



Ingénierie de métasurfaces désordonnées pour le contrôle de propriétés optiques

Eslam El Shamy

► To cite this version:

Eslam El Shamy. Ingénierie de métasurfaces désordonnées pour le contrôle de propriétés optiques. Instrumentations et Détecteurs [physics.ins-det]. Institut Polytechnique de Paris, 2021. Français. NNT : 2021IPPAX068 . tel-03557078

HAL Id: tel-03557078

<https://theses.hal.science/tel-03557078>

Submitted on 4 Feb 2022

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

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

Ingénierie de métasurfaces désordonnées pour le contrôle de propriétés optiques

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

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

Thèse présentée et soutenue à Palaiseau, le 8 Octobre 2021, par

ESLAM EL SHAMY

Composition du Jury :

Yannick De Wilde Directeur de Recherche, ESPCI Paris (Institut Langevin)	Président
Anne-Laure Fehrembach Maître de conférence, Université Aix-Marseille (Institut Fresnel)	Rapporteur
Antoine Moreau Maître de Conférences, Université Clermont Auvergne (Institut Pascal)	Rapporteur
Christophe Sauvan Charge de Recherche CNRS, Institut d'Optique Graduate School	Examineur
Riad Haïdar Directeur de Recherche, ONERA, Université Paris-Saclay (DSG)	Directeur de thèse
Patrick Bouchon Maître de recherches, ONERA, Université Paris-Saclay (DOTA)	Co-directeur de thèse
Julien Jaeck Maître de recherche, ONERA, Université Paris-Saclay (DOTA)	Invité
Rose-Marie Sauvage Ingénieur de recherche (DGA)	Invité

Motivations

Bien avant de débiter ma thèse je me disais " Me voilà né dans ce monde sans en avoir vraiment décidé. Si je suis les sentiers qu'on a tracé sans m'avoir consulté -car j'en étais absent- dois-je forcément et simplement les accepter? N'y a-t-il pas un moyen de connaître où nous en sommes aujourd'hui sans se nourrir de tous les raisonnements passés? " J'ai acquis la conviction que non. Qu'il fallait nécessairement suivre les pas de ses prédécesseurs proches et lointains, et qu'ainsi on construisait ensemble une idée de la science qui dépasse largement celle d'une seule existence : accepter de faire partie d'une chaîne sans jamais en être à l'origine et ne pouvoir jamais ressentir tout le passé d'un seul souffle. Il faut croire que l'idée de la science est naturellement collective. Sans doute quelque chose devait nous échapper. Il subsiste pourtant un salut. Je veux parler des motivations que chacun peut avoir face à une problématique et comment il l'imagine. Un trait qui pousse à étayer au mieux *son* observation du monde et la représentation que l'on s'en fait : est-ce cela le "cœur du réacteur"? Cette simple "idée" ?

Le champ de l'optique est une belle illustration de combinaisons d'idées, de modèles et d'expériences dont les attentes étaient loin d'être évidentes. Embarqué sur un pareil chantier, plusieurs sentiers sont exploitables. Il y a, entre-autres, l'observation directe de curiosités phénoménologiques, l'élaboration théorique ou la traduction mathématique de ces mêmes phénomènes, la caractérisation de réalisations et dans une mesure plus avancée l'élaboration de nouvelles. C'est principalement ce large éventail qui m'a poussé à choisir ce sujet dont les bases philosophiques sont anciennes, les théories récentes et les pratiques actuelles.

Remerciements

Pour commencer, je remercie les membres de mon jury pour leur bienveillance d'avoir lu et évalué mon travail : Merci aux rapporteurs Antoine Moreau et Anne-Laure Fehrembach. Merci à Christophe Sauvan pour l'examen de mon travail et à Yannick De Wilde qui a accepté de présider ce jury. Je remercie également ma tutrice DGA Rose-Marie Sauvage pour le suivi et son implication tout au long de ma thèse.

Je tiens à remercier chaleureusement mes directeurs Riad et Patrick, mon encadrant Julien et plus généralement l'ONERA pour m'avoir accepté au sein de cet environnement riche en activités.

Riad, je te suis reconnaissant de la confiance que tu m'as accordée, de tes conseils et suis honoré d'avoir été ton élève. Ton pragmatisme, ta capacité à relativiser et à voir les choses autrement m'ont guidé. C'est ce qui fait, *à mon sens aujourd'hui*, la qualité d'un Homme autant que celle d'un superviseur. Je n'oublie pas les rendez-vous en visio à l'heure de l'apéro, ni les sujets divers teintés d'humour que l'on partage avec toi et qui font se souvenir à chacun qu'une équipe n'est pas qu'une simple mécanique.

Patrick ton calme exceptionnel et ton sens aigu de la justice m'ont convaincu de pousser la porte de l'équipe. J'ai beaucoup appris de ce que pouvait être l'exemple d'un directeur. Ta présence ne s'est jamais dissipée : tu es et t'adapte à la progression de chaque étudiant que tu encadres même par temps de tempête, sans enlever sa liberté à chacun. A chaque problème tu trouves une solution adaptée pour, comme tu dis souvent, "converger". Tu m'as fait converger.

Julien, les discussions avec toi ont toujours été vivantes au sens qu'elle se poursuivent souvent sans ta présence. Beaucoup de fois il m'est arrivé de converser avec moi-même après avoir parlé avec toi et cela m'a poussé à chercher toujours un peu plus loin.

Je remercie sincèrement toutes les personnes avec qui j'ai partagé mon espace de travail : Clément et Léna avec qui j'ai occupé une grande partie de mon temps au bureau. Temps qui se distribuait de diverses manières dans une atmosphère enthousiaste et fraternelle : Soldat Soun et Monsieur V, je me suis bien amusé et ai beaucoup appris! Micke et Clément, l'équipe n'aurait jamais été la même sans votre terrible duo. Je garde un très bon souvenir de la conférence à Copenhague en votre compagnie, notamment les balades à bicyclettes pleines.

Maxence, je retiens de toi l'envie de toujours avancer par soi-même. Laura, il n'y a pas assez de mots pour exprimer ta sympathie. Les échanges avec toi ont toujours eu un goût de légèreté et qu'il est si bon de t'avoir dans une équipe. Denis, je n'oublie pas les discussions que nous avons eues, que ce soit sur le travail ou tout un reste d'impressions auxquelles en tant que doctorant on se confronte tous. Ton avis est comme une charpente, solide et mesuré à la fois. Arthur, je te remercie pour la pureté de tes choix, qu'ils soient professionnels ou personnels. Clément G, notre recouvrement temporel au labo fut bref mais suffisant pour admirer ton habileté avec les jeux de mots. Baptiste, je t'ai connu au moment d'un entretien pour ma thèse, tu étais jeune doctorant, depuis tu as beaucoup évolué professionnellement et personnellement. Je te souhaite un parcours qui te sied à la hauteur de ce que tu partages avec l'équipe. Hasnaa, je te remercie pour le partage que tu sais donner, ta présence sans cesse au labo et ton envie d'aider ton prochain. Ludivine, nous avons commencé ensemble cette aventure, nous la terminons à des instants différents, je te remercie pour tous les échanges que nous avons eus. Je te remercie également Léo, l'école d'été à Porquerolles m'a permis d'échanger avec toi et de me rendre compte à quel point tu es une personne assez géniale. Je te remercie de m'avoir inspiré dans ces remerciements, tant tu sais reconnaître à chacun son dû. Je te remercie également, Claire, pour avoir donné ta touche à notre équipe. Je me souviendrai des parties de cartes à Porquerolles notamment. Enfin, je te remercie Alice, tu as été mon acolyte pendant une bonne durée de la thèse, j'ai partagé des moments inoubliables avec toi, et plus qu'un simple temps qui s'écoule, la durée de notre échange m'a permis de m'élever un peu plus haut chaque jour.

A toutes les autres personnes, doctorants, stagiaires et salariés avec qui j'ai eu le plaisir et la richesse d'échanger, en particulier, Greg, Jérôme, Marilisa, Marion et Hassan : je vous remercie.

Je remercie également le voisinage immédiat de la tumultueuse rue Mazarine, en particulier Pia, Gauthier, Guillaume, Zac, Barbara, Alexis, Léo, Thibault, Marie, Clara, Steph, Liv, Charly et l'immuable Jon-Jon avec qui j'ai passé le temps de la rédaction de ce manuscrit. Il faut de tout pour faire un monde, vous en êtes l'exemple.

Pour finir, je dédie mes derniers remerciements à mes proches amis Eloi, Salim, Misha, Mikel, Laurent, Sophie, Anaïs et Micka et naturellement à ma famille ainsi qu'à mon parrain Gabriel. Parfois on croit évoluer seul sans se rendre compte qu'autour de soi gravite toujours un ensemble silencieux et solide qui aide à ne jamais vraiment prendre la tangente.

"Toute limite n'est peut-être qu'une coupure arbitraire dans un ensemble indéfiniment mobile"

Foucault, Les mots et les choses.

À mon petit frère,

Table des matières

Introduction	1
1 Métasurfaces désordonnées dans le domaine infrarouge	5
1.1 De la lumière à l'infrarouge	6
1.1.1 Mise en évidence d'un rayonnement invisible	6
1.1.2 Le spectre électromagnétique	7
1.1.3 Interprétation et lois physiques	8
1.1.4 Les domaines d'application de l'infrarouge	11
1.2 Nanoantennes	12
1.2.1 Le concept d'antenne	12
1.2.2 Les nanoantennes optiques et la plasmonique	12
1.2.3 Les nanoantennes optiques et l'infrarouge : illustration	16
1.3 Métamatériaux	18
1.3.1 Des matériaux artificiels récents	18
1.3.2 Types de métamatériaux	19
1.3.3 Métasurfaces	21
1.3.4 Fabrication	23
1.4 Le désordre dans les nanostructures	24
1.4.1 Métasurfaces désordonnées	24
1.4.2 Applications et recherche	27
1.5 Conclusion	29

2 Etude théorique de structures MIM désordonnées	31
2.1 L'antenne MIM : une brique de base pour les métasurfaces	32
2.1.1 Principe de l'antenne MIM	32
2.1.2 Influence des paramètres physiques sur la résonance	34
2.1.3 Constructions de métasurfaces complexes avec l'antenne MIM	36
2.2 Modélisation du désordre	37
2.2.1 Problématique de la modélisation électromagnétique de systèmes complexes	37
2.2.2 Modélisation de structures 1D par la méthode BMM	38
2.2.3 Approximation numérique de la diffusion	40
2.3 Étude de la diffusion d'un ensemble de MIM désordonnés	44
2.3.1 Le cas ordonné	44
2.3.2 Le cas désordonné	47
2.3.3 Étude de la dissipation	49
2.4 Conclusion	50
3 Caractérisations expérimentales	51
3.1 Méthodes de caractérisation optique dans le domaine infrarouge	52
3.2 Spectromètre à transformée de Fourier	52
3.2.1 Présentation	52
3.2.2 Le module de mesure par réflexion	53
3.3 Conception des échantillons	55
3.3.1 Choix des échantillons	55
3.3.2 Fabrication	55
3.4 Prise en compte des contraintes expérimentales	56
3.4.1 Mesures sous vide	56
3.4.2 Miroirs sphériques	57
3.4.3 Précision du bras articulé	57
3.5 Le réseau périodique de MIM	57
3.5.1 Mesure de la réflectivité spéculaire	58
3.6 L'assemblage désordonné de MIM	60
3.6.1 Mesure de la réflectivité spéculaire	60
3.6.2 Mesures quantitatives de la diffusion	61
3.6.3 Mesures préliminaires en émission thermique sur les MIM désordonnés	63
3.7 Conclusion	65

4 Étude d'un réseau de sillons désordonnés	67
4.1 L'antenne sillon : un analogue du résonateur MIM	68
4.1.1 Principe de l'antenne sillon	68
4.1.2 Modèle analytique	69
4.1.3 Vecteur d'onde du sillon métal-isolant-métal	71
4.1.4 Résolution	72
4.1.5 Comparaison au résonateur MIM	76
4.2 Étude de réseaux de sillons désordonnés	77
4.2.1 Cas d'un réseau sub-longueur d'onde	77
4.2.2 Cas du réseau super-longueur d'onde : optimisation d'une surface diffusante	79
4.2.3 Étude de différentes distributions pseudo-aléatoires	81
4.3 Combinaisons de sillons	84
4.3.1 Étude du désordre dans des combinaisons de sillons	84
4.3.2 Désordre du motif bi-sillons	86
4.4 Conclusion	87
Conclusion	89
Bibliographie	91

Introduction

Objectifs et enjeux de mon travail de thèse

Mon travail de thèse porte sur la modélisation et l'étude de l'effet du désordre spatial des nano-antennes composant une métasurface optique. Plus précisément il vise à recouper d'une part des résultats obtenus au moyen d'outils de simulations numériques et d'autre part les résultats des caractérisations expérimentales concernant le phénomène de diffusion par un assemblage d'antennes désordonnées. L'objectif des simulations électromagnétiques est de proposer un objet technologiquement réalisable et qui permette -dans une certaine mesure- l'étude de la diffusion par une métasurface 1D dans la gamme de rayonnement infrarouge. Cette étude doit aboutir à la proposition d'un matériau aux propriétés de diffusion originales. Dans un second temps, après la réalisation technologique de l'objet, il s'agira de le caractériser au moyen de montages optiques adéquats pour valider expérimentalement les prévisions numériques. Enfin, des outils de simulations moins gourmands en temps me permettront de pousser les investigations plus loin pour proposer une ou des métasurfaces aux fonctions originales.

Organisation du mémoire

Ce manuscrit est organisé en quatre chapitres : un premier chapitre d'introduction générale aux métasurfaces désordonnées dans le domaine infrarouge, un second qui précisera mon objet d'étude c'est à dire l'antenne Métal-Isolant-Métal d'un point de vue théorique mais également le résultat de simulations. Le troisième chapitre s'attèlera à la partie

expérimentale de ma thèse et le dernier chapitre présentera les approfondissements du travail en simulation avec un autre type d'antenne, le sillon gravé dans l'or.

Chapitre premier

Ce chapitre d'introduction et d'état de l'art commencera un bref historique du rayonnement infrarouge et présentera quelques enjeux dans cette gamme spectrale. Je présenterai également les antennes qui servent à sa détection en précisant les effets physiques sous-jacents notamment la résonance de plasmons de surface, ses particularités et surtout son originalité. Partant de là, je ferai également un tour d'horizon de l'environnement passé et actuel des métasurfaces optiques, dont les nano-antennes constituent la brique de base. Les méthodes de fabrications seront abordées pour apprécier l'état technologique actuel mais aussi pour introduire l'effet du désordre spatial des nanoantennes au sein de la métasurface, inhérent aux processus de fabrication. Le désordre peut cependant constituer un critère de conception pour parvenir à des applications précises, nous verrons certaines de ces applications.

Chapitre second

Suite au chapitre d'introduction, je présenterai dans cette section l'antenne Métal-isolant-métal, notamment ses caractéristiques optiques en réflexion et en absorption. J'introduirai les outils numériques de simulation et les résultats en simulation d'un réseau périodique puis progressivement désordonné de nanoantennes MIM. Ces simulations seront focalisées sur la génération de spectres de réflectivité.

Chapitre troisième

Ce chapitre traite de la fabrication et de la caractérisation expérimentale des métasurfaces précédemment simulées. Après avoir présenté le montage de caractérisation en réflexion au moyen d'un spectromètre, je passerai à l'interprétation des résultats en tenant compte des limitations physiques du montage. Ce sera aussi l'occasion de confronter les mesures aux simulations pour en apprécier la validité. Un second montage sera également présenté, cette fois pour caractériser les échantillons en émission. C'est à dire que les échantillons seront chauffés et leur rayonnement analysé pour en mesurer l'émissivité, d'où nous déduirons l'absorption.

Chapitre quatrième

Le quatrième et dernier chapitre, aura comme objectif de généraliser les résultats obtenues avec les antennes MIM aux antennes sillons, il s'agit d'un sillon gravé dans de l'or. Ce type d'antenne présente une résonance analogue à celle des MIM et s'avère numériquement plus maniable pour les simulations. C'est pourquoi je présenterai dans ce chapitre une méthode de résolution électromagnétique qui permette le calcul direct de la réflectivité. Cet outil permettra de rendre les simulations beaucoup plus rapides et donnera l'occasion de prospecter en vue de proposer une métasurface extrêmement diffusante. La dernière partie de ce chapitre visera à proposer numériquement une métasurface diffusante et large bande.

Chapitre

1

Métasurfaces désordonnées dans le domaine infrarouge

Sommaire

1.1 De la lumière à l'infrarouge	6
1.1.1 Mise en évidence d'un rayonnement invisible	6
1.1.2 Le spectre électromagnétique	7
1.1.3 Interprétation et lois physiques	8
1.1.4 Les domaines d'application de l'infrarouge	11
1.2 Nanoantennes	12
1.2.1 Le concept d'antenne	12
1.2.2 Les nanoantennes optiques et la plasmonique	12
1.2.3 Les nanoantennes optiques et l'infrarouge : illustration	16
1.3 Métamatériaux	18
1.3.1 Des matériaux artificiels récents	18
1.3.2 Types de métamatériaux	19
1.3.3 Métasurfaces	21
1.3.4 Fabrication	23
1.4 Le désordre dans les nanostructures	24
1.4.1 Métasurfaces désordonnées	24
1.4.2 Applications et recherche	27
1.5 Conclusion	29

L'observation du monde réel et la propension que nous avons à tenter de le comprendre à travers l'histoire a permis de poser les bases des sciences physiques. A chaque époque, chaque découverte est une brique ajoutée à l'édifice de la connaissance globale d'aujourd'hui. L'observation phénoménologique a connu une avancée majeure lorsqu'il a été possible d'élaborer des modèles mathématiques puis de les utiliser pour trouver l'issue de ces mêmes phénomènes physiques observables. Ainsi il est possible de constater, de décrire et de prédire l'issue de phénomènes dont nos sens ne nous permettent pas l'observation directe. Cette avancée est d'une part due à l'élaboration de théories sur lesquelles repose la phénoménologie physique et d'autre part au développement d'outils mathématiques, technologiques et informatiques permettant la résolution de ces mêmes formalismes. Pour sortir de l'état qualitatif de l'observation, nous avons eu besoin d'élaborer des outils de mesure précis pour caractériser les phénomènes et d'en projeter une quantification à travers des grandeurs universelles.

La branche physique dans laquelle s'inscrit ma thèse est celle de l'optique et par extension celui du rayonnement. Les paragraphes qui suivent ont pour but de donner une illustration de l'environnement dans lequel s'inscrit mon travail, plus particulièrement, il vise à faire une chronologie brève de l'historique du rayonnement infrarouge, des antennes optiques, illustrer le champ des metamatériaux et introduire les travaux sur les metasurfaces désordonnées.

1.1 De la lumière à l'infrarouge

1.1.1 Mise en évidence d'un rayonnement invisible

Remontons chronologiquement les événements. A l'aube de ce 19ème siècle, l'astronome Herschel a repris d'une part les travaux de décomposition de la lumière en couleurs, fruit du travail de Newton un siècle plus tôt et d'autre part ceux de la thermométrie pour tenter de donner une température à chaque couleur¹. Ainsi, à l'aide d'un prisme, il décomposa la lumière du soleil en différents faisceaux colorés (on savait par exemple que le prisme déviait plus les rayons bleus/violet que les rayons rouges), puis à l'aide d'une table de mesure de translation, il lut la température de chaque couleur sur trois thermomètres (deux servaient de référence) comme illustré sur la figure 1.1 : À mesure que la couleur de lumière tend vers le rouge, la température augmente (voir figure 1.1(b)). Cependant, il remarqua qu'au-delà de la limite "visible" du rouge, la température continuait d'augmenter pour atteindre un maximum avant de décroître de nouveau. Herschel venait de prouver expérimentalement l'existence d'un rayonnement énergiquement dense imperceptible à

¹William HERSCHEL. « Experiments on the refrangibility of the invisible rays of the sun ». In : *Philosophical Transactions of the Royal Society of London* 90 (1800), p. 284-292.

1.1 De la lumière à l'infrarouge

l'oeil humain et contenu dans la lumière du soleil. Au moment de sa découverte et compte tenu de son lien avec la chaleur, il prit comme nom "rayonnement de chaleur" avant d'être précisément nommé Infrarouge un peu plus d'un demi-siècle plus tard. Au moment de sa découverte Herschel eut l'intuition suivante « *To conclude, if we call light, those rays which illuminate objects, and radiant heat, those which heat bodies, it may be inquired, whether light be essentially different from radiant heat? In answer to which I would suggest, that we are not allowed, by the rules of philosophizing, to admit two different causes to explain certain effects, if they may be accounted for by one* » qui fut confirmée par la suite.

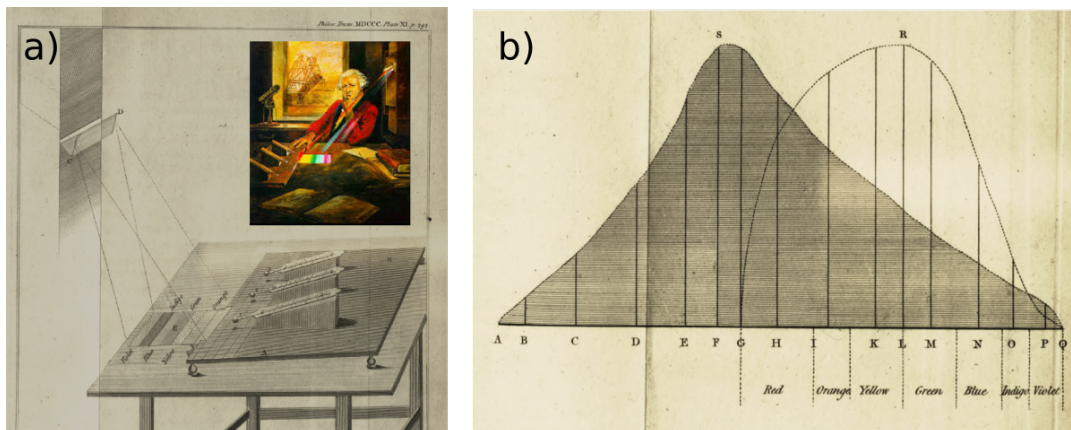


FIGURE 1.1 – (a) Schéma de l'expérience qui permet à Herschel de mettre en évidence l'existence de la lumière infrarouge. (b) Spectres représentant le pouvoir d'illumination (R) et la chaleur (S) en fonction de la couleur.

1.1.2 Le spectre électromagnétique

Depuis l'optique ondulatoire, on sait caractériser un rayonnement par sa longueur d'onde ou sa fréquence, ces deux grandeurs étant reliées par la formule $\lambda = \frac{c}{\nu}$, où $c = 299792458 m.s^{-1}$ est la vitesse de la lumière. Ainsi, on a pu constituer un spectre électromagnétique ayant pour unité d'échelle cette fréquence ν . La figure 1.2 montre l'étendue de ce spectre composé de différentes régions (en partant des basses fréquences) : les ondes radio, mises en évidence par Hertz en 1888 et qui portent également le nom d'ondes Hertziennes. Puis les micro-ondes, qui ont vu leur utilisation s'amplifier pendant la seconde guerre mondiale avec l'utilisation du RADAR ou plus récemment dans la médecine avec des applications comme l'électroporation qui vise à traiter le cancer². Suivent ensuite l'infrarouge, le visible, puis l'ultraviolet. Ce dernier a été découvert en 1801 par Ritter, qui à la manière d'Herschel examina l'action des différentes couleurs de la lumière visible décomposée par un prisme sur un papier imbibé de chlorure d'argent et s'aper-

²T DE BAERE et F DESCHAMPS. « New tumor ablation techniques for cancer treatment (microwave, electroporation) ». In : *Diagnostic and interventional imaging* 95.7-8 (2014), p. 677-682.

cut d'une action anormale en deçà du "violet". L'ultraviolet comme l'infrarouge joue un rôle très important en photo-chimie, en lithographie³ et en biologie plus généralement. Viennent ensuite les rayons X découverts par Röntgen en 1895⁴ pour qui fut décerné le premier Nobel de physique. Enfin les rayons gamma dont la découverte est due à Paul Villard en 1900⁵.

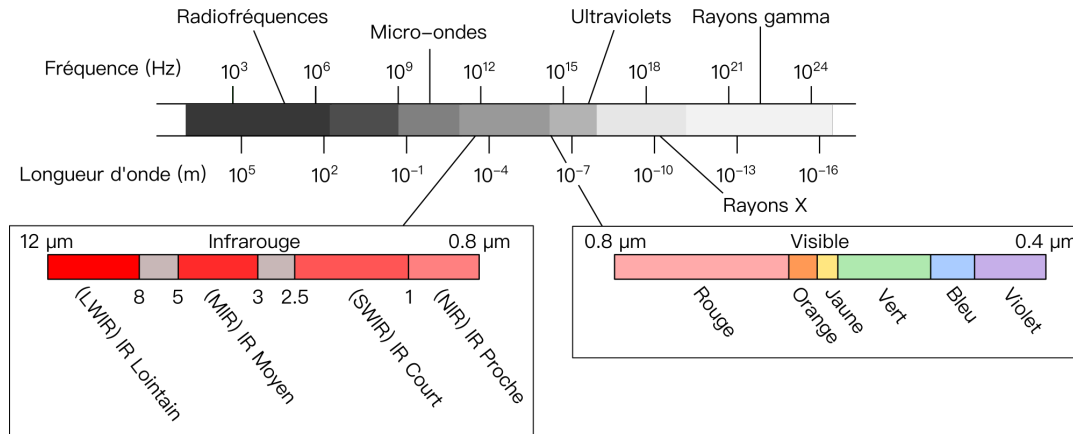


FIGURE 1.2 – diagramme de rayonnement. l'infrarouge se situe entre 0.8μm et 12μm. Les bandes grise correspondent aux fenêtres d'absorption par l'atmosphère terrestre.

Sur cette échelle de fréquence, on peut préciser la lumière infrarouge : elle s'étend de 0.8μm à 15μm et peut-être décomposée suivant plusieurs zones que sont l'infrarouge proche, court, moyen et lointain. Cette distinction est due aux fenêtres spectrales atmosphériques, certaines longueurs d'onde, ne nous parviennent pas sur Terre car elles sont absorbées par les molécules qui composent l'atmosphère. On se rend bien compte combien est réduite la fenêtre de détection octroyée par l'oeil humain. Les plages spectrales des rayons infrarouges sont beaucoup plus étendues et offrent des possibilités d'observation, de compréhension de phénomènes et d'ingénierie formidables. Nous verrons quelques-unes de ces applications.

1.1.3 Interprétation et lois physiques

Nous avons vu dans la première partie que la découverte du rayonnement infrarouge a posé celle de la nature de chaleur à travers l'expérience de Herschel, ou du moins un de ces aspects : des rayons invisibles à l'oeil chauffent les objets de notre environnement. Si le rayonnement infrarouge était dans un premier temps assimilé à la chaleur, la compréhens-

³Burn Jeng LIN. « Deep UV lithography ». In : *Journal of vacuum science and technology* 12.6 (1975), p. 1317-1320.

⁴Otto GLASSER. *Wilhelm Conrad Röntgen and the early history of the Roentgen rays*. 1. Norman Publishing, 1993.

⁵MM VILLARD. « Sur la réflexion et la réfraction des rayons cathodiques et des rayons déviables du radium ». In : *CR Acad. Sci. Paris* 130 (1900), p. 1010.

1.1 De la lumière à l'infrarouge

sion de sa nature a abouti à la définition de la lumière telle qu'on la connaît aujourd'hui, sans pour autant la dissocier de ses caractéristiques thermiques. Nous allons à présent voir les lois qui régissent l'émission thermique.

Le corps noir

Toujours au cours du 19^{ème} siècle, Kirchhoff imagina un objet hypothétique capable d'absorber tous les rayonnements, cet objet fut nommé Corps Noir. Pour se rapprocher le mieux expérimentalement de cet objet théorique, il a considéré une cavité thermosta-tée à température T , entourée d'une paroi adiabatique (*i.e.*, imperméable à la chaleur) et possédant une petite ouverture par laquelle pénètrent les rayons. Tout rayon qui pénètre dans la cavité par cette petite ouverture se réfléchit un très grand nombre de fois avant de pouvoir ressortir. la probabilité de ressortir est si faible que l'on peut considérer que le rayon est absorbé. Puisqu'elle ne peut être échauffé à l'infini, la cavité ré-émettra de la chaleur via l'ouverture. Ainsi, la couleur de l'ouverture donne le renseignement de la température interne du corps noir : froid, l'ouverture apparaît noire, puis au fur et à mesure que la température augmente, sa couleur passe du rouge à l'orange puis au jaune/blanc.

Une des questions à laquelle les physiciens ont essayé de répondre était la suivante : peut-on trouver un modèle qui permette d'expliquer le profil spectral d'émission/d'intensité du rayonnement d'un corps noir à la température T comme illustré sur la figure 1.3?

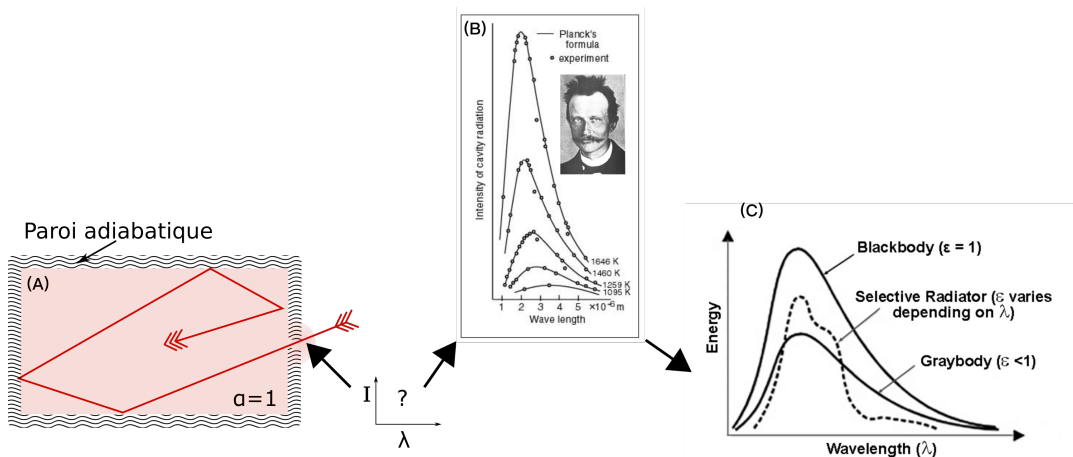


FIGURE 1.3 – (A) représentation schématique d'un corps noir. (B) comparaison expérience/théorie de la loi de Planck avec les mesures spectrales sur un corps noir. (C) Introduction de la notion d'émissivité réelle (corps gris) pour rendre compte des écarts de radiation d'un objet par rapport à un corps noir.

La loi de Stefan, loi de déplacement de Wien

En 1879, Joseph Stefan démontre expérimentalement que l'émittance E_m d'un corps noir, définie comme la puissance totale rayonnée par unité de surface dans toute la par-

tie avant de l'ouverture, est proportionnelle à la quatrième puissance de la température absolue T du corps noir, soit $E_m = \sigma T^4$. σ représente la constante de Stefan et vaut $\sigma = 5,6697.10^{-8} \text{ J.s}^{-1}.\text{m}^{-2}.\text{K}^{-4}$. La loi de Stefan nous donne l'information de la puissance totale rayonnée par un corps noir, elle stipule aussi que cette puissance totale ne dépend que de sa température. En revanche elle n'apporte aucune information sur la couleur du rayonnement. Wien remarqua également en 1896 que la fréquence ν_{max} à laquelle le corps noir émet le plus de flux lumineux est proportionnelle à sa température : $\nu_{max} \propto T$

La formule de Planck

Notons $d\nu$ un petit élément spectral émis par le corps noir et dE_m sa contribution à l'émittance de la source (E_m représente l'énergie envoyée par unité de surface de la source dans tout l'espace avant centrée sur la fréquence ν) alors $E_m^\nu = \frac{dE_m}{d\nu}$ représente l'emittance spectrale de la source c'est à dire l'énergie envoyée par unité de surface de la source dans tout l'espace avant centré sur la fréquence ν . En 1900, Rayleigh proposa un modèle mathématique pour décrire le comportement spectral du corps noir, pour toute fréquence ν l'emittance spectrale E_m^ν est proportionnelle à la température T de la source et qu'à toute température T , elle croît comme le carré de la fréquence : $E_m^\nu \simeq 2\pi kT\nu^2$. Cette première modélisation n'est valable que pour les faibles fréquences et devient aberrante aux grandes fréquences pour lesquelles l'émittance tendrait vers l'infini. La formule de Rayleigh repose sur un modèle énergétique de type "ondes oscillant dans une cavité" dans lequel l'énergie prend des valeurs continues, quelques années plus tard Planck proposa une formule exacte pour décrire le comportement du corps noir en laissant de côté cette idée de continuité en stipulant que la lumière rayonne par paquet d'énergie $h\nu$ avec $h = 6,62607004 \times 10^{-34} \text{ m}^2.\text{kg}.\text{s}^{-1}$ la constante de planck, il exposa alors :

$$E_m^\nu = \frac{2\pi h\nu^3}{c^2 e^{h\nu/kT} - 1}$$

Loi de Kirchhoff

Le modèle du corps noir est un outil théorique, en pratique on doit introduire les notions de coefficient d'absorption $\alpha(\nu)$ et d'émissivité $\epsilon(\nu)$, tous deux inférieurs à l'unité. Pour un corps réel, son émittance spécifique e_m^ν pour la radiation ν est plus faible que celle du corps noir E_m^ν et on l'obtient en multipliant par $\epsilon(\nu)$ l'émittance du corps noir :

$$e_m^\nu = \alpha(\nu) \times E_m^\nu \quad (1.1)$$

Par ailleurs, Kirchhoff énonce une seconde loi qui stipule :

⊗ Un corps à l'équilibre thermique n'émet une radiation que s'il est capable de l'ab-

1.1 De la lumière à l'infrarouge

sorber, ainsi $\alpha(\nu) = \epsilon(\nu)$.

On tire la conclusion que les bons récepteurs thermiques sont aussi de bons émetteurs.

1.1.4 Les domaines d'application de l'infrarouge

Arrivé à ce point, on sait que la lumière infrarouge est liée à la chaleur. Grâce à la modélisation mathématique de Planck, on peut remonter à la température d'un corps connaissant son émissivité. Observer l'environnement avec des capteurs capables de détecter la lumière infrarouge donne une quantité d'informations utile dans bien des domaines. La recherche amont qui s'intéresse à l'infrarouge vise notamment à découvrir ou améliorer des systèmes de détection en se concentrant sur l'interaction lumière-matière sur différents matériaux naturels ou artificiels. Un des domaines les plus prolifiques est celui de la spectroscopie car les longueurs d'onde des résonances des molécules présentes naturellement dans l'environnement se situent dans l'infrarouge⁶. Pour ce qui est des aspects plus applicatifs, l'utilisation de la détection infrarouge permet entre autres des contrôles de température, la vision nocturne, l'observation de phénomènes cosmiques, la conversion énergétique dans le domaine de l'énergie solaire⁷ ou encore la chirurgie et les diagnostics non-invasifs pour le corps humain⁸.

⁶C-P Sherman HSU et al. « Infrared spectroscopy ». In : *Handbook of instrumental techniques for analytical chemistry* 247 (1997), p. 277.

⁷Joseph M KAHN et John R BARRY. « Wireless infrared communications ». In : *Proceedings of the IEEE* 85.2 (1997), p. 265-298; EL WRIGHT et ED REESE. « Detection of the cosmic infrared background at 2.2 and 3.5 microns using DIRBE observations ». In : *The Astrophysical Journal* 545.1 (2000), p. 43.

⁸EFJ RING et Kurt AMMER. « Infrared thermal imaging in medicine ». In : *Physiological measurement* 33.3 (2012), R33.

1.2 Nanoantennes

1.2.1 Le concept d'antenne

Quelques années après que Maxwell eut élaboré la théorie des ondes électromagnétiques, Hertz les mis en lumière expérimentalement et montra ainsi la possibilité de transmettre une vibration électromagnétique à distance⁹. Une antenne (du latin "antenna" qui fait référence à la vergue d'un mât, c'est à dire la pièce soutenant les voiles) est un dispositif qui peut fonctionner en mode "émission" ou "réception". Dans le cas de l'émission, il s'agit de convertir l'énergie électrique (émise par l'oscillation de charges via un courant par exemple) en une onde électromagnétique qui va se propager. Et inversement pour une antenne en mode "réception". Les premières antennes fabriquées par Hertz s'appliquaient aux ondes radio (longueur d'onde de l'ordre du mètre), compatibles avec les dimensions de son dispositif. De manière générale, on peut retenir que **la taille de l'antenne et la longueur d'onde doivent être du même ordre de grandeur**.

1.2.2 Les nanoantennes optiques et la plasmonique

Aspects généraux

En vertu de la dernière phrase du paragraphe précédent, puisque l'on sait que le rayonnement infrarouge est caractérisé par une longueur d'onde de l'ordre du micromètre, cela suppose que les dimensions des antennes IR le soient aussi. Si l'on veut faire de la détection-réception d'ondes électromagnétiques il faut trouver une matière sensible aux variations du champ électromagnétique et dont la sensibilité -au travers d'effets physiques annexes- puisse être suffisante. A cette échelle, deux branches de la physique communiquent : l'optique et la matière condensée. La matière condensée s'intéresse aux interactions au sein de la matière en considérant que les infimes particules qui la constituent sont dépendantes les unes des autres, en les considérant en tant qu'ensemble du fait de leur proximité relative.

Pour connaître le comportement électromagnétique d'un matériau, deux propriétés sont nécessaires. La permittivité diélectrique ϵ , elle reflète le degré de polarisation par un champ électrique, et la perméabilité magnétique μ qui reflète les propriétés de magnétisation des substances sous l'effet d'un champ magnétique. En régime statique, on écrit

⁹Heinrich HERTZ. *Electric waves: being researches on the propagation of electric action with finite velocity through space*. Dover Publications, 1893.

les relations constitutives suivante :

$$\vec{D} = \epsilon \vec{E} \quad (1.2)$$

$$\vec{B} = \mu \vec{H} \quad (1.3)$$

où $\vec{D}$ est le vecteur déplacement électrique et $\vec{B}$ l'induction magnétique.

Dans le cas di vide, $\epsilon = \epsilon_0$ et $\mu = \mu_0$. Pour les autres matériaux, on définit la permittivité relative $\epsilon_r = \frac{\epsilon}{\epsilon_0}$ et la perméabilité relative $\mu_r = \frac{\mu}{\mu_0}$, normalisées par rapport aux valeurs du vide. En connaissant ces deux paramètres, on en définit un troisième très important, l'indice de réfraction $n = \sqrt{\epsilon_r * \mu_r}$. Ces grandeurs dépendent fortement de la fréquence des ondes électromagnétiques considérées et de la température du matériau. Par exemple pour connaître la permittivité relative de l'or, on peut utiliser des modèles (Drude par exemple) ou alors des tables de valeurs expérimentales^{10,11}. Dans la nature, la plupart des matériaux sont caractérisés par une permittivité et une perméabilité positives, cependant les métaux ont une permittivité négative aux fréquences correspondant au spectre optique. La figure 1.7 présente le comportement d'une onde plane monochromatique en fonction de la valeur de la permittivité et de la perméabilité.

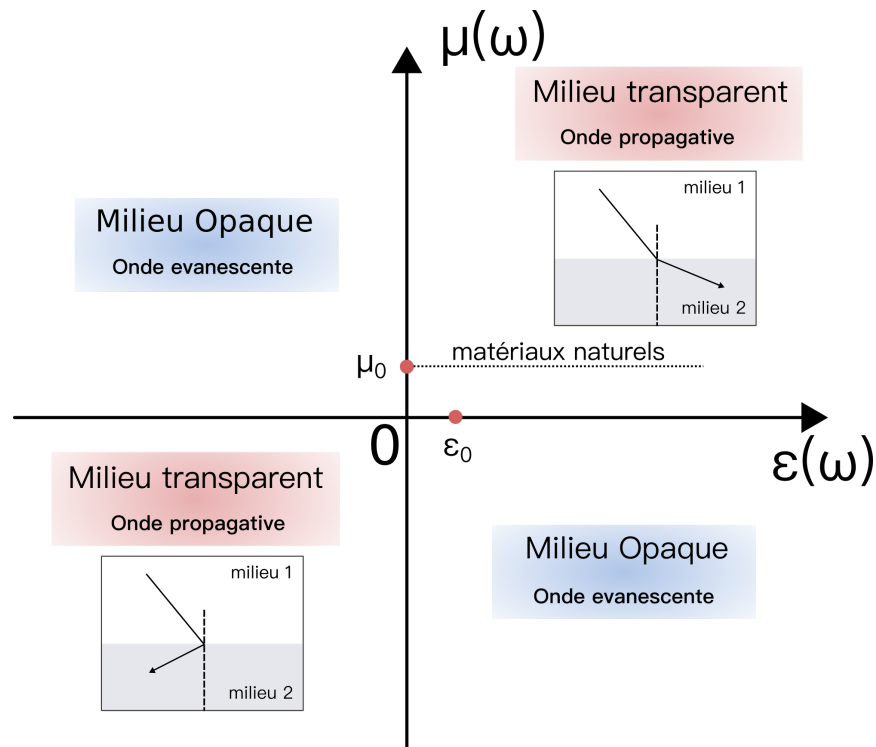


FIGURE 1.4 – Graphe schématisant la répartition des matériaux en fonction de leur permittivité ϵ et de leur perméabilité μ .

¹⁰Paul DRUDE. « Zur elektronentheorie der metalle ». In : *Annalen der physik* 306.3 (1900), p. 566-613.

¹¹E.D. PALIK et G. GHOSH. *Handbook of optical constants of solids*. Academic press, 1985.

Les plasmons de surface

Dans les années 1850 Faraday observa qu'un mélange biphasique de sel d'or en solution et de phosphore dans du disulfure de carbone, changeait de couleur en chauffant, cela est dû à la variation de la taille des particules d'or^{12,13}. Ce n'est qu'en 1908 que Mie proposa un modèle pour rendre compte du phénomène¹⁴ : l'absorbance dans le visible de ces solutions est propre à la dimension des particules. Ces solutions colloïdales étaient par ailleurs utilisées par le passé pour teinter les vitraux d'une couleur rouge. Au cœur de ce phénomène, on trouve la résonance de plasmons de surface : une oscillation cohérente des électrons de conduction du métal, excités par une onde électromagnétique incidente.

Pour comprendre comment fonctionne la résonance plasmonique, on peut faire l'analogie avec un oscillateur harmonique mécanique de type masse-ressort : lorsque la masse est déplacée de sa position d'équilibre, elle est soumise à la force de rappel du ressort qui l'entraîne vers sa position initiale. La masse suivra ainsi un mouvement sinusoïdal continu jusqu'à ce que les forces d'amortissement la ramènent au repos. L'effet de l'amortissement peut cependant être compensé par une force extérieure. Dans le cas d'une force extérieure sinusoïdale, il existe au moins une fréquence à laquelle l'amplitude d'oscillation de la masse sera maximale. Cette fréquence est appelée fréquence de résonance : une amplitude inférieure ou supérieure à elle produira une amplitude d'oscillation moins élevée. Ce phénomène se produit lorsque la force extérieure est en phase avec la fréquence d'oscillation naturelle car l'oscillateur absorbe ainsi un maximum d'énergie. Dans ces conditions, une faible force extérieure peut induire de larges amplitudes d'oscillation.

Les électrons libres d'un métal peuvent être décrits comme un gaz de charges négatives. Lorsqu'un champ électrique incident interagit avec les électrons libres, les électrons sont perturbés de la même manière que l'oscillateur mécanique décrit ci-dessus. Cela induit une polarisation électronique de courte durée puisque l'attraction de Coulomb due au noyau positivement chargé les ramène à leur position initiale. Dans le cas d'un métal illuminé, la composante électrique du champ électromagnétique (sinusoïdal) incident agit ainsi comme une force extérieure et la force d'attraction Coulombienne comme la force de rappel de l'oscillateur harmonique. Les conditions de résonance peuvent ainsi avoir lieu, produisant alors un déplacement de charges et une polarisation plus grande. La fréquence de résonance est appelée fréquence plasma et le phénomène de résonance : un plasmon. Le plasmon peut se produire dans le volume du métal, mais également à sa

¹²M. FARADAY. « The Bakerian lecture: experimental relations of gold (and other metals) to light ». In : *Philosophical Transactions of the Royal Society of London* 147 (1857), p. 145-181. ISSN : 0261-0523.

¹³Nathan D BURROWS et al. « Understanding the seed-mediated growth of gold nanorods through a fractional factorial design of experiments ». In : *Langmuir* 33.8 (2017), p. 1891-1907.

¹⁴Gustav MIE. « Contributions to the optics of diffuse media, especially colloid metal solutions ». In : *Ann. Phys* 25 (1908), p. 377-445.

surface (surface plasmon¹⁵). Lorsque le plasmon de surface se couple à une onde optique, il se crée un plasmon polariton de surface ou SPR.

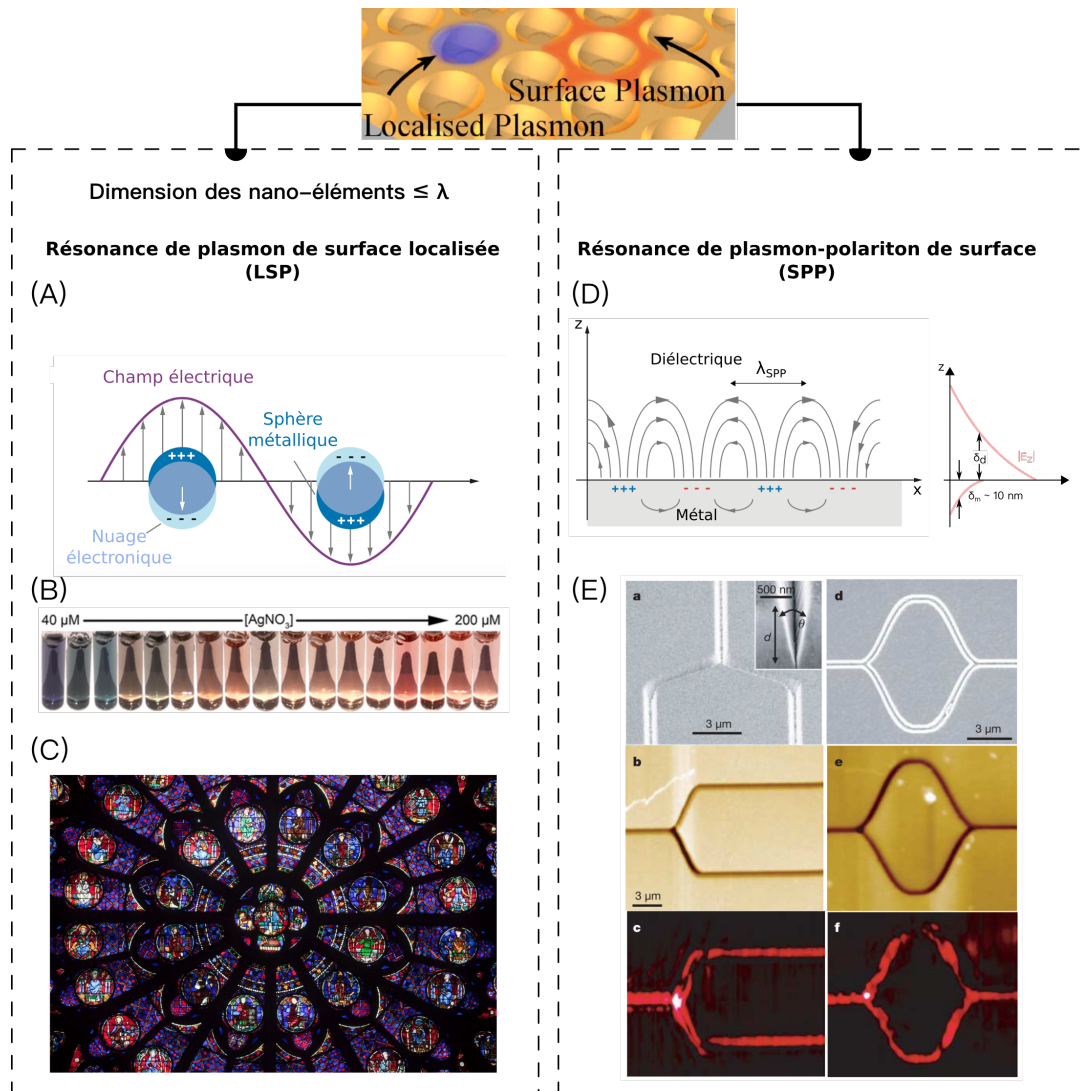


FIGURE 1.5 – (A) Représentation schématique de la résonance de plasmon de surface localisée (B) Suspensions de nanobâtonnets d'or de différentes dimensions¹⁶ (C) Rosace sud de la cathédrale Notre-Dame de Paris. (D) Représentation schématique de la résonance de plasmon polariton de surface et du caractère évanescent d'une telle onde¹⁷. (E) Expériences mettant en évidence le caractère prorogatif des SPP¹⁸ : (a) image au microscope électronique à balayage d'un Y-splitter (b) image topographique et (c) image en microscopie de champ proche. (d)–(f), comme (a)–(c) mais pour un interféromètre de Mach-Zehnder.

¹⁵Rufus H RITCHIE. « Plasma losses by fast electrons in thin films ». In : *Physical review* 106.5 (1957), p. 874.

¹⁶Tapan K SAU et Catherine J MURPHY. « Seeded high yield synthesis of short Au nanorods in aqueous solution ». In : *Langmuir* 20.15 (2004), p. 6414-6420.

¹⁷Katherine A WILLETS et Richard P VAN DUYN. « Localized surface plasmon resonance spectroscopy and sensing ». In : *Annu. Rev. Phys. Chem.* 58 (2007), p. 267-297.

¹⁸Sergey I BOZHEVOLNYI et al. « Channel plasmon subwavelength waveguide components including inter-

Il existe deux types de résonances SPR : l'une donnant naissance à la propagation d'une onde optique le long de l'interface métallique : les plasmons polaritons de surface (SPP)¹⁹ qui peuvent se propager le long de la surface métallique sur une distance pouvant aller à la centaine de micromètres²⁰ (figure 1.5 (D), (E) et (F)). Par ailleurs, le champ électromagnétique associé est polarisé TM (champ magnétique $\vec{H}$ parallèle à l'interface) et son amplitude décroît exponentiellement à mesure que l'on s'éloigne de l'interface. Dans le cas des nanostructures unidimensionnelles structurées, les plasmons-polaritons de surface peuvent être excités et se propager le long et le large des extrémités de chaque nano-structure et peuvent donner naissance à des résonances de Fabry-Perot²¹.

La seconde résonance SPR dite «localisée» dans un volume sub-longueur d'onde, connue sous le nom de résonance de plasmon de surface localisée (LSP) apparaît lorsque la taille des particules métalliques est de dimension inférieure à la longueur d'onde et ne peut pas être le lieu d'une onde propagative. Dans ce cas, le champ électromagnétique est confiné au niveau de la surface de la particule provoque une exaltation du champ électromagnétique qui induit des phénomènes d'absorption et de diffusion très importants²² (figure 1.5 (A) (B) et (C)). Ce type de résonance confinant la lumière à une échelle sub-longueur d'onde constitue une filière de recherche très active. Si ces effets sont généralisables à beaucoup de métaux, en pratique l'utilisation de l'or reste prédominante en raison de sa stabilité en nanofabrication ainsi que pour les valeurs élevées d'exaltation du champ électromagnétique.

1.2.3 Les nanoantennes optiques et l'infrarouge : illustration

Il est possible de fabriquer une large gamme de nanoantennes, cependant leur forme et leurs composition physique influent beaucoup sur les résonances plasmoniques. Par exemple l'oscillation des électrons libres à la surface de nanosphères métalliques est isotrope, contrairement au cas des nanoantennes triangulaires. En outre, la localisation des LSP dépend fortement de la géométrie. La figure 1.6 illustre les domaines d'application des différentes formes de nanoantennes ainsi que leur composition. Il apparaît que l'état de la recherche dans le domaine du proche infrarouge reste le plus prolifique.

ferometers and ring resonators ». In : *Nature* 440.7083 (2006), p. 508-511.

¹⁹Sergey I BOZHEVOLNYI et al. « Channel plasmon subwavelength waveguide components including interferometers and ring resonators ». In : *Nature* 440.7083 (2006), p. 508-511.

²⁰Matthew E STEWART et al. « Nanostructured plasmonic sensors ». In : *Chemical reviews* 108.2 (2008), p. 494-521.

²¹Jens DORFMÜLLER et al. « Fabry-Pérot resonances in one-dimensional plasmonic nanostructures ». In : *Nano letters* 9.6 (2009), p. 2372-2377.

²²W Andrew MURRAY et William L BARNES. « Plasmonic materials ». In : *Advanced materials* 19.22 (2007), p. 3771-3782.

²³Surbhi LAL, Stephan LINK et Naomi J HALAS. « Nano-optics from sensing to waveguiding ». In : *Nature photonics* 1.11 (2007), p. 641-648.

1.2 Nanoantennes

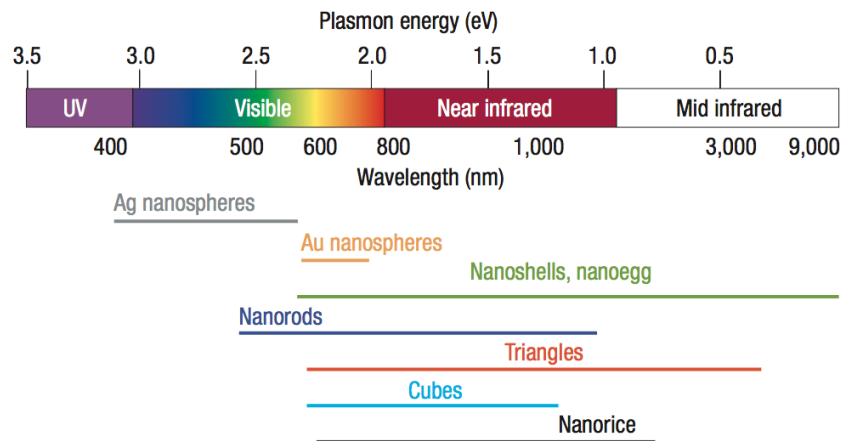


FIGURE 1.6 – Éventail de formes de nanoantennes et leur spectre d'application²³.

Parmi les caractéristiques notables des nanoantennes optiques on retrouve en particulier les propriétés d'exaltation du champ électromagnétique qui représente un potentiel important dans les domaines de la biologie et de l'optique non-linéaire (voir figure 1.6). Les caractéristiques spectrales sont très utiles pour les applications comme l'imagerie et le codage d'images. Des aspects plus fondamentaux sont en outre étudiés, notamment en ce qui concerne les communications optiques à petite échelle où l'utilisation des plasmons dans les technologies quantiques par analogie avec les électrons ou les photons. La forme des antennes est évidemment très liée à sa fabrication, dans la section suivante nous verrons quelques-unes de ces techniques.

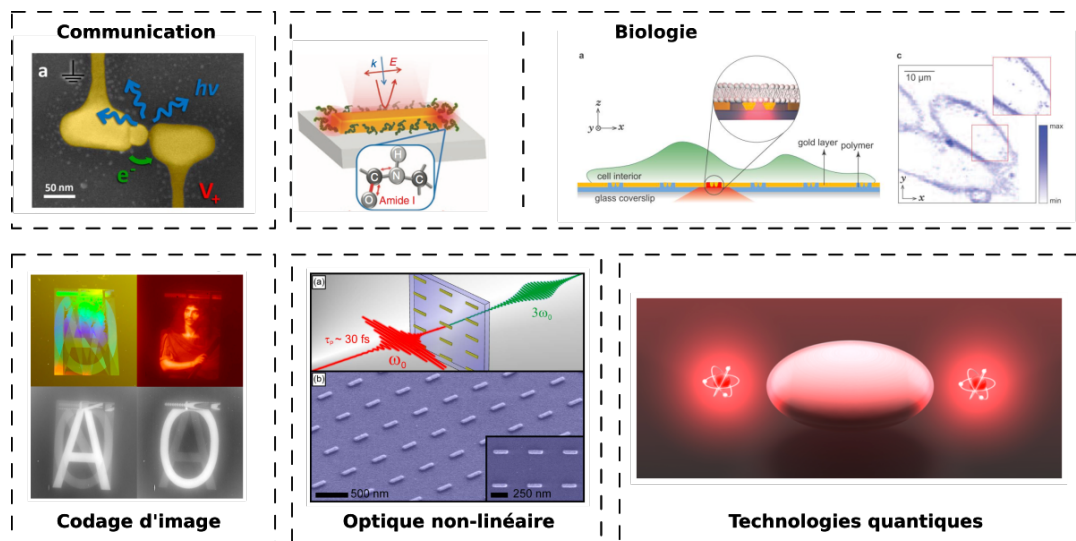


FIGURE 1.7 – Quelques domaines d'application des nanoantennes : pour les communications optiques²⁴, en biologie²⁵²⁶, pour le codage d'images²⁷, l'optique non-linéaire²⁸ ou encore les technologies quantiques²⁹.

1.3 Métamatériaux

1.3.1 Des matériaux artificiels récents

En 1968 Veselago, un pionnier du domaine des métamatériaux proposa une analyse des propriétés d'un matériau dont la permittivité et la perméabilité sont toutes deux négatives³⁰. Pour un tel matériau, les lois classiques de la réfraction de Descartes changent. Il appela ces matériaux, «matériaux main gauche» ou «matériaux à indice de réfraction négatif». Ces matériaux possèdent des caractéristiques originales, comme la réfraction négative illustrée figure 1.7, la propagation par retour-arrière (backward propagation) et un effet Doppler inversé entre-autres. Il a fallu attendre 1996 et Pendry et son équipe pour qu'une première preuve expérimentale de l'existence de matériau à permittivité négative relance l'intérêt de la filière³¹. En 2001 Shelby et son équipe proposent enfin un matériau main gauche caractérisable (ie $\mu < 0$ et $\epsilon < 0$)³². En dépit de leurs propriétés exceptionnelles, les matériaux à indice de réfraction négatif présentent des taux de pertes élevés et une largeur de bande étroite, c'est pourquoi la recherche sur les métasurfaces s'est élargie au-delà de la caractéristique «indice de réfraction négatif». En 2005, un groupe de recherche a utilisé un matériau à gradient d'indice de réfraction pour donner une trajectoire courbe aux onde électromagnétiques³³. Puis un an plus tard, une équipe proposa une démonstration expérimentale de "cape d'invisibilité" dans la gamme micro-ondes³⁴. C'est à ce moment que l'on commence vraiment à parler de métasurfaces, définies comme étant un **matériau macroscopique composite structuré (artificiel) de manière périodique ou non, généralement composé d'une cellule élémentaire de dimensions sub-longueur d'onde et tel qu'il permet d'obtenir des propriétés originales.**

²⁴Dordaneh ETEZADI et al. « Nanoplasmonic mid-infrared biosensor for in vitro protein secondary structure detection ». In : *Light: Science & Applications* 6.8 (2017), e17029-e17029.

²⁵Raju REGMI et al. « Planar optical nanoantennas resolve cholesterol-dependent nanoscale heterogeneities in the plasma membrane of living cells ». In : *Nano letters* 17.10 (2017), p. 6295-6302.

²⁶Karolina SŁOWIK et al. « Strong coupling of optical nanoantennas and atomic systems ». In : *Physical Review B* 88.19 (2013), p. 195414.

²⁷Mathilde MAKHSIYAN et al. « Shaping the spatial and spectral emissivity at the diffraction limit ». In : *Applied Physics Letters* 107.25 (2015), p. 251103.

²⁸Bernd METZGER et al. « Third-harmonic spectroscopy and modeling of the nonlinear response of plasmonic nanoantennas ». In : *Optics letters* 37.22 (2012), p. 4741-4743.

²⁹Johannes KERN et al. « Electrically driven optical antennas ». In : *Nature Photonics* 9.9 (2015), p. 582-586.

³⁰Viktor G VESELAGO. « Electrodynamics of substances with simultaneously negative and ». In : *Usp. Fiz. Nauk* 92 (1967), p. 517.

³¹John B PENDRY et al. « Extremely low frequency plasmons in metallic mesostructures ». In : *Physical review letters* 76.25 (1996), p. 4773.

³²Richard A SHELBY, David R SMITH et Seldon SCHULTZ. « Experimental verification of a negative index of refraction ». In : *science* 292.5514 (2001), p. 77-79.

³³David Ryan SMITH et al. « Gradient index metamaterials ». In : *Physical Review E* 71.3 (2005), p. 036609.

³⁴David SCHURIG et al. « Metamaterial electromagnetic cloak at microwave frequencies ». In : *Science* 314.5801 (2006), p. 977-980.

1.3.2 Types de métamatériaux

Outre les aspects théoriques de la recherche en métamatériaux, la possibilité d'intégrer leurs propriétés originales dans des dispositifs technologiques joue le rôle de moteur dans de nombreux groupes de recherche. La figure 1.8 présente un point de vue sur l'évolution de la recherche en métamatériaux dans le champ de l'optique³⁵.

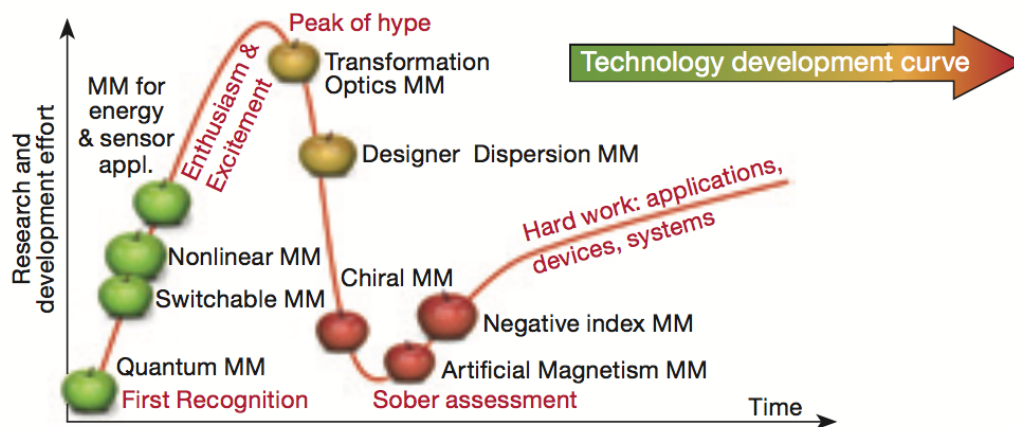


FIGURE 1.8 – Évolution de la recherche actuelle dans le champ des métamatériaux.

Un exemple : Les métamatériaux chiraux

Pour illustrer l'originalité de la recherche dans le champ des métamatériaux à indice de réfraction négatif, j'ai choisi de présenter le cas des métamatériaux chiraux. Et ce pour deux raisons principales. La première est de montrer comment il est possible de construire (au moins théoriquement) un matériau à indice de réfraction négatif. Deuxièmement, cet exemple vise à illustrer la maniabilité des effets optiques via la géométrie de la structure. Au sens géométrique la chiralité caractérise la propriété de non superposition (par translation ou rotation) d'un objet à son image à travers un miroir plan. Dans le domaine des métamatériaux, les objets chiraux sont des micro-structures dissymétriques de taille micrométrique. Si leur taille reste faible devant la longueur d'onde, on peut parler de milieu effectif possédant une permittivité, une perméabilité et un coefficient de chiralité χ . À cause de cette dissymétrie, la réponse électromagnétique d'un matériau chiral diffère suivant sa polarisation circulaire droite ou gauche. Dans les relations constitutives 1.3 cela se traduit par :

$$\begin{cases} \vec{B} = \mu \vec{H} - \chi \vec{E} \\ \vec{D} = \chi \vec{H} + \epsilon \vec{E} \end{cases} \Rightarrow \begin{cases} n_{\pm} = n \pm im(\chi) \end{cases}$$

L'indice de réfraction d'un matériau chiral change ainsi en fonction de la polarisation de l'onde électromagnétique.

³⁵Nikolay I ZHELUDEV, « A roadmap for metamaterials ». In : *Optics and Photonics News* 22.3 (2011), p. 30-35.

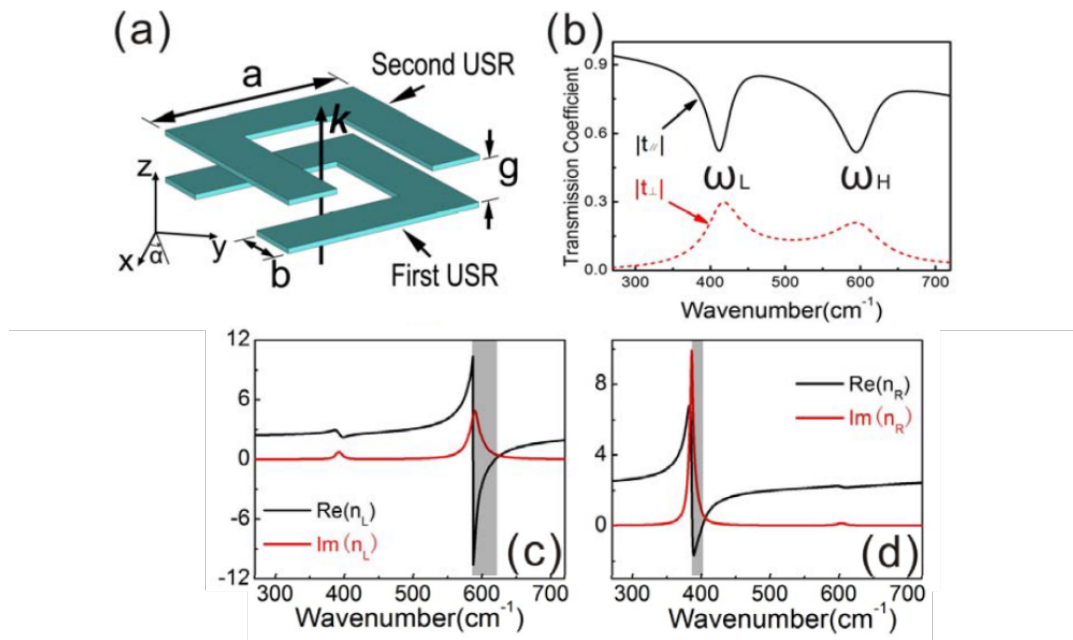


FIGURE 1.9 – (a) Structure détaillée d'un empilement d'une paire d'USR (U-shaped resonator, $a=4.0 \mu\text{m}$, $b=1.0 \mu\text{m}$ et $g=0.6 \mu\text{m}$). (b) Coefficient de transmission pour la structure sous incidence normale, les résonances apparaissent à ω_L et ω_H . (c) et (d) illustrent les parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction pour une polarisation circulaire droite (R) et gauche (L). les zones grises représentent l'intervalle spectral où il l'indice de réfraction est négatif.

Dans les matériaux chiraux naturels tels que le quartz et le sucre, la réfraction négative n'est pas possible. Cependant, avec les métamatériaux, les paramètres macroscopiques peuvent être conçus en amont. Ainsi, en 2003, Tretyakov a discuté de la possibilité de réaliser une réfraction négative³⁶ en proposant la fabrication d'un métamatériau composé de particules chirales, comme des fils hélicoïdaux. Pour obtenir une réfraction négative pour l'une des polarisations circulaires, l'idée (connue sous le nom de nihilité chirale) est que, lorsque ϵ_r et μ_r d'un milieu chiral sont petits et très proches de zéro, la chiralité peut faire en sorte que l'indice de réfraction pour une polarisation circulaire devienne négatif à certaines fréquences. En 2004, Pendry chercha un moyen plus général d'atteindre la réfraction négative avec les matériaux chiraux, et constata qu'il était plus facile d'obtenir cette dernière avec les matériaux chiraux qu'avec des métamatériaux usuels, car ces derniers requièrent une permittivité et une perméabilité toutes deux simultanément négatives³⁷.

Dans l'exemple³⁸ illustré sur la figure 1.9, la structure résonnante consiste en un em-

³⁶Sergei TRETYAKOV et al. « Waves and energy in chiral nihility ». In : *Journal of electromagnetic waves and applications* 17.5 (2003), p. 695-706.

³⁷JB PENDRY. « A chiral route to negative refraction ». In : *Science* 306.5700 (2004), p. 1353-1355.

³⁸Xiang XIONG et al. « Construction of a chiral metamaterial with a U-shaped resonator assembly ». In : *Physical Review B* 81.7 (2010), p. 075119.

pilement de deux USR (U-shaped resonator) tournés de 90° l'un par rapport à l'autre. Suivant la polarisation de l'onde incidente, les parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction n , prennent des valeurs négatives dans une certaine plage spectrale.

1.3.3 Métasurfaces

Utiliser une seule antenne en tant que récepteur de lumière est insuffisant. D'une part parce que le signal détecté par une seule antenne nanométrique est difficilement exploitable et d'autre part parce que pour bien des applications, la surface d'interaction avec la lumière doit être suffisamment grande pour l'utilisation d'autres éléments optiques. En sachant cela, on comprend que la focalisation est un aspect déterminant et qui a fait l'objet de nombreux travaux³⁹. Une manière de contourner le problème consiste à fabriquer des surfaces composées d'un grand nombre d'antennes.

Les principaux avantages des métasurfaces par rapport à la technologie conventionnelle existante sont leur faible coût, leur faible niveau d'absorption par rapport aux métamatériaux et leur intégration facile grâce à leur profil mince. En raison de ces avantages, elles sont des candidates prometteuses pour des solutions concrètes permettant de relever les défis posés par la prochaine génération d'émetteurs et de récepteurs des futurs systèmes de communication à haut débit qui nécessitent des antennes, des capteurs, des composants actifs, des filtres et des technologies intégrées très précises et efficaces⁴⁰. La disposition des antennes sur la surface joue un rôle important dans la conservation des propriétés électromagnétiques, l'idéal serait d'avoir, pour une surface de plusieurs antennes identiques, les mêmes caractéristiques électromagnétiques (longueur d'onde d'absorption, sélectivité spectrale, etc...) qu'une antenne unique. Dans la réalité, on ne peut pas toujours négliger les interactions entre antennes au sein d'une métasurface et cette interaction peut être un atout autant qu'elle peut être un effet parasite.

La figure 1.10 présente le cas d'un dispositif avancé composé d'une métasurface de nano-barreaux d'or, intégrée dans une cellule permettant un affichage 2D. Il s'agit ici d'un contrôle dynamique par voie électrique des propriétés de la métasurface. Ce contrôle peut également se faire par d'autres voies, chimique⁴¹, magnétique⁴², thermique⁴³ ou encore

³⁹Paul CHEVALIER et al. « Electromagnetic modelization of spherical focusing on a one-dimensional grating thanks to a conical B-spline modal method ». In : *JOSA A* 31.8 (2014), p. 1692-1697.

⁴⁰Christopher L HOLLOWAY et al. « An overview of the theory and applications of metasurfaces: The two-dimensional equivalents of metamaterials ». In : *IEEE Antennas and Propagation Magazine* 54.2 (2012), p. 10-35.

⁴¹Xiaoyang DUAN, Simon KAMIN et Na LIU. « Dynamic plasmonic colour display ». In : *Nature communications* 8.1 (2017), p. 1-9.

⁴²Irina ZUBRITSKAYA et al. « Magnetic control of the chiroptical plasmonic surfaces ». In : *Nano letters* 18.1 (2018), p. 302-307.

⁴³Chulsoo CHOI et al. « Metasurface with nanostructured Ge₂Sb₂Te₅ as a platform for broadband-operating wavefront switch ». In : *Advanced Optical Materials* 7.12 (2019), p. 1900171.

mécanique⁴⁴.

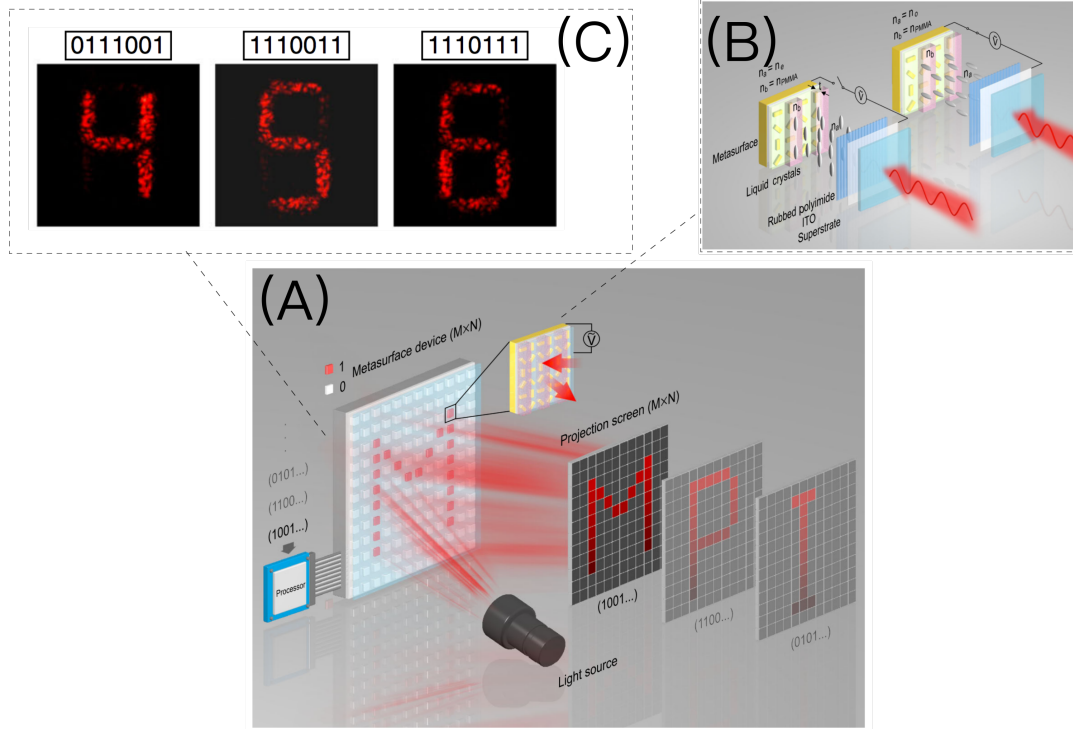


FIGURE 1.10 – (A) Dispositif (DMSD : digital metasurface device) composée d'un réseau $M \times N$ pixels. Chaque pixel est une métasurface contenant des nano-barreaux d'or couverts d'un matériau diélectrique. L'échantillon est contenu dans une cellule de cristaux liquides. l'intensité de la réflexion négative de chaque metasurface est contrôlée séparément par une électrode et peut être mise en mode ON ou OFF indépendamment des autres metasurfaces. (B) Représentation schématique du contrôle électrique du DMSD. n_o et n_e sont les indices de réfraction respectivement ordinaire et extraordinaire. La longueur d'onde incidente vaut 633 nm et est polarisée linéairement suivant la direction des colonnes de PMMA. (C) images capturées en champ lointain⁴⁵.

⁴⁴Aaron L HOLSTEEN et al. « Purcell effect for active tuning of light scattering from semiconductor optical antennas ». In : *Science* 358.6369 (2017), p. 1407-1410.

⁴⁵Jianxiong Li et al. « Electrically-controlled digital metasurface device for light projection displays ». In : *Nature communications* 11.1 (2020), p. 1-7.

1.3.4 Fabrication

Actuellement, les méthodes conventionnelles de fabrication à l'échelle nanométrique sont la lithographie à faisceau d'électrons⁴⁶ et la sonde ionique focalisée⁴⁷ pour les échantillons les plus précis. La figure 1.11 présente quelques réalisations à l'aide de ces techniques. La fabrication de structures micrométriques peut, elle, se faire à l'aide d'outils de nano-impression^{48,49} ou par auto-assemblage moléculaire^{50,51}. En dépit des progrès il reste deux défis de taille pour pouvoir intégrer plus facilement les metamateriaux dans des dispositifs ne ne limitant pas seulement à l'état expérimental : la production de larges surfaces et la diminution des coûts de fabrication⁵². Leur résolution permettrait de faire passer les métamatériaux au statut de domaine d'ingénierie à part entière. Par ailleurs, bien que la plupart des métamatériaux soient planaires, plusieurs groupes ont significativement avancé dans la réalisation de structures 3D dans le domaine du térahertz et du visible⁵³.

⁴⁶Na LIU et al. « Three-dimensional photonic metamaterials at optical frequencies ». In : *Nature materials* 7.1 (2008), p. 31-37.

⁴⁷Jason VALENTINE et al. « Three-dimensional optical metamaterial with a negative refractive index ». In : *nature* 455.7211 (2008), p. 376-379.

⁴⁸Stephen Y CHOU et al. « Sub-10 nm imprint lithography and applications ». In : *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena* 15.6 (1997), p. 2897-2904.

⁴⁹Jian WANG et al. « Direct nanoimprint of submicron organic light-emitting structures ». In : *Applied Physics Letters* 75.18 (1999), p. 2767-2769.

⁵⁰Martin MAYER et al. « Colloidal Self-Assembly Concepts for Plasmonic Metasurfaces ». In : *Advanced Optical Materials* 7.1 (2019), p. 1800564.

⁵¹JKN LINDNER, B GEHL et B STRITZKER. « Shape modifications of self-organised colloidal silica nanomasks on silicon ». In : *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 242.1-2 (2006), p. 167-169.

⁵²Debashis CHANDA et al. « Large-area flexible 3D optical negative index metamaterial formed by nano-transfer printing ». In : *Nature nanotechnology* 6.7 (2011), p. 402-407.

⁵³Fumiaki MIYAMARU et al. « Three-dimensional bulk metamaterials operating in the terahertz range ». In : *Applied Physics Letters* 96.8 (2010), p. 081105; LIU et al., « Three-dimensional photonic metamaterials at optical frequencies ».

⁵⁴Jian WANG et al. « Direct nanoimprint of submicron organic light-emitting structures ». In : *Applied Physics Letters* 75.18 (1999), p. 2767-2769.

⁵⁵Juha TOMMILA et al. « Nanostructured broadband antireflection coatings on AlInP fabricated by nanoimprint lithography ». In : *Solar Energy Materials and Solar Cells* 94.10 (2010), p. 1845-1848.

⁵⁶Jason VALENTINE et al. « Three-dimensional optical metamaterial with a negative refractive index ». In : *nature* 455.7211 (2008), p. 376-379.

⁵⁷Na LIU et al. « Three-dimensional photonic metamaterials at optical frequencies ». In : *Nature materials* 7.1 (2008), p. 31-37.

⁵⁸Zoran JAKŠIĆ et al. « Nanofabrication of negative refractive index metasurfaces ». In : *Microelectronic engineering* 83.4-9 (2006), p. 1786-1791.

⁵⁹Ting HU et al. « Demonstration of color display metasurfaces via immersion lithography on a 12-inch silicon wafer ». In : *Optics express* 26.15 (2018), p. 19548-19554.

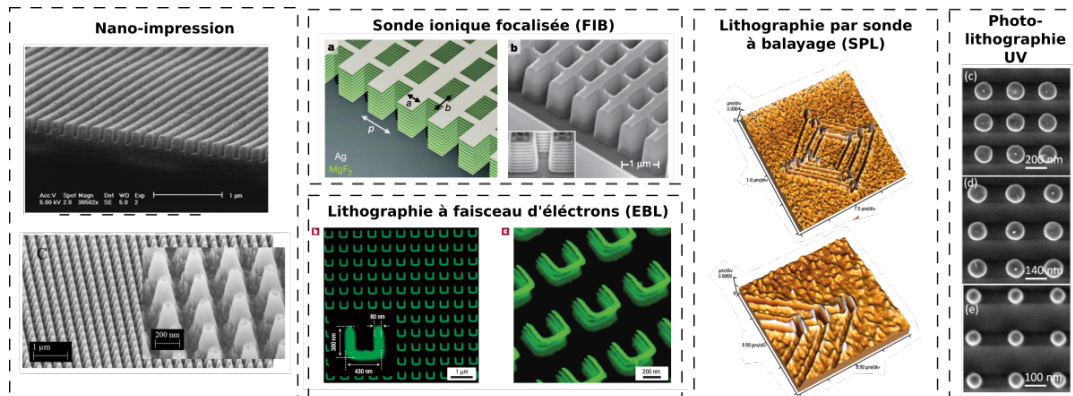


FIGURE 1.11 – Quelques exemples de metamateriaux nanofabriqués par nano-impression^{54,55}, sonde ionique focalisée⁵⁶, lithographie à faisceau d'électrons⁵⁷, lithographie par sonde à balayage⁵⁸ et photolithographie UV⁵⁹.

1.4 Le désordre dans les nanostructures

1.4.1 Métasurfaces désordonnées

Nous rentrons à présent dans le vif de l'objet de mon travail. Arrivé à ce point, on sait pourquoi l'on travaille à l'échelle micronique/nanométrique (parce que les antennes doivent avoir la dimension de la longueur d'onde de travail), on sait aussi pourquoi l'on utilise des ensembles de nanoantennes (car une antenne unique ne fournit pas un signal exploitable avec les outils de mesure couramment utilisés). Ces ensembles d'antennes comme décrit précédemment sont fabriqués principalement par des moyens technologiques qui impliquent (pour des raisons de gain de temps) une structuration de façon périodique, ou bien par des voies chimiques qui elles, à l'inverse, ne tiennent pas compte de la notion d'ordre (tout au mieux, de densité)⁶⁰.

Les réseaux plasmoniques

Pour faciliter la conception et l'analyse expérimentale, les procédés de fabrication des métasurfaces se font généralement en agencant les nanoantennes de manière périodique. Cependant, cette périodicité a des effets sur la réponse électromagnétique de la métasurface. Lorsqu'un rayonnement incident illumine une nanostructure plasmonique, différents modes de résonance apparaissent à cause de la fluctuation des électrons libres du métal comme il a été décrit quelques paragraphes plus haut. Ces modes sont sensibles à différents paramètres tels que l'énergie, la polarisation, l'angle d'incidence, la dimension des nanostructures et l'indice de réfraction des différentes couches structurées. De multiples mécanismes de réflexion et de transmission de la lumière peuvent être présents

⁶⁰ Antoine MOREAU et al. « Controlled-reflectance surfaces with film-coupled colloidal nanoantennas ». In : *Nature* 492.7427 (2012), p. 86-89.

et deux types d'anomalies, à savoir les anomalies dites «sharp» et les «diffuses» ont été constatées par Wood en 1902⁶¹ lors d'expériences sur des réseaux de diffraction métalliques. Ces anomalies représentent des creux et des pics abrupts qui apparaissent dans le spectre de réflexion de la métasurface périodique en fonction de la longueur d'onde ou de la période à un angle d'incidence fixe. Les pics, appelés "anomalies de Rayleigh"⁶² sont dus au passage dans le spectre d'ordres de diffraction supérieurs. En d'autres termes, à une certaine longueur d'onde, une onde diffractée apparaît et se propage tangentiellement à la surface du réseau. Cette longueur d'onde pour un réseau donné est appelée "longueur d'onde de Rayleigh».

Les réseaux plasmoniques désordonnés

Des travaux novateurs théoriques sur les réseaux de nanostructures 1D de nanoparticules d'argent ont déjà été menés^{63,64,65,66,67} ainsi que des résultats expérimentaux sur les réseaux 2D de nanoparticules d'or⁶⁸. La plupart de ces travaux se sont attardés sur le couplage entre les ordres de diffraction du réseaux et les dipôles électromagnétiques formés par les nanoparticules^{69,70,71,72,73}. Si la plupart de ces études utilisent l'or ou l'argent d'autres alternatives ont été étudiées comme les oxydes d'indium ou les nitrures. Cependant bien que l'utilisation de réseaux périodiques de nanomatériaux ait été étudiée par différents groupes de recherche, l'étude des réseaux désordonnés est elle plus limitée.

⁶¹Robert Williams WOOD. « XLII. On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum ». In : *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* 4.21 (1902), p. 396-402.

⁶²LORD RAYLEIGH. « On the dynamical theory of gratings ». In : *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character* 79.532 (1907), p. 399-416.

⁶³Shengli ZOU et George C SCHATZ. « Narrow plasmonic/photonic extinction and scattering line shapes for one and two dimensional silver nanoparticle arrays ». In : *The Journal of chemical physics* 121.24 (2004), p. 12606-12612.

⁶⁴Shengli ZOU, Nicolas JANEL et George C SCHATZ. « Silver nanoparticle array structures that produce remarkably narrow plasmon lineshapes ». In : *The Journal of chemical physics* 120.23 (2004), p. 10871-10875.

⁶⁵Vadim A MARKEL. « Divergence of dipole sums and the nature of non-Lorentzian exponentially narrow resonances in one-dimensional periodic arrays of nanospheres ». In : *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 38.7 (2005), p. L115.

⁶⁶Vadim A MARKEL et Andrey K SARYCHEV. « Propagation of surface plasmons in ordered and disordered chains of metal nanospheres ». In : *Physical Review B* 75.8 (2007), p. 085426.

⁶⁷Felix RÜTING. « Plasmons in disordered nanoparticle chains: localization and transport ». In : *Physical Review B* 83.11 (2011), p. 115447.

⁶⁸SV KARPOV et al. « Effect of defects of plasmon resonance colloidal crystals on their extinction spectra ». In : *Optics and Spectroscopy* 109.3 (2010), p. 372-378.

⁶⁹MARKEL et SARYCHEV, « Propagation of surface plasmons in ordered and disordered chains of metal nanospheres ».

⁷⁰RÜTING, « Plasmons in disordered nanoparticle chains: localization and transport ».

⁷¹Michael B ROSS, Chad A MIRKIN et George C SCHATZ. « Optical properties of one-, two-, and three-dimensional arrays of plasmonic nanostructures ». In : *The journal of physical chemistry C* 120.2 (2016), p. 816-

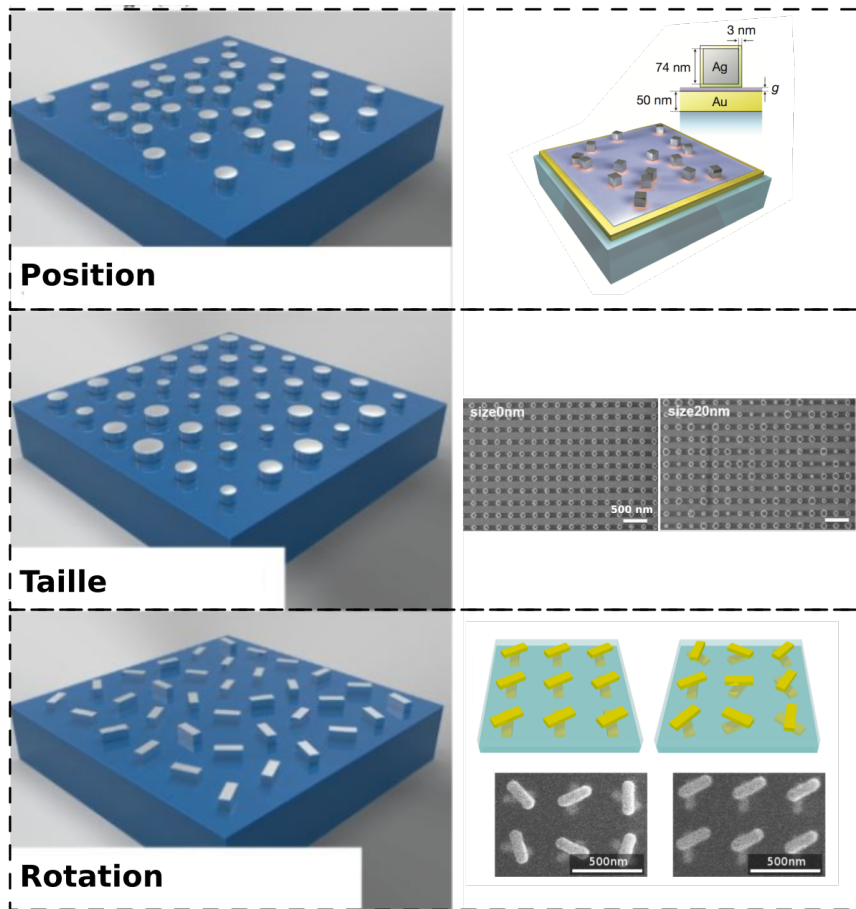


FIGURE 1.12 – Illustrations de différentes recherches menées sur l'assemblage de nanostructures désordonnées suivant la position⁷⁴, la taille⁷⁵ et l'orientation⁷⁶.

La réponse électromagnétique d'une métasurface repose sur la réponse collective de chaque structure résonnante. Dans l'idéal toutes ces structures sont identiques, dans la réalité les méthodes de fabrication induisent forcément des erreurs sous forme de perturbations géométriques, voire en termes de propriétés des différentes zones des matériaux. Comme il a été démontré dans plusieurs études, la perturbation de l'ordre géométrique

830.

⁷²Weijia WANG et al. « The rich photonic world of plasmonic nanoparticle arrays ». In : *Materials today* 21.3 (2018), p. 303-314.

⁷³Paul CHEVALIER et al. « Absorbing metasurface created by diffractionless disordered arrays of nanoantennas ». In : *Applied Physics Letters* 107.25 (2015), p. 251108.

⁷⁴Antoine MOREAU et al. « Controlled-reflectance surfaces with film-coupled colloidal nanoantennas ». In : *Nature* 492.7427 (2012), p. 86-89.

⁷⁵Feifei ZHANG et al. « Influence of order-to-disorder transitions on the optical properties of the aluminum plasmonic metasurface ». In : *Nanoscale* 12.45 (2020), p. 23173-23182.

⁷⁶Stefan FASOLD et al. « Disorder-enabled pure chirality in bilayer plasmonic metasurfaces ». In : *ACS Photonics* 5.5 (2018), p. 1773-1778.

affecte la largeur spectrale de résonance et augmente les pertes par diffusion^{77,78,79}. Les métasurfaces utilisant l'or comme métal sont principalement réalisées soit par voie chimique, soit par les méthodes de nanofabrication citées dans le paragraphe précédent. La nano-fabrication implique souvent la génération de structures périodiques en raison de la commodité des fichiers pour la conception CAO mais aussi pour la comparaison numérique avec des simulations utilisant la méthode des éléments finis (FDTD : finite-difference time-domain). Cela a permis d'explorer les interactions entre nanoantennes et les non-linéarités optiques des plasmons de surface produisant des exaltations très importantes du champ électrique. Bien que toutes les techniques de nanofabrication représentent une grande avancée en matière scientifique, elles restent coûteuses et posent une véritable limite en terme d'applications. Une caractéristique fortement souhaitée est un facteur d'exaltation important avec un faible coût de fabrication. La lithographie dite «naturelle»⁸⁰ c'est à dire les arrangements de particules auto-organisés d'une suspension colloïdale sur une surface solide au moment de la gravure tend justement à palier cette limite. Elle permet la réalisation de larges métasurfaces en des temps courts comparés aux techniques de nano-fabrication usuelles. En revanche, elle ne permet pas un contrôle minutieux ni de la taille des particules ni de leur position. A cause de cela, la plupart des travaux sur les particules colloïdales traitent de structures aléatoires.

1.4.2 Applications et recherche

Dans cette section je vais présenter quelques travaux pour illustrer l'utilisation de réseaux plasmoniques désordonnés pour diverses applications. la figure 1.13 présente le cas d'un réseau 1D de nano-barreaux d'argent utilisé pour confiner les SPP lorsqu'il est désordonné. Les SPP étant des modes prorogatifs, l'agencement des barreaux en réseau périodique favorise leur distance de propagation. Dans la référence⁸¹, le groupe de recherche désordonne volontairement le réseau pour étudier cette distance de propagation et parvient à confiner les SPP sur une distance de quelques micromètres.

Le second exemple illustre l'utilisation d'un réseau de nanoparticules d'argent pour traiter un verre en vue d'améliorer la qualité d'affichage. L'étude montre que le réseau de

⁷⁷Ilya V SHADRIVOV et al. « Scattering of electromagnetic waves in metamaterial superlattices ». In : *Applied Physics Letters* 90.20 (2007), p. 201919.

⁷⁸Koray AYDIN et al. « Effect of disorder on magnetic resonance band gap of split-ring resonator structures ». In : *Optics Express* 12.24 (2004), p. 5896-5901.

⁷⁹Maxim V GORKUNOV et al. « Effect of microscopic disorder on magnetic properties of metamaterials ». In : *Physical Review E* 73.5 (2006), p. 056605.

⁸⁰HW DECKMAN et JH DUNSMUIR. « Natural lithography ». In : *Applied Physics Letters* 41.4 (1982), p. 377-379.

⁸¹Wen-Bo SHI et al. « Strong localization of surface plasmon polaritons with engineered disorder ». In : *Nano letters* 18.3 (2018), p. 1896-1902.

⁸²Wen-Bo SHI et al. « Strong localization of surface plasmon polaritons with engineered disorder ». In : *Nano letters* 18.3 (2018), p. 1896-1902.

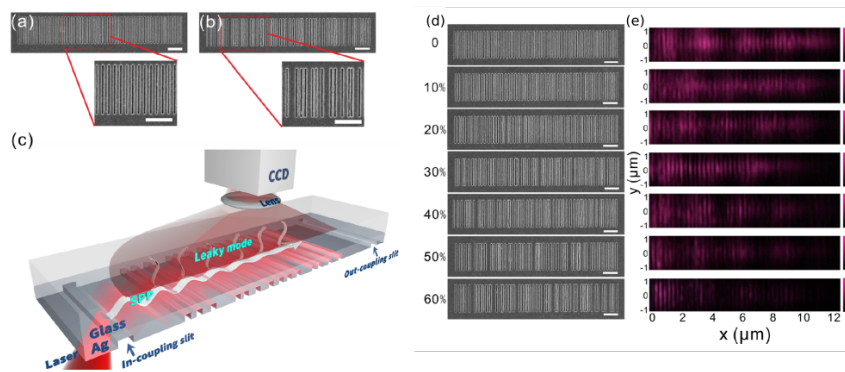


FIGURE 1.13 – Images au MEB pour (a) un nano-réseau périodique de 50 barreaux d'argent et (b) désordonné. La barre d'échelle représente 1 μ m. (c) Représentation schématisée du montage expérimental permettant l'observation de la propagation des plasmons-polaritons de surface. (d) Images MEB pour un réseau périodique et six réseaux désordonnés progressivement. (e) image CCD à $\lambda=680$ nm, montrant que les PPS peuvent être localisés par l'effet du désordre spatial des barreaux⁸².

nanoantennes, disposées suivant un désordre corrélé, atténue les effets de diffraction apparaissant aux faibles densités tout en gardant des valeurs de réflexion et de transmission similaires au cas ordonné. De telles surfaces permettent de générer une netteté suffisante pour des applications industrielles dans les secteurs de l'automobile, de l'aéronautique et de l'interface homme-machine.

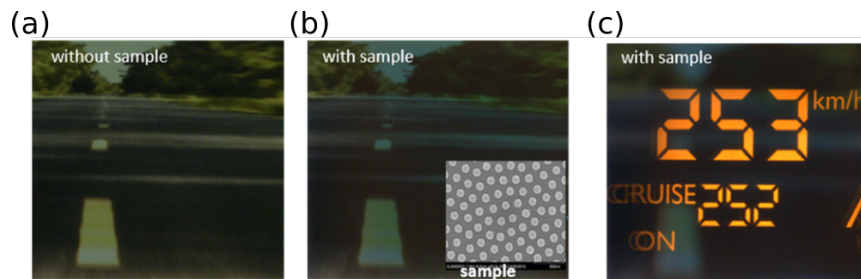


FIGURE 1.14 – Utilisation d'un réseau désordonné de nanoparticules d'argent de différentes tailles pour atténuer la diffraction pour des longueurs d'ondes visibles. Verre traité sans le réseau (a) et avec (b). (c) utilisation dans le cas d'une expérience d'affichage sur le pare-brise d'un véhicule⁸³.

⁸²Herve BERTIN et al. « Correlated disordered plasmonic nanostructures arrays for augmented reality ». In : *ACS photonics* 5.7 (2018), p. 2661-2668.

1.5 Conclusion

Au terme de ce chapitre, nous aurons vu les liens qu'il existe entre l'infrarouge, la plasmonique, les métasurfaces et le désordre : le rayonnement infrarouge caractérisé par une longueur d'onde micrométrique exige des antennes de mêmes dimensions. A cette échelle, l'interaction lumière-matière est le siège de phénomènes ondulatoires aboutissant à des résonances plasmoniques à l'interface entre un métal et un diélectrique. Puis nous avons vu que pour construire des dispositifs optiques intégrables, il est nécessaire de construire des surfaces rassemblant un grand nombre d'antennes. La disposition ainsi que la géométrie des antennes jouant un rôle très important dans les caractéristiques spectrales du rayonnement, il est clair que l'étude du désordre constitue non seulement une voie d'investigation mais également un moyen d'obtention de propriétés optiques très intéressantes.

Chapitre

2

Etude théorique de structures MIM désordonnées

Sommaire

2.1 L'antenne MIM : une brique de base pour les métasurfaces	32
2.1.1 Principe de l'antenne MIM	32
2.1.2 Influence des paramètres physiques sur la résonance	34
2.1.3 Constructions de métasurfaces complexes avec l'antenne MIM	36
2.2 Modélisation du désordre	37
2.2.1 Problématique de la modélisation électromagnétique de systèmes complexes	37
2.2.2 Modélisation de structures 1D par la méthode BMM	38
2.2.3 Approximation numérique de la diffusion	40
2.3 Étude de la diffusion d'un ensemble de MIM désordonnés	44
2.3.1 Le cas ordonné	44
2.3.2 Le cas désordonné	47
2.3.3 Étude de la dissipation	49
2.4 Conclusion	50

Dans le large spectre des nanoantennes, notre choix s'est porté sur les nanoantennes métal-isolant-métal (MIM 1D). Notre groupe de recherche s'y est beaucoup intéressé tant d'un point de vue théorique qu'expérimental. Côté modélisation, nous avons un code maison pour étudier la réponse d'ensemble d'antennes 1D¹. Sur le volet expérimental, les techniques de nanofabrication des MIM à base d'or sont relativement bien maîtrisées et garantissent la reproductibilité et la précision des positions des nanoantennes qui nous sont requises.

2.1 L'antenne MIM : une brique de base pour les métasurfaces

2.1.1 Principe de l'antenne MIM

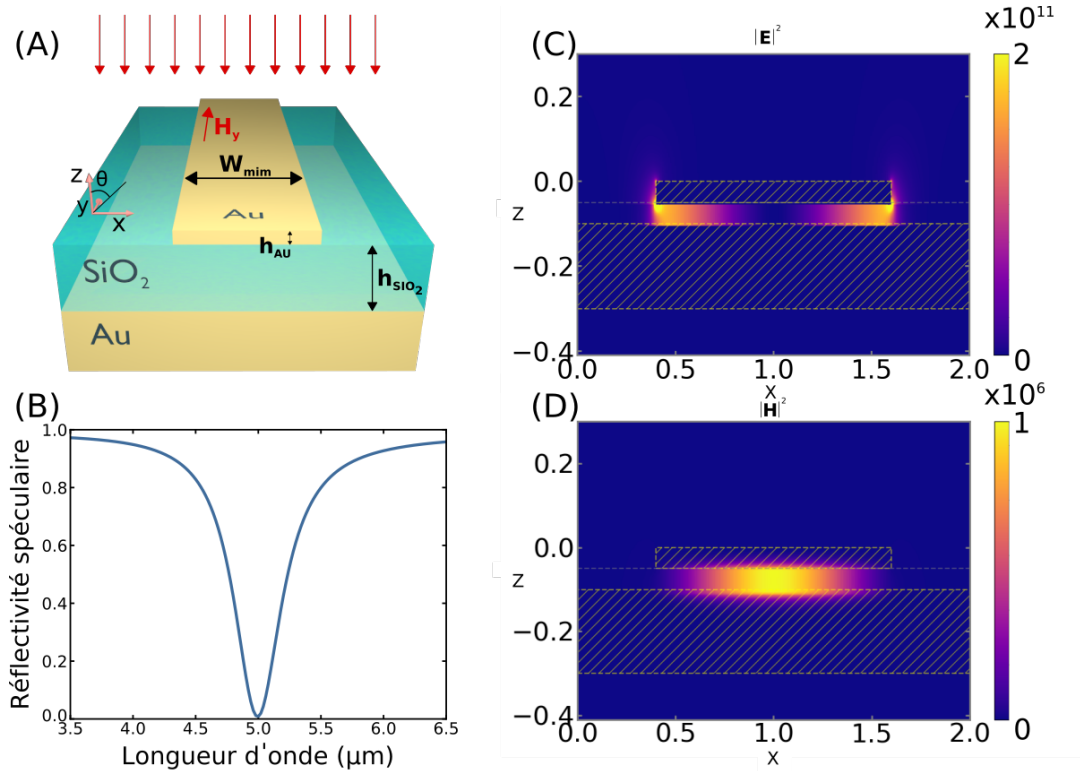


FIGURE 2.1 – (a) Schéma de la métasurface à base de MIM, agencée périodiquement suivant l'axe x . La lumière incidente est polarisée TM. (b) Spectre de réflectivité d'un réseau d'antennes MIM optimisée pour absorber toute la lumière à $\lambda = 5.2\mu\text{m}$. Les dimensions de l'antenne sont $w = 1.2\mu\text{m}$, $h_{Au} = h_{SiO_2} = 50\text{nm}$ et la période du réseau est $p = 2\mu\text{m}$. (c-d) Cartes de l'intensité du champ électrique et magnétique à la longueur d'onde de résonance.

¹P. BOUCHON. « Ingénierie d'indice optique à base de nanostructures métalliques ». Thèse de doct. Ecole polytechnique, 2011.

L'antenne métal-isolant-métal (MIM) a été beaucoup étudiée dans la communauté optique depuis le milieu des années 2000^{2,3,4} car elle permet de manipuler la lumière à l'échelle sub-longueur d'onde. Cet objet, déjà connu comme antenne patch dans le domaine radiofréquence, permet d'absorber la lumière ou de modifier la phase ou la polarisation de l'onde réfléchie^{5,6}, mais a aussi été utilisé pour sa capacité à concentrer le champ dans un petit volume et exalter les interactions lumière-matière comme les effets non linéaires⁷. La figure 2.1 présente le schéma d'un réseau périodique d'antennes MIM unidimensionnelles génériques et son spectre de réflectivité lorsqu'il est éclairé par une onde transverse magnétique pour des dimensions $w = 1.2\mu\text{m}$, $p = 2\mu\text{m}$, $h_{Au} = h_{\text{SiO}_2} = 50\text{nm}$. Dans ce cas, la période est sub-longueur d'onde, ce qui signifie qu'il n'y a pas diffraction de lumière, et l'épaisseur de la couche métallique basale est considérée comme suffisamment épaisse pour qu'il n'y ait pas de transmission. La lumière est donc soit réfléchie spéculairement, soit absorbée. On note une absorption quasi-totale de la lumière à $\lambda = 5.2\mu\text{m}$, la résonance ayant un facteur de qualité $Q \simeq 10$. Les cartes de l'intensité des champs électrique et magnétique sont montrées dans la Fig. 2.1(c-d) à la résonance. Les champs sont confinés dans la cavité optique sous le barreau métallique et sont caractéristiques d'une résonance de type Fabry-Perot. La longueur d'onde de résonance est pilotée par la largeur de la cavité et donc par la largeur du ruban métallique w , ainsi que par l'indice optique présent dans la cavité (l'indice du diélectrique). Par ailleurs, à chaque interface entre le métal et le diélectrique, il y a existence d'un plasmon de surface en polarisation TM. Les plasmons qui se propagent de chaque côté de la cavité vont se coupler et donner naissance à un mode propagatif TM, d'indice effectif plus élevé que l'indice de réfraction du diélectrique, et souvent désigné sous le terme de gap plasmon dans la littérature^{8,9}. L'indice effectif dépend essentiellement de l'épaisseur du diélectrique h_d . Dans les cas où la permittivité du métal est grande et peut être décrite par un modèle de Drude,

²J. HAO et al. « High performance optical absorber based on a plasmonic metamaterial ». In : *Applied Physics Letters* 96.25 (2010), p. 251104. ISSN : 0003-6951.

³Patrick BOUCHON et al. « Wideband omnidirectional infrared absorber with a patchwork of plasmonic nanoantennas ». In : *Optics Letters* 37.6 (2012), p. 1038-1040.

⁴G. LÉVÊQUE et O.J.F. MARTIN. « Tunable composite nanoparticle for plasmonics ». In : *Optics Letters* 31.18 (2006), p. 2750-2752. ISSN : 1539-4794.

⁵Y. CUI et al. « Plasmonic and metamaterial structures as electromagnetic absorbers ». In : *Laser & Photonics Reviews* 8.4 (2014), p. 495-520.

⁶BOZHEVOLNYI et al., « Channel plasmon subwavelength waveguide components including interferometers and ring resonators »

⁷Léna SOUN et al. « Experimental demonstration of second-harmonic generation in high χ^2 metasurfaces ». In : *Optics Letters* 46.6 (2021), p. 1466-1469.

⁸D.K. GRAMOTNEV et al. « Gap-plasmon nanoantennas and bowtie resonators ». In : *Physical Review B* 85.4 (2012), p. 045434.

⁹Michael G NIELSEN et al. « Efficient absorption of visible radiation by gap plasmon resonators ». In : *Optics express* 20.12 (2012), p. 13311-13319.

elle peut être exprimée comme¹⁰:

$$n_{\text{eff}} = \sqrt{\epsilon_d \left(1 + 2 \frac{\delta}{h_d}\right)}, \quad (2.1)$$

où δ est l'épaisseur de peau du métal, h_d l'épaisseur du diélectrique et ϵ_d sa permittivité relative.

La résonance MIM de type Fabry-Perot présente des harmoniques aux plus faibles longueurs d'onde. Elle existe aussi pour d'autres configurations géométriques de l'antenne. Il est ainsi possible de structurer le diélectrique sans modification notable de la résonance. On peut aussi s'affranchir de l'effet de polarisation en considérant des structures bidimensionnelles (disque, carré, croix) qui ont fait chacune l'objet de plusieurs études dans la littérature^{11,12}. Dans la suite, on illustre l'influence des différents paramètres physiques sur la résonance de type Fabry-Perot.

2.1.2 Influence des paramètres physiques sur la résonance

Influence de la largeur du ruban W

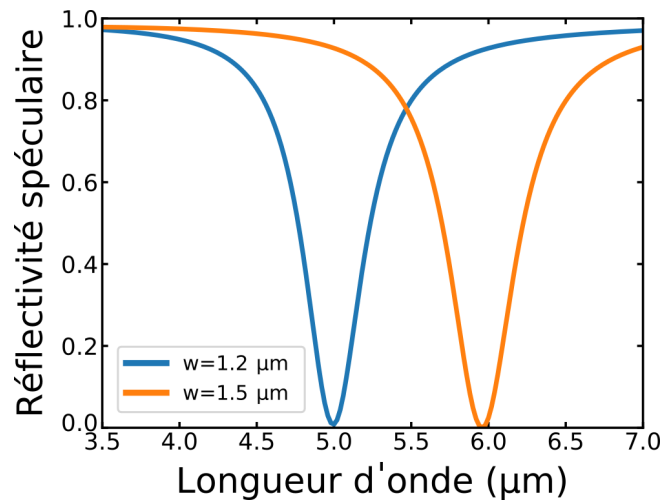


FIGURE 2.2 – Spectres de réflectivité d'une antenne MIM pour deux largeurs de rubans différentes $w = 1.2\mu\text{m}$ (courbe bleue) et $w = 1.5\mu\text{m}$ (courbe orange). La lumière arrive en incidence normale et en polarisation TM sur l'échantillon. Les autres paramètres sont $p = 2\mu\text{m}$, $h_{\text{Au}} = h_{\text{SiO}_2} = 50\text{nm}$.

La figure 2.2 montre l'influence de la largeur du ruban sur le spectre de réflectivité du résonateur MIM. Lorsque la largeur passe de $w = 1.2\mu\text{m}$ à $w = 1.5\mu\text{m}$, la longueur d'onde

¹⁰Stéphane COLLIN, Fabrice PARDO et Jean-Luc PELOUARD. « Waveguiding in nanoscale metallic apertures ». In : *Optics Express* 15.7 (2007), p. 4310-4320.

¹¹J. HAO, L. ZHOU et M. QIU. « Nearly total absorption of light and heat generation by plasmonic metamaterials ». In : *Physical Review B* 83.16 (2011), p. 165107.

¹²CUI et al., « Plasmonic and metamaterial structures as electromagnetic absorbers ».

de résonance passe de $\lambda = 5\mu\text{m}$ à $\lambda = 5.9\mu\text{m}$, ce qui est cohérent avec l'augmentation de la cavité optique sous le ruban. Par ailleurs, de manière remarquable, le résonateur reste proche du couplage critique ($R = 0$, R étant la réflectivité spéculaire), et il est ainsi possible de couvrir une large plage spectrale en conservant une absorption totale tout en gardant les mêmes épaisseurs des couches composant le MIM. La largeur du ruban est le paramètre le plus simple à modifier technologiquement pour choisir ou adapter la position spectrale de la résonance.

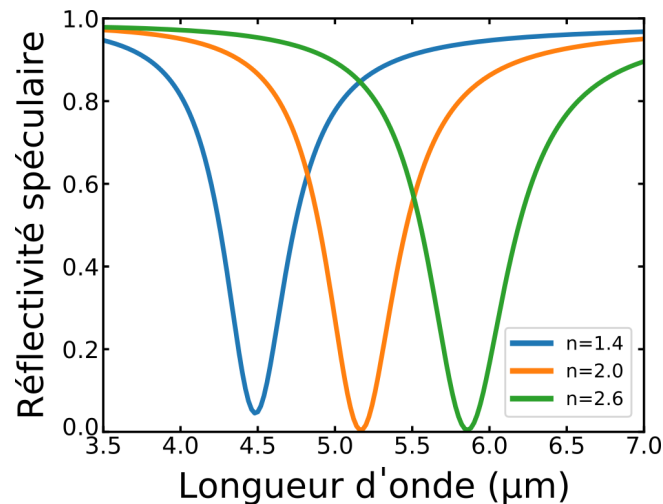


FIGURE 2.3 – Spectres de réflectivité d'une antenne MIM pour trois matériaux diélectriques d'indices de réfraction différents, $n = 1.4$ (courbe bleue), $n = 2$ (courbe orange) et $n = 2.6$ (courbe verte). La lumière arrive en incidence normale et en polarisation TM sur l'échantillon. Les autres paramètres sont $p = 2\mu\text{m}$, $w = 1.2\mu\text{m}$, $h_{Au} = h_{SiO_2} = 50\text{nm}$.

Influence du matériau diélectrique

La figure 2.3 montre l'influence de l'indice de réfraction de la couche diélectrique sur la résonance du MIM. Les trois courbes sont tracées pour des indices constants sans dispersivité, et sont proches dans le moyen infrarouge des matériaux suivants : la silice ($n \simeq 1.4$), le sulfure de Zinc ($n \simeq 2.0$) et le carbure de silicium ($n \simeq 2.6$). L'augmentation de l'indice a le même effet qu'une augmentation de la longueur de la cavité optique sous le ruban, et se traduit donc par une augmentation de la longueur d'onde de résonance. Là encore, le résonateur conserve une absorption très élevée, même lorsqu'on a de fortes variations de l'indice.

Influence de la période

L'influence de la période sur la réponse spectrale est illustrée sur la figure 2.4 pour deux périodes différentes $p = 2\mu\text{m}$ (courbe bleue) et $p = 6\mu\text{m}$ (courbe orange). La période

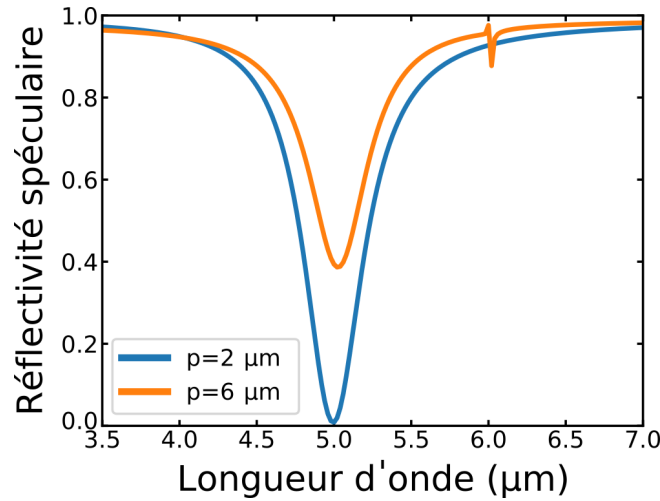


FIGURE 2.4 – Spectres de réflectivité d’une antenne MIM pour deux périodes différentes $p = 2\mu\text{m}$ (courbe bleue) et $p = 6\mu\text{m}$ (courbe orange). La lumière arrive en incidence normale et en polarisation TM sur l’échantillon. Les autres paramètres sont $w = 1.2\mu\text{m}$, $h_{\text{Au}} = h_{\text{SiO}_2} = 50\text{nm}$.

n’a pas d’influence sur la position spectrale de la résonance, qui reste à $\lambda = 5\mu\text{m}$. Ce comportement est cohérent avec le régime physique de la résonance, qui est localisée dans la cavité optique. Par contre, la période a un rôle important dans l’efficacité du couplage entre le résonateur et l’onde incidente. Ainsi, dans le cas présent, l’efficacité décroît de 40% lorsque la période a été augmentée. Si on réduit trop la période, on s’éloigne également du régime du couplage critique. Par ailleurs, lorsque $p = 2\mu\text{m}$, on reste dans le régime sub-longueur d’onde pour lequel il n’y a pas d’ordres diffractés, alors qu’à $p = 6\mu\text{m}$, ce n’est plus le cas pour les longueurs d’ondes inférieures à $\lambda = 6\mu\text{m}$ en incidence normale. C’est l’apparition de l’ordre diffracté qu’on observe à $\lambda = 6\mu\text{m}$, et à la longueur d’onde de résonance, une partie de l’énergie part dans la diffraction vers l’ordre -1, ce qui réduit encore la proportion d’énergie absorbée par le résonateur.

2.1.3 Constructions de métasurfaces complexes avec l’antenne MIM

L’antenne MIM étant un résonateur localisé, et dont les dimensions sont petites devant la longueur d’onde, plusieurs travaux au cours des dix dernières années ont porté sur la combinaison dans une même période sub-longueur d’onde de résonateurs MIM ciblant des longueurs d’onde ou des polarisations différentes. La figure 2.5 illustre la combinaison de deux rubans de largeur différentes W_1 et W_2 . Le spectre de réflectivité présente alors deux longueurs d’onde de résonance, qui sont celles des résonateurs individuels. Le couplage et la perturbation d’un résonateur sur l’autre sont quasiment inexistantes dans ce cas présent, à tel point qu’on peut prédire la réflectivité d’une combinaison comme le

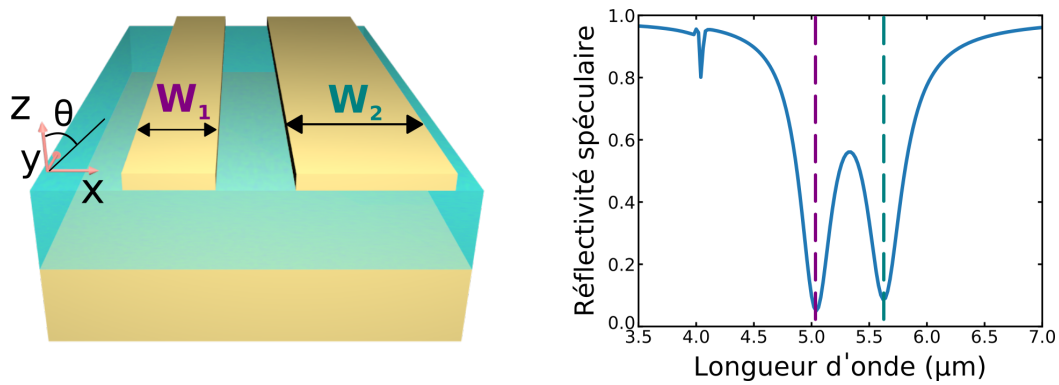


FIGURE 2.5 – (a) Schéma de la métasurface à base d'une combinaison de 2 MIM, appelée biMIM, agencés périodiquement suivant l'axe x . La lumière incidente est polarisée TM. Les deux MIM ont des largeurs différentes W_1 et W_2 et sont placées dans la même période sub-longueur d'onde. (b) Spectre de réflectivité du biMIM pour les dimensions $W_1 = 1.2\mu\text{m}$, $W_2 = 1.4\mu\text{m}$, $p = 4\mu\text{m}$, $h_{\text{Au}} = h_{\text{SiO}_2} = 50\text{ nm}$.

produit des réflectivités individuelles $R = R_1 * R_2$ ^[13]. A chacune des longueurs d'onde de résonance, il n'y a qu'un seul des rubans qui concentre le champ et absorbe la lumière incidente^[14].

2.2 Modélisation du désordre

2.2.1 Problématique de la modélisation électromagnétique de systèmes complexes

La modélisation de la réponse électromagnétique d'une nanostructure peut être faite avec différentes méthodes. Les plus usuelles sont la méthode des éléments finis (par exemple logiciel COMSOL), la méthode finite difference time domain (FDTD)^[15], ou les méthodes modales (RCWA^[16] BMM^[17]). Pour toutes ces méthodes, lorsqu'on augmente le nombre de nanostructures à modéliser, le temps de calcul va augmenter considérablement et la mémoire vive nécessaire à faire les opérations élémentaires du calcul peut devenir très importante. Les méthodes modales évoluent ainsi en $O(N^3)$, où N est typiquement la taille du maillage. Si on souhaite modéliser un ensemble désordonné de m antennes, il est souhaitable de conserver la même finesse de maillage que pour une antenne unique, ce qui

^[13]C. KOEHLIN et al. « Analytical description of subwavelength plasmonic MIM resonators and of their combination ». In : *Optics express* 21.6 (2013), p. 7025-7032.

^[14]X. LIU et al. « Infrared spatial and frequency selective metamaterial with near-unity absorbance ». In : *Physical Review Letters* 104.20 (2010), p. 207403. ISSN : 1079-7114.

^[15]Dennis M SULLIVAN. *Electromagnetic simulation using the FDTD method*. John Wiley & Sons, 2013.

^[16]MG MOHARAM et al. « Formulation for stable and efficient implementation of the rigorous coupled-wave analysis of binary gratings ». In : *Journal of the Optical Society of America A* 12.5 (1995), p. 1068-1076.

^[17]P. BOUCHON et al. « Fast modal method for subwavelength gratings based on B-splines formulation ». In : *Journal of the Optical Society of America A* 27.4 (2010), p. 696-702.

signifie que le calcul évoluera en $O(m^3 N^3)$. Dans le cas où une distribution de 100×100 antennes est désordonnée, le temps de calcul s'en trouverait multiplié par 10^{12} , ce qui, si la modélisation d'une antenne 2D ne prenait qu'une milliseconde et qu'il n'y avait pas de limitations liées à la mémoire nécessaire pour ces opérations, représenterait près de 30 ans de calcul. Pour cette raison, dans la suite, on va considérer uniquement des structures unidimensionnelles. Ainsi, on gagne à la fois sur le nombre d'antennes à désordonner (plus que 100 dans une direction), et sur le temps de calcul initial pour une antenne puisque le maillage est sur une dimension de moins. Sur notre exemple précédent, le temps de calcul passe typiquement de 1 milliseconde à 15 minutes sur une machine de bureau (8 Go de RAM, fréquence de 2400 MHz).

2.2.2 Modélisation de structures 1D par la méthode BMM

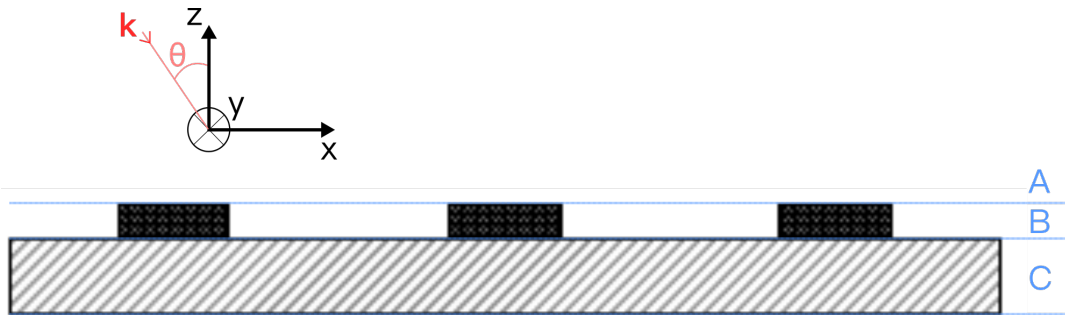


FIGURE 2.6 – Illustration d'un réseau 1D structuré suivant l'axe x et invariant suivant y dans la couche B. Les régions A et C sont semi infinies et constituées d'un matériau homogène. L'onde incidente sur le réseau est monochromatique de longueur d'onde λ , polarisée TM et orientée suivant θ par rapport à l'axe z .

Méthode d'interpolation : les B-splines

Je présente dans la suite le principe de la méthode BMM^[18] développé dans l'équipe. La méthode BMM (B-spline Modal Method) est une méthode de simulation du comportement électromagnétique de dispositifs structurés suivant deux direction de l'espace. Elle repose sur la division géométrique de la structure selon les couches et décompose les composantes du champ électromagnétique sur des modes interpolés au moyen de fonctions B-splines, c'est à dire suivant une combinaison linéaire de fonctions définies par morceaux par des polynômes.

Un B-spline est défini positif sur un segment, ce qui permet d'obtenir des matrices creuses lors d'une interpolation. On note N_i^p le B-spline de degré p commençant au noeud t_i . Un B-spline s'écrit^[19]:

¹⁸BOUCHON et al., « Fast modal method for subwavelength gratings based on B-splines formulation ».

¹⁹C. DE BOOR, « On calculating with B-splines ». In : *J. Approx. Theory* 6.1 (1972), p. 50-62.

$$N_i^0(t) = \begin{cases} 1 & \text{si } t \in [t_i, t_{i+1}] \\ 0 & \text{sinon.} \end{cases} \quad (2.2)$$

$$N_i^p(t) = \frac{t - t_j}{t_{j+n} - t_j} N_i^{p-1} + \frac{t_{j+n+1} - t}{t_{j+n+1} - t_{j+1}} N_{i+1}^{p-1}(t) \quad (2.3)$$

La figure 2.7 présente des B-Splines de différents degrés construits par récurrence. Si l'on souhaite décrire le champ magnétique, on utilise la formule d'interpolation :

$$H(x) = \sum_i N_i^p(x) P_i \quad (2.4)$$

où les P_i sont les coefficients calculés de sorte que les modes soient des solutions des équations de Maxwell. Les N_i , des B-splines donc, sont liés aux valeurs prises des t_i et sont donc déterminés par le maillage choisi.

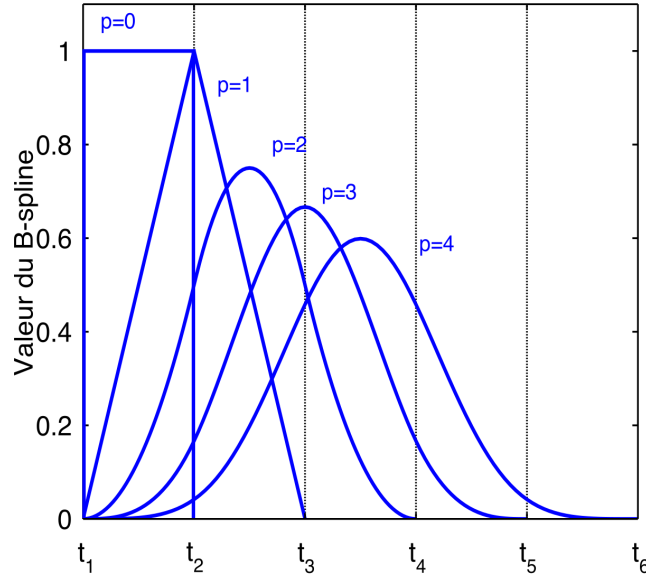


FIGURE 2.7 – Illustration de B-splines de différents degrés de polynôme allant de $p = 0$ à $p = 4$. Chaque B-spline est défini sur $p + 1$ segments par des polynômes continus par morceaux sur chaque segment $[t_i, t_{i+1}]$ par une relation de récurrence.

Propagation : les matrices de diffusion

Pour modéliser la propagation du champ électromagnétique à travers les différentes couches, on utilise des matrices de diffusion. La matrice S permet de relier les ondes incidentes aux ondes sortantes sur une interface comme schématisé sur la figure 2.8. Elles sont calculées à partir des équations de continuité des champs tangentiels²⁰. La matrice S

²⁰L. LI et C.W. HAGGANS. « Convergence of the coupled-wave method for metallic lamellar diffraction gratings ». In : *Journal of the Optical Society of America A* 10.6 (1993), p. 1184-1189.

est subdivisée en sous-matrices de réflexion et de transmission. Sur la figure 2.8 S_{AA}^α est la matrice de transmission de la couche A sur la couche B sur l'interface α et ainsi de suite.

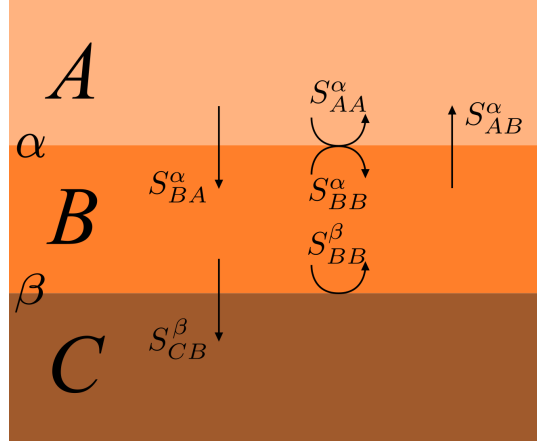


FIGURE 2.8 – Matrices de diffusion S définies pour un empilement de 3 couches pour une onde incidente depuis le milieu A. La couche B peut être structurée.

2.2.3 Approximation numérique de la diffusion

La figure 2.9 présente les différents cas de répartition de l'énergie électromagnétique, pour une onde plane monochromatique qui arrive sur une nanostructure. Dans le premier cas, la nanostructure est périodique de période sub-longueur d'onde ($p < \lambda/2$). Dans ce cas, l'énergie incidente peut être soit réfléchiée dans le spéculaire, soit transmise vers l'ordre 0, soit absorbée. La conservation de l'énergie s'écrit alors :

$$1 = A + R_0 + T_0 \quad (2.5)$$

Si la structure est non transmissive, ce qui est le cas s'il y a une couche métallique continue suffisamment épaisse, alors cette expression se réduit à $R_0 + A = 1$. Ces expressions très simples permettent en pratique de déduire expérimentalement l'absorption de métamatériaux par une simple mesure de la réflectivité spéculaire. Dès lors que, comme dans le cas de la figure 2.9, la période devient supérieure à la demi-longueur d'onde ($p > \frac{\lambda}{2}$), il peut y avoir existence d'ordres de diffraction réfléchis et transmis. Lorsque $\lambda/2 < p < \lambda$, ces ordres n'apparaissent qu'au-dessus d'un certain angle d'incidence limite défini par $\sin \theta_l = \frac{\lambda}{p} - 1$. Dans ce cas, la conservation de l'énergie s'écrit :

$$1 = A + R_0 + T_0 + \sum_i R_i + \sum_i T_i, \quad (2.6)$$

qui peut se réduire pour une structure sans transmission à $1 = A + R_0 + \sum_i R_i$. Dans le cas où on considère une couche nanostructurée 1D mais sans périodicité comme dans le 3^{ème}

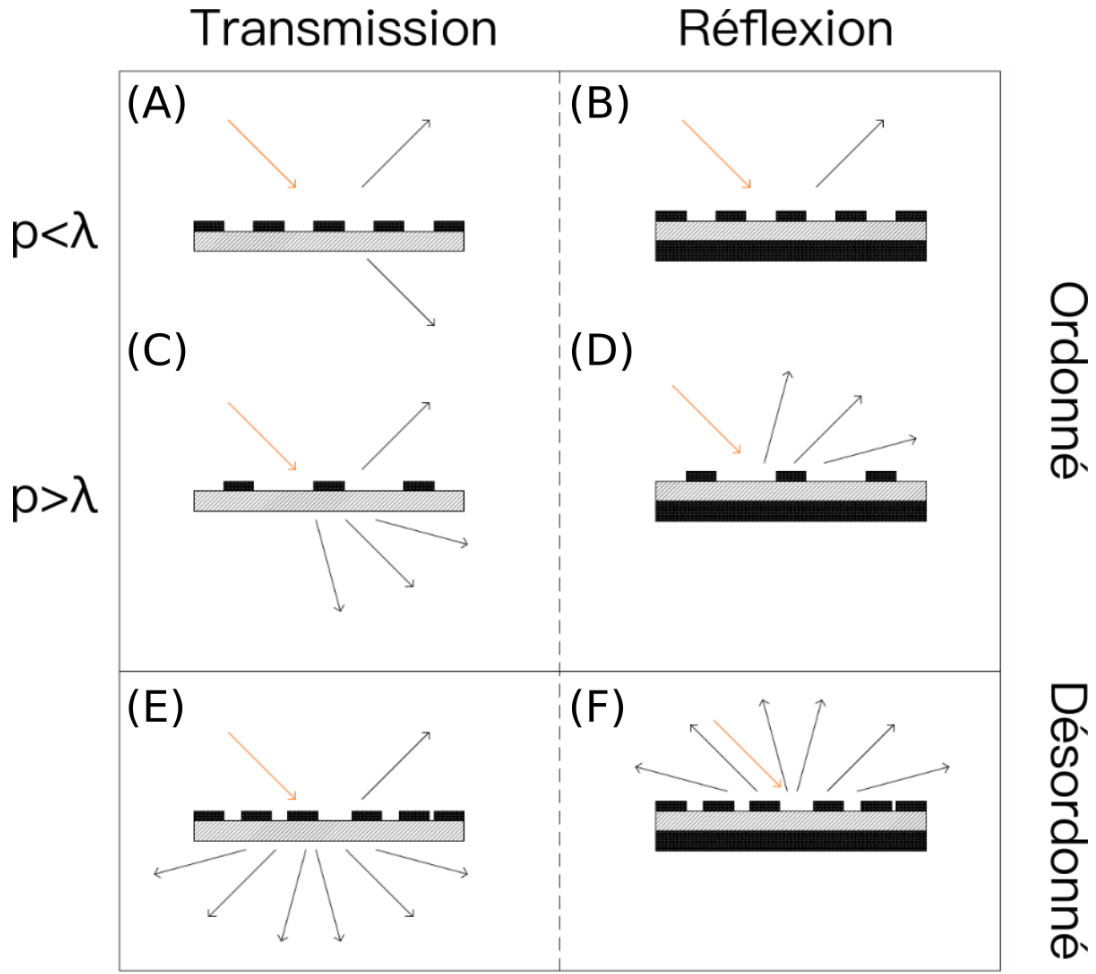


FIGURE 2.9 – Différents cas de répartition de l'énergie électromagnétique. Dans la colonne de droite, les structures présentent une couche basale optiquement opaque, qui interdit toute transmission de la lumière et peut être en pratique assimilée à un milieu semi-infini. (a-b) Réseau sub-longueur d'onde ($p < \lambda$) qui ne présente pas d'ordres de diffraction. A gauche, l'énergie peut être soit absorbée, soit réfléchi ou transmise dans l'ordre 0. A droite, l'énergie est soit absorbée, soit réfléchi dans le spéculaire. (c-d) Réseau sur-longueur d'onde ($p > \lambda$) qui présente des ordres de diffraction. A gauche, l'énergie peut être soit absorbée, soit réfléchi ou transmise dans les différents ordres diffractés. A droite, l'énergie est soit absorbée, soit réfléchi dans les différents ordres diffractés. (e-f) Réseau désordonné pour lequel il n'y a plus de motif périodique. L'énergie peut être soit absorbée, soit diffusée en transmission et réflexion à gauche, et uniquement en réflexion à droite.

cas de la figure 2.9, l'énergie se répartit cette fois ci entre transmission, absorption et réflexion spéculaire, mais aussi en diffusion transmise et réfléchi dans toutes les directions du plan. On peut alors écrire la conservation de l'énergie :

$$R_0 + T_0 + A + D_t + D_r = 1, \quad (2.7)$$

qui se réduit à $R_0 + A + D_r = 1$ dans le cas sans transmission.

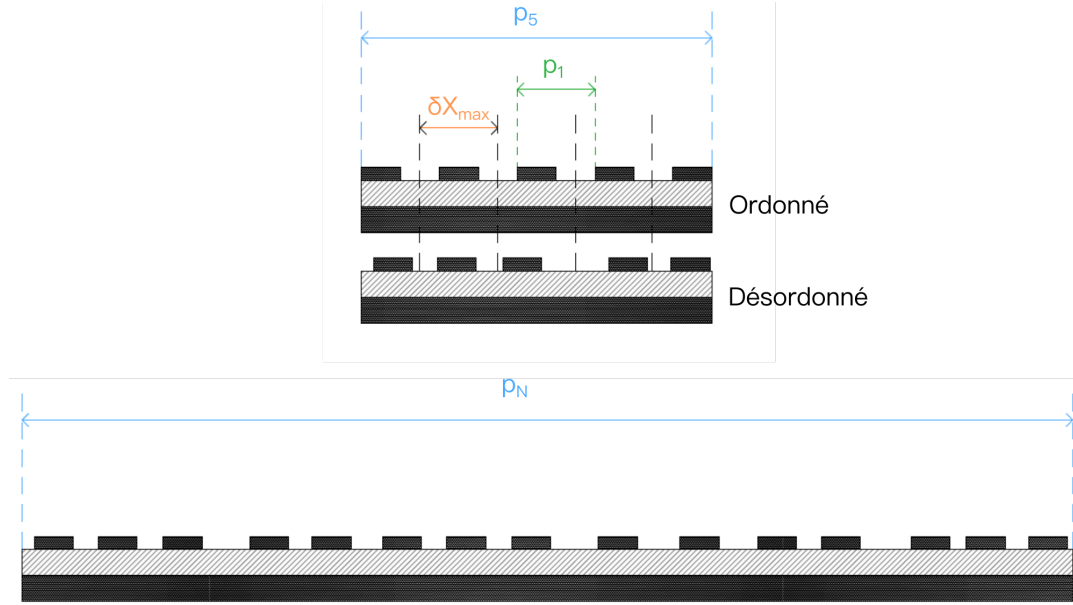


FIGURE 2.10 – Perturbation d’un réseau ordonné en suivant une loi normale. On définit une super-cellule de N MIM qui vont être chacun déplacés d’une valeur suivant la loi normale.

Dans la méthode modale B-spline décrite précédemment, on introduit des conditions aux limites périodiques, y compris pour un motif initialement désordonné. Ces conditions imposent une discrétisation des angles de calcul possibles, qui va être directement déterminée par la valeur p/λ . Dans la suite, on se place dans le cas en réflexion, en assemblant des antennes MIM désordonnées. La figure 2.10 illustre comment un ensemble de MIM est désordonné suivant une loi normale, et comment la périodicité de la supercellule est définie. Soit N , le nombre de MIM de la supercellule, la cellule initiale étant composée d’un MIM de période p_1 . Dans cette supercellule, chaque MIM placé initialement de façon périodique (période p_1) va être déplacé suivant une loi uniforme sur l’intervalle $[-\frac{\delta X_{max}}{2}; \frac{\delta X_{max}}{2}]$. Le motif le plus petit auquel appliquer des conditions périodiques devient alors la super-cellule de N MIMs, qui va avoir une période $p_N = Np_1$. La figure illustre les super-cellules avec 5, 10 et 15 nanoantennes MIM désordonnées.

La taille de la super-cellule dépend directement de la période initialement choisie pour le MIM p_1 et du nombre de MIM désordonnés, et va ensuite imposer la période numérique p_N . Cette période p_N conditionne le nombre et les valeurs des angles diffractés dans le calcul. La figure 2.11 illustre l’évolution du nombre d’ordres diffractés, et des angles de diffraction associés, en fonction du nombre de MIM composant la super-cellule désordonnée, avec une période initiale $p_1 = 7.5\mu\text{m}$ et à une longueur d’onde $\lambda = 5.15\mu\text{m}$. Pour $N = 10$, il y a seulement 29 ordres diffractés, ce qui correspond à un échantillonnage

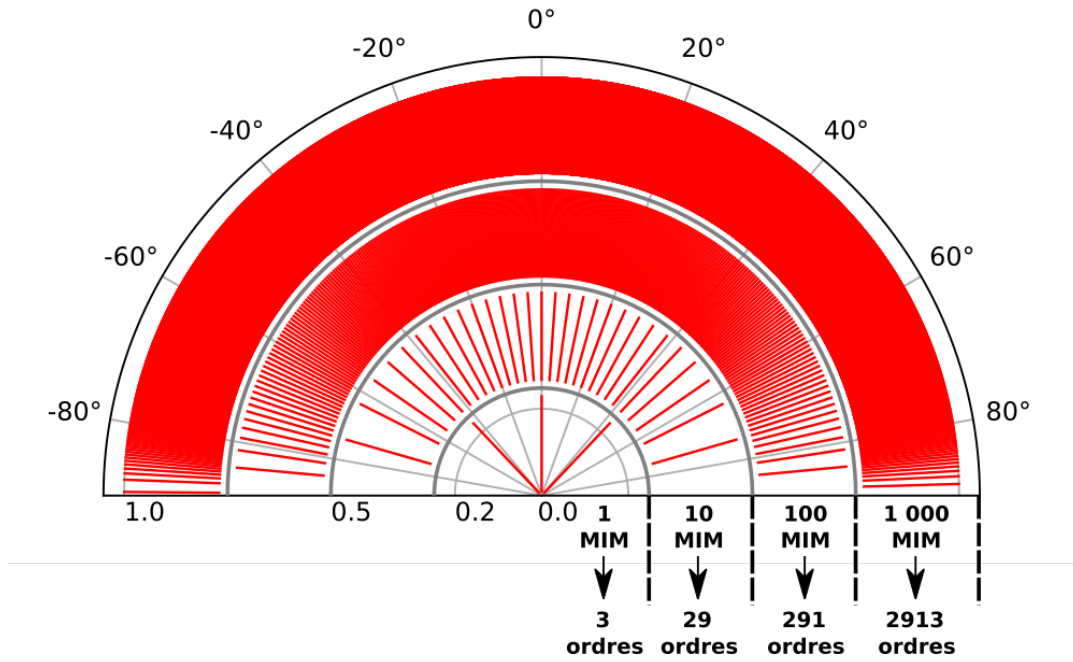


FIGURE 2.11 – Évolution du nombre et de l'angle des ordres de diffraction en fonction des conditions périodiques d'un ensemble de MIM désordonnés. pour une longueur d'onde $\lambda = 5.15\mu\text{m}$. Pour 1 MIM de période $p_1 = 7.5\mu\text{m}$, il y a 3 ordres de diffractions. Pour un ensemble de N MIM désordonnés, la période est $p_N = Np_1$.

moyen de 6° , et l'écart minimal entre deux ordres reste supérieur à 3° . Dans ce cas, assimiler diffraction et diffusion reste une hypothèse grossière. En passant à $N = 100$, il y a 291 ordres diffractés, l'écart moyen entre deux ordres diffractés passe à 0.6° , et c'est seulement aux plus grands angles ($\theta > 75^\circ$) qu'il devient moins précis. Il est possible d'accroître encore la discrétisation de la diffraction pour tendre vers la limite continue de la diffusion, ce qui est illustré dans le cas $N = 1000$.

Cependant, il faut également prendre en compte les contraintes de temps de calcul. En passant de $N = 100$ à $N = 1000$, le temps pour un calcul est multiplié par mille, ce qui revient sur notre exemple précédent à passer de 15 minutes à environ dix jours. Par ailleurs, on souhaite étudier l'influence des tirages aléatoires sur la diffusion, ainsi que la valeur du paramètre δX_{max} , ce qui correspond à une centaine de tirages au total pour une géométrie de résonateur donnée. Pour éviter que le moindre graphe calculé ne demande la durée d'une thèse, dans la suite, les calculs sont faits en prenant $N = 50$. Il faut noter que cette valeur est aussi acceptable d'un point de vue expérimental, d'une part car la période de la super-cellule est de l'ordre de grandeur de la taille du faisceau utilisée pour les caractérisations. D'autre part, la caractérisation angulaire de la diffusion se fait également avec un pas angulaire de l'ordre de 0.5° , sans avoir accès aux angles supérieurs à 80° .

2.3 Étude de la diffusion d'une ensemble de MIM désordonnés

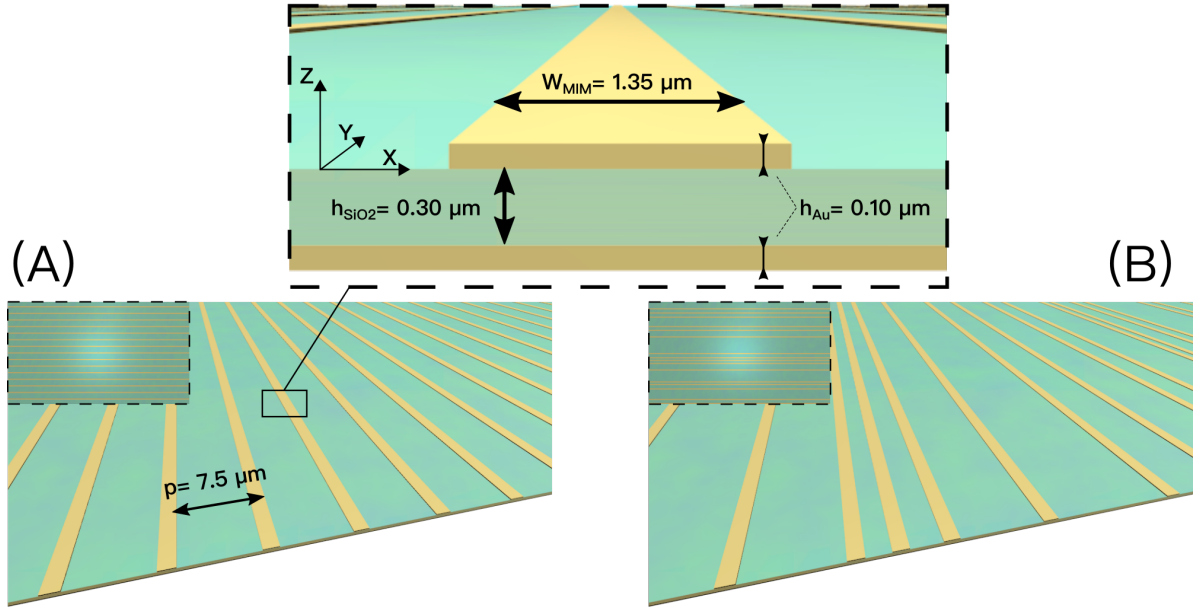


FIGURE 2.12 – Illustration du réseau ordonné (A) et désordonné (B), dans les coins supérieurs gauche une vue du dessus.

2.3.1 Le cas ordonné

Partons donc d'un réseau ordonné comme décrit sur la figure 2.12. Les paramètres de modélisation choisis sont, une largeur de ruban $W_{mim} = 1.35\mu\text{m}$, une épaisseur d'or $h_{Au} = 0.10\mu\text{m}$, une épaisseur de diélectrique $h_{SiO_2} = 0.30\mu\text{m}$ et une période $p = 7.5\mu\text{m}$. Grâce à la méthode modale, on peut calculer la réflectivité spéculaire dont le résultat est donné figure 2.13. Sur cette courbe on peut distinguer deux sortes de pics caractéristiques. Un pic de résonance dû à la résonance de plasmons de surface dont nous avons vu l'origine physique au chapitre 1, et des pics dus aux anomalies de Rayleigh-Wood (ARW), dont l'origine tient du couplage entre les ordres de diffraction apparaissant tangentiellement au réseau.

Une autre figure intéressante à tracer pour caractériser la structures est sa dépendance angulaire. On trace donc les réflectivités spéculaires à différents angles d'incidence $\theta_{mesure} = \theta_{incident}$. La figure 2.14 (A) représente la réflectivité spéculaire de la structure ordonnée pour des angles allant de 0° à 70° en fonction de la longueur d'onde. Nous choisissons cette fourchette angulaire car le montage expérimental s'y limitera. Sur cette même figure on peut distinguer deux observations notables : nous retrouvons une réflec-

tivité nulle pour $\lambda = 5.15\mu\text{m}$ correspondant à la longueur d'onde de résonance. Second point notable, la présence de courbes pour lesquelles la réflectivité connaît une variation brutale. Ces courbes correspondent aux anomalies de Rayleigh-Wood comme sur la figure 2.13. Leurs positions peuvent être prédites en utilisant la formule classique de diffraction par un réseau. La figure 2.14 (B) représente les courbes d'apparition/disparition des ordres diffractés.

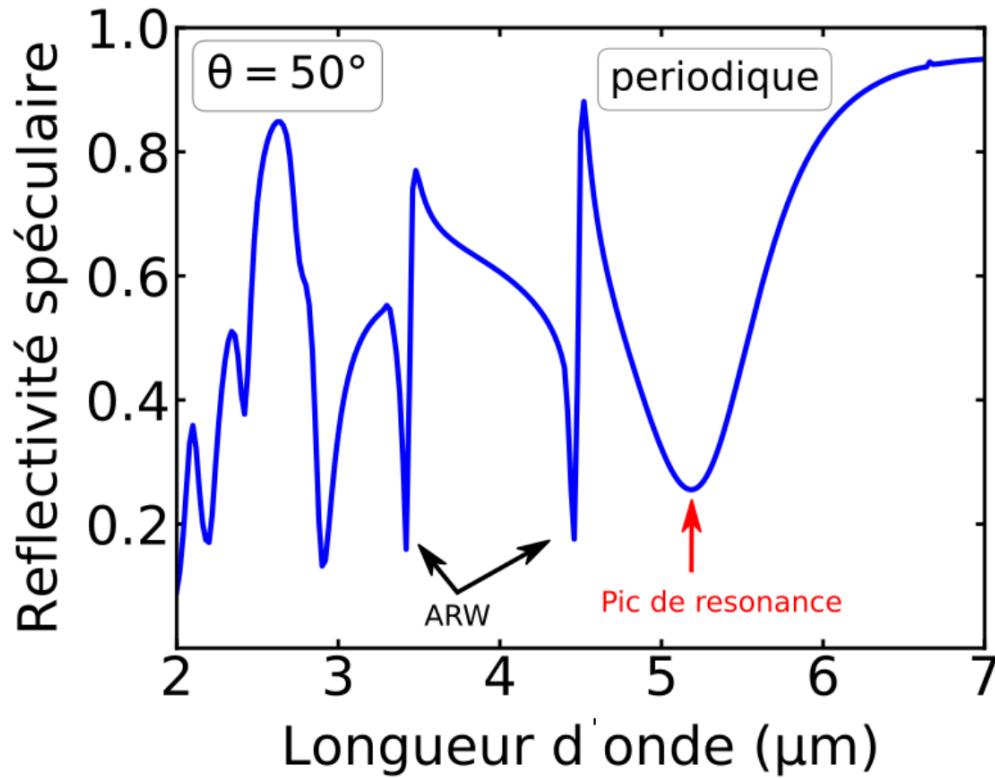


FIGURE 2.13 – Réflectivité spéculaire simulée pour le réseau ordonné de période $p = 7.5\mu\text{m}$, $w_{mim} = 1.35\mu\text{m}$, $h_{Au} = 0.1\mu\text{m}$ et $h_{SiO_2} = 0.3\mu\text{m}$

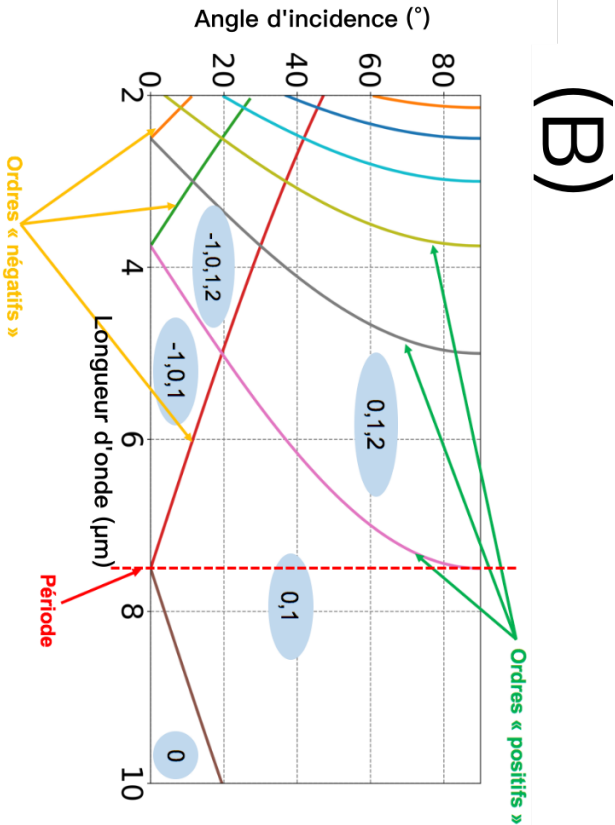
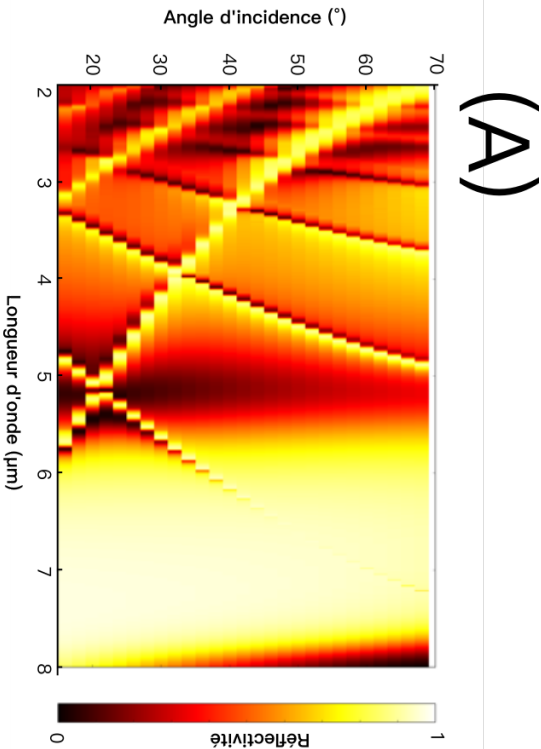


FIGURE 2.14 – (A) réflectivité spéculaire simulée pour le réseau ordonné de période $p = 7.5\mu\text{m}$, $w_{min} = 1.35\mu\text{m}$, $h_{Au} = 0.1\mu\text{m}$ et $h_{SiO2} = 0.3\mu\text{m}$. (B) Courbes d'apparition et de disparition des ordres diffractés.

2.3.2 Le cas désordonné

Notre structure désordonnée consiste donc à partir du réseau ordonné puis de générer une distribution spatiale en permettant le déplacement de chaque MIM dans un intervalle de longueur δX_{max} . Plus la valeur de δX_{max} est élevée plus le réseau sera désordonné. L'évolution des caractéristiques optiques en fonction de δX_{max} permet une analyse des propriétés optiques, à la longueur d'onde de résonance, de notre métasurface 1D sous l'influence du désordre. c'est ce que l'on illustre sur la figure 2.15.

On choisit comme angle d'étude $\theta = 50^\circ$ car lors de la phase expérimentale, il faudra être en mesure de collecter les rayons lumineux diffractés, sans être trop proche des valeurs angulaires pour lesquelles les anomalies de Rayleigh-Wood ont un impact (voir 2.14 (B)).

Le phénomène de diffraction étant lié à la cohérence spatiale de la structure géométrique de notre métasurface, l'augmentation du paramètre δX_{max} engendre une perte de l'efficacité de diffraction. Au contraire de la diffusion qui, elle, passe de 0% à la valeur significative de 54% dans le cas maximal de δX_{max} .

Les trois graphiques du haut de la figure 2.15 représentent les réflectivités des différentes contributions énergétiques des équation 2.5 à 2.7 pour les cas ordonné et désordonné au maximum. Ces courbes théoriques permettent d'avoir une visualisation de l'évolution spectrale, notamment du fait qu'il existe un pic de diffusion aux longueurs d'onde de résonance dans le cas désordonné. Ainsi, notre structure 1D est un très bon candidat pour obtenir une diffusion sélective en longueur d'onde.

La partie expérimentale consistera à valider ces considérations numériques par des mesures expérimentales sur des échantillons.

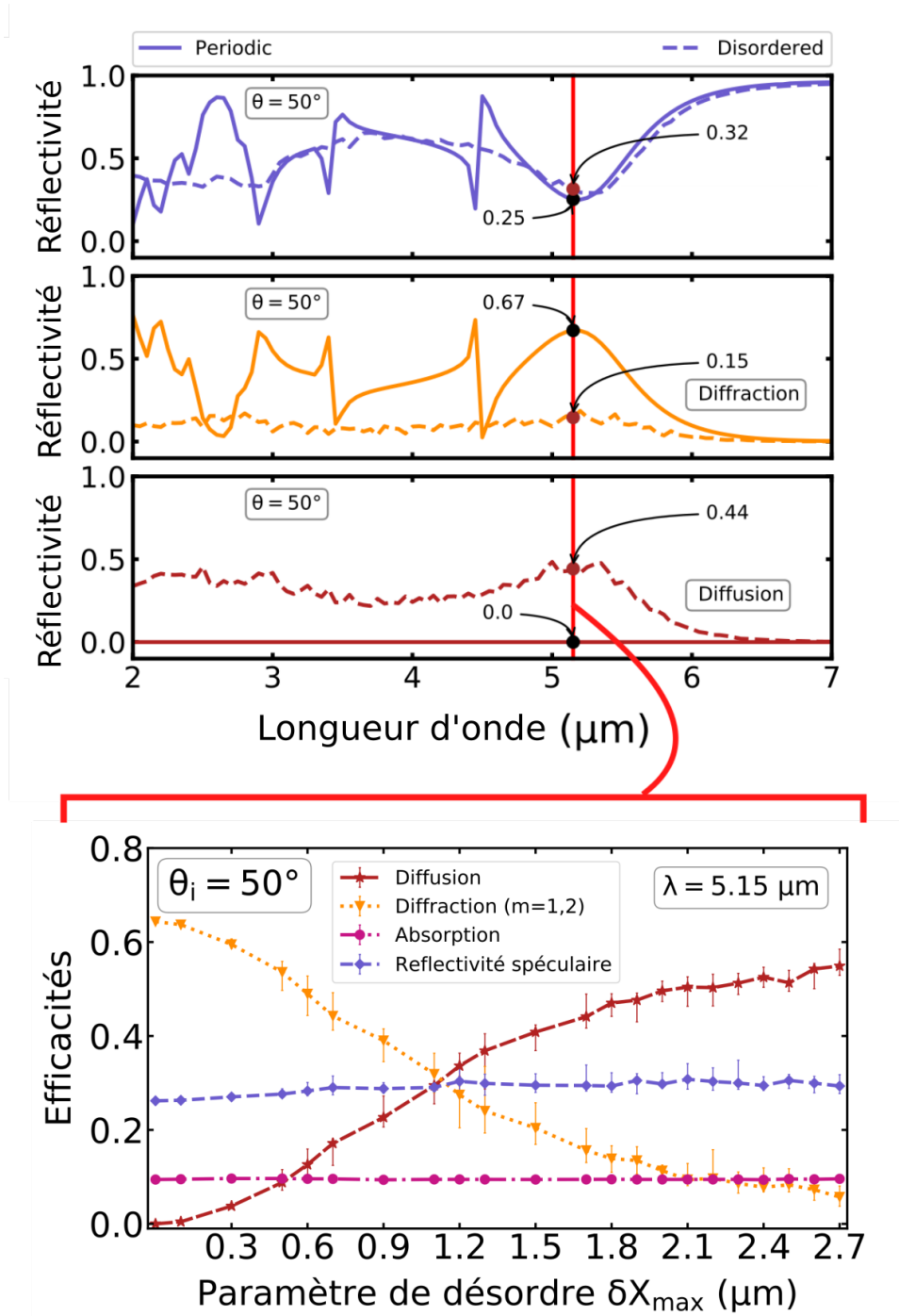


FIGURE 2.15 – Graphiques de l'évolution des différentes contribution à la réflexion, c'est à dire les efficacités de diffusion, de diffraction, d'absorption et de réflectivité spéculaire en fonction de la longueur d'onde pour une structure ordonnée (traits pleins) et désordonnée $\delta X_{\text{max}} = 2.7 \mu\text{m}$. Le graphique du bas de figure représente l'évolution de ces mêmes contributions en fonction du paramètre de désordre δX_{max} à la longueur d'onde de résonance de la structure $\lambda_{\text{res}} = 5.15 \mu\text{m}$. Les barres d'erreur représentent les valeurs calculées pour 10 tirages pour chaque valeur de δX_{max} .

2.3.3 Étude de la dissipation

Il est important de savoir jusqu'à quel point nous pouvons considérer que chaque nanoantenne se comporte comme une antenne unique, c'est à dire en négligeant son voisinage. Une manière de mettre en évidence les effets de voisinage est la visualisation de la dissipation. En théorie, si toutes les conditions d'illumination sont rigoureusement les mêmes pour chacune des 50 antennes et qu'on les considère indépendantes, alors elles devraient avoir la même valeur de dissipation. La figure 2.16 montre la carte de dissipation dans le cas d'un fort désordre. On voit que le désordre induit un écart de plus de 300% entre certaines antennes. A ce stade il n'est pas possible de considérer que chaque antenne peut être traitée séparément.

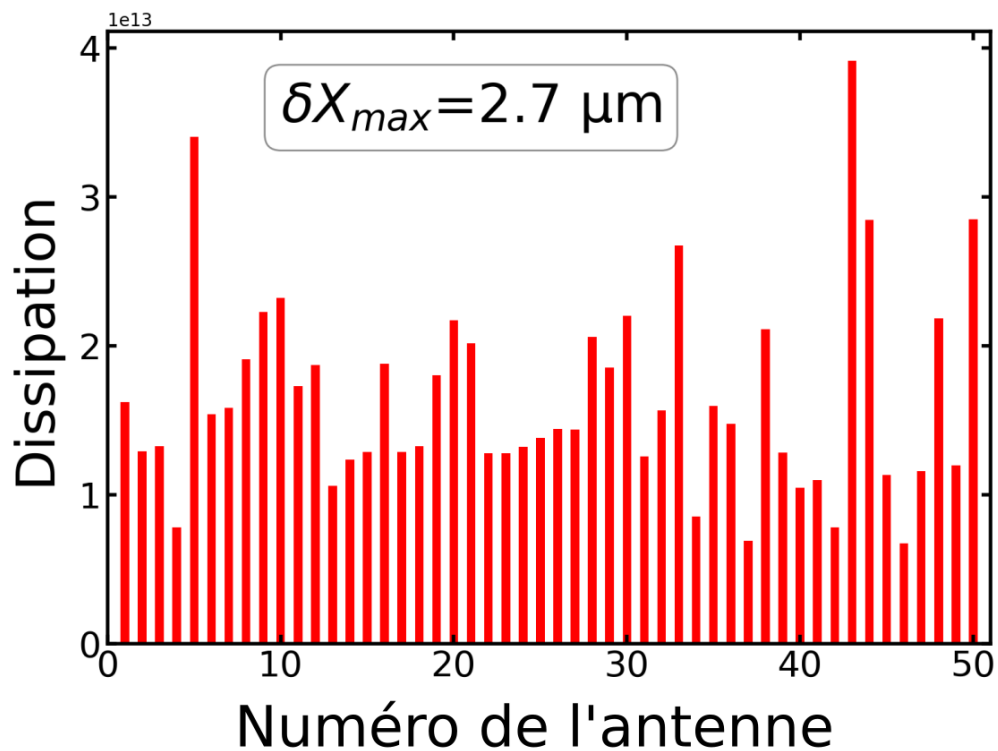


FIGURE 2.16 – Graphe de dissipation simulé en fonction de chacune des 50 nanoantennes dans le cas désordonné $\delta X_{max} = 2.7 \mu\text{m}$.

2.4 Conclusion

En conclusion de ce chapitre, nous aurons vu que la structure MIM constitue un très bon candidat pour l'étude du désordre spatial sur les métasurfaces. D'une part pour les propriétés d'absorption totale et de confinement spatial de l'énergie électromagnétique, mais également pour l'adaptabilité de notre modèle de désordre avec les outils de simulation. Nous avons suggéré une structure 1D de 50 nanoantennes pour des raisons de gain de temps tout en gardant une plage d'étude du désordre suffisamment large pour avoir une cohérence statistique, inhérente avec les lois de distribution mais également une précision sur la mesure de la réflectivité diffusée à venir dans le chapitre suivant. Par ailleurs, le choix de notre structure tient également compte des contraintes expérimentales à venir, notamment angulaires. Il nous a fallu choisir une structure telles que la mesure des réflectivités des ordres diffractés soit possible avec notre matériel.

Chapitre

3

Caractérisations expérimentales

Sommaire

3.1 Méthodes de caractérisation optique dans le domaine infrarouge	52
3.2 Spectromètre à transformée de Fourier	52
3.2.1 Présentation	52
3.2.2 Le module de mesure par réflexion	53
3.3 Conception des échantillons	55
3.3.1 Choix des échantillons	55
3.3.2 Fabrication	55
3.4 Prise en compte des contraintes expérimentales	56
3.4.1 Mesures sous vide	56
3.4.2 Miroirs sphériques	57
3.4.3 Précision du bras articulé	57
3.5 Le réseau périodique de MIM	57
3.5.1 Mesure de la réflectivité spéculaire	58
3.6 L'assemblage désordonné de MIM	60
3.6.1 Mesure de la réflectivité spéculaire	60
3.6.2 Mesures quantitatives de la diffusion	61
3.6.3 Mesures préliminaires en émission thermique sur les MIM désor-	
donnés	63
3.7 Conclusion	65

Dans ce volet expérimental, notre objectif premier est de valider le modèle théorique dont le résultat principal est rappelé sur la figure 3.2. Dans ce qui suit, nous allons détailler la démarche qui nous a permis la comparaison des mesures expérimentales aux simulations numériques du chapitre 2. Pour la caractérisation optique des échantillons nous avons utilisé principalement un spectromètre à transformée de Fourier (FTIR) pour la mesure de réflectivités. Grâce à cet outil nous allons avoir accès aux réflectivités spéculaire, de diffusion ainsi que de diffraction et pouvoir en tirer un lot d'informations quantitatives.

3.1 Méthodes de caractérisation optique dans le domaine infrarouge

Dans le domaine infrarouge, les longueurs d'ondes de travail se situent dans la gamme du micromètre. A cette échelle, pour pouvoir caractériser les échantillons il faut pouvoir les illuminer avec une large bande spectrale. Pour notre étude expérimentale, nous avons besoin d'un dispositif permettant la caractérisation angulaire pour analyser les rayons diffractés. Un système de type goniomètre est par exemple un outil fiable. Pour finir, nous souhaitons également faire des mesures d'émission thermique. Dans ce type de caractérisation il convient de disposer d'un signal de référence nous en tiendrons compte lors de la fabrication des échantillons en conservant un réseau de référence non loin des échantillons à caractériser. Une autre alternative serait d'utiliser une sphère intégrante. Notre choix ici c'est porté vers l'utilisation d'un spectromètre à transformée de Fourier augmenté d'un module composé de deux bras, l'un pour le rayonnement incident et l'autre pour la collecte tels que présentés dans la section qui suit.

3.2 Spectromètre à transformée de Fourier

L'outil de caractérisation optique que j'ai utilisé est un Spectromètre Infrarouge à Transformée de Fourier (FTIR) muni d'un module permettant une caractérisation en réflexion. Détaillons ces deux éléments.

3.2.1 Présentation

Le spectromètre FTIR est un puissant outil faisant partie de la famille des spectromètres d'absorption¹. Ces derniers ont vu leur naissance au cours du XIX^{ème} siècle, suite à la découverte du rayonnement infrarouge. Le but de la spectroscopie dite d'absorption

¹Peter R GRIFFITHS et James A DE HASETH. *Fourier transform infrared spectrometry*. T. 171. John Wiley & Sons, 2007.

est de pouvoir collecter l'information concernant la quantité de lumière absorbée par un échantillon. Le processus d'absorption dépendant de la longueur d'onde, la fonction du spectromètre est de pouvoir générer un ensemble de faisceaux à différentes longueurs d'ondes et de confronter le faisceau interagissant avec la matière à un faisceau de référence. La façon la plus intuitive d'obtenir un spectre de réflectivité est d'envoyer un faisceau de lumière monochromatique sur l'échantillon et de collecter la lumière réfléchie. Puis, l'opération est répétée ainsi de suite pour plusieurs longueurs d'ondes. Cependant, cette méthode dite "dispersive" requiert des temps de manipulation longs. Et une méthode plus performante a été développée. Cette méthode, dite "par transformée de Fourier", utilise un seul faisceau polychromatique, et requiert un post-traitement utilisant la transformée de Fourier pour "développer" le spectre. Il s'agit de générer un signal interférométrique dans lequel toutes les longueurs d'onde sont contenues. C'est cette méthode de spectroscopie que nous allons utiliser.

3.2.2 Le module de mesure par réflexion

Pour pouvoir exploiter la dépendance angulaire de nos échantillons, nous avons agrémenté le spectromètre d'un module composé de deux bras articulés (voir figure 3.1), pilotés via une interface informatisée. Cela permet de réaliser des mesures en réflexion au mieux par pas de 0.5° suivant deux modes, l'un symétrique et l'autre asymétrique. La configuration asymétrique est utile pour la caractérisation de la diffraction et est couramment utilisée sur d'autres gammes du spectre électromagnétique².

A l'entrée du module il est possible de fixer un polariseur pour être en mode TM, qui est le mode nécessaire à la résonance. Par ailleurs, la boîte dans laquelle est fixé le module est reliée à une pompe permettant de faire le vide, si nécessaire. Puisque le CO_2 absorbe à $4.2\mu\text{m}$ et que le pic de résonance des échantillons est à $5.15\mu\text{m}$ (le pic est spectralement large, sa largeur à mi-hauteur est de l'ordre du micromètre), une majorité des mesures est faite sous vide.

²Edgar E RUSSELL et Ely E BELL. « Measurement of the optical constants of crystal quartz in the far infrared with the asymmetric Fourier-transform method ». In : *JOSA* 57.3 (1967), p. 341-348.

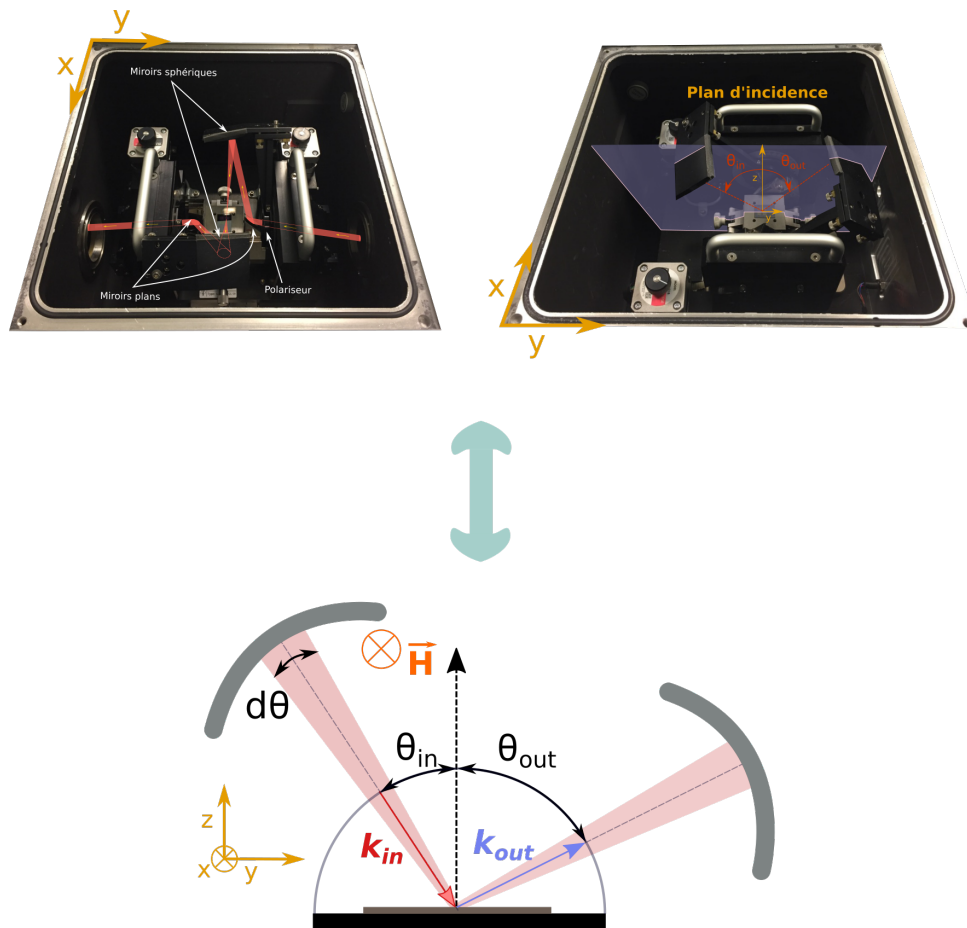


FIGURE 3.1 – Illustration du matériel utilisé pour la caractérisation. Il s'agit d'un spectromètre à transformée de Fourier (A) et (B) agrémenté d'un module permettant la génération d'un rayon lumineux focalisé avec contrôle de l'angle d'incidence via un miroir sphérique, puis sa collecte avec un second miroir. La figure (C) représente de manière schématique le fonctionnement de ce module.

3.3 Conception des échantillons

3.3.1 Choix des échantillons

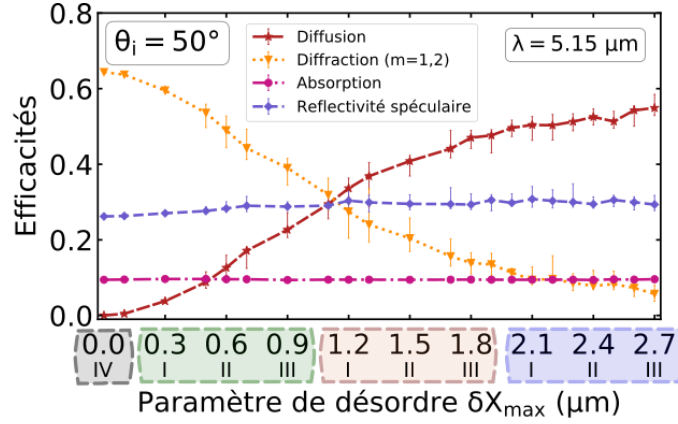


FIGURE 3.2 – Courbe d'évolutions des contribution à la réflectivité de la structure MIM avec une photo des échantillons et des valeurs de δX_{max} retenues pour la caractérisation expérimentale

L'idée est de pouvoir avoir des mesures permettant la comparaison simulation/expériences de la figure 3.2 obtenue dans le chapitre précédent. Nous décidons de sélectionner neuf points de mesures du désordre en plus du cas ordonné. Ces points de mesure sont reportés sur la figure 3.2.

3.3.2 Fabrication

La fabrication de ces metasurfaces a été confiée au fabricant NIL technologies, les procédés de fabrications seront développés brièvement dans la suite de ce manuscrit. Il s'agit d'une série de trois échantillons comportant chacun quatre réseaux de cinq cents nano-antennes, la répartition des cinquante antennes étant répétée dix fois. Les dimensions sont reportées sur la figure 3.3. Sur chacun des trois échantillon il y a quatre réseaux : trois réseaux désordonnés et un réseau ordonné. Nous avons choisi de mettre sur chacun des

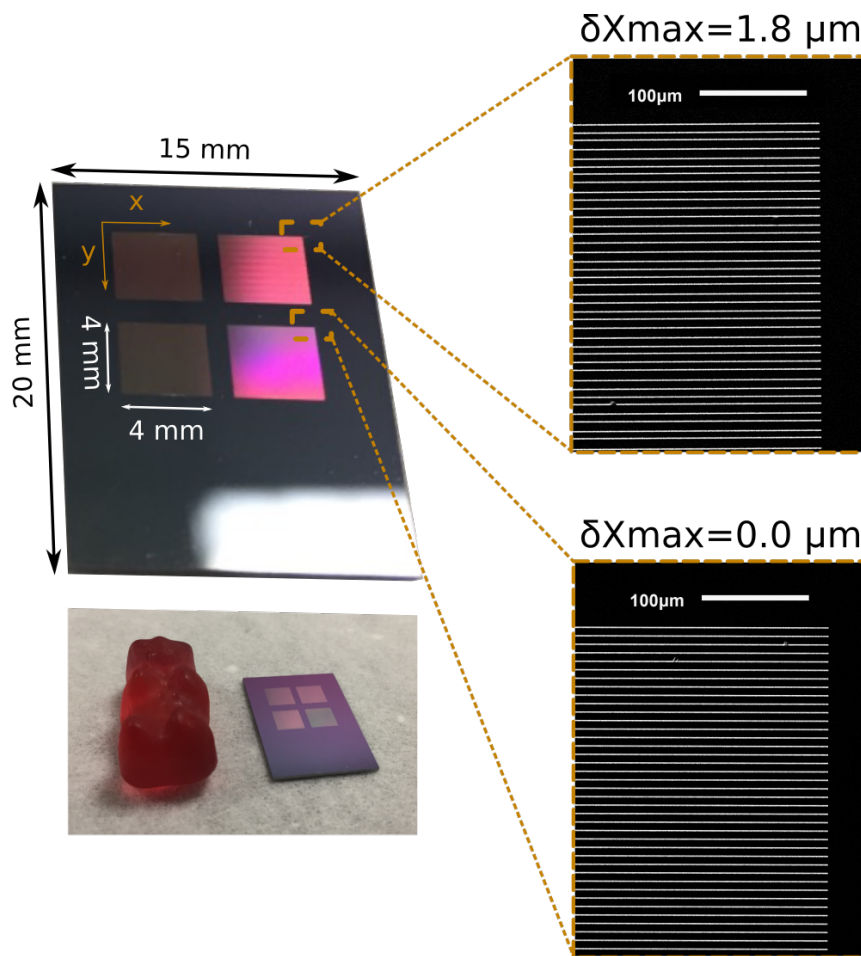


FIGURE 3.3 – Photo d'un échantillon nano-fabriqu  et de ses dimensions. Les images de droites sont obtenues au microscope  lectronique   la balayage (MEB).

 chantillons un r seau ordonn  pour pouvoir l'utiliser comme r f rence (sans changer d' chantillon) dans le cadre de mesures ult rieures, notamment en  mission thermique. Des images obtenues au microscope  lectronique sont  galement donn es en figure [3.3](#).

3.4 Prise en compte des contraintes exp rimentales

3.4.1 Mesures sous vide

La gamme de longueur d'onde sur laquelle nous portons notre attention est la plage $[2\mu\text{m}; 10\mu\text{m}]$. Dans cette gamme, des fr quences parasites peuvent perturber notre analyse. C'est le cas, entre-autres, des fr quences de vibration des mol cules pr sentes dans l'air comme le CO_2 qui absorbe autour de $4.2\mu\text{m}$. La longueur d'onde d'absorption de notre m ta-surface est de $5.15\mu\text{m}$ c'est pourquoi nous ferons notre caract risation au spectrom tre sous-vide.

3.4.2 Miroirs sphériques

L'onde incidence parvient sur l'échantillon via un montage goniométrique présenté figure 3.1. Deux miroirs sphériques sont utilisés à cet effet. La surface d'interaction entre le rayon incident et l'échantillon dépend fortement de la hauteur de l'échantillon (position en z, sur la figure 3.1) faisant varier la largeur du spot. Pour que les mesures quantitatives soient fiables il est nécessaire que ce spot d'interaction soit contenu dans les dimensions de l'échantillon c'est à dire d'étendue inférieure à 4 mm. Par ailleurs pour que les conditions de résonance soient réunies il faut que l'onde incidente soit polarisée TM (champ (H) parallèle à la longueur des barreaux), le système goniométrique n'étant pas parfait et le manque de précision sur la position angulaire (dans le plan (x,y)) de l'échantillon sur le support impliqueront forcément quelques écarts à la théorie.

3.4.3 Précision du bras articulé

Les miroirs sont fixés sur des bras articulés et un mécanisme permet de les rapprocher avec un angle (calculé à partir du centre des miroirs) de 26° . C'est à dire qu'au mieux, on peut mesurer la réflectivité spéculaire entre 13° et 77° .

3.5 Le réseau périodique de MIM

Dans cette section nous allons présenter les résultats expérimentaux de caractérisation du réseau périodique de la figure ?? . La caractérisation consiste à mesurer les réflectivités spéculaire, de diffraction, d'absorption et de diffusion. Pour le réseau ordonné seules les réflectivités spéculaire et de diffraction nous intéressent car un tel réseau n'est pas diffusant (ou très peu). L'absorption sera, elle, déduite via la relation :

$$1 = A(\lambda) + R_0(\lambda) + \sum_i R_i(\lambda) \quad (3.1)$$

Avec $R_i(\lambda)$ la réflectivité des ordres diffractés à la longueur d'onde λ .

3.5.1 Mesure de la réflectivité spéculaire

Dans ce paragraphe je vais présenter dans un premier temps les mesures de réflectivité spéculaire sur le réseau ordonné en mode symétrique $\theta_{in} = \theta_{out}$.

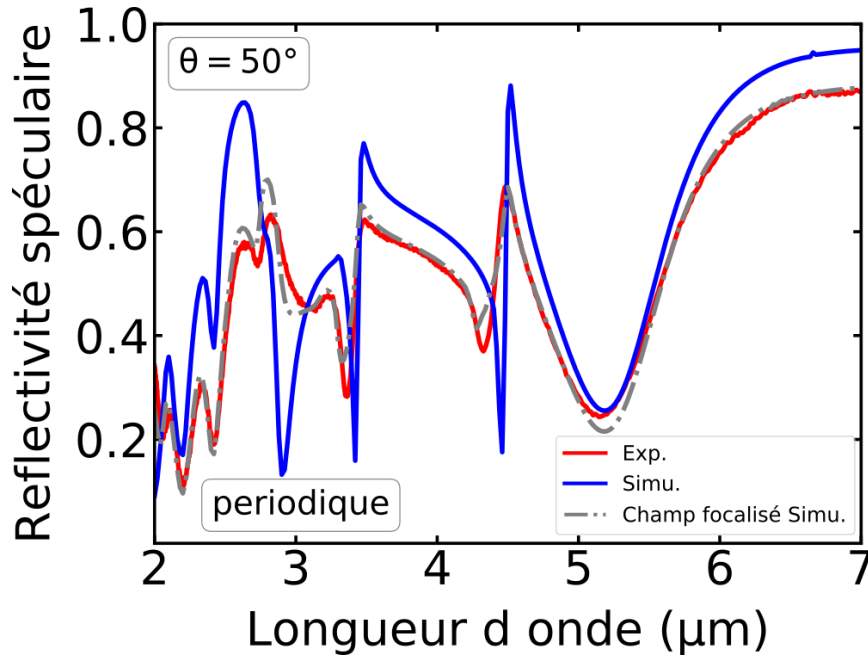


FIGURE 3.4 – Réflectivité spéculaire mesurée au FTIR sur l'échantillon de réseau ordonné pour un angle de 50° (trait rouge), comparé au résultat de la simulation (trait bleu). La courbe en pointillés représente la simulation en tenant compte des contraintes angulaires expérimentales.

La figure 3.4 présente les courbes de réflectivités spéculaire simulée et expérimentale du réseau ordonné pour un angle d'incidence de 50° , polarisation TM et sous vide. On constate un bon accord entre les courbes bleue (simulation) et rouge (expérience). Notamment sur la valeur de la réflectivité à la résonance, à $5.15\mu\text{m}$. Une différence notable est cependant remarquable sur la hauteur des pics des anomalies de Rayleigh-Wood et leur largeur. Nous pouvons cependant corriger cela en élargissant la simulation non plus à un seul angle d'incidence mais à une incidence sous $[\theta - \delta; \theta + \delta]$ avec $\delta = 5^\circ$ pour se rapprocher au mieux des conditions expérimentales. La courbe résultant de cette modification est présentée en pointillés gris et se rapproche ainsi beaucoup plus de la mesure expérimentale.

Dépendance angulaire

Ces courbes de réflectivité spéculaire peuvent être obtenues à différents angles. Nous savons grâce au chapitre 2 et à la présentation des propriétés physiques de la résonance MIM que la longueur d'onde de résonance est invariante en changeant l'angle d'inci-

dence. Nous savons par ailleurs que les anomalies de Rayleigh-Wood sont caractérisables par la donnée d'une telle mesure.

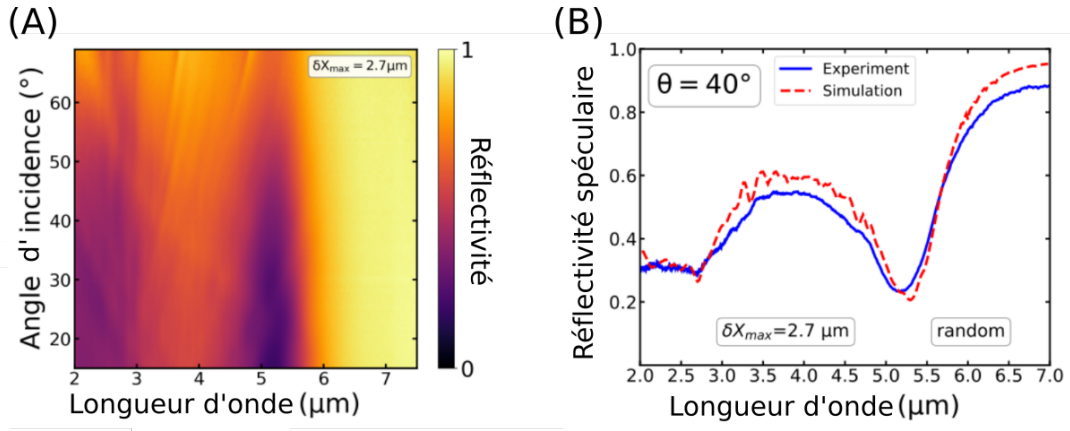


FIGURE 3.5 – (a) Spectres de réflectivité spéculaire en variant l'angle d'incidence en fonction de la longueur d'onde pour le cas périodique. (b) Comparaison entre les résultats de la simulation et les mesures au FTIR

La figure 3.5 montre la carte expérimentale des réflectivités spéculaire dans le cas du réseau ordonné pour des angles variant de 13° à 70° par pas de 0.5° et une coupe de cette carte à 40° avec comparaison simulation/mesure expérimentale.

Ce que l'on peut noter à propos de cette carte c'est la présence des lignes dues aux anomalies de RW ainsi que l'invariance de la longueur d'onde de résonance en fonction de l'angle d'incidence à $5.15 \mu\text{m}$. En théorie la réflectivité à la longueur d'onde de résonance est invariante en fonction de l'angle d'incidence, ici deux phénomènes altèrent cette invariance. D'une part la présence des anomalies de RW au voisinage de λ_{res} entraîne une augmentation de la réflectivité, et d'autre part l'imprécision sur la direction de la polarisation du fait du montage goniométrique empêche un contrôle parfait de cette dernière aux grands angles. Toutefois nous pouvons noter une adéquation très satisfaisante entre les mesures et les simulations par la méthode BMM.

3.6 L'assemblage désordonné de MIM

3.6.1 Mesure de la réflectivité spéculaire

Comme pour la cas ordonné on trace la carte de la réflectivité spéculaire à différents angles d'incidence. La figure 3.6 présente ces résultats avec une courbe de comparaison simulation/expérience à 40° dans le cas du réseau désordonné au maximum, c'est à dire $\delta X_{max} = 2.7 \mu\text{m}$. Par rapport au cas ordonné de la figure 3.4 on constate que les anomalies de RW ont disparues et que la longueur d'onde de résonance n'a pas changé. On peut voir qualitativement que l'intensité de la réflectivité spéculaire reste très proche de celle du cas ordonné. La figure 3.7 donne une image plus précise de la disparition progressive des anomalies de RW.

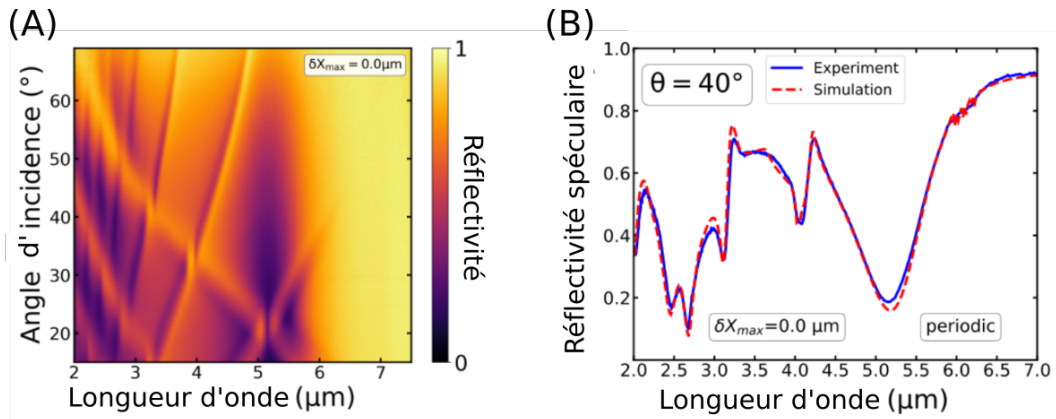


FIGURE 3.6 – (a) Spectres de réflectivité spéculaire en variant l'angle d'incidence en fonction de la longueur d'onde pour le cas désordonné au maximum $\delta X_{max} = 2.7 \mu\text{m}$. (b) Comparaison entre les résultats de la simulation et les mesures au FTIR

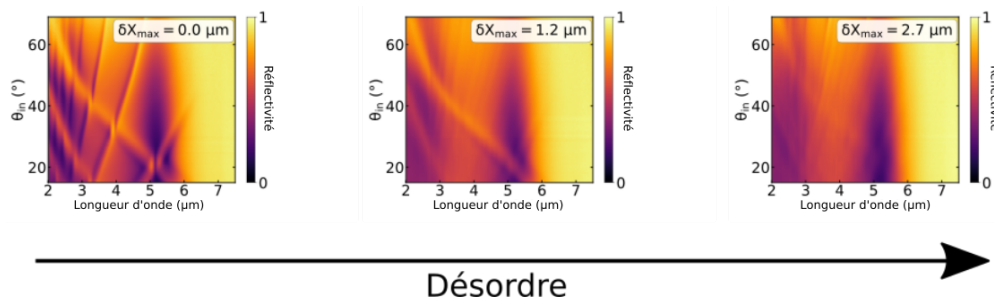


FIGURE 3.7 – Diagrammes de réflectivité spéculaire en fonction de l'angle pour des réseaux désordonnés progressivement. On note la disparition progressive des anomalies de Rayleigh-Wood, à mesure que la répartition spatiale des antenne s'éloigne du cas ordonné.

3.6.2 Mesures quantitatives de la diffusion

La figure 3.8 présente la réflectivité en mode asymétrique, c'est à dire que l'angle d'incidence est fixé à -50° et nous collectons tous les rayons entre -30° et 75° . Nous choisissons cet angle d'incidence car il permet d'obtenir deux ordres caractérisables : les ordres 0 et 1 respectivement à 50° et 5° . Nous choisissons comme longueur d'onde d'émission, la longueur d'onde de résonance $\lambda_{res} = 5.15\mu\text{m}$ et les mesures sont toujours faites sous vide. On constate l'effet des contraintes expérimentales dues aux miroirs d'émission et de collecte par la largeur des pics de diffraction. Ces contraintes sont ajoutées au code de simulation comme dans les figures précédentes. Deux résultats notables peuvent être tirés de cette figure :

(1) La diffusion issue de la redirection de l'énergie depuis les ordres de diffraction s'étale autour d'eux. C'est pourquoi la diffusion est quasiment négligeable à droite de l'ordre 0 car nous avons vu que la valeur de la réflectivité spéculaire reste la même dans les cas ordonné et désordonné. Au contraire autour de l'ordre 1 de diffraction la diffusion est maximale.

(2) La diffusion se fait principalement autour de 0° , se rapprochant ainsi de la diffusion par une antenne unique.

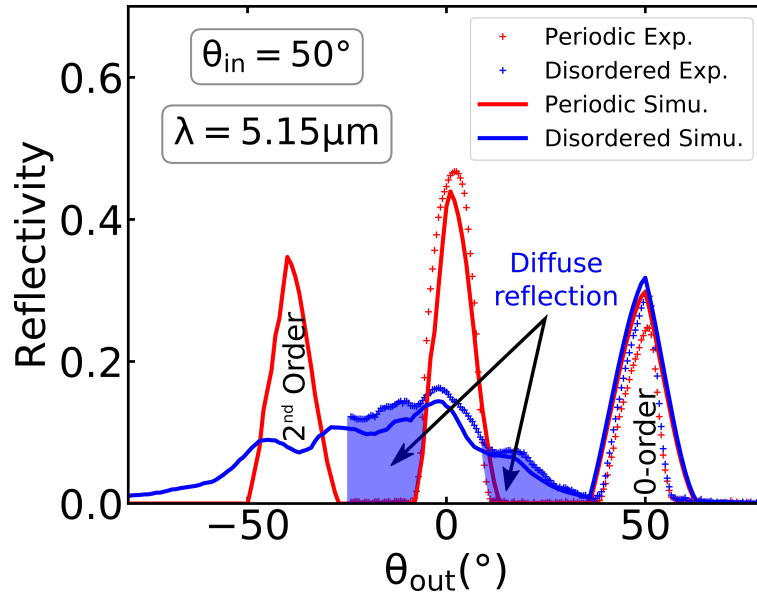


FIGURE 3.8 – Comparaison des résultats de la simulation et des mesures expérimentales des réseaux ordonné et désordonné en mode de caractérisation asymétrique. L'aire sous la courbe (en bleue) correspond à la diffusion.

La conclusion de cette courbe est la validation des résultats de la simulation avec les mesures expérimentales. On tient donc une métasurface diffusante et spectralement sélectives dans l'infrarouge moyen. Cette méta-surface 1D est une étude préliminaire à la

fabrication de surfaces beaucoup plus complexes. En effet, en 1D la diffusion se fait uniquement dans le plan d'incidence. Si l'on souhaite fabriquer une surface d'interaction qui perd totalement toutes les caractéristiques du rayon incident il faudra s'affranchir de cette contrainte spatiale.

3.6.3 Mesures préliminaires en émission thermique sur les MIM désordonnés

Jusqu'ici nous avons caractérisé nos échantillons avec la seule donnée expérimentale de la réflectivité. Un autre moyen de mesurer l'absorption est de faire usage d'un montage de mesure de l'émission thermique. On sait, depuis le chapitre 1 qu'un corps ne peut émettre une radiation que s'il est capable de l'absorber. La loi de Kirchhoff permet de relier, à une longueur d'onde λ l'émissivité ϵ_λ à l'absorptivité α_λ :

$$\alpha_\lambda = \epsilon_\lambda \quad (3.2)$$

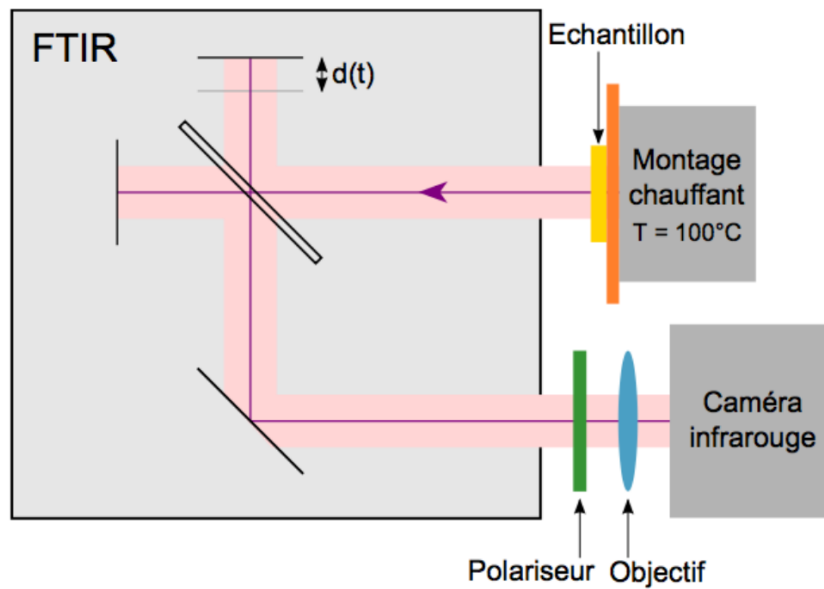


FIGURE 3.9 – Schéma du montage expérimental pour la caractérisation de l'émissivité. L'échantillon est porté à une température de 150°C, son émission est analysée par le FTIR et sa polarisation TM ajustée à l'aide d'un polariseur.

La mesure de l'émissivité de nos échantillons peut se faire en utilisant le montage de la figure 3.9. L'échantillon joue le rôle de source, il est posé sur un support chauffant qui peut monter à 600°C. Le FTIR est utilisé pour analyser spectralement le rayonnement de l'échantillon. Pour notre étude nous porterons la température de l'échantillon à 150°C pour maximiser le flux émis.

La figure 3.11 représente le spectre d'émissivité de l'échantillon ordonné. Il est obtenu en utilisant comme référence le spectre du corps noir (utilisé dans le FTIR), et corrigé par celui du fond de l'échantillon suivant :

$$\epsilon = \frac{S_{\text{échantillon}} - S_{\text{fond}}}{S_{\text{ref}} - S_{\text{fond}}} \quad (3.3)$$

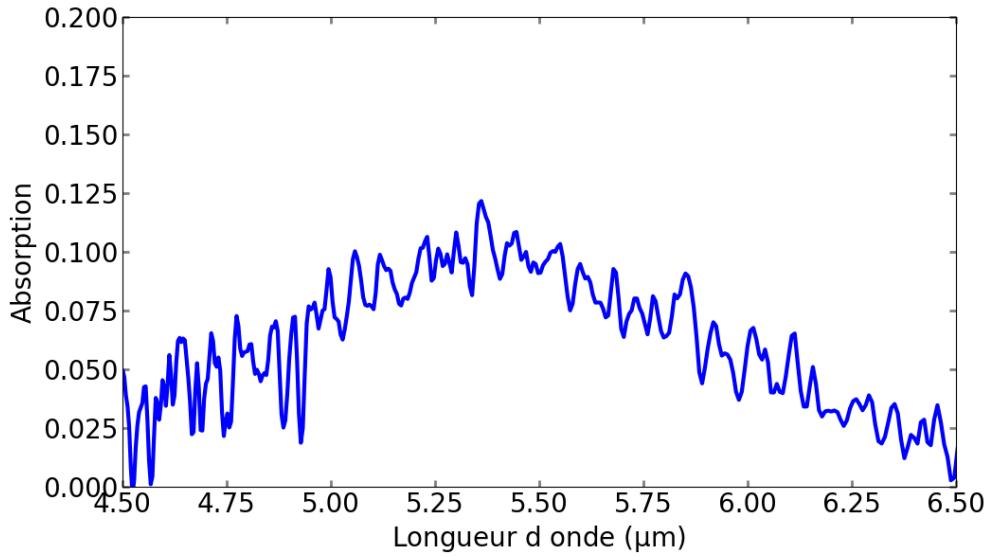


FIGURE 3.10 – Spectre d'émissivité de l'échantillon ordonné en fonction de la longueur d'onde pour une température $T=150^{\circ}\text{C}$ et à un angle de 15° .

Il en ressort que le taux d'absorption mesuré est très proche du résultat de la simulation de la figure 3.2, c'est à dire $\alpha = 0.1$. On remarque que l'émissivité présente un pic autour de $\lambda = 5.4\mu\text{m}$ légèrement décalé par rapport à la longueur d'onde de résonance λ_{res} attendue. Néanmoins ce résultat permet de valider par un montage différent le résultat des simulations : à λ_{res} l'absorption est de 10%.

Validité de la mesure : discussion

La mesure de l'émissivité de l'échantillon doit en pratique se faire dans tout le demi-espace supérieur de l'échantillon. Notre mesure elle se fait à 15 degrés et dans un cône dont l'angle solide est déterminé par le diamètre des miroirs sphériques de collecte. Le diagramme d'émissivité d'une structure MIM a été étudié en profondeur dans l'équipe³, la figure 3.11 montre ces résultats. Il en ressort que pour les structures MIM faire l'approximation d'une surface lambertienne, c'est à dire avec un diagramme d'émissivité (ou d'absorptivité) dont l'intensité est indépendante de l'angle est valable. C'est pourquoi, avec notre montage on peut considérer qu'une mesure à $\theta = 15^{\circ}$ donne une valeur cohérente de l'absorption.

³M. MAKHSIYAN. « Nano-émetteurs thermiques multi-spectraux ». Thèse de doct. Ecole polytechnique, 2017.

3.7 Conclusion

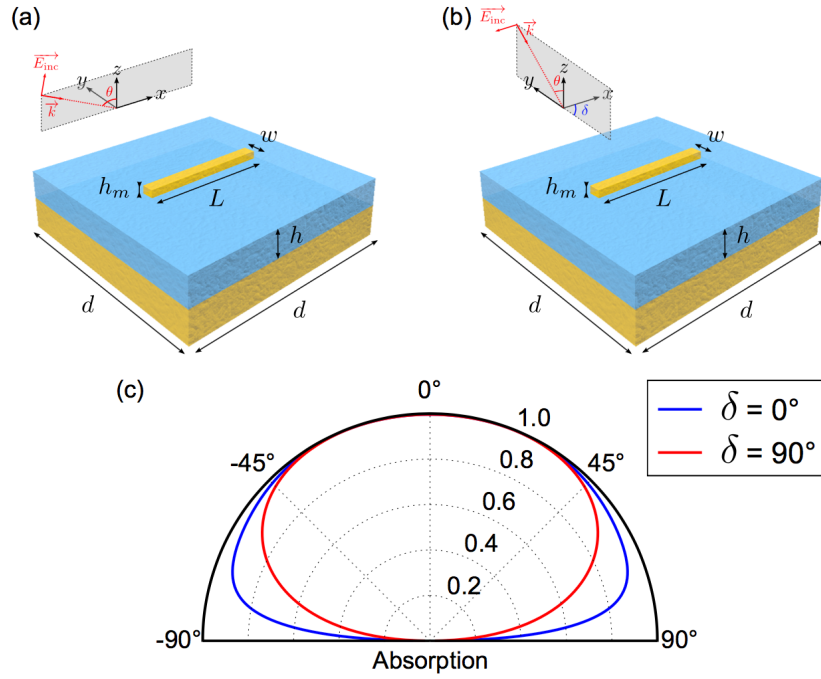


FIGURE 3.11 – (a) Schéma d’une métasurface ($d=1.5\mu\text{m}$, $L=1\mu\text{m}$, $w = 100\text{nm}$, $h_m = 50\text{nm}$, $h=180\text{nm}$) éclairée par une onde incidente polarisée TM avec un angle d’incidence θ et un plan d’incidence suivant (xz) correspondant à $\delta = 0^\circ$. (b) Schéma de la même métasurface éclairée par une onde TE avec un angle d’incidence θ et un plan d’incidence suivant (yz) correspondant à $\delta = 90^\circ$. (c) Évolution de l’absorption à la longueur d’onde de résonance $\lambda_{res} = 3.58\mu\text{m}$ en fonction de l’angle d’incidence θ dans les deux configurations d’incidence.

3.7 Conclusion

Au terme de ce chapitre expérimental, nous avons d’une part prouvé la validité des simulations par la mesure des réflectivités au moyen d’un spectromètre FTIR. Nous avons aussi pu avoir une estimation quantitative de la diffusion. L’influence du désordre se voit tout d’abord sur la disparition progressive des anomalies de Rayleigh-Wood mais également par la redirection de l’énergie initialement diffractée vers la diffusion. La réflectivité spéculaire et l’absorption ne connaissent pas de variation notable sous l’effet du désordre. Les mesures préliminaires directes de l’absorption via un montage de mesure de l’émission thermique valident par ailleurs ce résultat.

Chapitre

4

Étude d'un réseau de sillons désordonnés

Sommaire

4.1 L'antenne sillon : un analogue du résonateur MIM	68
4.1.1 Principe de l'antenne sillon	68
4.1.2 Modèle analytique	69
4.1.3 Vecteur d'onde du sillon métal-isolant-métal	71
4.1.4 Résolution	72
4.1.5 Comparaison au résonateur MIM	76
4.2 Étude de réseaux de sillons désordonnés	77
4.2.1 Cas d'un réseau sub-longueur d'onde	77
4.2.2 Cas du réseau super-longueur d'onde : optimisation d'une surface diffusante	79
4.2.3 Étude de différentes distributions pseudo-aléatoires	81
4.3 Combinaisons de sillons	84
4.3.1 Étude du désordre dans des combinaisons de sillons	84
4.3.2 Désordre du motif bi-sillons	86
4.4 Conclusion	87

Dans la partie précédente, nous avons vu que le désordre introduit dans une métasurface d'antennes MIM provoquait une redistribution de l'énergie incidente vers la diffusion, alors qu'elle était absorbée ou diffractée dans le cas périodique. L'originalité de cette diffusion tient au fait qu'elle est limitée à une bande spectrale et à une polarisation; en dehors de ces conditions la métasurface se comporte principalement comme un miroir. La modélisation électromagnétique du comportement de ces ensembles de structures MIM, bien qu'unidimensionnels, est particulièrement chronophage car la taille du maillage évolue en conséquence. Dans ce chapitre, j'introduis un modèle semi-analytique permettant de décrire le comportement d'un résonateur analogue au MIM, le sillon. Ce modèle est adapté au cas d'un ensemble désordonné de sillons et permet l'étude de configurations plus complexes que précédemment pour un coût en temps calcul moindre. Dans ce chapitre, cette méthode est en premier lieu appliquée au même type de désordre que précédemment et on retrouve le même comportement de redirection de l'énergie incidente vers la diffusion. La méthode est également appliquée pour tester d'autres distributions spatiales, ainsi que pour l'optimisation de métasurface diffusante.

4.1 L'antenne sillon : un analogue du résonateur MIM

4.1.1 Principe de l'antenne sillon

Le résonateur qui est étudié dans cette partie est un sillon gravé dans une surface métallique. C'est un résonateur qui a été largement étudié dans la littérature pour sa capacité à absorber la lumière du visible à l'infrarouge^{[1][2][3][4]}. Le schéma de la structure est présentée en figure 4.1(a) et le spectre de réflectivité d'un agencement périodique ($p = 7\mu\text{m}$) de sillons est montré en figure 4.1(b) pour un sillon de dimensions $w = 0.23\mu\text{m}$ et $h = 2\mu\text{m}$. La lumière est en incidence normale et polarisée transverse magnétique. La période est sub-longueur d'onde, ce qui signifie qu'il n'y a pas diffraction de lumière, et l'épaisseur de la couche métallique basale est considérée comme suffisamment épaisse pour qu'il n'y ait pas de transmission. Comme dans le cas du MIM, la lumière est donc soit réfléchie spéculairement, soit absorbée. On note une absorption quasi-totale de la lumière à $\lambda = 10\mu\text{m}$, la résonance ayant un facteur de qualité $Q \approx 10$. Les cartes de l'intensité des champs électrique et magnétique sont montrées dans la Fig. 4.1(c-d) à la résonance. Les champs sont

¹J. LE PERCHEC et al. « Why metallic surfaces with grooves a few nanometers deep and wide may strongly absorb visible light ». In : *Physical Review Letters* 100.6 (2008), p. 66408.

²H.T. MIYAZAKI et al. « Thermal emission of two-color polarized infrared waves from integrated plasmon cavities ». In : *Applied Physics Letters* 92 (2008), p. 141114.

³P. BOUCHON et al. « Total funneling of light in high aspect ratio plasmonic nanoresonators ». In : *Applied Physics Letters* 98 (2011), p. 191109.

⁴F. PARDO et al. « Light Funneling Mechanism Explained by Magnetoelectric Interference ». In : *Physical Review Letters* 107.9 (2011), p. 93902.

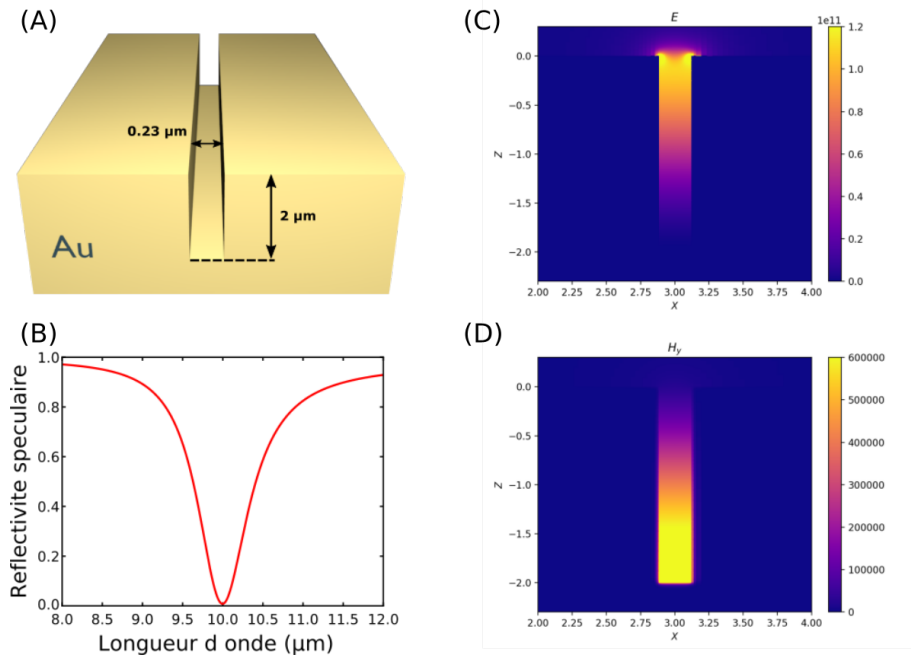


FIGURE 4.1 – (a) Schéma du résonateur sillon creusé dans une surface d'or. (b) Spectre de réflectivité du réseau périodique de sillons, optimisé pour absorber toute la lumière à $\lambda = 10 \mu\text{m}$. La lumière arrive en incidence normale et polarisée TM. Les dimensions du sillon $w = 0.23 \mu\text{m}$ et $h = 2 \mu\text{m}$, la période est fixée à $p = 7 \mu\text{m}$. (c-d) Cartes de l'intensité du champ électrique et magnétique à la longueur d'onde de résonance.

confinés dans la cavité optique avec un zéro du champ électrique en bas du sillon, imposée par la condition de continuité avec le miroir et métallique, et un maximum au niveau de l'entrée du sillon. Cette résonance est comparable à celle du résonateur MIM, et on formalise cette comparaison et les légères différences dans la section suivante.

4.1.2 Modèle analytique

Le modèle décrit ci-après permet de calculer la réponse optique d'un réseau 1D de sillons (permittivité ϵ_d) gravées dans une couche métallique (permittivité ϵ_m). Ce type de structure permet d'introduire des hypothèses simplificatrices qui diminuent significativement le temps de calcul. L'hypothèse principale est l'utilisation d'une formulation uni-modale pour le champ dans chaque sillon. Ceci a été utilisé précédemment pour les réseaux métalliques lamellaires 1D⁵ et ici nous étendons ces résultats aux réseaux multi-sillons dont les positions et les formes peuvent être choisies aléatoirement. Une illustration d'une telle structure est présentée sur la Fig. 4.2. Elle est constituée de n_G sillons, et chaque sillon est défini par sa position $x_c^{(j)}$, sa largeur $w^{(j)}$ et sa hauteur $h^{(j)}$. Ce motif

⁵P. LALANNE et al. « One-mode model and Airy-like formulae for one-dimensional metallic gratings ». In : *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics* 2 (2000), p. 48.

complexe est répété avec une période L_x . La lumière est incidente sur la structure avec un angle θ , un vecteur d'onde $k^{(0)}$ et une polarisation transverse magnétique. Dans ce qui suit, le terme d'évolution temporelle $e^{-i\omega t}$ n'est pas explicitement écrit, car tous les calculs sont effectués pour des champs monochromatiques. Les sillons ont des dimensions inférieures à la longueur d'onde et ne supportent pas de modes TE propagatifs, donc seul le cas TM est décrit dans ce qui suit.

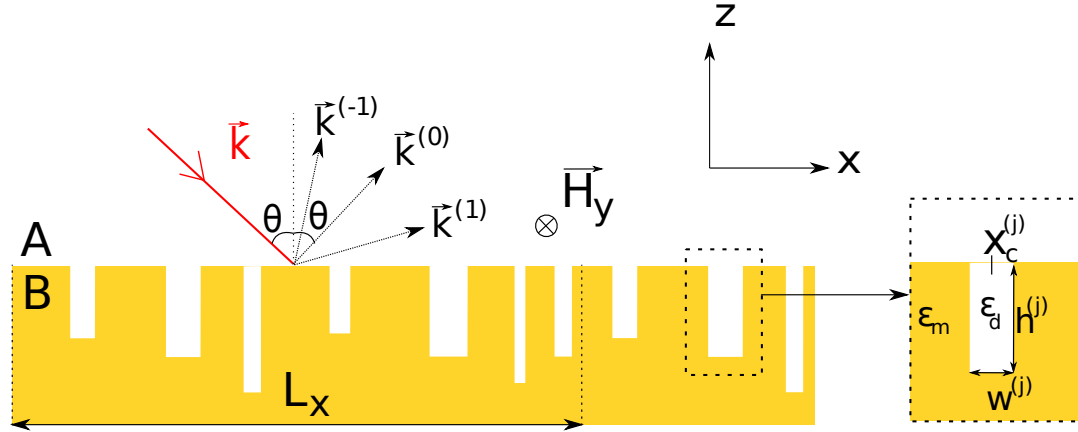


FIGURE 4.2 – Schéma d'une structure périodique à sillons multiples (période L_x). Chaque sillon est définie par sa position $x_c^{(j)}$, sa largeur $w^{(j)}$ et sa hauteur $h^{(j)}$. Les sillons sont gravées dans une couche métallique. Les ϵ_d et ϵ_m sont les permittivités à l'intérieur du sillon et de la couche métallique.

Avec cette formulation, pour des valeurs suffisamment grandes de $|n|$, $k_z^{(n)}$ est purement imaginaire. Cela correspond aux modes évanescents qui ne feront pas partie du champ réfléchi, mais qui prennent en compte des phénomènes physiques réels, tels que les plasmons de surface.

L'expression du champ magnétique à l'intérieur de chaque sillon (zone B de la Fig. 4.2) est simplifiée grâce à une formulation monomode⁶ qui repose sur trois hypothèses :

- ⊗ les largeurs des sillons sont suffisamment petites par rapport à la longueur d'onde pour qu'un seul mode de propagation existe,

$$\forall j \in [1, n_G], w^{(j)} \ll \frac{\lambda}{2\sqrt{\epsilon_d}} \quad (4.1)$$

- ⊗ les sillons sont suffisamment profonds par rapport à l'épaisseur de peau du métal d_m pour négliger la contribution des modes évanescents,

$$\forall j \in [1, n_G], h^{(j)} \gg d_m \quad (4.2)$$

⁶LALANNE et al., « One-mode model and Airy-like formulae for one-dimensional metallic gratings ».

4.1 L'antenne sillon : un analogue du résonateur MIM

- ⊗ les sillons sont suffisamment éloignées les unes des autres par rapport à l'épaisseur de peau du métal pour éviter un couplage direct entre deux sillons.

$$\forall j \in [2, n_G], x_c^{(j)} - \frac{w^{(j)}}{2} - x_c^{(j-1)} - \frac{w^{(j-1)}}{2} > d_m \quad (4.3)$$

Ensuite, le mode de propagation utilisé pour décrire le champ à l'intérieur du sillon (j) s'écrit comme suit :

$$H_{y,B}^{(j)}(x, z) = X_0^{(j)}(x) \left(A_0^{(j)} e^{ik_{z,d}^{(j)}(z+h^{(j)})} + B_0^{(j)} e^{-ik_{z,d}^{(j)}z} \right), \quad (4.4)$$

où $X_0^{(j)}(x) = \cos(k_{x,d}^{(j)}(x - x_c^{(j)}))$, et $A_0^{(j)}$ (resp. $B_0^{(j)}$) est l'amplitude du mode de propagation vers le haut (resp. vers le bas) avec les vecteurs d'onde associés $k_{z,d}^{(j)}$ et $k_{x,d}^{(j)}$.

Le champ magnétique dans le milieu supérieur (zone A de la Fig. 4.2) est décrit à l'aide d'un développement de Rayleigh :

$$H_{y,A}(x, z) = e^{i(k_x^{(0)}x - k_z^{(0)}z)} + \sum_{n \in \mathbb{Z}} R_n e^{i(k_x^{(n)}x + k_z^{(n)}z)} \quad (4.5)$$

où les R_n sont les amplitudes de chaque mode n réfléchi par la structure, et les vecteurs d'onde sont $k_x^{(n)} = k_x^{(0)} + \frac{2n\pi}{L_x}$ et $k_z^{(n)} = \sqrt{k_0^2 - (k_x^{(n)})^2}$.

Afin de calculer la réponse optique des structures à sillons, les amplitudes réfléchies R_n sont liées aux amplitudes des sillons $A_0^{(j)}$ et $B_0^{(j)}$ grâce aux relations de continuité du champ électromagnétique à chaque interface. De plus, les vecteurs d'onde $k_{z,d}^{(j)}$ et $k_{x,d}^{(j)}$ peuvent être exprimés en fonction de la largeur des sillons et des permittivités ϵ_d et ϵ_m .

4.1.3 Vecteur d'onde du sillon métal-isolant-métal

Le sillon métal-isolant-métal agit comme un guide d'ondes, dont le vecteur d'onde doit satisfaire la condition d'aller-retour le long de l'axe x :

$$(r_{d,m})^2 e^{2ik_{x,d}^{(j)}w^{(j)}} = 1 \quad (4.6)$$

où $r_{d,m}$ est le coefficient de réflexion TM entre le diélectrique à l'intérieur de la cavité et les parois métalliques. Avec l'hypothèse de la petite largeur de l'équation (4.1), l'équation (4.6) est simplifiée en :

$$\frac{k_{x,m}^{(j)}}{\epsilon_m} = \frac{k_{x,d}^{(j)}}{\epsilon_d} \left(i \frac{k_{x,d}^{(j)}w^{(j)}}{2} \right) \quad (4.7)$$

En utilisant la continuité du vecteur d'onde tangentiel $k_{z,d}^{(j)} = k_{z,m}^{(j)}$, l'Eq. (4.6) devient :

$$(k_{x,d}^{(j)})^2 \left[1 + (k_{x,d}^{(j)})^2 \left(\frac{\epsilon_m}{\epsilon_d} \right)^2 \frac{w^{(j)2}}{4} \right] = (\epsilon_d - \epsilon_m) k_0^2 \quad (4.8)$$

Puisque l'on peut vérifier que $|\epsilon_m| \gg |\epsilon_d|$ dans le domaine spectral optique, cette équation donne l'approximation suivante pour les vecteurs d'onde⁷:

$$\begin{cases} k_{x,d}^{(j)} = \sqrt{\epsilon_d} k_0 \sqrt{\frac{-2i}{w^{(j)} k_0 \sqrt{\epsilon_m}}} \\ k_{z,d}^{(j)} = \sqrt{\epsilon_d} k_0 \sqrt{1 + \frac{2i}{w^{(j)} k_0 \sqrt{\epsilon_m}}} \end{cases} \quad (4.9)$$

4.1.4 Résolution

Aux ouvertures du sillon, les champs électromagnétiques tangentiels (H_y et E_x) sont continus, et la dérivée $\frac{\partial_z H_y}{\epsilon}$ est continue puisque l'équation de Maxwell-Ampère conduit à $E_x = \frac{\partial_z H_y}{\omega \epsilon}$.

Ensuite, à l'interface entre un diélectrique et un métal, on utilise une condition d'impédance de surface⁸ pour éviter de calculer le champ dans la couche métallique. Cette condition s'écrit comme suit :

$$\partial_z H_{y,A}(x, z = 0) = \eta_A H_{y,A}(x, z = 0), \quad (4.10)$$

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

Le but de ce modèle est de réduire tous les calculs à un simple système linéaire sur les R_n , $A_0^{(j)}$ et $B_0^{(j)}$. La première étape de la résolution consiste à exprimer chaque amplitude du développement de Rayleigh R_n dans l'équation (4.5) en fonction des amplitudes du mode de propagation dans chaque sillon $A_0^{(j)}$ et $B_0^{(j)}$. On le fait en projetant le champ $H_{y,A}$ sur un mode réfléchi n . Pour cela, on introduit les notations suivantes :

$$\beta_{\pm}^{(n)} = 1 \pm \frac{i k_z^{(n)}}{\eta_A}, \quad \alpha_{\pm}^{(j)} = 1 \pm \frac{i k_{z,d}^{(j)} \epsilon_A}{\eta_A \epsilon_d}, \quad \gamma^{(j)} = \frac{i k_{z,d}^{(j)} - \eta_B}{i k_{z,d}^{(j)} + \eta_B}.$$

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

⁷ COLLIN, PARDO et PELOUARD, « Waveguiding in nanoscale metallic apertures ».

⁸ R.A. DEPINE et J.M. SIMON. « Surface impedance boundary condition for metallic diffraction gratings in the optical and infrared range ». In : *Journal of Modern Optics* 30.3 (1983), p. 313-322. ISSN : 0950-0340.

$$I^{(n,j)} = \int e^{ik_x^{(n)} x} dx \quad (4.11)$$

$$(4.12)$$

$$(4.13)$$

$$Int^{(n,j)} = \int \cos(k_{x,d}^{(j)}(x - x_c^{(j)})) e^{-ik_x^{(n)} x} dx \quad (4.14)$$

$$(4.15)$$

$$K^{(j)} = \int \cos(k_{x,d}^{(j)}(x - x_c^{(j)})) dx \quad (4.16)$$

Ensuite, la condition d'impédance de surface au fond du sillon (j) lie l'amplitude du mode de propagation vers le bas au mode de propagation vers le haut à l'intérieur du sillon :

$$B_0^{(j)} = A_0^{(j)} \Upsilon^{(j)} e^{-ik_{z,d}^{(j)} h^{(j)}}. \quad (4.17)$$

Ainsi, en projetant le champ $H_{y,A}$ sur le mode $e^{-ik_x^{(n_0)} x}$ et en utilisant les conditions d'interface, on obtient :

$$R_{n_0} = -\frac{\beta_+^{(0)}}{\beta_-^{(0)}} \delta_0^{n_0} + \frac{1}{L_x \beta_-^{(n_0)}} \sum_{j=1}^{n_G} A_0^{(j)} \left(\alpha_-^{(j)} e^{ik_{z,d}^{(j)} h^{(j)}} + \alpha_+^{(j)} \Upsilon^{(j)} e^{-ik_{z,d}^{(j)} h^{(j)}} \right) Int^{(n_0,j)} \quad (4.18)$$

avec δ étant le symbole de Kronecker.

La deuxième étape de la résolution consiste à intégrer les conditions d'interface sur l'ouverture du sillon (j_0), pour exprimer une amplitude de mode de sillon donnée $A_0^{(j_0)}$ en fonction de l'amplitude de Rayleigh R_n :

$$K^{(j_0)} A_0^{(j_0)} \cdot \left(e^{ik_{z,d}^{(j_0)} h^{(j_0)}} + \Upsilon^{(j_0)} e^{-ik_{z,d}^{(j_0)} h^{(j_0)}} \right) = I^{(0,j_0)} + \sum_{n \in \mathbb{Z}} R_n I^{(n,j_0)} \quad (4.19)$$

En injectant l'Eq. (4.18) dans l'Eq. (4.19), on obtient un système linéaire sur les amplitudes $A_0^{(j)}$ qui peut être écrit sous forme de matrice :

$$M_A \mathbf{A}_0 = \mathbf{I}_A \quad (4.20)$$

avec les expressions suivantes pour les coefficients de la matrice et du vecteur :

$$(M_A)_{j_1, j_2} = \delta_{j_2}^{j_1} K^{(j_1)} \left(e^{ik_{z,d}^{(j_1)} h^{(j_1)}} + \gamma^{(j_1)} e^{-ik_{z,d}^{(j_1)} h^{(j_1)}} \right) - \sum_{n \in \mathbb{Z}} \frac{I^{(n, j_1)} \text{Int}^{(n, j_2)}}{L_x \beta_-^{(n)}} \left(\alpha_-^{(j_2)} e^{ik_{z,d}^{(j_2)} h^{(j_2)}} + \alpha_+^{(j_2)} \gamma^{(j_2)} e^{-ik_{z,d}^{(j_2)} h^{(j_2)}} \right) \quad (4.21)$$

$$(I_A)_{j_1} = I^{(0, j_1)} \left(1 - \frac{\beta_+^{(0)}}{\beta_-^{(0)}} \right) \quad (4.22)$$

avec j_1 l'indice de ligne et j_2 l'indice de colonne.

Pour résoudre ce système, la somme de tous les modes réfléchis est tronquée au niveau des modes $\pm N$ (N doit être suffisamment grand pour que tous les modes de propagation, *ie* les modes tels que $\text{Im}(k_z^{(n)}) = 0$, soient calculés). Les valeurs des amplitudes de sillon $A_0^{(j)}$ et des amplitudes de Rayleigh R_n sont alors trouvées, et la réflectivité globale de la surface peut être trouvée comme la somme de l'énergie dans chaque mode de propagation :

$$R_{tot} = \sum_{n=-N}^N |R_n|^2 \frac{\Re(k_z^{(n)})}{k_z^{(0)}} \quad (4.23)$$

Ce modèle est utilisé pour calculer la réponse optique d'un réseau de sillons et est comparé à un solveur exact des équations de Maxwell, la méthode modale B-spline (BMM)^[9]. Le sillon a des dimensions sub-longueur d'onde avec une largeur de $w^{(1)} = 0.25 \mu\text{m}$, une profondeur de $h^{(1)} = 3 \mu\text{m}$ et est répété avec une période de $L_x = 6 \mu\text{m}$. L'or est utilisé pour les parties métalliques et sa permittivité est modélisée selon un modèle de Drude en accord avec les données expérimentales dans le domaine de l'infrarouge^[10] : $\epsilon_{Au}(\lambda) = 1 - 1/(\lambda_p/\lambda(\lambda_p/\lambda + i\gamma))$ avec $\lambda_p = 159 \text{ nm}$ et $\gamma = 0.0075$. Ainsi, l'épaisseur de peau du métal d_m est de l'ordre de 20 nm dans le domaine de l'infrarouge moyen.

La figure 4.3(b) montre les spectres de réflexion spéculaire calculés à l'aide du modèle analytique (courbe pointillée bleue) et de l'outil BMM (courbe rouge) pour la structure représentée dans la moitié gauche de la figure 4.3(a). La lumière est reçue à une incidence normale et avec une polarisation TM. Comme prévu, cette structure présente des résonances de Fabry-Perot à la longueur d'onde fondamentale $\lambda_1 = 14,3 \mu\text{m}$ et à la première harmonique impaire $\lambda_3 = 4,65 \mu\text{m}$. La position et la profondeur des résonances sont calculées avec une précision satisfaisante, ce qui confirme que la réponse optique de la structure est principalement déterminée par le mode fondamental du sillon. La figure 4.3(c) montre les spectres de réflexion spéculaire calculés à l'aide du modèle analytique (courbe pointillée bleue) et de l'outil BMM (courbe rouge) pour la structure représentée

⁹BOUCHON et al., « Fast modal method for subwavelength gratings based on B-splines formulation ».

¹⁰David W LYNCH et WR HUNTER. « Comments on the optical constants of metals and an introduction to the data for several metals ». In : *Handbook of optical constants of solids*. Elsevier, 1997, p. 275-367.

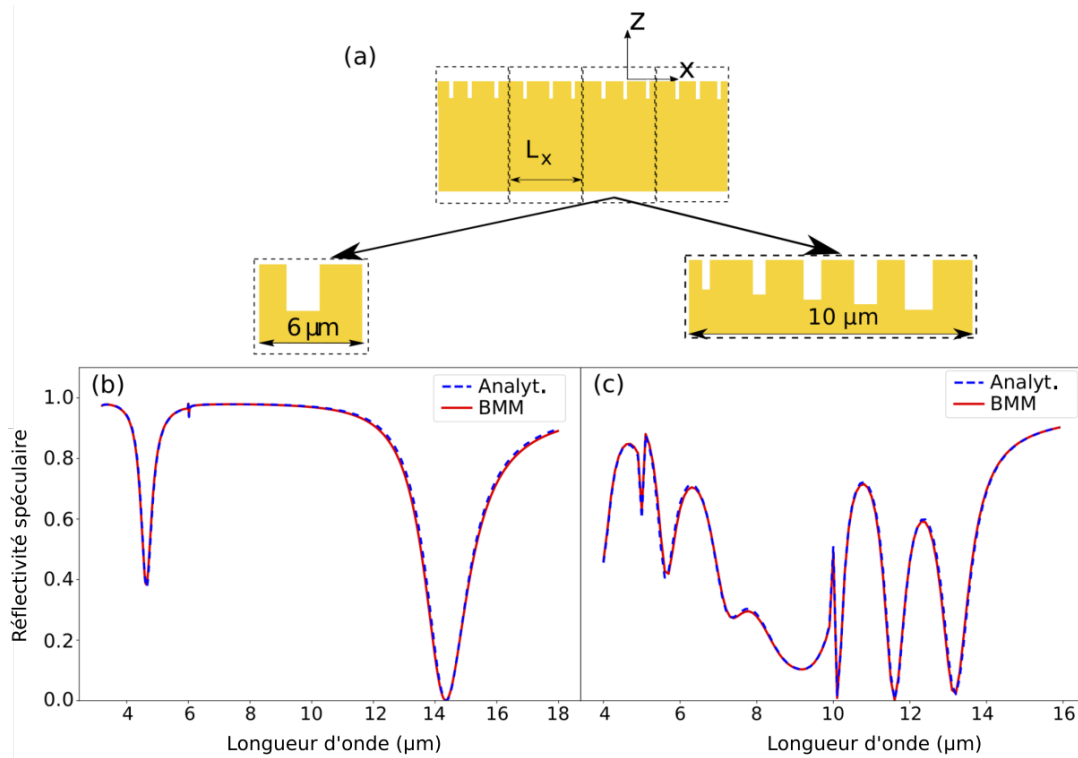


FIGURE 4.3 – Étude de la réflexion spéculaire de deux structures périodiques différentes, *ie*, un réseau à un sillon et un réseau à cinq sillons, comme indiqué dans (a). (b) Comparaison entre la réflexion spéculaire donnée par le modèle analytique et un outil BMM utilisé comme référence : La cellule unitaire a une taille de $6 \mu\text{m}$ et consiste en un seul sillon de dimensions $w = 0.25 \mu\text{m}$ et $h = 3 \mu\text{m}$ (c) Même comparaison pour une cellule unitaire qui a une taille de $10 \mu\text{m}$ et consiste en 5 sillons de profondeurs et de largeurs différentes, telles que $w^{(j+1)} > w^{(j)}$ et $h^{(j+1)} > h^{(j)}$, avec $w^{(1)} = 100 \text{ nm}$, $w^{(5)} = 500 \text{ nm}$, $h^{(1)} = 1 \mu\text{m}$, $h^{(5)} = 2,6 \mu\text{m}$.

dans la moitié droite de la figure 4.3(a). La structure est beaucoup plus complexe que celle de la Fig. 4.3(b), et sa réponse optique est donc beaucoup moins évidente. Cependant, les résonances de Fabry-Perot correspondant aux sillons les plus profonds sont visibles à $\lambda = 10,1 \mu\text{m}$, $\lambda = 11,8 \mu\text{m}$ et $\lambda = 13,3 \mu\text{m}$. Une fois encore, malgré la complexité de cette structure, le modèle analytique et l'outil BMM sont en parfait accord, ce qui confirme que la réponse optique de la structure est principalement déterminée par le mode fondamental du sillon.

Ce modèle analytique donne donc des résultats précis en termes de spectre de réflexion pour les réseaux de sillons. Son principal avantage est un gain important en temps de calcul pour des structures plus complexes. Ainsi, avec un processeur à 8 cœurs (Intel Xeon 3.6 GHz) et 16 Go de RAM, le calcul de la réponse d'un sillon à une longueur d'onde donnée nécessite 22 ms (resp. 40 ms) avec le modèle analytique (resp. BMM), mais si le nombre de sillons est porté à 20, le temps de calcul devient 3.1 s (resp. 18.1 s) avec le mo-

dèle analytique (resp. BMM). Lorsque l'on calcule la réponse optique de grands réseaux désordonnés, ce gain de vitesse devient encore plus significatif.

4.1.5 Comparaison au résonateur MIM

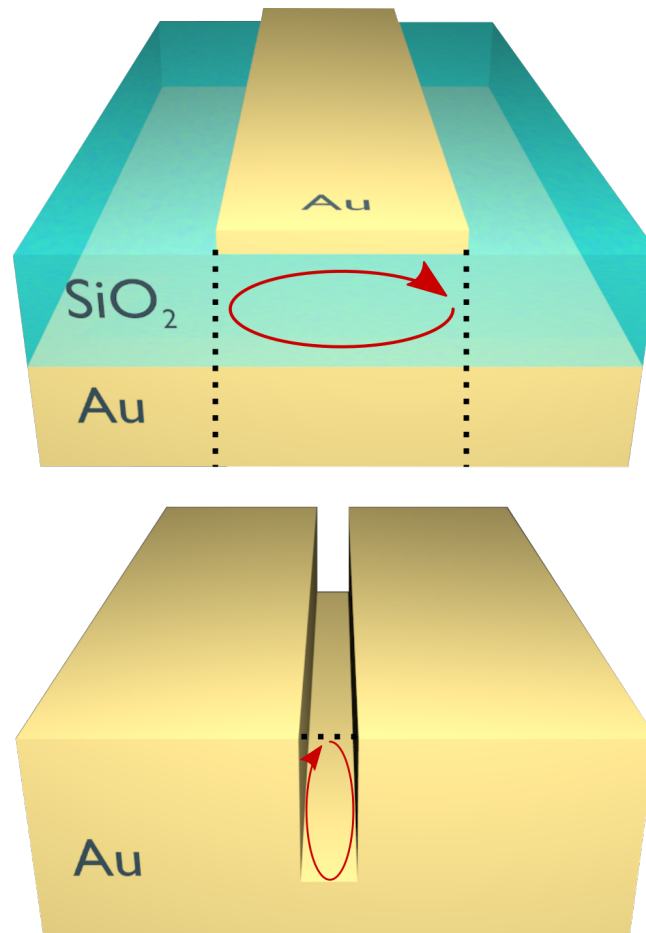


FIGURE 4.4 – (a) Comparaison structurelle des résonateurs MIM et sillon. L'épaisseur du diélectrique dans le MIM joue le même rôle que la largeur du sillon, tandis que la demi-largeur du MIM joue un rôle équivalent à la profondeur du sillon. (b) Spectres de réflectivité pour un sillon et un MIM de dimensions comparables : $h_{\text{sillon}} = \frac{w_{\text{MIM}}}{2} = 2\mu\text{m}$ et $w_{\text{sillon}} = h_{\text{MIM}} = 0.23\mu\text{m}$. Les deux structures sont remplies du même matériau diélectrique $n = 1.4$. La période est fixée à $p = 7\mu\text{m}$ pour les deux structures.

La figure 4.4 illustre les deux structures MIM ruban et sillon à la fois structurellement et en comparant deux spectres dans des conditions similaires. Les longueurs d'onde de résonance des deux structures sont très proches, la différence étant liée aux différences de conditions de phase aux interfaces de la cavité Fabry-Perot. En prenant en compte les mêmes conditions à ces interfaces, il a été montré que les résonances se produisaient à la même longueur d'onde¹¹. Dans le résonateur sillon, la longueur d'onde de résonance

¹¹KOECHLIN et al., « Analytical description of subwavelength plasmonic MIM resonators and of their com-

4.2 Étude de réseaux de sillons désordonnés

va être piloté par la profondeur du sillon, ainsi que par l'indice effectif dans la cavité. Cet indice effectif dépend naturellement de l'indice de réfraction du matériau, mais aussi du couplage des plasmons entre les deux interfaces métalliques du sillons, et qui dépend principalement de la largeur du sillon. Dans la plupart des cas, ce terme reste correctif, sauf lorsqu'on va considérer des nanogaps¹².

4.2 Étude de réseaux de sillons désordonnés

Dans cette section je vais présenter une étude théorique sur des ensembles de sillons désordonnés, à la manière du chapitre 2 pour les MIM.

4.2.1 Cas d'un réseau sub-longueur d'onde

Prenons ici le cas d'un réseau sub-longueur d'onde, donc $p < \lambda_{res}$. Sur un tel réseau, à la longueur d'onde de résonance il n'y a pas de diffraction. la figure 4.5 montre le spectre de réflectivité simulé pour la réflectivité spéculaire et la diffusion dans le cas ordonné et désordonné. Les temps de calculs étant beaucoup plus courts qu'avec la méthode BMM, il nous est possible d'obtenir ces courbes avec un ensemble de 50 sillons en seulement quelques minutes. On remarque de façon notable, un pic de diffusion à λ_{res} ainsi qu'au passage d'une absorption totale de 100% dans le cas ordonné à une absorption de 40% dans le cas désordonné. La diffusion est elle à 40% et le spéculaire à 20%.

De façon générale ce que l'on peut retenir c'est que pour un réseau sub-longueur d'onde, le désordre induit une diffusion très importante au détriment de l'absorption et de la réflectivité spéculaire. Contrairement au cas expérimental du MIM, ici l'absorption subit une décroissance notable.

La figure 4.6 présente l'évolution des efficacités des différentes composantes du bilan d'énergie. Comme prédit par la figure précédente, on voit en effet une diminution très forte de l'absorption au profit de la diffusion et de la réflectivité spéculaire. Les barres d'erreurs assez larges permettent d'entrevoir la possibilité de sélectionner des distributions en vue d'une optimisation de la diffusion.

bination »

¹²Ludivine EMERIC et al. « Critical coupling and extreme confinement in nanogap antennas ». In : *Optics Letters* 44.19 (2019), p. 4761-4764.

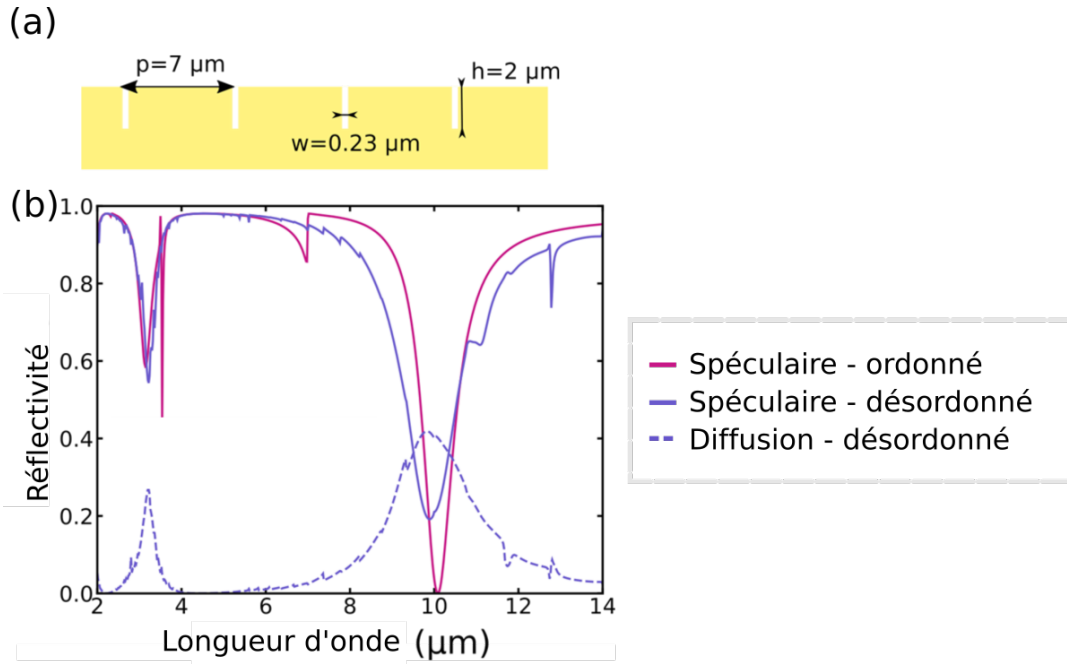


FIGURE 4.5 – (a) Schéma du sillon (période $p = 7 \mu\text{m}$, largeur $w = 230 \text{ nm}$ et profondeur $h = 2 \mu\text{m}$). (b) Spectres de réflectivité spéculaire pour le réseau ordonné (courbe rouge), et désordonné (courbe pleine bleue). Le spectre de diffusion dans le cas désordonné est également montrée (courbe pointillée bleue).

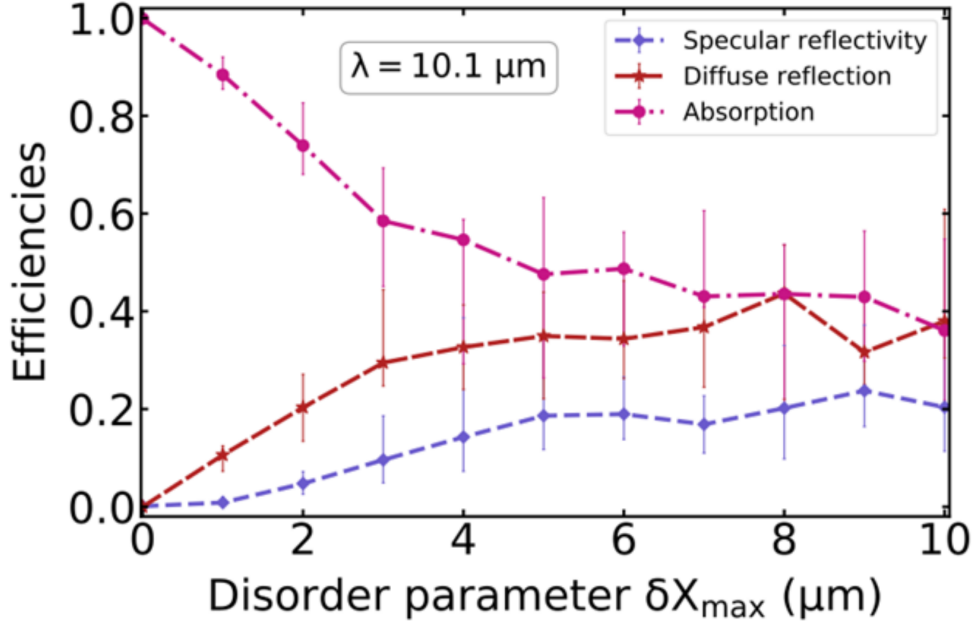


FIGURE 4.6 – Efficacité de réflectivité spéculaire (bleue), d'absorption (rose) et de diffusion (rouge) en fonction du paramètre de désordre δX_{max} à la longueur d'onde de résonance $\lambda = 10.1 \mu\text{m}$. Pour chaque paramètre de désordre, dix distributions ont été générées et leurs distributions sont données par les barres d'erreurs.

4.2.2 Cas du réseau super-longueur d'onde : optimisation d'une surface diffusante

La partie qui suit se focalise sur le cas super-longueur d'onde, c'est à dire le cas où la période p du réseau est plus grande que la longueur d'onde de résonance. Ainsi à λ_{res} il y aura de la diffraction. Le réseau que nous avons choisi est présenté figure 4.7(a). Les propriétés géométriques du sillon, notamment sa largeur ne garantissent pas l'hypothèse mono-mode sur laquelle repose le modèle analytique. Il sera nécessaire de faire une comparaison avec le code BMM pour valider les prochains résultats. la longueur d'onde de résonance de la structure se situe à $4.56\mu\text{m}$ et présente, contrairement à la majorité des cas que nous avons étudié jusqu'ici, une largeur de pic beaucoup plus grande. Il y a toute une zone spectrale comprise entre λ_{res} et p pour laquelle la diffraction concentre la majorité de l'énergie. Concrètement cela signifie que cette structure, lorsqu'elle es ordonnée et illuminée à sa longueur d'onde de résonance, diffracte toute l'énergie incidente. Une telle structure représente une fort potentiel de diffusion et c'est ce que l'on constate sur la figure 4.7(b), la diffusion atteint un pic au delà de 90% ce qui en fait une structure très dissipative car l'absorption reste faible (moins de 20% dans la majorité des cas du tirage).

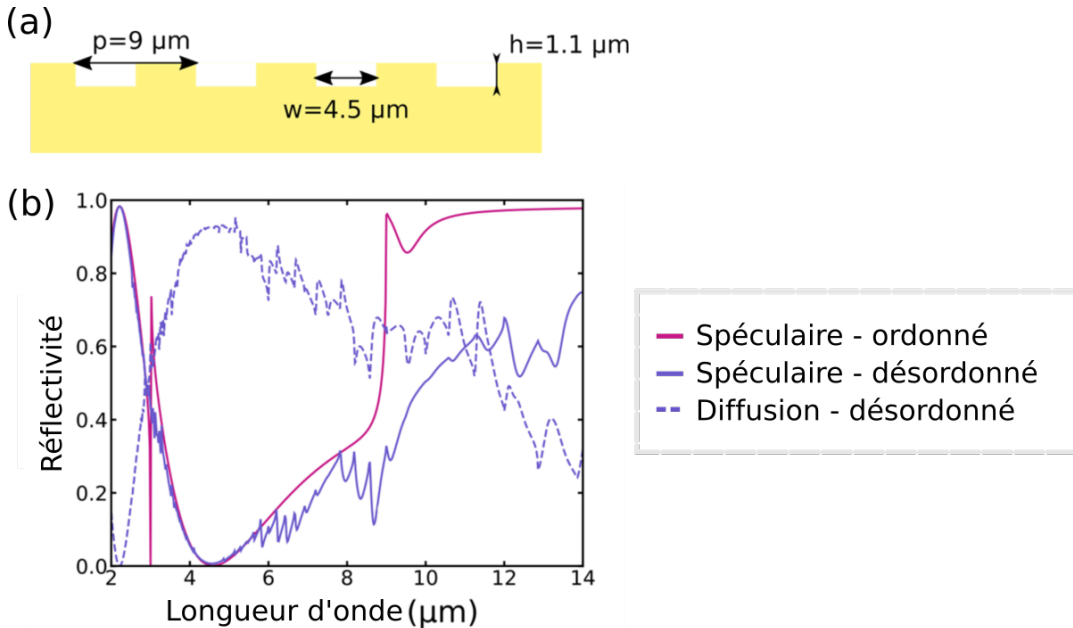


FIGURE 4.7 – (a) Schéma du sillon (période $p = 9\mu\text{m}$, largeur $w = 4.5\mu\text{m}$ et profondeur $h = 1.1\mu\text{m}$). (b) Spectres de réflectivité spéculaire pour le réseau ordonnée (courbe rouge), et désordonné (courbe pleine bleue). Le spectre de diffusion dans le cas désordonné est également montrée (courbe pointillée bleue).

La figure 4.8 nous donne l'évolution des contributions énergétiques à λ_{res} en fonction du paramètre de désordre δX_{max} , sur laquelle on voit que certaines distribution at-

teignent un taux de diffusion supérieur à 90%. Ainsi cette structure à la particularité de ne fonctionner qu'en réflexion, c'est à dire que l'absorption reste faible et que la majorité de l'énergie incidente se répartit dans la diffraction (cas ordonné) et dans la diffusion (cas désordonné).

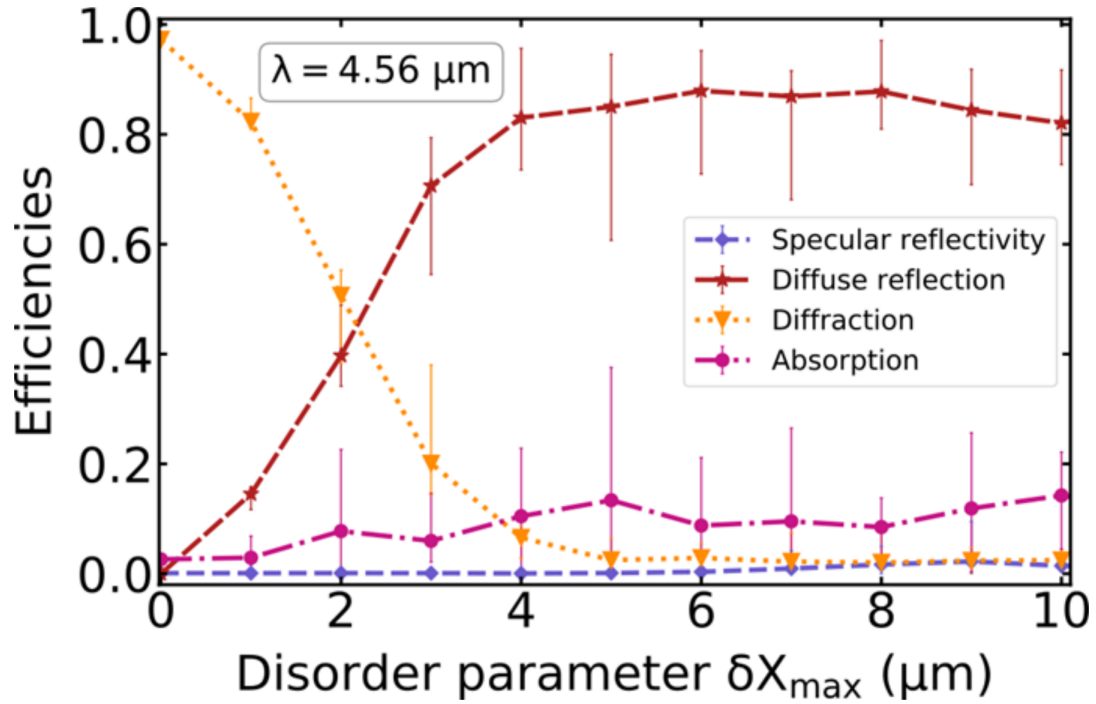


FIGURE 4.8 – Efficacité de réflectivité spéculaire (bleue), d'absorption (rose) et de diffusion (rouge) en fonction du paramètre de désordre $\delta X_{\max}$ à la longueur d'onde de résonance $\lambda = 10.1 \mu\text{m}$. Pour chaque paramètre de désordre, dix distributions ont été générées et leurs distributions sont données par les barres d'erreurs.

4.2.3 Étude de différentes distributions pseudo-aléatoires

La répartition spatiale de N points sur un segment constitue un sujet mathématique à part entière. Le problème usuel avec le désordre unidimensionnel est la caractérisation de la notion de désordre. Prenons un réseau 1D constitué de N points. Si l'on choisit de situer les points aléatoirement sur le segment un par un, on risque de se retrouver avec de larges zones vides et également des zones très denses. Dans notre cas on souhaite conserver une certaine densité linéique, c'est pourquoi ce type de désordre aléatoire n'est pas envisageable. Si l'on souhaite une distribution mieux équilibrée il faut se tourner vers ce que l'on appelle des suites à discrédance faible. Mathématiquement la discrédance d'un ensemble de points $P = \{x_1, \dots, x_n\}$ est définie comme suit :

$$D_N(P) = \sup_{B \in \mathcal{J}} \left| \frac{A(B; P)}{N} - \lambda_s(P) \right| \quad (4.24)$$

où λ_s est la mesure de Lebesgue de dimension s , elle correspond à la longueur en dimension 1, à la surface en dimension 2 et au volume en dimension 3. $A(B; P)$ est le nombre de points de P appartenant à B , $\mathcal{J}$ est l'ensemble des pavés de dimension s .

Dans le cadre de ce manuscrit nous ne développerons pas tous les aspects mathématiques sous-jacents et allons nous limiter au constat suivant : la discrédance est une mesure de la plus forte (ou plus faible) densité de points. Une forte discrédance implique qu'il y a soit une grande zone d'espace vide, soit une zone qui concentre une forte densité de points. Un faible écart, lui, signifie qu'il n'y a ni l'un ni l'autre, et que les points sont plus ou moins bien répartis.

exemple de suites

Les suites uniformes La façon la plus intuitive d'évoquer le désordre est de prendre aléatoirement n points dans un segment $[a, b]$.

Les suites périodiques perturbées Il s'agit ici de la méthode de désordre que j'ai utilisé au cours de ma thèse : partant d'un réseau ordonné, on fixe autour de chaque point un intervalle dans lequel la position du point sera redéfinie suivant une loi uniforme. Statistiquement, plus cet intervalle est grand plus la suite s'écarte d'une suite ordonnée.

Les suites de nombres irrationnels Les nombres irrationnels sont des nombres qui ne peuvent pas s'écrire sous la forme d'une fraction $\frac{a}{b}$, où a et b sont deux entiers relatifs avec b non nul. Notons q' un nombre irrationnel, ce peut être π , le nombre d'or $\phi = \frac{1+\sqrt{5}}{2}$ ou encore $\sqrt{2}$. Il est possible de générer une suite à discrédance faible à partir de tels nombres en commençant par choisir un nombre arbitraire auquel on va ajouter q' , le résultat est

ensuite pris modulo 1. Pour obtenir le point suivant, nous ajoutons au point précédent q' de nouveau et on garde le résultat de la somme modulo 1, ce sera notre second point et ainsi de suite.

La suite de Van der Corput La suite de Van Der Corput est également une suite à discrétion faible, elle a été introduite en 1935 par Van der Corput¹³. Elle consiste à convertir l'indice i (dans la numérotation) d'un point dans une base B : B^i , puis de considérer la somme du développement en changeant le coefficient B^i par $B^{-(i+1)}$. Par exemple en base 2, 8 s'écrit $8 = 0 * 1 + 0 * 2 + 0 * 2^3 + 1 * 2^3$, soit 1000 en binaire. Ensuite on réécrit la somme :

$$VdC_2(8) = 0 * \frac{1}{2^1} + 0 * \frac{1}{2^2} + 0 * \frac{1}{2^3} + 1 * \frac{1}{2^4} = \frac{1}{16} \quad (4.25)$$

Ainsi l'indice 8 dans la séquence de Van der Corput s'écrit $\frac{1}{16} = 0.0625$. On peut tracer le tableau des valeurs de la séquence de Van Der Corput en base 2 pour les dix premiers chiffres :

indice	1	2	3	4	5	6	7	8	9
VdC_2	0.5	0.25	0.75	0.125	0.625	0.375	0.875	0.0625	0.5625

TABLEAU 4.1 – Premiers termes de la suite de Van der Corput en base 2

La figure 4.9 illustre ces quelques suites mentionnées avec 20 points. L'idée est maintenant de voir où notre "désordre" se situe par rapport à ces suites.

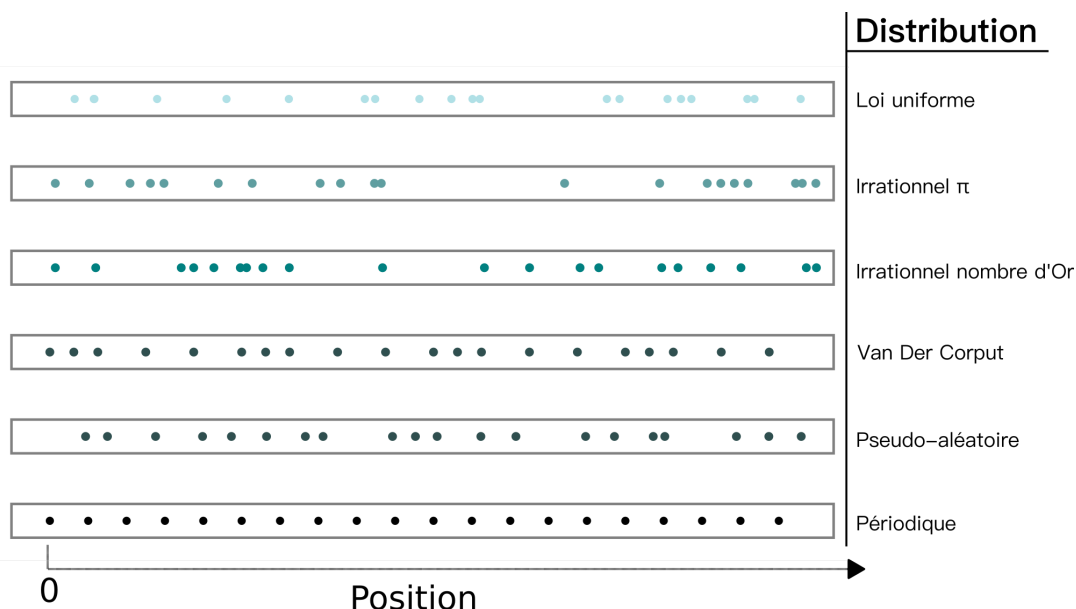


FIGURE 4.9 – Illustration de différentes distributions unidimensionnelles de 20 points.

¹³Johannes VAN DER COPUT. « Verteilungsfunktionen i & ii ». In : *Nederl. Akad. Wetensch. Proc.* T. 38. 1935, p. 1058-1066.

4.2 Étude de réseaux de sillons désordonnés

Les premiers résultats des simulations montrent que le désordre que nous avons utilisé, de type "périodique perturbé" s'avère aussi efficace que les suites à discrédances faibles en ce qui concerne le taux de diffusion en réseau désordonné.

4.3 Combinaisons de sillons

Dans la section qui suit nous allons voir le comportement d'une structure diffractante composée de deux types de sillons, la structure globale aura donc deux longueurs d'ondes de résonance. C'est une étude préliminaire qui nous permettra d'entrevoir la possibilité de générer une structure multi-sillons avec une large plage spectrale d'absorption et de diffusion.

4.3.1 Étude du désordre dans des combinaisons de sillons

Nous avons vu dans la section précédente le comportement d'un réseau de sillons désordonné. nous avons vu qu'il était possible d'atteindre des valeurs de diffusion très importants, jusqu'à 90%. Considérons maintenant un réseau dont le motif élémentaire est un combinaison de deux sillons, chaque sillon ayant une longueur d'onde spécifique comme schématisé sur la figure 4.10. Dans les deux cas, le réseau est diffractant à λ_{res} .

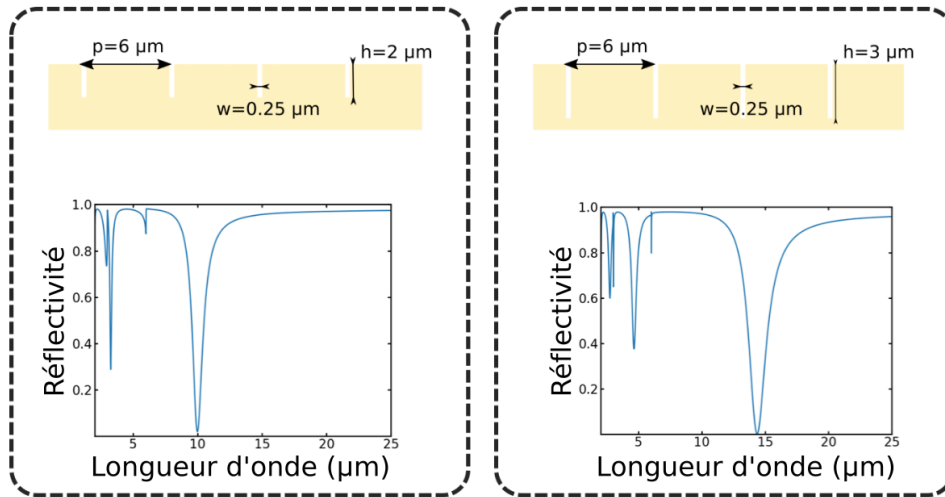


FIGURE 4.10 – Spectres de réflectivité spéculaire pour deux réseaux de sillons de profondeurs différentes, tous deux diffractants à leurs longueurs d'onde de résonance.

Influence de l'écart entre le bi-sillon

Les effets de couplage lorsque les sillons sont très proches n'étant pas négligeables, il est nécessaire de choisir une valeur pour l'écart entre les deux qui puisse permettre de s'affranchir des effets de couplage. cela est nécessaire dans notre étude pour ne pas compliquer l'interprétation. Nous constatons qu'au delà de $0.1 \mu\text{m}$ les effets de couplages peuvent être négligeables. Nous allons donc choisir comme valeur d'écart $e_{bi-sillon} = 2 \mu\text{m}$.

Spectre de diffusion de la structure bi-sillon

Dans les paragraphes qui suivent, on se place dans le cas d'un désordre maximal, c'est à dire à δX_{max} tel que la diffusion soit maximale. La figure 4.11 présente la superposition des spectres de réflectivité de chaque sillon, du réseau bi-sillon, ainsi que le spectre de diffusion pour chaque sillon c'est à dire en désordonnant chacun son tour un des réseaux (ie celui correspondant à chaque profondeur).

Nous constatons, comme dans la section précédente, un pic de diffusion à λ_{res_1} et λ_{res_2} . Ces pics sont spectralement fins et indépendants les uns des autres. C'est à dire que désordonner un des deux réseaux n'influe pas sur les propriétés de diffusion et d'absorption sur l'autre.

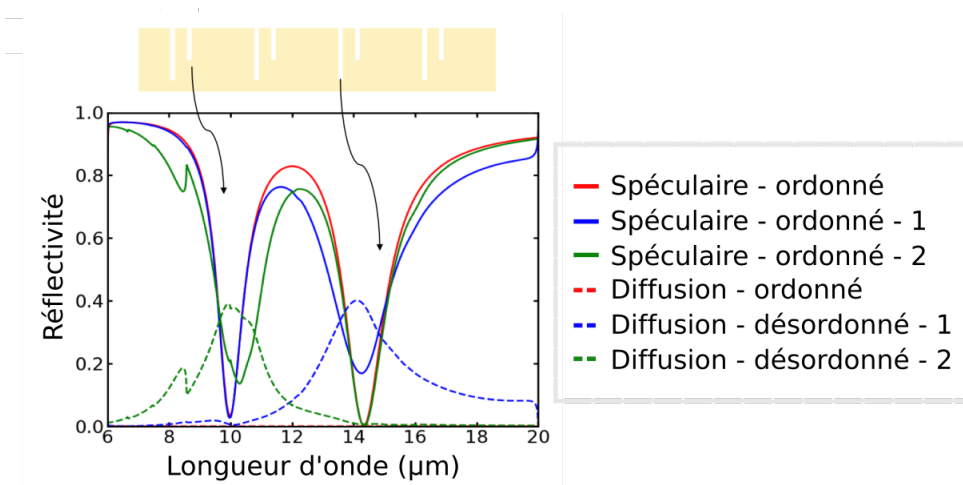


FIGURE 4.11 – Spectres de réflectivité et de diffusion pour un réseau de bi-sillons. En traits pleins, la courbe rouge en trait représente le spectre de réflectivité du réseau bi-sillon ordonné, en bleu celle en désordonnant uniquement le réseau de sillons le plus profond et en vert en désordonnant uniquement celui qui possède une longueur d'onde de résonance $\lambda_{res} = 10.1 \mu\text{m}$. En pointillés, les spectres de diffusion pour ces mêmes configurations

4.3.2 Désordre du motif bi-sillons

Si l'on choisi de désordonner les deux sillons, nous obtenons un spectre de diffusion composé des deux pics de diffusion constatés précédemment avec une valeur non nulle de diffusion entre les deux longueurs d'ondes de résonance (courbe en noire pointillés sur la figure 4.12). le pic de diffusion à $\lambda_{res1} = 10.1\mu\text{m}$ est même plus grand en intensité que celui du cas où seul le réseau résonant à cette longueur d'onde est désordonné.

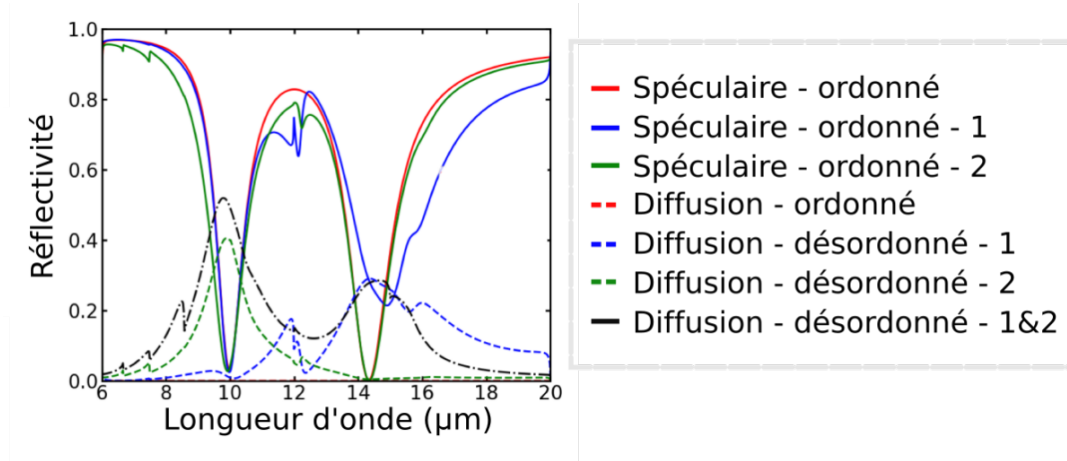


FIGURE 4.12 – Spectres de réflectivité et de diffusion pour un réseau de bi-sillons. En traits pleins, la courbe rouge en trait représente le spectre de réflectivité du réseau bi-sillon ordonné, en bleu celle en désordonnant uniquement le réseau de sillons le plus profond et en vert en désordonnant uniquement celui qui possède une longueur d'onde de résonance) $\lambda_{res} = 10.1\mu\text{m}$. En pointillés, les spectres de diffusion pour ces mêmes configurations et enfin en pointillés noirs, le spectre de diffusion dans le cas d'un désordre des deux sous-réseaux.

Ce spectre de diffusion large constitue la brique de base pour des structures diffusantes à large bande si l'on décide d'étendre ce résultat non pas avec deux sillons mais plusieurs sillons aux longueurs d'ondes très proches.

4.4 Conclusion

Ce dernier chapitre avait pour étude l'antenne sillon. Nous avons proposé un code de simulation reposant sur une résolution directe en faisant l'approximation mono-mode et en se basant sur un développement de Rayleigh pour la forme de l'onde. Suite à cela nous avons été en mesure de réaliser des simulations moins gourmandes en temps. Elle nous ont permis de proposer une métasurface extrêmement diffusante en partant d'une structure dont la majorité de l'énergie incidente se retrouvait dans les angles de diffraction. Suite à cela, nous avons introduit le motif bi-sillon. Il s'agit de choisir deux antennes sillon, aux résonances différentes. Nous avons étudié leur comportement désordonné d'abord séparément puis ensemble. Cela nous a permis de constater qu'avec deux sillons nous avons déjà une plage de fréquence large dans laquelle la diffusion est importante. Enfin, nous avons ouvert la porte à une structure multi-sillons pour généraliser le résultat précédent et choisir la gamme spectrale de la métasurface diffuseuse.

Conclusion

Au cours de cette étude j'ai exploré les propriétés optiques en réflexion, dans la bande 2 de l'infrarouge, de métasurfaces composées d'un ensemble de nanoantennes désordonnées. D'une part parce que dans la littérature des articles traitant des ensembles désordonnés ne tiennent pas compte de la diffusion et ceci est indispensable lorsque l'on considère des structures désordonnées. Par ailleurs, plus en aval, plusieurs groupes travaillent sur le camouflage et, a minima, on ne peut pas considérer les systèmes ordonnés puisqu'ils conservent une signature spectrale due à la périodicité.

Pour cela j'ai proposé (chapitres 2 et 3) un travail théorique et expérimental pour étudier la diffusion sur les structures 1D. L'étude théorique repose sur BMM (B-spline Modal Method), une méthode modale de résolution des équations de Maxwell pour une structure multi-couches unidimensionnelle. L'antenne MIM présente deux caractéristiques importantes, elle donne lieu à une résonance spectralement sélective et permet l'exaltation du champ électromagnétique dans un volume sub-longueur d'onde. Grâce à l'outil de simulation et après avoir présenté les caractéristiques optiques d'une antenne MIM, j'ai pu étudier le comportement spectral d'une métasurface 1D d'antennes, notamment sa diffusion. D'abord lorsque l'agencement des antennes est périodique puis en introduisant progressivement du désordre. Cette section théorique a été suivie d'une caractérisation expérimentale validant les résultats des simulations numériques (chapitre 3). La caractérisation c'est principalement faite au moyen d'un spectromètre à transformée de Fourier et valide l'approche de discrétisation de la diffusion sur un ensemble d'ordres diffractés.

La structure désordonnée 1D présente ainsi plusieurs originalités, d'une part elle ne diffuse la lumière que dans le plan d'incidence, la raison vient du fait que le désordre ne rajoute pas de vecteur d'onde hors-plan. De plus, l'exaltation de la diffusion est résonante

et reliée au caractère artificiel du métamatériau. En général la diffusion d'une surface rugueuse se fait dans une bande spectrale large.

Cette première exploration de la diffusion résonante sur un ensemble de MIM est un travail générique applicable à beaucoup de systèmes. Ainsi dans le dernier chapitre, j'ai d'abord présenté un autre type de nanoantenne, le sillon gravé dans l'or. Cette antenne présente des similitudes avec l'antenne MIM, notamment en ce qui concerne le phénomène de résonance. La géométrie de cette antenne étant plus simple que l'empilement MIM, moyennant quelques approximations, j'ai présenté un code de résolution directe des équations de Maxwell. Grâce à cet outil de simulation plus rapide que la méthode modale, j'ai pu étudier plusieurs configurations de sillons pour ensuite déterminer une géométrie telle que la métasurface soit la plus diffusante possible (plus de 90%). Suite à cela, j'ai étudié la structure dite bi-sillon, composée de deux sillons aux géométries différentes. Cette structure permet d'avoir deux pics de diffusion résonante et dont l'espacement peut être contrôlé par la géométrie des sillons. Cela nous a ouvert la porte vers la conception numérique d'une structure multi-sillon diffusante large bande paramétrable.

Les perspectives de mon travail sont principalement le passage en 2D, ce qui représente d'une part un challenge numérique car les temps de calcul vont grandement augmenter, mais également expérimental puisque l'outil de caractérisation 1D (planaire) est insuffisant et il faut pouvoir passer à une caractérisation dans toute le demi-espace supérieur du métamatériau. Par ailleurs, une métasurface 2D permettra de se pencher plus précisément sur les aspects applicatifs. En effet, la réalisation de métasurfaces désordonnées par des méthodes d'auto-organisation ou en utilisant des colloïdes permet la fabrication de métamatériaux à grande échelle avec des avantages en termes de coût et de durée de fabrication. A ce titre, cela ouvrira la voie à la réalisation de large surface de camouflage dont le principe réside dans la perte d'information d'un système de détection.

Bibliographie

- AYDIN, Koray et al. « Effect of disorder on magnetic resonance band gap of split-ring resonator structures ». In : *Optics Express* 12.24 (2004), p. 5896-5901.
- BERTIN, Herve et al. « Correlated disordered plasmonic nanostructures arrays for augmented reality ». In : *ACS photonics* 5.7 (2018), p. 2661-2668.
- BOUCHON, P. « Ingénierie d'indice optique à base de nanostructures métalliques ». Thèse de doct. Ecole polytechnique, 2011.
- BOUCHON, P. et al. « Fast modal method for subwavelength gratings based on B-splines formulation ». In : *Journal of the Optical Society of America A* 27.4 (2010), p. 696-702.
- BOUCHON, P. et al. « Total funneling of light in high aspect ratio plasmonic nanoresonators ». In : *Applied Physics Letters* 98 (2011), p. 191109.
- BOUCHON, Patrick et al. « Wideband omnidirectional infrared absorber with a patchwork of plasmonic nanoantennas ». In : *Optics Letters* 37.6 (2012), p. 1038-1040.
- BOZHEVOLNYI, Sergey I et al. « Channel plasmon subwavelength waveguide components including interferometers and ring resonators ». In : *Nature* 440.7083 (2006), p. 508-511.
- BURROWS, Nathan D et al. « Understanding the seed-mediated growth of gold nanorods through a fractional factorial design of experiments ». In : *Langmuir* 33.8 (2017), p. 1891-1907.
- CHANDA, Debashis et al. « Large-area flexible 3D optical negative index metamaterial formed by nanotransfer printing ». In : *Nature nanotechnology* 6.7 (2011), p. 402-407.
- CHEVALIER, Paul et al. « Absorbing metasurface created by diffractionless disordered arrays of nanoantennas ». In : *Applied Physics Letters* 107.25 (2015), p. 251108.

- CHEVALIER, Paul et al. « Electromagnetic modelization of spherical focusing on a one-dimensional grating thanks to a conical B-spline modal method ». In : *JOSA A* 31.8 (2014), p. 1692-1697.
- CHOI, Chulsoo et al. « Metasurface with nanostructured Ge₂Sb₂Te₅ as a platform for broadband-operating wavefront switch ». In : *Advanced Optical Materials* 7.12 (2019), p. 1900171.
- CHOU, Stephen Y et al. « Sub-10 nm imprint lithography and applications ». In : *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures Processing, Measurement, and Phenomena* 15.6 (1997), p. 2897-2904.
- COLLIN, Stéphane, Fabrice PARDO et Jean-Luc PELOUARD. « Waveguiding in nanoscale metallic apertures ». In : *Optics Express* 15.7 (2007), p. 4310-4320.
- CUI, Y. et al. « Plasmonic and metamaterial structures as electromagnetic absorbers ». In : *Laser & Photonics Reviews* 8.4 (2014), p. 495-520.
- DE BAERE, T et F DESCHAMPS. « New tumor ablation techniques for cancer treatment (microwave, electroporation) ». In : *Diagnostic and interventional imaging* 95.7-8 (2014), p. 677-682.
- DE BOOR, C. « On calculating with B-splines ». In : *J. Approx. Theory* 6.1 (1972), p. 50-62.
- DECKMAN, HW et JH DUNSMUIR. « Natural lithography ». In : *Applied Physics Letters* 41.4 (1982), p. 377-379.
- DEPINE, R.A. et JM SIMON. « Surface impedance boundary condition for metallic diffraction gratings in the optical and infrared range ». In : *Journal of Modern Optics* 30.3 (1983), p. 313-322. ISSN : 0950-0340.
- DORFMÜLLER, Jens et al. « Fabry-Pérot resonances in one-dimensional plasmonic nanostructures ». In : *Nano letters* 9.6 (2009), p. 2372-2377.
- DRUDE, Paul. « Zur elektronentheorie der metalle ». In : *Annalen der physik* 306.3 (1900), p. 566-613.
- DUAN, Xiaoyang, Simon KAMIN et Na LIU. « Dynamic plasmonic colour display ». In : *Nature communications* 8.1 (2017), p. 1-9.
- EMERIC, Ludivine et al. « Critical coupling and extreme confinement in nanogap antennas ». In : *Optics Letters* 44.19 (2019), p. 4761-4764.
- ETEZADI, Dordaneh et al. « Nanoplasmonic mid-infrared biosensor for in vitro protein secondary structure detection ». In : *Light: Science & Applications* 6.8 (2017), e17029-e17029.
- FARADAY, M. « The Bakerian lecture: experimental relations of gold (and other metals) to light ». In : *Philosophical Transactions of the Royal Society of London* 147 (1857), p. 145-181. ISSN : 0261-0523.
- FASOLD, Stefan et al. « Disorder-enabled pure chirality in bilayer plasmonic metasurfaces ». In : *ACS Photonics* 5.5 (2018), p. 1773-1778.

BIBLIOGRAPHIE

- GLASSER, Otto. *Wilhelm Conrad Röntgen and the early history of the Roentgen rays*. 1. Norman Publishing, 1993.
- GORKUNOV, Maxim V et al. « Effect of microscopic disorder on magnetic properties of metamaterials ». In : *Physical Review E* 73.5 (2006), p. 056605.
- GRAMOTNEV, D.K. et al. « Gap-plasmon nanoantennas and bowtie resonators ». In : *Physical Review B* 85.4 (2012), p. 045434.
- GRIFFITHS, Peter R et James A DE HASETH. *Fourier transform infrared spectrometry*. T. 171. John Wiley & Sons, 2007.
- HAO, J., L. ZHOU et M. QIU. « Nearly total absorption of light and heat generation by plasmonic metamaterials ». In : *Physical Review B* 83.16 (2011), p. 165107.
- HAO, J. et al. « High performance optical absorber based on a plasmonic metamaterial ». In : *Applied Physics Letters* 96.25 (2010), p. 251104. ISSN : 0003-6951.
- HERSCHEL, William. « Experiments on the refrangibility of the invisible rays of the sun ». In : *Philosophical Transactions of the Royal Society of London* 90 (1800), p. 284-292.
- HERTZ, Heinrich. *Electric waves: being researches on the propagation of electric action with finite velocity through space*. Dover Publications, 1893.
- HOLLOWAY, Christopher L et al. « An overview of the theory and applications of metasurfaces: The two-dimensional equivalents of metamaterials ». In : *IEEE Antennas and Propagation Magazine* 54.2 (2012), p. 10-35.
- HOLSTEEN, Aaron L et al. « Purcell effect for active tuning of light scattering from semiconductor optical antennas ». In : *Science* 358.6369 (2017), p. 1407-1410.
- HSU, C-P Sherman et al. « Infrared spectroscopy ». In : *Handbook of instrumental techniques for analytical chemistry* 247 (1997), p. 277.
- HU, Ting et al. « Demonstration of color display metasurfaces via immersion lithography on a 12-inch silicon wafer ». In : *Optics express* 26.15 (2018), p. 19548-19554.
- JAKŠIĆ, Zoran et al. « Nanofabrication of negative refractive index metasurfaces ». In : *Microelectronic engineering* 83.4-9 (2006), p. 1786-1791.
- KAHN, Joseph M et John R BARRY. « Wireless infrared communications ». In : *Proceedings of the IEEE* 85.2 (1997), p. 265-298.
- KARPOV, SV et al. « Effect of defects of plasmon resonance colloidal crystals on their extinction spectra ». In : *Optics and Spectroscopy* 109.3 (2010), p. 372-378.
- KERN, Johannes et al. « Electrically driven optical antennas ». In : *Nature Photonics* 9.9 (2015), p. 582-586.
- KOECHLIN, C. et al. « Analytical description of subwavelength plasmonic MIM resonators and of their combination ». In : *Optics express* 21.6 (2013), p. 7025-7032.
- LAL, Surbhi, Stephan LINK et Naomi J HALAS. « Nano-optics from sensing to waveguiding ». In : *Nature photonics* 1.11 (2007), p. 641-648.

- LALANNE, P. et al. « One-mode model and Airy-like formulae for one-dimensional metallic gratings ». In : *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics* 2 (2000), p. 48.
- LE PERCHEC, J. et al. « Why metallic surfaces with grooves a few nanometers deep and wide may strongly absorb visible light ». In : *Physical Review Letters* 100.6 (2008), p. 66408.
- LÉVÊQUE, G. et O.J.F. MARTIN. « Tunable composite nanoparticle for plasmonics ». In : *Optics Letters* 31.18 (2006), p. 2750-2752. ISSN : 1539-4794.
- LI, Jianxiong et al. « Electrically-controlled digital metasurface device for light projection displays ». In : *Nature communications* 11.1 (2020), p. 1-7.
- LI, L. et C.W. HAGGANS. « Convergence of the coupled-wave method for metallic lamellar diffraction gratings ». In : *Journal of the Optical Society of America A* 10.6 (1993), p. 1184-1189.
- LIN, Burn Jeng. « Deep UV lithography ». In : *Journal of vacuum science and technology* 12.6 (1975), p. 1317-1320.
- LINDNER, JKN, B GEHL et B STRITZKER. « Shape modifications of self-organised colloidal silica nanomasks on silicon ». In : *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 242.1-2 (2006), p. 167-169.
- LIU, Na et al. « Three-dimensional photonic metamaterials at optical frequencies ». In : *Nature materials* 7.1 (2008), p. 31-37.
- LIU, X. et al. « Infrared spatial and frequency selective metamaterial with near-unity absorbance ». In : *Physical Review Letters* 104.20 (2010), p. 207403. ISSN : 1079-7114.
- LYNCH, David W et WR HUNTER. « Comments on the optical constants of metals and an introduction to the data for several metals ». In : *Handbook of optical constants of solids*. Elsevier, 1997, p. 275-367.
- MAKHSIYAN, M. « Nano-émetteurs thermiques multi-spectraux ». Thèse de doct. Ecole polytechnique, 2017.
- MAKHSIYAN, Mathilde et al. « Shaping the spatial and spectral emissivity at the diffraction limit ». In : *Applied Physics Letters* 107.25 (2015), p. 251103.
- MARKEL, Vadim A. « Divergence of dipole sums and the nature of non-Lorentzian exponentially narrow resonances in one-dimensional periodic arrays of nanospheres ». In : *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 38.7 (2005), p. L115.
- MARKEL, Vadim A et Andrey K SARYCHEV. « Propagation of surface plasmons in ordered and disordered chains of metal nanospheres ». In : *Physical Review B* 75.8 (2007), p. 085426.
- MAYER, Martin et al. « Colloidal Self-Assembly Concepts for Plasmonic Metasurfaces ». In : *Advanced Optical Materials* 7.1 (2019), p. 1800564.
- METZGER, Bernd et al. « Third-harmonic spectroscopy and modeling of the nonlinear response of plasmonic nanoantennas ». In : *Optics letters* 37.22 (2012), p. 4741-4743.

BIBLIOGRAPHIE

- MIE, Gustav. « Contributions to the optics of diffuse media, especially colloid metal solutions ». In : *Ann. Phys* 25 (1908), p. 377-445.
- MIYAMARU, Fumiaki et al. « Three-dimensional bulk metamaterials operating in the terahertz range ». In : *Applied Physics Letters* 96.8 (2010), p. 081105.
- MIYAZAKI, H.T. et al. « Thermal emission of two-color polarized infrared waves from integrated plasmon cavities ». In : *Applied Physics Letters* 92 (2008), p. 141114.
- MOHARAM, MG et al. « Formulation for stable and efficient implementation of the rigorous coupled-wave analysis of binary gratings ». In : *Journal of the Optical Society of America A* 12.5 (1995), p. 1068-1076.
- MOREAU, Antoine et al. « Controlled-reflectance surfaces with film-coupled colloidal nanoantennas ». In : *Nature* 492.7427 (2012), p. 86-89.
- MURRAY, W Andrew et William L BARNES. « Plasmonic materials ». In : *Advanced materials* 19.22 (2007), p. 3771-3782.
- NIELSEN, Michael G et al. « Efficient absorption of visible radiation by gap plasmon resonators ». In : *Optics express* 20.12 (2012), p. 13311-13319.
- PALIK, E.D. et G. GHOSH. *Handbook of optical constants of solids*. Academic press, 1985.
- PARDO, F et al. « Light Funneling Mechanism Explained by Magnetoelectric Interference ». In : *Physical Review Letters* 107.9 (2011), p. 93902.
- PENDRY, JB. « A chiral route to negative refraction ». In : *Science* 306.5700 (2004), p. 1353-1355.
- PENDRY, John B et al. « Extremely low frequency plasmons in metallic mesostructures ». In : *Physical review letters* 76.25 (1996), p. 4773.
- RAYLEIGH, Lord. « On the dynamical theory of gratings ». In : *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character* 79.532 (1907), p. 399-416.
- REGMI, Raju et al. « Planar optical nanoantennas resolve cholesterol-dependent nanoscale heterogeneities in the plasma membrane of living cells ». In : *Nano letters* 17.10 (2017), p. 6295-6302.
- RING, EFJ et Kurt AMMER. « Infrared thermal imaging in medicine ». In : *Physiological measurement* 33.3 (2012), R33.
- RITCHIE, Rufus H. « Plasma losses by fast electrons in thin films ». In : *Physical review* 106.5 (1957), p. 874.
- ROSS, Michael B, Chad A MIRKIN et George C SCHATZ. « Optical properties of one-, two-, and three-dimensional arrays of plasmonic nanostructures ». In : *The journal of physical chemistry C* 120.2 (2016), p. 816-830.

- RUSSELL, Edgar E et Ely E BELL. « Measurement of the optical constants of crystal quartz in the far infrared with the asymmetric Fourier-transform method ». In : *JOSA* 57.3 (1967), p. 341-348.
- RÜTING, Felix. « Plasmons in disordered nanoparticle chains: localization and transport ». In : *Physical Review B* 83.11 (2011), p. 115447.
- SAU, Tapan K et Catherine J MURPHY. « Seeded high yield synthesis of short Au nanorods in aqueous solution ». In : *Langmuir* 20.15 (2004), p. 6414-6420.
- SCHURIG, David et al. « Metamaterial electromagnetic cloak at microwave frequencies ». In : *Science* 314.5801 (2006), p. 977-980.
- SHADRIVOV, Ilya V et al. « Scattering of electromagnetic waves in metamaterial superlattices ». In : *Applied Physics Letters* 90.20 (2007), p. 201919.
- SHELBY, Richard A, David R SMITH et Seldon SCHULTZ. « Experimental verification of a negative index of refraction ». In : *science* 292.5514 (2001), p. 77-79.
- SHI, Wen-Bo et al. « Strong localization of surface plasmon polaritons with engineered disorder ». In : *Nano letters* 18.3 (2018), p. 1896-1902.
- SŁOWIK, Karolina et al. « Strong coupling of optical nanoantennas and atomic systems ». In : *Physical Review B* 88.19 (2013), p. 195414.
- SMITH, David Ryan et al. « Gradient index metamaterials ». In : *Physical Review E* 71.3 (2005), p. 036609.
- SOUN, Léna et al. « Experimental demonstration of second-harmonic generation in high χ^2 metasurfaces ». In : *Optics Letters* 46.6 (2021), p. 1466-1469.
- STEWART, Matthew E et al. « Nanostructured plasmonic sensors ». In : *Chemical reviews* 108.2 (2008), p. 494-521.
- SULLIVAN, Dennis M. *Electromagnetic simulation using the FDTD method*. John Wiley & Sons, 2013.
- TOMMILA, Juha et al. « Nanostructured broadband antireflection coatings on AlInP fabricated by nanoimprint lithography ». In : *Solar Energy Materials and Solar Cells* 94.10 (2010), p. 1845-1848.
- TRETYAKOV, Sergei et al. « Waves and energy in chiral nihility ». In : *Journal of electromagnetic waves and applications* 17.5 (2003), p. 695-706.
- VALENTINE, Jason et al. « Three-dimensional optical metamaterial with a negative refractive index ». In : *nature* 455.7211 (2008), p. 376-379.
- VAN DER COPUT, Johannes. « Verteilungsfunktionen i & ii ». In : *Nederl. Akad. Wetensch. Proc. T.* 38. 1935, p. 1058-1066.
- VESELAGO, Viktor G. « Electrodynamics of substances with simultaneously negative and ». In : *Usp. Fiz. Nauk* 92 (1967), p. 517.

BIBLIOGRAPHIE

- VILLARD, MM. « Sur la réflexion et la réfraction des rayons cathodiques et des rayons déviables du radium ». In : *CR Acad. Sci. Paris* 130 (1900), p. 1010.
- WANG, Jian et al. « Direct nanoimprint of submicron organic light-emitting structures ». In : *Applied Physics Letters* 75.18 (1999), p. 2767-2769.
- WANG, Weijia et al. « The rich photonic world of plasmonic nanoparticle arrays ». In : *Materials today* 21.3 (2018), p. 303-314.
- WILLETS, Katherine A et Richard P VAN DUYN. « Localized surface plasmon resonance spectroscopy and sensing ». In : *Annu. Rev. Phys. Chem.* 58 (2007), p. 267-297.
- WOOD, Robert Williams. « XLII. On a remarkable case of uneven distribution of light in a diffraction grating spectrum ». In : *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* 4.21 (1902), p. 396-402.
- WRIGHT, EL et ED REESE. « Detection of the cosmic infrared background at 2.2 and 3.5 microns using DIRBE observations ». In : *The Astrophysical Journal* 545.1 (2000), p. 43.
- XIONG, Xiang et al. « Construction of a chiral metamaterial with a U-shaped resonator assembly ». In : *Physical Review B* 81.7 (2010), p. 075119.
- ZHANG, Feifei et al. « Influence of order-to-disorder transitions on the optical properties of the aluminum plasmonic metasurface ». In : *Nanoscale* 12.45 (2020), p. 23173-23182.
- ZHELUDEV, Nikolay I. « A roadmap for metamaterials ». In : *Optics and Photonics News* 22.3 (2011), p. 30-35.
- ZOU, Shengli, Nicolas JANEL et George C SCHATZ. « Silver nanoparticle array structures that produce remarkably narrow plasmon lineshapes ». In : *The Journal of chemical physics* 120.23 (2004), p. 10871-10875.
- ZOU, Shengli et George C SCHATZ. « Narrow plasmonic/photonic extinction and scattering line shapes for one and two dimensional silver nanoparticle arrays ». In : *The Journal of chemical physics* 121.24 (2004), p. 12606-12612.
- ZUBRITSKAYA, Irina et al. « Magnetic control of the chiroptical plasmonic surfaces ». In : *Nano letters* 18.1 (2018), p. 302-307.

Titre : Ingénierie de métasurfaces désordonnées pour le contrôle de propriétés optiques.

Mots clés : Infrarouge, nanoantennes, plasmonique, désordre

Résumé : Les métasurfaces sont des objets artificiels qui offrent un contrôle sur les propriétés optiques en absorption, en phase et en polarisation. Elles sont généralement conçues à partir d'antennes de dimensions sub-longueur d'onde, répétées périodiquement pour couvrir de grandes surfaces. La périodicité simplifie la conception théorique et l'analyse expérimentale, mais elle introduit de la diffraction qui peut être néfaste aux applications, et par ailleurs elle n'est pas compatible avec toutes les techniques de fabrication. Les travaux de cette thèse se sont portés sur l'influence du désordre sur le comportement absorbant et radiatif de métasurfaces utilisant des résonateurs à gap plasmon comme brique de base. Dans une première partie, la diffusion causée par l'introduction de désordre dans un ensemble 1D de nano-antennes Métal-Isolant-Métal (MIM) a été étudiée à l'aide d'une méthode modale. L'énergie est redistribuée de la diffraction ou de l'absorption vers la diffusion lorsqu'on introduit un

désordre de position. Cette diffusion a la particularité d'être signée spectralement, et n'existe pas en dehors de la résonance de l'antenne. Ces prédictions théoriques ont été validées expérimentalement en exploitant le fait que la diffusion se fait uniquement dans un plan pour un réseau unidimensionnel. Dans une deuxième partie, les résultats ont été étendus à un autre type de nano-antenne composé de sillons métalliques. Cette configuration se décrit par un modèle monomode, rendant possible une résolution électromagnétique quasi-analytique, qui de fait est plus rapide que des méthodes exactes. Des configurations plus complexes de désordre de résonateurs ont pu être étudiées. Ainsi, des combinaisons de résonateurs ayant des longueurs d'onde différentes, peuvent se voir affecter des désordres de position différents. Nous avons montré que le comportement d'une combinaison désordonnée peut se déduire des comportements individuels, étendant des résultats démontrés sur les combinaisons périodiques.

Title : Disordered metasurface engineering for the control of optical properties

Keywords : Infrared, nanoantennas, plasmonics, disorder

Abstract : Metasurfaces are artificial objects that offer control over optical properties in absorption, phase and polarization. They are usually designed from sub-wavelength antennas, repeated periodically to cover large areas. The periodicity simplifies the theoretical design and experimental analysis, but it introduces diffraction that can be detrimental to the applications, moreover it is not compatible with all fabrication techniques. The work of this thesis focused on the influence of disorder on the absorbing and radiative behavior of metasurfaces using plasmon gap resonators as building blocks. In the first part, the scattering caused by the introduction of disorder in a 1D ensemble of Metal-Insulator-Metal (MIM) nano-antennas has been studied using a modal method. Energy is redistributed from diffraction or absorption to diffuse reflection when positional disorder is introduced. This

diffuse reflection has the particularity of being spectrally signed, and does not exist outside the resonance of the antenna. These theoretical predictions have been validated experimentally by exploiting the fact that the diffuse reflection is only in one plane for a one-dimensional array. In a second part, the results have been extended to another type of nano-antenna composed of metallic grooves. This configuration is described by a single mode model, making possible a quasi-analytical electromagnetic resolution, which is indeed faster than exact methods. More complex disordered pattern can be studied. Thus, combinations of resonators with distinct wavelengths can be assigned to various positional disorder. We have shown that the behavior of a disordered combination can be deduced from the individual behaviors, extending the results demonstrated on periodic combinations.