



HAL
open science

Localisation de phonons et de photons dans des métasurfaces aléatoires : vers un couplage acousto-optique

Thibault Deletang

► **To cite this version:**

Thibault Deletang. Localisation de phonons et de photons dans des métasurfaces aléatoires : vers un couplage acousto-optique. Acoustique [physics.class-ph]. Sorbonne Université, 2023. Français. NNT : 2023SORUS224 . tel-04223135

HAL Id: tel-04223135

<https://theses.hal.science/tel-04223135>

Submitted on 29 Sep 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.

Thèse de doctorat

Spécialité : **Acoustique Physique et Photonique**

École doctorale 391 – Sciences Mécanique, Acoustique, Électronique et Robotique de Paris

Institut des NanoSciences de Paris et Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne

Localisation de phonons et de photons dans des métasurfaces aléatoires : vers un couplage acousto-optique

Sous la direction de

Bernard Bonello et Benoît Cluzel

par

Thibault Deletang

Soutenue devant le jury composé de

Sarah BENCHABANE	Directrice de recherche CNRS	Rapporteure
Gaëtan LÉVÊQUE	Professeur des universités, Université de Lille	Rapporteur
Alexandre AUBRY	Chargé de recherche CNRS	Examineur
Tony VALIER-BRASIER	Maître de conférence, Sorbonne Université	Examineur
Kevin VYNCK	Chargé de recherche CNRS	Examineur
Régis WUNENBURGER	Professeur des universités, Sorbonne Université	Président du jury
Bernard BONELLO	Directeur de recherche CNRS	Directeur de thèse
Benoît CLUZEL	Maître de conférence, Université de Bourgogne Franche-Comté	Co-directeur de thèse

Résumé

C'est depuis une soixantaine d'année que l'étude de la propagation des ondes en milieux complexes occupe une place centrale en physique. Outre les nombreuses applications en imagerie médicale, en sismologie, ou encore pour expliquer la couleur de certains êtres vivants, ce sujet pose encore de nombreuses questions bien plus fondamentales. C'est en partie grâce à Anderson dans ses travaux portant sur l'absence de diffusion d'électrons dans des matériaux dits aléatoires, provoquant la transition de leurs propriétés métalliques vers des propriétés isolantes, que l'on doit un tel engouement. Il faut alors attendre le début des années 2000 pour qu'une première preuve expérimentale sans équivoque de cette transition soit rapportée grâce à des ondes élastiques. Depuis, d'autres preuves expérimentales de localisation d'ondes élastiques dans des distributions similaires ont été observées. Toutes ces études sur les milieux totalement aléatoires ont aussi ouvert la voie vers une autre catégorie de désordre, intermédiaire entre la distribution de Poisson et le cristal parfait, et qui altère différemment la propagation des ondes qui les traversent : les distributions à désordre corrélé.

Que ce soit pour cette dernière catégorie de désordre ou alors les désordres parfaitement aléatoires, les études expérimentales portant sur la propagation d'ondes élastiques restent basses fréquences puisqu'elles ne dépassent jamais la dizaine de MHz. On propose alors dans une première partie de ce travail de thèse, d'élaborer une méthode expérimentale permettant de générer et détecter des ondes élastiques très hautes fréquences (de l'ordre du GHz) et de suivre la propagation de celles-ci dans les deux types de désordre mentionnés. Compte-tenu des fréquences en jeux, ces ondes élastiques sont par conséquent particulièrement adaptées pour interagir avec des nanostructures. Une seconde partie sera ensuite consacrée à l'étude expérimentale de la propagation de plasmons de surface dans des structures distinctes mais similaires, grâce à des techniques également développées durant ce travail de thèse. Des premières mesures dans des réseaux périodiques de nanoparticules d'Au et plus tard désordonnées permettront alors de quantifier les effets du désordre sur la réponse de tels ensembles. Ces deux études parallèles apporteront des pistes de réflexion pour la conception d'un échantillon désordonné commun qui serait le lieu d'une interaction entre les deux types d'ondes au moyen d'un seul et même dispositif expérimental.

Mots-clés : diffusion multiple, ondes élastiques de surface, plasmons de surface, étude expérimentale, désordre décorrélé, désordre corrélé, localisation d'ondes

Abstract

The study of wave propagation in complex media has been a central topic in physics for about sixty years. In addition to the many applications in medical imaging, seismology, or to explain the color of some living beings, this subject still raises many questions much more fundamental. It is partly thanks to Anderson's work on the absence of electron scattering in so-called random materials, causing the transition of their metallic properties to insulating properties, that we owe such an interest. It is then necessary to wait until the beginning of the 21st century for a first unequivocal experimental proof of this transition to be reported thanks to elastic waves. Since then, other experimental evidence of elastic wave localization in similar distributions has been observed. All these studies on totally random media have also paved the way to another category of disorder, intermediate between the Poisson distribution and the perfect crystal, and which alters differently the propagation of waves passing through them : correlated disorder distributions.

Whether it is for this last category of disorder or for the perfectly random disorder, the experimental studies on the propagation of elastic waves remain low frequency since they never exceed the ten MHz. In the first part of this thesis, we propose to develop an experimental method to generate and detect very high frequency elastic waves (in the GHz range) in order to follow their propagation in the two types of disorder mentioned. Considering the frequencies involved, these elastic waves are therefore particularly suitable to interact with nanostructures. A second part will then be devoted to the experimental study of the propagation of surface plasmon polaritons in distinct but similar structures, using techniques also developed during this thesis. First measurements in periodic arrays of Au nanoparticles and later disordered ones will then allow to quantify the effects of disorder on the response of such assemblies. These two parallel studies will provide insights for the design of a common disordered sample that would be the locus of interaction between the two types of waves using a single experimental setup.

Keywords : multiple scattering, surface elastic waves, surface plasmon polariton, experimental study, uncorrelated disorder, correlated disorder

Remerciements

Ce travail de thèse s'inscrit dans un projet ANR, fruit d'une collaboration entre l'Institut des NanoSciences de Paris (INSP), l'Institut d'Electronique, de Microélectronique et de Nanotechnologie (IEMN) de Lille, ainsi que le Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne (ICB). C'est dans ce cadre que mes activités ont été partagées entre l'INSP et l'ICB, sous la direction de Bernard Bonello et Benoît Cluzel, auxquels j'adresse mes remerciements les plus sincères. J'ai pu évoluer en toute sérénité durant ces trois années grâce à la confiance et le temps qu'ils m'ont accordé, mais aussi pour la rigueur scientifique qu'ils cultivent et les conseils qui m'ont été prodigués. Ce doctorat a été une expérience unique et extrêmement enrichissante sur le plan scientifique mais aussi sur le plan personnel, qu'il m'a été permis de découvrir, mais aucun mot ne serait suffisant pour exprimer ma gratitude.

Ensuite j'aimerais remercier vivement l'intégralité des membres qui ont acceptés de faire partie de ce jury de thèse, pour tout le temps consacré et l'intérêt manifesté à ce travail. Merci à Sarah Benchabane et Gaëtan Lévêque d'avoir endossé le rôle de rapporteur.e, pour la lecture attentive et la pertinence des retours qui m'ont été faits. Merci à Régis Wunenburger d'avoir présidé la soutenance de thèse et à Kevin Vynck pour sa patience malgré avoir suivi en visioconférence, mais surtout pour les intéressantes discussions stimulées. Un grand merci à Alexandre Aubry pour m'avoir suivi tout au long de cette thèse, mais aussi pour toute la prévenance et la bienveillance dont il a fait preuve à mon égard, ainsi que pour tous ses conseils. Enfin, j'adresse un remerciement tout particulier à Tony Valier-Brasier qui a su transmettre sa passion pour l'acoustique et la recherche et faire naître en moi ce même intérêt, mais aussi pour avoir su me conseiller et m'orienter, et sans qui je ne serais certainement pas en train d'écrire ces quelques mots.

Merci à Yan Pennec et Bahram Djafari-Rouhani pour cette collaboration et toutes les discussions et réflexions ô combien stimulantes, mais aussi à Noual Adnane pour toutes les simulations numériques effectuées qui viennent compléter et donner de la consistance à ce travail expérimental. Un grand merci à Eric Charron pour sa contribution majeure et son implication dans l'élaboration du banc expérimental développé durant cette thèse, mais aussi pour sa sincérité et sa bienveillance. Merci à Loïc Becerra et Erwan Dandeu pour tout le temps qu'ils ont consacré à la confection des échantillons, clefs de voûte de ce projet de recherche. Merci à Jean-Louis Thomas pour l'intérêt qu'il a manifesté à l'égard de mon travail et ses conseils avisés. A défaut d'avoir contribué au volet scientifique de cette thèse, je tiens à exprimer ma gratitude à Pauline Rovillain, Agnès Huynh et Olga Boyko-Kazymyrenko pour leur gentillesse qui semble ne pas avoir de limites, et qui ont largement contribué au bon déroulement de cette thèse. Merci à Cécile Lefebvre pour son efficacité et sa gentillesse, et qui à toujours su m'aider dans des délais records et avec bon humeur malgré la charge de travail à laquelle elle fait face. Merci à Ronan, Marine, Benoît qui ont endossé.es la charge de représentant.es des doctorant.es et qui ont oeuvré.es pour le bien être des doctorant.es au sein de l'INSP. Enfin je voudrais remercier Sarah, avec qui j'ai eu l'honneur de partager mon bureau à l'INSP et sans qui ce doctorat aurait été sans aucun doute bien plus fade.

Merci à mes camarades de formation et surtout ami.es Sarah, Quentin, Charau, Clément qui m'ont beaucoup fait progresser au cours de ces cinq dernières années. Merci à Temae pour son soutien moral à toute épreuve malgré les difficultés rencontrées. Merci à Alexandra qui m'a été d'une grande aide et qui m'a accompagné en cette fin de doctorat. Un grand merci à mes ami.es et à ma famille qui

m'a offert l'opportunité et un cadre plus qu'agréable pour effectuer cette thèse dans les meilleures conditions. Merci Solène Cauty.

Table des matières

Résumé	iii
Abstract	iv
Remerciements	v
Introduction générale	1
1 Influence de la nature d'une distribution aléatoire de diffuseurs sur la propagation des ondes et dimensionnement des échantillons	5
Introduction	6
1.1 Les ondes en milieu complexe	7
1.1.1 Modèle-jouet pour la diffusion multiple	7
1.1.2 Description statistique du désordre hyperuniforme et impact des corrélations spatiales sur la propagation des ondes : effets d'ordre 2	9
1.1.2.1 Description statistique des différentes configurations de désordre	9
1.1.2.2 Impact sur la propagation des ondes électromagnétiques et acoustiques	12
1.1.3 Localisation d'ondes au sens d'Anderson : effets d'ordre 3	16
1.1.3.1 Bref historique des contributions théoriques majeures à la compréhension du phénomène	16
1.1.3.2 Localisation d'Anderson des ondes dans des distributions désordonnées totalement décorrélatées et influence des corrélations spatiales	18
1.2 Introduction aux plasmons de surface : quelques généralités	24
1.3 Dimensionnement et fabrication des échantillons	27
1.3.1 Les échantillons acoustique	27
1.3.2 Les échantillons optique	30
1.4 Conclusion	34
2 Spectroscopie pompe–sonde résolue en temps et en espace pour l'étude de la propagation d'ondes élastiques en milieux complexes	35
Introduction	36
2.1 L'acoustique picoseconde : principe général	37
2.2 Spectroscopie pompe–sonde résolue en temps et en espace	40
2.2.1 Résolution temporelle : désynchronisation des trajets pompe et sonde	42
2.2.2 Résolution spatiale	43
2.2.2.1 Interféromètre de Sagnac	43
2.2.2.2 Système d'imagerie $4f$	47
2.3 Caractérisation des ondes élastiques générées	49

2.4	Conclusion	54
3	Propagation d'ondes acoustiques de surface en milieux complexes : résultats expérimentaux et numériques	55
	Introduction	56
3.1	Répartition spatiale de diffuseurs à gradient de densité : distribution Gaussienne . .	57
3.2	Répartition spatiale homogène de diffuseurs : distribution de Poisson	59
3.2.1	Mesures spatiales et temporelles de l'atténuation du front d'onde cohérent .	62
3.2.2	Mesures de la dynamique vibratoire de la métasurface	64
3.2.3	Influence de la direction d'excitation sur le contenu spectral d'une cavité asymétrique	69
3.3	Résultats numériques et comparaison avec les résultats expérimentaux pour la cavité rectangle	73
3.4	Distribution hyperuniforme	76
3.5	Conclusion	81
4	Caractérisation expérimentale de la résonance plasmonique dans des métasurfaces périodiques et désordonnés de nanoparticules d'or	83
	Introduction	84
4.1	Spectroscopie en champ sombre appliquée à l'étude des plasmons de surface	85
4.1.1	Microscopie champ sombre pour la caractérisation de la résonance plasmon : principe général de la méthode	85
4.1.2	Quadriwave Lateral Shearing Interferometry (QLSI) : principe de fonctionnement de la caméra de phase	87
4.2	Résultats expérimentaux sur des objets individuels et des arrangements spatiaux périodiques et désordonnés de nanoparticules d'Au	91
4.2.1	Caractérisation de nanoparticules d'Au individuelles et en réseaux périodiques	91
4.2.1.1	Piliers individuels	91
4.2.1.2	Réseaux périodiques	94
4.2.2	Caractérisation de métasurfaces périodiques et désordonnés de nanoparticules d'Au	99
4.2.2.1	Réseaux périodiques	99
4.2.2.2	Distributions désordonnées	102
4.3	Le couplage acousto-optique	112
4.3.1	L'échantillon phoXonique	112
4.3.2	Dispositif expérimental commun : le microscope acousto-optique	114
4.4	Conclusion	116
	Conclusion générale	117
	Bibliographie	121

Introduction générale

Cette thèse s'inscrit dans le cadre d'un projet ANR appelé RANDOM, dont l'objectif principal consiste à étudier l'interaction entre des modes électromagnétiques et élastiques dans une seule et même distribution aléatoire de diffuseurs. Si historiquement les cristaux photoniques et phononiques conventionnels sont généralement décrits en termes de structures périodiques, l'intérêt général s'est progressivement déporté sur l'étude des ondes en milieux désordonnés. Comme la localisation et les natures physiques des ondes électromagnétiques et acoustiques sont fondamentalement différentes, une étude individuelle de l'effet du désordre sur chaque type d'onde est dans un premier temps nécessaire. Nous étudierons et analyserons alors séparément l'origine, la localisation, et le couplage des champs optiques et élastiques au sein de ses distributions. Une attention particulière sera portée sur les effets de la statistique d'une distribution aléatoire de diffuseurs (résonants ou non) sur les propriétés de transport de chaque type d'ondes. En augmentant la densité de diffuseurs et le degré de désordre, un seuil critique des propriétés phononiques et photoniques qui rompt le comportement physique régulier est attendu, comme cela est observé dans le cas de la limite de percolation. En plus du confinement local à l'intérieur des piliers individuels et de leurs interactions, des effets de superlocalisation dans des grappes de N diffuseurs sont à prévoir, conduisant à leur tour à des propriétés physiques comme la localisation de type Anderson.

Le premier défi de la proposition consiste à établir la relation entre les propriétés statistiques auxquelles obéissent les différentes configurations de désordre et les réponses spectrales phononiques/photoniques associées. Cet objectif sera soutenu par des démonstrations expérimentales basées sur l'acoustique picoseconde côté élastique, la microscopie champ sombre ainsi que l'imagerie à quantification de phase côté optique. L'étude parallèle et la compréhension des phénomènes de propagation dans de telles distributions de diffuseurs ouvrira alors la voie vers une étude conjointe du couplage optomécanique (OM) à l'échelle nanométrique où le désordre joue un rôle central. Cela permettrait alors d'étudier une double localisation des champs électromagnétiques et élastiques dans ces nanostructures en des sites communs. Cette localisation simultanée sera le lieu du couplage OM entre les ondes EM et élastiques dont le contrôle et l'amélioration représentent le second objectif principal du projet RANDOM. Dans le dispositif RANDOM, en raison de la forte localisation des champs élastiques et EM à l'intérieur des résonateurs, l'efficacité du couplage OM est très attendue. Le troisième objectif de RANDOM est de concevoir, construire et évaluer expérimentalement une plateforme phoXonique aléatoire avec un taux de couplage OM important et accordable. Expérimentalement, la première étape consistera à mesurer la localisation des phonons et des photons dans des échantillons distincts mais dont les dimensions caractéristiques sont très proches, dans la perspective d'un couplage. Cette étape sera permise par l'élaboration de deux bancs expérimentaux indépendants et qui présentent des spécificités relatives aux deux types d'ondes à étudier, mais aussi aux différents échantillons. L'enseignement tirée de cette étude parallèle permettra alors d'envisager la géométrie d'un échantillon commun favorable à la propagation des ondes électromagnétiques et élastiques : le cristal phoXonique. Le dispositif expérimental optique sera ensuite modifié en conséquence pour étudier la co-localisation des deux ondes : le microscope acousto-optique.

L'étude des ondes acoustiques et électromagnétiques dans les milieux complexes a considérablement évolué au cours des dernières décennies. Parmi elles, l'étude de structures périodiques artificielles comme les cristaux phononiques, photoniques, les métamatériaux acoustiques et électromagnétiques, a largement contribué à briser les limites physiques conventionnelles. Ces propriétés ont ouvert la voie à la conception de systèmes artificiels [1] permettant la manipulation des ondes électromagnétiques ou acoustiques, comme l'absorption de la lumière [2] ou l'isolation acoustique [3], la focalisation sub-longueur d'onde [4–8], la transparence optique ou acoustique [9, 10] ou, plus récemment, les réflexions ou transmissions anormales et la démonstration d'isolants topologiques [11, 12]. Finalement, la plupart de ces propriétés nécessitent le support de cristaux phononiques et photoniques qui peuvent présenter des résonances locales, donnant lieu à une ou plusieurs bandes interdites à des fréquences bien inférieures à la fréquence de Bragg.

Depuis les travaux pionniers d'Anderson [13] sur les électrons, une attention toute particulière a été portée aux phénomènes de localisation dans les systèmes désordonnés aléatoires et ont stimulé des études telles que la localisation forte des ondes acoustiques et électromagnétiques dans les milieux dont les propriétés fluctuent de façon aléatoire [14]. En 1987, S. John prédit l'existence d'états localisés en bordure de bandes interdites d'une distribution [15], tout comme les états localisés des électrons qui se produisent près des bords de bande des semi-conducteurs dopés. Il a montré qu'une localisation forte des photons peut se produire de manière hautement prévisible sur une fenêtre de fréquences dans certaines microstructures désordonnées en super-réseau présentant un contraste diélectrique suffisamment élevé. En 2008, J. Page [16] et ses collègues ont signalé la localisation d'ultrasons au sens d'Anderson dans un milieu élastique 3D consistant en un agrégat de billes d'aluminium. Dans des échantillons diffusifs classiques, l'expansion de l'énergie élastique croîtrait comme la racine carrée du temps, comportement caractéristique d'une marche aléatoire brownienne, mais ce qui n'est plus le cas dans le régime de localisation forte. Au cours des dernières décennies, de nombreux travaux ont été consacrés aux structures de bande et à la localisation des ondes au sens large dans les distributions désordonnées [17–33] et l'ingénierie du désordre apparaît désormais comme un nouvel outil pour développer des applications en nanophotonique [1]. En phononique, l'introduction du désordre a été mentionnée concernant son effet sur les propriétés de la bande interdite. Il a été démontré que cette dernière peut être étendue au-delà de la bande de fréquence absolue du cristal par une introduction systématique de désordre, ce qui conduit à la localisation d'Anderson sur une gamme de fréquences beaucoup plus large que la bande interdite absolue dans le cristal ordonné [34]. Il a été observé que, lorsque le degré de désordre augmente, les bandes passantes dans la gamme de fréquence considérée deviennent plus étroites, en relation avec une augmentation de la localisation. Enfin, lorsque des contacts physiques entre résonateurs sont établis, des réponses inattendues peuvent apparaître, souvent liées à la limite de percolation [35]. Compte tenu de ces caractéristiques, la réponse d'un arrangement désordonné de diffuseurs mérite une analyse attentive. C'est la raison pour laquelle le comportement des structures aléatoires a motivé de nombreuses recherches au cours des dernières années [36]. Certains auteurs ont démontré que la distribution aléatoire de diffuseurs peut présenter certains avantages par rapport aux structures périodiques. Par exemple Fernández-Marín *et al.*, rapportent des effets de localisation anormale contrôlables en utilisant une distribution de type Lévy dans une structure 1D [37]. Plus récemment, des réseaux aléatoires de nano-antennes ont été introduits comme moyen d'éviter les pertes par diffraction inhérentes aux absorbeurs périodiques de taille unique ou multiple [38, 39]. En acoustique, M. Rupin *et al.* ont fait la démonstration expérimentale en considérant des métamatériaux multi-

résonants ordonnés et désordonnés pour les ondes de Lamb [40]. Ils ont constaté que puisque les distributions de résonateurs ordonnés et désordonnés donnent des résultats similaires, leurs propriétés proviennent de la nature résonante des tiges et concluent que les propriétés du champ ne dépendent pas de la disposition spatiale des résonateurs à l'intérieur du métamatériau. A. Khelif *et al.* [41] ont démontré que la position en fréquence de la bande interdite la plus basse est invariante par rapport aux symétries du réseau des piliers sur un substrat.

Au cours de la dernière décennie, les propriétés phononiques et photoniques ont été combinées en une seule plateforme, offrant ainsi un nouvel outil pour contrôler la lumière et le son. Ces matériaux artificiels sont appelés cristaux phoXoniques [42, 43] ou optomécaniques [44]. Plusieurs matériaux et nanostructures ont été proposés afin d'obtenir des bandes interdites photoniques et phononiques simultanées. Maldovan et Thomas ont démontrés cette propriété pour un cristal bidimensionnel (2D) infini constitué de réseaux carrés ou hexagonaux de trous dans du silicium [45]. La plateforme matérielle dominante est la dalle de silicium percée de réseaux périodiques de trous submicrométriques ou d'inclusions en forme de flocons de neige [46]. Des calculs similaires ont également été effectués pour une dalle cristalline constituée d'un réseau de piliers en silicium sur une plaque de SiO_2 [47]. Puisque les cristaux phoXoniques ont la capacité de présenter des bandes interdites pour les phonons et les photons, ils offrent la possibilité de concevoir des défauts linéaires et des cavités dans lesquels le confinement des deux excitations ou l'existence d'ondes acoustiques et électromagnétiques a été démontrée. Par conséquent, plusieurs travaux théoriques et expérimentaux ont été consacrés au cours des dernières années aux interactions optomécaniques dans différentes structures basées sur des cavités bien conçues. En particulier, mentionnons l'interaction acousto-optique dans différentes cavités à l'intérieur de cristaux phoXoniques infinis 2D [48, 49], ou dans des dalles cristallines [50, 51]. L'amélioration de l'interaction photon-phonon a également été étudiée dans un guide d'ondes exhibant des bandes interdites [52–54]. Alors que les dispositifs optomécaniques à cavités ont connu des développements importants, l'intérêt récent se tourne maintenant vers des applications et des réseaux de phonons plus complexes sur puce utilisant des ondes mécaniques guidées pour connecter des systèmes optomécaniques [55–57]. En phoXonique, il a été démontré très récemment que le désordre résultant des imperfections de fabrication en augmentant la localisation des phonons et des photons peut conduire à un taux de couplage plus élevé par rapport à une cavité optomécanique unique [58]. Un tel désordre induit alors des résonances étroites qui peuplent le spectre autour des bords de bande, formant une bande de modes localisés connue sous le nom de *Lifshitz tail* [59], qui s'élargit avec l'augmentation du désordre.

Les études des cristaux phononiques et photoniques ont développés leurs propres caractéristiques physiques et il manque encore des éléments de compréhension du point de vue de l'information. Récemment, les concepts de métamatériaux codants [60], numériques et programmables ont été introduits et démontrés expérimentalement. Il a été proposé de mesurer l'information d'une métasurface de codage soit en optique [61], soit en acoustique [62]. Dans ces articles, les auteurs ont défini des résonateurs locaux avec des réponses de phase opposées dans des particules de codage équivalentes '0' et '1'. Ils ont montré que le motif de champ lointain d'une métasurface de codage est défini par la transformée de Fourier du motif de codage, ce qui fournit une connexion analytique entre les mondes géométrique (codage) et physique (champ lointain) des métasurfaces. Un tel concept accroît la quantité d'informations qui peut être manipulée dans les messages transmis. C'est à cette fin que le projet RANDOM se propose d'étudier la co-localisation de photons et de phonons dans les cristaux phoXoniques : définir une plateforme support d'un message qui serait porté par les

modes électromagnétiques localisés et lu par les ondes élastiques.

À ce jour, il existe plusieurs preuves expérimentales de localisation d'ondes élastiques rapportées dans des agrégats de billes métalliques ou encore dans des forêts de tiges immergées, mais toutes se limitent aux basses fréquences puisque ces études ne dépassent jamais la dizaine de MHz. De la même manière, il existe encore très peu d'études expérimentales portant sur les plasmons de surface en milieux désordonnés, et encore moins sur le couplage entre ces deux types d'ondes dans des nanostructures. Cette thèse tend alors à contribuer au volet expérimental du projet RANDOM de deux manières : élaborer deux bancs expérimentaux distincts permettant d'une part de générer et détecter des ondes élastiques de surface très hautes fréquences (quelques GHz) et d'autre part l'étude de plasmons de surface dans des ensembles de nanoparticules d'Au. Un premier chapitre portant sur l'influence d'une distribution aléatoire de diffuseurs sur la propagation des ondes, ou les fondamentaux de la diffusion multiple sont présentés, s'est avéré indispensable pour définir la géométrie des échantillons support de l'étude. Deux échantillons distincts, mais aux géométries proches ont alors été réfléchis et fabriqués pour satisfaire aux exigences du projet. Une deuxième partie sera alors entièrement consacrée au dispositif d'acoustique picoseconde, nécessaire à la compréhension des résultats expérimentaux présentés dans une troisième partie. La dernière partie de ce manuscrit sera consacrée à la partie optique, effectuée au laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne de l'Université de Bourgogne Franche-Comté et qui est le résultat de six mois de travail. Durant cette période, un dispositif expérimental a été monté et des échantillons constitués de nanoparticules d'Au organisées périodiquement ou aléatoirement ont pu être caractérisés. Bien que le couplage acousto-optique n'ait pu être étudié au moyen d'un dispositif expérimental commun, les deux dispositifs construits se sont avérés efficaces et riches en enseignements pour l'élaboration du microscope acousto-optique final, et qui sera évoqué en fin de manuscrit.

Chapitre 1

Influence de la nature d'une distribution aléatoire de diffuseurs sur la propagation des ondes et dimensionnement des échantillons

Table des matières

Introduction	6
1.1 Les ondes en milieu complexe	7
1.1.1 Modèle-jouet pour la diffusion multiple	7
1.1.2 Description statistique du désordre hyperuniforme et impact des corrélations spatiales sur la propagation des ondes : effets d'ordre 2	9
1.1.2.1 Description statistique des différentes configurations de désordre	9
1.1.2.2 Impact sur la propagation des ondes électromagnétiques et acoustiques	12
1.1.3 Localisation d'ondes au sens d'Anderson : effets d'ordre 3	16
1.1.3.1 Bref historique des contributions théoriques majeures à la compréhension du phénomène	16
1.1.3.2 Localisation d'Anderson des ondes dans des distributions désordonnées totalement décorréelées et influence des corrélations spatiales	18
1.2 Introduction aux plasmons de surface : quelques généralités	24
1.3 Dimensionnement et fabrication des échantillons	27
1.3.1 Les échantillons acoustique	27
1.3.2 Les échantillons optique	30
1.4 Conclusion	34

Introduction

Que ce soit en sismologie [63], en imagerie [64], ou encore pour expliquer la couleur de certains êtres vivants [65], l'étude de la propagation d'ondes en milieux complexes est un sujet central en physique tant elle soulève de questions. C'est en partie grâce à P. W. Anderson dans son article de 1958 (qui lui vaudra plus tard un prix nobel), portant sur l'absence de diffusion des électrons dans des métaux [13] que l'on doit un tel engouement. Il faut alors attendre une vingtaine d'année pour que Abrahams *et al.* [66] mettent en évidence l'existence d'un régime critique pour lequel les ondes (au sens large) cessent de se propager : on parlera alors de localisation d'Anderson (ou localisation forte). Depuis, de nombreux travaux numériques et expérimentaux ont oeuvrés à la compréhension et l'observation de cette transition du régime de diffusion vers la localisation forte. Cette transition s'opère dans des milieux désordonnés et fortement diffusant en raison d'interactions fortes entre les ondes multiples diffusées, dont une contribution importante est à attribuer à la statistique du désordre. Deux types de désordre se démarquent alors et altèrent de manière différente la propagation des ondes : les distributions décorrélatées et corrélées. Il est d'usage d'avoir recours au formalisme de Green pour décrire les phénomènes de diffusion multiple [67–69] tant ce dernier rend compte de toute la complexité de la propagation d'onde en milieux désordonnés, malgré l'infinité de termes qui composent l'équation. Cependant, une expansion pour une chaîne de quatre diffuseurs s'avère suffisante pour rendre compte des corrélations spatiales (effet d'ordre 2) et des boucles de diffusion (effet d'ordre 3) qui peuvent être responsables de la transition du régime de diffusion vers le régime de localisation forte. L'influence de ces deux effets sur la propagation des ondes sera alors illustrée au travers d'un bref état de l'art portant sur des études numériques et expérimentales.

L'objectif de cette thèse consiste à étudier expérimentalement l'influence de la statistique d'une distribution aléatoire de diffuseur sur la propagation d'une onde élastique de surface à l'échelle du μm , et en particulier sur la répartition spatiale et l'intensité des modes localisés. Indépendamment et en parallèle des ondes élastiques, la même étude sera menée sur des plasmons de surface. Ces travaux conjoints sur les ondes élastiques et plasmoniques s'inscrivent dans le cadre d'un projet ANR nommé RANDOM, dans lequel l'objectif est de mettre en évidence (expérimentalement en ce qui concerne ce projet de thèse) un couplage optomécanique dans des métasurfaces plasmoniques. Sur la base de l'étude bibliographique préliminaire, des échantillons ont été réfléchis et conçus pour être favorables à l'observation de ces phénomènes de localisation d'onde, dont les différentes caractéristiques seront détaillées dans ce chapitre. Même si aucune localisation au sens d'Anderson n'a pu être directement mise en évidence au cours de cette thèse, la compréhension des phénomènes de diffusion multiple et l'identification de certains paramètres clefs s'avèrent indispensables et justifient entièrement la géométrie des échantillons qui ont été étudiés.

1.1 Les ondes en milieu complexe

1.1.1 Modèle-jouet pour la diffusion multiple

Lorsqu'une onde – qu'elle soit électromagnétique ou acoustique – se propage dans un milieu hétérogène, elle interagit avec ce dernier en raison des ruptures d'impédance liées au changement de milieu. La figure 1.1 fournit une représentation schématique des différents régimes de diffusion qui existent suivant les caractéristiques du milieu et des ondes qui s'y propagent. C'est le rapport entre le libre parcours moyen de diffusion ℓ_s et les dimensions caractéristiques du milieu qui renseigne sur la nature de ces interactions. En effet, lorsque $\ell_s/L \gg 1$ alors l'onde se propage sans vraiment interagir avec le milieu : on parle de propagation balistique. Lorsque les deux longueurs sont comparables alors l'onde sera diffusée en moyenne une seule fois par le milieu : il constitue le régime de diffusion simple.

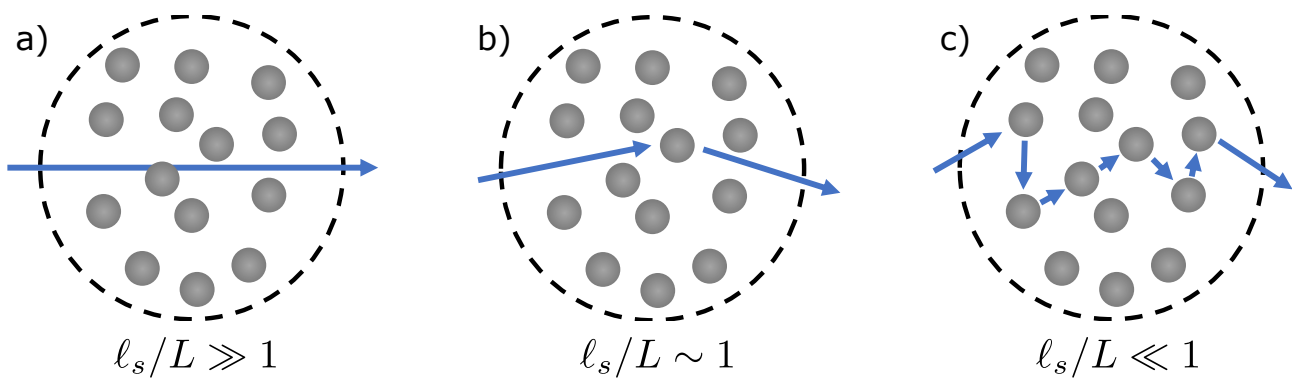


Figure 1.1 – Représentation schématique des différents régimes de diffusion suivant la valeur du rapport entre le libre parcours moyen de diffusion ℓ_s et les dimensions caractéristique du milieu diffusant L , délimité par le cercle noir en pointillé. Les cercles gris représentent les diffuseurs. **a)** $\ell_s/L \gg 1$: régime balistique, **b)** $\ell_s/L \sim 1$: régime de diffusion simple, et **c)** $\ell_s/L \ll 1$: régime de diffusion multiple.

Dans ce cas de figure, le champ en sortie du milieu correspond simplement à la somme de l'onde diffusée et de l'onde incidente. Pour cette configuration, l'extinction de l'intensité du champ est parfaitement décrite par la loi de Beer-Lambert, qui prévoit une décroissance exponentielle du champ : $I \propto \exp(-L/\ell_e)$, où ℓ_e est appelé le libre parcours moyen d'extinction. Cette grandeur permet donc de quantifier l'extinction de l'intensité due aux processus de diffusion et à l'éventuelle absorption intrinsèque du milieu caractérisée par la longueur d'absorption ℓ_a puisque $1/\ell_e = 1/\ell_s + 1/\ell_a$. Dans la suite de cette partie, on considérera l'absorption du milieu négligeable de telle sorte que l'extinction sera exclusivement due à des processus de diffusion : $\ell_e \sim \ell_s$. Enfin, dans le dernier régime ou $\ell_s/L \ll 1$ (c'est celui qui nous intéressera tout particulièrement), l'onde sera diffusée plusieurs fois : on parle alors de diffusion multiple. Alors que dans certains cas il est possible d'exprimer le champ total comme la superposition du champ incident et de la résultante de toutes les ondes diffusées, cela n'est pas toujours le cas et dépend principalement de la nature des interactions qui règnent entre les diffuseurs. On ne prétend pas dans cette partie développer les équations de la diffusion multiple, ni d'apporter une contribution théorique tant la littérature à ce sujet est riche [68–70], mais seulement d'illustrer les concepts sous-jacents au travers de quelques études importantes.

Il est d'usage d'avoir recours au formalisme de Green pour décrire la propagation d'une onde

dans un milieu multiplement diffusant. On donne en relation 1.1 la fonction de Green moyenne $\langle G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \rangle$ qui décrit la propagation d'une onde entre les points \mathbf{r} et \mathbf{r}' sous la forme d'une expansion diagrammatique pour une série de quatre diffuseurs, et qui permet d'apprécier et de discriminer les différents régimes/mécanismes de diffusion [68].

$$\begin{aligned}
 \langle G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \rangle = & \text{---} + \text{---} \bullet \text{---} + \text{---} \bullet \bullet \text{---} + \text{---} \bullet \bullet \text{---} \text{---} + \text{---} \bullet \bullet \text{---} \text{---} \text{---} + \text{---} \bullet \bullet \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \\
 & + \text{---} \bullet \bullet \text{---} \text{---} + \text{---} \bullet \bullet \text{---} \text{---} \text{---} + \text{---} \bullet \bullet \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} + \text{---} \bullet \bullet \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \\
 & + \text{---} \bullet \bullet \text{---} \text{---} \text{---} + \text{---} \bullet \bullet \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} + \text{---} \bullet \bullet \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \\
 & + \text{---} \bullet \bullet \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} + \text{---} \bullet \bullet \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} \text{---} + \dots
 \end{aligned}
 \tag{1.1}$$

Avant d'entrer plus en détail quant à l'influence de chacun de ces paramètres sur la propagation de l'onde, il convient de les définir :

--- = G_0 , la fonction de Green qui décrit la propagation de l'onde en l'absence de diffusion,

● correspond à un évènement de diffusion sur le trajet de l'onde : effet d'ordre 1,

---●---●--- est une chaîne à deux diffuseurs corrélés spatialement, représenté par la ligne pointillée : effet d'ordre 2,

---●---●--- est un système d'interaction à deux diffuseurs ou les évènements un et trois sont issus d'une même particule : effet d'ordre 3.

Mises bout à bout, ces chaînes de diffusion permettent de reconstruire l'ensemble des chemins suivis par l'onde et prennent en compte la nature des diffuseurs mais aussi la statistique du milieu diffusant. Ceci-étant, cette équation comporte une infinité de termes, qui ont une influence relative suivant la nature du problème considéré. En effet cette relation est riche d'enseignement puisque l'on peut y distinguer trois termes de natures différentes¹ : les termes d'ordre 1 qui constituent une succession d'évènements de diffusion simple, les termes d'ordre 2, qui rendent comptes des corrélations spatiales qui règnent entre les diffuseurs, et les termes d'ordre 3, qui désignent des effets de diffusion récurrente (ou boucles de diffusion) et qui sont responsable du ralentissement du coefficient de diffusion au cours de la propagation [71].

Dans le cas des milieux parfaitement décorrélés (distributions de Poisson), les effets d'ordre 2 ne contribuent aucunement à la fonction de Green moyenne. Si en plus de cela la densité de diffuseur est faible (typiquement $\rho \leq 10\%$), alors la contribution des effets d'ordre 3 sera aussi négligeable si bien que la relation 1.1 peut se réduire sous la forme d'une somme de diffusions simples et indépendantes, plus connue sous le nom d'*independent scattering approximation* (ISA) [72]. Dans ce cas, le libre parcours moyen de diffusion prend une forme simple

$$\ell_s = \frac{1}{n\sigma}, \tag{1.2}$$

1. La dénomination « ordre » est un élément de langage et ne fait en aucun cas référence à des comportements en loi de puissance.

et dépend uniquement de la concentration en diffuseur n et de la section efficace de diffusion σ qui quantifie le rayonnement de la particule. En revanche, dans le cas de distributions dont les diffuseurs exhibent des corrélations spatiales fortes – comme les désordres hyperuniformes –, il apparaît évident que les effets d'ordre 2 ne sont plus négligeables et doivent être pris en compte pour fournir une description fidèle de la physique sous-jacente. Enfin les effets d'ordre 3 qui se manifestent pour des valeurs $k\ell \sim 1$ (k le vecteur d'onde), conduisent à la mise en place d'interférences constructives fortes qui mènent à des phénomènes de localisation d'onde au sens d'Anderson.

On se propose alors dans ce chapitre d'étudier l'influence de la statistique d'une distribution de diffuseurs répartis aléatoirement dans l'espace sur la propagation des ondes, et en particulier les effets des ordres 2 et 3 de la relation 1.1. Après une brève introduction sur la nature de ces effets, ils seront illustrés au travers d'études – numériques et expérimentales – qui ont apportées une contribution majeure à la compréhension de ces phénomènes.

1.1.2 Description statistique du désordre hyperuniforme et impact des corrélations spatiales sur la propagation des ondes : effets d'ordre 2

1.1.2.1 Description statistique des différentes configurations de désordre

En partant d'une structure cristalline, il est aisé d'obtenir une distribution de point dont les positions des diffuseurs sont complètement décorréélées les unes des autres : on parlera de distribution de type Poisson. En pratique, il suffit d'apposer une Gaussienne d'écart-type σ sur chacune des particules du réseau périodique qui fixe l'intervalle dans lequel elles vont pouvoir se déplacer, avec une condition de sphère dure pour éviter toute interpénétration. Toutefois, en prenant une condition d'interpénétrabilité plus restrictive sur l'interaction entre particules, des corrélations spatiales se forment au sein de la distribution et provoquent la création d'un ordre partiel, visible sur la figure 1.2.

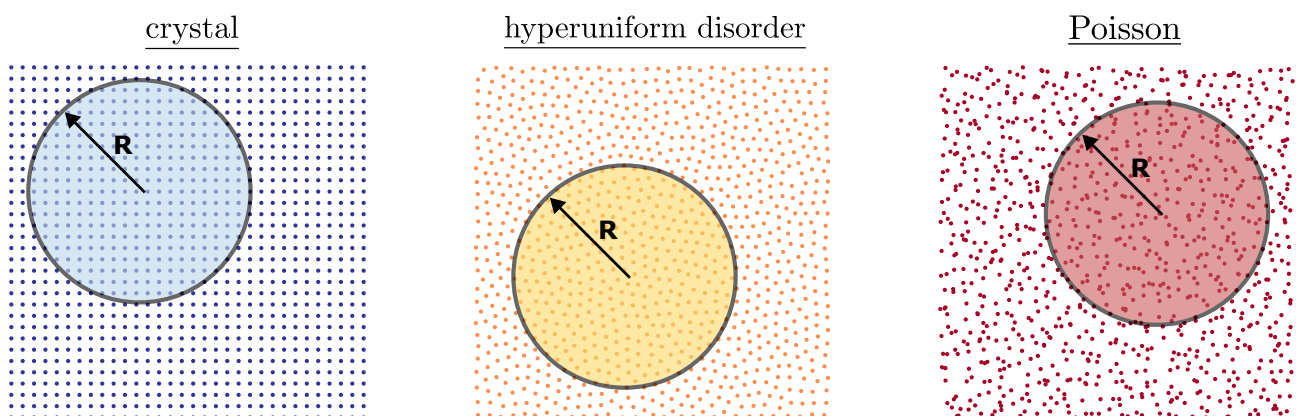


Figure 1.2 – Distributions spatiales de points suivant une géométrie cristalline, hyperuniforme désordonnée, et de Poisson. La variance du nombre de points comptabilisés dans un disque de rayon R évolue de manière différente pour les trois distributions. La densité de diffuseurs est la même dans les trois configurations.

Les trois distributions correspondantes possèdent la même densité de diffuseurs. Ce dernier type de distribution, communément appelé désordre *hyperuniforme* [73], se démarque de la distribution de Poisson autant en terme de statistique, que de propagation d'onde. Avant d'entrer plus en détail sur la façon de générer numériquement ces distributions, un moyen d'appréhender la présence de

corrélations spatiales entre particules consiste à comparer l'évolution de la variance du nombre de points comptabilisés dans un cercle de rayon R croissant. Dans le cas d'une distribution complètement désordonnée, la variance du nombre de points lorsque le rayon du cercle tend vers l'infini est égale à la valeur moyenne du nombre de points : $\langle N^2(R) \rangle - \langle N(R) \rangle^2 = \langle N(R) \rangle$. En revanche, pour le cas des distributions hyperuniformes, cette variance croît moins vite que le nombre de points comptabilisés, jusqu'à devenir nulle lorsque le rayon du cercle $R \rightarrow +\infty$, ce qui se traduit par la relation 1.3.

$$\lim_{R \rightarrow +\infty} \frac{\langle N^2(R) \rangle - \langle N(R) \rangle^2}{\langle N(R) \rangle} = 0 \quad (1.3)$$

Autrement dit, les fluctuations de densité à grande échelle deviennent négligeables, d'où l'appellation hyperuniforme. Ces différences de variations sont mises en évidence par la représentation $\log(\sigma^2(R))$ en fonction de $\log(R/a)$ en figure 1.3 ou le coefficient directeur de la régression linéaire est effectivement plus faible dans le cas d'une distribution hyperuniforme que dans le cas d'une distribution de Poisson.

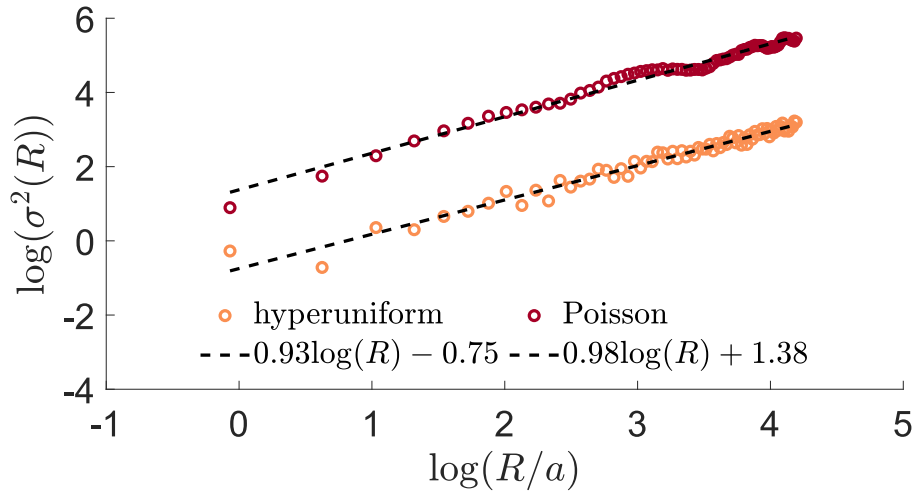


Figure 1.3 – Représentation en échelle logarithmique de la variance du nombre de points σ^2 comptabilisé dans un disque de rayon R en fonction du rapport R/a ou a rend compte de l'écart moyen entre particules. La ligne en pointillé est une régression linéaire qui met en évidence les différences de variation entre les deux configurations de désordre.

Quelque soit la valeur de σ choisie, il est nécessaire d'imposer une condition supplémentaire pour introduire des corrélations spatiales entre diffuseurs, appelée rayon d'exclusion r_c , qui peut être vue comme une force de répulsion que les particules exercent sur leur entourage proche et qui a pour conséquence une organisation partielle de la structure [74]. On donne en figure 1.4 des distributions de diffuseurs générées pour trois rayons d'exclusions différents et les conséquences d'une telle contrainte sur la fonction de corrélation de paire. Cette fonction permet de compter le nombre de paires de particules comprises dans une couronne de rayon $r + dr$. Il est courant de la représenter en fonction du rapport r/a , a étant la distance moyenne entre diffuseurs. Là où cette fonction est toujours unitaire dans le cas d'une condition de sphère dure ($r_c = 0$), cette dernière se trouve fortement impactée par l'augmentation du rayon d'exclusion ou une forte modulation du nombre de paire de particules se manifeste tous les nr/a , où n est une nombre entier. Si ce rayon d'exclusion est fixé à 1, la distribution correspondante est alors un réseau périodique de diffuseur,

c'est pourquoi les milieux hyperuniformes sont qualifiés d'états intermédiaires entre la distribution de Poisson et le cristal.

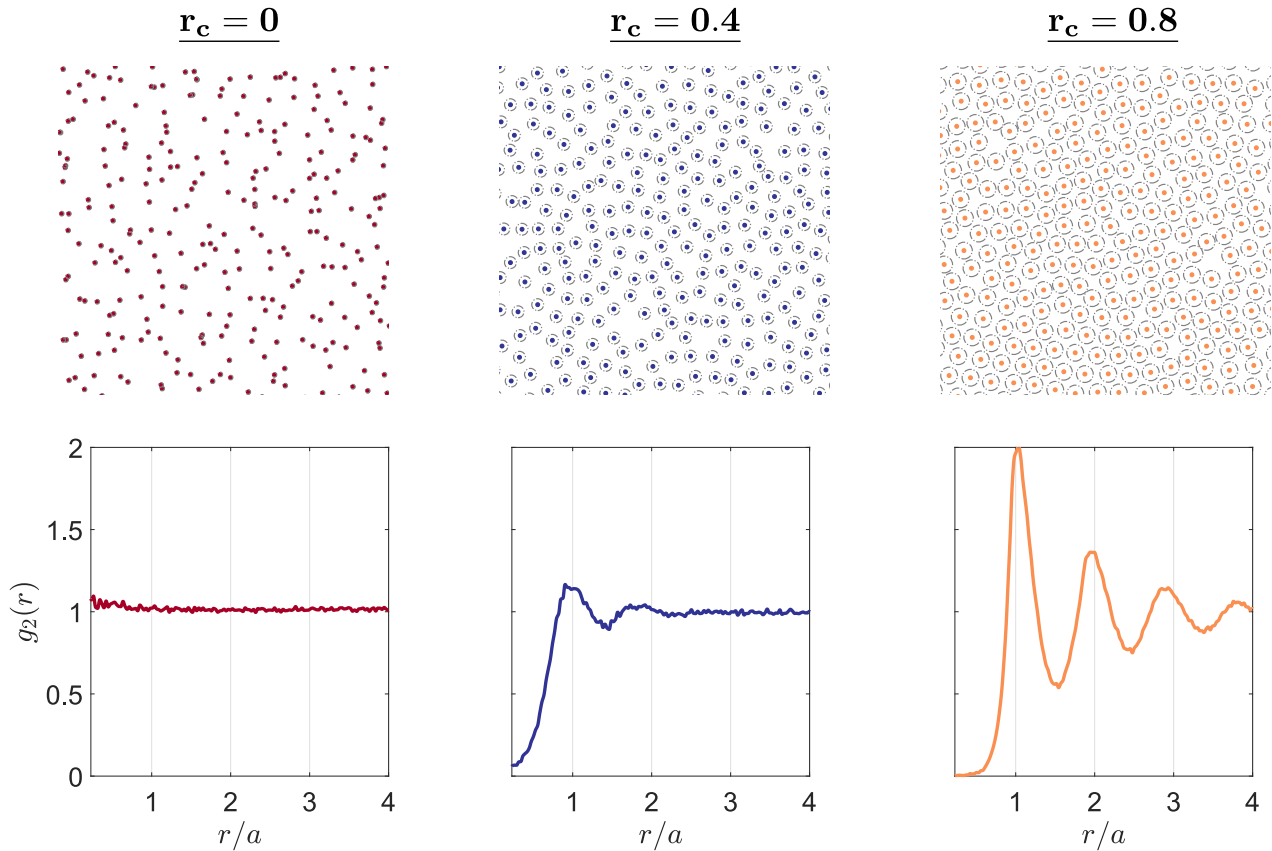


Figure 1.4 – Influence du rayon d'exclusion r_c autour d'une particule sur la fonction de corrélation de paire g_2 en fonction du rapport r/a . r est le rayon du cercle qui permet de comptabiliser le nombre de paires de particules et a l'écart moyen entre ces dernières.

Ces fortes corrélations spatiales qui apparaissent à l'introduction d'un rayon d'exclusion s'avèrent avoir une forte influence sur les ondes qui s'y propagent et ce quelle que soit la densité de diffuseurs, comme le laissait présager la relation **1.1**. Le pendant de cette description statistique consiste à basculer dans l'espace réciproque pour évaluer l'impact de ces corrélations spatiales sur la façon dont les ondes sont diffusées par la structure support de la propagation, quantifié par le facteur de structure $S(\mathbf{k})$. Ce dernier n'est autre qu'une transformée de Fourier discrète de la distribution de points puisqu'il se définit de la manière suivante

$$S(\mathbf{k}) = \frac{1}{N} \left\langle \sum_{j=1}^N e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}_j} \right\rangle^2, \quad (1.4)$$

ou N correspond au nombre de diffuseurs, \mathbf{k} au vecteur d'onde, et \mathbf{r}_j à la position de chacune des particules au point j . Il s'agit d'une grandeur très fréquemment rencontrée en cristallographie, dans le cas de la diffraction rayon X par exemple [75], qui en est une mesure directe. Cette quantité donne une information précieuse sur la façon dont la lumière est diffractée par une structure. Dans le cas d'un réseau périodique, cette grandeur prend des valeurs discrètes pour certains vecteurs d'ondes prédits par la loi de Bragg, là où cette diffraction est totalement incohérente dans le cas d'une distribution complètement désordonnée. Qu'en est-il alors pour la propagation des ondes au sein d'un

désordre qui exhibe ce type de corrélations spatiales ?

On donne en figure 1.5 les facteurs de structure 2D calculés à partir de la relation 1.4 pour les trois rayons d'exclusions employés précédemment.

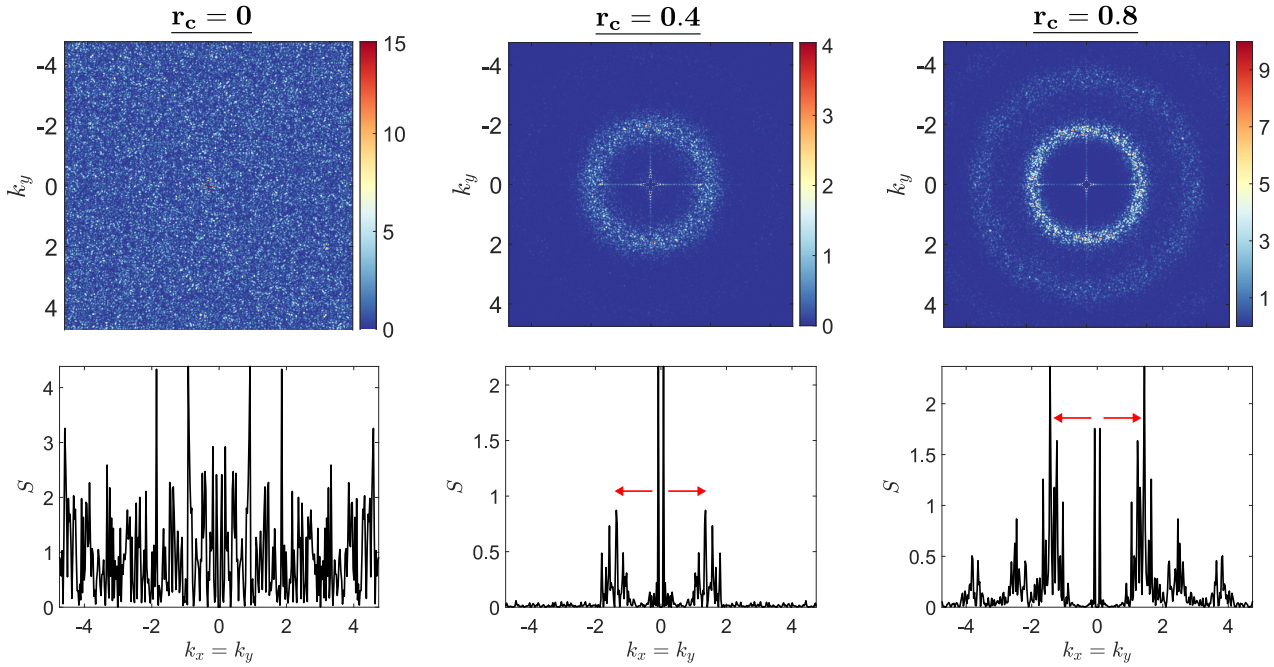


Figure 1.5 – Facteurs de structure $S(\mathbf{k})$ 2D des distributions générées en figure 1.4 pour trois rayons d'exclusion r_c . En dessous sont tracés $S(k_x = k_y)$ et mettent en évidence l'annulation de ce dernier pour les petits vecteurs d'onde à l'augmentation du rayon d'exclusion, pointé par les flèches rouges.

Là où pour la condition de sphère dure le facteur de structure semble complètement incohérent, un motif clair se dessine lorsque le rayon d'exclusion augmente. En particulier, les corrélations spatiales sont responsables de l'annulation du facteur de structure pour les petits vecteurs d'ondes :

$$S(\mathbf{k}) \rightarrow 0 \quad \forall \quad k \rightarrow 0. \quad (1.5)$$

C'est cette annulation du facteur de structure dans cette zone qui permet de différencier les configurations de points à ordre partiel², des distributions hyperuniformes. Au passage, il faut noter que les cristaux ou quasi-cristaux sont aussi des distributions hyperuniformes au sens de cette définition, mais ne constituent pas ici un objet d'intérêt dans la mesure où elles ne sont pas désordonnées. L'objet de la prochaine partie porte donc sur l'impact de ces fortes corrélations spatiales sur la propagation des ondes, qu'elles soient électromagnétiques ou acoustiques.

1.1.2.2 Impact sur la propagation des ondes électromagnétiques et acoustiques

Une des premières preuves expérimentales de la manifestation des interactions fortes entre particules a été obtenue par Fraden *et al.* [76] pour de la lumière multiples diffusée dans des suspensions colloïdales dont la fraction volumique est progressivement augmentée. Les auteurs rapportent

2. Ce que serait une configuration de point construite avec une valeur de σ faible et sans rayon d'exclusion, qui ne serait en aucun cas hyperuniforme, bien que présentant un ordre partiel.

en figure 1.6 qu'à partir d'une fraction volumique $\phi \sim 10\%$, un simple modèle qui ne prend pas en compte les interactions entre particules (ligne pointillée) ne suffit plus à prédire efficacement les variations de la quantité $1/\ell_t$, l'inverse du libre parcours moyen de transport de la lumière. En revanche, les points expérimentaux sont très bien reproduits par l'approximation de Percus-Yevick [77] qui fournit une expression analytique du facteur de structure – dont dépend ℓ_t – et prenant en compte les interactions inter-particules.

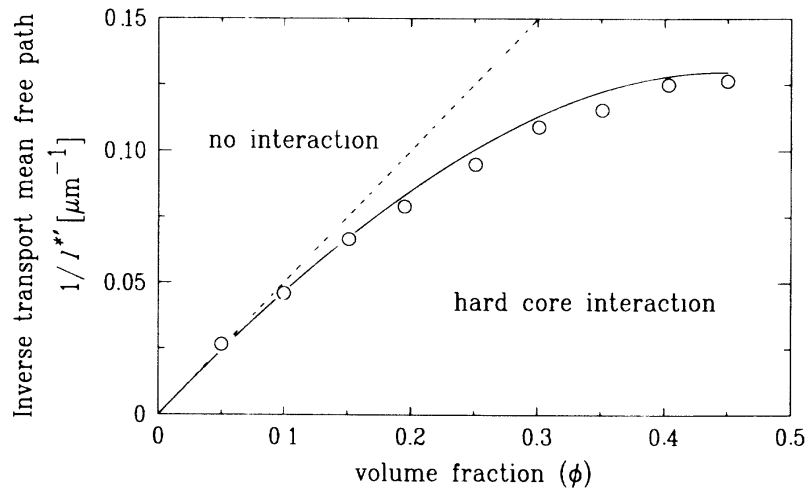


Figure 1.6 – Inverse du libre parcours moyen de transport $1/\ell_t$ de la lumière mesuré dans une suspension colloïdale de sphère en polystyrène en fonction de la fraction volumique ϕ . La ligne pointillée correspond au calcul sans prise en compte des corrélations spatiales (ISA) tandis que le trait plein est issu de l'approximation de Percus-Yevick qui permet la prise en compte de ces interactions. Figure extraite de [76].

Plus récemment, les travaux de Derode *et al.* [24] ont aussi permis de démontrer expérimentalement cette déviation par rapport au modèle classique via la mesure d'une onde acoustique s'étant propagée au travers d'une forêt de tiges immergées dans de l'eau.

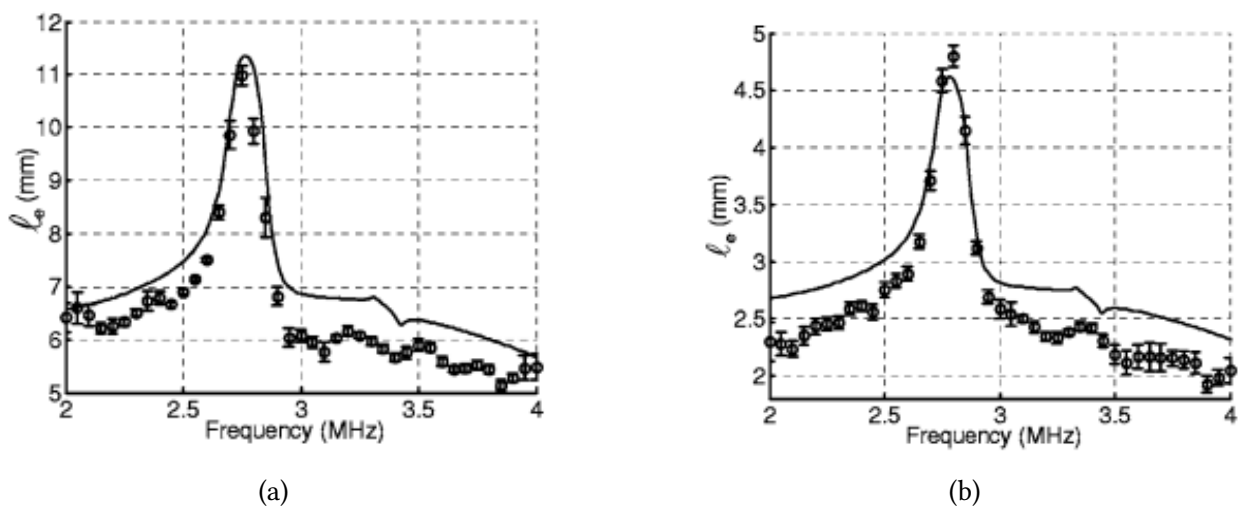


Figure 1.7 – Variation du libre parcours moyen élastique ℓ_e en fonction de la fréquence pour une onde élastique s'étant propagée dans une forêt de tiges immergées dans de l'eau, pour une concentration en diffuseur a) $n = 12 \text{ cm}^{-2}$ et b) $n \sim 30 \text{ cm}^{-2}$. Le trait plein correspond aux variations de ℓ_e prédites par l'ISA. Figures extraites de [24].

En mesurant la décroissance de la transmission du front d'onde cohérent en fonction du temps, ils accèdent directement au libre parcours moyen élastique en fonction de la fréquence puisque l'absorption du milieu a été préalablement démontrée comme étant négligeable. Les mesures ont été obtenues pour deux densités de diffuseurs : **1.7(a)** $n \sim 12 \text{ cm}^{-2}$ et **1.7(b)** $n \sim 30 \text{ cm}^{-2}$ et sont superposées aux prédictions de l'ISA en trait plein. Quelque soit la densité, les mesures expérimentales sont bien reproduites par l'ISA autour de la résonance des tiges métalliques (2.5–2.9 MHz), mais apparaissent légèrement surestimées en dehors. Les calculs de la fonction de corrélation de paire et du facteur de structure de la distribution associée a révélée la présence de corrélations spatiales qui sont volontairement écartées par l'approximation de diffusion simple. La prise en compte des effets d'ordre deux dans les équations mène alors à une expression pour le nombre d'onde effectif k_{eff} qui fait intervenir la fonction $g_2(r)$ qui a pour conséquence la modulation du nombre d'onde prédit par l'ISA k_{ISA} [78]. $f(0)$ est appelée fonction de forme en champ lointain pour un angle $\theta = 0$, J_0 est la fonction de Bessel d'ordre 0, $H_0^{(1)}$ est la fonction de Hankel d'ordre 0 de première espèce, et $n_0 = \rho/\pi a^2$ avec ρ la densité et a le rayon des diffuseurs. Comme il a été vu précédemment, cette fonction est toujours unitaire dans le cas d'une distribution de Poisson ce qui justifie entièrement l'emploi de l'ISA pour les milieux complètement décorrélés puisque le second membre de la relation 1.6 sera alors toujours nul.

$$k_{\text{eff}}^2 = k_{\text{ISA}}^2 - 8i\pi f(0)^2 n_0^2 \int_0^{+\infty} J_0(k_{\text{eff}}r) H_0^{(1)}(k_0 r) [1 - g_2(r)] r dr. \quad (1.6)$$

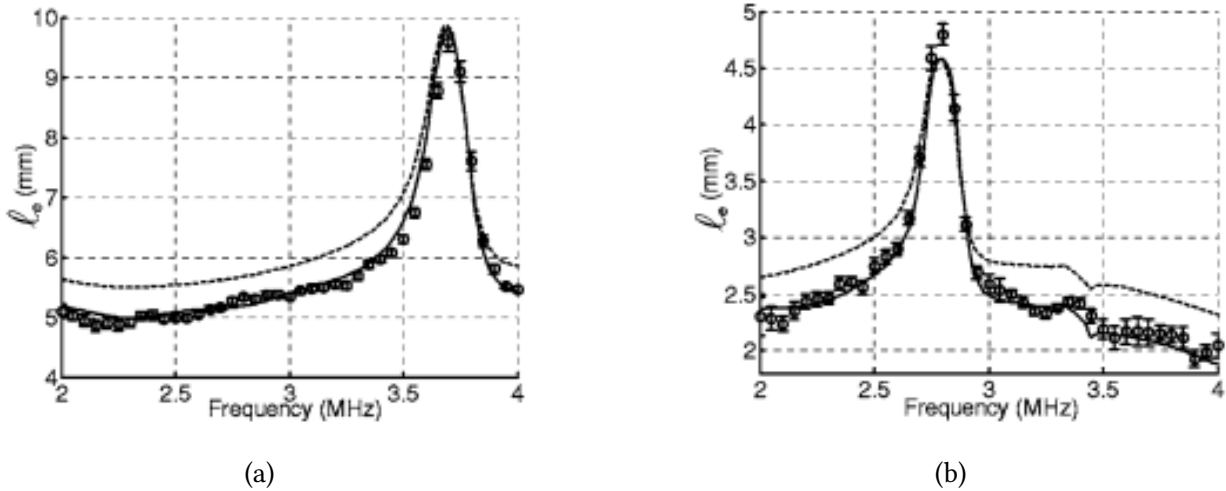


Figure 1.8 – Variation du libre parcours moyen élastique ℓ_e en fonction de la fréquence pour une concentration en tige **a)** $n \sim 19 \text{ cm}^{-2}$ et **b)** $n \sim 30 \text{ cm}^{-2}$. La ligne pointillée correspond à l'ISA et le trait plein au modèle de Keller qui permet de rendre compte des corrélations spatiales qui règnent au sein de la distribution de diffuseurs. Figures extraites de [24].

En revanche, ce n'est plus le cas pour les distributions présentant des corrélations spatiales, qui nécessitent l'emploi de modèles un peu plus sophistiqués. La prise en compte de ces effets via le modèle de Keller [79] (trait plein) est superposé aux mesures expérimentales et à l'ISA (trait pointillé) en figures **1.8(a)** et **1.8(b)**. La reproduction quasiment parfaite des données expérimentales sur toute la gamme de fréquence étudiée avec le modèle de Keller souligne donc l'importance de la prise en compte des corrélations spatiales dans les modèles.

C'est en 2003 que le terme d'hyperuniformité a été employé pour la première fois par S. Torquato et F. Stillinger qui proposent de classifier les différentes distributions de désordre via l'évolution de la variance du nombre de points dans un domaine Ω [80], comme cela a été fait plus haut pour discriminer les distributions de Poisson et hyperuniforme. Une conséquence de l'annulation du facteur de structure est la suppression de la diffusion aux vecteurs d'ondes correspondants, ce qui leur vaut la dénomination *stealthy hyperuniform* (SHU). Leseur *et al.* [7] ont exploité cette propriété en générant des distributions dont le domaine d'annulation du facteur de structure est contrôlé par un paramètre $K = \frac{2\pi}{L}\sqrt{4N\chi + 1}$ ajustable à façon, pour rendre les distributions transparentes à la propagation d'ondes lumineuses aux longueurs d'onde se situant dans ce domaine. Ici, L représente la dimension latérale de la distribution, N le nombre de particules, et χ le taux de contrainte que les particules exercent les unes sur les autres; un taux de contrainte nul mène à une distribution de Poisson tandis qu'une contrainte unitaire donne lieu au réseau périodique. C'est par ce paramètre qu'est quantifié le niveau de corrélation qui règne dans une structure désordonnée, et qui est classiquement utilisé dans la littérature. Des travaux analogues ont aussi été menés par Rohfritsch *et al.* [8] (en 2D) ou encore dans l'équipe de Romero-García [81] (en 1D), et appliqués au cas des ondes élastiques ou les distributions hyperuniformes manifestent les mêmes propriétés de transparence.

Bien que remarquables, les propriétés mises en avant par ces distributions n'ont pas été étudiées ici en raison de la nature large-bande de la méthode expérimentale utilisée en acoustique et qui fait l'objet du chapitre suivant. En marge de leurs propriétés de transparence, Florescu *et al.* [82] ont vu dans l'introduction des corrélations spatiales, l'opportunité de générer des quasi-cristaux qui présentent des bandes interdites aussi larges que pour un cristal classique, là où ces dernières étaient jusqu'à maintenant entièrement attribuées à des phénomènes de diffusion, voire de localisation au sens d'Anderson.

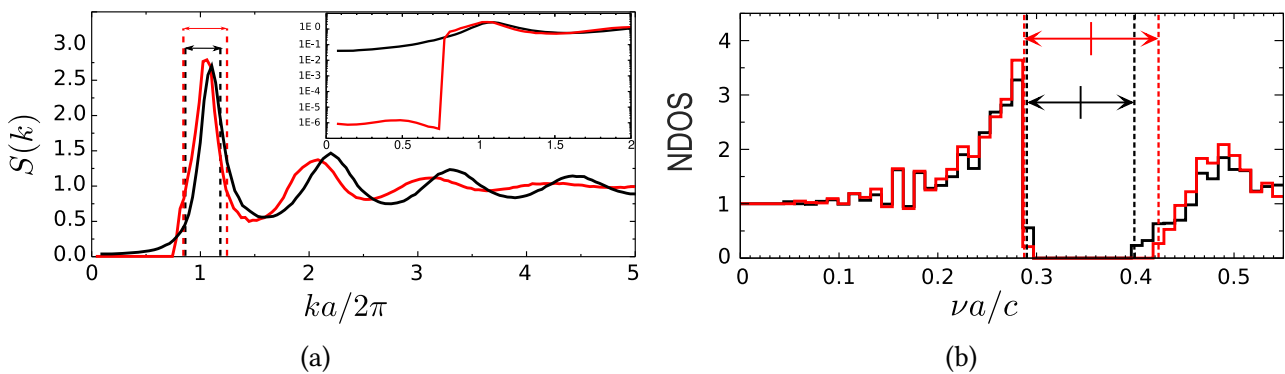


Figure 1.9 – **a)** Facteurs de structure $S(\mathbf{k})$ pour une distribution SRC (en noir) et une distribution SHU (rouge). L'encart met en évidence la différence de dynamique pour les petits vecteurs d'onde entre ces deux types de distributions. **b)** Influence de la nature de la distribution sur la largeur de la bande interdite, quantifiée par la NDOS (densité locale d'état) en fonction de la fréquence normalisée. k est le nombre d'onde, ν la fréquence optique, c la vitesse de la lumière, et a la distance moyenne entre diffuseurs. Figures extraites de [83].

Les auteurs alors en évidence que la compétition entre l'hyperuniformité et les corrélations à courte-portée permettent de maintenir la largeur de la bande interdite sans pour autant introduire de corrélations à longue portée caractéristiques des structures cristallines, c'est à dire en conservant le caractère désordonné de la distribution. Plus tard, Froufe-Perez *et al.* [83] étudient les différences entre les distributions SHU et SRC (pour *short-range correlated*) sur la largeur de ces bandes photo-

niques interdites. La différence entre les distributions SRC et SHU réside dans la valeur du facteur de structure pour les petits vecteurs d'onde. Même si comme le montre la figure **1.9(a)** ces derniers sont en apparence très proches, la dynamique du facteur de structure de la distribution SHU (en rouge) est bien plus importante que celle de la distribution SRC (en noir) pour les petits vecteurs d'onde. Le calcul de la densité locale d'état en fonction de la fréquence normalisée $\nu a/c$ en figure **1.9(b)** montre un léger élargissement de la bande interdite, bien que peu significatif. Ils en concluent alors que l'annulation des phénomènes de diffusion dans la bande de transparence d'un milieu SHU ne jouent un rôle que très marginal dans la formation de ces bandes interdites.

1.1.3 Localisation d'ondes au sens d'Anderson : effets d'ordre 3

1.1.3.1 Bref historique des contributions théoriques majeures à la compréhension du phénomène

L'étude de la propagation des ondes – au sens large – dans les milieux complexes est un sujet très vivant depuis plusieurs dizaines d'années. Outre les nombreuses applications en imagerie médicale (mais pas que), cette branche de la physique fait aussi face à des problématiques bien plus fondamentales et qui échappent encore à la compréhension générale. C'est dans son article pionnier en 1958 [13] que P. W. Anderson est confronté à la question de l'absence de diffusion des électrons dans des métaux présentant des potentiels aléatoires, pouvant les rendre parfaitement isolants. Ce n'est que vingt ans plus tard que Abrahams *et al.* [66] intègrent la notion de dimensionnalité au problème via une fonction β qui dépend de la conductance de Thouless adimensionnée g et de la taille caractéristique L du milieu considéré, plus connue sous le nom de *scaling function*. Cette représentation permet alors de mettre en lumière que la transition métal-isolant découverte par Anderson est uniquement possible en 3D, là où tous les états sont théoriquement localisés pour les dimensions inférieures. Cette transition s'effectue pour une valeur critique de la conductance adimensionnée pour laquelle β admet une singularité, plus connue sous le nom de *mobility edge* (ME). En parallèle, Vollhardt & Wölfle [84] proposent d'intégrer au formalisme de Green les boucles de diffusion tenues pour responsables des phénomènes de localisation forte. L'introduction de ces effets du troisième ordre (cf équation 1.1) les mène à une expression du coefficient de diffusion ou la constante de diffusion de Boltzmann D_B est renormalisée par une quantité qui dépend de la position et qui doit être recalculée à chaque étape de diffusion : d'où le nom de *self-consistent theory* (SCT). Jusqu'alors, les études étaient centrées sur les électrons pour lesquels les expériences s'avèrent très contraignantes en raison des potentiels interactions entre eux qui peuvent annihiler les effets de localisation forte, à moins de travailler à basse température. C'est John [15] qui parvient le premier à mettre en évidence l'existence d'une ME pour les ondes électromagnétiques dont la position est cohérente avec le critère de Ioffe-Regel qui prédit la transition du régime de diffusion vers la localisation forte (en 3D) pour une valeur critique $(k\ell)_c \sim 1$ à un facteur 2π près [85]. Aussitôt, Sheng et Zhang adaptent la SCT au cas des ondes électromagnétiques et élastiques et parviennent, en plus de prédire la position des MEs, à les associer à des phénomènes résonants [86]. Ils montrent en particulier que le milieu présente autant de seuil de localisation que les diffuseurs possèdent de résonances, et qu'à chaque seuil sont associées deux MEs. Ceci-étant, la SCT, dans sa forme originelle ne prend pas en compte les effets de taille finie des échantillons comme par exemple les effets aux frontières des milieux diffusants, pris en compte par Tiggelen *et al.* [87] plusieurs années plus tard. La prise en compte à la fois des boucles de diffusion et des effets de taille finie permet d'exprimer le coefficient de diffusion de la manière suivante [88] :

$$\frac{1}{D(\mathbf{r}, \Omega)} = \frac{1}{D_B} + \frac{12\pi}{k^2 \ell_B^*} C(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \Omega). \quad (1.7)$$

\mathbf{r} et \mathbf{r}' repèrent la position des diffuseurs d'entrée et de sortie compris dans un domaine Ω , D_B et ℓ_B^* la constante de diffusion et le libre parcours moyen de Boltzmann dans le régime de diffusion classique, k le nombre d'onde, et $C(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \Omega)$ une fonction de Green qui suit les chemins de diffusion. Cette dernière est aussi appelée probabilité de retour et offre une meilleure compréhension des effets qui sont à l'origine de la localisation forte puisqu'elle souligne l'importance du paramètre $k\ell$ sur la renormalisation du coefficient de diffusion. Une vision schématique simple en figure 1.10 permet de mieux appréhender l'influence de cette probabilité de retour.

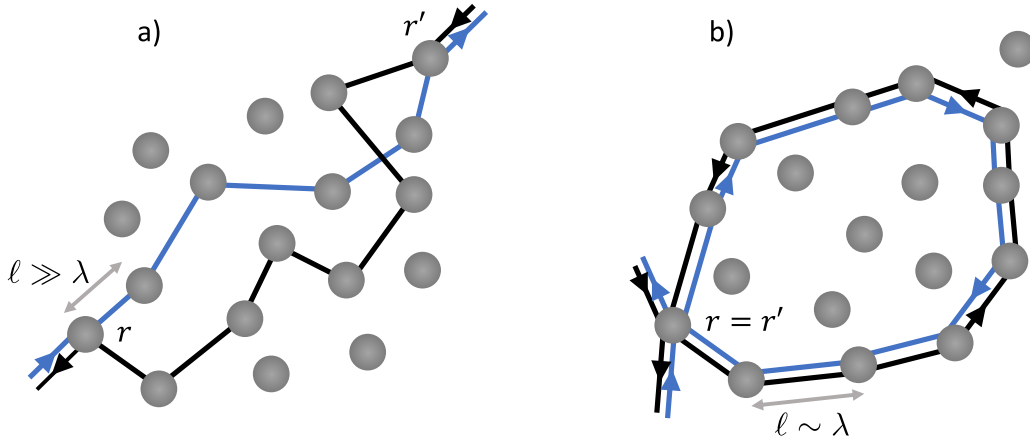


Figure 1.10 – Représentation schématique des régimes de **a)** diffusion ou $\ell \gg \lambda$ et **b)** localisation forte ou $\ell \sim \lambda$. ℓ et λ représentent le libre parcours moyen de diffusion et la longueur d'onde, respectivement. r et r' sont les positions des diffuseurs d'entrée et de sortie du milieu diffusant. Dans le cas d'un milieu diffusant, la position de ces diffuseurs est différente, là où elles sont identiques pour un milieu très diffusant.

Dans le cas de milieux désordonnés où le libre parcours moyen de diffusion ℓ est très grand devant la longueur d'onde λ , les chemins empruntés par les ondes issues des différents événements de diffusion sont complètement incohérents et les effets du désordre seront alors annulés par moyennage de la fonction de Green totale : le coefficient de diffusion est alors constant. L'introduction d'un niveau de désordre important pour une concentration suffisamment forte en diffuseurs permet d'atteindre le régime où $\ell \sim \lambda$, rendant la probabilité de retour non négligeable. Il apparaît alors évident au regard de la relation 1.7 que l'augmentation de cette dernière aura pour conséquence la modulation de la constante de diffusion, jusqu'à même provoquer l'annulation du coefficient de diffusion $D(\mathbf{r}, \Omega)$. $C(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \Omega)$ rend finalement compte de la probabilité que les différentes ondes ont d'interférer constructivement, c'est à dire de parcourir des chemins opposés entre un point \mathbf{r} et un point \mathbf{r}' où les deux positions représentent le même diffuseur : d'où la dénomination de boucle de diffusion. Il est d'usage dans la littérature d'utiliser le paramètre $k\ell$ plus connu sous le nom de critère de Ioffe-Regel, afin de délimiter la transition du régime de diffusion au régime de localisation forte. Dans la limite $k\ell < (k\ell)_c$, il existe une solution analytique qui quantifie l'extinction spatiale du coefficient de diffusion et qui s'exprime comme suit en 2D [70] :

$$\xi_{2D} = \ell e^{\frac{\pi}{2} k\ell}, \quad (1.8)$$

où ξ est appelée longueur de localisation, et est entièrement pilotée par le paramètre $k\ell$. Dans la mesure où les MEs (preuves d'une localisation forte) ne sont uniquement détectables en 3D, toute

preuve de localisation d'Anderson dans des études 2D correspond au cas où cette longueur de localisation est inférieure aux dimensions caractéristiques du milieu étudié : $\xi < L$.

1.1.3.2 Localisation d'Anderson des ondes dans des distributions désordonnées totalement décorréelées et influence des corrélations spatiales

Les distributions parfaitement décorréelées

En raison de la complexité des techniques expérimentales qui imposent de travailler à basse température pour étudier les phénomènes de localisation forte d'électrons, le sujet s'est naturellement déporté sur les ondes acoustiques et électromagnétiques. Bien que des preuves expérimentales de localisation d'onde électromagnétique s'accumulent dans des géométries 2D [25, 89–102], ces études échouent à détecter les MEs en 3D. Comme suggéré par Sheng [86], ces zones de transition se situent aux abords des fréquences de résonance des diffuseurs. A la difficulté de construire des distributions aléatoires avec de forts contrastes d'indice optique [103, 104], s'ajoutent des phénomènes d'absorption non négligeables pour les ondes électromagnétiques. Alors que plusieurs études rapportaient et attribuaient la décroissance exponentielle du champ électromagnétique à une signature de la localisation d'Anderson, les auteurs sont revenus sur leurs conclusions. Étaient alors en cause des effets d'absorption qui se manifestent aussi comme une décroissance exponentielle de l'amplitude du champ [105, 106], menant à une mauvaise interprétation de leurs données expérimentales. En revanche, les fréquences de résonance d'objets métalliques simples – comme des billes ou des cylindres – étant facilement excitables via des ondes élastiques, font de ces dernières des candidats idéaux pour étudier la localisation d'Anderson et détecter les MEs.

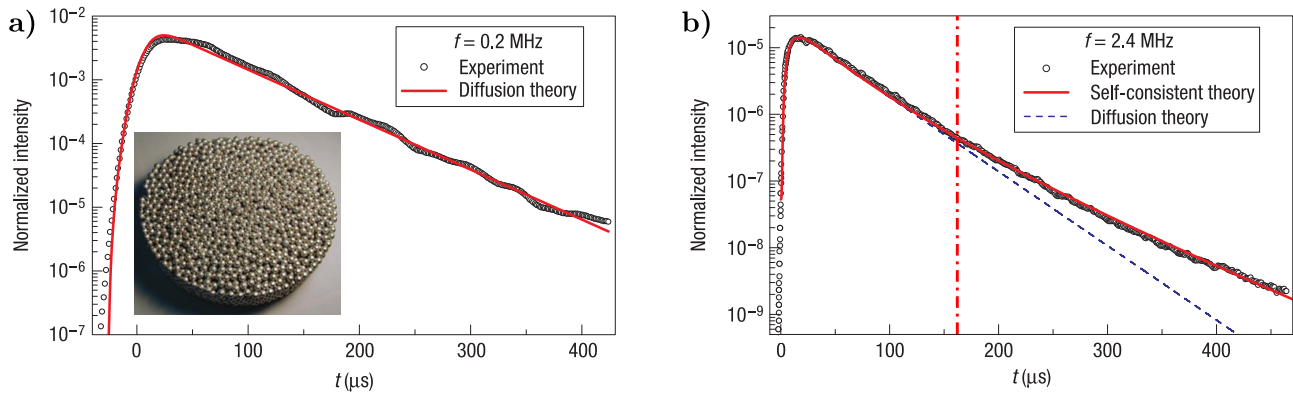


Figure 1.11 – Intensité acoustique transmise mesurée en fonction du temps t dans **a)** le régime de diffusion à $f = 0.2$ MHz et **b)** le régime de localisation forte à $f = 2.4$ MHz. Y sont superposés les calculs correspondants prédits par la loi de la diffusion et la SCT. En encart de la figure **a)** est donnée une photo de l'échantillon au travers duquel les mesures ont été effectuées. La ligne rouge pointillée à $t \sim 170 \mu\text{s}$ en figure **b)** repère la transition entre les deux régimes de propagation. Figures extraites et adaptées de [16].

Il faut attendre 2008 pour avoir une première preuve expérimentale univoque, de localisation d'une onde élastique au sens d'Anderson dans une géométrie 3D – car confirmée par la SCT – mesurée par Hu *et al.* [16]. On donne en figure 1.11 des mesures de transmission d'une onde élastique en fonction du temps pour **a)** $f = 0.2$ MHz (géométrie de l'échantillon en encart) et **b)** $f = 2.4$ MHz. Ces échantillons consistent en un ensemble désordonné de billes métalliques soudées les unes aux autres, de diamètre $\varphi \sim 4$ mm, donc de dimensions comparables aux longueurs d'onde en jeux, avec

une fraction volumique $\rho_v = 55\%$. Pour les besoins de la mesure, l'échantillon est enfermé dans une armature le rendant imperméable à l'eau et est placé sous vide pour maximiser la transmission solidienne et éviter les conversions d'ondes qui constituent une perte d'énergie non négligeable. Un transducteur fixe focalisé faisant office de source ponctuelle, et un hydrophone mobile permettant de mesurer l'étalement de l'énergie acoustique dans la direction transverse, sont placés de part et d'autre de l'échantillon. L'avantage de cette technique réside dans la mobilité de l'hydrophone détecteur qui permet de reconstruire des quantités en faisant des rapports entre les signaux mesurés en différentes sorties de l'échantillon, et ainsi de s'affranchir des effets d'absorption. Par conséquent une mesure de l'atténuation du front d'onde cohérent donne directement accès à la quantité ℓ permettant de calculer la valeur du paramètre $k\ell$ de l'échantillon sur toute la gamme de fréquence observée. A $f = 0.2$ MHz, $k\ell \sim 1.6$ et $k\ell \sim 1.8$ pour $f = 2.4$ MHz, indiquant que l'échantillon est fortement diffusant et qu'il pourrait être un bon candidat pour y mesurer une localisation forte. Une première mesure de l'amplitude du coefficient de transmission a été nécessaire pour mettre en évidence des chutes de transmission liées à la résonance des billes. Conformément aux prédictions de Ping Sheng, cette mesure fournit alors une indication précieuse sur les fréquences où se trouvent les MEs. En effet, la mesure à $f = 0.2$ MHz se situe en dehors de la résonance des billes et est parfaitement reproduite par la loi de la diffusion. En revanche, la mesure à $f = 2.4$ MHz qui correspond à une fréquence de résonance de bille montre deux comportements distincts en fonction du temps, dont la limite se trouve à $t \sim 170 \mu s$ après le début de la mesure. Cette mesure constitue une illustration parfaite de la relation 1.7 qui prédit la renormalisation du coefficient de diffusion avec la position. Pour les temps courts ($t < 170 \mu s$) ou l'onde s'est peu propagée, c'est la constante de diffusion de Boltzmann qui prévaut, comme le montre la ligne pointillée bleue qui correspond à la loi de la diffusion.

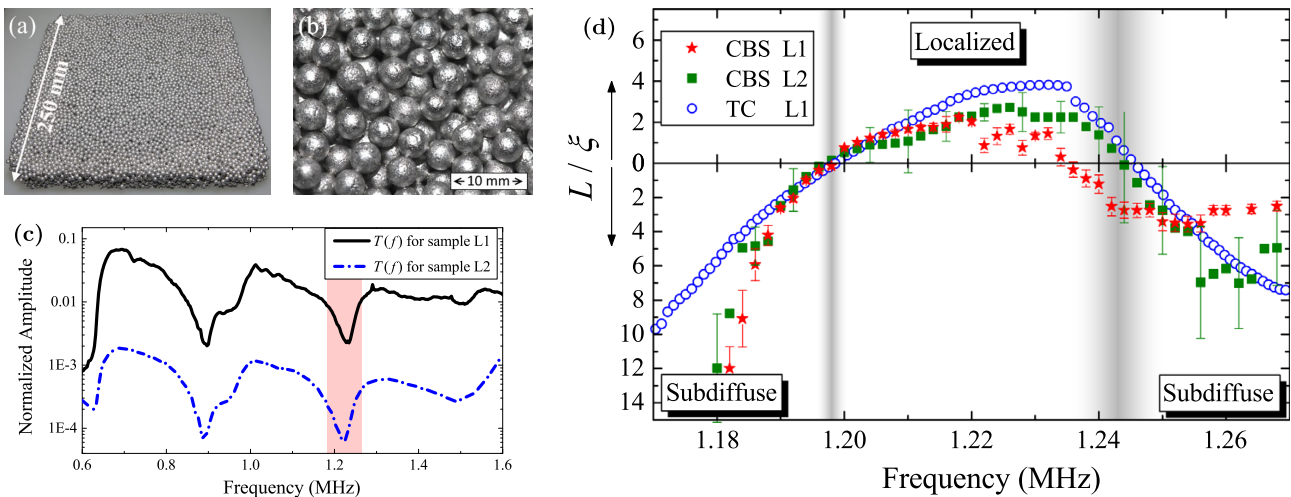


Figure 1.12 – a) et b) photos des échantillons L1 et L2 sur lesquels les mesures ont été effectuées. L'épaisseur respective des échantillons L1 et L2 est $e_{L1} = 25$ mm et $e_{L2} = 38$ mm. c) Amplitude acoustique transmise mesurée en fonction de la fréquence pour les échantillons L1 et L2. La zone rouge délimite le domaine d'étude sur lequel la transition régime de diffusion – localisation forte a été observée. d) Rapport L/ξ en fonction de la fréquence pour les échantillons L1 et L2 mesuré grâce à la méthode du *coherent backscattering* (CBS) et la méthode du *transverse confinement* (TC) [107]. Les zones grises correspondent aux MEs aux fréquences identifiées par l'annulation du rapport L/ξ . Figures extraites et adaptées de [108].

Pour les temps longs ($t > 170 \mu s$), un écart significatif à cette dernière se creuse en raison de

l'augmentation de la probabilité de retour $C(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \Omega)$ qui renormalise le coefficient de diffusion. Que ce soit pour les temps longs ou courts, les prédictions de la SCT reproduisent parfaitement les mesures. Les résultats expérimentaux obtenus dans cette étude sont donc d'une importance capitale puisqu'ils permettent de valider des dizaines d'années de recherche sur ce sujet, bien qu'elle ne réponde pas à certaines questions qui restent encore en suspens.

Sur la base de cette étude, Cobus *et al.* [108] proposent une méthode alternative en plus de la mesure en transmission qui peut s'avérer compliquée en raison de la faiblesse du signal détecté en sortie d'échantillons trop épais. Cette technique consiste à mesurer le cône de rétro-diffusion cohérent (CBS) en fonction de l'angle, dont la dynamique permet de rendre compte des propriétés de diffusion du milieu, et en particulier de son paramètre $k\ell$. Pour démontrer l'efficacité de cette technique, ils fabriquent deux échantillons dont les propriétés de diffusion sont identiques, mais qui possèdent deux épaisseurs différentes, dont deux photos sont données en figure 1.12a) et b). La figure 1.12c) correspond à une mesure de l'amplitude du coefficient de transmission en fonction de la fréquence pour les deux échantillons, dont la zone rouge met en évidence une chute de transmission liée au couplage entre la résonance des billes individuelles. C'est autour de cette gamme de fréquence ou les phénomènes de diffusion sont exaltés que se concentre le reste de l'étude. Ils synthétisent les résultats de mesure sur L1 avec les deux méthodes expérimentales et sur L2 avec la CBS et représentent le rapport entre les dimensions caractéristiques de l'échantillon L et la longueur de localisation ξ mesurée en fonction de la fréquence. Là où la mesure en transmission ne fonctionne pas pour l'échantillon L2 en raison de sa trop grande épaisseur, la CBS permet effectivement de rendre compte de son comportement en fonction de la fréquence avec une bonne confiance puisque les deux méthodes appliquées à l'échantillon L1 donnent des réponses très similaires. Outre le succès et l'apport de cette nouvelle technique de mesure, ils parviennent pour la première fois à mesurer les deux MEs qui se trouvent de part et d'autre d'une résonance puisque jusqu'à maintenant, seule une ME avait pu être mesurée par Hildebrand *et al.* [109]. Ces deux bornes interviennent à l'annulation du rapport L/ξ ou entre les deux, la longueur de localisation devient inférieure aux dimensions de l'échantillon.

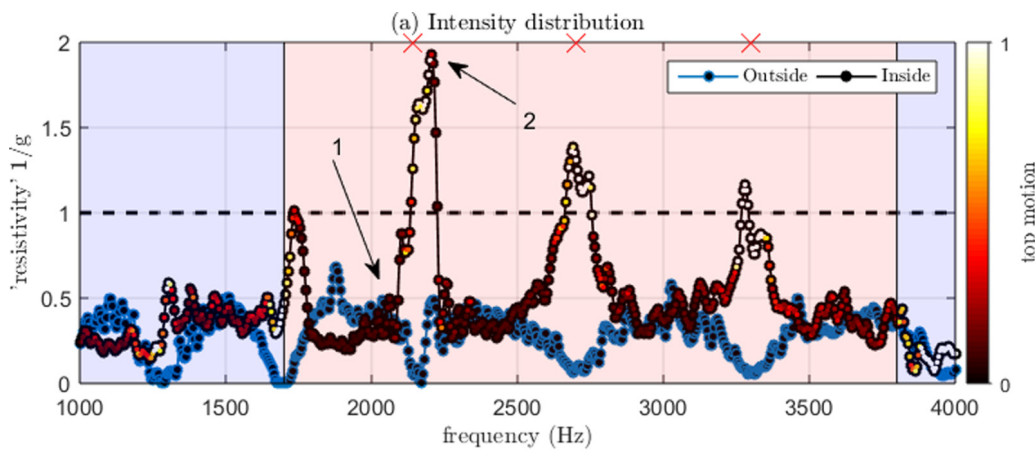


Figure 1.13 – Résistivité $1/g$ (g étant la conductance de Thouless adimensionnée) en fonction de la fréquence, reconstruite à partir de mesures de déplacement hors-plan dans une metasurface aléatoire composée de tiges métalliques fixées sur une plaque mince support de la propagation d'une onde élastique. Les croix rouges repèrent la fréquence de résonance des trois modes de flexion des tiges métalliques étudiées. La ligne pointillée marque la transition du régime de diffusion vers la localisation forte pour $g < 1$. Figure extraite de [101].

Lott *et al.* [101] rapportent aussi une preuve expérimentale de localisation forte dans un métamatériau 2D composé de tiges métalliques organisées aléatoirement, et fixées sur une plaque support de la propagation d'une onde élastique. Trois résonances de flexion des tiges sont excitées dans la gamme de fréquence étudiée : $1.7 < f < 3.8$ kHz. En particulier, ces résonances permettent d'atteindre des valeurs $k\ell < 1$ notamment à la première résonance où le libre parcours moyen de diffusion chute drastiquement jusqu'à atteindre une valeur $k\ell \sim 0.5$, signe que l'onde est diffusée sur une distance au moins inférieure à une longueur d'onde. Ils tracent en figure 1.13 la quantité $1/g$, l'inverse de la constante de Thouless adimensionnée en fonction de la fréquence. Aux trois résonances de flexion, le rapport $1/g$ devient supérieur à 1, signe d'une localisation forte, et confirmée par la mesure de la longueur de localisation qui devient effectivement inférieure aux dimensions de l'échantillon dans ces trois intervalles de fréquence. Cette observation est conforme aux prédictions de Ping Sheng dans la mesure où il y a autant de transitions régime de diffusion – localisation forte que l'échantillon présente de résonances, dans la limite où elles sont excitées. Même si la géométrie de cet échantillon ne permet pas la mesure des MEs, les techniques de détection laser s'avèrent être un outil pertinent pour étudier la propagation d'onde en milieu complexe puisqu'elles fournissent une mesure directe de la longueur de localisation dans des géométries 2D.

Influence des corrélations spatiales fortes sur la transition du régime de diffusion vers le régime de localisation forte

C'est à partir d'un modèle prenant en compte les corrélations à courte portée via le facteur de structure $S(\mathbf{k})$ que Conley *et al.* [110] étudient numériquement l'effet du degré de corrélation p (ou *packing fraction*) sur les propriétés de transport d'une onde électromagnétique. Ils montrent en figure 1.14a) qu'en augmentant fortement p a pour conséquence une modulation de plus en plus importante de la longueur de localisation ξ jusqu'à même devenir inférieure aux dimensions caractéristiques L du milieu diffusant pour $a/\lambda \sim 0.2$, traduisant la localisation forte.

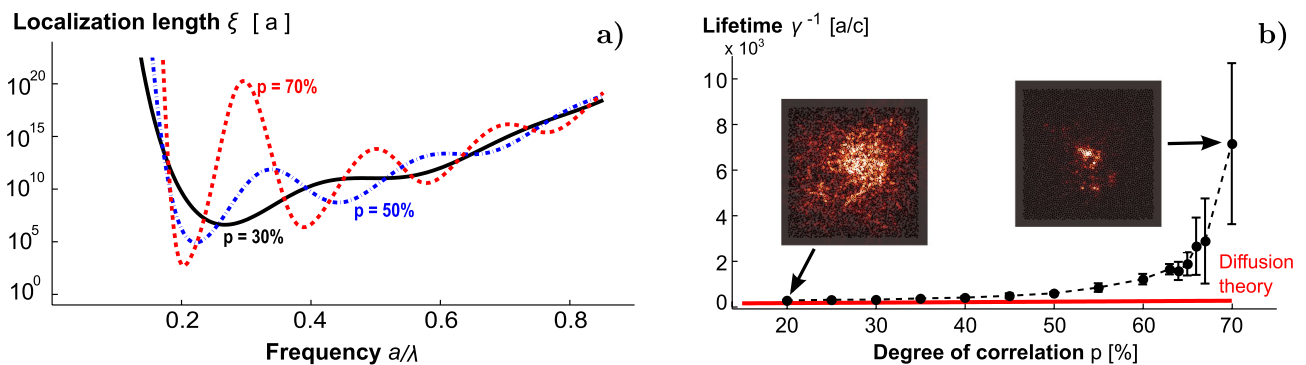


Figure 1.14 – a) Longueur de localisation ξ en 2D pour trois degrés de corrélation p en fonction de la fréquence, $p = 70\%$ correspond à d'importantes corrélations spatiales. b) Simulations FDTD du temps de vie de la lumière dans un milieu hyperuniforme pour différents degrés de corrélation. En encart sont données les cartes de champ correspondant à $p = 20\%$ et $p = 70\%$. Figures extraites de [110].

Les cartes champs en figure 1.14b) permettent d'identifier cette transition de régime pour un degré de corrélation $p > 50\%$ ou un écart se creuse entre le temps de vie des modes en l'absence de corrélations spatiales (loi de la diffusion) et en les prenant en compte. Par ailleurs, il est très intéressant de noter que même si le modèle implémenté ne prend pas en compte les boucles de diffusion (attendues pour une telle densité de diffuseur $\rho = 20\%$), tenues pour responsables de la renormalisation

du coefficient de diffusion, le régime de localisation forte est malgré tout atteint.

Compte-tenu des travaux de John [15], qui prévoit l'existence des MEs aux abords d'une bande interdite, et la récente découverte de leur ouverture par l'introduction de corrélations spatiales fortes dans des distributions parfaitement décorréliées de diffuseurs, Froufe-Perez *et al.* [111] parviennent à les observer numériquement. Dans la lignée de leurs travaux précédents [83], ils complexifient leur modèle numérique pour prendre en compte les boucles de diffusion dans le calcul. Ils proposent alors dans leur papier un diagramme d'équivalence $(\chi-\nu)$ permettant de relier l'influence du niveau de corrélation spatiale χ qui règne dans la distribution désordonnée à sa réponse spectrale associée $\nu a/c$, et montrent la variété de comportement que peuvent présenter ces types de distributions. Ce diagramme est donné en figure 1.15. En particulier ils identifient les zones (I) et (II) qui correspondent respectivement à la bande interdite et au domaine de transparence, qui surviennent tous deux pour un certain degré de corrélation dans la structure $\chi > 0.2 - 0.3$. Comme le suggérait la forme du facteur de structure des distributions hyperuniformes aux petits vecteurs d'onde, cette gamme de transparence se limite aux basses fréquences $\nu a/c < 0.2$. Les lignes pointillées démarquent la transition entre le régime de diffusion et la localisation d'Anderson repérée par la zone (IV). Cette dernière est accessible sur une large gamme de fréquences pour de faibles degrés de corrélation $\chi \leq 0.1$, mais tend à diminuer à l'introduction de contraintes fortes entre particules, qui favorisent l'apparition des bandes interdites évoquées précédemment. Malgré la gamme de fréquences restreinte pour visualiser les phénomènes de localisation d'Anderson à l'introduction de corrélations spatiales, une zone en frontière de bande interdite reste théoriquement accessible.

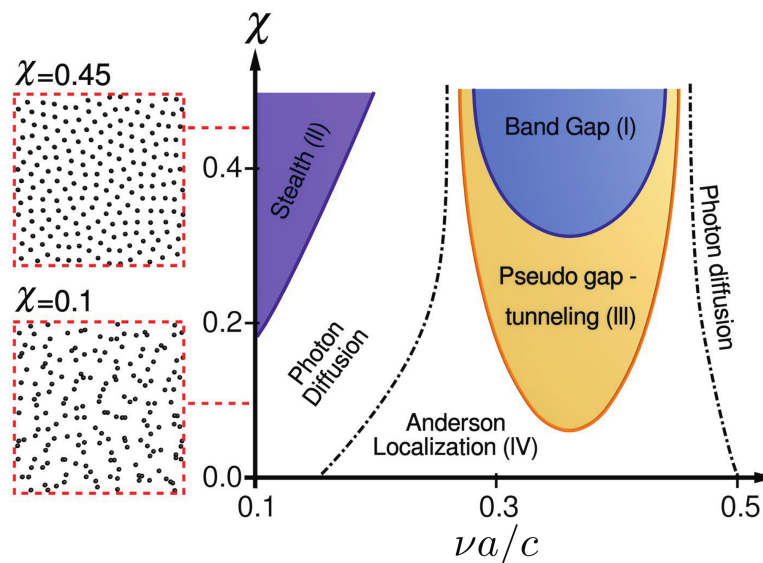


Figure 1.15 – Diagramme de phase qui relie le taux de contrainte χ employé pour générer une distribution 2D de diffuseurs à sa réponse en fréquence $\nu a/c$, pour une densité $\rho \sim 11\%$. ν est la fréquence optique, c la vitesse de la lumière et a la distance moyenne entre diffuseurs. Suivant le niveau de corrélation entre diffuseur et la fréquence des ondes qui s'y propagent, la structure exhibe des comportements très différents. Les zones (I) et (II) correspondent respectivement à une bande interdite (ou la DOS est nulle) et une zone de transparence du milieu. Le franchissement de la ligne discontinue marque le passage du régime de diffusion vers le régime de localisation d'Anderson (ou inversement suivant la fréquence) dans lequel la longueur de localisation de la lumière ξ devient inférieure aux dimensions caractéristiques de l'échantillon L . Cette transition est repérée par la zone (IV). Figure extraite de [111].

En effet, Aubry *et al.* [112] sont parvenus à observer simultanément l'élargissement de la bande interdite en fonction du niveau de corrélation et les deux transitions régime de diffusion – localisation d'Anderson qui la bordent directement, pour des micro-ondes. Ces deux zones sont mises en évidence en figure 1.16 via la représentation de la conductance de Thouless en fonction de la fréquence, la position des bandes interdites a été déterminée au préalable via une mesure de densité d'état pour plusieurs valeurs de χ . La transition vers le régime d'Anderson se distingue par l'effondrement de cette conductance qui devient inférieure à 1 en frontière de la bande interdite, qui constitue un critère de localisation forte. Outre ces deux résultats très forts, leur mesure fait état de l'ouverture d'une deuxième bande interdite pour $\chi = 0.4$ jusqu'ici jamais observée, aux alentours de 8 GHz. Sans en dire davantage, ils attribuent l'ouverture de cette deuxième bande interdite aux oscillations du second ordre visibles dans le facteur de structure à ces niveaux de corrélation.

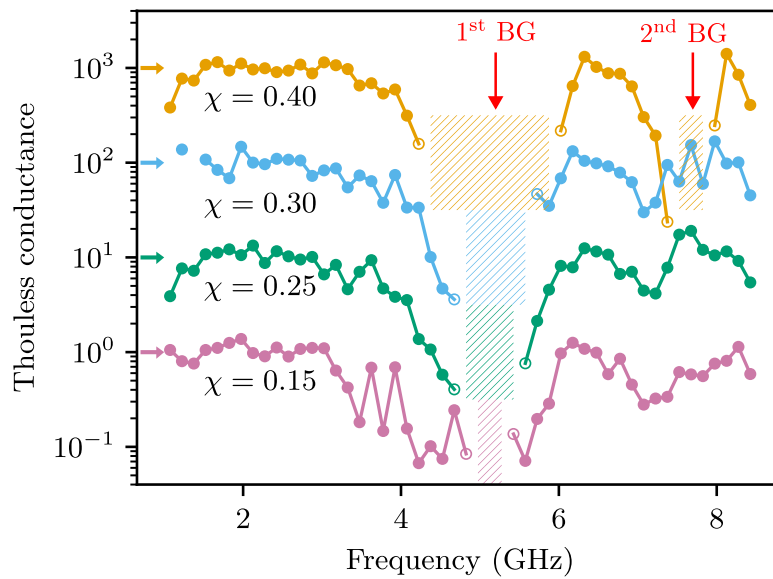


Figure 1.16 – Conductance de Thouless adimensionnée g mesurée pour différents taux de contrainte $0.15 < \chi < 0.4$ en fonction de la fréquence. Les zones hachurées correspondent aux bandes interdites. Les courbes ont volontairement été décalées par les auteurs pour plus de lisibilité. Figure extraite et adaptée de [112].

Il est important de noter que toutes ces études concernent les distributions désordonnées en 2D ou tous les états sont théoriquement localisés, donc la transition régime de diffusion – localisation d'Anderson dont il est question correspond au cas où la longueur de localisation ξ devient inférieure aux dimensions caractéristiques L des échantillons étudiés. Ceci-étant, une étude numérique tout aussi récente dans le groupe de Scheffold basée sur la dépendance du coefficient de diffusion avec la position, rapporte l'observation des fameuses MEs pour les distributions hyperuniformes 3D [113], initialement observées pour les désordres décorrelés. Un des résultats majeurs de ce travail est donné en figure 1.17 et représentent en **a**) le critère de localisation $k\ell$ et **b**) la longueur de localisation normalisée par a , les deux étant tracés en fonction de la fréquence réduite ν' . La fraction volumique de diffuseurs qui composent l'échantillon support du calcul a été fixée à $\phi = 0.28$ et permet d'assurer des corrélations spatiales suffisamment fortes pour visualiser les MEs. Ils retrouvent effectivement une chute de la longueur de localisation d'environ un ordre de grandeur dans la première ME, qui devient minimale et même comparable à la distance moyenne entre diffuseurs aux abords de la limite inférieure de la bande interdite. Cette dernière augmente très rapidement au delà de la limite supérieure de la bande. Cependant, aucune mention n'est faite au sujet de la largeur des MEs infé-

rieure et supérieure qui n'est pas égale, contrairement à ce que rapportent les différentes preuves expérimentales pour les ondes élastiques.

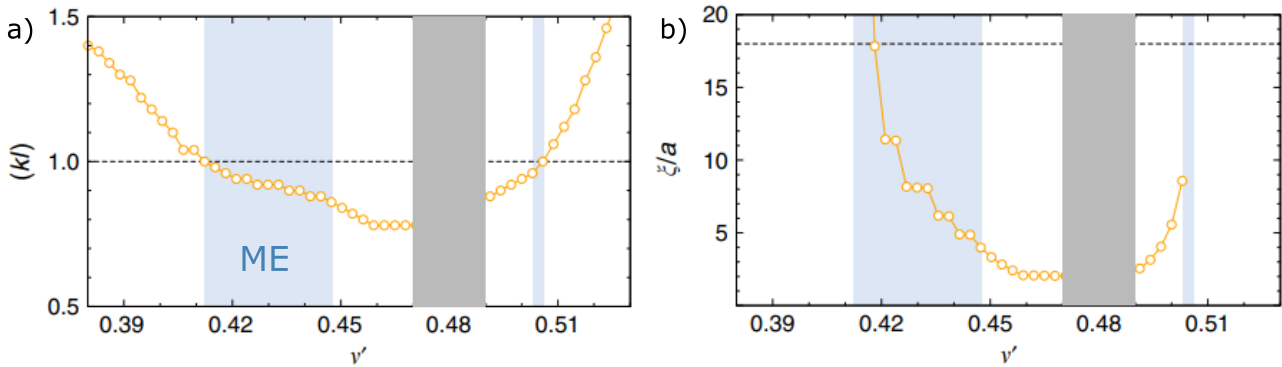


Figure 1.17 – a) Paramètre $k\ell$, la ligne pointillée en $k\ell = 1$ démarque la transition du régime de diffusion vers le régime de localisation forte. b) longueur de localisation ξ normalisée par a , la distance moyenne entre diffuseurs. Ces deux grandeurs sont tracées en fonction de la fréquence réduite ν' . Les bandes verticales bleues repèrent les MEs inférieure et supérieure de part et d'autre de la bande interdite en grise. Les simulations numériques ont été réalisées sur une distribution dont la fraction volumique de diffuseur est $\phi = 0.28$. Figure extraites de [113].

Deux types d'ondes ont été étudiées expérimentalement au cours de ce projet : les ondes acoustiques de surfaces (ou communément appelées SAW dans la littérature pour *surface acoustic waves*) dont les propriétés sont discutées dans le chapitre suivant, et les ondes polaritoniques en la personne des plasmons de surface, qui font l'objet de la partie suivante.

1.2 Introduction aux plasmons de surface : quelques généralités

L'interaction d'une onde électromagnétique avec un métal est majoritairement liée à la densité de charge électronique en surface de ce dernier.

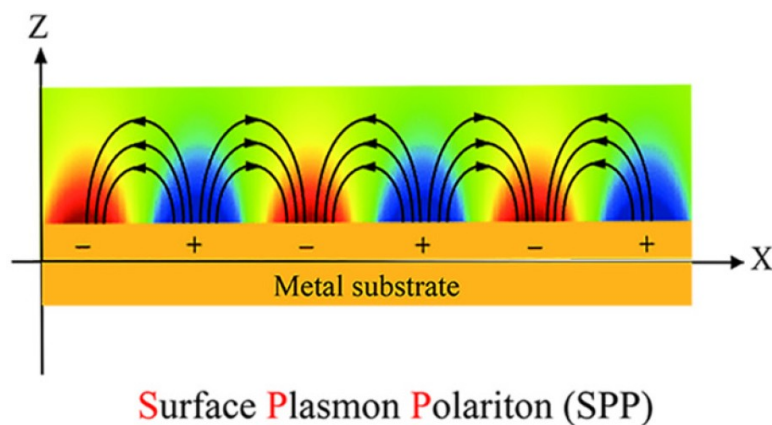


Figure 1.18 – Représentation schématique de la répartition spatiale de la densité de charge électronique à une interface diélectrique-métal en réponse à leur excitation par une onde électromagnétique. Image extraite de [114].

En particulier le modèle de Drude prévoit que ces électrons, lorsqu'ils sont excités aux fréquences optiques, peuvent introduire un déphasage de π à la réflexion du champ électromagnétique. Sont en cause les *surface plasmon polaritons* (SPP), ou plasmon de surface, et correspondent à des ondes évanescentes dans la direction normale z et qui se propagent dans le plan d'une interface diélectrique-métal. On parle alors de plasmonique pour tout ce qui concerne l'interaction d'une onde électromagnétique avec un métal qui présente une densité de charge électronique importante. La figure 1.18 fournit une représentation schématique de la répartition spatiale de la densité de charge électronique en surface du métal suite à l'excitation par une onde électromagnétique. C'est plus particulièrement dans le domaine des nanosciences que l'étude des plasmons trouve tout son intérêt puisque leur excitation permet de s'affranchir de la limite de diffraction et offre ainsi l'opportunité de contrôler la propagation et la dispersion d'une onde lumineuse à l'échelle du nm.

Aux fréquences optiques, les métaux nobles sont caractérisés par leur constante diélectrique complexe $\varepsilon = -\varepsilon' + i\varepsilon''$ et ont pour particularité d'avoir une partie réelle négative, favorable à l'excitation des plasmons de surface. L'application des conditions aux limites du problème sur les équations de Maxwell permet d'en déduire une relation de dispersion des SPPs dans le plan de l'interface [115]

$$k_x = k_{\text{SP}} = k \sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}}, \quad (1.9)$$

ou k est le nombre d'onde de la lumière incidente, ε_1 et ε_2 représentent les permittivités du métal et du diélectrique, respectivement. En figure 1.19 est tracé le rapport entre la partie réelle de la fréquence du plasmon de surface ω_{SP} et la fréquence plasma ω_P en fonction de kc/ω_P , avec c la vitesse de la lumière.

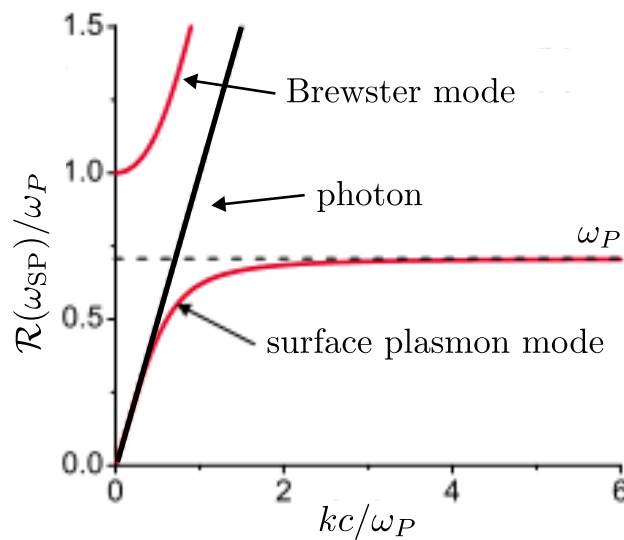


Figure 1.19 – Courbe de dispersion d'un SPP qui se propage dans le plan d'une interface diélectrique-métal. Figure extraite et adaptée de [116].

Le trait plein correspond au cas où le diélectrique est de l'air ($\varepsilon_2 = 1$), on retrouve alors la relation de dispersion de la lumière. Autrement, cette relation fait apparaître deux modes bien distincts dont l'un correspond à des modes de surface (SPP) et l'autre à des modes de volume qui se propagent dans le métal, aussi appelés modes de Brewster. Il faut noter que ces modes de surface admettent une fréquence critique en $\omega_P/\sqrt{1 + \varepsilon_1}$ prédite par le modèle de Drude, pour laquelle la partie imaginaire

$\mathcal{I}(k_x)$ croît fortement, indiquant une forte atténuation des SPP dans la direction du plan. A partir de cette relation de dispersion et en considérant que la permittivité admet une valeur imaginaire, alors le nombre d'onde $k_x = k'_x + ik''_x$ admet aussi une partie imaginaire le long de l'interface. La partie réelle k'_x représente la longueur d'onde du SPP tandis que la partie imaginaire k''_x rend compte de son atténuation dans le plan du diélectrique. Tenant compte de la condition d'existence des SPPs qui nécessite $|\varepsilon''_1| \ll |\varepsilon'_1|$, il vient

$$k'_x \approx \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon'_1 \varepsilon_2}{\varepsilon'_1 + \varepsilon_2}} \quad \text{et} \quad k''_x \approx \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon'_1 \varepsilon_2}{\varepsilon'_1 + \varepsilon_2}} \frac{\varepsilon''_1 \varepsilon_2}{2\varepsilon'_1(\varepsilon'_1 + \varepsilon_2)}, \quad (1.10)$$

il suffit alors de calculer $1/(2k''_x)$ pour obtenir la distance caractéristique de l'atténuation de l'intensité du champ électrique dans le plan de l'interface. En considérant une interface air-Au, soit $\varepsilon_2 = 1$ et $\varepsilon_1 = -11.6 + 1.2i$ à une longueur d'onde d'excitation $\lambda = 800$ nm, les SPPs se propagent sur des distances caractéristiques $1/2k''_x \sim 12 \mu\text{m}$. Toujours en partant de la relation de dispersion à laquelle la condition d'existence des SPPs est appliquée, il est facile de calculer la profondeur de pénétration dans le métal ainsi que dans le diélectrique puisque

$$k_{1,z} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_1'^2}{\varepsilon'_1 + \varepsilon_2'}} \left[1 + i \frac{\varepsilon_1''}{2\varepsilon_1'} \right] \quad \text{et} \quad k_{2,z} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\frac{\varepsilon_2'^2}{\varepsilon'_1 + \varepsilon_2'}} \left[1 - i \frac{\varepsilon_1''}{2(\varepsilon'_1 + \varepsilon_2')} \right], \quad (1.11)$$

avec $k_{1,z}$ et $k_{2,z}$ les vecteurs d'onde dans la direction z normale à l'interface pour le diélectrique et le métal, respectivement. Pour le cas l'or à 800 nm, la décroissance du champ électrique est $1/2k_{1,z} \sim 35$ nm dans le métal et $1/2k_{2,z} \sim 410$ nm dans le diélectrique, avec $k_{1,z} \gg k_{2,z}$. Compte-tenu de ces distances de propagation très courtes dues à une décroissance exponentielle du champ électrique, les SPPs sont des objets de surface, dont la concentration est très importante à l'interface entre un diélectrique et un métal.

Un autre type de plasmon se distingue aussi en raison de ses propriétés intéressantes puisque c'est à eux que l'on attribut la couleur des vitraux dans les églises ou les suspensions colloïdales. Il s'agit de modes localisés non propagatifs résonants que l'on retrouve en surface de nanoparticules métalliques (NP) de tailles finies et comparables à la longueur d'onde d'excitation, et sont plus connu sous le nom de *localized surface plasmon resonance* (LSPR). Chaque NP possède une ou plusieurs fréquences de résonance qui dépendent de sa nature, de ses dimensions caractéristiques et de sa géométrie. A la résonance de la particule, sa réponse spectrale s'en trouve modifiée puisqu'à la longueur d'onde associée, la lumière sera fortement absorbée. En plus des propriétés individuelles de chacune des NPs, Lamprecht *et al.* [117] montrent numériquement que des relations de proximités s'établissent entre elles dans des réseaux périodiques 2D, qui exaltent le comportement de l'ensemble. C'est en modifiant le pas de réseau entre particules qu'ils parviennent à déterminer une période optimale pour maximiser l'absorption du réseau. Plus récemment, Nishijima *et al.* parviennent à démontrer expérimentalement ces prédictions sur des géométries très similaires en les éclairant avec un super-continuum [118]. En dehors de cette période optimale, l'absorption de l'ensemble diminue et est moins localisée autour de la résonance des NPs. Sont en causes les interactions dipolaires entre particules qui sont maximales pour une certaine valeur du pas de réseau. En partant du pas de réseau qui maximise l'absorption de l'ensemble, ils désordonnent progressivement le réseau via une procédure de marche aléatoire (plus il y a de pas N , plus la structure est désordonnée) afin de quantifier l'influence des relations de proximités qui règnent entre NP sur la réponse spectrale de l'ensemble. A mesure que le désordre augmente, l'absorption diminue et s'étale sur une plus large gamme de

fréquence en raison des relations de proximités entre NPs qui deviennent complètement aléatoires. Là ou dans le cas du réseau périodique les effets de résonance des LSP sont amplifiées, l'inverse se produit pour les distributions désordonnées puisque les NPs contribuent de manière incohérente à la réponse spectrale de l'ensemble, comme le montre la figure 1.20. Dans la même logique que pour les ondes acoustiques et électromagnétiques Khunsin *et al.* se sont intéressés à l'influence de la statistique de la distribution sur la réponse spectrale de l'ensemble [119]. Ils mettent en évidence que l'arrangement spatial des NPs a une influence direct sur le comportement de chacune des particules qui n'est ni attribuable à des interactions de champ proche ou de champ lointain, et se manifeste par un changement de l'orientation des dipôles de la distribution.

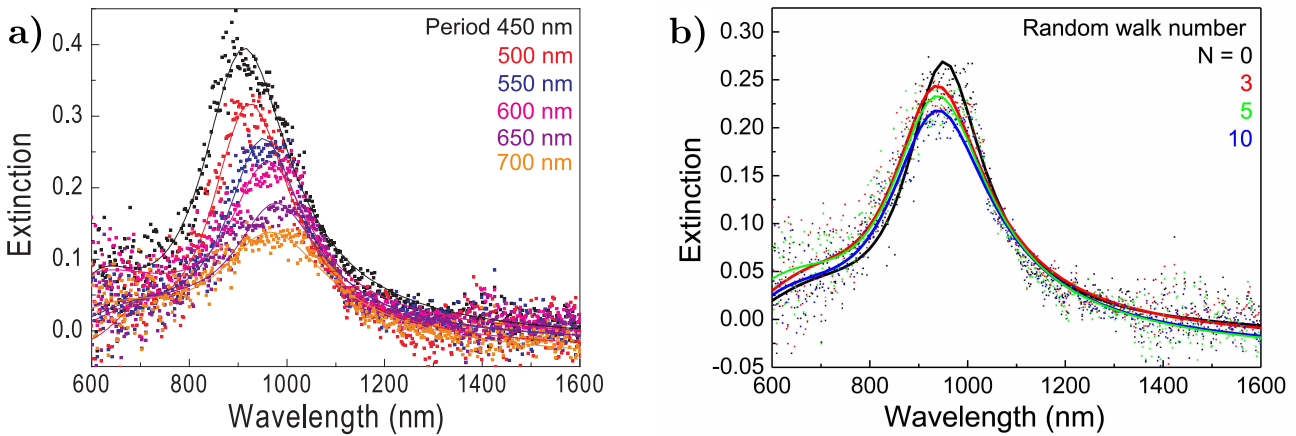


Figure 1.20 – Influence **a)** du pas de réseau dans un arrangement périodique et **b)** du niveau de désordre (quantifié par N) sur la réponse spectrale d'un ensemble de NPs en Au. Figures extraites de [118].

1.3 Dimensionnement et fabrication des échantillons

Dans la perspective de l'étude expérimentale d'un couplage acousto-optique dans des métasurfaces désordonnées, un certain nombre de compromis ont du être trouvés quant à la géométrie et les matériaux à employer pour l'échantillon final. Bien que le couplage n'ai pu être abordé dans le cadre de ces travaux de thèse, cet objectif justifie en partie les échantillons acoustiques et optiques étudiés d'un côté et de l'autre, et en particulier la taille des diffuseurs. En marge de ce couplage, les échantillons ont aussi été réfléchis pour satisfaire à certaines contraintes imposées par les techniques expérimentales envisagées pour cette étude. Un autre facteur limitant se trouve aussi dans les techniques de fabrication employées : bien que très sophistiquées, elles imposent aussi quelques restrictions quant à la taille des diffuseurs.

1.3.1 Les échantillons acoustique

La partie acoustique a portée sur l'étude de la localisation d'ondes de surface et l'influence de la statistique d'une répartition aléatoire de diffuseurs sur leur propagation, et notamment sur la répartition spatiale et l'intensité des modes localisés. A la lumière de ce qui a été vu précédemment, des phénomènes de localisation d'onde peuvent être observés en 2D si la longueur de localisation ξ_{2D} est inférieure aux dimensions caractéristiques L du milieu diffusant. Afin d'assurer cette condition, il

est nécessaire d'ajuster le paramètre $k\ell$ à façon. La technique expérimentale employée (qui fait l'objet de la partie suivante) pour générer et détecter des ondes acoustiques de surface fait appel à des lasers impulsions dont la durée des impulsions fait ~ 100 fs. Compte-tenu de cette faible durée, les modes acoustiques ainsi générés sont nécessairement large bande, garantissant un large spectre de vecteurs d'onde disponibles. Même si certaines techniques existent pour ne sélectionner que certains vecteurs d'onde via les techniques laser, le seul levier d'action pour contrôler la longueur de localisation est donc d'agir sur le libre parcours moyen. A défaut de connaître précisément ce dernier en fonction de la fréquence pour une densité de diffuseur ρ donnée, le libre parcours moyen a été assimilé comme comparable à l'écart moyen entre diffuseurs. Pour des longueurs d'onde de quelques μm (typiques de ce type de technique expérimentale), une densité en diffuseur $\rho \sim 10\%$ permet de satisfaire au critère de localisation d'onde dans des géométries 2D. Le choix des matériaux utilisés pour cet échantillon est discuté dans le chapitre suivant. En revanche, pour certaines considérations expérimentales, les dimensions des diffuseurs ont été déterminées de telle sorte qu'ils agissent comme des piliers rigides vis-à-vis de l'onde qui se propage. Pour les différentes raisons évoquées, on donne une représentation schématique en figure 1.21 avec un seul pilier, de la géométrie envisagée pour les premiers échantillons acoustiques. Les diffuseurs en Al ont pour diamètre $\varphi = 300$ nm et hauteur $h = 200$ nm et sont fabriqués sur une couche d'Al d'épaisseur $e_{\text{Al}} = 100$ nm qui fait office de couche transductrice pour exciter les ondes de surface, le tout étant soutenu par un substrat en SiO_2 support de la propagation. La première fréquence de résonance des piliers issus de cette géométrie est un mode de flexion à 2 GHz, mais n'est pas excitée pour les premiers échantillons fabriqués. Le dispositif expérimental développé pendant cette thèse, permet d'imager la propagation de l'onde élastique en surface de l'échantillon sans défocalisation sur une zone de l'ordre de $100 \times 100 \mu\text{m}^2$. Les diffuseurs ont donc été étalés sur une zone de $120 \times 120 \mu\text{m}^2$ avec une densité $\rho \sim 10\%$. Ces grandeurs caractéristiques ont été déclinées pour différentes gammes de désordre : le désordre Gaussien, les distributions de Poisson, et les distributions hyperuniformes, afin d'assurer la comparaison entre les résultats expérimentaux d'un type de distribution à l'autre.

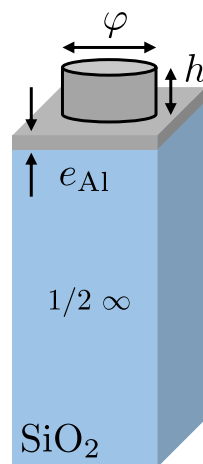


Figure 1.21 – Des diffuseurs en Al de diamètre $\varphi = 300$ nm et de hauteur $h = 200$ nm sont fabriqués sur un dépôt en Al d'épaisseur $e_{\text{Al}} = 100$ nm. Le tout repose sur un substrat de SiO_2 d'épaisseur semi-infini.

On donne en figure 1.22 quelques images prises au microscope électronique à balayage (MEB) des distributions ainsi fabriquées à l'IEMN de Lille, pour des distributions complètement décorrélés. La zone rouge sur l'image 1.22a) repère une cellule, le terme échantillon sera donc employé pour désigner l'ensemble des cellules. C'est un total de 144 cellules qui ont été fabriquées, et chacune

d'elles représente une configuration de désordre. Les positions des particules ont été calculées avec une condition de sphère dure, c'est à dire qu'elles ont un rayon d'exclusion égal à leur rayon effectif $r_c = r$, pour éviter toute interpénétration, tout en conservant leur nature décorrélée. Compte-tenu des incertitudes inhérentes aux procédés de fabrication, les piliers ont un rayon légèrement supérieur à celui prévu, ce qui peut en amener certains à percoler : comme c'est le cas sur l'image **1.22c**). Dans la mesure où les diffuseurs ne sont pas résonants, cela ne pose pas de problème tant que cette proportion est faible par rapport au reste de la distribution, ce qui est le cas ici.

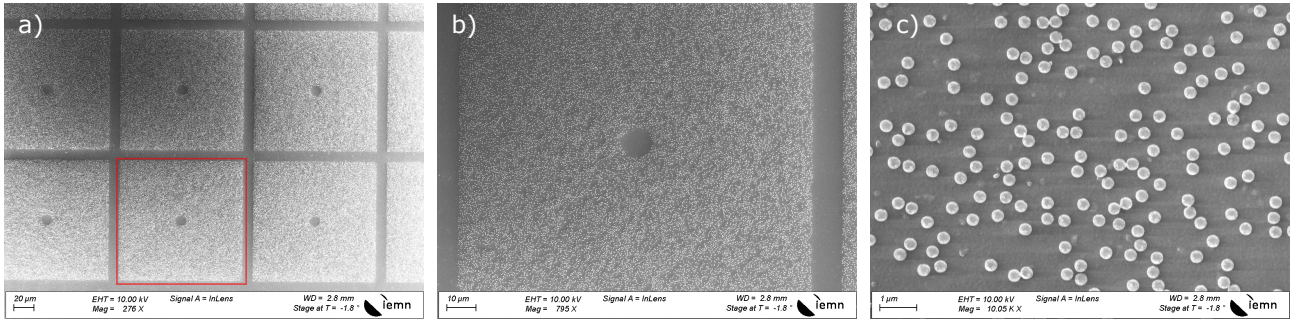


Figure 1.22 – Images MEB des distributions décorrélés étudiées en acoustique et fabriquées à l'IEMN de Lille. L'encadré rouge désigne une cellule, l'ensemble des cellules constitue l'échantillon. La zone centrale est laissée libre de diffuseur afin de favoriser la génération de l'onde acoustique de surface.

En plus des distributions décorrélés, des distributions hyperuniformes ont été calculées, fabriquées et étudiées expérimentalement dans le cadre de cette thèse. Des distributions avec des concentrations en diffuseur entre $\rho = 1 - 14\%$ avec des rayons d'exclusion légèrement différents suivant la densité, mais toujours supérieurs aux rayons effectifs ($r_c > r$) ont été fabriqués, dont deux images MEB apparaissent en figures **1.23a**) et **b**) pour $\rho = 1\%$ et $\rho = 14\%$, respectivement. Ces distributions ont été caractérisées par le calcul de la fonction de corrélation de paire $g_2(r)$ et le facteur de structure $S(k)$ correspondant, et obéissent effectivement aux critères des distributions hyperuniformes.

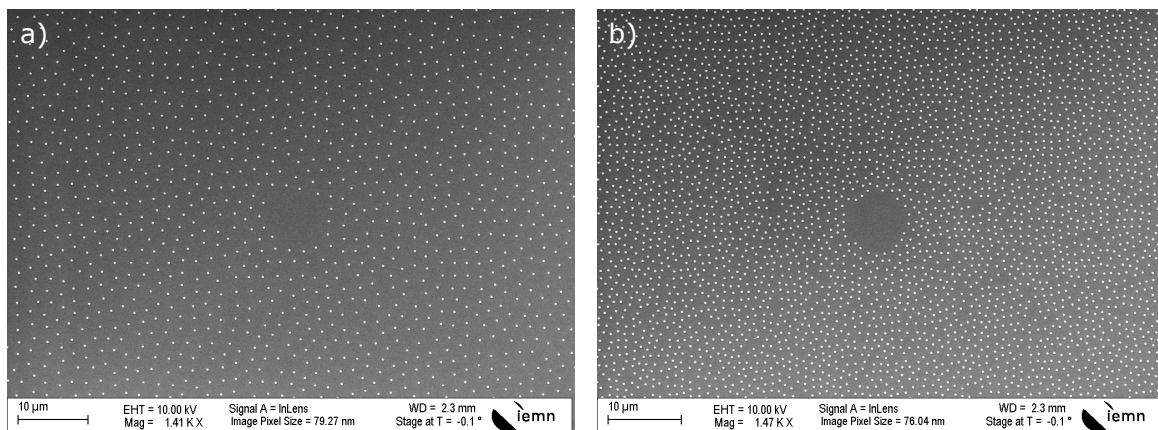


Figure 1.23 – Images MEB des distributions hyperuniformes fabriquées à l'IEMN de Lille, et étudiées en acoustique pour deux densités **a**) $\rho = 1\%$ et **b**) $\rho = 14\%$.

L'unique différence – au delà de leurs statistiques respectives – entre les deux types de distribution réside dans le substrat utilisé : les distributions de Poisson ont été fabriquées sur substrat de SiO_2 tandis que les hyperuniformes, sur substrat de Si. La nature de la statistique de la distribution et du

substrat employé sur la propagation des ondes de surface fera l'objet d'une discussion dans la partie portant sur les résultats expérimentaux.

1.3.2 Les échantillons optique

Contrairement à l'acoustique ou la marge de manoeuvre au niveau des dimensions des diffuseurs et du choix des matériaux est grande, ce n'est plus du tout le cas pour la partie plasmonique. Comme vu précédemment, la réponse spectrale d'un ensemble de NPs dépend d'un grand nombre de paramètres. Ici, les plasmons de surface vont être excités par un laser impulsif qui présente les mêmes caractéristiques que celui de la partie acoustique (laser Ti :Sa), avec une gamme d'accordabilité en longueur d'onde finie : $\lambda = 700 - 900$ nm. C'est cet intervalle de longueur d'onde finie qui va déterminer entièrement les matériaux à employer pour les NPs, leur diamètre, mais aussi la nature et l'épaisseur de diélectrique sur lequel elles reposent. La longueur d'onde centrale du laser étant à 800 nm, l'Au s'impose donc idéal contrairement à l'Al³ qui est connu pour avoir un maximum d'absorption dans cette bande spectrale. Une représentation schématique de la géométrie de l'échantillon est donnée en figure 1.24.

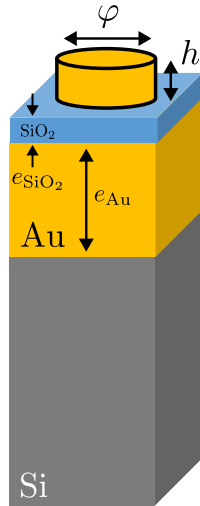


Figure 1.24 – Des piliers en Au de diamètre φ d'une certaine de nm et de hauteur $h = 100$ nm sont fabriqués sur un diélectrique en SiO₂ d'épaisseur $e_{SiO_2} \sim 20$ nm, reposant lui même sur un plan de masse en Au d'épaisseur $e_{Au} = 100$ nm, le tout sur substrat de Si.

Les piliers en Au de diamètre φ et de hauteur $h = 100$ nm sont fabriqués sur une couche de SiO₂ d'épaisseur e_{SiO_2} , elle même déposée sur un plan de masse en Au d'épaisseur $e_{Au} = 100$ nm et le tout reposant sur un substrat de Si.

3. Ce sont les deux matériaux qui sont principalement employés pour l'étude des SPPs en raison de la grande différence entre les parties réelle et imaginaire de leurs permittivités respectives.

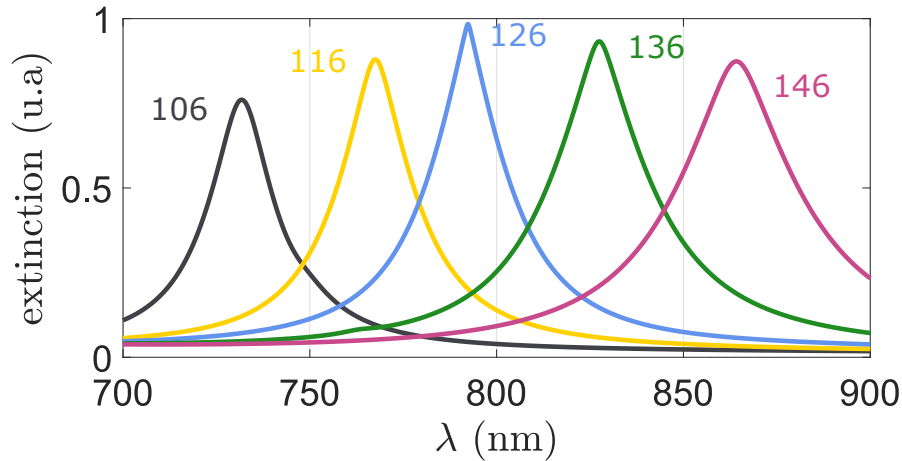


Figure 1.25 – Influence du diamètre des NPs en Au sur la réponse spectrale d'un réseau périodique de période $p = 520$ nm. Les diamètres sont indiqués au niveau des courbes correspondantes et sont compris entre $106 < \varphi < 146$ nm.

L'épaisseur du plan de masse a été choisie de telle sorte que la lumière ne le traverse pas pour éviter toute perte, 100 nm étant trois fois supérieur à la profondeur de pénétration dans l'au à 800 nm, par conséquent le substrat de Si ne joue aucun rôle contrairement à la partie acoustique. Reste donc à déterminer par les simulations numériques l'épaisseur de SiO_2 et le diamètre des NPs pour avoir un maximum d'absorption autour de 800 nm. Un premier calcul de la réponse spectrale d'un réseau périodique de NP d'au, de période $p = 520$ nm en figure 1.25 révèle que le rayon optimal, autant en terme d'absorption que de localisation de cette dernière, est $\varphi \sim 126$ nm. Pour cette raison, la hauteur des NPs (qui influe peu sur la position de la résonance) a été fixée à $h_{\text{Au}} = 100$ nm puisqu'il est compliqué, avec la méthode de fabrication employée, de fabriquer des piliers ayant un rapport d'aspect trop éloigné de 1.

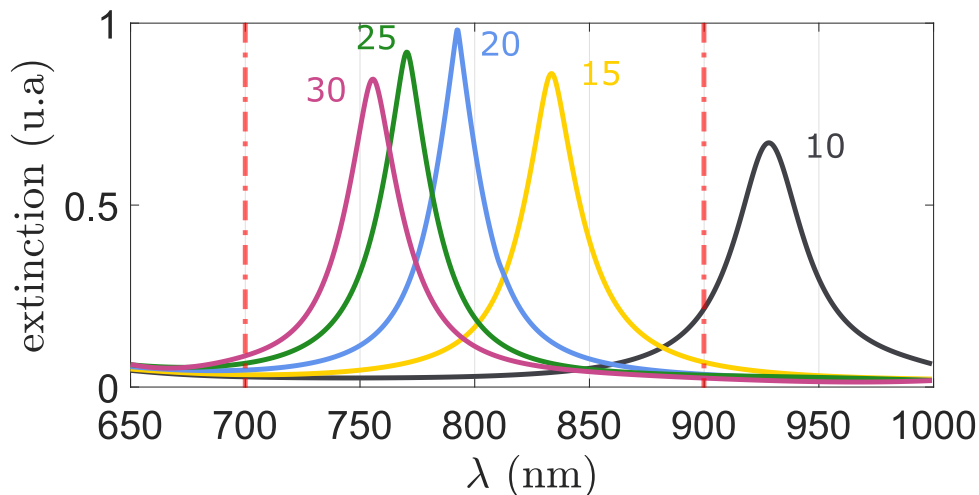


Figure 1.26 – Influence de l'épaisseur d'isolant en SiO_2 sur la réponse spectrale d'un réseau périodique de période $p = 520$ nm de nanoparticules d'au de diamètre $\varphi = 126$ nm. Les lignes rouges pointillées repèrent les limites de la gamme d'accordabilité du laser.

Un autre calcul en figure 1.26 pour ce diamètre et le même pas de réseau, avec différentes épaisseurs de diélectrique $10 < e_{\text{SiO}_2} < 30$ nm suggère que l'emplacement de l'extinction optimale est

très sensible à ce paramètre. En effet comme le montrent les lignes rouges pointillés, un léger décalage de l'épaisseur de diélectrique peut avoir pour conséquence la sortie du maximum d'absorption hors de la gamme d'accordabilité du laser, rendant la résonance plasmonique des NPs impossible à exciter avec le laser à disposition.

Fort de ces deux résultats, les dimensions optimales de l'échantillon correspondent à des diamètres de NP $\varphi = 126$ nm pour une épaisseur de diélectrique $e_{\text{SiO}_2} = 20$ nm. Ceci étant, en raison de la grande sensibilité de l'emplacement du maximum d'absorption aux différents paramètres et de la gamme d'accordabilité restreinte du laser, il semble plus prudent de fabriquer un premier échantillon avec plusieurs diamètres de NP autour de ce diamètre optimal. S'ajoute à cela les nombreuses sources d'incertitudes liées aux procédés de fabrication qui peuvent rapidement conduire la résonance de l'ensemble en dehors de la gamme d'accordabilité en longueur d'onde. Pour cela, des réseaux périodiques avec des diamètres de NP en Au allant de $5 < \varphi < 245$ nm ont été fabriqués pour différents pas de réseaux, dont des images MEB sont données en figure 1.27. Bien que l'objet de cette étude soit consacré à l'influence du désordre sur la réponse spectrale d'ensembles de NPs, une étape de caractérisation des réseaux périodiques en amont s'est avérée indispensable pour toutes les raisons évoquées précédemment.

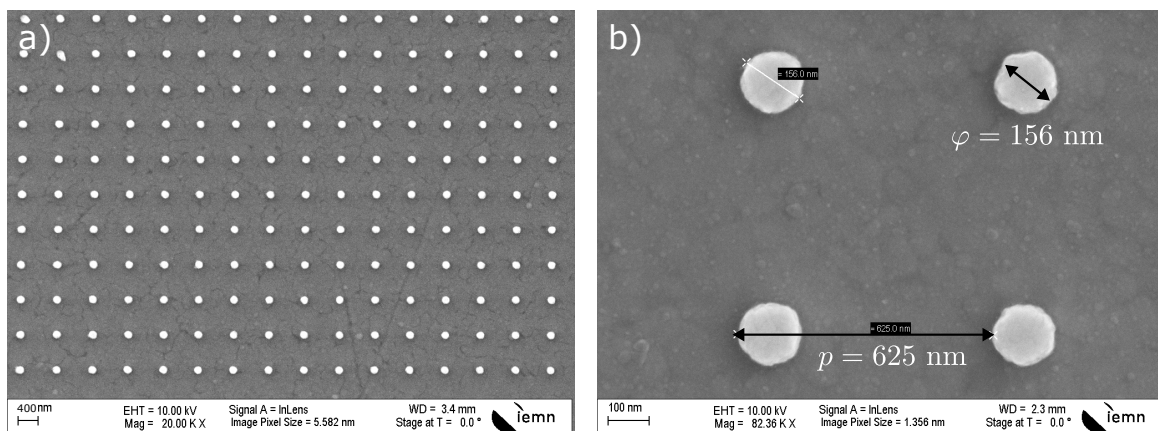


Figure 1.27 – Images MEB des premiers échantillons en plasmonique fabriqués à l’IEMN de Lille, pour des NPs en Au de diamètre $\varphi = 156$ nm et un pas de réseau $p = 625$ nm.

S’étant assuré que la fréquence plasmon était bien visible pour les dimensions visées et autour de 800 nm, une autre génération d’échantillon présentant des caractéristiques similaires a été fabriquée, et a cette fois permis la comparaison entre des réseaux périodiques et des distributions désordonnées. Les calculs de la réponse spectrale d’un ensemble de NPs en figure 1.28 montrent que les effets du désordre se font sentir pour des écart-types de la Gaussienne $\sigma > 0.2$ et se traduisent par un élargissement de la réponse spectrale, mais aussi par une chute de l’absorption.

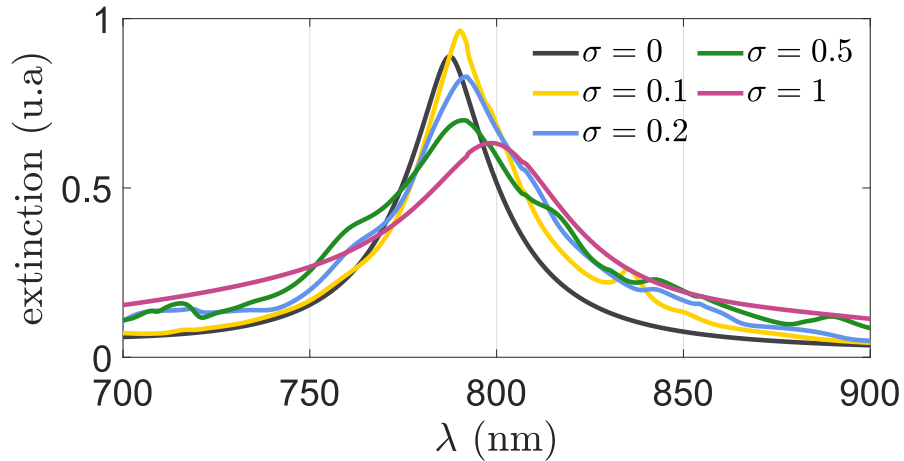


Figure 1.28 – Influence du niveau de désordre σ sur la réponse spectrale d'un ensemble de NPs en Au de diamètre $\varphi = 126$ nm, avec une épaisseur d'isolant $e_{\text{SiO}_2} = 20$ nm et une densité $\rho = 5\%$.

C'est donc pour ces niveaux de désordre que les derniers échantillons étudiés ont été fabriqués, pour deux densités $\rho = 5\%$ et $\rho = 20\%$ puisque cette dernière influence fortement la réponse de l'ensemble, en particulier pour la densité la plus importante où des effets de couplage champ proche sont attendus. On donne en figure 1.29 des images MEB des échantillons fabriqués pour les deux densités correspondantes avec des diamètres de NP $\varphi \sim 150$ nm et des niveaux de désordre $\sigma = 1$.

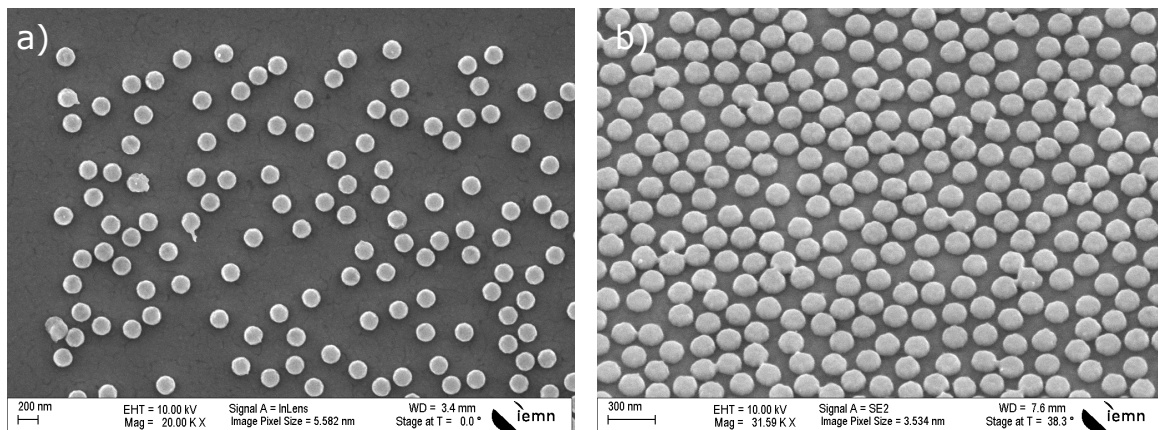


Figure 1.29 – Images MEB des distributions désordonnées fabriquées à l'IEMN de Lille, et étudiées pour a) $\rho = 5\%$ et b) $\rho = 20\%$. Le niveau de désordre est le même pour les deux densités $\sigma = 1$ et le diamètres des NPs est $\varphi \sim 150$ nm.

1.4 Conclusion

Dans cette partie ont été présentés les concepts de base servant à la compréhension des différents régimes de propagation d'une onde dans un milieu complexe, et en particulier celui de la diffusion multiple. La découverte de la transition d'un régime de diffusion vers un régime de localisation forte ou l'onde cesse complètement de se propager, découverte par Anderson, a motivé de nombreuses études sur la propagation d'ondes dans des milieux fortement diffusants. Cette transition de régime, uniquement visible dans des géométries 3D, et pour laquelle le coefficient de diffusion devient dépendant de l'espace en raison des boucles de diffusion, a été observée expérimentalement pour la première fois avec des ondes élastiques en 2007 dans l'équipe de John Page. Cette preuve vient confirmer plusieurs dizaine d'années de recherche et permet de valider les prédictions de Ping Sheng qui identifie cette transition aux abords d'une résonance mécanique des diffuseurs qui composent le milieu. Même si des preuves expérimentales manquent encore en 3D pour les ondes électromagnétiques en raison de la difficulté à fabriquer des échantillons avec des diffuseurs de dimensions nanométriques présentant de forts contrastes d'indices optiques, une opportunité se trouve dans les distributions à désordre corrélé. En effet, comme le suggère John, les frontières des bandes photoniques interdites s'avèrent être de bons candidats pour observer la transition du régime de diffusion vers le régime de localisation forte. Les études numériques de Froufe-Perez *et al.* rapportent alors qu'il est possible de générer des distributions désordonnées qui présentent les mêmes bandes interdites que les cristaux photoniques par l'introduction de corrélations spatiales entre les diffuseurs du milieu. C'est ce qui a permis à Scheffold *et al.* d'observer numériquement l'existence des fameuses *mobility edges* en 3D pour les ondes électromagnétiques dans des distributions dites hyperuniformes. Ces distributions s'imposent alors comme idéales pour fournir les premières preuves expérimentales de localisation d'Anderson pour la lumière. En conséquence, au cours de ce projet, des échantillons ont été réfléchis et fabriqués pour observer expérimentalement des phénomènes de localisation d'ondes élastiques dans des milieux diffusants en 2D, à l'échelle micrométrique. Dans la perspective de l'étude d'un couplage acousto-optique dans de telles distributions, des échantillons optiques ont aussi été fabriqués pour étudier les plasmons de surface. Dans les deux cas, l'influence de la statistique de la distribution sur la propagation des ondes sera étudiée.

Chapitre 2

Spectroscopie pompe–sonde résolue en temps et en espace pour l'étude de la propagation d'ondes élastiques en milieux complexes

Table des matières

Introduction	36
2.1 L'acoustique picoseconde : principe général	37
2.2 Spectroscopie pompe–sonde résolue en temps et en espace	40
2.2.1 Résolution temporelle : désynchronisation des trajets pompe et sonde	42
2.2.2 Résolution spatiale	43
2.2.2.1 Interféromètre de Sagnac	43
2.2.2.2 Système d'imagerie $4f$	47
2.3 Caractérisation des ondes élastiques générées	49
2.4 Conclusion	54

Introduction

Compte-tenu de la géométrie des échantillons, conditionnée par la perspective d'un couplage photon–phonon, il a été nécessaire d'adapter les techniques acoustiques afin d'étudier la dynamique vibratoire de tels milieux. Les techniques « classiques » qui utilisent des transducteurs piézoélectriques s'avèrent insuffisantes, ne serait-ce que pour la gamme de fréquence trop faible qu'elles sont capables d'atteindre. En revanche, la spectroscopie pompe–sonde en acoustique basée sur la génération d'effets photo-élastiques s'impose comme idéale puisqu'il s'agit d'une méthode sans contact, large bande, permettant de générer des modes dont la longueur d'onde est comparable aux dimensions caractéristiques des objets étudiés. Le principal atout de la méthode est sans conteste sa versatilité puisqu'elle permet aussi bien une mesure globale qu'une mesure locale, là où les méthodes actuelles pour caractériser les milieux complexes ne permettent pas de les explorer directement de l'intérieur. Grâce aux techniques optiques il est possible de les étudier en fonction du temps avec une résolution de l'ordre de la ps et une résolution spatiale de l'ordre du μm via l'utilisation d'un objectif de microscope x100 : le dispositif mis en place au cours de cette thèse est donc résolu en temps et en espace. Le seul inconvénient de la méthode – s'il en est un – est qu'elle génère aussi bien des ondes de volume que des ondes de surface, mais qu'il est possible de discriminer sans trop de problème. Ici, notre étude s'est portée sur les ondes de surface, que l'on nommera onde de Rayleigh par abus de langage, et qui se propage en interagissant avec la structure d'intérêt. Même s'il ne s'agit que d'un outil pour étudier des phénomènes de diffusion multiple et de localisation, une partie importante de ce projet a consisté à développer ce banc expérimental et à caractériser les ondes ainsi générées.

2.1 L'acoustique picoseconde : principe général

Au cours de cette thèse, a été développé un dispositif expérimental permettant de générer et détecter des ondes élastiques dans des matériaux au sein desquels elles seront multiples diffusées par des éléments de dimensions nanométriques. Toutefois, en raison de la géométrie des échantillons qui seront étudiées par la suite, il est nécessaire d'adapter la technique de génération de telle sorte que les longueurs d'onde qui s'y propagent soient comparables aux dimensions des diffuseurs. Bien que les techniques classiques qui utilisent des transducteurs piézoélectriques ne permettent pas d'atteindre des longueurs d'onde bien inférieures à la centaine de μm (c'est à dire quelques centaines de MHz), d'autres techniques ayant recours à des peignes interdigités ou à des super-réseaux permettent de contourner cette limitation. En effet, certaines études rapportent des mesures d'ondes élastiques pouvant aller jusqu'à quelques THz [120], mais font appel à des procédés de fabrication complexes et contraignants, qui n'en font pas de bons candidats pour l'étude des milieux complexes. En revanche, la spectroscopie pompe-sonde, qui elle ne nécessite que la vaporisation d'une simple couche métallique (aussi appelée couche transductrice) de quelques dizaines de nm sur le substrat, s'avère être un outil intéressant. Cette technique de génération et détection d'ondes élastiques, aussi appelée acoustique picoseconde, permet effectivement l'étude de matériaux en les excitant avec des impulsions laser de très courtes durées, typiquement ~ 100 fs. En plus d'être sans contact, elle permet de mesurer la vitesse de propagation d'ondes acoustiques sur une très large gamme de fréquence (du MHz jusqu'à plusieurs centaines de GHz en fonction de la nature des couches transductrices). Compte-tenu de leurs vitesses de propagation, les longueurs d'onde correspondantes sont de l'ordre du μm , la technique d'acoustique picoseconde s'impose donc comme idéale pour caractériser des films minces et des nanostructures. En figure 2.1 est schématisé le principe de la technique.

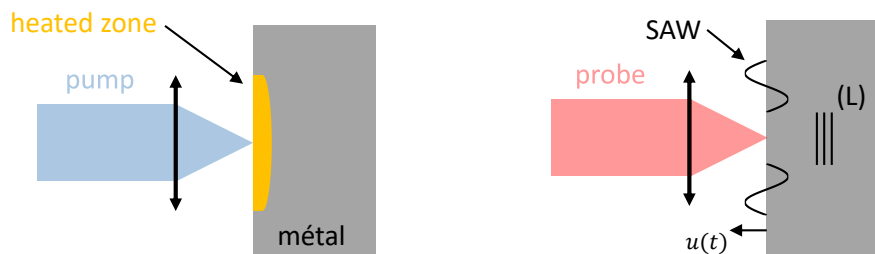


Figure 2.1 – Schéma de principe de la technique d'acoustique picoseconde : un faisceau pompe très énergétique est focalisé sur une surface métallique et génère des ondes élastiques de surface (SAW) et de volume (notées (L)), détectées par le faisceau sonde. $u(t)$ désigne la composante de déplacement hors plan engendrée par la propagation des différentes ondes.

Une impulsion *pompe* très intense est focalisée sur la surface de l'échantillon, très souvent métallisée, qu'il s'agisse d'un échantillon transparent ou non. La contrainte correspondante générée par la brève élévation de température et la dilatation thermique associée, se relaxe en déclenchant des champs de contraintes mécaniques qui provoquent l'apparition d'ondes élastiques qui se propagent dans le volume et en surface du substrat, détectées grâce à l'impulsion *sonde*. Cette dernière est nécessairement bien moins énergétique, le but étant d'observer l'échantillon sans le perturber davantage. En effet, les ondes élastiques ainsi générées vont modifier la réflectivité de l'échantillon de deux façons : en atteignant l'interface avec le matériau, elles engendrent des déplacements perpendiculairement au plan de l'échantillon (appelés $u(t)$ dans la suite), mais modifient aussi localement la densité et la température, dont dépendent les propriétés diélectriques du matériau, et en particulier

son indice optique n : on parle alors d'effet photo-élastique.

Afin d'être en mesure de générer des ondes élastiques, l'absorption de la lumière doit se faire dans un milieu apte à interagir avec le champ électromagnétique produit par le laser afin de convertir l'énergie des impulsions lumineuses en énergie thermique. La génération photo-élastique se fait donc généralement dans des métaux ou des semi-conducteurs. Cette couche métallique est donc systématiquement nécessaire pour les verres en raison de leur transparence et non pour les semi-conducteurs tel que le silicium. Malgré tout, il reste préférable de toujours vaporiser une fine couche métallique sur le substrat (pas plus d'une centaine de nm) pour un meilleur rapport signal à bruit. L'aluminium, le platine, le titane et l'or sont très souvent utilisées en raison de leurs faibles profondeurs de pénétration optique ainsi que leurs bons coefficients de réflexion dans le domaine visible et proche infrarouge.

À l'échelle microscopique, lors de l'absorption d'une impulsion lumineuse par un métal, les photons transfèrent leur énergie aux électrons présents dans la zone éclairée. Il en résulte une élévation de la température électronique locale. Le transfert de l'énergie des électrons aux atomes se fait ensuite sur une durée de quelques picosecondes par interaction entre les électrons du film mince et les phonons du réseau. Ces interactions se traduisent alors par la mise en mouvement des atomes du réseau entraînant la génération d'une onde acoustique. D'où l'importance d'avoir une profondeur de pénétration optique la plus faible possible puisque plus la zone de contact entre électrons et photons est réduite, plus la contrainte générée sera importante. En figure 2.2 est schématisé le principe de génération d'une onde acoustique par absorption d'une impulsion laser, en mettant en évidence les échelles de temps caractéristiques de chacun des processus évoqués précédemment.

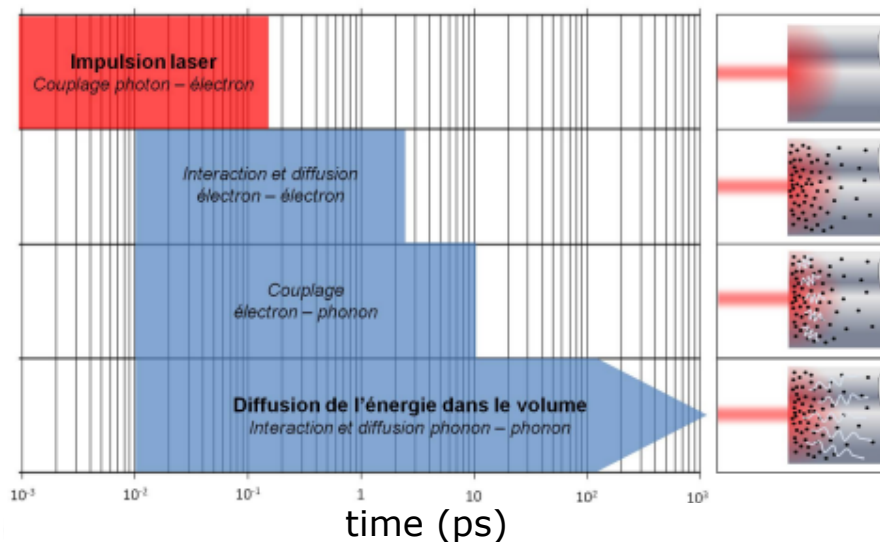


Figure 2.2 – Schéma représentant les échelles de temps caractéristiques des processus photo-élastiques.

Au moment de la génération des ondes acoustiques¹, les variations de réflectivité de l'échantillon provoquée se décomposent en deux termes principaux : le déplacement hors-plan, et la modulation de l'indice optique par propagation des contraintes acoustique et thermique, comme le résume la relation 2.1 [121]

1. Il est d'usage d'utiliser le terme d'ondes acoustiques pour les milieux fluides et élastiques pour les solides. Dans la suite, on utilisera indifféremment les deux termes, bien qu'il sera toujours question d'ondes élastiques.

$$\frac{\delta r(t)}{r} = 2ik_0n_0 \left\{ \underbrace{\int_0^{+\infty} \eta(z,t) dz}_{\text{déplacement hors plan}} + \frac{2\tilde{n}}{n_0^2 - \tilde{n}^2} \int_0^{+\infty} \left[\underbrace{\frac{\partial \tilde{n}}{\partial \eta} \eta(z,t)}_{\text{contrainte mécanique}} + \underbrace{\frac{\partial \tilde{n}}{\partial T} \Delta T(z,t)}_{\text{contrainte thermique}} \right] e^{2ik_0\tilde{n}z} dz \right\}. \quad (2.1)$$

k_0 est le nombre d'onde du laser, n_0 et \tilde{n} les indices optiques au repos et perturbés, $\eta(z,t)$ le champ de contrainte acoustique dans l'échantillon et $\int_0^{+\infty} \eta(z,t) dz = u(t)$ le déplacement hors plan.

En figure 2.3 sont présentés des résultats de mesure typiques de variations relatives de réflectivité en fonction du délai pompe-sonde, réalisée sur un échantillon de Si d'épaisseur $190 \mu\text{m}$ sur lequel ont été déposés 50 nm d'Al de part et d'autre. La pompe et la sonde sont focalisées sur les deux faces opposées de l'échantillon, d'où la nécessité d'avoir deux dépôts. Il apparaît que la réponse de l'échantillon peut se décomposer en deux parties.

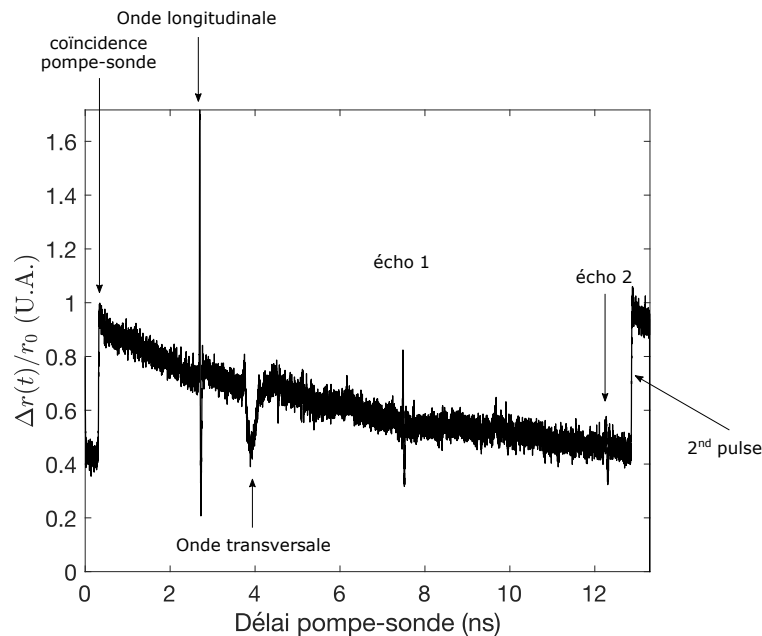


Figure 2.3 – Variation relative de réflectivité en fonction du délai pompe-sonde mesuré sur un échantillon de Si d'épaisseur $190 \mu\text{m}$ et sur lequel ont été déposés 50 nm d'Al de part et d'autre. Cette mesure a été effectuée en transmission. Les échos 1 et 2 correspondent à l'aller-retour de l'onde longitudinale dans l'épaisseur du substrat.

La première partie est une augmentation de $\Delta r(t)/r$ à $t = 0,33 \text{ ns}$ qui correspond au temps où pompe et sonde arrivent exactement au même instant sur l'échantillon (coïncidence pompe-sonde), tandis que la seconde partie montre une décroissance constante (décroissance thermique), marquée par l'arrivée de l'onde longitudinale et transverse au niveau de la surface où la sonde est focalisée. Chaque pic correspond à l'instant où l'onde de volume (longitudinale ou transverse) intersecte la surface de l'échantillon. Les variations de réflectivité repérées par écho 1 et écho 2 correspondent aux aller-retour de l'onde longitudinale dans l'épaisseur du substrat. A ces instants, les variations de réflectivité sont en fait dominées par le déplacement hors-plan $u(t)$ provoqué par l'intersection entre l'onde de volume et la surface de l'échantillon. On y retrouve donc bien tous les termes qui

figurent dans l'expression des variations relatives de réflectivité.

En raison de la configuration expérimentale (en transmission) et de la nature du substrat utilisé (Si, donc opaque) pour cette mesure, ce sont naturellement des ondes de volume qui ont été observées. Ici, notre étude s'est portée uniquement sur la propagation des ondes de surface (SAW), il ne sera donc plus jamais question d'ondes de volume dans ce qui suit.

2.2 Spectroscopie pompe–sonde résolue en temps et en espace

Dans la perspective d'étudier la dynamique vibratoire de milieux complexes, il a été nécessaire d'implémenter au dispositif expérimental des éléments permettant de scanner la réponse de l'échantillon en fonction du temps et de l'espace. Là où la dimension temporelle est relativement simple à intégrer puisqu'il suffit de désynchroniser les trajets pompe et sonde par l'intermédiaire d'une ligne à retard (LàR), la dimension spatiale est plus compliquée à mettre en place car elle nécessite la combinaison d'un système d'imagerie avec un interféromètre pour assurer un bon contraste d'image. Ces deux dimensions supplémentaires à la mesure des variations relatives de réflectivités sont abordées en détail dans cette partie. Même si les principes décrits précédemment sont relativement simples, les dispositifs expérimentaux permettant de mesurer les ondes élastiques à l'échelle de quelques μm sont beaucoup moins, et nécessitent un grand nombre d'optiques, en plus d'un schéma de détection relativement compliqué. En figure 2.4 est un schéma non exhaustif² du dispositif expérimental qui a permis l'obtention de tous les résultats qui apparaîtront dans la suite de ce manuscrit, du moins pour la partie acoustique.

Le laser utilisé est un Chameleon Ultra II. Il délivre des impulsions d'une puissance moyenne de 4200 mW à 800 nm qui présentent les mêmes caractéristiques qu'un laser Ti :Sa classique, soit une largeur de 140 fs à un taux de répétition de 80 MHz. En raison de la trop grande puissance en sortie du laser, la lumière, initialement polarisée horizontalement, traverse une lame demi-onde ($\lambda/2$) et un cube séparateur de polarisation PBS (pour *polarizing beamsplitter*)³, qui permettent d'ajuster la puissance à injecter pour effectuer les expériences; le reste est envoyé dans un cache et ne sert pas pour la suite. La puissance de travail maximale est entre autre fixée par le seuil d'endommagement du cristal qui se trouve à l'intérieur du modulateur acousto-optique (MAO) et qui est de l'ordre du watt. La puissance restante utile traverse à nouveau un couple $\lambda/2$ – PBS1 afin de séparer le faisceau en deux bras qui constituent la *pompe* et la *sonde* et qui vont permettre de générer et détecter la propagation de la contrainte mécanique (onde élastique) qui se propage en surface de l'échantillon. La pompe étant utilisée pour générer l'onde acoustique, contient la majorité de l'énergie utile ($\sim 99\%$) ce qui permet à la sonde de mesurer les variations de réflectivités engendrées sans perturber davantage l'échantillon. En sortie du PBS1, la pompe est polarisée verticalement (et le restera tout le temps de la mesure), tandis que la sonde est polarisée horizontalement et sera sujette à de nombreux changements, notamment lors de son passage dans la ligne à retard (LàR) et l'interféromètre.

2. Par soucis de lisibilité, seul les éléments indispensables à la compréhension du montage y figurent car de nombreuses optiques sont utilisées pour travailler le faisceau laser en amont de l'interféromètre.

3. Ils n'apparaissent pas sur le schéma.

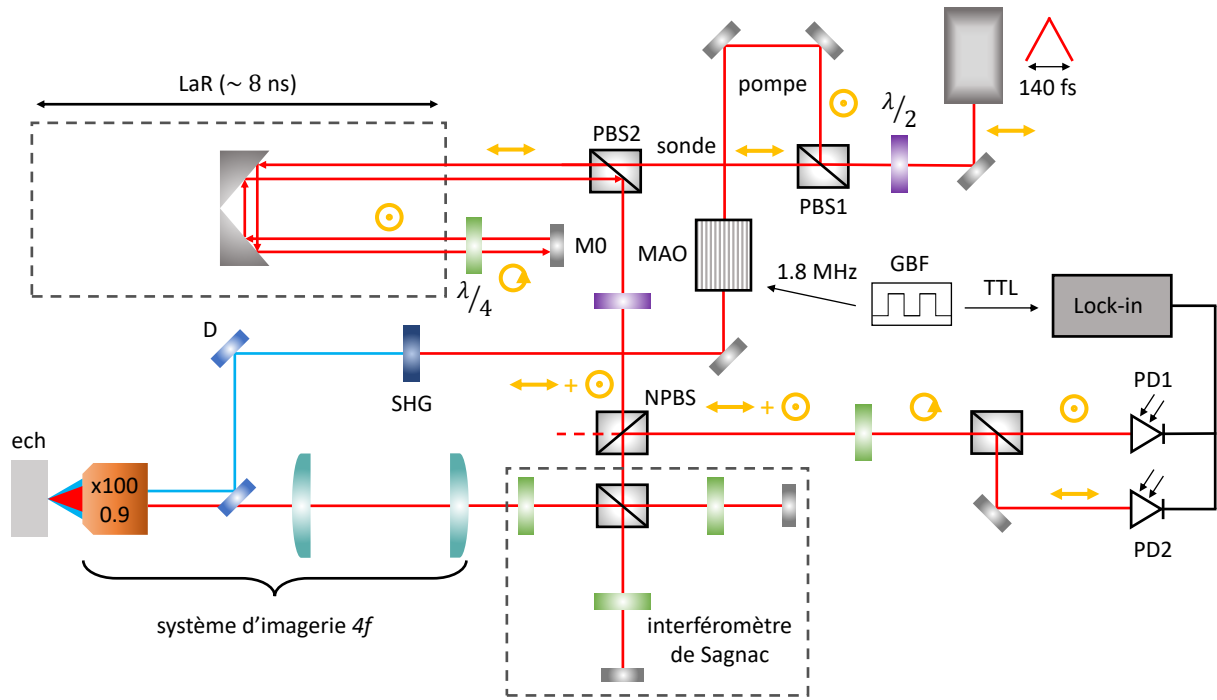


Figure 2.4 – Schéma non exhaustif du dispositif de spectroscopie pompe-sonde, avec intégration d'un interféromètre de type Sagnac et d'un système d'imagerie $4f$. Il contient les abréviations suivantes : $\lambda/2$ (HWP) : lame demi-onde, PBS : polarizing beamsplitter, MAO : modulateur acousto-optique, SHG : second harmonic generator, D : miroir dichroïque, ech : échantillon, LaR : ligne à retard, $\lambda/4$ (QWP) : lame quart d'onde, M0 : miroir à incidence normale, NPBS : non-polarizing beamsplitter, PD : photodiode, GBF : générateur de basses fréquences, TTL : Transistor-Transistor Logic. Les symboles \odot , \leftrightarrow et \ominus désignent les polarisations verticale, horizontale et circulaire de la lumière, respectivement.

Les fréquences acoustiques en jeux dans ce type d'expériences sont de l'ordre du GHz, ce qui correspond à des déplacements hors-plan de la surface de l'échantillon de l'ordre du pm (soit quelques μV), imposant l'utilisation d'une détection synchrone, et donc nécessite l'usage d'un signal de détection modulé. A cette fin, le signal de pompe est focalisé au travers du MAO et est modulé par des créneaux à la fréquence de 1,8 MHz⁴ générés par l'intermédiaire d'un générateur de basses fréquences (GBF). Le MAO va diffracter le faisceau aux fréquences $f \pm nF$ et c'est (arbitrairement) le premier ordre positif ($f + F$) qui va être dirigé dans un cristal doubleur de fréquence (SHG); ici l'excitation se fait donc en bleu (à 400 nm), et la détection en rouge (à 800 nm). Il est à noter que certains dispositifs expérimentaux n'utilisent pas le doublage en fréquence pour l'excitation, ce qui impose d'utiliser la combinaison d'une lame demi-onde ($\lambda/2$) avec une lame quart d'onde ($\lambda/4$) en amont des photodiodes (PD) afin d'empêcher que la pompe modulée ne leur parvienne, ce qui aurait pour effet de totalement aveugler le lock-in. Malgré l'anisotropie du cristal SHG qui déforme le faisceau pompe et le manque d'efficacité des processus non-linéaire dans le doublage de fréquence pour de faibles puissances, il suffit simplement dans notre configuration expérimentale de placer des filtres rouges devant les PDs pour ne détecter que le phénomène physique modulé rétro-réfléchi par l'échantillon. Les autres éléments du montage font l'objet des parties suivantes.

4. Grossièrement parlant, plus la fréquence de modulation du signal est élevée, meilleur sera le rapport signal sur bruit. Toutefois, la fréquence de modulation maximale qui peut être détectée par le lock-in utilisé est de 2 MHz, donc le choix a été fait de se rapprocher au maximum de cette fréquence maximale.

2.2.1 Résolution temporelle : désynchronisation des trajets pompe et sonde

Tous les $T_R = 12.5$ ns, une onde acoustique est générée dans l'échantillon, ce qui correspond au taux de répétition du laser. Lorsque pompe et sonde parcourent strictement la même distance, on est alors à la coïncidence, mais les phénomènes acoustiques ne sont pas encore observables (figure 2.2) puisqu'ils n'ont pas encore eu le temps de se propager compte-tenu des vitesses de propagation des ondes en surface du substrat.

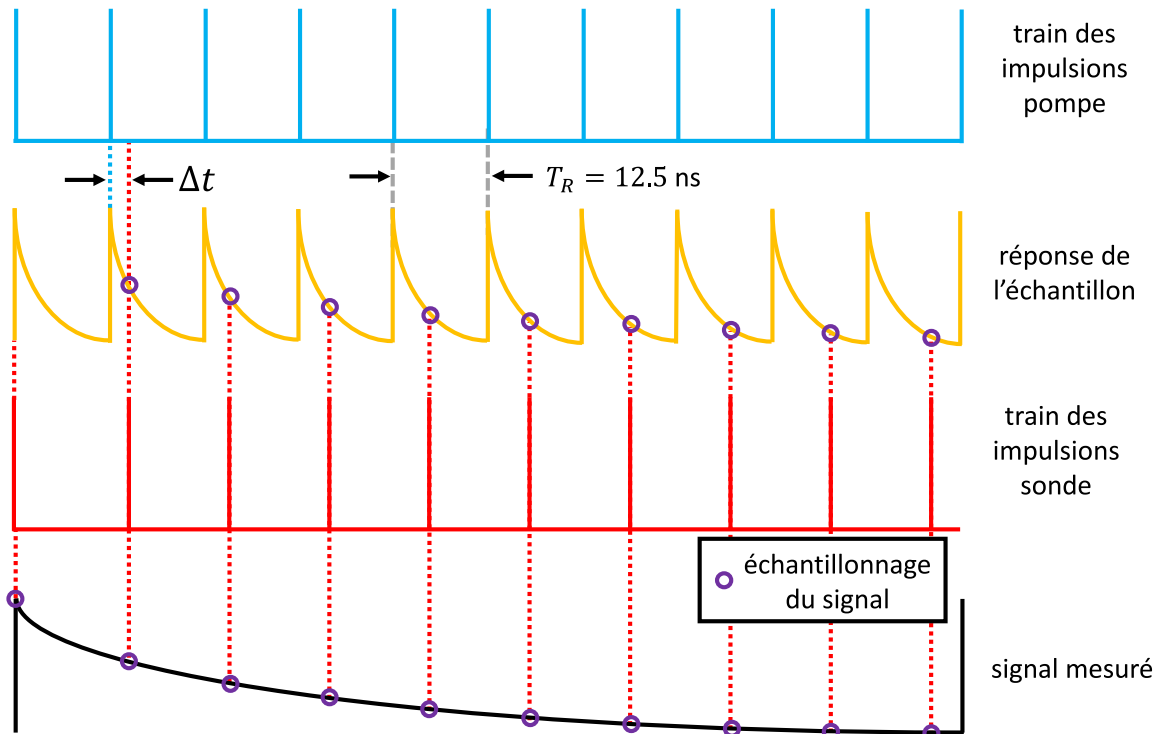


Figure 2.5 – Schéma de principe de fonctionnement de la spectroscopie pompe–sonde résolue en temps. Δt correspond à l'écart temporel entre pompe et sonde et T_R au taux de répétition du laser.

Pour pouvoir les observer au cours du temps, il est donc nécessaire de contrôler cette distance et de la faire varier au cours de la mesure : on a donc recours à une ligne à retard. Il s'agit d'une translation linéaire motorisée de 600 mm de long – la lumière met donc 2 ns pour aller d'un bout à l'autre de la ligne –, avec une résolution spatiale de 4 μm , soit une résolution temporelle de quelques fs. Un coin de cube est positionné sur la LâR pour renvoyer le faisceau vers la suite de son trajet et parcourt donc 2 fois les 600 mm, soit 4 ns. Ceci étant, compte-tenu de la faible vitesse de propagation des ondes acoustiques dans les substrats étudiés, il s'avère nécessaire d'étendre le domaine temporel d'exploration. Pour cela on utilise la combinaison d'une lame $\lambda/4$ et d'un miroir à incidence normale (M0) pour réinjecter le faisceau dans la LâR, il fait donc deux aller-retour dans cette dernière, soit 8 ns. La QWP permet de faire tourner deux fois la polarisation de $\pi/2$ (à l'aller et au retour) si bien que, initialement polarisée horizontalement en entrée de la LâR, la sonde en ressort avec une polarisation verticale et sera non plus transmise par le PBS2, mais réfléchi vers la suite du montage. On dispose donc d'un outil qui permet de faire varier le délai pompe–sonde (en allongeant la distance parcourue par la sonde) sur 8 ns avec une résolution de l'ordre de la fs. En figure 2.5 est donné un

schéma présentant le principe de la désynchronisation entre la pompe et la sonde pour permettre une meilleure compréhension du signal final mesuré.

A condition de ne pas atteindre le régime d'ablation, la réponse de l'échantillon à l'impulsion sera toujours la même : coïncidence pompe-sonde avec décroissance thermique au cours de la désynchronisation. En augmentant le délai pompe-sonde Δt , on vient mesurer la réponse de l'échantillon, mais à des instants différents pour reconstruire par échantillonnage la courbe des variations de réflectivité. Classiquement, il est d'usage de pouvoir contrôler ce délai sur un intervalle plus ou moins égal au taux de répétition du laser afin de visualiser deux coïncidences pompe-sonde et ainsi couvrir tous les phénomènes physiques entre deux impulsions laser successives, comme le c'est le cas dans la configuration en figure 2.3. Compte-tenu des échelles de temps caractéristiques des phénomènes étudiés ici, une intervalle de temps de 8 ns est amplement suffisant.

2.2.2 Résolution spatiale

Même si de nombreuses configurations différentes existent pour faire de l'imagerie d'ondes acoustiques, elles font toutes systématiquement appel à l'utilisation d'un télescope combiné à un interféromètre pour assurer un maximum de contraste sur l'image. Pour plusieurs raisons qui vont être détaillées dans cette partie, notre choix s'est porté vers la combinaison d'un interféromètre de Sagnac avec un système d'imagerie $4f$.

2.2.2.1 Interféromètre de Sagnac

Parmi toute la gamme des interféromètres existants, l'interféromètre de Sagnac s'impose comme le plus adapté à cette étude, autant pour sa grande stabilité mécanique que pour sa facilité de mise en place. De plus, contrairement aux interféromètres de Michelson ou de Mach-Zehnder (pour ne citer qu'eux), il ne requiert aucun asservissement électronique, le rendant bien moins sensible aux bruits mécaniques ou à de potentiels problèmes de démodulation au cours de la mesure ; il est donc bien plus robuste. Il est particulièrement intéressant car il permet de mesurer des déplacements hors-plan très fins sur une très large gamme de fréquence, pouvant monter jusqu'à quelques centaines de GHz et s'avère donc parfaitement adapté aux ondes étudiées. Le principe du Sagnac repose sur l'interférence de deux faisceaux qui parcourent des chemins inverses l'un par rapport à l'autre et mesurent donc l'échantillon en deux instants différents τ_1 et τ_2 , même s'ils ont parcourus la même distance en sortie de l'interféromètre.

En sortie du PBS2 (après avoir passé la L&R), le faisceau traverse une lame $\lambda/2$ afin d'également répartir l'intensité lumineuse dans les polarisations horizontale et verticale en entrée de l'interféromètre et un cube non polarisant (NPBS), nécessaire pour la partie détection. L'entrée de l'interféromètre se fait au niveau du PBS4 qui en est le point central puisqu'il permet de répartir les deux polarisations suivant les deux bras de ce dernier, on a donc deux faisceaux sonde : la sonde 1 polarisée horizontalement en entrée et la sonde 2 polarisée verticalement, comme illustré en figure 2.6.

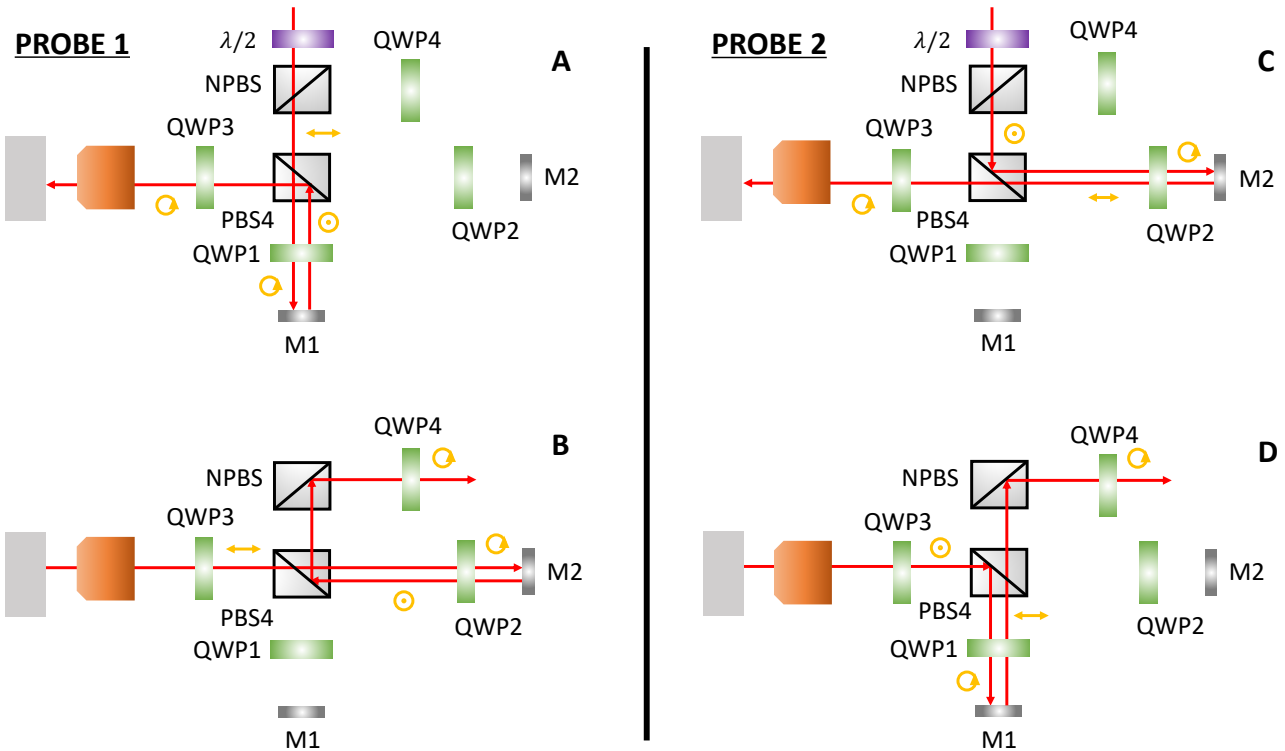


Figure 2.6 – Interféromètre de Sagnac : le faisceau sonde est séparé en deux bras au niveau du PBS4 et vont tourner en sens inverse. La sonde 1 polarisée horizontalement, décrit le trajet illustré en figures **A** et **B** et la sonde 2 polarisée verticalement, le trajet en figures **C** et **D**. Schéma reproduit de [122].

Sonde 1 ↔	Sonde 2 ⊙
PBS4 (transmise)	PBS4 (réfléchie)
QWP1 ⊙ – M1 – QWP1 ⊙	QWP2 ⊙ – M2 – QWP2 ↔
PBS4 (réfléchie)	PBS4 (transmise)
QWP3 ⊙ – Ech – QWP3 ↔	QWP3 ⊙ – Ech – QWP3 ⊙
PBS4 (transmise)	PBS4 (réfléchie)
QWP2 ⊙ – M2 – QWP2 ⊙	QWP1 ⊙ – M1 – QWP1 ↔
PBS4 (réfléchie)	PBS4 (transmise)
NPBS (50 :50)	NPBS (50 :50)
QWP4 ⊙	QWP4 ↔

Tableau 2.1 – Chemin parcouru par les deux faisceaux sonde au sein de l'interféromètre de Sagnac, et polarisations correspondantes à chaque étape.

A – La sonde 1 polarisée horizontalement, est transmise par PBS4 jusqu'à un miroir en incidence normale M1 qui renvoie le faisceau vers PBS4; sur son trajet aller comme son trajet retour, le faisceau rencontre une lame $\lambda/4$ QWP1 de telle sorte que sa polarisation est modifiée de horizontale à verticale⁵ et sera donc, cette fois-ci, réfléchi par PBS4 jusqu'à l'échantillon. **B** – La partie du fais-

5. A chaque passage au travers de la lame quart d'onde le faisceau est déphasé de $\pi/2$, donc un aller retour correspond à un déphasage total de π , la polarisation initiale passe donc de horizontale à verticale (ou inversement).

ceau rétro-réfléchi par l'échantillon poursuit son chemin vers un deuxième miroir en incidence normale M2 qui le renvoie sur PBS4 et ensuite sur NPBS pour aller à la détection. **C** et **D** – La sonde 2 polarisée verticalement, est réfléchi par PBS4 jusqu'à M2 de telle sorte que le chemin parcouru par cette dernière soit l'inverse de la sonde 1. Les chemins croisés des deux sondes et leur polarisation respective sont détaillés dans le tableau 2.1.

Finalement le caractère interférométrique de cette méthode se retrouve dans le fait que les distances PBS4–M1 et PBS4–M2 sont légèrement différentes afin que les deux sondes mesurent l'échantillon dans deux états : un excité et un au repos ⁶. En sortie de l'interféromètre (NPBS), les deux faisceaux sont polarisés orthogonalement, d'où la présence de QWP4 qui va leur permettre d'interférer puisqu'ils auront tout deux une polarisation circulaire après l'avoir traversé. Enfin le PBS en amont de la photodiode différentielle permet de projeter ce signal d'interférence suivant les polarisations horizontale et verticale vers PD1 et PD2 qui en sont les deux entrées. En faisant la différence entre les deux signaux de la photodiode, on a directement accès à la différence de chemin optique parcouru par les deux sondes dans l'interféromètre, qui est directement proportionnelle au déplacement hors plan u . La différence entre ces deux signaux est ensuite envoyée à une détection synchrone qui démodule le signal à la fréquence de modulation de la pompe pour en extraire le signal d'intérêt. En effet le lock-in reçoit un signal de référence (TTL) du GBF à la même fréquence de modulation que la pompe, ce qui lui permet de détecter le signal modulé rétro-réfléchi par l'échantillon.

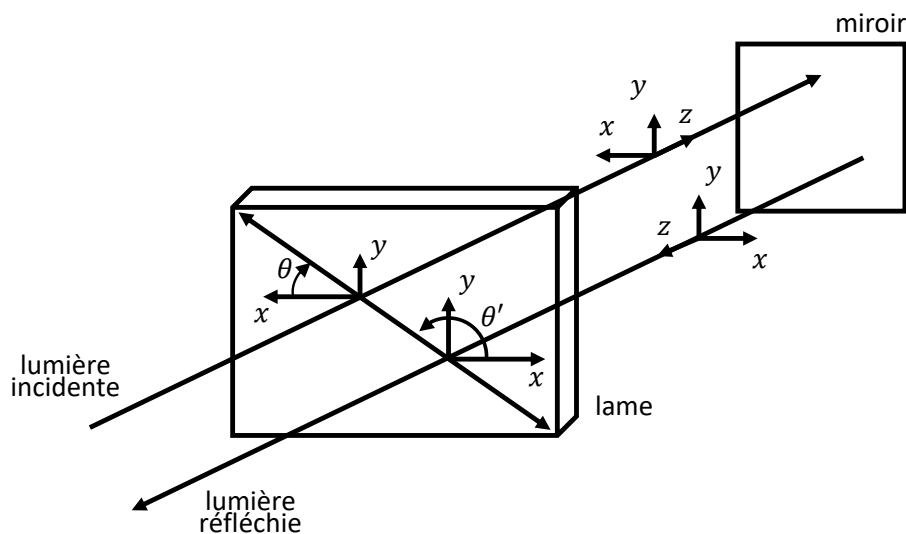


Figure 2.7 – Schéma présentant le repère de coordonnées utilisé pour le formalisme de Jones, il met en évidence les angles de rotation θ et θ' par rapport à la direction x d'une lame à retard de phase. La lumière est réfléchi par un miroir à incidence normale, comme c'est le cas pour l'interféromètre. L'orientation des axes privilégiés de la lame vis à vis de la lumière incidente et réfléchi est représentée par une double flèche. Schéma reproduit de [122].

En entrée de l'interféromètre, le faisceau sonde est polarisé suivant dans la direction $x + y$ ou x et y sont des vecteurs unitaires orthogonaux. Après réflexion par le NPBS (vers la détection), le champ électrique peut s'écrire $(1/2)(r_2\mathbf{x} + r_1\mathbf{y})$ ou r_1 et r_2 sont les coefficients de réflexion en

6. Bien que les deux sondes voient l'échantillon dans deux états différents, elles ont parcourues la même distance une fois sortie de l'interféromètre.

amplitude de l'échantillon aux temps Δt et $\Delta t + \delta\tau$. Ici Δt correspond au délai pompe–sonde et $\delta\tau$ à l'écart temporel entre les deux sondes. Compte-tenu des fréquences en jeu, les changements relatifs de réflectivités sont nécessairement petits : $|(r_k - r)/r| \ll 1$, avec $r = r_0 e^{i\phi_0}$ le coefficient de réflexion de l'échantillon en l'absence d'excitation et r_k le coefficient de réflexion en présence de l'onde ($k = 1, 2$). Autrement dit, $r_k = r_0(1 + \rho_k)e^{i(\phi_0 + \delta\phi_k)}$, ρ_k et ϕ_k correspondent aux parties réelle et imaginaire des variations de réflectivité. Une forme simplifiée de la relation 2.1 permet d'exprimer les variations relatives de réflectivité sous la forme $\delta r/r = \rho_k + i\Delta\phi_k$ en partant de l'hypothèse que ces changements sont très faibles, avec $\rho_k = \rho_2 - \rho_1$ et $\Delta\phi_k = \delta\phi_2 - \delta\phi_1$.

Une manière de mieux appréhender le fonctionnement de l'interféromètre consiste à utiliser le formalisme de Jones pour suivre l'état de polarisation au travers des différents systèmes optiques que la lumière traverse, le repère de coordonnées utilisé est représenté schématiquement en figure 2.7 pour le cas d'une lame à retard de phase. En entrée, les deux sondes sont polarisées verticalement et horizontalement, représentées par les vecteurs \mathbf{V} et \mathbf{H} respectivement :

$$\mathbf{V} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \mathbf{H} = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix}.$$

Ensuite, la réflexion de l'onde par l'échantillon qui possède une réflectance complexe, notée r s'exprime comme suit :

$$\mathbf{R} = \begin{pmatrix} -r & 0 \\ 0 & r \end{pmatrix}.$$

Dans ce qui suit, on considérera que les PBS et les miroirs (M) sont des réflecteurs parfaits, soit $r = 1$ il vient donc :

$$\text{PBS}_r = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad \text{PBS}_t = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad \text{M} = \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}.$$

Aussi, il est important de prendre en compte l'influence du cube non-polarisant (NPBS) puisque 50% de l'énergie de la sonde est perdue à chaque passage :

$$\text{NPBS}_r = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}, \quad \text{NPBS}_t = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}.$$

Enfin, il convient de définir les matrices de rotation pour les lames quart d'onde, dont l'expression générale prend la forme

$$\text{WP}_{\Delta, \theta} = \begin{pmatrix} \cos(\theta) & -\sin(\theta) \\ \sin(\theta) & \cos(\theta) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & \exp(-i\Delta) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos(\theta) & \sin(\theta) \\ -\sin(\theta) & \cos(\theta) \end{pmatrix},$$

avec $\Delta = \frac{\pi}{2}$ pour une lame quart d'onde et $\theta = 45^\circ$ et $\theta' = 135^\circ$, on obtient ainsi (repère figure 2.7) :

$$\text{QWP}_{45^\circ} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 - i & 1 + i \\ 1 + i & 1 - i \end{pmatrix}, \quad \text{QWP}_{135^\circ} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 - i & -1 - i \\ -1 - i & 1 - i \end{pmatrix}.$$

Tous les éléments optiques étant maintenant définis à l'aide du formalisme de Jones, on se propose de l'appliquer à notre géométrie expérimentale en reprenant le chemin suivi par les deux sondes et récapitulé dans le tableau 2.1, alors les polarisations en amont de la photodiode prennent la forme :

$$\begin{aligned} \text{SONDE1} &= \text{PBS}_r \cdot \text{QWP}_{45^\circ} \cdot \text{NPBS}_r \cdot \text{PBS}_r \cdot \text{QWP}_{135^\circ} \cdot \text{M} \cdot \text{QWP}_{45^\circ} \cdot \text{PBS}_t \cdot \text{QWP}_{135^\circ} \cdot \text{R}_1 \cdot \text{QWP}_{45^\circ} \\ &\quad \cdot \text{PBS}_r \cdot \text{QWP}_{135^\circ} \cdot \text{M} \cdot \text{QWP}_{45^\circ} \cdot \text{PBS}_t \cdot \text{NPBS}_t \cdot \text{H} = \begin{pmatrix} 0 \\ 1/4r_1(j-1) \end{pmatrix}, \\ \text{SONDE2} &= \text{PBS}_t \cdot \text{QWP}_{45^\circ} \cdot \text{NPBS}_r \cdot \text{PBS}_t \cdot \text{QWP}_{135^\circ} \cdot \text{M} \cdot \text{QWP}_{45^\circ} \cdot \text{PBS}_t \cdot \text{QWP}_{135^\circ} \cdot \text{R}_2 \cdot \text{QWP}_{45^\circ} \\ &\quad \cdot \text{PBS}_t \cdot \text{QWP}_{135^\circ} \cdot \text{M} \cdot \text{QWP}_{45^\circ} \cdot \text{PBS}_r \cdot \text{NPBS}_t \cdot \text{V} = \begin{pmatrix} 1/4r_2(j-1) \\ 0 \end{pmatrix}, \end{aligned}$$

où R_1 et R_2 correspondent à la réflectance de l'échantillon aux instants Δt et $\Delta t + \delta\tau$; avec $\delta\tau$ l'écart temporel entre les deux sondes. Finalement, en sortie de la photodiode différentielle, le signal envoyé au lock-in prend la forme $V_{\text{out}} = \frac{1}{4}(1-j)\delta r$ qui n'est ni plus ni moins que la différence de marche entre les deux faisceaux sondes, et est donc directement proportionnel au déplacement hors plan provoqué par la propagation de l'onde acoustique. En dehors de la zone d'excitation ou les effets thermiques dominent les variations de réflectivité (sur une zone de la taille de la pompe, soit $\sim 1 - 2\mu\text{m}$), elles sont dominées par le déplacement hors plan u . Cela reste vraie pour des fréquences relativement basses (c'est à dire de l'ordre du GHz), ce qui est beaucoup moins le cas à très haute fréquence puisque les déplacements hors plans correspondant deviennent très faibles (ils sont inversement proportionnels à la fréquence acoustique), jusqu'à être comparables aux effets photoélastiques. Cela étant, les ondes acoustiques étudiées ici ne dépassent pas 2-3 GHz, il est donc raisonnable d'affirmer que les variations de réflectivité mesurées sont purement liées au déplacement hors plan de la surface de l'échantillon, d'où l'intérêt de l'utilisation d'un interféromètre.

2.2.2.2 Système d'imagerie 4f

En plus d'avoir une mesure résolue en temps via le balayage de la ligne à retard et un interféromètre, un système d'imagerie 4f a été implémenté pour imager l'onde acoustique au cours de sa propagation. En figure 2.8 est schématisé le principe de fonctionnement d'un tel système, qui suppose de travailler en faisceau colimaté en entrée du système pour assurer son bon fonctionnement.

Le principe de ce dispositif repose sur le fait que les deux lentilles du télescope sont placées de manière confocales, la première lentille étant disposée sur deux translations linéaires motorisées. Lorsque les deux lentilles sont placées sur le même axe optique, l'objectif focalise le faisceau sur l'échantillon le long de ce même axe. En revanche, lorsque la première lentille est déviée de l'axe optique, le faisceau arrive sur la pupille d'entrée de l'objectif⁷ mais cette fois-ci avec un angle θ . En fonction de l'angle d'incidence du faisceau avec la pupille d'entrée, la sonde sera focalisée plus ou moins loin de l'axe optique sur l'échantillon. Un peu de géométrie permet de relier le déplacement nécessaire D de la première lentille pour focaliser à une distance d de l'axe optique sur l'échantillon en fonction de la focale des lentilles du télescope et de l'objectif utilisé : $d = f_2/f_1 D$. Donc pour faire une image $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ de l'échantillon, il suffit de déplacer la lentille sur une distance de 5 mm dans les directions x et y . L'objectif étant de scanner la réponse de nano-objets une fois excités par l'onde acoustique, l'objectif x100 est de loin la meilleure solution puisque une fois focalisé sur

7. Il est très important que les deux lentilles du télescope soient confocales afin que le faisceau arrive toujours au milieu de la pupille d'entrée de l'objectif. Une étape de calibration a été nécessaire avec une mire présentant des motifs de dimensions connues afin de s'assurer que le rapport des distances soit en effet correct.

l'échantillon, le diamètre du spot sonde est de l'ordre du μm , garantissant une résolution spatiale du même ordre de grandeur. Le dispositif $4f$ présente bien des avantages car si les distances focales sont bien respectées, la collimation ainsi que la focalisation du faisceau sur l'échantillon ne sont pas affectées.

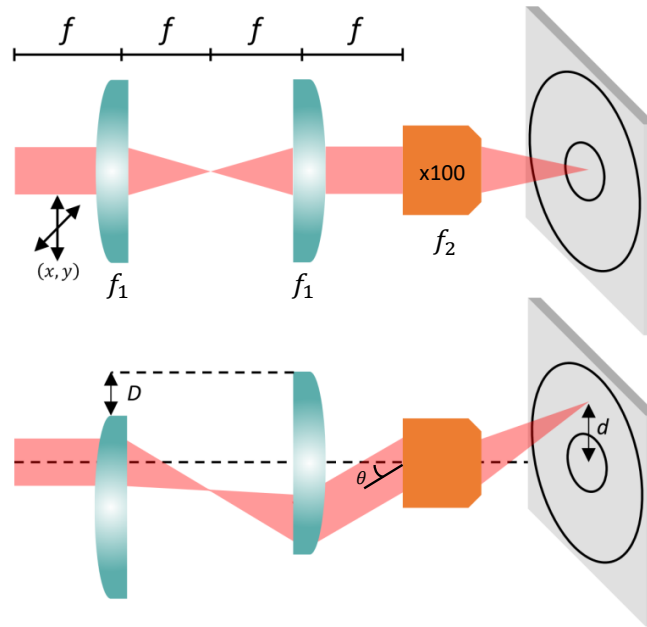


Figure 2.8 – Principe de fonctionnement du système d'imagerie $4f$. Pour cela il est nécessaire d'avoir deux lentilles confocales, dont une des deux lentilles repose sur deux translations linéaires motorisées, et d'un objectif (ici x100). f_1 est la focale des deux lentilles tandis que f_2 est la focale de l'objectif. Il présente le cas où la première lentille est déviée de l'axe optique et la conséquence sur le point de focalisation sur l'échantillon. L'axe optique est représenté par la ligne pointillée qui passe par le centre de la 2^{ème} lentille.

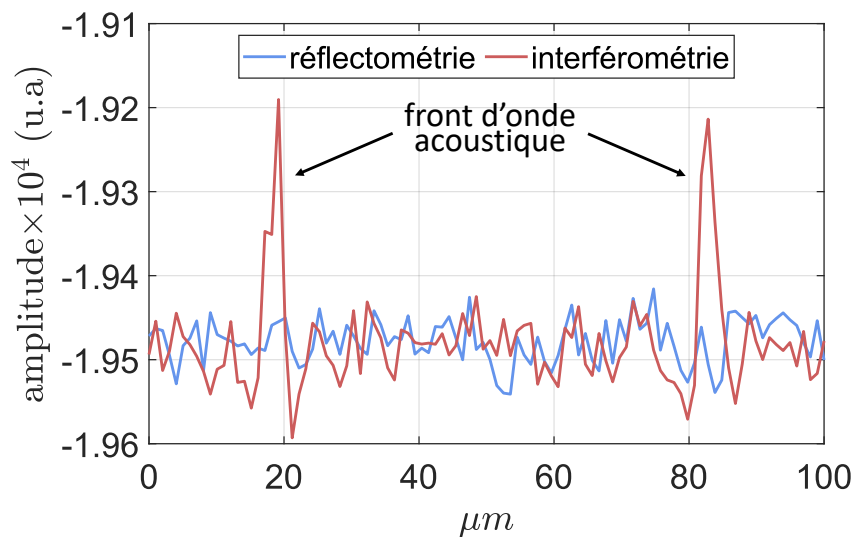


Figure 2.9 – Comparaison d'un scan de l'échantillon suivant un axe et pour un délai pompe–sonde donné pour les configurations en réflectométrie et en interférométrie.

Pour démontrer l'apport considérable de l'interféromètre, une mesure spatiale suivant un axe de l'échantillon en configuration reflectométrique⁸ classique et interférométrique, est donnée en figure 2.9. La ou le front d'onde acoustique est bien visible en interférométrie, il l'est beaucoup moins (très légèrement visible) en reflectométrie, mettant en évidence son caractère indispensable dans la perspective de mesurer la dynamique vibratoire d'échantillons désordonnés.

2.3 Caractérisation des ondes élastiques générées

Lorsque l'impulsion pompe impacte la surface de l'échantillon, c'est toute une zoologie d'ondes élastiques qui sont générées et qui se propagent en surface comme dans le volume. Suivant la configuration expérimentale et la géométrie de l'échantillon étudié, il sera plus facile de visualiser certains type d'ondes plutôt que d'autres. Ici, compte-tenu des échantillons étudiés, notre étude s'est portée sur les ondes acoustiques de surface (SAW), ce qui suppose de travailler en réflexion⁹ et d'avoir un substrat d'épaisseur suffisante de telle sorte que la réflexion de l'onde de volume sur la face arrière du substrat n'affecte pas la mesure.

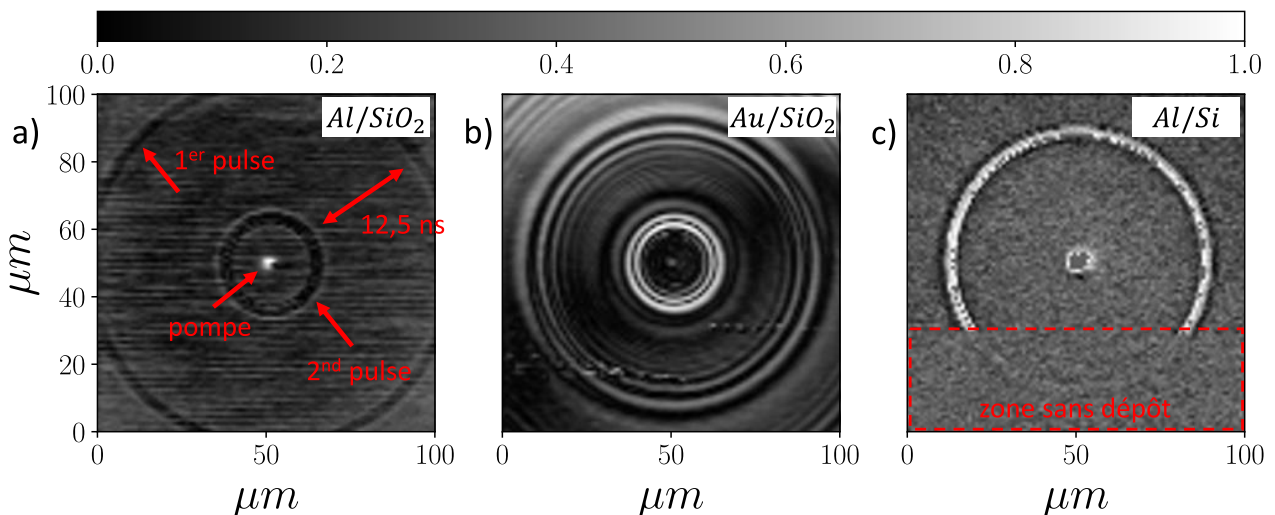


Figure 2.10 – Images $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ d'ondes acoustiques de surface sur substrat de SiO_2 et Si et pour des couches transductrices de nature différentes : **a)** Al/SiO_2 , **b)** Au/SiO_2 , et **c)** Al/Si pour un délai pompe–sonde fixe (et arbitraire). La dernière image est une mesure effectuée à la frontière de la couche d'Al, montrant son importance sur la qualité du signal mesuré. Les flèches rouges en figure **a)** mettent en évidence les différents éléments visibles à l'image, à savoir la zone d'excitation par la pompe et les deux fronts d'ondes séparés de $T_R = 12.5 \text{ ns}$.

Avant de commencer les mesures dans les échantillons désordonnés, il est important de trouver la combinaison substrat/dépôt la plus favorable à l'étude. Pour cela, deux substrats et deux dépôts différents ont été choisis pour leurs bonnes propriétés élastiques et optiques : le Si et le SiO_2 et l'Al et l'Au, respectivement. Le silicium est très peu anisotrope et conduit bien la chaleur¹⁰ alors que la silice est isotrope mais conduit moins bien la chaleur ; la vitesse des ondes de surface dans ces deux types

8. Il est facile de passer d'une configuration à l'autre puisque pour cela, il suffit de tourner la lame $\lambda/2$ en amont de l'interféromètre pour n'avoir qu'une seule polarisation en entrée et de retirer la lame $\lambda/4$ placée en amont des photodiodes pour ne pas avoir d'interférences.
9. A l'inverse de la configuration en transmission qui est plus favorable à la détection d'ondes de volume.
10. Le rapport signal à bruit dépendant directement de la puissance de la pompe, il est tentant de la pousser au maxi-

de substrat étant assez faible. L'Al et l'Au sont deux dépôts très courants en acoustique picoseconde pour leurs faibles profondeurs de pénétration optique et leurs très bons coefficients de réflexion aux longueurs d'ondes optiques utilisées (ici 400 et 800 nm). Des résultats de mesure typiques avec ce dispositif expérimental sont donnés en figure 2.10 pour trois configurations **a)** Al/SiO₂, **b)** Au/SiO₂ et **c)** Al/Si.

Au centre du scan apparaît la pompe en plus de deux fronts d'ondes acoustiques, qui sont visibles en raison de la faible vitesse de propagation des ondes de surface dans ce type de matériau. Ils fournissent en outre une mesure très fiable de la vitesse des ondes acoustiques – à défaut de la calculer – puisque l'écart spatial entre les deux fronts d'onde est directement relié au taux de répétition du laser T_R . La figure **c)** permet simplement de mettre en évidence le gain de rapport signal à bruit apporté par la présence de la couche transductrice. En revanche la comparaison entre les figures 2.10 **a)** et 2.10 **b)** suggère que la nature de la couche transductrice a un fort impact sur la nature des modes acoustiques de surface qui se propagent puisque le front d'onde généré via la couche d'Au est bien plus étalée spatialement qu'avec la couche d'Al. Un calcul des courbes de dispersion des premiers modes de Sezawa met en lumière la très grande dispersion apportée par la couche d'Au, là où cette dernière reste assez marginale pour la couche d'Al. Les figures 2.11(a) et 2.11(b) rapportent une variation d'environ 100 m/s avec l'Al contre 1500 m/s avec l'Au pour $0 < kh < 1$, soit une variation de 3% pour le premier et 40% pour le second¹¹. Il est aussi à noter que les deux premiers modes de Sezawa sont très proches dans le cas de l'Au donc l'image correspondante est très certainement la superposition de ces deux modes¹².

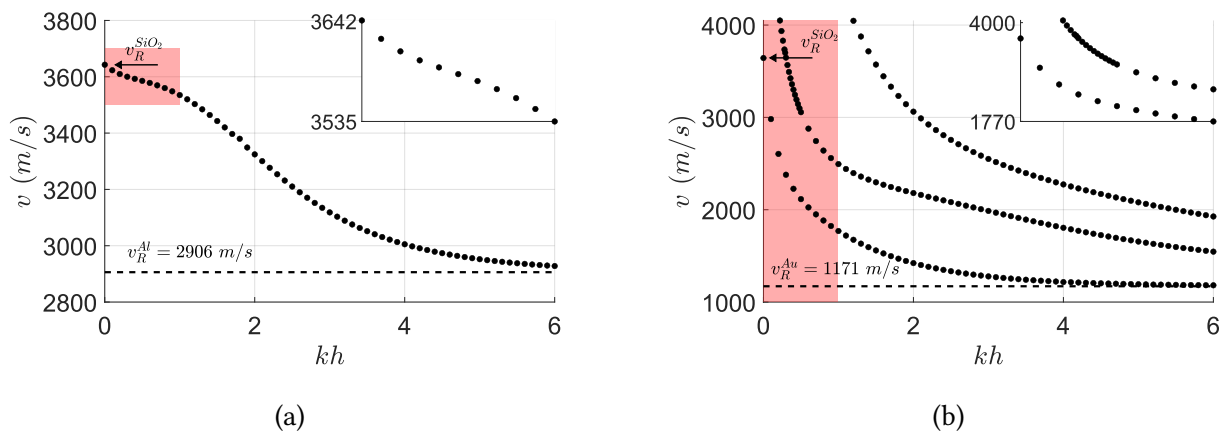


Figure 2.11 – Courbes de dispersion des premiers modes de Sezawa en surface d'un substrat de SiO₂ pour des dépôts **a)** d'Al et **b)** d'Au. Ces courbes mettent en évidence l'influence de la nature et l'épaisseur de la couche transductrice sur les modes acoustiques générées en surface du substrat. $v_R^{SiO_2}$, v_R^{Al} et v_R^{Au} désignent respectivement les vitesses des ondes de Rayleigh dans du SiO₂, de l'Al, et de l'Au.

mum mais cela peut mener à l'ablation de la couche métallique au cours de la mesure. Il est donc préférable d'avoir un substrat qui conduit efficacement la chaleur afin de ne pas atteindre ce seuil et d'avoir un bon rapport signal à bruit.

11. Ce résultat est assez intuitif puisqu'il suffit de regarder la différence de vitesse de l'onde de transverse entre le substrat et le dépôt : plus cette différence est grande, plus la dispersion le sera.
12. La très faible vitesse des modes générés ne permet pas de les discerner en raison de la faible distance de propagation sur laquelle s'effectue la mesure.

Le second mode de Sezawa n'est pas représenté en figure 2.11(a) puisqu'il arrive pour des $kh \sim 2.5$, mode qui n'est pas excité en raison de l'épaisseur de la couche d'Al vaporisée sur le substrat (100 nm). Fort de ces observations mais aussi d'autres considérations qui apparaîtront plus clairement dans la suite, le choix a été fait de retenir l'Al comme couche transductrice, que ce soit sur substrat de Si ou de SiO_2 .

En complément d'un scan spatial, il semble pertinent pour la suite de faire une mesure temporelle du front d'onde pour en déterminer son contenu fréquentiel et ainsi en avoir une caractérisation complète.

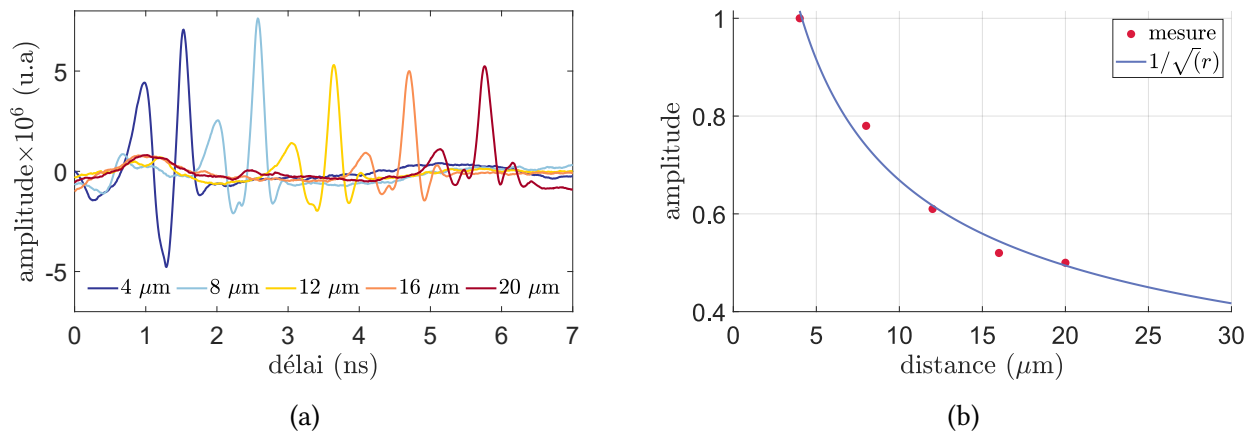


Figure 2.12 – a) Mesures de front d'onde sur substrat de SiO_2 avec une couche homogène d'Al de 100 nm d'épaisseur. Chaque courbe correspond à une distance pompe–sonde donnée pendant laquelle la L \grave{a} R est balayée sur 7 ns. b) Évolution de l'amplitude crête-crête de l'onde mesurée en fonction de la distance parcourue.

Pour cela, il suffit de fixer une distance entre pompe et sonde (avec le front d'onde entre les deux) et de balayer la ligne à retard, à la manière d'une mesure de temps de vol. On rapporte en figure 2.12(a) une telle mesure pour différentes distances pompe–sonde effectuée sur un échantillon de SiO_2 sur lequel a été déposé une couche homogène d'Al de 100 nm d'épaisseur.

Outre le profil temporel du front d'onde, cette mesure permet aussi de retrouver la vitesse de l'onde ainsi que son amortissement. En effet, on retrouve que l'onde se propage à $v_R^{\text{SiO}_2} \sim 3800$ m/s ce qui est relativement conforme aux résultats des courbes de dispersion, puisque les constantes élastiques qui ont servi au calcul ne sont pas rigoureusement identiques à celles du substrat étudié. Un problème inverse à partir des mesures de fronts d'onde dans l'échantillon aurait permis de remonter aux constantes élastiques mais là n'est pas l'objet de l'étude. Le même type de mesure a été effectué avec un substrat de Si et permet aussi de retrouver les valeurs de la littérature puisque $v_R^{\text{Si}} \sim 5000$ m/s. En reportant les amplitudes crête à crête des ondes ainsi mesurées, on retrouve que cette dernière suit une décroissance en $1/\sqrt{r}$ en fonction de la distance parcourue, caractéristique d'une onde qui se propage sans dispersion, comme tracé en figure 2.12(b). En vertu de cette dernière constatation et des vitesses mesurées dans les deux substrats pour le dépôt d'Al, on parlera alors d'onde de Rayleigh pour désigner le premier mode de Sezawa. Il s'agit là d'un résultat important pour la suite de l'étude puisqu'il montre que l'atténuation du front d'onde est uniquement due à la répartition de l'énergie dans l'espace à mesure qu'il se propage, et donc que l'absorption visco-élastique peut-être négligée

sur ces échelles de distance. Sur la base de ces mesures, il suffit maintenant de faire une transformée de Fourier pour obtenir le contenu spectral associé aux ondes de surface générées avec le laser, comme illustré en figure 2.13(a). On y voit deux fréquences principales qui sont différentes dans les deux substrats $f_{\text{SiO}_2} \sim 0.72$ GHz et $f_{\text{Si}} \sim 1.77$ GHz, ce qui n'a rien de surprenant compte-tenu de la plus grande vitesse de l'onde de Rayleigh dans le silicium. Ce qui fait la force de l'acoustique picoseconde est ce caractère très haute fréquence des ondes générées, qui ne se limite pas à quelques MHz comme il est fréquent de voir en acoustique « classique », rendant cette méthode très adaptée pour étudier des matériaux de dimensions micrométriques, voire nanométriques.

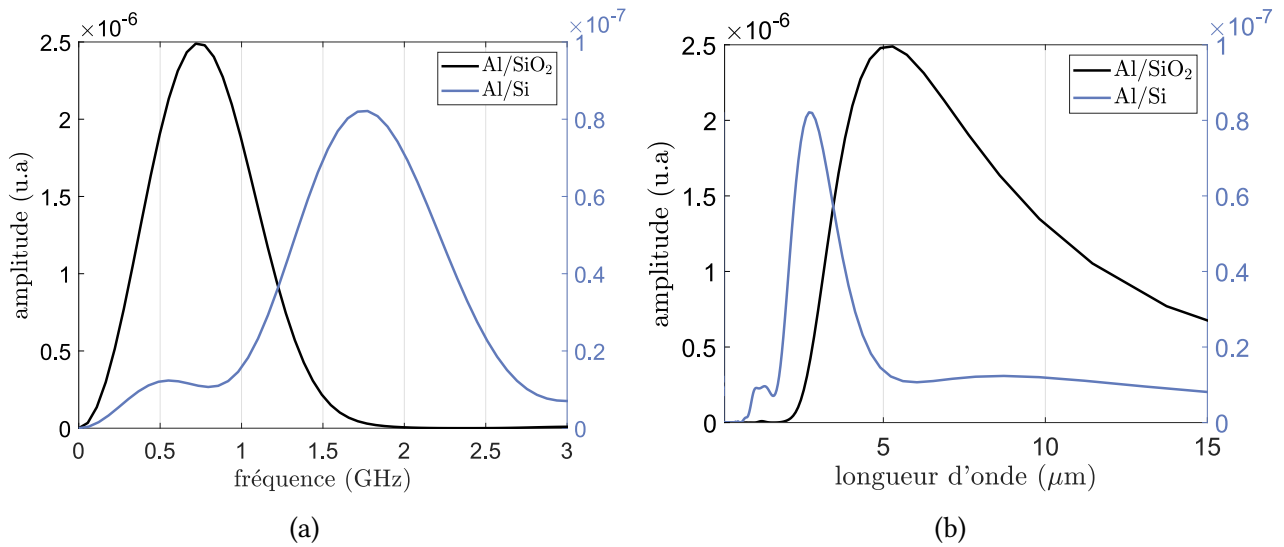


Figure 2.13 – a) Transformées de Fourier des mesures présentées en figure 2.12(a) pour un substrat de SiO₂ et de Si (les épaisseurs d'Al sont les mêmes). b) longueurs d'ondes correspondantes calculées sur la base des mesures de vitesse des ondes dans les deux types de substrats.

En revanche, il s'agit d'une méthode très large bande (en raison de la très courte durée du pulse d'excitation) comme on peut le voir dans le cas substrat de SiO₂ ou toutes les fréquences entre 100 MHz et 1.8 GHz sont excitées. Même si certaines méthodes permettent d'être sélectives en fréquence¹³, elles font appel à des procédés de fabrication qui ne sont pas toujours simple à réaliser ou alors à incorporer sur une géométrie déjà existante. Il s'agit la d'une des limites de l'acoustique picoseconde pour étudier les milieux complexes puisqu'il faut adapter la distribution à l'onde acoustique générée, car il est compliqué de contrôler/sélectionner ce qui est excité là où ce n'est pas un problème en optique, si l'on dispose d'un laser accordable. En reprenant les valeurs de vitesse des ondes mesurées, on peut avoir une bonne idée des longueurs d'onde ainsi générées compte-tenu de la faible dispersion apportée par l'Al sur le Si. Globalement, sont principalement générées des longueurs d'onde entre 2 et 5 μm pour le Si et entre 3 et 15 μm pour le SiO₂, donc la combinaison Al/Si apparaît bien moins dispersive que Al/SiO₂, et ce qui a été confirmé par le calcul.

En prévision des mesures dans des distributions désordonnées, des premiers échantillons ont été fabriqués à l'INSP. Ils consistent en des plots d'Al de 6 μm de diamètre déposés directement sur un substrat de Si; les piliers sont donc de dimensions comparables aux longueurs d'ondes acoustiques

13. Il est possible de fabriquer des motifs périodiques à la surface de l'échantillon et de les éclairer avec le laser de pompe pour ne sélectionner qu'un seul mode acoustique dont la fréquence sera proportionnelle à la période du motif.

générées dans le substrat. Les premières mesures en figures 2.14(a) et 2.14(b) révèlent que les piliers interagissent effectivement avec le front d'onde puisque l'on constate la diffusion de l'onde de surface par les piliers en Au. Les flèches sur l'image indiquent la position des différents piliers et la zone rouge en pointillée correspond à la zone sur laquelle a été faite la deuxième mesure pour mieux visualiser l'interaction entre le pilier et l'onde de surface. Cette deuxième mesure permet de mieux se rendre compte de l'interaction entre le pilier et le front d'onde. En effet l'énergie du front d'onde est principalement réémise par le pilier dans la direction opposée à sa propagation, mais a aussi pour effet de modifier sa forme.

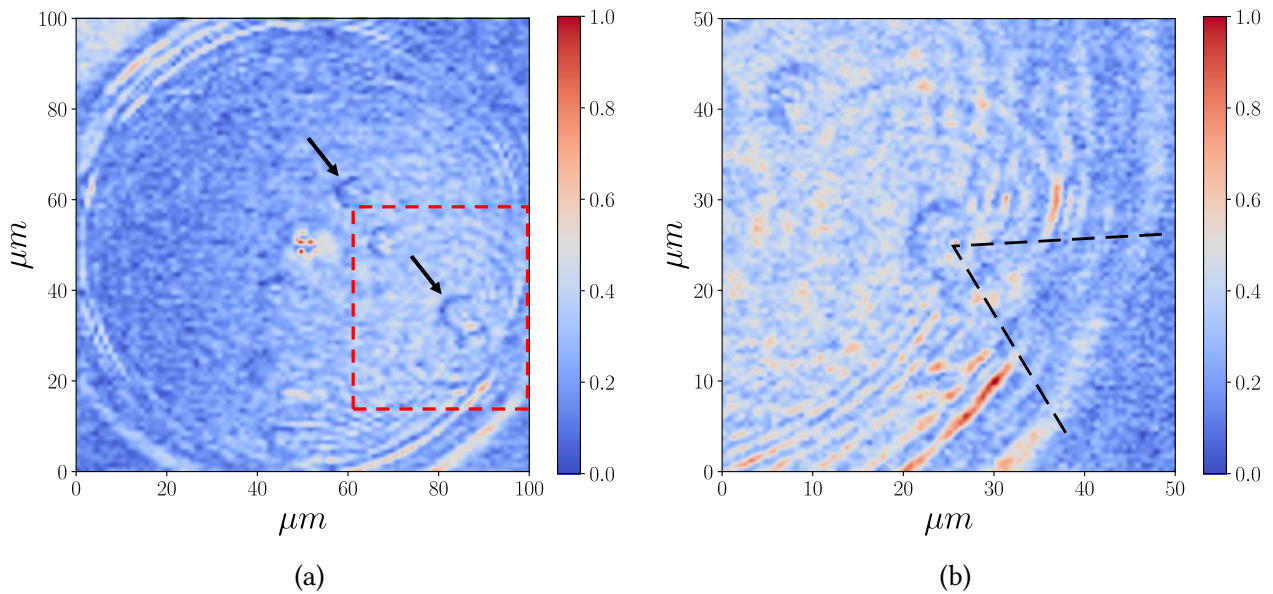


Figure 2.14 – Images de **a)** $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ et **b)** zoom de $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ d'un échantillon qui consiste en un substrat de Si sur lequel ont été fabriqués des piliers en Au de diamètre $6 \mu\text{m}$. Les flèches noires indiquent la position des piliers tandis que la zone rouge en pointillé indique la zone sur laquelle a été effectuée la deuxième mesure.

En augmentant la densité de piliers, des phénomènes de diffusion multiple aurait pu être mesurés de la sorte avec des effets d'interférences constructives. Cependant, dans la perspective d'un couplage avec des plasmons de surface, les dimensions caractéristiques des piliers étudiés seront nécessairement bien moindres, nous plaçant dans le régime de diffusion Rayleigh.

2.4 Conclusion

Même s'il ne s'agit que d'un outil pour étudier la propagation d'onde en milieux complexes la mise en place du banc expérimental (montage et interfaçage) ainsi que la caractérisation de l'onde de Rayleigh ont constitué une étape importante de cette thèse. Ce dispositif offre la possibilité d'étudier la dynamique vibratoire en fonction du temps et de l'espace avec une excellente résolution – spatiale comme temporelle –, à des échelles très difficilement atteignables en acoustique ; voire même de visualiser des effets de localisation d'onde. En effet, plusieurs équipes sont parvenues à mesurer ces effets de localisation mais, jamais à l'échelle micrométrique. De plus, l'apport considérable de la méthode utilisée se retrouve dans le fait que les phénomènes de localisation peuvent être étudiés directement de l'intérieur et imagés, contrairement aux techniques classiques qui ont recours à des mesures indirects.

Chapitre 3

Propagation d'ondes acoustiques de surface en milieux complexes : résultats expérimentaux et numériques

Table des matières

Introduction	56
3.1 Répartition spatiale de diffuseurs à gradient de densité : distribution Gaussienne	57
3.2 Répartition spatiale homogène de diffuseurs : distribution de Poisson	59
3.2.1 Mesures spatiales et temporelles de l'atténuation du front d'onde cohérent	62
3.2.2 Mesures de la dynamique vibratoire de la métasurface	64
3.2.3 Influence de la direction d'excitation sur le contenu spectral d'une cavité asymétrique	69
3.3 Résultats numériques et comparaison avec les résultats expérimentaux pour la cavité rectangle	73
3.4 Distribution hyperuniforme	76
3.5 Conclusion	81

Introduction

Dans ce chapitre, on propose une synthèse des données expérimentales portant sur des mesures de propagation d'une onde acoustique de surface (onde de Rayleigh) dans des distributions désordonnées, toutes obtenues avec le dispositif expérimental présenté en détail dans le chapitre précédent. Bien que les distributions de désordre soient de nature différentes, les piliers qui les composent auront toujours des dimensions caractéristiques identiques, c'est à dire un diamètre de $\varphi \sim 320$ nm, une hauteur de $h \sim 200$ nm, déposés sur une couche d'Al d'épaisseur $e_{Al} = 100$ nm, le tout sur substrat de SiO_2 ou de Si. Trois configurations de désordre ont été étudiées : la première consiste en une répartition spatiale de diffuseurs dont la densité locale dépend de l'espace (distribution Gaussienne), la deuxième en une répartition spatiale de diffuseurs homogène dans l'espace (distribution de Poisson), la troisième en une distribution hyperuniforme de diffuseurs. Cette dernière catégorie de désordre correspond à un état transitoire entre le cristal parfait et la distribution totalement désordonnée. A la lumière des résultats obtenus, le principal critère qui différencie ces trois catégories de désordre en terme de dynamique vibratoire est la distance moyenne entre piliers. En effet pour la distribution Gaussienne, cette distance évolue de manière concentrique, alors qu'elle est répartie aléatoirement pour la distribution de Poisson, et est centrée autour d'une valeur caractéristique pour la distribution hyperuniforme. Grâce à la versatilité du dispositif expérimental utilisé, des modes acoustiques localisés ont pu être imagés dans les différentes distributions, et leur dynamique vibratoire à pu être étudiée. Des phénomènes de résonance de cavité à plusieurs GHz ont notamment été mis en évidence.

3.1 Répartition spatiale de diffuseurs à gradient de densité : distribution Gaussienne

En parallèle des échantillons fabriqués à l'IEMN de Lille et qui présentent une distribution spatiale de diffuseurs qui suit une loi de Poisson, des premiers échantillons ont été fabriqués à l'INSP et ont principalement servi à la calibration du dispositif expérimental, mais aussi à mettre en évidence certaines propriétés intéressantes ouvrant la voie aux prochaines distributions de désordre. Pour cette première partie, notre attention s'est portée sur une distribution dite Gaussienne, c'est à dire que la répartition spatiale de diffuseurs dans une zone de dimension donnée suit une loi de probabilité Gaussienne. On donne en figure 3.1 a) un schéma de la géométrie considérée : une épaisseur $e_{Al} = 100$ nm est vaporisée sur un substrat de SiO_2 semi-infini (2 mm d'épaisseur). Des piliers de diamètre $\varphi = 320$ nm et de hauteur $h = 200$ nm sont ensuite érigés directement sur la couche d'Al par une procédure de lithographie électronique. Des images prises avec un Microscope Electronique à Balayage (MEB) montrent le résultat d'une telle distribution.

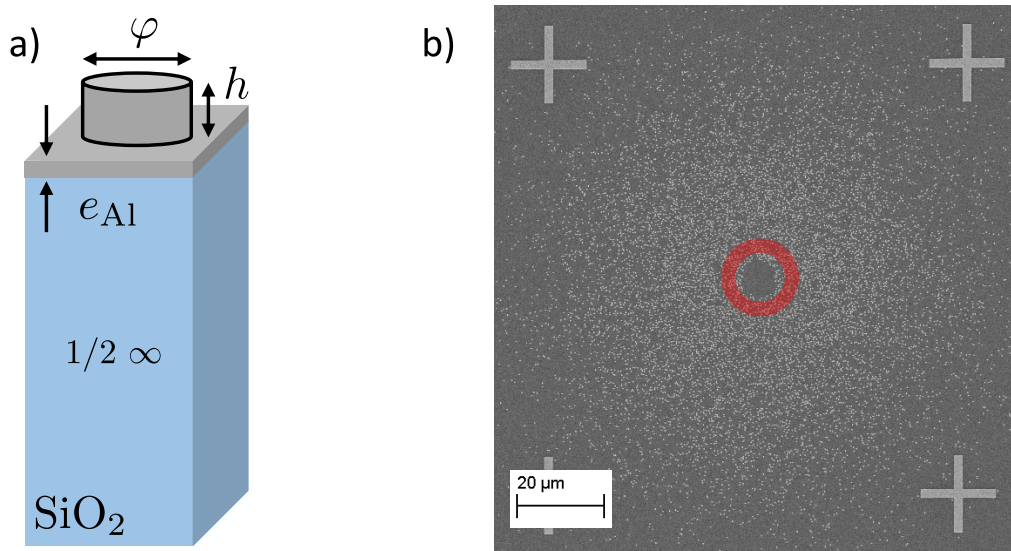


Figure 3.1 – a) Géométrie de l'échantillon : il consiste en un substrat de SiO_2 d'épaisseur semi-infinie, sur lequel a été déposé un film homogène en Al d'épaisseur $e_{Al} = 100$ nm. Les piliers sont de dimension $\varphi = 320$ nm et $h = 200$ nm. b) Images MEB de l'échantillon fabriqué à l'INSP. Le cercle rouge délimite une zone qui est volontairement laissée libre de piliers : c'est la que la pompe sera focalisée pour garantir une bonne excitation.

Puisque la densité locale de diffuseurs diminue à mesure que l'on s'éloigne du centre – à l'inverse de la distance inter piliers – la distribution Gaussienne offre l'opportunité d'exploiter la nature large bande des ondes élastiques générées via le laser ultrarapide. En effet pour atteindre le régime de localisation forte $kl \sim 1$, il est nécessaire d'adapter la distribution de piliers aux longueurs d'ondes en présence : c'est à dire agir sur le libre parcours moyen ℓ , k étant le vecteur d'onde des ondes élastiques. A défaut de connaître précisément ce dernier en fonction de la fréquence dans les milieux étudiés, on fera en sorte d'avoir des distances moyennes entre piliers de l'ordre de grandeur des longueurs d'ondes générées. Par conséquent en faisant varier localement la densité de diffuseurs, et donc la distance moyenne entre eux, c'est autant de longueurs d'onde qui vont pouvoir se localiser dans différentes zones de la distribution, comme illustré en figure 3.2. Comme la distance moyenne entre piliers croît de manière radiale, on s'attend dans ce type de distribution à la localisation des

petites longueurs d'onde proche du centre et les grandes longueurs d'ondes plus loin. De plus, cette distribution offre la possibilité d'étudier l'intensité des modes localisés en fonction de la densité locale de piliers.

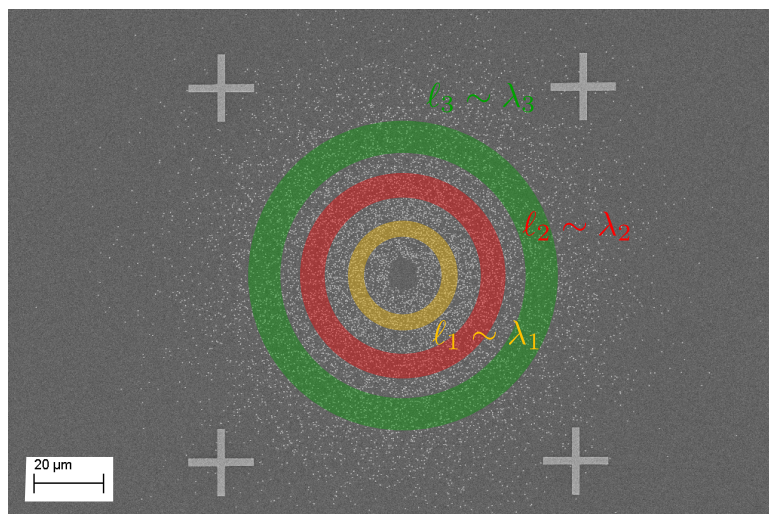


Figure 3.2 – Vision schématique de la propagation de l'onde de surface dans la distribution Gaussienne de piliers. Cette distribution exhibe une large gamme de distances moyennes, ou ces dernières sont plus ou moins équivalentes d'une couronne à l'autre. l_i et λ_i représentent les libres parcours moyens et les longueurs d'ondes acoustiques, respectivement.

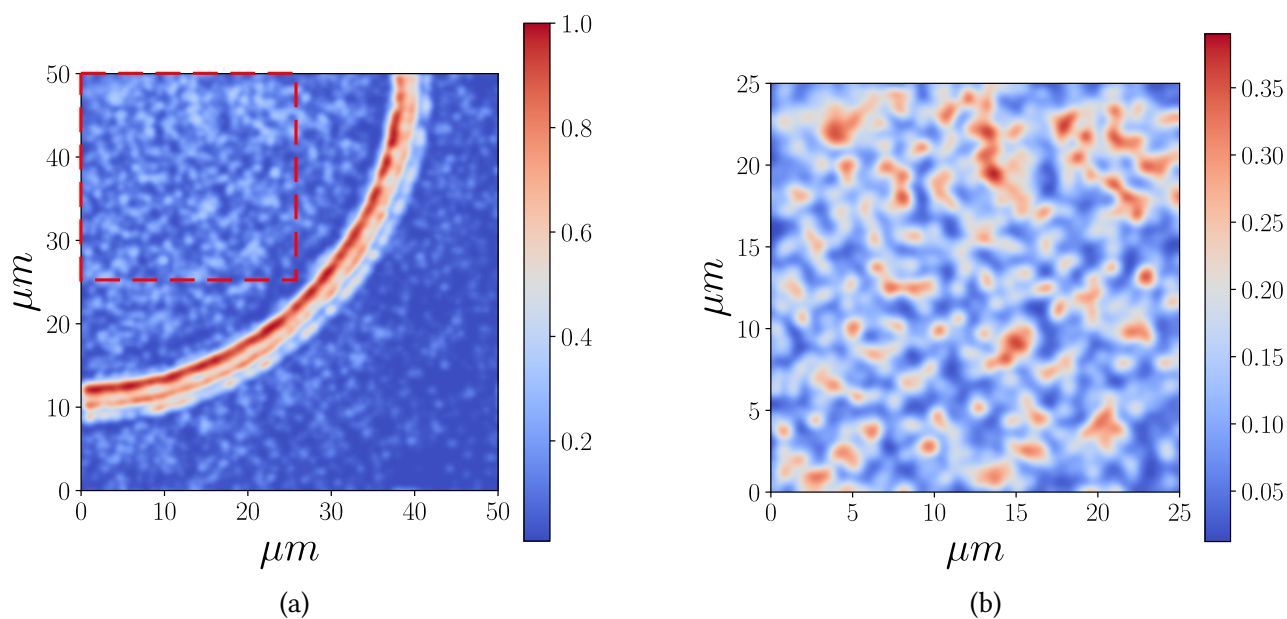


Figure 3.3 – Image de la propagation d'une onde élastique de surface sur **a)** une zone de $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ et **b)** zoom de $25 \times 25 \mu\text{m}^2$ sur la partie de la distribution qui précède le front d'onde : zone rouge pointillée. Cette image a été obtenue dans la partie inférieure droite de la distribution pour un délai pompe-sonde fixe et choisi arbitrairement. L'excitation se fait dans la partie supérieure gauche de l'image.

Bien que cette distribution n'ait pas fait l'objet d'une étude approfondie, il s'agit des premières mesures effectuées en milieu complexe avec le dispositif expérimental développé durant cette thèse.

On donne en figure 3.3(a) et 3.3(b) une image $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ de la propagation d'une onde élastique de surface dans la partie inférieure droite de la distribution Gaussienne et un zoom sur la zone qui précède le front d'onde, pour un délai pompe-sonde fixe. Ces images révèlent un grand nombre de zones qui survivent pendant plusieurs ns après le passage du front d'onde, de tailles et de formes très différentes et qui sont à relier à la topographie de la distribution traversée. Ces images suggèrent donc qu'une partie de l'énergie du front d'onde est cédée à la distribution aléatoire au cours de la propagation. Il est intéressant de noter que les variations de déplacement hors plan sont en moyenne moins importantes dans la zone en aval du front d'onde, comme le montre la figure 3.4. Deux raisons peuvent être en cause. Ces zones qui ont été excitées par le front d'onde généré 12.5 ns avant le front d'onde visible à l'image ont cessés de vibrer en raison de leur faible facteur de qualité, ou alors cela peut suggérer une influence de la densité sur l'amplitude des modes localisés¹. En raison du taux de répétition du laser fixe à 80 MHz, il est possible de mesurer le temps d'extinction des modes localisés tant que leur temps de vie est inférieur au taux de répétition, ce qui n'est plus possible pour des temps de vie supérieurs à 12.5 ns.

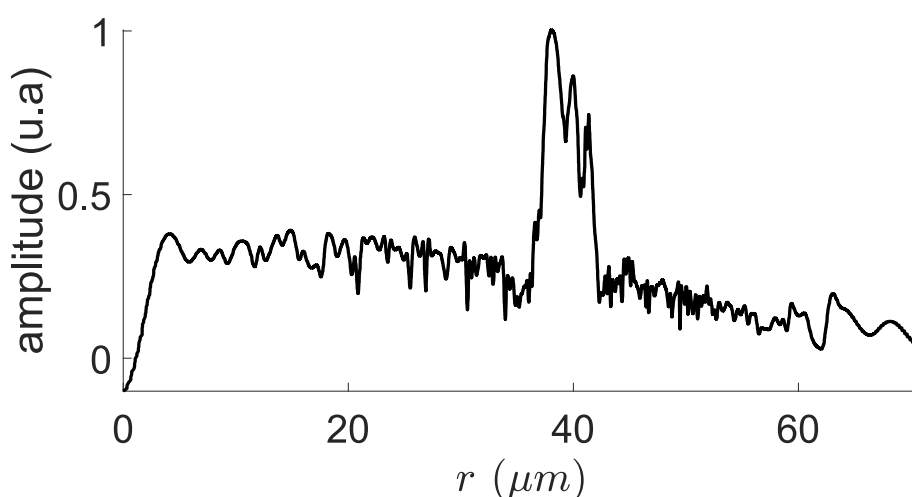


Figure 3.4 – Moyenne radiale calculée à partir de l'image 3.3(a), où r représente la distance parcourue par l'onde.

Bien que cette distribution présente des perspectives intéressantes du point de vue de l'acoustique, la suite de l'étude s'est portée plus particulièrement sur les distributions dont la répartition spatiale suit une loi de Poisson, afin de rester cohérent avec les avancées sur la partie optique du projet.

3.2 Répartition spatiale homogène de diffuseurs : distribution de Poisson

Que ce soit en acoustique ou en optique un compromis a été trouvé pour étudier les distributions dont la répartition spatiale de diffuseurs suit une loi de Poisson. Autrement dit, la probabilité de trouver un diffuseur dans une zone de l'espace préalablement définie est homogène. A la lumière de ce qui a été vu dans les parties précédentes, un certain nombre de distributions aléatoires ont été demandées à la fabrication, dont une partie du masque est en figure 3.5.

1. Dans la suite de ce manuscrit, on appellera ces zones de survibrations modes localisés, sans apporter plus de précision sur la nature de cette localisation.

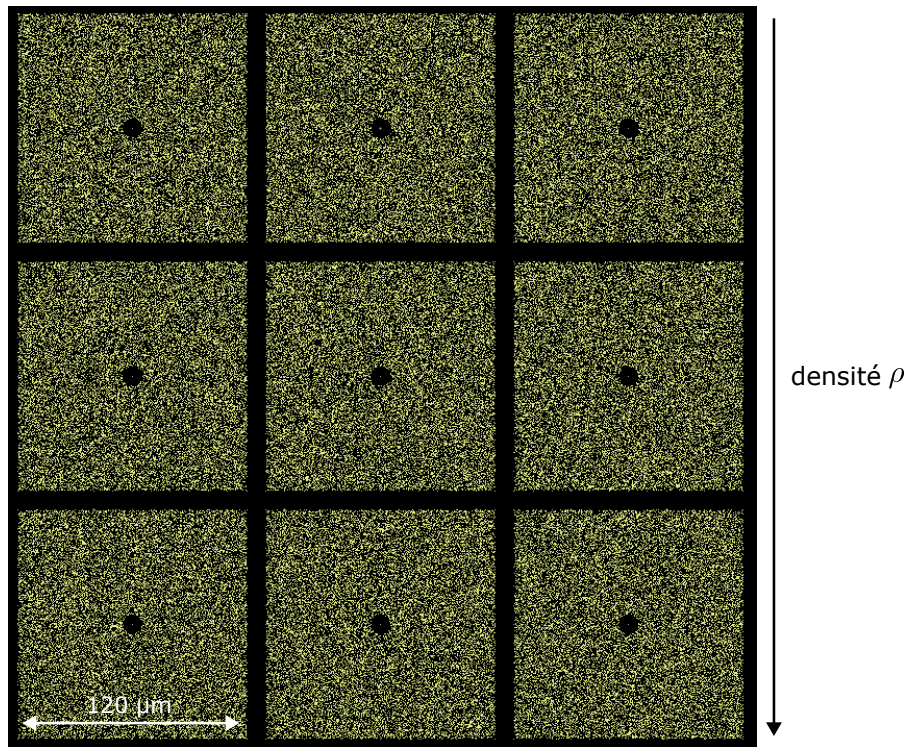
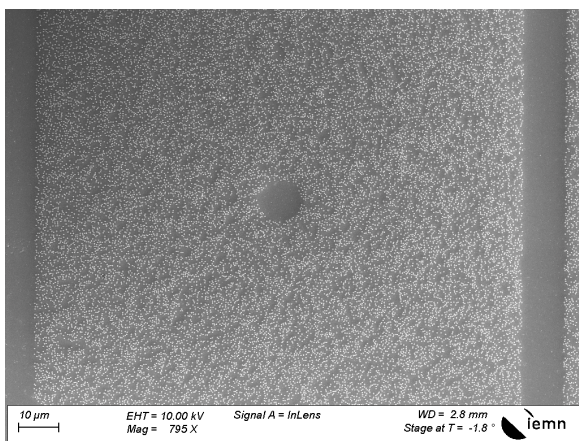
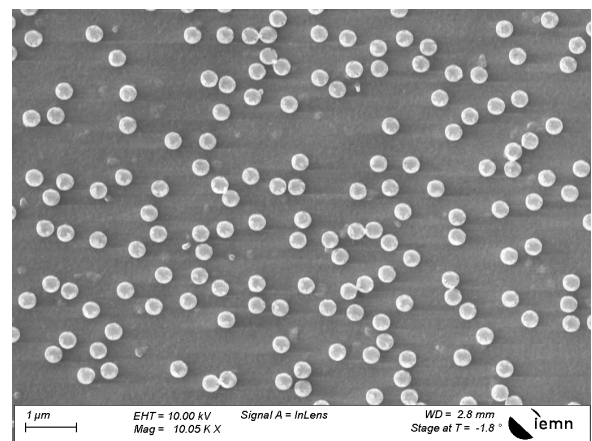


Figure 3.5 – Echantillon du masque de distributions désordonnées donné à l’IEMN de Lille pour la fabrication. Chaque cellule représente une réalisation du désordre avec une densité ρ donnée sur une zone de $120 \times 120 \mu\text{m}^2$. Des distributions avec des densités entre 9 et 12% ont été générées et répétées 36 fois chacune.



(a)



(b)

Figure 3.6 – Images MEB **a)** large champ d’une cellule de l’échantillon total. La densité correspondante est $\rho = 10\%$ sur une zone de $120 \times 120 \mu\text{m}^2$, soit ~ 20000 piliers compte-tenu de leurs dimensions. **b)** Zoom sur l’échantillon pour résoudre les différents piliers.

Sur cette image sont seulement montrées les densités les plus faibles, mais sur l’entièreté du masque, chaque densité – entre 9 et 12% dans une zone de $120 \times 120 \mu\text{m}^2$ – est répétée 36 fois, ou chaque répétition est une réalisation du désordre. C’est donc 144 échantillons désordonnés qui ont été fabriqués dont des images MEB sont données en figure 3.6(a) et 3.6(b). Les dimensions des diffuseurs sont identiques à ceux de la distribution Gaussienne, il y a donc en moyenne ~ 20000 piliers dans cha-

cune des cellules. Pour obtenir ces distributions aléatoires, les positions des piliers sont tirées une à une avec une condition de sphère dure pour éviter tout chevauchement. C'est à dire que sur chaque particule est placé un rayon d'exclusion très légèrement supérieur au rayon effectif de la particule, ce qui implique que si une position de particule franchit ce rayon d'exclusion, la position de cette dernière est recalculée. Manifestement, le rayon d'exclusion utilisé pour générer cette distribution a été légèrement trop faible puisque certains piliers ont percolé lors du processus de fabrication, mais cela représente une proportion marginale sur l'ensemble de la distribution. Dans la mesure où les piliers agissent comme des diffuseurs rigides, cela ne pose pas de problème tant que la proportion de piliers ayant percolé est faible par rapport au reste de la distribution.

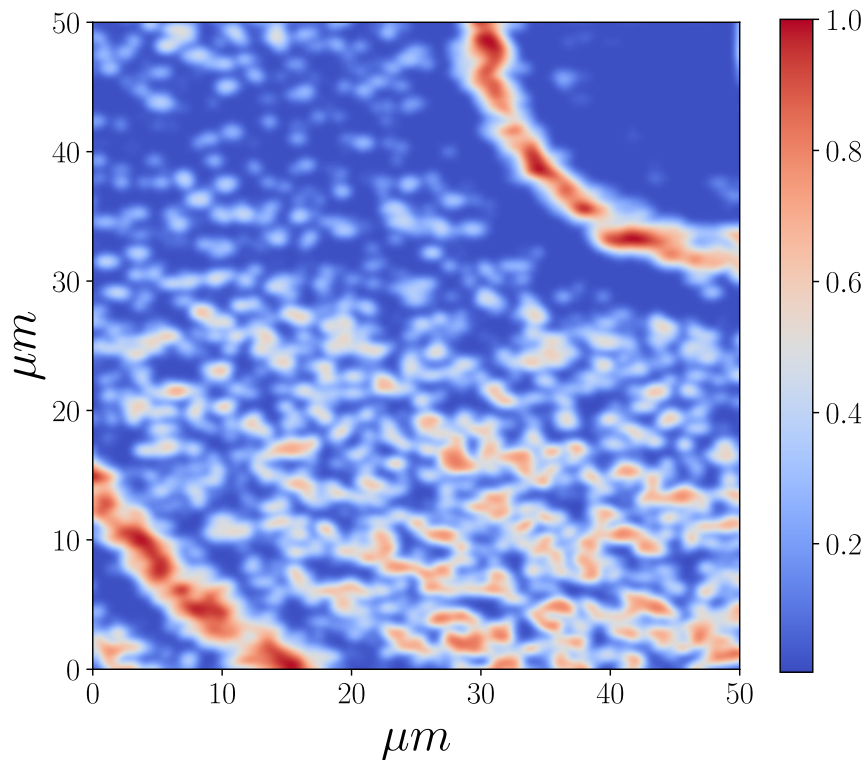


Figure 3.7 – Image $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ de la propagation de l'onde de surface au travers d'une des distributions aléatoire de densité $\rho = 10\%$ pour un délai pompe-sonde fixe, l'excitation se situe dans la partie supérieure droite. On y voit les deux fronts d'onde élastique séparés de 12.5 ns avec un grand nombre de zones en survibration entre les deux.

Comme pour la distribution Gaussienne, le point de départ consiste à faire une image globale de la propagation de l'onde élastique au travers de la distribution pour un délai pompe-sonde fixe, afin d'en évaluer le paysage vibratoire ; le résultat de la mesure est donné en figure 3.7. Cette image est particulièrement intéressante puisqu'on y retrouve les deux fronts d'ondes élastiques séparés de 12.5 ns, avec un grand nombre de zones en survibration entre, d'amplitude quasiment équivalente. Compte-tenu de la répartition homogène de diffuseur, il serait attendu que ces zones de survibration le soient aussi, ce qui n'est pas forcément évident à l'image, en particulier pour la zone supérieure. 3h sont nécessaires pour obtenir cette image qui contient 22500 points² (3 points par μm). En chacun de ces points, le faisceau sonde accumule et moyenne sur 40 mesures du lock-in qui est un proces-

2. Cette image à été obtenue après déconvolution de l'image réellement mesurée par la *point spread function* de la sonde, c'est à dire une fonction Gaussienne, en utilisant la méthode de Wiener.

sus électronique très rapide. En revanche, le déplacement des translations linéaires motorisées du système d'imagerie $4f$ est un processus bien plus lent, en particulier pour des mesures large champ puisqu'il faut déplacer la lentille de 2.5 mm pour se déplacer de $50 \mu\text{m}$ sur l'échantillon. En dépit de sa facilité d'utilisation tant son réglage est simple, il s'agit là d'une limite de taille comparée à d'autres techniques qui font appelées à des miroirs galvanométriques bien plus rapides [122]. La lenteur des moteurs combinée à l'utilisation d'un objectif $\times 100$ – avec un waist faible – monté sur une platine trois axes mécanique entraînent une légère défocalisation du faisceau sonde au cours de la mesure ; il en résulte une légère diminution de la résolution spatiale. Bien sur cette procédure a été reproduite à plusieurs reprises pour s'assurer de sa répétabilité, mais cette image, en plus de mettre en évidence des zones de survibration, illustre bien la difficulté d'une telle mesure.

3.2.1 Mesures spatiales et temporelles de l'atténuation du front d'onde cohérent

Afin de mieux comprendre les mécanismes d'absorption de l'énergie du front d'onde acoustique par la distribution aléatoire de piliers, plusieurs images peuvent être accumulées pour différents délais pompe-sonde. En transformant les images dans la base des coordonnées polaires et en faisant la moyenne de l'amplitude du signal pour plusieurs angles θ on a accès à la décroissance de l'amplitude du front d'onde cohérent en fonction de la distance parcourue, comme illustré en figure 3.8. Comme il a été vu dans le chapitre précédent l'absorption visco-élastique dans les substrats utilisés est nulle (ou quasiment nulle) sur les distances de propagation étudiées, c'est pourquoi l'amplitude est multipliée par \sqrt{r} . En reportant l'amplitude du front d'onde cohérent, il apparaît que cette dernière décroît suivant une loi quadratique, comme le montre la bonne superposition des données expérimentales avec le fit en figure 3.9.

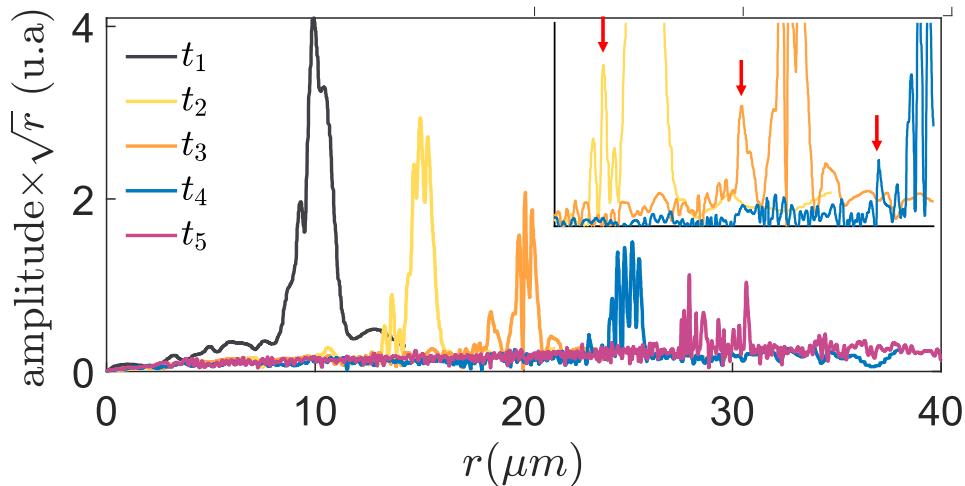


Figure 3.8 – Moyennes radiales multipliées par \sqrt{r} sur les images de réflectivité obtenues pour différents délais pompe-sonde notés t_{1-5} en fonction de la distance de propagation r dans une distribution aléatoire de densité $\rho \sim 10\%$. On donne en encart un zoom des résultats pour les délais t_1 , t_2 et t_3 qui mettent en évidence l'existence d'un second mode qui se propage moins rapidement, et repéré par les flèches rouges.

En mettant ce dernier résultat en lien avec l'image 3.7, il est tentant de conclure que cette perte d'énergie est uniquement liée à l'absorption par la distribution aléatoire. Ceci-étant, compte-tenu

du milieu de propagation, une partie non nulle de l'énergie devrait être perdue dans le volume en raison de conversion de modes. En l'état, il n'existe actuellement aucun modèle permettant de quantifier cette perte d'énergie liée à la conversion de l'onde de Rayleigh en onde de volume à chaque diffuseur rencontré. Cette décroissance quadratique de l'amplitude du front d'onde cohérent est donc la résultante de l'énergie absorbée par le milieu complexe et de l'énergie rayonnée dans le volume, mais il est impossible de dissocier ces deux effets.

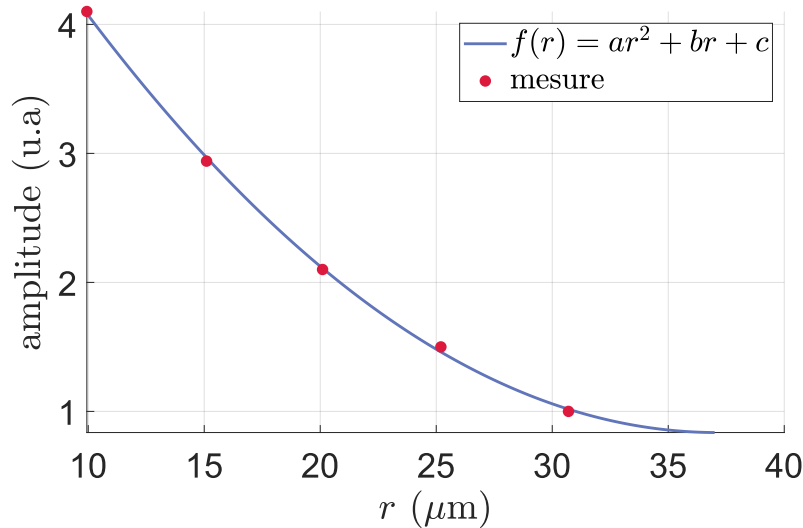


Figure 3.9 – Fit de l'amplitude du front d'onde cohérent mesurée en fonction de la distance de propagation par une loi quadratique.

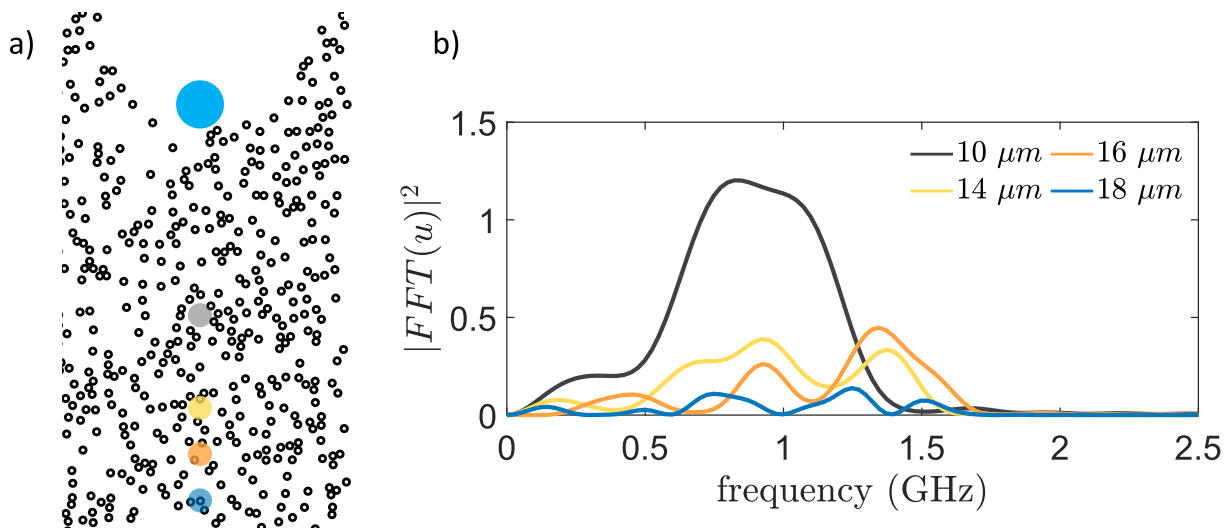


Figure 3.10 – a) Configuration expérimentale pour les mesures temporelles dans une distribution de densité $\rho \sim 10\%$. La pompe est fixe et c'est la sonde qui est déplacée sur l'échantillon pour augmenter la distance pompe-sonde d'une mesure à l'autre. b) spectres calculés à partir du déplacement hors plan mesuré au point correspondant.

A défaut de pouvoir les dissocier, une mesure de la largeur à mi-hauteur de l'amplitude des moyennes radiales permet de constater que l'étendue spatiale du front d'onde tend à diminuer au cours de la propagation. En effet, $\text{FWHM}_{t_1} = 1.31 \mu\text{m}$, $\text{FWHM}_{t_2} = 1.05 \mu\text{m}$, $\text{FWHM}_{t_3} = 0.94 \mu\text{m}$,

signe que c'est la distribution aléatoire de piliers qui absorbe effectivement une partie de l'énergie du front d'onde. Dans le cas d'une distribution de Poisson, la répartition des distances moyennes entre les piliers est distribuée aléatoirement dans l'espace, donc plus le front d'onde se propage, plus les différentes longueurs d'ondes générées vont pouvoir se localiser. En plus de donner une information sur la décroissance de l'amplitude du front d'onde au cours de sa propagation, cette mesure révèle l'existence d'un second mode qui se propage légèrement plus lentement que le mode principal, ce dernier est mis en évidence par les flèches rouges en encart. Comme vu précédemment, le mode principal se propage à une vitesse $v_1^{SiO_2} = 3800$ m/s, contre $v_2^{SiO_2} = 3610$ m/s pour le second.

Afin de confirmer l'absorption de l'énergie du front d'onde par la distribution aléatoire, une mesure de temps de vol a été effectuée pour différentes distances pompe-sonde, la configuration expérimentale d'une telle mesure est donnée en figure 3.10 a). Ici, la pompe est placée directement en entrée de la distribution de piliers et reste fixe d'une mesure à l'autre tandis que la sonde en est progressivement éloignée. La comparaison des TFs des signaux correspondant permet de mettre en évidence la diminution de l'amplitude du contenu spectral associée à la redistribution de l'énergie du front d'onde au cours de sa propagation.

3.2.2 Mesures de la dynamique vibratoire de la métasurface

Pour avoir une meilleure appréciation de la répartition de l'énergie dans la distribution, on peut superposer la position des piliers à l'image champ large en figure 3.11.

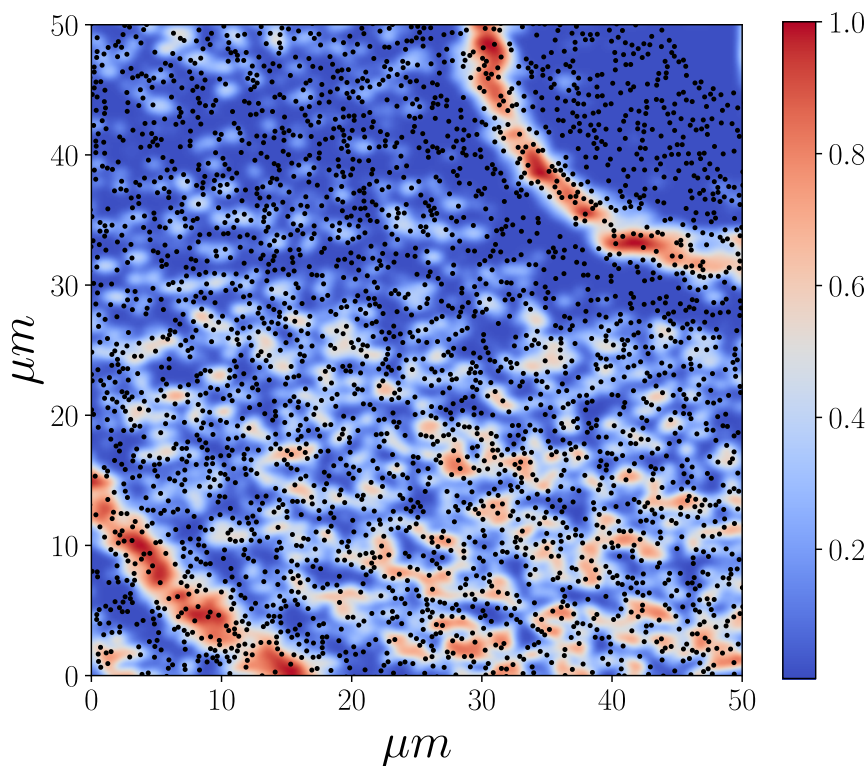


Figure 3.11 – Image $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ de la propagation de l'onde acoustique de surface au travers d'une des distributions aléatoire de densité $\rho = 10\%$ pour un délai pompe-sonde fixe, l'excitation se situe dans la partie supérieure droite. Les points noirs superposés à l'image représentent la position des diffuseurs de la distribution correspondante.

Il apparaît que la majorité des zones en survibration se situent dans des clairières libres de piliers de quelques μm , formées lors de la construction de la distribution aléatoire³. Compte-tenu de la dimension micrométrique du faisceau sonde, la suite de cette étude s'est naturellement portée sur la dynamique vibratoire de ces zones de survibration individuellement les unes des autres. Grâce au système $4f$ il est assez aisé de contrôler la distance entre pompe et sonde. De plus, l'échantillon étant monté sur une translation trois axes à butées différentielles, la pompe et la sonde peuvent être déplacées conjointement à loisir dans les différentes zones d'intérêt. Un microscope à été implémenté au dispositif expérimental afin de pouvoir visualiser la position de la pompe et de la sonde directement sur l'échantillon. Une fois les deux faisceaux placés, il suffit de balayer la LAR pour accéder à la dynamique vibratoire de la zone libre. Dans la suite de ce manuscrit, nous utiliserons par abus de langage le terme de cavité pour désigner ces zones libres de piliers, mais cela ne fait en aucun cas référence aux cavités dans les cristaux phononiques ou photoniques. Parmi toutes les distributions aléatoires de piliers et zones libres disponibles, la première étape a consisté à étudier des cavités circulaires en raison de leur géométrie simple, comme mis en évidence sur les figures 3.12(a) et 3.12(b). Pour cette mesure, pompe et sonde sont séparées de $10 \mu\text{m}$, avec la sonde positionnée au milieu de la cavité, dont les bords sont délimités par le cercle rouge. A la différence des mesures précédentes, l'excitation se fait directement dans la distribution de piliers, ce qui n'a finalement pas vraiment d'influence sur la qualité du signal généré⁴.

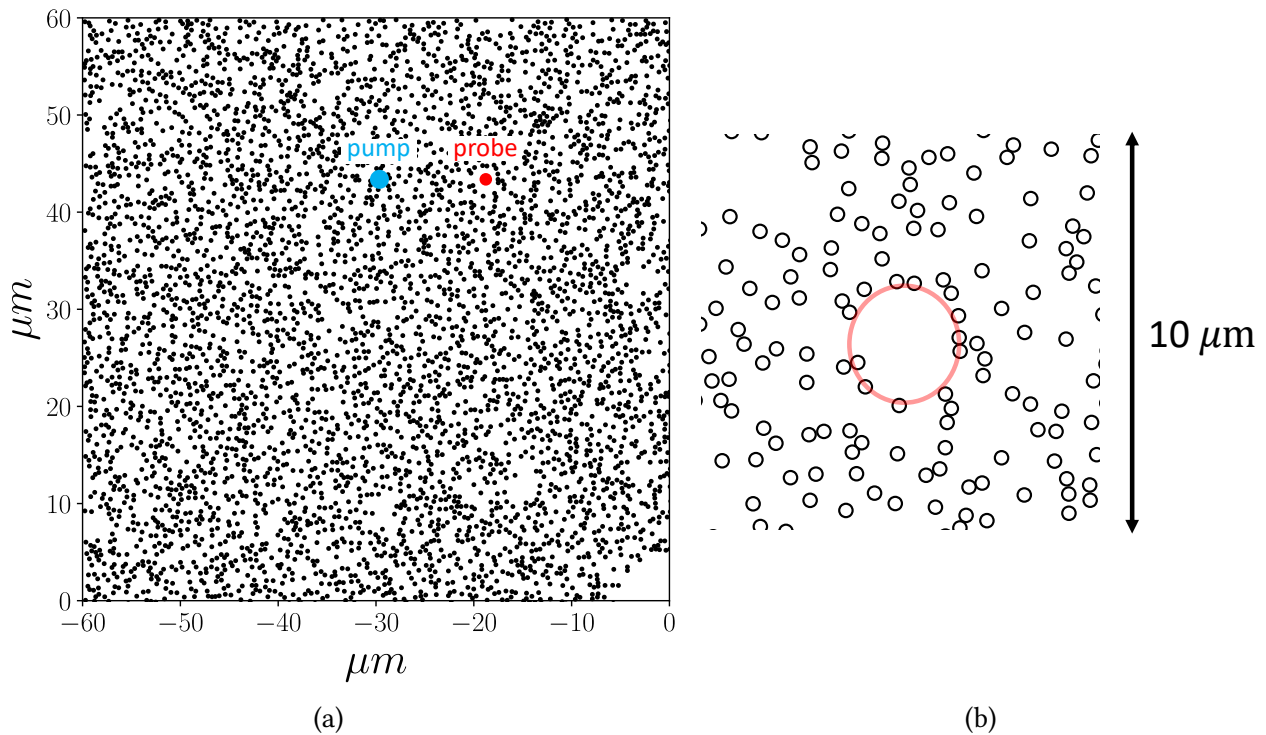


Figure 3.12 – a) Distribution de piliers sur une zone de $60 \times 60 \mu\text{m}^2$, mettant en évidence la position de la pompe et de la sonde pour la mesure, de densité $\rho \sim 10\%$. b) Zoom sur la cavité (délimitée par le cercle rouge) sur laquelle la mesure a été effectuée. La distance pompe-sonde est de $10 \mu\text{m}$.

3. Il ne s'agit pas de défauts qui ont volontairement été créés en enlevant un pilier à la distribution comme cela peut-être le cas pour étudier des modes de cavité dans un cristal phononique par exemple.
4. Le faisceau pompe mesure $\sim 2 \mu\text{m}$ de diamètre, et est donc très grand par rapport à la dimension caractéristique des piliers. En la plaçant sur plusieurs piliers, cette dernière voit simplement une légère augmentation de l'épaisseur effective d'Al.

On donne en figure 3.13(a) le résultat d'une telle mesure 0.5 ns après le passage du front d'onde dans la cavité d'intérêt, avec l'amplitude normalisée de la partie réelle de la transformée de Fourier du signal correspondant et les longueurs d'onde associées en figure 3.13(b) et 3.13(c).

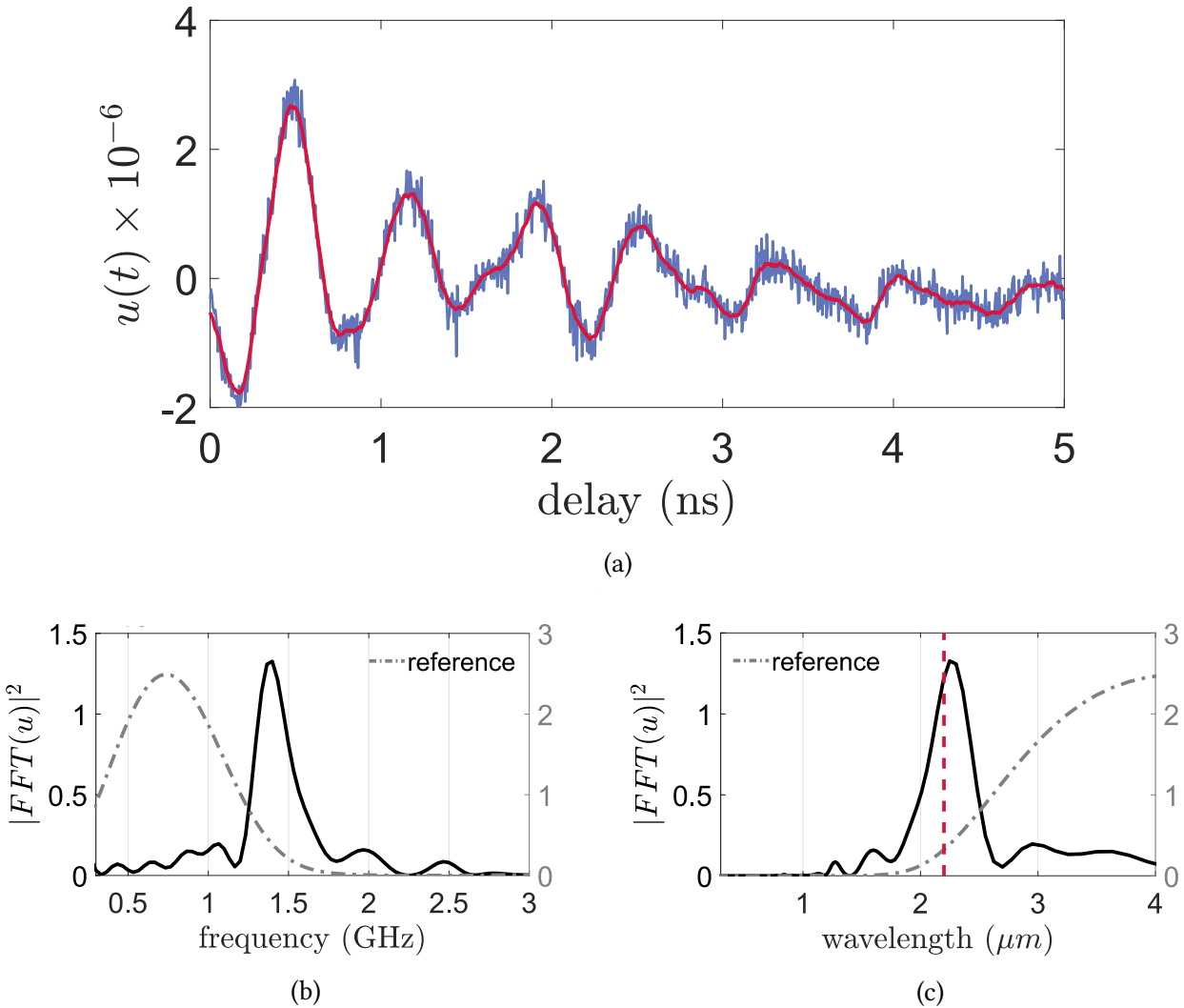


Figure 3.13 – a) Déplacement hors plan $u(t)$ mesuré au centre de la cavité en fonction du délai pompe–sonde dans la configuration expérimentale de la figure 3.12(a), soit 0.5 ns après le passage du front d'onde dans la cavité. b) et c) Amplitude de la partie réelle de la transformée de Fourier du signal et longueurs d'ondes correspondantes, respectivement. La référence désigne le contenu fréquentiel pour des mesures effectuées sur un simple film mince en Al (sans les piliers). Le trait rouge pointillé désigne le diamètre moyen de la cavité.

On peut constater que les survibrations dans la cavité persistent pendant environ 5 ns après le passage du front d'onde avec un certain taux d'amortissement inhérent au facteur de qualité de cette dernière. Il apparaît maintenant clair au vu de ces derniers résultats que l'énergie perdue par le front d'onde au cours de sa propagation est principalement cédée à ces cavités. La transformée de Fourier de ce signal temporel permet de montrer que malgré la largeur du contenu spectral de l'onde excitée (référence mesurée dans un film mince), seule une petite partie de l'énergie qui arrive dans la cavité reste piégée, à la fréquence centrale de 1.4 GHz. Même si cette fréquence est très peu présente dans le spectre initial, il s'agit de la fréquence principale dans la cavité, mettant en évidence

un phénomène résonant, tant son amplification est importante. Bien que la mesure de la figure 3.8 montre que l'onde perd de l'énergie au cours de sa propagation au travers de la distribution aléatoire de piliers, celle-ci n'est pas de nature visco-élastique en vertu des mesures en film mince et ce qui est confirmé par le calcul des courbes de dispersion (2.12(a) et 2.11(a)). Dans ce cas, il est possible de calculer avec une bonne approximation les longueurs d'onde correspondantes dans la cavité par la simple connaissance de la vitesse de l'onde. Ce calcul révèle que la longueur d'onde principale qui se trouve piégée est sensiblement comparable au diamètre moyen de la cavité⁵. Cet effet se retrouve systématiquement puisque, comme montré en figure 3.14, plus la dimension moyenne de la cavité est faible, plus le contenu fréquentiel des modes localisés à l'intérieur sera important. En plus d'avoir un effet sur la fréquence de résonance, les dimensions caractéristiques de la cavité ont une influence directe sur la largeur du contenu fréquentiel piégé. Si cela n'est pas visible sur les deux premières cavités tant leurs dimensions sont proches, le contenu fréquentiel mesuré dans la troisième cavité s'avère presque deux fois plus important puisque l'on passe de FWHM ~ 0.1 GHz à FWHM ~ 0.18 GHz.

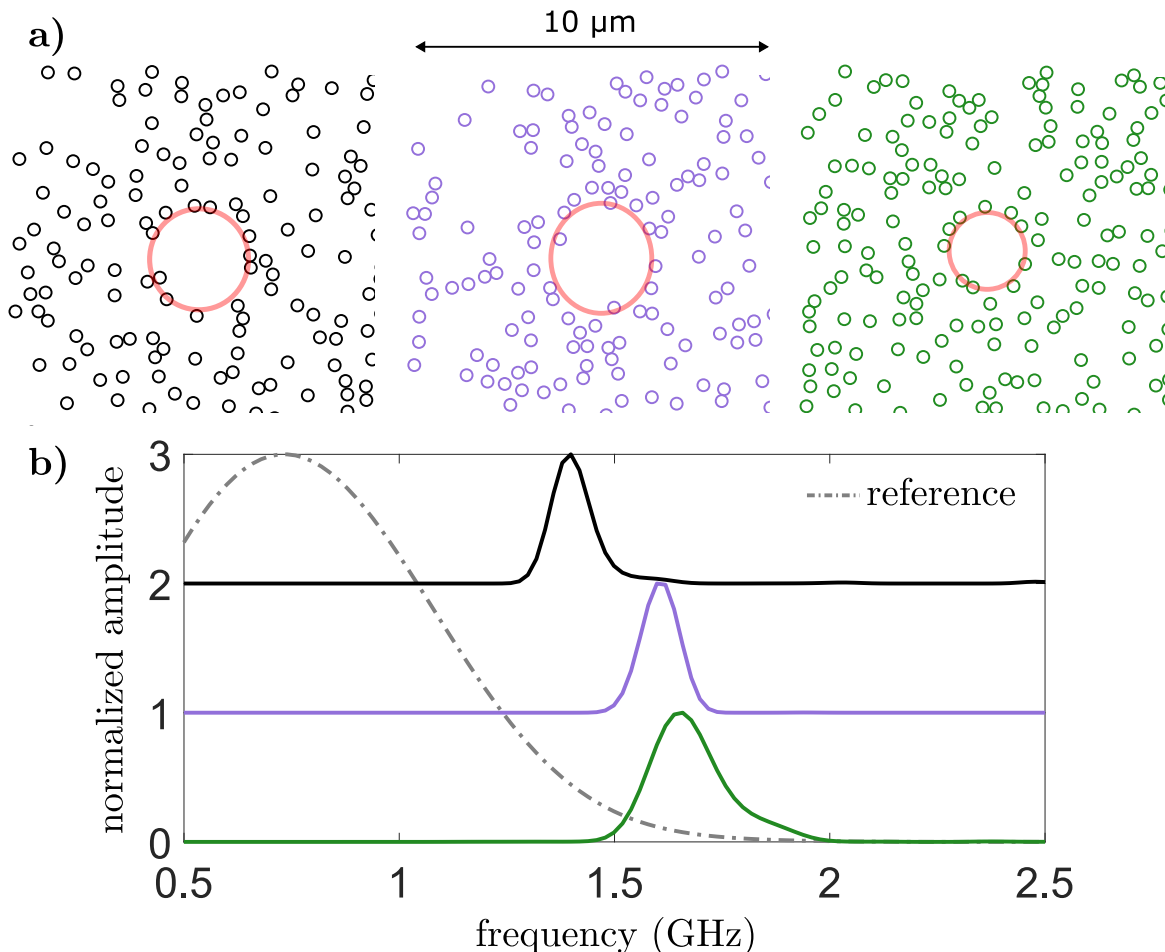


Figure 3.14 – Mesure de la dynamique vibratoire de **a)** trois cavités différentes (délimitées par les cercles rouges) de diamètres moyens $2.8 \mu\text{m}$, $2.5 \mu\text{m}$, et $1.9 \mu\text{m}$. **b)** Comparaison des parties réelles des transformées de Fourier des signaux mesurés dans les trois cavités.

Cet effet à déjà été rapporté dans la littérature pour des micro-ondes à quelques GHz comme le

5. Le diamètre moyen a été obtenu en calculant l'écart entre la position du centre des piliers qui bordent la cavité et le centre de cette dernière, multiplié par deux.

montre la figure 3.15. C'est la taille finie de la cavité qui influence la largeur du contenu spectral puisque des fuites d'énergie sont possible aux bords. Cette perte d'énergie peut-être qualitativement décrite par la relation entre la largeur spectrale du mode Γ_{leak} , la longueur de localisation ξ_{loc} , et la distance R entre le centre du mode et les bords de la cavité : $\Gamma_{\text{leak}} \propto \exp(-2R/\xi_{\text{loc}})$. En réduisant la taille de la cavité, les auteurs observent une augmentation de la largeur du contenu fréquentiel. Cette décroissance exponentielle de l'amplitude aux bords de la cavité indique que les modes observés sont issus d'interactions multiples entre les diffuseurs menant à des interférences constructives, et qu'il ne s'agit pas de simples modes dues à des défauts dans la distribution ou alors à de simples modes de cavités.

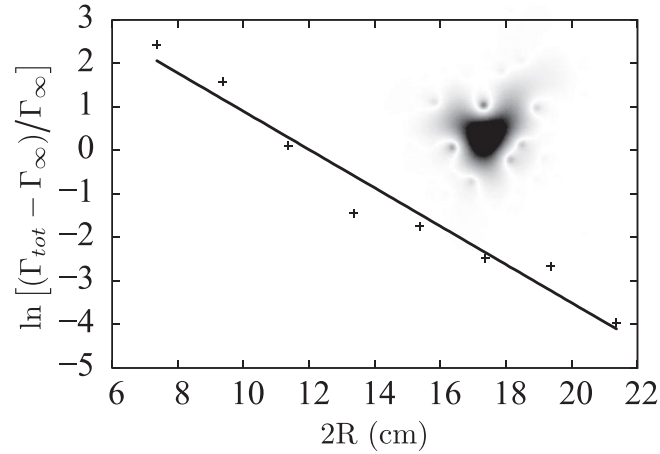


Figure 3.15 – Évolution de la largeur du contenu fréquentiel d'une cavité en fonction de sa taille pour le mode donné en encart. Γ_{∞} quantifie l'influence des pertes ohmic sur la largeur du contenu spectral : $\Gamma_{\text{tot}} = \Gamma_{\text{leak}} + \Gamma_{\infty}$. La ligne pleine correspond au meilleur ajustement des points expérimentaux. Figure extraite de [96].

Les spectres obtenus jusqu'à maintenant sont tous issus d'une mesure effectuée dans une seule direction par rapport à la cavité étudiée. S'il existe bel et bien une correspondance entre la longueur d'onde des modes piégés et les dimensions caractéristiques de la cavité, le contenu fréquentiel au point étudié doit aussi dépendre du paysage traversé par l'onde entre la génération et la détection. De plus, tous les résultats précédents ont été obtenus sur des mesures dans des cavités à géométrie circulaire, et qui possèdent donc un mode principale de vibration. On se propose donc dans la suite d'étudier une cavité de dimensions caractéristiques $2 \times 5 \mu\text{m}^2$ à géométrie rectangulaire et de mesurer le contenu fréquentiel piégé en fonction de la direction d'excitation. La géométrie de la cavité rectangle ainsi que les mesures de la dynamique vibratoire 0.5 ns après le passage du front d'onde sont données en figure 3.16. Cette fois-ci les survibrations persistent pendant 4 ns sans vraiment s'atténuer, mais en l'état il n'est pas possible de savoir si cette cavité vibre pendant toute la durée entre deux fronts d'onde ou non. Quoiqu'il en soit, chaque cavité possède un facteur de qualité différent, qui peut-être influencé par la surface de cette dernière, mais aussi par le nombre de piliers qui la borde, ainsi que par la direction d'excitation pour des cavités asymétriques. Ici la composante principale du mode excité est à la fréquence $f \sim 1.65 \text{ GHz}$, qui correspond à une longueur d'onde principale $\lambda \sim 1.94 \mu\text{m}$, on retrouve donc encore une fois cette correspondance entre longueur d'onde piégée et dimension de la cavité, au moins pour un des deux axes principaux de cette dernière. En superposant le contenu spectral présent dans la cavité au contenu de l'onde qui la traverse, il apparaît une amplification à la fréquence de résonance de la cavité, due au va et vient de l'onde qui reste piégée à l'intérieur. Par ailleurs, en répétant cette même mesure mais avec une excitation

suitant la plus grande dimension de la cavité, on constate que même si le mode principal est excité, son temps vie s'en trouve affecté : le mode est moins bien piégé puisqu'il persiste moins longtemps.

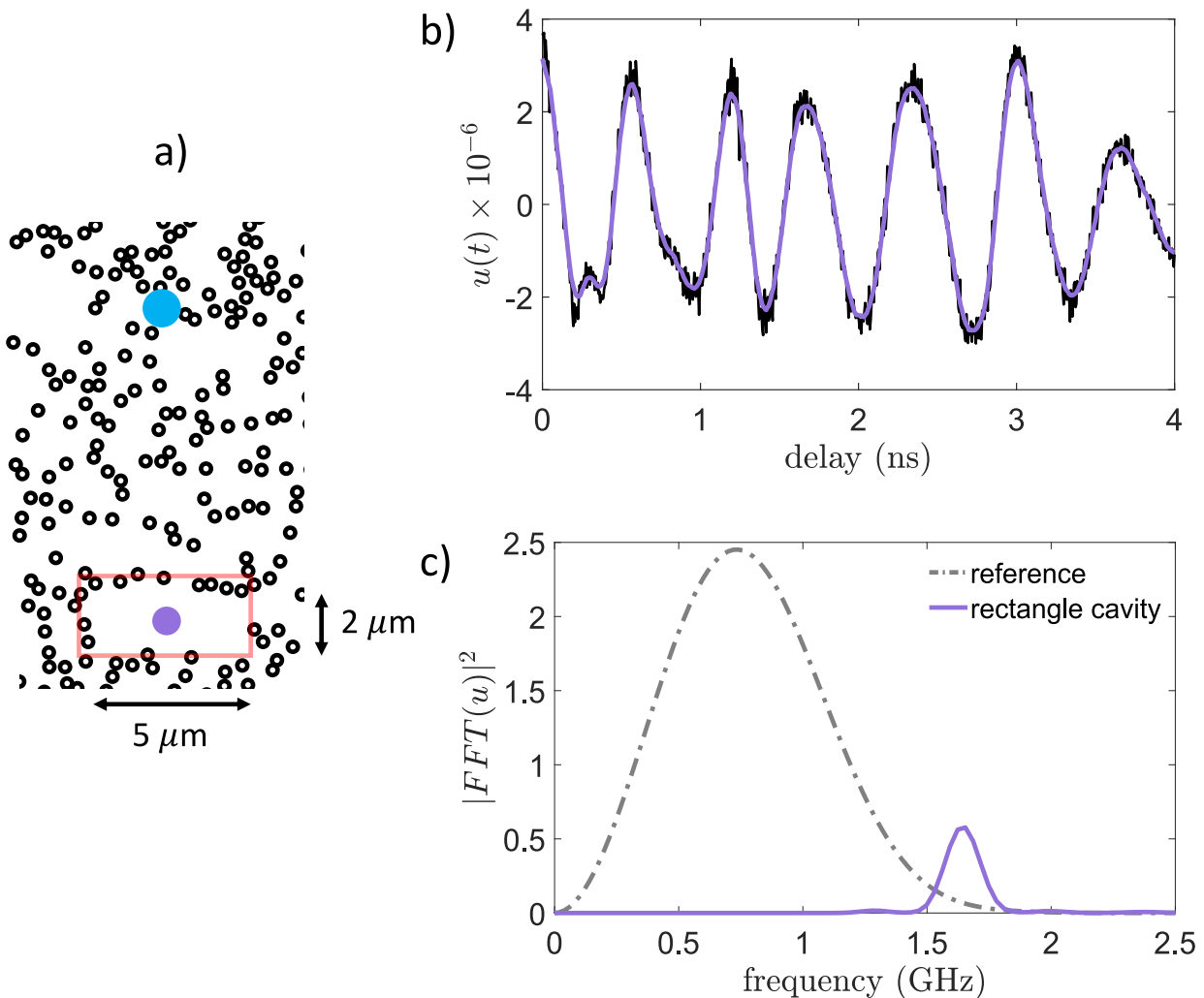


Figure 3.16 – a) Configuration expérimentale de la mesure, la pompe et la sonde sont distantes de $10 \mu\text{m}$. La sonde est placée dans une cavité rectangulaire, mise en évidence par le rectangle rouge, de dimension $2 \times 5 \mu\text{m}^2$. b) Mesure du déplacement hors plan 0.5 ns après le passage du front d'onde dans la cavité et c) amplitude de la partie réelle de la transformée de Fourier.

3.2.3 Influence de la direction d'excitation sur le contenu spectral d'une cavité asymétrique

Afin de mettre en évidence l'influence de la direction d'excitation sur le contenu spectral des modes piégés, on place l'excitation suivant les quatre points cardinaux de la cavité avec la sonde toujours placée au centre; la distance pompe-sonde est fixée à $d = 10 \mu\text{m}$ et reste toujours la même d'une mesure à l'autre, comme illustré en figure 3.17 a). La comparaison de la partie réelle des spectres en figure 3.17 b) avec les longueurs d'onde correspondantes 3.17 c) révèle en effet que la fréquence principale des modes piégés dans la cavité varie légèrement suivant la direction d'excitation. Elles mettent en évidence deux fréquences de résonance $f_{\text{ns}} \sim 1.6 \text{ GHz}$ pour la direction orthogonale et $f_{\text{ew}} \sim 1.4 \text{ GHz}$ pour la direction parallèle à la dimension principale. Outre cette différence dans

les fréquences de résonance mesurées, les spectres suggèrent la présence d'autres modes en plus du mode principal, contrairement à ce qui a été vu dans les cavités à symétrie circulaire jusqu'à maintenant.

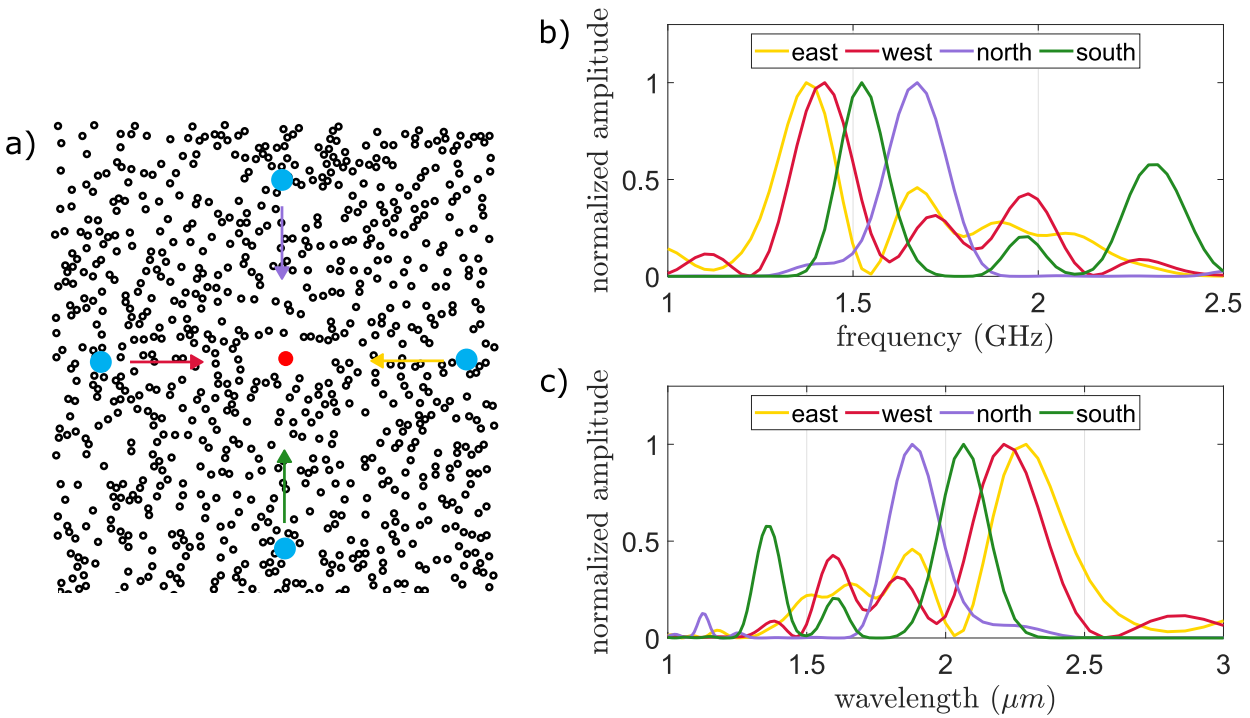


Figure 3.17 – a) Configuration expérimentale de la mesure : la pompe est positionnée successivement au nord, au sud, à l'est et à l'ouest de la cavité, avec la sonde au centre pour mesurer les variations de réflectivités dans la cavité rectangulaire. La distance pompe–sonde reste la même d'une mesure à l'autre et est de $d = 10 \mu\text{m}$. b) Comparaison des parties réelles des transformés de Fourier normalisés et c) longueurs d'ondes correspondantes pour les différentes directions.

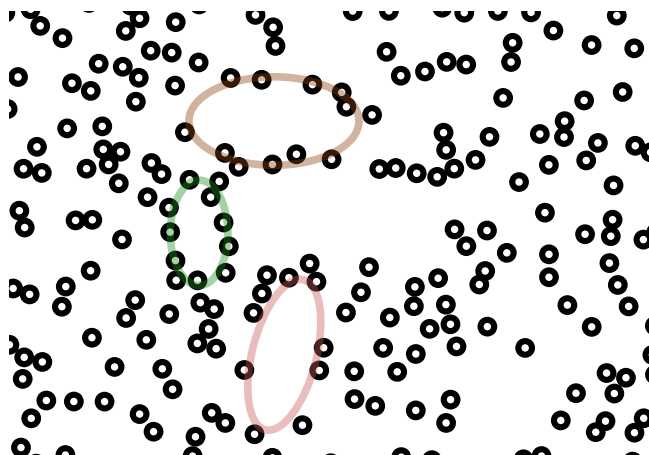


Figure 3.18 – Mise en évidence de sous-cavités de dimensions comparables à la plus petite dimension de la cavité rectangulaire.

En plus de sa forme géométrique simple, cette cavité s'avère particulièrement intéressante en raison de la distribution qui l'entoure, puisque plusieurs cavités de dimensions comparables se situent

à ses extrémités, ces zones d'intérêts sont mises en avant en figure 3.18. En raison de leurs dimensions, ces « sous-cavités » apparaissent comme de bons candidats pour piéger certaines longueurs d'onde présentes dans le front d'onde, et en particulier certaines qui pourraient être piégées dans la cavité rectangle en aval. Des mesures dans ces sous-cavités ont été effectuées et comparées aux mesures dans la cavités rectangle en figure 3.19 et 3.20. Dans le premier cas, il est intéressant de remarquer que la fréquence de résonance de la cavité rectangle est presque inexistante dans la cavité située en aval, ce qui constitue une réelle preuve que les longueurs d'onde correspondantes restent effectivement piégées. Ceci est à mettre en lien avec les résultats de la figure 3.16 puisque les vibrations ne s'amortissent pas ou très peu sur 4 ns, il n'est donc pas étonnant de ne pas retrouver ces fréquences plus loin.

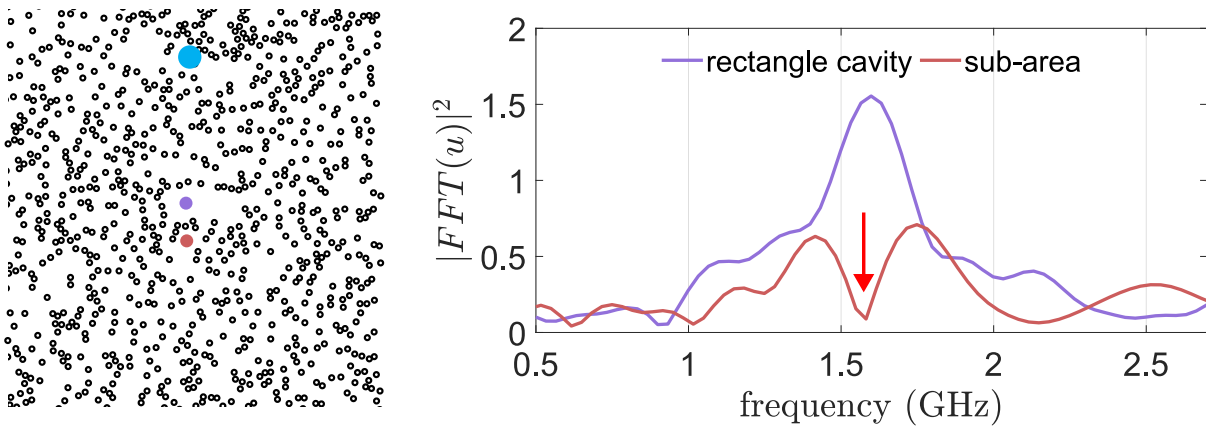


Figure 3.19 – a) Configuration expérimentale de la mesure et b) comparaison des amplitudes de la partie réelle des transformées de Fourier correspondant aux mesures. La flèche rouge indique la fréquence de résonance de la cavité rectangle.

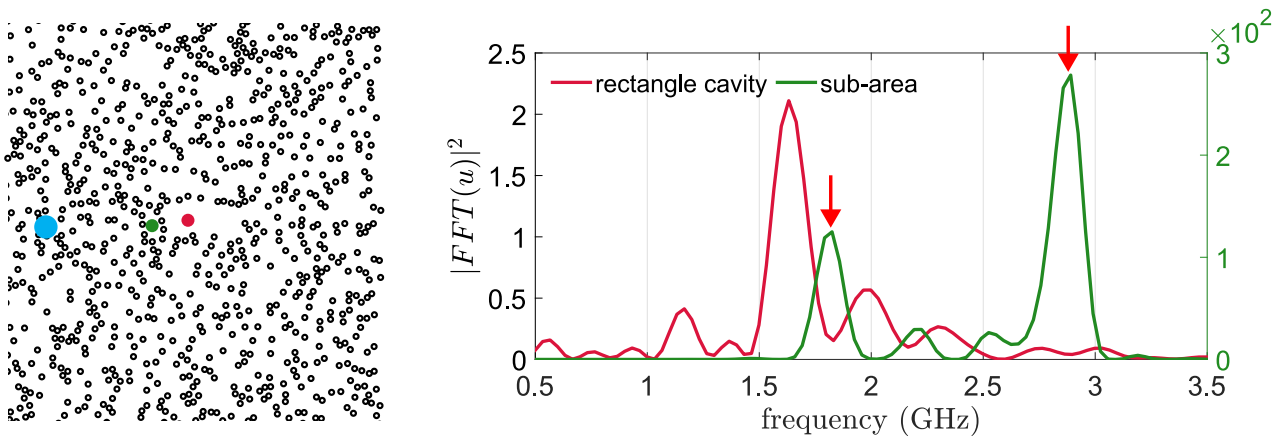


Figure 3.20 – a) Configuration expérimentale de la mesure et b) comparaison des amplitudes de la partie réelle des transformées de Fourier correspondant aux mesures. Les flèches rouges indiquent les fréquences de résonance de la cavité en amont de la cavité rectangle, dont les longueurs d'ondes correspondent à ses dimensions latérales.

C'est exactement le même comportement que l'on retrouve pour une excitation à l'ouest puisque cette fois-ci, c'est la sous-cavité en amont qui filtre le contenu fréquentiel de l'onde de telle sorte que l'on ne retrouve pas la fréquence de résonance de cette dernière dans la cavité rectangle. Il faut

noter que cette sous-cavité est un filtre très efficace tant la dynamique des modes mesurés dans les deux cavités est différente : il y a deux ordres de grandeur d'écart. Contrairement aux autres cavités étudiées jusqu'à maintenant, deux modes associés aux dimensions latérales de la cavité sont visibles, dont le mode dans la direction d'excitation est plus intense. Concernant la dernière sous-cavité située au dessus de la cavité rectangle, la mesure révèle qu'il n'y a pas vraiment de fréquence de résonance caractéristique, signe d'un très mauvais facteur de qualité.

Une manière de mieux se rendre compte de la dynamique vibratoire de la cavité rectangle et de ses alentours consiste à combiner les mesures temporelles et spatiales. On représente en figure 3.21 a), la configuration expérimentale pour les deux mesures avec b) la mesure temporelle sur l'ensemble de la LâR sur laquelle on distingue l'onde de surface et les survibrations liées à son passage dans la cavité. Bien que la mesure temporelle se fasse uniquement en un point de la cavité, elle reste représentative des vibrations environnantes. Les trois images aux temps t_1 , t_2 , et t_3 données en figure c) permettent d'avoir une idée plus précise du paysage que l'image donnée en figure 3.11. Là où l'image globale met en évidence des zones de survibrations qui sont principalement situées sur des zones libres de piliers, mais aussi sous des ensembles de piliers, ces dernières images montrent que toutes les zones qui se situent sous les piliers ne vibrent pas ou très peu. De plus, ces images montrent que les cavités ne vibrent pas en phase, ce qui n'a rien d'étonnant compte-tenu des différentes fréquences de résonance suivant leurs dimensions. En vertu de ces derniers résultats, on comprend bien que le paysage vibratoire de l'image large champ obtenue en figure 3.7 aurait été bien différent si la mesure avait été effectuée à un délai pompe-sonde différent.

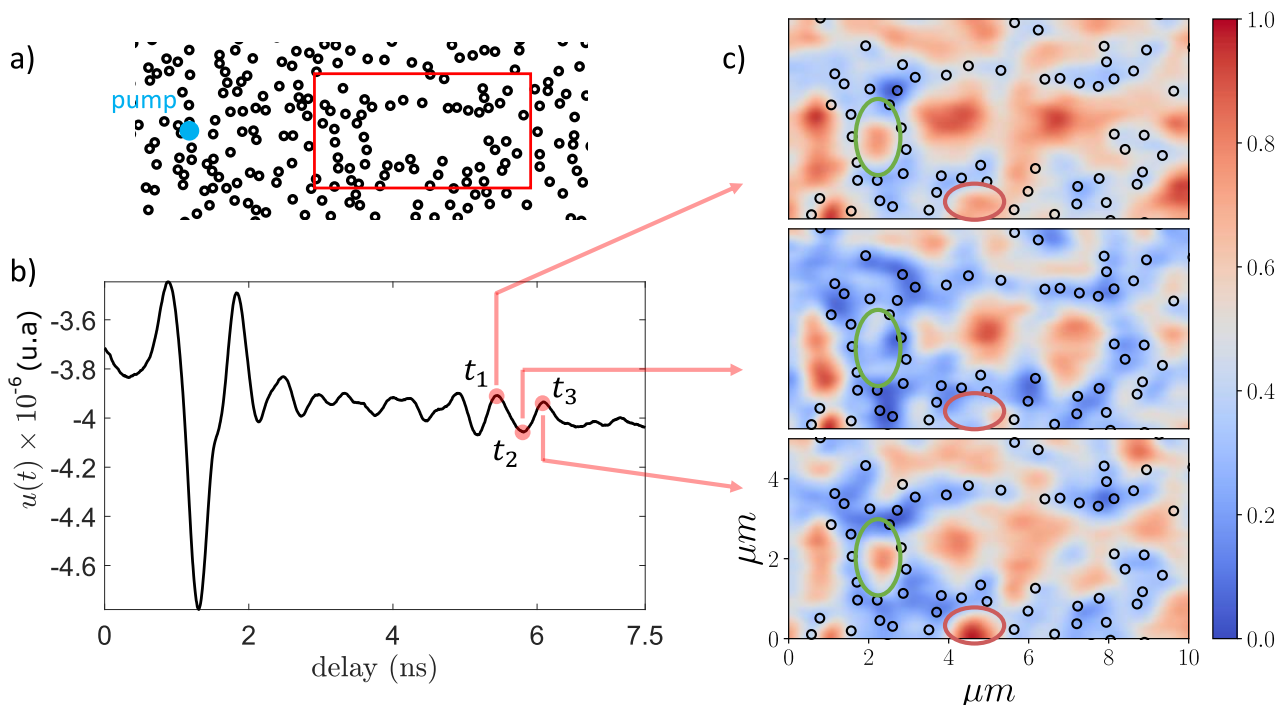


Figure 3.21 – a) Configuration expérimentale de la mesure, b) mesure de la dynamique vibratoire au centre de la cavité rectangle avec l'onde de Rayleigh et les survibrations qui la suivent. c) Images de $5 \times 10 \mu\text{m}^2$ de la cavité rectangle et ses alentours pour trois instants différents t_1 , t_2 et t_3 après le passage du front d'onde. Les cercles rouge et vert repèrent les sous-cavités étudiées en figure 3.19 et 3.20.

3.3 Résultats numériques et comparaison avec les résultats expérimentaux pour la cavité rectangle

Afin de corroborer les résultats expérimentaux, et en particulier sur l'effet de la direction d'excitation sur les modes mesurés dans la cavité rectangle, des calculs COMSOL ont été réalisés sur la structure d'intérêt. En raison de la complexité des échantillons étudiés, un maillage très raffinés est nécessaire rendant les calculs extrêmement coûteux en terme de mémoire. Pour palier à ce problème, les calculs se sont limités à des géométries contenant ~ 150 piliers. Dans l'objectif de se rapprocher au maximum de la configuration expérimentale, l'excitation a été placée à $\sim 10 \mu\text{m}$ des points de mesure qui se situent directement dans la cavité. Conformément aux dimensions de la pompe, une force verticale étendue sur une zone $2 \times 2 \mu\text{m}^2$ fait office d'excitation et permet de mimer une source ponctuelle. Les calculs réalisés sont des calculs harmoniques qui sont répétés pour chaque fréquences dans la gamme 1–2 GHz puisque c'est dans cette limite que les fréquences de résonance de la cavité ont été identifiées expérimentalement. Les résultats d'un tel calcul sont présentés en figure 3.22 pour cinq points de mesure : au centre et aux extrémités de la cavité rectangle, comme le montre le schéma. On trace le carré de la valeur absolue de la différence entre le déplacement hors plan total dans la distribution u et le déplacement hors plan généré par l'onde calculé en l'absence de piliers u_{inc} en figure 3.22b). Contrairement à la configuration expérimentale ou il suffit de prendre un écart pompe–sonde suffisamment grand pour ne mesurer que les survibrations dans la cavité liées au passage de l'onde, il est nécessaire de retirer numériquement la composante de déplacement hors plan apportée par l'onde pour une configuration sans piliers pour récupérer le champ diffusé. Toutefois, la simple soustraction de ces deux quantités ne suffit pas puisqu'en raison de la distribution de piliers, l'onde de surface voit un milieu effectif légèrement différent et se propage donc à une vitesse légèrement différente, ce qui introduit un déphasage par rapport à la configuration sans piliers.

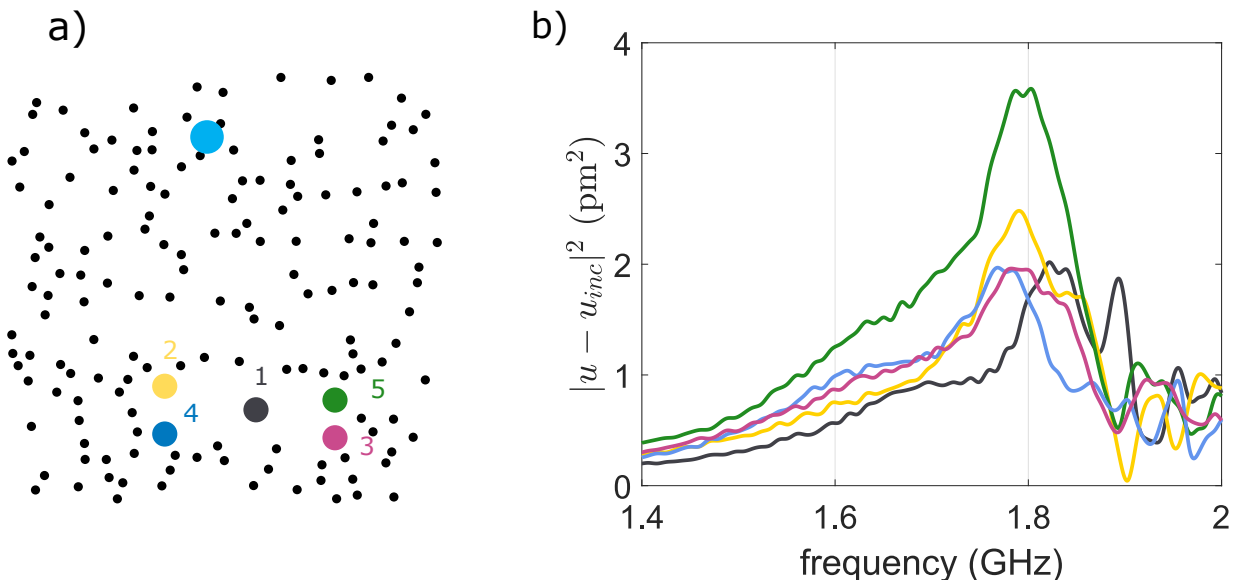


Figure 3.22 – a) Configuration géométrique de l'expérience numérique, les points de couleurs dans la cavité rectangle correspondent aux points de mesure. b) Carré de la valeur absolue du déplacement hors-plan total u dans la distribution de piliers auquel est soustrait le déplacement hors-plan du champ incident en l'absence de piliers u_{inc} , en fonction de la fréquence. Ici, l'excitation se fait dans la direction perpendiculaire à la dimension principale de la cavité.

C'est donc la quantité $|u - u_{inc}|^2$ qui est donnée puisqu'elle permet de s'affranchir de cette différence de phase dans le calcul, et permet donc une représentation plus fidèle du champ diffusé par le milieu, et de coller au mieux avec les résultats expérimentaux. Cette première série de calcul révèle la présence d'une fréquence principale autour de 1.8 GHz mais avec des poids différents suivant la position du point de mesure, en particulier pour le point de 5 qui présente une plus grande dynamique que les autres. La même série de mesures a été conduite pour une excitation qui se trouve cette fois dans la direction de la plus grande dimension de la cavité, dont les résultats sont donnés en figure 3.23; les points de mesure sont strictement les mêmes que sur la configuration précédente. Pour cette direction d'excitation, la tendance est bien plus ténue car bien qu'une fréquence principale autour de 1.75 GHz se dégage, d'autres fréquences apparaissent de manière claire. Cette constatation s'avère particulièrement vraie pour le point de mesure 4 où la fréquence principale est ~ 1.95 GHz, et qui semble ne pas correspondre à la fréquence de résonance de la cavité mesurée. Les calculs des modes de vibration pour un pilier simple mettent en lumière la présence d'un mode de flexion exactement à cette fréquence principale. Cette dernière est aussi visible sur certains points de la configuration précédente mais est bien plus marginale, de la même manière que sur les points 3, 5 et 1 de la configuration présente. Suivant l'angle d'attaque de l'onde avec le pilier, un couplage plus ou moins efficace avec ce mode de flexion peut avoir lieu, ce qui permettrait d'expliquer cette différence de contribution de ce mode au déplacement hors plan d'un point de calcul à l'autre.

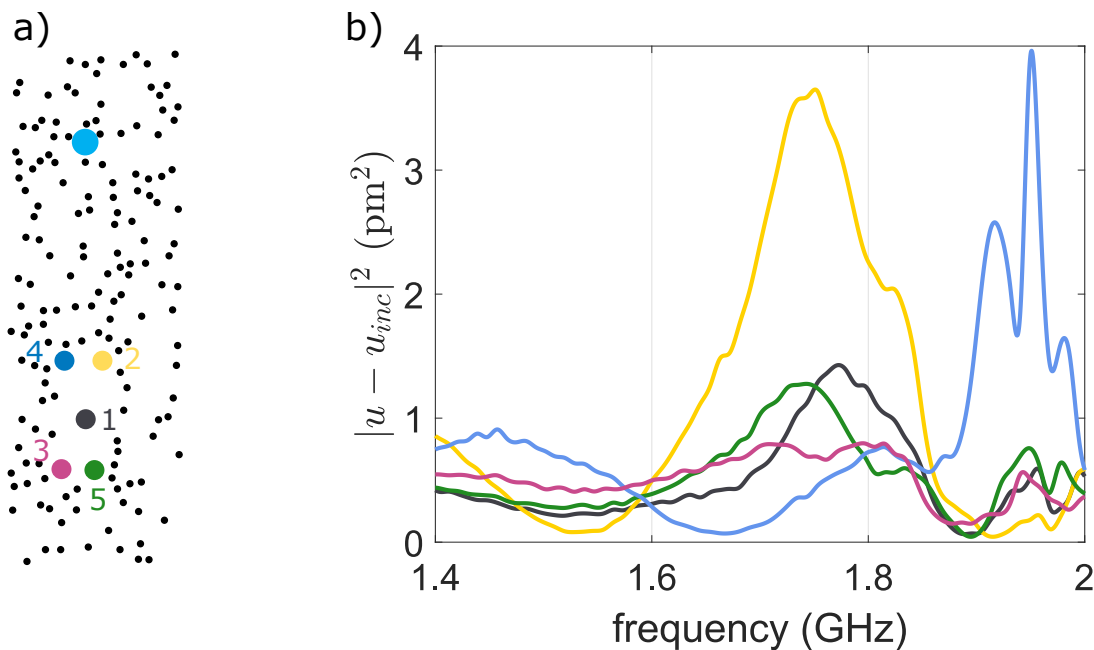


Figure 3.23 – a) Configuration géométrique de l'expérience numérique, les points de couleurs dans la cavité rectangle correspondent aux points de mesure. b) Carré de la valeur absolue du déplacement hors-plan total u dans la distribution de pilier auquel est soustrait le déplacement hors-plan du champ incident en l'absence de piliers u_{inc} , en fonction de la fréquence. Ici, l'excitation se fait dans la direction parallèle à la dimension principale de la cavité.

Les spectres moyennés sur les cinq points de mesure dans les deux configurations en figure 3.24 font ressortir deux modes principaux aux dynamiques et aux fréquences légèrement différentes puisque $f_{west} \sim 1.75$ et $f_{north} \sim 1.8$ GHz. Bien qu'il soit délicat de comparer les amplitudes d'une configuration numérique à l'autre, il est intéressant de noter que cette différence d'amplitude a aussi été rapportée par les résultats expérimentaux : le mode dans la direction perpendiculaire possède un

temps de vie plus long que dans la direction parallèle. Outre cet écart dans la dynamique, la différence de fréquence de résonance des modes dans la cavité suivant la direction d'excitation est aussi observée sur les mesures : le mode dans la direction perpendiculaire est plus haute fréquence que le mode dans la direction parallèle.

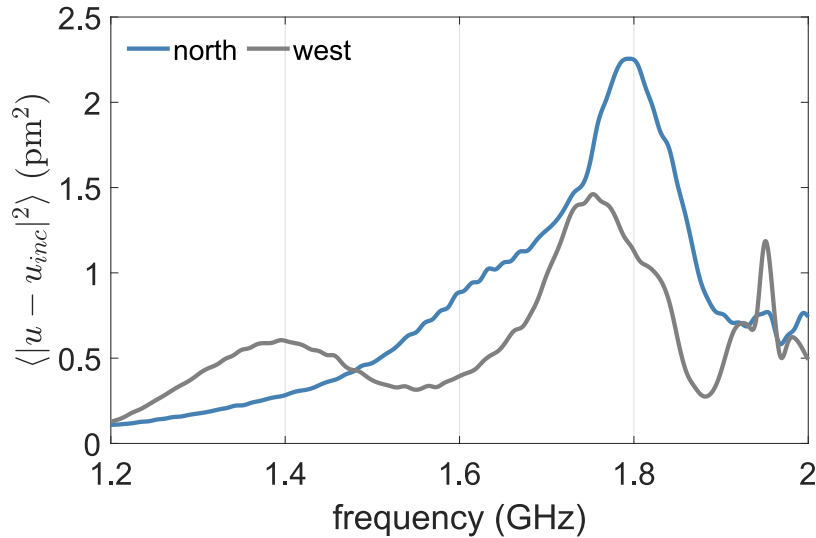


Figure 3.24 – Comparaison des spectres moyennés sur les cinq points de mesure dans la cavité rectangle pour les deux expériences numériques : north correspond à une excitation dans la direction perpendiculaire et west dans la direction parallèle à la cavité rectangle.

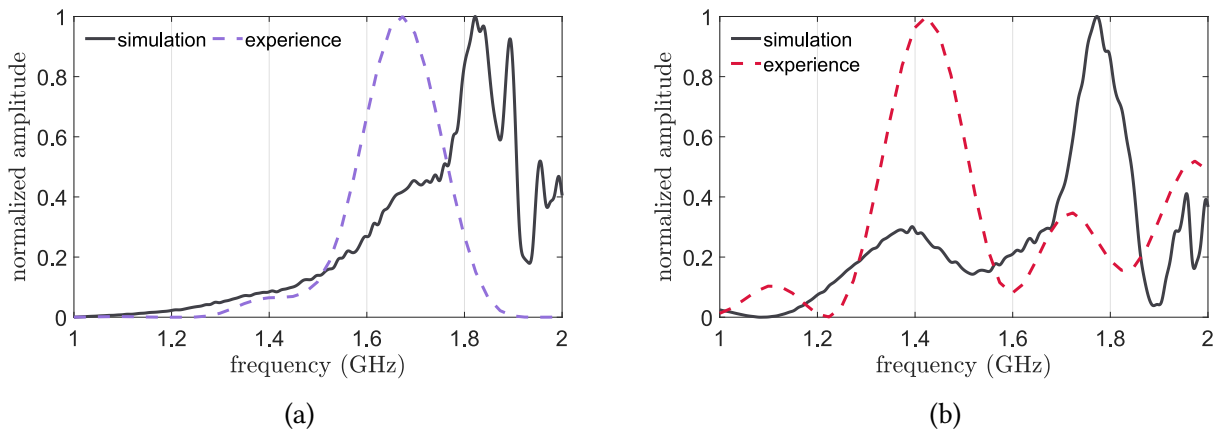


Figure 3.25 – Comparaison entre résultats numériques (point 1 sur les schémas d'expérience numérique) en trait plein et expérimentaux en trait pointillé des spectres normalisés pour une excitation **a)** au nord et **b)** à l'ouest.

En revanche, la superposition des résultats numériques avec les résultats expérimentaux en figures 3.25(a) et 3.25(b) permet de souligner la différence des fréquences de résonance mesurées et calculées dans la cavité. En plus du nombre de piliers traversé radicalement différent entre expérience et simulation, cet écart trouve certainement sa source dans la nature des matériaux utilisés. En effet, les constantes élastiques et vitesses des différents matériaux qui composent l'échantillon utilisés en entrée du calcul sont très certainement différentes des constantes des échantillons mesurés.

3.4 Distribution hyperuniforme

Depuis quelques années, de nombreuses études s'intéressent à la propagation d'ondes dans des distributions à désordre corrélé [69], c'est à dire que contrairement à la distribution de Poisson, la répartition spatiale de diffuseur n'est plus uniforme. Ces distributions appelées hyperuniformes, représentent une classe de désordre intermédiaire entre le cristal parfait et la distribution de Poisson [73]. Un code de calcul a été développé au cours de cette thèse pour générer et caractériser de telles distributions afin de les étudier expérimentalement. Plusieurs répliques de distributions hyperuniformes à plusieurs densités (entre 1 et 14 %) ont été fabriquées, dont quelques images MEB sont données en figure 3.26(a) et 3.26(b) pour les densités de 1 et 14%, respectivement. Les dimensions des piliers à l'image sont très proches de celles utilisées pour les distributions désordonnées puisque le diamètre est en moyenne de $\varphi \sim 300$ nm, pour une hauteur $h = 200$ nm. Ces piliers sont directement fabriqués sur une couche d'Al d'épaisseur 100 nm vaporisée sur substrat de Si qui a été préféré au SiO_2 en raison de ses meilleures propriétés de conduction de la chaleur.

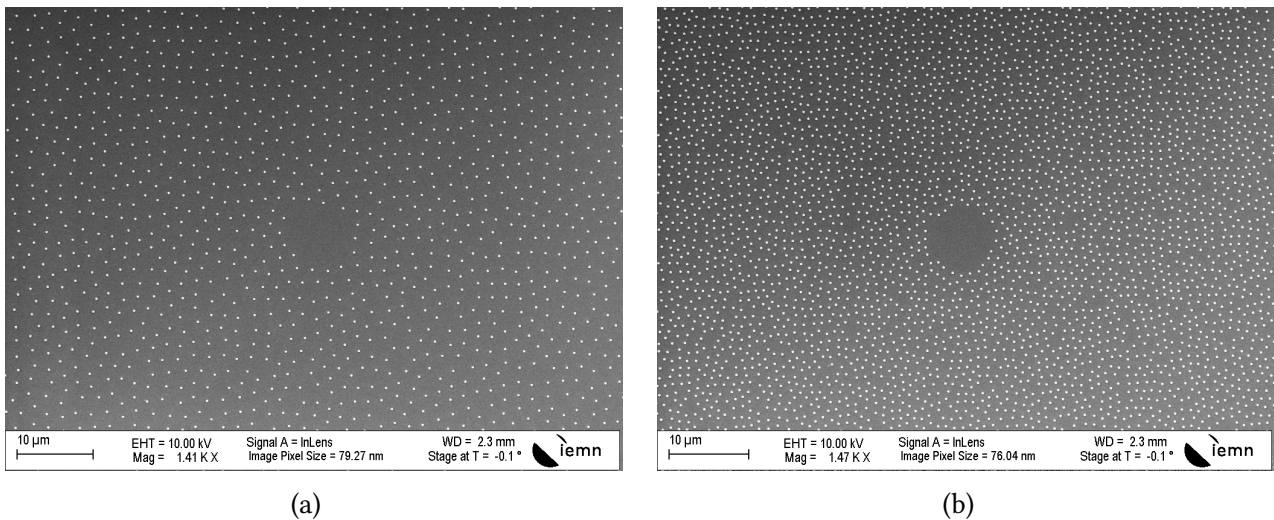


Figure 3.26 – Images MEB de distributions hyperuniformes fabriquées à l'IEMN de Lille pour deux densités de **a)** $\rho = 1\%$ et **b)** $\rho = 14\%$. Un dépôt de 100 nm d'Al sur lequel sont fabriqués des piliers en Al de diamètre $\varphi \sim 300$ nm et hauteur $h = 200$ nm, le tout reposant sur un substrat de Si.

Lorsqu'il est question de distributions hyperuniformes, il est d'usage de caractériser la statistique de la répartition spatiale de piliers via la fonction de corrélation de paire g_2 et le facteur de structure $S(\mathbf{k})$ qui offrent une information précieuse sur les propriétés de diffusion de l'onde qui s'y propage. On donne en figure 3.27 ces quantités calculées sur la distribution à la densité $\rho = 10\%$ qui à fait l'objet de cette étude expérimentale. La fonction de corrélation de paire représentée en fonction de la quantité r/a , qui n'est autre que le rapport entre le rayon r du cercle qui permet de compter le nombre de paire de particule et la distance moyenne entre les piliers a , souligne les fortes corrélations spatiales qui règnent au sein de cette distribution. Ces oscillations indiquent que les effets d'ordre 2 qui ont été évoqués dans le premier chapitre via l'expression la fonction de Green moyenne 1.1 doivent être pris en compte et imposent l'introduction d'un modèle effectif 1.6. L'annulation du facteur de structure pour les faibles vecteurs d'onde confirme le caractère hyperuniforme de la distribution de diffuseurs.

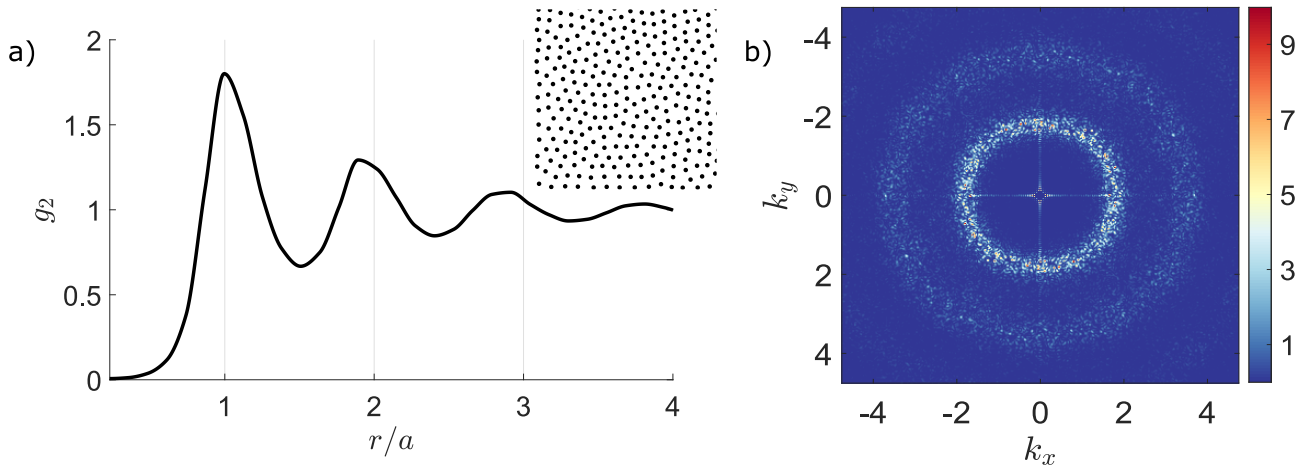


Figure 3.27 – Caractérisation des propriétés statistiques de la distribution hyperuniforme par **a)** la fonction de corrélation de paire g_2 en fonction de r/a où r correspond au rayon de la couronne qui permet de compter le nombre de paires de particules et a , à la distance moyenne entre piliers de la distribution. On donne en encart un échantillon de la distribution support du calcul. **b)** Facteur de structure $S(\mathbf{k})$ associé et moyenné sur 100 configurations. La distribution comprend ~ 8000 piliers de rayon $r_{\text{cyl}} = 150$ nm répartis sur une zone de $120 \times 120 \mu\text{m}^2$, soit une densité $\rho = 10\%$.

À la lumière de tout ce qui a été vu précédemment, l'intérêt d'étudier les distributions hyperuniformes réside dans la gamme restreinte de distance moyenne entre piliers. En effet à la différence de la distribution Gaussienne ou la distance moyenne entre piliers varie de manière radiale et la distribution de Poisson où cette répartition est complètement aléatoire, la distance moyenne ne varie que très peu d'une zone à l'autre pour les répartitions hyperuniformes.

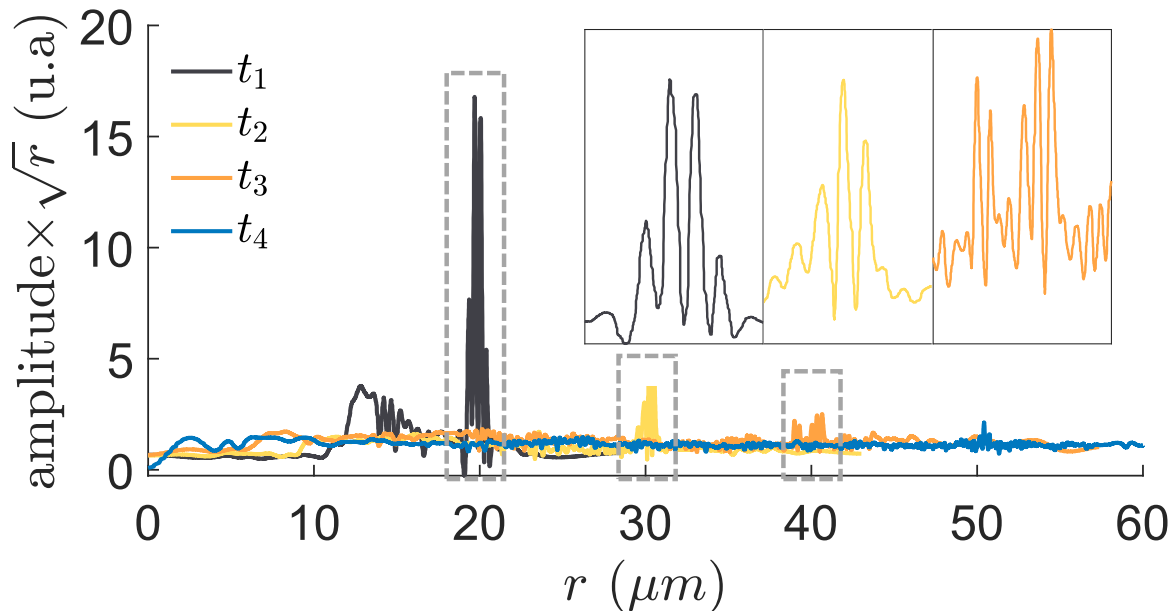


Figure 3.28 – Moyennes radiales multipliées par \sqrt{r} sur les images de réflectivité obtenues pour différents délais pompe-sonde notés t_{1-4} en fonction de la distance de propagation r dans une distribution hyperuniforme de densité $\rho \sim 10\%$. En encart est un zoom sur les fronts d'onde qui met en évidence la présence d'oscillations de période spatiale ~ 300 nm.

De la même manière que cela a été fait pour la distribution de Poisson, une série de mesure pour déterminer la décroissance de l'amplitude du front d'onde cohérent a été menée, pour une distribution de densité équivalente $\rho \sim 10\%$, résultats présentés en figure 3.28. Cette fois-ci l'amplitude du front d'onde cohérent décroît bien plus rapidement puisqu'un fit des données expérimentales en figure 3.29 révèle une décroissance exponentielle, là où cette dernière apparaissait comme quadratique pour la distribution de Poisson. En prenant l'enveloppe, on calcul la largeur à mi-hauteur des signaux qui montre que contrairement à la distribution de Poisson, l'étendue spatiale du front d'onde ne varie pas ou très peu au cours de la propagation puisque $\text{FWHM}_{t_1} = 0.85 \mu\text{m}$, $\text{FWHM}_{t_2} = 0.82 \mu\text{m}$, et $\text{FWHM}_{t_3} = 0.83 \mu\text{m}$. En raison de la faible dispersion des distances moyennes entre piliers, seules les longueurs d'ondes équivalentes à cette dernière seront piégées par la distribution. Comme souligné précédemment, la décroissance de l'amplitude du front d'onde cohérent résulte de deux processus : la localisation de l'énergie cédée à la distribution, et les conversions de l'onde de surface en onde de volume au niveau de chaque pilier. La densité de piliers et leurs dimensions caractéristiques étant très proches pour les deux types de distribution, il est raisonnable d'arguer que la conversion de mode est équivalente pour les deux, même si rien ne permet de l'affirmer.

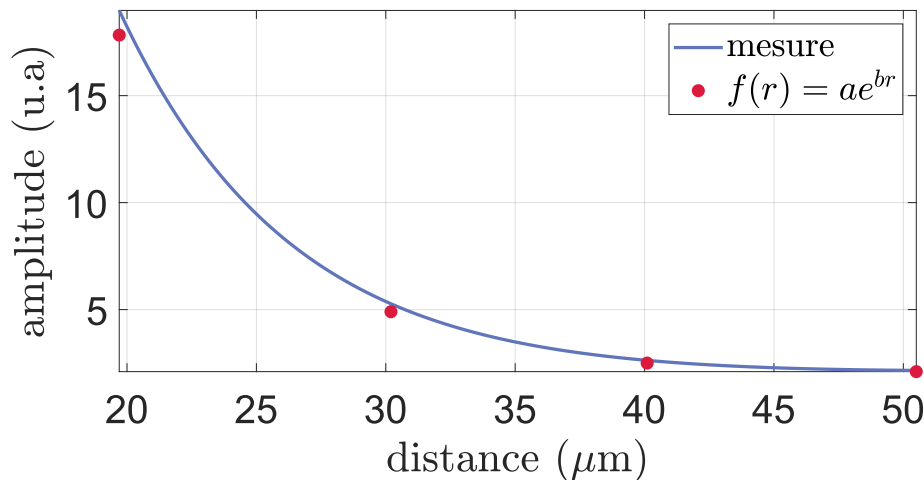


Figure 3.29 – a) Fit de l'amplitude du front d'onde cohérent mesurée en fonction de la distance de propagation par une loi exponentielle.

Alors que dans les distributions désordonnées le contenu fréquentiel du front d'onde cohérent est progressivement cédée à la distribution au cours de sa propagation, la gamme de fréquence absorbée par la distribution hyperuniforme sera moindre puisque l'écart inter-particule varie peu d'une zone à l'autre de l'échantillon. Partant de ce constat, la décroissance de l'énergie devrait alors être plus lente pour cette dernière que pour la distribution de Poisson. Ceci-étant, les modes acoustiques qui se propagent en surface du Si sont plus hautes fréquence que dans le SiO_2 , ce qui a pour conséquence l'excitation du premier mode de flexion des piliers à $f \sim 2.2 \text{ GHz}$, comme le montrent les calculs de dispersion en figure 3.30.

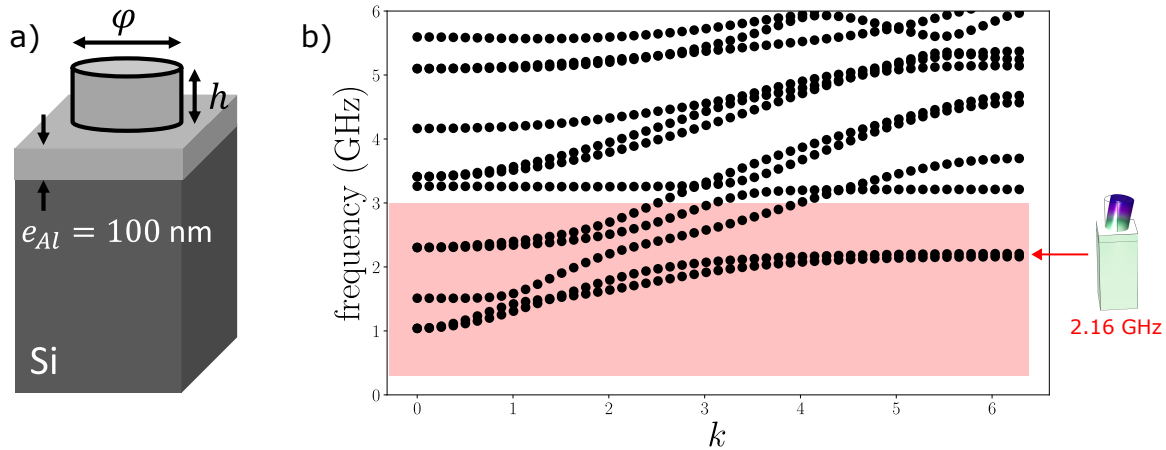


Figure 3.30 – a) Géométrie support du calcul, les piliers ont un diamètre $\varphi \sim 300$ nm pour une hauteur $h = 200$ nm. b) Courbes de dispersion de la structure périodique associée. Elles mettent en évidence deux modes de flexion des piliers autour de 2.2 GHz, dans la bande d'excitation de l'onde générée et repérée par la zone rouge.

C'est d'ailleurs très certainement ce qui explique la modulation du front d'onde cohérent visible dans l'encart de la figure 3.28, dont la période spatiale des oscillations est égale au diamètre des piliers. Donc à l'absorption de certaines longueurs d'onde par la distribution et les pertes d'énergie dans le volume⁶, s'ajoute la redistribution à la fréquence de résonance des piliers.

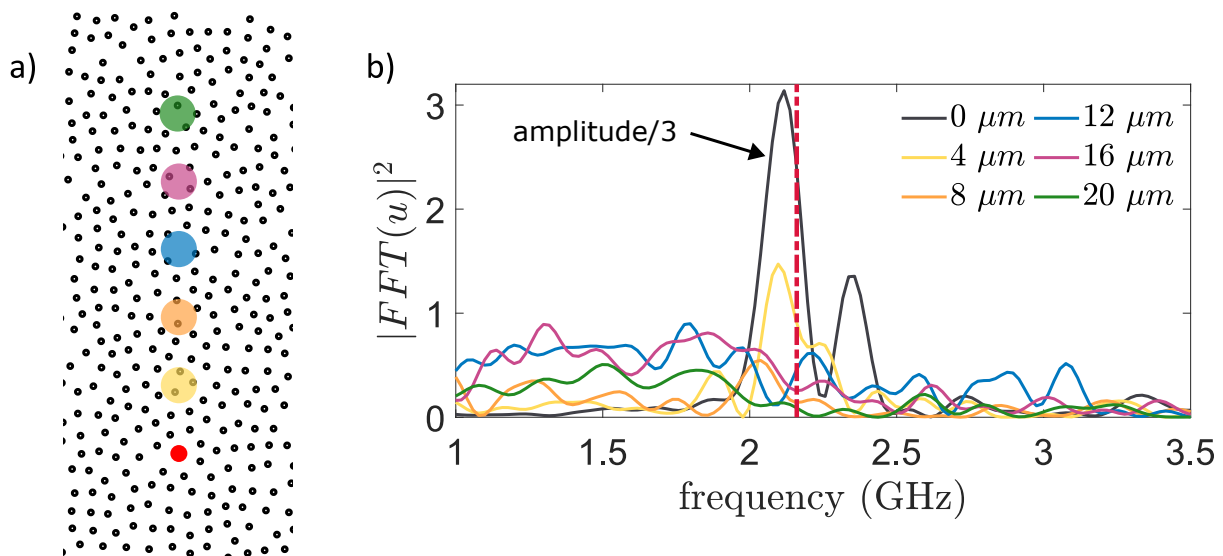


Figure 3.31 – a) Configuration expérimentale pour les mesures temporelles dans une distribution hyperuniforme de densité $\rho = 10\%$. La sonde est fixe et c'est la pompe qui est déplacée sur l'échantillon pour augmenter la distance pompe-sonde d'une mesure à l'autre. La mesure à $0 \mu\text{m}$ signifie que pompe et sonde se situent au même endroit sur l'échantillon. b) Spectres calculés à partir du déplacement hors-plan mesuré aux points correspondants. La ligne discontinue met en évidence la première résonance de flexion des piliers étudiés.

6. En dépit des arguments avancés sur la densité pour comparer la quantité d'énergie perdue dans le volume d'une distribution à l'autre, cette perte s'en trouve renforcée par la résonance des piliers dans le cas de la distribution hyperuniforme.

En complément des mesures spatiales, la même série de mesures temporelles a été effectuée pour la distribution hyperuniforme pour des distances pompe–sonde entre 0 et 20 μm ; 0 μm correspondant à une mesure où pompe et sonde se situent au même endroit de l'échantillon. Les résultats de cette série sont donnés en figure 3.31. Les deux premières mesures mettent en évidence des fréquences principales autour de 2.25 GHz, fréquence que l'on retrouve très peu pour des distances pompe–sonde supérieures à 4 μm . Malgré l'écart – bien que faible⁷ – par rapport aux fréquences de résonance prédites par le calcul, plusieurs pistes indiquent qu'il s'agit de la première flexion. En effet lorsque pompe et sonde sont placées au même endroit, c'est cette fréquence qui est majoritaire, tout comme pour un écart de 4 μm entre les deux mais avec une amplitude environ six fois moins importante, fréquence qui a complètement disparu pour les distances supérieures. Cette décroissance très rapide de l'énergie avec la distance pompe–sonde à cette fréquence signifie que cette dernière a été cédée du front d'onde à la distribution avant d'arriver au faisceau sonde. Les phénomènes de diffusion sont exaltés à la résonance des piliers, ce qui explique pourquoi cette fréquence ne se transmet que très peu dans la distribution.

En l'état, il est compliqué de quantifier l'influence de la statistique de la distribution sur la décroissance de l'amplitude du front d'onde cohérent puisque les sources de perte d'énergie sont différentes dans les échantillons hyperuniforme et complètement désordonné. Néanmoins, l'excitation de la fréquence de résonance des piliers s'avère avoir un impact majeur sur la propagation de l'onde.

7. Cet écart peu s'expliquer par la différence des constantes élastiques utilisées en entrée du calcul par rapport aux matériaux réellement étudiés.

3.5 Conclusion

Dans ce chapitre on rapporte une étude expérimentale portant sur la dynamique vibratoire de différentes distributions de désordre en réponse à la propagation d'une onde de Rayleigh en surface du substrat, et qui excite la métasurface. Trois configurations de désordre ont été testées : la distribution Gaussienne, la distribution de Poisson et la distribution hyperuniforme, dans l'objectif de mieux comprendre l'influence de la topographie sur la propagation de l'onde élastique et sur la façon dont son énergie se localise dans la distribution correspondante. Même si seule la distribution de Poisson a fait l'objet d'une étude approfondie, ces trois configurations de désordre offrent des perspectives intéressantes, en particulier la distribution hyperuniforme puisqu'il s'agit d'un sujet relativement neuf. La distribution de Poisson a permis de mettre en évidence un grand nombre de modes acoustiques localisés de formes et de tailles bien différentes, mais toujours de l'ordre de quelques μm . Ce sont toutes ces zones qui sont en parti responsables de la décroissance de l'amplitude du front d'onde cohérent suivant une loi quadratique, en plus de la perte d'énergie liée à la conversion de l'onde de surface en onde de volume au niveau de chacun des piliers. En l'état, il n'existe aucun modèle, et aucune mesure qui permette d'évaluer la perte d'énergie liée à cet effet, et qui aurait permis de dissocier ces deux mécanismes.

Quoi qu'il en soit, les mesures révèlent que ces zones de survibration obéissent à des fréquences de résonance qui leurs sont propres et qui dépendent de leurs caractéristiques géométriques puisque, les longueurs d'ondes piégées à l'intérieur sont sensiblement identiques aux dimensions caractéristiques de ces dernières. Même si les images large champ suggèrent qu'un grand nombre de ces cavités vibrent pendant l'intégralité de l'intervalle temporelle entre deux fronts d'ondes, les mesures temporelles montrent que chacune possède un facteur de qualité différent, qui dépend principalement de la direction du front d'onde incident. Outre l'impact sur le facteur de qualité de la cavité, la direction d'excitation a aussi une influence sur le contenu spectral mesuré à l'intérieur. En fonction du paysage traversé par l'onde avant d'arriver dans la cavité d'intérêt, certaines longueurs d'onde peuvent avoir été filtrées par la distribution. En effet, comme les piliers de la distribution de Poisson sont uniformément répartis dans l'espace, plus le front d'onde se propage, plus il a de chance de céder de l'énergie à la distribution, ce qui n'est plus vraie pour la distribution hyperuniforme.

Cette dernière configuration de désordre s'avère atténuer très fortement la propagation de l'onde acoustique de surface puisque les mesures portant sur l'amplitude du front d'onde cohérent montrent une décroissance qui suit une loi exponentielle, bien plus rapide que pour la distribution de Poisson. L'origine de cette forte atténuation s'explique par l'excitation de la première résonance de flexion à ~ 2.2 GHz puisque des modes plus hautes fréquence sont générés dans le substrat de Si par rapport au SiO_2 . Même si les densités de piliers traversées sont équivalentes pour les deux types de distribution, une plus grande perte d'énergie dans le volume est à prévoir en plus d'une plus courte distance propagation de la longueur d'onde à la fréquence de résonance correspondante. C'est donc l'addition de ces deux effets liés en partie à la résonance des piliers qui explique cette importante différence de décroissance de l'amplitude du front d'onde cohérent. Pour cette raison, il apparaît compliqué de quantifier l'influence de la statistique de la distribution sur la propagation des ondes dans la métasurface.

Chapitre 4

Caractérisation expérimentale de la résonance plasmonique dans des métasurfaces périodiques et désordonnés de nanoparticules d'or

Table des matières

Introduction	84
4.1 Spectroscopie en champ sombre appliquée à l'étude des plasmons de surface	85
4.1.1 Microscopie champ sombre pour la caractérisation de la résonance plasmon : principe général de la méthode	85
4.1.2 Quadriwave Lateral Shearing Interferometry (QLSI) : principe de fonctionnement de la caméra de phase	87
4.2 Résultats expérimentaux sur des objets individuels et des arrangements spatiaux périodiques et désordonnés de nanoparticules d'Or	91
4.2.1 Caractérisation de nanoparticules d'Or individuelles et en réseaux périodiques	91
4.2.1.1 Piliers individuels	91
4.2.1.2 Réseaux périodiques	94
4.2.2 Caractérisation de métasurfaces périodiques et désordonnés de nanoparticules d'Or	99
4.2.2.1 Réseaux périodiques	99
4.2.2.2 Distributions désordonnées	102
4.3 Le couplage acousto-optique	112
4.3.1 L'échantillon photoacoustique	112
4.3.2 Dispositif expérimental commun : le microscope acousto-optique	114
4.4 Conclusion	116

Introduction

Bien que l'existence des plasmons de surface ait été découverte à la fin des années cinquante et que leurs comportements sont bien décrits pour des structures simples, la thématique reste très vivante, en particulier pour des ensembles de nanoparticules, qu'ils soient périodiques ou désordonnés. Ici les échantillons étudiés sont fabriqués sur substrats de SiO_2 ou Si (imposés par l'acoustique) sur lesquels sont déposés une centaine de nm d'Or qui fait office de plan de masse. Une représentation schématique de l'échantillon est rappelée en figure 4.1. Compte-tenu de la géométrie des échantillons, deux types de plasmons seront observés : ceux qui se propagent dans la couche isolante (SPP) sur une distance caractéristique d'une dizaine de μm , et ceux localisés au niveau de chacune des nanoparticules (LSPR). Ces plasmons de surface, ici excités par des sources monochromatiques s'avèrent interagir fortement avec les ondes électromagnétiques d'une part en redistribuant la lumière suivant des directions privilégiées (en fonction de la nature de la distribution des nanoparticules), et d'autre part en modifiant fortement la phase de l'onde à la réflexion sur la métasurface. Ces effets ont pu être observés expérimentalement au moyen de deux méthodes : le champ sombre optique, et l'imagerie à quantification de phase basée sur la *quadriwave lateral shearing interferometry method* [123, 124], dont les principes généraux sont brièvement décrit en première partie.

Contrairement à la partie acoustique où les distributions désordonnées ont pu directement être étudiées, une partie importante du travail a consisté à caractériser dans un premier temps des nanoparticules d'Or individuelles, puis leur comportement dans des réseaux périodiques pour enfin aborder les effets du désordre sur la réponse spectrale de tels ensembles. Des modes de piliers individuels ont été observés, ainsi que des modes de réseaux lorsque ces derniers sont organisés de manière périodique. La rupture des relations de phase entre les piliers du réseaux à l'introduction d'un désordre contrôlé a été étudiée en détail. La dernière partie de ce chapitre est consacrée au couplage acousto-optique qui n'a pu être mis en oeuvre au cours de cette thèse, mais fournit quelques pistes sur la nature des échantillons les plus favorables à ce couplage et aux différents dispositifs expérimentaux envisagés pour l'étudier.

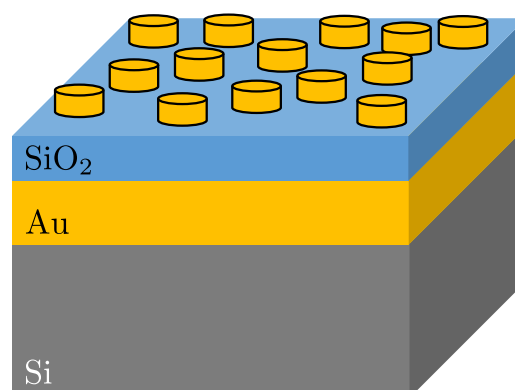


Figure 4.1 – Représentation schématique d'un échantillon plasmonique désordonné. Les piliers en Au sont fabriqués sur une couche isolante de SiO_2 , elle-même déposée sur un plan de masse en Au, le tout reposant sur un substrat de Si. Les dimensions seront précisées plus loin.

4.1 Spectroscopie en champ sombre appliquée à l'étude des plasmons de surface

Compte-tenu de la physique en jeu et des dimensions des échantillons étudiés, deux méthodes expérimentales ont été retenues et mises en place au cours de cette thèse : le champ sombre optique et l'imagerie à quantification de phase. Les plasmons de surface sont excités grâce à un laser Ti :Sa qui présente les mêmes caractéristiques que celui utilisé pour la partie acoustique, avec une certaine gamme d'accordabilité en longueur d'onde $\lambda = 700 - 900$ nm. L'échantillon est monté sur un bâti de microscope et est observé avec des objectifs x50 où x100 suivant la largeur de champ souhaitée, et qui présentent de grandes ouvertures numériques. Les deux sorties du microscope desservent à façon une caméra permettant de reconstruire la phase du champ électromagnétique rétro-réfléchi par l'échantillon ou alors la lumière réfléchi aux grand angles grâce à l'imagerie champ sombre. Ces deux méthodes expérimentales font l'objet de cette partie.

4.1.1 Microscopie champ sombre pour la caractérisation de la résonance plasmon : principe général de la méthode

Le principe général de la spectroscopie champ sombre repose sur l'imagerie d'objets transparents dans laquelle la lumière peut se propager et être diffusée. Ce dernier point est fondamental puisque l'image résultante du milieu est permise par la décomposition du champ lumineux en une partie diffusée à laquelle est soustraite le champ incident, comme schématisé en figure 4.2. La partie centrale du faisceau lumineux est d'abord bloquée au moyen d'un masque optique et traverse ensuite un condenseur qui permet de focaliser la lumière sur l'objet d'intérêt. La résultante de la lumière transmise par l'échantillon est donc la somme de la lumière diffusée et de la lumière incidente, qui est bien plus intense et a pour conséquence d'aveugler complètement le détecteur. La combinaison d'un masque, d'un condenseur et d'un diaphragme (présent dans les objectif de microscopes champ sombre) permet donc de séparer spatialement les deux composantes de la lumière pour ne récupérer que la partie diffusée du champ, améliorant le contraste de l'image formée.

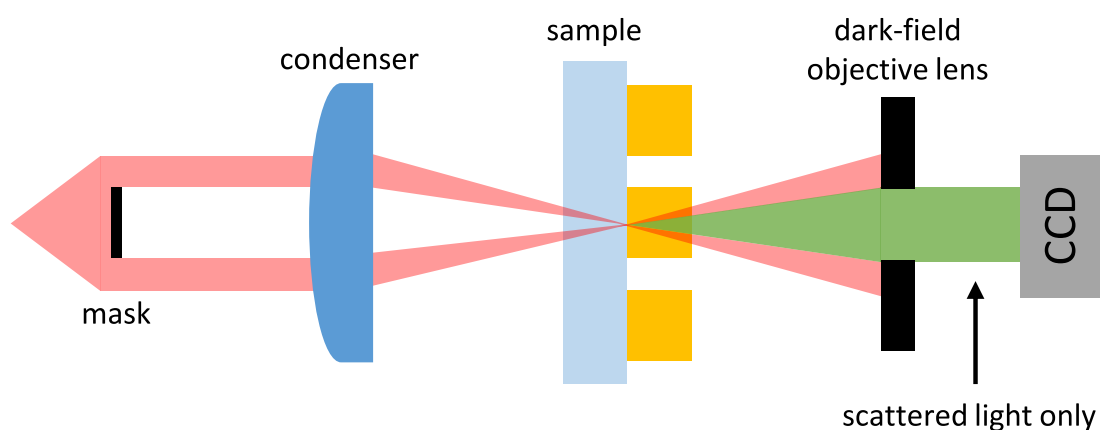


Figure 4.2 – Représentation schématique du principe général de la microscopie champ sombre en transmission.

Même si certains échantillons ont été fabriqués sur des substrats de SiO_2 , la présence du plan de masse en Au directement vaporisé sur une des deux faces impose de travailler en réflexion¹,

1. Compte-tenu de la profondeur de pénétration à $\lambda = 800$ nm dans l'or ($\delta_{\text{Au}} \sim 30$ nm) et de l'épaisseur du plan de

et donc d'adapter la méthode champ sombre à la géométrie étudiée. On donne en figure 4.3 un schéma du dispositif expérimental mis en place pour travailler en réflexion. Comme il s'agit d'étudier des réseaux périodiques de NPs d'Or de $50 \times 50 \mu\text{m}^2$, il convient de travailler en onde plane pour éclairer le plus large champ possible, faisable en focalisant le faisceau laser sur la pupille d'entrée π_f de l'objectif. L'échantillon est éclairé au moyen d'un laser Ti:Sa qui présente des caractéristiques similaires à celui utilisé pour les mesures acoustiques. L'objectif et l'échantillon sont directement montés sur un microscope, dont la sortie se situe au niveau du plan image π_{i1} . Que ce soit en réflexion ou en transmission, la philosophie de la technique reste toujours la même : il faut séparer le champ incident du champ diffusé par la structure. Pour cela, deux lentilles (f_1 et f_2) sont placées de manière confocale, avec un masque optique placé dans le plan de Fourier π_f de la première lentille. Ce dernier permet la séparation de la partie rayonnée aux grands angles par le réseau périodique de NPs et la réflexion spéculaire du faisceau d'excitation qui revient sur le détecteur en incidence normale.

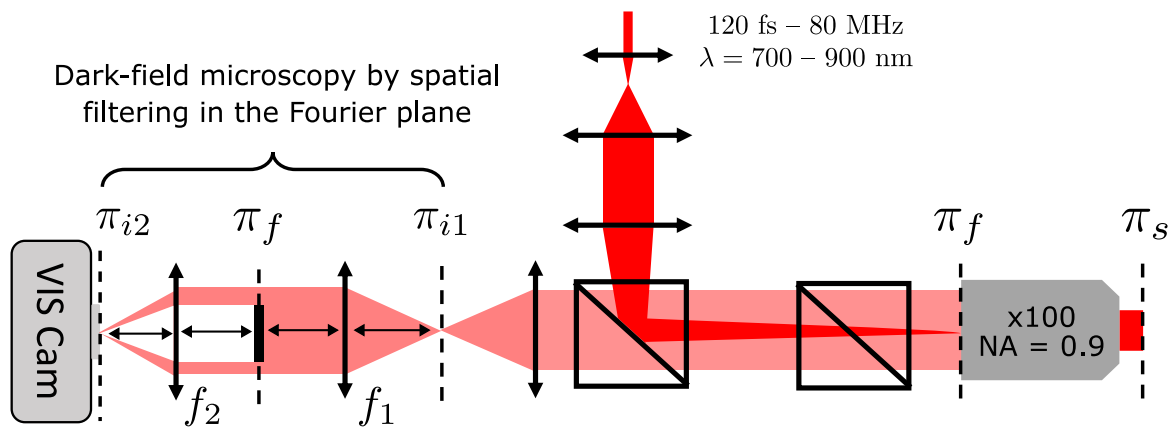


Figure 4.3 – Schéma de la méthode d'imagerie champ sombre. Il en résulte de la combinaison d'un objectif x100 d'ouverture numérique $\text{NA} = 0.9$ avec un masque placé dans le plan de Fourier π_f de la première lentille f_1 du télescope, placée de manière confocale à la lentille f_2 . π_s est le plan de l'échantillon tandis que π_{i1} et π_{i2} sont les plans images de ce dernier avant et après filtrage du laser incident. Le signal est ensuite collecté par une caméra visible.

En effet, comme le montrent les calculs de section efficace différentielle de diffusion par un réseau périodique de NPs en Au – à la résonance plasmon – en figure 4.4 a) [125], le champ rayonné se décompose en deux parties bien distinctes : un lobe principal très intense réfléchi dans la direction incidente de l'excitation (la réflexion spéculaire), ainsi que des lobes secondaires de plus faible intensité réfléchis aux grands angles (le champ diffusé). La fonction du masque optique dans le plan de Fourier de la lentille f_1 consiste donc à supprimer ce lobe principal pour ne visualiser que les lobes secondaires qui doivent leur existence à la redistribution du diagramme de rayonnement par les plasmons de surface excités. Le champ diffusé aux grands angles est ensuite recombinaé via une seconde lentille f_2 au niveau du plan image π_{i2} où une caméra visible est placée pour détecter la lumière. On montre en figure 4.4 b) une image de la réflexion de l'onde plane par un réseau périodique dans le plan de Fourier de l'objectif de microscope qui permet de mettre en évidence le lobe principal et les lobes secondaires aux grands angles à la réflexion par le réseau périodique.

masse ($h_{\text{Au}} = 200 \text{ nm}$), la lumière ne traverse pas.

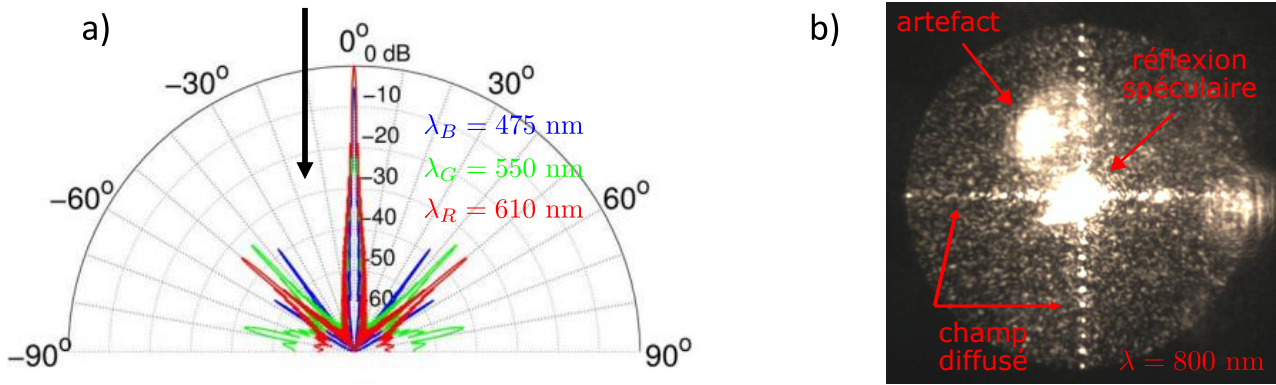


Figure 4.4 – a) Calcul des sections efficaces différentielles de diffusion de réseaux périodiques de NPs d'Or pour trois longueurs d'onde d'excitation $\lambda_B = 475$, $\lambda_G = 550$, et $\lambda_R = 610$ nm [125]. La flèche noire met en évidence la direction du champ incident. b) Image de la réflexion de l'onde plane par un réseau périodique de NPs d'Or dans le plan de Fourier de l'objectif de microscope à $\lambda = 800$ nm. Les flèches rouges mettent en évidence les directions privilégiées des ordres diffractés par le réseau.

4.1.2 Quadriwave Lateral Shearing Interferometry (QLSI) : principe de fonctionnement de la caméra de phase

La *quadriwave lateral shearing interferometry* (QLSI) [123] est une technique qui permet de reconstruire une image des variations de phase d'une onde réfléchie ou transmise par une structure, et qui nécessite seulement l'utilisation d'un réseau de diffraction placé en amont d'une caméra. Ce réseau de diffraction crée une image sur le capteur de la caméra appelée interférogramme qui, après analyse numérique, permet de fournir une information quantitative sur l'amplitude et la phase de l'onde réfléchie par l'objet. Dans l'approximation scalaire, une onde électromagnétique monochromatique peut-être écrite comme un champ complexe $E(\mathbf{r}) = E(\mathbf{r})\exp(i\phi(\mathbf{r}))$, où $E(\mathbf{r})$ est l'amplitude du champ et $\phi(\mathbf{r})$ sa phase, à la position \mathbf{r} . Là où l'intensité du champ électromagnétique est facilement accessible et compréhensible, c'est souvent moins le cas pour la phase qui requiert l'utilisation de techniques plus sophistiquées basées sur des phénomènes interférentiels pour traduire cette dernière en quantité mesurable. Ces techniques qui permettent d'imager la phase d'une onde électromagnétique réfléchie sont plus connues sous le nom de *quantitative phase imaging* (QPI), dont la QLSI en est une qui présente de nombreux avantages, tant en terme de résolution spatiale que de sensibilité.

La QLSI, basée sur l'utilisation d'un analyseur de front d'onde qui consiste en l'association d'une caméra avec un réseau de diffraction séparés de quelques mm, les éléments du réseau de diffraction étant eux séparés de quelques μm entre eux. Ce réseau affecte à la fois la phase et l'intensité de la lumière transmise : des lignes horizontales et verticales opaques bloquent la lumière, et définissent des zones carrées de transmission qui impriment des déphasages de 0 et π à la lumière transmise, selon un motif en damier. L'analyse de la réflexion d'un front d'onde déformé par un objet permet de remonter à la différence de trajets optiques parcourus $\delta(x, y)$ par l'onde lumineuse, qui est directement proportionnelle aux variations de phase du front d'onde. Puisque la différence de marche est liée aux dimensions de l'objet $h(x, y)$ et aussi à son indice optique n et à celui du milieu environnant n_0 , elle s'exprime de la manière suivante $\delta(x, y) = \int_0^{h(x,y)} (n(x, y, z) - n_0) dz$ [124], une mesure de cette quantité permet de caractériser optiquement aussi bien des nanoparticules individuelles [126] que des métasurfaces [127, 128]. La mesure de la différence de marche permet ensuite de retrouver

les variations de phase correspondantes puisque $\phi(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda}\delta(x, y)$, où λ correspond à la longueur d'onde d'illumination. Les mesures des parties suivantes ont été obtenues grâce à la caméra de phase SID4 commercialisée par la société Phasics, qui en plus du détecteur, fournit un logiciel de reconstruction de l'image de phase de l'onde réfléchi par la structure étudiée. Cette caméra présente de nombreux avantages puisqu'en plus de sa facilité d'utilisation et d'implémentation à un microscope optique, elle permet une mesure avec une résolution spatiale qui atteint la limite de diffraction.

Toute la force de cette méthode se situe dans la combinaison d'un masque Hartmann (de période p) avec un damier² (de période $2p$), comme illustré en figure 4.5, optimisé [129] pour diffracter plus de 90% de l'énergie lumineuse le long des quatre premiers ordres de diffraction portés par quatre vecteurs d'onde. On utilisera l'abréviation MHM (pour *modified Hartmann mask*) pour désigner la combinaison de ces deux éléments.

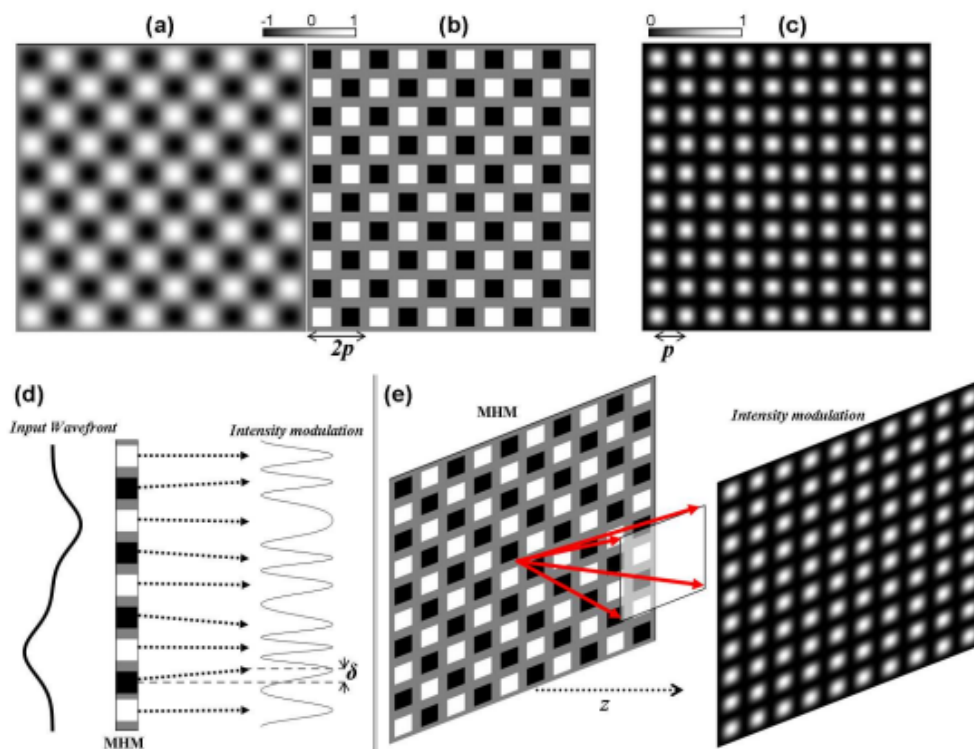


Figure 4.5 – a) Combinaison d'un masque de Hartmann avec b) le damier permettant d'imprimer des déphasages de 0 ou π à la lumière incidente. c) Intensité transmise au travers de la combinaison de ces deux éléments. d) Interférogramme 1D formé par le MHM pour un front d'onde déformé et permet de mettre en évidence la mesure de la différence de marche δ correspondante. e) Interférogramme 2D formé par le MHM dans pour le cas d'une onde plane. Les flèches rouges désignent les vecteurs d'ondes diffractés dans la direction z . Figure extraite de [123].

En ne considérant que les quatre premiers ordres diffractés, l'amplitude transmise au travers du MHM et l'intensité lumineuse correspondante s'expriment de la manière suivante puisque $T(x, y) = |t(x, y)|^2$:

2. Le détecteur est placé à la distance de Talbot du MHM afin de s'affranchir de la limite de diffraction, l'intensité du signal mesuré sera alors modulée avec une période p .

$$\begin{aligned}
 T(x, y) &= \left| \cos\left(\frac{\pi x}{p}\right) \cos\left(\frac{\pi y}{p}\right) \right|^2 \\
 &= \frac{1}{4} \left\{ 1 + \left[\cos\left(\frac{2\pi}{p}x\right) + \cos\left(\frac{2\pi}{p}y\right) \right] + \frac{1}{2} \left[\cos\left(\frac{2\pi}{p}(x+y)\right) + \cos\left(\frac{2\pi}{p}(x-y)\right) \right] \right\}.
 \end{aligned} \tag{4.1}$$

Chaque ordre ainsi diffracté par le masque se propage le long de son propre vecteur d'onde dans la direction z . En raison de leurs inclinaisons les uns vis à vis des autres, ces vecteurs d'onde s'entrecroisent le long de l'axe de propagation, d'où le nom de QLSI. Finalement, l'intensité lumineuse mesurée en sortie du masque correspond à la superposition cohérente de tous les ordres diffractés dans le plan (x, y) et qui ont parcourus des chemins différents après leur réflexion par l'objet :

$$\begin{aligned}
 I(\mathbf{r}, z) &= I_0 \left\{ 1 + \left[\cos\left(\frac{2\pi}{p}x + \frac{2\pi}{p}z \frac{\partial W}{\partial x}(x, y)\right) + \cos\left(\frac{2\pi}{p}y + \frac{2\pi}{p}z \frac{\partial W}{\partial y}(x, y)\right) \right] \right. \\
 &\quad \left. + \frac{1}{2} \left[\cos\left(\frac{2\pi}{p}(x+y) + \frac{2\pi}{p}z \frac{\partial W}{\partial(x+y)}(x, y)\right) + \cos\left(\frac{2\pi}{p}(x-y) + \frac{2\pi}{p}z \frac{\partial W}{\partial(x-y)}(x, y)\right) \right] \right\},
 \end{aligned} \tag{4.2}$$

ou I_0 correspond à l'intensité de l'interférogramme en $z = 0$ et $W(x, y)$, la différence de marche associée. C'est donc la projection du réseau de diffraction qui est mesurée dans le plan de la caméra CCD. En raison de la forme du front d'onde incident au niveau du masque, chaque projection est déviée de la direction initiale par rapport à un front d'onde plan de référence, d'une quantité δ :

$$\delta(x, y) = -z \nabla W(x, y), \tag{4.3}$$

avec z la distance entre le MHM et le plan de la CCD, et ∇ le gradient. Le gradient de la différence de marche est ensuite reconstruit par démodulation de l'interférogramme mesuré. Il en résulte deux gradients du déplacement hors-plan suivant les directions x et y :

$$\begin{pmatrix} H_x \\ H_y \end{pmatrix} = \frac{2\pi}{p} z \begin{pmatrix} \frac{\partial W}{\partial x} \\ \frac{\partial W}{\partial y} \end{pmatrix},$$

qui sont ensuite recombinaés pour obtenir une cartographie 2D en phase issue des variations de différence de marche provoquées par l'objet ; cette procédure est résumée en figure 4.6.

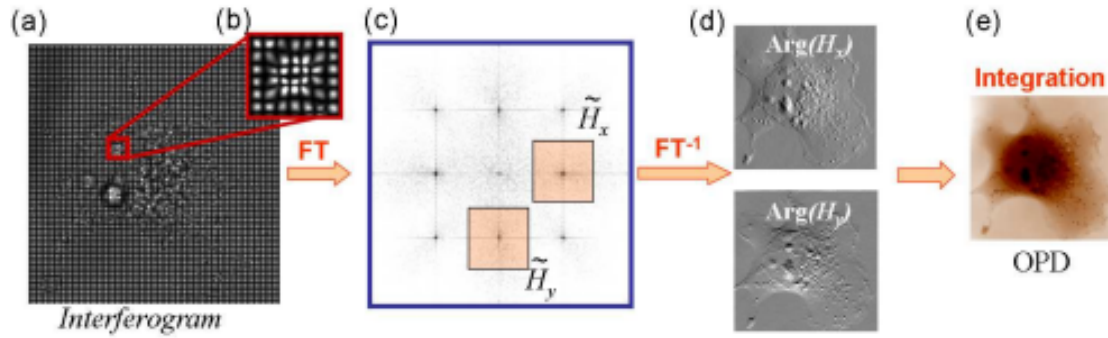


Figure 4.6 – a) Interférogramme obtenu à partir de la réflexion d'un front d'onde plan déformé par un objet et b) zoom sur une zone de a) qui met en évidence la fréquence de modulation imprimée par le MHM. c) transformée de Fourier de a). d) Images du déplacement hors-plan mesuré et démodulé. e) Recombinaison des deux gradients pour reconstruire la cartographie du déplacement hors-plan total. Figure extraite de [123].

Cette dernière procédure est donc réalisée grâce à un programme fourni avec la caméra. Comme l'information de phase est encodée dans la fréquence de modulation de l'interférogramme, cette dernière ainsi que l'amplitude du signal peuvent être déterminées indépendamment l'une de l'autre. Puisque quatre ordres diffractés sont nécessaires pour reconstruire un pixel sur l'image de phase, il en résulte une diminution de la résolution spatiale par quatre par rapport à l'image initialement mesurée en amont du MHM. Malgré cette dernière limitation, la résolution spatiale des cartographies de phase reste amplement suffisante pour fournir un résultat fiable.

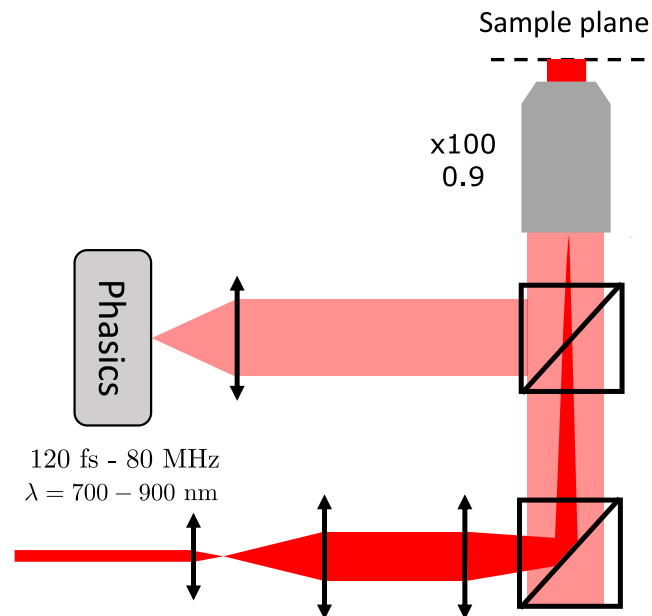


Figure 4.7 – Schéma du dispositif expérimental : combinaison d'un objectif x100 d'ouverture numérique 0.9 et d'une caméra de phase tout deux montés sur un microscope optique. Pour utiliser la caméra de phase, il est important d'éclairer l'échantillon en onde plane, ce qui demande de focaliser le faisceau sur la pupille d'entrée de l'objectif. Les caractéristiques du laser utilisé pour cette série de mesure sont les mêmes que pour l'acoustique.

En plus de la géométrie de l'objet, les plasmons en surface du métal, sont connus pour modifier la phase de l'onde incidente de $\pi/2$ à la réflexion, s'ils sont excités. La géométrie et les dimensions des objets étudiés ont donc été déterminées de telle sorte que la fréquence plasmon des électrons en surface de l' Au soit excitée afin de quantifier ce saut de phase à l'aide du dispositif décrit plus haut. Toutes les cartographies de phase et d'amplitude montrées dans cette partie ont été obtenues avec le dispositif expérimental schématisé en figure 4.7 qui consiste en la combinaison d'un objectif $\times 100$ d'ouverture numérique 0.9 et d'une caméra de phase, tout deux montés directement sur un microscope optique. Pour assurer un bon contraste d'image et surtout une bonne reconstruction de la phase sur les dimensions caractéristiques de l'échantillon, il est nécessaire d'éclairer l'échantillon en onde plane, réalisable en focalisant le laser sur la pupille d'entrée de l'objectif, de la même manière que pour l'imagerie champ sombre.

4.2 Résultats expérimentaux sur des objets individuels et des arrangements spatiaux périodiques et désordonnés de nanoparticules d' Au

A la différence de la partie acoustique où les distributions désordonnées ont pu directement être étudiées, une étape indispensable a consisté à caractériser expérimentalement les NPs d' Au fabriquées à l'IEMN de Lille. A cette fin, un premier échantillon avec des objets individuels de différents rayons séparés d'une dizaine de μm a été fabriqué dans le but d'identifier la dimension caractéristique qui offre la meilleure réponse plasmonique à la longueur d'onde centrale de la gamme d'accordabilité du laser utilisé (700–900 nm), soit $\lambda = 800$ nm. En plus des objets individuels, une série de réseaux périodiques a été fabriquée sur le même échantillon avec les mêmes variations de rayon, et avec des périodes différentes entre les piliers d'un réseau à l'autre. En plus de déterminer expérimentalement les dimensions des NPs individuelles pour optimiser la résonance plasmon à 800 nm, ce premier échantillon a aussi permis de caractériser leur comportement lorsqu'elles sont organisées périodiquement. Enfin, une dernière série d'échantillon a été fabriquée avec les dimensions caractéristiques optimales (rayon et période) mais cette fois-ci en faisant progressivement varier le niveau de désordre σ d'une distribution à l'autre. Ce dernier échantillon a donc offert la possibilité d'étudier expérimentalement la réponse spectrale d'un ensemble de NPs d' Au en brisant les relations de phase qui règnent entre elles par l'introduction progressive d'un désordre plus ou moins contrôlé.

4.2.1 Caractérisation de nanoparticules d' Au individuelles et en réseaux périodiques

4.2.1.1 Piliers individuels

La géométrie de ce premier échantillon schématisé en figure 4.8 a été déterminée par le calcul de telle sorte que la résonance plasmonique de la structure soit excitée à $\lambda = 800$ nm. En raison des incertitudes de fabrication, en particulier sur l'épaisseur de SiO_2 et le diamètre φ des particules d' Au, plusieurs diamètres dans une gamme $\varphi = 5$ à 245 nm ont été nécessaires. Compte-tenu de la gamme d'accordabilité restreinte du laser, et de la sensibilité de la réponse plasmonique à la longueur d'onde d'excitation vis-à-vis des incertitudes de fabrication, cette étape s'est avérée primordiale avant d'étudier des ensembles de NPs et a demandé plusieurs itérations avec la nanofabrication.

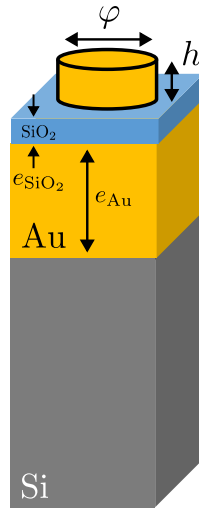


Figure 4.8 – Schéma de la géométrie visée à la fabrication. Les piliers en Au de diamètre $5 < \varphi < 245$ nm et de hauteur $h = 100$ nm reposent sur un plan de masse en Au d'épaisseur $h_{Au} = 100$ nm séparés par une fine couche de SiO_2 d'épaisseur $e_{SiO_2} = 20$ nm.

On donne en figure 4.9 a) et b) la configuration expérimentale et les images correspondantes de l'intensité du champ réfléchi par les piliers individuels de diamètres allant de $\varphi = 5$ à 245 nm.

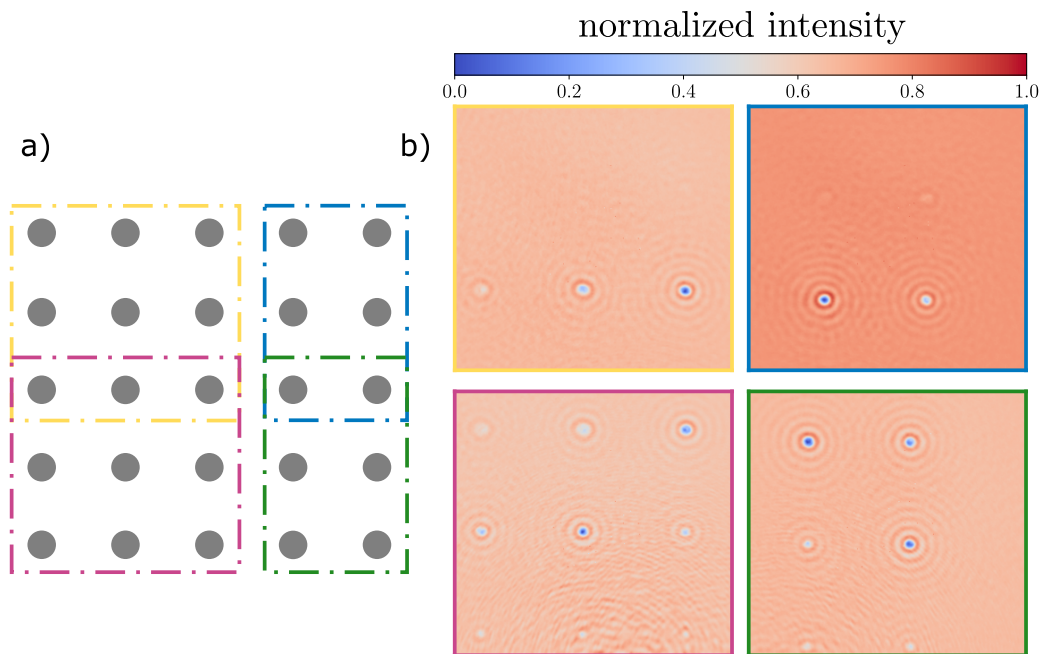


Figure 4.9 – a) Mise en évidence des piliers sur lesquels la mesure a été effectuée. b) Cartographies de l'intensité du champ réfléchi par des piliers individuels à une longueur d'onde d'excitation $\lambda = 800$ nm. Le diamètre des piliers en Au varie de $\varphi = 5$ à 245 nm, ils sont espacés de $10 \mu m$ les uns des autres.

Bien que la majorité des piliers ne soient pas visible avec un éclairage en lumière blanche et l'objectif $\times 100$, ils sont détectés par la caméra de phase à partir de $\varphi = 105$ nm (premier pilier de la troisième ligne). Les variations de phase correspondantes du front d'onde réfléchi sont données en figure 4.10. Une représentation en 1D permet de mieux appréhender les variations correspondantes en fonction du rayon des piliers imagés.

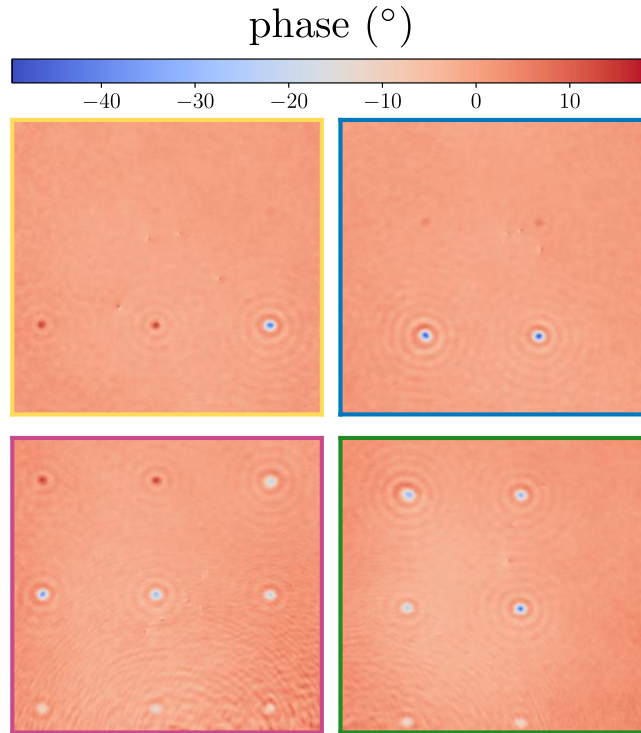


Figure 4.10 – Cartographies des variations de phase du champ réfléchi par les piliers individuels à une longueur d’onde d’excitation $\lambda = 800$ nm. Le diamètre des piliers en Au varie de $\varphi = 5$ à 245 nm, ils sont espacés de $10 \mu\text{m}$ les uns des autres. L’échelle de couleur quantifie les variations de phase en degré.

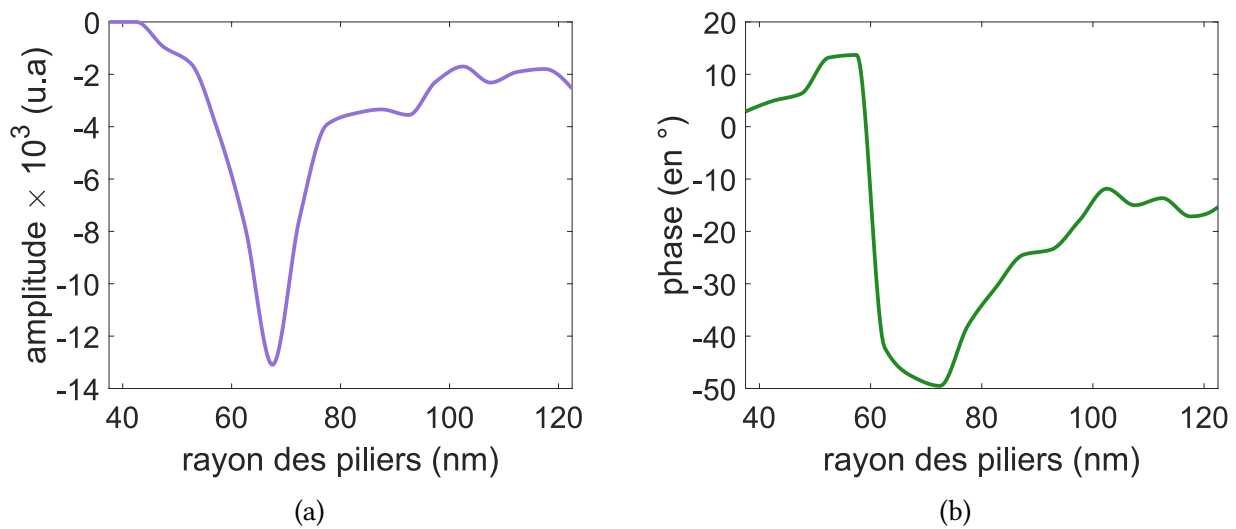


Figure 4.11 – **a)** Intensité et **b)** phase du champ réfléchi par les piliers individuels en fonction de leurs rayons. Ces courbes sont directement obtenues à partir des images en figures 4.9 et 4.10.

Que ce soit en amplitude ou en phase, ces mesures suggèrent de fortes variations d’amplitude et de phase ($\sim 65^\circ$) au passage d’un rayon de piliers de 60 à 70 nm, caractéristique d’une résonance plasmonique : 4.11(a) et 4.11(b). Comme le montrent les calculs, la période entre les piliers d’un réseau périodique n’influence que peu la position de la fréquence plasmon, bien que cela ait un effet significatif sur la dynamique de cette résonance. Ces derniers résultats suggèrent donc que la

résonance plasmon devrait être visible sur les réseaux dont les piliers ont un rayon de 60 à 70 nm, indépendamment de la période de ces derniers.

4.2.1.2 Réseaux périodiques

En plus des piliers individuels, plusieurs séries de réseaux périodiques de NPs d'Or ont été fabriquées, dont une image de l'échantillon³ éclairé en lumière blanche est donnée en figures 4.12 a) et b). Le diamètre φ des NPs varie par pas de 5 nm d'une ligne à l'autre d'une série de réseau, à période constante. En revanche cette dernière augmente progressivement d'une série à l'autre puisqu'elle évolue de 220 nm (pour les séries les plus à droite) à 920 nm. Le diamètre des NPs varie de 30 à 198 nm sur l'ensemble de l'échantillon. Il est remarquable sur cette image en lumière blanche que les réseaux réfléchissent une couleur préférentielle en fonction de leurs diamètres, visible à l'irisation de l'échantillon d'une ligne à l'autre. C'est exactement le même phénomène physique qui a fait en partie la renommée de la fameuse *coupe de Lycurgue*, connue pour ses propriétés dichroïques. Cette coupe, composée d'un mélange de verre avec des NPs d'Or et d'Ag incrustées, sont responsables de son changement de couleur suivant l'angle avec lequel elle est observée [130, 131]. En cause, l'excitation de la résonance plasmon des NPs qui composent la coupe, caractéristiques de ce changement de couleur. L'observation de cette iridescence de l'échantillon est un excellent indicateur que les piliers ont effectivement la bonne dimension et que les résonances plasmoniques seront alors localisées dans le spectre visible et excitables avec le laser accordable à disposition.

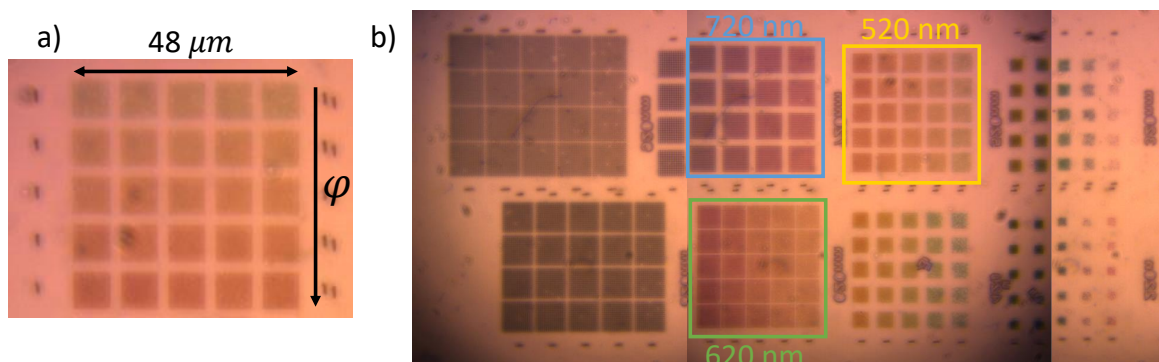


Figure 4.12 – a) Image d'une série de réseaux à période constante entre les piliers, le diamètre φ des particules augmente d'une ligne à l'autre par pas de 5 nm. b) Image de l'ensemble de l'échantillon éclairé en lumière blanche. Les périodes varient de 220 à 920 nm par pas de 100 nm d'une série de réseau à l'autre, et les diamètres varient de 30 à 198 nm. Les zones de couleur désignent les séries de réseau sur lesquelles les mesures ont été faites avec la caméra de phase.

Mesures champ sombre

La première étape pour caractériser les résonances plasmoniques consiste à éclairer l'ensemble de l'échantillon (on utilise un objectif x50 pour cette mesure) avec une onde plane. De cette manière, les cellules qui réfléchissent de la lumière aux grands angles – en raison d'une résonance plasmonique – apparaissent en surbrillance sur les images en figures 4.13 a) – c). Comme attendu, compte-tenu de l'iridescence de l'échantillon lorsqu'il est éclairé en lumière blanche, les zones de surbrillance se déplacent sur les séries de réseaux en fonction de la longueur d'onde d'excitation, mis en évidence par les zones rouges sur les images.

3. On utilisera le terme de cellule pour désigner un réseau périodique, série de réseau pour désigner un ensemble de période constante et échantillon pour parler de l'ensemble des périodes en figure 4.12 b).

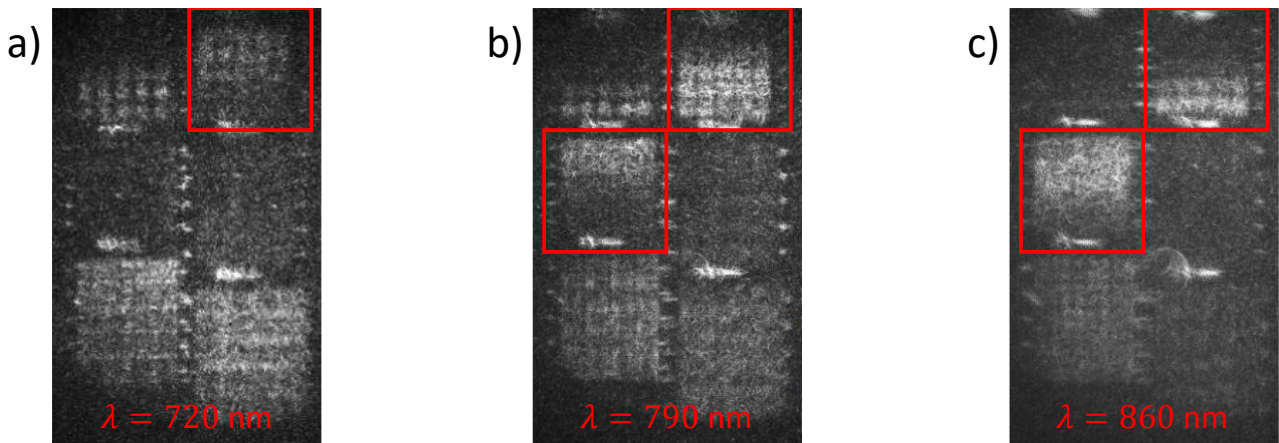


Figure 4.13 – Images champ sombre de la réflexion d’une onde plane par la métasurface avec un objectif x50 pour différentes longueurs d’onde d’excitation **a)** $\lambda = 720 \text{ nm}$, **b)** $\lambda = 790 \text{ nm}$, et **c)** $\lambda = 860 \text{ nm}$. Les cadres rouges mettent en évidence le glissement de la résonance plasmonique des réseaux périodiques vers les plus grands rayons à mesure que la longueur d’onde d’excitation augmente.

En reportant le rayon des particules en surbrillance à l’image, on reconstruit les variations de la taille des piliers résonants en fonction de la longueur d’onde d’excitation en figure 4.14 pour les points mesurés que l’on compare aux simulations numériques réalisées dans l’équipe DOME de l’IEMN de Lille.

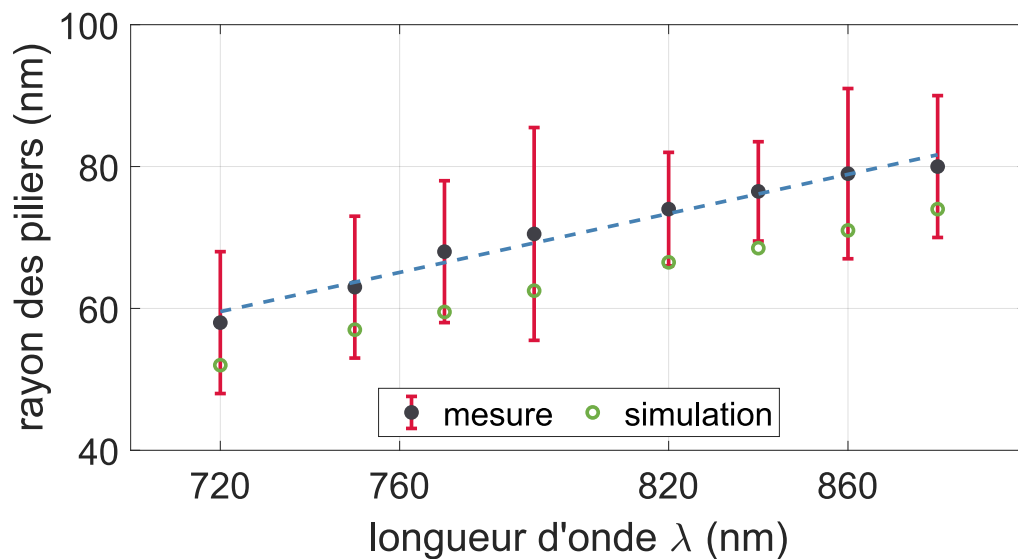


Figure 4.14 – Evolution de la taille des piliers résonants des différents réseaux périodiques en fonction de la longueur d’onde d’excitation λ pour la mesure et le calcul. La ligne discontinue souligne le caractère linéaire de cette augmentation.

Que ce soit avec les mesures comme avec les simulation numériques, le rayon des nanoparticules qui résonnent augmente de manière linéaire avec la longueur d’onde d’excitation, comme le montre la ligne discontinue, qui est une régression linéaire calculée à partir des points expérimentaux. Outre le caractère linéaire de cette évolution, l’augmentation du rayon des piliers résonants avec la longueur d’onde est quelque chose d’attendu au regard de l’image de l’échantillon en lumière blanche.

En effet, pour les plus petits rayons, c'est majoritairement les basses longueurs d'onde qui sont réfléchies (bleu), là où les plus grands rayons réfléchissent principalement du rouge. Cette mesure montre finalement que ce comportement est similaire pour une source monochromatique. Bien que le rayon des NPs de la simulation numérique soit couvert par les barres d'erreurs des points de mesure, il est à remarquer que ces derniers sont systématiquement inférieurs d'environ 5 nm. Le rayon des NPs de l'échantillon étant celui indiqué sur le masque directement, il est très probable que cet écart soit lié à des incertitudes de fabrication puisqu'il est en pratique compliqué d'obtenir exactement le diamètre visé, surtout à ces échelles de grandeurs. Un autre facteur peut se trouver dans l'entrée des propriétés optiques de l'Au dans le calcul qui sont très certainement légèrement différentes de l'Au qui a réellement servi à la fabrication de l'échantillon.

Caméra de phase

Les variations de l'intensité et de la phase (en $^{\circ}$) du champ réfléchi mesurées à la caméra de phase pour une longueur d'onde d'excitation $\lambda = 800$ nm sont représentées en figures 4.15a) et b) pour les périodes $p = 520$, $p = 620$, et $p = 720$ nm observées au champ sombre.

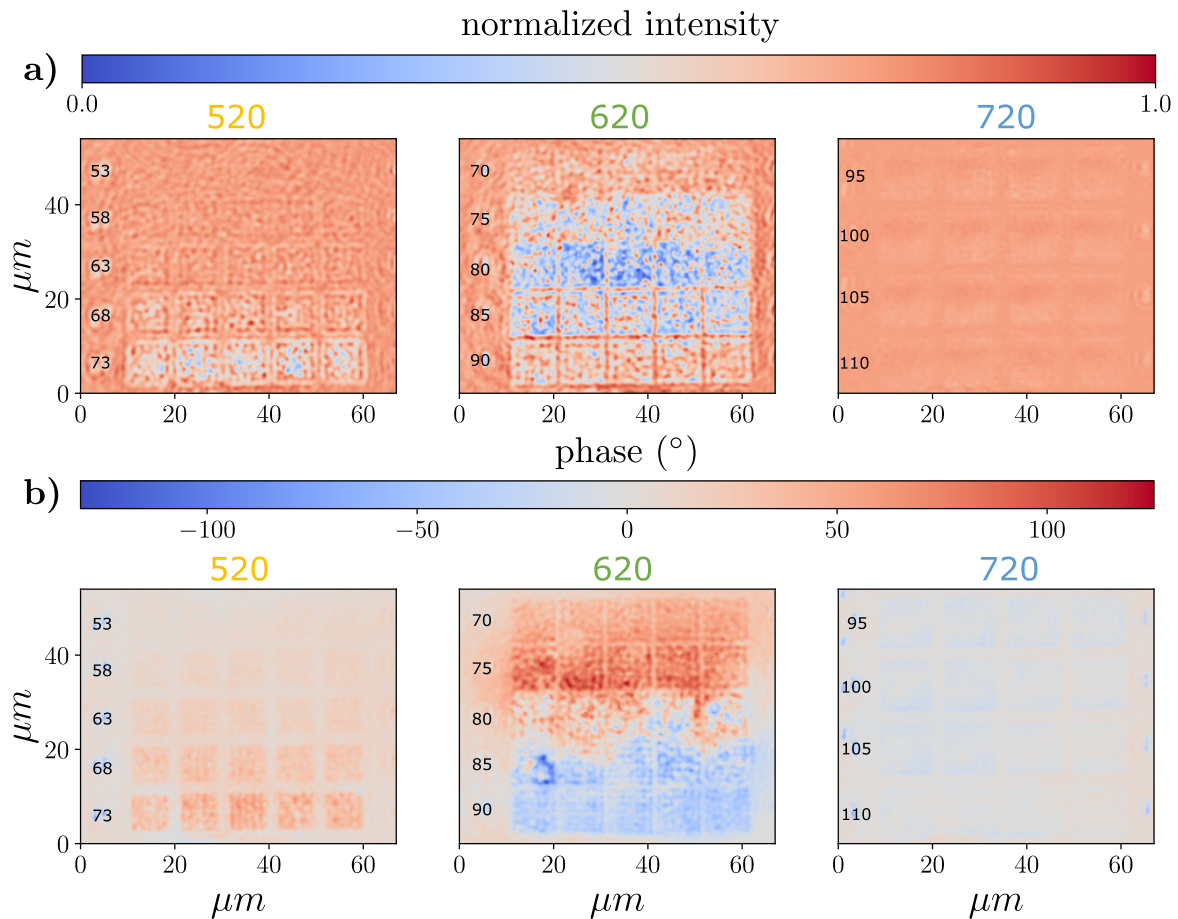


Figure 4.15 – Cartographies $67 \times 54 \mu\text{m}^2$ de **a)** l'intensité normalisée et **b)** la phase (en $^{\circ}$) du champ réfléchi par des réseaux périodiques de nanoparticules d'Or, à la longueur d'onde d'excitation $\lambda = 800$ nm. Les périodes entre les nanoparticules des réseaux évoluent d'une image à l'autre et sont de 520, 620 et 720 nm, respectivement. Le rayon des piliers de chaque ligne est indiqué en nm sur les images.

Ces images révèlent d'importantes variations en intensité et en phase, en particulier au passage sur

les piliers de diamètre 80 nm. En effet, ces dernières augmentent progressivement pour les périodes de 520 et 620 nm à mesure que le diamètre des NPs augmente jusqu'à ne plus avoir aucune influence sur la réflexion de l'onde pour des diamètres supérieurs à 90 nm. En raison du caractère monochromatique de la source qui excite la métasurface et la géométrie étudiée, une démarcation plus nette entre les piliers qui résonnent et ceux qui ne résonnent pas serait attendue, en particulier sur les variations de phase. Le côté marbré de cette démarcation est à attribuer aux incertitudes de fabrication sur l'obtention du diamètre exacte des NPs, 80 nm étant le diamètre visé, il existe toujours une faible dispersion de ces derniers autour de cette valeur, induisant ainsi des fluctuations de phase très rapides dans l'image.

Afin de gommer cette dispersion du diamètre des particules, mais aussi pour avoir une meilleure représentation de la dynamique du saut de phase correspondant, un traitement des images par rayon de piliers s'avère pertinent. A cette fin, chacune des cellules pour les trois périodes sont sélectionnées sur les images et sont moyennées pour les différents rayons de piliers à disposition. Mis bout à bout, on reconstruit les variations d'amplitude et de phase du champ réfléchi par la métasurface en fonction du rayon des NPs, comme illustré en figure 4.16(a) et 4.16(b).

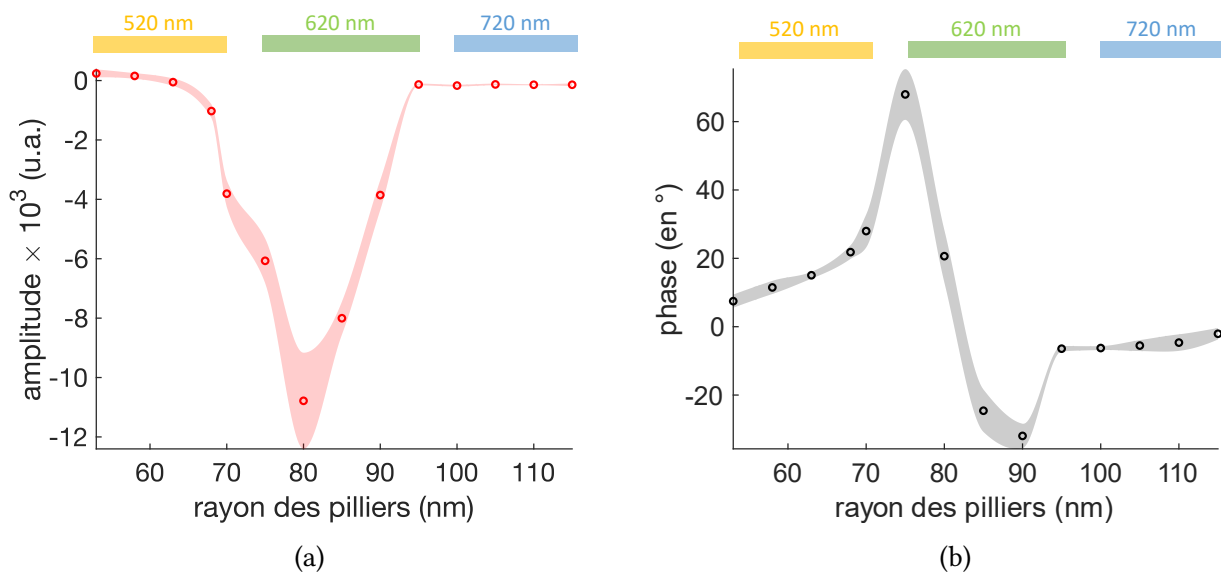


Figure 4.16 – Variations **a)** d'amplitude et de **b)** phase du champ réfléchi par les réseaux périodiques de nanoparticules en fonction de leurs rayons. Les zones autour des points de mesure représentent l'erreur correspondante. La période des réseaux de chacun des points de mesure est indiquée en couleur en haut de la figure.

Ces résultats mettent en évidence la très grande sensibilité de la phase du champ électromagnétique vis-à-vis des dimensions caractéristiques des NPs d'Or tant ses variations sont rapides et pour une gamme de diamètres restreinte. Les mesures rapportent des variations de phase $\Delta\phi = 100 \pm 7.2^\circ$ donc très proche de $\pi/2$, là où le modèle de Drude prévoit un saut de phase de π . Afin de s'assurer de la fiabilité de la réponse de la caméra de phase à ces variations, une simple lame avec deux épaisseurs de dépôt d'Or a été fabriquée, la différence d'épaisseur ($\lambda/4$) ayant été calculée pour imprimer une différence de phase totale de π à la réflexion de l'onde. Une comparaison des résultats de mesures sur la métasurface et le miroir π est donnée en figures 4.17(a) et 4.17(b) pour l'intensité et la phase du champ réfléchi, sont aussi ajoutés les résultats obtenues sur les piliers individuels. Même si dans le cas des réseaux périodiques, les variations sont liées à des résonances plasmoniques (ce qui n'est

pas le cas pour le miroir), les dynamiques de variation sont bien reproduites, ce qui permet d'avoir une bonne confiance dans les résultats obtenus.

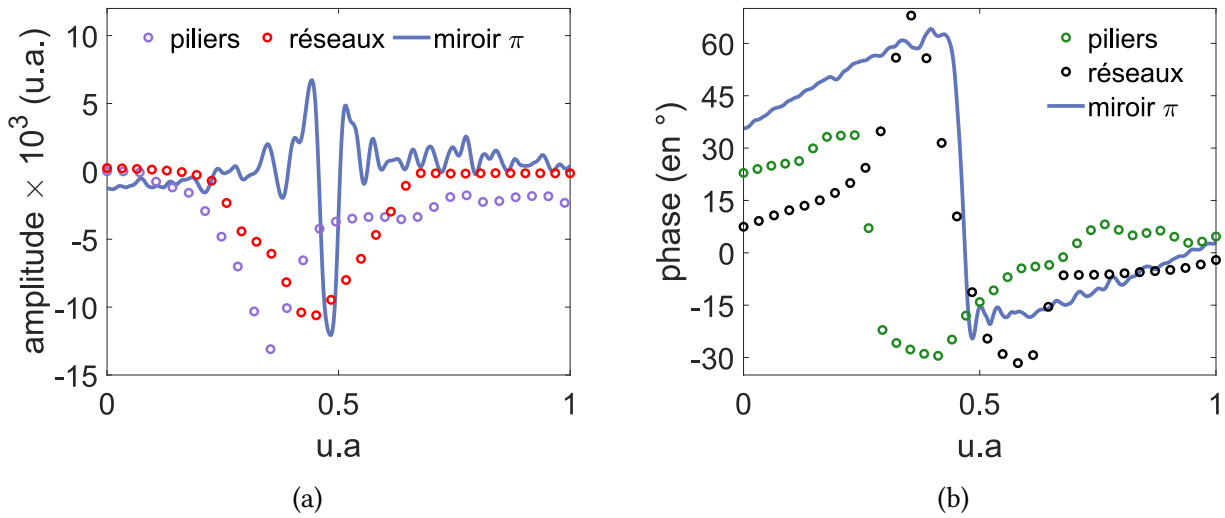


Figure 4.17 – Comparaison des **a)** amplitude et **b)** phase du champ réfléchi par les réseaux périodiques de nanoparticules en fonction de leurs rayons avec un miroir π et les piliers individuels. Le miroir π consiste en une marche en Au dont la hauteur a été calculée pour imprimer un déphasage total de π à l'onde réfléchie. Les quantités en abscisses sont arbitraires pour assurer la comparaison entre la lame et les résultats sur les piliers individuels et les réseaux.

Même si ces résultats sont en bon accord les uns par rapport aux autres, la dynamique des variations de phase pour le miroir π et le réseau périodique semblent sous-estimés par la caméra de phase. En effet, une étude précédente par Demichel *et al.* sur ce même miroir rapporte un saut de phase de π à la réflexion du front d'onde [132]. Il s'agit là d'une des limitations de la caméra Phasics qui s'avère plus adaptée pour mesurer de faibles variations de phase en raison de la distance fixe entre le MHM et le détecteur. Malgré tout, cette mesure met en évidence d'importants effets de la résonance plasmon d'un réseau périodique de NPs sur la phase du champ électromagnétique réfléchi. Outre la sous-estimation des variations de phase, la comparaison avec les résultats sur les piliers individuels met en évidence deux différences : en termes de dynamique et de dimensions caractéristiques des objets résonants. En effet, le saut de phase se situe pour des diamètres différents : autour de 70 nm pour les objets individuels contre 80 nm dans le cas des réseaux périodiques, mais cela n'est pas nécessairement à imputer à cette différence de géométrie. Plusieurs répliques de cet échantillon (piliers individuels + réseaux périodiques), avec exactement les mêmes dimensions pour les NPs ont été fabriquées sur un même substrat, mais pour des paramètres de fabrication légèrement différents.

Le procédé de fabrication des piliers en Au sur la couche de SiO_2 comporte plusieurs étapes. La première consiste à déposer une résine – d'une épaisseur supérieure à celle visée pour les piliers – qui est ensuite irradiée par un canon à faisceau d'électron (lithographie électronique) dont la dose en électron peut-être modifiée à façon. Cette dose, qui correspond à la densité de charges par unité de surface (en $\mu\text{C}.\text{cm}^{-2}$), s'avère avoir un impact majeur sur le diamètre des piliers réellement obtenus par rapport à ce qui a été visé. Plus cette dose est élevée, plus la surface sera irradiée et plus le diamètre du pilier sera grand, il est donc nécessaire de faire plusieurs tests de dose pour savoir quel diamètre sera obtenu à l'issue de la fabrication en fonction de la dose d'électron utilisée, par rapport aux dimensions souhaitées. Une fois les motifs de piliers inscrits dans la résine, de l'or est déposé sur

l'échantillon par vaporisation PVD (pour *physical vapor deposition*) jusqu'à ce que les creux soient remplis. Enfin l'échantillon est placé dans une solution chimique qui attaque la résine qui reste sur l'échantillon, afin de faire ressortir les piliers : c'est la phase de *lift-off* à l'issue de laquelle seuls les piliers d'or déposés dans les régions lithographiées persistent sur l'échantillon. Les mesures sur objets individuels et réseaux périodiques ayant été faites sur des échantillons différents, il n'est pas étonnant de retrouver cette différence de rayon à la résonance. En revanche, la différence de dynamique du saut de phase suggère une intensification du phénomène résonant due à un couplage entre les NPs du réseau par l'isolant, en plus de la résonance individuelle de chaque NP. Bien que la période du réseau modifie légèrement la fréquence de résonance des plasmons de surface, elle pilote surtout l'intensité et la largeur spectrale de ce phénomène.

Fort des résultats expérimentaux obtenus sur cette première génération d'échantillons via le champ sombre et la caméra de phase, une deuxième génération a été fabriquée avec des nanoparticules d'Au de diamètre $\varphi = 160$ nm organisés en réseaux périodiques, et ont été progressivement désordonnés afin d'étudier l'influence du niveau de désordre sur la réponse spectrale de l'ensemble. Cependant cet échantillon n'a donné aucun résultat probant puisqu'aucune résonance plasmonique n'a pu être observée. Il peut y avoir deux raisons à cela : la fréquence plasmon s'avère extrêmement sensible à l'épaisseur de diélectrique qui se trouve entre les piliers et le plan de masse, mais aussi au diamètre des nanoparticules. Un léger écart d'un de ces deux paramètres par rapport à la géométrie souhaitée – en raison d'incertitudes de fabrication – voire des deux en même temps, suffit à propulser cette fréquence de résonance hors de la gamme d'accordabilité du laser utilisé pour une géométrie donnée. En réponse à cela, un dernier échantillon avec une très large gamme de diamètre a été fabriquée pour plusieurs niveaux de désordre et à deux densités différentes dans les derniers mois de ce projet de thèse, et a fait l'objet d'une campagne de mesure.

4.2.2 Caractérisation de métasurfaces périodiques et désordonnés de nanoparticules d'Au

Pour s'assurer de visualiser la fréquence plasmon d'un réseau périodique de NPs d'Au dans la fenêtre d'accordabilité du laser, une large gamme de diamètre a été visée à la fabrication : $50 < \varphi < 180$ nm par pas de 10 nm. Pour chaque diamètre, le niveau de désordre σ a été progressivement augmenté en partant du réseau périodique ($\sigma = 0$) jusqu'à arriver à une distribution de Poisson. Cette variation de désordre contrôlée offre l'opportunité d'étudier l'évolution de la réponse spectrale de l'échantillon en fonction de la longueur d'onde, et pour un rayon de NP donné, ce qui n'était pas le cas sur le précédent. Cette organisation d'échantillon a été fabriquée pour deux densités $\rho = 5$ et 20% puisque cette dernière est su pour avoir un effet sur les caractéristiques de la réponse spectrale, que ce soit sur les réseaux périodiques ou désordonnés. Comme il s'agit de nouveaux échantillons avec des caractéristiques fatalement différentes du premier en raison des incertitudes de fabrication, une nouvelle étape de caractérisation des réseaux périodiques est nécessaire avant de pouvoir étudier les effets du désordre.

4.2.2.1 Réseaux périodiques

Les premières mesures champs sombre vont permettre dans un premier temps d'identifier les réseaux périodiques résonnants et le diamètre des NPs qui les composent, mais aussi de reconstruire la réponse spectrale associée par variation de la longueur d'onde d'excitation. Pour cela des images

ont été prises sur un réseau périodique (de période $p = 750$ nm) composé de NPs d'Au de diamètre $\varphi = 170$ nm, dont une sélection est donnée en figure 4.18.

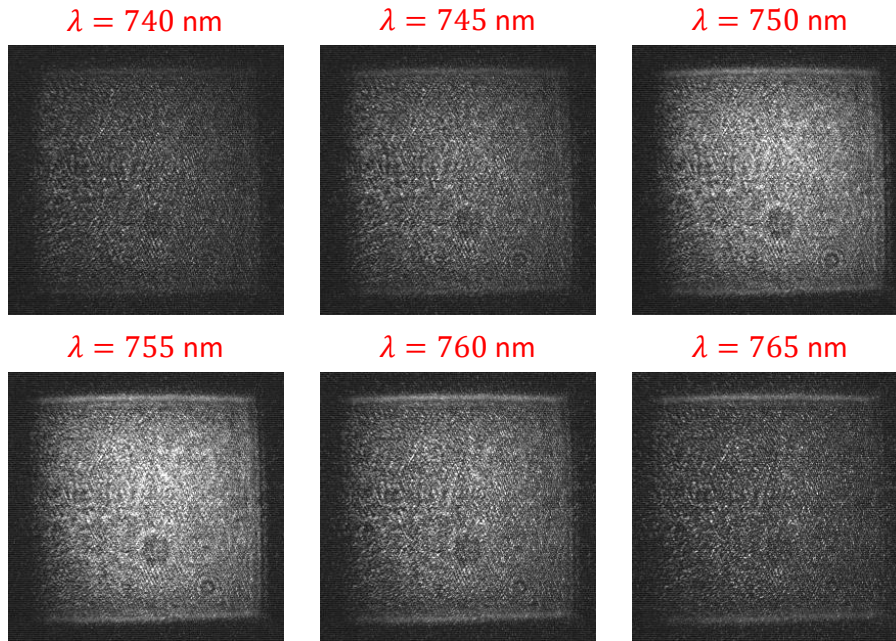


Figure 4.18 – Images champ sombre de l'onde plane réfléchie par un réseau périodique (de période $p = 750$ nm) de nanoparticules d'Au de diamètre $\varphi = 170$ nm pour différentes longueurs d'ondes d'excitations. Les cellules imagées s'étendent sur une zone de $50 \times 50 \mu\text{m}^2$.

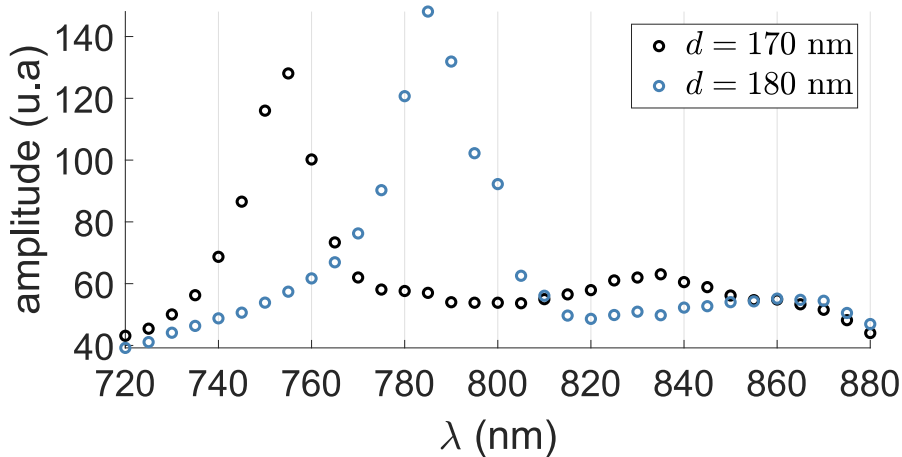


Figure 4.19 – Reconstruction de la réponse spectrale à partir des mesures champ sombre de la réflexion d'une onde plane par deux réseaux périodiques dont le diamètre des nanoparticules d'Au qui les composent $\varphi = 170 - 180$ nm. Ces deux réseaux sont à densité constante $\rho = 5\%$, donc la période p entre les piliers est légèrement différente pour les deux réseaux puisque $p_{170} = 750$ nm et $p_{180} = 792$ nm.

Cette fois-ci, le diamètre des NPs ne change pas au sein d'un réseau périodique, c'est donc l'entière de la zone qui apparaît en surbrillance ou non en fonction de la longueur d'onde d'excitation. Les mesures suggèrent une forte réflexion aux grands angles du réseau pour une longueur d'onde d'excitation $\lambda \sim 755$ nm, caractéristique d'une résonance plasmonique. En sélectionnant une zone

centrale⁴ sur chacun des champs sombre à chaque mesure, on reconstruit la réponse spectrale du réseau périodique correspondant en fonction de la longueur d'onde d'excitation. La même mesure a été effectuée sur des réseaux périodiques composés de nanoparticules de diamètre $\varphi = 180$ nm, la comparaison de la réponse spectrale pour les deux géométrie est donnée en figure 4.19.

Ces deux réseaux périodiques résonnent à $\lambda = 755$ et $\lambda = 785$ nm pour des diamètres de piliers de $\varphi = 170$ et $\varphi = 180$ nm, respectivement. Donc pour une variation de diamètre $\Delta\varphi = 10$ nm, il faut modifier la longueur d'onde d'excitation de 30 nm, écart aussi retrouvé par les simulations numériques. A noter que l'on retrouve à nouveau cette augmentation de longueur d'onde pour exciter la résonance de piliers de plus grande dimension. La même mesure a été effectuée pour des diamètres $d = 160$ nm mais aucune résonance n'a pu être observée à, et en dessous de ce diamètre. Même si la limite basse d'accordabilité du laser est à $\lambda = 700$ nm, les optiques ainsi que la caméra utilisée pour le champ sombre sont moins sensibles à ces longueurs d'onde. Par ailleurs, il est particulièrement intéressant de constater que la dynamique de la réponse spectrale de l'ensemble est légèrement différente suivant le rayon des NPs qui les composent. Les réseaux périodiques de cet échantillon ont été construits à densité constante $\rho = 5\%$. Pour maintenir une même densité d'un réseau à l'autre mais avec des diamètres différents, c'est la période spatiale entre piliers qui a été modifiée.

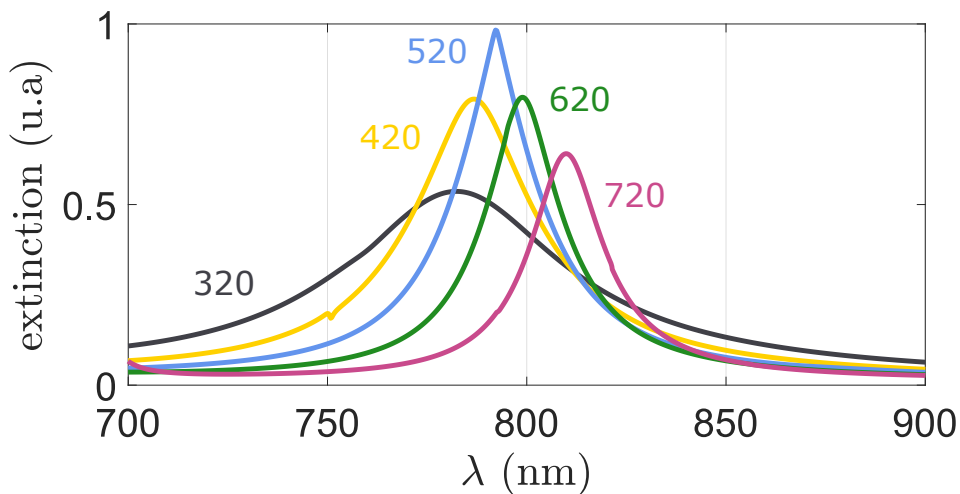


Figure 4.20 – Intensité de la réponse spectrale de réseaux périodiques de nanoparticules d'Or de hauteur $h = 100$ nm et de diamètre $\varphi = 126$ nm en fonction de la longueur d'onde et pour plusieurs périodes spatiales entre $d = 320$ et $d = 720$ nm pour la géométrie considérée.

Dans le cas de réseaux périodiques de nanoparticules, il y a deux types de mécanismes sous-jacents lorsqu'il est question de résonance plasmonique : les plasmons localisés au niveau de chaque NP et ceux qui se situent en surface du plan de masse, et qui se propagent sur quelques μm dans le cas de l'Or à la longueur d'onde d'excitation $\lambda = 800$ nm. Les simulations numériques portant sur l'extinction de la réponse plasmonique d'ensemble de nanoparticules d'Or en fonction de la longueur d'onde pour plusieurs périodes de réseaux en figure 4.20 suggèrent qu'il existe une période optimale qui permet d'exalter la réponse de l'ensemble : on parle alors de mode de réseau. Suivant la période spatiale entre piliers, le couplage entre les NPs est plus ou moins fort, et c'est ce que rapporte la comparaison de la réponse spectrale des deux réseaux en figure 4.19. Cela permet aussi

4. Il ne faut pas inclure les bords des distributions qui sont parfois mal définis où alors plus brillants que le reste de la cellule. Il faut aussi veiller à ne pas prendre une zone trop petite pour avoir un résultat fiable.

d'expliquer pourquoi les variations de phase du champ réfléchi sont plus important dans le cas du réseau périodique que dans le cas des piliers individuels, comme vu précédemment en figure 4.17(b). A noter qu'à mesure que la période spatiale entre piliers augmente, la résonance plasmon se décale lentement vers les grandes longueurs d'onde ce qui a aussi été observée expérimentalement [118] et numériquement [117]. Cela dit, l'écart de 30 nm entre les deux résonances mesurées n'est pas à imputer au changement de période spatiale entre les deux échantillons tant ces dernières sont proches, mais bel et bien à un changement de rayon des piliers.

Maintenant que la résonance de ces deux réseaux périodiques a été identifiée, la suite consiste à étudier l'évolution de leurs réponses spectrales à l'introduction progressive d'un niveau de désordre contrôlé.

4.2.2.2 Distributions désordonnées

Les distributions désordonnées considérées ont été générées en partant du réseau périodique ou les différents points peuvent se déplacer dans une zone imposée. Sur chaque point est apposé une gaussienne dont l'écart-type σ fixe la zone dans laquelle la particule peut se déplacer. C'est donc par l'intermédiaire de l'écart-type de la gaussienne que le niveau de désordre est contrôlé. Le programme permettant de générer ces distributions étant adimensionné, σ ne possède pas de dimension mais varie ici entre 0 et 1, 0 correspondant au réseau périodique et 1 à une distribution de Poisson.

Mesures champ sombre

Les mêmes mesures que pour les réseaux périodiques ont été menées sur des ensembles de particules avec un niveau de désordre croissant, dont les distributions correspondantes sont données en figure 4.21. Là où les distributions à $\sigma = 0.1$ et 0.2 restent relativement proches du réseau périodique, ce n'est plus du tout le cas à partir de $\sigma = 0.3$ où elles apparaissent purement Poissonniennes. La comparaison des mesures champ sombre est synthétisée en figure 4.22 pour les différents niveaux de désordre, y est ajouté la réponse spectrale du réseau périodique de départ. Ces mesures montrent que les effets du désordre se font très rapidement sentir sur la dynamique de la résonance plasmonique des ensembles de NPs d'Or. En plus d'un léger décalage de la résonance plasmon, on constate un affaissement très net de la réponse spectrale puisque l'on passe d'une largeur à mi-hauteur de ~ 31 nm pour le réseau périodique à ~ 45 nm, même pour des niveaux de désordre très faibles ($\sigma = 0.1$). A $\sigma = 0.3$ et au delà, la réponse de l'ensemble apparaît quasiment plate et ne s'éteint jamais vraiment dans la gamme d'accordabilité du laser.

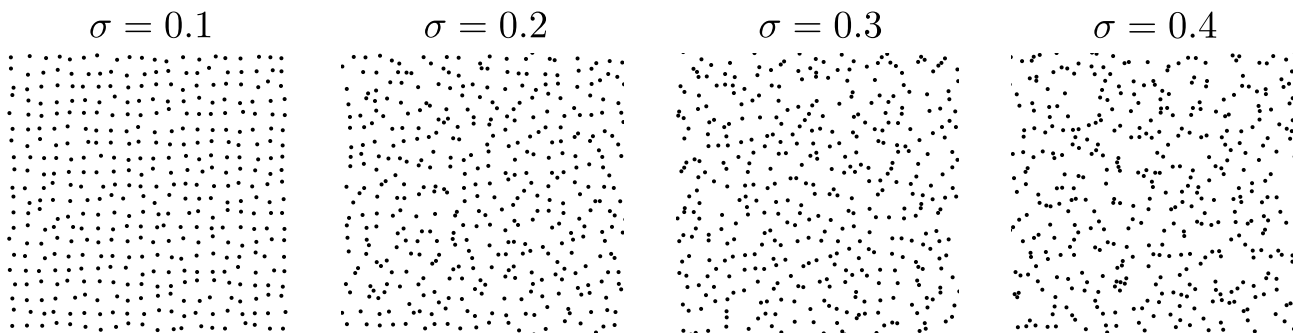


Figure 4.21 – Distributions spatiales des nanoparticules d'Or pour un désordre croissant $\sigma = 0.1 - 0.4$ en partant du réseau périodique.

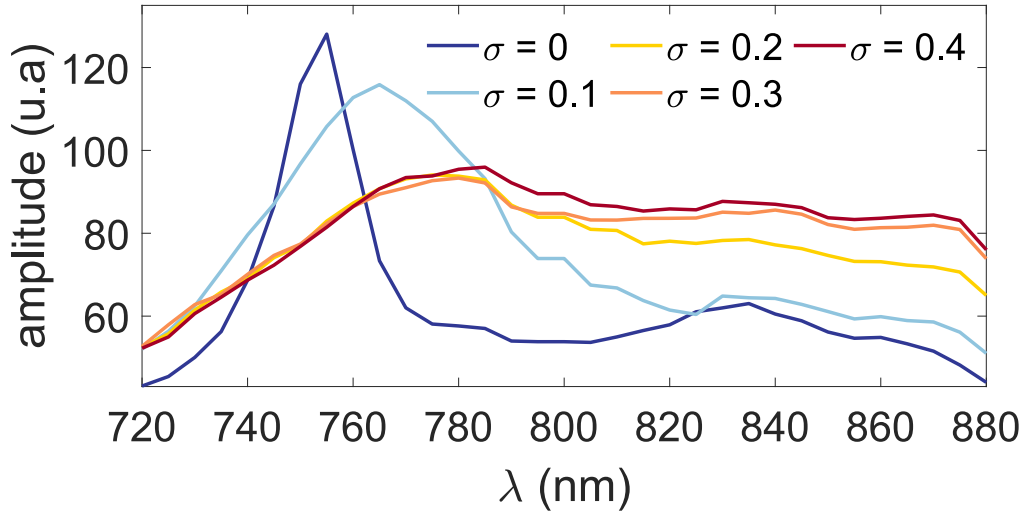


Figure 4.22 – Comparaison de la réponse spectrale pour des nanoparticules d'Or de diamètre $\varphi = 170$ nm pour plusieurs niveaux de désordre σ . Les niveaux de désordre varient de $\sigma = 0$ (réseau périodique) à $\sigma = 0.4$.

Le calcul des facteurs de structure en figure 4.23 des distributions associées permet d'établir un lien direct entre la réponse spectrale et la statistique de la répartition spatiale de piliers.

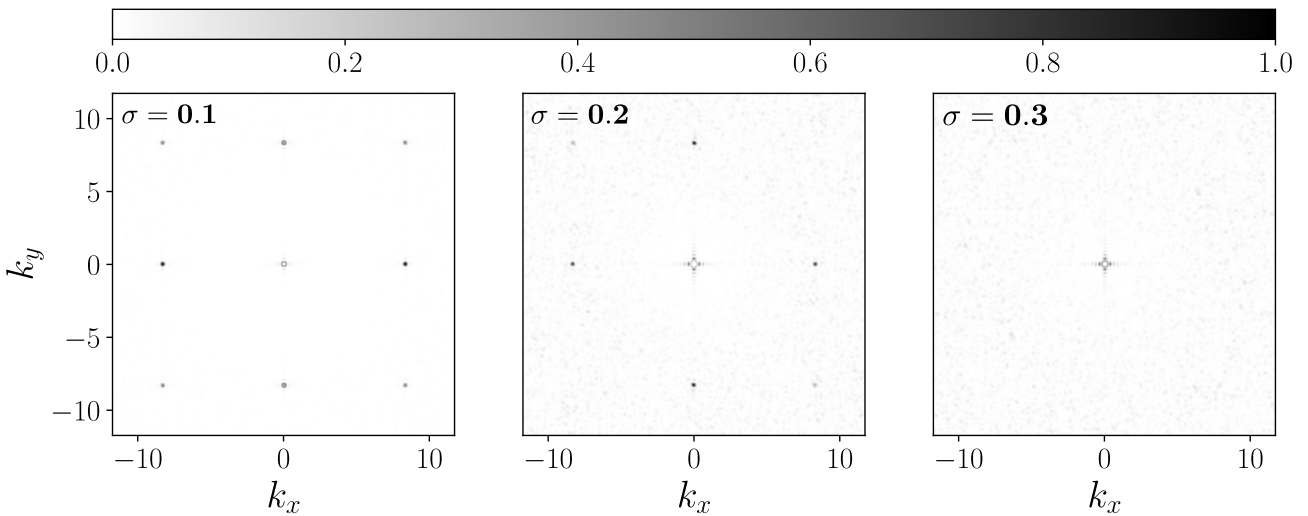


Figure 4.23 – Facteurs de structure $S(\mathbf{k})$ des distributions de points sur lesquelles les mesures ont été effectuées. Le niveau de désordre σ varie de 0.1 à 0.3, pour une densité de nanoparticules d'Or $\rho = 5\%$.

Là où les résultats pour $\sigma \geq 0.3$ sont typiques d'une distribution complètement désordonnée, les faibles niveaux de désordre, $\sigma = 0.1$ et 0.2 font apparaître des pics de Bragg caractéristiques d'une périodicité dans la nature de la distribution. Cela signifie que pour les réseaux périodiques, la lumière sera diffusée suivant des directions privilégiées prédites par la loi de Bragg $\frac{2\pi}{\lambda} \sin \theta = n \frac{2\pi}{L}$ avec θ l'angle d'incidence de la lumière, n l'ordre de diffraction, λ la longueur d'onde de la lumière et L , la période du réseau. Ces ordres diffractés vont tous contribuer de manière cohérente à la réponse spectrale de l'ensemble, d'où la présence d'un pic très marqué pour les faibles niveaux de désordre. En revanche, cette diffusion sera complètement aléatoire pour les niveaux de désordre plus élevés,

il en résulte une répartition de l'énergie diffusée sur une gamme de longueur d'onde plus large.

Un autre moyen d'appréhender la largeur de la réponse spectrale des distributions complètement désordonnées consiste à calculer l'intercorrélation entre les images obtenues via le champ sombre pour les différentes longueurs d'onde, comme illustré en figure 4.24 pour $\sigma = 0.4$. L'image **a)** correspond à la mesure brut à $\lambda = 805$ nm tandis que les autres images **b)–h)** sont issues de l'intercorrélation entre cette première et les mesures à des longueurs d'onde différentes ($\lambda = 810 - 870$ nm). Avant tout, il est intéressant de remarquer que contrairement aux réseaux périodiques, la réponse de la distribution désordonnée n'est plus du tout homogène, tant la répartition de la lumière réfléchie est clairsemée, ce qui suggère des effets locaux. L'intercorrélation entre cette première image et celles à d'autres longueurs d'onde met en lumière la persistance de certains modes localisés au changement de longueur d'onde d'excitation, dont un particulièrement intense est repéré par les cercles rouges. Cela n'a pu être réalisé au cours de cette thèse, mais en éclairant l'échantillon en lumière focalisée⁵, il est parfaitement possible d'étudier ces modes localisés de façon individuelle, comme ce qui a été fait pour la partie acoustique.

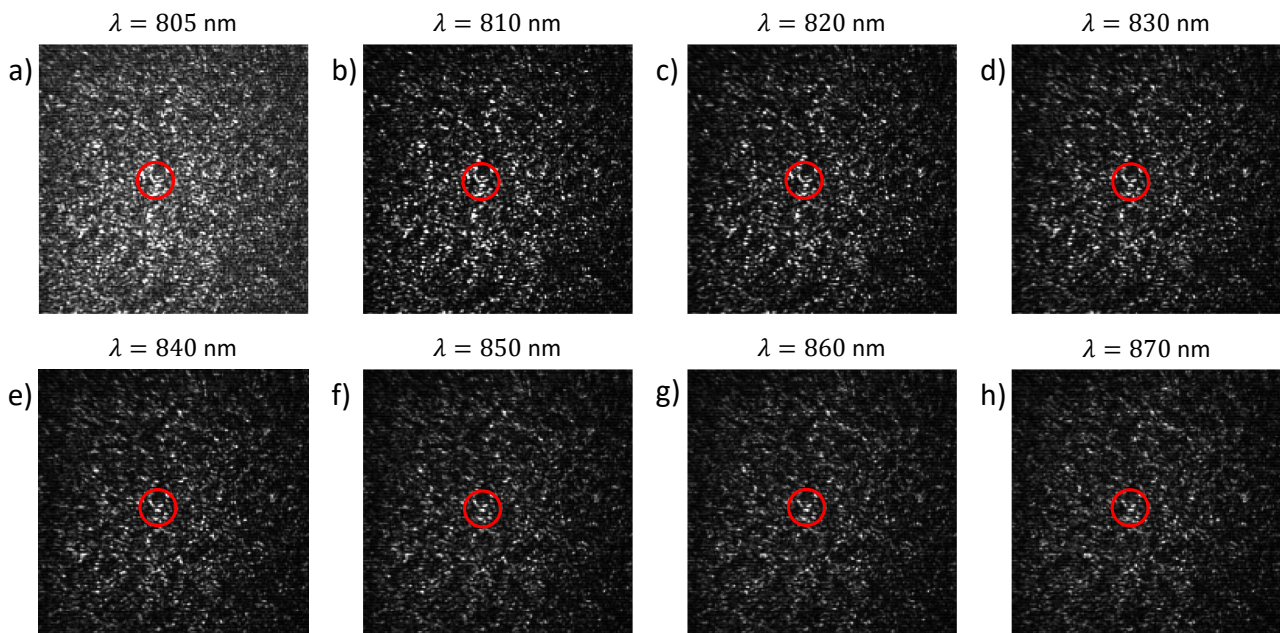


Figure 4.24 – Images champ sombre pour **a)** $\lambda = 805$ nm et intercorrélations avec des images obtenues pour des longueurs d'onde allant de **b)–h)** $\lambda = 810-870$ nm. Les cercles rouges mettent en évidence un mode localisé qui persiste sur une large gamme de longueurs d'onde d'excitation. Le niveau de désordre correspondant est $\sigma = 0.4$ pour une densité $\rho = 5\%$.

5. Ici, toutes les mesures ont été obtenues pour un éclairage en onde plane, possible en focalisant le faisceau laser sur la pupille d'entrée de l'objectif de microscope. Si maintenant, le faisceau laser éclaire l'entièreté de la pupille d'entrée, la lumière en sortie sera focalisée sur l'échantillon.

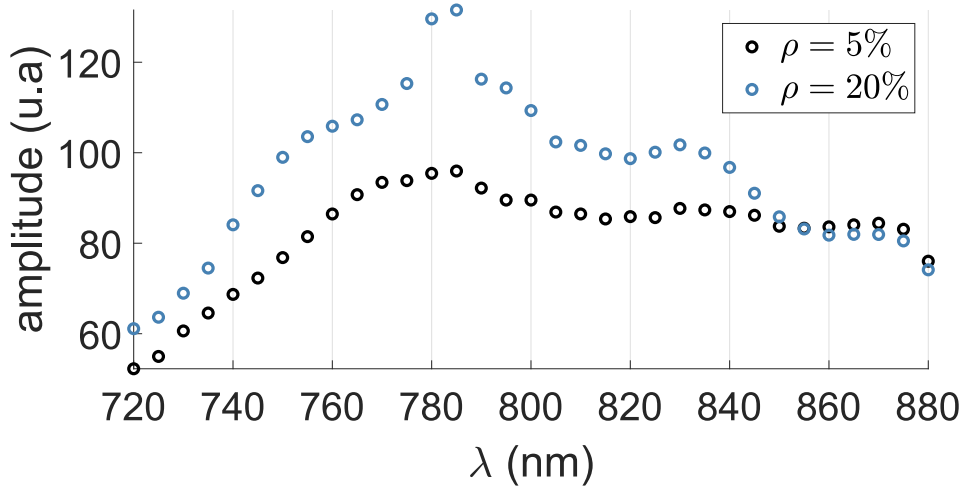


Figure 4.25 – Comparaison de la réponse spectrale pour des nanoparticules d'Or de diamètre $\varphi = 170$ nm avec un même niveau de désordre $\sigma = 0.4$ à deux densités différentes $\rho = 5\%$ et 20% .

Puisque les calculs révèlent des différences de comportement de l'ensemble des NPs lorsque la densité augmente, la même mesure a été effectuée pour une densité $\rho = 20\%$ et est comparée à la densité plus faible, pour un même niveau de désordre $\sigma = 0.4$ en figure 4.25. Il apparaît que la réponse est bien plus piquée autour de $\lambda = 785$ nm, qui correspond aussi au maximum lorsque le désordre augmente à faible densité. Si l'on en croit les mesures précédentes, la visualisation de la fréquence plasmon sera alors très prononcée s'il existe une relation de proximité bien précise entre les piliers du réseau, mettant en évidence un mode d'ensemble. A cela s'ajoute des effets liés à la densité puisqu'une transition s'opère d'un régime d'interaction longue distance (couplage faible) ou la composante principale du champ est dipolaire, à une interaction champ proche (couplage fort) ou une composante quadripolaire s'ajoute au champ réfléchi [133]. Là où à densité faible il est facile d'introduire du désordre, c'est beaucoup moins le cas lorsque la densité de piliers augmente fortement. Pour un même niveau de désordre σ les particules sont bien plus libres de se déplacer à faible densité ($\rho = 5\%$) puisqu'elles interagissent très peu entre elles, contrairement à la densité $\rho = 20\%$ où un ordre partiel s'établit inévitablement. Même si la distribution de piliers semble en apparence complètement désordonnée, le calcul du facteur de structure correspondant en figure 4.26 met en évidence la présence de pics de Bragg, symptôme d'une réminiscence du réseau périodique⁶. Ce sont ces traces du réseau périodique qui sont en partie responsable de cette réponse plus piquée dans le cas d'une forte densité. En marge de cette organisation partielle, l'augmentation de la densité de particule provoque aussi la transition d'un régime d'interaction majoritairement à longue portée (interaction dipolaire) vers un régime de couplage champ proche en raison de la proximité spatiale des particules.

Les mesures champs sombre se sont avérées très efficaces pour identifier les distributions d'intérêts et caractériser leurs réponses spectrales, que ce soit pour les réseaux périodiques ou les distributions désordonnées. Ceci étant, le manque de sensibilité/résolution de cette méthode est un frein pour étudier de façon plus locale les milieux complexes et les effets du désordre sur les plasmons de surface. En raison de sa grande sensibilité, la caméra de phase est idéale pour étudier ce type

6. Ces traces du réseaux périodiques dans le facteur de structure sont uniquement liées à la méthode de génération des distributions de point.

d'échantillons, même si son usage se restreint à des variations lentes de la phase du signal réfléchi ($< 2\pi$).

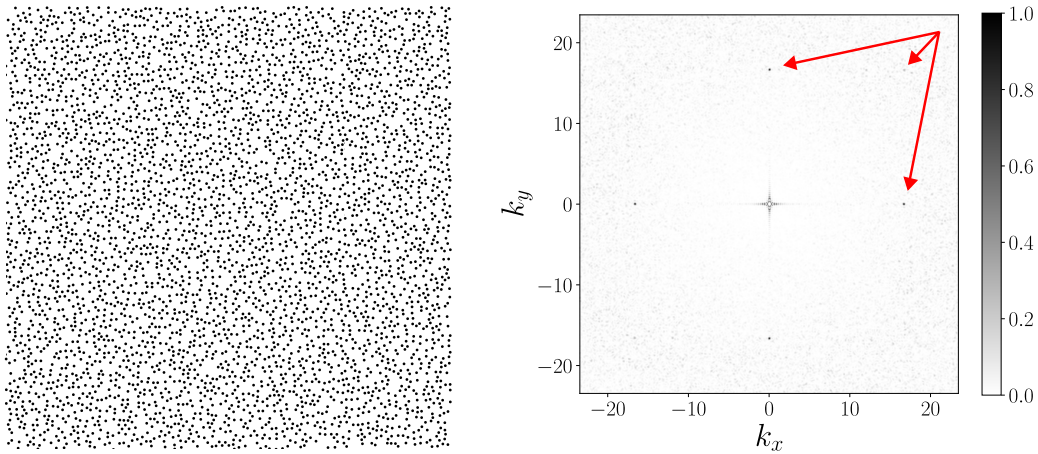


Figure 4.26 – Répartition spatiale des nanoparticules d'Or pour un niveau de désordre $\sigma = 0.4$ à la densité $\rho = 20\%$ et facteur de structure $S(\mathbf{k})$ correspondant. Les flèches rouges mettent en évidence des pics de Bragg signe d'une réminiscence du réseau périodique.

Caméra de phase

Maintenant que la fréquence plasmon d'un réseau de nanoparticules d'Or de diamètre $d = 170$ nm a été identifiée, il convient d'étudier plus quantitativement l'effet du désordre sur la dynamique de cette résonance. Comme le montrent les cartographies de variation de phase du champ réfléchi par la métasurface en figure 4.27 pour un éclairage à $\lambda = 755$ nm, une transition s'opère d'un mode d'oscillation collective pour le réseau périodique, vers une somme de modes individuels pour les désordres plus importants ($\sigma > 0.3$).

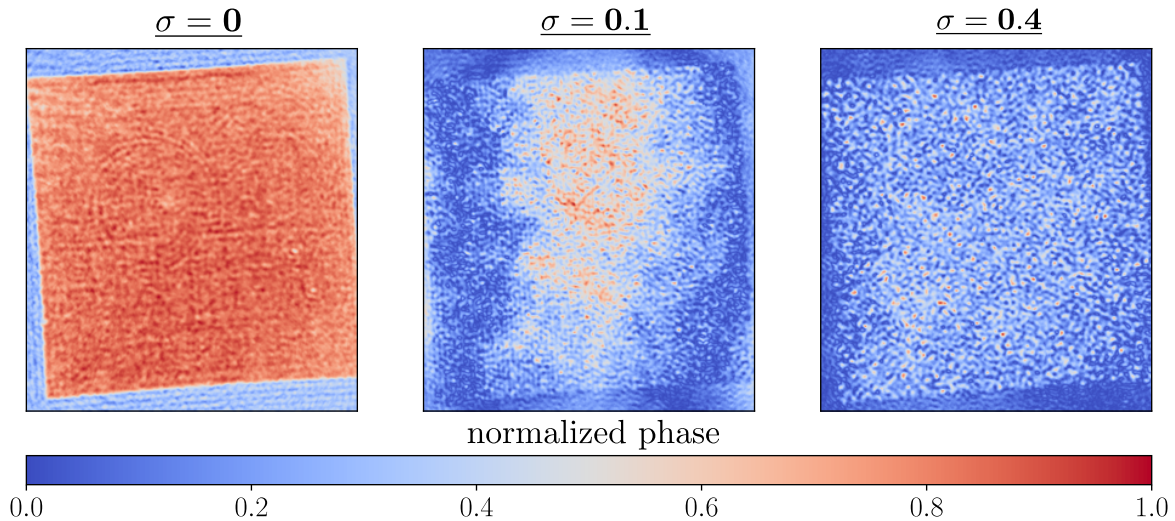


Figure 4.27 – Images des variations de phase de l'onde plane réfléchi par la métasurface pour trois niveaux de désordre : $\sigma = 0$, $\sigma = 0.1$ et $\sigma = 0.4$. Les nanoparticules d'Or de diamètre $d = 170$ nm sont réparties sur une zone de $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ pour une densité $\rho = 5\%$, il y en a donc ~ 4300 . Les échantillons sont éclairés à $\lambda = 755$ nm. L'échelle de couleur rend compte de l'intensité des variations de phase du champ.

Conformément à ce qui a été observé au moyen des mesures champ sombre, il s'agit bien d'un

mode de réseau pour $\sigma = 0$ (cristal). Pour un faible niveau de désordre ($\sigma = 0.1$), la réponse résulte de l'hybridation entre un reliquat du mode de réseau et de modes individuels qui apparaissent à la rupture des relations de phase qui liaient les piliers du réseau. Pour des niveaux de désordres plus élevés ($\sigma > 0.3$), le mode de réseau disparaît complètement pour laisser place à des modes – en apparence – indépendants qui contribuent de manière aléatoire à la réponse spectrale de l'ensemble. Ces images sont à mettre en lien avec les résultats de la figure 4.22 puisque c'est exactement cette transition entre les deux états qui a été mis en évidence grâce aux moyennes sur le champ réfléchi.

Alors que les réseaux périodiques pour des diamètres $d < 170$ nm n'apparaissent pas au champ sombre dans la gamme d'accordabilité du laser, l'introduction du désordre les faisait progressivement revenir à la lumière, c'est pourquoi la même mesure que précédemment a été répétée pour des piliers plus petits. Comme les cartographies ci-dessus suggèrent l'augmentation du nombre de modes avec le désordre, un seuil (arbitraire) a été fixé sur les images et permet de comptabiliser chaque valeur qui le franchit. Cette première constatation est confirmée par la figure 4.28 ou est représenté le nombre de modes individuels en fonction du niveau de désordre, le même seuil a été utilisé pour les deux distributions.

Outre cette augmentation du nombre de modes individuels avec le désordre, cette comparaison montre que le nombre de modes est en moyenne plus important pour la distribution de NPs de diamètre $d = 170$ nm. Il est important de préciser que le nombre de mode a été comptabilisé sur l'intercorrélacion entre les variations de phase et d'amplitude du champ réfléchi qui semble donner un résultat plus robuste. On donne pour exemple des cartographies de variation de phase et d'amplitude du champ réfléchi par des ensembles de NPs de diamètre $d = 140$ nm éclairés à $\lambda = 820$ nm, en figure 4.29.

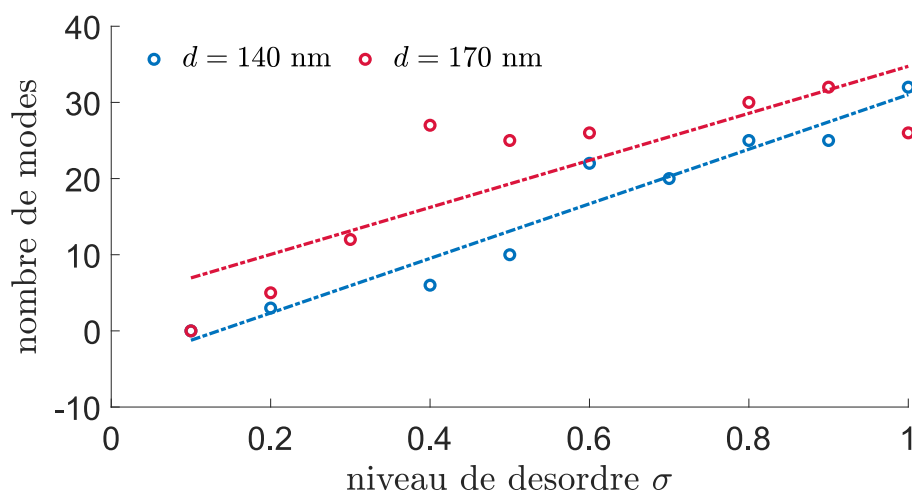


Figure 4.28 – Nombre de modes individuels qui dépassent un seuil arbitraire en fonction du niveau de désordre, le même seuil a été utilisé pour les deux séries de mesure pour la comptabilisation. Les lignes pointillées correspondent à des régressions linéaires des points expérimentaux et servent uniquement de guides pour les yeux.

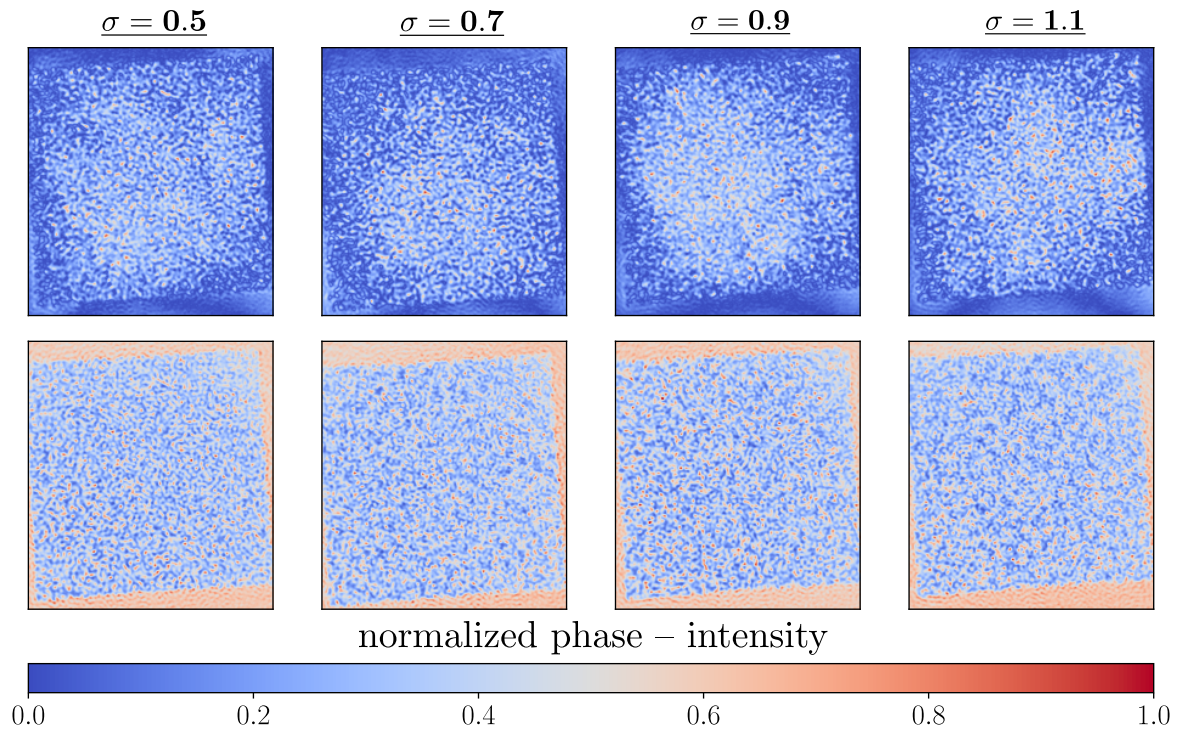


Figure 4.29 – Cartographies des variations de phase et d’amplitude du champ réfléchi par des ensembles de nanoparticules d’Au de diamètre $d = 140$ nm pour plusieurs niveaux de désordre entre $\sigma = 0.5$ – 1.1 . Les mesures ont été effectuées pour une longueur d’onde d’excitation $\lambda = 820$ nm.

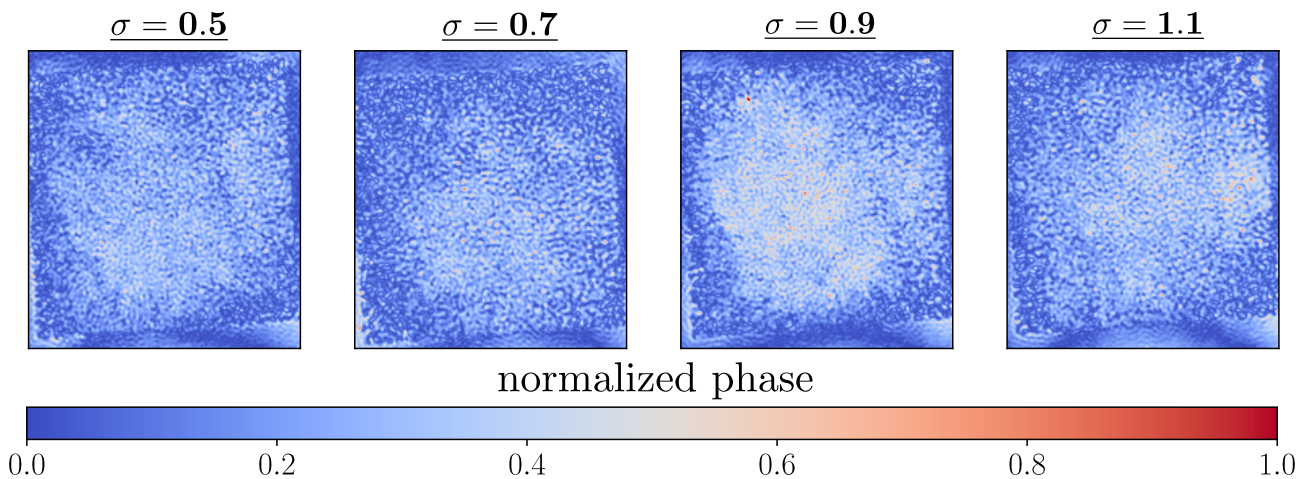


Figure 4.30 – Intercorrélation entre les variations de phase et d’amplitude du champ réfléchi par la métasurface pour plusieurs niveaux de désordre. L’échelle de couleur rend compte de l’intensité de variations de l’intercorrélacion normalisée par le plus haut niveau de désordre $\sigma = 1.1$.

En l’état, il est compliqué d’interpréter ces images puisqu’aucune tendance ne semble s’en dégager au delà de la constatation d’un grand nombre de modes individuels, que ce soit en amplitude ou en phase. En raison de la complexité des structures étudiées et de la grande sensibilité de la phase du champ, il n’est pas exclu que certains points chauds sur les cartographies correspondent à des artefacts de mesure. Puisque l’on dispose de l’amplitude et de la phase du champ qui sont interdépendantes, un moyen de s’affranchir des erreurs de mesure consiste à en calculer l’intercorrélacion, dont

un résultat est donné en figure 4.30 pour quatre niveaux de désordre, où cette fois-ci une tendance plus nette se dégage.

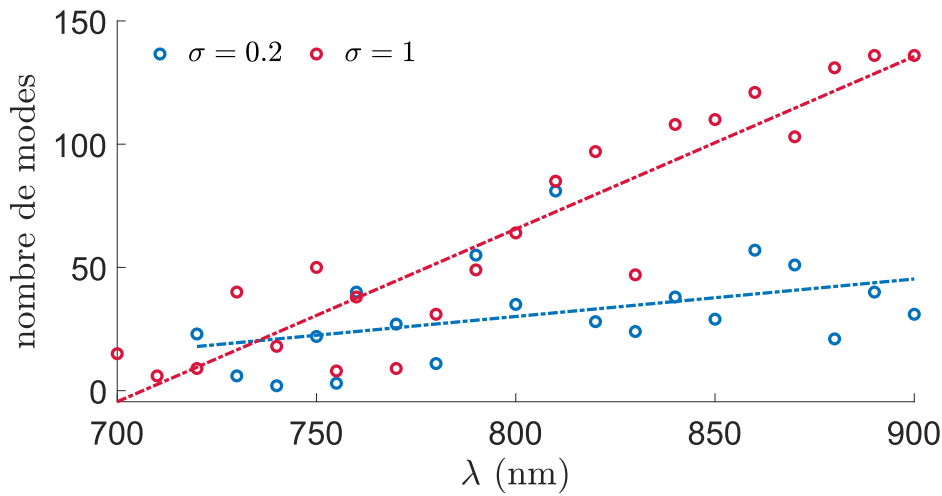


Figure 4.31 – Nombre de modes individuels qui dépassent un seuil arbitraire en fonction de la longueur d’onde d’excitation λ , pour un désordre faible $\sigma = 0.2$ et un désordre élevé $\sigma = 1$. le même seuil a été utilisé pour les deux séries de mesure pour la comptabilisation. La longueur d’onde d’excitation est la même pour les deux mesures $\lambda = 820$ nm. Les lignes pointillées correspondent à des régressions linéaires des points expérimentaux et servent uniquement de guides pour les yeux.

Deux autres séries de mesures ont été effectuées sur des ensembles de NPs de diamètre $d = 170$ nm en fonction de la longueur d’onde d’excitation pour deux niveaux de désordre : faible $\sigma = 0.2$ et fort $\sigma = 1$, dont la comparaison est donnée en figure 4.31. Les résultats de cette figure ont été obtenus en utilisant la même méthode de seuil décrite précédemment. Alors que la réponse reste relativement constante pour les faibles désordre, le nombre de mode augmente fortement avec la longueur d’onde pour un fort désordre. Ce dernier résultat est à mettre en lien avec les facteurs de structure calculés en figure 4.23. Pour $\sigma = 0.2$, la réponse de la métasurface reste très proche de celle du réseau périodique, qui n’est pas propice à la création de modes individuels, la réponse totale résultant d’une hybridation entre un mode de réseau et quelques modes individuels créés par la rupture des relations de phase qui liaient un certain nombre de NPs. En revanche, le nombre de modes individuels est en moyenne bien plus important pour les forts désordres, et ses variations bien plus franches. Il faut aussi noter une augmentation significative du nombre de mode qui dépassent le seuil avec l’augmentation de la longueur d’onde d’excitation, signe de l’augmentation des interactions à longues portée entre les piliers de la métasurface. En complément, la même procédure a été répétée afin de comparer la quantité de modes individuels comptabilisés pour une densité de 20% en fonction du niveau de désordre, avec celle mesurée à plus faible densité, comme donné en figure 4.32. La même longueur d’onde d’excitation $\lambda = 820$ nm, et le même seuil pour comptabiliser le nombre de modes ont été utilisés pour les deux densités. A forte densité, la tendance reste la même : le nombre de modes augmente avec le niveau de désordre, mais sont détectés en plus grande quantité puisque l’on passe d’une moyenne de ~ 25 modes à ~ 150 modes. En effet pour cette dernière densité, au couplage faible par l’isolant qui domine à $\rho = 5\%$, s’ajoute le couplage fort entre piliers, puisque dans cette configuration, le régime dominant est celui de l’interaction champ proche de pilier à pilier : il en résulte des variations de phase sur le champ réfléchi bien plus importantes. Ceci-étant,

il est intéressant de noter que la dynamique du nombre de modes détectés est en apparence moins importante à forte qu'à faible densité, ce qui semble peu intuitif.

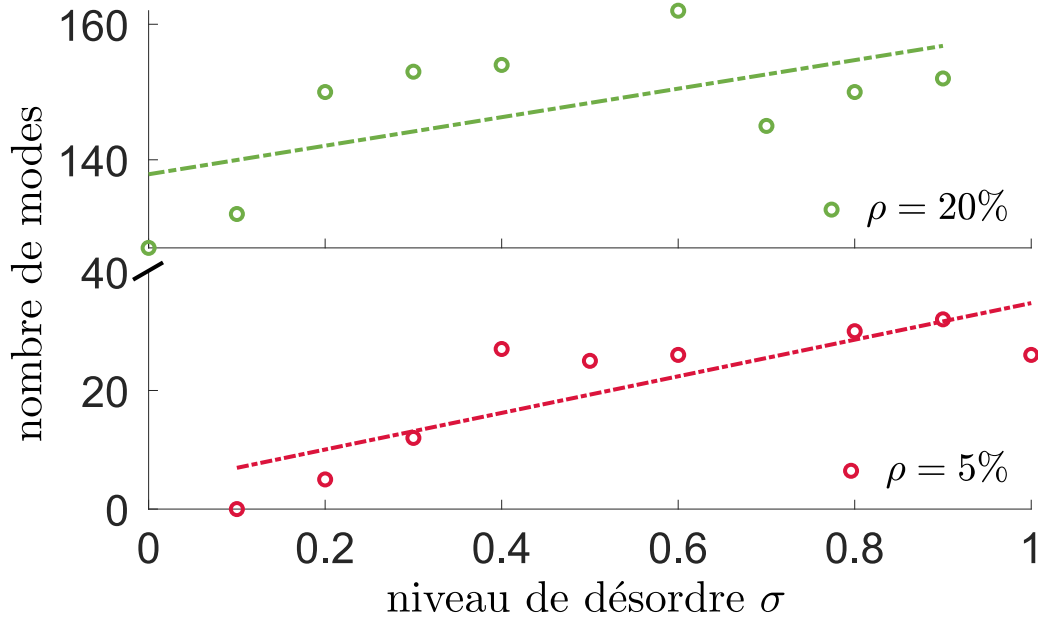


Figure 4.32 – Nombre de modes individuels qui dépassent un seuil arbitraire en fonction du niveau de désordre pour des densités $\rho = 5\%$ et $\rho = 20\%$, le même seuil a été appliqué aux deux séries de mesure pour la comptabilisation. Les lignes pointillés correspondent à des régressions linéaires des points expérimentaux et servent uniquement de guides pour les yeux.

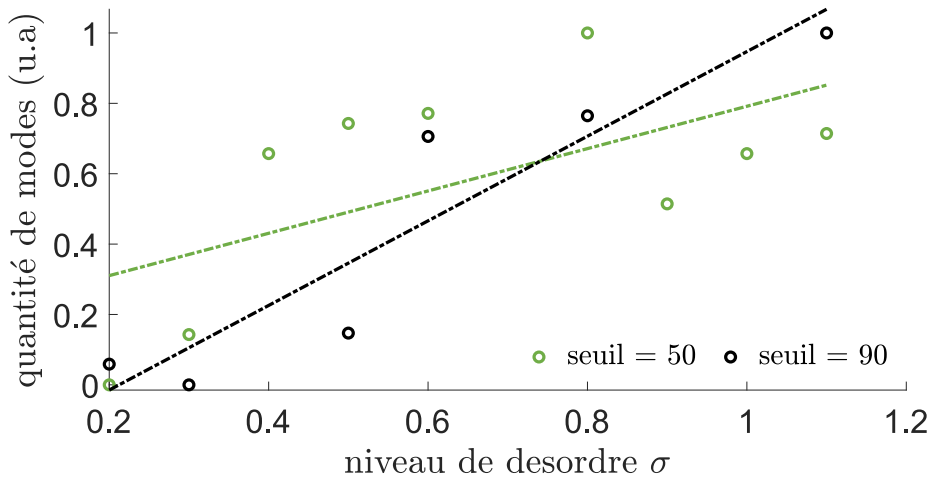


Figure 4.33 – Nombre de modes individuels détectés sur l'intercorrélation entre amplitude et phase de l'onde réfléchi sur la distribution de densité $\rho = 20\%$ pour deux seuils différents : 50 et 90. La quantité de mode représente le nombre de mode comptabilisé sur chacun des seuils, normalisé.

Compte-tenu de l'importante différence de dynamique de la phase du champ réfléchi pour les deux dernières configurations, il est nécessaire de prendre un seuil plus élevé pour rendre compte de la dynamique réelle de la variation du nombre de modes individuels. C'est pourquoi la procédure a été répétée avec un seuil plus élevé – à 90 au lieu de 50 – sur la densité de 20%, dont la comparaison

est faite en figure 4.33. Le nombre moyen de modes étant très différent pour les deux seuil (~ 150 à 50 et ~ 20 à 90), on parlera plutôt en termes de quantité de modes qui en est la normalisation, et permet de mieux rendre compte de la dynamique de variation en fonction du niveau de désordre d'un seuil à l'autre. Bien que ces deux seuils ont été choisis arbitrairement, il apparaît important de choisir un seuil suffisamment élevé par rapport à la dynamique totale de variation, c'est ce qui a permis de montrer que la croissance du nombre de modes individuels en fonction du niveau de désordre est en effet bien plus rapide à forte densité qu'à faible densité.

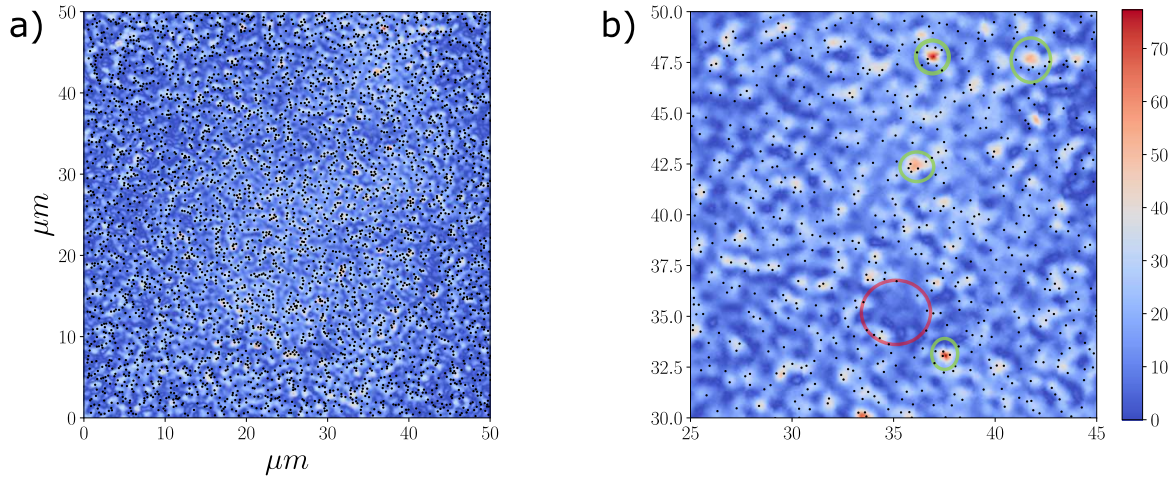


Figure 4.34 – Superposition de l'intercorrélacion entre amplitude et phase avec la position des nanoparticules d'Or de diamètre $d = 170$ nm pour une configuration de désordre donnée. Les cercles verts repèrent des zones restreintes entre piliers avec de fortes variations à la réflexion tandis que le cercle rouge montre une large zone sans pilier qui ne semble pas avoir d'influence sur l'onde.

De la même manière qu'en acoustique, il semble pertinent de superposer l'intercorrélacion entre les variations d'amplitude et de phase à la répartition spatiale des piliers afin de relier le signal mesuré à la topographie de l'échantillon étudié, dont une appréciation est donnée en figure 4.34 pour une seule configuration de désordre. L'image large champ semble suggérer que les zones d'importantes variations se situent principalement sous les piliers, là où un zoom de cette dernière permet de tempérer un peu cette constatation première. Bien que les zones de variation suivent majoritairement la distribution de piliers, les variations les plus intenses se situent sur des zones restreintes entre piliers, identifiées par les cercles verts sur le zoom. L'existence de ces zones suggère une interaction entre piliers d'une portée finie. En effet, le cercle rouge repère une large zone libre de piliers qui ne semble avoir aucun effet sur la réflexion du front d'onde. Le plasmon à la surface du plan de masse en Au étant très dispersif aux longueurs d'ondes employées (il s'atténue sur une dizaine de μm), il est nécessaire d'avoir des arrangements de piliers suffisamment proches pour qu'un couplage s'opère.

A la lumière de ces derniers résultats, il paraît indispensable d'effectuer d'autres séries de mesure mais avec cette fois-ci un éclairage focalisé sur la structure plutôt qu'un éclairage en onde plane. Cela offrirait alors l'opportunité d'étudier plus localement ces modes individuels et, de manière générale, permettrait une étude plus exhaustive des effets du désordre sur les relations de proximité qui lient les NPs.

4.3 Le couplage acousto-optique

Que ce soit en terme d'instrumentation où de modélisation, l'étude du couplage acousto-optique s'avère être un véritable défi. Avant toute chose, il est nécessaire de trouver un compromis sur la nature de l'échantillon, qui doit être favorable à l'excitation de plasmons de surface dans la gamme d'accordabilité du laser (700–900 nm), mais aussi à la génération/détection d'ondes acoustiques de surface afin de moduler la fréquence de résonance de ces plasmons localisés. Une fois la géométrie de l'échantillon commun déterminée, il convient de tirer partie et de rassembler les deux dispositifs expérimentaux conçus durant cette thèse en un seul : le microscope acousto-optique. Jusqu'à présent, les parties acoustiques et optiques ont été conduites indépendamment l'une de l'autre, cette dernière partie tend donc à capitaliser sur les résultats numériques et expérimentaux présentés plus tôt dans ces deux parties pour proposer des pistes à l'étude du couplage acousto-optique.

4.3.1 L'échantillon phoXonique

Comme cela a été discuté dans le chapitre deux, les différences d'impédance mécanique entre les différents matériaux qui composent l'échantillon ont un rôle primordial sur la nature des modes acoustiques de surface qui s'y propagent. En vertu de cela mais aussi d'autres paramètres⁷, la configuration d'échantillon la plus favorable à l'étude des ondes acoustiques de surface consiste à vaporiser quelques dizaine de nm d'Al sur des substrats de SiO₂ ou Si afin que la dispersion des ondes ne soit pas trop importante. Ceci-étant, les simulations numériques portant sur l'extinction de la résonance plasmonique de réseaux périodiques de NPs pour différentes longueurs d'onde en figure 4.35 suggèrent que l'Al n'est pas envisageable avec le laser à disposition concernant la partie optique : il ne présente aucune résonance plasmonique dans cette gamme d'accordabilité, délimitée par les lignes rouges pointillées.

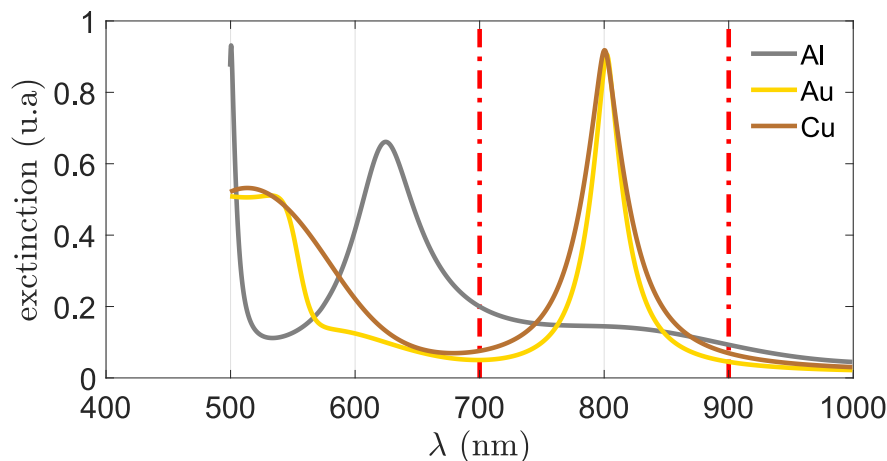


Figure 4.35 – Coefficients d'extinction de la résonance plasmonique calculée sur des réseaux périodiques de nanoparticules de trois natures différentes en fonction de la longueur d'onde d'excitation : Al, Au, et Cu. Les lignes rouges pointillées repèrent les limites de la gamme d'accordabilité du laser.

Toutefois, l'Au ou le Cu s'imposent comme étant des candidats idéals pour la partie optique ; ce

7. La faible profondeur de pénétration de l'Al à 400 nm et son bon coefficient de réflexion de la lumière à 800 nm, assurent la génération d'une contrainte mécanique importante et un bon rapport signal sur bruit.

dernier étant immédiatement évincé en raison de sa grande différence d'impédance acoustique avec les substrats étudiés, l'au reste donc le meilleur compromis pour un échantillon commun. S'ajoute à cela la présence d'une couche d'isolant, indispensable à l'existence du mode MIM sous les piliers, pouvant ajouter une dispersion de l'onde acoustique supplémentaire, en plus de rendre la focalisation du faisceau pompe sur la surface métallique plus délicate. Finalement, la géométrie présentée en figure 4.8 estampillée échantillon optique, correspond à la géométrie phoXonique retenue puisqu'elle résulte du meilleur compromis pour étudier le couplage acousto-optique. Afin de tester la réponse acoustique des échantillons qui ont été mesurés optiquement et qui ont fait l'objet de cette partie, quelques images de la propagation d'onde de surface ont été réalisées à l'Institut des NanoSciences de Paris pour trois configurations : une zone sans piliers, et deux zones avec des distributions de pilier en densité $\rho = 5$ et 20% , comme illustré en figure 4.36. Même si ces images n'ont pas été soumises à un traitement approfondie, elles s'avèrent malgré tout riches en enseignement.

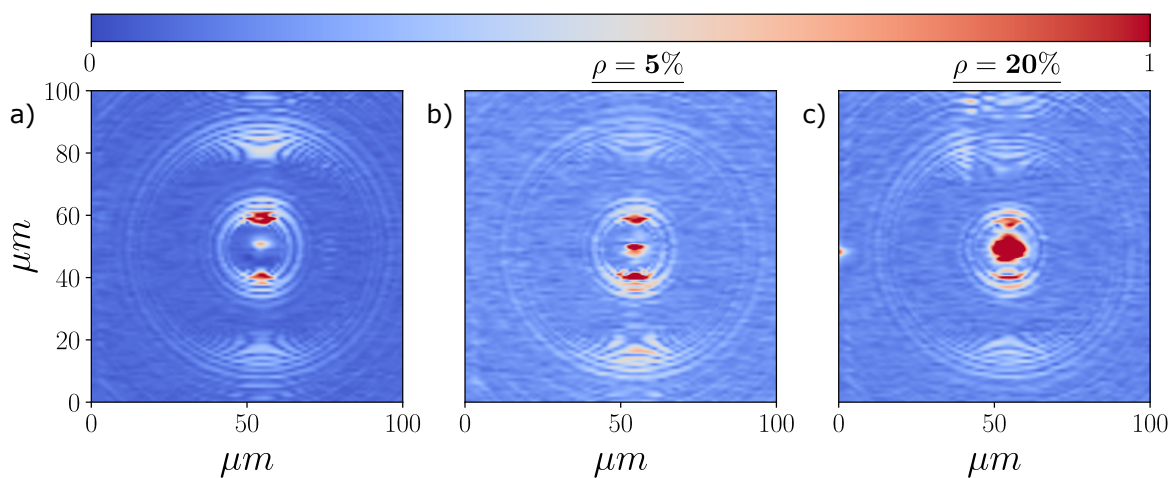


Figure 4.36 – Images $100 \times 100 \mu\text{m}$ de la propagation d'une onde acoustique de surface sur les échantillons optiques étudiés dans cette dernière partie pour **a)** une zone sans piliers, **b)** une densité $\rho = 5\%$, et **c)** une densité $\rho = 20\%$ de nanoparticules d'au de diamètre $d = 170 \text{ nm}$.

En effet, la couche de SiO_2 entre les piliers et le plan de masse ne semble pas détériorer outre mesure la qualité du signal détecté puisque quelque soit la zone de mesure, les différents fronts d'onde apparaissent sans aucune ambiguïté, et sans plus de dispersion que pour une configuration sans cette couche d'isolant. En revanche, là où une simple déconvolution de l'image mesurée permettait de mettre en évidence une large gamme de modes localisés pour les échantillons acoustiques, ce n'est plus le cas pour l'échantillon phoXonique qui appelle à un traitement plus sophistiqué puisqu'en l'état, aucun mode localisé n'a pu être observé sur ces derniers. En marge de cela, une différence majeure se trouve dans la taille des piliers par rapport aux longueurs d'ondes acoustiques qui se propagent dans l'échantillon. Les piliers en Au étant deux fois plus petit que ceux en Al de la partie acoustique, il existe un facteur vingt entre les dimensions caractéristiques et les longueurs d'onde acoustiques, conduisant à une réduction des effets de diffusion multiple, rendant les phénomènes de localisation bien plus ténus et compliqués à observer. Augmenter la taille des piliers aurait pour conséquence de déplacer la résonance plasmon vers les plus grandes longueurs d'onde, décalage qui peut-être compensé en réduisant l'épaisseur de diélectrique, rendant par la même occasion la propagation de plasmons par l'isolant due au couplage piliers – plan de masse en Au impossible. Puisque ce dernier échantillon présente des propriétés intéressantes aussi bien en optique qu'en acoustique, il est nécessaire d'envisager un dispositif expérimental permettant une étude commune des deux

phénomènes observés indépendamment l'un de l'autre.

4.3.2 Dispositif expérimental commun : le microscope acousto-optique

Deux cas de figures sont possibles et envisagés pour étudier expérimentalement le couplage acousto-optique. Le premier consiste simplement à implémenter un faisceau pompe à la chaîne laser déjà existante afin d'exciter l'onde acoustique de surface qui pourrait moduler la fréquence plasmon, sans avoir besoin de la détecter si modulation il y a.

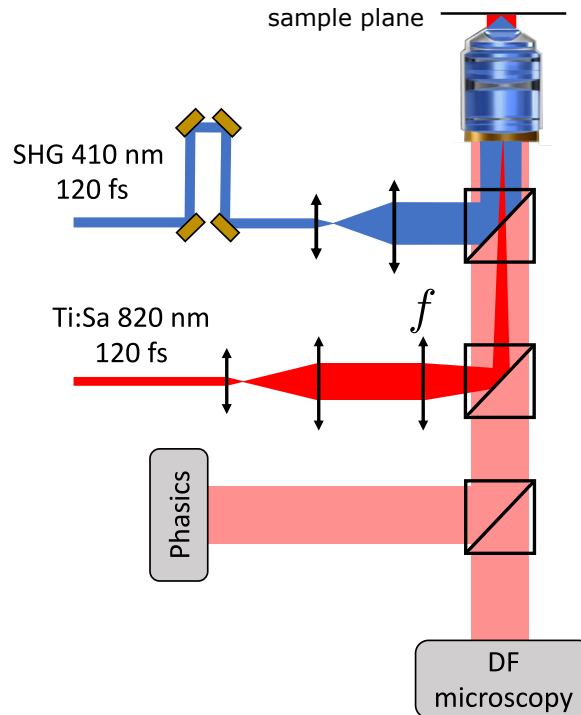


Figure 4.37 – Schéma du montage envisagé pour étudier le couplage acousto-optique. Les deux bras pompe et sonde sont issus d'un oscillateur paramétrique optique (OPO) et arrivent en deux entrées différentes du bâti du microscope sur lequel sont montés l'échantillon et l'objectif de microscope. La caméra de phase et le champ sombre en sont les deux sorties. f désigne une lentille qui peut-être facilement montée/démontée à façon, et offre la possibilité de travailler en onde plane ou en faisceau focalisé.

Un schéma de cette première configuration est donné en figure 4.37, f désigne une lentille amovible qui permettrait de travailler alternativement en onde plane ou en faisceau focalisé. Dans ce premier cas de figure, la caméra de phase serait alors suffisamment sensible pour détecter le décalage de la fréquence plasmon sur la phase du champ réfléchi, provoqué par la propagation de la contrainte acoustique. Un schéma légèrement plus compliqué en figure 4.38, consiste à implémenter un système de détection synchrone pour récupérer le signal rétro-réfléchi par l'échantillon en présence d'une onde acoustique détectée et analysée par la combinaison d'une photodiode et d'un lock-in, de la même manière que pour le dispositif d'acoustique. Ce système offrirait alors l'opportunité de travailler en faisceau focalisé permettant ainsi une mesure locale des plasmons dans la métasurface, contrairement à la méthode du champ sombre ou la caméra de phase qui nécessitent un éclairage plan et constituent des mesures globales. Un interféromètre pourrait aussi être ajouté pour gagner encore en sensibilité. Puisque le substrat n'a aucune influence sur la partie plasmonique, travailler

avec des substrats transparents tel que le SiO_2 (qui fonctionne très bien pour la partie acoustique), permettrait aussi de sonder de manière fine l'échantillon sur sa face opposée avec une pointe champ proche, compte-tenu de la faible épaisseur du plan de masse en Au.

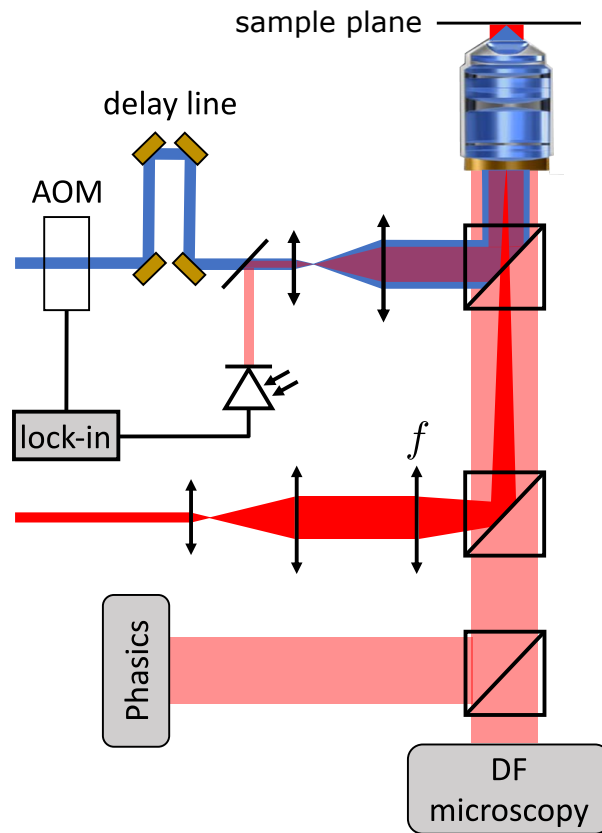


Figure 4.38 – Schéma de détection en figure 4.37 auquel est ajouté un système de détection synchronisée : le faisceau pompe est modulé grâce à un AOM, le signal rétro-réfléchi par l'échantillon est ensuite récolté par une photodiode et analysé par un lock-in.

4.4 Conclusion

Cette partie à portée sur l'étude de plasmons de surface et leurs interactions avec des nanoparticules d'Or individuelles où dans des arrangements périodiques et désordonnés, en réponse à une excitation par un champ électromagnétique monochromatique mais accordable. Compte-tenu des propriétés d'interactions entre le champ électromagnétique et de telles structures, deux méthodes expérimentales bien connues ont été identifiées et développées en raison de leur pertinence : la microscopie champ sombre et l'imagerie à quantification de phase. Ces deux méthodes se sont avérées particulièrement efficaces et complémentaires pour caractériser de façon exhaustive les ensembles de nanoparticules d'intérêt.

Compte-tenu des nombreux facteurs d'incertitudes sur les dimensions caractéristiques des nanoparticules obtenues à l'issue des processus de fabrication par rapport aux dimensions visées par le calcul, mais aussi en raison de la gamme d'accordabilité en longueur d'onde finie du laser utilisé, une première étape de caractérisation des structures individuelles et périodiques s'est imposée comme indispensable. En plus quantifier l'écart entre la réponse attendue par le calcul et la réponse réelle de la structure fabriquée, des variations de phase de l'ordre de $\pi/2$ à la réflexion de l'onde incidente sur des réseaux périodiques en fonction du diamètre des nanoparticules qui les composent ont été mesurées, dynamique reproduite par la mesure sur une lame π . Dans les deux cas, la dynamique mesurée apparaît sous-estimée par la caméra de phase qui ne semble pas adaptée pour détecter des variations trop intenses, comme cela peut-être le cas pour les objets étudiés ici. Malgré cela, la fréquence de résonance des nanoparticules du réseau est clairement identifiée, ainsi que le diamètre correspondant, étape indispensable pour l'étude des distributions désordonnées.

L'autre génération d'échantillon étudiée a permis de mettre en évidence des modes de réseaux très intenses d'une largeur ~ 30 nm typiques d'une résonance plasmonique, et la dégradation de cette réponse spectrale à l'introduction d'un désordre progressif. Un lien clair a été établi entre la nature de la statistique de la distribution de nanoparticules et la réponse spectrale associée par l'intermédiaire du calcul du facteur de structure correspondant. L'introduction du désordre a pour conséquence d'aplatir la réponse spectrale de l'ensemble lié à la rupture des relations de proximités entre piliers, faisant complètement disparaître la signature du mode de réseau. Enfin, la caméra de phase s'est imposée comme un outil précieux pour étudier cette transition du mode de réseau vers la création d'une somme croissante de modes individuels avec l'augmentation de la quantité de désordre. La superposition des cartographies de variation de phase avec la répartition spatiale de nanoparticules semble suggérer des relations de proximité entre piliers même lorsque cette dernière obéit à une statistique purement Poissonnienne. En effet, les zones de plus fortes variations se trouvent systématiquement dans des zones restreintes entre quelques piliers. Enfin la dernière partie s'est vue consacrée à une discussion sur le couplage acousto-optique, et plus particulièrement sur les différents compromis qui ont donné lieu à l'échantillon phoXonique final, mais aussi sur la manière d'étudier expérimentalement ce couplage.

Conclusion générale

On rapporte dans ce manuscrit une étude expérimentale portant sur la propagation indépendante d'ondes électromagnétiques et élastiques dans des métasurfaces aléatoires, menée dans le cadre du projet ANR RANDOM qui s'intéresse à l'influence de la statistique d'une distribution aléatoire de diffuseurs sur le couplage acousto-optique de modes localisés. C'est dans cette perspective que deux types d'échantillons distincts, mais aux géométries proches ont été réfléchis, fabriqués (à l'IEMN de Lille) et analysés via les modifications de leurs propriétés optiques en réponse à la propagation des ondes. Certains de ces résultats expérimentaux ont pu être appuyés par des simulations numériques. Compte-tenu de la physionomie du projet, cette thèse s'est effectuée en deux parties : une acoustique à l'Institut des NanoSciences de Paris, et une optique au Laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne à Dijon.

Même si la localisation d'ondes au sens d'Anderson dont il question en première partie n'a pu être directement observée expérimentalement, la compréhension des phénomènes de diffusion multiple qui en sont la cause s'est avérée nécessaire à l'identification des paramètres physiques clés à la définition des échantillons étudiés. L'expression de la fonction de Green moyenne sous la forme d'un développement diagrammatique permet de rendre compte de toute la complexité des phénomènes de diffusion multiple simplement avec une chaîne de trois diffuseurs, là où cette dernière possède une infinité de termes. On y retrouve les termes d'ordre 1 qui correspondent à des événements de diffusion simples et indépendants et qui suffit pour des distributions à faible densité de diffuseurs, comme le montre l'ISA. Les termes d'ordre 2, qui ne peuvent plus être négligés lorsque les diffuseurs d'une distribution exhibent certaines relations de proximité : les corrélations spatiales. Ces distributions appelées hyperuniformes s'imposent comme d'excellents candidats pour fournir les premières preuves expérimentales des MEs dans des milieux 3D pour les ondes électromagnétiques, à défaut de pouvoir concevoir des échantillons présentant des contrastes d'indices suffisamment important aux longueurs d'ondes optiques. Les termes d'ordre 3, qui prennent en compte les boucles de diffusion et qui sont tenus pour responsables de la renormalisation du coefficient de diffusion avec la position, menant à des phénomènes de localisation au sens d'Anderson. La multitude de travaux qui ont porté sur le sujet ont permis d'identifier un paramètre seuil à partir duquel une transition s'opère du régime de diffusion vers le régime de localisation, plus connu sous le nom de critère de Ioffe-Regel : $k\ell = 1$, avec k le vecteur d'onde et ℓ le libre parcours moyen de diffusion. Compte-tenu de la géométrie 2D des échantillons étudiés, il s'agit d'un paramètre à contrôler lors de la définition des dimensions caractéristiques des distributions de diffuseurs puisqu'il pilote entièrement la longueur de localisation ξ_{2D} des ondes qui s'y propagent.

Dans la perspective d'un couplage acousto-optique les dimensions caractéristiques des diffuseurs sont nécessairement de dimensions nanométriques. Il faut donc être en mesure de générer et détecter des ondes élastiques de longueurs d'onde comparable afin que les phénomènes de diffusion soient suffisamment importants dans la métasurface. La technique d'acoustique picoseconde s'avère particulièrement adaptée puisque les longueurs d'ondes générées sont de l'ordre du μm , et peuvent

être résolues en temps et en espace, ce qui est idéal pour investiguer la dynamique vibratoire d'une métasurface directement de l'intérieur puisqu'il s'agit d'une méthode sans contact. Cette technique offre une résolution temporelle de l'ordre de la fs (sur 8 ns dans notre cas) et spatiale de l'ordre du μm et permet aussi bien des mesures globales que locales. Les ondes élastiques de surface ainsi générées sont non dispersives (suivant l'accord d'impédance entre le substrat et la couche transductrice) et par conséquent associées, par abus de langage, à des modes de Rayleigh. C'est cette absence de dispersion sur les distances de propagation étudiées qui a entre autre justifié l'utilisation de substrat en SiO_2 ou Si avec des dépôts/diffuseurs en Al pour la partie acoustique.

Pour l'étude acoustique, trois configurations de désordre ont été générées numériquement, fabriquées à l'IEMN de Lille et étudiées expérimentalement à l'Institut des NanoSciences de Paris. Dans la première catégorie de désordre, la densité locale de diffuseurs suivait une loi de probabilité Gaussienne, c'est à dire que la distance inter-diffuseurs augmentait progressivement en s'éloignant du centre de la distribution. Même si ce type de désordre n'a pas fait l'objet d'une étude approfondie, le désordre Gaussien a représenté un premier moyen de tester les performances du dispositif expérimental en milieux multiplement diffusant et a pavé la voie vers l'étude d'autres distributions désordonnées. La deuxième catégorie de désordre, ou les diffuseurs sont répartis suivant une loi de probabilité homogène (loi de Poisson) avec une condition de sphère dure s'est avérée particulièrement intéressante. Une première image globale de la propagation d'un front d'onde élastique a permis de mettre en évidence une large gamme de modes localisés – autant en forme qu'en taille –, en survibrations pendant plusieurs ns après le passage de ce dernier. Cette énergie cédée du front d'onde à la distribution désordonnée se trouve être principalement localisée dans des clairières libres de diffuseurs, dénommées cavités, bien que ne faisant aucunement référence aux cavités des cristaux phononiques. La combinaison de la technique expérimentale large-bande avec le côté aléatoire de la distribution a permis de tracer un lien direct entre les modes localisés et la géométrie de la cavité correspondante. En effet, il a été démontré que les longueurs d'ondes élastiques localisées sont systématiquement comparables aux dimensions caractéristiques des cavités dans lesquelles elles sont retenues. L'influence de la direction d'excitation sur les modes localisés a aussi été investiguée et s'avère agir sur le contenu spectral présent dans la cavité d'intérêt, mais aussi sur son facteur de qualité, en particulier pour les cavités présentant des dissymétries. Dans ce cas les mesures font état d'un piégeage, plus ou moins efficace suivant la direction d'excitation, du contenu fréquentiel du front d'onde par les cavités résonantes de dimensions équivalentes à la longueur d'onde qui les traverse. La troisième catégorie de désordre étudiée répond au nom de distribution hyperuniforme, qui à la différence des deux précédentes distributions, exhibe des corrélations spatiales fortes entre la position des diffuseurs, et qui altèrent la propagation des ondes qui les traversent. Pour une même densité de diffuseurs, la décroissance de l'amplitude du front d'onde cohérent est bien plus rapide dans le cas de la distribution hyperuniforme que pour la distribution désordonnée, puisque la première suit une loi exponentielle tandis que la seconde, une loi quadratique. Ceci-étant, la différence de nature du substrat pour les deux catégories de désordre implique l'excitation du premier mode de flexion des piliers à $f \sim 2.2$ GHz pour le désordre hyperuniforme, mode qui n'est pas excité pour la distribution de Poisson et qui est tenu pour responsable de cette différence de décroissance. En l'état, il semble difficile d'évaluer et de quantifier le rôle des corrélations spatiales dans cette différence sans le support des simulations numériques. S'ajoute à cela la quantité d'énergie redistribuée dans le volume au niveau de chaque piliers (conversion de mode) qui est difficilement mesurable et rendant les conclusions plus délicates quant à la décroissance quadratique de l'énergie du front d'onde cohérent dans la distribution de Poisson.

La dernière partie de ce manuscrit est consacrée à l'étude des plasmons de surface dans des ensembles de nanoparticules d'Au en réponse à leur excitation par une onde électromagnétique monochromatique, mais accordable en longueur d'onde. A cette fin, deux méthodes expérimentales ont été mises en places au laboratoire Interdisciplinaire Carnot de Bourgogne à Dijon : la microscopie champ sombre et un système d'imagerie à quantification de phase. Contrairement à la partie acoustique qui ne nécessite pas l'excitation des fréquences de résonance des diffuseurs, une étape indispensable de caractérisation des nanoparticules d'Au s'est imposée. En effet, les SPPs qui sont étudiés ici sont générés au moyen de l'excitation des LSPRs qui se situent à proximité de chacune des nanoparticules d'Au et qui résonnent pour une gamme de longueur finie. Compte-tenu de la gamme de longueur d'onde restreinte du laser à disposition, les dimensions caractéristiques des échantillons ont dû être adaptées pour que les LSPRs puissent être excités dans le proche infrarouge. Une première génération d'échantillons avec des nanoparticules d'Au individuelles et des réseaux périodiques a été fabriquée à l'IEMN de Lille et a permis d'identifier les paramètres critiques liés aux processus de fabrication qui peuvent agir sur la position de la résonance plasmonique. Outre le décalage de la fréquence plasmon vers les plus grands diamètres de nanoparticules dans les réseaux périodiques avec l'augmentation de la longueur d'onde d'excitation, d'importantes variations sur la phase et l'amplitude du champ électromagnétique à la réflexion sur la métasurface ont été observées au moyen d'une caméra de phase. En particulier, une variation de phase de $\pi/2$ est mesurée sur les réseaux périodiques, dynamique confirmée par la comparaison avec une lame π préalablement caractérisée et connue pour introduire une variation de phase de π à la réflexion de l'onde lumineuse. Dans les deux cas, une variation de phase de $\pi/2$ est obtenue avec la caméra là où cette dernière est attendue pour varier de π . Il s'agit d'une des limitations de ce type de dispositif proposé par la société Phasics qui ne semble pas adapté pour mesurer des variations trop intenses de la phase. Quoiqu'il en soit, les mesures avec cette dernière constituent une preuve univoque de l'influence de la résonance plasmonique sur le champ électromagnétique et permet d'identifier le diamètre des nanoparticules responsables de cette importante variation. En réponse à ces premiers résultats, une autre génération d'échantillons a été fabriquée et étudiée pour quantifier l'influence de l'introduction d'un niveau de désordre progressif sur la réponse spectrale de l'ensemble. Les mesures grâce au dispositif de microscopie champ sombre font état d'un aplatissement de la réponse spectrale avec l'augmentation du désordre : le mode de réseau disparaît progressivement pour laisser place à la création d'un nombre croissant de modes individuels qui participent de manière incohérente à la réponse de l'ensemble. Ce résultat est appuyé par les mesures effectuées à la caméra de phase sur les distributions correspondantes, mais nécessiterait l'apport de simulations numériques pour valider la procédure heuristique de traitement des données.

Que ce soit dans les structures phononiques comme photoniques, des modes localisés ont été observés expérimentalement en présence de désordre, mais sur des structures indépendantes. En acoustique, la configuration optimale consiste à travailler avec de l'Al pour des raisons évidentes de dispersion de l'onde de surface. Ceci-étant, les simulations numériques en optique écartent la possibilité de travailler avec ce dernier pour une structure commune puisque les résonances plasmoniques se trouvent à bien plus basses longueurs d'onde, en dehors de la gamme d'accordabilité du laser, les rendant inexcitables. Même si l'Au n'est pas idéal pour l'acoustique, il reste néanmoins le meilleur compromis pour l'échantillon phoXonique. Finalement, l'échantillon optique sera le lieu de l'étude de la co-localisation puisque des premières mesures acoustiques montrent un très bon rapport signal sur bruit, bien qu'aucune localisation n'ait à ce jour pu être observée, quelle que soit

la densité de diffuseurs. Compte-tenu de la dimension des nanoparticules d'Or résonantes (deux fois plus petites que les diffuseurs en acoustique) vis-à-vis des longueurs d'ondes acoustiques en jeu, les phénomènes de diffusion sont nécessairement faibles. Un moyen d'amplifier ces phénomènes consisterait alors à augmenter la dimension des nanoparticules, mais ceci aurait pour effet de décaler la fréquence plasmon vers les plus grandes longueurs d'onde. Il faudrait alors compenser ce décalage et modifier en conséquence l'épaisseur de diélectrique qui sépare le plan de masse des diffuseurs, pour ramener la résonance dans la bande d'excitation du laser, c'est à dire entre 700 et 900 nm, voire même envisager de changer la nature du métal. Il faudrait alors adapter le dispositif expérimental élaboré pendant la partie optique à Dijon pour y ajouter une chaîne laser permettant la génération des ondes acoustiques en plus de la chaîne de détection déjà existante. En marge de cela, l'ajout d'un système de détection synchrone couplé à une photodiode offrirait alors l'opportunité de travailler en faisceau focalisé et de sonder la métasurface pour étudier plus localement la multitude de modes individuels qui apparaissent à l'introduction du désordre, comme cela a été fait dans la partie acoustique.

Bibliographie

- [1] S. YU, C.-W. QIU, Y. CHONG, S. TORQUATO et N. PARK, « Engineered disorder in photonics », *Nature Reviews Materials*, vol. 6, p. 226–243, 12 2020.
- [2] Y. CUI, K. H. FUNG, J. XU, H. MA, Y. JIN, S. HE et N. X. FANG, « Ultrabroadband Light Absorption by a Sawtooth Anisotropic Metamaterial Slab », *Nano Letters*, vol. 12, p. 1443–1447, 3 2012.
- [3] J. MEI, G. MA, M. YANG, Z. YANG, W. WEN et P. SHENG, « Dark acoustic metamaterials as super absorbers for low-frequency sound », *Nature Communications*, vol. 3, p. 756, 3 2012.
- [4] P. A. BELOV et Y. HAO, « Subwavelength imaging at optical frequencies using a transmission device formed by a periodic layered metal-dielectric structure operating in the canalization regime », *Physical Review B*, vol. 73, p. 113110, 3 2006.
- [5] J. B. PENDRY, A. AUBRY, D. R. SMITH et S. A. MAIER, « Transformation Optics and Subwavelength Control of Light », *Science*, vol. 337, p. 549–552, 8 2012.
- [6] M. OUDICH, X. ZHOU et M. BADREDDINE ASSOUAR, « General analytical approach for sound transmission loss analysis through a thick metamaterial plate », *Journal of Applied Physics*, vol. 116, p. 193509, 11 2014.
- [7] O. LESEUR, R. PIERRAT et R. CARMINATI, « High-density hyperuniform materials can be transparent », *Optica*, vol. 3, p. 763, 7 2016.
- [8] A. ROHFRI TSCH, J.-M. CONOIR, T. VALIER-BRASIER et R. MARCHIANO, « Impact of particle size and multiple scattering on the propagation of waves in stealthy-hyperuniform media », *Physical Review E*, vol. 102, p. 053001, 11 2020.
- [9] J. B. PENDRY, D. SCHURIG et D. R. SMITH, « Controlling Electromagnetic Fields », *Science*, vol. 312, p. 1780–1782, 6 2006.
- [10] M. FARHAT, S. ENOCH, S. GUENNEAU et A. B. MOVCHAN, « Broadband Cylindrical Acoustic Cloak for Linear Surface Waves in a Fluid », *Physical Review Letters*, vol. 101, p. 134501, 9 2008.
- [11] C. HE, X. NI, H. GE, X.-C. SUN, Y.-B. CHEN, M.-H. LU, X.-P. LIU et Y.-F. CHEN, « Acoustic topological insulator and robust one-way sound transport », *Nature Physics*, vol. 12, p. 1124–1129, 12 2016.
- [12] P. ST-JEAN, V. GOBLOT, E. GALOPIN, A. LEMAÎTRE, T. OZAWA, L. LE GRATIET, I. SAGNES, J. BLOCH et A. AMO, « Lasing in topological edge states of a one-dimensional lattice », *Nature Photonics*, vol. 11, p. 651–656, 10 2017.
- [13] P. W. ANDERSON, « Absence of Diffusion in Certain Random Lattices », *Physical Review*, vol. 109, p. 1492–1505, 3 1958.
- [14] A. LAGENDIJK, B. v. TIGGELEN et D. S. WIERSMA, « Fifty years of Anderson localization », *Physics Today*, vol. 62, p. 24–29, 8 2009.
- [15] S. JOHN, « Electromagnetic Absorption in a Disordered Medium near a Photon Mobility Edge », *Physical Review Letters*, vol. 53, p. 2169–2172, 11 1984.

- [16] H. HU, A. STRYBULEVYCH, J. H. PAGE, S. E. SKIPETROV et B. A. van TIGGELEN, « Localization of ultrasound in a three-dimensional elastic network », *Nature Physics*, vol. 4, p. 945–948, 12 2008.
- [17] D. S. WIERSMA, M. P. van ALBADA, B. A. van TIGGELEN et A. LAGENDIJK, « Experimental Evidence for Recurrent Multiple Scattering Events of Light in Disordered Media », *Physical Review Letters*, vol. 74, p. 4193–4196, 5 1995.
- [18] B. A. van TIGGELEN et A. LAGENDIJK, « Resonantly induced dipole-dipole interactions in the diffusion of scalar waves », *Physical Review B*, vol. 50, p. 16729–16732, 12 1994.
- [19] J. H. PAGE, H. P. SCHRIEMER, A. E. BAILEY et D. A. WEITZ, « Experimental test of the diffusion approximation for multiply scattered sound », *Physical Review E*, vol. 52, p. 3106–3114, 9 1995.
- [20] J. H. PAGE, P. SHENG, H. P. SCHRIEMER, I. JONES, X. JING et D. A. WEITZ, « Group Velocity in Strongly Scattering Media », *Science*, vol. 271, p. 634–637, 2 1996.
- [21] A. TOURIN, A. DERODE, P. ROUX, B. A. van TIGGELEN et M. FINK, « Time-Dependent Coherent Backscattering of Acoustic Waves », *Physical Review Letters*, vol. 79, p. 3637–3639, 11 1997.
- [22] B. SHAPIRO, « New Type of Intensity Correlation in Random Media », *Physical Review Letters*, vol. 83, p. 4733–4735, 12 1999.
- [23] R. LENKE, R. TWEER et G. MARET, « Coherent backscattering and localization in a self-attracting random walk model », *The European Physical Journal B*, vol. 26, p. 235–240, 3 2002.
- [24] A. DERODE, V. MAMOU et A. TOURIN, « Influence of correlations between scatterers on the attenuation of the coherent wave in a random medium », *Physical Review E*, vol. 74, p. 036606, 9 2006.
- [25] F. RIBOLI, P. BARTHELEMY, S. VIGNOLINI, F. INTONTI, A. DE ROSSI, S. COMBRIE et D. S. WIERSMA, « Anderson localization of near-visible light in two dimensions », *Optics Letters*, vol. 36, p. 127, 1 2011.
- [26] K. VYNCK, M. BURRESI, F. RIBOLI et D. S. WIERSMA, « Photon management in two-dimensional disordered media », *Nature Materials*, vol. 11, p. 1017–1022, 12 2012.
- [27] A. CAZÉ, R. PIERRAT et R. CARMINATI, « Strong Coupling to Two-Dimensional Anderson Localized Modes », *Physical Review Letters*, vol. 111, p. 053901, 7 2013.
- [28] D. S. WIERSMA, « Disordered photonics », *Nature Photonics*, vol. 7, p. 188–196, 3 2013.
- [29] F. RIBOLI, N. CASELLI, S. VIGNOLINI, F. INTONTI, K. VYNCK, P. BARTHELEMY, A. GERARDINO, L. BALET, L. H. LI, A. FIORE, M. GURIOLI et D. S. WIERSMA, « Engineering of light confinement in strongly scattering disordered media », *Nature Materials*, vol. 13, p. 720–725, 7 2014.
- [30] C. W. HSU, S. F. LIEW, A. GOETSCHY, H. CAO et A. DOUGLAS STONE, « Correlation-enhanced control of wave focusing in disordered media », *Nature Physics*, vol. 13, p. 497–502, 5 2017.
- [31] A. CANAGUIER-DURAND, R. PIERRAT et R. CARMINATI, « Cross density of states and mode connectivity : Probing wave localization in complex media », *Physical Review A*, vol. 99, p. 013835, 1 2019.
- [32] F. ZHANG, F. TANG, X. XU, P.-M. ADAM, J. MARTIN et J. PLAIN, « Influence of order-to-disorder transitions on the optical properties of the aluminum plasmonic metasurface », *Nanoscale*, vol. 12, no. 45, p. 23173–23182, 2020.
- [33] F. SGRIGNUOLI, S. TORQUATO et L. DAL NEGRO, « Subdiffusive wave transport and weak localization transition in three-dimensional stealthy hyperuniform disordered systems », *Physical Review B*, vol. 105, p. 064204, 2 2022.

- [34] R. SAINIDOU, N. STEFANOUE et A. MODINOS, « Widening of Phononic Transmission Gaps via Anderson Localization », *Physical Review Letters*, vol. 94, p. 205503, 5 2005.
- [35] E. METIN AKINOGLU, T. SUN, J. GAO, M. GIERSIG, Z. REN et K. KEMPA, « Evidence for critical scaling of plasmonic modes at the percolation threshold in metallic nanostructures », *Applied Physics Letters*, vol. 103, p. 171106, 10 2013.
- [36] N. PAPASIMAKIS, V. A. FEDOTOV, Y. H. FU, D. P. TSAI et N. I. ZHELUDEV, « Coherent and incoherent metamaterials and order-disorder transitions », *Physical Review B*, vol. 80, p. 041102, 7 2009.
- [37] A. FERNÁNDEZ-MARÍN, J. MÉNDEZ-BERMÚDEZ, J. CARBONELL, F. CERVERA, J. SÁNCHEZ-DEHESA et V. GOPAR, « Beyond Anderson Localization in 1D : Anomalous Localization of Microwaves in Random Waveguides », *Physical Review Letters*, vol. 113, p. 233901, 12 2014.
- [38] N. FERNEZ, L. BURGNIES, D. DEREUDRE, D. LIPPENS et E. LHEURETTE, « Poisson distributions in disordered metamaterials absorbers », *Journal of Applied Physics*, vol. 125, p. 213106, 6 2019.
- [39] E. EL SHAMY, J. JAECK, R. HAÏDAR et P. BOUCHON, « Light scattering by correlated disordered assemblies of nanoantennas », *Applied Physics Letters*, vol. 115, p. 041103, 7 2019.
- [40] M. RUPIN, F. LEMOULT, G. LEROSEY et P. ROUX, « Experimental Demonstration of Ordered and Disordered Multiresonant Metamaterials for Lamb Waves », *Physical Review Letters*, vol. 112, p. 234301, 6 2014.
- [41] A. KHELIF, Y. ACHAOUÏ et B. AOUBIZA, « Surface acoustic waves in pillars-based two-dimensional phononic structures with different lattice symmetries », *Journal of Applied Physics*, vol. 112, p. 033511, 8 2012.
- [42] Y. PENNEC, B. D. ROUHANI, E. H. EL BOUDOUTI, C. LI, Y. EL HASSOUANI, J. O. VASSEUR, N. PAPANIKOLAOU, S. BENCHABANE, V. LAUDE et A. MARTINEZ, « Simultaneous existence of phononic and photonic band gaps in periodic crystal slabs », *Optics Express*, vol. 18, p. 14301, 6 2010.
- [43] Y. PENNEC, V. LAUDE, N. PAPANIKOLAOU, B. DJAFARI-ROUHANI, M. OUDICH, S. EL JALLAL, J. C. BEUGNOT, J. M. ESCALANTE et A. MARTÍNEZ, « Modeling light-sound interaction in nanoscale cavities and waveguides », *Nanophotonics*, vol. 3, p. 413–440, 12 2014.
- [44] S. MOHAMMADI, A. A. EFTEKHAR, A. KHELIF et A. ADIBI, « Simultaneous two-dimensional phononic and photonic band gaps in opto-mechanical crystal slabs », *Optics Express*, vol. 18, p. 9164, 4 2010.
- [45] M. MALDOVAN et E. L. THOMAS, « Simultaneous localization of photons and phonons in two-dimensional periodic structures », *Applied Physics Letters*, vol. 88, p. 251907, 6 2006.
- [46] A. H. SAFAVI-NAEINI, J. T. HILL, S. MEENEHAN, J. CHAN, S. GRÖBLACHER et O. PAINTER, « Two-Dimensional Phononic-Photonic Band Gap Optomechanical Crystal Cavity », *Physical Review Letters*, vol. 112, p. 153603, 4 2014.
- [47] Y. EL HASSOUANI, C. LI, Y. PENNEC, E. H. EL BOUDOUTI, H. LARABI, A. AKJOUJ, O. BOU MATTAR, V. LAUDE, N. PAPANIKOLAOU, A. MARTINEZ et B. DJAFARI ROUHANI, « Dual phononic and photonic band gaps in a periodic array of pillars deposited on a thin plate », *Physical Review B*, vol. 82, p. 155405, 10 2010.
- [48] Q. ROLLAND, M. OUDICH, S. EL-JALLAL, S. DUPONT, Y. PENNEC, J. GAZALET, J. C. KASTELIK, G. LÉVÊQUE et B. DJAFARI-ROUHANI, « Acousto-optic couplings in two-dimensional phoxonic crystal cavities », *Applied Physics Letters*, vol. 101, p. 061109, 8 2012.

- [49] J. JIN, S. JIANG, H. HU, L. ZHAN, X. WANG et V. LAUDE, « Acousto-optic cavity coupling in 2D phoxonic crystal with combined convex and concave holes », *Journal of Applied Physics*, vol. 130, p. 123104, 9 2021.
- [50] E. GAVARTIN, R. BRAIVE, I. SAGNES, O. ARCIZET, A. BEVERATOS, T. J. KIPPENBERG et I. ROBERT-PHILIP, « Optomechanical Coupling in a Two-Dimensional Photonic Crystal Defect Cavity », *Physical Review Letters*, vol. 106, p. 203902, 5 2011.
- [51] S. EL-JALLAL, M. OUDICH, Y. PENNEC, B. DJAFARI-ROUHANI, V. LAUDE, J.-C. BEUGNOT, A. MARTÍNEZ, J. M. ESCALANTE et A. MAKHOUTE, « Analysis of optomechanical coupling in two-dimensional square lattice phoxonic crystal slab cavities », *Physical Review B*, vol. 88, p. 205410, 11 2013.
- [52] M. EICHENFIELD, J. CHAN, R. M. CAMACHO, K. J. VAHALA et O. PAINTER, « Optomechanical crystals », *Nature*, vol. 462, p. 78–82, 11 2009.
- [53] J. CHAN, A. H. SAFAVI-NAEINI, J. T. HILL, S. MEENEHAN et O. PAINTER, « Optimized optomechanical crystal cavity with acoustic radiation shield », *Applied Physics Letters*, vol. 101, p. 081115, 8 2012.
- [54] J. GOMIS-BRESCO, D. NAVARRO-URRIOS, M. OUDICH, S. EL-JALLAL, A. GRIOL, D. PUERTO, E. CHAVEZ, Y. PENNEC, B. DJAFARI-ROUHANI, F. ALZINA, A. MARTÍNEZ et C. S. TORRES, « A one-dimensional optomechanical crystal with a complete phononic band gap », *Nature Communications*, vol. 5, p. 4452, 7 2014.
- [55] K. FANG, M. H. MATHENY, X. LUAN et O. PAINTER, « Optical transduction and routing of microwave phonons in cavity-optomechanical circuits », *Nature Photonics*, vol. 10, p. 489–496, 7 2016.
- [56] R. N. PATEL, C. J. SARABALIS, W. JIANG, J. T. HILL et A. H. SAFAVI-NAEINI, « Engineering Phonon Leakage in Nanomechanical Resonators », *Physical Review Applied*, vol. 8, p. 041001, 10 2017.
- [57] K. FANG, J. LUO, A. METELMANN, M. H. MATHENY, F. MARQUARDT, A. A. CLERK et O. PAINTER, « Generalized non-reciprocity in an optomechanical circuit via synthetic magnetism and reservoir engineering », *Nature Physics*, vol. 13, p. 465–471, 5 2017.
- [58] P. D. GARCÍA, R. BERICAT-VADELL, G. ARREGUI, D. NAVARRO-URRIOS, M. COLOMBANO, F. ALZINA et C. M. SOTOMAYOR-TORRES, « Optomechanical coupling in the Anderson-localization regime », *Physical Review B*, vol. 95, p. 115129, 3 2017.
- [59] I. LIFSHITZ, « The energy spectrum of disordered systems », *Advances in Physics*, vol. 13, p. 483–536, 10 1964.
- [60] C. DELLA GIOVAMPAOLA et N. ENGHETA, « Digital metamaterials », *Nature Materials*, vol. 13, p. 1115–1121, 12 2014.
- [61] T.-J. CUI, S. LIU et L.-L. LI, « Information entropy of coding metasurface », *Light : Science & Applications*, vol. 5, p. e16172–e16172, 6 2016.
- [62] B. XIE, K. TANG, H. CHENG, Z. LIU, S. CHEN et J. TIAN, « Coding Acoustic Metasurfaces », *Advanced Materials*, vol. 29, p. 1603507, 2 2017.
- [63] E. LAROSE, L. MARGERIN, B. A. van TIGGELEN et M. CAMPILLO, « Weak Localization of Seismic Waves », *Physical Review Letters*, vol. 93, p. 048501, 7 2004.
- [64] A. P. MOSK, A. LAGENDIJK, G. LEROSEY et M. FINK, « Controlling waves in space and time for imaging and focusing in complex media », *Nature Photonics*, vol. 6, p. 283–292, 5 2012.

- [65] V. SARANATHAN, J. D. FORSTER, H. NOH, S.-F. LIEW, S. G. J. MOCHRIE, H. CAO, E. R. DUFRESNE et R. O. PRUM, « Structure and optical function of amorphous photonic nanostructures from avian feather barbs : a comparative small angle X-ray scattering (SAXS) analysis of 230 bird species », *Journal of The Royal Society Interface*, vol. 9, p. 2563–2580, 10 2012.
- [66] E. ABRAHAMS, P. W. ANDERSON, D. C. LICCIARDELLO et T. V. RAMAKRISHNAN, « Scaling Theory of Localization : Absence of Quantum Diffusion in Two Dimensions », *Physical Review Letters*, vol. 42, p. 673–676, 3 1979.
- [67] S. PING, *Introduction to Wave Scattering, Localization and Mesoscopic Phenomena*, vol. 88. Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 2006.
- [68] R. CARMINATI et J. C. SCHOTLAND, *Principles of Scattering and Transport of Light*. Cambridge University Press, 6 2021.
- [69] K. VYNCK, R. PIERRAT, R. CARMINATI, L. S. FROUFE-PÉREZ, F. SCHEFFOLD, R. SAPIENZA, S. VIGNOLINI et J. J. SÁENZ, « Light in correlated disordered media », 6 2021.
- [70] P. SHENG et B. van TIGGELEN, « Introduction to Wave Scattering, Localization and Mesoscopic Phenomena. Second edition », *Waves in Random and Complex Media*, vol. 17, p. 235–237, 4 2007.
- [71] S. E. SKIPETROV et B. A. van TIGGELEN, « Dynamics of Anderson Localization in Open 3D Media », *Physical Review Letters*, vol. 96, p. 043902, 2 2006.
- [72] P. SHENG, *Scattering and Localization of Classical Waves in Random Media*, vol. 8. WORLD SCIENTIFIC, 4 1990.
- [73] S. TORQUATO, « Hyperuniform states of matter », *Physics Reports*, vol. 745, p. 1–95, 6 2018.
- [74] A. ROHFRI TSCH, J.-M. CONOIR, T. VALIER-BRASIER et R. MARCHIANO, « Influence of the microstructure of two-dimensional random heterogeneous media on propagation of acoustic coherent waves », *Physical Review E*, vol. 101, p. 023001, 2 2020.
- [75] H. OLBRICH, H. RUPPERSBERG et S. STEEB, « Experimental Determination of the Form and Structure Factor of Molten Lithium », *Zeitschrift für Naturforschung A*, vol. 38, p. 1328–1336, 12 1983.
- [76] S. FRADEN et G. MARET, « Multiple light scattering from concentrated, interacting suspensions », *Physical Review Letters*, vol. 65, p. 512–515, 7 1990.
- [77] R. J. BAXTER, « Ornstein–Zernike Relation and Percus–Yevick Approximation for Fluid Mixtures », *The Journal of Chemical Physics*, vol. 52, p. 4559–4562, 5 1970.
- [78] A. ROHFRI TSCH, J.-M. CONOIR, T. VALIER-BRASIER, R. PIERRAT et R. MARCHIANO, « Propagation of scalar waves in dense disordered media exhibiting short- and long-range correlations », *Physical Review E*, vol. 104, p. 064138, 12 2021.
- [79] J. B. KELLER, *Stochastic Processes in Mathematical Physics and Engineering*, vol. 16. Providence, Rhode Island : American Mathematical Society, 1964.
- [80] S. TORQUATO et F. H. STILLINGER, « Local density fluctuations, hyperuniformity, and order metrics », *Physical Review E*, vol. 68, p. 041113, 10 2003.
- [81] V. ROMERO-GARCÍA, N. LAMOTHE, G. THEOCHARIS, O. RICHOUX et L. GARCÍA-RAFFI, « Stealth Acoustic Materials », *Physical Review Applied*, vol. 11, p. 054076, 5 2019.
- [82] M. FLORESCU, S. TORQUATO et P. J. STEINHARDT, « Designer disordered materials with large, complete photonic band gaps », *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 106, p. 20658–20663, 12 2009.

- [83] L. S. FROUFE-PÉREZ, M. ENGEL, P. F. DAMASCENO, N. MULLER, J. HABERKO, S. C. GLOTZER et F. SCHEFFOLD, « Role of Short-Range Order and Hyperuniformity in the Formation of Band Gaps in Disordered Photonic Materials », *Physical Review Letters*, vol. 117, p. 053902, 7 2016.
- [84] D. VOLLHARDT et P. WÖLFLE, « Scaling Equations from a Self-Consistent Theory of Anderson Localization », *Physical Review Letters*, vol. 48, p. 699–702, 3 1982.
- [85] S. E. SKIPETROV et I. M. SOKOLOV, « Ioffe-Regel criterion for Anderson localization in the model of resonant point scatterers », *Physical Review B*, vol. 98, p. 064207, 8 2018.
- [86] P. SHENG et Z.-Q. ZHANG, « Scalar-Wave Localization in a Two-Component Composite », *Physical Review Letters*, vol. 57, p. 1879–1882, 10 1986.
- [87] B. A. v. TIGGELEN, A. LAGENDIJK, A. TIP et G. F. REITER, « Effect of Resonant Scattering on Localization of Waves », *Europhysics Letters (EPL)*, vol. 15, p. 535–540, 7 1991.
- [88] B. A. van TIGGELEN, A. LAGENDIJK et D. S. WIERSMA, « Reflection and Transmission of Waves near the Localization Threshold », *Physical Review Letters*, vol. 84, p. 4333–4336, 5 2000.
- [89] H. DE RAEDT, A. LAGENDIJK et P. de VRIES, « Transverse Localization of Light », *Physical Review Letters*, vol. 62, p. 47–50, 1 1989.
- [90] R. WEAVER, « Anderson localization of ultrasound », *Wave Motion*, vol. 12, p. 129–142, 3 1990.
- [91] A. A. CHABANOV et A. Z. GENACK, « Photon Localization in Resonant Media », *Physical Review Letters*, vol. 87, p. 153901, 9 2001.
- [92] A. A. CHABANOV, Z. Q. ZHANG et A. Z. GENACK, « Breakdown of Diffusion in Dynamics of Extended Waves in Mesoscopic Media », *Physical Review Letters*, vol. 90, p. 203903, 5 2003.
- [93] M. STÖRZER, P. GROSS, C. M. AEGERTER et G. MARET, « Observation of the Critical Regime Near Anderson Localization of Light », *Physical Review Letters*, vol. 96, p. 063904, 2 2006.
- [94] C. M. AEGERTER, M. STÖRZER et G. MARET, « Experimental determination of critical exponents in Anderson localisation of light », *Europhysics Letters (EPL)*, vol. 75, p. 562–568, 8 2006.
- [95] T. SCHWARTZ, G. BARTAL, S. FISHMAN et M. SEGEV, « Transport and Anderson localization in disordered two-dimensional photonic lattices », *Nature*, vol. 446, p. 52–55, 3 2007.
- [96] D. LAURENT, O. LEGRAND, P. SEBBAH, C. VANNESTE et F. MORTESSAGNE, « Localized Modes in a Finite-Size Open Disordered Microwave Cavity », *Physical Review Letters*, vol. 99, p. 253902, 12 2007.
- [97] A. G. YAMILOV, R. SARMA, B. REDDING, B. PAYNE, H. NOH et H. CAO, « Position-Dependent Diffusion of Light in Disordered Waveguides », *Physical Review Letters*, vol. 112, p. 023904, 1 2014.
- [98] P. NEUPANE et A. G. YAMILOV, « Applicability of the position-dependent diffusion approach to localized transport through disordered waveguides », *Physical Review B*, vol. 92, p. 014207, 7 2015.
- [99] M. LEE, J. LEE, S. KIM, S. CALLARD, C. SEASSAL et H. JEON, « Anderson localizations and photonic band-tail states observed in compositionally disordered platform », *Science Advances*, vol. 4, 1 2018.
- [100] S. MONDAL, R. KUMAR, M. KAMP et S. MUJUMDAR, « Optical Thouless conductance and level-spacing statistics in two-dimensional Anderson localizing systems », *Physical Review B*, vol. 100, p. 060201, 8 2019.

- [101] M. LOTT, P. ROUX, L. SEYDOUX, B. TALLON, A. PELAT, S. SKIPETROV et A. COLOMBI, « Localized modes on a metasurface through multiwave interactions », *Physical Review Materials*, vol. 4, p. 065203, 6 2020.
- [102] R. MONSARRAT, R. PIERRAT, A. TOURIN et A. GOETSCHY, « Pseudogap and Anderson localization of light in correlated disordered media », *Physical Review Research*, vol. 4, p. 033246, 9 2022.
- [103] S. E. SKIPETROV et J. H. PAGE, « Red light for Anderson localization », *New Journal of Physics*, vol. 18, p. 021001, 1 2016.
- [104] J. M. ESCALANTE et S. E. SKIPETROV, « Longitudinal Optical Fields in Light Scattering from Dielectric Spheres and Anderson Localization of Light », *Annalen der Physik*, vol. 529, p. 1700039, 8 2017.
- [105] D. S. WIERSMA, P. BARTOLINI, A. LAGENDIJK et R. RIGHINI, « Localization of light in a disordered medium », *Nature*, vol. 390, p. 671–673, 12 1997.
- [106] A. A. CHABANOV, M. STOYTCHEV et A. Z. GENACK, « Statistical signatures of photon localization », *Nature*, vol. 404, p. 850–853, 4 2000.
- [107] N. CHERRORET, S. E. SKIPETROV et B. A. van TIGGELEN, « Transverse confinement of waves in three-dimensional random media », *Physical Review E*, vol. 82, p. 056603, 11 2010.
- [108] L. COBUS, S. SKIPETROV, A. AUBRY, B. van TIGGELEN, A. DERODE et J. PAGE, « Anderson Mobility Gap Probed by Dynamic Coherent Backscattering », *Physical Review Letters*, vol. 116, p. 193901, 5 2016.
- [109] W. HILDEBRAND, A. STRYBULEVYCH, S. SKIPETROV, B. van TIGGELEN et J. PAGE, « Observation of Infinite-Range Intensity Correlations above, at, and below the Mobility Edges of the 3D Anderson Localization Transition », *Physical Review Letters*, vol. 112, p. 073902, 2 2014.
- [110] G. M. CONLEY, M. BURRESI, F. PRATESI, K. VYNCK et D. S. WIERSMA, « Light Transport and Localization in Two-Dimensional Correlated Disorder », *Physical Review Letters*, vol. 112, p. 143901, 4 2014.
- [111] L. S. FROUFE-PÉREZ, M. ENGEL, J. J. SÁENZ et F. SCHEFFOLD, « Band gap formation and Anderson localization in disordered photonic materials with structural correlations », *Proceedings of the National Academy of Sciences*, vol. 114, p. 9570–9574, 9 2017.
- [112] G. J. AUBRY, L. S. FROUFE-PÉREZ, U. KUHL, O. LEGRAND, F. SCHEFFOLD et F. MORTESSAGNE, « Experimental Tuning of Transport Regimes in Hyperuniform Disordered Photonic Materials », *Physical Review Letters*, vol. 125, p. 127402, 9 2020.
- [113] J. HABERKO, L. S. FROUFE-PÉREZ et F. SCHEFFOLD, « Transition from light diffusion to localization in three-dimensional amorphous dielectric networks near the band edge », *Nature Communications*, vol. 11, p. 4867, 9 2020.
- [114] L. LONG, W. JU, H.-Y. YANG et Z. LI, « Dimensional Design for Surface-Enhanced Raman Spectroscopy », *ACS Materials Au*, vol. 2, p. 552–575, 9 2022.
- [115] L. NOVOTNY et B. HECHT, *Principles of Nano-Optics*. Cambridge University Press, 9 2012.
- [116] A. ARCHAMBAULT, T. V. TEPERIK, F. MARQUIER et J. J. GREFFET, « Surface plasmon Fourier optics », *Physical Review B*, vol. 79, p. 195414, 5 2009.
- [117] B. LAMPRECHT, G. SCHIDER, R. T. LECHNER, H. DITLBACHER, J. R. KRENN, A. LEITNER et F. R. AUSSENEGG, « Metal Nanoparticle Gratings : Influence of Dipolar Particle Interaction on the Plasmon Resonance », *Physical Review Letters*, vol. 84, p. 4721–4724, 5 2000.

- [118] Y. NISHIJIMA, L. ROSA et S. JUODKAZIS, « Surface plasmon resonances in periodic and random patterns of gold nano-disks for broadband light harvesting », *Optics Express*, vol. 20, p. 11466, 5 2012.
- [119] W. KHUNSIN, B. BRIAN, J. DORFMÜLLER, M. ESSLINGER, R. VOGELGESANG, C. ETRICH, C. ROCKSTUHL, A. DMITRIEV et K. KERN, « Long-Distance Indirect Excitation of Nanoplasmonic Resonances », *Nano Letters*, vol. 11, p. 2765–2769, 7 2011.
- [120] A. HUYNH, B. PERRIN, N. D. LANZILLOTTI, B. JUSSERAND et A. LEMAÎTRE, « Optical excitation and detection of terahertz acoustic waves with semiconductor superlattices », *Journal of Physics : Conference Series*, vol. 214, p. 012047, 3 2010.
- [121] S. BOCCATO, M. GAUTHIER, N. C. SIERSCH, P. PARISIADIS, Y. GARINO, S. AYRINHAC, S. BALUGANI, C. BRETONNET, T. DELÉTANG, M. GUILLOT, K. VERBEKE, F. DECREMPS, Y. GUARNELLI, M. MORAND, P. ROSIER, B. ZHAO et D. ANTONANGELI, « Picosecond acoustics : a new way to access elastic properties of materials at pressure and temperature conditions of planetary interiors », *Physics and Chemistry of Minerals*, vol. 49, p. 20, 6 2022.
- [122] T. TACHIZAKI, T. MUROYA, O. MATSUDA, Y. SUGAWARA, D. H. HURLEY et O. B. WRIGHT, « Scanning ultrafast Sagnac interferometry for imaging two-dimensional surface wave propagation », *Review of Scientific Instruments*, vol. 77, p. 043713, 4 2006.
- [123] P. BON, G. MAUCORT, B. WATTELLIER et S. MONNERET, « Quadriwave lateral shearing interferometry for quantitative phase microscopy of living cells », *Optics Express*, vol. 17, p. 13080, 7 2009.
- [124] G. BAFFOU, « Quantitative phase microscopy using quadriwave lateral shearing interferometry (QLSI) : principle, terminology, algorithm and grating shadow description », *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 54, p. 294002, 7 2021.
- [125] S. Y. LEE, C. FORESTIERE, A. PASQUALE, G. F. WALSH, J. TREVINO, M. ROMAGNOLI et L. DAL NEGRO, « Plasmon-enhanced Isotropic Structural Coloration of Metal Films with Homogenized Pinwheel Nanoparticle Arrays », in *Conference on Lasers and Electro-Optics 2012*, (Washington, D.C.), p. QW3H.5, OSA, 2012.
- [126] S. KHADIR, D. ANDRÉN, P. C. CHAUMET, S. MONNERET, N. BONOD, M. KÄLL, A. SENTENAC et G. BAFFOU, « Full optical characterization of single nanoparticles using quantitative phase imaging », *Optica*, vol. 7, p. 243, 3 2020.
- [127] S. KHADIR, P. BON, D. VIGNAUD, E. GALOPIN, N. McEVOY, D. McCLOSKEY, S. MONNERET et G. BAFFOU, « Optical Imaging and Characterization of Graphene and Other 2D Materials Using Quantitative Phase Microscopy », *ACS Photonics*, vol. 4, p. 3130–3139, 12 2017.
- [128] S. KHADIR, D. ANDRÉN, R. VERRE, Q. SONG, S. MONNERET, P. GENEVET, M. KÄLL et G. BAFFOU, « Metasurface Optical Characterization Using Quadriwave Lateral Shearing Interferometry », *ACS Photonics*, vol. 8, p. 603–613, 2 2021.
- [129] J. PRIMOT et N. GUÉRINEAU, « Extended Hartmann test based on the pseudoguiding property of a Hartmann mask completed by a phase chessboard », *Applied Optics*, vol. 39, p. 5715, 11 2000.
- [130] I. FREESTONE, N. MEEKS, M. SAX et C. HIGGITT, « The Lycurgus Cup – A Roman nanotechnology », *Gold Bulletin*, vol. 40, p. 270–277, 12 2007.
- [131] F. DEKKER, L. KOOL, A. BUNSCHOTEN, A. H. VELDEERS et V. SAGGIOMO, « Syntheses of gold and silver dichroic nanoparticles; looking at the Lycurgus cup colors », *Chemistry Teacher International*, vol. 3, 3 2021.

- [132] O. DEMICHEL, M. PETIT, G. Colas des FRANCS, A. BOUHELIER, E. HERTZ, F. BILLARD, F. de FORNEL et B. CLUZEL, « Selective excitation of bright and dark plasmonic resonances of single gold nanorods », *Optics Express*, vol. 22, p. 15088, 6 2014.
- [133] M. MEIER et A. WOKAUN, « Enhanced fields on large metal particles : dynamic depolarization », *Optics Letters*, vol. 8, p. 581, 11 1983.