constraints on collective density variables: Two dimensions ». *Physical Review E* 70.4 (2004), p. 046122 (cf. p. [80](#)).
- VELLEKOOP, Ivo M et al. « Focusing coherent light through opaque strongly scattering media ». *Optics letters* 32.16 (2007), p. 2309-2311 (cf. p. [24](#)).
- VERLHAC, Clément. « Étude multi physique de nanoobjets et métamatériaux ». Thèse de doct. 2022 (cf. p. [68](#)).
- VYNCK, Kevin et al. « Light in correlated disordered media ». *arXiv preprint arXiv:2106.13892* (2021) (cf. p. [20](#) [23](#) [51](#)).
- VYNCK, Kevin et al. « Stunning visual appearances of disordered optical metasurfaces ». *arXiv preprint arXiv:2111.13426* (2021) (cf. p. [23](#)).
- WANG, CM et al. « Angle-independent infrared filter assisted by localized surface plasmon polariton ». *IEEE Photonics Technology Letters* 20.13 (2008), p. 1103-1105 (cf. p. [53](#)).
- WARREN, Bertram Eugene. *X-ray Diffraction*. Courier Corporation, 1990 (cf. p. [20](#)).

- WOOD, Robert W. « Anomalous diffraction gratings ». *Physical Review* 48.12 (1935), p. 928 (cf. p. 9).
- « XLII. On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum ». *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* 4.21 (1902), p. 396-402 (cf. p. 9).
- XU, He-Xiu et al. « Deterministic approach to achieve broadband polarization-independent diffusive scatterings based on metasurfaces ». *Acs Photonics* 5.5 (2017), p. 1691-1702 (cf. p. 55).
- YANNOPAPAS, Vassilios et al. « Layer-multiple-scattering theory for metamaterials made from clusters of nanoparticles ». *Physical Review B* 84.8 (2011), p. 085119 (cf. p. 25).
- YU, Sunkyu et al. « Engineered disorder in photonics ». *Nature Reviews Materials* 6.3 (2021), p. 226-243 (cf. p. 21, 23, 24, 45).
- YURKIN, Maxim A et al. « The discrete dipole approximation: an overview and recent developments ». *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 106.1-3 (2007), p. 558-589 (cf. p. 17).
- ZHANG, Feifei et al. « Influence of order-to-disorder transitions on the optical properties of the aluminum plasmonic metasurface ». *Nanoscale* 12.45 (2020), p. 23173-23182 (cf. p. 15).
- ZHANG, Haoyang et al. « Hyperuniform disordered distribution metasurface for scattering reduction ». *Applied Physics Letters* 118.10 (2021), p. 101601 (cf. p. 26).
- ZHONG, Yujun et al. « Review of mid-infrared plasmonic materials ». *Journal of Nanophotonics* 9.1 (2015), p. 093791 (cf. p. 9).

Titre : Ingénierie du désordre pour les métasurfaces absorbantes dans l'infrarouge

Mots clés : infrarouge ; métasurface ; désordre

Résumé : Les résonateurs Métal-Isolant-Métal (MIM) sont le siège de résonances Fabry-Perot dont la longueur d'onde dépend de leurs dimensions géométriques, permettant un contrôle des propriétés spectrales de la lumière réfléchie ou transmise. L'ingénierie du désordre corrélé pour les ensembles de résonateurs se sert des positions des résonateurs comme degrés de liberté permettant de contrôler les propriétés spatiales de la lumière. Cette thèse se place à l'intersection de ces deux domaines, par l'étude de l'incidence du désordre sur la réponse de métasurfaces constituées de résonateurs MIM. Je montre que les dimensions des résonateurs, mais aussi la densité de leur distribution et le type de désordre utilisé entraînent une répartition différente de l'énergie entre réflexion, absorption, diffusion et diffraction. Pour ce faire, les outils numériques et les méthodes expérimentales nécessaires à l'étude de structures désordonnées sont présentées. D'une part, une méthode analytique de simulation rapide de la réponse optique de réseaux de MIM sillons

désordonnés a été implémentée. Grâce à elle, je teste la robustesse au désordre de l'effet de transmission optique extraordinaire, et montre la possibilité d'ingénierie de spectres complexes en combinant des réseaux périodiques et des réseaux désordonnés. D'autre part, ce manuscrit présente un protocole expérimental de conception et de caractérisation de grands ensembles de résonateurs 2D désordonnés permettant la mesure des sections efficaces (d'absorption, de diffusion et d'extinction) des résonateurs uniques. Cette méthode permet de s'affranchir des techniques de mesure très précises et sensibles habituellement nécessaires pour accéder aux comportements de résonateurs uniques. La compréhension des interactions entre contrôle spectral et contrôle spatial de la lumière par une métasurface métallique désordonnée peut être exploitée pour dimensionner des structures aux fonctions optiques précises, par exemple pour optimiser l'intensité diffusée ou absorbée à des gammes de longueurs d'onde d'intérêts.

Title : Disorder engineering for absorbing metasurfaces in the infrared

Keywords : infrared ; metasurfaces ; disorder

Abstract : Metal-insulator-metal (MIM) resonators exhibit Fabry-Perot resonances at wavelengths which depend on their geometrical dimensions, enabling the control of the spectral properties of the reflected or transmitted light. Correlated disorder engineering for resonator distributions uses the resonator positions as degrees of freedom to control the spatial properties of light. This thesis is at the intersection of these two fields, and studies the effect of disorder on the response of MIM resonator metasurfaces. I show that the resonator dimensions, as well as their distribution density and the type of disorder used, lead to a different energy distribution between reflection, absorption, scattering and diffraction. To do so, numerical tools and experimental methods able to study disordered structures are developed. On the one hand, this thesis introduces an analytical method for the fast simulation of the optical response of disordered

MIM groove arrays. With this method, I test the resistance to disorder of the extraordinary optical transmission effect, and show the possibility of engineering complex spectra by combining periodic and disordered arrays. This thesis also presents an experimental protocol for the design and characterization of large ensembles of disordered 2D resonators, enabling the measurement of the effective cross sections of single resonators. This method allows to get rid of the very precise and sensitive measurement techniques usually needed to access the behavior of single resonators. Understanding the interactions between spectral and spatial control of light by a disordered metal metasurface can be used to design structures with desired optical functions, for example to optimize the scattered or absorbed intensity at chosen wavelengths.

ONERA

THE FRENCH AEROSPACE LAB